

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

10) ラットにおける代謝試験

(資料 XV-24)

試験機関: 一般財団法人残留農薬研究所

報告書作成年: 2012 年

供試標識化合物: エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

標識位置の設定理由:

供試動物: SD 系 (CrI:CD(SD)(IGS)) SPF/VAF の雄ラット、  
投与時週齢 9 週齢、投与時体重  $365.1 \pm 13.1$ g

片性のみでの試験実施理由: 先に実施された当該化合物のラットにおける代謝試験 (資料 XV-1) において、当該化合物の代謝経路に顕著な雌雄差が認められなかった。従って雄のみの試験で上記当該試験の目的を十分達成することが可能であると判断したため。

試験方法:

投与: エトフェンプロックス及びエトフェンプロックスを混合して 3% ヒドロキシプロピルセルロース水溶液に懸濁して投与液を調製した。  
投与用量は 360 mg/10 mL/kg とし、強制経口投与した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

#### 用量設定根拠:

本用量は先に実施された当該化合物のラットにおける代謝試験(資料 XV-1)での高用量群の 2 倍の用量であり、極微量の代謝物の検出・同定が期待できる用量であった。

#### 飼育環境:

動物は 9 日間の馴化期間及び試験期間中、温度  $23 \pm 2^\circ\text{C}$  (実測温度:  $21.5 \sim 23.5^\circ\text{C}$ )、湿度  $55 \pm 15\%$  (実測湿度:  $48 \sim 62\%$ )、換気回数 20 回以上/時間(オールフレッシュエア方式)、照明時間 12 時間/日(午前 7 時点灯、午後 7 時消灯)の動物飼育装置内で飼育し、飼料及び飲料水を自由に摂取させた。投与後の動物はガラス製代謝ケージで個別に無拘束下で飼育した。

#### 試験群の概要:

下表に試験群の構成及び検査項目を要約する。

標識	用量	回数・経路	動物数	検査項目	試料採取時間(時間)
エトフェンプロックス	高用量 360 mg/kg	単回経口	雄 3匹	代謝物 分析	尿: 投与後5時間 血液、肝臓及び脂肪: 投与後5時間

投与後 5 時間( $T_{\max}$  時点)までの尿を採取した。また投与後 5 時間にジエチルエーテル深麻酔下で後大静脈から、採血後、頸椎脱臼によりラットを安楽死させ、肝臓及び脂肪を採取した。

#### 分析法:

投与液中の エトフェンプロックスの放射化学的純度及び濃度の測定  
調製投与液を液体シンチレーション計数法(LSC 法)で測定し、濃度を求め、また HPLC-フロースルー型放射能検出により、純度を求めた。

#### 放射能測定:

尿試料はろ過後、直接 LSC で測定した。血液は、一部を分取し、放射エネルギーを測定後、遠心分離により、血漿と血球に分離した。全血、血漿及び赤血球、肝臓及び脂肪は、可溶化処理次いで脱色処理後 LSC 測定した。

#### 放射性成分の測定:

尿、肝臓、脂肪及び血漿中の放射性成分の分布を調査した。ろ過尿は 3 匹分全量を、肝臓、脂肪及び血漿は各個体の一定量を 3 匹分合わせて、各プール試料を調製し、LSC 測定後、放射性成分を HPLC 分析により測定した。尿プール試料は、直接 HPLC 分析した。肝臓及び脂肪プール試料は均一化後、アセトニトリル及びアセトニトリル/水(1/1, v/v)混液(肝臓約 1 g、脂肪約 0.5 g に対し溶媒 15 mL)で各 2 回ずつ抽出した(各試料 2 連分析)。各抽出液画分及び抽出残渣(可溶化後)を LSC 測定した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

肝臓は、全アセトニトリル抽出液画分及び 1 回目のアセトニトリル/水抽出液画分を、脂肪は全アセトニトリル抽出液画分を、2 連分全て合わせ濃縮後 HPLC 分析した。血漿プール試料はアセトニトリル及びアセトニトリル/水(1/1、v/v)混液(血漿 3 mL に対し溶媒 15 mL)で各 1 回ずつ抽出した(2 連分析)。各抽出液画分及び抽出残渣(可溶化後)を LSC 測定した。2 連の全抽出液を合わせ濃縮後 HPLC 分析した。

代謝物の同定及び/又は特徴付け:

代謝物の同定及び/又は特徴付けは参照化合物との HPLC コクロマトグラフィーにより行った。

試験結果:

投与液中の エトフェンプロックスの放射化学的純度及び濃度  
 投与液中の エトフェンプロックスの濃度は  
 、放射化学的純度は投与日で であり、何れも適切であった。

尿中排泄率

結果を表 1 に示す。投与後 5 時間までの尿への放射能排泄率は投与量の 1.01% (1.01%AD)であった。

表 1 投与後 5 時間までの尿への放射能の排泄

試料	投与量 性別 時間	360 mg/kg
		雄 投与量(%AD)
尿(ろ過尿)	0-5 hr	1.01

数値は 3 匹の平均値

臓器・組織中放射能の分布

結果を表 2 に示す。

表 2 投与後 5 時間における臓器・組織中放射性残留物の濃度及び対血漿濃度比

投与量	360 mg/kg		
	雄		
性別	濃度 (mg eq./kg or L)	%AD	対血漿濃度比
全血	24.76	-	0.6
赤血球	6.90	-	0.2
血漿*	41.96	-	1.0
肝臓	158.13	1.80	3.8
脂肪	75.45	-	1.8

数値は 3 匹の平均値 -:適用せず。\*: mg/eq./L

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

投与後 5 時間における肝臓、脂肪、全血、血漿及び赤血球中の放射能濃度は、それぞれ 158.13、75.45、24.76、41.96 及び 6.90 mg eq./kg or L であった。また、肝臓、脂肪、全血及び赤血球における放射能濃度は、それぞれ血漿中放射能濃度の 3.8、1.8、0.6 及び 0.2 倍であった。なお、肝臓中における放射能分布率は 1.80%AD であった。

#### 放射性成分の分布

肝臓、脂肪及び血漿の抽出液並びに尿を HPLC 分析して放射性成分の分布を調査した。

肝臓、脂肪並びに血漿中の放射性残留物の抽出回収率はそれぞれ 97.3、100 及び 97.2%であり、良好であった。HPLC 分析結果を表 3 に示す。

#### 尿中の主要放射性成分として

#### 肝臓中の主要放射性成分として

脂肪中の主要放射性成分として未変化の親化合物 I (画分#55、94.8%HPLC)が検出されたほか、

#### 血漿中の主要放射性成分として



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

## 2. 植物における代謝試験

### 1) エトフェンプロックスの水稻における代謝分解試験

(資料 XV-4)

