

# 2013年千曲市ネオニコチノイド系殺虫剤空中散布における 大気・落下物分析，およびヒトの健康被害に関する調査報告書

2014年3月28日

竹ノ内敏一<sup>1)</sup>，青井 透<sup>2)</sup>，平 久美子<sup>3)</sup>

<sup>1)</sup>ネオニコチノイド空中散布調査プロジェクト

<sup>2)</sup>群馬工業高等専門学校 <sup>3)</sup>東京女子医科大学東医療センター

## 要旨

長野県千曲市では市総面積の3分の2を占める森林のうち858 ha（総面積の7.2%）がアカマツ林で，松枯れ対策として過去に伐倒駆除，および殺虫剤空中散布が実施されてきた。2013年6月に有人ヘリコプターによるチアクロプリドの空中散布が計画された。チアクロプリドは，神経毒性，発がん性を有するネオニコチノイド系殺虫剤で，散布による健康影響が懸念されるため，殺虫剤の漂流飛散（drift；以下，飛散）調査と地域住民へのアンケート調査を行った。

散布は同年6月20日午前6:30～6:50，および21日午前4:30～5:00，千曲川西側の上山田地区（散布面積45 ha），戸倉地区（同35 ha），および更埴地区（同45 ha）で行われた。行政によれば，千曲市に散布されたのはエコワン3フロアブル（ネオニコチノイド系殺虫剤チアクロプリド3%）7.5倍希釈液，1 haあたり30リットル，計3750リットル（チアクロプリド15 kg，市全体の面積当たり125 g/km<sup>2</sup>）だった。21日昼ごろから小雨が降った。

エコワン3フロアブルの飛散に関しては，散布地に近い4箇所において，散布日から3日間，大気の捕集と落下物の採取を行い，採取サンプル中のチアクロプリドを定量分析した。大気の捕集にはシリカ製ろ紙を用い，大気を10 L/minの速度で24時間吸引した。落下物量の採取にはシリカ製のろ紙を用い，散布日から3日間地上1.1 mに設置した。チアクロプリドの定量は液体クロマトグラフ/タンデム型質量分析装置（LC/MS/MS）を用いた。その結果，チアクロプリドは大気中からは1日当たり最大で1.86 ng/m<sup>3</sup>検出された。落下物量からは最大で79 ng/m<sup>2</sup>検出された。この値は，落下物量を理論的な単位面積当たりの散布量（12 mg/m<sup>2</sup>）と比較した飛散率（%）で表すと0.066%となる。チアクロプリドの気中濃度と落下物量の間には有意な相関が見られた（ $p=0.0426$ ）。

アンケート調査の結果では，散布後に新たな症状の出現を訴えたのは，散布当日地区内にいた曝露群30人（うち子ども10人）中7人（23.3%，うち子ども2人），市外にいた対照群10人（同0人）中0人（0%）であった。訴えた症状は，腹痛4人，肩こり3人，頭痛2人，咳，全身倦怠，途中覚醒，筋肉痛各1人だった。4箇所の測定地点のうち，最も高い気中濃度を記録した地点の近傍にいた17人中6人（35.3%），比較的気中濃度が低かった3地点にいた13人中1人（7.7%）が症状を訴えた。

散布地域は東に五里ヶ峯，西側に冠着山等の山地に囲まれた盆地状の地形である。空中散布場

所の最高標高は 800 m で、この標高は東西両側の山岳部標高よりは低く、散布された殺虫剤は千曲川筋の谷部に留まる。このような地形での地上風（地表 100 m 程度）は、散布された殺虫剤の移動に大きく影響し、地上風は谷風・山風として、川筋に沿って流れると考えられる。空中散布された早朝の風向は、20 日は北北西、21 日は北北東であり、試料採取地点での風向はおおむね北風と考えられる。空中散布場所の北斜面に散布された薬剤は、拡散により北面に広がったと思われるが、北風により押し戻されるために、試料採取地点では長時間にわたり降下した可能性がある。

## 1. はじめに

日本の自治体では、松枯れ対策のために殺虫剤の空中散布を実施しているところが少なからずある。用いられる殺虫剤の種類はフェニトロチオンなどの有機リン系殺虫剤が多かったが、近年ではアセタミプリドなどのネオニコチノイド系殺虫剤も使われている。ネオニコチノイド系殺虫剤は選択毒性があるとされ、用いられる有効薬剤の濃度は有機リン系殺虫剤よりも少なく済む[1]。しかし、空中散布される森林の周辺には多くの住民が居り、漂流飛散\*（drift；以下、飛散）した殺虫剤の曝露による健康への影響が報告されている[2]。

2012 年 6 月、長野県坂城町と千曲市の山林に、それまでの有機リンに代わって初めてネオニコチノイド系殺虫剤であるチアクロプリドが空中散布された。チアクロプリドは、ニコチン様作用による神経毒性を有し、米国の EPA（環境保護局）および欧州の EFSA（欧州食品安全機関）の農薬評価書において発がん性ありと認定されており、空中散布後に飛散する殺虫剤吸入による健康影響が懸念される。筆者らは空中散布後の自覚症状の変化を坂城町で調査し、散布日に町内に居た住民（曝露群、n = 16）は散布日に遠方に避難した住民（対照群、n = 10）と比べて何らかの症状を訴える人が有意に増えたことを明らかにした[4]。

長野県千曲市は坂城町の北側に隣接し、善光寺平の南端に位置する。千曲川を跨いで東側と西側に山があり、千曲川の両岸沿いは田園地帯である。市総面積の 3 分の 2 は森林であり、森林 6687 ha（総面積の 55.6%）のうち 858 ha（同 7.2%）がアカマツ林で、松枯れ対策として過去に伐倒駆除、および殺虫剤空中散布が 2003 年から毎年実施されてきた。千曲市においても 2012 年に引き続き 2013 年もチアクロプリドの散布が計画されたために、筆者らは散布された殺虫剤の大気中、ならびに落下した殺虫剤の定量分析を行うことを計画した。殺虫剤を分析する機器としては、高速液体クロマトグラフ/紫外線分光分析計（HPLC/UV）やガスクロマトグラフ/質量分析計（GC/MS）などが一般的に用いられるが、これらは定量下限が高く、分析しても検出できない可能性が高い[5]。そこで今回は、定量下限が低い液体クロマトグラフ/タンデム質量分析計（LC/MS/MS）を採用することにした[6]。同時に、空中散布と健康被害の関係を調べるために、アンケートによる健康調査も計画した。千曲市が住民説明会で公表した資料を表 1 に、散布が計画された地域の地図を図 1

に示す。

表1 空中散布に関する千曲市配布資料

平成25年度 空中散布実施計画(千曲市)

