

報 文

秋田県潟上市天王浜山地区で無人ヘリコプターにて松林に
散布されたフェニトロチオン MC の飛散状況[†]

市川有二郎, 佐々木碧, 田畑勝洋*, 本山直樹**

千葉大学大学院園芸学研究科生態制御化学研究室

* 岐阜県立森林文化アカデミー

(平成 20 年 6 月 2 日受付, 平成 20 年 10 月 2 日受理)

Monitoring drift of fenitrothion MC, following application by a radio-controlled helicopter on
pine trees in Akita prefecture

Yujiro ICHIKAWA, Midori SASAKI, Katsuhiko TABATA* and Naoki MOTOYAMA**

*Laboratory of Pesticide Toxicology, Graduate school of Horticulture, Chiba University,
648 Matsudo, Matsudo, Chiba 271-8510, Japan*** Gifu Academy of Forest Science and Culture, 88 Sodai, Mino, Gifu 501-3714, Japan**** Present address: Nodai Research Institute, Tokyo University of Agriculture,
1-1-1 Sakuragaoka, Setagaya-ku, Tokyo 156-8502, Japan*

The present study monitored spray drift, deposition and residues on branches and leaves of pine trees over time after Sumipine MC[®] was applied by a radio-controlled helicopter over pine trees at Katagami-shi Tenno, Hamayama-chiku, Akita prefecture in 2006. As bio-monitoring of the spray drift, the mortality of the housefly in various locations was also observed. Fenitrothion in the atmosphere was trapped at several locations within and around the sprayed area using a Sep-Pak PS-Air cartridge, which was placed horizontally at heights of 15, 8 and 1.5 m above the ground. All atmospheric fenitrothion detected was below the permissible limit of 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, except within the sprayed area. These results imply that the Sumipine MC[®] spray poses little health risk to neighboring inhabitants. © Pesticide Science Society of Japan

Keywords: radio-controlled helicopter, fenitrothion MC, drift, permissible limit, health risk.

緒 言

松枯れ病の予防措置として、我国では 1977 年に「松くい虫防除特別措置法」(5 年間時限立法)¹⁾ が制定されて以来、航空機、特に無人ヘリコプターを用いてマツノサイセンチュ

ウを伝播するマツノマダラカミキリを防除する方法が採用されてきた。しかし、有人ヘリコプターによる薬剤散布は、広大な面積を効率よく散布できるという利点がある反面、樹冠部のさらに約 15 m 上空という高度で行われるため、周辺環境への薬剤の飛散が問題視され、周辺住民や養蜂家などの反対運動に直面し、群馬県では 2002 年に有人ヘリコプターによる薬剤散布を中止した経緯がある²⁾。最近、地域によっては、より飛散の少ないと考えられる地上散布や無人ヘリコプターを用いた散布に切り替えるところが増えてきた。しかし、地上散布や無人ヘリコプターで散布された薬剤の飛散に関する情報は必ずしも十分ではない、当研究

[†] 本論文の内容の一部は林野庁主催「無人ヘリによる松くい虫防除に関する運用基準作成のための検討会」および日本農薬学会第 32 回大会にて報告を行った。

**現在の連絡先：〒 156-8502 東京都世田谷区桜丘 1-1-1 東京農業大学総合研究所

E-mail: n3motoya@nodai.ac.jp

© Pesticide Science Society of Japan

室では、地上散布について2004年と2005年に群馬県でスパウターと呼ばれる車載大型動力噴霧機を用いて散布されたアセタミプリドの飛散実態を調査し³⁾、無人ヘリコプター散布については2005年に静岡県でフェニトロチオン乳剤の飛散実態について調査⁴⁾を実施してきた。本研究は、2006年に秋田県で松林保護目的のために無人ヘリコプターを用いてフェニトロチオンMC^{5,6)}の大規模散布が実施された機会に、飛散実態を調査することを目的として行ったものである。調査項目は、散布区域内および周辺における、薬剤(有効成分のフェニトロチオンならびにその分解物で、本体より活性が高いその活性化物のフェニトロオクソン)の、時系列での散布位置からの距離別、地上からの高さ別の気中濃度と、落下量、イエバエ指標生物として用いた飛散のバイオモニタリング、ならびに松の枝葉に付着した薬剤量を定量分析した。

材料と方法

1. 散布時期・場所ならびに調査項目

2006年6月25日に秋田県潟上市天王浜山地区夕日の松原沿岸の松林に対して、松くい虫防除の目的で、無人ヘリコプター(ヤマハ製RMax Type II, 液剤散布装置L15, ヤマハ発動機株式会社)による散布が行われた。散布薬剤はフェニトロチオン23.5%を有効成分とするスミパインMCRの5倍希釈液であり、散布希釈液量30l/haであった。

夕日の松原の地形図ならびに調査地点の位置をFig. 1(国土地理院地図改変)に示した。調査地点は、散布区域内および散布区域外が含まれるように設定し、1~6は海側の境界、14と16~21は陸側の境界、22~24は陸側の境界から約100m, 25は陸側の境界から約400mの地点であった。

2. 試薬類

アセトン：和光純薬工業株式会社，試薬特級，純度99.5%

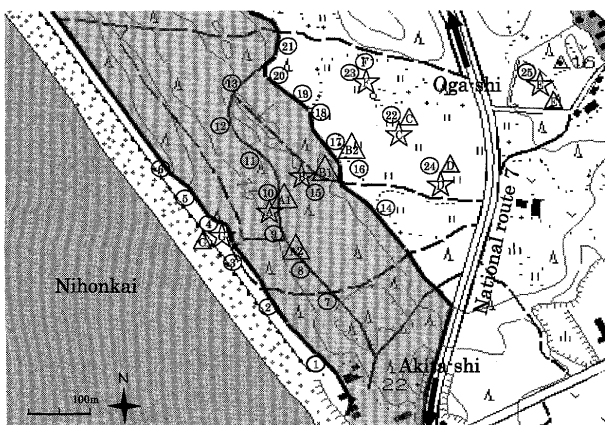


Fig. 1. The experimental site of Yuhinomatsubara, Akita prefecture.

