당근과 케일 중 殘留 Captan의 貯藏과 양념添加에 의한 減少

農產物分析科

金聖圭, 車京淑, 具坪泰, 尹鍾培, 林采元

The decrease of Captan residues in Carrot and Kale by storage and added condiments

Agricultural products analysis division, Health research section

S.J. Kim, K.S. Cha, P.T. Ku, J.B. Youn, C.Y. Lim

Abstract

The decrease effects of residual captan in carrot and kale by storage temperatures and the addition of condiments was investigated. The quantities of residual captan after sticking and drying of captan in carrot and kale were 0.958 and 26.118ppm, respectively. During storage of 20 days at 15, 3 and −17℃, the levels of the residual captan in carrot decreased to 0.008(decrease rate : 99.2%), 0.228(76.2%) and 0.380ppm(60.3%), and those in kale decreased to 1.205(95.4%), 7.717(70.5%) and 15.061ppm(42.3%), respectively. The higher decrease rate of residual catan was observed at the higher storage temperatures. During storage of 24 hours at 15℃, the concentration of residual captan on carrot added soy sauce, green onion, garlic and vinegar decreased to 0.207(decrease rate : 78.4 %), 0.196(79.5%), 0.164(82.8%) and 0.209ppm(78.2%), and those on kale decreased to 2.272(91.3%), 12.701(51.4%), 16.419(37.1%) and 13.703ppm(47.5%), respectively. The

decrease rates of residual captan in carrot and kale were significantly higher with the addition of the condiments than those of the controls that without the condiments.

Ⅰ. 緖　　論

農藥은 食糧增産 政策과 集約的 生産方法에 의해 그 使用量이 크게 增加하였고 食糧增産에 크게 寄與한 것이 事實이나 그로인한 殘留農藥에 의한 環境汚染과 食品汚染이 社會的 관심사가 되고 있다.

有機合成農藥은 病蟲害를 救濟하는데 있어 適用範圍가 넓고 防除效果가 확실한 반면 環境汚染에 의한 生態界의 破壞와 食品 중에 殘留되는 副作用을 가져온다.[1] 이에 따라 國際機構에서도 農藥使用에 대한 重要性을 認識하여 1954년에 國際食糧農業機構(FAO)에 農藥에 관한 專門委員會가 設置되었으며, 1961년에는 FAO/WHO의 殘留農藥에 관한 專門委員會가 開催되어 殘留農藥으로 인한 건강상의 影響에 대하여 硏究할 必要가 있음을 권고하였고, 이 권고에 따라 1963년 FAO/WHO의 合同 農藥專門委員會가 15종의 農藥에 대한 人體 1日 攝取許容量(ADI)을 設定하였다. 이에따라 각국에서는 殘留農藥許容基準 또는 農藥安全使用基準을 設定하여 殘留農藥管理에 徹底를 기하고 있다.[2]

國內에서도 農藥의 適正使用을 위하여 1971년도에 이미 安全使用基準을 마련하였고, 殘留農藥의 許容基準을 設定하기 위하여 國立保健院에서 1968년부터 1977년까지 10개년간 農作物에 대한 農藥殘留量을 測定하고자 生産地 및 流通市場에서 試料를 採取하여 分析, 報告[3-12]하였고, 그 외 여러 論文들[13-16]이 農産物의 農藥殘留許容基準의 基礎로 活用되어 1981년에는 環境廳에서 33종의 農作物에 대하여 19종의 農藥殘留許容量을 告示하였으며[17] 1988년 9월 保健社會部에서도 밭의 27종의 農作物에 대한 17개 品目의 農藥殘留許容基準을 告示하였고 그 이후 몇차례의 改正을 거듭하고 있다.[18-22]

최근 우리나라에서도 食生活 水準의 向上으로 野菜, 果實類의 消費가 增加하고 있으며, 그에 따라 야채류 중에 殘留하는 殘留農藥의 人體 內 攝取에 대한 市民들의 우려도 增加하고 있다. 이에 따라 本 硏究院에서는 작년에 日常生活에서 많이 攝取하는 菜蔬 중 시금치를 選定하여 대표적 殺菌劑인 Captan에 침지한 후 保管方法, 양념첨가, 調理에 따른 農藥殘留量의 減少比率을 調査하여 보고한 바 있으며[23] 계속사업의 일환으로 副食 및 녹즙, 쥬스로 많이 이용하는 당근과 케일을 선정하여 前報[23]와 유사한 방법으로 貯藏溫度와 添加하는 양념의 종류에 따른 농약의 減少比率을 조사하여 市民保健 增進을 위한 基礎資料로 提供하고자 한다.

II. 材料 및 方法

1. 材料

가. 試料

本 實驗에 使用된 試料는 釜山 市內의 一般市場에서 購入하여 公示材料로 使用하였으며, 主實驗材料인 당근과 케일은 食品公典[10]의 農産物 중 農藥殘留容基準 試驗法에 따라 변질 잎 및 뿌리를 除去하고 可食部만 취하여 迅速히 實驗 分析하였다.