実施箇所・面積	上山田地区(城山、堤山、天坂原) 45ha 戸倉地区(八王子山、若宮、芝原、仙石、羽尾第四区) 35ha 更埴地区(土口、生萱、倉科) 45ha
実施日時	平成25年6月19日 日の出～午前7時(戸倉上山田地区) 平成25年6月20日 日の出～午前7時(更埴地区)
使用薬剤	エコワン3フロアブル(ネオニコチノイド系) 農業成分:チアクロプリド 成分濃度:3% 希釈倍数:7.5倍 1haあたり30リットル散布(薬剤40)
ヘリポート	6月19日 萬葉の里スポーツエリア 6月20日 雨宮緑地芝生広場
使用ヘリ	ベル206b 積載容量300ℓ 1回のフライトで10ha散布、所要時間は約8分。
リスクコミュニケーション	・4月10日19時より更埴庁舎・上山田庁舎の2会場で事業説明会を開催。(市からの情報提供と市への情報提供の場)
安全確保対策	長野県防除実施基準を遵守 ・薬剤はより安全性に配慮し有機リン系からネオニコチノイド系に変更。 ・散布区域は、病院・学校・住宅・公園等からの距離を200m以上離す。 ・風速制限を5m/秒から3m/秒以下に強化。 ・散布は午前7時までで終了。 ・農業成分測定調査を実施。試験紙を設置し薬剤の散布状況を把握。
相談窓口	・事業に関する窓口 上山田庁舎 経済部農林課 森林整備係 〒389-0897 長野県千曲市上山田温泉4丁目15番地I 電話026-275-1050 ・健康相談等に関する窓口 更埴庁舎 健康福祉部 健康推進課 保健センター健康づくり係 〒387-8511 長野県千曲市大字杭瀬下84番地 電話026-273-1111
緊急時の対応	・医療法人 財団大西会 千曲中央病院 〒387-8512 長野県千曲市大字杭瀬下58番地 電話026-273-1212 ・医療法人 長野寿光会 上山田病院 〒389-0821 長野県千曲市上山田温泉3丁目34番地3 電話026-275-1581

\* 漂流飛散はドリフト (drift) とも呼ばれる。農業環境技術研究所の解説[3]では、「ドリフトにはスプレードリフト (散布中・直後の短時間に漂流飛散する粒子状物質) とベーパードリフト (殺虫剤粒子落下後の長時間にわたって漂流飛散するガス状物質) とがある。前者は散布時に起こるドリフトであり、後者は農薬散布後に農薬の有効成分の持つ蒸気圧等による揮散である。スプレードリフトはさらに一次液滴と二次液滴の二つに分かれる。前者はノズルから直接発生するドリフトであり、後者はいったん土壌や作物に落ちたものが跳ね返りよりドリフトするものである。ベーパードリフトも土壌または作物の両方から起こるが、農薬がガス化するのと粒子状の物質に吸着して拡散する二つの様式があり、農薬によって大きく異なる」とある。ネオニコチノイド系殺虫剤の場合、蒸気圧は低いので、ベーパードリフトによる影響はほぼ無視できると考える。

