

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度の提案 (5-1703)

平成29年度～令和元年度

Proposal of Regulation Program for Pesticide Residue in Succeeding Crops

〈研究代表機関〉

国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構 農業環境変動研究センター

〈研究分担機関〉

高知県農業技術センター

徳島県立農林水産総合技術支援センター

兵庫県立農林水産技術総合センター

宮城県農業・園芸総合研究所

令和2年5月

目次

I. 成果の概要	1
はじめに（研究背景等）	
1. 研究開発目的	
2. 研究開発の方法	
3. 結果及び考察	
4. 本研究により得られた主な成果	
5. 研究成果の主な発表状況	
6. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
II-1 農薬の後作物残留メカニズムの解明と黒ボク土ほ場での検証に関する研究	16
（国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構 農業環境変動研究センター）	
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-2 灰色低地土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究	39
（高知県農業技術センター）	
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-3 砂丘未熟土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究	54
（徳島県立農林水産総合技術支援センター）	
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	

- 4. 結果及び考察
- 5. 本研究により得られた成果
- 6. 国際共同研究等の状況
- 7. 研究成果の発表状況
- 8. 引用文献

Ⅱ－4 黄色土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究
(兵庫県立農林水産技術総合センター) 70

要旨

- 1. はじめに
- 2. 研究開発目的
- 3. 研究開発方法
- 4. 結果及び考察
- 5. 本研究により得られた成果
- 6. 国際共同研究等の状況
- 7. 研究成果の発表状況
- 8. 引用文献

Ⅱ－5 土壌中の作物可給性農薬の動態
(宮城県農業・園芸総合研究所) 88

要旨

- 1. はじめに
- 2. 研究開発目的
- 3. 研究開発方法
- 4. 結果及び考察
- 5. 本研究により得られた成果
- 6. 国際共同研究等の状況
- 7. 研究成果の発表状況
- 8. 引用文献

Ⅲ. 英文Abstract 104

I. 成果の概要

課題名 5-1703 農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度の提案

課題代表者名 清家 伸康（国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構 農業環境変動研究センター 有害化学物質研究領域 有機化学物質ユニット長）

研究実施期間 平成29～令和元年度

研究経費（累計額） 88,904千円

（平成29年度：30,137千円、平成30年度28,630千円、令和元年度：30,137千円）

本研究のキーワード 農薬、後作物残留、作物、土壌、農薬登録、PBI、シミュレーションモデル

研究体制

- （1）農薬の後作物残留メカニズムの解明と黒ボク土ほ場での検証に関する研究
（国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構 農業環境変動研究センター）
- （2）灰色低地土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究
（高知県農業技術センター）
- （3）砂丘未熟土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究
（徳島県立農林水産総合技術支援センター）
- （4）黄色土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究
（兵庫県立農林水産技術総合センター）
- （5）土壌中の作物可給性農薬の動態
（宮城県農業・園芸総合研究所）

1. はじめに（研究背景等）

土壌中に残留した農薬による作物の汚染、およびそれによる人への健康被害を防ぐため、土壌残留に係る農薬登録保留基準（2018年12月1日より「農薬登録基準」）が設定されているが、この基準をクリアして農薬登録されているにもかかわらず後作物残留（前作で使用した農薬が土壌に残留し、次作の作物が吸収すること、図1.0.1）が報告されている。食品衛生法における残留農薬基準値を超過した場合、農作物の出荷停止や回収等の緊急対応を余儀なくされ、極めて大きな経済的損失を被ることになる。

我が国では、農薬の土壌中半減期が100日を超える場合には、根菜類を含む2作物を用いた後作物残留試験成績が農薬登録申請時に必要とされている。一方、欧米では、経済開発協力機構のテストガイドライン（OECD-TG）に基づく後作物残留試験が要求されている。しかし、OECD-TGは大規模農場における輪作体系を想定した試験法であるため、小規模農場で年間を通じて多種多様な作物を栽培し、多種類の農薬を使用する我が国に適用できない。したがって、後作物残留を未然に防ぐために、農薬登録申請時において、後作物残留試験を実施すべきか否かの最適なトリガーを明らかにするとともに、農薬の土壌残留性

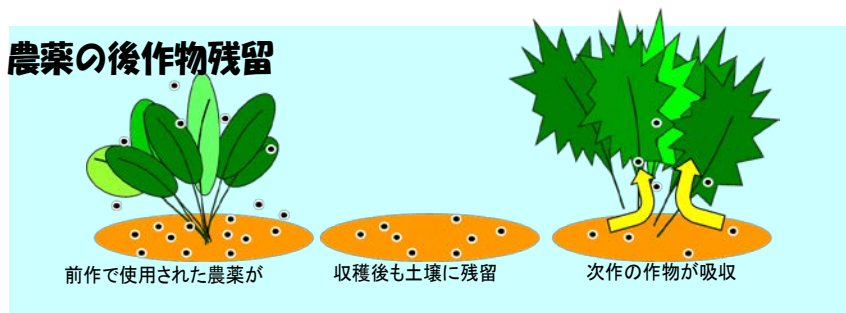


図1.0.1 農薬の後作物残留が生じるスキーム

と作物移行性を考慮した後作物残留試験を実施するための適切な諸条件〔土壌種、作物種、作期（季節）〕を提案する必要がある。

2. 研究開発目的

本研究では、農薬の後作物残留を未然に防ぐための新たな登録制度を提案するため、2つの最終目標を設定した。一つ目は、室内試験により土壌残留した農薬の作物移行に関する3プロセス（1. 土壌から土壌溶液への移行、2. 土壌溶液から作物根への移行、3. 作物根から地上部への輸送）に関するパラメータ（移行係数等）を取得し、農薬の物性値や気温等の環境要因の観点から解析する。これらを基に、作物残留濃度の経時変化を推定可能なシミュレーションモデルを開発し、後作物残留試験を実施すべきかのトリガーの設定が可能か否かを提案する（サブテーマ①）。

二つ目の最終目標は、我が国に広く分布する土壌種（灰色低地土、黒ボク土、黄色土、砂丘未熟土）のほ場において、後作物残留しやすい土壌間や農薬吸収の作物間差（コマツナ等の葉菜類、栽培期間の長短のある根菜およびイネ科、マメ科、ナス科等主要作物を含む）を明らかにするとともに、3作期（春作、初夏作、秋作）で試験を行い、農薬の土壌中濃度変動や作物吸収の季節間差を明らかにする。得られたデータをシミュレーションモデルの検証データとして活用するとともに、後作物残留試験を実施するための適切な諸条件（供試作物、供試土壌、季節）として提示する（サブテーマ①～⑤）。

本研究で得られる成果を活用することにより、後作物残留しやすい性質を持つ農薬に対し、適切な後作物残留試験成績を要求することが可能となり、行政ニーズに大きく貢献できると考えている。また、新たな制度を導入することにより、後作物残留に起因した残留農薬基準値を超過する農作物の生産および流通を未然に防止し、生産された農産物の安全性を向上することで、我が国の消費者の健康被害を防ぐことを目的とする。

3. 研究開発の方法

（1）農薬の後作物残留メカニズムの解明と黒ボク土ほ場での検証に関する研究（サブテーマ①）

受託者らのこれまでの研究（平成25年度～平成27年度環境研究総合推進費5-1302）により、土壌に残留する全ての農薬が作物体へ吸収されるわけではなく、土壌溶液へ溶解した一部の農薬（水抽出された農薬）が作物体へ移行すること（以後、作物可給性農薬と略記）、有機炭素含量が少なく農薬の土壌吸着が弱い砂丘未熟土では水抽出された農薬の半減期が長くなること、土壌吸着係数（ K_d ）は時間経過に伴い増加し、土壌に吸着する割合が経時的に増加すること等を解明した。そこでサブテーマ①では、土壌に残留した農薬の作物吸収に関する3プロセスのうち、土壌から土壌溶液への脱着、すなわち、水抽出により得た作物可給性農薬の変動要因について、土壌水分量および温度が異なる条件で農薬の容器内土壌残留試験を行った。次いで、残り2プロセス（土壌溶液から作物根への移行と作物根から地上部への輸送）については、受託者らのこれまでの研究で試験標準作物として検討してきたコマツナ（*Brassica rapa* L. var. *perviridis*）の土耕における栽培環境（温度、日長、土壌水分）との関係を検討した。これらの試験条件は、II. 成果の詳細（II.-1サブテーマ①）に記載した。

畑地土壌中の作物可給性およびコマツナ等茎葉部の農薬濃度を適切に推定するため、土壌粒子、土壌溶液および作物茎葉部の各コンパートメントを設定し、農薬の挙動を速度論モデルで表現した後作物残留濃度予測モデル（PostPLANT-Soil）を構築した。図3.1.3 にモデルの概念図を示す。本モデルを構築する際の基本コンセプトとして、農林水産省テストガイドラインに基づき農薬登録申請時に提出される各種試験成績に関するデータ等を最大限活用、すなわち、実際のほ場における農薬の消長を把握する土壌残留試験成績や、土壌粒子と土壌溶液間の分配を決定する K_d 、土壌溶液を介して作物根から吸収・移行性を決定するオクタノール／水分配係数（log Pow）などの物理化学的性状を用いた。構築した

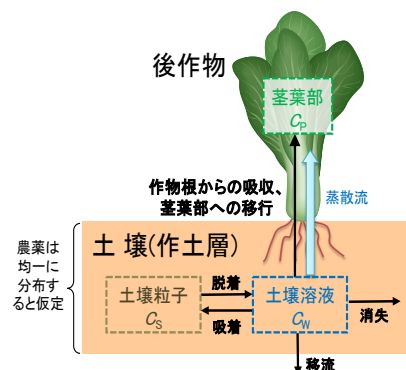


図3.1.3 葉菜類を対象とした農薬の後作物残留濃度予測シナリオ

モデルは、サブテーマ①～④のは場試験データを用いて検証を行うとともに、農薬の物理化学的性状(log Pow および土壌中半減期) 違いによる当該モデルの感度分析を行い、残留基準値超過の有無を判定、後作物残留試験を実施すべきかのトリガーの設定が可能かを確認した。なお、モデル式、感度分析に用いる農薬処理のシナリオについては、II. 成果の詳細 (II.-1 サブテーマ①) に記載した。

後作物残留しやすい作物種および環境条件 (土壌種、季節) を明らかにするためのほ場試験に関しては、1年目の試験開始前にサブリーダー会議を行い、サブテーマ①～⑤のは場試験条件〔処理区: 1 m²/区画以上とし、1作物につきn = 3の区画を設けたランダム配置とする。農薬種: log Powの異なる (-0.55 ~ 4.6) ジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチルを必須とし、それ以外はオプションとする。濃度: 土壌中濃度 2 mg/kg-乾重 (トルクロホスメチルは 20 mg/kg-乾重) を基本とし、土壌種に応じて多少の増減を可とする。土壌の採取方法: 0~10cm深を4か所/区画から採取する。土壌の採取時期と抽出法: 薬散後1週間のうちに3回採取、それ以後は1~2週間おきに採取し、水抽出を行う。作物種: コマツナ、シュンギク、ハウレンソウ、カブ、ニンジンに必須とし、それ以外をオプションとする。作物の採取時期: 収穫適期を含む4時期に採取。〕について統一を図った。

農業環境変動研究センター内のほ場 (黒ボク土、有機炭素含量4.9%) において試験区 (1m²/区画、n = 3) を設けた。土壌中半減期やlog Pow (-0.55~4.6) および後作物からの検出状況を考慮した10種 (ジノテフラン、イミダクロプリド、クロチアニジン、チアクロプリド、ホスチアゼート、メタラキシルM、フェノブカルブ、フルトラニル、プロシミドン、トルクロホスメチル) を土壌中濃度が2 mg/kg-乾重 (フルトラニルは5 mg/kg-乾重、トルクロホスメチルは20 mg/kg-乾重) となるように散布した。後作物残留しやすい作物種の検討については、作物科および栽培期間の長短の観点から計9作物 (コマツナ、トウモロコシ、ダイズ、トマト、カボチャ、ニンジン、シュンギク、ハウレンソウ、カブ) を栽培した。一方、後作物残留しやすい環境条件については、春作 (3月作付け)、初夏作 (5月作付け) そして秋作 (9月作付け) においてコマツナ、カブ、ニンジンへの作物移行の季節間差を検討した。試験条件の詳細は、II. 成果の詳細 (II.-1サブテーマ①) に記載した。

(2) 灰色低地土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究 (サブテーマ②)

高知県農業技術センター内の灰色低地土露地ほ場 (有機炭素含量2.6%) において試験区 (2.3m²/区画、n = 3) を設けた。6種の農薬 (ジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチル、イミダクロプリド、log Powは-0.55~4.6) を土壌中濃度が2 mg/kg-乾重 (トルクロホスメチルは20 mg/kg-乾重) となるように散布した。後作物残留しやすい作物種の検討については、葉菜類6種 [コマツナ、シュンギク、ハウレンソウ、ダイコン (ぬき菜)、リーフレタス、葉ニンニク、および根菜類2種 (カブ、ニンジン)] をトンネルマルチ栽培した。一方、後作物残留しやすい環境条件については、春作 (3月作付け)、初夏作 (5月作付け)、秋作 (9月作付け) そして冬作 (11月作付け) においてコマツナ、カブ、ニンジンへの作物移行の季節間差を検討した。試験条件の詳細は、II. 成果の詳細 (II.-2サブテーマ②) に記載した。

(3) 砂丘未熟土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究 (サブテーマ③)

徳島県立農林水産総合技術支援センター内の砂丘未熟土露地ほ場 (有機炭素含量0.01%) において試験区 (3.5 m²/区画、n = 3) を設けた。5種の農薬 (ジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチル、log Powは-0.55~4.6) を土壌中濃度が1 mg/kg-乾重 (トルクロホスメチルは5 mg/kg-乾重) となるように散布した。後作物残留しやすい作物種の検討については、コマツナ、シュンギク、ハウレンソウ、ネギ、カブ、ニンジンに栽培した。一方、後作物残留しやすい環境条件については、春作 (3月作付け)、初夏作 (5月作付け) そして秋作 (9月作付け) においてコマツナ、カブ、ニンジンへの作物移行の季節間差を検討した。試験条件の詳細は、II. 成果の詳細 (II.-3サブテーマ③) に記載した。

(4) 黄色土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究 (サブテーマ④)

兵庫県立農林水産技術総合センター内の黄色土ほ場（有機炭素含量2.5%）において試験区（1.5m²/区画、n = 3）を設けた。log Powの異なる8種類の農薬（ジノテフラン、クロチアニジン、イミダクロプリド、チアクロプリド、ホスチアゼート、メタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチル、log Powは-0.55～4.6）を2 mg/kg-乾重（トルクロホスメチルのみ 20 mg/kg-乾重）となるよう散布した。後作物残留しやすい作物種の検討については、コマツナ、シュンギク、ハウレンソウ、カブ、ニンジン、レタス、ブロッコリ、タマネギを栽培した。一方、後作物残留しやすい環境条件については、春作（3月作付け）、初夏作（5月作付け）そして秋作（9月作付け）においてコマツナ、カブ、ニンジンへの作物移行の季節間差を検討した。試験条件の詳細は、II. 成果の詳細（II.-4サブテーマ④）に記載した。

（5）土壌中の作物可給性農薬の動態（サブテーマ⑤）

同一気象条件下で、水抽出により得られる土壌中の作物吸収可能な農薬の系外移動、特に下方移動について明らかにするため、宮城県農業・園芸総合研究所内の人工ほ場（砂丘未熟土、褐色低地土、褐色森林土、黒ボク土 有機炭素含量それぞれ0.3%、1.4%、1.1%、6.0%）に試験区を設定した（1m²/区画、n = 3）。それぞれの試験区にlog Powの異なる5種類の農薬（ジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチル：log Pow -0.55～4.6）を平成29年は2 mg/kg-乾重（トルクロホスメチルのみ 20 mg/kg-乾重）、平成30年及び令和元年は1 mg/kg-乾重（トルクロホスメチルのみ 5 mg/kg-乾重）となるよう散布し、耕耘機で土壌を耕起した。薬剤処理後、コマツナをは種し、薬剤処理後経時的に1区当たり3本のコア（深さ30 cm）を採取、0～10cm、10～20cm、20～30cm 毎に混合した。また農薬の水平移動の有無を確認するため、区画両端から約20cm離れた地点においてコマツナを栽培した。本試験は、春作（4月作付け）、初夏作（6月作付け）そして秋作（9月作付け）で行った。なお、試験条件の詳細は、II. 成果の詳細（II.-5サブテーマ⑤）に記載した。

4. 結果及び考察

（1）農薬の後作物残留メカニズムの解明と黒ボク土ほ場での検証に関する研究（サブテーマ①）

水抽出農薬に対する土壌水分量が与える影響を解析するために、濃度の減衰曲線を一次反応式にあてはめ、半減期を算出した。得られた半減期について各試験区を比較したところ、土壌の最大容水量の60%区と80%区の半減期は同程度であったが、30%区の半減期は60%区および80%区よりも長い傾向にあった（図4.1.1）。低水分条件下では半減期が長くなるため、土壌が乾燥した状態では水抽出濃度の減衰が遅くなることが明らかとなった。受託者らのこれまでの研究（平成25年度～平成27年度環境研究総合推進費5-1302）において、水抽出濃度の減衰には土壌吸着の経時変化が寄与していることが明らかにしている。そこで、土壌水分条件の違いが K_d の経時変化に及ぼす影響を調査した結果、 K_d は時間の経過に伴い高い値を示し、経過日数の平方根に比例して直線的に増加した。 K_d の増加速度について各試験区を比較したところ、60%区と80%区の増加速度は同程度であったが、30%区の増加速度は60%区および80%区よりも遅い傾向にあった。したがって、30%区において水抽出濃度の半減期が長かった要因として、30%区では水の移動が生じにくい状態にあるため経時的に土壌吸着されにくく、水抽出濃度は減衰しにくいことが推察された。しかし、作物が生育できる最大容水量は50%以上とされていることから、通常の作物栽培条件において土壌の最大容水量は30%にならず（作物が枯死）、水分含量は水抽出された農薬濃度の経時変化には影響を与えないと考えられた。一方、水抽出された農薬に対する温度が与える影響を解析するために、土壌水分量の時と同様に半減期を算出するとともに K_d の経時変化を解析した。その結果、水抽出濃度の半減期は温度が高くなるほど短くなり、分解反応（微生物分解や加水分解）および揮発等が促進したと推察された。また、温度が高くなると K_d の増加速度も大きくなり、高温下で経時的な土壌吸着が促進すること推察された。さらに、 K_d 値は経過

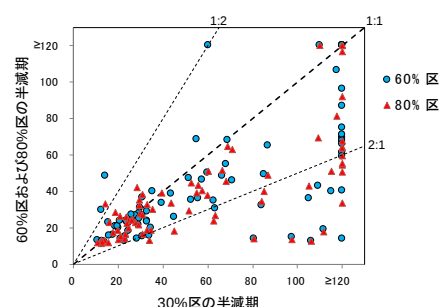


図4.1.1 最大容水量30%と60%区および80%区の農薬類の土壌中半減期の関係

日数 (t) の平方根に比例して直線的に増加したため、 K_d (mL/g) の経時変化は次式により表せる。

$$K_d = K_{d,0} + c \times t^{0.5} \quad (1)$$

ここで、 $K_{d,0}$ ：初期土壌吸着係数（農薬処理0日目の K_d ）、 c ： K_d の増加速度 ($1/t^{0.5}$)である。 $K_{d,0}$ が大きいほど傾き(c 値)が大きく正の相関関係にあり、温度が切片($K_{d,0}$)にも正の相関関係にあることから、温度変動がある条件下でも水抽出濃度の経時変化を推定可能であることが示された (図4.1.3)。

農薬の土壌溶液から作物根への移行と作物根から地上部への輸送について栽培環境(温度、日長、土壌水分)との関係を検討した。作物根への移行については、土壌溶液中濃度で根部濃度を除したRoot Concentration Factor (RCF) で解析した (図4.1.4)。なお、イミダクロプリド、クロチアニジン、チアクロプリドについては根部濃度が著しく低かったことからRCFによる比較は行わなかった。温度について、ホスチアゼート、メタラキシルM、フェノブカルブ、フルトラニル、プロシミドンのRCFは15℃と20℃では有意差がなかったが、25℃で高くなった。高温で農薬の土壌吸着が促進されると考えられている (図4.1.2)。植物根は吸着体とみなすことができるため、根への吸着も温度によって促進された可能性がある。また、農薬の根への移行に関わる植物側の要因としては根の重量や蒸散量があげられる。25℃では蒸散量つまり吸水量が多く水の移動によって移行が増加したかもしれない。日長について、ジノテフラン、ホスチアゼート、メタラキシルM、フェノブカルブ、フルトラニル、プロシミドンのRCFは明期8時間の短日条件下で高かった。ここでコマツナの生育状況をみると、短日条件よりも長日条件の方が根部重量は3倍程度、蒸散量も1.4倍程度高かった。根への移行が吸着によるとするならば、根部重量が多いと吸着サイトが増加すると予想される。したがって、長日条件の方がRCFは高くなると考えられるが、今回の結果では短日条件の方が高くなった。コマツナと同属のブロッコリにおいて日長が糖代謝等の物質代謝に影響することが示されている。このことから長日条件では植物体内での物質代謝が活発となったために農薬の代謝が行われたことで根部濃度が低下し、結果としてRCFが低下した可能性が考えられる。土壌水分について、疎水性の最も高いトルクロホスメチルのRCFは土壌水分による影響を受けなかったが、ジノテフラン、ホスチアゼート、メタラキシルのRCFは60%よりも75%で高く、またフェノブカルブ、プロシミドン、フルトラニルのRCFは高水分条件ほど高くなる傾向が認められた。トルクロホスメチルに比べこれらの6種の農薬はlog Powが低く水に溶け

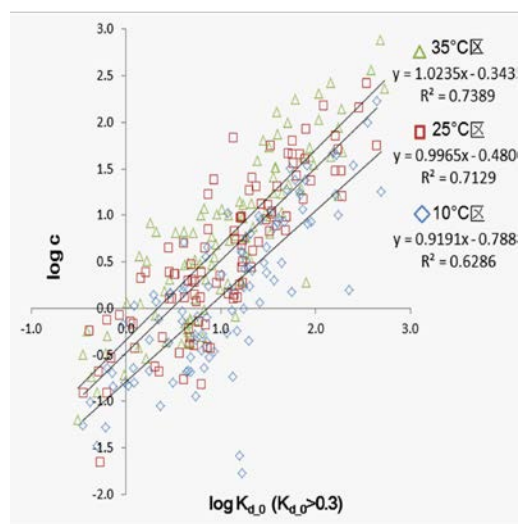


図4.1.3 各温度区における初期土壌吸着係数（農薬処理0日目の $K_{d,0}$ ）と K_d の増加速度(c)の関係

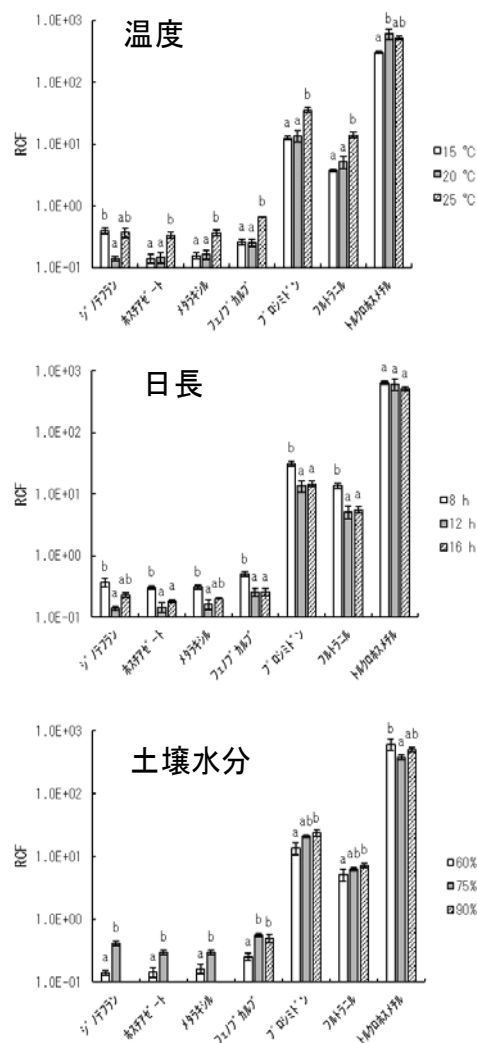


図4.1.4 農薬のRoot Concentration Factor (RCF)に栽培環境が及ぼす影響

やすいため、土壌溶液中濃度も10-100倍程度高い。したがって、植物の吸水力の寄与が大きく蒸散量が多い高水分条件下の作物根への移行が増加したと考えられた。

次いで、茎葉部への移行性を（茎葉部含量/蒸散量）/土壌溶液中濃度で得られる（Transpiration Stream Concentration Factor、TSCF）で解析した（図4.1.5）。温度について、ジノテフラン、ホスチアゼート、フェノブカルブのTSCFは15℃で高くなったが、プロシミドンでは25℃で高くなった。フルトラニルのTSCFは温度によって変わらず、茎葉部への移行性は温度による影響を受けにくいことが示唆された。トルクロホスメチルのTSCFは20℃で高く、温度と茎葉部への移行性との関係は不明瞭だった。以上のように、温度が茎葉部への移行性に及ぼす影響は農薬によって異なった。日長について、ジノテフランを除く、9種の農薬全てのTSCFが短日条件で高くなった。TSCFが一定ではないことから、これらの9種の農薬の茎葉部濃度の差異を蒸散量以外の植物生理的な要因が関与している可能性がある。その要因としては農薬が根に取り込まれてからの作物体内における代謝の関与が考えられ、その結果、RCFやTSCFが日長によって変動したと推察された。土壌水分について、ジノテフランのTSCFが90%で、トルクロホスメチルのTSCFが75%と90%で低下したが、他の8種の農薬のTSCFは土壌水分に関わらず一定だった。したがって、ホスチアゼート、メタラキシル、フェノブカルブ、プロシミドン、フルトラニルの茎葉部への移行は蒸散量依存的なものと考えられた。

これらの結果をほ場での栽培にあてはめると、土壌水分については、降雨や晴天により乾湿を繰り返すため作物中濃度へ与える影響はないと考えられる。温度が高いほど作物への移行しやすくなるが、作物体内での代謝の影響を受け結果的に濃度が低くなる可能性がある。一方、短日条件（秋～春）で作物への移行が明確に増加し、季節間差の視点では春作や秋作で作物残留濃度が高くなる可能性がある。

サブテーマ①～④のほ場試験データを用い開発したシミュレーションモデルの有効性を検証した。その結果、土壌溶液中の農薬濃度（作物可給性の農薬）の消長を再現することができた。一方、コマツナ茎葉部の農薬濃度は、根が発達し土壌溶液を十分に吸い上げることができるため定植10日後より急激に上昇し、20日前後にピークに達した後減少傾向を示した。その後、蒸散流に伴い土壌溶液中の農薬は茎葉部へ速やかに移行するが、コマツナの生長に伴う湿重量の増大により希釈されることを示している。しかし、コマツナ茎葉部の各農薬濃度の計算値は、水溶解度が非常に大きいジノテフランで比較的良好な一致を示したものの、実測値に比べて過大に見積もられ、減衰傾向も実測値に比べて緩やかであった。そこで、植物体における代謝分解の入力の有無によるコマツナ茎葉部濃度の比較を

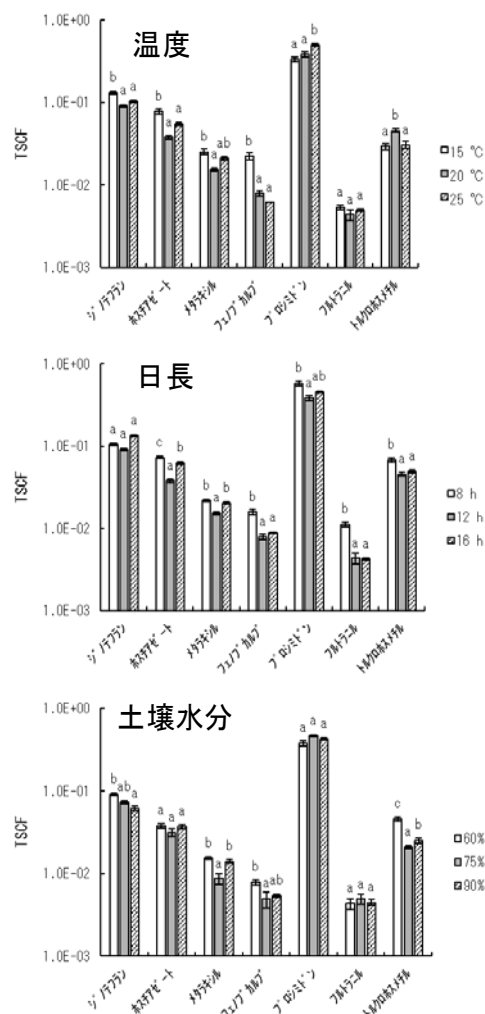
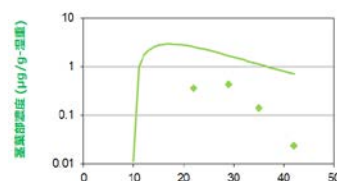


図4.1.5 農薬のTranspiration Stream Concentration Factor (TSCF)に栽培環境が及ぼす影響

植物代謝なし



植物代謝を考慮（半減期3日）

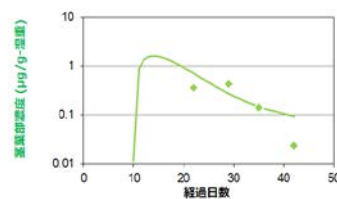


図4.1.16 コマツナ茎葉部濃度の推定結果（クロチアニジン：log Pow=0.7、砂丘未熟土の例）

行った(図4.1.16)。植物代謝を考慮した場合(半減期を3日に設定)のコマツナ茎葉部濃度は、考慮しない場合に比べて濃度レベルや減衰傾向が近似していることから、コマツナ茎葉部における濃度消長に対し植物代謝の寄与が大きいことが示唆された。したがって、本モデルを用いることで、実測値よりも過大評価する傾向にあるものの、コマツナ中濃度の推移を再現でき、作物体内の代謝分解速度を考慮することでより実測値に近い値を推定できることが示唆された。

図4.1.17に開発した後作物残留濃度予測モデルに対する感度分析結果を示す。縦軸に土壌中半減期を、横軸は仮想農薬7種に相当するlog Powを示す。それぞれのプロットは、予測モデルにより各種条件下で計算した収穫時におけるコマツナ茎葉部濃度について、一律基準値0.01ppm未満の場合を青で、0.01ppm以上の場合を赤で示したものである。この0.01ppmは、環境省の土壌残留に係る農薬登録基準において“人の健康を損なうおそれのない量”と定義され、後作物残留リスクを評価する上でこれを超過するか否かの判断が重要である。土壌処理の場合、半減期が20日以上では仮想農薬8種すべてで基準値を超過する結果となった。土壌処理の場合、単位面積当たりの農薬使用量が茎葉処理の場合に比べて100倍であり、物理化学的性状の違いによる残留濃度に及ぼす影響が見かけ上小さくなったことが主要因であると考えられた。一方、茎葉処理の場合は、仮想農薬のlog Powの違いによる残留濃度への影響が見られ、特に疎水性の高いlog Pow = 6の農薬では、半減期が50日でも基準値を下回る結果となった。しかし、一般的な浸透移行性を示す農薬(log Pow = 1~3)は、土壌中半減期が5日でも0.01ppmを超過する結果となった。前述のとおり、作物茎葉部における残留濃度に対し、植物代謝の寄与が大きいことが示唆されたため、農薬の植物体における半減期を1~20日に変化させた場合の計算を行った結果、半減期が5日以上の場合は、分解を考慮しない場合とほとんど変わらなかった。さらに、図4.1.17下段に示すように、log Powが0~3の農薬では、植物体内で速やかに分解する場合(半減期1日)でも、土壌中半減期が20日以上の場合、基準値を超過する結果となった。

前作での農薬散布から播種までの期間(Plant Back Interval、PBI)を変化させた場合のコマツナ茎葉部の残留濃度の推移についても検討した(図4.1.18)。下層農薬のlog Powを2、植物代謝による半減期を5日に固定し、土壌中半減期を変化させた場合の残留濃度は、コマツナ栽培を年2作に限定したかなり安全側に立ったPBI(土壌処理:120日、茎葉処理:60日)を適用した場合でも、土壌中半減期が20日以上の場合、0.01ppmを超過することが示された。以上により、後作物残留濃度は前作の農薬の使用法(特に、土壌処理での使用量の多さ)に大きく依存し、農薬の物理化学的性状のみで0.01ppmの超過の有無を判断することは困難であることが示された。

黒ボク土ほ場における試験について、水抽出で得られる作物可給性農薬の土壌中半減期を一次反応速度式にあてはめて算出したが、log Powとの明確な関係性、例えば、log Powが大きいほど半減期が長く

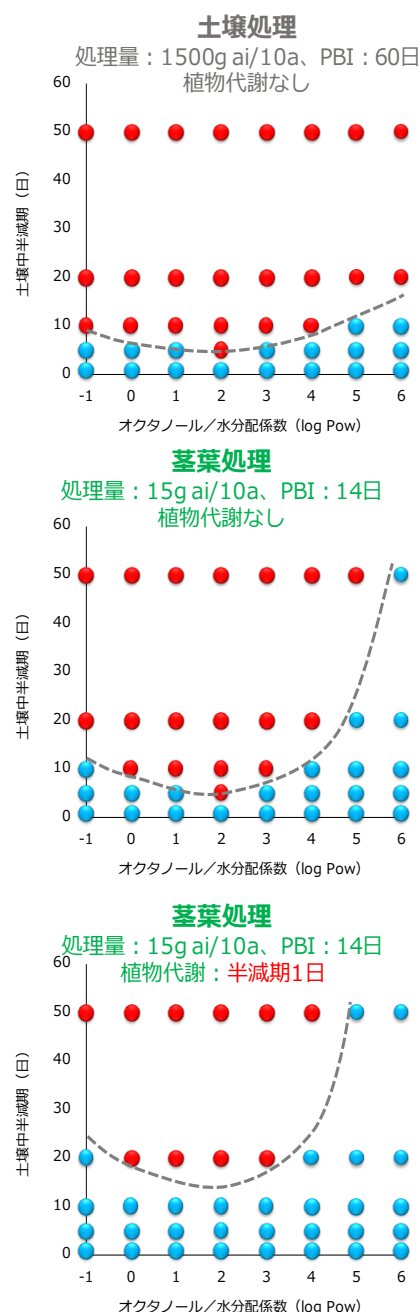


図4.1.17 後作物残留濃度予測モデルの感度分析結果

青丸: 収穫時のコマツナ中濃度が
0.01ppm未満、赤丸: 0.01ppm超過

上段: 土壌処理、中段: 茎葉処理(植物代謝なし)、下段: 茎葉処理(植物代謝半減期1日)

なる傾向は確認できなかった。季節ごとの半減期を比較すると、一部プロシドンやトルクロホスメチルで秋作における土壌中半減期が長い傾向にあるが、概ね春作＞初夏作＞秋作の順であった。土壌中濃度の減衰が著しい栽培初期(0～30日)の平均気温も春作(10.8℃)、初夏作(18.8℃)、秋作(21.7℃)であり、水抽出濃度の半減期は温度が高くなるほど短くなるという、室内試験の結果と一致した。収穫適期の農薬吸収に関する作物間差については、栽培適期が作物により異なるため、広範な栽培適期を有するコマツナを春作、初夏作、秋作で栽培し、各種作物中の農薬濃度をコマツナ中農薬濃度で除す、すなわちコマツナ中農薬濃度を1とした場合の相対値で示すことで解析した。その結果、コマツナ、ハウレンソウ、シュンギクなどの葉菜類で全般の農薬濃度が高く、トウモロコシ、ダイズ、トマト、カボチャといった果菜類・穀類では濃度が低いか不検出であった。また、根菜類、特にニンジン根ではlog Powが大きいプロシドンやトルクロホスメチルで濃度が高くなる傾向を示した。作物残留濃度の季節間差を確認するため、春作、初夏作および秋作におけるコマツナとニンジン(根部)の農薬濃度について、春作で得られた農薬濃度を1とした場合の相対値で初夏作、秋作の農薬濃度を比較した。その結果、土壌中半減期の長短の傾向と一致し、コマツナとニンジン(根部)いずれも一部プロシドンやトルクロホスメチルで秋作における濃度が高いが、概ね春作＞初夏作＞秋作の順であった。なお、ほ場試験で得られた結果の図表は、(6)項 農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度の提案にサブテーマ①～④の結果をまとめて記載した。

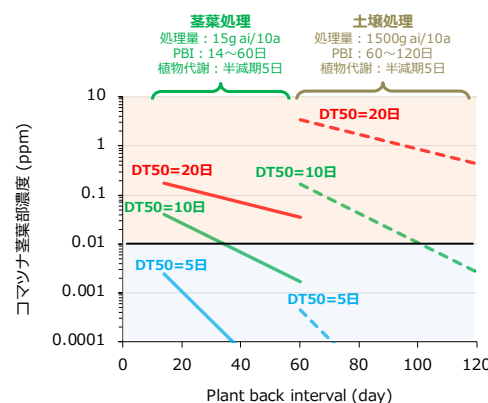


図4.1.18 Plant back interval

(PBI) とコマツナ中濃度との関係
農薬はlog Pow=2、植物代謝による半減期=5日に固定し、土壌中半減期DT50を変化させた場合

(2) 灰色低地土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究 (サブテーマ②)

散布直後(0日後)に得た各農薬の土壌中濃度(水抽出+アセトン抽出)は、設定濃度に対し64%から113%であり、試験を適切に開始出来ていることを確認した。春作(3月作付け)、初夏作(5月作付け)、秋作(9月作付け)、における水抽出で得られる作物可給性農薬の土壌中半減期は、3.8～55日であり、概ね春作≒秋作＞初夏作の順であった。平均気温も春作(14.2℃)、初夏作(23.5℃)、秋作(17.0℃)であり、水抽出濃度の半減期は温度が高くなるほど短くなるという、室内試験の結果と一致した。収穫適期の農薬吸収に関する作物間差については、各種作物中の農薬濃度をコマツナ中農薬濃度で除す、すなわちコマツナ中農薬濃度を1とした場合の相対値で示すことで解析した。概ね葉菜類6種[コマツナ、シュンギク、ハウレンソウ、ダイコン(ぬき菜)、リーフレタス、葉ニンニク]は、全般的に農薬濃度が高く、根菜類2種(カブ、ニンジン)、特にニンジンではlog Powが高いトルクロホスメチルで濃度が高くなる傾向を示した。一方、季節間差については、春作の濃度が高い傾向にあり、概ね春作≧秋作＞初夏作の順であった。なお、ほ場試験で得られた結果の図表は、(6)項 農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度の提案にサブテーマ①～④の結果をまとめて記載した。

本サブテーマでは、国内的に見た場合マイナーであるが冬作についても検討しており、水抽出で得た可給性農薬の土壌中半減期は、概ねすべての農薬で他の作型(春作、初夏作、秋作)よりも長くなる傾向にあった。しかし、作物中濃度と作物への移行係数(作物中濃度を栽培期間中の土壌中濃度の幾何平均値で除した値)の両者は、冬作が最も高くはなかった(II. 成果の詳細 サブテーマ②)に記載)。サブテーマ①の室内試験の結果を踏まえると、冬作は低温、短日条件下での作物代謝の減少による残留濃度の変動が主要因ではなく、蒸散量減少に伴う地上部への移行の減少等が要因として考えられるが、この点の解明は今後の課題とする。しかし、本サブテーマでの四季を通じた試験を行った結果、春作および秋作で作物残留濃度が高くなるといえる。

(3) 砂丘未熟土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究 (サブテーマ③)

散布直後（0日後）に得た各農薬の土壌中濃度（水抽出濃度＋アセトン抽出濃度）は、設定濃度に対しジノテフラン 87～133%、クロチアニジン 58～110%、メタラキシルM 76～138%、プロシミドン 95～179%、トルクロホスメチル 79～126%であり、概ね設定どおりに試験を開始出来ていることを確認した。土壌（0～10 cm深）の水抽出で得られる作物可給性農薬濃度は経時的に減少し、その土壌中半減期（3区画の平均値）は、ジノテフラン 4.0～21.2日、クロチアニジン 6.6～31.9日、メタラキシルM 6.0～19.5日、プロシミドン 22.5～31.8日、トルクロホスメチル 22.8～37.1日となった。特にlog Powの低いジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルMについては、春作の土壌中半減期が最も長くなり時期による変動が大きかった。土壌層位別の農薬濃度推移を見てみると、初夏作および秋作では、試験開始後2週間以内に多くの農薬が10～20cm深へ移行していることが確認された。この期間の降水量は、30 mm（春作）、96 mm（初夏作）そして164 mm（秋作）であった。一般に農薬の土壌吸着係数は、土壌の炭素含量との間に正の相関関係にあり、炭素含量が多い土壌でかつlog Powが大きい農薬ほど土壌への吸着が強くなる。本供試土壌の炭素含量は0.01%であり、農薬が吸着しにくい土壌に分類される。したがって、梅雨時期（初夏作）と台風（秋作）の大雨による下層への溶脱がlog Powの小さい農薬の土壌中半減期の長短に影響していることが示唆された（詳しくは、II. 成果の詳細（II. -3サブテーマ③）に記載）。

収穫適期の農薬吸収に関する季節間差については、春作および夏作の濃度が高い傾向にあり、概ね春作≧初夏作>秋作の順であり、秋作のlog Powの低いジノテフランでは定量下限値未満となった。土壌中半減期の季節間差を考慮すると、土壌中残留量の差異、すなわち、大雨による農薬の下層への溶脱が影響していると考えられた。一方、作物間差については、各種作物中の農薬濃度をコマツナ中農薬濃度で除す、すなわちコマツナ中農薬濃度を1とした場合の相対値で示すことで解析した。概ね葉菜類5種（コマツナ、シュンギク、ハウレンソウ、ネギ、カブ葉）は、全般農薬濃度が高く、根菜類2種（カブ根、ニンジン）、特にニンジンではlog Powの高いトルクロホスメチルで濃度が高くなる傾向を示した。なお、ほ場試験で得られた結果の図表は、（6）項 農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度の提案にサブテーマ①～④の結果をまとめて記載した。

（4）黄色土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究（サブテーマ④）

散布直後（0日後）に得た各農薬の土壌中濃度（水抽出＋アセトン抽出）は、設定濃度に対し76%から124%であり、試験を適切に開始出来ていることを確認した。本章では、共通農薬のジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチルの結果を記載し、それ以外の農薬を含めた結果は、II. 成果の詳細（II. -4サブテーマ④）に記載する。春作（3月作付け）、初夏作（5月作付け）、秋作（9月作付け）における水抽出で得た可給性農薬の土壌中半減期は、4～40日であり、秋作が長い傾向にあったが、変動幅が大きいため、概ね秋作≧春作>初夏作の順であった。他のサブテーマや室内試験の結果と一致した。収穫適期の農薬吸収に関する作物間差については、各種作物中の農薬濃度をコマツナ中農薬濃度で除す、すなわちコマツナ中農薬濃度を1とした場合の相対値で示すことで解析した。概ね葉菜類6種（コマツナ、シュンギク、ハウレンソウ、カブ葉、レタス、ブロッコリ）は全般の農薬濃度が高く、根菜類3種（カブ根、タマネギ、ニンジン）、特にニンジンではlog Powの高いトルクロホスメチルで濃度が高くなる傾向を示し、これも他のサブテーマの傾向と一致した。一方、季節間差については、初夏作の濃度が高い傾向にあったが、変動幅が大きいため、概ね初夏作≧春作≧秋作の順であった。なお、ほ場試験で得られた結果の図表は、（6）項 農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度の提案にサブテーマ①～④の結果をまとめて記載した。

露地栽培において地温の維持と雑草抑制のためマルチ資材を畝に張る場合がある。本サブテーマでは、マルチ資材の被覆が土壌濃度及び半減期へ及ぼす影響について検討している。マルチ区はポリエチレン製黒色マルチ（厚さ0.05 mm、植穴直径4 cm、条間30 cm株間26cm、千鳥植えレタス用）で畝の上を覆った。対照区、マルチ区ともに試験の間は無栽培であり、試験方法については他の試験と同様とした。その結果、水抽出で得た可給性農薬の土壌中半減期はいずれの農薬も対照区<マルチ区の関係にあることが分かった（II. 成果の詳細 サブテーマ④に記載）。したがって前作でマルチ資材を使用する場合は、次作の作付けまでの期間（PBI）を十分にとる、あるいは次作の作物種に農薬登録の適用がある（一律基

準が適用されない) 農薬を使用する、といったことを生産現場で実施することで後作物残留のリスクを下げるができるであろう。

(5) 土壌中の作物可給性農薬の動態 (サブテーマ⑤)

散布直後 (0日後) または散布2日後の土壌中全濃度 (水抽出及びアセトン抽出の合量) は、設定濃度に対して、19~150%であり、砂丘未熟土では全般に低かったが、試験は概ね適切に開始された。

水抽出農薬の下方への移動は、農薬のlog Powに強く影響を受けていた。例えば、平成30年ではlog Powが比較的低いジノテフラン及びクロチアニジン、砂丘未熟土の下層20~30cm深で定量限界以上の濃度が確認され、下層20~30cm深まで移動していることが明らかとなったが、メタラキシルM及びプロシミドン、トルクロホスメチルは定量限界未満で下層20~30cm深への移動は確認されなかった。令和元年では、ジノテフランは散布2日後には砂丘未熟土や黒ボク土の下層20~30cm深で定量限界以上の濃度が確認されたが、クロチアニジンは散布29日後に、メタラキシルM及びプロシミドンは散布36日後に砂丘未熟土の下層20~30cm深で定量限界以上の濃度が確認され、log Powが低い農薬ほど下層20~30cm深で定量されるまでの日数が早い傾向であった。

土壌種の違いを明確にするために、試験開始直後の全量濃度に土壌量に乗じて各層に残留する農薬量を求め、散布直後 (0日後) の農薬残留量に対する割合を算出した (図4.5.9)。ジノテフランは、砂丘未熟土においては、散布8日後には表層0~10cmに散布農薬量の約10%しか残留しておらず、約60%が下層へと移動していた。一方、褐色森林土や黒ボク土では、散布43日後においても散布したジノテフランの約40%が表層0~10cmに残留していた。クロチアニジンやメタラキシルM、プロシミドンも、褐色森林土や黒ボク土では散布29日後において下層10~20cm及び20~30cmへ移動した割合が10%以下だったのに対し、砂丘未熟土では20~40%と多かった。log Powが低いジノテフランのような農薬は下層へと移動しやすいため、作物の生育期間中に根域外へと移動して可給性が低くなる可能性も示唆され、サブテーマ③の傾向と一致した。

次いで水抽出農薬の水平移動を確認するため、試験区から20 cm離れた位置 (区画外) の土壌中の水抽

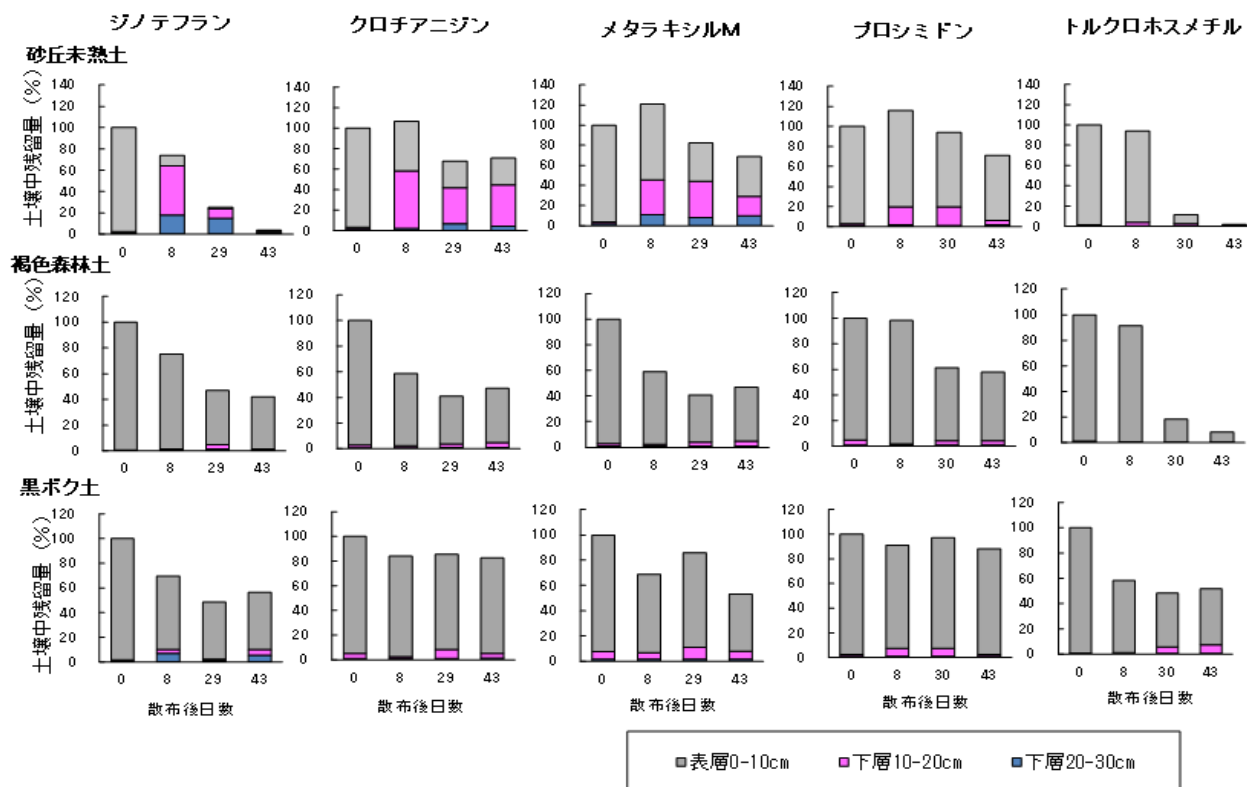


図4.5.9 試験開始直後を100%とした場合の各層に残留農薬量の推移

出濃度を調査したところ、ジノテフランやクロチアニジン、メタラキシルMでは定量限界以上の濃度が確認された。さらに、区画内外にコマツナを栽培し農薬濃度を調査した結果、区画内の濃度と比べ低いものの、砂丘未熟土の区画外のコマツナからも定量限界以上の濃度で農薬が検出され、土壤中農薬が水平移動している可能性が示唆された。

(6) 農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度の提案 (サブテーマ①～⑤のまとめ)

ここでは、本課題の最終目標の、後作物残留試験を実施すべきかのトリガーの設定が可能か否か、後作物残留試験を実施するための諸条件について記載する。

まず、後作物残留試験を実施するための諸条件についてサブテーマ①～⑤のは場試験結果を取りまとめて考察する。供試作物については、サブテーマ①～④において計9科16作物について検討した結果、コマツナ等の葉菜類では幅広いlog Powの農薬が残留し、根菜類、特にニンジンでは高いlog Powの農薬が残留することを明らかにした。作物移行の作物間差と農薬間差を明確にするため、収穫時の作物中濃度を水抽出で得た土壤中の作物可給性農薬濃度の栽培開始日から収穫日までの幾何平均値で除すことで得られる移行係数 (Transpiration Factor, TF) を算出した。その結果、移行係数についてもコマツナ等の葉菜類では幅広いlog Powの農薬の移行係数が高く、根菜類、特にニンジンでは高いlog Powの農薬の移行係数が高くなった (図4.0.1)。

供試土壌と季節については、作物可給性農薬の土壌中半減期と作物中濃度 (ここではコマツナ) の濃度比較で検討した。作物可給性農薬の土壌中半減期については、黒ボク土で若干長い傾向にあったが、明瞭な土壌種間の違いは観察されず、概ね春作>秋作>初夏作の順であった (図4.0.2)。コマツナ中濃度についても同様に概ね春作>秋作>初夏作であったが、砂丘未熟土では秋作の濃度が著しく低くなった (図4.0.3)。サブテーマ⑤の結果 (図4.5.9) も踏まえると、台風による大雨により土壌下層への農薬の溶脱により土壌中半減期が短くなり、コマツナ中濃度も低くなったと考えられる。

以上のことから、供試作物については、コマツナ等葉菜類が適しており、幅広いlog Powの農薬の評価が可能である。特にlog Powが高い農薬に対しては、ニンジン (根部) 等根菜類が供試作物になりえる。供試土壌については、砂丘未熟土では大雨により試験が適切に実施できない場合があることから、灰色低地土や黄色土のような炭素含量が1~2%程度の土壌と、我が国の特殊性 (畑土壌の50%以上を占める) から黒ボク土での試験を実施

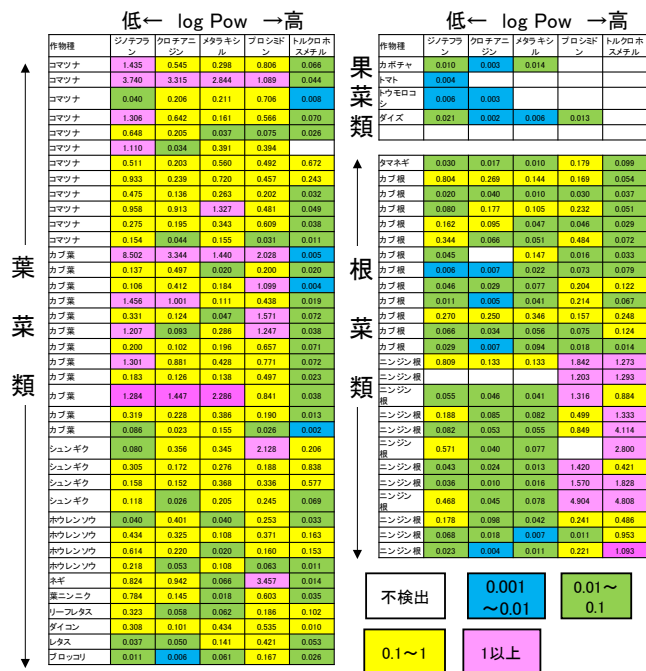


図4.0.1 各種農薬の土壌から16作物への移行係数

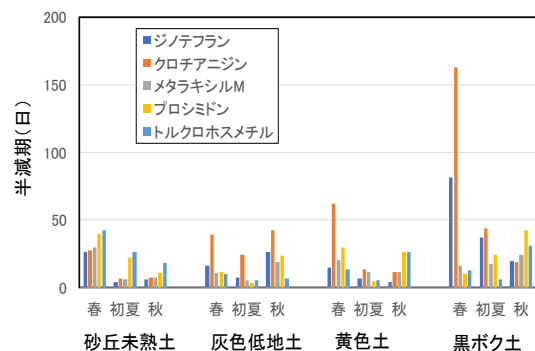


図4.0.2 水抽出で得た土壌中の作物可給性農薬の半減期の土壌・季節間差

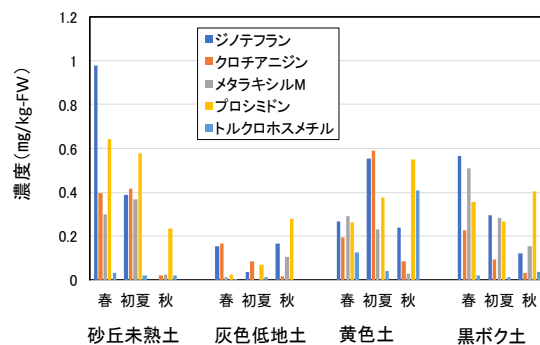


図4.0.3 コマツナ中濃度の土壌・季節間差

すべきであろう。季節について、初夏作では作物体内での代謝により農薬濃度が減少する場合があるため、春作もしくは秋作が良く、試験実施の手順（農薬の土壌への散布時期）を考慮すると、夏季に農薬を散布する秋作よりも春作のほうが良いと思われる。

