

農薬の後作物残留における新たな評価法に係る調査

鈴木万智*, 元木 裕*, 加藤貴央*, 岩船 敬*

* 独)農林水産消費安全技術センター 農薬検査部

農薬の後作物残留の新たな評価法の導入に向けて、後作物残留に係る国内外の知見を整理した。新評価法の参考となる海外の評価スキームに関する情報を収集した結果、欧米では第1段階として後作物代謝試験を要求し、その結果に応じて第2段階の後作物残留試験を要求するスキームとなっていた。また、国内の知見を整理した結果、有機炭素含量が少ない土壤中で生育速度が速い葉菜類を栽培した場合に後作物残留が起りやすいことが明らかになった。一方、有効成分投下量、土壤中半減期、土壤吸着定数、オクタノール/水分分配係数等の個別の要因では農薬の後作物残留性を正確に評価できないことが示された。移行係数を用いた後作物残留濃度の推定法を構築し、検証を行った結果、一定の推定精度が得られたことから、現在の後作物残留試験の要求トリガーである土壤中半減期に代わって本推定手法が活用できる可能性が示された。

Keywords : 農薬, 後作物残留性, リスク評価, 簡易推定法

緒 言

平成18年5月からポジティブリスト制度が施行され、基準値がない作物と農薬の組み合わせには一律基準(0.01 ppm)が適用されるようになった。これまでに国産農作物について一律基準を超過するいくつかの事例があったが、その中には、作物の栽培に使用された農薬が土壤へ残留し、その後に作付けされた作物(以下「後作物」という)が土壤残留農薬によって汚染された事例も確認された¹⁾。

農薬の後作物への残留は、土壤に残留した農薬を後作物が取り込むことによって引き起こされる。このため、農薬の後作物への残留による人への影響について評価を行う目的で、我が国では農薬の登録審査において、土壤残留試験成績(以下「土残試験」という)及び後作物残留試験成績等の提出を求めている。現行の後作物残留に係る登録審査においては、農薬の土壤中での減衰速度、すなわち土壤中半減期(以下「DT₅₀」という)に着目し、DT₅₀が100日を超えない場合は後作物残留試験成績の提出を不要としている。しかし、DT₅₀が短い場合においても、農薬の土壤への投下量が多ければ土壤中に残留する農薬量は増加する。また土壤中農薬の残留量が同じ場合であっても、土壤から作物への農薬の移行量は土壤の種類によって異なる。一般に農薬の吸着が弱い土壤ほど、作物が吸収可能な農薬(以下「可給態農薬」という)の量は多く、後作物へ移行する農薬量も増大する²⁾。また、植物による有機化学物質の取り込みと茎葉部への移行性は、化学物質の親水性および疎水性によって影響を受けることが報告されており、Briggs ら³⁾および Dettenmier ら⁴⁾の研究において、

疎水性が高い、すなわちオクタノール/水分分配係数(以下「log P_{ow}」という)が4以上の化学物質の場合には水耕液から茎葉部への移行性は大きく低下することが示されている。さらに、化学物質が植物体内に取り込まれた後は代謝分解されるが、代謝分解のし易さは化学物質の構造や作物の代謝能力に大きく依存する⁵⁾。

このように、農薬の後作物における残留量は土壤、作物および農薬の種類によって大きく異なることが想定されことから、作物における残留性を正確に評価するためには、農薬の有効成分投下量、土壤中での減衰、土壤から作物への移行性および作物体内における代謝分解等の様々な要因を複合的に考慮する必要がある。

本調査では農薬の後作物残留に係る新たな評価法の導入に向けて、後作物残留に係る国内外の知見を整理した。海外の知見については、新評価法の参考となる評価スキームに関する情報を収集した。また、我が国では、後作物残留に係る調査事業が過去10年近くに渡って実施されている⁶⁻¹⁶⁾。当該データを取りまとめることにより、後作物残留が起りやすい条件を整理するとともに、DT₅₀に代わる新たな後作物残留試験の要求トリガーを検討した。

1 諸外国における後作物残留リスク評価制度の概要

目 的

現在、農薬登録制度の国際基準との調和が求められており、我が国の後作物残留リスク評価制度においても、国際的な動向を踏まえながら見直しを進めることが重要である。そこで、諸外国にお

ける後作物残留リスク評価制度を調査し、我が国における制度との比較整理を行った。

材料および方法

経済開発協力機構（以下「OECD」という）、欧州連合および米国の法令およびガイダンス文書を調査し、それぞれ概要を整理した。

欧州連合については、現行の制度に基づいて評価された農薬の評価書を調査し、試験要求の実態についても確認を行った。評価書は2016-2018年に発行された化学農薬の評価書を対象とし、EFSA Journal¹⁷⁾で公表されているものを利用して調査した。

結果および考察

1.1 OECD

OECDでは、後作物残留に関するテストガイドライン（Test guideline; 以下「TG」という）として、後作物代謝試験（TG502）¹⁸⁾および後作物残留試験（TG504）¹⁹⁾が策定されており、後作物残留リスク

評価の考え方を整理したガイダンス文書（Guidance document; 以下「GD」という）としてGD No.64²⁰⁾およびGD No.279²¹⁾が公開されている。

OECDにおける後作物残留リスク評価制度の概要として、米国の要求要件をベースに作成されたGD No.64における評価スキームを図1に示す。後作物作付けの可能性がある場合には、第1段階として後作物代謝試験が要求される。後作物代謝試験の結果、全放射性残留量（TRR）が0.01 mg/kg以上であり、リスク評価を要する残留物質が認められた場合、第2段階として圃場における後作物残留試験が要求される。第2段階の後作物残留試験の結果、残留物質が0.01 mg/kg以上であり、各加盟国の規制当局よりMaximum Residue Limits（以下「MRL」という）の設定を要求された場合、第3段階としてMRL設定を目的とした後作物残留試験が要求される。第3段階では、表1に示す12区分のサブ作物グループから各1種類以上の供試作物を選択し、各作物について4または8の試験例数が必要となる。

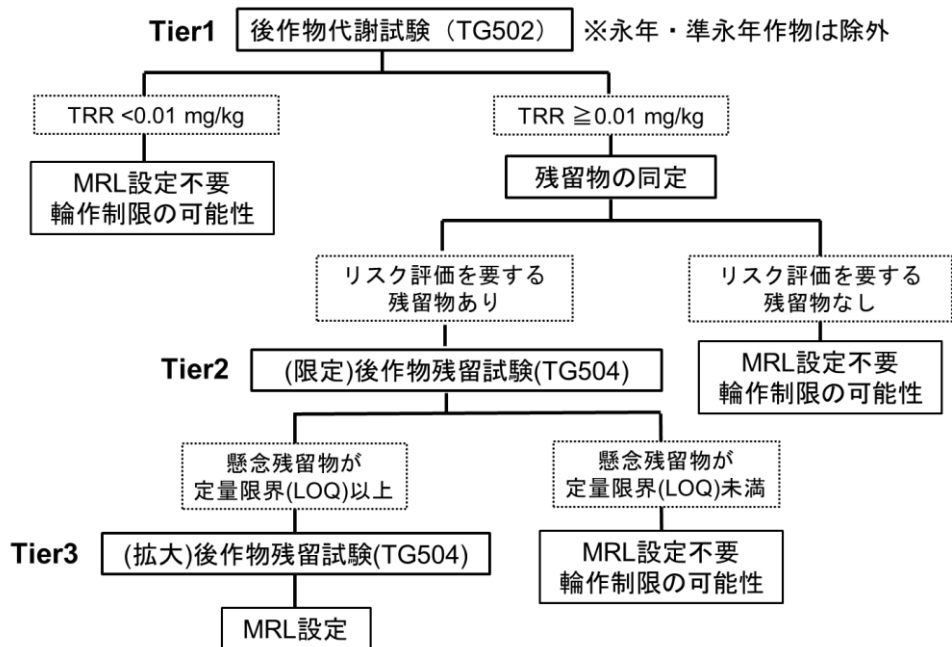


図 1. OECD GD No.64 (2009) における評価スキーム

MRL の設定要件は OECD 加盟国間において一様ではなく、GD No.279 においても、MRL を設定する代わりに Plant Back Interval（後作物作付け禁止期間、以下「PBI」という）などのラベル表示による使用制限を行うことで、圃場での後作物残留試験を免除する方法も示されている。

後作物残留に係る TG の概要を表 2 に示す。TG502 では標識化合物を用いて土壌から植物体内への吸収移行と主要代謝経路を確認することが目的となる。供試土壌は砂壤土を用いて作期最大施用量を処理し、場面に応じたエージング期間後に、

葉菜類、根菜類および穀類の 3 種類からそれぞれ代表作物を作付けし、収穫期まで試験を実施する。PBI は 3 パターンの中から適宜設定することとされている。最短のパターンは 7-30 日間であり、これは生育不良等により作付けし直しとなる事態も想定したものである。典型的なパターンでは 60-270 日間、隔年輪作を想定した長期のパターンでは 270-360 日間となっている。TG504 の試験条件は概ね TG502 と同様であり、異なる点は被験物質および試験場所である。

表 1. OECD GD No.279 (2018) における作物グループ (Tier3)

スーパー作物グループ	サブ作物グループ	試験例数
根菜類	ニンジン, ラディッシュ, サトウダイコン, その他のビート	4
	ジャガイモ (オプション)	4
球根, 茎野菜	ニラ, セロリ	4
穀類	小麦, 大麦 (小粒穀物: 小麦, 大麦, ライコムギ, オートムギ, ライムギ)	8
	トウモロコシ (トウモロコシと他の穀類, サトウキビ)	8
葉菜類, アブラナ科	レタス, ホウレンソウ (アブラナ科を除く葉菜類, ハーブ, スパイスの葉部, 花部)	4
	キャベツ, ケール (結球アブラナ科, 非結球アブラナ科, アブラナ科飼料作物)	4
	ブロッコリー, カリフラワー (花蕾を食用とするアブラナ科)	4
油糧種子, 豆類	菜種, 大豆 (油糧種子, 未成熟大豆, 乾燥大豆)	8
	乾燥豆, 乾燥エンドウ豆 (マメ科野菜 (未成熟大豆を除く), 豆類 (乾燥大豆を除く))	4
果物, 果菜類	イチゴ	4
	キュウリ (果菜類, 小型品種: 果菜類, 果物, 種子, ハーブ, スパイスの果実)	4
合計		60

表 2. OECD TG における試験条件

	TG502 後作物代謝試験	TG504 後作物残留試験
被験物質	標識化合物	製剤
試験場所	ポット又は圃場	異なる地域の2圃場
供試土壌	砂壤土 (ラベル指定がない場合)	
施用方法	作期最大量を前作物又は土壌に処理	
供試作物	3種 (根菜類, 葉菜類, 穀類)	
採取部位	RACs (農産物 (食用・飼料部位))	
植付間隔 (PBI)	3パターン (7-30, 60-270, 270-365日)	