■ : 空中散布区域 ◆ : 大気中農薬成分測定地点

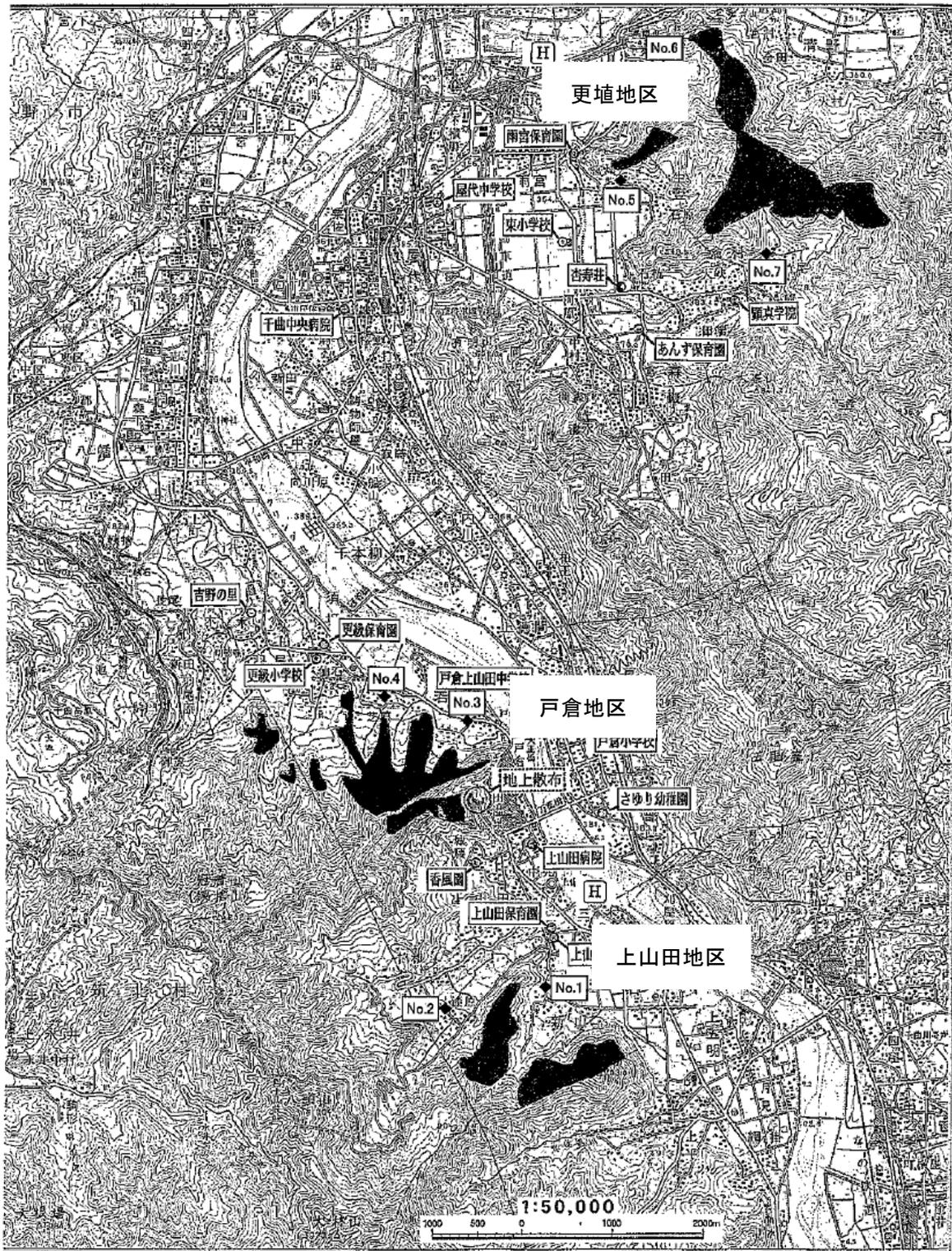


図1 千曲市地図

空中散布予定区域は北から更埴，戸倉，上山田地区で，調査は戸倉地区で実施した。

## 2. 大気，落下物中のチアクロプリド分析

### 2.1 検体採取地点

大気捕集と落下物捕集の採取地点は，戸倉地区散布予定区域の北側にある千曲市若宮の4地点（A, B, C, D, 図2参照）で行った。

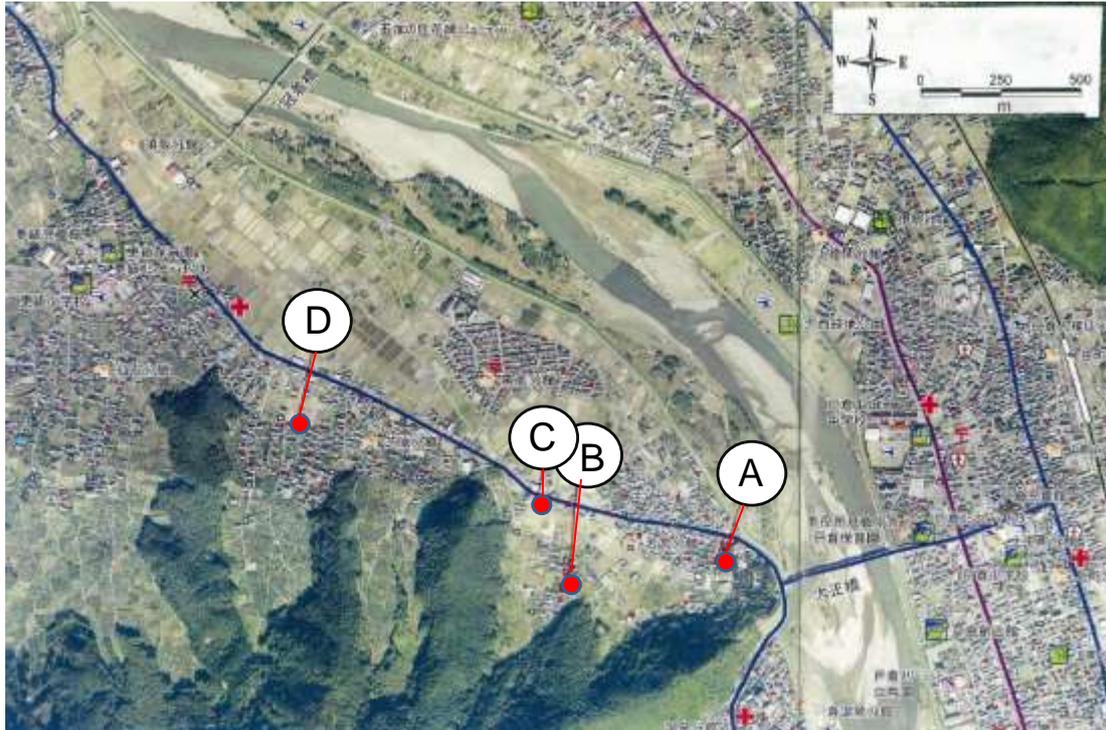


図2 大気，落下物検体採取地点

### 2.2 気中濃度測定のための検体採取

気中濃度測定のための検体採取は下記の仕様で行った[7]。

- 1) 大気捕集は，吸引ポンプ（柴田科学，ロウボリュームサンプラーSIP-32L）に積算流量計（シナガワ，ドライガスメータ DC-2）を接続して大気を吸引した。
- 2) ろ紙は，ADVANTEC 製シリカろ紙 QR-100，丸型  $\Phi 47$  mm を使用した。
- 3) 吸気は 10 L/min で 24 時間作動させた。ろ紙は 24 時間ごとに交換した。この操作を 3 日間（3回）行なった。吸気総量は，それぞれ 14.4 m<sup>3</sup> であった。
- 4) 設置数と場所は，千曲市若宮 A, B, C, D の 4 か所とした。ろ紙をはさんだ専用の大気捕集器具は専用三脚を使用し，地上高 1.1 m のところに設置した。吸引ポンプと積算流量計は雨があたらない軒下に置き雨除けのポリ袋をかぶせた。大気捕集器具は風通しがよい屋外に設置した（図 4 参照）。小雨が降っても大気捕集器具はそのままとした。また，

稼働時間を記録した。

- 5) 回収したろ紙はガラスシャーレに入れ、アルミ箔で包み、さらに密閉性ポリエチレン製袋に入れ冷蔵保管し、すべて回収後に分析機関に持ち込んだ。なお、空中散布が行われる前の週に 24 時間同様の操作を行い、散布前検体とした。

### 2.3 落下量測定 of 検体採取

落下量測定 of 検体採取は下記の仕様で行った[7]。

- 1) 落下物捕集用のろ紙は、ADVANTEC 製シリカろ紙 QR-100、角型 203 × 254 mm を使用した。
- 2) ろ紙は、ステンレス製容器（容器底寸法：203 × 302 mm、深さ 82 mm）の底に直接置いた（図 3）。ろ紙の大きさは容器底の寸法よりも小さめなので長手方向に空き部分が生ずるため、空き部分の形状と同じに切断したガラス板（厚さ 4 mm）を置くとともに、ろ紙短手へり 5 mm をそのガラス板で押さえた。ステンレス容器は風に飛ばされないよう粘着テープを用いて脚立 1.1 m の最上段に固定した。容器は風通しの良い露地に設置した。落下物採取開始にあたっては、純水 40 mL でろ紙を湿らせたのちに落下物捕集を開始した。採取終了時点では、容器の底に数 mm 水が溜まっていた。そのため、ステンレス製ふたをかぶせたあとは粘着テープでふたを密閉し、ただちに分析機関に持ち込んだ。
- 3) 設置日数は 3 日間（72 時間）とし、6 月 20 日 04:30 から 6 月 22 日 04:30 まで設置した。なお、空中散布が行われる前の週に、同じ場所に 3 日間設置したものを散布前検体とした。設置した機器の外観を図 4 に示す。



図 3 落下物捕集容器



図 4 測定地点に設置した機器の外観

## 2.4 分析方法

チアクロプリドの定量は専門の分析機関が行った。分析装置は、液体クロマトグラフ/タンデム質量分析計 (LC/MS/MS) LCMS-8030 (島津製作所) を用いて行った。分析用試料の調製方法は、溶媒抽出単独、もしくは固相抽出と溶媒抽出の併用とした。気中濃度の分析方法は、まずチアクロプリドをアセトニトリルでろ紙から抽出した。溶液を 1 mL に濃縮し、LC/MS/MS を用いて定量した。落下物量の分析方法は、ろ紙と水を分けて回収した。ろ紙中のチアクロプリドはアセトニトリルで抽出した。一方、水中のチアクロプリドは固相抽出法を用いアセトニトリルで回収した。二つの回収液を混合し、体積を 100 mL に合わせ、LC/MS/MS を用いて定量した。装置検出下限、装置定量下限、方法検出下限、方法定量下限、添加回収率の測定は事前に行い確認した[9]。

## 2.5 データの解析法

推定吸入曝露量は、24 時間平均気中濃度に成人の 1 日あたりの呼吸量 (15 m<sup>3</sup>) を乗じて算出した。推定経皮曝露量は、3 日間の落下量から下記の式を用いて算出した。経皮曝露の推定は落下物量から下記の式 1 を用いて計算した。

$$\begin{aligned} \text{落下物からの経皮によるばく露量 (mg/人)} &= \text{付着量} \times \text{皮膚吸収率} \\ &= [\text{付着体表面積 (m}^2/\text{人)}] \times [\text{ミスト落下量 (mg/m}^2)] \times [\text{皮膚吸収率 (10\%)}] \quad \dots (1) \end{aligned}$$

