

水田農薬散布作業者の農薬暴露量

富山県衛生研究所 城石 和子 西淵 富蔵
 富山県厚生連 大浦 栄次 川口 京子
 城端厚生病院 寺中 正昭

水稻の病虫害防除に使用される農薬の種類は非常に多く、なかでも有機リン系農薬の占める割合は大きい。これらの農薬は人に対して低毒性であるとされてはいるが、散布作業に伴う中毒や、健康影響の危惧が全くないわけではない^{1,2)}。城石ら³⁾がこれまでに行った調査でも農薬散布作業者の血清中コリンエステラーゼ(ChE)活性値は低下しており、これは散布作業に伴うものであることがわかった。しかしこの低下が農薬の暴露に基づくものであるという確証を得ることはできなかった。

農薬暴露の影響を明らかにするには、暴露量を確実に把握する必要がある。しかし農薬散布はそれぞれ作業環境が異なり、環境中の濃度から作業者の暴露量を正確に把握することは難しい。これに対し体液中の農薬濃度が暴露量推定の指標になり得るのではないかと考えられた。そこで血液中の農薬および尿中代謝物を測定し、暴露量の指標としての有用性を目的に検討を行った。

対象および方法

対象者は水田の農薬散布従事者で、1世帯男女各1名、6世帯の計12名である。農薬の散布は各世帯毎に行った。使用した農薬はいずれもヒノバイジットバッサ粉剤で、MP P {O, O-ジメチル-O-[3-メチル-4-(メチルチオ)フェニル]チオホスフェート} (2%), B PMC (2-sec-ブチルフェニル-N-メチルカーバメイト) (2%), EDDP (O-エ

表1. 調査対象者と農薬散布作業状況

世帯	散布者			作業状況		
	No.	性別	年齢	散布面積 ha	散布時間 min.	散布量 kg
A	1	男	49	9.0	210	360
	2	女	47			
B	3	男	36	6.0	240	240
	4	女	56			
C	5	男	47	7.0	120	280
	6	女	42			
D	7	男	38	2.0	120	80
	8	女	36			
E	9	男	45	3.0	90	120
	10	女	38			
F	11	男	46	4.8	100	192
	12	女	42			

チル-S, S-ジフェニル ジチオホスフェート) (1.5%) を主成分とするものである。対象者の性、年齢、農薬散布状況を表1に示した。

試料は散布前と、散布後2回の計3回、血液と尿を採取した。尿はスポット尿を用いた。散布前は散布前日の早朝に、また散布後は散布当日および散布から4日後(2名は5日後)である。散布当日の血液は作業終了から2~6時間後、尿は12時間後に採取した。4日後は午後2~4時に実施した。

検査項目は血液ではMPP, B PMCおよびEDDP, 尿ではMPPの代謝物であるDMP (ジメチル ホスフェート) およびDMTP (ジメチル チオホスフェート) で、濃

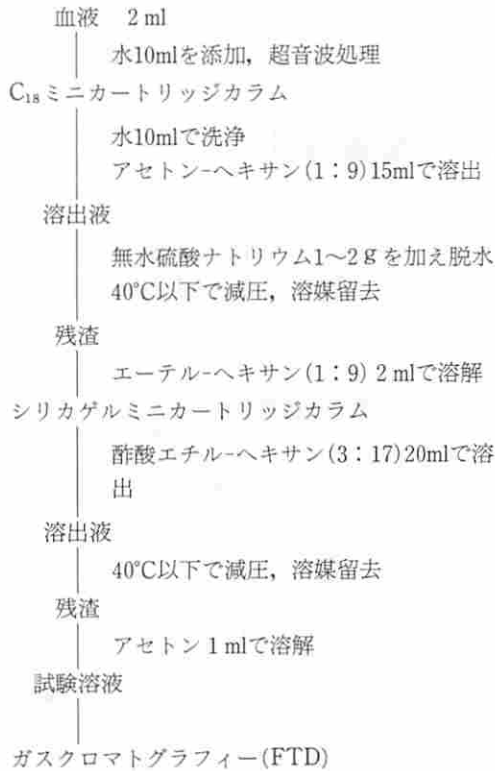


図1. 血液中のMPP, BPMCおよびEDDPの測定法

度補正のためにクレアチニン(Cre)も測定した。

測定方法は血液中MPP, BPMCおよびEDDPについてはミニカートリッジカラムとFTDガスクロマトグラフによる簡易測定法⁴⁾により行ったが，シリカゲルミニカートリッジカラムからの溶出は酢酸エチル-ヘキサンを用いた(図1)。尿中DMPおよびDMTPについては Daughton 法⁵⁾を用いFPDガスクロマトグラフにより測定した(図2)。CreはJaffé法である。