トリガーの設定の設定については、サブテーマ①の結果で示した通り、シミュレーションモデルでコマツナ中濃度を推定した結果、土壌処理の場合、土壌中半減期が20日以上では仮想農薬7種すべてで0.01ppmを超過し、茎葉処理の場合は、一般的な浸透移行性を示す農薬（log Pow=1~3）は、土壌中半減期が5日でも0.01ppmを超過し、疎水性の高いlog Pow=6の農薬では半減期が50日以上で0.01ppmを下回った（図4.1.17）。この結果を踏まえて、土壌処理の場合はlog Powと土壌中半減期を用いてトリガーの設定が可能と思われたが、サブテーマ①~④のは場試験結果から、根菜類（特にニンジン）において高いlog Powの農薬の移行係数（コマツナにおける低いlog Powの農薬の移行係数と同等の値）が認められており（図4.0.1）、短い土壌中半減期（例えば5日）において疎水性の高い農薬でも根菜類で0.01ppmを超過する可能性がある。すなわち、土壌中半減期が短くてもlog Powの高低にかかわらず後作物において0.01ppmを超過する可能性がある。したがって、農薬の物理化学的性状のみではトリガーの設定は困難であり、一律に後作物残留試験を実施する必要があると思われた。ただし、登録時に提出する他の試験で葉菜類や根菜類中濃度が0.01ppmより小さいことを確認している場合や、本シミュレーションモデルを用いてコマツナ中濃度が0.01ppmより小さいと算出される場合は、後作物残留試験は不要と思われる。特に、申請者が当該農薬の植物代謝速度のデータを別途取得、シミュレーションモデルに入力することで、より現実に近いコマツナ中濃度の推定値を得た上で、後作物残留試験の要否の判断を行うことが望ましいと思われる。以上をふまえた本研究で提案する新たな登録制度を図4.0.4に示した。

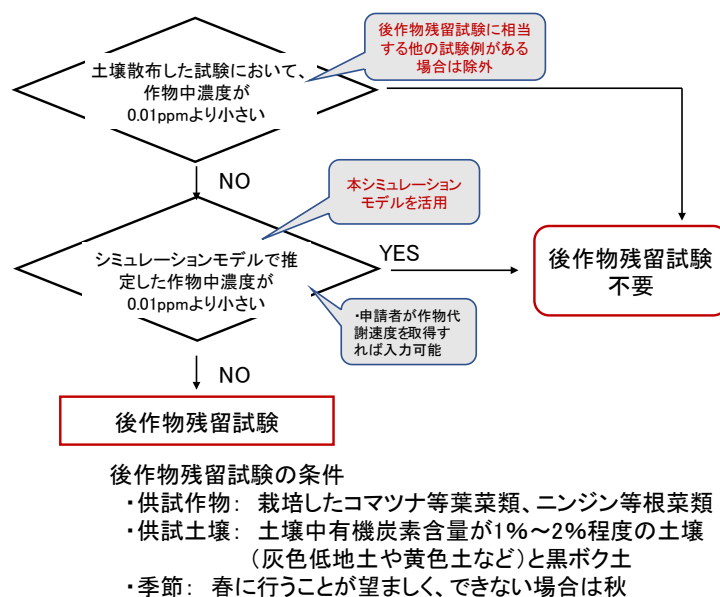


図4.0.4 本研究で提案する後作物残留に関する新たな登録制度

また、本研究では「後作物残留リスクが高い条件を適切に反映した試験データを要求する」というスタンスで新たな登録制度を提案したが、換言すると、後作物残留のリスクを下げるために生産現場で実施できる情報を得たともいえる。例えば、「土壌を乾燥状態で管理すると農薬の土壌中半減期が長くなるため、PBI期間は湿潤状態で管理を推奨」、「次作が春作や秋作となる場合、前作で土壌処理剤を使用した場合、あるいは前作でマルチ資材を使用する場合は、次作の作付けまでの期間（PBI）を十分にとる」である。これらについてはリスク管理機関を通じた注意喚起も可能であろう。

5. 本研究により得られた主な成果

農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度を提案するため、後作物残留試験を実施すべきかのトリガーの設定が可能か否かを検討した結果、

・当初計画通り、農薬登録申請時に提出される各種試験成績に関するデータ等（各種物性値、土壌残留性試験成績等）を最大限活用し、畑地ほ場で使用された農薬が土壌溶液を介し、作物根部から吸収、茎葉部へ移行することを想定した後作物残留濃度予測モデル（PostPLANT-Soil）を構築した。本モデルについてはほ場試験結果を用いて検証した結果、予測値は実測値よりも過大評価する傾向にあるものの、コマツナ中濃度の推移を再現でき、作物体内の代謝分解速度を考慮することでより実測値に近い推定値を得ることができることを明らかにした。

・本モデルを用い仮想シナリオでコマツナ中濃度を推定した結果、一般的な浸透移行性を示す農薬

($\log \text{Pow}=1\sim3$) は、土壌中半減期が5日でも環境省の土壌残留に係る農薬登録基準において“人の健康を損なうおそれのない量”として厚生労働大臣が定める(0.01ppm)を超過する可能性が示された。一方、ほ場試験果では、疎水性の高い農薬では、根菜、特にニンジンへの移行係数が高く、疎水性の低い農薬のコマツナへの移行係数と同様な値を示した。これらの結果は $\log \text{Pow}$ の高低や土壌中半減期の長短にかかわらず後作物において0.01ppmを超過する可能性を示したため、農薬の物理化学的性状のみではトリガーの設定は困難であり、一律に後作物残留試験を実施する必要がある事を明らかにした。

次いで後作物残留試験を実施するための適切な諸条件(供試作物、供試土壌、季節)を提示するため、我が国に広く分布する土壌種のは場において、後作物残留しやすい土壌間や農薬吸収の作物間差、季節間差を当初計画通り明らかにした。

- ・供試作物については、計9科16作物を試験した結果、コマツナ等葉菜類が適しており、幅広い $\log \text{Pow}$ の農薬の評価が可能であるとともに、特に $\log \text{Pow}$ が大きい農薬については、ニンジン(根部)等根菜類が供試作物になりえることを明らかにした。

- ・供試土壌については、砂丘未熟土では大雨による農薬の下層への溶脱により試験が適切に実施できない場合があることから、灰色低地土や黄色土のような炭素含量が1~2%程度の土壌と、我が国の特殊性から黒ボク土での試験を実施すべきと指摘した。

- ・季節については、初夏作では作物体内での代謝により農薬濃度が減少する場合があるため、春作もしくは秋作が良く、さらに、試験実施の手順(農薬の土壌への散布時期)を考慮すると、夏季に農薬を散布する秋作よりも春作のほうが良いとした。

(1) 科学的意義

環境行政に活用可能なシミュレーションモデルを開発できたことは極めて重要である。一方、特に供試土壌種の提案について、今回のほ場試験結果は過去の室内試験結果を反映せず、砂丘未熟土では降雨による下層への溶脱が生じていることを明らかにするなど、室内試験では明らかにできない実環境で生じうる現象を科学的に確認し、それを農薬登録の提案につなげたことは意義深い。

(2) 環境政策への貢献

公募時の行政ニーズは「土壌残留に係る農薬登録保留基準として考慮すべき要素を特定の上、土壌残留に係る農薬登録保留基準を提案」「農薬登録申請者に提出を求める試験の内容など(試験を実施する際の要件(作物の選択、ほ場の選択など)を提案)であった。前者については、計画通りシミュレーションモデルを開発し、 $\log \text{Pow}$ の高低や土壌中半減期の長短にかかわらず後作物において0.01ppmを超過する可能性がある。これら指標に係るトリガー値の設定により後作物中の農薬残留レベルを予測する手法では、農薬取締法に基づく農薬登録の審査等、規制の根拠として用いるには十分な精度を得ることが期待できないと考えられ、現段階では、農薬の物理化学的性状のみではトリガーの設定は困難であり、一律に後作物残留試験を実施する必要がある、と指摘した。

後者については、供試作物については、コマツナ等葉菜類が適しており、幅広い $\log \text{Pow}$ の農薬の評価が可能であること、特に $\log \text{Pow}$ が大きい農薬については、ニンジン(根部)等根菜類が供試作物になりえると提案した。供試土壌については、灰色低地土や黄色土のような炭素含量が1~2%程度の土壌と、我が国の特殊性から黒ボク土での試験を実施すべきと提案した。供試作物の作期について、春作もしくは秋作が良く、さらに、試験実施の手順(農薬の土壌への散布時期)を考慮すると、夏季に農薬を散布する秋作よりも春作のほうが良いと提案した。

<行政が既に活用した成果>

平成29年~平成31年度「環境省農薬残留対策総合調査」において、土壌中の作物可給性農薬の抽出法として、本研究で有効性を示した水抽出法を採用。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究で提案した農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度〔一律に後作物残留試験を実施、後作物残留試験条件（供試作物、供試土壌、季節）〕。

6. 研究成果の主な発表状況

（１）主な誌上発表

<査読付き論文>

- 1) S. NAMIKI, T. OTANI, Y. MOTOKI, N. SEIKE and T. IWAFUNE: Journal of Pesticide Science, 43(2), 96-107 (2018), Differential uptake and translocation of organic chemicals by several plant species from soil.
- 2) S. NAMIKI, T. OTANI, Y. MOTOKI and N. SEIKE: Journal of Pesticide Science, 43(4), 248-254 (2018), The influence of *Brassica rapa* var. *perviridis* growth conditions on the uptake and translocation of pesticides.
- 3) Y. MOTOKI, T. IWAFUNE, N. SEIKE, K. INAO and S. NAMIKI: Journal of Pesticide Science, 43(4), 277-282 (2018), Comparison of soil sorption parameters of pesticides measured by batch and centrifugation methods using an andosol.
- 4) S. NAMIKI, Y. MOTOKI, N. SEIKE: Journal of Pesticide Science, 44(1), 1-8 (2019), Relationship between growth stage of *Brassica rapa* var. *perviridis* and the abilities for uptake and translocation of pesticides in soil.
- 5) Y. MOTOKI, T. IWAFUNE, N. SEIKE and K. INAO: Journal of Pesticide Science, 45(2), 86-94 (2020), Effects of temperature on first order and biphasic dissipation of pesticides in Japanese soils.

（２）主な口頭発表（学会等）

- 1) 清家伸康：第22回 食品と化学物質のリスク勉強会（2017）
「農薬の後作物残留についてどこまで分かったのか？今後の展望は？」
- 2) 清家伸康：平成29 年度 近畿中国四国農業試験研究推進会議 病害虫推進部会四国及び近畿中国地区農薬残留分析担当者会（2017）
「農薬の後作物残留について」
- 3) 清家伸康、元木裕、渡邊栄喜、並木小百合、稲生圭哉：日本農薬学会第 43 回大会（2018）
「農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第 15 報 ほ場試験によるコマツナの土壌中農薬の吸収性評価 その2」
- 4) 稲生圭哉、清家伸康、元木 裕、渡邊栄喜、並木小百合：日本農薬学会第 43 回大会（2018）
「農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第 19 報 葉菜類を対象とした農薬の後作物残留濃度予測モデルの開発」
- 5) 清遠亜沙子、島本文子、森田展樹、清家伸康、日本農薬学会第43回大会（2018）農薬の後作物残留リスク評価に関する研究第17報－灰色低地土ほ場における水抽出農薬の減衰傾向－
- 6) 田中昭人、大黒香奈美、谷博、清家伸康、日本農薬学会第43回大会（2018）、農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第18報 砂丘未熟土における水抽出農薬の減衰傾向
- 7) 望月証、神頭武嗣、田中雅也、清家伸康、日本農薬学会第43回大会（2018）、農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第16報 黄色土における水抽出農薬の減衰傾向
- 8) 清家伸康、渡邊栄喜、並木小百合、稲生圭哉、望月 証、田中昭人、島本文子：日本農薬学会第42回農薬残留分析研究会（2019）「農薬の後作物残留リスク評価に関する研究（第20報）ほ場試験によるコマツナの土壌中農薬の吸収性評価 その3」
- 9) 稲生圭哉、清家伸康、渡邊栄喜、並木小百合、望月証、田中昭人、島本文子：日本農薬学会第

42回農薬残留分析研究会（2019）「農薬の後作物残留リスク評価に関する研究（第21報）葉菜類を対象とした農薬の後作物残留濃度予測モデルの開発およびほ場試験結果による検証」

- 10) 中村佳与、瀧典明、永田悦祈、清家伸康：日本土壌肥料学会2019年度静岡大会（2019）「異なる土壌中における植物可給性農薬の動態」
- 11) 島本文子、山本彩、清遠亜沙子、森田展樹、清家伸康、日本農薬学会第45回大会（2020）農薬の後作物残留リスク評価に関する研究第25報－灰色低地土ほ場における土壌中農薬の挙動と作物への移行－
- 12) 田中昭人、矢野景子、清家伸康、日本農薬学会第45回大会（2020）、農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第24報 砂丘未熟土における土壌中農薬の挙動と作物への移行
- 13) 望月証、富原工弥、清家伸康、日本農薬学会第45回大会（2020）、農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第26報 黄色土ほ場における土壌中農薬の挙動と作物への移行

7. 研究者略歴

研究代表者

清家 伸康

愛媛大学農学部卒業、農学博士、現在、農研機構ユニット長

研究分担者

- 1) 稲生 圭哉

関西大学工学部卒業、現在、農研機構ユニット長

- 2) 渡邊 栄喜

星薬科大学薬学部卒業、現在、農研機構上級研究員

- 3) 並木 小百合

山形大学農学部卒業、現在、農研機構研究員

- 4) 島本 文子

高知大学農学部卒業、現在、高知県農業技術センターチーフ

- 5) 田中 昭人

香川大学農学部卒業、現在、徳島県立農林水産総合技術支援センター研究係長

- 6) 望月 証

京都大学農学部卒業、現在、兵庫県立農林水産技術総合センター主任研究員

- 7) 千葉 直樹 （平成29年度から平成30年度まで）

東北大学理学研究科修了、現在、宮城県農業・園芸総合研究所上席主任研究員

- 8) 中村 佳与 （平成30年度から令和元年度まで）

東北大学農学研究科修了、現在、宮城県農業・園芸総合研究所研究員

- 9) 瀧 典明 （令和元年度）

東北大学農学研究科修了、現在、宮城県農業・園芸総合研究所主任研究員

II. 成果の詳細

II-1 農薬の後作物残留メカニズムの解明と黒ボク土ほ場での検証に関する研究

国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構

有害化学物質研究領域	有機化学物質ユニット	清家 伸康・並木 小百合
	環境化学物質分析ユニット	渡邊 栄喜
生物多様性研究領域	化学物質影響評価ユニット	稲生 圭哉

平成29年度～令和元年度研究経費（累計額）：47、562千円（研究経費は間接経費を含む）
（平成29年度：16、356千円、平成30年度：14、850千円、令和元年度：16、356千円）

【要旨】

後作物残留を未然に防止するため、農薬登録申請時において後作物残留試験を実施すべきか否かのトリガーや、農薬の土壌残留性や作物移行性を考慮した後作物残留試験を実施するための適切な諸条件（季節、土壌種、作物種）を提案することを目的とする。室内試験により土壌残留した農薬の作物移行に関する3プロセスについて検討した結果、温度変動がある条件下でも土壌の水抽出で得られる作物可給性農薬の経時変化を推定可能であることを示した。作物移行に関しては、短日条件（秋～春）で作物への移行が明確に増加し、季節間差の視点では春作や秋作で作物残留濃度が高くなる可能性があることを示した。これらの結果を基に、後作物残留濃度予測モデル（PostPLANT-Soil）を作成し、農薬の物理化学的性状（log Powおよび土壌中半減期）違いによる当該モデルの感度分析を行い、残留基準値超過の有無を判定、後作物残留試験を実施すべきかのトリガーの設定が可能かを確認した。その結果、後作物残留濃度は前作の農薬の使用量（特に、土壌処理での使用量の多さ）に大きく依存し、農薬の物理化学的性状のみで0.01ppmの超過の有無を判断することは困難であることを示した。

【キーワード】

農薬、後作物残留、黒ボク土、シミュレーションモデル、トリガー

1. はじめに

現在、土壌に残留した農薬による作物の汚染、及びそれによる人への健康被害を防ぐため、土壌残留に係る農薬登録保留基準が設定されているが、この基準を満たして農薬登録されているにもかかわらず、後作物残留（前作に使用した農薬が土壌に残留し、次作の作物が吸収すること）が報告されている。これは、現行の農薬登録保留基準が、農薬の土壌残留性や作物移行性を考慮していないことや、後作物残留試験を実施する際の諸条件が不十分であることが原因として考えられる。したがって、後作物残留を未然に防止するためには、農薬登録申請時において後作物残留試験を実施すべきか否かのトリガーや、農薬の土壌残留性や作物移行性を考慮した後作物残留試験を実施するための適切な諸条件（季節、土壌種、作物種）を提案する必要がある。

2. 研究開発目的

本研究では、農薬の後作物残留を未然に防ぐための新たな登録制度を提案するため、2つの最終目標を設定した。サブテーマ①では、室内試験により土壌残留した農薬の作物移行に関する3プロセス（1. 土壌から土壌水への移行、2. 土壌水から作物根への移行、3. 作物根から地上部への輸送）に関するパラメータ（移行係数・分解速度など）を取得し、農薬の物性値や気温等の環境要因の観点から解析する。これらを基に、作物残留濃度の経時変化を推定可能なシミュレーションモデルを開発するとともに、後作物残留試験を実施すべきか否かのトリガーを提案する。さらに、黒ボク土ほ場において、後作物残留しやすい土壌間や農薬吸収の作物間差（コマツナ等の葉菜類、栽培期間の長短のある根菜およびイネ科、マメ科、ナス科等主要作物を含む）を明らかにするとともに、3作期（春作、初夏作、秋作）で試験を行い、

農薬の土壌中濃度変動や作物吸収の季節間差を解明する。これらの結果から、後作物残留試験を実施するための適切な諸条件として提示するとともに、得られたデータをシミュレーションモデルの検証データとして活用する。

3. 研究開発方法

受託者らのこれまでの研究（平成25年度～平成27年度環境研究総合推進費5-1302）により、土壌に残留する全ての農薬が作物体へ吸収されるわけではなく、土壌水へ溶解した一部の農薬（水抽出された農薬）が作物体へ移行すること（以後、作物可吸性農薬と略記）、有機炭素含量が少なく農薬の土壌吸着が弱い砂丘未熟土では水抽出された農薬の半減期が長くなること、土壌吸着係数（ K_d ）は時間経過に伴い増加し、土壌に吸着する割合が経時的に増加すること等を解明した。そこでサブテーマ①では、土壌に残留した農薬の作物吸収に関する3プロセスのうち、土壌から土壌水への脱着、すなわち、水抽出により得た作物可吸性農薬の変動要因について、土壌水分量および温度が異なる条件で農薬の容器内土壌残留試験を行った。また、これまでの研究で後作物残留試験の標準作物として提案したコマツナについて、人工気象室内での土耕試験によって栽培環境（温度、日長、土壌水分）や生育ステージと農薬の吸収・移行性との関係を検討した。後作物残留試験を実施するための適切な諸条件を提示するため、黒ボク土は場において、後作物残留しやすい条件（作物間差および季節間差）を確認した。さらに、これらのデータを基に農薬の挙動を速度論モデルで表現した後作物残留濃度予測モデル（PostPLANT-Soil）を構築し、農薬の物理化学的性状（オクタノール・水分配係数、log Powおよび土壌中半減期）違いによる当該モデルの感度分析を行い、残留基準値超過の有無を判定、後作物残留試験を実施すべきかのトリガーの設定が可能かを確認した。

農薬の容器内土壌残留試験では、我が国に分布する5種の農耕地土壌（砂丘未熟土、黄色土、灰色低地土、黒ボク土2種、有機炭素含量：0.06～8.65%）8 g相当の風乾土を50 ml ガラス製遠沈管へ秤取し、土壌の最大容水量の30%、60%および80%となるように土壌水分含量を調節した。25℃に設定した恒温槽（暗所）で約10日間のプレインキュベートを行い、1 mg/kg-乾重となるように農薬を添加した。供試農薬として物理化学性（log Pow、log Pow：-0.55～4.84）および化学構造が異なる27種の殺虫・殺菌剤を用いた。農薬の処理後0、2、7、14、30、60、120日後に土壌試料を回収し、0.01M 塩化カルシウム水溶液とアセトンを用いて逐次抽出を行った。温度の影響に関する試験条件は、水分含量を最大容水量の60%に固定し、10℃、25℃、35℃に設定した恒温槽でインキュベートした以外は、土壌水分量の場合と同様である。

後作物残留試験の標準作物として提案したコマツナについて、農薬濃度の季節変動における作物側の要因を明らかにするために、人工気象室内で温度、日長、土壌水分量を変えて土耕試験を行った。コマツナ（*Brassica rapa* L. var. *perviridis*）、品種：よかった菜（カネコ種苗）を育苗培土に播種し、20℃、明期12 h-暗期12 hで21日間育苗した。供試農薬は物性（log Pow）の異なる10種の農薬（ジノテフラン、イミダクロプリド、クロチアニジン、チアクロプリド、ホスチアゼート、メタラキシル、フェノブカルブ、フルトラニル、プロシミドン、トルクロホスメチル）とした（表3.1.1）。試験土壌は、各物質50 mg/Lのアセトン溶液

表3.1.1 供試農薬の物性値

供試農薬	オクタノール - 水分配係数 (log Pow) ^{a)}
ジノテフラン	-0.549
イミダクロプリド	0.57
クロチアニジン	0.7
チアクロプリド	0.74
ホスチアゼート	1.68
メタラキシル	1.75
フェノブカルブ	2.67
プロシミドン	3.14
フルトラニル	3.17
トルクロホスメチル	4.56

^{a)}The Pesticide Manual (16th ed.) より引用

表3.1.2 各栽培条件におけるコマツナの生育状況

栽培条件		乾物重 (g-DW/pot)		蒸散量 (L/21days/pot)
		茎葉部	根部	
温度	15℃	4.71±0.09 a	1.10±0.07 a	0.85±0.01 a
	20℃	5.49±0.21 b	1.17±0.13 a	1.59±0.02 b
	25℃	6.73±0.06 c	0.98±0.06 a	2.12±0.02 c
日長	8 h	4.18±0.07 a	0.68±0.06 a	1.16±0.04 a
	12 h	5.49±0.21 b	1.17±0.13 a	1.59±0.02 b
	16 h	7.21±0.12 c	1.97±0.08 b	1.66±0.03 b
土壌水分	60%	5.49±0.21 a	1.17±0.13 a	1.59±0.02 a
	75%	7.99±0.34 b	1.46±0.16 a	2.95±0.10 b
	90%	8.85±0.25 b	1.55±0.06 a	3.82±0.06 c

データ横アルファベットが異なる場合はTukey検定で有意差あり

をセライトに添加し、室温でアセトンを揮散させ900 μg/5 g相当に調整したセライトを作成し、10農薬添加セライト5 gを450 g/potあたりの土壌（黒ボク土；Texture：Loam、炭素：5.21%、pH：5.5）に全層混和して作成した。調製中の薬剤の揮散がないと仮定すると、土壌中で各物質は2 ppm（2

mg/kg-DW）相当となる。試験土壌450 gを600 mL容ポリポットに充填し、育苗したコマツナを移植した。温度（15℃、20℃、25℃）、日長（8-16 h、12-12 h、16-8 h）、土壌水分（試験土壌の最大容水量の60%、75%、90%）を変えて21日間栽培し、茎葉部、根部を収穫した。各条件下におけるコマツナの生育状況は表3.1.2に示す。収穫した作物試料は茎葉部と根部に分け、各農薬含量を定量した。あわせて、別途調製した農薬添加土壌を温度と土壌水分を変えて21日間培養し、土壌溶液中の各農薬濃度を測定した。

また、コマツナの生育ステージと農薬の吸収・移行性の関係を明らかにするために土耕試験を人工気象室内（20℃、明期12 h - 暗期12 h、土壌水分）で行った。コマツナは10農薬添加セライト22.2 gを2 kg/potあたりの土壌に全層混和して作成した試験土壌に播種し、播種後10、18、25、32、39、60日目に茎葉部と根部を収穫した。なお、本試験では栽培終了時までコマツナの栽培条件は一定としており、コマツナは低温によって花芽形成が誘導されるため、ここで比較した生育ステージは発芽から収穫適期以降の栄養成長期である。各生育ステージにおけるコマツナの生育状況は表3.1.3に示す。コマツナは播種後10日目で本葉0-2枚の発芽後間もない幼植物、18日目で本葉2-4枚の生育初期であり、それぞれ苗はコマツナの栽培体系において1回目と2回目の間引き期にあたる。収穫適期は本葉8-16枚の32日目と39日目である。また、60日目は収穫期以降にあたり食用に適さない。あわせて、別途調製した農薬添加土壌を20℃、暗所で64日間培養し、土壌溶液中の各農薬濃度を測定した。得られた土壌溶液中濃度から各栽培期間中における農薬の土壌溶液中平均濃度を算出した。

さらに、コマツナにおける農薬の吸収・移行速度について水耕試験で検討した。供試農薬はlog P_{ow} の値が同程度のフルトラニルとプロシミドンとした。コマツナ種子をパーライトに播種、7日後に幼植物を水耕装置に移植、1/2強度の大塚培養液B組成で12日間前培養を行った。前培養したコマツナを、フルトラニルとプロシミドンを0.1 mg/L相当添加した試験液〔0.5 mM $CaCl_2$ および2 mM MES buffer（pH 5.8）含有〕600 mLを満たしたステンレス製容器に移植し、24時間農薬を吸収させた。24時間後、根部を洗浄してから農薬無添加の培養液に移し、0、1、3、7日目に茎葉部、根部を収穫した。吸収試験後の作物体は茎葉部と根部に分け、含有する農薬量をそれぞれについて測定した。

農業環境変動研究センター内のほ場（黒ボク土、有機炭素含量4.9%）に試験区（1m²/区画、n = 3）を設けた。土壌中半減期やlog P_{ow} および後作物からの検出状況考慮した10種（ジノテフラン、イミダクロプリド、クロチアニジン、チアクロプリド、ホスチアゼート、メタラキシルM、フェノブカルブ、フルトラニル、プロシミドン、トルクロホスメチル）を土壌中濃度が2 mg/kg-乾重（フルトラニルは5 mg/kg-乾重、トルクロホスメチルは20 mg/kg-乾重）となるように散布した。作物間差に

表3.1.3 各栽培条件におけるコマツナの生育状況

播種後日数	栽植密度 個体数/ポット	葉数	乾物重 (g-DW/pot)		蒸散量 (L/pot)
			根部	茎葉部	
10 days	100	0 - 2	0.10 ± 0.01	0.51 ± 0.03	0.18 ± 0.01
18 days	25	2 - 4	0.05 ± 0.01	0.74 ± 0.20	0.34 ± 0.01
25 days	5	4 - 6	0.14 ± 0.03	1.35 ± 0.17	0.57 ± 0.05
32 days	2	8 - 10	0.22 ± 0.02	2.48 ± 0.13	0.97 ± 0.03
39 days	1	15 - 16	0.62 ± 0.10	6.19 ± 0.27	2.09 ± 0.04
60 days	1	29 - 32	5.31 ± 0.27	35.76 ± 1.04	12.39 ± 0.08



図3.1.1 試験区の配置図
(初夏作：5～9月試験の例)

については、作物科および栽培期間の長短の観点から計9作物（コマツナ、トウモロコシ、ダイズ、トマト、カボチャ、ニンジン、シュンギク、ハウレンソウ、カブ）を栽培した（図3.1.1）。季節間差については、春作（3月試験開始）、初夏作（5月試験開始）そして、秋作（9月試験開始）においてコマツナ、カブ、ニンジン栽培した。試験開始直後から試験終了時まで経時的に土壌をサンプリングするとともに、作物については収穫適期を含む3～4時期でサンプリングし、作物への移行を調査した。

農薬類の分析法について、土壌試料は固液比1:5となるように0.01M塩化カルシウム水溶液を加え、16～24時間振とうし、遠心分離後上清を水抽出液とした。さらに、水抽出後の土壌にアセトンを加え、20分間振とうし、遠心分離を行い、上清をとった。この操作を3回繰り返してアセトン抽出液とした。作物試料はホモジナイザーを用いてアセトニトリル抽出した。土壌抽出液および作物抽出液は、クリーンアップした後、GC-MS、LC-MS/MSを用いて分析した。

本研究では、畑地ほ場で使用された農薬が土壌溶液を介し、作物根部から吸収、茎葉部へ移行することを想定した後作物残留濃度予測モデルを構築した。想定した作物は、後作物残留リスクが相対的に高いことが懸念されているコマツナ等の葉菜類を対象とした。本モデルを構築する際の基本コンセプトとして、農薬登録申請時に提出される各種試験成績に関するデータ等を最大限活用することとした。すなわち、実際の圃場における農薬の消長を把握する土壌残留試験成績や、土壌粒子と土壌溶液間の分配を決定する土壌吸着係数、土壌溶液を介して作物根から吸収・移行性を決定するlog Powなどの物理化学的性状を用いた。

一般に、農耕地等で使用された農薬の土壌残留濃度（土壌試料をアセトン等の有機溶媒で抽出した場合）の推移は二相性（片対数グラフに経時的な濃度の値をプロットすると、処理後それほど時間が経過していない期間は濃度の減衰が速いが、ある程度時間が経過した後は減衰が緩やかになる（図3.1.2）。そこで、このような二相性を示す濃度推移を適切に表現できるDouble first-order in parallel model（DFOPモデル）を用い、アセトン抽出により得られた土壌中濃度（全量濃度 C_{ST} 、 $\mu\text{g/g}$ -乾重）のあてはめを(1)式により行なった。

$$C_{ST}(t) = C_{ST,0}[g \cdot e^{-k_1 t} + (1 - g) \cdot e^{-k_2 t}] \quad (1)$$

ここで、 $C_{ST,0}$ ：初期土壌中濃度（ $\mu\text{g/g}$ -乾重）、 g ：第1相に分布する農薬の割合（dimensionless）、 k_1 ：第1相における消失速度定数（1/day）、 k_2 ：第2相における消失速度定数（1/day）、 t ：処理後日数である（以後、 g 、 k_1 および k_2 はDFOPパラメータという）。DFOPモデルは一次速度式で表現されることから、温度や土壌水分の違いによる消失速度定数（ k_1 、 k_2 ）の補正が容易である。

環境研究総合推進費課題（5-1302）（H25～27年度実施）において開発した後作物残留濃度予測モデル（旧モデル）では、裸地状態での土壌残留試験の結果を基に、農薬の土壌吸着係数（ K_d ）を用いた分配平衡論モデルにより土壌溶液中濃度を算出していた。旧モデルでは、 K_d 値に応じて土壌粒子と土壌溶液間で農薬が瞬時に分配平衡に達すると仮定しているため、土壌溶液中濃度を過大に評価する傾向がある。また、経時的に農薬が作物へ吸収・移行することにより、その分だけ土壌中の農薬量は減少するが、旧モデルではこの作物吸収による農薬の減少分を考慮していない（物質収支を考慮していない）ため、後作物中の農薬濃度を過大評価する傾向がみられた（特に、土壌残留濃度が低濃度の場合）。

そこで、土壌中の作物可給態およびコマツナ等茎葉部の農

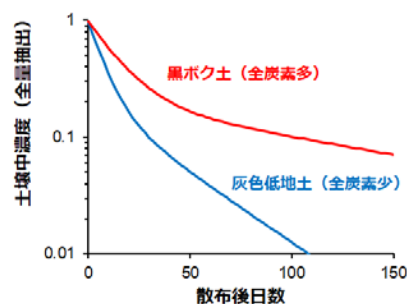


図3.1.2 土壌中における農薬濃度消長の例（二相性を示す場合）

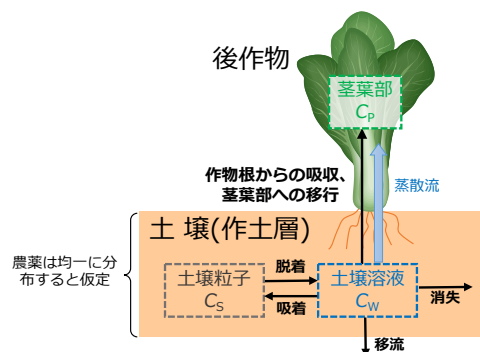


図3.1.3 葉菜類を対象とした農薬の後作物残留濃度予測シナリオ（速度論モデル）
黒矢印は農薬の挙動プロセスを表す。

薬濃度を適切に推定するため、土壌粒子、土壌溶液および作物茎葉部の各コンパートメントを設定し、農薬の挙動を速度論モデルで表現した。図 3.1.3 にモデルの概念図を示す。モデル化において、後作物の播種または定植時における前作使用農薬の土壌中濃度は、耕うん、畝立等により作土層で均一に分布すると仮定した。これは、農林水産省のいわゆるテストガイドライン¹⁾で示されている土壌残留試験において、裸地状態の土壌に農薬を均一に散布するとともに、畑地条件では作土層に相当する深さ 20cm まで、0~10cm と 10~20cm の土壌層に分けて農薬濃度を調査することから、当該試験成績を活用することにより、実圃場における農薬の消長を適切に反映した予測モデルを構築することが可能である。また、本モデルでは土壌溶液の移流や消失速度の違いも考慮でき、低濃度域での農薬の取り込みも正確に推定可能である（図 3.1.3）。

非解離性の農薬について、蒸散流を通じた作物根部から茎葉部への取り込みを考える場合、Briggs ら²⁾により示された蒸散流濃縮係数（Transpiration Stream Concentration Factor, TSCF）を用いて表現した。TSCF は農薬の根からの受動的な取り込み効率を表す係数であり、次式で表される。

$$TSCF = \frac{\text{蒸散流中の農薬濃度}}{\text{土壌溶液中の農薬濃度}} = \frac{\text{茎葉部農薬濃度} \times \text{茎葉部重量} / \text{全蒸散流量}}{\text{土壌溶液中農薬濃度}} \quad (2)$$

作物茎葉部の成長は(3)式に示す一次式に従うと仮定すると、土壌粒子、土壌溶液および作物茎葉部における農薬の収支は、それぞれ(4)から(6)式で表現される。

1 株あたりの作物茎葉部重量 (m_p , g-湿重/株)

$$\frac{dm_p}{dt} = \lambda m_p \quad (3)$$

土壌溶液濃度 (C_w , μ g/mL)

$$\begin{aligned} \frac{dC_w}{dt} = & -\frac{\rho_b}{\theta} (k_{ads} K_d C_w - k_{des} C_s) - k_{out,w} C_w \\ & - \frac{\rho_{plant} Q_T}{d_s \theta} TSCF \cdot C_w - r_{adv} C_w \end{aligned} \quad (4)$$

土壌粒子濃度 (C_s , μ g/g-乾重)

$$\frac{dC_s}{dt} = k_{ads} K_d C_w - k_{des} C_s \quad (5)$$

作物茎葉部濃度 (C_p , μ g/g-湿重)

$$\frac{dC_p}{dt} = \frac{Q_T}{m_p} TSCF \cdot C_w - k_{deg,p} C_p - \lambda C_p \quad (6)$$

表 3.1.4 に(3)から(6)式で用いる記号（パラメータ）の意味を示す。ここで、土壌の体積含水率 (θ) および仮比重 (ρ_b) は時間経過によらず一定と仮定した。また、コマツナのポット試験結果によれば、作物重量（湿重）あたりの蒸散流量 (Q_T) は、生育段階によらずほぼ一定であることが示されていることから、本研究では Q_T/m_p が一定であると仮定した。土壌吸着係数 (K_d)、消失速度定数 ($k_{out,w}$) および作物成長速度定数 (λ) は、温度に依存するパラメータである。それぞれのパラメータと温度との関係式により値を補正することにより、温度（季節）の違いによる計算が可能である。

(3)から(6)式の微分方程式について数値解法を用いて解くことにより、土壌粒子、土壌溶液および作

物茎葉部の農薬濃度が時系列的に求められる。なお、モデル計算用のコンピュータプログラムはMicrosoft ExcelのVisual Basic for Applicationにより作成し、Excelシートを用いたユーザーフレンドリーな後作物残留濃度予測ツール (PostPLANT-Soil) を開発した。

開発した後作物残留濃度予測モデルの検証は、サブテーマ2の高知県農業技術センター内の灰色低地土圃場 (有機炭素含量: 2.6%)、サブテーマ3の徳島県立農林水産総合技術支援センター内の砂丘未熟土圃場 (有機炭素含量: 0.01%) および、サブテーマ4の兵庫県立農林水産技術総合センター内の黄色土圃場 (有機炭素含量: 2.3 %) において実施された後作物残留試験結果を用いて行った。試験

はコマツナが後作物として播種される場合を想定し、各農薬の土壌中における残留濃度が想定値となるように処理後、コマツナを播種し経時的に土壌およびコマツナを採取した。各試料を抽出、分析し、各農薬の土壌中濃度 (水抽出濃度および全量濃度) とコマツナ茎葉部の濃度を調査した。

構築した後作物残留濃度予測モデルを用い、後作物残留試験を実施すべきか否かのトリガーの検討を行った。具体的には、前作での農薬使用条件を土壌処理および茎葉処理の場合を想定したシナリオを設定し、農薬の物理化学的性状 (log Pow および土壌中半減期) の違いによる当該モデルの感度分析を行い、残留農薬基準値超過の有無を判定した。また、後作物の残留基準値超過を回避できる最終の農薬散布から次作の作付けまでの日数 (Plant back interval, PBI) についても検討を行った。

予測モデルの感度分析を実施するにあたり、表3.1.5に示す各種農薬の水溶解度、log Pow および土壌吸着定数 (K_{oc}) を踏まえ³⁻⁵⁾、表3.1.6に示す仮想農薬を定義した。TSCFは、各仮想農薬のlog Powの値を用い、Briggsら²⁾により示された(7)式により推定した。

$$TSCF = 0.784 \cdot \exp \left[-\frac{(\log P_{ow} - 1.78)^2}{2.44} \right] \quad (7)$$

表3.1.5 検討の対象とした農薬の物理化学的性状³⁻⁵⁾

用途	有効成分名	分子量 (g/mol)	水溶解度 (mg/L)	温度 (°C)	pH	log Pow	温度 (°C)	pH	$K_{f,ads,oc}$ (中央値)	温度 (°C)	情報ソース
菌	アゾキシストロビン	403.4	6	20		2.5	20		470	20	農薬抄録 ¹⁾
虫	イミダクロプリット	255.7	480	20		0.57	21		207	25	農薬抄録
虫	エチプロール	397.2	9.2	20		2.9	20		125	25	農薬抄録
虫	カスサホス	270.04	241	20		4.08	室温		281	25	農薬抄録
菌	クレキシムメチル	313.4	2	20		3.43	25		386	25	農薬抄録
虫	クロチアニジン	249.68	327	20		0.7	25		158	25	農薬抄録
菌	ジクロシメット	313.23	6.38	25		3.97	25		827	25	農薬抄録
虫	ジノテフラン	202.21	40000	20	6.98	-0.549	25		28	25	農薬抄録
虫	ジメトエート	229.3	15900	20		0.98	25		64	25	水産評価書 ²⁾
虫	タリアシノン	304.4	60	22	7	3.42	24		425		水産評価書
虫	チアクロプリット	252.7	185	20	7	1.26	20		445	25	水産評価書
菌	テトラコナゾール	372.1	157	20	7	3.56	20		795	25	水産評価書
菌	テトラシホン	356.1	0.06	20		4.6	25		9150	25	水産評価書
菌	トリフロキシストロビン	408.38	0.61	25	7.6	4.5	25	7.5	5675	25	農薬抄録
菌	トルクロホスメチル	301.1	1.1	25		4.56	25		3640	25	ハントブック2016 ³⁾
虫	フィプロロニル	437.14	3.78	20	6.58	4	20		936	25	農薬抄録
虫	フェントリチオン(MEP)	277.2	19	20		3.43	20		1376	25	ハントブック2016
虫	フェノフカルブ(BPMC)	207.3	420	20		2.67	25		164	25	農薬抄録
虫	フェチオン(MPP)	278.3	4.2	20		4.84	20		1481	25	農薬抄録
菌	フルタニル	323.3	6.63	20		3.77	25		426	25	農薬抄録
菌	フロシミドン	284.14	2.46	20		3.3	25		399	25	農薬抄録
菌	フロピコナゾール	342	100	20	6.9	3.72	25		1694	25	農薬抄録
菌	ホスチアレート	343.21	4.64	20		2.96	21		1665	25	農薬抄録
虫	ホスチアレート	283.4	9000	25	7	1.68	25		63	25	水産評価書
菌	メタラキシル	279.34	8400	22		1.75	25		93	25	農薬抄録
虫	メチダチオン(DMTP)	302.33	200	25		2.2	25		498	25	水産評価書

1) <http://www.acis.famc.go.jp/syouroku/index.htm>

2) <http://www.env.go.jp/water/sui-kaitei/kijun.html>

3) 日本植物防疫協会: 農薬ハントブック2016

表3.1.4 後作物残留濃度予測モデルで使用する
入力パラメータ

記号	パラメータの意味
A	圃場面積 (m^2)
d_s	土壌(混和)深さ (m)
θ	体積含水率 (dimensionless)
ρ_b	仮比重 (g/mL)
K_d	土壌吸着係数 (mL/g)
k_{ads}	吸着速度定数 (1/day)
k_{des}	脱着速度定数 (1/day)
$k_{out,W}$	土壌水中からの消失速度定数 (1/day)
r_{adv}	土壌水の系外への移流速度定数 (1/day)
Q_T	1株あたりの蒸散流量 ($m^3/株/day$)
$TSCF$	蒸散流濃縮係数 (dimensionless)
λ	作物成長速度定数 (1/day)
ρ_{plant}	栽植密度 ($株/m^2$)
$k_{deg,P}$	植物体における(代謝)分解速度定数 (1/day)

表3.1.6 感度分析の対象とする仮想農薬の物理化学的性状

仮想農薬	log Pow	水溶解度 (mg/L)	土壌吸着定数 Koc	TSCF	想定農薬
農薬A	-1	100,000	10	0.033	ジメチアゾ
農薬B	0	10,000	50	0.21	ジメトエート、メタキシル
農薬C	1	1,000	100	0.61	イミダクロプリド、クロチアベンゾ
農薬D	2	100	300	0.77	チアクロプリド
農薬E	3	10	500	0.43	エチプロール、プロキシメトン
農薬F	4	1	1,000	0.10	フィプロニル、フェンチオン
農薬G	5	0.1	2,000	0.011	トルクロスメチル、トリプロキシメトン
農薬H	6	0.01	10,000	0.0005	テトラシメチル

感度分析に用いる土壌処理および茎葉処理のシナリオを以下に示す。

●土壌処理の場合

①前作での農薬使用条件（固定値）

- ・作物：ハウレンソウ（葉菜類の連作を想定）
- ・使用農薬：A 水和剤（含有率：50%）
- ・使用条件：500 倍希釈、3L/m²、は種時、土壌灌注、1 回
- ・有効成分投下量：1500 g/10a（ほ場の 1/2 の面積に対し 100%の薬液が土壌に投入）

②後作物の栽培条件（固定値）

- ・季節：春作を想定（は種から収穫まで 33 日）
- ・土壌：灰色低地土（有機炭素含量：2%）、耕起深：20cm
- ・後作物：コマツナ
- ・前作での農薬散布から播種までの期間（PBI）：60 日
- ・残留農薬基準値：一律基準（0.01 ppm）

③農薬の物理化学的性状（変動要因）

- ・log Pow：-1～6
- ・植物代謝なし
- ・土壌中濃度：DFOP モデルで表現（半減期 DT50：1～200 日、DT90：1.1～1000 日）
- ・PBI：60～120 日（ワーストケースのみ）

●茎葉処理の場合

①前作での農薬使用条件（固定値）

- ・作物：ハウレンソウ（葉菜類の連作を想定）
- ・使用農薬：B 水和剤（含有率：20%）
- ・使用条件：2000 倍希釈、300L/10a、収穫前日、茎葉散布、1 回
- ・有効成分投下量：15 g/10a（50%の薬液が土壌に落下）

②後作物の栽培条件（固定値）

- ・季節：春作を想定（は種から収穫まで 33 日）
- ・土壌：灰色低地土（有機炭素含量：2%）、耕起深：20cm
- ・後作物：コマツナ
- ・前作での農薬散布から播種までの期間（PBI）：14 日
- ・残留農薬基準値：一律基準（0.01 ppm）

③農薬の物理化学的性状（変動要因）

- ・log Pow：-1～6
- ・植物代謝なし
- ・土壌中濃度：DFOP モデルで表現（半減期 DT50：1～200 日、DT90：1.1～1000 日）
- ・PBI：14～60 日（ワーストケースのみ）

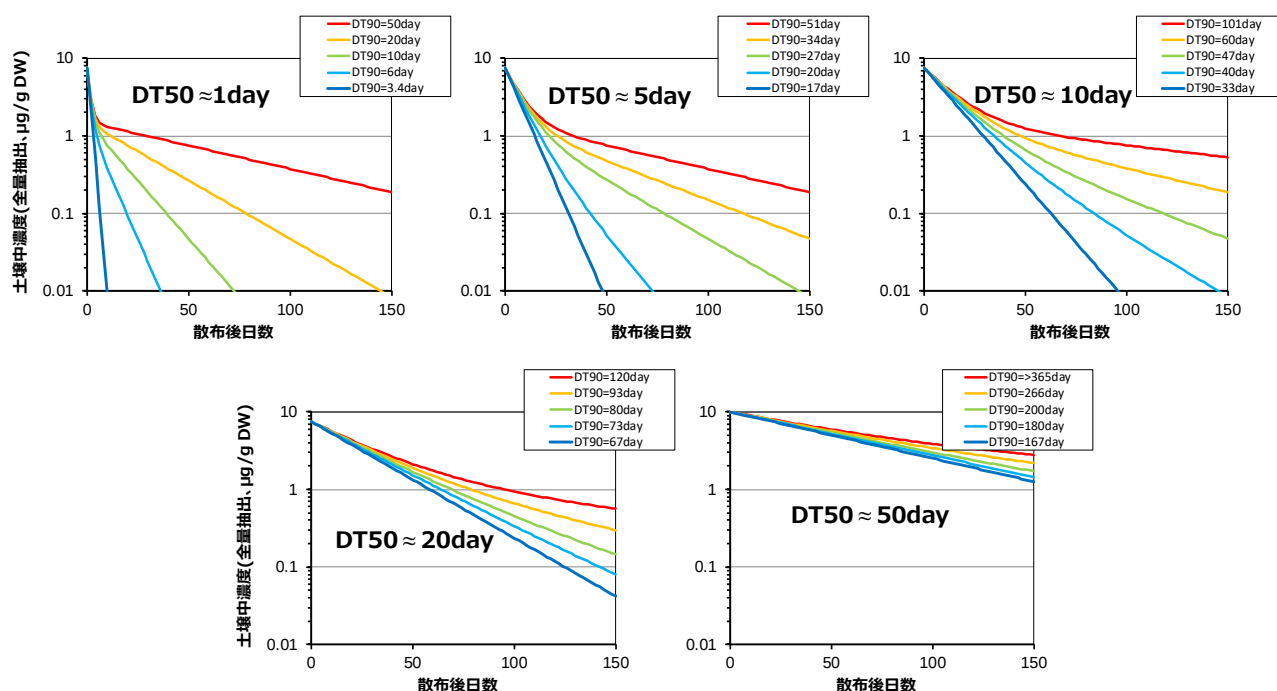


図3.1.4 感度分析の対象とする仮想農薬の土壌における消長（DFOPモデルで表現）

DT50は半減期、DT90は90%減期を表す。DFOPパラメータ $g=0.8$ に設定

本研究での感度分析は、前作での農薬使用条件および後作物の栽培条件を固定し、表 3.1.6 に示す農薬の物理化学的性状（ $\log Pow$ 、 K_{oc} 、TSCF、および土壌中での分解性）のみを変動要因として実施した。前作での農薬使用として、土壌処理および茎葉処理それぞれの場合について、葉菜類を連作する場合の一般的な条件を設定した。後作物はコマツナとし、葉菜類に対する後作物残留リスクが高いとされている灰色低地土圃場（有機炭素含量：2%）での栽培を想定した。なお、前作での農薬散布から播種までの期間を示すPBIは最短の期間を想定し、土壌処理の場合は60日、茎葉処理の場合は14日と仮定した。

土壌吸着定数（ K_{oc} ）を土壌中の有機炭素含量（ $oc\%$ ）で補正した土壌吸着係数（ K_d ）は、以下の式により算出した。

$$K_d = K_{oc} \times \frac{oc\%}{100} \quad (8)$$

仮想農薬の土壌中における消長は、(1)式で示したDFOPモデルで表現し、半減期（DT50, day）および90%減期（DT90, day）について、図 3.1.4 に示すように様々な条件を設定した。また、コマツナ根部から吸収し、茎葉部へ移行した各仮想農薬は、植物代謝などによる分解を受けないものと仮定した。

以上の条件下において、開発した後作物残留濃度予測モデルにより、各仮想農薬の収穫時におけるコマツナ茎葉部濃度を算出し、後作物としてのコマツナの残留農薬基準値（一律基準である0.01 ppmと仮定）と比較した。

4. 結果及び考察

水抽出された農薬に対する土壌水分量が与える影響を解析するために、水抽出して得た濃度の減衰曲線を一次反応式にあてはめ、半減期を算出した。得られた半減期について各試験区を比較したところ、土壌の最大容水量の60%区と80%区の半減期は同

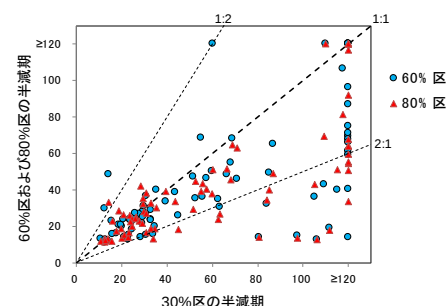


図4.1.1 水分含量30%と60%区および80%区の農薬類の土壌中半減期の関係

程度であったが、30%区の半減期は60%区および80%区よりも長い傾向にあった（図4.1.1）。低水分条件下では半減期が長くなるため、土壌が乾燥した状態では水抽出濃度の減衰が遅くなることが明らかとなった。受託者らのこれまでの研究（平成25年度～平成27年度環境研究総合推進費5-1302）において、水抽出濃度の減衰には土壌吸着の経時変化が寄与していることが明らかにしている。そこで、土壌水分条件の違いが K_d の経時変化に及ぼす影響を調査した結果、 K_d は時間の経過に伴い高い値を示し、経過日数の平方根に比例して直線的に増加した（図4.1.2）。 K_d の増加速度について各試験区を比較したところ、60%区と80%区の増加速度は同程度であったが、30%区の増加速度は60%区および80%区よりも遅い傾向にあった。したがって、30%区において水抽出濃度の半減期が長かった要因として、30%区では水の移動が生じにくい状態にあるため経時的に土壌吸着されにくく、水抽出濃度は減衰しにくいことが推察された。しかし、作物が生育できる最大容水量は50%以上とされていることから、実際の作物栽培条件下では土壌の最大容水量は30%にならず、水分含量は水抽出された農薬濃度の経時変化には影響を与えないと考えられた。

一方、水抽出された農薬に対する温度が与える影響を解析するために、土壌水分量の時と同様に半減期を算出するとともに K_d の経時変化を解析した。その結果、水抽出濃度の半減期は温度が高くなるほど短くなり、分解反応（微生物分解や加水分解）および揮発等が促進したと推察された。また、温度が高いと K_d の増加速度も大きくなり、高温下で経時的な土壌吸着が促進すること推察された。したがって、 K_d 値は経過日数（ t ）の平方根に比例して直線的に増加したため、 K_d （mL/g）の経時変化は次式（式2）により表せる。

$$K_d = K_{d_0} + c \times t^{0.5} \quad (2)$$

ここで、 K_{d_0} ：初期土壌吸着係数（農薬処理0日目の K_d ）、 c ： K_d の増加速度（ $1/t^{0.5}$ ）である。 K_{d_0} が大きいほど傾き（ c 値）が大きく正の相関関係にあること、温度が高いと切片（ K_{d_0} ）が大きく正の相関関係にあることから、温度変動がある条件下でも水抽出濃度の経時変化を推定可能であることが示された（図4.1.3）

農薬の吸収・移行性に及ぼす栽培環境の影響について、10種の農薬を添加した土壌で生育条件を変えて栽培したコマツナの茎葉部および根部濃度を比較した（表4.1.1）。温度について、ジノテフラン、イミダクロプリド、クロチアニジン、チアクロプリドの茎葉部濃度は栽培温度が高いほど高くなる傾向が認められた。一方、ホスチアゼートとフェノブカルブの茎葉部濃度は栽培温度が低いほど高く、メタラキシル、プロシミドン、フルトラニル、トルクロホスメチルの茎葉部濃度では温度による変動は認められなかった。根部濃度と栽培温度との関係については、フルトラニルで栽培温度が高い場合に高まる傾向が認められたが、他の9種の農薬については温度との明確な関係は認められなかった。日長については、ジノテフランを除いた全ての農薬で短日条件下では茎葉部濃度が高く、根部濃度もジノテフラン、イミダクロプリド、クロチアニジン、チアクロプリドを除いて短日条件下で高かった。土壌水分につい