・付着体表面積[8]：成人で 5,000 cm<sup>2</sup>，小児で 2,800 cm<sup>2</sup>，　　・皮膚吸収率[9]：10%

飛散率は、3 日間の落下物量を理論的な単位面積当たりの散布量 (12 mg/m<sup>2</sup> = 12000 μg/m<sup>2</sup>) で割った比率 (%) と定義する (式 2)。

$$\text{飛散率(\%)} = \text{落下物量 (ng/m}^2) \div \text{理論的な単位面積当たりの散布量} \times 100 \quad \dots (2)$$

## 3. 住民健康調査

対象は、千曲市に在住し空中散布実施日の 1 週間以上前に本研究の内容について文書と口頭により説明を受け、同意書に署名した生来健康な 40 人である。全員、同意に先立ち、2013 年 (平成 25 年) 4 月 20 日に開かれた行政主催の説明会で、同年 6 月 18 日に空中散布が行われることを承知していた。なお、実際には悪天候により実施は 20 日、および 21 日の両日に行われた。空中散布時に千曲市内にいた人を曝露群とし、20 日、21 日の朝 6 時から 24 時まで千曲市外に避難した人を対照群とした。

被験者にアンケート用紙を空中散布前々日に配布し、散布翌々日に回収した。アンケートによる調査項目は 2012 年と同様の書式で、生活環境に関する質問、問診票、食事日記からなる。表 2 に生活環境に関する質問内容を示す。表 3 に問診票の内容を示す。散布前日、当日、翌日に症状

の有無を○印で記入するものである。表 4 に食事日記を示す。被験者が、メモなどを使わず散布翌日に過去 2 日間に何を食べたか思い出しながら具体的に記入するものである。

曝露群被験者の住宅および勤務地と散布地域の距離は、国土地理院の公式ウェブサイト (<http://watchizu.gsi.go.jp/watchizu.html>) を用い算出した直線距離を 100 m 単位で四捨五入し、使用した。同様にして、住宅および勤務地に最寄りの試料採取地点を見出した。

表 2 生活環境に関する質問

Q1	散布日は千曲市にいましたか； はい  いいえ (避難先： )
Q2	散布日は職場/学校に行きましたか； はい (所在地： ),  いいえ
Q3	散布日は、外で過ごしましたか； はい ( 時間程度),  いいえ
Q4	お住まいは；木造, コンクリート, その他 ( )
Q5	自宅で農薬を使いますか；はい (種類：殺虫剤, 除草剤, その他),  いいえ
Q6	職場で農薬を使いますか；はい (種類：殺虫剤, 除草剤, その他),  いいえ
Q7	喫煙しますか；する (頻度： 本/日, 喫煙歴： 年),  しない
Q8	喫煙しない方に質問です
	a. 自宅で喫煙する人はいますか；いる,  いない
	b. 職場で喫煙する人はいますか；いる,  いない

表 3 問診票

番号	症状	症状の有無		
		散布前日	散布当日	散布翌日
1	肩こり	あり なし	あり なし	あり なし
2	頭が痛い	あり なし	あり なし	あり なし
3	眠れない	あり なし	あり なし	あり なし
4	だるい	あり なし	あり なし	あり なし
5	胸が痛い	あり なし	あり なし	あり なし
6	熱が出た, 微熱が続く	あり なし	あり なし	あり なし
	体温 (熱を測った場合のみ記入)	℃	℃	℃
7	お腹が痛い	あり なし	あり なし	あり なし
8	あつい・あつい	あり なし	あり なし	あり なし
9	さむい・さむい	あり なし	あり なし	あり なし
10	ドキドキする	あり なし	あり なし	あり なし
11	筋肉が痛い, つる	あり なし	あり なし	あり なし
12	歩けない	あり なし	あり なし	あり なし
13	力が入らない	あり なし	あり なし	あり なし
14	手先がふるえる	あり なし	あり なし	あり なし
15	むくむ	あり なし	あり なし	あり なし

16	のどが痛い	あり なし	あり なし	あり なし
17	気持ち悪い, 吐気	あり なし	あり なし	あり なし
18	ごろごろ横になってしまう	あり なし	あり なし	あり なし
19	咳がでる, 咳の喘息になった	あり なし	あり なし	あり なし
20	家族または自分が間質性肺炎になった	あり なし	あり なし	あり なし
21	便秘	あり なし	あり なし	あり なし
22	やせた	あり なし	あり なし	あり なし
23	体力がおちた	あり なし	あり なし	あり なし
24	悪い夢を見る	あり なし	あり なし	あり なし
25	物忘れ	あり なし	あり なし	あり なし
26	イライラする	あり なし	あり なし	あり なし
27	夜中に目が覚める	あり なし	あり なし	あり なし
28	朝起きられない	あり なし	あり なし	あり なし
29	発疹がでる	あり なし	あり なし	あり なし
30	蕁麻疹がでる	あり なし	あり なし	あり なし
・その他 (既往歴など):				

表4 食事日記

	2012年6月19日	2012年6月20日	2012年6月21日(記入日)
朝食			
昼食			
夕食			

#### 4. 気象

戸倉地域で空中散布の行われた6月20・21日の気象(温度, 風力, 風向, 降雨量)は, 千曲坂城消防署(千曲市大字磯部 1221)に出向いて記録を書き写させていただいた。また, 国土地理院の1/25,000地図から空中散布地域の東西断面図を作成し, 気象情報と地形から散布された殺虫剤の流れを考察した。

## 5. 結果と考察

### 5.1 空中散布状況

空中散布は2013年6月20日午前6:30~6:50, および21日午前4:30~5:00, 千曲川西側の上山田地区(散布面積45 ha), 戸倉地区(同35 ha), および更埴地区(同45 ha)で行われた。予定では上山田地区と戸倉地区は6月18日に実施されることになっていたが, 当日雨のために延期になり, 20日は散布途中で視界不良のため中断され, 翌21日に再開・終了した。更埴地区は21日に行われた。筆者の観察では, 20日は戸倉散布区域の東寄り(A, B地点に近い散布区域)で, 21日は西寄り(C, D地点に近い散布区域)で散布が行われた。21日午後から小雨が降った。空中散布当日の様子を図5に示す。また, 行政によれば, 千曲市に散布されたのはエコワン3フロアブル(ネオニコチノイド系殺虫剤チアクロプリド3%)7.5倍希釈液, 1haあたり30リットル, 計3750リットル(チアクロプリド15kg, 千曲市全体の面積当たり125g/km<sup>2</sup>)だった。



図5 空中散布の様子

## 5.2 分析方法の確立

大気中濃度測定試料の検出下限と定量下限は、それぞれ 0.5, 1.2 ng/サンプルであった。回収率は  $109 \pm 10.6\%$  であった。今回、大気の吸引時間を 24 時間としたので検出下限と定量下限を吸引容積 ( $14.4 \text{ m}^3$ ) で割ると方法検出下限と方法定量下限が得られ、それぞれ  $0.035, 0.083 \text{ ng/m}^3$  であった。この値は、千曲市が行なった大気中濃度の分析方法の定量下限 ( $0.20 \text{ }\mu\text{g/m}^3 = 200 \text{ ng/m}^3$ ) より低くなった。