試験機関: 三井化学株式会社

報告書作成年: 1985 年

供試標識化合物: 標識位置の異なる下記 2 種の標識化合物をそれぞれ用いた。

#### 1) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

#### 2) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

供試植物: 水稻(品種: 日本晴、コシヒカリ)、出穂直前

試験方法: 日本晴とコシヒカリの 2 品種の 3 本植えを 1 株として、3 株を 1/5000a ワグネルポットで土耕栽培した。出穂直前の止葉 1 枚の表面にメタノールに溶解した 2 種の標識化合物をそれぞれ 10  $\mu\text{g}$  塗布した。2~6 週間栽培し、処理葉及び非処理部に分布する放射エネルギーを測定した。また、抽出された代謝分解物を定量し、TLC による標品とのコクロマトグラフィーによって同定した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

栽培条件： 以下に示す条件で水稻を栽培した。

光量 56000 ルクス (15 時間明 9 時間暗)

温度 30~35°C

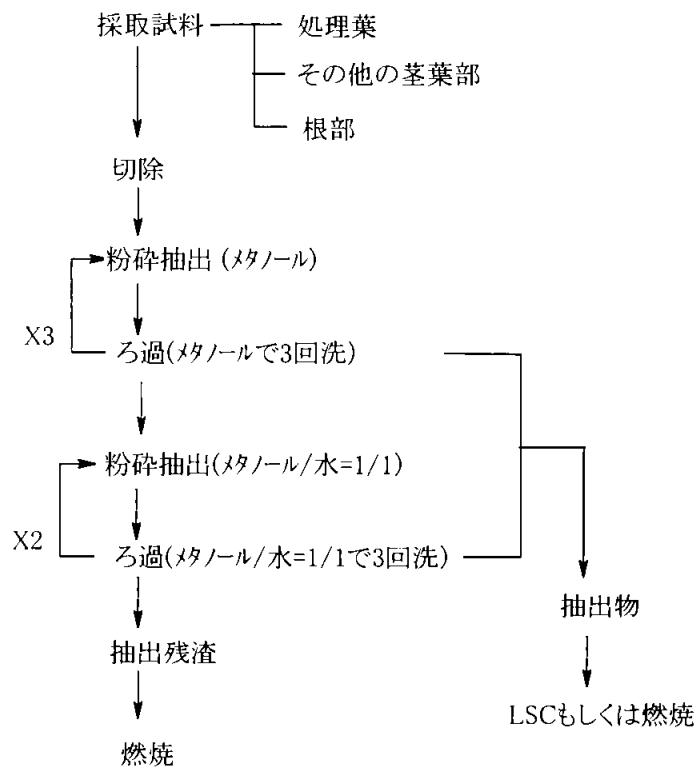
湿度 80%

日本晴(1)	7 月 20 日	処理	
	27 日	1 週間目抽出	
	8 月 3 日	2 週間目抽出	
	10 日	3 週間目抽出	
	日本晴(2)	8 月 24 日	処理
	9 月 7 日	2 週間目抽出	
	21 日	4 週間目抽出	
	10 月 5 日	6 週間目抽出	
	コシヒカリ	8 月 27 日	処理
	9 月 3 日	1 週間目抽出	
	10 日	2 週間目抽出	

試料採取：

標識化合物を処理した水稻の処理葉、その他の茎葉部及び根部の 3 部分に分けて採取し、メタノール或いはメタノール/水(1/1)溶液を加え、ポリロンで粉碎抽出を行った。操作を以下のフローに示す。

試料採取と抽出のフロー：



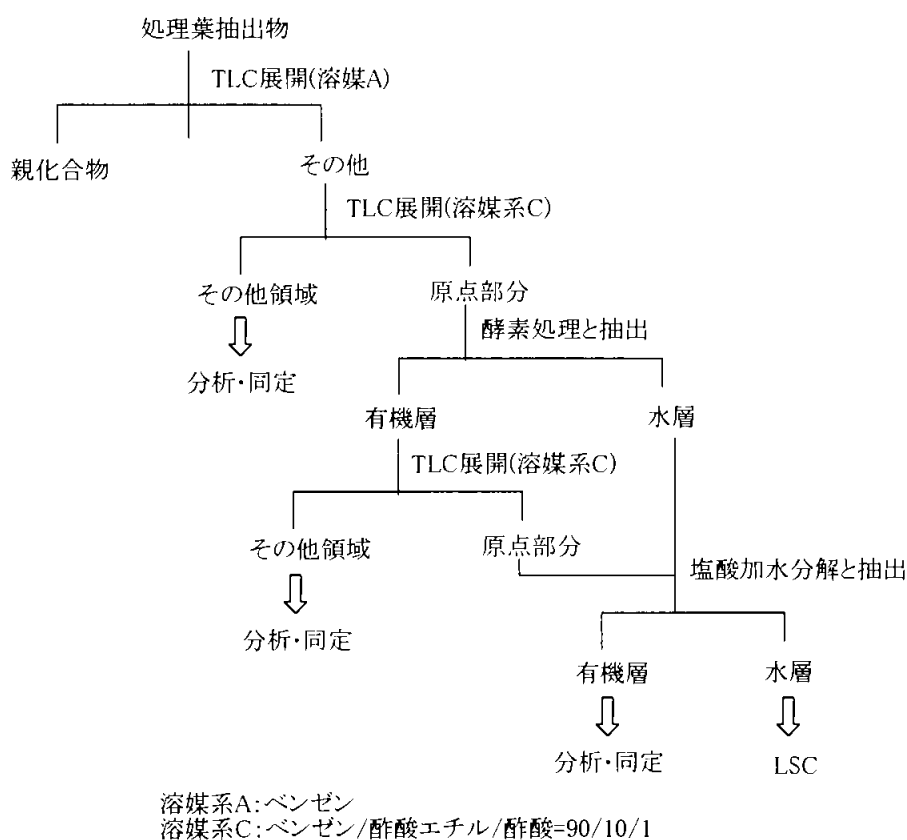
本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

#### 代謝分解物の分離・同定:

処理葉抽出物はベンゼン[溶媒 A]を用いた薄層クロマトグラフィーで親化合物 I (エトフェンプロックス) を除去し、その他の部分はベンゼン/酢酸エチル/酢酸=90/10/1[溶媒系 C]を用いて展開した。原点以外の代謝分解物はいくつかの部分に分けて有機溶媒抽出し、それぞれコクロマトグラフィーによる同定及び LSC による定量を行った。

原点部分の試料は  $\beta$ -グルコシダーゼ 12 mg、セルラーゼ 12 mg、0.2M アセテートバッファー 4 mL を加えて 37°C で 48 時間インキュベートした。反応終了後、塩酸で pH1 に調整し、エーテル抽出を行った。エーテル抽出部は前述の同定、定量を行った。エーテル抽出部薄層クロマトグラフィーの原点部分とエーテル抽出後の水層の部分を併せて 6N-HCl 5 mL を加えて 90°C 以上で 1 時間反応させた。その後同様に代謝分解物のエーテル抽出、同定、定量を行った。以上の工程を以下にスキームで示す。

#### 処理葉の分析スキーム:



日本晴(2)の種子部はメタノール/水(1/1)のみで抽出を行った後、以下の操作を行い、代謝物の同定、定量を行った

- ・減圧濃縮し、メタノールを除去
- ・酢酸エチルで 3 回抽出し、抽出液を併せて減圧濃縮
- ・薄層クロマトグラフィーで展開(溶媒系:ベンゼン)