마늘, 파 등의 양념류는 可食品만 취하여 흐르는 물에 깨끗이 씻어 0~5℃에 보전하여두고 使用하였으며 洗滌時 洗劑는 使用하지 않았다. 간장은 S사의 진간장, 식초는 O사의 양조식초를 市中에서 購入하여 使用하였다.

당근, 케일, 마늘과 파 등의 試料는 本 實驗에 使用하기전 캡탄의 殘留與否를 검사하였으며 캡탄은 檢出되지 않았다.

나. 附着農藥

試料에 附着시킨 公示農藥은 代表的 殺菌劑인 캡탄水和劑(주식회사 한농)를 市中 農藥商에서 購入하였으며 藥劑의 成分比率 및 藥劑形態는 Table 1[10]에 나타내었다.

다. 試藥 및 標準品

Acetone, n-Hexane, Dichloromethane, Acetonitril, Ethyl ether 등의 有機溶媒는 Merck제 殘留農藥分析用 試藥을 使用하였다.

칼럼 크로마토그라피용 吸着劑인 florisil(Kodak Eastman Fine Chemical, USA)은 650℃에서 하룻동안 活性化시켜 데시케이타에 保管하여 두고 24시간 이내에 使用하였고 무수황산나트륨은 Merk제 殘留農藥試驗用을 使用하였으며 그외 試藥은 特級을 使用하였다. Captan 標準品은 和光純藥製(Wako pure chemical industries LTD., 일본)를 使用하였다.

Table 1. Gradient and formulation of pesticide used in this experiment

Common name	Gradient		Formulation
Captan	1,2,3,6-Tetrahydro-N-(trichloromethylthio)phthalimide	50%	Wettable powder
	surfactant and carrier	50%	

2. 方法

가. 農藥의 附着

캡탄水和劑를 20L 당 0.4g의 濃度로 稀釋한 침지액에 당근과 케일을 1분간 담근 후 꺼내서 플라스틱 그물 바구니에 담아 통풍이 잘되는 그늘진 곳에서 4시간 동안 풍건시킨 후, 당근은 1cm³ 크기로, 케일은 1cm² 크기로 잘라 고르게 섞어 시료로 사용하였다.

나. 試料의 貯藏方法

農藥을 人爲的으로 附着시켜 풍건한 시료를 50g씩 정밀히 달아 對照群은 즉시 캡탄잔류량을 分析하였으며 나머지는 PE병에 담아 密封하여 室溫(15±5℃), 冷藏(3±2℃) 및 冷凍(−17±3℃) 條件하에 貯藏하여 두고 5, 10, 15, 20일 間隔으로 캡탄 잔류량을 分析하였으며, 對照群에 대한 減少比率은 다음과 같이 計算하였다.

$$減少比率(\%)=(1-\frac{處理群의\ 캡탄\ 殘留量}{對照群의\ 캡탄殘留量})\times 100$$

다. 試料의 양념첨가 方法

農藥을 人爲的으로 附着시켜 풍건한 시료를 50g씩 精密히 달아서 PE병에 담고 여기에 다진 파, 다진 마늘, 간장 및 식초를 각각 10g씩 따로 添加하여 5분간 흔들어 섞은 후 密封하여 室溫에 貯藏하여 두고 2, 6, 12, 24시간의 간격으로 캡탄殘留量을 分析하였으며, 對照群에 대한 減少比率을 計算하였다.

라. 農藥(캡탄) 殘留量의 分析

캡탄 殘留量의 分析은 殘留農藥分析法[20]의 單成分分析法에 의해 Fig. 1과 같이 抽出 精製하여 GC에 0.5−1μℓ씩 주입하였으며 檢量線法으로 試料 중의 殘留量을 定量하였다. 이때 gas chromatography 條件은 Table 2와 같으며, 使用한 column은 Hewlett Packard사의 Ultra 2 capillary column을 使用하였다. 캡탄의 檢出限界는 0.001ppm이었다.

마. 統計處理

각 實驗은 處理群別로 9번 反復 實驗하였고, 그 分析結果는 dBSTAT[90]로 統計處理하였다.