1.2 米国

米国における農薬規制制度を規定する法律は「米国連邦殺虫剤殺菌剤殺鼠剤法（The Federal Insecticide, Fungicide, and Rodenticide Act: FIFRA）」であり、農薬の評価に係る試験要求の条件および TG が Code of Federal Regulation（CFR）²²⁾に規定されている。米国における後作物残留リスク評価に係る法令およびテストガイドライン^{23,24)}の概要

を図 2 に示す。米国を参考に OECD の TG および GD が作成された経緯もあり、米国と OECD の評価スキームは概ね同様である。ただし、OECD 加盟国のほとんどの国では主要作物と後作物で共通の MRL を設定しているのに対し、米国では主要作物とは別に後作物用の MRL を設定している。

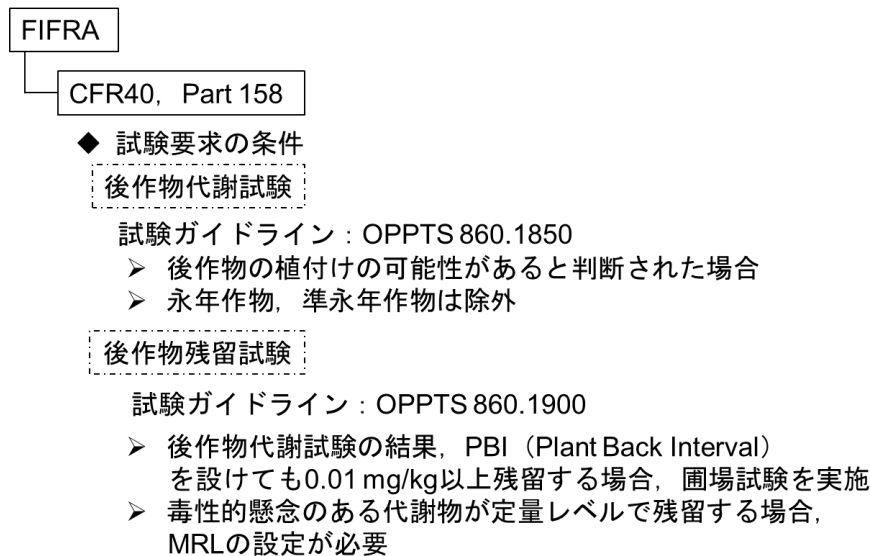


図 2. 米国における後作物残留リスク評価に係る法令の概要

1.3 欧州連合

欧州連合における農薬登録に係る制度は 2009 年に「植物防疫剤の販売ならびに理事会指令 79/117EEC および 91/414EEC の廃止に関する欧州議会および理事会規則 (EC) No 1107/2009」²⁵⁾ (以下「規則 1107/2009」という) において改正されている。改正前は「植物防疫剤の販売に関する理事会指令 91/414/EEC, Annex II part A, Appendix C」²⁶⁾ (以下「旧ガイドライン」という) において後作物残留試験の試験要求の条件および評価スキームが示されていた。その概要を図 3 に示す。旧ガイドラインでは、OECD や米国のように原則的に後作物代謝試験を要求するのではなく、土壤残留性試験より求めた 90%消失期間 (以下「DT₉₀」という)、土壤中推定残留量および作物中推定残留量のパラメータが段階的に要求トリガーとして利用されており、後作物代謝試験の要否において農薬の土壤残留性および植物への移行性が考慮されている。

制度改正後の欧州連合における後作物残留リスク評価に係る法令概要を図 4 に示す。試験要求の条件および TG の一覧は規則 1107/2009 の下位法令により定められている。現行では、旧ガイドラインと置き換わるようなガイドラインは欧州委員会では定められておらず、OECD の TG および GD に準ずる形になっている。

欧州連合の現行制度に基づいて評価された農薬の評価書について、後作物代謝試験の実施の要否を調査した結果を表 3 に示す。調査した全 67 剤のうち 9 剤で後作物代謝試験の実施が不要とされていた。そのうち 4 剤は、室内試験および圃場試験における DT₉₀ が 100 日未満であることについて後作物代謝試験を実施不要とする根拠としていた。このことから、欧州連合では後作物代謝試験の要求トリガーとして、図 3 に示す旧ガイドラインが運用として用いられていることが推測された。

1.4 諸外国と我が国の後作物残留リスク評価制度の比較

諸外国および日本の後作物残留リスク評価制度を比較した結果を表4に示す。日本では後作物残留試験の要求トリガーとして、農薬のDT₅₀を用いており、農薬の土壌残留性に基づいてスクリーニングしている点は欧州連合と共通している。日本で要求されている後作物残留に係る試験成績は、圃場における後作物残留試験のみであり、試験結

果は後作物における農薬の残留量が基準値を超過しないことを確認するために使用される。これに対し欧米では、第1段階として後作物代謝試験を要求し、その結果に応じて第2段階の圃場における後作物残留試験の要否が判断される。また、欧米では後作物残留評価のスキームの中にPBI設定またはMRL設定といったリスク管理が設けられているが、日本においてはこれらのリスク管理が設けられていない。

表4. 欧米および日本の後作物残留リスクの評価法の比較

		日本	欧州連合	米国
根拠規定		30消安6278号	委員会規則 283/2013, 284/2013	CFR40, 158.290
除外要件		永年, 準永年作物 DT ₅₀ <100日	永年, 準永年作物 DT ₉₀ <100日* 土壌中推定残留量<0.001 ppm* 作物中推定残留量<0.01 ppm*	永年, 準永年作物 -
要求試験	後作物代謝	×	○	○
	後作物残留	○	○	○
リスク管理	ラベル制限 (PBI, 植付作物)	×	○	○
	MRL設定	×	△**	○

*評価書の調査結果より、運用として用いられていることが推測される。

**欧州連合ではMRL設定に係る条項はなく、加盟国ごとに要件が異なる。

2 日本国内の後作物残留関連調査事業の知見の整理 —後作物残留に影響を及ぼす要因の解析—

目的

DT₅₀に代わる新たな後作物残留試験の要求トリガーの検討等に資するため、日本国内の後作物残留関連調査事業等で得られた知見を整理するとともに、得られた知見と後作物残留に影響を及ぼす要因の関係について調査を行った。

材料および方法

2.1 日本国内の後作物残留関連調査事業で得られた知見の整理および本知見と後作物残留に影響を及ぼす要因との関係に関する解析

環境省において実施された農薬残留対策総合調査⁶⁾(以下「環境省事業」という)および農林水産省において実施された農薬の後作物残留調査事業⁷⁾⁶⁾(以下「農水省事業」という)を対象とし、過年度の調査結果を整理した。これらの事業の調査概要を表5に示す。

土壌中濃度と後作物中濃度がそろっているデータを採用することとし、環境省事業では1156例、農水省事業では638例を解析した。下記(1)式により、後作物から0.01 ppm以上の濃度で農薬が検出された試験数を全試験数で除することで検出率を求めた(以下「検出率」という)。この検出率と農薬の後作物残留へ影響を及ぼす各種要因(農薬種、作物種、有効成分投下量、DT₅₀、土壌吸着定数(以下「K_{oc}」という)、log P_{ow}、PBI等)との関係について解析した。

検出率(%)

$$= \frac{\text{後作物から0.01 ppm以上の農薬が検出された試験数}}{\text{全試験数(カテゴリ別)}} \quad (1)$$

表 5. 各事業の調査概要

	環境省農薬残留対策総合調査	農林水産省農薬の後作物残留調査事業
試験実施機関	各都道府県の農業試験場 ^{a)}	一般社団法人日本植物防疫協会研究所 ^{b)}
調査実施年度	平成18-29年度	平成21-26および29年度
供試農薬の選定	土壌への混入もしくは落下が確実に見込まれる農薬またはオクタノール/水分配係数に基づいて環境省が作成した農薬リストから選定	農薬の土壌残留性および物理化学性を考慮して選定
調査圃場の土壌分類	黒ボク土, 灰色低地土, 黄色土等	黒ボク土および砂丘未熟土 ^{c)}
試験を設計する上で考慮された要因	有効成分投下量, PBI ^{d)} , 作物種等	

a) 各年度, 15前後の農業試験場の圃場で実施.

b) 牛久圃場および宮崎圃場で実施.

c) 黒ボク土: 牛久圃場, 砂丘未熟土: 宮崎圃場.

d) PBI: Plant back interval (農薬の最終散布から後作物の作付けまでの期間).

2.2 作物の収穫から後作物の作付けまでの期間および茎葉散布した農薬の土壌への落下率に関する調査事業で得られた知見の整理

平成 27 年度の農水省事業¹³⁾において実施された作物の収穫から後作物の作付けまでの期間に関する JA へのアンケート調査の結果を用いて, 農薬が残留しやすい葉菜類を後作物として栽培する場合の作付け期間をとりまとめた.

平成 28 年度の農水省事業¹⁴⁾において実施された散布農薬の土壌落下率に関する調査の結果を用いて, コマツナおよびキュウリに散布した農薬の土壌落下率をとりまとめた.

結果および考察

2.1 日本国内の後作物残留関連調査事業で得られた知見の整理および本知見と後作物残留に影響を及ぼす要因との関係に関する解析

2.1.1 農薬の違い

環境省事業⁶⁾および農水省事業^{7-12,15,16)}の結果を用いて算出した農薬種別の検出率を表 6 に示す. 農薬種別の検出率と各種変動要因 (農薬の有効成分投下量, DT_{50} , $\log P_{ow}$, $\log K_{oc}$ の相関を確認した結果 (図 5), 現在の後作物残留試験の要求トリガーである DT_{50} との間に有意な相関は見られなかった. 一方, 検出率と $\log P_{ow}$ および $\log K_{oc}$ との間で有意な相関 ($p < 0.01$) が確認されたが, いずれも弱い相関 ($R^2 < 0.4$) であり, 個別のみ要因では後作物残留性を評価できないことが示された.