結 果

1. 血液中農薬

血液中農薬の測定結果を表2に示した。散布前日の血液中MPP, BPMCおよびEDDPは全員が不検出であった。散布から2~6時間後ではMPP, BPMCは全員の血

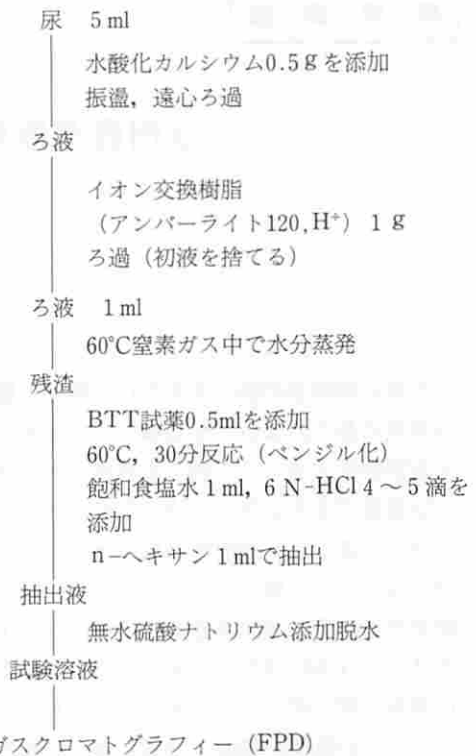


図2. 尿中のDMP, DMTPの測定法

液に検出された。しかしEDDPは3名が不検出であった。4~5日後の検査では1世帯の男女各1名にBPMCが検出されたが，その他はすべて不検出であった。

散布者全員に検出された2~6時間後の検査結果についてMPPでは2名が高値を示し，それぞれ11.4と20.4 ng/gであった。この2名を除く10名の平均±標準偏差は3.5±0.9 ng/gである。BPMCでは最高が56.9 ng/gで，他の11名に比べ著しく高値を示していた。この1名を除く平均±標準偏差は7.3±3.8 ng/gである。EDDPは前述のとおり3名が不検出であり，最高は24.7 ng/gであった。最高の1名はMPP, BPMCでも高値を示した者で，これを除く11名のうち検出された8名の平均±標準偏差は8.8±4.3 ng/gであった。

MPP, BPMC, EDDPの3種の血液

中濃度はBPMCが最も高いレベルにあり、MPPの0.9~2.9倍の値を示していた。MPPとEDDPの濃度はEDDPが不検出のものがあったにもかかわらず、検出された9名の値でみる限りでは全般にEDDPのほうが高値を示し、MPPの0.8~4.8倍の濃度を示した。

農薬濃度相互の間にはいずれも相関関係が認められ (MPPとBPMC $r=0.936$, $p<0.001$, MPPとEDDP $r=0.733$, BPMCと

EDDP $r=0.757$, $p<0.05$), 3種の農薬は相伴って増加していることがわかった。

2. 尿中MPPの代謝物

3種の農薬のうち、MPPについては代謝物としてDMP, DMTPが尿中に排せつされることが判明しており、その測定方法も明らかにされている。そこでこの尿中代謝物について測定した (表3)。