■: Sprayed area ☆: Air sampling point ○: Deposition sampling point △: Bio-assay point

Table 1. Analytical conditions for GC-FPD

GC	Hitachi G-5000
FPD Detector	FPD detector exclusive use for Hitachi G-5000
Column	Hp-1 (15 m×0.53 mm I.D. df=3.0 μm)
Carrier gas	He 30 ml/min
Injection temp.	250°C
Oven temp.	170°C (1 min)→(2.5°C/min)→175°C (1 min) →(5°C/min)→180°C (1 min)
Detector temp.	250°C
Make up gas N ₂	115 kPa
Make up gas O ₂	75 kPa
Make up gas H ₂	100 kPa
Sample amount	1 μl

アセトニトリル：和光純薬工業株式会社，試薬特級，純度98%

トルエン：和光純薬工業株式会社，試薬特級，純度99%

フェニトロチオン原体：住友化学株式会社，純度95.5%

フェニトロオクソン原体：関東化学株式会社，残留農薬試験用，純度96%

添加回収率用スミパインMC[®]：住友化学株式会社，Lot No.050202，フェニトロチオン有効成分23.5%

ろ紙：東洋ろ紙No. 1

大気捕集用カートリッジ Sep-Pak PS-Air：日本ウォーターズ株式会社

Envi-Carb/PSA カートリッジ：Supelco 株式会社

3. 機器類

小型ポンプ：柴田科学株式会社製 MP-Σ300 型

流量校正装置：株式会社シナガワ製 W-NK-0.5A

超音波洗浄器：株式会社エスエヌディ US-105

ガスクロマトグラフ-炎光光度検出器 (GC-FPD)：日立化成テクノサービス株式会社 G-5000

なお、GC-FPD の分析条件を Table 1 に示した。

4. 気中濃度の調査方法

気中濃度の調査地点 A~G で、地上約 1.5 m の高さに設置した小型ポンプにカートリッジ Sep-Pak PS-Air を水平に接続した。また、A, B, C, D, E 地点では、高さ別に大気を捕集する目的で、気象観測用バルーンに小型ポンプを固定し、約 15 および 8 m の高さになるように設置し大気を捕集した。しかし調査中、気象観測用バルーンが風で煽られ均一な高さで保持されなかったため、薬剤散布中以外は正確性に欠けると判断し、高さ別の大気捕集を中止した。その後、A 地点と B 地点だけ、電柱にポンプを吊るし約 8 m の高さで大気捕集した。

小型ポンプの流速は、あらかじめ流量校正装置により、2 l/min に調整し、散布当日の薬剤散布中は散布開始から散布終了までの3時間半 (420 l)、それ以外は1時間 (120 l)、散布3日後は2時間半 (300 l) 通気した。通気後のカートリッジは、防湿ポリ袋に入れ氷冷状態にして研究室へ持ち帰った。

カートリッジに吸着された薬剤の溶出は、5 ml×3 回のアセトンで行った。窒素乾固後、最終液量を 1 ml に定容し、GC-FPD で分析定量した。

フェニトロチオン原体とフェニトロオクソン原体を用いてアセトンで 1, 0.75, 0.5, 0.25, 0.01 および 0.005 ppm の溶液を調製した。これらの標準溶液を GC-FPD に 1 μ l 注入し、絶対検量線を作成した。カートリッジから抽出した分析試料を GC-FPD に 1 μ l 注入し、予め作成している検量線よりフェニトロチオンおよびフェニトロオクソンの定量を行った。

装置の定量限界は S/N 比が 10 となる濃度とし、フェニトロチオンにおける定量限界は 0.09 μ g/m³ で、フェニトロオクソンは 0.21 μ g/m³ であった。添加回収率試験ではスミパイン MC[®] を水で希釈し、フェニトロチオン濃度 3.1 ppm, 4.7 ppm, 9.4 ppm を Sep-Pak PS-Air に添加した。各々の濃度における添加回収率 ($n=3$) は 107 \pm 8.2%, 112 \pm 5.4%, 104 \pm 4.5% となり、良好な結果が得られた。

5. 落下量の調査方法

落下量は Fig. 1 に示した 1~25 の地点の地面に、ろ紙を敷いた直径 9 cm のガラスシャーレを 3 個ずつ置き、落下してくる薬剤を捕集した。設置 (暴露) 時間は、散布中は 3.5 時間、散布 4.5 時間後と 8.5 時間後は各 1 時間であった。各暴露時間後にシャーレを回収し、蓋をしてパラフィルムで包み、氷冷状態にして研究室へ持ち帰った。

抽出は、ガラスシャーレ上のろ紙を細かく切断し、ピンセットで三角フラスコに入れた後、50 ml のアセトンを加えて行った。溶液を 5 分間超音波洗浄器で振とう後、綿栓ろ過を行った。ろ紙をピンセットで三角フラスコに戻し、再度 50 ml アセトンを加え 5 分間超音波洗浄器で振とう、綿栓ろ過を行った。ろ液をロータリーエバポレーターで減圧濃縮し、窒素乾固後、アセトンを加え 1 ml に定容し、大気試料同様、GC-FPD で分析した。

フェニトロチオン、フェニトロオクソンにおける定量限界は S/N 比が 10 となる濃度とし、それぞれ 0.14 ng/cm², 0.33 ng/cm² であった。なお、添加回収率試験はスミパイン MC[®] を水で希釈し、フェニトロチオン濃度 1 ppm, 2 ppm, 5 ppm をろ紙に添加した。各々の濃度における添加回収率 ($n=3$) は 87 \pm 2.4%, 82 \pm 3.5%, 97 \pm 4.2% となり、良好な結果が得られた。

6. CSMA 系イエバエを用いたバイオモニタリング

薬剤の飛散状況を感じ性の高い昆虫を用いてバイオモニタリングするために、CSMA 系イエバエ *Musca domestica* L. の雌雄混合の成虫を供試した。CSMA 系イエバエは、アメリカ合衆国ノースカロライナ州立大学から入手後、当研究室で累代飼育している個体群を用いた。1998 年に局所用法で得られたフェニトロチオンの LD₅₀ は δ : 0.016 μ g/fly, η : 0.027 μ g/fly⁷⁾ であった。成虫 10 頭ずつを金網 (メッシュ: 18) で蓋をした容器に入れ、Fig. 1 で示した生物検定調査地点の地面に 2 個ずつ設置した。散布終了 1 時間後に回収して、水と砂糖を与えて室内に保持し 48 時間後の生死虫数を記録した。コントロール区の生存虫率と処理区の生存虫率を求め、Abbot の式⁸⁾ に従い補正死亡率を得た。