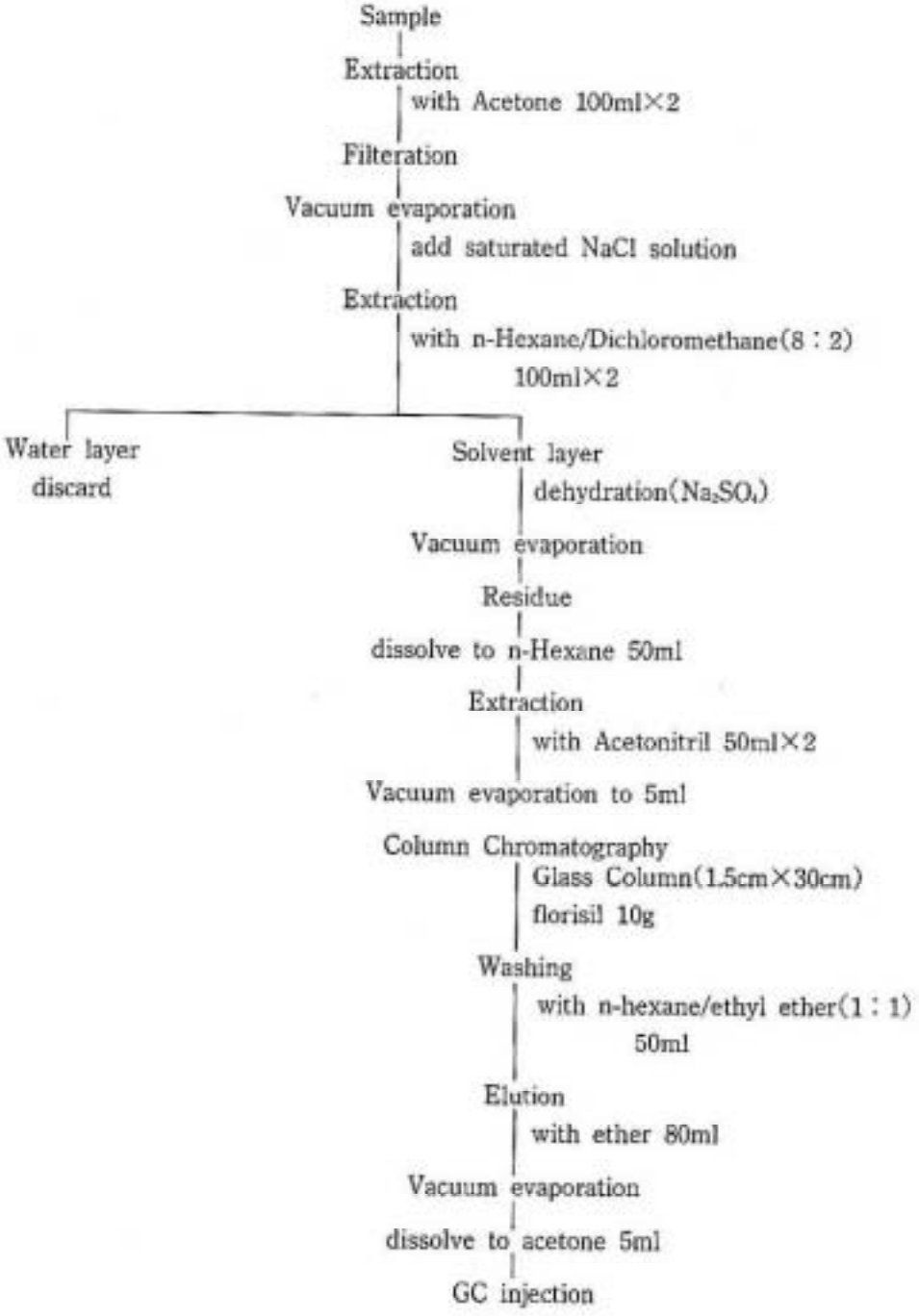

Fig. 1 Captan residue analysis of samples

Table 2. Analytical condition of GC for captan

Model	Varian STAR 3600
Detector	ECD
Column	Ultra 2(25m×0.2mm×0.3μm)
Oven temp.	200℃
Injector temp.	250℃
Detector temp.	300℃
Carrier gas	N_2
flow rate	0.6ml/min.
Split ratio	50 : 1

III. 結果 및 考察

1. 貯藏溫度에 따른 캡탄 殘留量의 經時的 變化

캡탄을 附着시킨 당근과 케일을 室溫(15±5℃), 冷藏(3±2℃) 및 冷凍(−17±3℃) 조건하에 貯藏하여 두고 5, 10, 15, 20일 간격으로 캡탄잔류량을 分析하였다.

農藥을 附着시킨 試料를 4시간 風乾시킨 후 즉시 分析한 對照群의 캡탄잔류량은 당근이 0.958±0.057ppm(mean± S.D.), 케일이 26.118± 0.836ppm이었다. 케일에 비하여 당근의 캡탄잔류량이 훨씬 적은 것은 당근이 케일에 비하여 캡탄에 노출되는 무게당 표면적이 상대적으로 적기 때문인 것으로 생각된다.

農產物의 農藥殘留許容基準[16]에 의하면 고추, 대두, 피만 등의 農產物에 대한 캡탄의 殘留許容限界値는 2~10ppm의 범위이며, 당근과 케일에서는 캡탄이 檢出되어서는 안된다. 그러나 캡탄은 殺菌劑와 土壤消毒劑로 밭작물에 많이 使用되는 農藥으로 오남용 또는 2次汚染[17,18]될 可能性이 있으므로 일반적인 殘留許容限界値에 가까운 농도로 시료에 잔류시켜 實驗하였다.