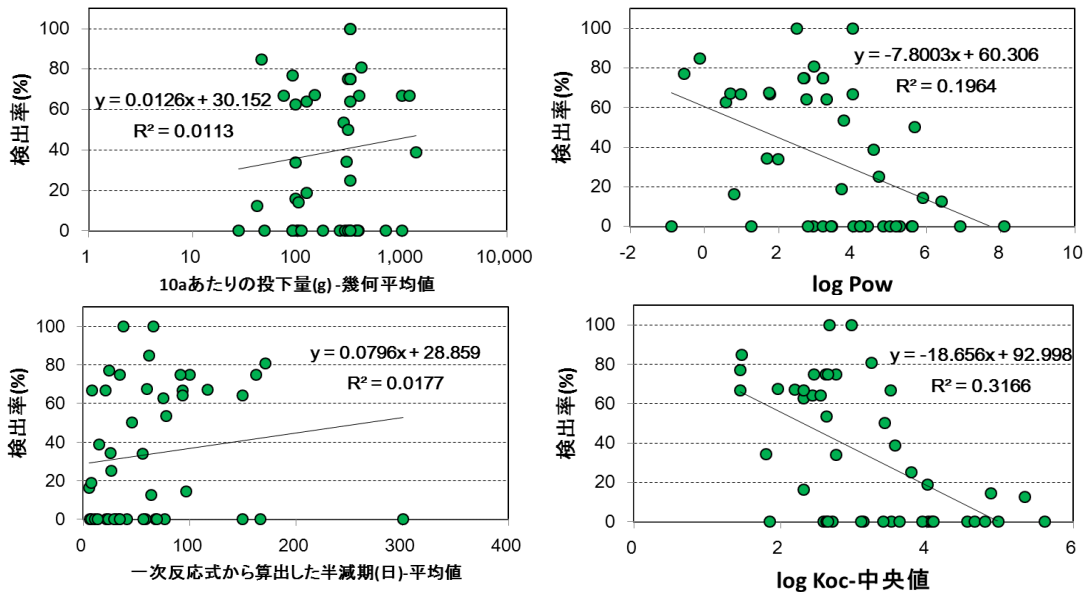


図 5. 農薬種別の検出率と各種変動要因の相関

左上: 有効成分投下量, 右上: オクタノール/水分配係数 ($\log P_{ow}$)

左下: 土壌中半減期, 右下: 土壌吸着定数 ($\log K_{oc}$)

表 6. 農薬種別の検出率 (%)

農薬名	環境省事業		農水省事業	
	試験数*1	検出率	試験数*2	検出率
BPMC	1	0.0		
TPN	8	0.0		
アセタミプリド	161	16.1		
アセフェート	7	0.0		
アゾキシストロビン			4	100.0
アトラジン	1	0.0		
アミスロプロム			4	0.0
イソキサチオン	16	18.8		
イプロジオン	1	0.0		
イミダクロプリド	35	51.4	32	75.0
エトフェンプロックス			18	0.0
カルバリル	1	0.0		
クレソキシムメチル	16	0.0		
クロチアニジン	120	64.2	110	70.0
クロマフェノジド			4	75.0
クロラントラニリプロール	8	50.0	92	65.2
クロールリホス			4	25.0
クロールフェナピル	13	0.0		
クロールフルアズロン	3	0.0	4	25.0
クロールプロファム	2	0.0		
シアゾファミド	8	0.0	18	0.0
シエノピラフェン			4	0.0
ジノテフラン	177	74.6	18	100.0
シベルメトリン	1	0.0		
シメコナゾール			4	75.0
ジメテナミド	2	0.0		
ジメトエート	3	66.7		
ジメトモルフ			4	75.0
ダイアジノン	9	0.0		
チアクロプリド	2	0.0	18	0.0
チアメトキサム*3	49	83.7	4	100.0
チオファネートメチル	1	0.0		
テフルトリン	8	12.5		
トリフルラリン	4	0.0		
トルクロホスメチル	67	47.8	18	5.6
トルフェンピラド	1	0.0	4	0.0
ニテンピラム	2	100.0		
ヒドロキシイソキサゾール	1	0.0		
ピメトロジン	2	0.0		
ピリダリル	4	0.0		
ピリミホスメチル	3	0.0		
フィプロニル	1	0.0	4	100.0
フェナリモル	1	0.0		
フェンピロキシメート(E体)			4	0.0
フルアジナム	4	0.0	4	0.0
フルオルイミド	1	0.0		
フルスルファミド			4	0.0
フルトラニル	46	45.7	92	57.6
フルフェノクスロン	2	0.0	18	66.7
フルベンジアミド	4	0.0		
プロシミドン	110	64.5	4	50.0
プロチオホス			4	50.0
プロピザミド	1	0.0		
プロベナゾール	3	66.7		
ベルメトリン	1	0.0		
ベンチアバリカルブイソプロピル	2	50.0		
ベンチオピラド			4	75.0
ベンディメタリン	5	0.0		
ボスカリド	10	100.0	110	79.1
ホスチアゼート	69	31.9	4	75.0
マイクロブタニル	50	14.0	18	88.9
メタラキシル	106	67.9	4	50.0
メプロニル	1	0.0		
レナシル	2	0.0		

*1:合計 1156 例. *2:合計 638 例.

*3:代謝物クロチアニジンが検出された場合を含む.

2.1.2 作物の違い

作物種別の検出率を表7に示す。作物種別の検出率は葉菜類>根菜類(葉部)>根菜類(根部)>果菜類の順となり、葉菜類については、検出率が最も高く、農薬が残留しやすいと考えられた。葉菜類の中ではシュンギクの検出率が高く、根菜類の中では栽培期間の短いカブや二十日ダイコンの検出率が高い傾向にあった。

2.1.3 PBIの違い

PBIの長短と検出率の関係を検討した(表8)。PBIが長いほど検出率が低下する傾向は認められたものの、70日間以上のPBIを設けた場合においても3割以上の試験区の作物から0.01 ppm以上農薬が検出された。

表7. 作物種別の検出率(%)

分類	作物名	環境省事業		農水省事業	
		試験数	検出率	試験数	検出率
葉菜類	コマツナ	347	56.8	74	48.6
	ハウレンソウ	262	40.1	200	58.5
	シュンギク	56	66.1	272	76.1
	チンゲンサイ	32	50.0		
	非結球レタス	18	38.9		
	ミズナ	15	40.0		
	シロナ	4	25.0		
	ハタケナ	4	0.0		
花菜類	ブロッコリー	2	0.0		
根菜類	カブ葉	114	59.6	20	35.0
	カブ根	114	36.8	20	15.0
	二十日ダイコン葉	34	61.8		
	二十日ダイコン根	34	50.0		
	ニンジン葉	30	43.3	8	37.5
	ニンジン根	34	23.5	8	25.0
	ダイコン間引き・つまみ菜	6	0.0		
	ダイコン葉	7	28.6		
	ダイコン根	14	14.3		
	ナス	2	0.0		
果菜類	キュウリ	3	0.0	16	0.0
	メロン	4	0.0		

表8. Plant back interval (PBI) 別の検出率(%)

PBI(日)	環境省事業		農水省事業	
	試験数	検出率	試験数	検出率
0-7	518	56.8	0	-
8-30	274	48.2	534	61.4
31-70	293	34.8	62	58.1
71-100	42	33.3	42	45.2

2.1.4 土壌の違い

土壌種別の検出率を表9に示す。土壌種別の検出率は有機炭素含量が少ない砂丘未熟土、黄色土および褐色森林土で高い傾向にあり、有機炭素含量が多い黒ボク土では低い傾向にあった。有機炭素含量が多い黒ボク土は農薬に対する吸着が強いいため、土壌中の可給態農薬量が少ないことが推察された²⁾。

2.1.5 施設と露地の違い

環境省事業⁹⁾の結果を用いて、施設（トンネル栽培を含む）と露地の違いが検出率に及ぼす影響を検討した（表10）。露地よりも施設の検出率が高い傾向を示したものの、その差は小さかった。

2.2 作物の収穫から後作物の作付けまでの期間および茎葉散布した農薬の土壌への落下率に関する調査事業で得られた知見の整理

2.2.1 作物の収穫から後作物の作付けまでの期間

平成27年度の農水省事業¹³⁾において実施され

た作物の収穫から後作物の作付けまでの期間に関するJAへのアンケート調査の結果のうち、農薬が残留しやすい葉菜類を後作物として栽培する場合の作付け期間を表11に示す。作物種によって差はあるものの、葉菜類の作付け期間は概ね20日間程度（後作物間の幾何平均で22日間）であった。

2.2.2 農薬の土壌落下率

平成28年度の農水省事業¹⁴⁾で得られた知見のうち、コマツナおよびキュウリを対象として、散布農薬の土壌落下率について調査された結果を表12に示す。土壌落下率は散布液量によって異なるが、10aあたり300Lを散布した場合、コマツナ、キュウリともに散布農薬の最大で6割程度が土壌へ落下している。

表9. 土壌種別の検出率（%）

土壌群名(有機炭素含量)	環境省事業		農水省事業	
	試験数	検出率	試験数	検出率
砂丘未熟土(0.14-0.81%)	16	62.5	240	72.1
黄色土(0.4-2.7%)	129	59.7		
褐色低地土(0.97-1.2%)	113	37.2		
褐色森林土(1.1-2.2%)	63	73.0		
灰色低地土(0.12-4.8%)	487	46.8	27	66.7
黒ボク土(3.9-9.5%)	272	44.5	371	51.8

表10. 施設と露地の検出率（%）の違い

圃場	環境省事業	
	試験数	検出率
施設(トンネル栽培を含む)	405	52.3
露地	681	46.5

表 11. 作物収穫から後作物として葉菜類の作付けまでの期間（日間）に関する調査結果

前作物	後作物	回答数	最長	最短	幾何 平均値	作物内 幾何平均値	作物間 幾何平均値
スイカ		1	10	10	10		
トマト		1	50	50	50		
サヤインゲン	コマツナ	1	80	80	80	19	
シュンギク		1	7	7	7		
ピーマン		1	10	10	10		
トマト	シュンギク	1	30	30	30	30	
コマツナ	チンゲンサイ	1	20	20	20	20	
イネ		1	14	14	14		
キュウリ		1	10	10	10		
ニンジン		1	100	100	100		
コマツナ		1	30	30	30		22
チンゲンサイ		1	30	30	30		
エダマメ	ホウレンソウ	4	90	30	52	35	
カブ		1	15	15	15		
シュンギク		1	70	70	70		
ショウガ		1	30	30	30		
メロン		1	30	30	30		
サトイモ		1	150	150	150		
ホウレンソウ		1	30	30	30		
コマツナ	ミズナ	2	7	4	5	12	
チンゲンサイ		1	10	10	10		

表 12. 農薬の土壌落下率

作物名	農薬名	栽培初期		栽培中期		収穫期		
		適量散布* 一定量散布*	適量散布* 一定量散布*	適量散布* 一定量散布*	適量散布* 一定量散布*	適量散布* 一定量散布*	適量散布* 一定量散布*	
コマツナ	ジノテフラン	散布量(L/10a)	100	300	150	300	180	300
	土壌落下率(%)		36.3	63.1	14.8	37.7	28.1	35.4
コマツナ	シアントラニプロール	散布量(L/10a)	100	300	150	300	180	300
	土壌落下率(%)		44.7	66.7	15	38.1	19.3	33.3
キュウリ	ジノテフラン	散布量(L/10a)	150	300	235	300	-**	300
		土壌落下率(%)		46.4	53.6	30.8	57.4	-**
	シアントラニプロール	散布量(L/10a)	150	300	235	300	-**	300
		土壌落下率(%)		53.9	53.2	19.9	53.9	-**

*N=1で実施. ** - : 未実施.