落下物量測定試料の検出下限と定量下限は、それぞれ 40, 94 ng/サンプルであった。回収率は  $77 \pm 7.3\%$  であった。検出下限と定量下限を容器の表面積 ( $0.061 \text{ m}^2$ ) で割ると方法検出下限と方法定量下限が得られ、それぞれ 650,  $1500 \text{ ng/m}^2$  であった。

## 5.3 気中・落下物分析

### 5.3.1 分析結果

- 1) チアクロプリドの 24 時間平均気中濃度および推定吸入曝露量を表 5 に示す。24 時間平均気中濃度の定量下限 (Limit of Quantification, 以下 LOQ) は  $0.083 \text{ ng/m}^3$  であった。散布が予定と異なり 2 日目にも行なわれたので、2 日目の 24 時間平均気中濃度が 4 地点全てで最大となった。2 日目の 24 時間平均気中濃度は、最大  $1.86 \text{ ng/m}^3$ 、最少  $0.083 \text{ ng/m}^3$  だった。1 日目と 3 日目の検体からは LOQ 以上のチアクロプリドは検出されなかった。また、散布前試料からは LOQ 以上のチアクロプリドは検出されなかった。最大値を示した D 地点の 2 日目の 24 時間平均気中濃度を用いて算出した推定吸入曝露量は、成人 (体重 BW: 50 kg) で  $28 \text{ ng/kg BW}$  であった。2 日目の気中濃度から最大で  $1.86 \text{ ng/m}^3$ 、最小で  $0.083 \text{ ng/m}^3$  のチアクロプリドが検出された。気中濃度は高い順から、 $D > C > A > B$  の順だった。散布前検体からは、1 地点から LOQ 以下で検出された以外は検出されなかった。

表 5 散布前、および 1 日目から 3 日目までのチアクロプリドの気中濃度と成人の 1 日あたりの吸入曝露量の推定値。

測定地点	気中濃度, $\text{ng/m}^3$				推定吸入曝露量 $\text{ng/人}$
	散布前	1 日目	2 日目	3 日目	
A	0.035 *	0.08 *	0.38	検出下限以下	5.7
B	検出下限以下	0.04 *	0.083	検出下限以下	1.2
C	検出下限以下	検出下限以下	0.65	検出下限以下	9.7
D	検出下限以下	検出下限以下	1.86	検出下限以下	27.9

\*は LOQ 以下だったことを示す

- 2) チアクロプリドの3日間の落下物量と推定経皮曝露量, 飛散率 (%) を表 6 に示す。飛散率とは 1 m<sup>2</sup> 当たりの理論散布量に対する各距離での 1 m<sup>2</sup> 当たりの落下量の割合 (%) [3]である。3日間の落下物量の LOQ は 1500 ng/m<sup>2</sup> であった。\*は LOQ 以下だったことを示す。落下物量は 4 地点全てで検出され, そのうち 3 地点が LOQ 以上で検出された。3日間の落下物量は, D 地点で最大 7900 ng/m<sup>2</sup>, A 地点は LOQ 以下だった。推定経皮曝露量は成人で約 390 ng, 子どもでは 220 ng だった。散布前検体からの検出はなかった。飛散率 (%) は, D 地点で最大 0.066% だった。

表 6 散布前, および散布から3日間のチアクロプリドの落下物量と飛散率, およびおとなと子どもへの経皮曝露量の推定値

測定地点	落下物量, ng/m <sup>2</sup>			経皮曝露量の推定量, ng/人	
	散布前	散布後	飛散率, %	おとな	子ども
A	検出下限以下	1200 *	0.010	59	33
B	検出下限以下	1800	0.015	91	51
C	検出下限以下	2100	0.017	100	58
D	検出下限以下	7900	0.066	390	220

\*は LOQ 以下だったことを示す

- 3) 測定地点による差は, 2日目の24時間平均気中濃度が高い順から D > C > A > B で, 3日間の落下物量は高い順から D > C > B > A で, おおむね同じ傾向だった。チアクロプリドの2日目の24時間平均気中濃度と3日間の落下物量の間には有意な相関が見られた (p = 0.0426, 図 6)。