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

- ・UV ランプで親化合物 I (エトフェンプロックス)の位置を確認し、親化合物 I (エトフェンプロックス)とその他の部分に分けてシリカゲルをかきとり、放射エネルギーを測定

試験結果:

1) 放射能の分布

回収された全放射能の量は処理した親化合物 I (エトフェンプロックス)に対して試験期間を通じて平均 80%であり、試験期間中ほとんど変化がなかった。処理葉中に残存する放射の量は4、6週間後でも全放射エネルギーの97%で、非処理部(茎葉部、根部、種子部)への移行率は処理量のわずか1~3%であった。また、種子部への放射能の移行は6週間後においても0.4%以下であった。結果を表1~3に示す。

2) 代謝分解物の同定

処理された親化合物 I (エトフェンプロックス)は葉面で比較的速やかに代謝分解され、2週間後の処理葉面上の親化合物 I (エトフェンプロックス)は処理量の約17~25%になり、その半減期は約1週間であった。また、種子部へ移行した親化合物 I (エトフェンプロックス)は処理量に対して2、4、6週間後で差は認められず、0.01 から0.04%であった。親化合物 I (エトフェンプロックス)とその代謝分解物の処理量に対する割合を表4にまとめた。

葉面上では

の生成が認められた。

2週間後の葉面上における親化合物 I (エトフェンプロックス)とこれらの代謝分解物の合計は、処理量に対して これは炭酸ガスとなって放出された結果と考えられる。

処理量の1%を超える代謝分解物は以下の通りである。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表1 水稲における<sup>14</sup>C放射能分布(日本晴(1))

		処理放射能に対する割合(%)					
		1週		2週		3週	
処理葉							
	抽出物	74.2 (49.1) <sup>3)</sup>	73.0 (47.1)	60.4 (24.3)	62.2 (23.9)	44.1 (6.4)	36.3 (2.6)
	抽出残渣	3.9	3.1	13.9	11.3	28.1	28.9
その他茎葉部							
	抽出物	0.36	0.33	0.44	0.39	0.70	0.39
	抽出残渣	0.18	0.20	0.44	0.40	0.70	0.55
根部							
	抽出物	} 0.07	0.06	0.10	0.14	0.14	0.20
	抽出残渣						
<sup>14</sup> C総放射能		78.7	76.7	75.3	74.4	73.7	66.3

- 1) エトフェンプロックス  
 2) エトフェンプロックス  
 3) ( ) : 親化合物 I (エトフェンプロックス)の割合

表1別表(%TRRで表示)<sup>\*</sup> 水稲における<sup>14</sup>C放射能分布(日本晴(1))

		残留放射能に対する割合(%)					
		1週		2週		3週	
処理葉							
	抽出物	95.0 (62.9) <sup>3)</sup>	95.9 (61.9)	81.3 (32.7)	84.6 (32.5)	61.1 (8.9)	55.7 (4.0)
	抽出残渣	5.0	4.1	18.7	15.4	38.9	44.3
	合計	100	100	100	100	100	100
その他茎葉部							
	抽出物	66.7	62.3	50.0	49.4	50.0	41.5
	抽出残渣	33.3	37.7	50.0	50.6	50.0	58.5
	合計	100	100	100	100	100	100
根部							
	抽出物	} 100	100	100	100	100	100
	抽出残渣						
	合計	100	100	100	100	100	100

- 1) エトフェンプロックス  
 2) エトフェンプロックス  
 3) ( ) : 親化合物 I (エトフェンプロックス)の割合

<sup>\*</sup>【申請者注】報告書では処理放射能に対する割合(%TAR)を示したが本概要書では残留放射能に対する割合(%TRR)に換算した表を追加した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 2 水稲における  $^{14}\text{C}$  放射能分布(コシヒカリ)

	処理放射能に対する割合(%)			
	1 週		2 週	
処理葉				
抽出物	77.4 (48.5) <sup>3)</sup>	73.5 (43.1)	58.8 (20.0)	59.1 (20.0)
抽出残渣	5.3	4.5	19.8	15.2
その他茎葉部				
抽出物	0.70	0.47	0.92	0.63
抽出残渣	0.16	0.18	0.46	0.34
根部				
抽出物	0.02	0.03	0.04	0.03
抽出残渣				
$^{14}\text{C}$ 総放射能	83.6	78.7	80.0	75.3

- 1) エトフェンプロックス  
 2) エトフェンプロックス  
 3) ( ) : 親化合物 I (エトフェンプロックス) の割合

表 2 別表 (%TRR で表示)\* 水稲における  $^{14}\text{C}$  放射能分布(コシヒカリ)

	残留放射能に対する割合(%)			
	1 週		2 週	
処理葉				
抽出物	93.6 (58.7) <sup>3)</sup>	94.2 (55.2)	74.8 (25.4)	79.5 (26.9)
抽出残渣	6.4	5.8	25.2	20.5
合計	100	100	100	100
その他茎葉部				
抽出物	81.4	72.3	66.7	64.9
抽出残渣	18.6	27.7	33.3	35.1
合計	100	100	100	100
根部				
抽出物	100	100	100	100
抽出残渣				
合計	100	100	100	100

- 1) エトフェンプロックス  
 2) エトフェンプロックス  
 3) ( ) : 親化合物 I (エトフェンプロックス) の割合

\*【申請者注】報告書では処理放射能に対する割合(%TAR)を示したが本概要書では残留放射能に対する割合(%TRR)に換算した表を追加した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表3 水稻における<sup>14</sup>C放射能分布(日本晴(2))

	処理放射能に対する割合(%)					
	2週		4週		6週	
処理葉						
抽出物	62.1 (19.0) <sup>3)</sup>	58.8 (17.4)	50.0 (4.7)	51.2 (4.1)	40.8 (1.0)	45.7 (0.9)
抽出残渣	16.9	15.5	26.9	26.2	50.8	36.3
その他茎葉部						
抽出物	1.34	1.07	1.05	1.09	1.23	1.10
抽出残渣	0.52	0.36	0.92	0.84	1.03	0.90
根部						
抽出物	0.01	<0.01	0.01	0.01	0.03	<0.01
抽出残渣	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	0.01
種子部						
抽出物	0.19 (0.03)	0.16 (0.02)	0.24 (0.01)	0.22 (0.02)	0.12 (<0.01)	0.17 (0.04)
抽出残渣	0.12	0.14	0.33	0.27	0.34	0.38
<sup>14</sup> C総放射能	81.2	76.0	79.5	79.8	94.4	84.6
1) エトフェンプロックス			2) エトフェンプロックス			
3) ( ) : 親化合物I(エトフェンプロックス)の割合						

表3別表(%TRRで表示)<sup>\*</sup> 水稻における<sup>14</sup>C放射能分布(日本晴(2))