DMP, DMTPが散布前日の尿中に検出された者は3名で、いずれもDMP, DMTP

表2. 血液中の農薬濃度

対象者				MPP (ng/g)			BPMC (ng/g)			EDDP (ng/g)		
世帯	No.	性	年齢	散布前	散布後		散布前	散布後		散布前	散布後	
					2-6時間	4-5日		2-6時間	4-5日		2-6時間	4-5日
A	1	男	49	ND	3.0	ND	ND	4.1	ND	ND	ND	ND
	2	女	47	ND	2.5	ND	ND	3.9	ND	ND	11.2	ND
B	3	男	36	ND	4.8	ND	ND	7.7	ND	ND	3.8	ND
	4	女	56	ND	2.3	ND	ND	4.7	ND	ND	ND	ND
C	5	男	47	ND	20.4	ND	ND	56.9	ND	ND	24.7	ND
	6	女	42	ND	3.0	ND	ND	8.8	ND	ND	ND	ND
D	7	男	38	ND	3.5	ND	ND	9.5	ND	ND	16.9	ND
	8	女	36	ND	11.4	ND	ND	13.0	ND	ND	10.4	ND
E	9	男	45	ND	3.6	ND	ND	4.6	ND	ND	6.4	ND
	10	女	38	ND	5.1	ND	ND	14.3	ND	ND	8.0	ND
F	11	男	46	ND	3.5	ND	ND	3.1	ND	ND	3.9	ND
	12	女	42	ND	4.0	ND	ND	6.8	ND	ND	9.4	ND

ND MPP<2ng/g, BPMC, EDDP<3ng/g

表3. MPPの尿中代謝物 (DMP, DMTP) の濃度

No.	DMP							DMTP						
	散布前		散布後				散布前		散布後					
	mg/l	mg/gCre	12時間		4~5日		mg/l	mg/gCre	12時間		4~5日			
		mg/l	mg/gCre	mg/l	mg/gCre	mg/l	mg/gCre	mg/l	mg/gCre	mg/l	mg/gCre	mg/l	mg/gCre	
1	ND	—	1.85	1.06	0.20	0.13	ND	—	0.68	0.39	0.12	0.08		
2	ND	—	1.70	1.79	0.20	0.17	ND	—	0.49	0.52	0.26	0.22		
3	ND	—	0.77	0.50	ND	—	ND	—	0.47	0.31	ND	—		
4	ND	—	0.74	1.72	0.31	0.16	ND	—	0.27	0.63	0.49	0.26		
5	0.09	0.10	1.02	1.02	0.11	0.09	0.10	0.11	0.40	0.40	0.11	0.09		
6	ND	—	0.31	0.35	ND	—	ND	—	0.19	0.22	ND	—		
7	ND	—	0.28	0.31	0.09	0.13	ND	—	0.13	0.14	ND	—		
8	0.14	0.11	0.48	0.40	ND	—	0.12	0.09	0.25	0.21	ND	—		
9	ND	—	0.11	0.27	ND	—	ND	—	0.04	0.10	ND	—		
10	0.12	0.17	0.39	0.30	0.33	0.42	0.08	0.11	0.32	0.24	0.05	0.06		
11	ND	—	0.21	0.18	ND	—	ND	—	0.25	0.18	ND	—		
12	ND	—	0.33	0.31	0.15	0.10	ND	—	0.39	0.31	0.10	0.07		

ND DMP<0.03mg/l, DMTP<0.04mg/l

Pを共に検出した。散布後12時間では全員の尿にDMP, DMT Pが検出された。DMPの平均は0.68, DMT Pは0.32 mg/lで、後者が全般に低い傾向を示した。表3にはクレアチニンによる補正值も併記した。DMP, DMTPそれぞれの平均は0.68, 0.31 mg/gCreであった。

散布から4～5日後では7名(内1名はDMPのみ)に代謝物が検出された。DMPとDMT Pの濃度間には $r = 0.850$ ($p < 0.01$)の相関が認められたが、これら尿中代謝物と血中農薬の濃度間に相関は認められなかった。

3. 農薬散布作業との関係

血液中農薬あるいは尿中農薬代謝物の濃度と表1に示した農薬散布面積及び散布時間の関係について検討した。血液中農薬は3種ともに相関は認められなかった。しかし尿中のDMPおよびDMT Pはいずれも相関があり(表4),これはクレアチニン補正值でも同様であった。農薬の散布量は1ヘクタール当たり40kgを散布しているので農薬量でも面積と同じ相関が得られる。時間あたりの農薬量(あるいは散布面積)とDMP, DMT Pの間に相関はみられなかった。このことは単に農薬量だけでなく、長時間にわたる散布が尿中代謝物を増加させたものと思われる。

尿中代謝物では散布作業量との間に相関関係のあることがわかったが、この関係につい

表4. 血液中農薬, 尿中代謝物濃度と散布作業の相関係数

検出物名	散布面積	散布時間	
血	MPP	-0.055	-0.248
	BPMC	0.068	-0.230
	EDDP	-0.215	-0.361
尿	DMP	0.804 ***	0.682 *
	DMTP	0.727 **	0.585 *
	[0.675] *	[0.737] **	
	[0.665] *	[0.711] **	