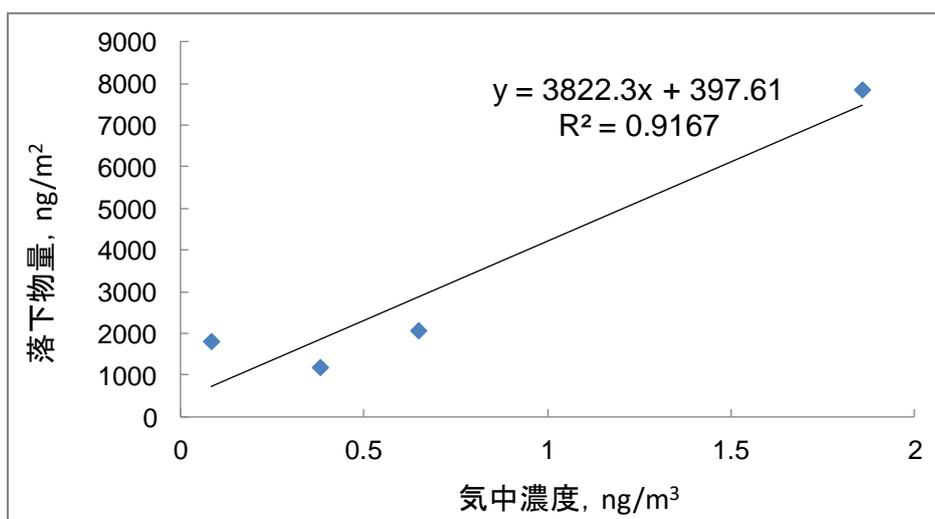


図 6 チアクロプリドの気中濃度と落下物量の相関

### 5.3.2 考察

- 1) 検体の採取を行なった4地点の全てにおいて、2日目の24時間平均気中濃度からチアクロプリドが定量検出された(表5)が、3日間の落下物量では、4地点のうち1地点で定量検出できなかった(表6)。落下物量については、LOQを下げるための方法の改良が今後の課題である。飛散率の最大値は0.066%で、農薬の飛散は比較的低い度合だったことが示された。推定吸入曝露量と推定経皮曝露量を比較すると、推定経皮曝露量の方が推定吸入曝露量よりも10倍から73倍大きかった。この結果から、今回の農薬の空中散布による農薬の曝露は、吸入曝露よりも経皮の方が多かったことが示唆される。
- 2) 採取を行なった4地点において、2日目の24時間平均気中濃度と3日間の落下物量との間に正の相関関係が得られた。この結果は、3日間の落下物量から最大24時間平均気中濃度を推定することができることを示唆する。気中濃度を測定するためには、採取のための装置や、空気を定量的に吸入するポンプなどが必要で、多くの検体を採取することが困難である。一方、落下物量は、ろ紙を地上に置くだけで採取できるので、多くの地点から検体を集めることができる。今回の結果は今までの知見とは異なる。市川らは、秋田県でのMEP(有機リン系殺虫剤フェニトロチオン)の飛散の結果から、両者の間に相関はなく独立していると結論し、その理由として、気中濃度は大気中に浮遊する粒径の小さい薬剤を捕集・測定するのに対して、落下物量は粒径の大きな薬剤も捕集・測定するためと説明した[11,12]。今回の結果で両者に相関が得られた理由としては、空中散布が比較的遠方で、かつ標高の高い山の上から行なわれたため、粒径の大きな薬剤は採取地点まで飛散しなかったことが考えられる。検体数が少ないことは本調査の限界であり、今後はより多数の採取を行うことが課題とされるが、散布地点から十分な距離があれば、24時間平均気中濃度は、3日間の落下物量測定による比較的簡便な方法によって推定できるかもしれない。
- 3) 今回の方法で大気の吸引時間を1時間とした場合、方法定量下限は $2.0 \text{ ng/m}^3 = 0.0020 \mu\text{g/m}^3$ が得られる。この場合でも、千曲市の方法[13]よりも100倍感度が優れ、また長野県の方法[14]よりも25倍感度が優れる。今回はチアクロプリドを定量的に検出することを目的としたために24時間の吸引時間を採用したが、1時間の吸引でも実用上問題ない定量下限が得られる。定量下限の違いは、検体の採取方法の違い(検出管、あるいは石英ろ紙)や吸引容積、及び化学分析方法の違い(GCMSもしくはHPLC/UV法、あるいはLC/MS/MS法)による。気中濃度のような微量分析には最も感度が高い分析法、すなわちLC/MS/MS法を選択することが望ましい。検体の採取方法の違いによる回収率の違いについては今回検討しなかったが、今後の課題とされる。

## 5.4 住民健康調査

### 5.4.1 回収率

アンケート用紙の回収率は100%だった。

### 5.4.2 調査対象者の背景因子

曝露群は30人（おとな20人，子ども10人），対照群は10人（おとな10人）で，詳細な内訳を表8に示す。曝露群の子どもは，3-5歳が2人，6-8歳が2人，9-11歳が3人，12-14歳が2人だった。農業従事者はいなかったが，自宅での農薬使用者が曝露群で30人中7人，対照群で10人中1人いた。

表 8 調査対象者の詳細

	曝露群	対照群
n	30	10
年齢/性別（男/女）		
-15	10 (3/7)	0
15-49	13 (2/11)	4 (0/4)
50-64	6 (1/5)	5 (3/2)
65-	1 (1/0)	1 (0/1)
職業		
農業	0	0
農業以外	30	10
自宅での農薬使用		
除草剤のみ	3	0
殺虫剤のみ	1	1
除草剤と殺虫剤	3	0
タバコ曝露		
自己の喫煙	5	1
受動喫煙	10	3
住居		
木造	26	10
コンクリート	3	0
その他	1	0

### 5.4.3 自覚症状

自覚症を訴えた人の数を表9に示す。散布後に新たな症状の出現を訴えたのは，散布当日地区内にいた曝露群30人（うち子ども10人）中7人（23.3%，うち子ども2人），市外にいた対照群10人（同0人）中0人（0%）であった。

表9 自覚症状を訴えた人の数

	曝露群	対照群
散布前日	12	5
散布当日	10	5
散布翌日	8	5
散布当日/翌日に新たな症状を訴えた人数(%)	7 (23.3%)	0 (0%)

曝露群の散布後新たに訴えた症状の内訳を表10に示す。散布当日に訴えたのは3人で、肩こり2人、頭痛、咳、各1人、散布翌日に訴えたのは6人で、腹痛2人、咳、全身倦怠、睡眠障害（途中覚醒）、筋肉痛、頭痛、各1人だった。7人のうち6人が、3日間の落下量および2日目の24時間平均気中濃度の高かったD地点の近傍に居住し、散布当日自宅内にいた。

表 10 曝露群の新たに訴えた症状の内訳

年齢/性別	散布当日	散布翌日	最も近い測定箇所
3/女		腹痛	D
13/男		腹痛	D
32/女	咳	咳	D
33/女		全身倦怠,途中覚醒	A
43/女		筋肉痛	D
50/女	肩こり	肩こり, 頭痛	D
62/女	肩こり,頭痛		D

曝露群のうち、散布当日および翌日に新たな症状を訴えた7人（症状あり群）と訴えなかった23人（症状無し群）の屋外活動時間、散布地から自宅の距離、屋外活動場所の距離、自宅と最寄りの測定地点の比較を表11に示す。各群間で年齢、散布地と自宅または勤務地との距離に有意差はみられなかった。症状あり群で屋外活動時間は有意に短かった。

表 11 散布当日の症状の有無と屋外活動時間および散布地からの自宅の距離、自宅の位置の関係

	症状あり	症状なし	Mann-Whitney 検定
N	7	23	
年齢 (平均値±標準偏差, 歳)	33.7±20.5	33.1±21.0	≥0.05
屋外活動時間 (平均値±標準偏差, h)	0.08±0.20	0.76±1.29	<0.05
0	5	13	

0.5-1	1	2	
1.5-2	0	3	
3	0	0	
4	0	2	
不明	1	3	
散布地と自宅の距離 (平均値±標準偏差, m)	1014±372	674±340	≥0.05
-500	1	9	
600-1000	3	12	
1100-2000	3	2	
散布地と屋外活動場所の距離 (平均値±標準偏差, m)	1157±608	1074±841	≥0.05
-500	1	2	
600-1000	2	12	
1100-2000	4	4	
2100-3000	0	0	
3100-4000	0	1	
不明	0	4	

#### 5.4.4 最寄りの採取地点と症状の関係

曝露群の各人の最寄りの採取地点と症状の有無の関係を表 12 に示す。2 日目の 24 時間平均気中濃度および 3 日間の落下量が最も高かった D 地点近傍での有症状率は 17 人中 6 人 (35.3%)、比較的両者が低かった A, B, C 地点では 13 人中 1 人 (7.7%) だった。

表 12 曝露群の各人の最寄りの採取地点と症状の有無の関係

自宅の最寄りの採取 地点	チアクロプリド 気中濃度, ng/m <sup>3</sup>	症状あり, 人	症状なし, 人
A	0.380	1	6
B	0.083	0	5
C	0.647	0	1
D	1.857	6	11

#### 5.4.5 食事日記

全員、前日、当日、翌日の食事内容の記述があり、明らかな記憶障害は検出できなかった。

#### 5.4.6 考察

過去の報告との比較を表 13 に示す。前年度と異なり、症状を訴えた人は、住居が散布地点に近いとか、屋外活動時間が長かったという傾向はみられなかった。しかし、3 日間の落下物量および 2 日目の 24 時間平均気中濃度が最も高かった D 地点近傍の住民での有症状率が最も高く、チアクロプリドの気中濃度と症状発現には、量反応関係があることが示唆された。