	残留放射能に対する割合(%)					
	2週		4週		6週	
処理葉						
抽出物	78.6 (24.0) <sup>3)</sup>	79.1 (23.4)	65.0 (6.1)	66.1 (5.3)	44.5 (1.1)	55.7 (1.1)
抽出残渣	21.4	20.9	35.0	33.9	55.5	44.3
合計	100	100	100	100	100	100
その他茎葉部						
抽出物	72.0	74.8	53.3	56.5	54.4	55.0
抽出残渣	28.0	25.2	46.7	43.5	45.6	45.0
合計	100	100	100	100	100	100
根部						
抽出物	50	-	100	100	75.0	0
抽出残渣	50	-	0	0	25.0	100
合計	100	-	100	100	100	100
種子部						
抽出物	61.3 (9.6)	53.3 (6.7)	42.1 (1.8)	44.9 (4.1)	26.1 (<0.01)	30.9 (7.3)
抽出残渣	38.7	46.7	57.9	55.1	73.9	69.1
合計	100	100	100	100	100	100
1) エトフェンプロックス			2) エトフェンプロックス			
3) ( ) : 親化合物I(エトフェンプロックス)の割合						

<sup>\*</sup>【申請者注】報告書では処理放射能に対する割合(%TAR)を示したが本概要書では残留放射能に対する割合(%TRR)に換算した表を追加した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 4 水稻における親化合物 I (エトフェンプロックス)と代謝分解物 (コシヒカリ)

	処理放射能に対する割合(%)			
	1 週		2 週	
処理葉				
抽出物				
未変化親化合物 I (エトフェンプロックス)	46.3	46.7	25.9	25.8

- 1) エトフェンプロックス  
2) エトフェンプロックス

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 4 別表 (%TRR で表示)\*)

水稻における親化合物 I (エトフェンプロックス)と代謝分解物 (コシヒカリ)

	残留放射能に対する割合(%)			
	1 週		2 週	
処理葉				
抽出物				
未変化親化合物 I (エトフェンプロックス)	62.7	62.6	37.0	37.1

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

水稲における推定代謝分解経路



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

2) エトフェンプロックスの水稻における代謝分解試験

(資料 XV-20)

試験機関:Ricerca, LLC.(米国)

[GLP 対応]

報告書作成年:2002 年

供試標識化合物: 標識位置の異なる下記 2 種の標識化合物を等量混合して用いた。

1) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

2) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

供試植物: 水稻、中粒米 (品種:日本晴れ)

土壌: 米国オハイオ州チェスターランド(土性を表 1 に示す)

試験方法:

栽培条件:

土壌処理及び茎葉処理の各々について水田(対照区 1、処理区 2)を設定した。種もみを、砂、ミズゴケ、試験土壌を入れた育苗箱に蒔き、植物体が 3~5 葉期に、苗を土壌と水で充填した直径約 21 cm、面積 0.0346 m<sup>2</sup>のポリエチレン製円形ポットに苗を植えた。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

対照区はポット 6 個、処理区は 12 個設置した。温度及び照明の自動コントロール付き温室内で栽培した。温度及び湿度はモニターした。畝に 4~6 株の苗を植えた。肥料を各ポットに施用し、植物体を健全に生育させた。水は定期的に追加し、ポットの水深を約 3~5 cm に維持した。施肥、水遣り、殺虫剤、抗菌剤、雑草防御を適宜行った。被験物質に類似の農薬は使用しなかった。グループ I 及びグループ II は無処理対照とした。土壌処理及び茎葉処理各々について、通常の処理量及び過剰処理量を処理した。土壌処理区は収穫前(PHI)35 日に土壌処理した。茎葉処理区は収穫前(PHI)21 日に水稻植物体に処理した。

表 1 米国オハイオ州チェスターランドから採取した土壌の土性

Ricerca 土壌サンプル EFS-008	
土壌の種類	シルト壤土
pH	7.3
砂(%)	16.0
シルト(%)	76.0
粘土(%)	8.0
有機物(%)	2.00
CEC(meq/100g)	9.30
バルク密度(g/cc)	1.35

表 2 試験ポットの区分を次表に示す。

処理方法	水稻ポット	ポット数	茎葉処理量 (g a.i./ha)	処理から収穫 までの期間 (日間)	処理日
茎葉処理	対照 I	6	-	-	-
	III	12	200 (通常量)	21	2001/6/6
	IV	12	2000 (10 倍量)	21	
土壌処理	対照 II	6	-	-	-
	V	12	450 (通常量)	35	2001/5/23
	VI	12	2000 (4.5 倍量)	35	

処理方法	水稻ポット	試料収穫日		
		収穫 14 日前	成熟植物体	土壌・根
茎葉処理	対照 I	2006/6/13	2006/6/27	2006/6/29
	III			
	IV			
土壌処理	対照 II	2006/6/13	2006/6/27	2006/6/29
	V			
	VI			

試験温度及び照明条件:

温度: 昼 28°C、夜 21°C

照明条件: 14 時間明期/10 時間暗期、補助照明: 1000W メタルハライドランプ

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

#### 試験液の調製方法:

エトフェンプロックス 70.4 mg にアセトニトリル約 2 mL を添加して原液を調製した。LSC により濃度を測定した結果、31.85 mg/mL であった。

エトフェンプロックス 80.7 mg にアセトニトリル約 2 mL を添加して原液を調製した。LSC により濃度を測定した結果 37.28 mg/mL であった。

希釈原液を次の通り調製した。エトフェンプロックス

原液 2.05 mL 及び エトフェンプロックス 原液 1.75 mL の等モル量を混合し、非標識エトフェンプロックス(82.7 mg)を添加した。アセトニトリルで定容した。放射能濃度(LSC)及び放射化学的純度(HPLC-RAD)を測定した。

#### 土壌水浸製剤の調製

土壌処理用試験液は処理前に調製した。各施用率に対応する適当量の希釈原液を組織粉碎管に入れ、窒素気流によりアセトニトリルをほぼ乾固するまで蒸発させた。適量のエトフェンプロックス製剤ブランク(30EC)を添加し残りのアセトニトリルを除去した。脱イオン水約 5 mL を添加し、1 分間粉碎した。プラスチック製ボトルに移し入れ、粉碎管を脱イオン水で 3 回洗浄し、洗浄ごとに約 30 秒間粉碎した。洗浄液を添加し、最終量 63 mL を調製した。濃度及び放射化学的純度を LSC 及び HPLC-RAD で分析した。

#### 茎葉処理用製剤の調製

茎葉処理用試験液は処理前に調製した。各施用率に対応する適当量の希釈原液を組織粉碎管に入れ、窒素気流によりアセトニトリルをほぼ乾固するまで蒸発させた。適量のエトフェンプロックス製剤ブランク(30EC)を添加し、残りのアセトニトリルを除去した。脱イオン水を添加し 1 分間粉碎し、プラスチック製ボトルに移し入れ、粉碎管を脱イオン水で 3 回洗浄し、洗浄ごとに約 30 秒間粉碎した。洗浄液を添加し、最終量 42mL を調製した。濃度及び放射化学的純度を LSC 及び HPLC-RAD で分析した。