7. 松の枝葉の残留濃度

松の枝葉は、散布区域内の松から新梢部 (当年枝と 1 年枝を含む) を採取し、散布当日、散布 1 日後、2 日後、1 週間後、2 週間後、3 週間後、1 ヶ月後まで薬剤残留濃度の調査を行った。フェニトロチオンのマツノマダラカミキリに対する作用経路としては、散布最中の直接暴露に加えて、枝の樹皮摂食による経口の摂取と枝葉に付着した薬剤の経皮的暴露が考えられる。従って、残留濃度の分析は松の枝と葉を分けて、各々について行った。

枝は、当年枝と 1 年枝に分けて薬剤の抽出を行った。枝の抽出方法として、細かく切断した 10 g の枝を、ピンセットで三角フラスコに入れ、100 ml のアセトンを加えた。溶液を 20 分間超音波洗浄器で振とう後、綿栓ろ過を行った。綿上の枝をピンセットで三角フラスコに戻し、再度 100 ml アセトンを加え 20 分間超音波洗浄器で振とう、綿栓ろ過を行った。ろ液をロータリーエバポレーターで減圧濃縮し、窒素乾固後、アセトンを加え 20 ml に定容し、GC-FPD で測定をした。

針葉には色素などサンプル由来の夾雑物が薬剤と共に抽出されることが考えられたため、作物中残留農薬の分析法⁹⁾ を参考に抽出、クリーンアップを行った。細かく切断した 10 g の針葉を、ピンセットで三角フラスコに入れ、100 ml のアセトニトリルを加えた。溶液を 20 分間超音波洗浄器で振とう後、綿栓ろ過を行った。綿上の針葉をピンセットで三角フラスコに戻し、再度 100 ml アセトニトリルを加え 20 分間超音波洗浄器で振とう、綿栓ろ過を行った。ろ液をロータリーエバポレーターで減圧濃縮し、窒素乾固後、アセトニトリル 20 ml に定容後、5 ml を Envi-Carb/PSA カートリッジへ通液し、溶離液 (アセトニトリル: トルエン=3:1) 50 ml で溶出した。ろ液をロータリーエバポレーターおよび窒素気流下で濃縮し、アセトン 20 ml に定容して GC-FPD で定量した。

フェニトロチオン、フェニトロオクソンの定量限界は S/N

比が 10 となる濃度とし、それぞれ 1.03 ng/g, 2.49 ng/g であった。また、添加回収率試験はスミパイン MC[®] を水で希釈し、枝と葉におけるフェニトロチオン濃度が 1 ppm, 5 ppm となるように添加した。各々の濃度における添加回収率 ($n=3$) は枝で $101 \pm 2.2\%$, $97 \pm 4.1\%$ となり、針葉で $92 \pm 3.3\%$, $87 \pm 2.9\%$ であった。

結果と考察

1. 気中濃度

分析用標準溶液と大気試料の GC-FPD のクロマトグラムを Fig. 2 に示した。フェニトロチオンは光分解によって、フェニトロオクソン、カルボキシフェニトロチオン、カルボキシフェニトロオクソン、3-メチル-4-ニトロフェノール、3-カルボキシ-4-ニトロフェノール等の分解物質の生成が報告されている¹⁰⁻¹²⁾。一般的に、これらの物質は不安定かつ易分解性として知られている。しかし、その中の、フェニトロオクソンはフェニトロチオンの数百倍強い ChE 阻害活性を持つことが知られているので^{13,14)}、分析定量する対象物質として、スミパイン MC[®] の有効成分フェニトロチオンの他にフェニトロオクソンを加えた。

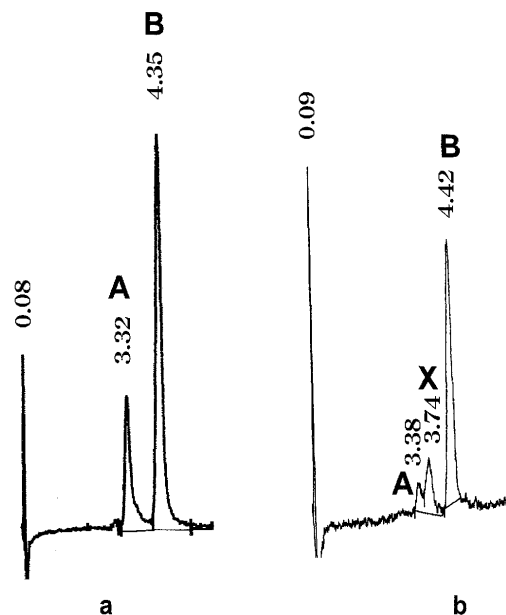


Fig. 2. A typical GC-FPD chromatogram of (a) standard solution of fenitrothion and fenitro-oxon at 1 ppm each and (b) an air sample. A: fenitro-oxon B: fenitrothion X: unknown

Table 2. Fenitrothion concentration in air following the application by a radio-controlled helicopter at Yuhinomatsubara on June 26 and 28, 2006^{a)}

Date	June 26, 2006				June 28, 2006	
	4:30–7:00 am	9:00–10:00 am	1:00–2:00 pm	3:00–4:00 pm	9:30 am–12:00 pm	10:30 am–1:00 pm
Sampling time						
Interval after application (h)		4.5–5.5	8.5–9.5	10.5–11.5	53.5–55.5	54.0–56.5
Site	Height (m)	During application				
A	15	0.44	2.54	—	—	—
	8	0.66	1.80	—	—	(0.76) ^{b)}
	1.5	6.70	1.22	1.41	1.77	—
B	15	0.31	1.07	—	—	—
	8	0.30	1.14	—	(1.10) ^{b)}	—
	1.5	0.32	2.62	0.80	0.87	0.28
C	15	1.75	1.19	—	—	—
	8	—	2.08	—	—	—
	1.5	0.37	2.50	1.89	3.82	0.39
D	15	1.17	2.16	—	—	—
	8	1.29	0.89	—	—	—
	1.5	1.67	4.08	3.73	0.51	1.15
E	15	1.31	3.34	—	—	—
	8	1.14	3.05	—	—	—
	1.5	1.25	2.80	1.54	1.54	—
F	1.5	0.83	2.11	2.40	2.29	0.75
G	1.5	1.68	3.04	1.81	3.63	1.32

^{a)} Data are presented in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Limit of quantitation was $0.09 \mu\text{g}/\text{m}^3$. —: Not determined. ^{b)} Pump was fixed to electric pole at 8 m height from ground.