以上より、農薬の検出率は、作物別では葉菜類、土壌別では有機炭素含量が少ない土壌（砂丘未熟土、褐色森林土等）で高いことが示された。また、検出率と各種要因（有効成分投下量、DT₅₀、K_{oc}、log P_{ow}等）との間に強い相関は確認されず、これら単独では後作物残留性を評価できないことが示唆された。後作物における残留のし易さを正確に

評価するためには、複数の要因を考慮した後作物残留濃度の推定手法の構築が必要である。また、後作物の作付けまでの期間および土壌落下率に関する調査結果は、当該推定方法を構築する上で有益な情報になるものと考えられた。

3 後作物中の残留農薬濃度の推定手法の構築と推定精度の検証

目 的

前章において、個別の要因のみでは後作物残留性を評価できないと考えられたことから、複数の要因を考慮した後作物中の残留農薬濃度（以下「後作物中濃度」という）を推定する手法の構築を試みた。当該手法の構築にあたって、作物の収穫日における土壌中の残留農薬濃度および農薬の土壌から作物への移行係数（以下「TF」という）を用いて後作物中濃度の推定を行った。

土壌残留農薬の分析にあたっては、通常、抽出力の強いアセトン等の有機溶媒が使用され、その概ね全量が抽出されている。しかし、これまでの研究により、作物中の農薬濃度は土壌中から有機溶媒を用いて抽出・定量された農薬濃度（以下「土壌中濃度」という）よりも水や0.01M塩化カルシウム水溶液を用いて抽出・定量された農薬濃度（以下「水抽出濃度」という）とより高い正の相関を示すことが示されていることから^{2,27)}、後作物中濃度の推定を行うにあたって、土壌中の残留農薬濃度として水抽出濃度を用いる手法を検討した。

後作物中濃度の推定に関しては、これまでに農薬の植物による取り込み量を予測する複数の数理モデルが開発されているが²⁸⁾、当該数理モデルによって予測結果を得るためには様々なパラメータを収集する必要がある。そこで、欧州連合の旧ガイドライン²⁹⁾で採用されているTFを用いてより簡易的に後作物中濃度を推定する手法を検討した。TFは植物の蒸散流量、農薬の $\log P_{ow}$ 、 K_{oc} および代謝速度等様々な要因によって変動する値であるため、本調査では環境省事業⁹⁾および農水省事業^{7-12,15,16)}の結果を用いて700試験以上における実測値を算出し、その確率分布を調査した。加えて、TFと $\log P_{ow}$ との関係を検討することにより、後作物中濃度の推定に用いるTF値の検討を行った。さらに、当該調査事業の結果を用いて土壌中濃度および後作物中濃度の推定精度の検証を行った。

材料および方法

3.1 データ解析

環境省事業（平成18年度-29年度）⁹⁾および農

水省事業^{7-12,15,16)}におけるデータを使用した。後作物への残留リスクが高いと考えられる葉菜類（コマツナ、シュンギク、チンゲンサイ、ホウレンソウおよびミズナ）を対象とし、 $\log P_{ow}$ が-0.9-8.1の59種類の農薬および有機炭素含量が0.1-9.5%の土壌（砂丘未熟土、黄色土、褐色森林土、褐色低地土、灰色低地土および黒ボク土）の結果を含む約1200試験のデータをTFの変動解析および各種推定値の精度の検証に供した。

3.2 葉菜類におけるTFの分布特性

環境省事業および農水省事業におけるデータから、2種類のTFを算出した。後作物中濃度を作物収穫日の土壌中濃度で除することで TF_t を算定した（(2)式）。また、後述する「3.4 水抽出濃度および後作物中濃度の推定」の方法により作物収穫日の水抽出濃度を推定し、当該推定値を用いて TF_w を算定した（(3)式）。

$$TF_t = \frac{\text{後作物中濃度}}{\text{土壌中濃度}} \quad (2)$$

$$TF_w = \frac{\text{後作物中濃度}}{\text{水抽出濃度(推定値)}} \quad (3)$$

3.3 土壌中濃度の推定

環境省事業および農水省事業の各試験における有効成分投下量、農薬の登録申請にあたり提出された土残試験に基づく土壌中の減衰速度および農薬の最終散布から後作物収穫までの経過日数から、作物の収穫日における土壌中濃度を推定した。算定方法の概要を図6に示す。経過日数は各試験における最終散布から作付けまでの期間に、後作物である葉菜類の栽培期間として30日間を足し合わせた期間とした。

3.4 水抽出濃度および後作物中濃度の推定

「3.3 土壌中濃度の推定」で求めた土壌中濃度を農薬の登録申請にあたり提出された試験成績のデータ（以下「登録データ」という）の K_{oc} および試験圃場の土壌有機炭素含量を用いて水抽出濃度に変換し（図7）、水抽出濃度にTFを乗じることによって後作物中濃度を推定した。

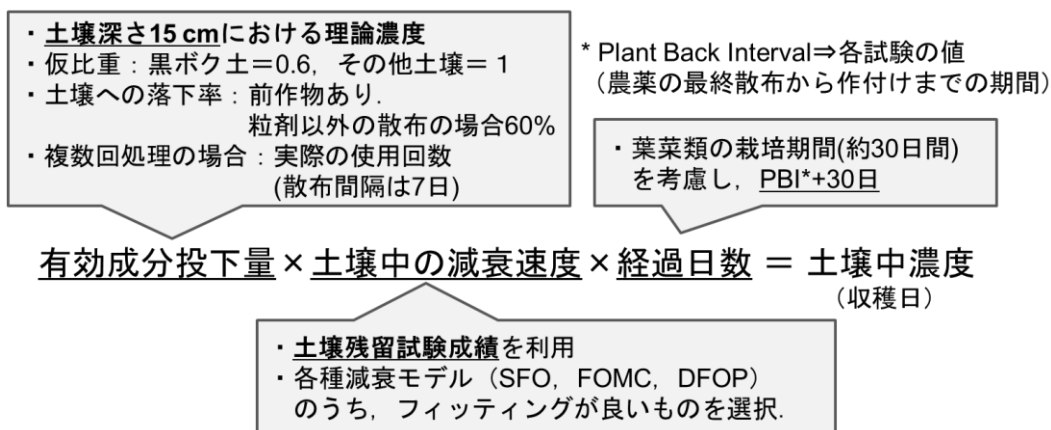


図 6. 土壌中濃度の推定方法の概要

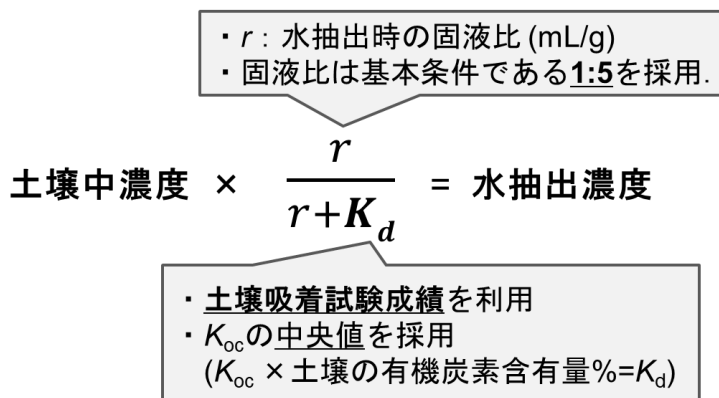


図 7. 水抽出濃度の推定式

結果および考察

3.1 葉菜類における移行係数の分布特性

TF_tおよびTF_wの分布特性を図8に示す。両TFの確率分布は対数正規分布で近似できることが示された。TF_tとTF_wを比較すると、TF_wの方が標準偏差(SD)が小さく、ばらつきが少ないことが確認された。TF_wの中央値は0.34、95パーセンタイル値は4.6、平均値+2SDは6.4であった。

続いてTF_wを農薬のlog P_{ow}別に確認した。log P_{ow}の各範囲におけるTF_wの中央値を図9に示す。log P_{ow}が高い農薬ほどTF_wは低い傾向を示した。しかし、log P_{ow}が2-5の範囲においてはほぼ同じ値を示し、log P_{ow}が4以上の農薬であってもある程度の移行性を有することが確認された。また、

清家らの報告²⁹⁾では、根菜類、特にニンジンではlog P_{ow}が高い農薬でTFが高くなることが示されている。よって、農薬のlog P_{ow}に応じて異なるTFを用いた場合、後作物中濃度を過小評価する可能性があると考えられた。

3.2 土壌中濃度の推定および検証

環境省事業および農水省事業における有効成分投下量および登録データの土残試験の減衰速度を用いて、作物の収穫日における土壌中濃度を推定した。農薬の登録申請において、土残試験は2例以上の提出が求められていることから、そのDT₅₀が長い区および短い区のそれぞれについて推定値と実測値を比較した(図10)。

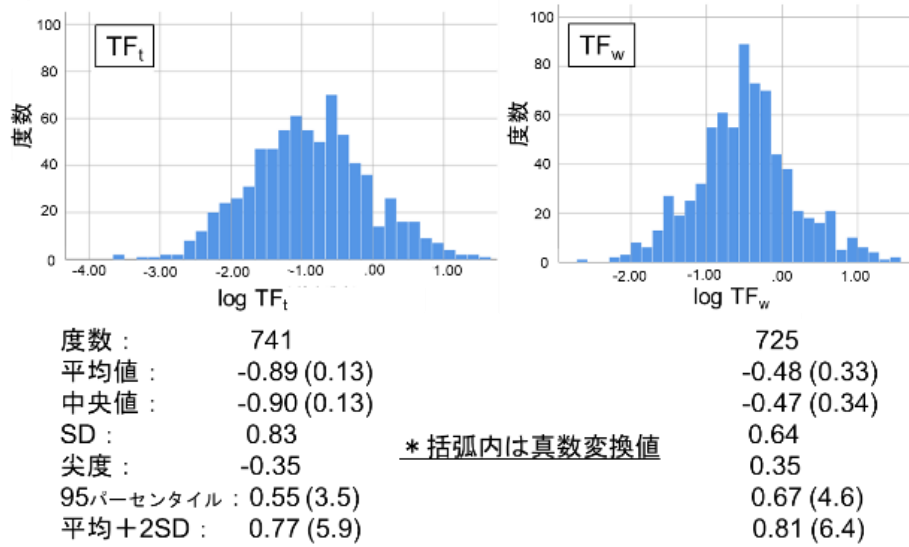


図 8. 有機溶媒抽出濃度および水抽出濃度から算定した移行係数 (TF_tおよび TF_w) の分布特性)