저장조건을 달리하여 20일간 貯藏하며 검사한 당근과 케일의 캡탄잔류량은 Table 3과 4에 각각 나타내었으며, 시간의 경과에 따른 對照群에 대한 각 實驗群의 캡탄잔류량의 減少比率의 經時的 變化를 Fig. 2와 3에 나타내었다. Fig. 2와 3에서 보면 당근과 케일 모두 室溫에서 첫 5일동안 급격한 減少率(74.6%, 68.7%)을 나타내었으며, 20일까지 당근은 99.2%, 케일은 95.4%로서 대부분의 農藥이 消滅하였다. 냉장과 냉동의 경우는 實驗 全期間에서 실온보다 대체로

낮은 減少率을 나타내었다. 당근과 케일의 20일의 減少比率을 비교해 보면 실온에서 각각 99.2%와 95.4%, 냉장에서 76.2%와 70.5%, 냉동에서 60.3%와 42.3%로서 당근이 케일보다 높은 減少比率을 나타내었다. 前報[20]의 시금치와 비교해 볼 때 전체적으로 대체로 비슷한 減少率을 나타내었으며, 시금치의 20일의 감소비율 98.4%(실온), 76.3%(냉장), 40.9%(냉동)과 비교하면 당근이 조금 높은 수치를 나타내며 케일은 조금 낮은 減少率을 나타내었다. 정[21] 등은 Diazinon과 EPN을 栽培중인 배추에 撒布한 후 22일과 26일 후 거의 100% 消滅하였다고 報告하였다.

Table 3. Residual quantity of captan in carrot during storage at different temperature

(ppm)

Days	Temp. of storage		
	Room temp.(15± 5℃)	Cold(3± 2℃)	Freeze(−17± 3℃)
5	0.243± 0.024	0.683± 0.035	0.826± 0.034
10	0.181± 0.024	0.457± 0.061	0.750± 0.058
15	0.075± 0.029	0.422± 0.044	0.536± 0.049
20	0.008± 0.004	0.228± 0.034	0.380± 0.054

Values are mean± S.D.

Control : 0.958± 0.057ppm

Table 4. Residual quantity of captan in kale during storage at different temperature

(ppm)

Days	Temp. of storage		
	Room temp.(15± 5℃)	Cold(3± 2℃)	Freeze(−17± 3℃)
5	8.180± 1.454	18.492± 2.594	25.284± 1.827
10	6.017± 1.899	11.200± 1.612	18.302± 1.341
15	4.294± 1.081	9.264± 0.987	15.318± 0.541
20	1.205± 0.202	7.717± 1.757	15.061± 0.757

Values are mean± S.D.

Control : 26.118± 0.836ppm

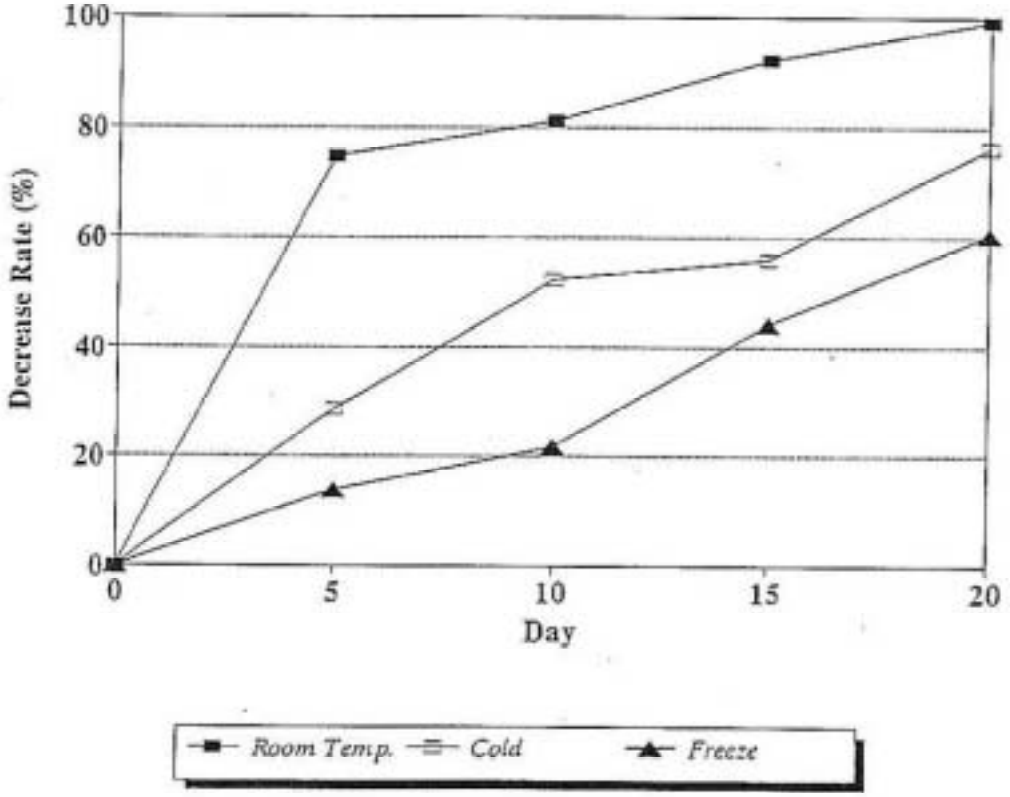

Fig. 2. Time course of captan decrease rates in carrot at various storage temperatures