クロマトグラムに見られる通り、大気試料からフェニトロチオンとフェニトロオクソンの間に標準溶液では未確認な化合物のピーク X が検出された。分析は、リン化合物に対する高い選択性を示す FPD 検出器を用いていることから、X はリン化合物である可能性が高く、フェニトロチオンやフェニトロオクソン由来の分解物であると思われるが、同定はしなかった。

フェニトロチオンの気中濃度を測定した結果は Table 2 に示した。また、気象庁が公表する気象観測データとして散布区域から最も近い男鹿市における散布当日（6月26日）から散布3日後（6月28日）までの気象観測データ（風向・風速・気温・降雨量）を Table 3 に示した。検出されたフェニトロチオンの気中濃度は、散布区域内では $0.28\sim 12.07\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲であり、平均は $1.85\pm 0.60\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、周辺地域では $0.37\sim 4.08\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲であり、平均は $1.87\pm 0.16\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

最も高いフェニトロチオンの濃度 $12.07\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ を検出した調査地点 B は散布区域内であり、ポンプを高さ 8 m の電柱に固定した地点であった。MC の環境中における光分解速度は膜物質に覆われているために、乳剤と比較して水中では 1.9~4.4 倍、土壌表面では 3~20 倍遅くなるという報告⁵⁾がある。散布3日後に最も高い濃度が検出されたことから、松の枝葉上に付着した薬剤の MC が壊れて揮発したものと推察される。後述するように松の枝葉からは高濃度のフェニトロチオンが検出されたことと、高さ 8 m に設置したカートリッジの周辺には松の枝葉が多く存在していたことからこの推論が裏付けられる。

環境中から農薬が検出された場合、検出されたこと自体が健康への悪影響を意味するのではなく、基準値あるいは評価値との比較によってリスク評価が行われるべきである。環境庁（現環境省）は専門家から構成される検討会を開催し、使用量が多く、評価のための知見の集積が比較的十分な 10 種類の農薬について、生活環境における一般住民への吸入毒性に関する指針値として気中濃度評価値を定めた^{15,16)}。気中濃度評価値以下の濃度であれば、一定期間吸入し続けても人の健康に好ましくない影響が起きることはないと考えられる。また、評価値は安全と危険との明確な境界を示すものではなく、気中濃度が短時間わずかにこの値を超えることがあってもただちに人の健康に影響があるというものではない¹⁷⁾。フェニトロチオンの気中濃度評価値は $10\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ であるが^{18,19)}、本研究で散布区域内の地点 B で検出された $12.07\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ は高さ 8 m での値であるということと、一時的な濃度であることから、実質的に健康に影響を与えるものではないと推察される。

また、産業衛生学会が労働者に対して定めた職場環境における許容濃度がある。この許容濃度以下であれば、成人が 1 日 8 時間、週 40 時間労働をしても健康に影響を与えな

いと考えられる推定値であり、フェニトロチオンにおける職場環境における許容濃度は $1000\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ である²⁰⁾。本研究で検出されたフェニトロチオンの気中濃度は、職場環境における許容濃度に比べて著しく低い範囲である。

なお、周辺地域の地点 E においてもフェニトロチオンが検出されたことは興味深い。地点 E は散布区域境界から約 400 m 離れた位置であった。この地点でなぜフェニトロチオンが検出されたのかは不明であるが、MC に含まれる微小粒子が風の影響で飛散したか、散布後に水の蒸発によって粒子の“ヤセ”が起って浮遊したか、あるいは松の樹冠部に付着した MC が壊れ、フェニトロチオンがガス化して飛散した可能性が考えられるが、今後の検討課題である。なお、今回調査対象にした松林の上（北）に位置する隣接した松林では、前日 6 月 25 日に同様にフェニトロチオン散布が行われたので、その影響も考えられる。

前稿⁴⁾にフェニトロチオン気中濃度に関する過去の分析事例をまとめた。今回の調査結果に加え、これらを総括すると、今までにフェニトロチオンの生活環境における気中濃度評価値 $10\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、職場環境における許容濃度 $1000\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ を連続して超える事例はなく、周辺住民の健康に影響を及ぼす可能性は極めて低いと推察できる。

フェニトロオクソンの気中濃度を測定した結果は Table 4 に示した。調査地点と時間によっては検出限界に近い極微量のフェニトロオクソンが検出されたが、ほとんどの地点と時間で定量限界以下であった。

2. 落下量

落下量の測定結果を Table 5 に示した。散布中に散布区域周辺で検出されたフェニトロチオンの落下量は、 $12.82\sim 11135.54\ \text{ng}/\text{cm}^2$ の範囲であり、平均は $1169.72\pm 549.51\ \text{ng}/\text{cm}^2$ であった。周辺地域では $6.05\sim 1187.49\ \text{ng}/\text{cm}^2$ の範囲であり、平均は $99.29\pm 34.71\ \text{ng}/\text{cm}^2$ であった。一方、散布中に散布区域内で検出されたフェニトロオクソンの落下量は、 $0.37\sim 6.84\ \text{ng}/\text{cm}^2$ の範囲であり、平均は $1.36\pm 0.26\ \text{ng}/\text{cm}^2$ であった。周辺地域では定量限界以下~ $2.28\ \text{ng}/\text{cm}^2$ の範囲であり、平均は $0.98\pm 0.09\ \text{ng}/\text{cm}^2$ であった。

検出されたフェニトロチオン落下量のヒトへの経皮毒性のリスクを考察するために、公表されているフェニトロチオンの毒性データから推定無毒性量の値を算出した。ウサギに対して 21 日間連続投与の経皮毒性の無毒性量は $50\ \text{mg}/\text{kg}$ である²¹⁾。この値に、安全係数として種差 (1/10 倍) と個人差 (1/10 倍) および日本人の平均体重 $50\ \text{kg}$ を乗じた値に対して、日本人の平均体表面積と考えられる $1.48\ \text{m}^2$ からヒトの体表面積当たりの無毒性量を求めた値は $1690\ \text{ng}/\text{cm}^2$ となった。周辺地域における落下量の実測値はこの推定無毒性量に比べて著しく小さいことから、周辺住民への健康影響の可能性は極めて低いか、実質的にないと考え