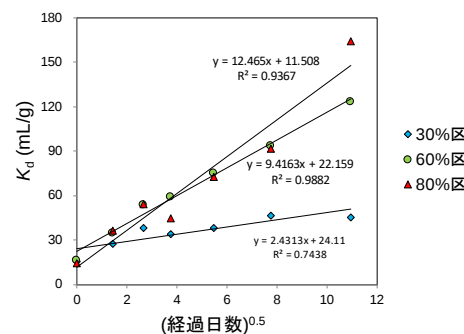


図4.1.2 各水分含量区における土壌吸着係数（ K_d ）の経時変化

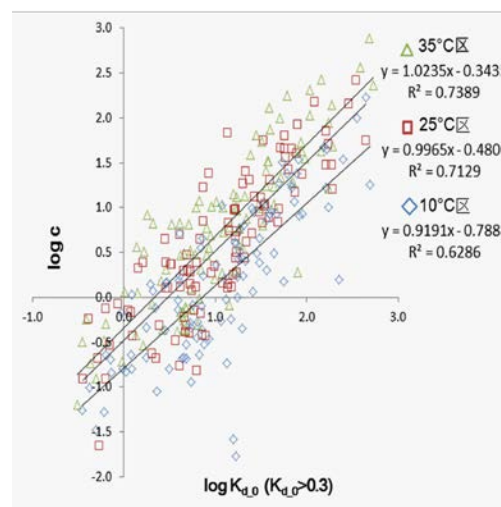


図4.1.3 各温度区における初期土壌吸着係数（農薬処理0日目の K_{d_0} ）と K_d の増加速度（ c ）の関係

表4.1.1 各栽培条件における茎葉部及び根部中の農薬濃度

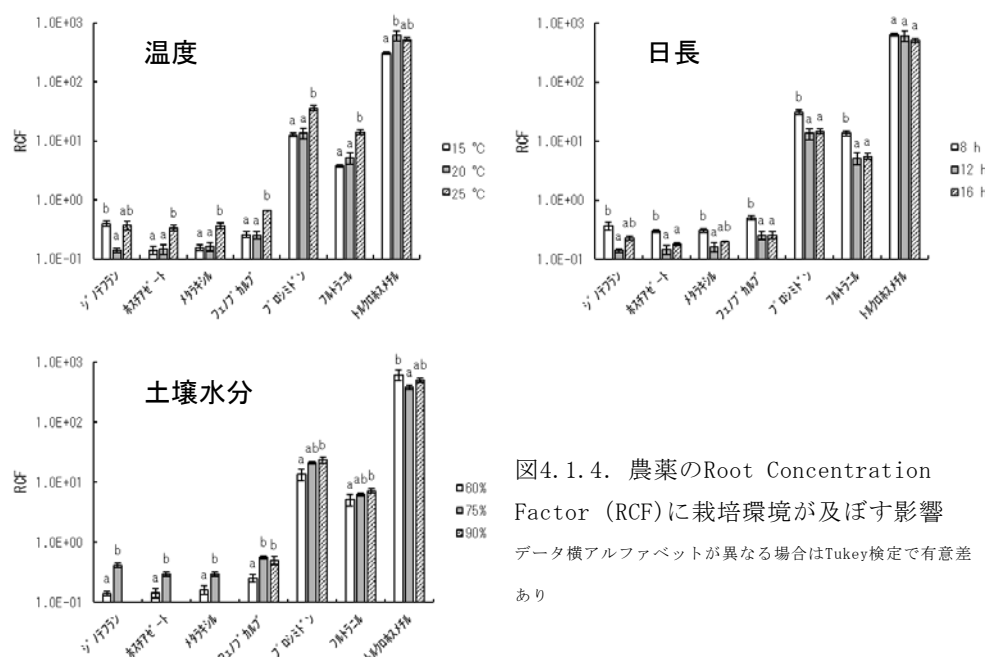
栽培条件		濃度 (mg/kg-DW)									
		ジノテフラン	イミダクロプリド	クロチアニジン	チアクロプリド	ホスチアゼート	メタラキシル	フェノブカルブ	プロシミドン	フルトラニル	トルクロホスメチル
茎葉部 温度	15 °C	13.23 ± 0.91 ab	0.89 ± 0.06 a	1.01 ± 0.05 a	0.39 ± 0.02 a	10.31 ± 0.94 b	4.32 ± 0.36 a	1.47 ± 0.13 b	2.08 ± 0.15 a	0.081 ± 0.006 a	0.007 ± 0.0007 a
	20 °C	12.53 ± 0.57 a	0.81 ± 0.05 a	1.53 ± 0.11 b	0.41 ± 0.03 a	5.75 ± 0.43 a	3.16 ± 0.15 a	0.73 ± 0.08 a	2.34 ± 0.24 a	0.059 ± 0.010 a	0.008 ± 0.0007 a
	25 °C	16.96 ± 0.54 b	1.69 ± 0.08 b	2.42 ± 0.04 c	0.71 ± 0.02 b	6.99 ± 0.26 a	4.03 ± 0.17 a	0.49 ± 0.01 a	2.89 ± 0.13 a	0.073 ± 0.003 a	0.006 ± 0.0006 a
日長	8 h	14.55 ± 0.21 ab	1.54 ± 0.05 c	1.90 ± 0.04 c	0.59 ± 0.02 b	11.09 ± 0.29 b	4.53 ± 0.23 b	1.40 ± 0.08 b	3.34 ± 0.15 b	0.145 ± 0.007 b	0.012 ± 0.0009 b
	12 h	12.53 ± 0.57 a	0.81 ± 0.05 a	1.53 ± 0.11 b	0.41 ± 0.03 b	5.75 ± 0.43 a	3.16 ± 0.15 a	0.73 ± 0.08 a	2.34 ± 0.24 a	0.059 ± 0.010 a	0.008 ± 0.0007 ab
	16 h	14.70 ± 0.28 b	1.06 ± 0.04 b	1.53 ± 0.03 a	0.37 ± 0.00 a	7.51 ± 0.26 a	3.34 ± 0.07 a	0.65 ± 0.02 a	2.21 ± 0.05 a	0.046 ± 0.001 a	0.007 ± 0.0003 a
土壌水分	60%	12.53 ± 0.57 a	0.81 ± 0.05 a	1.53 ± 0.11 a	0.41 ± 0.03 a	5.75 ± 0.43 a	3.16 ± 0.15 a	0.73 ± 0.08 a	2.34 ± 0.24 a	0.059 ± 0.010 a	0.008 ± 0.0007 a
	75%	15.05 ± 0.47 a	1.11 ± 0.05 ab	2.14 ± 0.08 ab	0.53 ± 0.02 a	6.90 ± 0.89 a	2.39 ± 0.43 a	0.58 ± 0.13 a	4.38 ± 0.18 b	0.135 ± 0.019 b	0.008 ± 0.0003 a
	90%	15.42 ± 0.91 a	1.25 ± 0.10 b	2.43 ± 0.19 b	0.60 ± 0.07 a	8.53 ± 0.59 a	3.76 ± 0.26 a	0.65 ± 0.08 a	4.30 ± 0.12 b	0.119 ± 0.009 ab	0.012 ± 0.0007 a
根部 温度	15 °C	0.21 ± 0.02 b	< 0.04	< 0.04	< 0.04	0.10 ± 0.02 a	0.14 ± 0.02 a	0.10 ± 0.01 ab	0.44 ± 0.03 ab	0.32 ± 0.02 a	0.43 ± 0.01 a
	20 °C	0.06 ± 0.01 a	0.04 ± 0.01 a	< 0.04	0.04 ± 0.02 a	0.07 ± 0.01 a	0.11 ± 0.02 a	0.08 ± 0.01 a	0.26 ± 0.04 a	0.22 ± 0.03 a	0.35 ± 0.04 a
	25 °C	0.19 ± 0.03 b	< 0.04	< 0.04	0.07 ± 0.01 a	0.13 ± 0.02 a	0.22 ± 0.03 a	0.17 ± 0.02 b	0.67 ± 0.06 b	0.66 ± 0.07 b	0.33 ± 0.02 a
日長	8 h	0.17 ± 0.02 b	0.05 ± 0.00 a	0.04 ± 0.01 a	0.06 ± 0.00 a	0.15 ± 0.01 b	0.21 ± 0.01 b	0.16 ± 0.01 b	0.66 ± 0.06 b	0.64 ± 0.06 b	0.40 ± 0.03 a
	12 h	0.06 ± 0.01 a	0.04 ± 0.01 a	< 0.04	0.04 ± 0.02 a	0.07 ± 0.01 a	0.11 ± 0.02 a	0.08 ± 0.01 a	0.26 ± 0.04 a	0.22 ± 0.03 a	0.35 ± 0.04 a
	16 h	0.11 ± 0.01 ab	0.04 ± 0.00 a	0.04 ± 0.00 a	0.04 ± 0.00 a	0.09 ± 0.01 a	0.14 ± 0.00 ab	0.08 ± 0.01 a	0.31 ± 0.03 a	0.26 ± 0.03 a	0.32 ± 0.03 a
土壌水分	60%	0.06 ± 0.01 a	0.04 ± 0.01 a	< 0.04	0.04 ± 0.02 a	0.07 ± 0.01 a	0.11 ± 0.02 a	0.08 ± 0.01 a	0.26 ± 0.04 a	0.22 ± 0.03 a	0.35 ± 0.04 a
	75%	0.21 ± 0.02 b	< 0.04	< 0.04	0.05 ± 0.00 a	0.16 ± 0.01 b	0.20 ± 0.02 b	0.18 ± 0.01 b	0.53 ± 0.02 a	0.47 ± 0.03 b	0.40 ± 0.03 a
	90%	< 0.04 a	< 0.04	< 0.04	< 0.04	< 0.04	< 0.04	0.14 ± 0.02 ab	0.54 ± 0.07 a	0.45 ± 0.04 ab	0.55 ± 0.04 a

データ横アルファベットが異なる場合はTukey検定で有意差あり

ては、イミダクロプリド、クロチアニジン、プロシミドン、フルトラニルで土壌水分量が多い場合に茎葉部濃度が高くなる傾向が認められた。根部濃度はジノテフラン、ホスチアゼート、メタラキシルでは土壌水分量が90%の場合は検出下限以下であったが、土壌水分量が60%よりも75%では高くなる傾向がみられ、これらの農薬よりも疎水性の高いフェノブカルブとフルトラニルでは土壌水分が多いと高くなり、最も疎水性の高いトルクロホスメチルでは土壌水分量による影響を受けなかった。

ここで、栽培期間における土壌溶液中の平均農薬濃度は、環境条件の変化によって農薬の土壌溶液中濃度も変動しており、温度や土壌水分による土壌溶液中濃度の増減が茎葉部や根部の農薬濃度に影響したことが推察された。そこで、農薬の根への吸収性を土壌溶液中濃度で根部濃度を除したRoot Concentration Factor (RCF) を算出した (図4.1.4)。なお、イミダクロプリド、クロチアニジン、チアクロプリドについては根部濃度が著しく低かったことからRCFによる比較は行わなかった。温度について、ホスチアゼート、メタラキシル、フェノブカルブ、フルトラニル、プロシミドンのRCFは15°Cと20°Cでは有意差がなかったが、25°Cで高くなった。農薬の土壌吸着は高温で促進されると考えられている。土壌溶液中濃度と温度との関係はこれを支持しており、土壌吸着が25°Cでの土壌溶液中濃度の低下に寄与したことを示唆し

ている。植物根は吸着体とみなすことができるため、根への吸着も温度によって促進された可能性がある。また、農薬の根への取込みに関する植物側の要因としては根の重量や蒸散量があげられる⁶⁾。25°Cでは根の重量は変わらないが、蒸散量つまり吸水量が多く水の移動によって取込み性が増加した



かもしれない。一方、ジノテフランとトルクロホスメチルのRCFでは温度による明瞭な影響は認められなかった。ジノテフランは供試した農薬の中では最も疎水性が低いいため根に留まらず、速やかに茎葉部へ移行されるため、温度による影響を受けにくかったと推察された。また、トルクロホスメチルの場合は疎水性が高く根に吸着されやすいため、温度で植物生理的な要因の影響は受け難かったと推察された。日長について、ジノテフラン、ホスチアゼート、メタラキシル、フェノブカルブ、フルトラニル、プロシミドンのRCFは明期8時間の短日条件下で高かった。ここでコマツナの生育状況をみると、短日条件よりも長日条件の方が根部重量は3倍程度、蒸散量も1.4倍程度高かった。根への取込みが吸着によるとするならば、根部重量が多いと吸着サイトが増加すると予想される。したがって、長日条件の方がRCFは高くなると考えられるが、今回の結果では短日条件の方が高くなった。コマツナではないが、同属のブロッコリにおいて日長が糖代謝等の物質代謝に影響することが示されている⁷⁾。このことから長日条件では植物体内での物質代謝が活発となったために農薬の代謝が行われたことで根部濃度が低下し、結果としてRCFが低下した可能性が考えられる。これらに対し、トルクロホスメチルのRCFは日長による影響を受けなかった。疎水性が高い β -HCH ($\log P_{ow} = 3.8$) やディルドリン ($\log P_{ow} = 5.2$) のRCFは暗所下でも増減しないことが報告されている⁸⁾。トルクロホスメチルもこれらの物質と同様に根への取込み性は日長による影響を受けにくいことを明らかにした。土壌水分について、疎水性の最も高いトルクロホスメチルのRCFは土壌水分による影響を受けなかったが、ジノテフラン、ホスチアゼート、メタラキシルのRCFは60%よりも75%で高く、またフェノブカルブ、プロシミドン、フルトラニルのRCFは高水分条件ほど高くなる傾向が認められた。トルクロホスメチルに比べてこれらの6種の農薬は $\log P_{ow}$ が低く水に溶けやすいため、土壌溶液中濃度も10-100倍程度高い。したがって、植物の吸水力の寄与が大きく蒸散量が多い高水分条件での吸収性が増加したと考えられた。

また、これらの農薬は導管を介して蒸散により茎葉部へ移行されると考えられる。そこで、茎葉部への移行性を(茎葉部含量/蒸散量)/土壌溶液中濃度で得られるTSCFを算出した(図4.1.5)。温度について、ジノテフラン、ホスチアゼート、フェノブカルブのTSCFは15℃で高くなったが、プロシミドンでは25℃で高くなった。フルトラニルのTSCFは温度によって変わらず、茎葉部への移行性は温度による影響を受けにくいことが示唆された。トルクロホスメチルのTSCFは20℃で高く、温度と茎葉部への移行性との関係は不明瞭だった。以上のように、温度が茎葉部への移行性に及ぼす影響は農薬によって異なることが明らかになった。日長について、ジノテフランを除く、9種の農薬全てのTSCFが短日条件で高くなった。TSCFが一定ではないことから、これらの9種の農薬の茎葉部濃度の差異を蒸散量で説明することは困難である。つまり、これらの農薬の茎葉部への移行にはディルドリンの場合のような暗所で阻害されるような輸送体は関与しないが、蒸散量以外の植物生理的な要因が関与している可能性がある。その要因として

は農薬が根に取り込まれてからの作物体内における代謝の関与が考えられ、結果、RCFやTSCFが日長によって変動したと推察された。土壌水分について、ジノテフランのTSCFが90%で、トルクロホスメチルのTSCFが75%と90%で低下するものの、他の8種の農薬のTSCFは土壌水分に関わらず一定だった。したがって、ホ

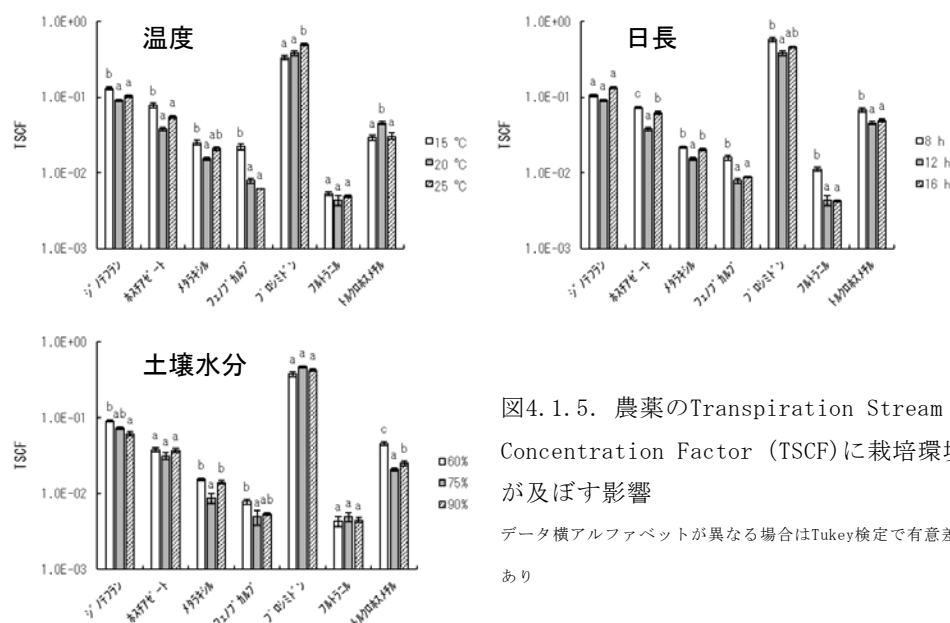


表4. 1. 2 生育ステージに応じた根部及び茎葉部における農薬濃度

播種後日数	濃度 (mg/kg-DW)									
	ジノテフラン	イミダクロプリド	クロチアニジン	チアクロプリド	ホスチアゼート	メタラキシル	フェノブカルブ	プロシミドン	フルトラニル	トルクロホスメチル
根部										
10 days	0.10 ± 0.03 a	< 0.04	< 0.04	< 0.04	< 0.04	< 0.04	0.03 ± 0.01 b	0.11 ± 0.04 b	0.16 ± 0.04 b	0.34 ± 0.06 ab
18 days	0.11 ± 0.01 a	0.09 ± 0.02 a	< 0.04	0.14 ± 0.03 a	< 0.04	< 0.04	0.16 ± 0.03 a	0.37 ± 0.06 a	0.52 ± 0.06 a	0.69 ± 0.11 a
25 days	0.05 ± 0.02 a	< 0.04	< 0.04	0.05 ± 0.01 a	< 0.04	0.06 ± 0.01 a	0.12 ± 0.02 ab	0.36 ± 0.07 ab	0.32 ± 0.05 ab	0.47 ± 0.08 ab
32 days	0.04 ± 0.01 a	< 0.04	< 0.04	0.06 ± 0.01 a	< 0.04	0.04 ± 0.02 a	0.12 ± 0.02 ab	0.34 ± 0.03 ab	0.29 ± 0.02 b	0.40 ± 0.04 ab
39 days	< 0.04 ³⁾	0.04 ± 0.00 a	< 0.04	0.07 ± 0.01 a	< 0.04	0.05 ± 0.00 a	0.11 ± 0.01 ab	0.25 ± 0.04 ab	0.26 ± 0.04 b	0.36 ± 0.06 ab
60 days	< 0.04	< 0.04	< 0.04	< 0.04	< 0.04	< 0.04	0.08 ± 0.01 ab	0.18 ± 0.01 ab	0.18 ± 0.01 b	0.15 ± 0.01 b
茎葉部										
10 days	3.49 ± 0.22 a	0.73 ± 0.03 ab	0.75 ± 0.02 a	0.46 ± 0.02 ab	1.99 ± 0.18 b	0.62 ± 0.04 bc	0.14 ± 0.02 bc	1.06 ± 0.12 b	0.030 ± 0.005 b	0.020 ± 0.002 a
18 days	6.00 ± 1.27 a	0.98 ± 0.21 a	1.05 ± 0.23 a	0.62 ± 0.12 a	5.24 ± 1.09 a	2.31 ± 0.47 a	0.74 ± 0.11 a	2.45 ± 0.58 ab	0.083 ± 0.020 a	0.022 ± 0.006 a
25 days	4.48 ± 0.98 a	0.61 ± 0.13 ab	0.80 ± 0.16 a	0.39 ± 0.09 ab	3.32 ± 0.80 ab	1.47 ± 0.30 ab	0.53 ± 0.04 ab	2.62 ± 0.17 a	0.086 ± 0.007 a	0.016 ± 0.001 a
32 days	2.85 ± 0.12 a	0.40 ± 0.01 b	0.55 ± 0.02 a	0.23 ± 0.01 b	1.30 ± 0.12 b	0.90 ± 0.06 bc	0.46 ± 0.03 abc	2.42 ± 0.11 ab	0.065 ± 0.003 ab	0.013 ± 0.000 a
39 days	2.66 ± 0.14 a	0.34 ± 0.02 b	0.52 ± 0.02 a	0.19 ± 0.01 b	0.91 ± 0.07 b	0.67 ± 0.03 bc	0.40 ± 0.01 abc	2.01 ± 0.04 ab	0.054 ± 0.003 ab	0.009 ± 0.000 a
60 days	2.99 ± 0.29 a	0.32 ± 0.04 b	0.50 ± 0.04 a	0.18 ± 0.02 b	0.36 ± 0.06 b	0.17 ± 0.03 c	0.06 ± 0.00 c	1.45 ± 0.13 ab	0.017 ± 0.002 b	< 0.002 ³⁾

データ横アルファベットが異なる場合はTukey検定で有意差あり

スチアゼート、メタラキシル、フェノブカルブ、プロシミドン、フルトラニルの茎葉部への移行は蒸散量依存的なものであることが明らかとなった。疎水性が高いトルクロホスメチルは移行しにくく、蒸散量のわりに移行量が少なかったのかもしれない。基本的にはジノテフランやトルクロホスメチルも同様に蒸散量依存的な移行であると考えられる。

以上までの結果より、栽培温度が与える影響は根への取込み性はジノテフランとトルクロホスメチルを除き、温度が高いほど高まる傾向を示した。一方、茎葉部への移行性と温度との関係は農薬により異なった。すなわち、根への取込み性は温度が高いと蒸散量の増加に伴って増加する、だが一方、移行性と温度との関係性は不明瞭である。この移行性の温度による違いが茎葉部濃度の差異を決定しているようである。日長が根への取込み性に与える影響はトルクロホスメチルを除き、短日条件で高かった。また、茎葉部への移行性もジノテフランを除き短日条件で高かった。日長は植物体内での農薬の代謝に寄与している可能性があり、吸収・移行性への影響は不明確である。しかし、これらの農薬の茎葉部濃度は短日条件下で高まる傾向にあった。土壌水分による影響はRCFとTSCFでともに少ないか受けなかった。すなわち、土壌水分の違いで生じる茎葉部中農薬濃度の増減は土壌溶液中濃度や蒸散量の差異で説明できる。

次に、コマツナの生育ステージに応じた根部及び茎葉部中の農薬濃度を表4. 1. 2に示した。ジノテフラン、イミダクロプリド、クロチアニジン、チアクロプリド、ホスチアゼート、メタラキシルの6種の農薬の根部濃度は生育ステージの違いによる増減は認められなかった。フェノブカルブとプロシミドンの根部濃度は10日目が最も低く、18日目で高くなり、25日目から60日目まで緩やかに減少する傾向がみられた。フルトラニルの根部濃度も同様に10日目が低く、18日目で高くなり、25日目から減少する傾向がみられ、32日目以降は10日目と同程度となった。このように、これら3種の農薬では10日目に対して有意に18日目の根部濃度が高くなった。トルクロホスメチルの根部濃度は10日目と18日目の間に有意な差はみられないものの高まる傾向がみられた。また、トルクロホスメチルの根部濃度は60日目で最も低くなる傾向を示した。生育ステージに応じて根部濃度が増減したフェノブカルブ、プロシミドン、フルトラニル、トルクロホスメチルの4種の農薬について1個体あたりの根部の平均残留量と成長量との関係を見ると、根部の残留量は10日目を除き、根部の生長量に応じて増加した(図4. 1. 6)。つまり、18日目から60日目までにおける農薬の根部濃度の減少は根の成長に伴う希釈が一因として挙げられた。

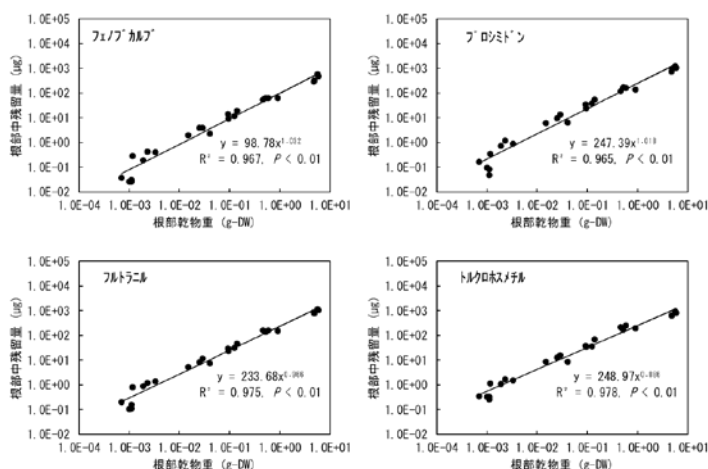


図4. 1. 6 農薬の根部中残留量と根部乾物重との関係

茎葉部濃度については、ジノテフラン、クロチアニジン、トルクロホスメチルでは生育ステージによる茎葉部濃度の有意な増減は認められなかった。イミダクロプリドとチアクロプリドの茎葉部濃度は10日目から25日目まではほぼ一定であり、その後、60日目まで微減する傾向がみられた。メタラキシルとフェノブカルブの茎葉部濃度は10日目で低く、18日目で高くなった。その後、これらの茎葉部濃度は39日目までわずかに減少する傾向を示しながらもほぼ一定となり、60日目では18日目と25日目よりも低下した。ホスチアゼートとプロシミドンの茎葉部濃度は10日目が低く、18日目で高くなり60日目まで緩やかに減少する傾向がみられた。フルトラニルの茎葉部濃度はフェノブカルブと同様に10日目と60日目が低く、18日目から39日目はわずかに減少する傾向があるものの一定だった。トルクロホスメチルの茎葉部濃度は10日目から39日目までの間に有意差は認められなかった。供試した農薬のうち、フェノブカルブ、プロシミドン、フルトラニル、トルクロホスメチルの4種の農薬については、茎葉部濃度から1個体あたりの平均残留量を算出し、茎葉部の成長量との関係を比較した（図4.1.7）。これらの農薬の茎葉部残留量は18日目から39日目の間、生長量に応じて増加しており、成長に伴うこの期間における茎葉部濃度の減少。一方、トルクロホスメチルを除いた10日目の茎葉部残留量およびプロシミドンを除いた60日目の茎葉部残留量は茎葉部重量に対して低かった。希釈もまた一因として挙げられるが、10日目は1個体当たりのバイオマスが極端に低いことから希釈以外の要因が茎葉部濃度の増減に関与している可能性がある。

ここからは根部と茎葉部について経時的なデータの得られた4種の農薬（フェノブカルブ、プロシミドン、フルトラニル、トルクロホスメチル）について、これらの吸収・移行性を検討する。農薬の土壌溶液中濃度は土壌への添加後から減少しており、栽培期間の長さによって栽培期間中の土壌溶液中濃度の平均値は異なっているため、根への取り込み性の経時変化をRCFで比較した（図4.1.8）。フェノブカルブとフルトラニルのRCFは10日目から18日目まで増加し、その後わずかに低下する傾向がみられたものの60日目まで一定だった。プロシミドンのRCFは10日目から18日目まで増加し、18日目から39日目まで一定だった。プロシミドンの60日目のRCFは32日目までからわずかに低下し10日目と同程度となった。トルクロホスメチルのRCFはほぼ一定の値で推移したものの、18日目で高く、60日目で低くなる傾向がみられた。供試した4種の農薬のRCFが18日目から39日目まではほぼ一定であり、2 - 4葉期から15 - 16葉期までにおける農薬の取り込み性は変わらないことが明らかと

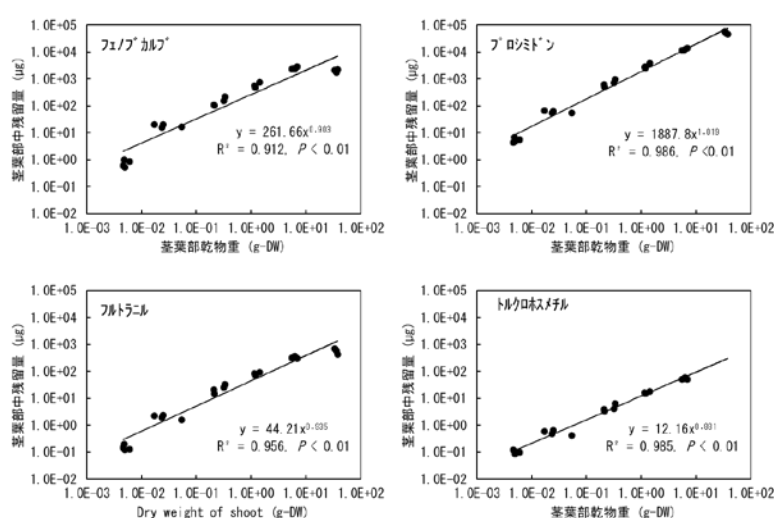


図4.1.7 農薬の茎葉部中残留量と茎葉部乾物重との関係

アルファベットが異なる場合はTukey検定で有意差あり

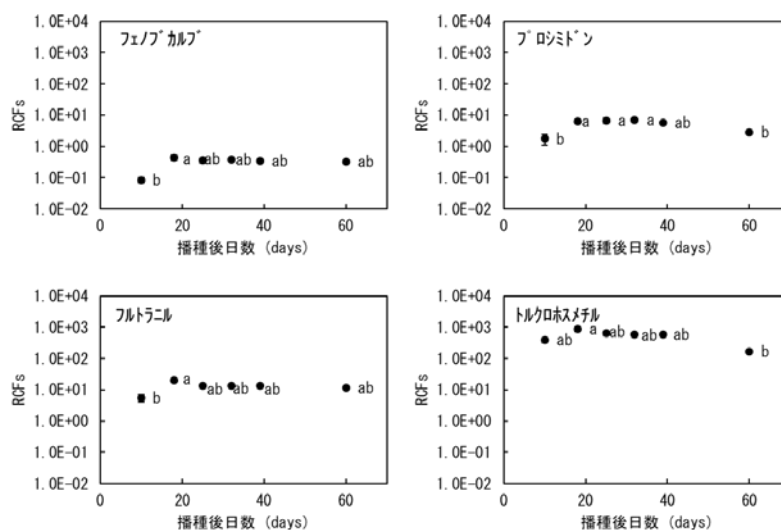


図4.1.8 各生育ステージにおけるRoot Concentration Factor (RCF)

アルファベットが異なる場合はTukey検定で有意差あり

なった。また、フェノブカルブとフルトラニルのRCFは60日目も低下していない。したがって、この期間における農薬の根部濃度の減少傾向は土壤溶液中濃度の減少によるものと結論できた。一方、土壤溶液中の農薬濃度が最も高いにもかかわらず、10日目の根部濃度は低かった。また、10日目のRCFも低いことから、根への取込み性自体が10日目では低いといえる。根は農薬等有機化学物質を吸着によって取り込むとされていることから、農薬の根への取込み性は植物根の重量や表面積による影響を受けると考えられる。10日目と18日目のポットあたりの根部乾物重は同程度だが、ポットあたりの栽植密度は100個体と25個体であり、1個体あたりの根部乾物重を比較すると、10日目の根部乾物重は約1 mgと18日目の約2 mgの半量だった。また、コマツナのような双子葉植物は幼根が発達した主根と主根から分岐した側根で根系が形成される。播種後10日目のコマツナは本葉0 - 2葉期の発芽後間もない幼植物であり、18日目に比べて根系の発達が不十分である。したがって、10日目のコマツナにおいて根への取込み性が低いのは根系が未発達で乾物重や表面積が少なかったためと考えられた。また、根系の発達に伴い18日目までで根への取込み性が増加したものと推察された。また60日目のプロシミドンとトルクロホスメチルは根への取込み性にも低下傾向がみられた。しかしながら、根部中のプロシミドンとトルクロホスメチル残留量と根部重量との関係は60日目でも低下していない（図4.1.6）。したがって、プロシミドンとトルクロホスメチルの土壤溶液からの供給量の減少により根が取り込める農薬量が低下したことに加えて、根部乾物重が増加し希釈されたため、これらの農薬の根部濃度が低下したと考えられた。

次に、土壤溶液から茎葉部への移行性をTSCFで比較すると（図4.1.9）、フェノブカルブのTSCFは10日目と60日目が低く、18日目から39日目は高かった。プロシミドンのTSCFは10日目と18日目が低く、25日目で高くなった。25日目以降のプロシミドンのTSCFは60日目まで一定だった。フルトラニルのTSCFもプロシミドンと同様に10日目から25日目まで経時的に増加し、25日目から39日目まで一定だったが、60日目で低くなった。トルクロホスメチルのTSCFは10日目が最も高く、18日目に低下し39日目まで一定だった。60日目については茎葉部から検出できなかったため、トルクロホスメチルのTSCF値

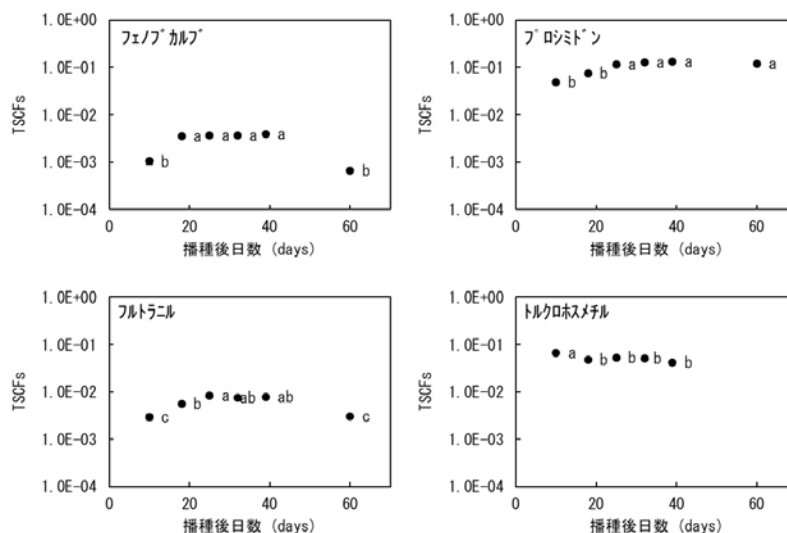


図4.1.9 各生育ステージにおけるTranspiration Stream Concentration Factor (TSCF)

アルファベットが異なる場合はTukey検定で有意差あり

は得られなかった。したがって、これらの農薬の25日目から39日目までにおける茎葉部濃度の減少傾向は、この間のTSCFは一定であることから、植物生理的な要因ではなく土壤溶液中の農薬濃度の減少によるものと示唆された。TSCFは導管液中濃度と土壤溶液中濃度によって得られるため、根への取り込み性の大小は考慮しない。したがって、フェノブカルブ、プロシミドン、フルトラニルの10日目のTSCFが低いのは、これらの10日目における根への取り込みが少ないからかもしれない。また、導管液の採取が困難であることから、茎葉部含量と蒸散量を用いて導管液中濃度を求めた。そのため、茎葉部での代謝による茎葉部含量の減少のせいで、算出される導管液中濃度が減少した可能性もある。このことがフェノブカルブとフルトラニルの60日目のTSCFを低下させたのかもしれない。

茎葉部への移行性についてさらに解析するために、茎葉部 - 根部濃度比を用いて根から茎葉部への移行性を比較した。供試した全ての農薬において茎葉部 - 根部濃度比は播種後日数の違いによる有意差は認められなかった（図4.1.10）。つまり、播種後日数にかかわらず、これらの農薬は根に取り込まれた後一定の割合で茎葉部へ分配されていることが明らかとなった。したがって、播種後10日目つまり発芽後

間もないコマツナにおけるフェノカルブ、プロシミドン、フルトラニルの茎葉部濃度が低いのは根から茎葉部への移行性によるものではなく、これらの根への取り込みが少ないためであることが示された。この実験のような土耕試験では、土壌からの揮散や微生物による分解等の複雑な要因が重なるため、添加した農薬の物質収支を確認することが難しい。そのため、供試した農薬のコマツナ体内における代謝の有無は判然としない。しかしながら、もしこれらの農薬が茎葉部または根部で代謝され、その代謝率が時間経過による影響を受けるならば、茎葉部 - 根部濃度比は播種後日数によって増減するだろう。茎葉部 - 根部濃度比は播種後日数の経過による変動が認められず、これらの農薬はコマツナの体内において代謝されないか、あるいは常に一定の割合で代謝されていることを示唆している。したがって、コマツナの収穫適期以降における農薬の茎葉部濃度の低下は、土壌溶液濃度の減少とそれに伴う取り込み量の低下で説明できる。

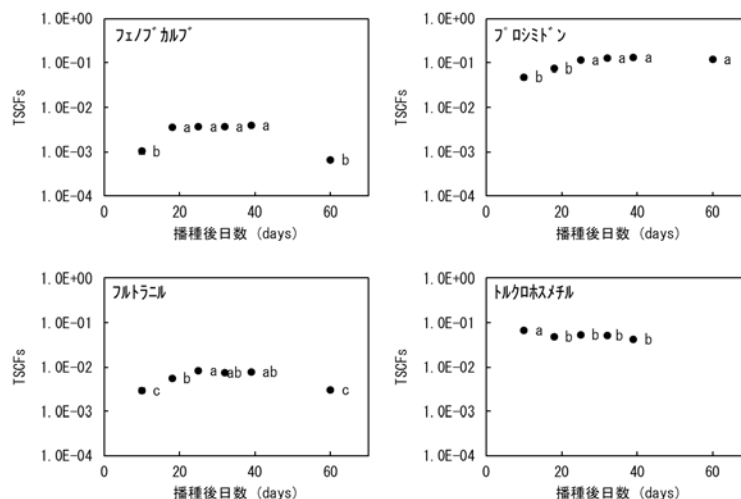


図4. 1. 10 各生育ステージにおける茎葉部 - 根部濃度比

コマツナの本葉2 - 4葉期から15 - 16葉期の収穫期において、4種の農薬の根への取り込み性と根から茎葉部への移行性は一定だった。よって、根系の発達後は土壌溶液中濃度に応じて根に取り込まれ茎葉部へ移行されていると推察された。したがって、この期間におけるこれらの農薬の茎葉部濃度は概ね土壌溶液中濃度および根部濃度に依存していることを明らかにした。また、発芽後間もない幼植物期では農薬の根から茎葉部への移行性は収穫適期と同等だが、農薬の根への取り込み性は低かった。そのため、根系が未発達な発芽後間もない幼植物の茎葉部濃度は土壌溶液中濃度にかかわらず低くなった。このことは、土壌中の農薬の茎葉部への移行において根系の発達が重要な要因となりうることを示唆している。一方、収穫適期を大幅に過ぎた本葉29-32葉期のコマツナはプロシミドンを除き根への取り込み性と根から茎葉部への移行性が低い傾向を示した。収穫適期を過ぎたコマツナの根部におけるこれらの農薬濃度の減少は土壌溶液中濃度の減少とバイオマスの増加による希釈で説明できるが、これらの農薬の茎葉部濃度の減少は土壌溶液中濃度や茎葉部の生長による希釈だけでは十分に説明できず、茎葉部での農薬の代謝が関与しているかもしれない。今後は農薬の代謝についても明らかにする必要がある。

さらに、フルトラニルとプロシミドンの吸収・移行性については水耕試験を用いて比較した。コマツナの根部と茎葉部における濃度はプロシミドンがフルトラニルよりも高く、これまでの土耕試験と同様の傾向を示した。これらの濃度とコマツナの新鮮重から根部と茎葉部中の農薬量の推移を検討した (図4. 1. 11)。0日目における農薬のコマツナ体中含量は試験液への添加量に対してフルトラニルは1%、プロシミドンは3%程度だった。

プロシミドンの場合、根部含量は0日目から1日目の間で速やかに減少したが、茎葉部含量は0日目から7日目までほぼ一定であり、代謝速度は遅いと考えられる。一方、フルトラニルの場合、根

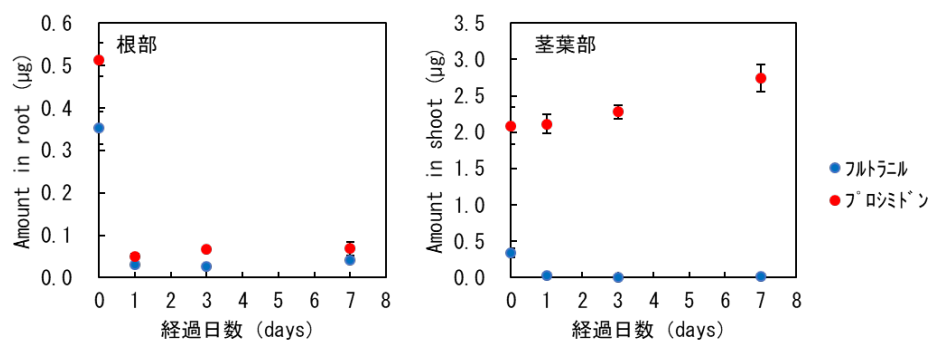


図4. 1. 11 コマツナの根部及び茎葉部中農薬含量の推移

部と茎葉部でともに0日目から1日目の間で速やかに減少しており、プロシミドンに比べて代謝速度が速いことを明らかにした。

徳島、高知および兵庫県の間場における後作物残留試験結果の土壌残留濃度の実測値を用い、非線形最小二乗法による DFOP モデルへのあてはめを行った結果、当該モデルでアセトン抽出による土壌中農薬濃度（全量濃度）の推移を表現できることが示された（図 4.1.12）。

前述のとおり、各仮想農薬の土壌吸着係数 K_d 値は(8)式により有機炭素含量を用いて推定したが、モデル計算に使用する際の K_d 値は時間経過に伴う増加傾向を表す(9)式を適用した⁹⁾。

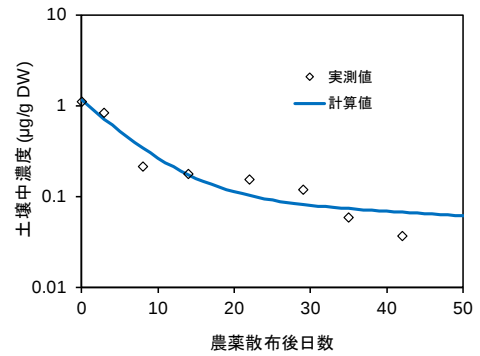


図4.1.12 土壌中におけるクロリアニジンの濃度推移（2017年、サブテーマ③）

(9)

$$K_d(t) = K_{d,0} + 0.294K_{d,0}^{1.005} \times \sqrt{t}$$

ここで、 $K_{d,0}$ ：初期土壌吸着係数、 t ：経過日数である。

また、 K_d の増加速度と温度（10、25、35℃）との関係に着目すると、温度が高いほど K_d の増加速度が大きく、土壌吸着の経時的な増加は高温下で促進されることが示されており（図 4.1.3）、必要に応じて K_d 値の温度補正が可能となっている。

本モデルの計算に必要な吸着速度定数（ k_{ads} 、1/day）、脱着速度定数（ k_{des} 、1/day）および消失速度定数（ k_{out} 、1/day）に関するパラメータは、DFOP パラメータ（ g 、 k_1 および k_2 ）から推定可能であり、それぞれ(10)から(12)式で表現される¹⁰⁾。

$$k_{out} = gk_1 + (1 - g)k_2 \quad (10)$$

$$k_{ads} = \frac{\theta}{\rho_b K_d} (k_1 + k_2 - k_{des} - k_{out}) \quad (11)$$

$$k_{des} = \frac{k_1 k_2}{k_{out}} \quad (12)$$

一般に、土壌中における消失速度は温度に依存し、(13)式で表される。

$$k_{deg}(T) = k_{deg,ref} \cdot Q_{10}^{\frac{T-T_{ref}}{10}} \quad (13)$$

ここで、 $k_{deg}(T)$ ：温度 T (℃)における消失速度定数（1/day）、 $k_{deg,ref}$ ：温度 T_{ref} (℃)における消失速度定数（参照値、1/day）、 Q_{10} ：Q-10 ファクター（温度が 10℃上昇することに伴う消失速度定数の増加割合。一般的には $Q_{10}=2.2$ 。単位は無次元）である。（1）式の消失速度定数 k_1 および k_2 に対し、（13）式を適用することで、温度の違いによる消失速度の違いを表現することが可能である。

また、土壌中における消失速度は土壌水分量にも依存し、(14)式で表される。

$$k_{deg}(\theta) = k_{deg,ref} \left(\frac{\theta}{\theta_{ref}} \right)^B \quad (14)$$

ここで、 $k_{deg}(\theta)$ ：体積含水率 θ (v/v)における消失速度定数（1/day）、 $k_{deg,ref}$ ：体積含水率 θ_{ref} における消失速度定数（参照値、1/day）、 B ：含水率による補正係数（一般的には $B=0.7$ 。単位は無次元）である。ただし、サブテーマ①で得られた結果によれば、土壌が非常に乾燥した状態（体積含水率が 30% 程度）を除き、葉菜類の栽培に適した通常の土壌水分量（体積含水率が 60%前後）の範囲内では、土壌

中における消失速度はほとんど変化しないことが示されている。従って、土壌水分量による消失速度補正の必要性は小さいものと思われる。

サブテーマ 2 の高知県農業技術センター内の灰色低地土圃場（有機炭素含量：2.6%）、サブテーマ 3 の徳島県立農林水産総合技術支援センター内の砂丘未熟土圃場（有機炭素含量：0.01%）および、サブテーマ 4 の兵庫県立農林水産技術総合センター内の黄色土圃場（有機炭素含量：2.3 %）において実施された後作物残留試験結果を用い、開発した後作物残留予測モデルの有効性を検証した。農薬の土壌中（全量濃度、土壌溶液濃度）およびコマツナ茎葉部濃度の実測値と予測モデルによる計算結果を図 4.1.13 ～図 4.1.15 に示す。なお、図中に示す各農薬の土壌溶液濃度は、水抽出濃度の実測値から仮比重と体積含水率で補正した推定値である。

各県の 3 年間の結果を踏まえると、土壌溶液中の後作物残留濃度予測モデルによる各農薬濃度の計算値は、一部の場を除き実測値の消長を再現することができた。一方、予測モデルによるコマツナ茎葉部の農薬濃度は、定植

10 日後より急激に上昇し、20 日前後にピークに達した後減少傾向を示した。これは、前述のサブテーマ①の知見（播種後 10 日間程度はコマツナ根部の発達が未熟であり、土壌溶液を根からほとんど吸い上げることができない）¹¹⁾を基に、モデル計算では播種後 10 日間は蒸散流量を 0 に設定したためである。その後、蒸散流に伴い土壌溶液中の農薬は茎葉部へ速やかに移行するが、コマツナの生長に伴う湿重量の増大により希釈されることを示している。しかし、コマツナ茎葉部の各農薬濃度の計算値は、水溶解度が非常に大きいジノテ

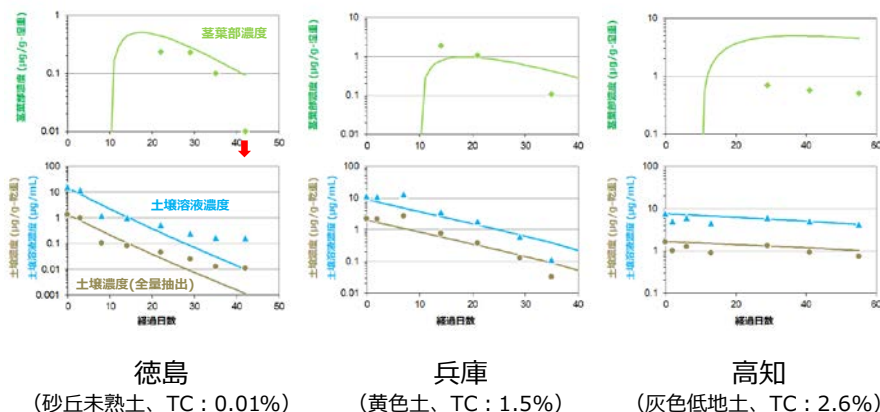


図4.1.13 農薬の土壌中およびコマツナ茎葉部濃度の推定結果（2017年秋作）ジノテフラン：log Pow=-0.543、植物代謝なし

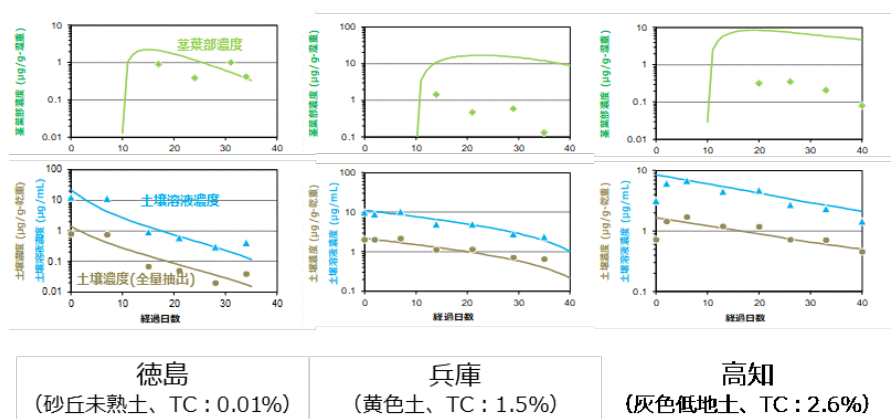


図4.1.14 農薬の土壌中およびコマツナ茎葉部濃度の推定結果（2019年初夏作）クロチアニジン：log Pow=-0.543、植物代謝なし

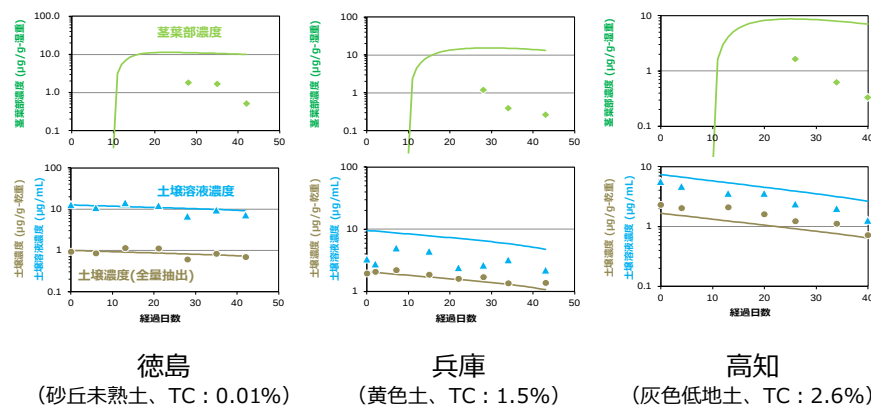
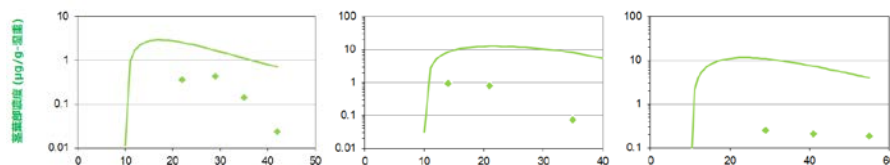


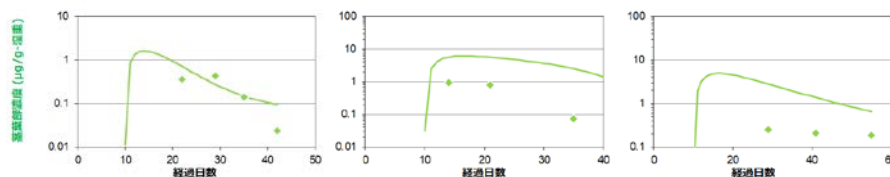
図4.1.15 農薬の土壌中およびコマツナ茎葉部濃度の推定結果（2019年春作）プロシミドン：log Pow=3.3、植物代謝なし

フランで比較的良い一致を示したものの、実測値に比べて過大に見積もられ、減衰傾向も実測値に比べて緩やかであった。これは、前述の(7)式から各農薬の $\log Pow$ を用いて推定した蒸散流濃縮係数(TSCF)が圃場試験を実施した条件での値と一致していない可能性や、モデル計算において植物体における農薬の代謝分解を考慮していないことなどが示唆された。図

植物代謝なし



植物代謝を考慮 (半減期3日)



徳島

兵庫

高知

(砂丘未熟土、TC : 0.01%)

(黄色土、TC : 1.5%)

(灰色低地土、TC : 2.6%)

図4.1.16 植物体における代謝分解の有無によるコマツナ茎葉部濃度の推定結果
2017年秋作、クロチアニジン : $\log Pow=0.7$

コマツナ茎葉部濃度 (クロチアニジン) の比較を示す。植物代謝を考慮した場合 (半減期を3日に設定) のコマツナ茎葉部濃度は、考慮しない場合に比べて濃度レベルや減衰傾向が近似していることから、コマツナ茎葉部における濃度消長に対し植物代謝の寄与が大きいことが示唆された。

各土壌におけるコマツナ茎葉部濃度の計算値は、有機炭素含量が非常に少ない砂丘未熟土(TC:0.01%)に比べて、黄色土(TC:1.5%)と灰色低地土(TC:2.2%)で実測値とのかい離が大きかった(特に、典型的な浸透移行性農薬のクロチアニジン)。これは、砂丘未熟土の土壌水分量が黄色土や灰色低地土に比べて経時的な変動が小さく、モデル計算で土壌水分量を一定とする条件とのかい離が少ないことや、砂丘未熟土には農薬はほとんど吸着せず、ほぼすべてが土壌溶液中に存在することから、作物可給態の農薬と考えられる土壌溶液中の濃度を再現しやすいことなどが挙げられる。さらに疎水性のトルクロホスメチル($\log Pow=4.56$)のコマツナ茎葉部濃度の計算値は、他の農薬に比べて経時的に実測値とのかい離が大きくなった。これは、本研究で開発した予測モデルではコマツナ根部への農薬の吸着は考慮していないため、疎水性の農薬では茎葉部へ移行する農薬量を過大評価する可能性が示唆された。

図4.1.17に開発した後作物残留濃度予測モデルに対する感度分析結果を示す。図4.1.17に示すグラフは、縦軸に土壌中半減期を、横軸に表3で示した仮想農薬7種に相当する $\log Pow$ を示す。それぞれのプロットは、予測モデルにより各種条件下で計算した収穫時におけるコマツナ茎葉部濃度について、トリガーとした一律基準値0.01ppm未満の場合を青で、0.01ppm以上の場合を赤で示したものである。

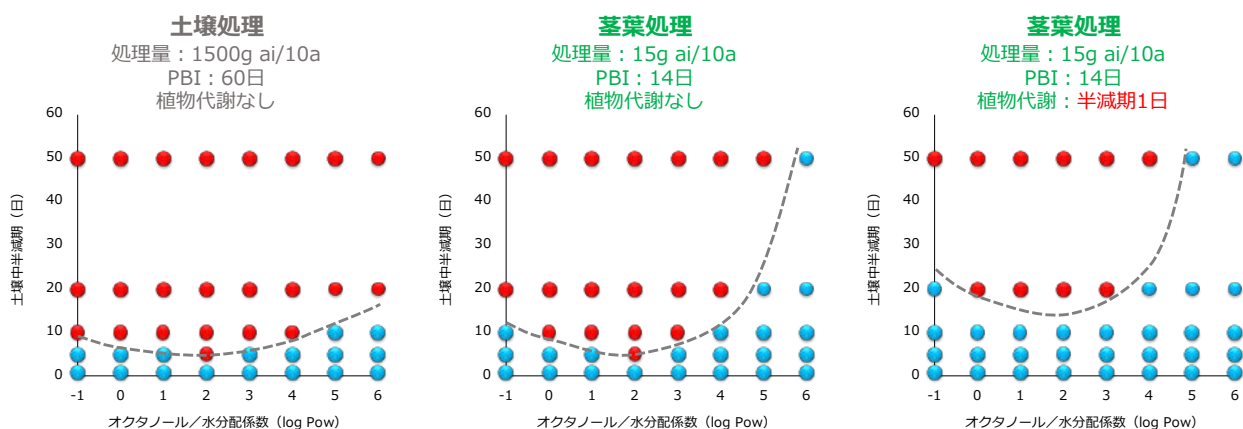


図4.1.17 後作物残留濃度予測モデルの感度分析結果

● : 収穫時のコマツナ茎葉部濃度が0.01ppm未満の場合、● : 0.01ppm超過の場合

図 4. 1. 17 左の土壌処理の場合、半減期が 20 日以上では仮想農薬 7 種すべてで基準値を超過する結果となった。土壌処理の場合、単位面積当たりの農薬使用量が茎葉処理の場合に比べて 100 倍であり、物理化学的性状の違いによる残留濃度に及ぼす影響が見かけ上小さくなったことが主要因であると考えられた。一方、図 4. 1. 17 中央の茎葉処理の場合は、仮想農薬の $\log Pow$ の違いによる残留濃度への影響が見られ、特に疎水性の高い $\log Pow=6$ の農薬では、半減期が 50 日でも基準値を下回る結果となった。しかし、一般的な浸透移行性を示す農薬 ($\log Pow=1\sim3$) は、土壌中半減期が 5 日でも 0.01ppm を超過する結果となった。前述のとおり、作物茎葉部における残留濃度に対し、植物代謝の寄与が大きいことが示唆されたため、農薬の植物体における半減期を 1~20 日に変化させた場合の計算をおこなった。その結果、半減期が 5 日以上の場合は、分解を考慮しない場合とほとんど変わらない結果であった。さらに、図 4. 1. 17 右に示すように、 $\log Pow$ が 0~3 の農薬では、植物体内で速やかに分解する場合 (半減期 1 日) でも、土壌中半減期が 20 日以上の場合、基準値を超過する結果となった。図 4. 1. 18 に前作での農薬散布から播種までの期間 (PBI) を変化させた場合のコマツナ茎葉部の残留濃度の推移を示す。農薬の $\log Pow$ を 2、植物代謝による半減期を 5 日に固定し、土壌中半減期 DT50 を変化させた場合の残留濃度は、コマツナ栽培を年 2 作に限定したかなり安全側に立った PBI (土壌処理: 120 日、茎葉処理: 60 日) を適用した場合でも、土壌中半減期が 20 日以上の場合、0.01ppm を超過することが示された。