* $p < 0.05$, ** $p < 0.01$, *** $p < 0.001$

[] クレアチニン補正值

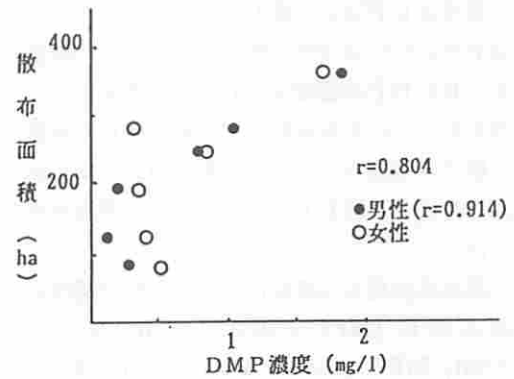


図3. 尿中DMPと農薬散布面積

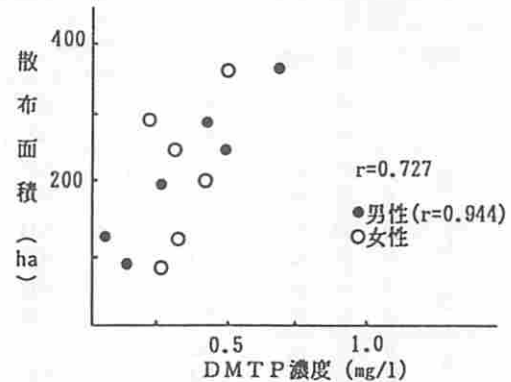


図4. 尿中DMTP濃度と農薬散布面積

て男女に分けてみると、男性において散布面積とDMPあるいはDMT Pが有意な相関関係を示した(図3, 4)。

考 察

水稻の病害虫防除の目的で農薬(ヒノバイジットバッサ粉剤)を散布した作業員12名について血液中の残留農薬を測定した。その結果この農薬の主成分であるMPP, BPMC, EDDP 3種の成分が血液中に検出された。これらは散布前日には検出されなかったものであり、農薬暴露のあったことが確認された。3種の成分の血液中濃度は相互に相関がみられ、相伴なって高くなっていることがわかった。しかし3成分の濃度はBPMCが最も高値を示し、原農薬(ヒノバイジットバッサ粉

剤)の成分比とは異なっていた。

散布作業者の血液中農薬濃度について、河合ら⁶⁾は水稻の散布作業者を調査し、MPPが散布直後では検出されたが24時間後にはもはや検出されず、代謝排せつは速いと報告している。本調査では作業終了から2～6時間後に採血していることが検出につながったものと考えられる。また大浦ら⁷⁾の報告にも述べられているように、本調査では血清ChE活性値が著しく低下した例がみられた。従ってかなりの暴露があったことが推定され、これもまた血液中に検出された理由の1つであるかもしれない。しかし血清ChE活性値の低下と3成分間に相関はみられなかった。

散布から4～5日後MPPは全員不検出であった。しかしBPMCは2名に検出された。BPMCは散布から2～6時間後の測定でも高かったこと等も考え合わせると代謝が比較的遅いのではないかと推測される。

農薬の1成分であるMPPの代謝物としてDMPとDMTPを測定したところ、散布12時間後には全員の尿中に検出した。3名は散布前日にも検出したが、調査の結果2～4日前に同じ農薬を散布しており、その影響と推定された。散布当日のDMPとDMTPの濃度を比較するとDMPが高く、両者間には相関関係が認められた。しかし血液中のMPPおよび他の2成分と相関はみられなかった。血清ChE活性値とDMP、DMTPの間にはいずれも高い相関関係が認められ(それぞれ $r = -0.934$, $p < 0.001$, $r = -0.793$, $p < 0.01$)⁷⁾, MPPの代謝物が多いものほど血清ChE活性値の低下も大きいことがわかった。

尿中代謝物と散布作業量との間には有意な相関が認められ、作業量の多いものほど代謝物が多く検出され、暴露量の多いことが推定された。特に長時間の作業により暴露量が増大する可能性が示唆された。また、代謝物と作業面積(または農薬量)との関係は女性より男性のほうが明瞭に現れた。