表 13 アンケート結果、今回と過去の報告との比較

		2004 年群馬県	2012 年坂城町	2013 年千曲市
散布農薬		アセタミプリド	チアクロプリド	チアクロプリド
散布量		70 g/km <sup>2</sup>	65 g/km <sup>2</sup>	125 g/km <sup>2</sup>
有症状者数		78 人	7 人	7 人
中枢神経症状	頭痛,全身倦怠,抑うつ,集中力低下,睡眠障害,記憶障害,焦燥感,言語障害	71 (91%)	7 (100%)	3 (43%)
骨格筋症状	肩こり,筋痛/筋攣縮/筋脱力,振戦	71 (91%)	2 (29%)	3 (43%)
循環器症状	胸痛,動悸	60 (77%)		
体温症状	発熱,手足の冷え	60 (77%)		
眼症状	調節障害,羞明,視力低下	53 (68%)		
消化器症状	腹痛,下痢,便秘	47 (60%)		2 (29%)
呼吸器症状	咳,痰	33 (42%)		1 (14%)
分泌症状	発汗,流涎,口渴	24 (31%)		

### 5.5 気象

#### 5.5.1 入手した気象状況測定値

千曲坂城消防署は採取地点から 1.5 km 程南東に位置する（位置は図 7 右下に示した）。気象状況測定値を表 14 に示す。

表 14 6 月 20・21 日の気象状況

6 月 20 日							
時刻	平均風速	平均風向	最大風速	最大風向	温度	相対湿度	積算雨量
4	0.9	北東	3.2	北北西	19.3	99.7	0.0
5	1.3	北西	3.4	北北西	19.4	99.1	0.0

6	0.9	北北西	3.2	北北西	19.6	98.8	0.0
7	1.2	北北西	4.6	北西	19.8	98.3	0.0
8	2.1	北西	4.4	北西	20.0	97.7	0.0
9	1.7	北北西	4.4	北西	20.8	95.8	0.0
10	2.5	北西	4.4	北北西	21.3	90.8	0.0
11	1.9	北西	4.8	北西	22.6	84.9	0.0
12	2.2	北西	5.3	西北西	23.8	78.6	0.0
13	2.1	北西	5.1	北西	24.3	74.5	0.0
14	1.9	西北西	4.6	北西	23.8	75.5	0.0
15	0.7	北西	2.8	西北西	24.6	73.0	0.0
16	0.1	靜穩	3.0	北西	23.9	81.0	0.0
17	0.6	東	2.0	東南東	22.6	87.7	0.0
18	0.6	北北西	3.4	東北東	23.0	83.3	0.0
19	1.4	北西	4.4	北西	22.3	84.4	0.0
20	1.0	北北西	5.1	北西	21.6	86.3	0.0
21	2.5	北西	5.9	北西	21.1	89.2	0.0
22	2.2	北西	5.3	北西	20.9	86.1	0.0
23	2.1	北西	5.1	北西	20.9	85.0	0.0
24	1.4	北北西	5.3	北西	20.5	86.6	0.0
6月21日							
1	1.0	北	4.3	北西	19.7	92.2	0.0
2	1.3	北北東	4.3	北北西	19.4	90.5	0.0
3	0.4	北	4.3	北北東	19.3	90.5	0.0
4	0.8	北北東	3.0	北北東	19.2	86.1	0.0
5	1.6	北北東	5.0	北北東	18.9	92.2	0.0
6	1.0	北北東	3.4	北北東	19.1	92.2	0.0
7	2.0	北北西	4.0	北北西	19.6	90.2	0.0
8	1.9	北西	4.1	北西	20.0	87.2	0.0
9	2.7	北西	5.3	北西	20.7	84.7	0.0
10	1.8	北北西	5.6	北西	20.8	85.0	0.0
11	1.3	北北東	3.6	北北西	20.9	82.5	0.0
12	0.4	北北東	3.3	北北東	21.0	82.5	0.0
13	0.3	北西	1.9	北	20.9	83.6	0.0
14	0.2	靜穩	2.0	東南東	19.2	94.1	0.5
15	0.0	靜穩	3.3	南南東	19.6	94.7	0.5
16	0.4	北東	2.3	南東	19.0	97.4	3.0
17	2.1	南東	4.6	南南東	18.5	98.3	4.0
18	0.9	南東	5.1	南東	17.9	99.1	4.5
19	0.6	東南東	3.5	南東	17.4	98.3	5.0
20	0.2	靜穩	1.9	南東	17.1	99.4	5.0
21	0.1	靜穩	1.6	北	17.3	99.7	5.0
22	0.4	東北東	2.6	北	16.7	99.7	5.0
23	0.0	靜穩	1.8	南南西	16.6	99.7	5.0
24	0.1	靜穩	1.8	北北東	16.4	99.7	5.0

### 5.5.2 戸倉地区空中散布区域の地形的な特徴

戸倉地域空中散布区域の航空写真(google map)を図7に示す。中央部を千曲川が北流しており、流下して長野市の手前で犀川と合流した後、新潟に信濃川となって流下する。この部分の千曲市市街地は、東に五里ヶ峯、西側に冠着山等の山地に囲まれた盆地状の地形(信越線、および長野自動車道が取り囲んでいる)であることは、図8に示した地表面工程図(標高の縮尺は水平距離の2.8倍で表示)でも明らかである。千曲川を囲む平坦地(市街地)は標高400m以下であり千曲川水面が最も低い標高であるが、両側の山地は900mを超えてそびえている。

地表面高低図の中央部分に戸倉地域空中散布区域を一部含んでいるが、この部分は空中散布区域の端のために標高420mとなっている。実際の空中散布区域は航空写真の森林部分であり、空中散布場所の最高標高は800mに達している。地表面高低図を参照すると、800mの標高は東西両側の山岳部標高よりは低く、散布された殺虫剤は千曲川川筋の谷部に留まることがわかる。

このような地形での地上風(地表100m程度)は、散布された殺虫剤の移動に大きく影響することになり、地上風は谷風・山風として、川筋に沿って流れると考えられる。空中散布された早朝の風向は5.5.1項より20日は北北西、また21日は北北東であり、測定点の千曲坂城消暑と採取地点の隔たりを考えると採取地点での風向はおおむね北風と考えられる。空中散布場所の北斜面に散布された殺虫剤は拡散により北面に広がったと思われるが、北風により押し戻されるために、採取地点では長時間にわたり降下した可能性がある。