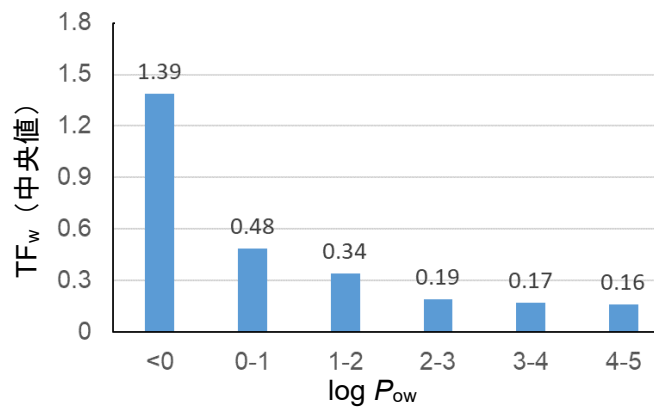


図 9. 水抽出濃度から算定した移行係数 (TF_w) の log P_{ow} 別の比較

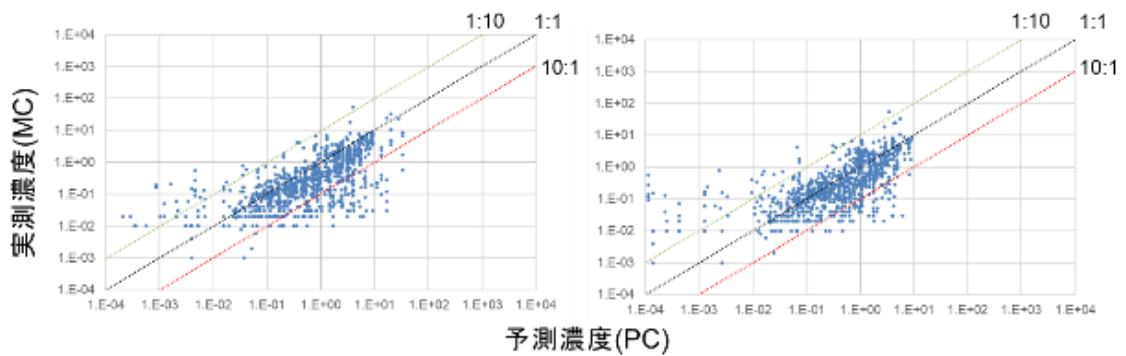


図 10. 土壌中濃度の予測濃度 (PC) と実測濃度 (MC) の比較
 左 : DT₅₀ が長い土残試験のデータで推定, 右 : DT₅₀ が短い土残試験のデータで推定
 破線は上から順に PC と MC の比が 1:10, 1:1, 10:1 を示す.

推定精度をより視覚的に確認しやすくするため、推定値と実測値の比（以下「PC/MC」という）を求めて分布特性を確認した（図 11）。DT₅₀が短い区のデータを用いて推定した場合、PC/MC の 25、50 および 75 パーセンタイル値はそれぞれ 0.6、1.3 および 3.0 であった。従って、解析に供した 1057 試験のうち、3/4 の約 750 試験において推定値と実測値の差は 3 倍の範囲に収まることが明らかとなった。

3.3 後作物中濃度の推定

「3.2 土壤中濃度の推定および検証」で算定した土壤中濃度の推定値を用いて水抽出濃度の推定値を算出し、水抽出濃度の推定値に TF_w を乗じることで後作物中濃度を推定した。TF_w の値は、「3.1 葉菜類における移行係数の分布特性」で得られた TF_w の中央値 (0.34) を用いた。推定値と実測値を比較するとともに（図 12）、PC/MC の分布特性も確認した（図 13）。

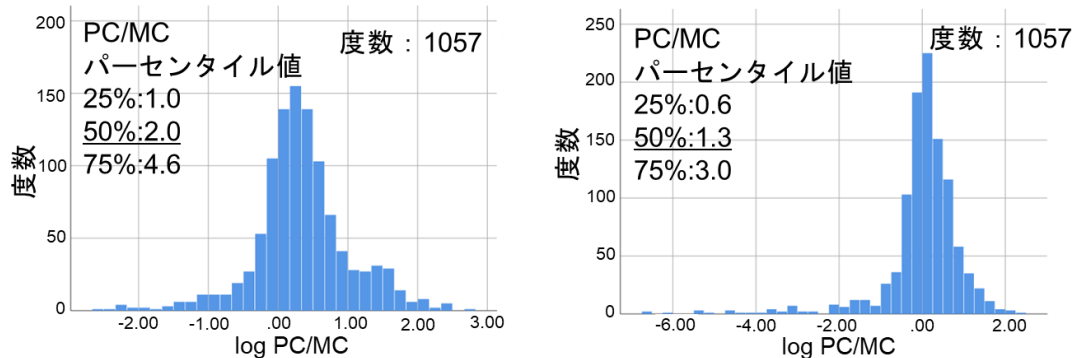


図 11. 土壤中濃度の推定濃度 (PC) と実測濃度 (MC) の比 (PC/MC) の分布特性
左: DT₅₀ が長い土残試験のデータで推定, 右: DT₅₀ が短い土残試験のデータで推定

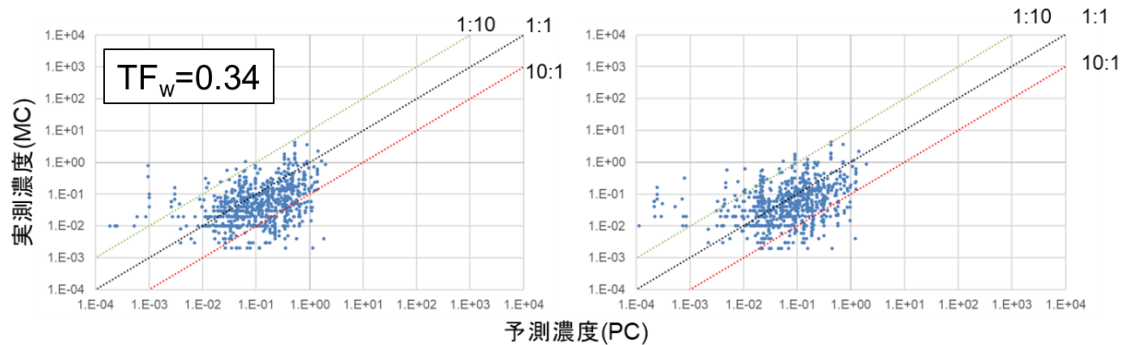


図 12. 後作物中濃度の推定値 (PC) と実測値 (MC) の比較
左: DT₅₀ が長い土残試験のデータで推定, 右: DT₅₀ が短い土残試験のデータで推定
破線は上から順に PC と MC の比が 1:10, 1:1, 10:1 を示す。

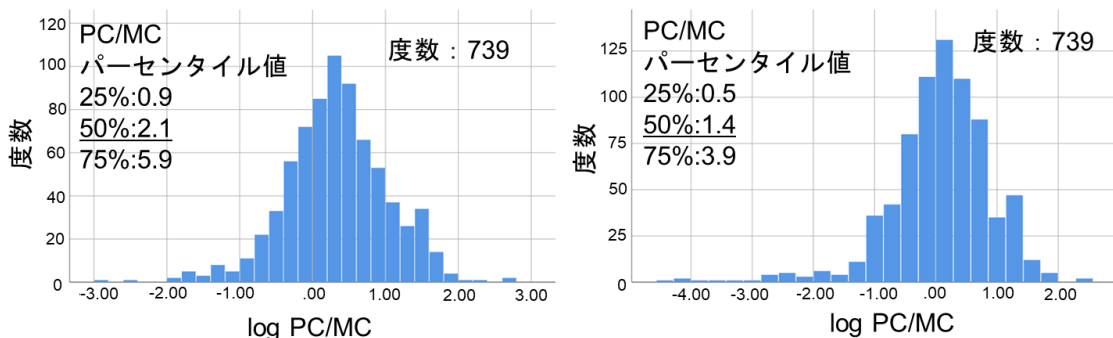


図 13. 後作物中濃度の推定値 (PC) と実測値 (MC) の比 (PC/MC) の分布特性
左: DT₅₀ が長い土残試験のデータで推定, 右: DT₅₀ が短い土残試験のデータで推定

DT₅₀ が短い区のパラメータを用いて推定した場合、PC/MC の 25, 50 および 75 パーセンタイル値はそれぞれ 0.5, 1.4 および 3.9 であった。従って、解析に供した 739 試験のうち、3/4 の約 550 試験において推定値と実測値の差は 4 倍の範囲に収まる事が明らかとなった。

後作物中濃度の推定値を DT₅₀ に代わる新たな後作物残留試験等の要求トリガーとして使用する場、より安全サイドに立った評価を行うために、推定値は実測値よりも過大に算定される必要がある。「3.1 葉菜類における移行係数の分布特性」の結果、TF_w の確率分布は対数正規分布で表現され、95 パーセンタイル値は 4.6、平均値+2SD は 6.4 であった。この結果を踏まえて、TF_w を 5 および 10 とした場合の後作物中濃度を算定し、推定値と実測値を比較した (図 14)。DT₅₀ が長い区のパラメータを用いて推定した場合、解析に供した 739 の試

験のうちほとんどの試験において推定値が実測値を上回った。推定値が実測値を下回ったのは、TF_w を 5 とした場合で 22 例 (3.0%)、TF_w を 10 とした場合で 11 試験 (1.5%) であり、いずれの場合もその数はわずかであった。そのうち、TF_w を 5 とした場合の 16 試験、TF_w を 10 とした場合の 10 試験は同一有効成分の農薬を供試した試験であった。当該有効成分の推定値が低くなった要因として、登録データから算出した DT₅₀ はいずれの試験においても 1 日未満であり、このデータを用いて算定した土壤中濃度の推定値が実測値よりも顕著に低かったことが考えられた。よって、TF_w を 5 とした場合でも 97% 以上の試験において予測濃度が実測濃度を上回ったことから、後作物中濃度の推定にあたって TF_w の値は一律で 5 を用いることとした。