#### 茎葉処理量:

上記試験液を水稻植物 1 ポット当たり茎葉処理では 200 g a.i./ha(8.30 mg a.i./ポット)及び 2000 g a.i./ha(83.0 mg a.i./ポット)、土壌処理では 450 mg a.i./ha(18.68 mg a.i./ポット)及び 2000 g a.i./ha(83.0 mg a.i./ポット)の割合で処理した。

#### 処理方法:

土壌処理は温室内で実施した。水稻植物体を栽培しているポットから水を抜き、ガラスピペットを用いて、土壌処理用試験液を土壌表面に 1 滴ずつ均一に施用した。処理後、水稻植物体を約 3~5 cm の深さまで水に浸けた。

茎葉処理は次のように実施した、ポットから排水し、2×3×6(高さ)フィートのグローブボックス付きスプレーチャンバーにすべての処理用ポットを収容した。試験液全量を手動式ポンプスプレーヤーで散布した。さらに散布ボトルを脱イオン水 10 mL で洗浄し、洗

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

浄液も植物体に散布した。植物体を乾いてから温室に戻し、ポットを約 3~5cm の水に浸けた。すべての試験ポットは定期的に水を追加して水深を約 3~5 cm に維持した。

試料採取:

未熟な植物体(PHI 28 日及び PHI 14 日)を各処理区のポット 2 個から収穫した。植物体を喫水線より上で刈取り、地上部分(稲穂)と葉/茎(ワラ)に分離し、各々を分析に供した。土壌試料及び水試料も採集し、分析に供した。登熟した水稻植物体を喫水線より上で刈取り、穂、ワラ(葉/茎)、根に分離し、各々を分析に供した。各処理区のポット 2 個から土壌試料及び根を採取し、分析に供した。

表 3 サンプルングスキーム

処理方法	処理率 (g a.i./ha)	処理 収穫前 35 日	サンプリング 収穫前 PHI 28 日	処理 収穫前 21 日	サンプリング 収穫前 PHI 14 日 <sup>b,c</sup>	サンプリング 最終収穫 <sup>d</sup> (成熟植物体)
茎葉処理	200			処理	2 ポット 穂 葉/茎	10 ポット もみ(玄米、もみ殻) 葉/茎 根 土壌
	2000			処理	2 ポット 穂 葉/茎	10 ポット もみ(玄米、もみ殻) 葉/茎 根 土壌
土壌処理	450	処理	2 ポット 穂 葉/茎 水 土壌		2 ポット 穂 葉/茎 水 土壌	8 ポット もみ(玄米、もみ殻) 葉/茎 根 土壌
	2000	処理	2 ポット 穂 葉/茎 水 土壌		2 ポット 穂 葉/茎 水 土壌	8 ポット もみ(玄米、もみ殻) 葉/茎 根 土壌

a 土壌処理区の無処理ポット 1 個を PHI 28 日に収穫した。

b 茎葉処理区の無処理ポット 2 個及び土壌処理区の無処理ポット 1 個を PHI 14 日に収穫した。

c 給水は収穫前 14 日に中止した。

d 無処理ポット及び各処理区のポット 4 個を最終収穫時に試料採取した。

分析方法:

分析法の概要:

1) 未成熟試料:

各処理区の玄米及びもみ殻に分離できない緑色穂全体をミキサーに入れ、ドライアイスと共にホモジナイズし、プラスチック製容器に入れドライアスを冷凍庫で昇華させた。各処理区の葉/茎(ワラ)のサブサンプルも同様の方法で処理した。土壌試料は風乾し、ホモジナイズした緑色穂、葉/茎、土壌の各サブサンプルを燃焼分析により総残留放

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

射能(TRR)を測定した。水試料の一部を LSC で測定し  $^{14}\text{C}$  残留量を求めた。

## 2) 成熟した植物体の葉/茎(ワラ)

成熟した植物体の葉/茎(ワラ)を完全に混合し、1ポットあたりの葉の平均重量を算出した。ポット1個に相当する量の葉を各処理区の葉/茎試料から取り出しアセトニトリルで洗浄した。各処理区の穂全体も各々アセトニトリルで洗浄した。洗浄液を約1分間旋回させ、デカンターに注いだ。洗浄を再度実施し、洗浄液をまとめ、その一部を LSC で定量した。穂及び葉/茎のサンプルを風乾した。稲穂からモミを分離し、残りの穂軸を葉/茎のバルク試料とまとめた。もみすり機で分離した玄米及びもみ殻、葉/茎各々の試料(表面洗浄後)をドライアイスと共にホモジナイズし、プラスチック製容器に入れドライアイスで冷凍庫で昇華させた。土壌試料は混合して均一にした。根は水で洗浄し土壌を除去し、水分を拭き取り乾燥させた。各処理区の試料を秤量し、ドライアイスと共にホモジナイズし、プラスチック製容器に入れ、ドライアイスは冷凍庫で昇華させた。各試料の総残留放射能(TRR)を燃焼法により LSC で測定した。水相画分中の TRR は直接 LSC で計測した。ワラにおける TRR は、表面洗浄液及び固体画分を合計した。米粒における TRR は、穂の表面洗浄液、玄米、もみ殻の各画分を合計した。

## 3) 中間収穫時の穂、ワラ及び土壌の抽出

各マトリックス 10g を遠心管に入れて秤量した。アセトニトリル(2回)及びアセトニトリル:水 60:40 v/v(2回)の抽出溶媒をホモジナイズした。各々の抽出物をガラスフィルターで減圧濾過し、濾過液の一部を LSC で測定した。抽出物を濃縮し、LSC で測定して回収率を求めた。濃縮抽出物を HPLC-RAD 分析によりプロファイルした。抽出残渣(PES)を風乾しホモジナイズした。抽出残渣中の  $^{14}\text{C}$  残留量を燃焼法及び LSC で測定した。

## 4) 最終収穫時の玄米、葉/茎、もみ殻及び土壌の抽出

各マトリックス 5~20g を遠心管に入れて秤量した。アセトニトリル:水(9:10 v/v)の抽出溶媒 200mL をホモジナイズした。抽出物を遠心分離又は粗ガラス濾過漏斗で減圧濾過した。上清(又は濾過液)を除去し、抽出溶媒(60:40 v/v)で抽出を繰り返した。各抽出物を秤量し、LSC で測定した。抽出物を濃縮し LSC で測定し、回収率を求めた。濃縮抽出物を HPLC-RAD 分析によりプロファイルした。抽出残渣(PES)を風乾しホモジナイズした。抽出残渣中の  $^{14}\text{C}$  残留量は燃焼試験及び LSC で測定した。