Table 3. Wind, temperature and precipitation at Oga-shi on June 26–28, 2006

Date	Time	Wind speed (m/s)	Wind direction	Temperature (°C)	precipitation (mm)
2006 June 26, 2006	4:00 am	4	SSW	20.3	0
	5:00 am	5	SW	20.3	0
	6:00 am	5	SSW	20.4	0
	7:00 am	4	SSW	20.7	0
	8:00 am	5	SSW	21.0	0
	9:00 am	5	SSW	21.6	0
	10:00 am	6	SSW	22.2	0
	11:00 am	5	SSW	23.4	0
	12:00 pm	6	SSW	24.2	0
	1:00 pm	4	SSW	23.2	0
	2:00 pm	5	SSW	22.4	0
	3:00 pm	6	SSW	22.2	0
	4:00 pm	4	SSW	21.4	0
	5:00 pm	2	SSW	21.0	0
	6:00 pm	2	SSW	20.4	0
	7:00 pm	3	SSW	19.7	0
	8:00 pm	3	SSW	19.1	0
	9:00 pm	2	SW	18.9	0
	10:00 pm	2	SSW	17.8	0
	11:00 pm	1	SSW	18.0	0
June 27, 2006	12:00 am	3	SSW	18.5	0
	1:00 am	0	— ^{a)}	20.3	0
	2:00 am	1	SW	21.7	0
	3:00 am	3	SSW	21.9	0
	4:00 am	4	SSW	21.7	0
	5:00 am	4	SSW	21.2	0
	6:00 am	3	SSW	20.3	0
	7:00 am	3	SSW	20.5	4
	8:00 am	3	SSW	20.5	0
	9:00 am	4	SSW	20.9	0
	10:00 am	5	SSW	21.5	0
	11:00 am	5	SSW	21.5	0
	12:00 pm	6	SSW	20.9	0
	1:00 pm	5	SSW	20.9	0
	2:00 pm	6	SSW	21.1	0
	3:00 pm	5	SSW	21.3	0
	4:00 pm	5	SSW	20.8	0
	5:00 pm	3	SSW	20.9	0
	6:00 pm	3	SSW	20.7	0
	7:00 pm	3	SSW	20.8	0
8:00 pm	3	SSW	21.0	0	
9:00 pm	3	SSW	21.0	3	
10:00 pm	4	SSW	20.7	0	

Table 3. Continued

Date	Time	Wind speed (m/s)	Wind direction	Temperature (°C)	precipitation (mm)
June 27, 2006	11:00 pm	4	SSW	20.1	0
	12:00 am	4	SSW	20.0	0
June 28, 2006	1:00 am	0	— ^{a)}	14.7	0
	2:00 am	1	NE	14.3	0
	3:00 am	0	— ^{a)}	14.3	0
	4:00 am	1	NNE	14.4	0
	5:00 am	1	NE	14.7	0
	6:00 am	2	NNE	16.9	0
	7:00 am	1	SSW	19.4	0
	8:00 am	2	SSW	20.6	0
	9:00 am	2	S	23.0	0
	10:00 am	2	SSW	23.8	0
	11:00 am	3	SSW	25.1	0
	12:00 pm	2	S	26.5	0
1:00 pm	2	SSW	27.2	0	

^{a)} —: Not determined

Table 4. Fenitro-oxon concentration in air following application by a radio-controlled helicopter at Yuhinomatsubara on June 26 and 28, 2006^{a)}

Date		June 26, 2006				June 28, 2006	
Sampling time		4:30–7:00 am	9:00–10:00 am	1:00–2:00 pm	3:00–4:00 pm	9:30 am–12:00 pm	10:30 am–1:00 pm
Interval after application (h)		During application	4.5–5.5	8.5–9.5	10.5–11.5	53.5–55.5	54.0–56.5
Site	Height (m)						
A	15	N.D.	N.D.	—	—	—	—
	8	N.D.	N.D.	—	—	—	(N.D.) ^{b)}
	1.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	—	N.D.
B	15	N.D.	N.D.	—	—	—	—
	8	N.D.	N.D.	—	(N.D.) ^{b)}	—	(N.D.) ^{b)}
	1.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	—
C	15	N.D.	N.D.	—	—	—	—
	8	—	N.D.	—	—	—	—
	1.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	—
D	15	N.D.	N.D.	—	—	—	—
	8	N.D.	N.D.	—	—	—	—
	1.5	N.D.	0.73	0.65	N.D.	N.D.	—
E	15	N.D.	N.D.	—	—	—	—
	8	N.D.	N.D.	—	—	—	—
	1.5	N.D.	0.48	N.D.	N.D.	—	—
F	1.5	N.D.	N.D.	0.22	0.25	N.D.	—
G	1.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	—

^{a)} Data are presented in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Limit of quantitation was 0.21 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$). —: Not determined, N.D.: Not detected. ^{b)} Pump was fixed to electric pole at 8 m height from ground.

Table 5. Deposition of fenitrothion and fenitro-oxon on the ground following the application of Sumipine MC[®] by aradio-controlled helicopter against pine trees at Yuhinomatsubara on June 26, 2006^{a)}