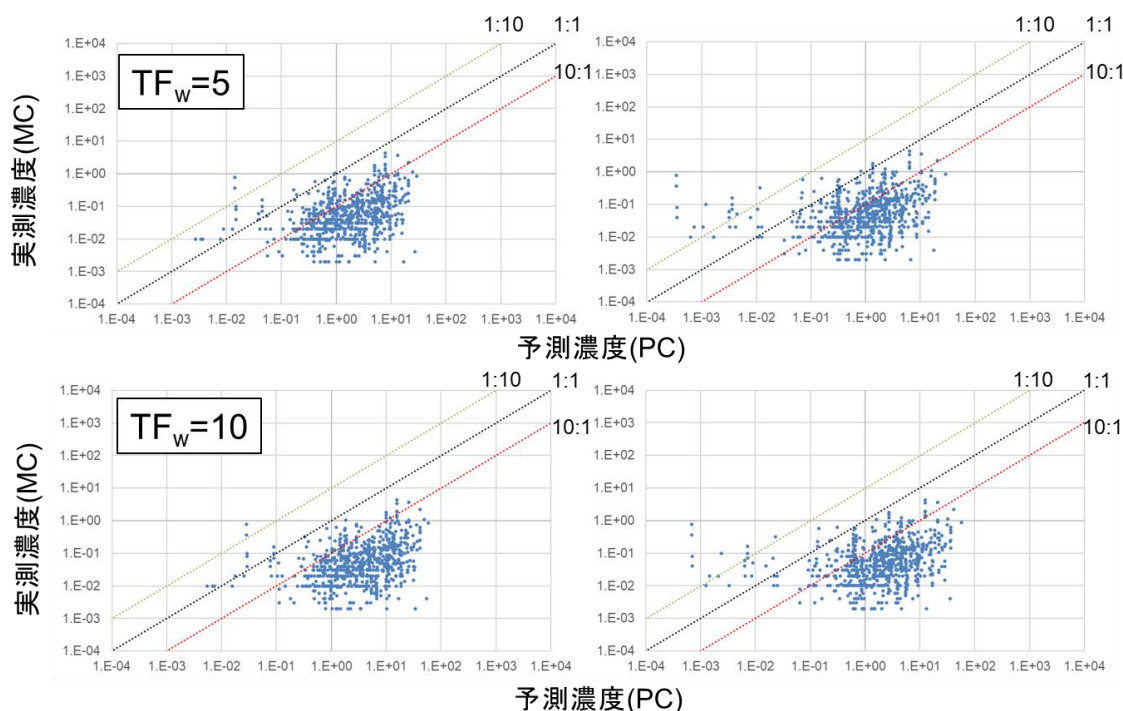


図 14. 後作物中濃度の推定値 (PC) と実測値 (MC) の比較
 上段が TF_w=5, 下段が TF_w=10 として算定した結果であり、それぞれ
 左: DT₅₀ が長い土残試験のデータで推定, 右: DT₅₀ が短い土残試験のデータで推定
 破線は上から順に PC と MC の比が 1:10, 1:1, 10:1 を示す。

4 後作物中濃度の簡易推定法の農業登録審査への導入可否に係る検討

目 的

前章において後作物中濃度の簡易推定手法を構築するとともに、これによって得られた推定値と実測値を比較することにより、当該手法の推定精度について検証を行った。我が国の登録農薬を対象とし、適用作物の種類に応じた計算シナリオを作成の上、本推定手法により後作物中濃度を算出した。推定した後作物中濃度を一律基準と比較し、推定値が一律基準未満となる農薬の割合について調査を行った。

材料および方法

4.1 国内登録農薬の推定値の調査

国内の登録農薬の適用内容および前章において構築した簡易推定手法から後作物中濃度を算出し、国内の登録農薬の推定値の傾向を調査した。調査は、畑地適用のある有効成分 299 成分、水田適用のある有効成分 123 成分および育苗箱処理（粒剤のみ）適用のある有効成分 31 成分について行った。推定を行う適用は、同一有効成分を含む農薬のうち、総使用回数が最も多い適用作物または総有効成分投下量が最も大きい適用作物の適用内容

とした。ただし、後作物代謝試験に係る OECD テストガイドライン¹⁸⁾において当該試験の除外対象となっている作物に加え、茶、芝および樹木類（ツツジ類等低木を含む）についても永年作物または準永年作物に該当するとみなし、推定の除外対象とした。推定を行う適用の有効成分投下量、登録データの土壌試験の減衰速度および当該適用の種類に応じた計算シナリオから後作物収穫日における土壌中濃度を算出し、登録データの K_{oc} を用いて水抽出濃度に変換後、TF 値を乗じて後作物中濃度を推定した。TF 値としては前章の検討結果に基づきデフォルト値として 5 を採用した（図 15）。登録データの土壌試験が複数ある場合は、 DT_{50} が最も長い試験のデータを使用した。

推定に用いた有効成分投下量、 K_{oc} 、現在後作物残留試験の要求トリガーとして用いられている DT_{50} および欧州連合における後作物代謝試験の要求トリガーである DT_{90} の 4 要素について、畑地適用および水田適用の有効成分を推定値が一律基準以上の区と一律基準未満の区に分け、各要素の条件別の割合を調査し、現在の要求トリガーが有効か否かについて検討した。

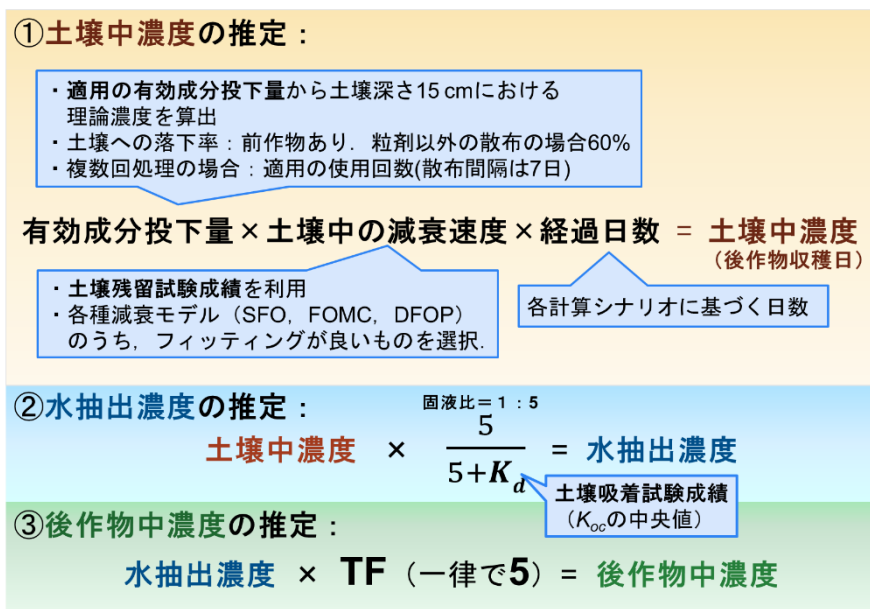


図 15. 後作物中濃度推定手法の概要

4.2 畑地作物の適用における計算シナリオ

畑地作物の適用における計算シナリオを図 16 に示す。国内の登録農薬の適用情報を参考にして、農薬の最終散布から収穫までの日数（以下「収穫前日数」という）は7日間とした。また「2.6 作物の収穫から後作物の作付けまでの期間」の結果を参考にして、畑地作物における収穫から後作物の作付けまでの日数は21日間とした。前作物の作付けから生育期の初回散布までの期間は30日間とし、生育期の散布は7日間ごとに推定を行う適用の回数が行われることとした。PBIは最終散布から収穫までの7日間および収穫から後作物作付けまでの21日間を足し合わせた28日間、後作物の栽培期間は葉菜類を想定し30日間とした。

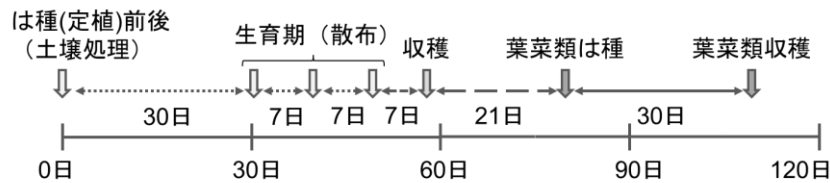
4.3 水田作物の適用における計算シナリオ

水田作物の適用における計算シナリオを図 17 および図 18 に示す。水稻の生育期間は120日間とした。国内登録農薬の水稻の適用情報を参考にして、収穫前日数は殺虫剤および殺菌剤で14日間、

除草剤で60日間とした。また、平成27年度の農水省事業¹³⁾の結果(表13)を参考にして稲(水稻および陸稲)の収穫から後作物作付けまでの日数を決定した。後作物作付けまでの日数は平均値で概ね40日間程度であったが、20日間未満の作物も一部存在することから畑地作物と同様に21日間とした。

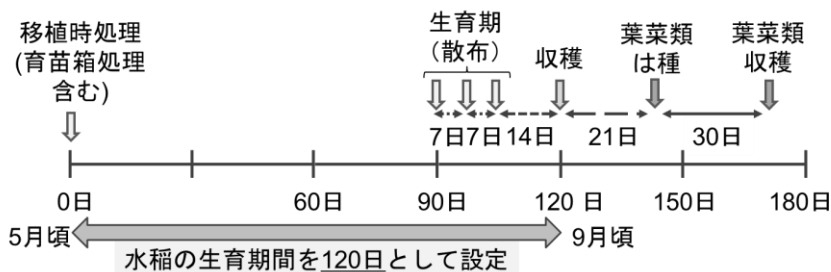
殺虫剤および殺菌剤においては、育苗箱処理は移植時処理とみなし、生育期の散布は7日間ごとに推定を行う適用の回数が行われることとした。PBIは最終散布から収穫までの14日間および収穫から後作物作付けまでの21日間を足し合わせた35日間とした。

除草剤においては、初期剤は生育期間の0日目、中期剤は20日目、後期剤は60日目に散布されるものとし、後期剤が複数回使用される適用の場合は20-60日目の間で均等に散布されると仮定した。PBIは後期剤が散布されてから収穫までの60日間および収穫から後作物作付けまでの21日間を足し合わせた81日間とした。



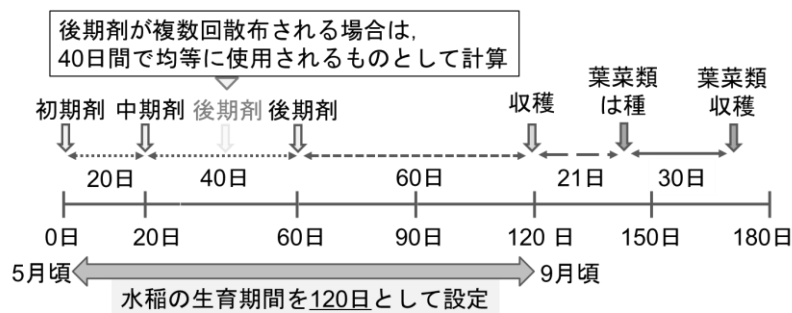
- ・は種から生育期散布(1回目)までの間隔：30日間
 - ・生育期の散布間隔：7日間
 - ・最終散布から収穫までの期間：7日間
 - ・収穫から後作物は種までの期間：21日間
 - ・後作物(葉菜類)栽培期間：30日間
- } PBIとして28日間

図 16. 畑地作物の適用における計算シナリオ



- ・移植から収穫までの間隔：120日間
 - ・生育期の散布間隔：7日間
 - ・最終散布から収穫までの期間：14日間
 - ・収穫から後作物は種までの期間：21日間
 - ・後作物(葉菜類)栽培期間：30日間
- } PBIとして35日間