Room temp. : 15± 5℃
Cold : 3± 2℃
Freeze : −17± 3℃

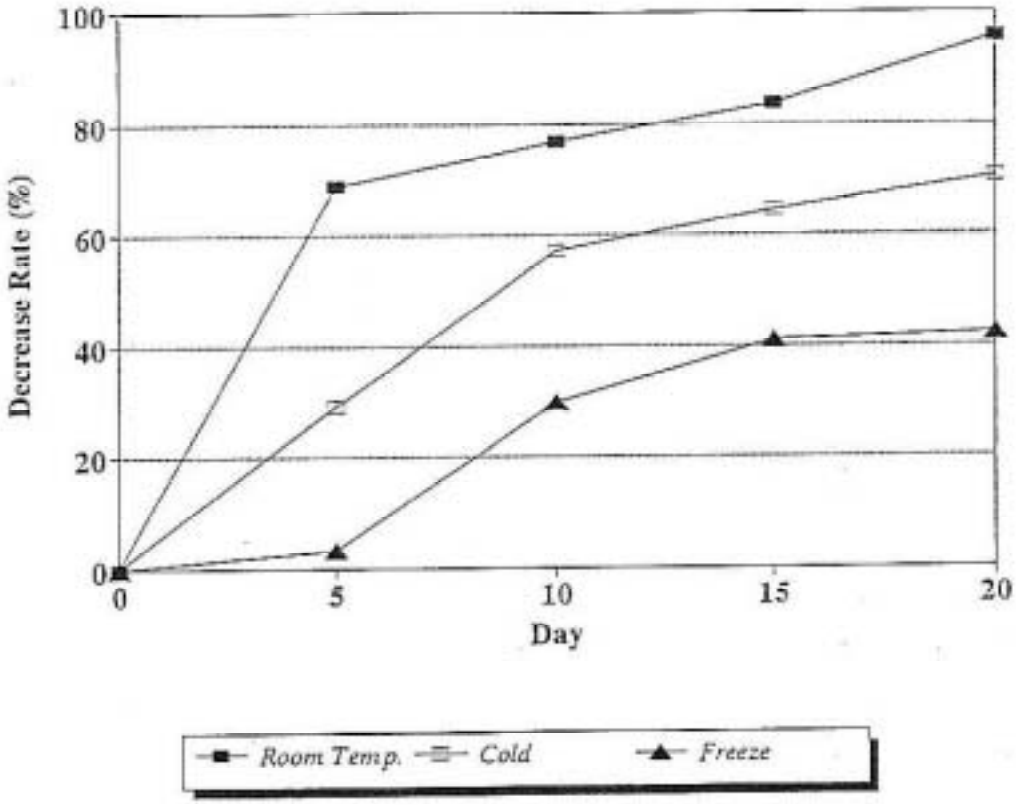

Fig. 3. Time course of captan decrease rates in carrot at various storage temperatures

Room temp. : 15± 5℃

Cold : 3± 2℃

Freeze : −17± 3℃

2. 양념을 添加한 당근과 케일의 貯藏에 따른 캡탄 殘留量의 經時的 變化

캡탄을 附着시킨 후 풍건하여 간장, 파, 마늘 및 식초 등의 양념을 각각 따로 添加한 당근과 케일을 室溫(15±5℃)에 貯藏하여 두고 2, 6, 12, 24시간 간격으로 캡탄잔류량을 분석하여 Table 5, 6에 나타내었으며, 시간의 경과에 따른 對照群에 대한 각 實驗群의 캡탄잔류량의 減少比率의 經時的 變化를 Fig. 4와 5에 나타내었다.

Fig. 4와 5에서 보는 바와 같이 24시간 만에 당근과 케일에서 각각 약 80%와 40% 이상의 減少率을 나타내어 양념을 가하지 않고 저장하였을 경우에 비하여 훨씬 높은 減少率을 나타내었다. 그러므로 나물에 양념을 가하여 무치는 나물 무침이나 김치 등의 우리나라 고유의 조리법이 농약 등의 유해물질의 감소에 아주 우수한 방법으로 사료된다.

Fig. 4의 당근에서 보면 간장, 파, 마늘 그리고 식초에서 고르게 높은 감소율을 나타내었고, 前報[20]의 시금치에 각 양념 2g씩을 함께 섞어 시험하였을 경우(12시간 : 63.4%, 24시간 : 77.49%) 보다도 각 양념 모두 더 높은 減少率을 나타내었다. 이는 前報와의 시험방법의 차이에서 기인하기도 하겠지만 주사위 모양으로 자른 당근 절단면의 세포액의 작용이 간여한 것으로 사료된다.