Date		June 26, 2006		
Sampling time		4:30–7:00 am	9:00–10:00 am	1:00–2:00 pm
Interval after application (h)		During application	4.5–5.5	8.5–9.5
Site	Compound			
1	fenitrothion	1107.51 ± 393.65	6.38 ± 0.55	16.52 ± 0.74
	fenitro-oxon	0.59 ± 0.14	N.D. ^{b)}	0.91 ± 0.06
2	fenitrothion	413.71 ± 92.10	19.42 ± 8.23	12.89 ± 1.00
	fenitro-oxon	0.90 ± 0.21	0.37 ± 0.05	0.63 ± 0.14
3	fenitrothion	380.35 ± 52.74	39.73 ± 13.98	24.74 ± 16.29
	fenitro-oxon	0.88 ± 0.05	1.03 ± 0.49	0.45 ± 0.11
4	fenitrothion	1187.49 ± 238.73	21.32 ± 4.07	19.36 ± 13.48
	fenitro-oxon	0.70 ± 0.27	0.83 ± 0.13	0.41 ± 0.20
5	fenitrothion	840.09 ± 51.76	10.40 ± 1.40	21.12 ± 6.15
	fenitro-oxon	1.12 ± 0.37	0.50 ± 0.11	1.00 ± 0.21
6	fenitrothion	90.93 ± 9.85	16.65 ± 3.16	11.19 ± 3.07
	fenitro-oxon	0.44 ± 0.04	0.55 ± 0.16	0.64 ± 0.19
7	fenitrothion	7734.27 ± 899.93	81.43 ± 54.12	42.04 ± 13.97
	fenitro-oxon	0.95 ± 0.39	0.98 ± 0.29	0.51 ± 0.10
8	fenitrothion	11135.54 ± 106.65	124.59 ± 56.94	40.57 ± 11.26
	fenitro-oxon	3.33 ± 2.15	0.86 ± 0.20	1.12 ± 0.28
9	fenitrothion	2411.58 ± 176.67	86.69 ± 15.44	28.38 ± 8.01
	fenitro-oxon	2.03 ± 0.81	0.93 ± 0.22	0.57 ± 0.05
10	fenitrothion	300.42 ± 16.25	60.57 ± 40.50	34.31 ± 14.38
	fenitro-oxon	0.37 ± 0.03	1.39 ± 0.81	1.26 ± 0.62
11	fenitrothion	337.96 ± 23.30	15.87 ± 2.67	12.82 ± 3.45
	fenitro-oxon	1.45 ± 0.59	0.57 ± 0.15	0.65 ± 0.21
12	fenitrothion	4889.32 ± 2083.52	45.14 ± 17.72	32.80 ± 10.68
	fenitro-oxon	0.78 ± 0.08	1.64 ± 0.70	0.64 ± 0.32
13	fenitrothion	463.61 ± 29.57	22.76 ± 7.60	14.76 ± 5.62
	fenitro-oxon	1.79 ± 0.65	0.62 ± 0.19	0.65 ± 0.28
15	fenitrothion	102.31 ± 58.57	17.28 ± 10.33	38.27 ± 13.74
	fenitro-oxon	6.84 ± 4.30	0.68 ± 0.26	1.99 ± 0.87
14	fenitrothion	21.63 ± 2.02	13.88 ± 1.35	20.97 ± 6.34
	fenitro-oxon	1.85 ± 0.72	0.35 ± 0.03	0.88 ± 0.44
16	fenitrothion	40.87 ± 10.32	25.52 ± 6.64	40.37 ± 16.63
	fenitro-oxon	0.96 ± 0.46	0.59 ± 0.10	2.10 ± 1.04
17	fenitrothion	6.05 ± 0.60	29.91 ± 10.11	36.72 ± 11.58
	fenitro-oxon	0.55 ± 0.08	1.19 ± 0.51	1.87 ± 0.55
18	fenitrothion	35.85 ± 17.00	59.78 ± 5.51	53.25 ± 10.46
	fenitro-oxon	1.49 ± 0.53	2.88 ± 0.25	2.59 ± 0.82
19	fenitrothion	36.51 ± 14.00	29.80 ± 12.62	32.57 ± 12.90
	fenitro-oxon	2.42 ± 0.91	1.47 ± 0.62	1.71 ± 0.58
20	fenitrothion	32.16 ± 12.16	15.04 ± 5.04	29.52 ± 11.20
	fenitro-oxon	2.04 ± 0.70	0.60 ± 0.20	0.68 ± 0.14

Table 5. Continued

Date		June 26, 2006		
Sampling time		4:30-7:00 am	9:00-10:00 am	1:00-2:00 pm
Interval after application (h)		During application	4.5-5.5	8.5-9.5
Site	Compound			
21	fenitrothion	15.14 ± 0.49	17.23 ± 0.65	38.85 ± 11.23
	fenitro-oxon	0.87 ± 0.33	0.77 ± 0.23	1.41 ± 0.86
22	fenitrothion	13.96 ± 0.59	17.77 ± 6.11	12.68 ± 2.48
	fenitro-oxon	1.05 ± 0.06	0.68 ± 0.32	0.66 ± 0.07
23	fenitrothion	9.11 ± 2.11	14.63 ± 1.33	17.88 ± 3.60
	fenitro-oxon	0.55 ± 0.13	0.67 ± 0.14	0.58 ± 0.09
24	fenitrothion	18.10 ± 2.21	10.17 ± 3.09	12.03 ± 4.42
	fenitro-oxon	0.71 ± 0.06	0.48 ± 0.16	0.86 ± 0.11
25	fenitrothion	27.02 ± 14.28	14.16 ± 0.98	24.94 ± 3.91
	fenitro-oxon	0.46 ± 0.03	0.50 ± 0.15	1.31 ± 0.06

^{a)} Limit of quantitation : fenitrothion=0.14 ng/cm², fenitro-oxon=0.33 ng/cm². ^{b)} N.D. : Not detected

られる。一方、散布区域内では、特に散布中に推定無毒性量に比べて、落下量の実測値の方が大きい地点（地点 7, 8, 9, 12）があった。推定無毒性量は 21 日間連続暴露のデータに基づいているということと、ヒトの体表面積全体が暴露した全身暴露を想定しているのに対して、実際には着衣によって暴露が起こる暴露面積は顔や手足などに限定されるという点でより安全性を見込んだ値である。しかし、薬剤の皮膚刺激性や感作性には大きな個人差も考えられるので²²⁾、散布中に散布区域内に入ることは避けるべきである。

フェニトロチオンの落下量の地理的分布については、一般に散布区域内>海側の境界>側境界の傾向が見られた。これは散布時に陸側から海側への陸風が吹いていたためと思われる（Table 3）。散布区域内でも落下量に大きな振れがみられたのは、シャーレを設置した場所によって松の枝葉による上部空間の被覆度の違いに起因するものと思われる。フェニトロチオン落下量の時間分布については、一般に散布中>4.5~5.5 時間後>8.5~9.5 時間後という傾向が見られたが、そうでない場合も見られた。ということは、散布に伴って飛散した薬剤粒子がそのまま落下した場合だけでなく、MC が壊れガス化したフェニトロチオンが空气中に浮遊している微小粒子に吸着されて二次的に落下した可能性を示唆している。

ほとんどの地点と時間で微量のフェニトロチオンが検出されたが、大気中からは検出されなかった（Table 4）ことから、フェニトロチオンが紙に付着後に生成したものと思われる。

同じ地点で測定した散布中における気中濃度（高さ 1.5

m）と落下量との関係をプロットした結果を Fig. 3 に示した。この相関図から、両者の測定値は独立関係にあることが示唆された。これは、気中濃度は大気中に浮遊している粒径の小さい薬剤やガス化した薬剤を小型ポンプで吸引して測定しているのに対して、落下量は上述したごとく散布中に落下する大きな薬剤粒子と二次的に落下した粒子の両方を含んでいるためと思われる。