図 17. 水田作物(殺虫剤および殺菌剤)の適用における計算シナリオ



- ・ 初期剤処理から収穫までの間隔：120日間
 - ・ 中期剤処理から収穫までの間隔：100日間
 - ・ 後期剤処理から収穫までの期間：60日間
 - ・ 収穫から後作物は種までの期間：21日間
 - ・ 後作物(葉菜類)栽培期間：30日間
- 】PBIとして81日間

図 18. 水田作物（除草剤）の適用における計算シナリオ

表 13. 水田作物における作物収穫から後作物作付けまでの期間（日数）に関する調査結果

前作物	後作物	回答数	最長	最短	幾何平均	作物内 幾何平均
稲 (水稲及び陸稲)	大豆	2	200	180	190	42
	大麦	2	30	20	25	
	なばな	1	30	30	30	
	さといも	1	220	220	220	
	ホウレンソウ	1	14	14	14	
	小麦	1	50	50	50	
	カリフラワー	1	10	10	10	

4.4 水稲育苗ハウスにおける計算シナリオ

育苗箱処理に関しては、育苗箱を設置する水稲育苗ハウスにおいても後作物残留性の懸念があることから、水稲育苗ハウスのシナリオについても検討を行った。岡らの報告³⁰⁾では、育苗箱への粒剤処理後、育苗箱の下部から水が約 200 mL 溶出する程度の灌水を処理当日および処理 5 日目から 27 日目までの 23 日間行い、育苗箱からの農薬溶出率を調査した。水溶解度の 1/2 の濃度の農薬を含む水が育苗箱下部から 1 日当たり 200 mL、23 日間溶出したと仮定して累積溶出量を推定したところ、岡らの報告における実測値平均と概ね同等-3 倍程度の推定値となった（表 14）。また、佐山ら^{31,32)}は、育苗箱にプロベナゾール・クロラントラニプロロール粒剤またはアミスルブロム顆粒水和剤を処理した際の育苗ハウスにおける後作物残留性を調査した。農薬処理後の育苗期間中、水溶解度

の 1/2 の濃度の農薬を含む水が育苗箱下部から 1 日当たり 200 mL 溶出し、溶出後育苗ハウスの土壌中で土壌試験の減衰速度に従い消失したと仮定して土壌中の農薬濃度を推定した。当該推定値を佐山らの調査における実測値と比較した結果、クロラントラニプロロール粒剤の推定値は実測値と同程度、または実測値を多少下回る結果となった。一方、アミスルブロム顆粒水和剤の推定値は実測値の 1/10-1/200 以下と大きく下回った（表 15 および表 16）。よって、水和剤の処理については過小評価となることが想定されるため、粒剤に限った水稲育苗ハウスのシナリオを図 19 のように設定した。育苗箱への処理から撤去までを 30 日間と設定し、その期間中は水溶解度の 1/2 の濃度の農薬を含む水が育苗箱下部から 1 日当たり 200 mL 溶出すると仮定した。育苗箱を撤去してから後作物作付けまでの日数は 21 日間とした。

表 14. 水稲育苗ハウスシナリオ検討における文献実測値および推定値の比較（累積溶出量）

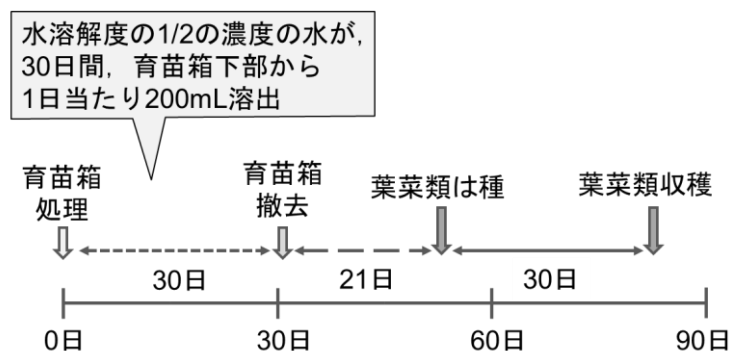
累積溶出量(%) (施用量=100)	水溶解度	実測値	推定値
農薬A	510 mg/L	74%	100%
農薬B	6.38 mg/L	1.40%	1.02%
農薬C	1.9 mg/L	1.20%	0.91%
農薬D	225 mg/L	8.90%	27%

表 15. 水稲育苗ハウスシナリオ検討における文献実測値および推定値の比較
（粒剤処理後の育苗ハウス土壤中濃度）

実施年	プロベナゾール		クロラントラニリプロール	
	実測値	推定値	実測値	推定値
2011年	<0.025 ppm	0.070 ppm	0.23-0.29 ppm	0.191 ppm
2012年	<0.025 ppm	0.174 ppm	0.36-0.47 ppm	0.201 ppm

表 16. 水稲育苗ハウスシナリオ検討における文献実測値および推定値の比較
（顆粒水和剤処理後の育苗ハウス土壤中濃度）

実施年	アミスルブロム	
	実測値	推定値
2013年	0.058-1.08 ppm	0.004 ppm



- ・ 育苗箱処理から撤去までの間隔：30日間
- ・ 撤去から後作物は種までの期間：21日間
- ・ 後作物(葉菜類)栽培期間：30日間

図 19. 水稲育苗ハウス（粒剤のみ）における計算シナリオ

結果および考察

4.1 国内登録農薬の推定値の調査

各適用の有効成分における後作物中濃度の推定結果を図 20 に示す。畑地適用の有効成分において、推定値が一律基準以上の有効成分は 59 % (177 成分)、一律基準未満の有効成分は 20 % (60 成分)、適用が永年作物または準永年作物のみであり除外となった有効成分は 21 % (62 成分) であった。そのうち、一律基準未満である有効成分は殺虫剤が 62 % を占めていた。水田適用の有効成分において、推定値が一律基準以上の有効成分は 64 % (79 成分)、一律基準未満の有効成分は 36 % (44 成分) であった。そのうち、一律基準未満である有効成分は除草剤が 61 % を占めていた。本推定手法によって得られた後作物中濃度の推定値を DT₅₀ に代わる新たな後作物残留試験等の高次試験の要求トリガーとして用いて、当該試験の要求条件を当該推定値が一律基準以上とした場合、畑地適用および水田適用の有効成分どちらについても、約 4 割が当該試験の実施を除外できる結果となった。一方、育苗箱処理（粒剤のみ）の適用の有効成分では、推定した全成分（31 成分）で推定値が一律基準以上となったことから、原則、全ての育苗箱処理剤について使用上の注意事項を付す等のリスク管理措置が必要と考えられた。

畑地適用および水田適用の有効成分の推定結果を基に、推定に用いた有効成分投下量、K_{oc}、DT₅₀ および DT₉₀ の 4 要素について、各要素の条件別の割合を調査した結果を図 21-24 に示す。各要素において、ある条件における一律基準以上の区の割

合と一律基準未満の区の割合の差が大きいほど、推定値が一律基準以上と未満のどちらになるかを判断できる条件とみなすことができ、当該推定値が一律基準を超過するリスクの判断に対して、その要素が有効と言える。有効成分投下量および K_{oc} については、有効成分投下量 < 100 g/10 a および K_{oc} > 1500 の場合に一律基準以上の区と一律基準未満の区の割合の差がそれぞれ 37 % および 30 % と最も大きくなった（図 21 および図 22）。DT₅₀ については、現在 100 日以上となった際に後作物残留試験が要求されるが、DT₅₀ < 100 日の場合の一律基準以上の区と一律基準未満の区の割合の差は 15 % と小さく、現在の要求条件は後作物残留試験を要求するトリガーとしてあまり有効ではない可能性が考えられた（図 23）。一方、DT₉₀ については、欧州連合において 100 日を超える際に後作物代謝試験が要求されるが、DT₉₀ < 100 日の場合の一律基準以上の区と一律基準未満の区の割合の差は 41 % であり、解析した要素の中で最も大きくなった（図 24）。

以上のように、前章で構築した簡易推定手法を用いて各シナリオにおける国内登録農薬の後作物中濃度の算定を行ったところ、約 4 割の農薬について推定値が一律基準未満となった。後作物残留試験等の高次試験の要求条件を本推定手法によって得られた後作物中濃度の推定値が一律基準以上とした場合、一定の割合で当該試験の実施を省略できることが示されたことから、当該推定値が DT₅₀ に代わる新たな後作物残留試験等の高次試験の要求トリガーとして利用できると考えられた。

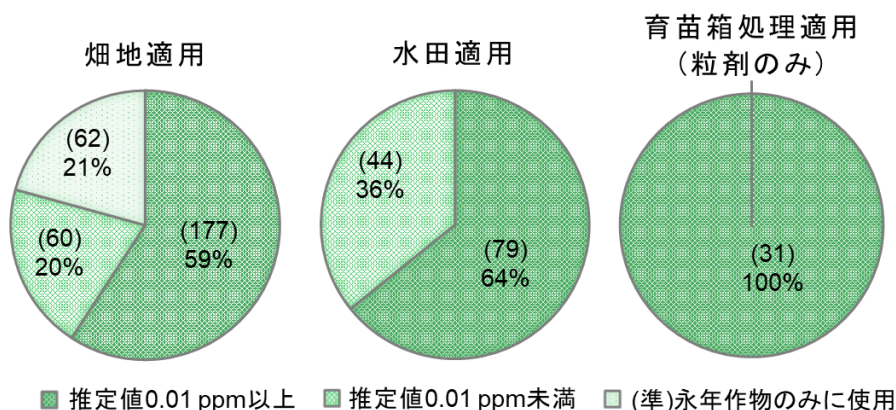


図 20. 国内登録農薬の後作物中濃度推定結果
(括弧内の数字は有効成分数を示す)