以上により、後作物残留濃度は農薬の使用方法 (特に、土壌処理での使用量の多さ) に大きく依存し、農薬の物理化学的性状のみで一律基準値である 0.01ppm の超過の有無を判断することは困難であることが示された。本研究で開発した後作物残留濃度予測モデルは、土壌タイプの異なる 3 ほ場で実施した後作物残留試験結果を用いて検証を行った結果、収穫時におけるコマツナ茎葉部の実測濃度に比べて同レベルか 2 桁程度過大に見積もる傾向を示した。このことは、行政施策に活用するという前提に

立てば、及第点と評価できるものと考えられる。しかし、一般的な浸透移行性を示す農薬 ($\log Pow=1\sim3$) では、植物代謝などによる分解等を考慮していないなどの様々な要因により、実測値と計算値とのかい離が大きすぎるため、適切な農薬の後作物リスク管理ツールとするためには、供給源として重要な作物可給態濃度 (土壌溶液中濃度) を含めた更なる予測精度の向上が要求される。

また、本研究で検証に用いた圃場試験では、気象条件 (特に、降雨) による農薬の土壌中濃度に及ぼす影響が大きく、図 4 に示すように実測濃度 (全量濃度) と DFOP モデルとのかい離や、土壌水分量を一定として計算していることなど、野外環境における様々な影響要因を極力排除した条件下 (例えば、施設栽培や雨除けを設置した圃場試験など) でのデータを用いて予測モデルの有効性を検証する必要があるものと思われる。本研究では、後作物残留リスクが相対的に高いことが懸念されているコマツナ等の葉菜類を対象とした予測モデルの構築を行ったが、ニンジン等の根菜類 (可食部の茎葉部を含む) についても後作物残留リスクが懸念される場合が確認されている。従って、根菜類を対象とした後作物残留濃度予測モデル構築の必要性についても検討する必要があると考えられる。

黒ボク土ほ場における試験について、水抽出により得た土壌中の作物可給性農薬は経時的に減少した (図 4. 1. 19)。供試した作物可給性農薬濃度を一次反応速度式にあてはめて土壌中半減期を算出したところ、30日から163日と算出され、明確な $\log Pow$ との関係性、例えば、 $\log Pow$ が大きいほど半減期が長

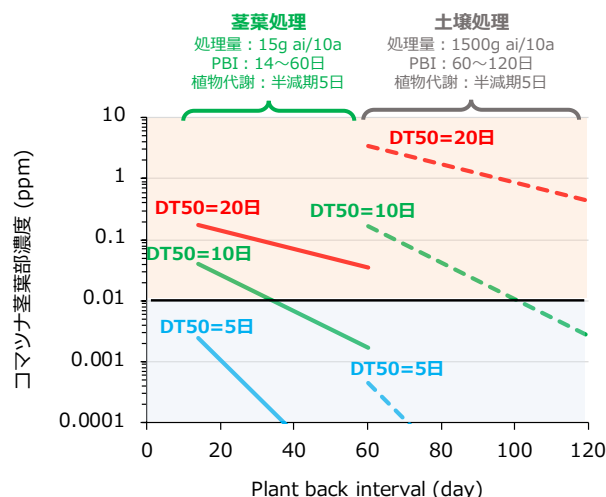


図4. 1. 18 後作物残留濃度予測モデルの感度分析結果 (Plant back intervalとコマツナ茎葉部濃度との関係)

農薬は $\log Pow=2$ 、植物代謝による半減期=5日に固定し、土壌中半減期DT50を変化させた場合の結果を示す。

くなる傾向は確認できなかった。季節ごとの半減期を比較すると、一部プロシミドンやトルクロホスメチルで秋作における土壌中半減期が長い傾向にあるが、概ね春作>初夏作>秋作の順であった（図4.1.20）。土壌中濃度の減

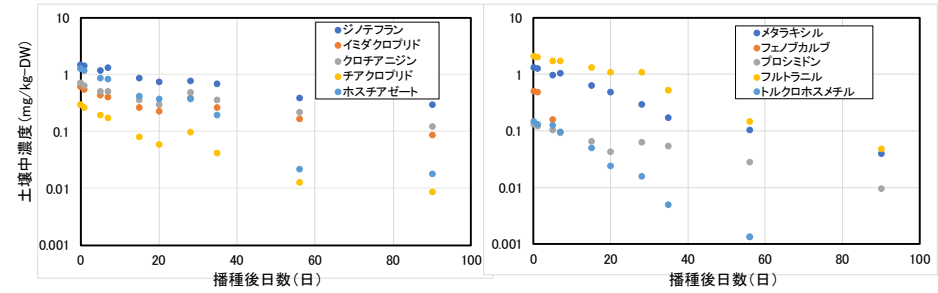


図4.1.19 土壌中の作物可給性農薬の経時変化（初夏作の例）

衰が著しい栽培初期（0～30日）の平均気温も春作（10.8℃）、初夏作（18.8℃）、秋作（21.7℃）であった。これは、水抽出濃度の半減期は温度が高くなるほど短くなるという、室内試験の結果と一致した。次いで栽培期間中の K_d について確認したところ（図4.1.21）、 $\log Pow$ が大きい農薬ほど K_{d0} が大きく、経時的に K_d が高くなるという室内試験結果⁹⁾と一致したが、明瞭な季節間差、すなわち高温下で経時的な土壌吸着が促進という現象は確認できなかった。これは、室内試験の温度設定が10～35℃の範囲であること、ほ場における気温の日内変動や日間変動が大きいことが原因として考えられた。以上のことから、黒ボク土ほ場では、土壌中の作物可給性農薬量は春作>秋作>初夏作の順で存在し、初夏作のような気温が高い条件では分解反応（微生物分解や加水分解）および揮発等が促進し作物可給性農薬量が減少した可能性がある。

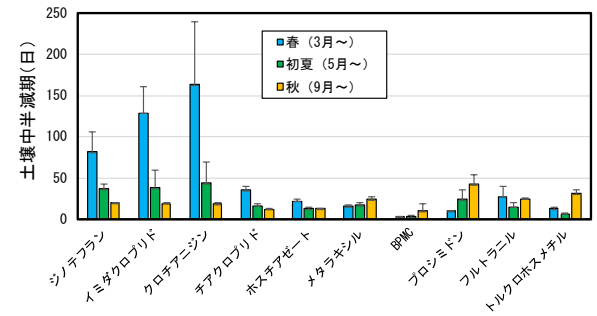


図4.1.20 土壌中の作物可給性農薬の土壌中半減期の季節間差（I：標準偏差）

収穫適期の農薬吸収に関する作物間差については、栽培適期が作物により異なるため、広範な栽培適期を有するコマツナを春作、初夏作、秋作で栽培し、各種作物中の農薬濃度をコマツナ中農薬濃度で除す、すなわちコマツナ中農薬濃度を1とした場合の相対値で示すことで解析した（図4.1.22）。コマツナ、ホウレンソウ、シュンギクなどの葉菜類で農薬濃度が高く、トウモロコシ、ダイズ、トマト、カボチャといった果菜類・穀類では濃度が低いか不検出であった。また、根菜類、特にニンジン根では $\log Pow$ が大きいプロシミドンやトルクロホスメチルで濃度が高くなる傾向を示した（図4.1.22）。ニンジンについて、葉部、根部（表皮と髄質部）における分配比を残留濃度に部位別重量を乗じて算出した。その結果、 $\log Pow$ が小さいジノテフランでは、表皮へ残留量は僅かであり、主に髄質部と葉部に残留していた。一方 $\log Pow$ が大きいトルクロホスメチルでは、表皮に80%以上が残留し、髄質部と葉部の残留は僅かであった（図4.1.23）。これは、 $\log Pow$ が大きい農薬ほど根濃縮係数が大きくなり根部に残留し、 $\log Pow$ が大きい農薬ほど地上部に移行するという室内試験結果と一致した²⁾。

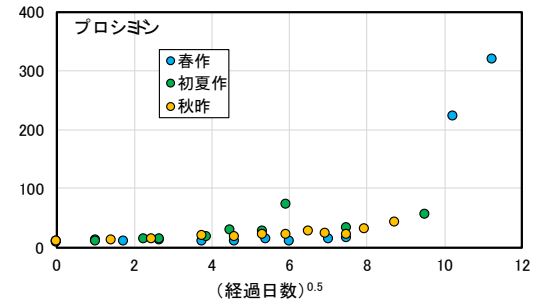


図4.1.21 土壌中の K_d の経時変化（とプロシミドンの例）

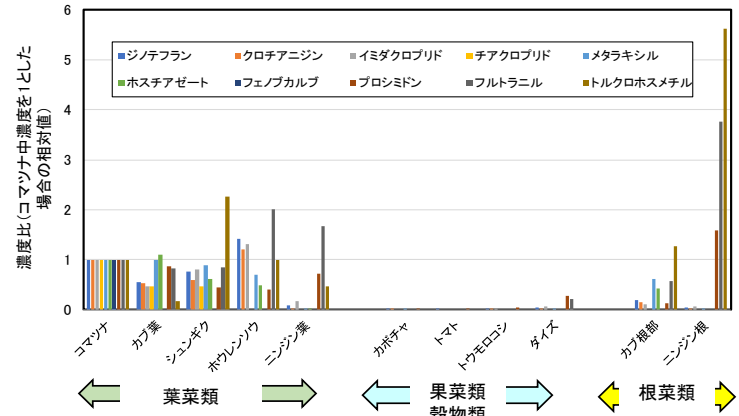


図4.1.22 収穫適期の農薬濃度に関する作物間差（コマツナ中濃度を100%とした場合）

次いで、作物残留濃度の季節間差を確認するため、春作、初夏作および秋作におけるコマツナとニンジン（根部）の農薬濃度について、春作で得られた農薬濃度を1とした場合の相対値で初夏作、秋作の農薬濃度を比較した（図4.1.24）。その結果、土壌中半減期の長短の傾向と一致し、コマツナとニンジン（根部）いずれも一部プロシミドンやトルクロホスメチルで秋作における濃度が高いが、概ね春作＞初夏作＞秋作の順であった。

以上のことから、黒ボク土におけるほ場試験により、土壌中半減期が作物残留濃度を決定する大きな要因であることが分かった。また、コマツナ等葉菜類は、幅広いlog Powを有する土壌中農薬の作物移行を評価できること、特にlog Powが大きい農薬については、ニンジン（根部）等を栽培することで、残留基準値（ここでは一律基準の0.01ppm）超過する可能性があるか否かの評価作物となりえることが明らかとなった

5. 本研究により得られた成果

（1）科学的意義

当初計画通り、環境行政に活用可能なシミュレーションモデルを開発できたことは極めて重要である。一方、特に供試土壌種の提案について、今回のほ場試験結果は過去の室内試験結果を反映せず、砂丘未熟土では降雨による下層への溶脱が生じていることを明らかにするなど、室内試験では明らかにできない実環境で生じうる現象を科学的に確認し、それを農薬登録の提案につなげたことは意義深い。

（2）環境政策への貢献

公募時の行政ニーズは「土壌残留に係る農薬登録保留基準として考慮すべき要素を特定の上、土壌残留に係る農薬登録保留基準を提案」「農薬登録申請者に提出を求める試験の内容など（試験を実施する際の要件（作物の選択、ほ場の選択など）を提案）であった。前者については、計画通りシミュレーションモデルを開発し、log Powの高低や土壌中半減期の長短にかかわらず後作物において0.01ppmを超過する可能性がある。これら指標に係るトリガー値の設定により後作物中の農薬残留レベルを予測する手法では、農薬取締法に基づく農薬登録の審査等、規制の根拠として用いるには十分な精度を得ることが期待できないと考えられ、現段階では、農薬の物理化学的性状のみではトリガーの設定は困難であり、一律に後作物残留試験を実施する必要がある、と指摘した。

後者について、サブテーマ①～⑤の結果をとりまとめ、供試作物については、コマツナ等葉菜類が適しており、幅広いlog Powの農薬の評価が可能であること、特にlog Powが大きい農薬については、ニンジン（根部）等根菜類が供試作物になりえると提案した。供試土壌については、灰色低地土や黄色土のような炭素含量が1～2%程度の土壌と、我が国の特殊性から黒ボク土での試験を実施すべきと提案した。供試作物の作期について、春作もしくは秋作が良く、さらに、試験実施の手順（農薬の土壌への散布時期）を考慮すると、夏季に農薬を散布する秋作よりも春作のほうが良いと提案した。

<行政が既に活用した成果>

平成29年～平成31年度「環境省農薬残留対策総合調査」において、土壌中の作物可給性農薬の抽出法として、本研究で有効性を示した水抽出法を採用。

<行政が活用することが見込まれる成果>

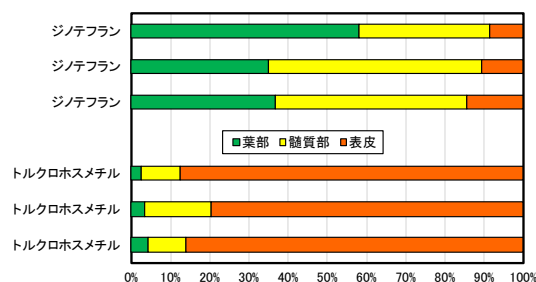


図2.4.23 ニンジンにおける農薬の部位別残留割合

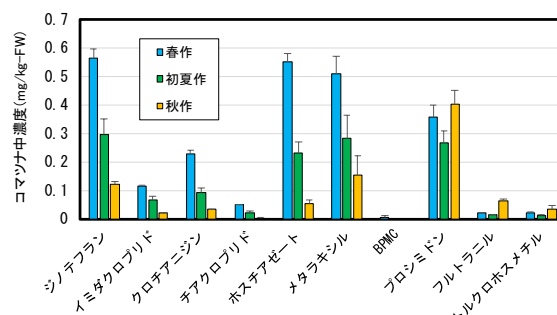


図4.1.24 コマツナ中濃度の季節変化

本研究で提案した農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度〔一律に後作物残留試験を実施、後作物残留試験条件（供試作物、供試土壌、季節）〕。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 6) S. NAMIKI、T. OTANI、Y. MOTOKI、N. SEIKE and T. IWAFUNE: Journal of Pesticide Science、43(2)、96-107 (2018)、Differential uptake and translocation of organic chemicals by several plant species from soil.
- 7) S. NAMIKI、T. OTANI、Y. MOTOKI and N. SEIKE: Journal of Pesticide Science、43(4)、248-254 (2018)、The influence of *Brassica rapa* var. *perviridis* growth conditions on the uptake and translocation of pesticides.
- 8) Y. MOTOKI、T. IWAFUNE、N. SEIKE、K. INAO and S. NAMIKI: Journal of Pesticide Science、43(4)、277-282 (2018)、Comparison of soil sorption parameters of pesticides measured by batch and centrifugation methods using an andosol.
- 9) S. NAMIKI、Y. MOTOKI、N. SEIKE: Journal of Pesticide Science、44(1)、1-8 (2019)、Relationship between growth stage of *Brassica rapa* var. *perviridis* and the abilities for uptake and translocation of pesticides in soil.
- 10) Y. MOTOKI、T. IWAFUNE、K. INAO and N. SEIKE: Journal of Pesticide Science、(2020)、Effects of temperature on first-order and biphasic dissipation of pesticides in Japanese soils. (accepted on 19th Feb.)

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 清家伸康：植物防疫、71(11)、4-6 (2017) 農薬の後作物残留を防ぐために 一得られた知見と今後必要なこと

(2) 口頭発表（学会等）

- 14) 清家伸康：第22回 食品と化学物質のリスク勉強会 (2017)
「農薬の後作物残留についてどこまで分かったのか？今後の展望は？」
- 15) 清家伸康：平成29 年度 近畿中国四国農業試験研究推進会議 病虫害推進部会四国及び近畿中国地区農薬残留分析担当者会 (2017)
「農薬の後作物残留について」
- 16) 清家伸康、元木裕、渡邊栄喜、並木小百合、稲生圭哉：日本農薬学会第 43 回大会 (2018)
「農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第 15 報 ほ場試験によるコマツナの土壌中農薬の吸収性評価 その2」
- 17) 稲生圭哉、清家伸康、元木 裕、渡邊栄喜、並木小百合：日本農薬学会第 43 回大会 (2018)
「農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第 19 報 葉菜類を対象とした農薬の後作物残留濃度予測モデルの開発」
- 18) 清家伸康、渡邊栄喜、並木小百合、稲生圭哉、望月 証、田中昭人、島本文子：日本農薬学会第 42回農薬残留分析研究会 (2019)
「農薬の後作物残留リスク評価に関する研究（第20報）ほ場試験によるコマツナの土壌中農薬の吸収性評価 その3」

- 19) 稲生圭哉、清家伸康、渡辺栄喜、並木小百合、望月証、田中昭人、島本文子：日本農薬学会第42回農薬残留分析研究会（2019）

「農薬の後作物残留リスク評価に関する研究（第21報）葉菜類を対象とした農薬の後作物残留濃度予測モデルの開発および圃場試験結果による検証」

（３）知的財産権

特に記載すべき事項はない。

（４）「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

（５）マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない

（６）その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) 農林水産省：農薬の登録申請において提出すべき資料について（平成31年3月29日付け30消安第6278号農林水産省消費・安全局長通知）<http://www.acis.famic.go.jp/shinsei/6278/6278.pdf>〇〇〇
- 2) G.G Briggs, R.T. Bromilow and A. Evans: Pestic. Sci. 13, 495-504 (1982)
- 3) 農林水産消費安全技術センター：<http://www.acis.famic.go.jp/syouroku/index.htm>
- 4) 環境省：<http://www.env.go.jp/water/sui-kaitei/kijun.html>
- 5) 日本植物防疫協会：農薬ハンドブック2016
- 6) S. Trapp: Environ. Sci. Technol. 49, 395-402 (2015).
- 7) A. L. H. Steindal, J. Mølmann, G. B. Bengtsson, T. J. Johansen: J. Agric. Food Chem. 61, 10779-10786 (2013).
- 8) S. Namiki, T. Otani, N. Seike, S. Satoh: Environ. Toxicol. Chem. 34, 536-544 (2015).
- 9) Y. Motoki, T. Iwafune, N. Seike, K. Inao, and T. Otani: Effect of time-dependent sorption on the dissipation of water-extractable pesticides in soils. J. Agric. Food Chem. 64, 4478-4486 (2016)
- 10) FOCUS: Guidance Document on Estimating Persistence and Degradation Kinetics from Environmental Fate Studies on Pesticides in EU Registration, Report of the FOCUS Work Group on Degradation Kinetics. EC Document Reference Sanco/10058/2005 version 2.0. 2006
- 11) S. Namiki, N. Seike, Y. Motoki: J. Pestic. Sci. 44, 1-8 (2019)

Ⅱ－２ 灰色低地土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究

高知県農業技術センター

生産環境課 農薬管理担当

島本文子

清遠亜沙子(平成29年度)

森田展樹(平成30～31年度～令和元年度)

山本彩(平成30～令和元年度)

平成29～31年度研究経費（累計額）：10,920千円（研究経費は間接経費を含む）

（平成29年度：3,640千円、平成30年度：3,640千円、平成31年度：3,640千円）

【要旨】

環境大臣が定める農薬登録保留基準を満たし農薬登録されているにもかかわらず、当該作物の栽培で適切に使用された農薬が収穫後の土壌に残留し、次作の作物に移行する（農薬の後作物残留）事例が報告されている。そこで、「農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度の提案」を行ううえで必要な新たな後作物残留試験を実施すべきか否かの最適なトリガー、農薬の土壌残留性と作物移行性を考慮した試験を実施するための適切な諸条件（季節、土壌種、作物種等）を提案する必要がある。

作物中の残留農薬の検出要因の一つとして後作物残留が報告されており、残留基準値超過により農作物の出荷停止や回収等の処置が執られる場合もある。しかし、後作物残留に関しては、土壌中動態および作物移行に関するメカニズムに関して十分な知見がなく、未然に防止するための指導資料もない。このことから、高知県で広く分布する灰色低地土において、土壌中に残留した農薬および水抽出された農薬の経時的变化を明らかにするとともに、農薬吸収に関する作物間差（コマツナ等の葉菜類、栽培期間の長短のある根菜等）を明らかにする。また、栽培時期により生育期間が異なることから、春作、夏作、秋作、冬作での農薬の作物吸収の季節間差（コマツナ等の葉菜類、カブ等の根菜類）を明らかにする。

【キーワード】

農薬 後作物残留 灰色低地土 作物吸収 コマツナ

1. はじめに

高知県で広く分布している灰色低地土は、ほぼ平坦な沖積地、谷底平野、扇状地などに多く、おおむね全層が灰色ないし灰褐色を呈しており、下層土には斑紋がある。日本の耕地面積の約20%はこの灰色低地土で占められている。これらの土壌は母材が、地下水あるいは灌漑水の影響を受けて灰色化したか、あるいは以前のグライ層が地下水位の低下によって酸化され、灰色化したものであり、細粒質の土壌は、粘質～強粘質で、水持ちが良く、腐植および陽イオン交換容量も比較的高く、作物の栽培に適している。しかしながら、土壌の種類と後作物残留に関する科学的知見はなく、農薬の環境挙動や作物吸収に関する基礎データがないことから問題が生じた際の対処方法に苦慮している。

2. 研究開発目的

本研究では、農薬の後作物残留を未然に防ぐための新たな登録制度、特に後作物残留試験条件を提案することを目標とし、灰色低地土ほ場において、農薬吸収の作物間差（主にコマツナ等の葉菜類、栽培期間の長短のある根菜）を明らかにするとともに、3作期（春作、初夏作、秋作）で試験を行い、農薬の土壌中濃度変動や作物吸収の季節間差を解明する。土壌残留および作物吸収に関して、作物種の違い、農薬の物性値や降雨等の環境要因の観点から解析するとともに、作物残留濃度のシミュレーションモデル構築に活用する。また、様々な栽培形態を想定し、農薬の土壌中の作物可給態の挙動や作物吸収性の季節間による違いの残留リスクを明らかにする。

3. 研究開発方法

高知県農業技術センター内の灰色低地土ほ場（有機炭素含量2.6%）において、土壌中の作物可給態の経時変化を明らかにするとともに、収穫適期の農薬吸収に関する作物間差について検討した。平成29年10月31日、裸地ほ場に6種の農薬（ジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチル、イミダクロプリド）を土壌中濃度が2mg/kg（トルクロホスメチルのみ20mg/kg）となるよう散布処理し（表3.2.1）、作土層20cmを手動式耕耘機で混和した後、葉菜類6種（コマツナ、シュンギク、ハウレンソウ、ダイコン（ぬき菜）、リーフレタス、葉ニンニク）、および根菜類2種（カブ、ニンジン）を播種した（表3.2.2）。各試験区の面積は2.3m²/区とし、各作物3反復、ほ場内にランダムに配置した（図3.2.1）。また、寒冷対策のためトンネル栽培とした。その後、各作物（収穫適期を含む4時期）および土壌を経時的（0、2、6、13、29、41、55、70、84、111、132、146日後）にサンプリングし、土壌中濃度の推移と作物への吸収移行を調査した（表3.2.3）。土壌試料は、0.01M塩化カルシウム水溶液とアセトンを用いて逐次抽出¹⁾を行った（図3.2.2）。作物試料は、QuEChERS法により抽出を行い、グラファイトカーボン/アミノプロピルシリル化ミニカラムを用いて精製した（図3.2.3）。各最終溶液はアセトニトリルまたはアセトンに定容し、LC/MS/MSまたはGC(FTD)で定量して残留濃度を算出した。

表3.2.1 供試農薬一覧²⁾

製剤名	分析成分	logPow	土壌中濃度設定値 (mg/kg)
アルバリン顆粒水溶剤	ジノテフラン	-0.549	2
アドマイヤーフロアブル	イミダクロプリド	0.57	2
ダントツ水溶剤	クロチアニジン	0.7	2
リドミルゴールドMZ水和剤	メタラキシル	1.75	2
スミレックス水和剤	プロシミドン	3.3	2
リゾレックス水和剤	トルクロホスメチル	4.56	20

表3.2.2 供試作物一覧

作物名	品種名	収穫日	栽培期間
ダイコン（ぬき菜）	耐病総太り	H29.12.11	41
コマツナ	よかった菜	H29.12.25	55
カブ	CRふじしろ	H30.1.9	70
ハウレンソウ	ミラージュ	H30.1.23	84
シュンギク	きわめ中葉春菊	H30.1.23	84
リーフレタス	ハリウッドレタス	H30.2.19	111
葉ニンニク	中国産	H30.2.19	111
ニンジン	向陽2号	H30.3.12	132

※薬剤処理および播種日：平成29年10月31日

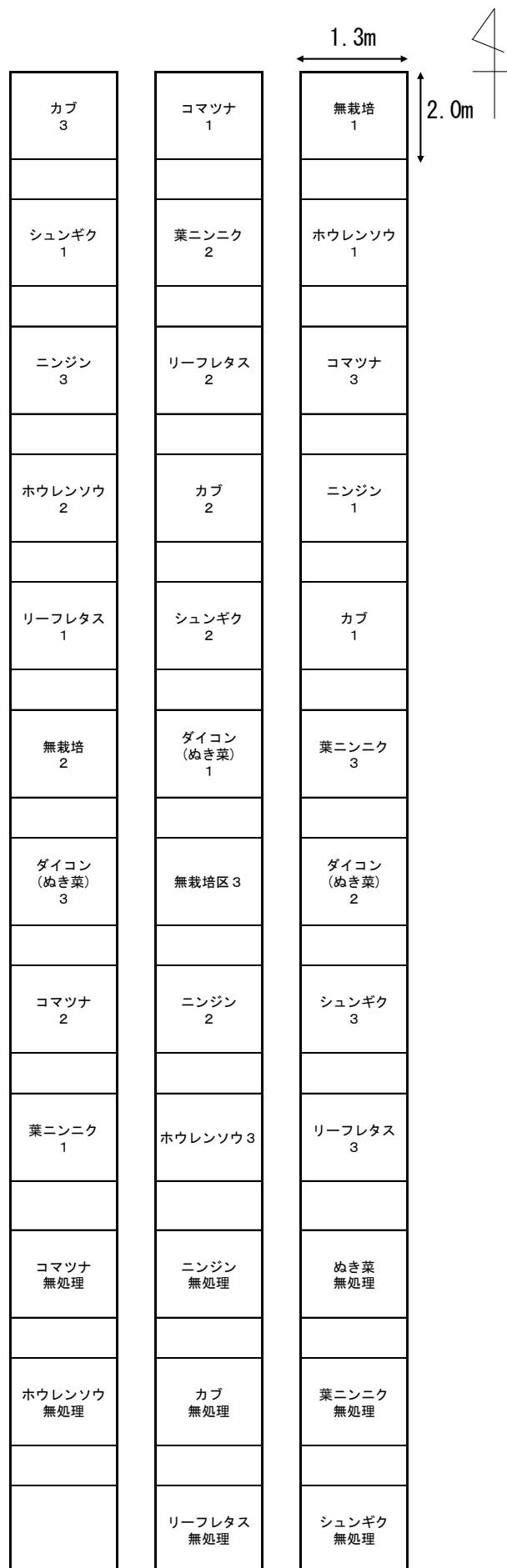


図3.2.1 試験区の配置図

表3.2.2 土壌および作物試料採取の概要

年月日	10/31		11/2	11/6	11/13	11/29	12/11	12/25	1/9	1/23	2/19	3/12	3/26
薬剤処理後の経過日数(日)	処理前	0	2	6	13	29	41	55	70	84	111	132	146
1 無栽培 1	土	薬, 耕, 土	土	土	土	土	土	土	土	土	土	土	土
2 無栽培 2	土	薬, 耕, 土	土	土	土	土	土	土	土	土	土	土	土
3 無栽培 3	土	薬, 耕, 土	土	土	土	土	土	土	土	土	土	土	土
4 ダイコン(ぬき菜) 1	土	薬, 耕, 種			間引き	間引き	収穫	収穫					
5 ダイコン(ぬき菜) 2	土	薬, 耕, 種			間引き	間引き	収穫	収穫					
6 ダイコン(ぬき菜) 3	土	薬, 耕, 種			間引き	間引き	収穫	収穫					
7 コマツナ 1	土	薬, 耕, 種				間引き	間引き	収穫	収穫				
8 コマツナ 2	土	薬, 耕, 種				間引き	間引き	収穫	収穫				
9 コマツナ 3	土	薬, 耕, 種				間引き	間引き	収穫	収穫				
10 カブ 1	土	薬, 耕, 種					間引き	間引き	収穫		収穫		
11 カブ 2	土	薬, 耕, 種					間引き	間引き	収穫		収穫		
12 カブ 3	土	薬, 耕, 種					間引き	間引き	収穫		収穫		
13 ホウレンソウ 1	土	薬, 耕, 種					間引き	間引き		収穫	収穫		
14 ホウレンソウ 2	土	薬, 耕, 種					間引き	間引き		収穫	収穫		
15 ホウレンソウ 3	土	薬, 耕, 種					間引き	間引き		収穫	収穫		
16 シュンギク 1	土	薬, 耕, 種					間引き	間引き		収穫	収穫		
17 シュンギク 2	土	薬, 耕, 種					間引き	間引き		収穫	収穫		
18 シュンギク 3	土	薬, 耕, 種					間引き	間引き		収穫	収穫		
19 リーフレタス 1	土	薬, 耕, 種						間引き	間引き		収穫	収穫	
20 リーフレタス 2	土	薬, 耕, 種						間引き	間引き		収穫	収穫	
21 リーフレタス 3	土	薬, 耕, 種						間引き	間引き		収穫	収穫	
22 葉ニンニク 1	土	薬, 耕, 種					間引き			間引き	収穫	収穫	
23 葉ニンニク 2	土	薬, 耕, 種					間引き			間引き	収穫	収穫	
24 葉ニンニク 3	土	薬, 耕, 種					間引き			間引き	収穫	収穫	
25 ニンジン 1	土	薬, 耕, 種								間引き	間引き	収穫	収穫
26 ニンジン 2	土	薬, 耕, 種								間引き	間引き	収穫	収穫
27 ニンジン 3	土	薬, 耕, 種								間引き	間引き	収穫	収穫

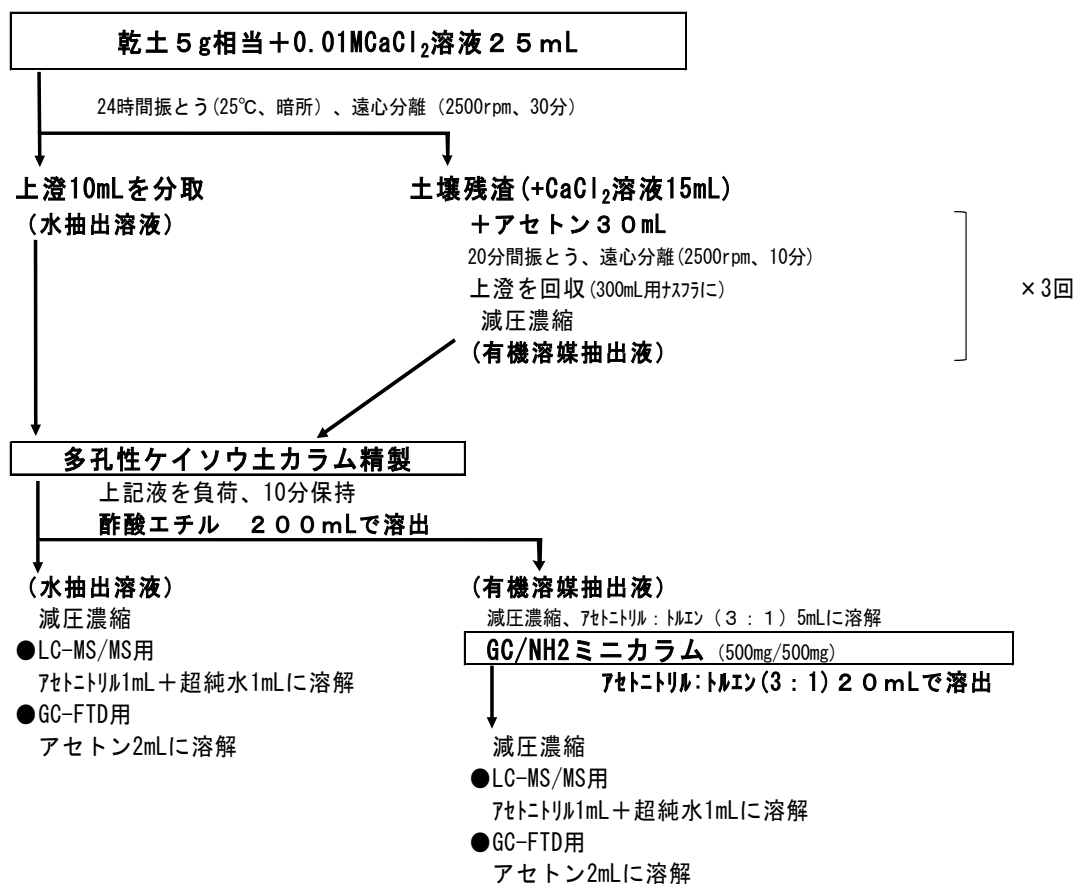


図3.2.2 土壌逐次抽出法(土壌)

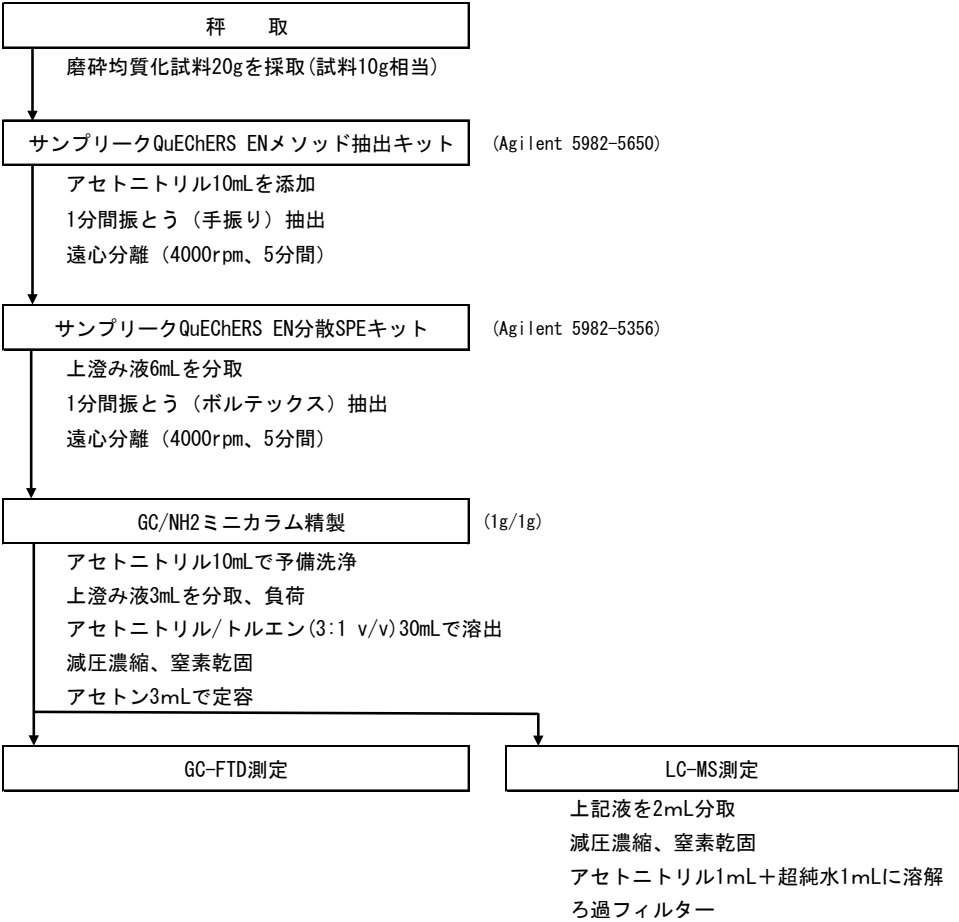


図3.2.3 作物体分析のためのQuEChERS法

表3.2.3 季節間差に係る試験の概要

播種時期		春	初夏	秋	冬
試験開始日		3/14	5/30	9/25	10/31
試験終了日		6/19	9/18	11/26	3/12
供試作物 '品種名'	コマツナ 'よかった菜'	○	○	○	○
	カブ 'CRふじしろ'	○	○	○	○
	ニンジン '向陽2号'	○	○	—	○
栽培形態		露地	露地	露地	トンネル

※－：土壌調査のみ

以上の試験を冬作とし、次いで3月14日播種(H31)の春作、5月30日播種の初夏作(H30)、9月25日播種の秋作(H30)において、先に使用したのと同じの農薬6種(ジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチル、イミダクロプリド)を同一の処理方法で処理し、農薬の作物吸収性や土壌中の作物可給態動態の季節間差を検討した。供試作物は、葉菜類1種(コマツナ)および根菜類1種(カブ)を共通作物とし、ニンジンも適宜追加した(表3.2.3)。なお、品種は冬作と同一とした。

4. 結果及び考察

散布直後（0日後）に得た各農薬の土壌中濃度（水抽出+アセトン抽出）は、設定濃度に対し64%から113%であり、試験を適切に開始出来ていることを確認した。薬剤処理後の約2週間は、10mm以下の降雨が続き、水抽出により検出した土壌中の作物可給性農薬濃度は供試した6成分とも大きく減少した。平均気温が10℃を下回るようになった11月14日（薬剤処理14日後）にトンネル被覆をした後の減少は、非常に緩やかであった（図4.2.1、図4.2.2）。各成分の半減期を一次反応速度式にあてはめて算出したところ、25日から160日と算出され、明確なlog Powとの関係性は確認できなかった（図4.2.3）。

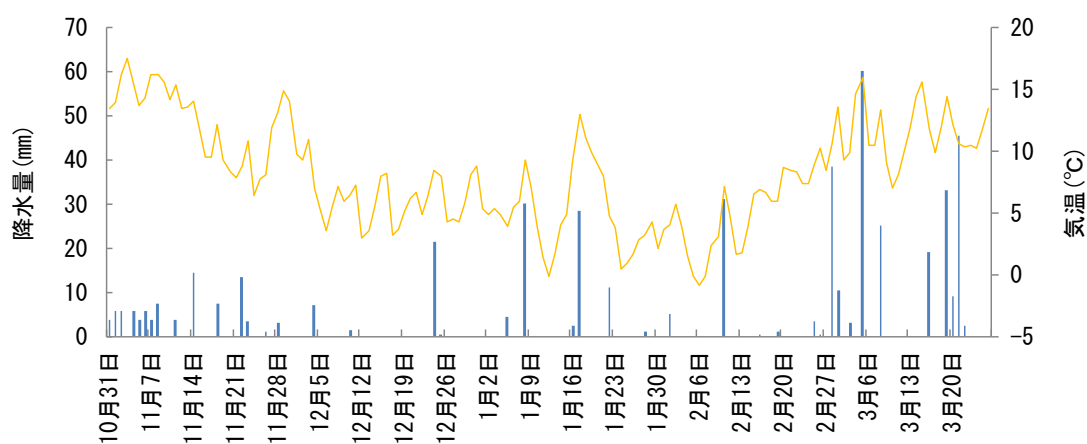


図4.2.1 試験期間中の気温と降水量(冬作)

※調査期間：H29.10.31～H30.3.26

アメダスデータ：後免測定地点

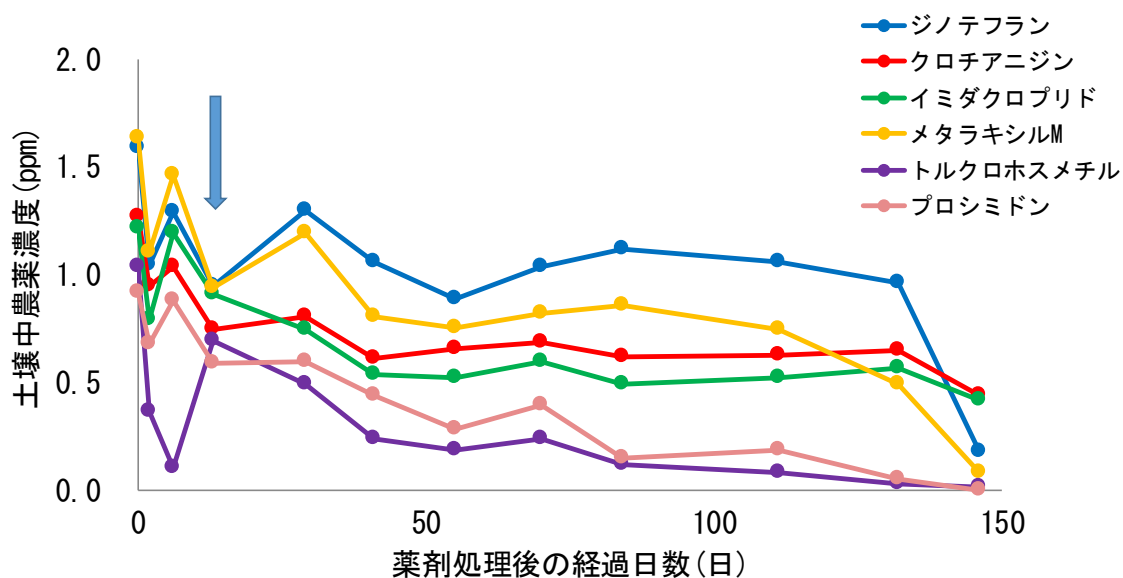


図4.2.2 土壌中における水抽出農薬濃度の推移(冬作)

※調査期間：図4.2.1と同じ

矢印：トンネル設置(H29.11.14)

収穫適期の農薬吸収に関する作物間差は、コマツナ、ホウレンソウ、シュンギクなどの葉菜類で高くなる傾向があった。供試した6種の農薬では、いずれの作物においてもジノテフランの吸収量が多く、次いでメタラキシルM、プロシミドンの吸収が多い傾向にあった（表4.2.1）。作物中濃度を栽培期間中の作物可給性農薬濃度の幾何平均値（試験開始時と収穫時の幾何平均値）で除して得た移行係数もおおむね葉菜類で高くなる傾向が認められた（図4.2.4）。コマツナの移行係数を1として比較した場合、他の葉菜類に比べて6種の農薬成分の移行が多く、log Powの値に左右されにくい傾向があった。また、ニンジン、根ともにlog Powが大きいトルクロホスメチルの移行係数が他の作物に比べて数倍高くなった（図4.2.5）。

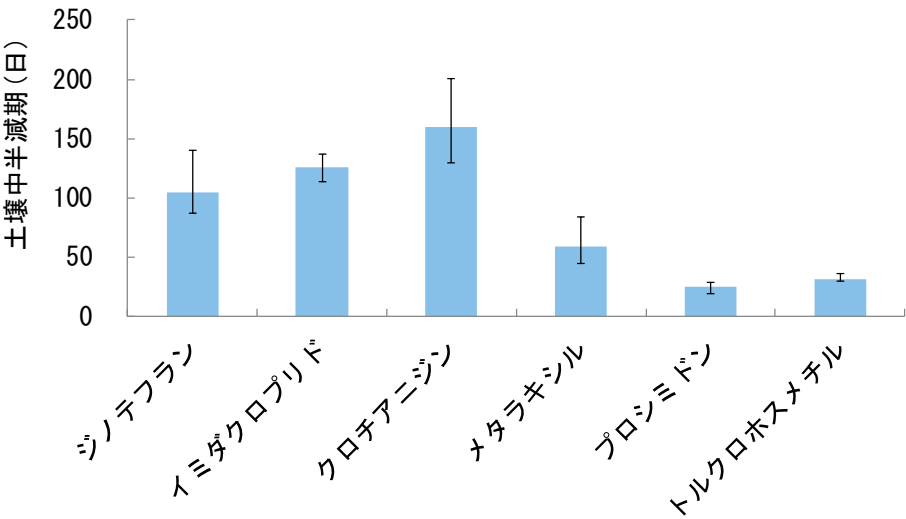


図4.2.3 水抽出により得た作物可給性農薬の土壌中半減期(冬作)

表4.2.1 8種野菜における土壌残留農薬の吸収量

	葉菜類								根菜類	
	コマツナ	ホウレンソウ	シュンギク	葉ニンニク	リーフレタス	ダイコン (ぬき菜)	カブ (葉)	ニンジン (葉)	カブ (根)	ニンジン (根)
ジノテフラン	0.50	0.58	0.41	1.02	0.42	0.40	0.36	1.13	0.13	0.67
イミダクロプリド	0.19	0.17	0.15	0.10	0.07	0.10	0.06	0.18	0.03	0.05
クロチアニジン	0.18	0.29	0.15	0.13	0.05	0.09	0.16	0.09	0.05	0.04
メタラキシルM	0.40	0.13	0.33	0.02	0.07	0.50	0.26	0.02	0.20	0.06
プロシミドン	0.33	0.14	0.07	0.25	0.08	0.34	0.35	0.00	<0.01	0.04
トルクロホスメチル	<0.01	0.06	0.31	0.02	0.03	<0.01	<0.01	0.37	<0.01	0.50

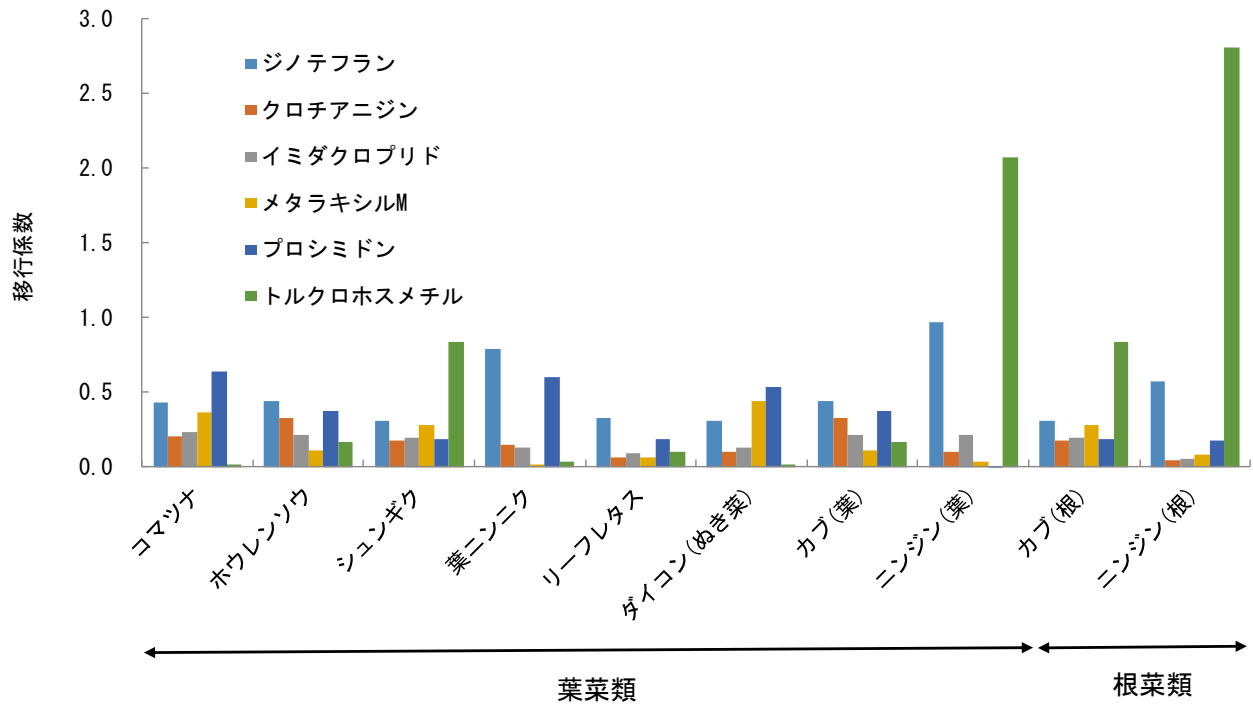


図4.2.4 8種野菜の移行係数

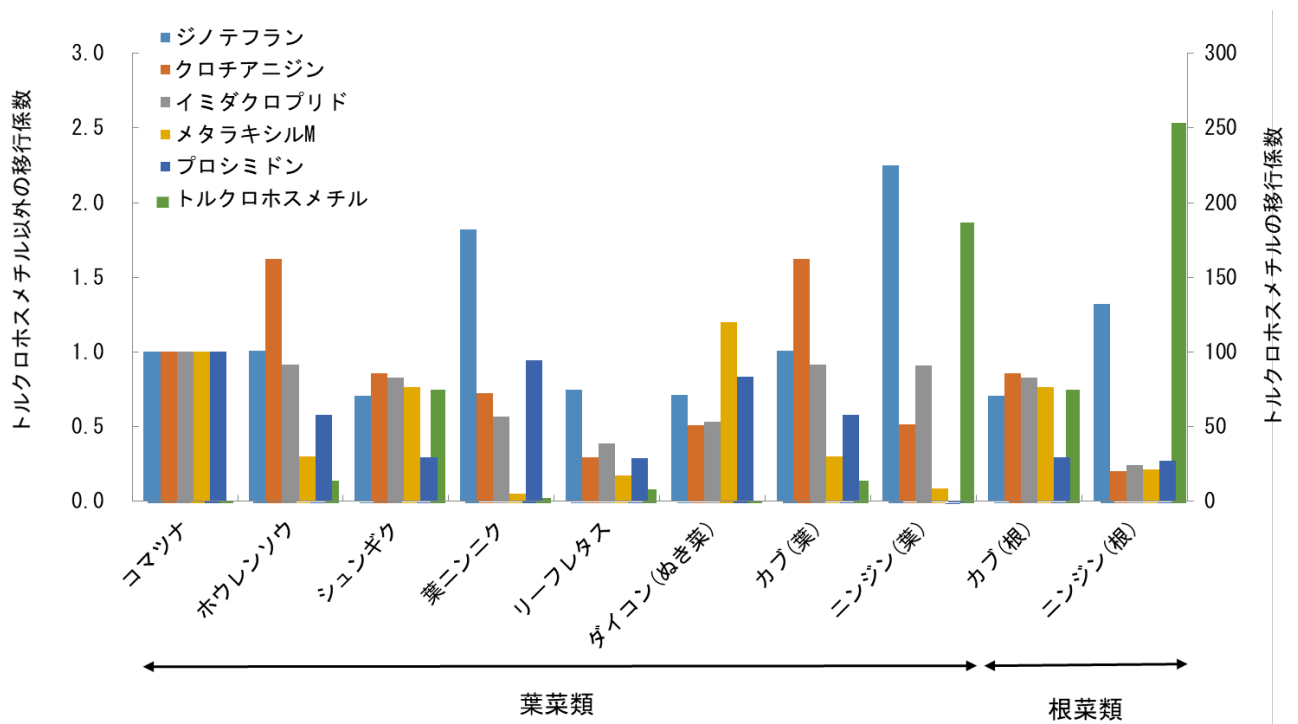


図4.2.5 8種野菜の移行係数(コマツナを1とした場合)

作物を栽培する際、栽培時期により作物の生育速度は大きく異なることから、3月(春作)、5月(初夏作)、9月(秋作)、10月(冬作)にコマツナをは種し、後作残留の季節間差について検討した。各季節における全調査期間中に土壌中濃度は、トンネル栽培をしていた冬作ではいずれの成分も他の季節と比較して緩やかに減少した。トンネル栽培をしていたこと、降雨量が少なかったことが要因と考えられ、土壌中の残留濃度が降雨量に影響されることが示唆された。春作、初夏作、秋作においては、ジノテフラン、イミダクロプリド、クロチアニジ、メタラキシルMの4剤は、おおむね初夏作>春作>秋作の順に高い濃度で推移し、プロシミドンおよびトルクロホスメチルでは、その逆の傾向を示した。各成分における減少傾向は栽培時期に関係なく類似しており、試験終了時の残留濃度も同程度であった。また、Log Powが1.0以下のジノテフラン、イミダクロプリドおよびクロチアニジン、Log Powが3.0以上のプロシミドンおよびトルクロホスメチルで、それぞれ類似した減少傾向を示した(図4.2.6)。

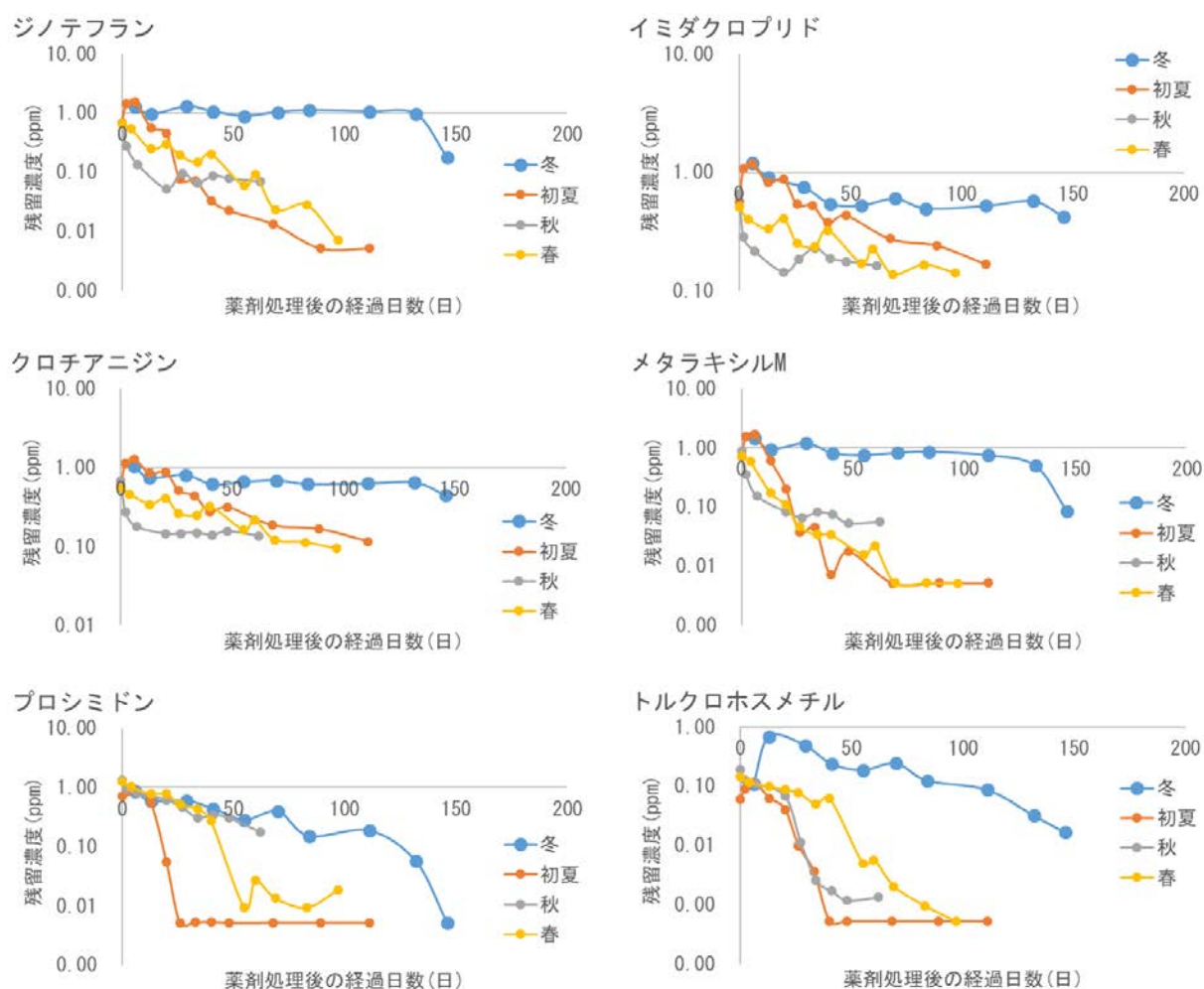


図4.2.6 栽培時期別土壌残留濃度の推移

次いで、コマツナ栽培期間での比較を試みた。各試験のコマツナ栽培期間中の平均気温は、冬<春<秋<初夏の順に高く、収穫までに要する日数は、平均気温の高い初夏作では33日、低い冬作で55日と最も長くなり、栽培期間に約2倍の差があった(表4.2.2、図4.2.7)。土壌中残留濃度への影響が大きいと考えられる薬剤処理後2週間の降雨量は、春作は小雨、初夏作では10mm以上の雨が定期的に降り、秋作では処理5日後に豪雨があった。冬作では小雨の日が連続してあった(表4.2.3)。