## 5) 残留放射能分布

親化合物 I (エトフェンプロックス)、

は、HPLC-RAD 方法 1 による分析から十分に分離されたことが判明した。従って HPLC-RAD 方法 1 又は HPLC-LSC プロファイル

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

から各画分の放射能を直接求めた。

#### 6) 代謝物画分の分離及び精製

2000g a.i./ha 茎葉処理した葉/茎試料(20.01g)を、上述の抽出方法で抽出し、ロータリーエバポレーターで水相に濃縮し、カラムにかけて画分を採取した。アセトニトリル:水(50:50 v/v)でカラムを溶出し、200mL 画分を3つ採取した。カラムをアセトニトリルで洗浄し、200mL 画分を3つ採取した。各画分の一部を LSC で定量分析した。

画分 1~3: 水相画分

画分 4: 50%アセトニトリル画分

画分 5~7: 混合したアセトニトリル画分

画分 8~9: 100%アセトニトリル画分

水相画分の総残留放射能は極く少量であったため廃棄した。各画分を濃縮し、HPLC-RAD で分析し、<sup>14</sup>C ピークを保持時間により暫定的に特定した。親化合物 I (エトフェンプロックス)、

により分離、精製した。親化合物 I

(エトフェンプロックス)、

について質量分析

を行い、参照物質との同時クロマトグラフィー(HPLC)による特徴づけを行った。

#### 7) 酸による加水分解

を乾固濃縮し、6.0N HCl(2 mL)で加水分解した。HClをロータリーエバポレーターで除去した。加水分解試料の 50%を水性メタノールで再調製し、HPLC-RAD 方法 1 で分析した。別に、分離した画分を 1.0N HCl で加水分解後、乾固濃縮させ、1.0N HCl で再溶解した。インキュベート後、HCl をロータリーエバポレーターで除去した。加水分解試料の 50%を水性メタノールで再調製し、HPLC-RAD 方法 1 で分析した。

#### 8) 酵素による加水分解

を窒素気流下で乾固濃縮し、酢酸ナトリウム緩衝液(pH5.0、0.1M)に再溶解した。 $\beta$ -グル

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

コンダナーゼで酵素分解した。遠心分離し、上清を LSC で分析して回収率を求めた。残留酵素を HPLC による精製で除去し、濃縮分離物を HPLC-RAD 方法 1 で分析した。

9) 土壌処理(450g a.i./ha 及び 2000 g a.i./ha)した玄米、もみ殻、ワラの抽出残渣(PES)の酸による加水分解

各処理区の玄米、ワラ、もみ殻の抽出残渣(PES)5gを1.0N HClで加水分解し、遠心分離後、遠心沈渣を水で洗浄し、遠心分離した。上清の一部を LSC 分析し、<sup>14</sup>C を定量した。加水分解物を乾固濃縮し、水に再溶解し、HPLC-RAD 方法 1 で残留放射能を分析した。

10) タンパク質、炭水化物、リグニン画分への玄米 PES の画分化

1.0N HCl による加水分解後の玄米 PES 残留固形物を、25mM ジチオスレイトール + 5%硫酸ラウリル水溶液と混合し、50°C・約 16 時間でインキュベートし、遠心分離した。SDS 処理で得られた上清及び洗浄液を秤量し、上清の一部を LSC で測定した。

11) 玄米 PES の SDS 画分のゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)

Sephadex G-100 充填材 20g に 2.5mM EDTA、0.25% SDS 及び 0.25M 酢酸アンモニウム緩衝液 400mL を添加した。混合液を加熱沸騰させて一晩室温で放置した。緩衝液を採取した。ガラス製カラムにゲルを充填し、酢酸アンモニウム緩衝液:水=1:1.5(v/v)の移動相を使用しブルーデキストラン(高分子量マーカー)及び <sup>14</sup>C 標識グルコースで校正した。玄米 PES の SDS 画分の一部をカラムにかけ、酢酸アンモニウム:水 1:1.5(v/v)で溶出させた。蠕動ポンプと画分採集器で、 を採集した。画分の一部を LSC で測定した。

高分子量画分のプロテアーゼ処理及び GPC-カラム分析

高分子量画分を秤量し、一部を LSC で測定した。高分子画分をプロテアーゼ 100 mg 及び塩化マグネシウム 10 mg と混合し、pH を水酸化アンモニウムで 7.7 に調整した。約 16 時間・37°C でインキュベートし、遠心分離し、上清を採取した。プロテアーゼ処理した試料の一部を GPC カラムに投入した。蠕動ポンプと画分採集器で を採取した。画分の一部を LSC で測定した。

12) 玄米 PES サンプルの 72%硫酸分解

1.0N HCl 加水分解及び SDS 処理後の玄米 PES の残留固形物を 2 等分した。一方を硫酸で処理し、他方は次の通りアミラーゼ処理した。SDS 処理した玄米 PES 残留固形物の一部を別々の煮沸フラスコに移し入れ、PES:72%硫酸溶液を 1:4(g PES/mL)の割合で添加した。各試料を約 3 時間室温で静置後、水で希釈し、約 5 時間還流した。冷却後、硫酸溶液を減圧濾過した。濾過残渣を水で洗浄し、液層を濾過した。洗浄液を濾過液と一緒にプールし、一部を LSC で測定した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

#### 玄米 PES のアミラーゼ分解

玄米 PES の一部を、pH6.9 の 0.2M リン酸緩衝液 15mL 及びアミラーゼ酵素(約 150  $\mu$ L(5 単位)と混合し、約 16 時間・20°C に設定した環境チャンバー内でインキュベートした試料を遠心分離して残渣を除去し上清を採取した。残渣を水で洗浄し、遠心分離した。上清を秤量し、一部を LSC で分析し、アミラーゼ画分中の  $^{14}$ C 残留量を求めた。残留固形物についてアミラーゼ処理をさらに 2 回繰り返して行った。硫酸分解又はアミラーゼ分解後の残渣について、燃焼法によりリグニン画分中の  $^{14}$ C 残留量を測定した。

#### 玄米 PES の硫酸分解物のグルコースに関する HPLC 分析

中和した硫酸分解物を濃縮し、HPLC 法 4 で分析した。 $^{14}$ C-グルコース標準試料も HPLC 方法 4 で分析した。

### 13) もみ殻及びワラ PES の画分化(炭水化物及びリグニン画分化)

#### もみ殻及びワラ PES サンプルの 72%硫酸分解

1.0N HCl 加水分解後のもみ殻又はワラの PES 試料 2 等分した。一方を 72%硫酸で処理し、他方は後述の通りセルラーゼ処理した。

#### もみ殻及びワラ PES サンプルの 72%硫酸分解

1.0N HCl 処理後のもみ殻及びワラから得られた PES サンプルを別々の煮沸フラスコに移し、PES:72%硫酸溶液を 1:4 (g PES/mL)の割合で添加した。室温で約 3 時間静置後、水で希釈し、約 5 時間還流してセルラーゼ処理した。冷却後、硫酸溶液を減圧濾過し、濾過残渣を水で洗浄し、液層を濾過分離した。洗浄液及び濾過液をまとめ、一部を LSC により測定した。