3. CSMA 系イエバエを用いたバイオモニタリング

フェニトロチオンに対する感受性の高いイエバエ成虫を各 10 頭ずつケージに入れて、散布中に各地点に設置し、死亡率を観測した結果は Table 6 に示した。散布区域内 A1, A2 地点および隣接地帯である G 地点に置いたイエバエの死亡率は高く、それ以外の地点に設置したイエバエの死亡率は低かった。

一般に、落下量の多い調査地点ではイエバエの死亡率は高い傾向が見られた。各調査地点の落下量と散布終了 48 時

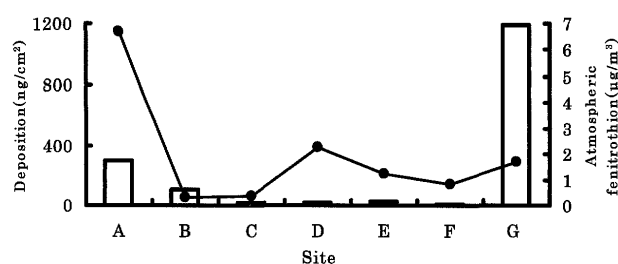


Fig. 3. A relation between fenitrothion in the air and deposited to the ground during the spray.

□: Deposition —●—: Atmospheric fenitrothion

Table 6. Fenitrothion drift as judged by mortality of houseflies placed at different sites during the application at Yuhinomatsubara on June 26, 2006

Date	Time after application (h)	Replication	No. of houseflies alive									
			Control	A1	A2	B1	B2	C	D	E	F	G
June 26, 2006	12	1	10	7	2	10	9	10	10	10	10	7
		2	10	10	1	5	10	10	10	9	— ^{a)}	9
		Mean	10	8.5	1.5	7.5	9.5	10	10	9.5	10	8
		Mortality (%)	—	15	85	25	5	0	0	5	0	20
	24	1	9	5	2	10	9	10	9	10	10	4
		2	10	4	1	5	10	10	10	5	— ^{a)}	2
		Mean	9.5	4.5	1.5	7.5	9.5	10	9.5	7.5	10	3
		Mortality (%)	—	53	84	21	0	0	0	21	0	68
	48	1	9	5	2	7	9	10	7	10	10	4
		2	10	2	1	5	10	10	9	10	— ^{a)}	2
		Mean	9.5	3.5	1.5	6	9.5	10	8	5	10	3
		Mortality (%)	—	63	84	37	0	0	16	7.5	0	68

^{a)} Not determined.

間後におけるイエバエの死亡率の関係をプロットした結果を Fig. 4 に示した。なお、落下量の値としてイエバエを回収した散布終了1時間後までの累計を取った。ただし、調査地点 A2, B2 では落下量の調査を行っていないため割愛した。この図から、落下量と死亡率の間には相関関係があることが確認された。フェニトロチオンが散布区域内の生物群集に及ぼす影響に関しては、齊藤²³⁾が、平成9, 15, 16年度に産業用無人ヘリコプターによるスミパイン乳剤[®]およびスミパイン MC[®] 散布に関わる生物群集への影響について調査を行っている。植生の変化、昆虫類、土壌動物類、野生鳥類の個体数変動に着目し調査した結果、植生の異常は観測されず、昆虫類、土壌動物類、野生鳥類の個体数においても散布前後で有意な変化は見られないと報告している。また、平成16年度に林野庁²⁴⁾が8県を対象に、松くい虫防除が林木および下層植生、野生鳥類、昆虫類、土壌

動物、水生動植物に及ぼす影響調査を行っており、植生、野生鳥類、土壌動物、水生動植物いずれにおいても個体数の減少傾向は見られず、昆虫類に関してもゴミムシ類の個体数は一旦減少したが、30日後にはほぼ散布前の状態に回復したと報告されている。従って、フェニトロチオン散布によって松林内の生物種によっては一時的に影響を受ける場合があったが、時間の経過とともに回復するものと思われる。

4. 松の枝葉の残留濃度

夕日の松原においてスミパイン MC[®] を散布後、当日~散布1ヶ月後まで松の枝葉を採取し、フェニトロチオンとフェニトロオクソンの残留濃度を測定した結果を Table 7 に示した。枝の表面は針葉で覆われているため、針葉をピンセットで分離後、枝は当年枝部分と1年枝部分に分けて分析を行った。調査日によって残留濃度に逆転（例えば当年枝と1年枝では散布当日よりも散布1日後の方の残留濃度が高い）現象が見られたのは、散布時における不均一性が生じた可能性と、今回採取した松は秋田県に依頼して当研究室に冷蔵輸送されたものを分析したため、枝葉を松のどの部位から採取したかというサンプリングの振れによって残留濃度に振れが生じた可能性が考えられる。フェニトロチオン残留濃度は、フェニトロチオン残留濃度にほぼ依存する傾向が見られたが、経時的には一定の傾向が認められなかった。従って、落下量の場合と同様に、フェニトロチオンが枝葉に付着した後に生成したものと考えられる。

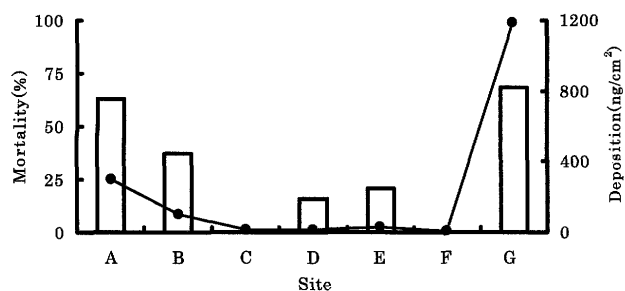


Fig. 4. Relation between mortality of housefly and fenitrothion deposition.