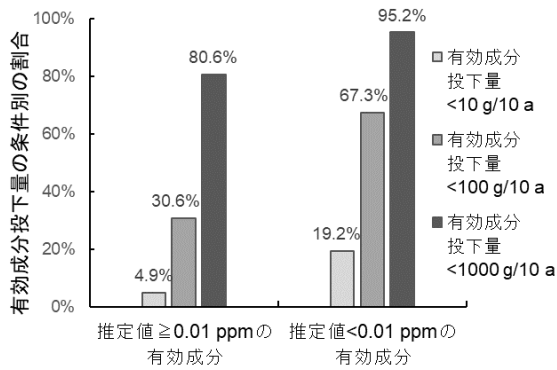


図 21. 推定値 0.01 ppm 以上の有効成分（左）と推定値 0.01 ppm 未満の有効成分（右）における推定に用いた有効成分投下量の条件別の割合

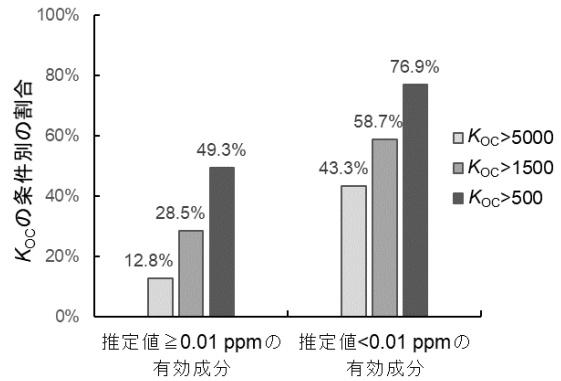


図 22. 推定値 0.01 ppm 以上の有効成分（左）と推定値 0.01 ppm 未満の有効成分（右）における推定に用いた K_{oc} の条件別の割合

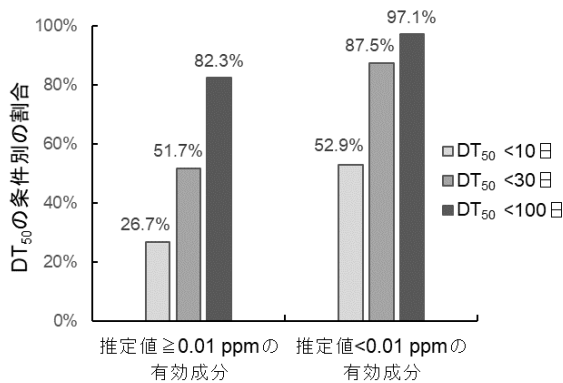


図 23. 推定値 0.01 ppm 以上の有効成分（左）と推定値 0.01 ppm 未満の有効成分（右）における DT_{50} の条件別の割合

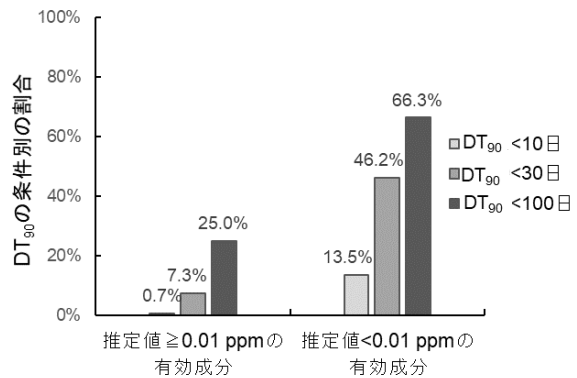


図 24. 推定値 0.01 ppm 以上の有効成分（左）と推定値 0.01 ppm 未満の有効成分（右）における DT_{90} の条件別の割合

5 おわりに

本調査では農薬の後作物残留に係る新たな評価法の導入に向けて、海外における評価スキームに関する情報を整理した。欧米の評価スキームは第1段階として後作物代謝試験を要求し、その結果に応じて第2段階の圃場における後作物残留試験の要否が判断される。一方、日本においては、後作物代謝試験は要求していないが、植物代謝試験および土壌中動態試験を要求しており、農薬の植物体内や土壌中での代謝分解については把握することが可能である。しかし、植物代謝試験は、通常、散布剤であれば被験物質を葉面散布や葉面塗布することにより実施されるため、根から取り込

まれた農薬の代謝分解については評価されていない。後作物における農薬の代謝分解を正確に評価するためには、後作物代謝試験の実施が必要と考えられる。後作物代謝試験を要求した場合、当該試験で検出された主要代謝物は後作物残留試験における分析対象物質となることが想定されるが、この他、規制対象物質および暴露評価対象物質の選定にあたって当該試験結果がどのように取り扱われるのか、今後、十分に検討する必要がある。

次に、国内の環境省事業および農水省事業のデータを取りまとめた結果、農薬の後作物への残留のし易さは、有効成分投下量、 DT_{50} 、 K_{oc} 、 $\log P_{ow}$ 等の個別の要因のみでは説明できないことが示さ

れた。そこで、TFを用いた後作物中濃度の簡易推定法を構築した。本推定手法によって得られた後作物中濃度の推定値をDT₅₀に代わる新たな後作物残留試験等の高次試験の要求トリガーとして用いた場合、国内の登録農薬については約4割の農薬(適用が準永年作物または永年作物のみであり、試算を除外した農薬を含む)が、高次試験の実施を除外できると判断された。本推定法については、今後、計算シナリオの妥当性等について精査していく必要はあるが、DT₅₀に代わる新たな高次試験の要求トリガーとしての利用が期待される。

最後に、環境省事業および農水省事業のデータは、有機炭素含量が少ない土壌において、播種から収穫までの期間が短い葉菜類を栽培した場合、特に後作物残留が起こりやすいことを示している。TG504では有機炭素含量が少ない砂壤土で葉菜類を栽培することが求められていることから、今後日本においてTG504が導入され、当該ガイドラインに準じて試験をした場合、一律基準以上の農薬が検出される事例が多くなる可能性がある。これらを見据えて、まだ日本では導入されていないPBIによるリスク管理や後作物残留基準値の設定については重点的に議論を進めていく必要があると考えられる。

引用文献

- 1) 谷川元一: インターネット等で公表された情報からみた残留基準を超過した農薬の状況. 日本農薬学会誌, 35(4), 537-541 (2010).
- 2) Y. Motoki, T. Iwafune, N. Seike, T. Otani and Y. Akiyama: Relationship between plant uptake of pesticides and water-extractable residue in Japanese soils. *Journal of Pesticide Science*, 40(4), 175-183(2015).
- 3) Briggs, G. G., Bromilow, R. H., and Evans, A. A.: Relationships between lipophilicity and root uptake and translocation of non-ionised chemicals by barley. *Pesticide science*, 13(5), 495-504 (1982).
- 4) Dettenmaier, E. M., Doucette, W. J. and Bugbee, B.: Chemical hydrophobicity and uptake by plant roots. *Environmental science & technology*, 43(2), 324-329 (2008).
- 5) Van Eerd, L. L., Hoagland, R. E., Zablotowicz, R. M., and Hall, J. C.: Pesticide metabolism in plants and microorganisms. *Weed science*, 51(4), 472-495 (2003).
- 6) 環境省: 農薬残留対策総合調査(河川モニタリング, 後作物残留等)の結果について. <https://www.env.go.jp/water/dojo/noyaku/zanryutai>
- saku.html (URL のリンクについての確認は、2023年9月28日に実施)
- 7) 一般財団法人残留農薬研究所: 平成 21 年度農産資材安全確保推進事業 ―農薬の後作物残留調査事業―, 最終報告書. (2010).
- 8) 一般財団法人残留農薬研究所: 平成 22 年度生産資材安全確保推進事業 ―農薬の後作物残留調査事業―, 最終報告書. (2011).
- 9) 一般財団法人残留農薬研究所: 平成 23 年度生産資材安全確保推進事業 ―農薬の後作物残留調査事業―, 最終報告書. (2012).
- 10) 一般財団法人残留農薬研究所: 平成 24 年度生産資材安全確保推進事業 ―農薬の後作物残留調査事業―, 最終報告書. (2013).
- 11) 一般財団法人残留農薬研究所: 平成 25 年度生産資材安全確保推進事業 ―農薬の後作物残留調査事業―, 最終報告書. (2014).
- 12) 一般財団法人残留農薬研究所: 一般社団法人日本植物防疫協会: 平成 26 年度農薬等安全確保強化対策事業 ―農薬の後作物残留調査事業―, 最終報告書. (2015).
- 13) 株式会社三菱化学テクノロジー: 平成 27 年度農薬の後作物残留調査報告書. (2016).
- 14) 一般社団法人日本植物防疫協会: 平成 28 年度農薬の後作物残留調査委託事業報告書. (2017).
- 15) 一般社団法人日本植物防疫協会: 平成 29 年度農薬の後作物残留調査委託事業(連作)事業報告書. (2018).
- 16) 株式会社食環境衛生研究所: 平成 29 年度農薬の後作物残留調査委託事業(剤形)試験報告書. (2018).
- 17) European Food Safety Authority (EFSA): *EFSA Journal* <https://efsa.onlinelibrary.wiley.com/journal/18314732> (URL のリンクについての確認は、2023年9月28日に実施)
- 18) OECD: Test No. 502: Metabolism in Rotational Crops. (2007).
- 19) OECD: Test No. 504: Residues in Rotational Crops (Limited Field Studies). (2007).
- 20) OECD: Guidance Document on Overview of Residue Chemistry Studies, Series on testing and assessment No. 64 and Series on pesticides No. 32. (2009).
- 21) OECD: Guidance Document on Residues in Rotational Crops, Series on Pesticides No. 97 and Series on Testing & Assessment No. 279. (2018).
- 22) ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY 40

CFR Part 158

- 23) U.S. EPA: OPPTS Harmonized Test Guideline 860.1850. Confined Accumulation in Rotational Crops. EPA Report No. 712-C-96-188, August 1996. (1996).
- 24) U.S. EPA: OPPTS Harmonized Test Guideline 860.1900. Field Accumulation in Rotational Crops. EPA Report No. 712-C-96-189, August 1996. (1996).
- 25) Regulation (EC) No 1107/2009 of the European Parliament and of the Council of 21 October 2009 concerning the placing of plant protection products on the market and repealing Council Directives 79/117/EEC and 91/414/EEC
- 26) Council Directive 91/414/EEC of 15 July 1991 concerning the placing of plant protection products on the market
- 27) Y. Motoki, T. Kato, Y. Akiyama, N. Seike and T. Iwafune: Relationship between the vertical distribution of pesticides, including neonicotinoids, in soils and their uptake by *Brassica rapa* L. var. *peruviridis*. ACS Agricultural Science & Technology, 1(4), 362-371(2021).
- 28) 藤澤卓生: 農薬の植物による取り込みモデル. Journal of Pesticide Science, 27(3), 279-286 (2002).
- 29) 清家伸康: 農薬の後作物残留を未然に防止する登録制度の提案. 平成 29 年度-令和元年度環境研究総合推進費終了研究成果報告書. (2020).
- 30) 岡美和, 伊藤和男, 斎藤玲奈, 池長宙, 北村恭朗, 西岡暢彦, 山田邦彦, 元木裕: 土壌を経由した後作物への農薬残留に関する調査研究. 農林水産消費安全技術センター農薬調査研究報告. 1, 14-18(2010).
- 31) 佐山玲, 篠田光江, 藤井直哉: 水稻育苗期にプロベナゾール・クロラントラニリプロール粒剤を使用した際の後作葉菜類の黒ボク土における農薬残留. 日本農薬学会誌, 41(2), 153-159(2016).
- 32) 佐山玲, 篠田光江, 藤井直哉: 水稻育苗期にアミスルブロム顆粒水和剤を使用したときの育苗ハウス後作野菜における農薬残留. 北日本病虫研報, 66, 27-30(2015)