表4.2.2 コマツナの栽培時期別の生育日数と気温

栽培時期	春	初夏	秋	冬
コマツナ生育日数(日)	40	33	48	55
平均気温	14.2	23.5	17.0	8.9
最高気温	21.9	27.2	26.1	17.5
最低気温	7.9	20.1	7.7	3.0
コマツナ栽培期間中の総雨量(mm)	225	946	235	154

表4.2.3 薬剤処理後の降雨量比較(mm)

処理後経過日数(日)	春	初夏	秋	冬
0	0.0	52.0	7.0	3.8
1	0.0	2.5	8.5	5.8
2	0.5	0.0	4.5	5.8
3	0.0	0.0	0.0	0.0
4	0.5	0.0	3.0	5.8
5	14.5	0.0	106.0	3.8
6	0.0	10.5	0.0	5.8
7	39.0	6.5	0.0	3.8
8	0.5	0.0	0.0	7.5
9	0.0	34.5	19.0	0.0
10	0.0	0.0	4.0	0.0
11	0.5	7.5	3.0	3.8
12	1.0	19.0	9.5	0.0
13	0.0	0.5	1.0	0.0
14	0.0	0.0	0.0	14.5
15	0.0	0.0	3.5	0.0
16	9.0	1.0	9.0	0.0
17	0.5	0.0	0.0	0.0
18	0.0	0.0	0.0	7.5
19	0.0	9.5	0.0	0.0
20	0.0	53.0	0.0	0.0
21	0.0	100.0	0.0	0.0
22	0.0	0.5	0.0	13.5
23	0.0	0.0	0.0	3.5
24	0.0	15.0	0.0	0.0
25	0.0	0.5	0.0	0.0
26	0.0	0.0	0.0	1.0
27	19.0	0.5	0.0	0.0
28	0.0	0.0	6.0	3.0
29	0.0	0.0	0.0	0.0
30	0.0	87.0	0.0	0.0

水抽出された農薬成分の土壌中半減期は、気温の低い冬作で長く、気温の高い初夏作で短く、春作と秋作は同程度となる傾向が認められた(図4.2.8)。一方、コマツナにおいて吸収される農薬成分は、いずれの成分も春作で生育初期の吸収量が多くなったが、他の作型では同程度であった。しかし、収穫時期には、生育初期における農薬吸収量差の影響はなくほぼ一定となり、栽培時期による差は認められなかった(図4.2.9)。

コマツナにおける作物への移行係数は、春作で大きく、次いで初夏作または秋作となった(図4.2.10)。土壌中の残留濃度は前述のとおり冬作で最も高く推移したが、コマツナへの移行係数は小さくなった。

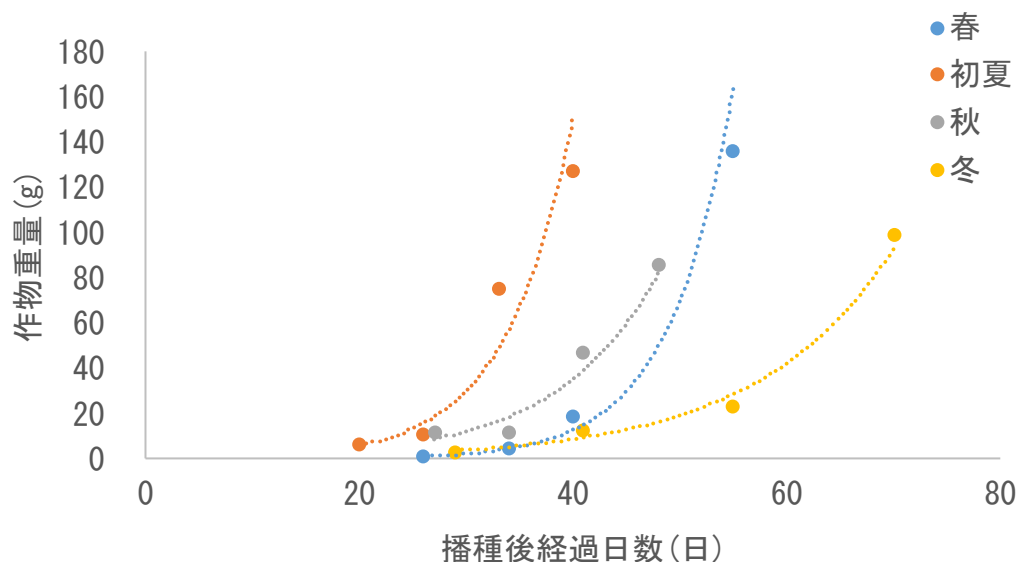


図4.2.7 栽培時期別にみたコマツナの作物重量変化

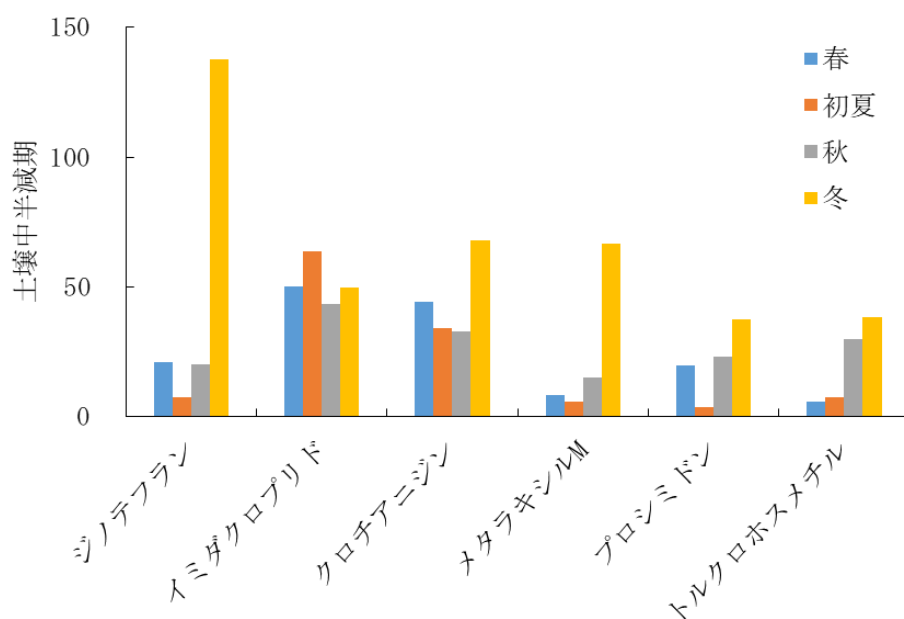


図4.2.8 コマツナ栽培期間の水抽出農薬における土壌中半減期の季節間差

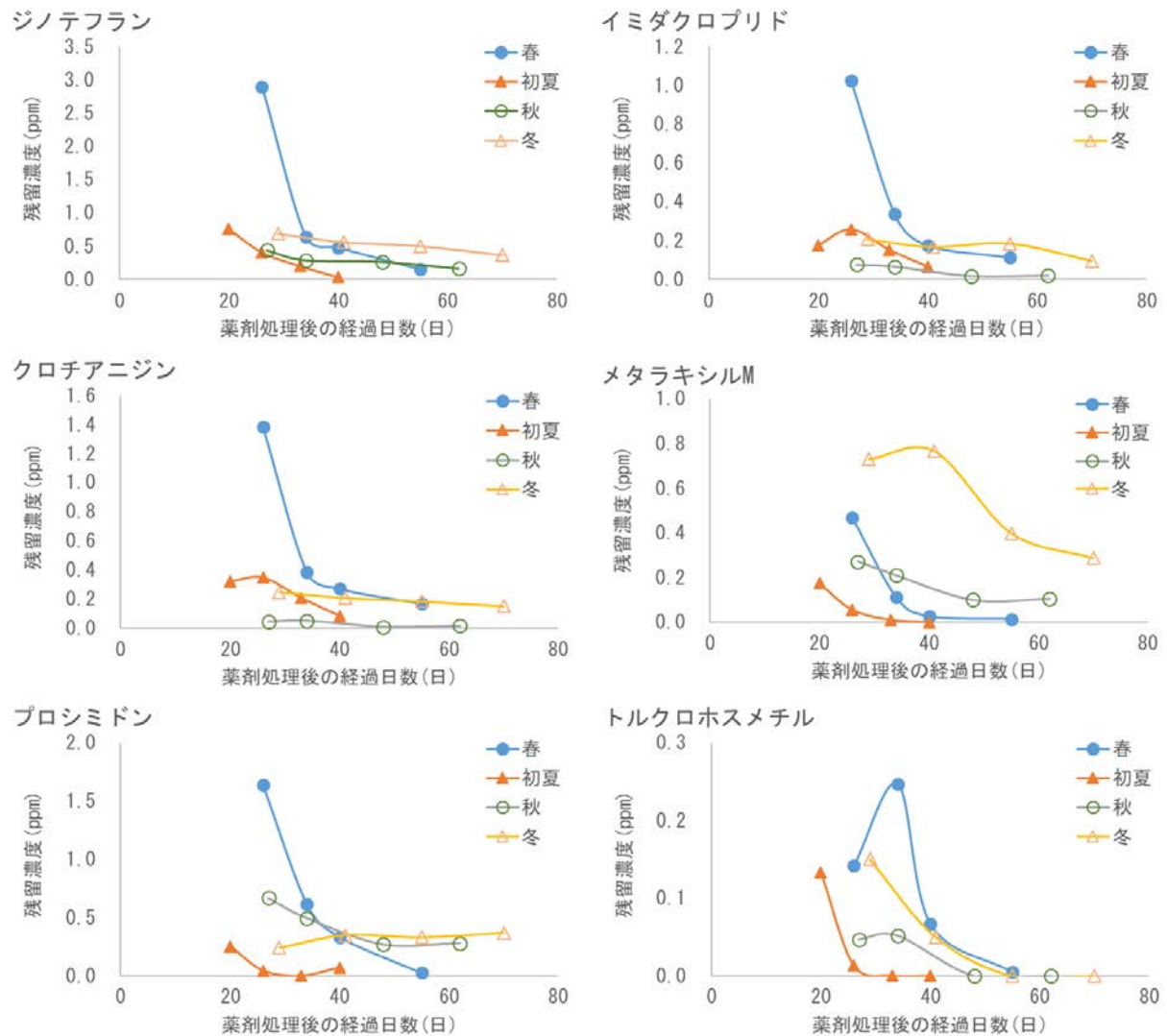


図4.2.9 栽培時期別コマツナの残留濃度推移

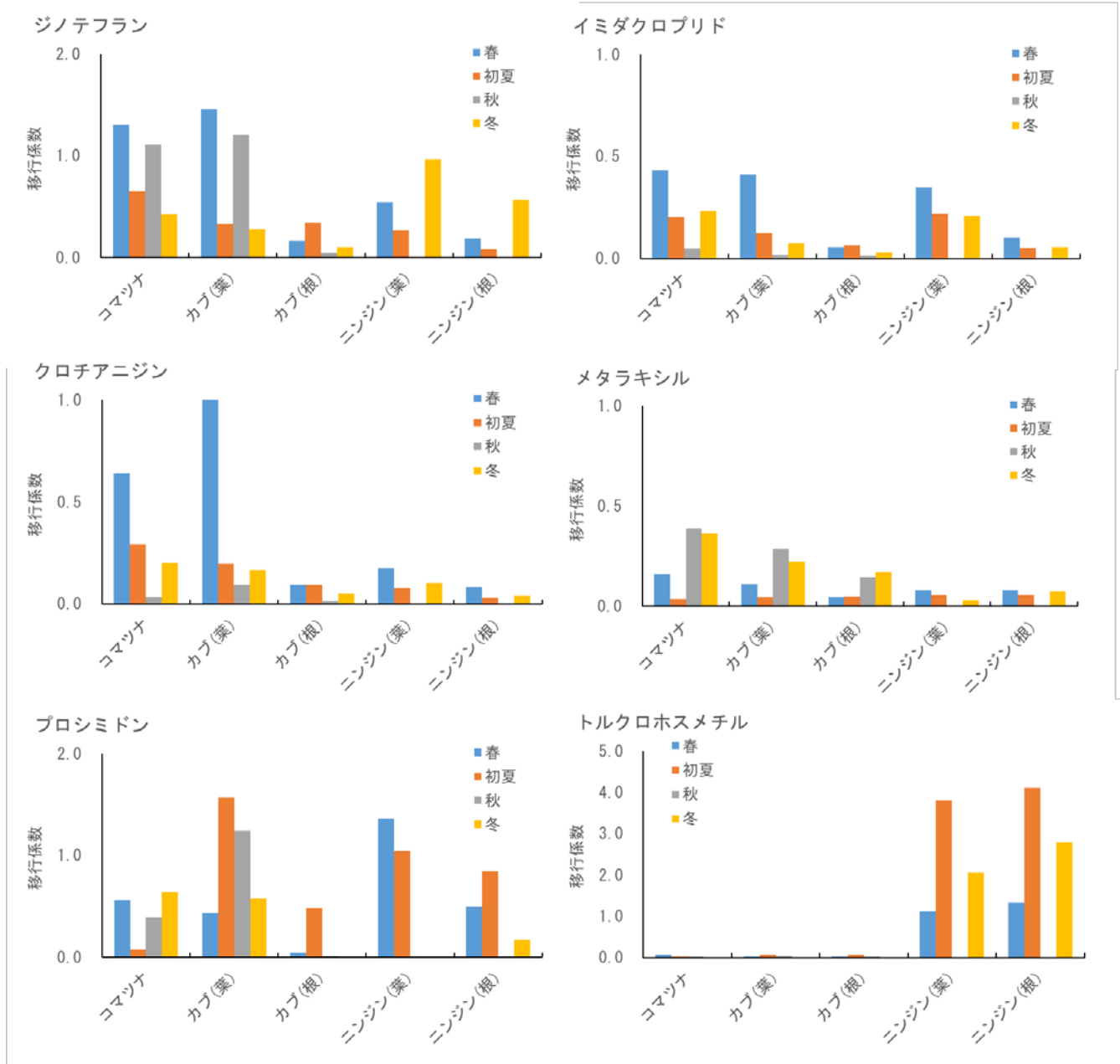


図4.2.10 栽培時期と作物への移行係数

以上より、収穫適期の農薬吸収に関する作物間差は、コマツナ、ホウレンソウ、シュンギクなどの葉菜類で高くなる傾向があった。特にコマツナでは、他の葉菜類に比べて、log Powの値に左右されにくい傾向があったことから、後作残留の試験作物として適していると考えられた。

水抽出された農薬成分の土壌中半減期は、気温の低い冬作で長く、気温の高い初夏作で短く、春作と秋作は同程度となる傾向が認められた。一方、コマツナへの移行係数は、春作で大きく、次いで初夏作または秋作となった。冬作の土壌中に長く残留した場合に、作物中への吸収移行も多くなることが想定されたが、必ずしもそうではなかった。したがって、土壌残留濃度に影響を与える要因として、栽培の時期はあまり大きな要因ではないが、栽培時期の降雨量が重要であることが明らかになった。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

これまで知見のなかった灰色低地土における後作物残留に関して、当初計画通り計8種の葉菜類と根菜類の農薬の作物吸収や環境挙動や関する基礎データが得られた。特に、計画を超える4作期の試験を行い、気温の低い冬作における土壌中半減期は他の3期に比べ長いこと、コマツナへの移行係数は春作や秋作より冬作では低く、冬作は必ずしもリスクが高い条件ではないことを明らかにした点は、意義深い。

(2) 環境政策への貢献

サブテーマ①～⑤の結果をふまえ登録制度の提案を行う課題構成にしているため、I. 成果の概要およびサブテーマ①の本項に記載している内容に準ずるが、サブテーマ②でも農薬登録時の後作物残留に関する試験条件に対し、供試土壌、供試作物、供試時期などの要件決定のための基礎データが得られた。

<行政が既に活用した成果>

サブテーマ①に準ずるが、サブテーマ②独自では、特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

農薬登録申請時に行う後作物残留に関する試験要件検討に活用する。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

特に記載すべき事項はない。

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) 清遠亜沙子、島本文子、森田展樹、清家伸康、日本農薬学会第43回大会(2018) 農薬の後作物残留リスク評価に関する研究第17報－灰色低地土ほ場における水抽出農薬の減衰傾向－
- 2) 島本文子、山本彩、清遠亜沙子、森田展樹、清家伸康、日本農薬学会第45回大会(2020) 農薬の後作物残留リスク評価に関する研究第25報－灰色低地土ほ場における土壌中農薬の挙動と作物へ

の移行ー

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Motoki, Y., Iwafune, T., Seike, N., Otani, T., and Akiyama, Y. J. Pestic. Sci, (2015)
- 2) 農薬ハンドブック2016年版, 一般社団法人日本植物防疫協会

Ⅱ－３ 砂丘未熟土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究

徳島県立農林水産総合技術支援センター 田中 昭人

矢野 景子（平成30～令和元年度）

谷 博（平成29～平成30年度）

大黒 香奈美（平成29～平成30年度）

亀代 美香（平成30年度）

平成29年度～令和元年度研究経費（累計額）：8,580千円（研究経費は間接経費を含む）

（平成29年度：2,860千円、平成30年度：2,860千円、令和元年度：2,860千円）

【要旨】

環境大臣が定める農薬登録保留基準を満たし農薬登録されているにもかかわらず、当該作物の栽培で適切に使用された農薬が収穫後の土壌に残留し、次作の作物に移行する（農薬の後作物残留）事例が報告されている。そこで、「農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度の提案」を行ううえで必要な新たな後作物残留試験を実施すべきか否かの最適なトリガー、農薬の土壌残留性と作物移行性を考慮した試験を実施するための適切な諸条件（季節、土壌種、作物種等）を提案する必要がある。

本サブテーマでは、砂丘未熟土において、土壌中に残留した農薬および水抽出された農薬の経時的変化を明らかにし、また、農薬吸収に関する作物間差（コマツナ等の葉菜類、栽培期間の長短のある根菜等）を明らかにした。さらに、栽培時期により生育期間が異なることから、春作、初夏作、秋作での農薬の作物吸収の季節間差（コマツナ等の葉菜類、カブ等の根菜類）を調査した。

本サブテーマで得られた農薬の土壌濃度の推移と作物移行性による結果から、他の土壌種と比較して外的要因（本サブテーマでは主に降雨）の影響を大きく受けることがわかった。このことから、新たな後作物残留試験を実施すべきか否かの最適なトリガーを設定するうえでの指標となる。

【キーワード】

後作物残留、砂丘未熟土、作物移行、水抽出、オクタノール・水分配係数

1. はじめに

食品衛生法における残留農薬基準値を超過する要因の一つとして、前作に使用した農薬が土壌に残留し、次の作物が吸収することで起きる、いわゆる後作物残留があげられる。食品衛生法における残留基準値を超過した場合、産地では農作物の出荷停止や基準値を超過した農作物の回収等の緊急対応を余儀なくされ、風評被害が生じれば、極めて大きな経済的損失を被ることになる。我が国では、農薬の土壌中半減期が180日を超える場合には登録が保留され、100日を超える場合には、根菜類を含む2作物を用いた後作物残留試験の成績が農薬登録申請時に必要とされているが、後作物残留の問題は依然残されている。したがって、後作物残留を未然に防ぐためには、現在の後作物残留試験では不十分と言わざるを得ない。土壌の種類と後作物残留に関する科学的知見は少なく、農薬の環境挙動や作物吸収に関する基礎データがないことから生産現場では、問題が生じた際の対処方法に苦慮している。そこで、最新の科学的知見に基づく後作物残留リスクが高い農薬を選定するための評価法や、農業生産現場における実効性の高い管理技術開発が望まれている。

2. 研究開発目的

本サブテーマでは、農薬の後作物残留を未然に防ぐための新たな登録制度、特に後作物残留試験条件を提案することを目標とし、砂丘未熟土ほ場において、農薬吸収の作物間差（主にコマツナ等の葉菜類、栽培期間の長短のある根菜）を明らかにするとともに、3作期（春作、初夏作、秋作）で試験を行い、農薬の土壌中濃度変動や作物吸収の季節間差を解明する。さらに、シミュレーションモデルの検証データ

とすることを目的とした。

3. 研究開発方法

徳島県立農林水産総合技術支援センター（徳島県名西郡石井町）内の砂丘未熟土ほ場（有機炭素含量0.01%）を用いて、春作（2019年3月14日播種）、初夏作（2018年5月29日播種）、秋作（2017年9月11日播種）の異なる栽培時期に試験を実施した。土壌表面にオクタノール・水分配係数（ $\log Pow$ ）が異なる農薬（表3.3.1）を土壌中濃度が1mg/kg-乾重（トルクロホスメチルは5mg/kg-乾重）となるようにジョーロを用いて散布（1L/m²）した。30分～1時間程度土壌を乾燥させた後、耕耘機で土壌を耕起（耕起深約7～8cm）した（図3.3.1）。耕耘後、秋作にはコマツナ、小カブ、ニンジン、ホウレンソウ、シュンギク、ネギを栽培（表3.3.2）し、春作、初夏作にはコマツナ、小カブ、ニンジンを栽培した。

また、農薬を散布し作物を栽培しない無栽培区をそれぞれの試験期間に設けた。ほ場は、乱数表に基づいてランダムに配置し、各区画は3区設けた（図3.3.2）。その後、各作物（収穫適期を含む4時期）および土壌を経時的（春作：0、6、13、21、28、35、42、56、69、89、104、124、165日後、初夏作：0、7、15、21、28、34、43、50、63、83、104、127日後、秋作：0、3、8、14、22、29、35、42、49、63、77、98、120、142日後）に採取し、土壌中濃度の推移と作物残留



図3.3.1 耕耘の様子

濃度を調査した。なお、土壌は0～10cm深および10～20cm深の土壌を無栽培区（各区4点づつ）から直径5cmの円柱試料採取器（図3.3.3）を用いて採取した。

採取した土壌試料は、固液比1:5となるように0.01M 塩化カルシウム水溶液を加え、16時間振とうし、遠心分離（2000rpm、20分間）後上清を水抽出液とした。さらに、水抽出後の土壌にアセトンを加え、20分間振とうし、遠心分離（2000rpm、20分間）を行い、上清をとった。この操作を3回繰り返してアセトン抽出液とした。水抽出液およびアセトン抽出液をそれぞれ多孔性ケイソウ土カラム、PSAミニカラムを用いて精製した後、GC-MS、LC-MS/MSを用いて各農薬の水抽出濃度および土壌中濃度（水抽出濃度＋アセトン抽出濃度）を求めた（図3.3.4）。また、作物試料はQuEChERS法により抽出を行い、精製後GC-MS、LC-MS/MSを用いて作物中の農薬残留量を求めた（図3.3.5）。

表3.3.1 供試農薬

製剤名	有効成分	$\log Pow$	含有量 (%)	土壌中濃度 (mg/kg) 設定値
スタークル顆粒水溶剤	ジノテフラン	-0.549	20	1
ダントツ水溶剤	クロチアニジン	0.7	16	1
リドミルゴールドMZ	メタラキシルM	1.71	3.8	1
スミレックス水和剤	プロシミドン	3.30	50	1
リゾレックス水和剤	トルクロホスメチル	4.56	50	5

表3.3.2 供試品種

作物名	品種名	播種方法	株間
コマツナ	よかった菜	シーダーテープ	5cm
小カブ	CRふじしろ	シーダーテープ	5cm
ニンジン	彩誉	シーダーテープ	5cm
ホウレンソウ	サマーズ	シーダーテープ	5cm
シュンギク	さとゆたか	シーダーテープ	5cm
ネギ	TN-23	定植	5cm

春作 (1×3m)

コマツナ3	小カブ1	ニンジン2	ニンジン1
無栽培区2	ニンジン3	無栽培区3	コマツナ2
小カブ2	コマツナ1	小カブ3	無栽培区1

初夏作 (1×3m)

コマツナ1	ニンジン2	無栽培区1	小カブ3
小カブ1	コマツナ3	ニンジン1	コマツナ2
無栽培区2	ニンジン3	無栽培区3	小カブ2

秋作 (1×3.5m)

無栽培1	ホウレンソウ2	コマツナ3	シュンギク3	コマツナ1	ネギ2	シュンギク2
小カブ3	シュンギク1	ネギ3	ホウレンソウ1	ニンジン2	小カブ2	無栽培2
ネギ1	コマツナ2	小カブ1	ニンジン1	無栽培3	ホウレンソウ3	ニンジン3

図3.3.2 各試験区の配置図



図3.3.3 円柱試料採取器

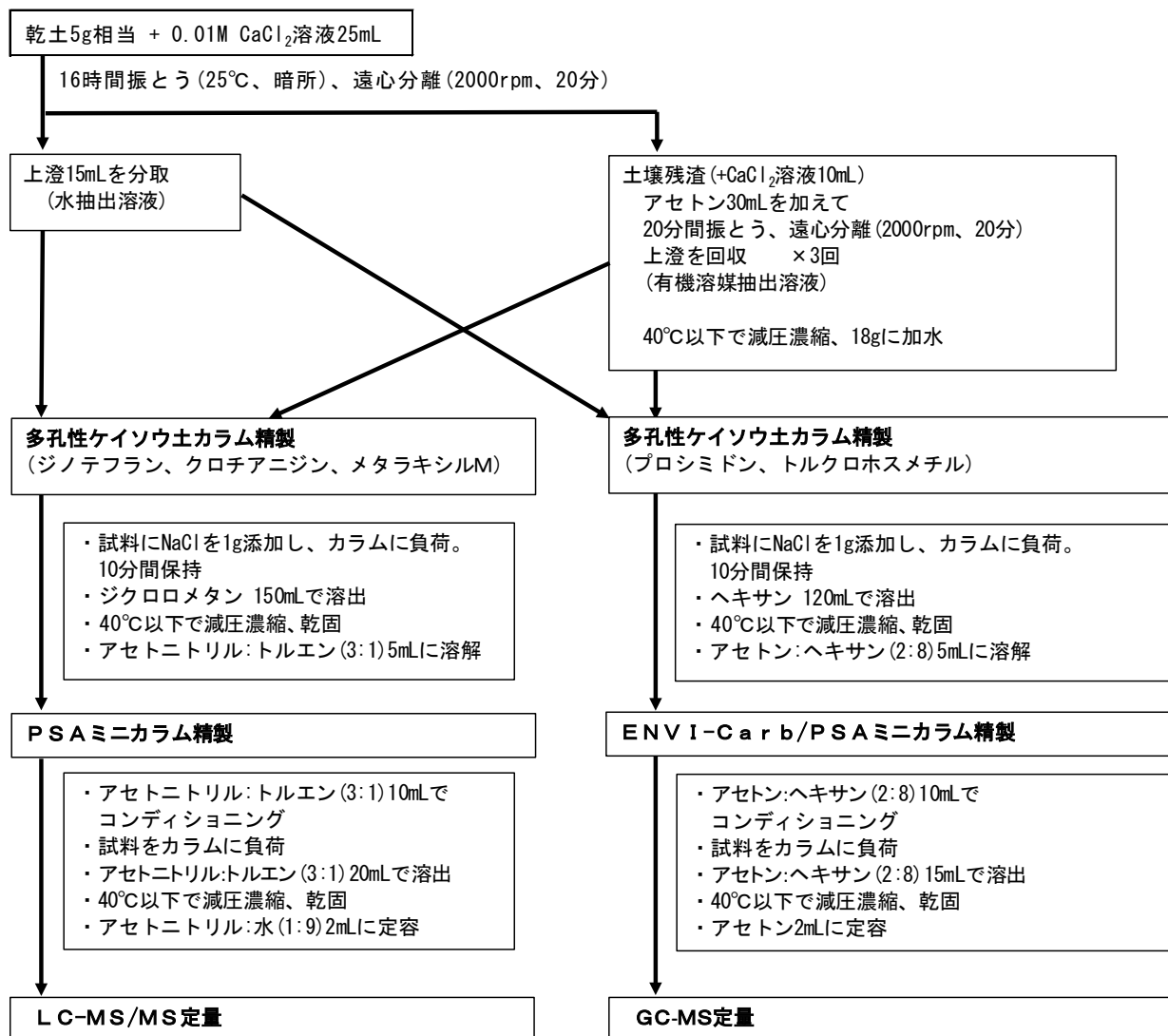


図3.3.4 土壌逐次抽出法

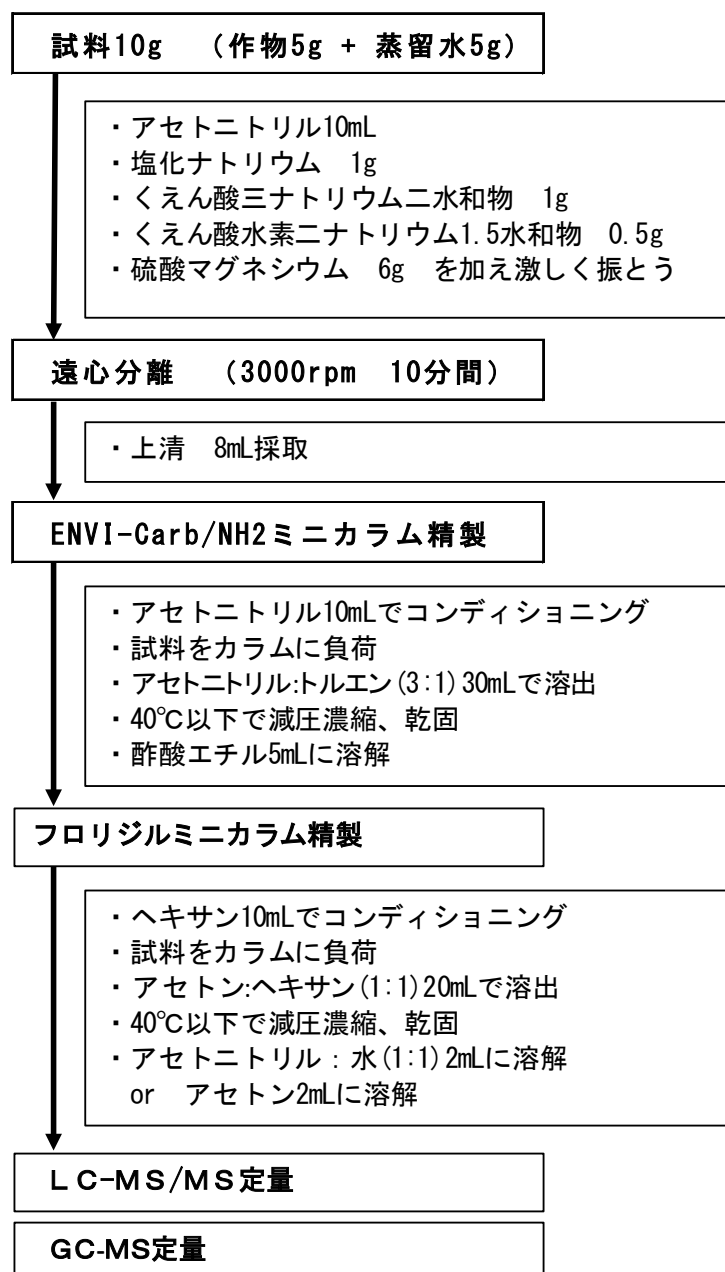


図3.3.5 作物分析法

4. 結果及び考察

散布直後(0日後)に得た各農薬の土壌中濃度(水抽出濃度+アセトン抽出濃度)は、設定濃度に対しジノテフラン 87~133%、クロチアニジン 58~110%、メタラキシルM 76~138%、プロシミドン 95~179%、トルクロホスメチル 79~126%であり、概ね設定どおりに試験を開始出来ていることを確認した。土壌(0~10cm深)の水抽出濃度は経時的に減少し(図4.3.1~図4.3.5)、その土壌中半減期(3区画の平均値)は、ジノテフラン 4.0~21.2日、クロチアニジン 6.6~31.9日、メタラキシルM 6.0~19.5日、プロシミドン 22.5~31.8日、トルクロホスメチル 22.8~37.1日となった。ジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルMの3剤については、春作の土壌中半減期が最も長くなり時期による変動が大きかった。プロシミドンは、時期による変動が小さく、トルクロホスメチルは秋作が最も長くなった(図4.3.6)。土壌吸着係数(K_d)の経時変化については、経過日数とともに吸着が強くなることが認められ

た（図4.3.7）。これは、他の時期においても同様の傾向が見られた。

0～10cm深（上層）から10～20cm深（下層）への移行については、処理直後ではすべての時期において農薬が検出されず、耕耘による下層との混和はなかった。春作では、処理6日後にジノテフラン、クロチアニジンの下層への移行が確認された（図4.3.8）。初夏作では、処理7日後にジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルMが検出されたが、15日後には、すべての農薬で低い値となった（図4.3.9）。秋作では、処理3日後にジノテフランのみ検出されたものの、処理8日後には他の時期と比較してジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルMの土壤中濃度が低く、プロシミドンの移行が確認された（図4.3.10）。これは、初夏作では、処理後1週目に35.5mmの降雨（図4.3.11、図4.3.12）があり、トルクロホスメチルを除く農薬が下層へ移行し、さらに処理2週目に60.5mmの降雨によりさらに下層（表層から20cm以上）へと移行したものと考えられる。同様に秋作では、処理1日後に10mmの降雨により、下層へ移行し、その後の台風に伴う降雨（154mm）により、log P_{ow} の低いジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルMはさらに下層へと移行したものと考えられる。逆に、春作では、処理後1週目に26.5mmの降雨があったものの、2週目、3週目の降雨が他の時期と比較して少なく、土壤中の農薬が表層へ留まったものと考えられた。

このことから、砂丘未熟土における土壤中の農薬はlog P_{ow} の低いものほど降雨の影響を大きく受け、その結果、土壌中半減期が短くなるものと推察された。

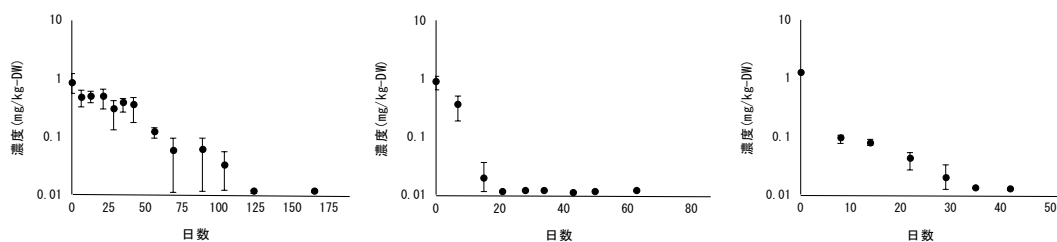


図4.3.1 水抽出濃度の推移（ジノテフラン）
（左：春作、中央：初夏作、右：秋作）

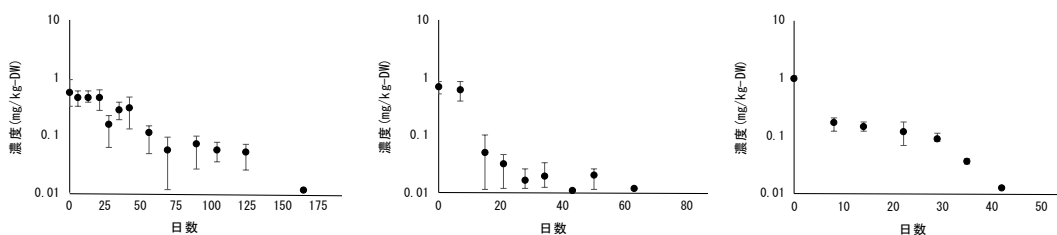


図4.3.2 水抽出濃度の推移（クロチアニジン）
（左：春作、中央：初夏作、右：秋作）

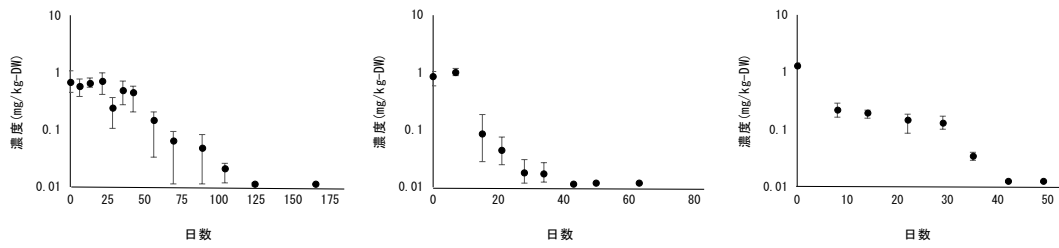


図4.3.3 水抽出濃度の推移（メタラキシルM）
(左:春作、中央:初夏作、右:秋作)

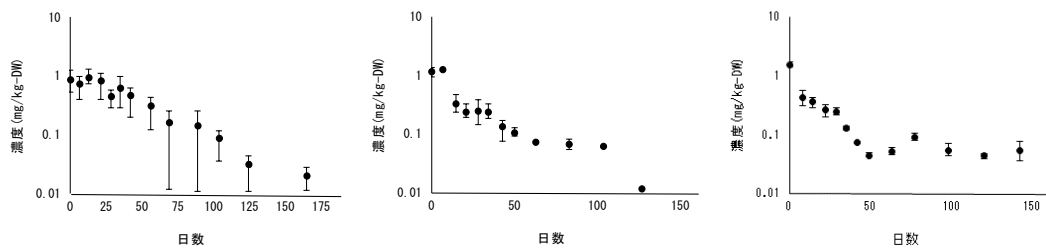


図4.3.4 水抽出濃度の推移（プロシミドン）
(左:春作、中央:初夏作、右:秋作)

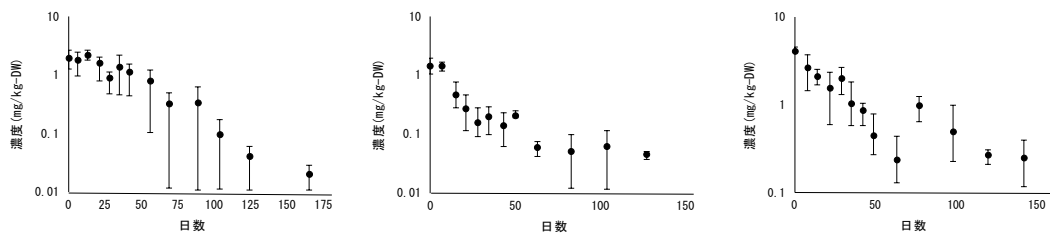


図4.3.5 水抽出濃度の推移（トルクロホスメチル）
(左:春作、中央:初夏作、右:秋作)

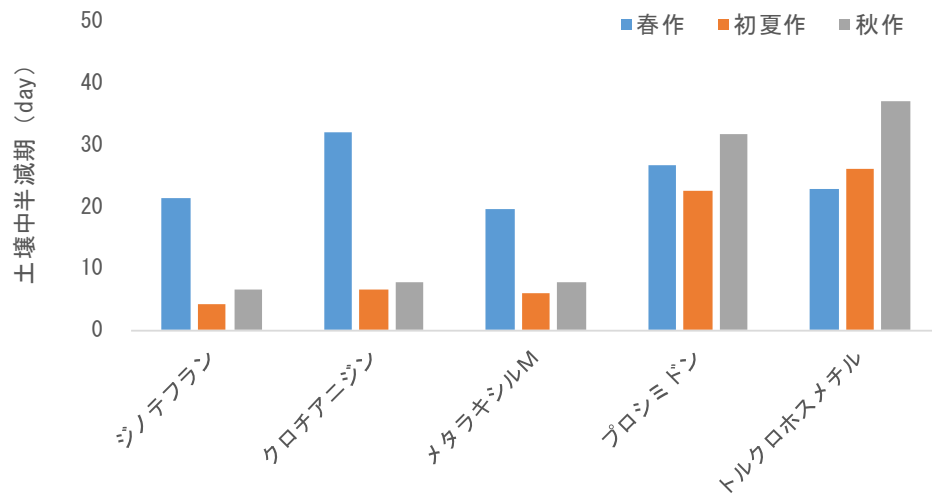
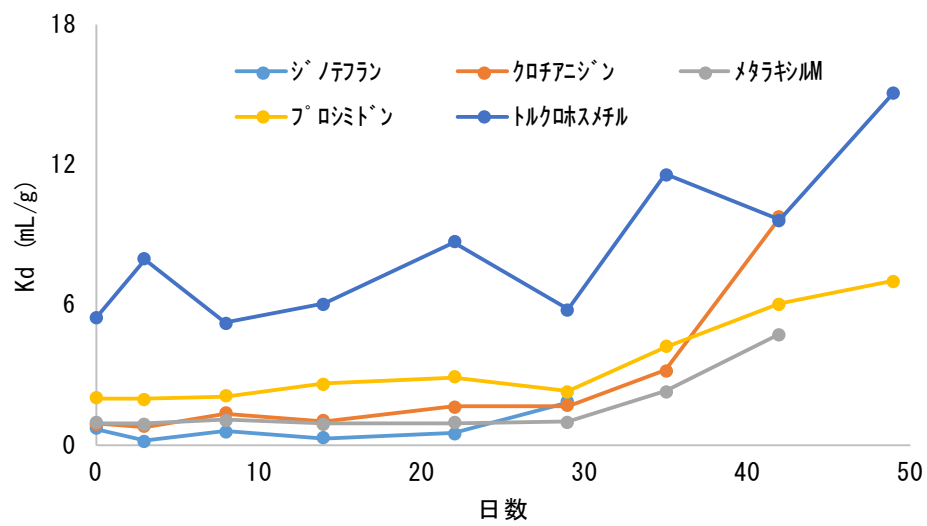


図4.3.6 水抽出により得た土壌中半減期

図4.3.7 土壌吸着係数 (K_d) の経時変化(秋作)

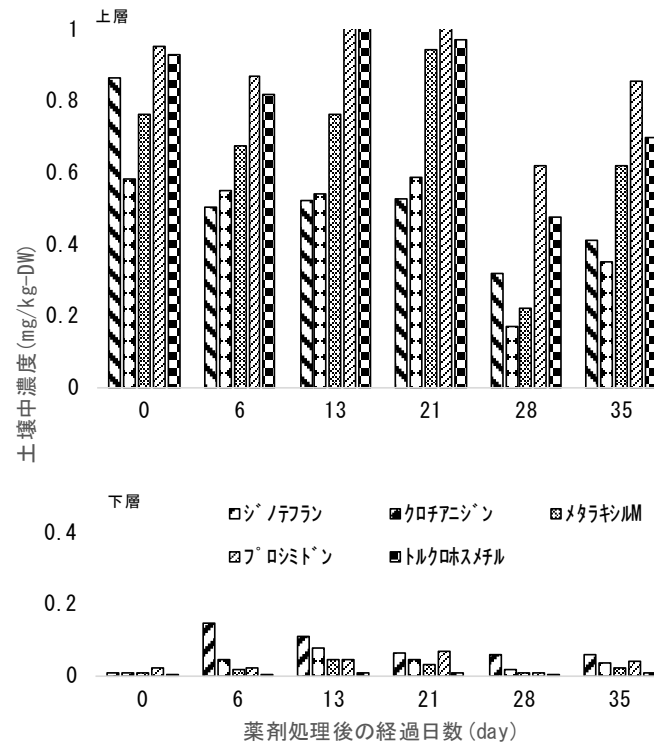


図4.3.8 下層方向への土壤中農薬の移行(春作)

*トルクロホスメチルは1/5として表示

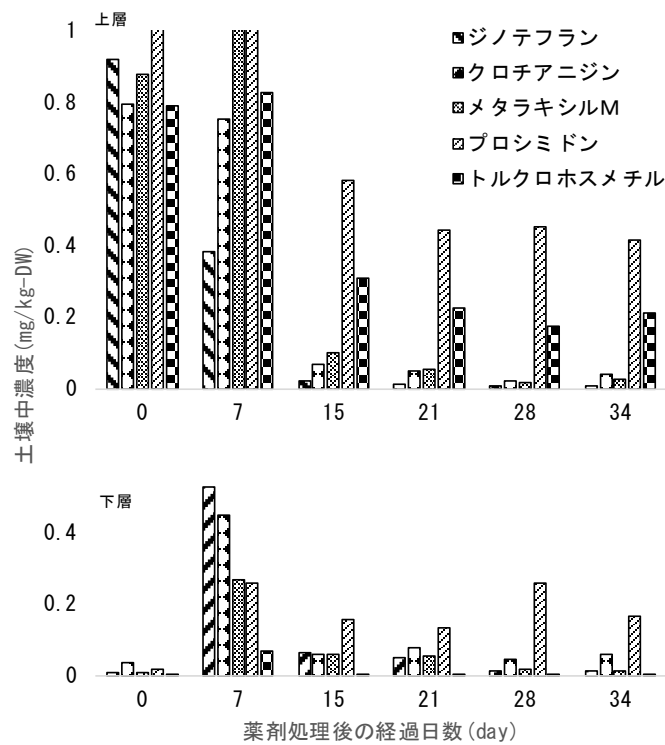


図4.3.9 下層方向への土壤中農薬の移行(初夏作)

*トルクロホスメチルは1/5として表示

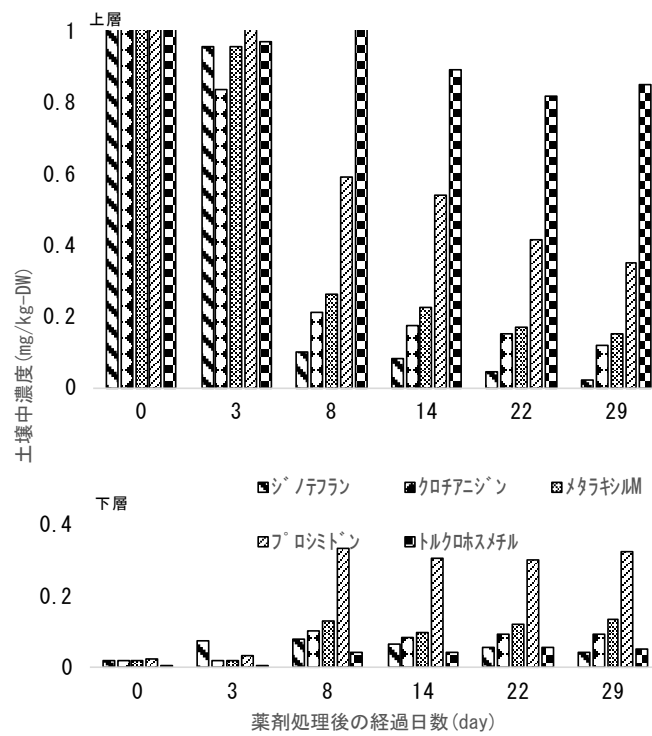


図4.3.10 下層方向への土壌中農薬の移行(秋作)

*トルクロホスメチルは1/5として表示

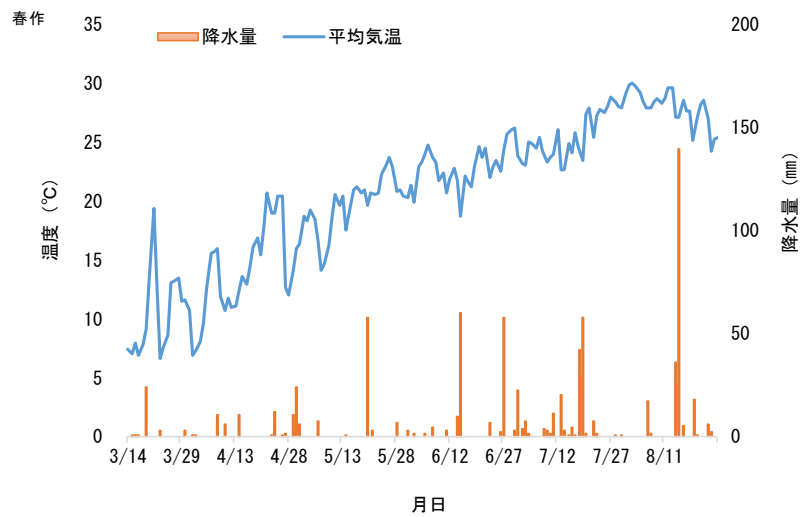


図4.3.11 試験期間中の気温と降水量

*センター内気象観測デー

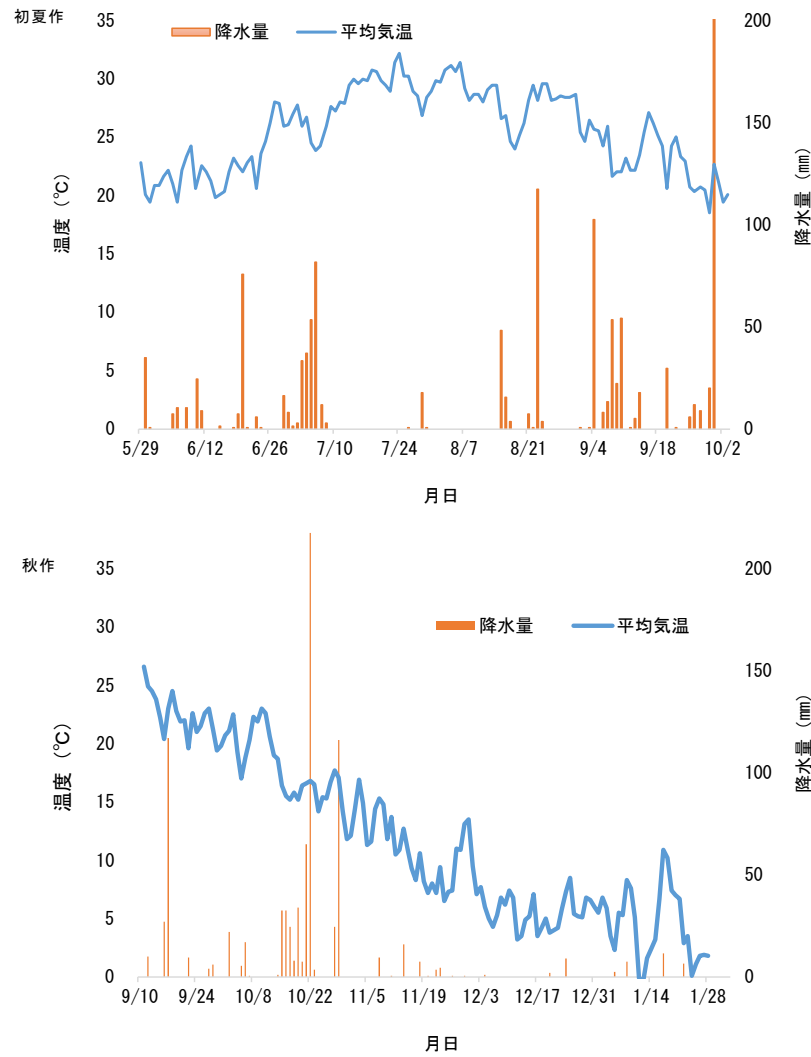


図4.3.11 続き 試験期間中の気温と降水量

*センター内気象観測データ

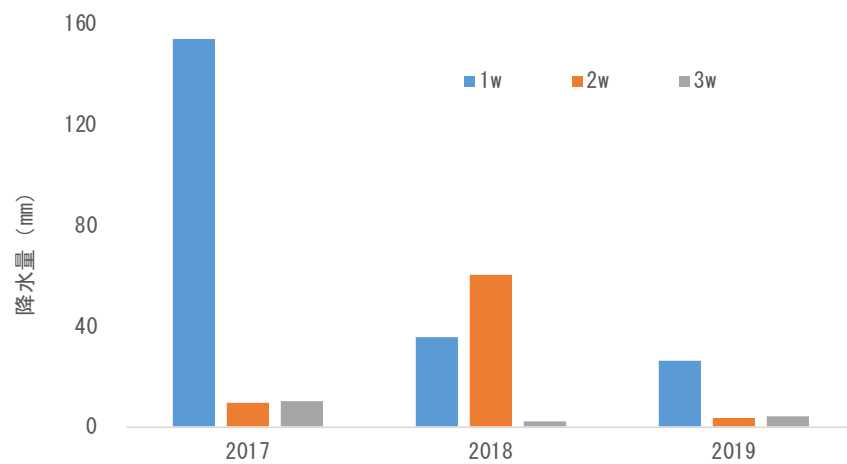


図4.3.12 栽培初期の降水量

一方、収穫適期におけるコマツナ中の農薬残留量は、ジノテフラン(春作:0.78mg/kg-DW、初夏作:0.39、秋作:<0.01)、クロチアニジン(春作:0.22、初夏作:0.42、秋作:0.02)、メタラキシルM(春作:0.17、初夏作:0.37、秋作:0.01)、プロシミドン(春作:0.52、初夏作:0.58、秋作:0.17)、トルクロホスメチル(春作:0.10、初夏作:0.02、秋作:0.02)となり春作、初夏作で高い傾向となった(図4.3.13)。初期の台風の影響で栽培初期に根圏から農薬が消失した秋作ではプロシミドンを除いて定量限界程度の検出であった。log Powの高いトルクロホスメチルは、降雨の影響をあまり受けず土壌中濃度は保たれていたが、コマツナの残留量はわずかであった。

収穫適期の農薬吸収に関する作物間差では、収穫適期におけるコマツナの残留濃度を1.0とした場合、秋作においては、小カブ(葉)、シュンギク、ネギで高くなる傾向がみられた。春作、初夏作においては、小カブ(葉)からは、ジノテフラン、クロチアニジン、プロシミドンが高くなる傾向がみられた。ニンジン(根)からは、トルクロホスメチルが栽培時期に関係なく高くなる傾向がみられた(図4.3.14~図4.3.16)。また、プロシミドンは、小カブ(根)からの検出が少ないが、すべての作物から検出が認められた。

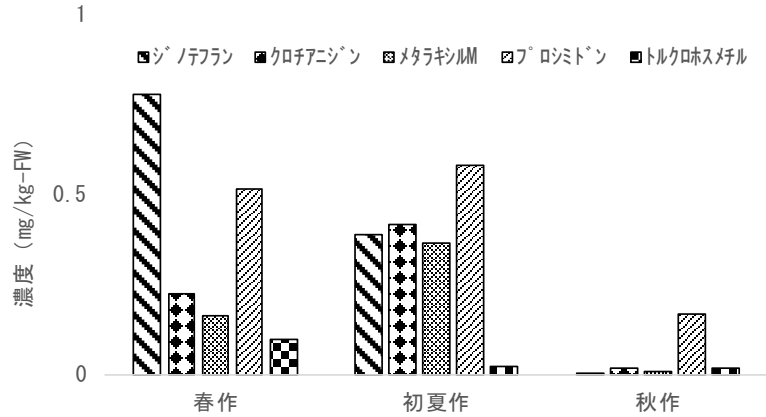


図4.3.13 コマツナ中の農薬残留量

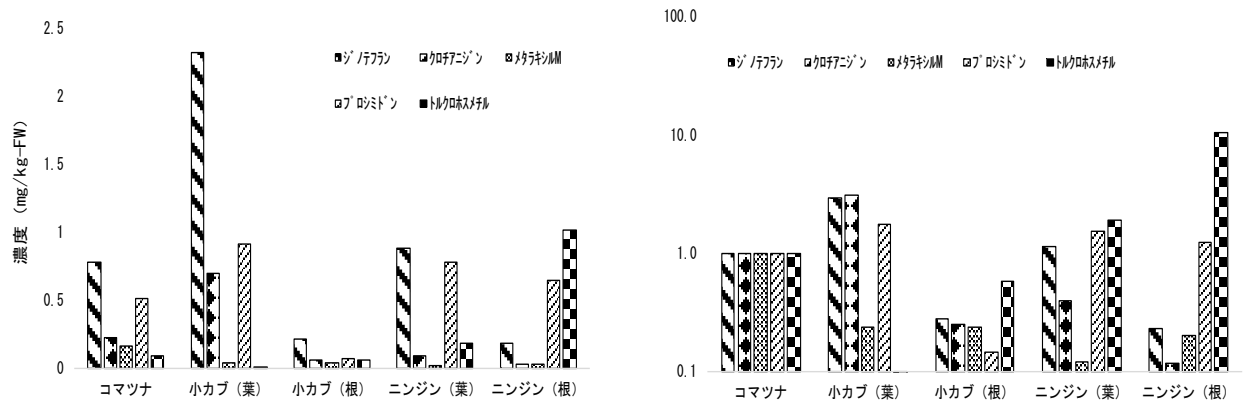


図4.3.14 収穫適期における各作物中の農薬残留量(左)とコマツナ中の濃度を1とした場合の相対値(右)(春作)