□: Mortality —●—: Deposition

Table 7. Concentration (ng/g) of fenitrothion and fenitro-oxon found on the surface of branches and leaves of pine tress over time after fenitrothion application by a radio-controlled helicopter at Yuhinomatsubara^{a)}

Date sampled	Hornotinous branch		1-year-old branch		Leaves	
	fenitrothion	fenitro-oxon	fenitrothion	fenitro-oxon	fenitrothion	fenitro-oxon
June 26, 2006	2606.15	24.05	2443.83	26.97	219343.35	3936.00
June 27, 2006	5619.59	67.65	7628.88	26.83	59966.26	2894.38
June 28, 2006	2760.24	38.37	6396.09	29.45	61516.92	2468.25
July 03, 2006	1553.01	22.37	5174.53	105.90	17532.90	3944.42
July 10, 2006	1271.51	225.10	3234.68	72.73	15168.63	1569.43
July 18, 2006	1412.08	29.09	2004.37	60.64	11316.40	9739.53
July 24, 2006	612.43	42.74	1249.19	39.70	5551.72	2933.96

^{a)} Limit of quantitation: fenitrothion=1.03 ng/g, fenitro-oxon=2.49 ng/g.

フェニトロチオン残留濃度は針葉が最も高く、次いで1年枝、当年枝の順であった。1年枝の残留濃度が当年枝よりも高かったのは、当年枝の方が針葉に密に覆われているためと思われる。いずれの場合もフェニトロチオン残留濃度は時間の経過とともに減少し、1ヵ月後には散布当初の1/10以下の濃度であった。散布3日後に環境庁（現環境省）が定めるフェニトロチオン気中濃度評価値 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を若干超える濃度 $12.07 \mu\text{g}/\text{m}^3$ が散布区域内の高さ8m地点で検出されたが、この結果から、周辺の松の枝葉に付着したMCが壊れ揮発したためと考えられた。

要 約

2006年6月25日に秋田県潟上市天王浜山地区の海岸に隣接した松林に対して、松くい虫防除目的で、無人ヘリコプターによるスミパインMC®5倍希釈液の散布が実施された。薬剤飛散状況を把握するために、散布区域内および周辺地域において、経時的に薬剤の気中濃度、落下量を調査するとともに、指標生物として、殺虫剤感受性系統のイエバエを用い、殺虫効果を同時に調査した。また、松の枝葉の薬剤残留濃度の分析を行った。高さ1.5mでの気中濃度は散布区域内で $1.85 \pm 0.60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、周辺地域で $1.87 \pm 0.16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、いずれも生活環境におけるフェニトロチオン気中濃度評価値 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ よりも著しく低かった。散布区域内のB1地点の高さ8mで $12.07 \mu\text{g}/\text{m}^3$ が検出されたが、実質的に周辺住民の健康への影響は小さいと推察された。落下量は散布区域内が最も高く、次いで海側境界、陸側境界の順であった。散布区域内では散布中にフェニトロチオンの経皮毒性の推定無毒性量 $1690 \text{ng}/\text{cm}^2$ を超える地点もあったが、時間の経過とともに急減した。周辺地域の落下量は推定無毒性量以下であった。フェニトロチオンの気中濃度と落下量の間には一定の関係は見られなかった。ドリフトのバイオモニタリングの指標生物として用いたイエバ

エの死亡率と落下量の間には相関関係が認められた。散布区域内の松の枝葉におけるフェニトロチオン残留濃度は、針葉が最も高く、次いで1年枝、当年枝の順であった。フェニトロチオン残留濃度は時間の経過とともに減少したが、調査終了後の1ヵ月後まで確認された。

謝 辞

本研究の一部は、平成19年度日本農薬学会農薬環境研究補助金の助成を受けた。

引 用 文 献

- 1) 小林富士雄：グリーンエイジ **31**, 4–7 (2004).
- 2) 朝日新聞（群馬版）2004.6.08, 朝刊.
- 3) 市川有二郎, 盛山 充, 本山直樹：農薬誌, **33**, 289–301 (2008).
- 4) 市川有二郎, 本山直樹：農薬誌 **33**, 281–288 (2008).
- 5) 辻 孝三, 新庄五郎, 伊藤高明, 津田重典, 高橋尚祐：住友化学, 1989-I, 4–25 (1989).
- 6) H. Fuyama, G. Shinjo and K. Tsuji: *J. Pestic. Sci.* **9**, 511–516 (1984).
- 7) 山田里砂：平成10年度千葉大学大学院自然科学研究科修士論文.
- 8) 草野忠治, 森 樊須, 石橋信義, 藤巻裕蔵：応用動物学実験法, 全国農村教育協会, p. 230, 1991.
- 9) M. Okihashi, Y. Kitagawa, K. Akutsu, H. Obana and Y. Tanaka: *J. Pestic. Sci.* **30**, 368–377 (2005).
- 10) H. Ohkawa, N. Mikami and J. Miyamoto: *Agric. Biol. Chem.* **38**, 2247–2255 (1974).
- 11) 腰岡政二：植物防疫 **42**, 13–17 (1988).
- 12) 村井敏信：植物防疫 **30**, 25–30 (1976).
- 13) 小野寺祐夫, 石倉俊治, 香川容子, 田中恵子：日薬誌 **22**, 196–205 (1976).
- 14) J. Miyamoto, Y. Sato, T. Kadota, A. Fujinami and M. Endo: *Agric. Biol. Chem.* **27**, 669–676 (1963).
- 15) 環境庁水質保全局：「航空防除農薬環境影響評価検討会報告書」, 平成9年12月, pp. 1–9, 1997.

- 16) (財)日本緑化センター：「松林保護シンポジウム」記録集，平成17年8月，pp. 75-81，2005.
- 17) 斎藤武司：農薬誌 **28**，392-396 (2003).
- 18) 農林水産航空協会：スミバイン MC[®] の気中濃度調査，平成9年度農林水産航空事業受託試験成績書（林業編），pp. 17-27，1997.
- 19) 中村幸二：農薬誌 **30**，325-326 (2005).
- 20) 日本産業衛生学会：産衛誌 **48**，98-123 (2006).
- 21) 住友化学工業株式会社農業化学品管理室：農薬誌 **13**，401-405 (1988).
- 22) 田谷利光，杉浦貴四郎，福岡睦夫，石原啓志，丹羽利広：日農村医学会誌 **25**，330-331 (1976).
- 23) 林野庁：「無人ヘリによる松くい虫防除に関する運用基準作成のための検討会第1回」資料5 参考資料 無人ヘリコプターによる松くい虫防除について資料3，平成17年10月4日.
- 24) 林野庁：「無人ヘリによる松くい虫防除に関する運用基準作成のための検討会第1回」（参考）松くい虫被害対策について，pp. 12-25，平成17年9月.