Fig. 5의 케일에서는 간장을 제외한 나머지 양념에서 당근과 前報의 시금치에 비하여 낮은 감소율을 나타내었다. 이는 前報의 시금치에서는 네가지 양념을 모두 섞어 실험하였기 때문에 각 양념들의 上昇作用에 의한 것으로 생각된다. 케일에서 특이한 점은 간장을 가한 실험군에서 24시간만에 91.3%의 감소율을 나타내었는데, 이에 대해서는 케일속의 어떤 성분과 간장과의 相互作用에 의한 것인지, 실험상의 오류에 의한 것인지 더 많은 연구가 요망된다.

각 양념들의 농약감소효과를 비교해보면, 당근에서는 거의 비슷한 減少率을 나타내었으며 24시간째에 마늘>파>간장>식초의 순이었고, 케일에서는 간장>파>식초>마늘의 순이었다. 김 등[21]은 돼지고기에 간장, 파, 마늘 그리고 양파를 각각 5% 添加하여 4℃에서 12시간 숙성시킨 후 合成抗菌劑인 설파메타진의 分解率을 調査한 結果 각각 0.05, 18.6, 21.6, 34.0%의 減少率을 나타내었다고 報告하였다. 이러한 結果들로 미루어 볼 때 添加한 양념류 중의 未知 成分들이 農藥 및 抗生物質 등의 有害物質의 分解에 關與하는 것으로 推測되며 앞으로 이에 대한 심도있는 硏究가 要望된다.

Table 5. Residual quantity of captan in carrot added different condiment during storage at room temp.(15± 5℃)

(ppm)

Hours	Kinds of added condiment			
	Soy Sauce	Green Onion	Garlic	Vinegar
2	0.921± 0.102	0.767± 0.071	0.810± 0.056	0.900± 0.102
6	0.446± 0.095	0.304± 0.033	0.412± 0.067	0.680± 0.055
12	0.237± 0.034	0.240± 0.017	0.197± 0.024	0.302± 0.045
24	0.207± 0.020	0.196± 0.029	0.164± 0.021	0.209± 0.042

Values are mean± S.D.

Control : 0.958± 0.057ppm

Table 6. Residual quantity of captan in kale added different condiment during storage at room temp.(15± 5℃)

(ppm)

Hours	Kinds of added condiment			
	Soy Sauce	Green Onion	Garlic	Vinegar
2	6.030± 0.252	21.907± 1.134	20.933± 2.298	20.706± 1.375
6	5.176± 0.596	17.286± 1.318	20.171± 2.677	16.937± 3.961
12	3.574± 0.380	13.426± 1.913	18.718± 2.521	16.325± 3.736
24	2.272± 0.246	12.701± 1.362	16.419± 1.721	13.703± 3.878

Values are mean± S.D.

Control : 26.118± 0.836ppm

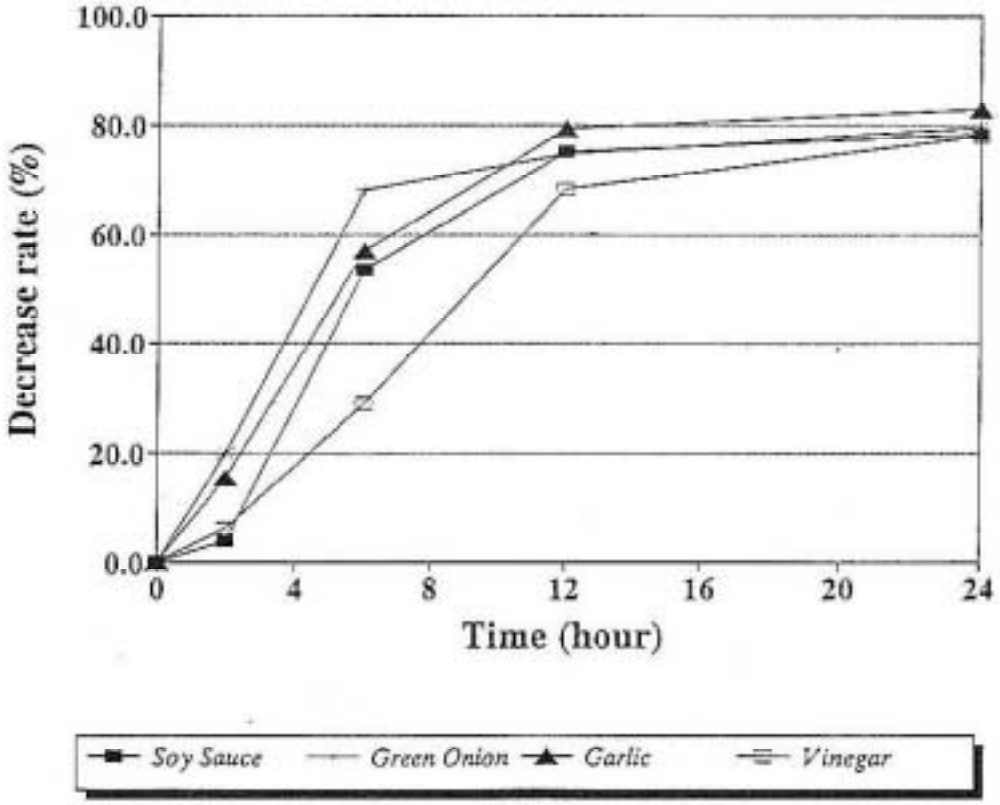

Fig. 4. Time course of captan decrease rates in carrot added different condiment at various storage temperatures