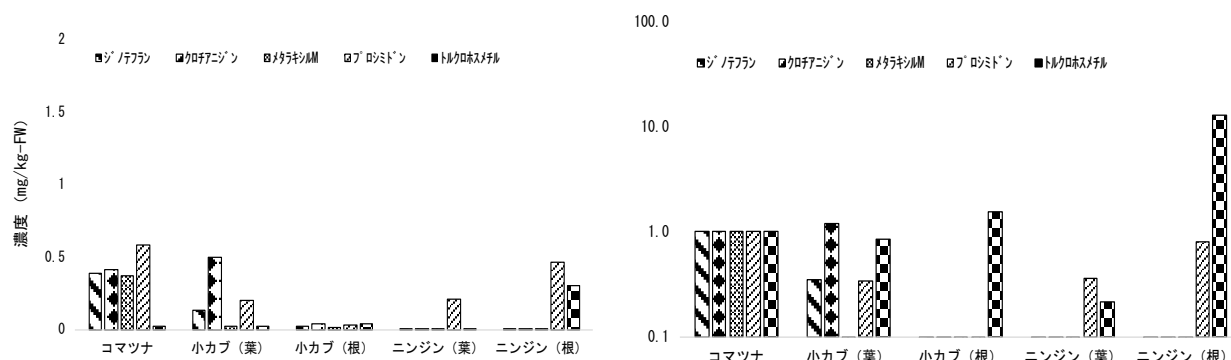


図4. 3. 15 収穫適期における各作物中の農薬残留量(左)と
コマツナ中の濃度を1とした場合の相対値(右) (初夏作)

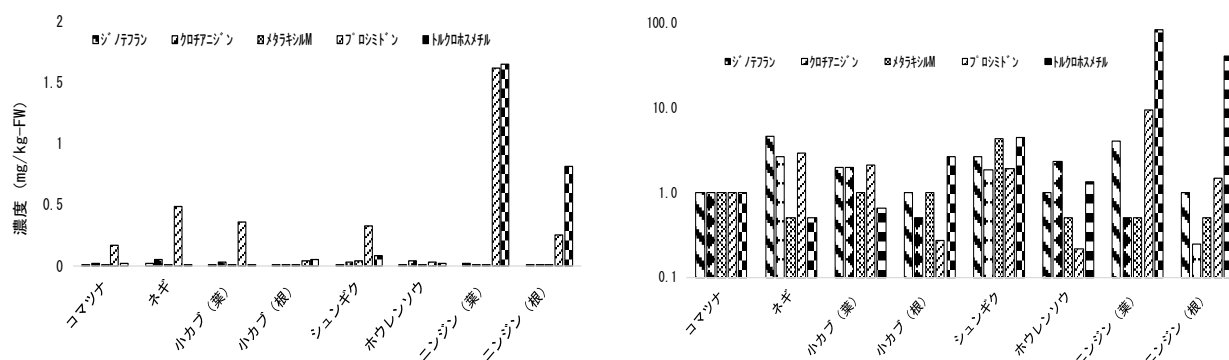


図4. 3. 16 収穫適期における各作物中の農薬残留量(左)と
コマツナ中の濃度を1とした場合の相対値(右) (秋作)

次に土壤中の水抽出濃度を用いて各作物への移行係数を算出した結果、春作、初夏作におけるコマツナの移行係数は、トルクロホスメチル以外で高い移行係数となった。秋作では、トルクロホスメチルに加えてジノテフランの移行係数が低くなったが、これは先の作物残留の項で述べたとおり栽培初期に根圏から農薬が消失したため植物体への移行が少なくなったものと考えられる。収穫適期の農薬吸収に関する作物間差では、収穫適期におけるコマツナの移行係数を1.0とした場合、春作において小カブ(葉)、ニンジン(葉)で高い移行係数となった。初夏作においては、小カブ(葉)で高い移行係数となった。秋作においては、コマツナ、ネギ、小カブ(葉)、シュンギクで高い移行係数となった。これらのことから、葉菜類での農薬の移行係数が高い傾向が認められた。また、小カブ(根)、ニンジン(根)でトルクロホスメチルが特異的に移行しており、log Powの高い農薬を評価するうえで根菜類を用いることで補足的に作物残留性を確認できるものと考えられる(図4. 3. 17～図4. 3. 19)。

以上により、有機炭素含量が極めて少ない砂丘未熟土においては降雨の影響を大きく受け、下層や水平方向への移動があり土壤中での評価が難しい場面があると思われる。

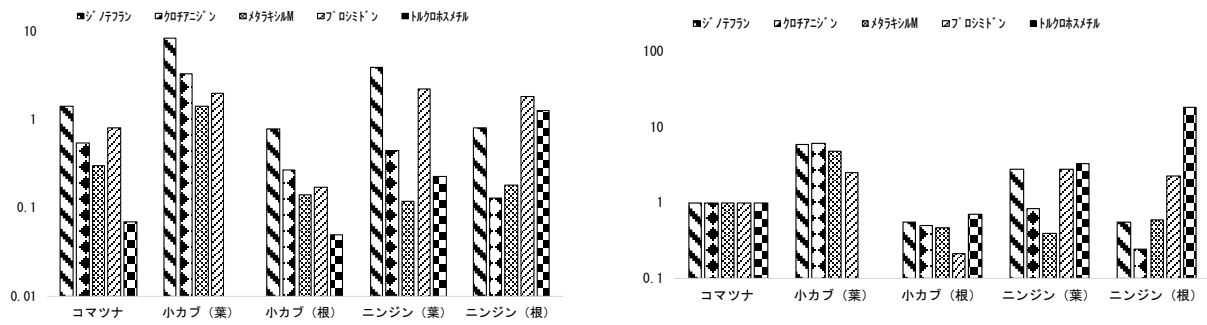


図4.3.17 収穫適期における各作物の農薬移行係数(左)と
コマツナ中の濃度を1とした場合の相対値(右)(春作)

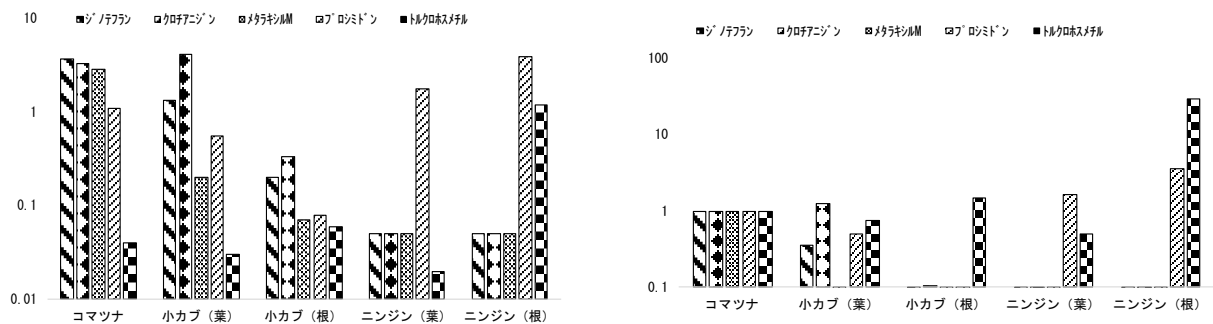


図4.3.18 収穫適期における各作物の農薬移行係数(左)と
コマツナ中の濃度を1とした場合の相対値(右)(初夏作)

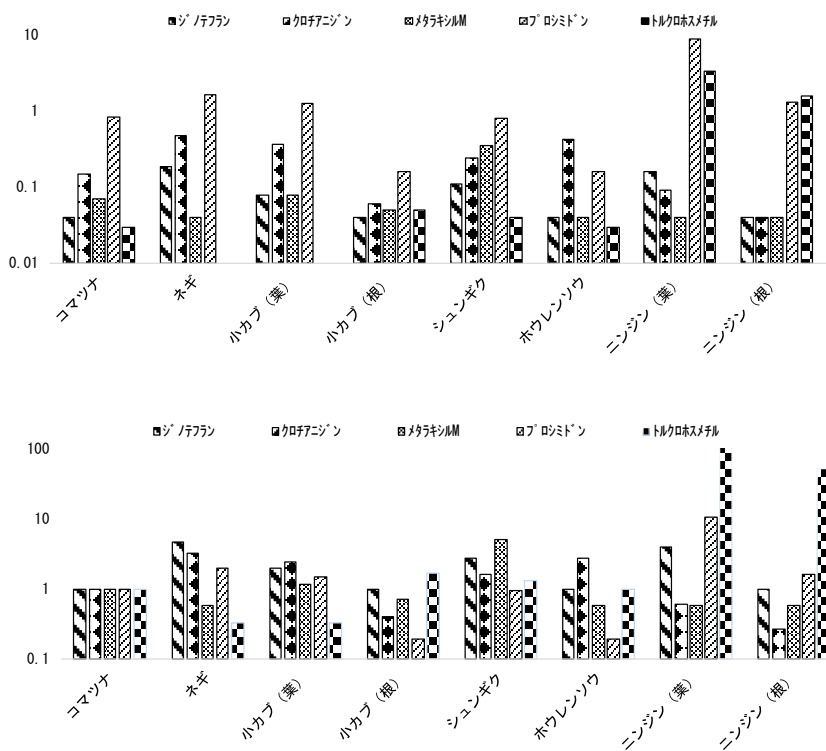


図4.3.19 収穫適期における
各作物の農薬移行係数(上)と
コマツナ中の濃度を1とした
場合の相対値(下)(秋作)

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

我が国の農薬登録申請時に行う後作物残留に関する試験では、農薬の土壌中半減期が180日を超える場合には登録が保留され、100日を超える場合には、根菜類を含む2作物（うち1作物は根菜）を供試することとなっているが、これらには十分な科学的裏付けが存在しない。そこで、砂丘未熟土ほ場において、当初計画通り計6種の葉菜類と根菜類の農薬の作物吸収等の実データに基づく試験条件を明らかにすることができた。特に、供試土壌種としては、降雨により作物可給性農薬が下方・水平移動しやすい砂丘未熟土では、十分な評価が難しいことを明らかにするなど、室内試験では明らかにできない実環境で生じる現象を確認できたことは科学的にも意義深い。

(2) 環境政策への貢献

サブテーマ①～⑤の結果をふまえ登録制度の提案を行う課題構成にしているため、I. 成果の概要およびサブテーマ①の本項に記載している内容に準ずるが、サブテーマ③でも農薬登録時の後作物残留に関する試験条件に対し、供試土壌、供試作物、供試時期などの要件決定のための基礎データが得られた。

<行政が既に活用した成果>

サブテーマ①に準ずるが、サブテーマ③独自では、特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

農薬登録申請時に行う後作物残留に関する試験要件検討に活用する。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

特に記載すべき事項はない。

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 田中昭人、大黒香奈美、谷博、清家伸康、日本農薬学会第43回大会（2018）、農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第18報 砂丘未熟土における水抽出農薬の減衰傾向
- 2) 田中昭人、矢野景子、清家伸康、日本農薬学会第45回大会（2020）、農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第24報 砂丘未熟土における土壌中農薬の挙動と作物への移行

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

特に記載すべき事項はない。

Ⅱ－４ 黄色土ほ場における農薬の後作物吸収に関する研究

兵庫県立農林水産技術総合センター

農業技術センター病害虫部 望月 証・富原 工弥・神頭 武嗣(平成29年度)・内橋 嘉一(平成30～令和元年度)

平成29～令和元年度研究経費(累計額)：10,920千円(研究経費は間接経費を含む)

(平成29年度：3,640千円、平成30年度：3,640千円、平成31年度：3,640千円)

【要旨】

環境大臣が定める農薬登録保留基準を満たし農薬登録されているにもかかわらず、当該作物の栽培で適切に使用された農薬が収穫後の土壌に残留し、次作の作物に移行する(農薬の後作物残留)事例が報告されている。そこで、「農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度の提案」を行ううえで必要な新たな後作物残留試験を実施すべきか否かの最適なトリガー、農薬の土壌残留性と作物移行性を考慮した試験を実施するための適切な諸条件(季節、土壌種、作物種等)を提案する必要がある。

本サブテーマでは、黄色土において、土壌中に残留した農薬および水抽出された農薬の経時的変化を明らかにし、また、農薬吸収に関する作物間差(コマツナ等の葉菜類、栽培期間の長短のある根菜等)を明らかにした。さらに、栽培時期により生育期間が異なることから、春作、初夏作、秋作での農薬の作物吸収の季節間差(コマツナ等の葉菜類、カブ等の根菜類)を調査した。

【キーワード】

農薬 後作物残留 黄色土 作物吸収 コマツナ

1. はじめに

食品衛生法における残留農薬基準値を超過する要因の一つとして、前作に使用した農薬が土壌に残留し、次の作物が吸収することで起きる、いわゆる後作物残留があげられる。食品衛生法における残留基準値を超過した場合、産地では農作物の出荷停止や基準値を超過した農作物の回収等の緊急対応を余儀なくされ、風評被害が生じれば、極めて大きな経済的損失を被ることになる。我が国では、農薬の土壌中半減期が180日を超える場合には登録が保留され、100日を超える場合には、根菜類を含む2作物を用いた後作物残留試験の成績が農薬登録申請時に必要とされているが、後作物残留の問題は依然残されている。したがって、後作物残留を未然に防ぐためには、現在の後作物残留試験では不十分と言わざるを得ない。土壌の種類と後作物残留に関する科学的知見は少なく、農薬の環境挙動や作物吸収に関する基礎データがないことから生産現場では、問題が生じた際の対処方法に苦慮している。そこで、最新の科学的知見に基づく後作物残留リスクが高い農薬を選定するための評価法や、農業生産現場における実効性の高い管理技術開発が望まれている。

2. 研究開発目的

本サブテーマでは、農薬の後作物残留を未然に防ぐための新たな登録制度、特に後作物残留試験条件を提案することを目標とし、黄色土ほ場において、農薬吸収の作物間差(主にコマツナ等の葉菜類、栽培期間の長短のある根菜)を明らかにするとともに、3作期(春作、初夏作、秋作)で試験を行い、農薬の土壌中濃度変動や作物吸収の季節間差を解明する。さらに得られたデータを、シミュレーションモデルの検証データとすることを目的とした。

3. 研究開発の方法

兵庫県立農林水産技術総合センター内の黄色土ほ場(有機炭素含量2.5%)において試験区(1.5m²/区画、n = 3)を設けた。log Powの異なる8種類の農薬(ジノテフラン、クロチアニジン、イミダクロプリ

ド、チアクロプリド、ホスチアゼート、メタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチル、log Powは-0.55~4.6)を2 mg/kg-乾重(トルクロホスメチルのみ20 mg/kg-乾重)となるよう散布した。後作物残留しやすい作物種の検討については、コマツナ、シュンギク、ハウレンソウ、カブ、ニンジン、レタス、ブロッコリ、タマネギを栽培した。一方、後作物残留しやすい環境条件については、春作(3月作付け)、初夏作(5月作付け)そして秋作(9月作付け)においてコマツナ、カブ、ニンジンへの作物移行の季節間差を検討した(表3.3.1)。試験開始時期は凡その他のサブテーマと合わせて、試験区土壤に農薬を一定濃度となるように処理した。表層を耕うん後、作物を播種、定植を行い、生育に応じて4回サンプリングを行った。農薬処理を行った土壤は定期的に採取して水抽出、アセトンにより全量抽出を行い、経時的濃度を調査した。作物も農薬濃度を調査し、移行係数を算出した。以下の通りの農薬を対象とし市販農薬を用いた。処理量は表層10cmが理論土壤濃度となるように、市販農薬に表示される成分濃度と土壤の仮比重から換算して処理を行った。農薬処理方法は、試験区土壤に市販農薬を均一にジョーロにより散布し、土壤表面が乾くまで約2時間待った後、小型管理機を用いて畝上を耕うんし(深さ8~10cm)、土壤の均一化を図った。土壤試料は、処理直後、処理後2日後、7日後前後、14日後前後、21日後前後と作物の成長と天候に合わせて適宜サンプリングを行った。表層から深さ10cmまでの土壤を作物を栽培していない無栽培区から4か所採取を行った。作物は：生育に応じて4回採取して、草丈、重量等を調査の後分析に供試した。

農薬の分析方法のフローは図3.3.1の通りである。

表3.3.1 試験に供試した作物の播種及び定植日と収穫日(適)

年	作物	品種	播種または定植	収穫適期	期間
2017年	コマツナ	よかった菜	9月20日	10月19日	29
	シュンギク	株張中葉		11月1日	42
	ハウレンソウ	サマーズ		11月21日	62
	小カブ	CRふじしろ		11月8日	49
	ニンジン	優馬		1月26日	128
	レタス	レガシー	定植	11月17日	58
	ブロッコリー	ハイツSP	定植	12月19日	90
	コマツナ	よかった菜	11月27日	3月25日	119
	タマネギ	ターザン	定植	6月4日	190
2018年	コマツナ	よかった菜	5月29日	6月27日	29
	シュンギク	株張中葉		7月3日	35
	小カブ	CRふじしろ		7月10日	42
	ニンジン	黒田5寸		9月27日	121
	ハツカダイコン	アイシクル		7月10日	42
2019年	コマツナ	よかった菜	3月20日	5月1日	42
	シュンギク	株張中葉		5月9日	50
	小カブ	CRふじしろ		5月24日	65
	ニンジン	黒田5寸		6月12日	84
	ハツカダイコン	アイシクル		5月7日	48

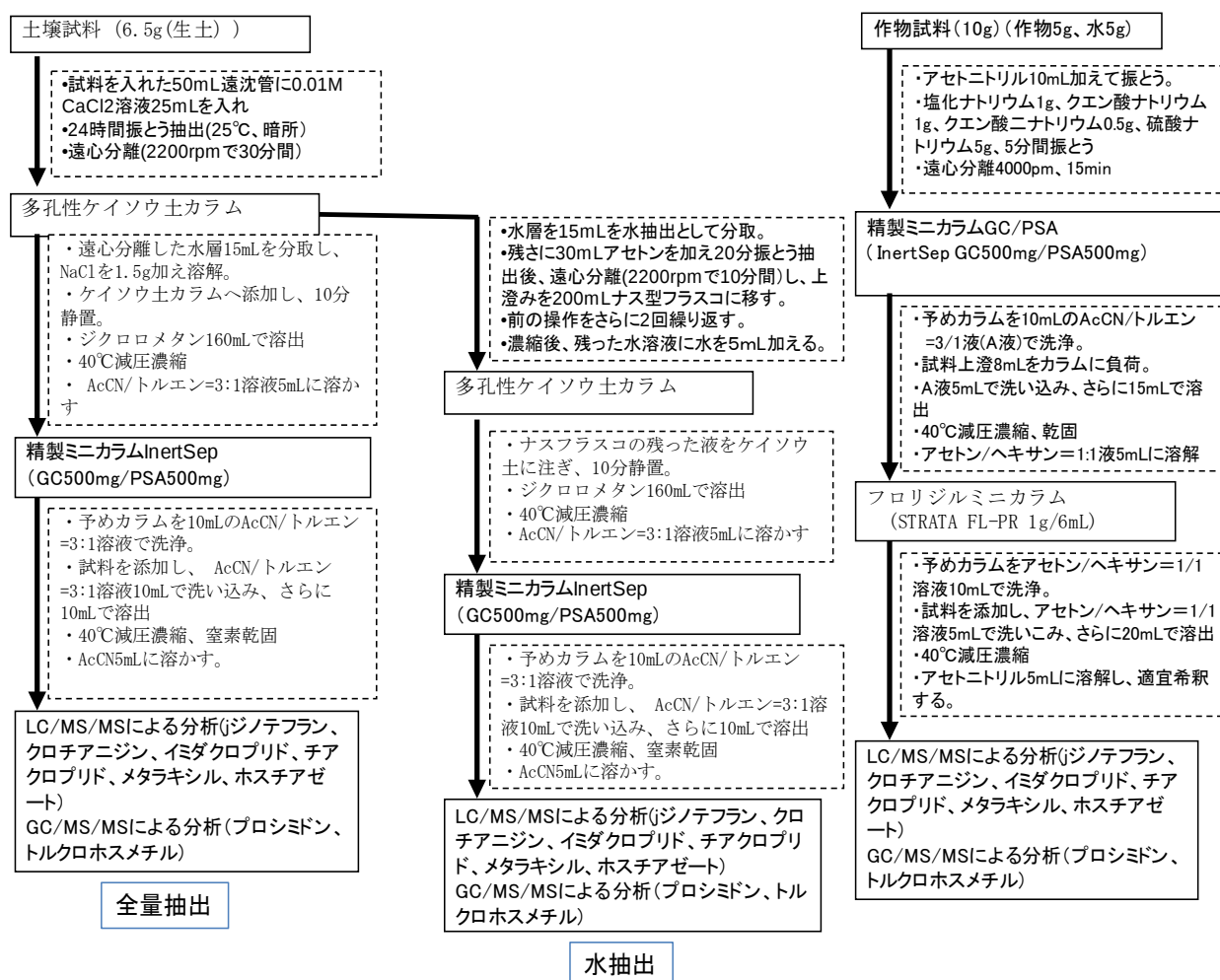


図3. 3. 1 土壌及び作物の分析フロー

4. 結果及び考察

試験を実施した年度の天気概要は以下のとおりである(図4. 4. 1)。2017年秋作は10月2日(処理11日後)に71mm、10月20～21日(処理31～32日後)に126mmと2度の台風に伴う雨が続きであった。2017年冬作は2月後半まで天気が安定しており、まとまった降雨はなく、4月24～25日に90mmの雨があるまで50mm以下の降雨しかなかった。気温は季節に応じて秋作は下がっていき、冬作は徐々に気温が下がり1/24に-1.5℃まで下がった後徐々に気温が上昇した。2018年初夏作は梅雨時の7月4日から7日(処理36～39日後)まで続いた西日本豪雨により301mmの記録的な降水があった。気温は5月下旬から上昇し、7月23日と24日の31℃から8月24日に31.1℃まで高温が続いたのち、寒暖を繰り返しながら徐々に下がった。2019年春作は天気が安定しており雨少なく、初めの2か月は30mm未満の降雨のみであった。気温は4月初旬まで5℃を下回る日もあるが以後は徐々に上昇した。

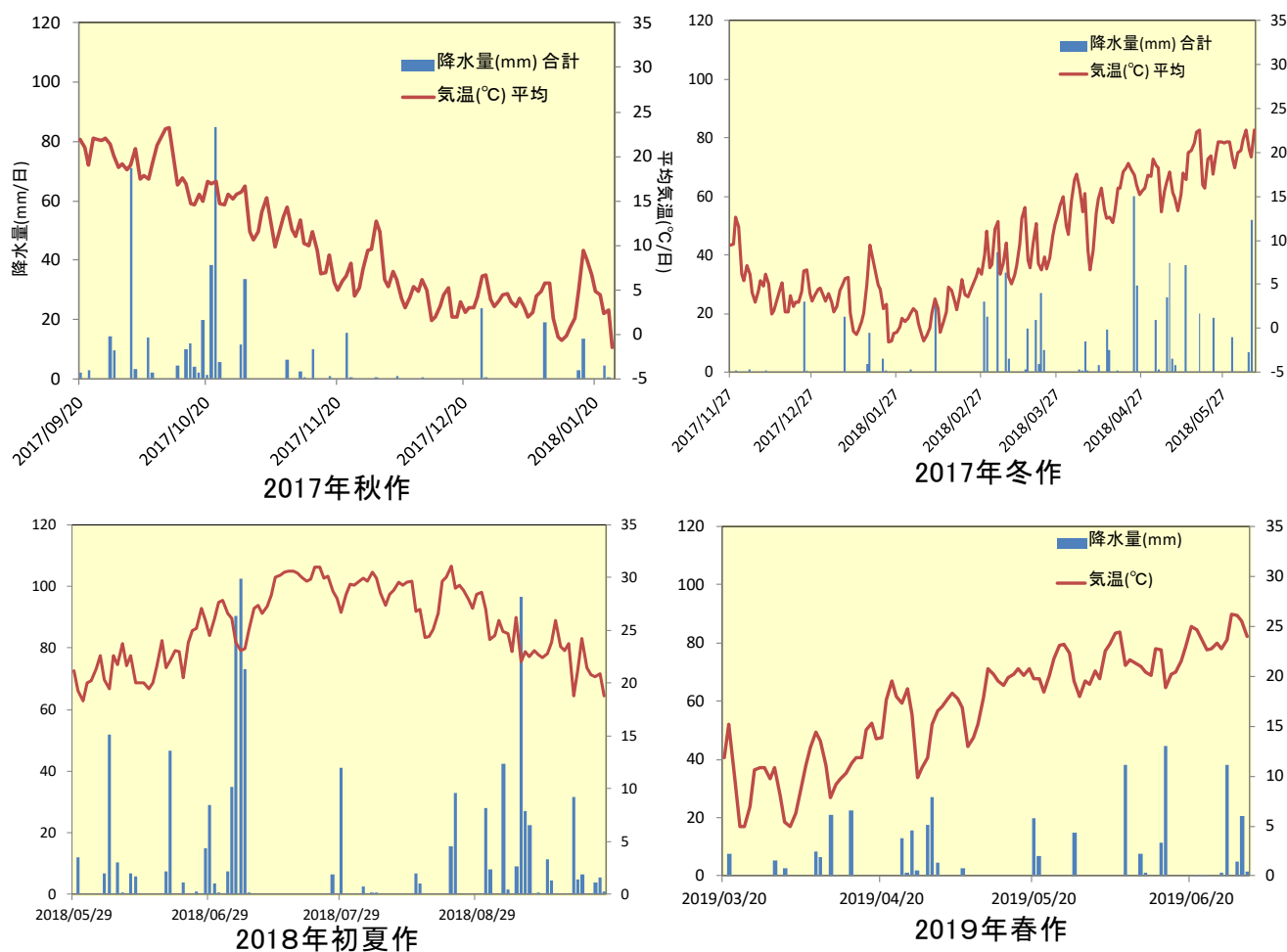


図4.4.2 各年度の作型の気象について（アメダス福岡観測点データ）

土壌中濃度（全量抽出）の推移について図4.4.2に示す。ジノテフランとチアクロプリド、ホスチアゼートは冬の作付を除いて、どの作型でも濃度が速やかに低下した。冬の作型では濃度低下は緩やかではあるが、最終的には定量限界未満となり、速やかに土壌中で減少することが確認された。クロチアニジン、イミダクロプリドは雨の少ない春作、冬作で濃度の低下が緩やかとなり、秋作においても2度の台風後の処理40日後以降の濃度低下は緩やかであった。メタラキシルは処理40日後までは濃度低下が大きく、温度の高い時期である初夏及び春作では、以後も低下した。しかし、秋作では気温が低くなる40日後以降、濃度低下は少なかった。トルクロホスメチルは地温が高まる初夏作と春作の30日以降に急激な低下がみられるが、地温が低くなる秋作と冬作では濃度低下が緩やかであった。プロシミドンは高温で雨の多かった初夏作以外は濃度低下が緩やかであり、黄色土では土壌からの濃度低下が遅い農薬であると考えられた。一方、土壌を水抽出することで得られる作物可給性の濃度（以後水抽出濃度）の推移については（図4.4.3）、チアクロプリドのlogPowが1.26、ホスチアゼートが1.68、メタラキシルは1.75¹⁾と、メタラキシルやホスチアゼートの方がチアクロプリドより高いが、ホスチアゼートは水抽出濃度と全量抽出濃度がほぼ同等、メタラキシルMは水抽出濃度が全量抽出濃度の80%程度であるが、チアクロプリドの水抽出濃度は全量抽出濃度の半分程度と水抽出濃度が低くなった。チアクロプリドの水溶解度は185mg/L (20℃)、ホスチアゼートの水溶解度が9000mg/L (25℃)、メタラキシルが26000mg/L (25℃)であり¹⁾、土壌吸着性を示すKocもチアクロプリドが231～657であるのに対し、ホスチアゼートが24.8～101.8(25℃)、メタラキシル44.1～646であり¹⁾、チアクロプリドの方が土壌吸着が強い場合が多く、水溶解度も低いことが、水抽出量の差の一因となっていると考えられた。LogPow4.56のトルクロホスメチルや3.30のプロシミドンは、水抽出量が全量抽出量と比較して低くなり、図4のとおりトルクロホスメチルの水抽出濃度は全量抽出濃度の10%程度、プロシミドンは40%程度と、トルクロホスメチルは特に水抽出濃度が低かった。土壌吸着定数Kocはトルクロホスメチル1796～5484(25℃)、プロシミド

ンは199～513(25℃)¹⁾とトルクロホスメチルの方が大きく、水溶解度はトルクロホスメチル1.1mg/L(25℃)、プロシミドン2.46mg/L(20℃)と水溶解度の差は少ないことからKocの違いの影響が大きいと考えられた。

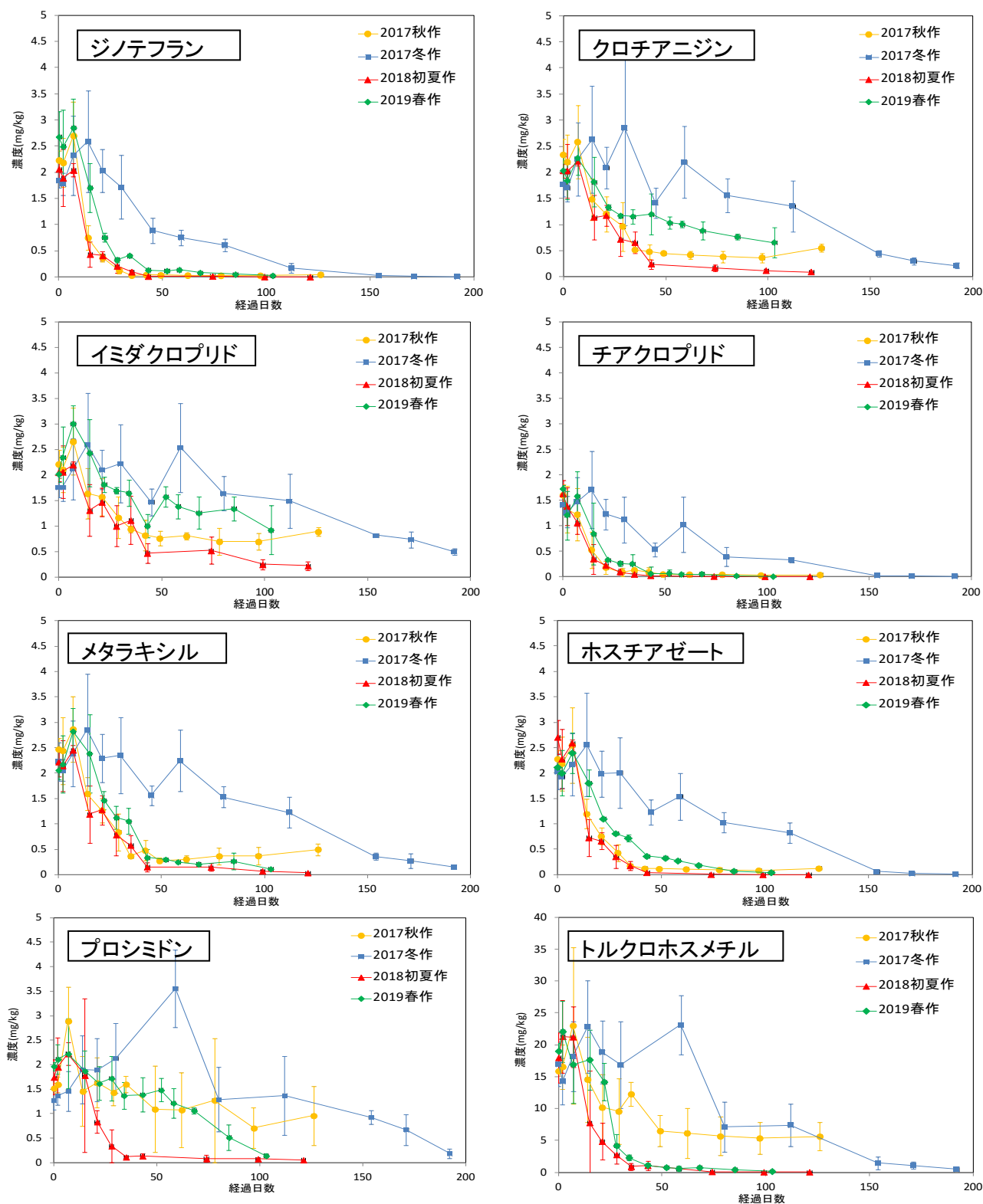


図4.4.2 各作型における黄色土壌の農薬濃度（全量抽出）の経時変化

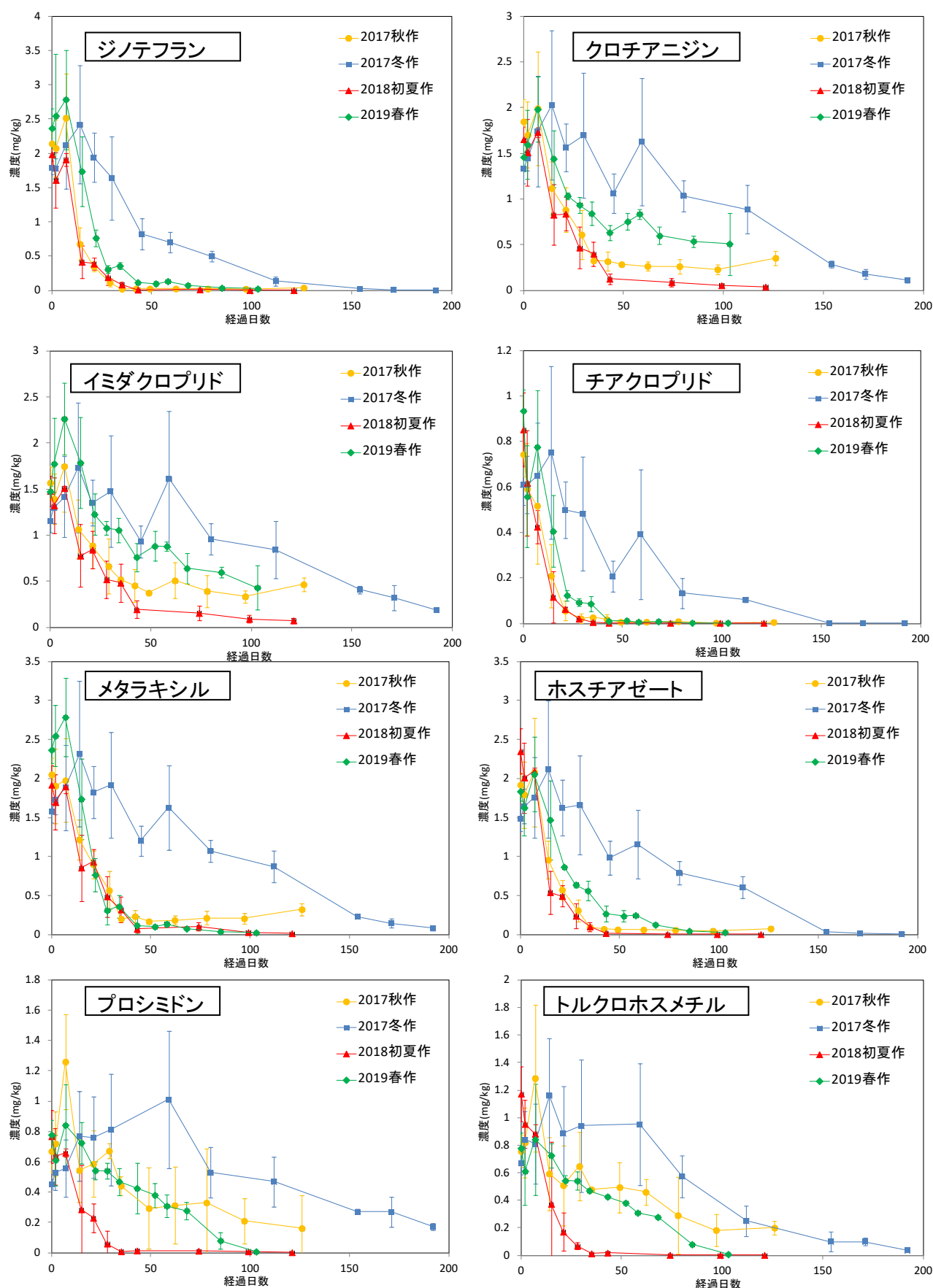


図4.4.3 各作型における黄色土壌の農薬濃度（水抽出）の経時変化

土壌吸着係数 (K_d) は、過去の知見²⁾と同様に、全体的には日数を経るにつれて増加する傾向がみられた(図4. 4. 4)。特に2017年秋作と2018年の試験開始40日までの降雨量が多い時期に K_d 値の上昇がみられ、2017年冬作、2019年春作のようにまとまった降雨がない場合ではそのような上昇は少なかった。 K_d 値は上昇傾向がみられるものの、初期値はどの作型もほぼ同様の値を示しており、本来、室内試験で求める K_d 値が土壌ごとに一定であることと一致している。今回は、まず露地の違う試験箇所(土壌)で実施しており、かつ市販農薬でのジョーロでの処理として、試験の反復としてはばらつく要因が多い。例えば、トルクロホスメチルでは2017年秋作96.9(mL/g)、2018年初夏作66.1、2019年春作72.4であり、これらから土壌吸着定数 (K_{oc}) を求めると4407~6460と報告値とほぼ同等となった。

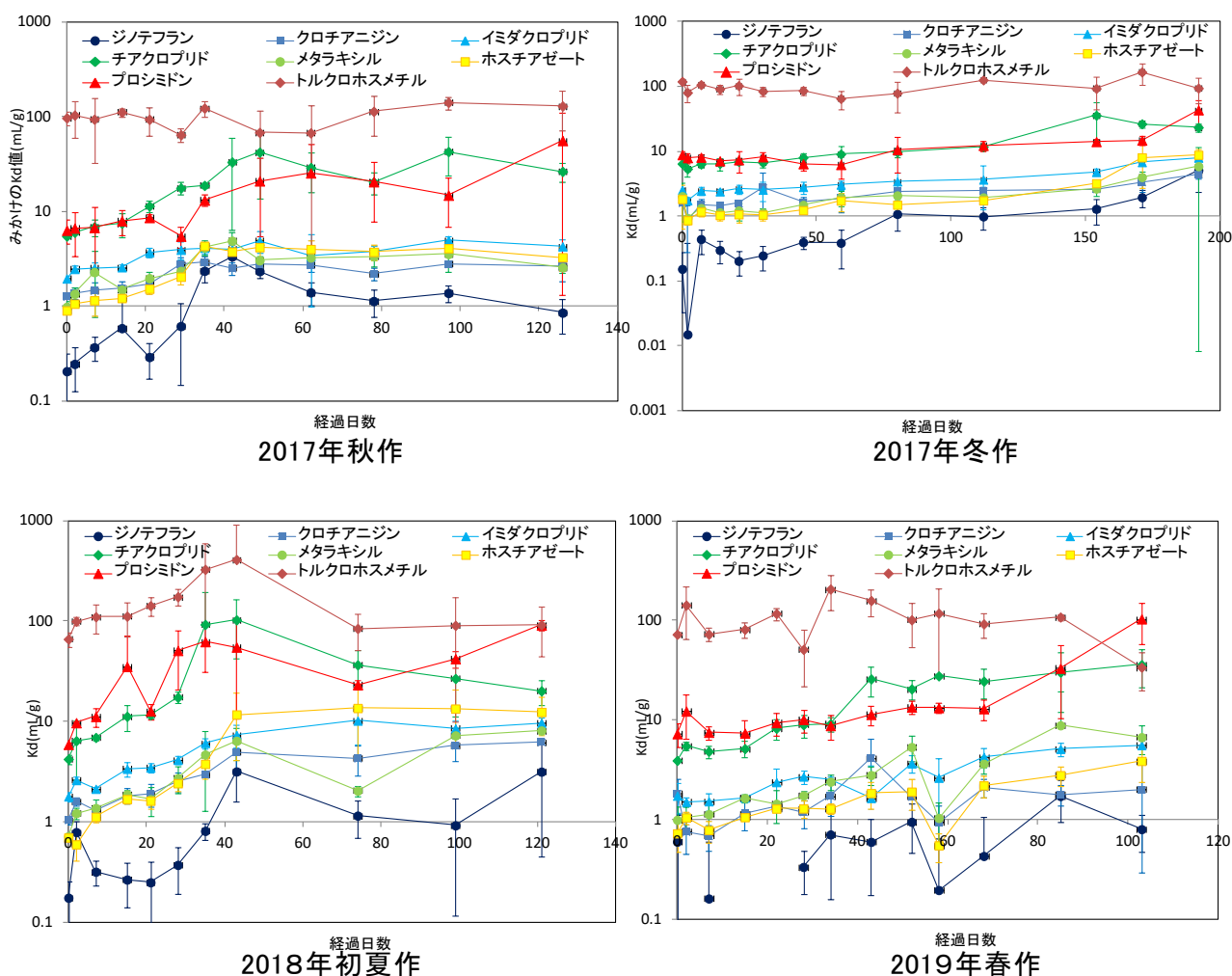


図4. 4. 4 各作型における黄色土壌のみかけの土壌-水吸着係数 (K_d) の経時変化

栽培全期間の半減期及びコマツナ栽培期間での土壌の水抽出濃度の半減期を表4. 4. 1のとおり示した。2017年冬作を除いて、栽培全期間から求めた半減期はコマツナ栽培期間のみの短期間から求めた半減期より長くなる傾向があった。2017年冬作では土壌中の農薬濃度の低下が栽培前期の厳寒期が特に遅かったため、コマツナ栽培期間から求めた半減期の方が長くなったと考えられた。半減期が長い作型はコマツナのような短期間での栽培の場合では冬作が最も長くなった。一方ニンジンやタマネギのような長い期間の作型では降雨の少ない冬がlog Powが低い農薬は半減期が長くなる一方、水溶解度が低くlog Powが高いプロシミドンやトルクロホスメチルでは、冬に向かって長期にわたって気温が低くなる秋作の半減期が長くなった。農薬濃度の半減期が短くなる作型は、一般に気温も高く、降水量が多い季節の作型である。栽培が長い作物の場合では、気温が高く、梅雨の雨で降水量が多い初夏の作型

がどの農薬も最も短くなった。コマツナのような短い栽培期間の作型では、試験開始36～39日目の西日本豪雨の影響を受けていない初夏作より、試験開始7日後と30日日後の台風の降雨の影響があった秋作が、水溶解度が高い¹⁾ジノテフラン、イミダクロプリド、クロチアニジン、ホスチアゼート、メタラキシルにおいて最も短い作型となった。一方、水に溶けにくいトルクロホスメチル及びプロシミドン、図4のとおり水抽出濃度が低いチアクロプリドでは初夏作の方が短くなり、降雨より気温の影響が大きいことが示唆された。ジノテフランやチアクロプリドは土壌濃度の低下が早く、半減期が早くなる傾向がみられた。他方ジノテフランやチアクロプリドと同じネオニコチノイド系農薬であるイミダクロプリドやクロチアニジンは全期間での半減期は20日以上であり、半減期が長くなった。これらの違いから、同じグループでも分解の形態が異なる可能性が示唆された。

表4. 4. 1 各作型における土壌中農薬濃度（水抽出）の半減期

作付	農薬成分名	栽培全期間					コマツナ栽培期間				
		期間	速度定数	相関係数 (R ²)	半減期※1 (DT50)	半減期の 標準偏差	期間※2	速度定数	相関係数 (R ²)	半減期※1 (DT50)	半減期の 標準偏差
2017年 秋作	ジノテフラン	0日～ 126日	0.039	0.559	17.9	0.2	7日～35日	0.158	0.959	4.4	0.2
	クロチアニジン		0.017	0.583	41.8	5.8	7日～35日	0.059	0.911	11.9	1.4
	イミダクロプリド		0.012	0.545	59.6	11.5	7日～35日	0.041	0.852	17.5	3.4
	チアクロプリド		0.044	0.651	15.9	1.7	0日～35日	0.113	0.897	6.2	0.5
	メタラキシル		0.019	0.504	36.5	3.4	0日～35日	0.060	0.874	11.5	1.1
	ホスチアゼート		0.032	0.645	21.5	2.1	7日～35日	0.102	0.942	6.8	0.6
	プロシミドン		0.019	0.542	72.9	76.4	7日～35日	0.025	0.434	33.1	18.6
	トルクロホスメチル		0.014	0.609	55.2	20.5	7日～35日	0.024	0.346	34.4	15.9
2017年 冬作	ジノテフラン	0日～ 192日	0.034	0.952	20.7	2.3	14日～118日	0.028	0.942	24.6	1.9
	クロチアニジン		0.013	0.874	52.6	2.4	14日～118日	0.010	0.638	74.1	12.8
	イミダクロプリド		0.009	0.819	73.3	5.5	14日～118日	0.008	0.488	96.3	30.7
	チアクロプリド		0.032	0.949	21.4	0.6	14日～118日	0.029	0.852	24.1	2.3
	メタラキシル		0.016	0.897	43.7	1.5	14日～118日	0.012	0.757	57.0	5.1
	ホスチアゼート		0.031	0.893	22.3	2.0	14日～118日	0.018	0.850	39.2	4.2
	プロシミドン		0.016	0.636	43.9	10.2	14日～118日	0.007	0.380	108.3	28.3
	トルクロホスメチル		0.019	0.841	37.8	5.1	14日～118日	0.013	0.669	53.5	6.3
2018年 初夏作	ジノテフラン	0日～ 121日	0.058	0.862	12.1	0.3	0日～35日	0.094	0.930	7.5	1.2
	クロチアニジン		0.034	0.905	20.7	1.8	7日～35日	0.053	0.849	13.8	3.6
	イミダクロプリド		0.027	0.903	26.0	3.6	7日～35日	0.041	0.750	19.1	7.4
	チアクロプリド		0.048	0.661	14.4	1.1	0日～35日	0.145	0.960	4.8	0.6
	メタラキシル		0.042	0.902	16.5	0.6	0日～35日	0.054	0.897	13.4	3.3
	ホスチアゼート		0.065	0.852	10.7	0.4	0日～35日	0.095	0.942	7.5	1.5
	プロシミドン		0.045	0.703	15.5	0.8	0日～35日	0.126	0.811	5.6	0.8
	トルクロホスメチル		0.053	0.803	13.1	0.2	0日～35日	0.122	0.913	5.7	0.3
2019年 春作	ジノテフラン	0日～ 103日	0.051	0.925	13.8	2.0	7日～50日	0.079	0.941	8.8	0.7
	クロチアニジン		0.013	0.741	58.4	24.3	7日～50日	0.023	0.794	30.8	5.1
	イミダクロプリド		0.015	0.802	49.6	12.9	7日～50日	0.023	0.813	31.3	5.8
	チアクロプリド		0.065	0.894	10.7	0.1	0日～50日	0.090	0.912	7.7	0.3
	メタラキシル		0.040	0.912	17.4	0.9	7日～50日	0.066	0.939	10.6	0.7
	ホスチアゼート		0.044	0.967	15.8	1.9	7日～50日	0.051	0.952	13.7	2.0
	プロシミドン		0.035	0.742	19.9	3.5	7日～50日	0.018	0.791	39.6	5.9
	トルクロホスメチル		0.048	0.793	14.5	0.6	0日～50日	0.092	0.854	7.6	0.6

※1対数値より算出。 ※2土壌の最大濃度の日からコマツナ作付最終日までの期間

2017年の秋作および冬作の農薬濃度（図4. 4. 5）と農薬濃度比（図4. 4. 6）に示す。2017年度は主に作物ごとの農薬濃度を比較しており、多くの作物に調査を実施した。また、タマネギでは秋作での栽培が難しかったので、別途タマネギに合わせた冬作についてコマツナを対照に試験を実施した。その結果、作物濃度が特に高いものはプロシミドン、トルクロホスメチルであった。トルクロホスメチルは処理濃度が10倍であるので他の農薬より特に濃度が高いわけではないと考えられるが、ニンジンの根、ニンジンの葉、シュンギクで特徴的に高濃度である。プロシミドンも同様の傾向がみられ、ニンジンの根、ニンジンの葉、シュンギクその他、小カブ葉で濃度が高くなった。また、冬作ではコマツナとタマネギ葉においてプロシミドン濃度が高くなった。コマツナは作期が短かく、全ての農薬において一定量

の吸収がみられる特徴があった。逆に、ハウレンソウ、レタス、ブロッコリーの農薬濃度は全体的に低くなった。ともに、レタスは結球部、ブロッコリーは花蕾部であるため、栽培開始後、一定の時間が経ってから供試部位が生長したため、濃度が低くなる傾向がある。ハウレンソウは初期に大きくなった葉が台風のため飛ばされたことにより収穫できる大きさに至るまで時間を要したことが農薬濃度が低くなる原因と考えられた。このことは、ハウレンソウは、一般的なモデル作物には不向きであることを示している。ニンジン以外の根菜系であるカブ根や鱗茎部のタマネギは直接土壌に接しているが、ニンジンほど地下に入っておらず、ニンジンが特徴的であるか、根菜の根での動態として一概に言えない。小カブ根やタマネギでは、生育初中期は地上部への輸送することによりのみ利用されており、生育後半に肥大し重量が大きくなるため濃度が低くなっていることが想定される。コマツナを1とした場合の濃度比では、作物の特徴がでてくる。ニンジン根、ニンジン葉、シュンギクがlog Powが高い農薬の濃度比が特に高く、冬作ではコマツナ濃度も高いためタマネギと濃度に差は見られない。逆に葉物ではハウレンソウや小カブ葉、ニンジン葉ではlog Powが小さいクロチアニジン、イミダクロプリドがコマツナより高くなった。平均値は、総合的な濃度の評価と考えられるが、ニンジン根、ニンジン葉、シュンギク、小カブ葉がコマツナより高くなった。

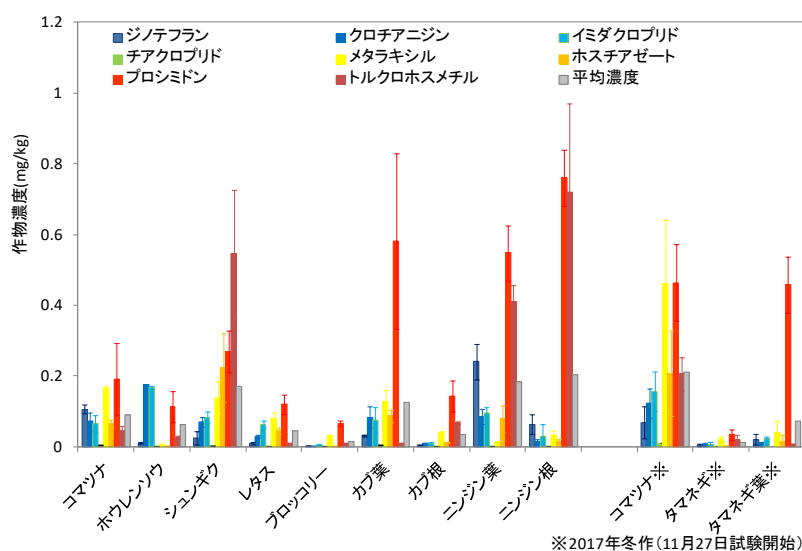


図4.4.5 2017年秋作および冬作における収穫時の作物の農薬濃度

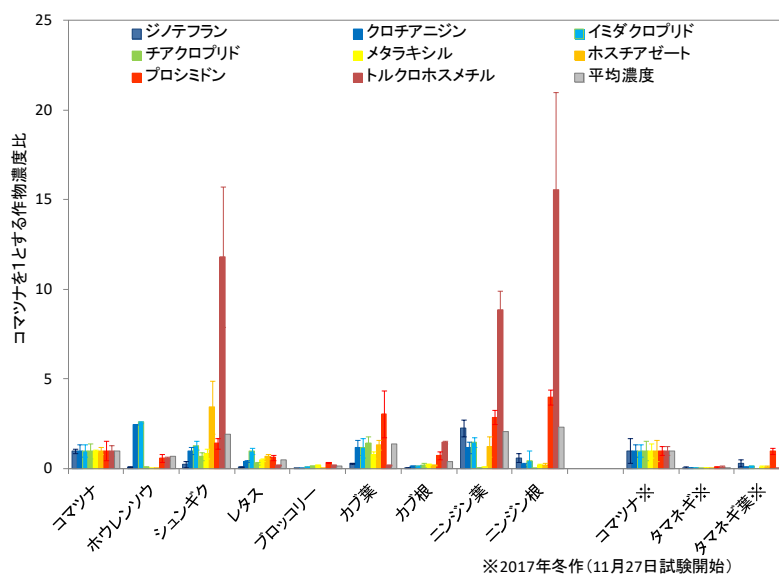


図4.4.6 2017年秋作および冬作における収穫時の作物の農薬濃度比
(コマツナを1とした場合)

2018年初夏作、2019年春作では2017年秋作で高濃度であった作物を中心に作型の違いを調査するとともに、ニンジン以外で作期が短く地下部が多いハツカダイコンの濃度について検討した。図4.4.7、図4.4.8のように2018年初夏作では、降雨の影響が大きく出ている。試験開始36日～39日目の西日本豪雨のためそれ以前に大きくなったコマツナやシュンギクの農薬濃度が高くなり、作期の長い作物や雨の時期に肥大したハツカダイコンやカブの濃度は低くなった。コマツナを1とした場合の濃度比もシュンギクは全体的に高くなったがニンジン根のトルクロホスメチル以外の小カブ葉、根、ニンジン葉、ハツカダイコン葉、根は1より低い濃度比となった。2018年初夏作において平均濃度ではシュンギクがコマツナより高くなったのみであった。図4.4.9と図4.4.10の2019年春作は、年度をまたいで3月20日から試験を開始した。まだ地温が低く、発芽までに2週間程度かかったが、降雨が少なく天候が安定していたため、比較的どの作物も濃度が高くなった。その中で、ハツカダイコン葉で、ジノテフラン、クロチアニジン、イミダクロプリド、ホスチアゼート、メタラキシル濃度が高くなり、ニンジン葉でプロシミドン濃度が高くなった。シュンギクはメタラキシル、ホスチアゼート、トルクロホスメチルの濃度が高くなった。コマツナとの濃度比もこれらの結果を反映したものとなった。2019年春作における平均濃度はハツカダイコン葉、シュンギクが高く、ニンジン葉がコマツナと同等であった。

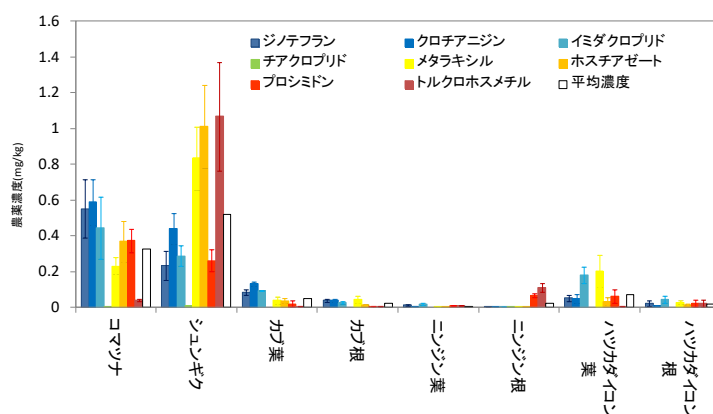


図4.4.7 2018年初夏作における収穫時の作物の農薬濃度

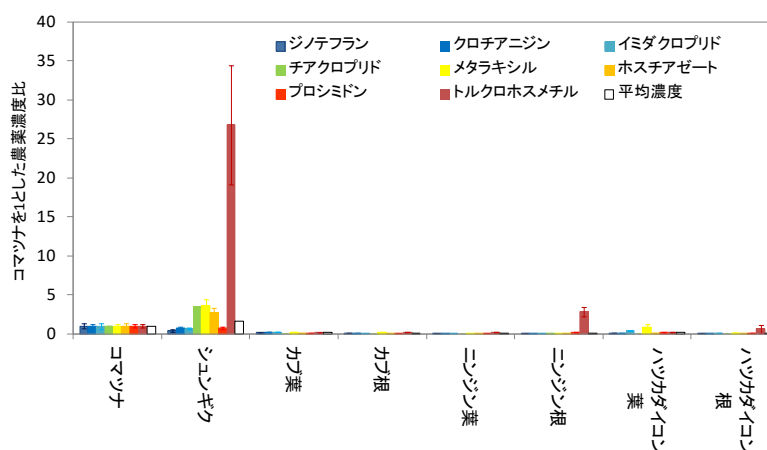


図4.4.8 2018年初夏作における収穫時の作物の農薬濃度比
(コマツナを1とした場合)