図7 空中散布区域と検体採取地点周辺の地形図と断面切断線



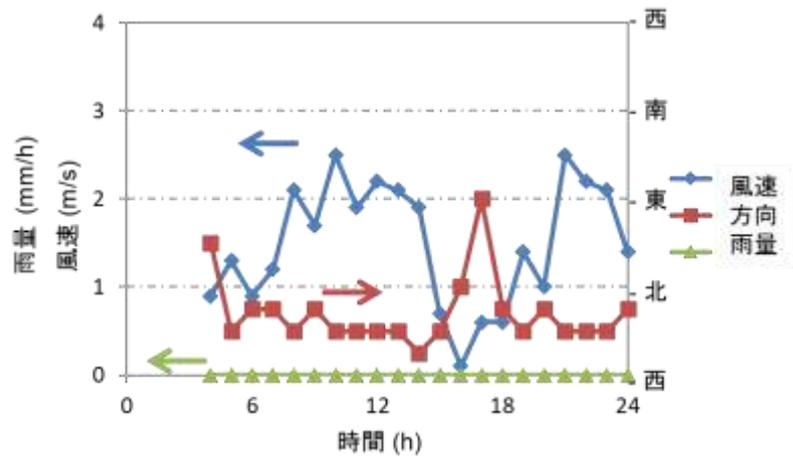


図9 散布1日目の風速，風向（右側にNWSEで表示），降雨量の変化

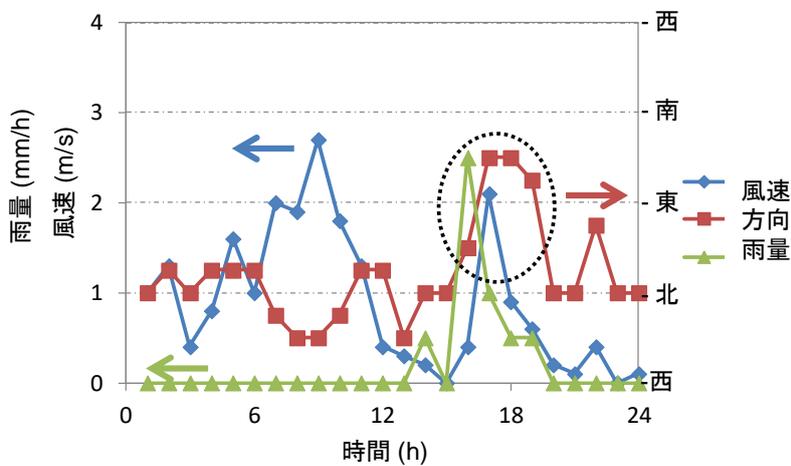


図10 散布2日目の風速，風向（右側にNWSEで表示），降雨量の変化



図11 散布日の風向き

## 6. まとめ

- 1) 千曲市のチアクロプリド大気中濃度の分析結果から、千曲市の4地点の全てにおいて、空中散布後チアクロプリドが飛散したことが示された。落下物量の結果からも今回の空中散布により低い度合の飛散が一部の地域に生じたことが示唆された。気中濃度と落下物量の間に関連関係が得られたことから、落下物量を測定することにより、飛散した殺虫剤の気中濃度を推定することができることが示唆される。殺虫剤空中散布による飛散の環境動態を、シミュレーション（コンピュータによる模擬実験）を用いて計算し、実際の飛散結果と比較し検証することが今後の課題と考えられる。
- 2) アンケートによる調査の結果では、散布後に新たな症状の出現を訴えたのは、散布当日地区内にいた曝露群30人（うち子ども10人）中7人（23.3%、うち子ども2人）、市外にいた対照群10人（同0人）中0人（0%）であった。訴えた症状は、腹痛4人、肩こり3人、頭痛2人、咳、全身倦怠、途中覚醒、筋肉痛各1人だった。症状を訴えた7人中6人が、3日間の落下量および2日目の24時間平均気中濃度が最も高かったD地点近傍に居住し、D地点近傍の住民の有症状率は35.3%と他に比べて高かった。
- 3) 散布地域は東に五里ヶ峯、西側に冠着山等の山地に囲まれた盆地状の地形である。空中散布場所の最高標高は800mであるが、この標高は東西両側の山岳部標高よりは低く、散布殺虫剤は千曲川川筋の谷部に留まる。このような地形での地上風（地表100m程度）は、散布された殺虫剤の移動に大きく影響し、地上風は谷風・山風として川筋に沿って流れると考えられる。空中散布された早朝の風向は、20日は北北西、21日は北北東であり、採取地点での風向はおおむね北風と考えられる。空中散布場所の北斜面に散布された殺虫剤は、拡散により北面に広がったと思われるが、北風により押し戻されるために、採取地点では長時間にわたり降下した可能性がある。

### 謝辞

本調査は一般社団法人アクト・ビヨンド・トラストの助成を受けて実施された。ここに感謝の意を表します。チアクロプリドの化学分析を行なった分析機関、ならびに分析結果の評価・解析を担当した藤岡一俊博士に感謝の意を表します。大気および落下物検体の採取にあたり、千曲市在住のボランティアの方々に協力していただいたことを厚くお礼を申し上げます。検体採取の方法確立にあたり、摂南大学客員教授宮田秀明博士、ならびに大気分析の専門家から貴重な助言を頂きましたので謝意を表します。検体採取用の資材を提供いただいた方々にお礼を申し上げます。大気移動に関して助言を頂いた専門家に感謝の意を表します。

## 参考文献

- [1] Tomizawa M, Casida JE: Molecular recognition of neonicotinoid insecticides: the determinants of life or death. *Acc Chem Res*, **42**(2), 260-9 (2009).
- [2] Taira K, Aoyama Y, Kawakami T, Kamata M, Aoi T: Detection of chloropyridinyl neonicotinoid insecticide metabolite 6-chloronicotinic acid in the urine: six cases with subacute nicotinic symptoms. *Chudoku Kenkyu* , **24**(3), 222-230 (2011).
- [3] 與語靖洋：農薬散布時のドリフト，農業環境技術研究所，  
[www.niaes.affrc.go.jp/techdoc/inovlec2005/2-2.pdf](http://www.niaes.affrc.go.jp/techdoc/inovlec2005/2-2.pdf)（2014年3月31日）
- [4] 平久美子，竹ノ内敏一，藤岡一俊，青井 透，青山美子：2012年ネオニコチノイド系殺虫剤チアクロプリド空中散布後の地域住民の健康被害，第22回日本臨床環境医学会学術集会プログラム・抄録集，p.49 (2013).
- [5] 野口邦雅，宮田芳昭，橋場久雄，塚林裕，蔵本和夫：大気中のチアクロプリドの分析方法，石川県保健環境センター報告書第46号，73-77 (2009).
- [6] Xie W., Han C., Qian Y., Ding H., Chen X., Xi J.: Determination of neonicotinoid pesticides residues in agricultural samples by solid-phase extraction combined with liquid chromatography-tandem mass spectrometry, *J. Chromatography A*, **1218**(28), 4426-4433 (2011).
- [7] 竹ノ内敏一：大気・落下チアクロプリド分析仕様書，2013年6月12日。
- [8] 分析機関：分析結果報告書，2013-E3-00430-001T，平成25年11月15日。
- [9] 土壌中のダイオキシン類に関する検討会第一次報告，環境省土壌中のダイオキシン類に関する検討会 第一次報告（平成11年7月）
- [10] 一般用医薬品及び医薬部外品としての殺虫剤の室内使用時のリスク評価方法ガイドライン(案)，厚生労働省医薬食品局審査管理課（平成19年11月28日）
- [11] 市川，他：農薬誌，**34**, 45-56 (2009).
- [12] 市川，他：農薬誌，**33**, 289-301 (2008).
- [13] 千曲市広報，2013年9月号
- [14] 長野県特定防除環境影響調査事業実施要項（大気，土壌），平成24年5月。