Room temp. : 15± 5℃
Cold : 3± 2℃
Freeze : −17± 3℃

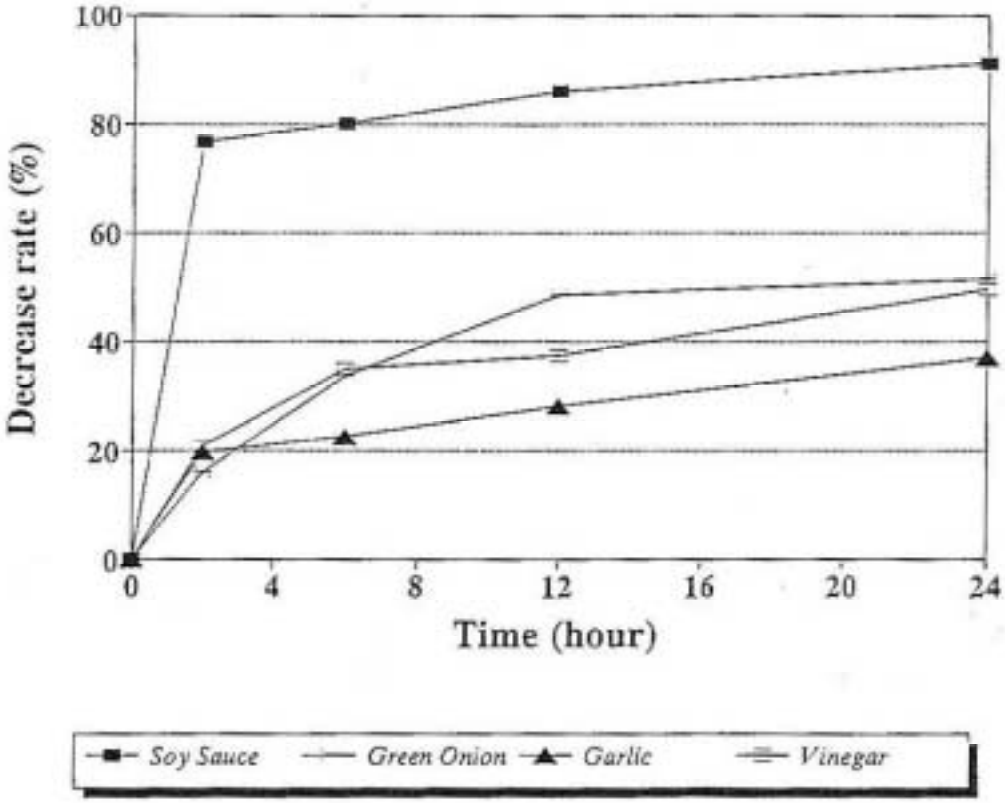

Fig. 5. Time course of captan decrease rates in kale added different condiment at various storage temperatures

Room temp. : 15± 5℃
Cold : 3± 2℃
Freeze : −17± 3℃

Ⅳ. 要　　約

캡탄을 附着한 당근과 케일을 貯藏온도를 달리하여, 또 간장, 파, 마늘, 식초 등의 양념을 각각 添加하여 殘留캡탄의 減少率의 經時的 變化를 調査하여 다음과 같은 結果를 얻었다.

1. 당근과 케일 모두 室溫에서 첫 5일 동안 급격한 減少率(74.6%, 68.7%)을 나타내었으며, 20일까지 당근은 99.2%, 케일은 95.4%로서 대부분의 농약이 減少하였다. 냉장과 냉동의 경우는 實驗 全期間에서 실온보다 대체로 낮은 減少率을 나타내었다. 前報의 시금치에 비하여 당근은 약간 높은 減少率을 보였으며 케일은 낮은 減少率을 나타내었다.
2. 간장, 파, 마늘, 식초 등의 양념을 각각 添加하여 실온에서 보관한 당근과 케일은 24시간 만에 당근과 케일에서 각각 약 80%와 40% 이상의 減少率을 나타내어 양념을 가하지 않고 저장하였을 경우에 비하여 훨씬 높은 減少率을 나타내었다. 前報의 시금치에 비하여 당근은 전 양념에서 약간 높은 減少率을 보였고, 케일은 간장을 가한 실험군에서 아주 높은 減少率을 보였으며 나머지 양념군에서는 낮은 減少率을 나타내었다.
3. 양념을 가하였을 경우에 아주 높은 농약감소율을 나타내었으며, 이러한 結果들로 미루어 볼 때 添加한 양념류 중의 未知 成分들이 農藥 및 抗生物質 등의 有害物質의 分解에 關與하는 것으로 推測되어 나물에 양념을 가하여 무치는 나물무침이나 김치 등의 우리나라 고유의 조리법이 농약 등의 유해물질의 減少에 아주 우수한 방법으로 사료되며, 앞으로 이에 대한 深度있는 研究가 要望된다.