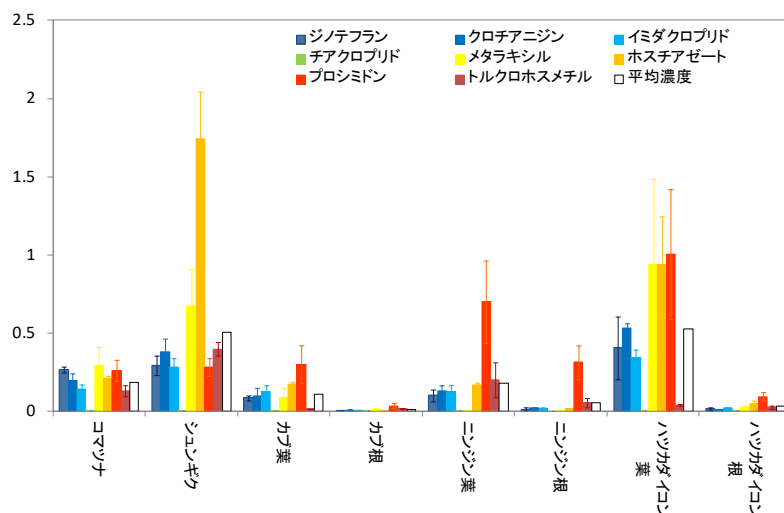
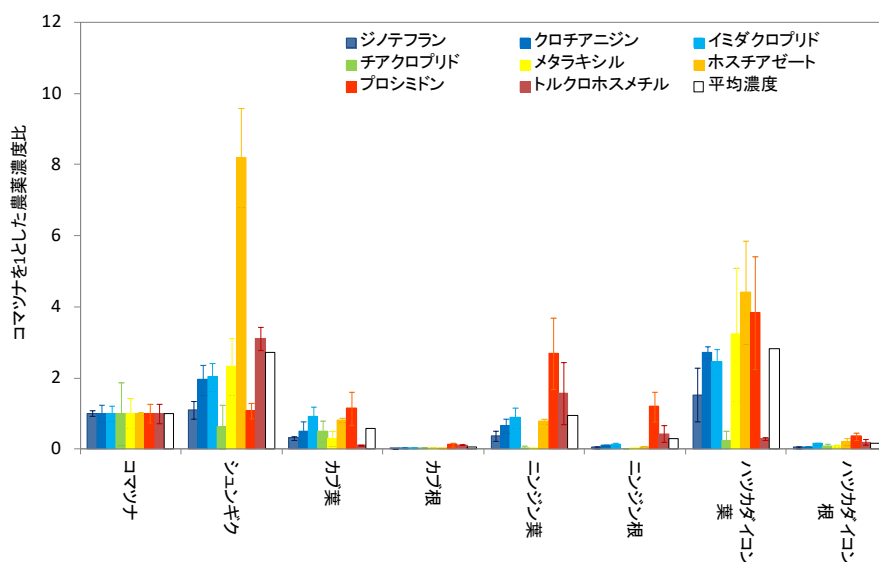


図4.4.9 2019年春作における収穫時の作物の農薬濃度

図4.4.10 2019年春作における収穫時の作物の農薬濃度比
(コマツナを1とした場合)

作物中濃度を栽培期間中の水抽出濃度の幾何平均値で除すことで得た移行係数を図4.4.11～図4.4.13に記載した。土壌の水抽出濃度と作物濃度の相関が高いという報告があるため³⁾水抽出濃度を用いている。2017年の移行係数は土壌への処理濃度が大きいトルクロホスメチルが相対的に低くなりプロシミドンが高くなった。作付期間が長い作物では収穫時の水抽出濃度の幾何平均が低くなるため、移行係数が高くなる傾向があった。そのため、2017年秋作及び冬作、2019年春作では相対的にニンジンやタマネギなどの作期の長い作物でプロシミドンで高い移行率になる場合が認められた。暖くなる時期の春作や初夏作では表2のとおりトルクロホスメチルの半減期が短くなり、移行係数が高くなった。log Powの低いジノテフラン、クロチアニジン、イミダクロプリドは春作で移行係数がやや高いものの全体的にコマツナより移行係数が高い作物が少ない。クロチアニジンやイミダクロプリドでは比較的半減期が長く、作付後半でもある程度土壌濃度が高いことから安定した移行係数となっている。

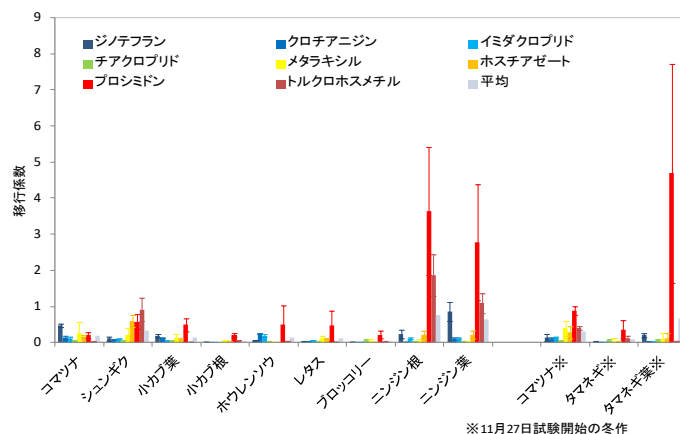


図4.4.11 2017年秋作及び冬作における土壌から作物への移行係数

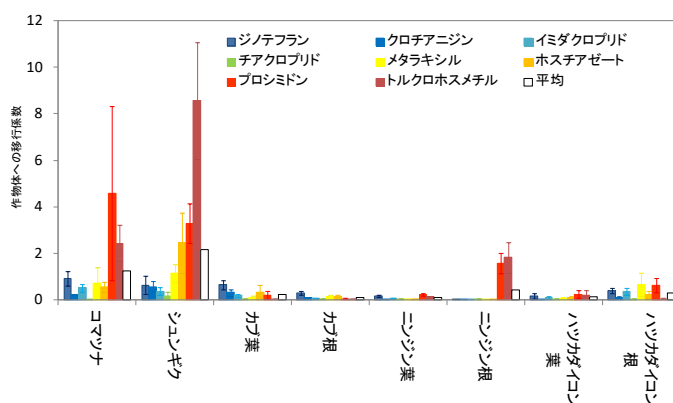


図4.4.12 2018年初夏作における土壌から作物への移行係

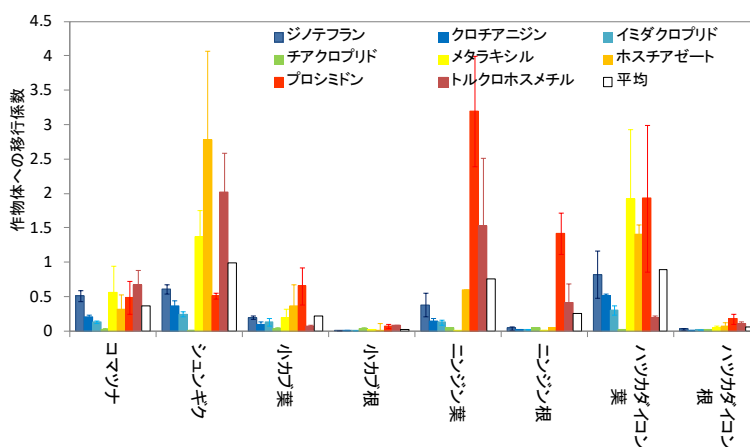


図4.4.13 2019年春作における土壌から作物への移行係数

一方、作物栽培中に移行係数の経時変化について、log Powが違う5農薬（ジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシル、プロシミドン、トルクロホスメチル）について、2017年のデータを用いて検討した（図4.4.14）。その結果、全体として、移行係数は栽培の経過日数に従って小さくなる傾向があった。処理した農薬は土壌の上層10cmまでに多くが存在するため、それぞれの作物の根域が、この中にあるうちは移行係数が高いが、根が伸びて農薬濃度が高い土壌域から出ると移行係数は下がると考えられる。このため、生育に従って下がることは当然のことであると考えられる。ニンジン根は、特にlog Powが大きい農薬について栽培の初期から高濃度に移行し、収穫期まで移行係数が高かった。log Powが小さい農薬は生育初期から主に葉への移行係数が高く、収穫時には比較的低くなった。

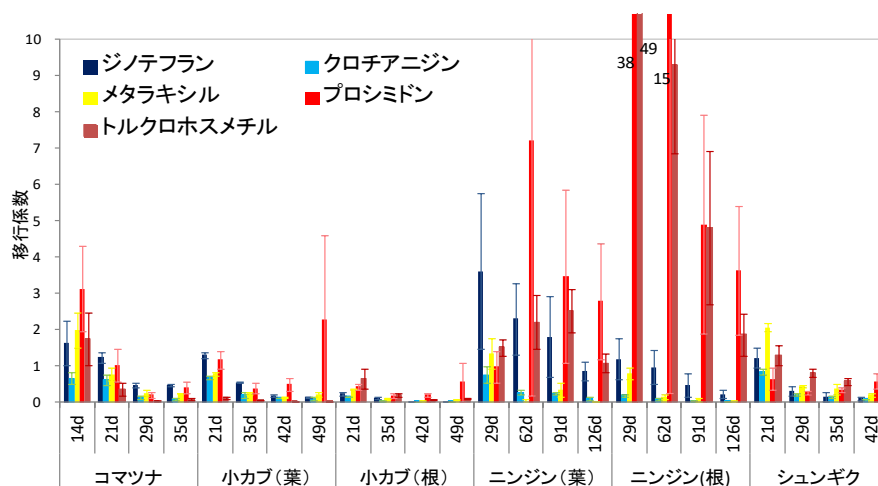


図4.4.14 2017年秋作における土壌から作物への移行係数の経時変化

次に、黄色土における後作物への残留試験を実施するために最適な作物について移行係数から検討した(表4.4.2)。まず、後作物残留リスクをとらえるためには、どの農薬でもある程度の濃度を検出できる作物である必要がある。そのためには、表3のとおりlog Powが異なる代表的な5種類の農薬について、幾何平均が高い農薬が望ましい。幾何平均は極端に移行係数が小さい農薬があると低く算出される特徴があるためである。仮に、作物を2種類選定するとすれば、2種類目は1種類目と異なる性質があることが望ましく、通常の平均値の高い作物が適すると考えられる。以上のことから、まず移行係数の幾何平均をどの作型についても算出し、その平均を求めると、最も高くなるものはコマツナであり、シュンギク、ハツカダイコン葉、ニンジン葉と続く。コマツナはどのどの作型においても、またlog Powの農薬も移行係数がある程度あるため、最も代表に適した作物といえる。シュンギクは移行係数が大きい農薬があるが、log Powが小さい農薬の移行係数が小さい場合がある。コマツナともう1種類の後作物残留を調査するのであれば、シュンギクやニンジン、ハツカダイコン葉が移行係数の通常の平均値が高く、コマツナでリスクが分かりにくい2017年秋作のトルクロホスメチルのような農薬をとらえることができると考えられる。

表4.4.2 土壌から作物への移行係数

年度	農薬	コマツナ	シュンギク	カブ 葉	カブ 根	ニンジン 葉	ニンジン 根	ハツカダイ コン葉	ハツカダイ コン根
2017 秋	ジノテフラン	0.47	0.11	0.18	0.01	0.86	0.23		
	クロチアニジン	0.14	0.09	0.13	0.00	0.11	0.02		
	メタラキシル	0.26	0.20	0.14	0.04	0.02	0.04		
	プロシミドン	0.20	0.58	0.50	0.21	2.78	3.64		
	トルクロホスメチル	0.03	0.92	0.02	0.07	1.09	1.87		
	幾何平均	0.16	0.26	0.13	0.03	0.34	0.26		
	平均	0.22	0.38	0.19	0.07	0.97	1.16		
2018 初夏	ジノテフラン	0.93	0.18	0.66	0.30	0.18	0.04	0.39	0.17
	クロチアニジン	0.24	0.07	0.32	0.09	0.02	0.01	0.11	0.02
	メタラキシル	0.72	0.20	0.12	0.14	0.02	0.02	0.55	0.08
	プロシミドン	4.57	1.70	0.19	0.05	0.25	1.57	0.61	0.24
	トルクロホスメチル	2.43	4.39	0.05	0.04	0.14	1.83	0.05	0.16
	幾何平均	1.12	0.44	0.19	0.09	0.08	0.11	0.23	0.10
	平均	1.78	1.31	0.27	0.12	0.12	0.69	0.34	0.13
2019 春	ジノテフラン	0.51	0.61	0.20	0.01	0.38	0.04	0.84	0.03
	クロチアニジン	0.20	0.37	0.10	0.01	0.14	0.02	0.51	0.01
	メタラキシル	0.56	1.37	0.20	0.02	0.01	0.01	1.93	0.05
	プロシミドン	0.49	0.52	0.66	0.07	3.19	1.42	1.85	0.17
	トルクロホスメチル	0.67	2.02	0.07	0.08	1.53	0.42	0.19	0.12
	幾何平均	0.45	0.80	0.18	0.02	0.28	0.10	0.78	0.05
	平均	0.49	0.98	0.24	0.04	1.05	0.38	1.06	0.08
幾何平均の全平均		0.58	0.50	0.16	0.05	0.23	0.16	0.50	0.07
全平均		0.83	0.89	0.23	0.08	0.71	0.75	0.70	0.10

表4.4.2で示したとおり、コマツナは黄色土の後作物への残留試験のために適した作物と考えられるが、次に作型について検討する。2017年9月27日栽培開始の秋作、2017年11月27日開始の冬作、2018年5月29日開始の初夏作、2019年3月20日開始の春作の4つの作型について、コマツナの農薬濃度と移行係数を図4.4.15と図4.4.16に示した。コマツナの栽培期間は、2017年の秋作における台風を除けば、降雨量が多い日は少なく、降雨の影響は秋作以外の3作は少ないと考えられる。農薬濃度は概してlog Powの低い農薬は雨が少なく気温が高く生長が早い初夏作で濃度が高く、log Powが高くなるにしたがって初夏作も高いものの、気温が低く雨が少ない冬作と春作の濃度が高くなるという傾向がみられた。4つの作型での移行係数では、初夏作のプロシミドンとトルクロホスメチルが非常に高くなっている。気温が高い作型ではこれらの農薬は速やかに濃度が低下する傾向があり、コマツナ収穫期では低くなっているが、濃度低下までに多くコマツナに吸収された可能性がある。しかし、移行係数が1を超えることは、何か能動的にこれらの有機化学物質を吸収している可能性があり、今後検討する必要がある。初夏作のトルクロホスメチルとプロシミドンを除いても初夏作は全体的に移行係数が高い傾向があり、他ではlog Powが高いほど冬作、春作と気温が低い時期に移行係数が高い傾向がある。冬作、春作ともに気温が低く蒸散も少なく、吸収が少ないと考えられるが、吸収を助長する機構がある可能性がある。最後に、各農薬の移行係数の平均は、多くの農薬で移行係数が高い順の目安となると考えられるが、初夏作、春作、冬作、秋作の順となった。

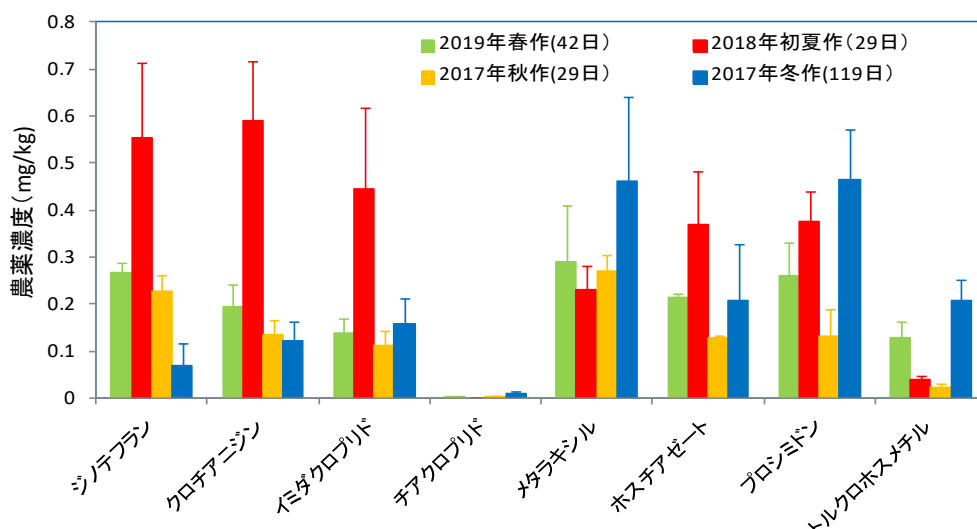


図4.4.15 コマツナにおける作型と各農薬濃度の関係

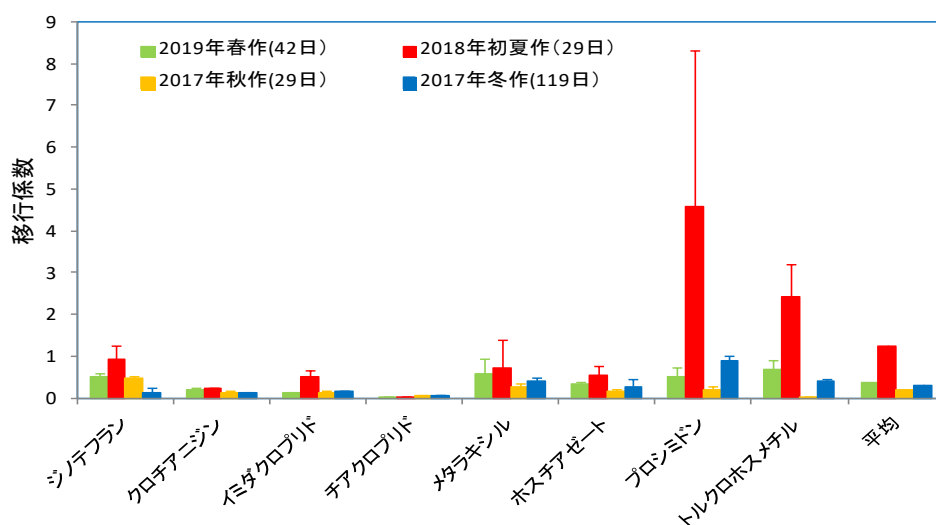


図4.4.16 コマツナにおける作型と移行係数との関係

コマツナが後作物残留を検討する上で適した作物であるが、作期が短く、他作物が同様の結果となるとは限らないため他の作物でも検討する。冬作はコマツナだけであるし、作付け時間が非常に長いこと、気温が高まってくると抽苔する作物があることを踏まえると、適切ではない。このため、2017年秋作、2018年初夏作、2019年春作の結果を用いて代表5種の農薬について検討した。作物ごとに移行係数の幾何平均を算出し、作型ごとにその平均を調べた(表4.4.3)。その結果、2017年秋作が小さく0.20であった。2018年初夏作と、2019年春作が0.30~0.34とほぼ同等となり、ハツカダイコンを加えるかどうかで結果が異なった。のコマツナの結果と比べると、初夏作の移行係数が他作物では小さくなっていると考えられる。コマツナ以外の作物は作付期間がコマツナより長いいため、初夏作は梅雨の影響を受けやすい。そのため、降雨による土壌濃度の低下などの影響を受けやすく作物が肥大等のステージの段階で土壌濃度の低下が大きいと、作物濃度の低下も大きくなると予想され、移行係数も小さくなると考えられる。これらより、多くの作物の結果からは春作と初夏作が適していると考えられた。

表4.4.3 土壌から各作物への農薬の移行係数(土壌(水抽出))のとりまとめ

年度	農薬	コマツナ	シュンギク	カブ葉	カブ根	ニンジン葉	ニンジン根	平均	ハツカダイコン葉	ハツカダイコン根	ハツカダイコン
2017 秋	ジノテフラン	0.47	0.11	0.18	0.01	0.86	0.23				
	クロチアニジン	0.14	0.09	0.13	0.00	0.11	0.02				
	メタラキシル	0.26	0.20	0.14	0.04	0.02	0.04				
	プロシミドン	0.20	0.58	0.50	0.21	2.78	3.64				
	トルクロホスメチル	0.03	0.92	0.02	0.07	1.09	1.87				
	幾何平均	0.16	0.26	0.13	0.03	0.34	0.26	0.20			—
2018 初夏	ジノテフラン	0.93	0.18	0.66	0.30	0.18	0.04		0.39	0.17	
	クロチアニジン	0.24	0.07	0.32	0.09	0.02	0.01		0.11	0.02	
	メタラキシル	0.72	0.20	0.12	0.14	0.02	0.02		0.55	0.08	
	プロシミドン	4.57	1.70	0.19	0.05	0.25	1.57		0.61	0.24	
	トルクロホスメチル	2.43	4.39	0.05	0.04	0.14	1.83		0.05	0.16	
	幾何平均	1.12	0.44	0.19	0.09	0.08	0.11	0.34	0.23	0.10	0.30
2019 春	ジノテフラン	0.51	0.61	0.20	0.01	0.38	0.04		0.84	0.03	
	クロチアニジン	0.20	0.37	0.10	0.01	0.14	0.02		0.51	0.01	
	メタラキシル	0.56	1.37	0.20	0.02	0.01	0.01		1.93	0.05	
	プロシミドン	0.49	0.52	0.66	0.07	3.19	1.42		1.85	0.17	
	トルクロホスメチル	0.67	2.02	0.07	0.08	1.53	0.42		0.19	0.12	
	幾何平均	0.45	0.80	0.18	0.02	0.28	0.10	0.30	0.78	0.05	0.33

露地栽培では地温の維持と雑草抑制のためマルチ資材を畝に張る場合があり、その場合の土壌濃度についてのデータの補足として記載する。マルチ区はポリエチレン製黒色マルチ(厚さ0.05mm、植穴直径4cm、条間30cm株間26cm、千鳥植えレタス用)で畝の上を覆った。対照区、マルチ区とも試験開始2019年3月20日各区3連で試験の間は無栽培であり、試験方法については他の試験と同様とした。図4.4.17に示すように土壌における全量抽出の農薬濃度はマルチ無しではジノテフラン、チアクロプリド、メタラキシル、ホスチアゼート、プロシミドン、トルクロホスメチルは速やかに農薬濃度が低下しているが、マルチ有りではチアクロプリド、ホスチアゼート、トルクロホスメチルが速やかに低下し、他の農薬の低下は緩やかであった。図4.4.18で示すように、土壌における水抽出の農薬濃度はマルチ無しでは経過日数が40日程度まで急激な農薬濃度の低下の後、緩やかな低下になるが、ホスチアゼートとチアクロプリド、トルクロホスメチル以外ではマルチ有りにおいて始めから緩やかな濃度低下となった。

表4.4.4に示すように農薬濃度の半減期(全量抽出)はマルチ資材による被覆を行うと大幅に長くなった。トルクロホスメチルでは1.6倍程度と差は少ないが、クロチアニジンでは19.1倍、イミダクロプリドは低下がみられないなど、log Powが小さい農薬の影響が大きかった。一方、土壌における水抽出の農薬濃度も、マルチ有りの半減期は、マルチ無しの半減期より長くなったが、トルクロホスメチル1.1倍、クロチアニジン3.3倍と、全量抽出に比べると差が少なかった。トルクロホスメチルではマルチ資材を覆うことによる地温の上昇により農薬濃度の低下が早くなることが半減期に差がなくなる原因と考えられるが、log Powの低い農薬でも同様の結果であることの原因は不明であり、今後の検討を要する。

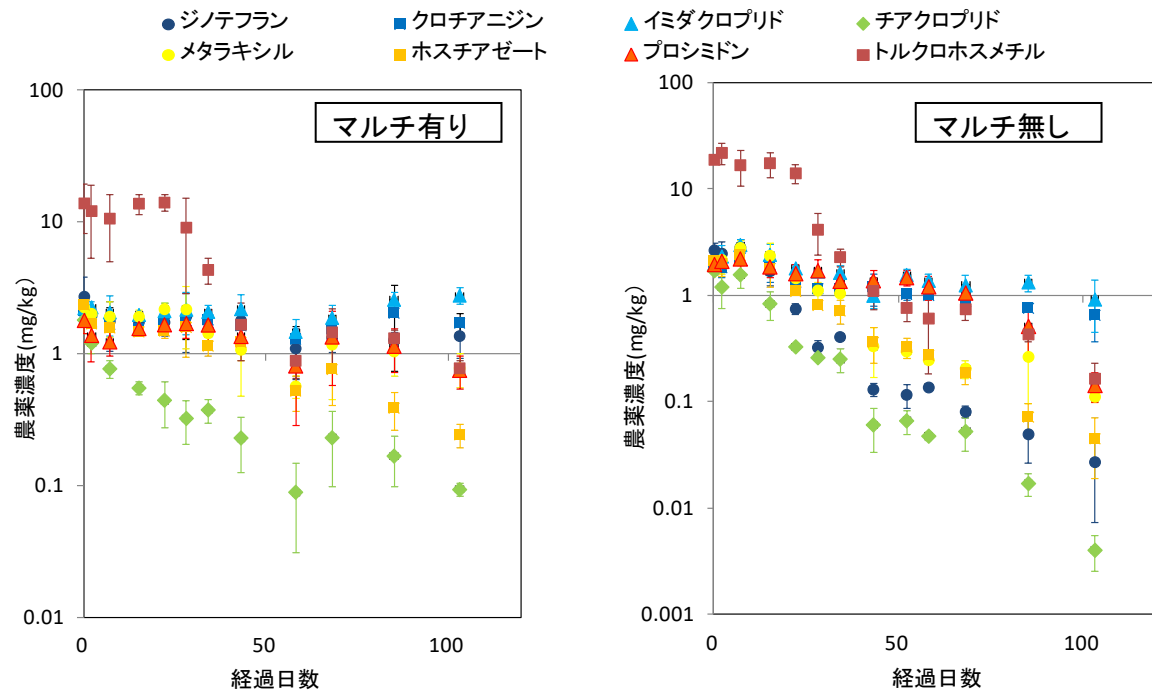


図4.4.17 マルチ資材の有無が土壌の農薬濃度（全量抽出）へ及ぼす影響

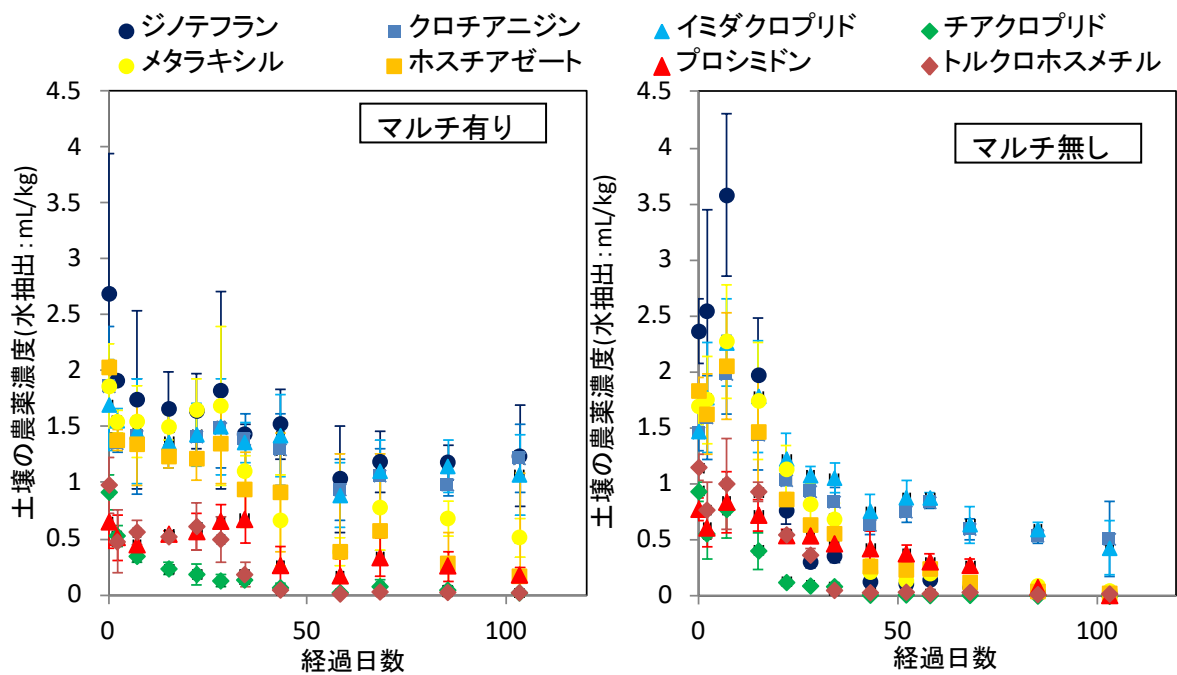


図4.4.18 マルチ資材の有無が土壌の農薬濃度（水抽出）へ及ぼす影響

図4.4.4 マルチ資材の有無が土壌における農薬濃度の半減期に及ぼす影響

試験区	農薬成分名	土壌中濃度(全量抽出)			土壌中濃度(水抽出)		
		速度定数	相関係数(R ²)	半減期※(DT50)	速度定数	相関係数(R ²)	半減期※
マルチなし	ジノテフラン	0.0480	0.932	14.4	0.0499	0.931	13.9
	クロチアニジン	0.0113	0.914	61.2	0.0125	0.835	55.5
	イミダクロプリド	0.0089	0.703	77.6	0.0142	0.892	49.0
	チアクロプリド	0.0566	0.965	12.2	0.0731	0.959	9.5
	メタラキシル	0.0326	0.892	21.3	0.0399	0.933	17.4
	ホスチアゼート	0.0398	0.986	17.4	0.0433	0.982	16.0
	プロシミドン	0.0204	0.779	34.0	0.0345	0.756	20.1
	トルクロホスメチル	0.0509	0.918	13.6	0.0480	0.803	14.4
マルチあり	ジノテフラン	0.0056	0.609	123.2	0.0064	0.673	108.4
	クロチアニジン	0.0006	0.023	1175.0	0.0040	0.497	174.2
	イミダクロプリド	-0.0011	0.058	-612.0	0.0044	0.638	156.7
	チアクロプリド	0.0249	0.795	27.8	0.0314	0.822	22.1
	メタラキシル	0.0110	0.657	62.8	0.0134	0.699	51.9
	ホスチアゼート	0.0196	0.919	35.3	0.0215	0.926	32.2
	プロシミドン	0.0061	0.516	114.6	0.0118	0.630	58.7
	トルクロホスメチル	0.0323	0.831	21.5	0.0419	0.791	16.5

以上から、黄色土における検討の結果をまとめると、土壌ではlogPowが小さく水溶解度が高い農薬は降雨の影響を受けやすく、コマツナのような作付けが短い作型は冬の作型が最も半減期が長く、台風の影響があった秋作で半減期が短くなった。一方、トルクロホスメチルのようなlogPowが高い農薬は作期が短い作物では冬作の半減期が最も長い、ニンジンのような作期が短い作物では秋作となり、秋から冬にかけての作型の半減期が長くなった。また、気温の影響が大きいため初夏作が最も半減期が短くなった。Log Powの違う農薬の移行係数の幾何平均から、すべての農薬のリスクをとらえるのであればコマツナが最も適しており、次にコマツナと違う傾向の作物として、移行係数の相加平均が高い、シュンギク、ニンジン、ハツカダイコン葉が適していると考えられた。作型としてはコマツナでは初夏作が、他作物を加えると春作か初夏作において移行係数が高くなり適していると考えられた。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

これまで知見のなかった黄色土における後作物残留に関して、当初計画通り計10種の葉菜類と根菜類の農薬の作物吸収等の実データに基づく試験条件を明らかにすることができた。また、当初計画に無かった、露地栽培において地温の維持と雑草抑制の為に使用するマルチ資材の被覆の有無と土壌中濃度の推移と作物移行について明らかにし、リスク管理措置の実施につながるデータを得ることができた。

(2) 環境政策への貢献

サブテーマ①～⑤の結果をふまえ登録制度の提案を行う課題構成にしているため、I. 成果の概要およびサブテーマ①の本項に記載している内容に準ずるが、サブテーマ④でも農薬登録時の後作物残留に関する試験条件に対し、供試土壌、供試作物、供試時期などの要件決定のための基礎データが得られた。

＜行政が既に活用した成果＞

サブテーマ①に準ずるが、サブテーマ④独自では、特に記載すべき事項はない。

＜行政が活用することが見込まれる成果＞

農薬登録申請時に行う後作物残留に関する試験要件検討に活用する。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

＜論文（査読あり）＞

特に記載すべき事項はない。

＜査読付論文に準ずる成果発表＞

特に記載すべき事項はない。

＜その他誌上発表（査読なし）＞

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 望月証、神頭武嗣、田中雅也、清家伸康、日本農薬学会第43回大会（2018）、農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第16報 黄色土における水抽出農薬の減衰傾向
- 2) 望月証、富原工弥、清家伸康、日本農薬学会第45回大会（2020）、農薬の後作物残留リスク評価に関する研究 第26報 黄色土ほ場における土壌中農薬の挙動と作物への移行

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) 農薬ハンドブック2016(改定新版) (一社) 日本植物防疫協会
- 2) Y.Motoki, T.Iwafune, N.Seike, K.Inao and T.Otani: (2016)J. Agric. Food Chem. 64, 22, 4478-4486
- 3) Y.Motoki, T.Iwafune, N.Seike, T.Otani and Y.Akiyama: (2015)J. Pestic. Sci. 40, 4, 1-9

Ⅱ－５ 土壌中の作物可給性農薬の動態

宮城県農業・園芸総合研究所

園芸環境部

瀧典明（令和元年度のみ）

中村佳与（平成30～令和元年度）

千葉直樹（平成29～30年度）

吉田千恵（平成29年度のみ）

平成29～令和元年度年度研究経費（累計額）：10,920千円（研究経費は間接経費を含む）

（平成29年度：3,640千円、平成30年度：3,640千円、令和元年度：3,640千円）

〔要旨〕

農薬の後作物残留試験を実施する適切な条件（土壌種、季節）を提示するため、炭素含量の異なる4種類の土壌（砂丘未熟土、褐色低地土、褐色森林土、黒ボク土）において、logPowが異なる5種類の農薬（ジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチル）の作物可給性（水抽出）農薬の下方・水平移動及び作物（コマツナ）への移行について検討した。試験は異なる時期（春、初夏、秋）に実施し、季節変動も検討した。

土壌中の水抽出農薬は時期にかかわらず、下方・水平移動していることが明らかとなった。下方移動については、logPowが低い農薬ほど起こりやすい傾向であった。土壌種では、炭素含量の低い砂丘未熟土では降雨によって下方移動が生じやすく、作土層（0-10cm深）の土壌中半減期も他の土壌より短い傾向であった。また、農薬を処理した試験区から20cm離れたコマツナの農薬濃度が定量限界以上となったことから、水抽出農薬が水平移動した可能性が示唆された。

季節変動については、春において土壌吸着係数（Kd）の経時的な増加が遅くなり、土壌中半減期も長くなる傾向であった。コマツナ中濃度も春に高くなる傾向であったため、春は後作物残留するリスクが高いと考えられる。

以上のことから、後作物残留試験を実施する条件としては、水抽出農薬が下方・水平移動して、作物可給性が変化しやすい砂丘未熟土は適さず、また、時期としては後作物残留しやすい春が適していると考えられた。

〔キーワード〕

水抽出濃度、下方移動、水平移動、コマツナ、土壌間差

1. はじめに

現在、土壌に残留した農薬による作物の汚染、及びそれによる人への健康被害を防ぐため、土壌残留に係る農薬登録保留基準が設定されているが、この基準を満たして農薬登録されているにもかかわらず、後作物残留（前作に使用した農薬が土壌に残留し、次作の作物が吸収すること）が報告されている。これは、現行の農薬登録保留基準が、農薬の土壌残留性や作物移行性を考慮していないことや、後作物残留試験を実施する際の諸条件が不十分であることが原因として考えられる。したがって、後作物残留を未然に防止するためには、農薬登録申請時において後作物残留試験を実施すべきか否かのトリガーや、農薬の土壌残留性や作物移行性を考慮した後作物残留試験を実施するための適切な諸条件（季節、土壌種、作物種）を提案する必要がある。

2. 研究開発目的

これまでの研究（平成25～27年度環境研究総合推進費 5-1302）により、土壌に残留した農薬全てが植物体へと移行するのではなく、土壌水へ溶解した農薬（水抽出農薬）が植物体へと移行すること、有機炭素含量が少なく、農薬の土壌吸着が弱い砂丘未熟土では水抽出農薬の半減期が長くなること、土壌

吸着係数 (K_d) は時間経過に伴い増加し、土壤に吸着する割合が経時的に増加すること等を解明した。しかし、これらはほとんど容器内試験で得られた成果であり、気象条件の影響を強く受ける露地のほ場では異なる結果となる可能性がある。特に、水抽出農薬は降水等による土壤水の移動とともに土壤中を移動し、作物への移行性に影響を与えることが予想される。

そこで、本サブテーマでは、後作物残留試験を実施するための適切な諸条件を提示するため、異なる土壤種のは場において、3期（春作、初夏作、秋作）にわたる作物可給性（水抽出）農薬の下方・水平移動について明らかとし、後作物残留しやすい環境条件（季節、土壤種）を解明することを目的とする。

3. 研究開発方法

試験は、宮城県名取市にある宮城県農業・園芸総合研究所内の人工ほ場で行った。人工ほ場は、研究所開所（昭和 48 年）頃に作られたもので、炭素含量や土性が大きく異なる 4 種類の土壤（表 3.5.1）からなる。このうち、平成 29 年は砂丘未熟土及び褐色森林土、褐色低地土を用い、平成 30 年及び令和元年は、砂丘未熟土及び褐色森林土、黒ボク土を用いた。

供試薬剤は、logPow の異なる 5 種類の農薬（ジノテフラン、クロチアニジン、メタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチル）を用いた（表 3.5.2）。これらの薬剤を深さ 10cm までの土壤中濃度が 2mg/kg（トルクロホスメチルのみ 20mg/kg）となるように、有効成分濃度を 200 mg/L（トルクロホスメチルのみ 2g/L）に調整した混合液を平成 29 年 6 月 20 日に 1L/m² ずつじょうろで散布した。散布した薬液が乾いた後、手押式耕うん機で深さ 10cm まで耕起した。薬剤を処理した翌日にコマツナ「よかった菜」を条間 20cm となるよう播種し、発芽がそろそろまでの約 1 週間かん水を行った。また、農薬の水平移動を確認するため、試験区から 20cm 離れた位置（区画外）においても同様にコマツナを播種した。間引きは播種から約 2 週間後に、株間が 5cm になるよう行った。試験区は 1m²/区とし、3 反復で行った（図 3.5.1）。

表 3.5.1 供試土壤の性質

土壤群	pH (H ₂ O)	全炭素 %	CEC cmol _c /kg	土性
砂丘未熟土	7.0	0.31	5	砂土
褐色森林土	6.7	1.15	21	埴壤土
褐色低地土	6.4	1.44	16	砂質埴壤土
黒ボク土	6.4	6.01	27	壤土

注) 土壤群は農耕地土壤分類第3次改訂版（1995）¹⁾による。

栽培時期差を検討するため、平成 30 年は 9 月 18 日、令和元年は 4 月 9 日に農薬を散布し、同様に試験を行った。平成 30 年及び令和元年は、深さ 10cm までの土壤中濃度が 1mg/kg（トルクロホスメチルは 5mg/kg）となるように、土壤の仮比重に応じて有効成分を調整した混合液を 1L/m² ずつ散布した（表 3.5.3）。土壤は経時的に調査を行った（表 3.5.4）。直径 5cm の円柱試料採取器（HS-30、藤原製作所）に長さ 30cm の透明円筒管を入れ、深さ 30cm までの土壤を 1 区から 3 か所ずつ採取した。令和元年は、処理区 1 の区画外のコマツナを播種した畝からも 2 か所ずつ採取した。採取した土壤は、深さ 0-10cm、10-20cm、20-30cm に切り分けた後、3 か所分（区画外は 2 か所分）を混合して 2mm のふるいに通した。このうち、乾土 5g 相当をガラス容器にとり、0.01mol/L 塩化カルシウム溶液を 25mL 加えて暗条件で 16 時間振とうして抽出した（水抽出）。2000rpm で 20 分間遠心分離を行った後、上澄み 15mL をけいそう土カラムに入れてジクロロメタン 100mL（平成 30 年及び令和元年は酢酸エチル 150mL）に転溶した。精製はフロリジルカラムで行い、ジノテフラン及びクロチアニジンは高速液体クロマトグラフ（Agilent 1200 series）で、メタラキシル M 及びプロシミドン、トルクロホスメチルはガスクロマトグラフ（Agilent 6800 series）で測定した。上澄液を採取した残りの土壤は、アセトン 30mL を加えて 20 分間振とうし、2000rpm で 20 分間遠心分離を行った後、上澄液を採取した。これをさらに 2 回繰り返して、上澄液を合わせたものを溶媒抽出液として、塩化カルシウム溶液と同様に転溶及び精製を行って、農薬を測定した。

表 3.5.2 供試薬剤（平成 29 年度）

製剤名	有効成分	logPow	有効成分 含有量（％）	土壌中濃度設定値 (mg/kg)	有効成分必要量 (g/m ²)
スタークル顆粒水溶剤	ジノテフラン	-0.549	20	2	0.20
ダントツ水溶剤	クロチアニジン	0.7	16	2	0.20
リドミルゴールドMZ	メタラキシルM	1.71	3.8	2	0.20
スミレックス水和剤	プロシミドン	3.3	50	2	0.20
リゾレックス水和剤	トルクロホスメチル	4.56	50	20	2.00

表 3.5.3 供試薬剤（平成 30 年度及び令和元年度）

製剤名	有効成分	logPow	有効成分 含有量（％）	土壌中濃度設定値 (mg/kg)	有効成分必要量 (g/m ²)		
					砂丘未熟土	褐色森林土	黒ボク土
スタークル顆粒水溶剤	ジノテフラン	-0.549	20	1	0.139	0.11	0.87
ダントツ水溶剤	クロチアニジン	0.7	16	1	0.139	0.11	0.87
リドミルゴールドMZ	メタラキシルM	1.71	3.8	1	0.139	0.11	0.87
スミレックス水和剤	プロシミドン	3.3	50	1	0.139	0.11	0.87
リゾレックス水和剤	トルクロホスメチル	4.56	50	5	0.695	0.55	4.35

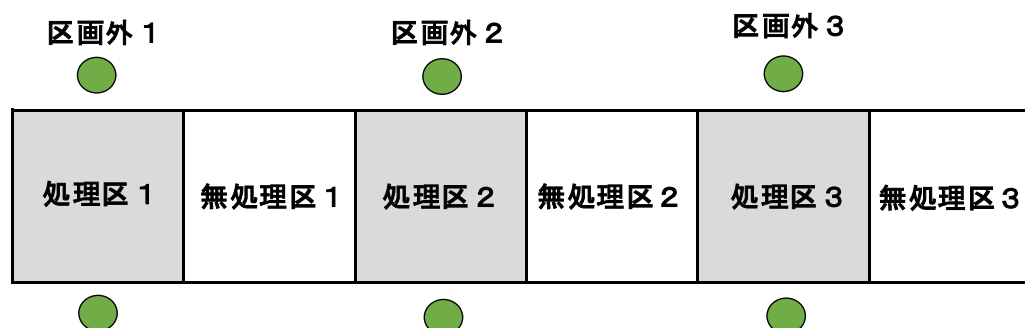


図 3.5.1 試験区の配置図

表 3.5.4 土壌及びコマツナの調査日

試験実施年度	試験時期	農薬 散布日	コマツナ 播種日	調査日	
				土壌	コマツナ
平成29年	初夏	6/20	6/21	6/20, 27, 7/4, 11, 19, 8/22	7/4, 11, 19
平成30年	秋	9/18	9/19	9/18, 20, 26, 10/3, 18, 25	10/3, 17, 24
令和元年	春	4/9	4/10	4/9, 11, 17, 24, 5/8, 15, 22	5/7, 14, 20

コマツナの調査は3回行った。1回目は間引時、2回目は草丈が出荷規格となったとき、3回目は2回目の調査から約1週間後で出荷規格よりやや大きめとなったときに行った。土壌によって生育が異なったため、2回目は2種類の土壌で草丈が18cm以上となったときに調査を行った。なお、宮城県の出荷規格は、S規格は18～21cm、M規格は21～24cm、L規格は24～27cmである。コマツナは収穫後、粗くきざんでアセトン100mLを加え、ホモジナイザーを用いて2分間混合した。吸引ろ過後、土壌と同様にジクロロメタン100mL（平成30年及び令和元年は酢酸エチル150mL）に転溶した。精製は、GC-eミニカラム（ジノテフラン及びクロチアニジンはGC-e/NH₂ミニカラム）及びフロリジルカラムを用いて行い、土壌と同様に測定を行った。

4. 結果及び考察

散布直後（0日後）または散布2日後の土壌中全濃度（水抽出及びアセトン抽出の含量）は、設定濃

度に対して、平成 29 年は 44～216%（砂丘未熟土 44～106%、褐色森林土 71～216%、褐色低地土 69～150%）、平成 30 年は 19～128%（砂丘未熟土 19～42%、褐色森林土 44～128%、黒ボク土 38～122%）、令和元年は 49～129%（砂丘未熟土 49～84%、褐色森林土 61～129%、黒ボク土 61～88%）となった。散布直後の土壌中濃度は砂丘未熟土で低くなる傾向であったが、試験は概ね適切に開始されたと考えられる。

平成 29～令和元年の試験における表層 0-10cm の水抽出濃度は、ほとんどの農薬において緩やかに減衰する傾向を示した（図 4.5.1、図 4.5.3、図 4.5.5）。水抽出農薬の下方への移動は、農薬の log Pow に強く影響を受けていた。例えば、平成 30 年では log Pow が比較的低いジノテフラン及びクロチアニジン、砂丘未熟土の下層 20-30cm 深で定量限界以上の濃度が確認され、下層 20-30cm 深まで移動していることが明らかとなったが、メタラキシルM及びプロシミドン、トルクロホスメチルは定量限界未満で下層 20-30cm 深への移動は確認されなかった。令和元年では、ジノテフランは散布 2 日後には砂丘未熟土や黒ボク土の下層 20-30cm 深で定量限界以上の濃度が確認されたが、クロチアニジンは散布 29 日後に、メタラキシルM及びプロシミドンは散布 36 日後に砂丘未熟土の下層 20-30cm 深で定量限界以上の濃度が確認され、log Pow が低い農薬ほど下層 20-30cm 深で定量されるまでの日数が早い傾向であった。

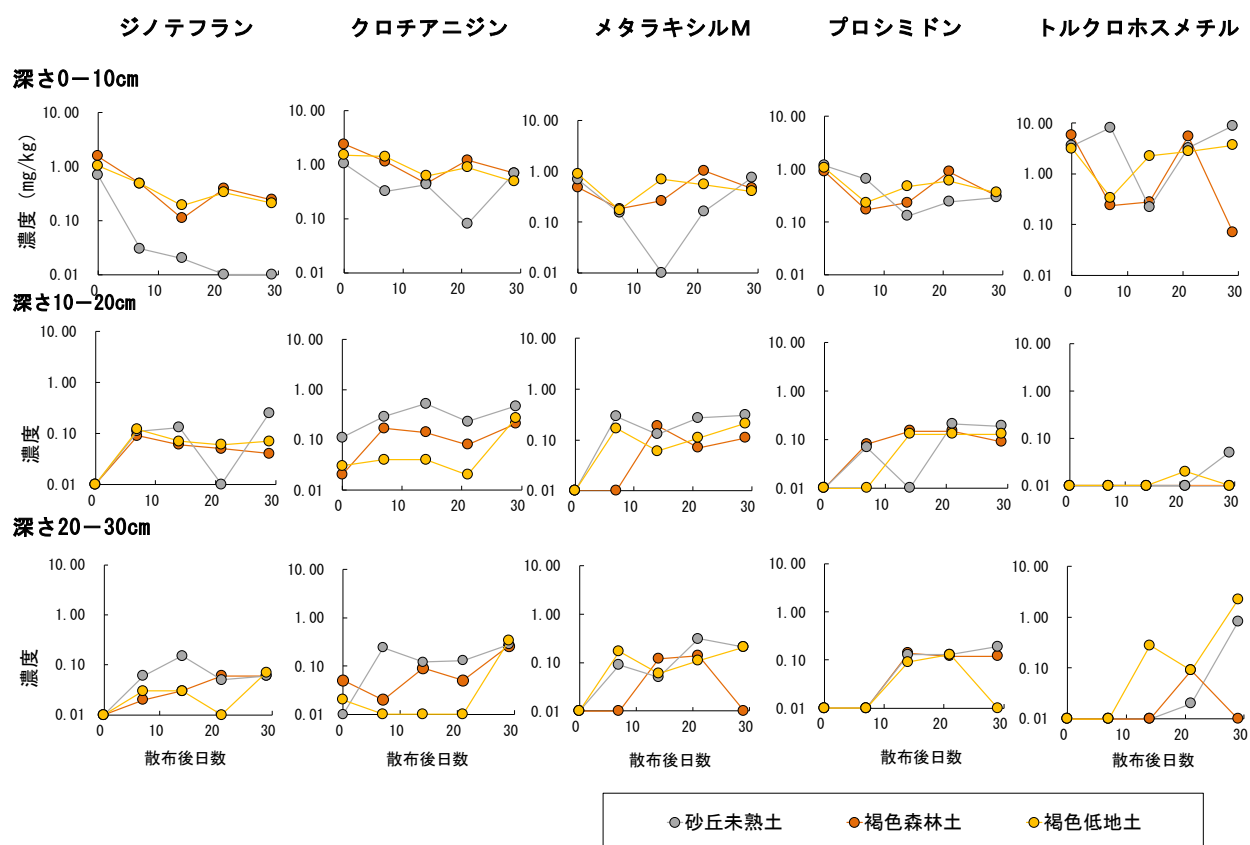


図 4.5.1 水抽出濃度の推移（平成 29 年初夏）

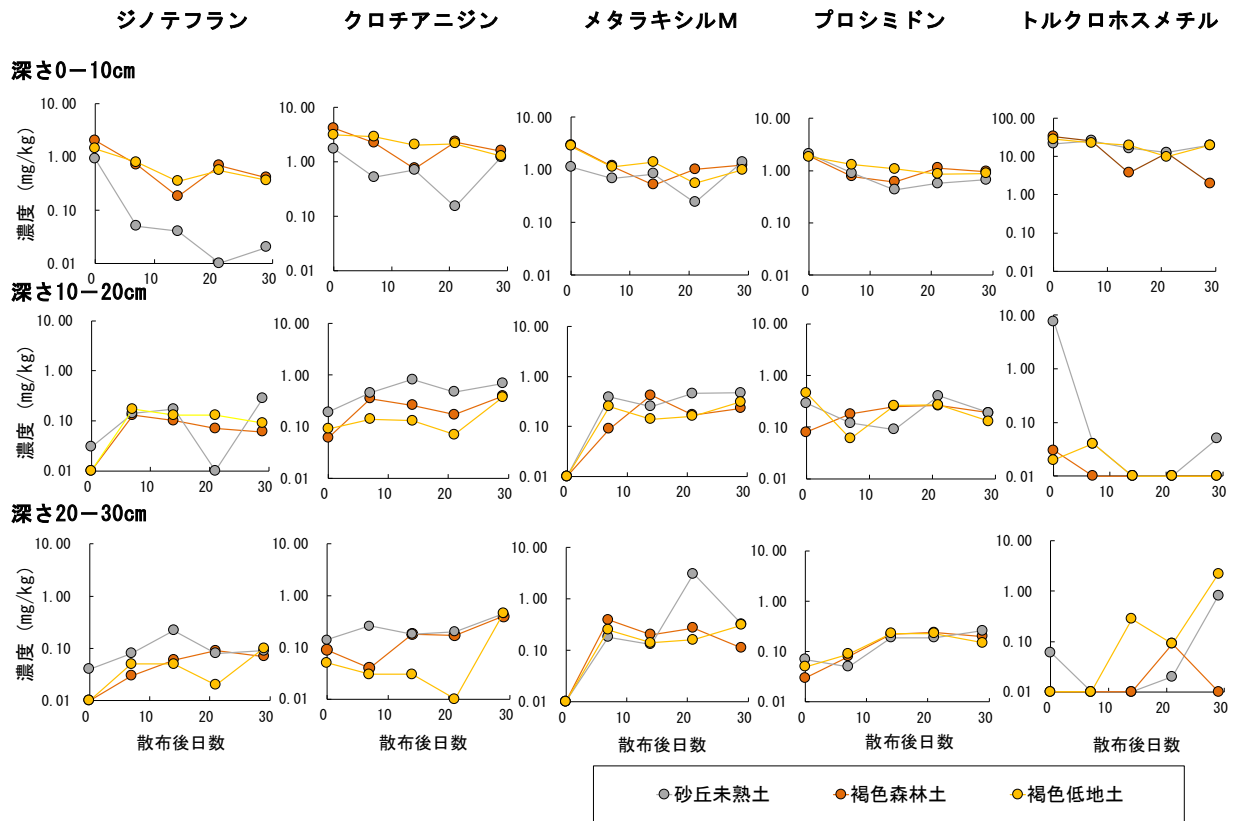


図 4.5.2 全量濃度の推移 (平成 29 年初夏)

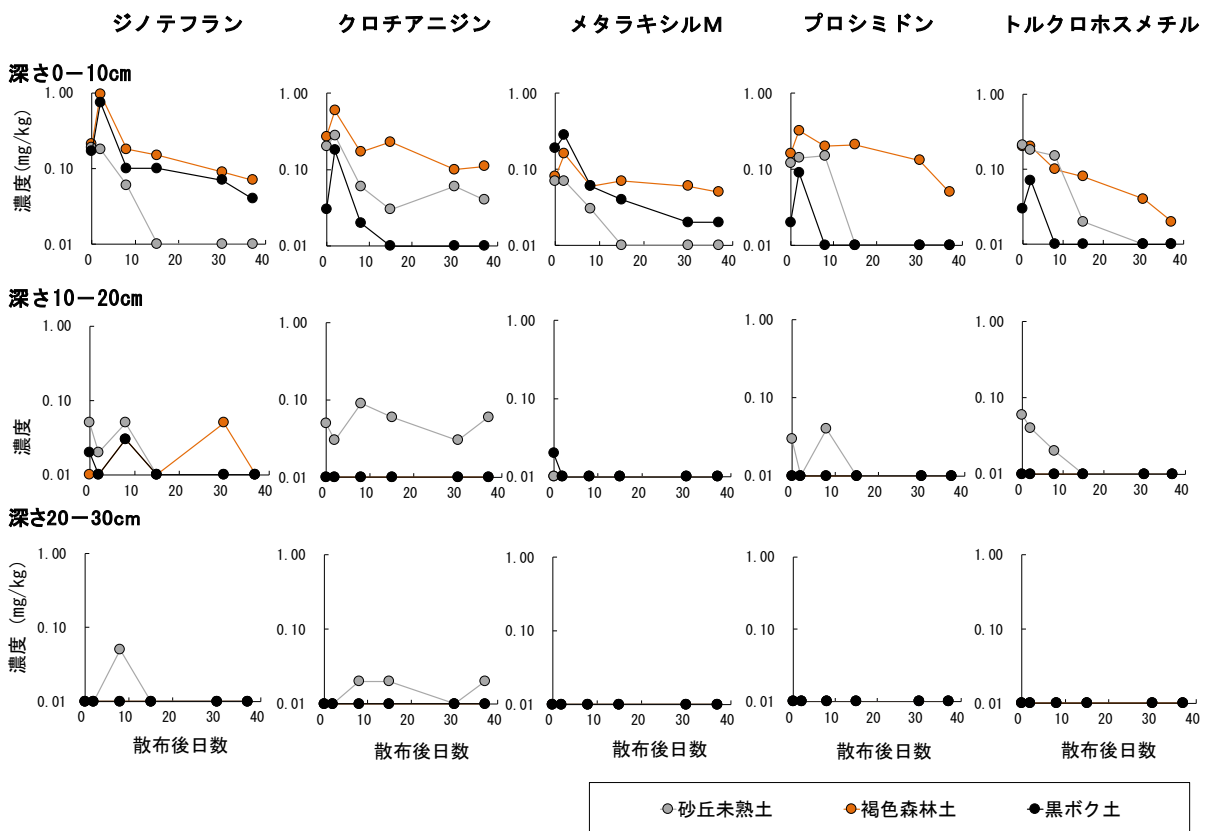


図 4.5.3 水抽出濃度の推移 (平成 30 年秋)