散布から4～5日後には7名の尿中に代謝物が検出された。この間に12名中8名は散布を繰り返して行っており、そのために検出されたものと思われる。2回目の採尿後、農薬散布をしていない4名のうち代謝物が検出されたものは2名で、いずれも男性で散布の4日後であった。斉藤ら⁸⁾はスミチオン、DDVP等の有機リン系農薬の散布者について尿中DMP、DMTPが5日後に検出された例もあると述べており、尿中から全く消滅するには数日を要するものと思われる。

今回の調査では農薬散布作業後の作業者の血液中に農薬の主成分が検出され、尿中にはその代謝物が検出された。しかし血液中に検出されたものは尿中代謝物や散布作業量と関連がみられず、散布作業の影響とみられる血清ChE活性値の低下とも合致しなかった。この点に関して生体における残留性や排せつなど代謝の違い、あるいは血液試料という分析上の問題があるのかもしれない。血液中農薬濃度と暴露量に関する報告も少ないのでその理由について論ずることはできないが、今回の調査において採血が作業後2～6時間と広がっていたのも理由の1つと考えられる。しかし実際にはこれを一定にすることは難しく、血液中濃度を暴露量の指標とするには難点がある。一方尿中代謝物は散布作業量と、また血清ChE活性値の低下とよく一致しており、暴露量の指標としては尿中代謝物の測定が有効であると思われる。

ま と め

農薬(ヒノバイジットバッサ粉剤)散布作業前後の血液中農薬と尿中農薬代謝物を測定し検討の結果、次のことがわかった。

1. 農薬散布作業後(2～6時間後)の血液中には農薬の主成分であるMPP、BPMCおよびEDDPが検出された。これら3成分の濃度には相関関係が認められた。
2. 血液中農薬濃度と尿中農薬代謝物濃度お

よび作業時間、農薬使用量との間に相関はみられなかった。

3. 散布農薬の1成分であるMPPの尿中代謝物DMP, DMT Pは散布作業後(12時間後)尿中に検出され、DMPとDMT P間に相関が認められた。

4. DMP, DMT Pはともに散布作業時間、農薬使用量との間に相関が認められ、また血清ChE活性値の低下を伴っていた。

5. 農薬散布者における農薬の暴露量の指標としては尿中代謝物濃度が有効であると思われる。

謝 辞

稿を終えるにあたり、ご助言と尿代謝物の標準品をご提供下さいました愛知県衛生研究所の斉藤勲氏に深謝致します。

文 献

- 1) 渡辺忍：慢性農薬有機燐中毒症を疑わしめる場合の血清中農薬有機燐の検出とその意義，農村医学，23（1），42-50，1974。
- 2) 奥野俊博，逸見希子，山本昭夫，村山ヒサ子，小林稔：水稻へのフェントロチオン混合粉剤散布作業者の農薬暴露について，兵庫県立衛生研究所研究報告，23，33-38，1988。

- 3) 城石和子，田中朋子，南部厚子，平田久美子，有沢義夫，熊西忠郎，飯田恭子：農薬使用に伴う農業従事者の健康影響に関する研究(第3報)，富山衛研年報，9，199-202，1989。
- 4) 西淵富蔵，斉藤行雄，中崎美峰子，城石和子：血液中の有機リン系およびカーバメイト系農薬簡易測定法の検討，富農医誌，21，45-52，1990，3。
- 5) Daughton, C.G., Cook, A. M. and Alexander, A.: Gaschromatographic determination of phosphorus-containing pesticide metabolites via benzylation, Anal. Chem., 51, 1949-1953, 1979。
- 6) 河合正計，古山公英，金子芳洋，彌富耿彦：水稻に対し農薬粉剤散布における散布者の暴露について，日衛誌，40（1），428，1985。
- 7) 大浦栄次，寺中正昭，川口京子，豊田文一，城石和子，西淵富蔵，中陳志津子，西村敦子：ヒノバイジェットバツサ散布時における血液生化学的影響，富農医誌，21，59-65，1990，3。
- 8) 斉藤勲，久永直見，竹内康浩，小野雄一郎，岩田全充，舛田和比古，後藤雅博，松本忠雄，深谷幸生，奥谷博俊，関知次郎，古池保雄：防疫作業者における有機リン殺虫剤暴露の評価 - 血中有機リン殺虫剤および尿中代謝物の分析 -，産業医学，26，15-21，1984。