#### もみ殻及びワラ PES のセルラーゼ分解

もみ殻またはワラ PES の一部を 0.2M 酢酸ナトリウム緩衝液(pH5.0)及びセルラーゼと混合し、37°C、150 rpm で約 16 時間インキュベート後、減圧濾過して濾過残渣を上清を移し、濾過残渣は水で洗浄後、液層を濾過分離した。洗浄液及び濾過液をまとめ、一部を LSC 測定に供しセルラーゼ画分中の  $^{14}$ C 残留量を測定した。同操作を 2 回繰り返した。72%硫酸分解及びセルラーゼ分解後に固形残渣は、燃焼法によりリグニン画分中の放射能を測定した。

#### ワラ PES の硫酸分解物のグルコースに関する HPLC 分析

中和したワラ PES の硫酸分解物を濃縮し、HPLC 分析法 4 で分析した。 $^{14}$ C-グルコース標準試料のサンプルも HPLC 分析法 4 で分析した。もみ殻 PES の硫酸分解物は、 $^{14}$ C 残留量が少量であったため HPLC 分析は行わなかった。



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

#### 14) 玄米、もみ殻、ワラ PES 中のグルコースに関する確認試験

##### 玄米 PES の 1.0N HCl による加水分解

玄米 PES(2000 g a.i./ha、土壌処理)5 g を 1N HCl と混合し、5 時間還流した。加水分解試料は減圧濾過し、濾過残渣を水で洗浄した。HCl 濾過液を 10N NaOH で pH7.0 に調整し、可溶  $^{14}\text{C}$  残留量及びグルコース含有量を LSC で測定した。濾過残渣は燃焼法により不溶性  $^{14}\text{C}$  残留量を測定した。玄米 PES の加水分解物中におけるグルコース含有量は、炭水化物総量に対するフェノール硫酸法により求めた。グルコサゾン誘導体は米粒 PES の加水分解中和物から調製した。酢酸ナトリウム及びフェニルヒドラジン塩酸塩を加水分解物と混合し、3 時間還流し、反応混合液を冷蔵で一晩冷却し、フェニルグルコサゾン沈殿物を生成させ、減圧濾過し、濾過残渣を風乾後、一部を燃焼法により  $^{14}\text{C}$  を定量した。フェニルグルコサゾン誘導体は、加温した 95%エタノールで再結晶化させ、冷蔵で一晩冷却し、フェニルグルコサゾン再結晶化物を減圧濾過により分離し、燃焼法により比放射能を測定した。フェニルグルコサゾン試料の比放射能を用い、グルコースへ取り込まれた PES 中の総残留放射能の百分率を算出した。

##### もみ殻 PES の硫酸( $\text{H}_2\text{SO}_4$ )による加水分解

もみ殻 PES(2000 g a.i./ha、土壌処理)5g を 72%硫酸で約 3 時間室温において攪拌した。混合液を水で希釈し 4%  $\text{H}_2\text{SO}_4$  に調製し、4 時間還流した。加水分解試料を室温まで冷却し減圧濾過した。不溶性の濾過残渣(リグニン)を水で洗浄し、減圧濾過した。酸性濾過液をまとめ、10N NaOH で pH7.0 に中和した。中和した濾過液の一部を LSC により可溶性  $^{14}\text{C}$  残留量及びグルコース含有量を測定した。米粒 PES と同様の調製法により残りの加水分解物でフェニルグルコサゾン誘導体を調製した。不溶性の残渣(リグニン)を燃焼法により  $^{14}\text{C}$  残留量を測定した。もみ殻 PES の加水分解物中のグルコース含有量の分析は、炭水化物総量に対するフェノール硫酸法により求めた。フェニルグルコサゾン試料の比放射能から、グルコースへ取り込まれた PES 中の総残留放射能の百分率を算出した。

##### ワラ(葉/茎)PES の硫酸( $\text{H}_2\text{SO}_4$ )加水分解

ワラ PES(2000g a.i./ha、土壌処理)5g を 72%  $\text{H}_2\text{SO}_4$  16 mL で約 3 時間室温において処理し、水で約 4%  $\text{H}_2\text{SO}_4$  に希釈し、4 時間還流した。加水分解試料を室温まで冷却し、減圧濾過し、不溶性の濾過残渣(リグニン)を水で洗浄後、減圧濾過した。酸性濾過液をまとめ、10N NaOH で pH7.0 に中和し、試料の一部を LSC により可溶性  $^{14}\text{C}$  残留量及びグルコース含有量を測定した。残りの加水分解物から、玄米 PES と同様の方法によりフェニルグルコサゾン誘導体を調製した。不溶性の残渣(リグニン)を燃焼して  $^{14}\text{C}$  残留量を求めた。加水分解物中のグルコース含有量の分析は、炭水化物総量に対するフェノール硫酸法により求めた。フェニルグルコサゾン試料の比放射能からグルコースへ取り込まれた PES 中の総残留放射能の百分率を算出した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

#### 15) 茎葉処理した玄米、もみ殻、ワラ(葉/茎)の抽出残渣中の放射性残留量の分析

##### 酸/塩基による連続加水分解

茎葉処理した玄米、もみ殻、ワラの抽出残渣(PES)の一定分量(1 g)について連続して、1.0N HCl、40°C、16時間、6.0N HCl、80°C、5時間及び1.0N NaOH、40°C、16時間の加水分解処理を行った。

##### 1.0N HClによる加水分解

玄米、もみ殻、ワラPES(茎葉処理)を1.0N HCl(10 mL)と混合し40°C、16時間加温し、遠心分離後、上清を移した。遠心残渣は水で洗浄し、遠心分離した。各洗浄液及び上清試料を各々まとめた。各上清の一部をLSCで分析し、<sup>14</sup>C残留量を定量化した。1.0N HClによる加水分解物を乾固濃縮し、水に再溶解し、HPLC-RAD方法1で分析を行った。

##### 6.0N HClによる加水分解

1.0N HClによる加水分解後の玄米、もみ殻、玄米のPESを6.0N HCl(10 mL)と混合し、80°C、5時間で加温、インキュベートした後、遠心分離し、上清を移した。遠心残渣は水で洗浄し、再度遠心分離した。各洗浄液及び上清試料を各々まとめた。各上清の一部LSCで測定し、<sup>14</sup>C残留量を定量した。6.0N HClによる加水分解物を乾固濃縮し、水に再溶解し、HPLC-RAD方法1で分析を行った。

##### 1.0N 塩基による加水分解

6.0N HClによる加水分解後の玄米、もみ殻、ワラのPESを1.0N NaOH(10 mL)と混合し、40°C、16時間加温、インキュベートした後、遠心分離し、上清を移した。遠心残渣は水で洗浄し、再度遠心分離した。各洗浄液及び上清試料を各々まとめた。各上清の一部をLSCで測定し、<sup>14</sup>C残留量を定量した。1.0N NaOHによる加水分解物を中和し、乾固濃縮し、水に再溶解し、HPLC-RAD方法1で分析を行った。