Ⅴ. 參考 文獻

1. 백덕우 외 : 食品 中의 汚染物質에 관한 調査研究, 食品衛生學會誌, 2(3), 121(1987).
2. 김용욱, 김종규 : 우리나라의 食中毒에 關聯된 文獻考察, 食品衛生學會誌, 4(3), 199-256 (1989).
3. 노정배 외 : 食品에 있어서 有毒性 農藥의 殘留量 測定 研究調査, 國立保健研究院報, 5, 116 (1968).
4. 노정배 외 : 食品에 있어서 有毒性 農藥의 殘留量 測定 研究(제2보), 國立保健研究院報, 6, 237(1969).
5. 노정배 외 : 食品에 있어서 有毒性 農藥의 殘留量 測定 研究(제3보), 國立保健研究院報, 7, 237(1970).
6. 노정배 외 : 食品에 있어서 有毒性 農藥의 殘留量 測定 研究(제4보), 國立保健研究院報, 8, 261(1971).

7. 노정배 외 : 食品에 있어서 有毒性 農藥의 殘留量 測定 硏究(제5보), 國立保健硏究院報, 9, 191(1972).
8. 노정배 외 : 食品에 있어서 有毒性 農藥의 殘留量 測定 硏究(제6보), 國立保健硏究院報, 10, 257(1973).
9. 노정배 외 : 食品에 있어서 有毒性 農藥의 殘留量 測定 硏究(제7보), 國立保健硏究院報, 11, 59(1974).
10. 송 철 외 : 食品에 있어서 有毒性 農藥의 殘留量 測定 硏究(제8보), 國立保健硏究院報, 11, 141(1975).
11. 송 철 외 : 食品에 있어서 有毒性 農藥의 殘留量 測定 硏究(제9보), 國立保健硏究院報, 13, 241(1976).
12. 송 철 외 : 食品에 있어서 有毒性 農藥의 殘留量 測定 硏究(제10보), 國立保健硏究院報, 14, 273(1977).
13. 김박영, 이철원, 송 철 등 : 쌀 중의 殘留農藥 分析法의 硏究, 國立保健院報, 17, 517-521(1980).
14. 김박영, 이철원, 김길생 등 : 채소 중의 殘留農藥 分布에 대한 調査 硏究, 國立保健院報, 18, 369-375(1981).
15. 김용화, 한윤희, 이서래 : 쇠고기, 돼지고기, 닭고기의 有機鹽素係 殘留農藥의 含量, 韓國食品科學會誌, 13, 194(1981).
16. 백덕우, 권우창, 신광훈 등 : 食品 중 汚染物質에 관한 調査 硏究, 國立保健院報, 22, 407-441(1985).
17. 環境廳 : 農作物 중 農藥 殘留許容基準, 環境廳 告示 제81-5호(1981. 3. 16).
18. 保健社會部 : 農産物의 農藥殘留 許容基準, 保健社會部 告示 제88-60호(1988. 9. 13).
19. 保健社會部 : 農産物의 農藥殘留 許容基準 중 改訂, 保健社會部 告示 제90-85호(1990. 12. 14).
20. 保健社會部 : 農産物의 農藥殘留 許容基準 중 改訂, 保健社會部 告示 제91-88호(1991. 12. 30).
21. 保健社會部 : 農産物의 農藥殘留 許容基準 중 改訂, 保健社會部 告示 제92-40호(1992. 5. 15).
22. 保健社會部 : 農産物의 農藥殘留 許容基準 중 改訂, 保健社會部 告示 제93-102호(1993. 12. 31).
23. 차경숙, 김성준, 구평대, 진성현, 임채원 : 시금치의 저장 및 조리방법에 따른 농약(Captan) 잔류량의 경시적 변화에 관한 연구, 부산시 보건환경 연구원보, 5, 87(1994).
24. 保健社會部編 : 食品公典(1991).
25. 農藥工業協會 : '93 農藥使用指針書(1993).
26. 後藤眞康, 加藤誠哉 : 殘留農藥 分析法, 東京, ソフトサイエンス社(1980).

27. 류홍일, 이해근, 전성환 : 農藥殘留分析方法, 서울, 동화기술(1991).
28. 김수녕 : 알기쉬운 데이타베이스 통계소프트웨어, 서울, 정보문화사(1993).
29. 백덕우 외 : 食品 中의 汚染物質에 관한 調査硏究, 國立保健院報, 23, 643-668(1986).
30. 백덕우 외 : 食品 中의 汚染物質에 관한 調査硏究, 國立保健院報, 26, 461-471(1989).
31. 정규생, 전태환, 박남표, 고복실, 김경태, 이상갑 : 배우 중 有機燐係 殺蟲劑의 經時的 變化, 大邱市 保健環境硏究院報(1991).
32. 김병태, 허완, 정방현, 김우균, 문성일, 손진창, 박승우 : 돼지의 部位別 설파메타진 殘留量과 冷凍 및 調理加熱에 의한 分解效果, 慶尙南道 保健環境硏究院報(1992).