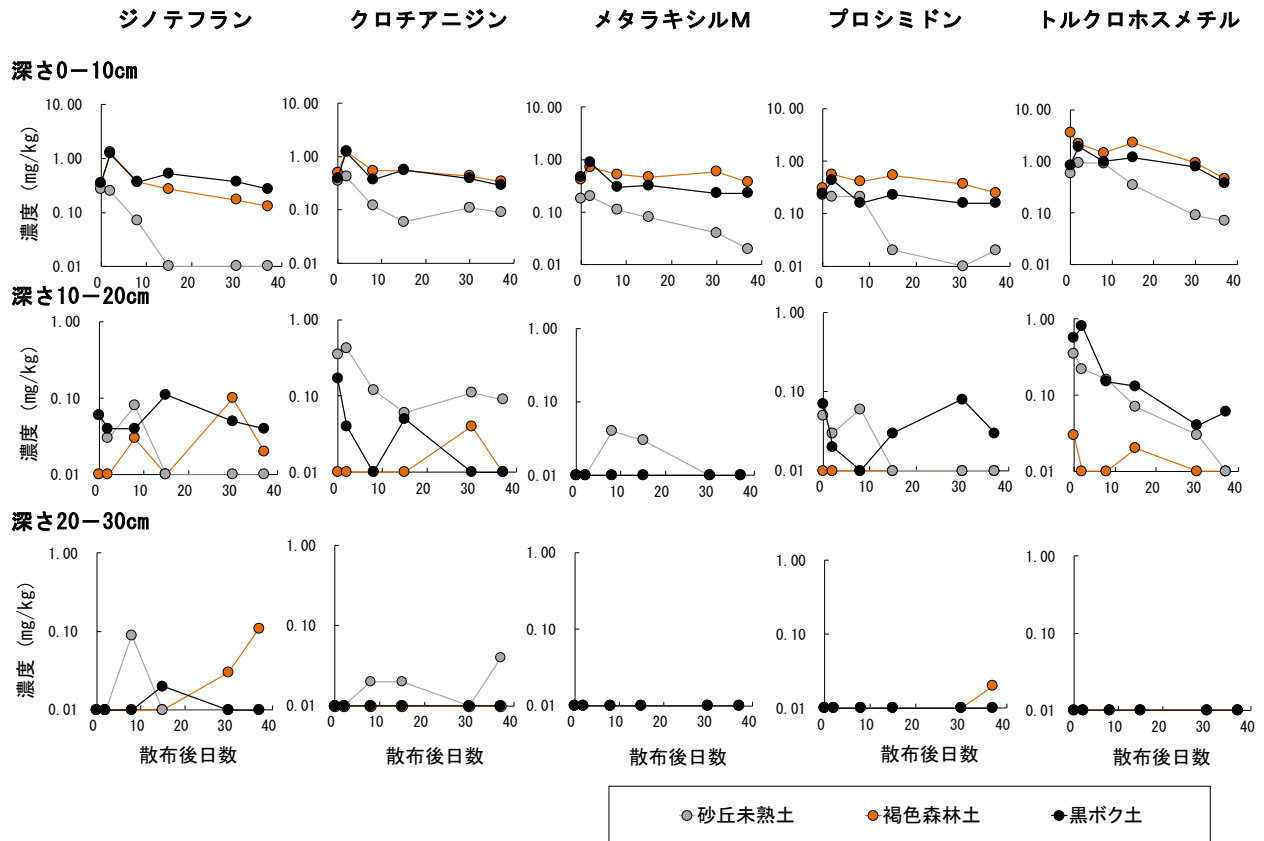


図 4.5.4 全量濃度の推移 (平成 30 年秋)

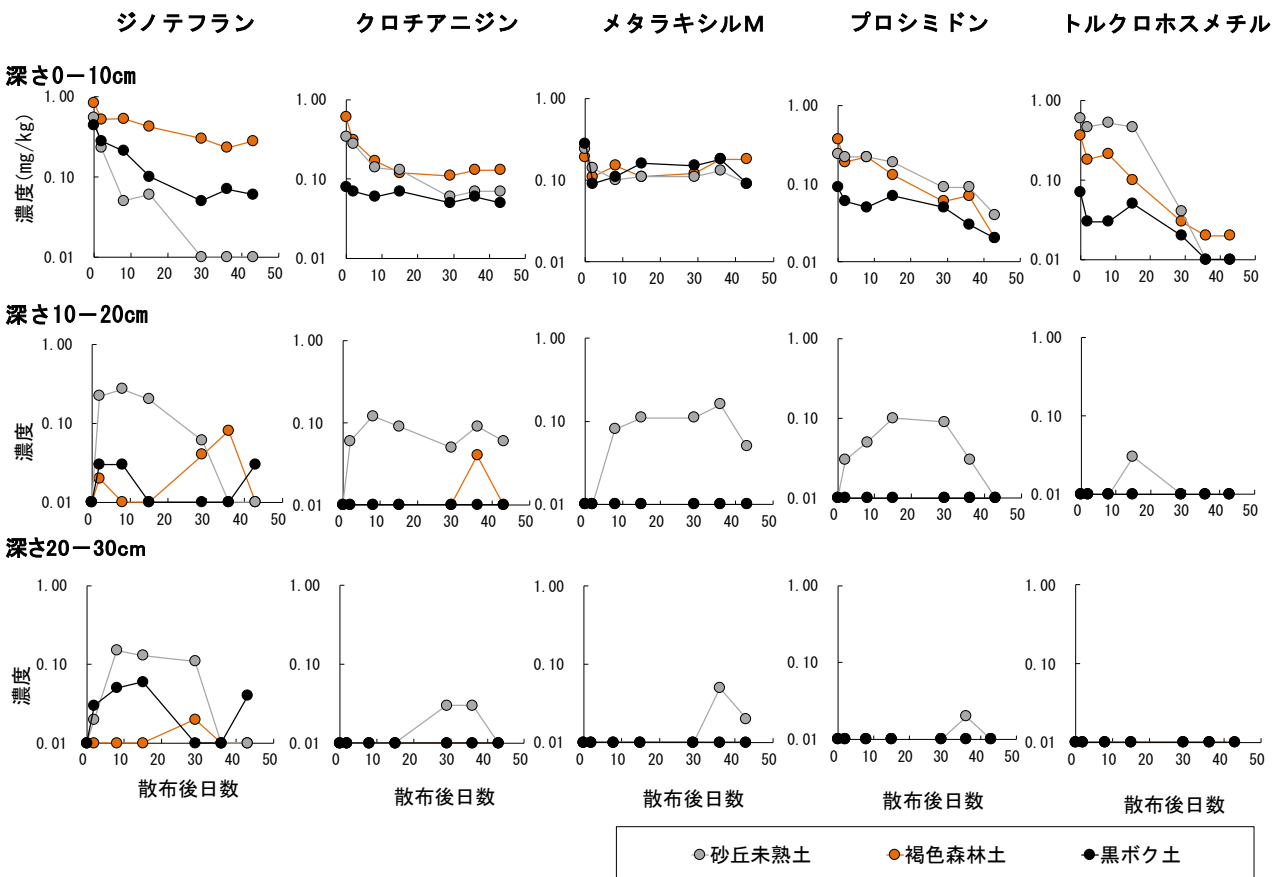


図 4.5.5 水抽出濃度の推移 (令和元年春)

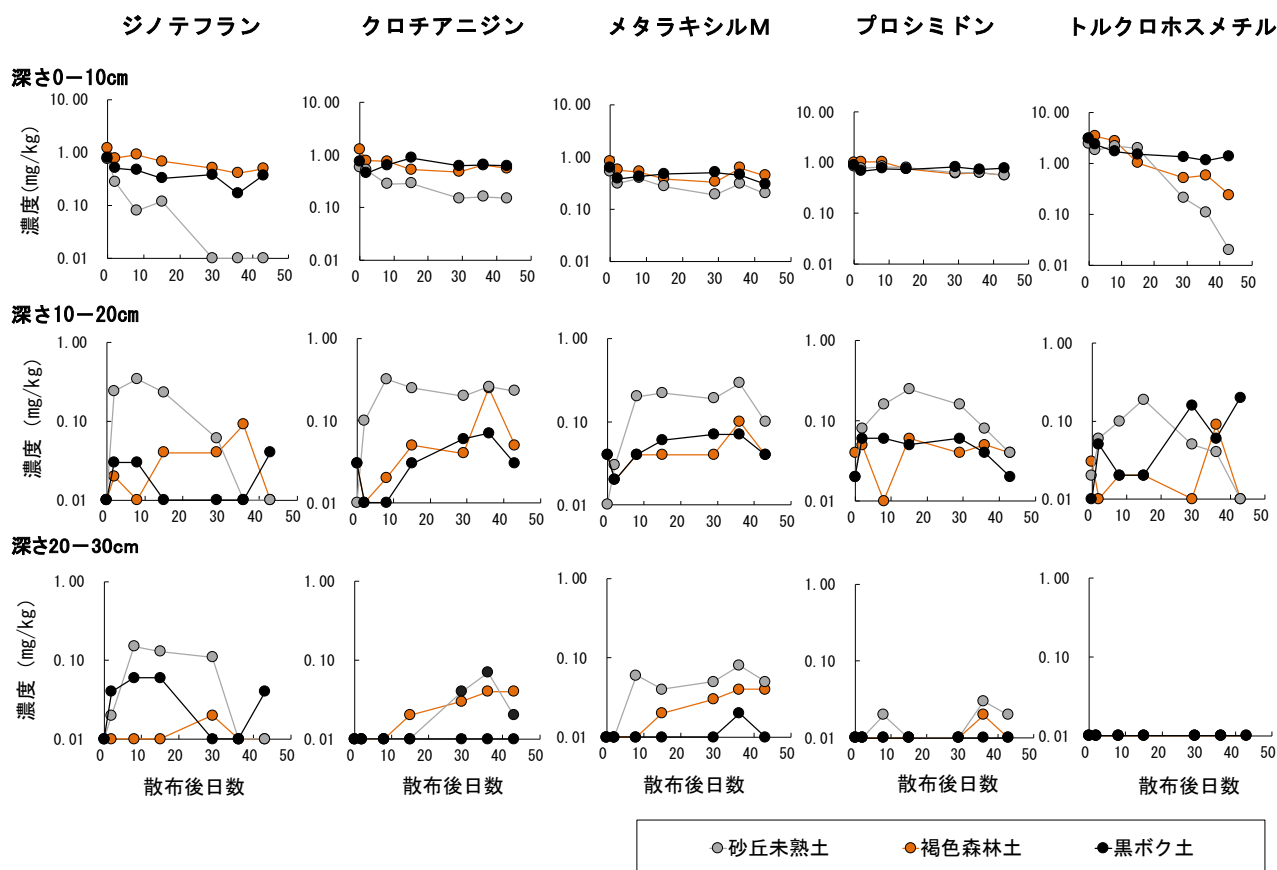


図 4.5.6 全量濃度の推移（令和元年春）

土壌の種類によっても、水抽出農薬の下方への移動は異なる傾向を示した。特に砂丘未熟土では、他の土壌よりも水抽出農薬が下方へ移動しやすいことが明らかとなった。log Pow が最も低いジノテフランは、下層への移動が顕著であった。平成 29 年では、砂丘未熟土の表層 0-10cm において散布 14 日後以降は定量限界未満となったが、下層 10-20cm 深及び 20-30cm 深では散布 14 日後以降も定量限界以上の濃度が確認されており、散布 12~15 日後の降雨等（図 4.5.7）により徐々に下層へと移動したものと考えられる。同様な傾向は平成 30 年及び令和元年でも見られたが、平成 30 年は散布 8 日後に下層 20-30cm 深で定量限界以上の濃度が確認された後、どの層においても定量限界未満となっていることから、かん水や散布 7 日後の降雨等によって徐々に下層へと移動し、散布 8 日後以降はその後の降雨によってさらに 30cm 以深へと移動した可能性がある。令和元年は、表層 0-10cm で定量限界未満となった後も下層 10-20cm 深及び 20-30cm 深で定量限界以上の濃度が確認されていたが、散布 29 日後以降はどの層においても定量限界未満となったため、平成 30 年と同様に 30cm 以深へと移動した可能性がある。

褐色森林土や褐色低地土、黒ボク土では、平成 29 年や令和元年において、下層 20-30cm 深で定量限界以上のジノテフランが確認され、下層 20-30cm 深までの移動は確認されたものの、砂丘未熟土のように表層 0-10cm で定量限界未満となることはなく、砂丘未熟土と異なる傾向を示した。

クロチアニジンやメタラキシルM、プロシミドン、トルクロホスメチルも、砂丘未熟土で移動しやすい傾向であり、平成 30 年及び令和元年の下層 10-20cm 深や 20-30cm 深において、褐色森林土や黒ボク土では定量限界未満であったのに対し、砂丘未熟土では定量限界以上の濃度となっていた。

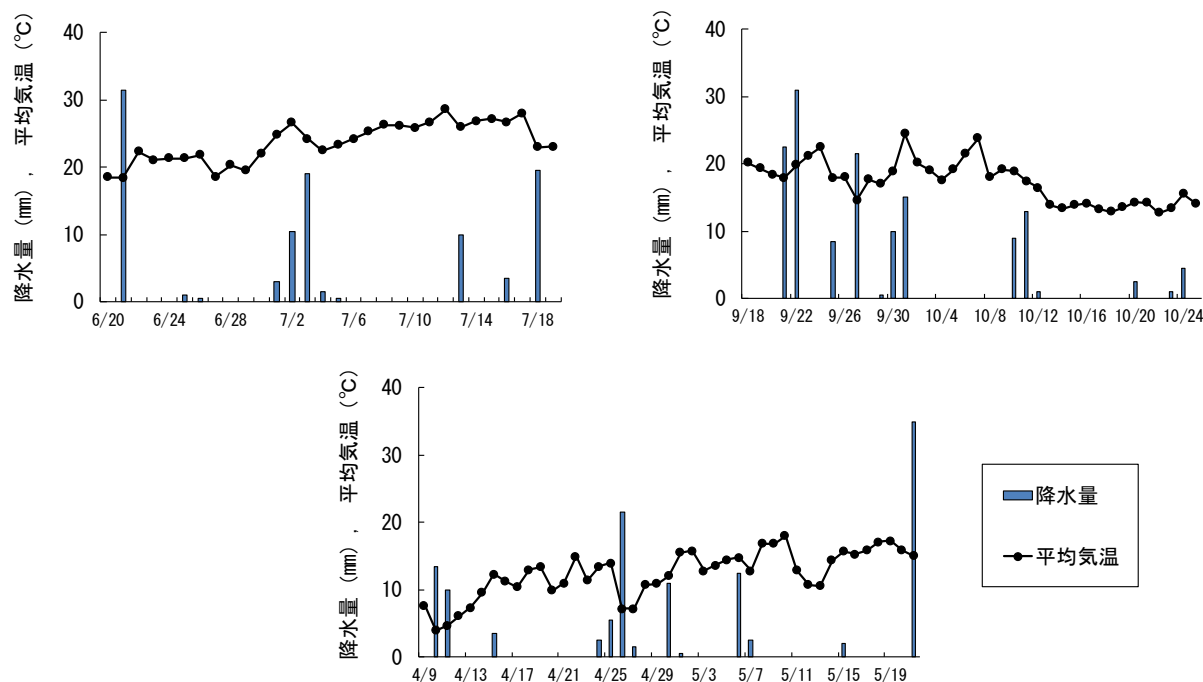


図 4.5.7 宮城県名取市の気象概要（左上：平成 29 年初夏、右上：平成 30 年秋、下：令和元年春）

水抽出農薬の下方移動について時期による差を検討するため、平成 29 年は初夏、平成 30 年は秋、令和元年は春に試験を実施した。傾向は異なるものの、どの時期においても下層 10-20cm 深及び 20-30cm 深でいずれかの農薬が確認されており、農薬が時期にかかわらず下層へ移動していたことが明らかとなった。平成 29 年（初夏）は全ての農薬において、3 種類の土壌の下層 10-20cm 深及び 20-30cm 深で定量限界以上の濃度が確認され、他の時期よりも農薬が移動しやすい傾向であったが、散布農薬量が 2 倍（トルクロホスメチルは 4 倍）であったことが影響している可能性がある。平成 30 年（秋）及び令和元年（春）を比較すると、平成 30 年（秋）には下層 20-30cm 深で全ての土壌において定量限界未満であったメタラキシル M やプロシミドンが、令和元年（春）には定量限界以上の濃度となっており、これらの農薬は平成 30 年（秋）よりも令和元年（春）で下層への移動が生じやすい状況であったと考えられる。一方で、ジノテフランは平成 30 年（秋）の方が早く 30cm 以深へと移動したが、平成 30 年（秋）は試験前半に降雨が多かったため、一気に 30cm 以深へと移動したものと考えられる。

全量濃度は、水抽出濃度よりも高く推移する傾向であった（図 4.5.2、図 4.5.4、図 4.5.6）。平成 29 年は水抽出濃度と同様な傾向を示したが、平成 30 年及び令和元年の下層 10-20cm 深及び 20-30cm 深では、水抽出濃度では定量限界未満となった土壌や農薬でも、全量濃度が確認されたものがあつた。平成 30 年では、黒ボク土の下層 10-20cm 深で散布直後（0 日後）から全ての農薬が確認されており、移動によるものだけでなく、耕起によって下層へ混入した可能性も否定できなかった。令和元年は、褐色森林土の下層 20-30cm 深でクロチアニジンやメタラキシル M、プロシミドンが、黒ボク土の下層 20-30cm 深ではメタラキシル M が確認されており、これらの農薬は水抽出濃度では定量限界未満であったものの、下層へ移動していたと考えられる。

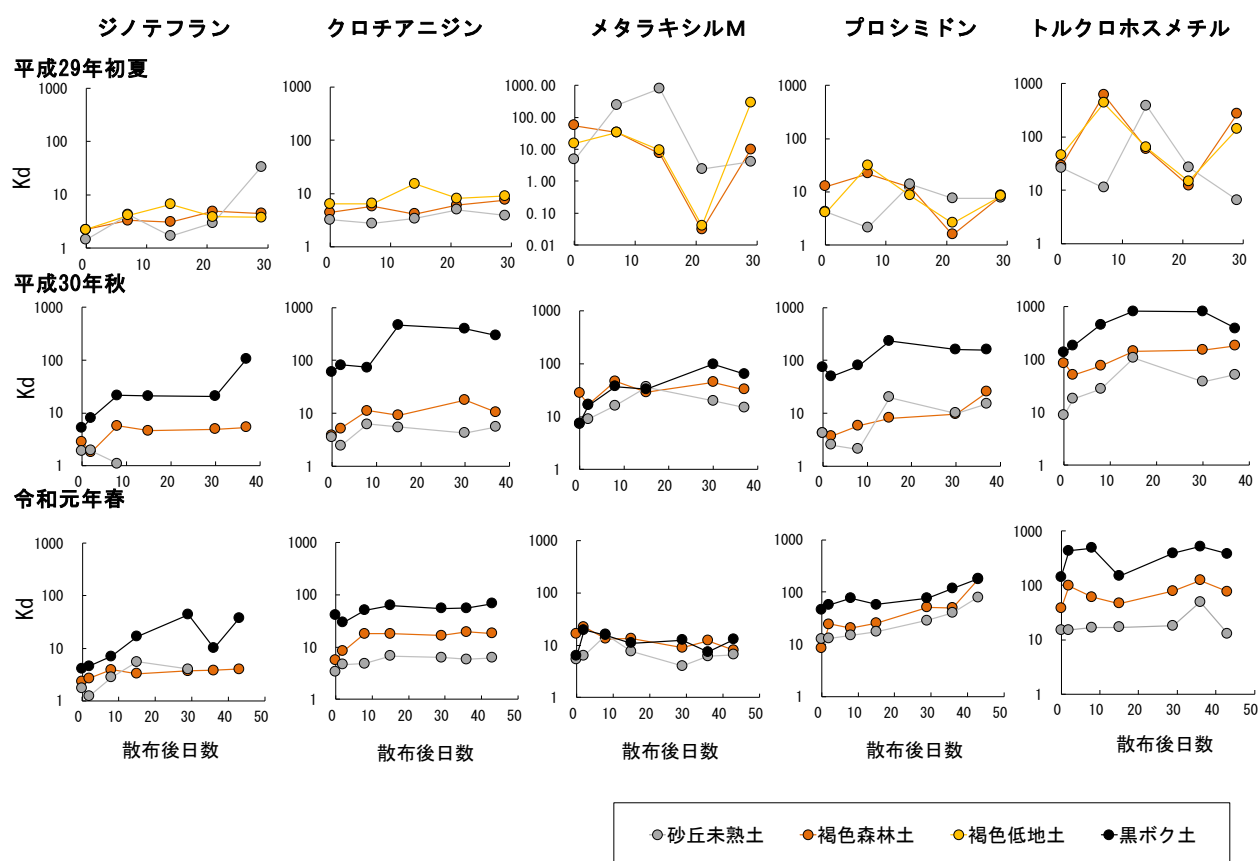


図 4.5.8 表層 0-10cm における土壌吸着係数 (K_d) の推移 (平成 29～令和元年)

表層 0-10cm の土壌吸着係数 (K_d) は、平成 29 年は変動が大きいため傾向は判然としなかったが、平成 30 年及び令和元年は log Pow が高い農薬ほど高くなる傾向であった (図 4.5.8)。また、メタラキシル M 以外の農薬では時間の経過とともに高くなる傾向であった。土壌の種類を比較すると、平成 29 年では差は判然としなかったが、平成 30 年及び令和元年では、メタラキシル M 以外の農薬において、黒ボク土が最も高く、次いで褐色森林土、砂丘未熟土となり、土壌炭素含量が多い土壌ほど K_d が高い傾向であった。このため、砂丘未熟土では土壌炭素含量が低く、土壌への吸着量が少ないため、下方への移動が生じやすいと考えられる。

時期を比較すると、褐色森林土のプロシミドンを除き、令和元年 (春) よりも平成 30 年 (秋) の方が、早い時期に高くなる傾向であった。元木ら (2016)²⁾ は、農薬の土壌吸着の経時的な増加は高温下で促進されるとしており、令和元年 (春) は試験期間中の平均気温が 12.5℃ だったのに対し、平成 30 年 (秋) の試験期間中の平均気温は 17.3℃ と高かったことが影響している可能性がある。

表 4.5.1 水抽出における土壌中半減期

土壌群	試験実施年度	試験時期	ジノテフラン	クロチアニジン	メタラキシルM	プロシミドン	トルクロホスメチル
			(日)				
砂丘未熟土	平成29年	初夏	4.6±0.8	14.9	112.1	18.0±14.6	—
	平成30年	秋	6.9±0.1	18.5±10.2	10.3±1.4	6.7±0.7	7.0±0.7
	令和元年	春	6.5±0.3	18.8±2.5	107.4±76.8	19.6±8.0	6.2±0.3
褐色森林土	平成29年	初夏	13.7±2.4	22.3±6.4	—	32.8	9.0±4.4
	平成30年	秋	11.3±1.5	14.9±1.3	29.9±3.8	12.3±3.1	19.4±15.9
	令和元年	春	29.6±7.3	25.3±4.6	83.9	12.8±3.6	10.1±2.0
黒ボク土	平成30年	秋	22.2±15.2	9.6±3.5	10.4±3.8	18.7±11.1	11.5±3.4
	令和元年	春	15.5±6.3	83.5±53.2	126.1	29.5±5.7	23.7±5.5
褐色低地土	平成29年	初夏	15.4±6.5	20.7±6.6	17	51.9±24.6	51.5

注) 平均値±標準偏差を示す。標準偏差の記載が無い値については1区もしくは2区の平均値を示す。

表 4.5.2 全濃度における土壌中半減期

土壌群	試験実施年度	試験時期	ジノテフラン	クロチアニジン	メタラキシルM	プロシミドン	トルクロホスメチル
			(日)				
砂丘未熟土	平成29年	初夏	5.8±3.4	15.5	35	21.3±8.3	28.3
	平成30年	秋	7.9±0.2	21.1±12.6	10.4±0.4	8.1±0.6	8.2±1.1
	令和元年	春	7.2±0.3	22.4±5.4	64.0±49.4	82.3±30.0	6.4±0.6
褐色森林土	平成29年	初夏	18.3±7.0	45.5±39.2	32.9±16.1	35.9	7.2±2.5
	平成30年	秋	13.7±2.9	26.3±7.0	78.2±51.8	40.4±15.2	16.4±5.0
	令和元年	春	39.1±18.1	52.3±13.0	168.7±171.9	47.7±11.1	12.0±1.9
黒ボク土	平成30年	秋	11.5	35.1	44.5±343	41	48.3±50.2
	令和元年	春	39.1±18.3	329.9	127.1±45.7	—	57.8±42.2
褐色低地土	平成29年	初夏	17.9±9.1	27.1±10.8	19.2±2.1	31.3±12.7	78.1±94.3

注) 平均値±標準偏差を示す。標準偏差の記載が無い値については1区もしくは2区の平均値を示す。

土壌中半減期は、一反応速度式で算出した(表 4.5.1)。表層 0-10cm の水抽出濃度の土壌中半減期は、土壌や時期によって傾向が異なり、農薬の logPow との関係は判然としなかった。土壌の種類を比較すると、いずれの時期においても、砂丘未熟土で短い傾向を示す農薬が多く、特にジノテフランでは短くなった。これまでの研究(平成 25~27 年度環境研究総合推進費 5-1302)において、容器内試験では水抽出農薬の土壌中半減期は炭素含量が少ない土壌ほど長くなるということが明らかとなったが、今回の試験はそれとは異なる結果となった。砂丘未熟土では、露地のほ場条件では降雨等により水抽出農薬が下層へと移動するため、表層 0-10cm の減衰が早くなると考えられる。

時期を比較すると、砂丘未熟土では明確にはならなかったが、褐色森林土や黒ボク土では、令和元年(春)で長い傾向を示す農薬が多かった。令和元年(春)は他の時期よりも気温が低かったため、微生物分解や加水分解、揮発、土壌吸着等の反応が遅くなり、土壌中半減期が長くなった可能性がある。

全量濃度における表層 0-10cm の土壌中半減期は、水抽出濃度よりも長くなる傾向で、土壌間差や季節間差等は、水抽出濃度における半減期とほぼ同様の傾向を示した(表 4.5.2)。Motoki ら(2016)³⁾は、水抽出濃度の半減期は全量濃度よりも短くなるとしており、今回の結果は同様な結果となった。

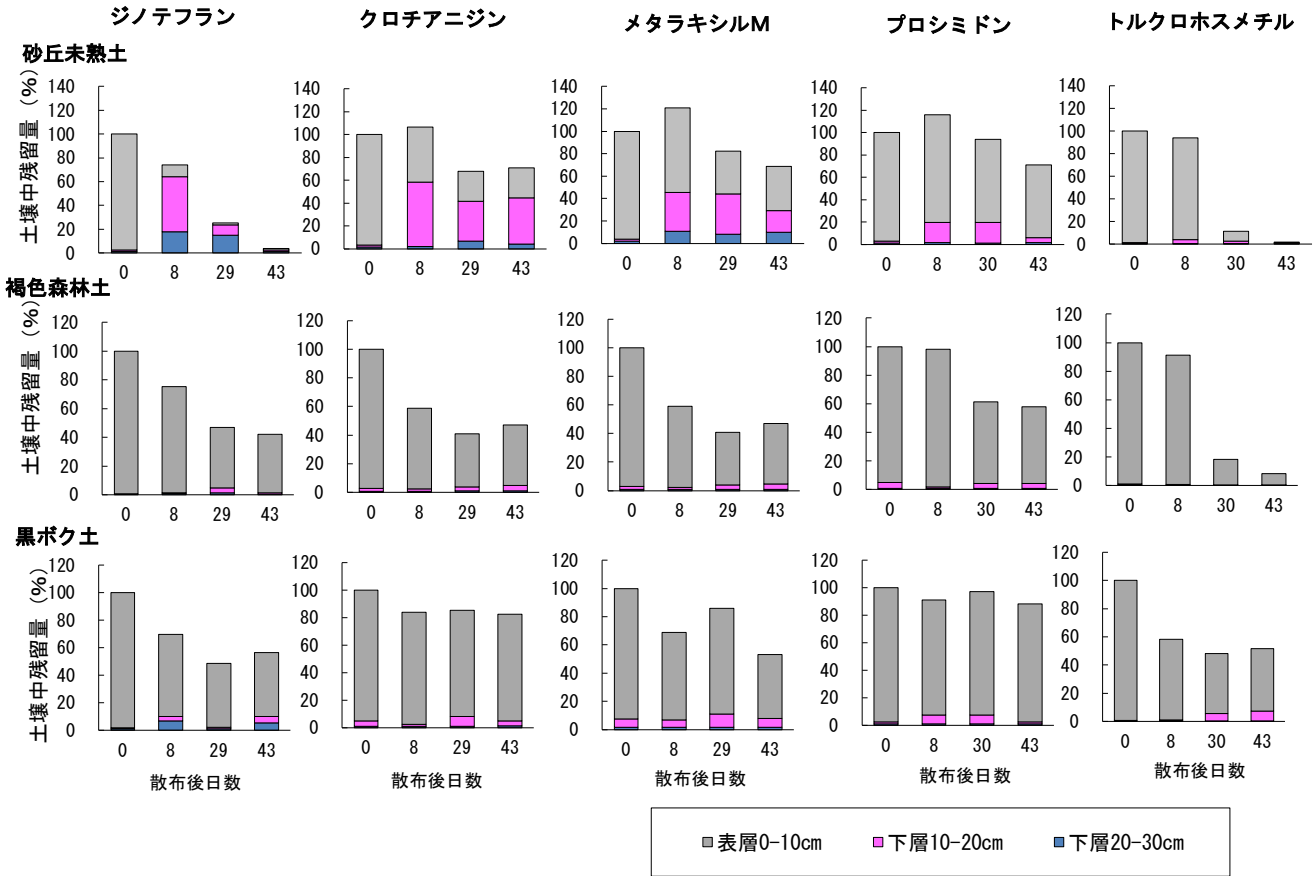


図 4.5.9 土壌中残留量の推移（令和元年春）

農薬の下層への移動量及び分解量を推定するため、令和元年の全量濃度から各層に残留する農薬量を求め、散布直後（0 日後）の農薬残留量に対する割合を算出した（図 4.5.9）。ジノテフランは、砂丘未熟土においては、散布 8 日後には表層 0-10cm に散布農薬量の約 10% しか残留しておらず、約 60% が下層へと移動していた。一方、褐色森林土や黒ボク土では、散布 43 日後においても散布したジノテフランの約 40% が表層 0-10cm に残留していた。クロチアニジンやメタラキシル M、プロシミドンも、褐色森林土や黒ボク土では散布 29 日後において下層 10-20cm 及び 20-30cm へ移動した割合が 10% 以下だったのに対し、砂丘未熟土では 20~40% と多かった。このため、log Pow が比較的低い農薬の作物への可給性を評価する際には、砂丘未熟土では下層へ移動した農薬も考慮する必要があると考えられる。また、log Pow が低いジノテフランのような農薬は下層へと移動しやすいため、作物の生育期間中に根域外へと移動して可給性が低くなる可能性も示唆された。

土壌中の水抽出農薬のコマツナへの移行性を調査するため、農薬散布翌日にコマツナを播種し、経時的に調査を行った。コマツナの生育は、どの時期においても砂丘未熟土で遅く、他の土壌で出荷サイズ（18cm 以上）となっても、砂丘未熟土では出荷サイズより小さかった（表 4.5.3）

表 4.5.3 出荷サイズにおけるコマツナの草丈

試験実施年度	試験時期	栽培期間	栽培日数	草丈（cm）			
				砂丘未熟土	褐色森林土	褐色低地土	黒ボク土
平成29年	初夏	6/21~7/11	20	14.0±0.3	22.1±1.9	24.6±0.6	—
平成30年	秋	9/18~10/17	29	15.3±1.0	25.2±1.2	—	24.6±1.0
令和元年	春	4/10~5/14	34	12.6±0.5	19.8±0.7	—	26.9±0.6

注）草丈は平均値±標準偏差を示す。

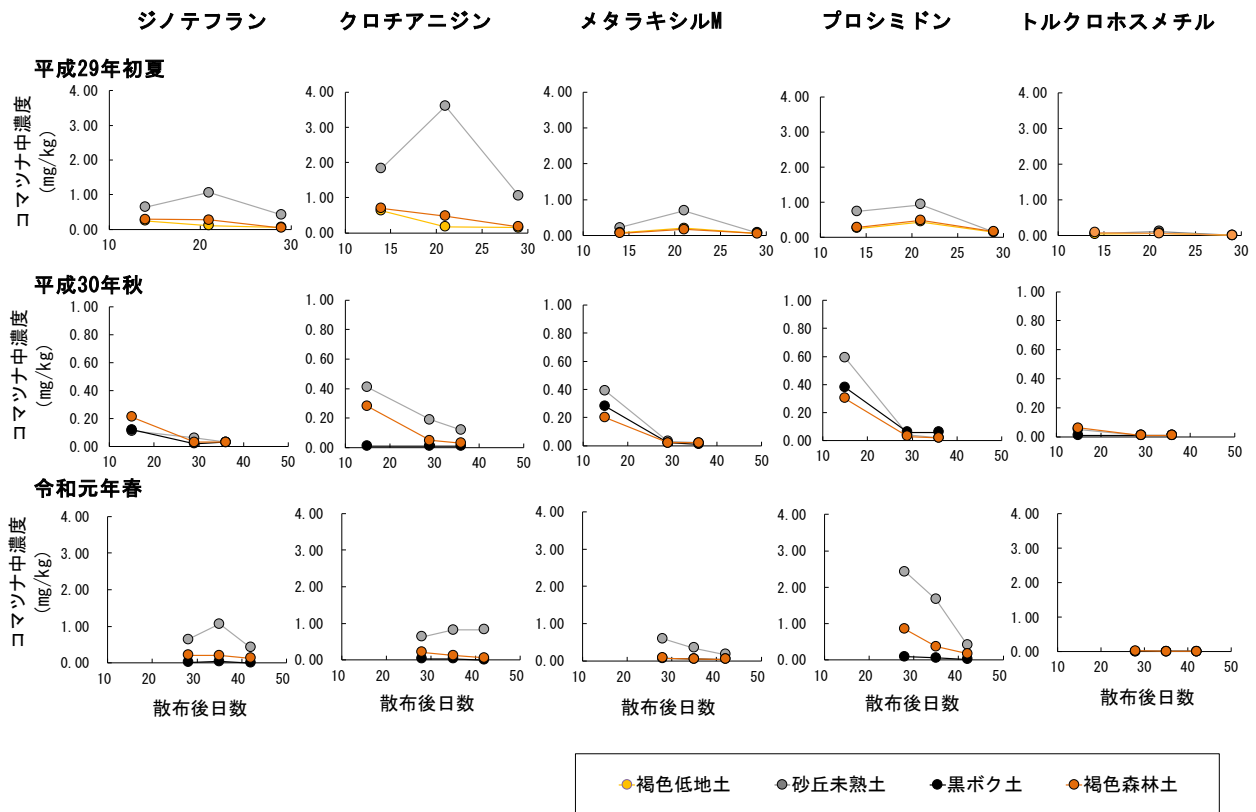


図 4.5.10 コマツナ中濃度の推移 (平成 29～令和元年)

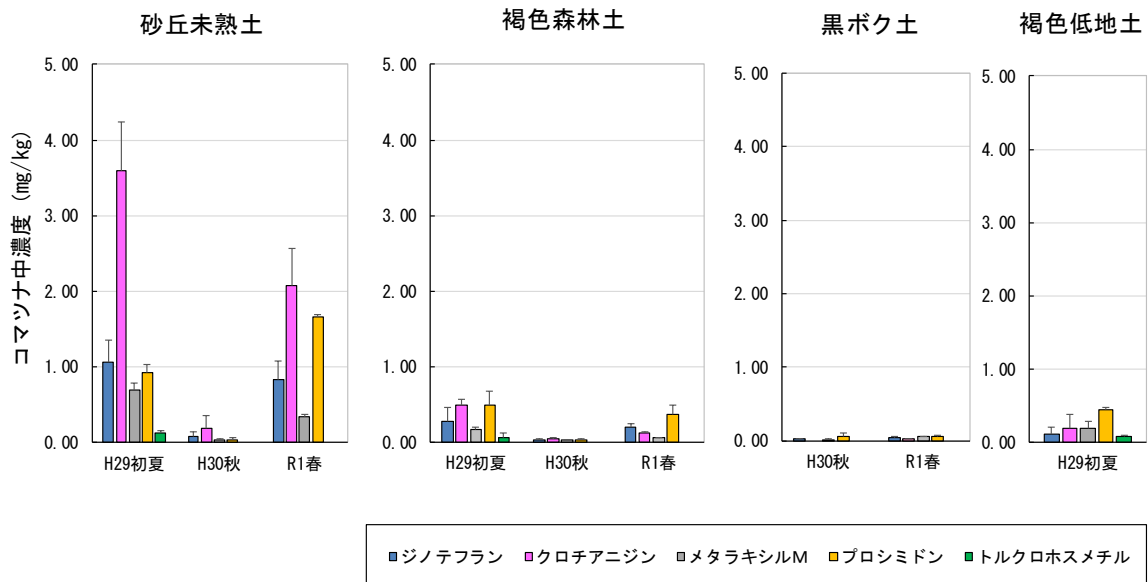


図 4.5.11 出荷サイズにおけるコマツナ中濃度の比較 (平成 29～令和元年)

コマツナ中濃度は、どの時期も概ね経時的に低下する傾向であったものの、農薬や土壌の種類によって傾向は異なった（図 4.5.10）。コマツナ中濃度には、土壌中の水抽出濃度の減衰やコマツナによる吸収速度、代謝等が影響するため、同じ傾向にならなかったものと考えられる。出荷サイズにおける農薬濃度は、クロチアニジンやプロシミドンで高くなる傾向であり、農薬の log Pow との関係は明確にはなかった。土壌を比較すると、砂丘未熟土で最も高くなり、次いで褐色森林土又は褐色低地土、黒ボク土の順となった（図 4.5.11）。コマツナは植物体が小さいと濃度が高くなる傾向にあるため（図 4.5.10）、砂丘未熟土で高くなったのは、コマツナが他の土壌よりも小さかったことが影響している可能性がある。時期を比較すると、平成 29 年（初夏）が最も高く、次いで令和元年（春）となり、平成 30 年（秋）が最も低くなる傾向であった。

コマツナ濃度と土壌中水抽出濃度との関係を検討するため、移行係数（コマツナ中濃度を散布直後及び収穫日前後の水抽出濃度の幾何平均で除したもの）を算出した（図 4.5.12、図 4.5.13）。下層へ移動した農薬を考慮するため、表層 0-10cm と、0-20cm 深の水抽出濃度の平均値からそれぞれ移行係数を算出したところ、0-20cm 深の水抽出濃度の平均値から算出した移行係数の方が高くなる傾向であった。砂丘未熟土では農薬が下層へと移動することから、0-20cm 深の水抽出濃度の平均値から算出した移行係数の方が土壌間差を比較するにはより適している可能性があると考えられるが、傾向は概ね変わらなかった。

移行係数は、コマツナ中濃度と同様な傾向を示し、砂丘未熟土で高くなる傾向であった。黒ボク土は他の土壌よりコマツナ中濃度が低くなる傾向であったが、移行係数は褐色森林土と同程度であったため、土壌中の水抽出濃度が低く推移したことによるものと考えられる。

時期を比較すると、砂丘未熟土では平成 30 年（秋）で低く、平成 29 年や令和元年（春）で高くなる傾向であったが、褐色森林土や黒ボク土ではプロシミドンを除いて時期による差は明確にはなかった。このため、褐色森林土や黒ボク土では、コマツナ中濃度が平成 30 年（秋）で低かった原因は、土壌中の水抽出濃度が低かったことによるものと考えられる。一方、砂丘未熟土では、平成 30 年（秋）で移行係数が低くなる傾向であったが、この原因についてはわからなかった。

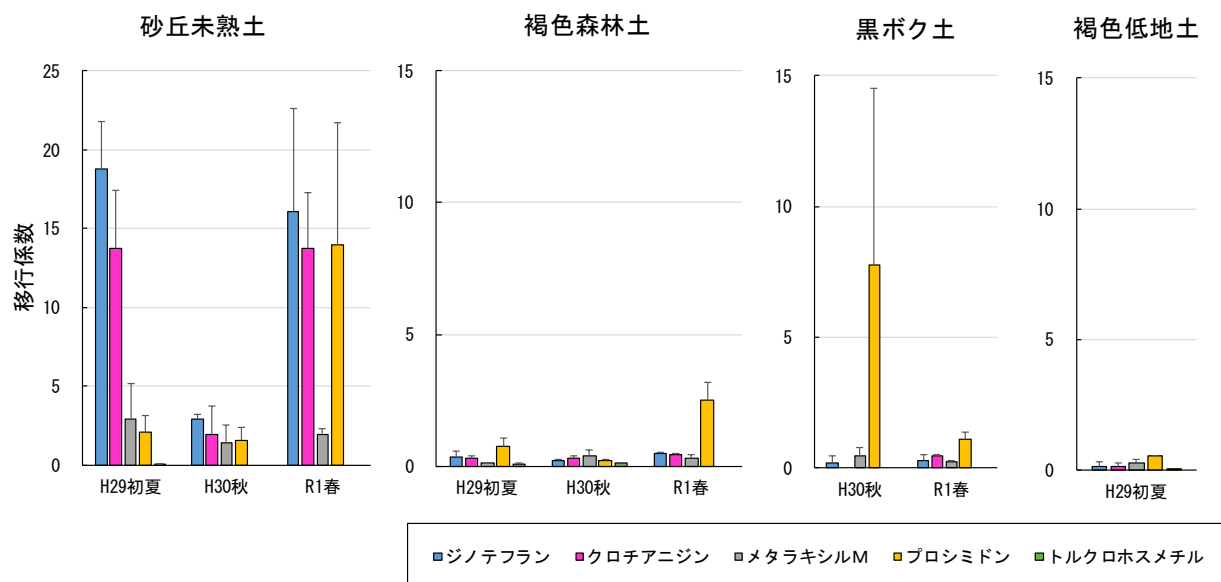


図 4.5.12 出荷サイズにおける移行係数（表層 0-10cm）（平成 29～令和元年）

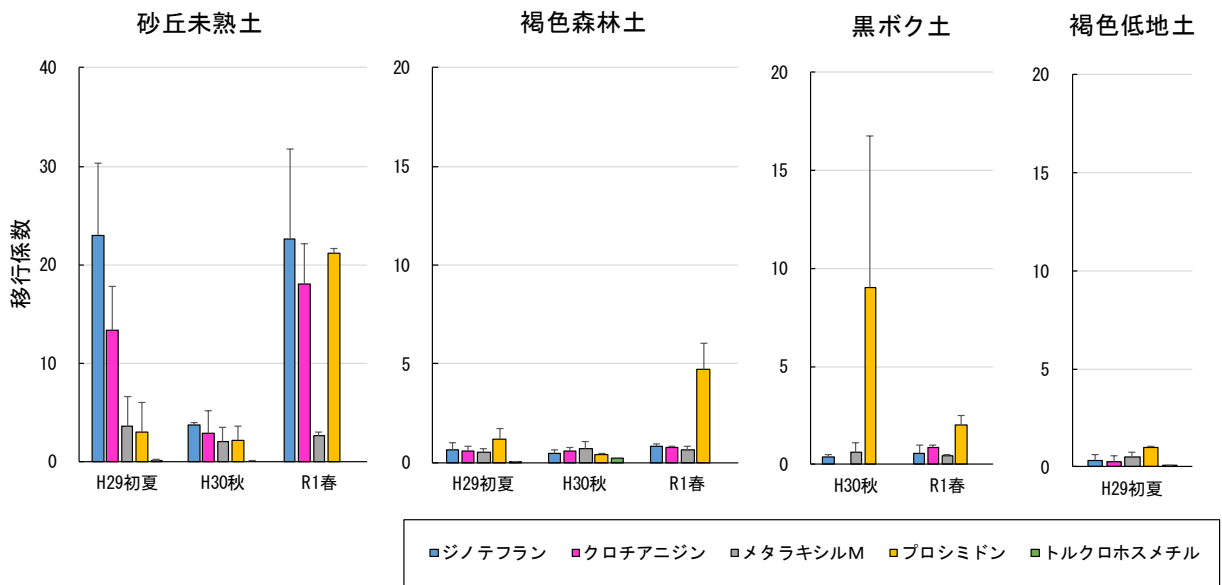


図 4.5.13 出荷サイズにおける移行係数（0-20cm 深）（平成 29～令和元年）

水抽出農薬の水平移動を確認するため、農薬を散布した処理区から 20cm 離れた位置にコマツナを栽培し（区画外）、コマツナ中の農薬濃度を調査した。区画外のコマツナは、平成 29 年及び令和元年に、砂丘未熟土においてトルクロホスメチル以外の農薬が定量限界以上の濃度となった（表 4.5.4）。また、平成 29 年は褐色低地土や褐色森林土において、クロチアニジンが定量限界以上の濃度となった。このことは、処理区外まで水平移動した農薬をコマツナが吸収した可能性を示唆するものと考えられる。また、令和元年に試験区から 20cm 離れた位置の土壌中の水抽出濃度を調査したところ、ジノテフランやクロチアニジン、メタラキシルMでは定量限界以上の濃度が確認された（図 4.5.14）。これは 1 区のみの結果であり、コマツナ中濃度との関係は低いものの、農薬が水平移動している可能性を示唆するものと考えられる。

表 4.5.4 区画外で栽培したコマツナ中農薬濃度

土壌群	試験実施年度	試験時期	ジノテフラン	クロチアニジン	メタラキシルM	プロシミドン	トルクロホスメチル
					(mg/kg)		
砂丘未熟土	平成29年	初夏	0.04±0.07	0.20±0.18	0.03±0.03	0.09±0.07	<0.01
	平成30年	秋	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
	令和元年	春	0.35±0.19	0.26±0.12	0.02±0.02	0.03±0.01	<0.01
褐色森林土	平成29年	初夏	<0.01	0.09±0.04	<0.01	<0.01	<0.01
	平成30年	秋	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
	令和元年	春	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
黒ボク土	平成30年	秋	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
	令和元年	春	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
褐色低地土	平成29年	初夏	<0.01	0.04±0.03	<0.01	<0.01	<0.01

注) 平均値±標準偏差を示す。

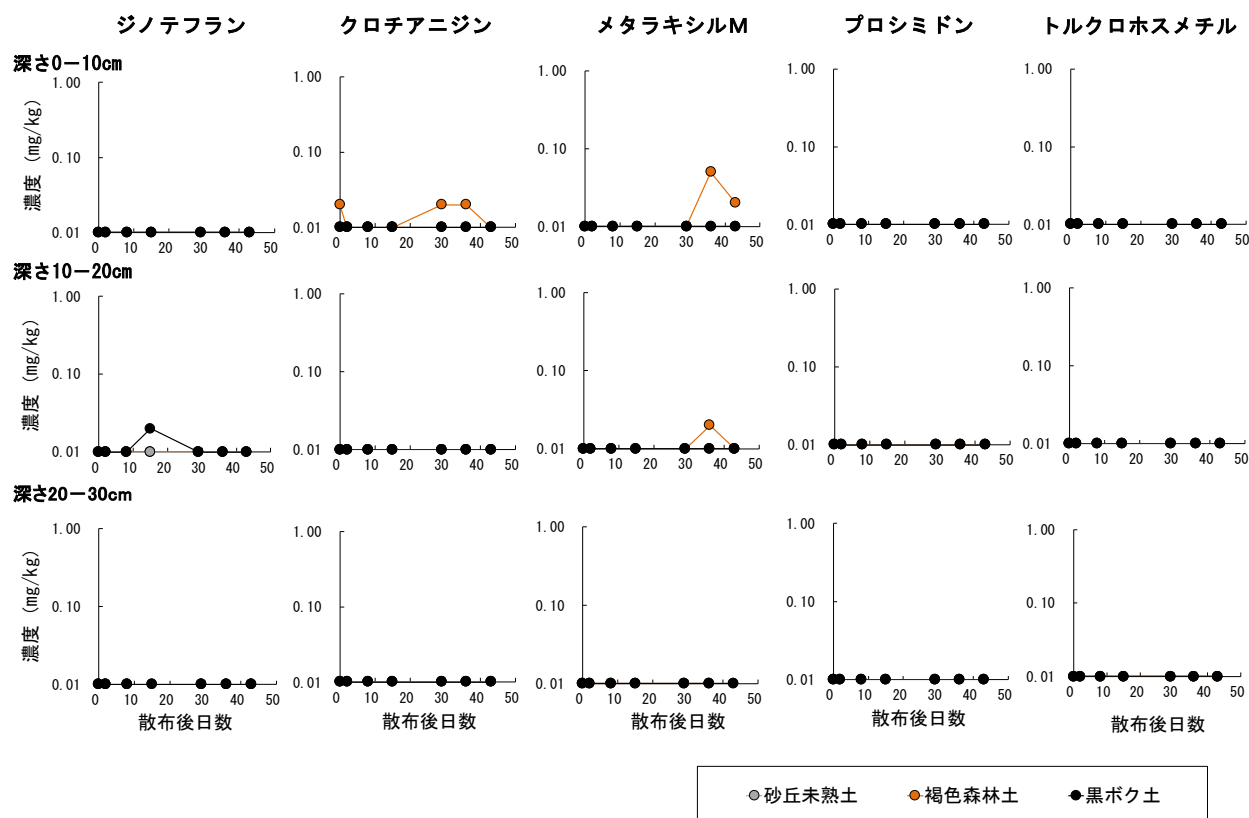


図 4.5.14 区画外における水抽出濃度の推移（令和元年春）

以上より、今回の試験によって水抽出農薬は下方移動していることが明らかとなった。また、試験区から 20cm 離れたコマツナからも農薬が検出され、水抽出農薬が水平移動した可能性も示唆された。水抽出農薬の下方移動は、log Pow が低い農薬や、炭素含量の低い砂丘未熟土で生じやすい傾向であった。このことは、砂丘未熟土は降雨等の環境条件により作物への可給性が変化しやすいことを意味し、後作物残留試験を実施するには適していないと考えられる。

季節変動については、春は秋よりも土壌中半減期が長くなる傾向で、コマツナ中濃度も春に高くなる傾向であった。このため、春は後作物残留するリスクが高い時期であり、後作物残留試験を実施する時期としては春が適していると考えられる。

5. 本研究により得られた成果

（1）科学的意義

本研究では、当初計画通り3期のは場試験を行い、作物可給性（水抽出）農薬は下方・水平移動が生じていることを示した。特に、砂丘未熟土では下方・水平移動が生じやすく、作物可給性に影響を与える可能性を示した。この結果はこれまでの室内試験とは異なるもので、科学的に意義深いものである。

（2）環境政策への貢献

サブテーマ①～⑤の結果をふまえ登録制度の提案を行う課題構成にしているため、I. 成果の概要およびサブテーマ①の本項に記載している内容に準ずるが、サブテーマ⑤でも農薬登録時の後作物残留に関する試験条件に対し、供試土壌、供試作物、供試時期などの要件決定のための基礎データが得られた。

＜行政が既に活用した成果＞

サブテーマ①に準ずるが、サブテーマ⑤独自では、特に記載すべき事項はない。

＜行政が活用することが見込まれる成果＞

農薬登録申請時に行う後作物残留に関する試験要件検討に活用する。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

＜論文（査読あり）＞

特に記載すべき事項はない。

＜査読付論文に準ずる成果発表＞

特に記載すべき事項はない。

＜その他誌上発表（査読なし）＞

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 中村佳与、瀧典明、永田悦祈、清家伸康：日本土壤肥料学会2019年度静岡大会（2019）「異なる土壤中における植物可給性農薬の動態」

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Motoki, Y., Iwafune, T., Seike, N., Otani, T., and Akiyama, Y. J. Pestic. Sci, (2015)
- 2) 農薬ハンドブック2016年版, 一般社団法人日本植物防疫協会

III. 英文Abstract

Proposal for Regulation to Avoid Pesticides Residue in Succeeding Crops

Principal Investigator: Nobuyasu SEIKE

Institution: National Agriculture and Food Research Organization

Institute for Agro-environmental Sciences

3-1-3 Kannondai, Tsukuba, 305-8604, JAPAN

Tel: +81-29-838-8329 / Fax: +81-29-838-8199

E-mail: seike@affrc.go.jp

Cooperated by:

Kochi Agricultural Research Center

Tokushima Agriculture, Forestry, and Fisheries Technology Support Center

Hyogo Prefecture Technology Center for Agriculture, Forestry, and Fisheries

Miyagi prefectural agriculture and horticulture research center

[Abstract]

Key Words: Pesticide, Residue in succeeding crop, Crop, Soil, Pesticide Regulation, Plant back interval(PBI), Simulation model

In Japan, the pesticide registration system is based on knowledge of the scientific studies performed in the last century, since then, approximately 100 new pesticides have been developed every year. Under this system for newly developed pesticides, data (or studies) for pesticide residues in succeeding crops are required only if the half-lives of pesticides in soils are longer than 100 days. However, some pesticides were recently detected in crops exceeding the maximum residue limits set by the Japanese Food Sanitation Law. One of the reasons for this could be that succeeding crops take up residual pesticides, which were applied to previous crops, from the soils. In this study, we proposed a new pesticide regulation system to avoid pesticide residue accumulation in succeeding crops.

Laboratory and field tests were performed to measure the pesticide concentrations in the succeeding crops and a simulation model for estimation of pesticide concentrations in the succeeding crops was constructed based on these data. The results showed that the pesticide concentrations in crops could exceed the residue limit (0.01 ppm) even with a short half-life in soil (< 5 days). After investigating of 16 plant species (arable crops in 9 families), it was found that the pesticide concentrations were higher in leaf vegetables such as Komatsuna and root vegetables such as Carrots. The half-lives of pesticides in soil were shortened in Sandy soil because they were leached to the lower soil layer by heavy rain. Furthermore, our data revealed that the half-lives of pesticides in soil were longer in spring and autumn than in summer, and the concentrations were higher in spring and autumn crops.

Our proposed new regulation system to avoiding pesticide residues in succeeding

crops based on these results are:

All new pesticides are required to perform the residue test for succeeding crops. The residue tests should be performed by cultivating leafy vegetables and root vegetables in a soil other than sandy soil in spring or autumn.