#### 16) 抽出効率

対照区の28day PHIの葉/茎(ワラ)試料(10 g)は、供試標識化合物を添加して親化合物I(エトフェンプロックス)の抽出効率の分析に供した。対照区の葉/茎に供試標識化合物約0.5ppmを添加した後、アセトニトリルで直ちに抽出した(×3)。各抽出物をLSCで測定し、まとめて濃縮した。濃縮抽出物をLSCで測定し、回収率を求めた。HPLC-RAD方法1によりプロファイリングも行った。

対照区の最終収穫時の玄米、もみ殻、葉/茎(ワラ)は、供試標識化合物を添加して親化合物I(エトフェンプロックス)の抽出効率を求めた。対照区の玄米、もみ殻及び葉/茎(各5 g)は、供試標識化合物約0.1ppmを添加した。各試料を90%アセトニトリル:水により抽出(×2)を行い、さらに60%アセトニトリル:水で抽出(×1)した。各試料抽出物をLSCで測定し、まとめて濃縮した。濃縮抽出物をLSCで測定して回収率を求めた。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

HPLC-RAD 方法 1 によりプロファイリングも行った。

17) 水稻基質における <sup>14</sup>C 残留量の貯蔵安定性

土壌処理及び茎葉処理の 2000 g a.i./ha から最終収穫時の玄米、もみ殻、葉/茎の各サンプル(～5～20 g)について冷凍貯蔵後に分析を実施した。試料の一部を抽出し、HPLC-RAD 方法 1 を用いてプロファイルした。初回分析及び最終分析の HPLC クロマトグラムを比較し、冷凍貯蔵条件下での基質における代謝物の安定性について定性的評価を行った。

サンプル (2000 g a.i./ha)	処理方法	初回分析日	再分析日	貯蔵日数
玄米	土壌	2001 年 8 月 17 日	2002 年 2 月 4 日	171
もみ殻	土壌	2001 年 8 月 16 日	2002 年 2 月 5 日	171
葉/茎	土壌	2001 年 8 月 17 日	2002 年 2 月 5 日	172
玄米	散布	2001 年 7 月 23 日	2002 年 2 月 8 日	200
もみ殻	散布	2001 年 7 月 24 日	2002 年 2 月 11 日	202
葉/茎	散布	2001 年 7 月 24 日	2001 年 2 月 12 日	203

分析方法による検出限界及び定量限界：

- 1) 液体シンチレーションカウンター(LSC)の検出限界は 85dpm であった。抽出物の燃焼法による LSC 測定における検出限界は 96dpm(0.0024ppm)であった。
- 2) HPLC による検出限界は 100dpm/peak であった。HPLC/RAD 及び HPLC/LSC による定量限界は 0.0005 mg/kg であった。

試験結果：

- 1) 本試験に使用した被験物質の放射化学的純度は処理前に HPLC-RAD で分析した結果、  
 エトフェンプロックス及び エトフェンプロックスと  
 もに 100%であった。茎葉処理液の均一性は十分であり、処理後における処理液中被験物質の放射化学的純度は、土壌処理では 100.0%(450 g a.i./ha)及び 100.0%(2000 g a.i./ha)であり、茎葉処理では 98.9%(200 g a.i./ha)及び 99.1%(2000 g a.i./ha)であった。
- 2) 茎葉処理では、処理に使用した散布容器をアセトニトリルで洗浄し、残った放射能を LSC で測定した。茎葉処理で植物体に施用した量は、散布容器に残った放射エネルギーで補正した。製剤加工された試験液の LSC 測定の結果に基づき、処理した供試標識化合物の実際量を以下に示す。試験液の LSC 測定に基づき算出された実際の施用率は、目標施用率とよく一致した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

処理タイプ	目標施用率 (g a.i./ha)	実際の施用率 (g a.i./ha)	目標量 (mg)	処理量 (mg)
土壌処理	450	500	18.86	20.77
土壌処理	2000	2000	83.04	83.03
散布	200	198	8.30	8.20
散布	2000	2128	83.04	88.37

3) 各収穫日に収穫した植物体の最終収穫量を以下の表に示す。

処理方法	処理量(a.i./ha)		重量(g)
土壌処理	対照区	穂	42.79
		もみ殻	6.86
		玄米	30.48
		茎	113.72
		根	194.46
		土壌	
	450g a.i./ha	穂	524.44
		もみ殻	107.63
		玄米	399.27
		茎	613.52
		根	70.75
		土壌	1040.3
	2000g a.i./ha	穂	408.42
		もみ殻	84.59
		玄米	309.20
茎		545.86	
根		72.41	
土壌		1051.0	
茎葉処理	対照区	穂	247.6
		もみ殻	41.02
		玄米	183.48
		茎	241.81
		根	142.40
		土壌	
	200 g a.i./ha	穂	528.13
		もみ殻	109.45
		玄米	401.68
		茎	672.67
		根	103.91
		土壌	
	2000 g a.i./ha	穂	460.88
		もみ殻	99.41
		玄米	341.55
茎		756.18	
根		129.03	
土壌			

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

#### 4) 抽出効率及び貯蔵安定性

対照区の植物体試料は、供試標識化合物を添加し、抽出した。放射能の回収率は93.2～99.0%であった。試料抽出物の HPLC-RAD 分析から、放射能の約 97.8～98.4% が親化合物 I (エトフェンプロックス) であったことから、抽出及び分析操作手順の間、親化合物 I (エトフェンプロックス) は安定であった。玄米、もみ殻、葉/茎の代表的サンプルを冷凍庫で貯蔵後(約6ヶ月間)に分析を行い、貯蔵期間中における代謝物の安定性について検証した。この結果、親化合物 I (エトフェンプロックス) 及び代謝物は冷凍保存条件下で安定であることが示された。代謝物プロファイルは、いずれの処理量においても同等であるため、貯蔵安定性については高濃度で処理した植物体試料のみを分析した。

#### 5) 残留放射能の分布を次表に示す。

未熟な水稻植物体(収穫前 28 日及び 14 日)

水稻植物体、穂、及び葉/茎に対する総残留放射能(TRR)は燃焼処理後 LSC 測定して求めた。さらに、茎葉処理における収穫前 14 日に採取した穂及び葉/茎試料について抽出を行い、抽出残渣を燃焼処理後 LSC 測定で TRR を決定した。

燃焼分析から得られた未熟な水稻植物体における総残留放射能を表 1 に示す。抽出により放出された放射能量、及び PES の燃焼分析で得られた放射能量を合計して求めた TRR を表 2 に示す。

表 1: 未熟な水稻植物体における総残留放射能(燃焼分析による)

処理方法	処理量 (g a.i./ha)	試料	収穫前 28 日 (ppm)	収穫前 14 日 (ppm)
茎葉処理	200	穂	NA	2.245
		葉/ワラ	NA	1.142
	2000	穂	NA	15.242
		葉/ワラ	NA	14.956
土壌処理	450	穂	0.011	0.050
		葉/ワラ	0.010	0.085
		土	0.832	0.587
		水	0.014	0.004
	2000	穂	0.074	0.077
		葉/ワラ	0.118	0.145
		土	2.173	5.895
		水	0.208	0.044

NA: 未処理

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 2: 未熟な水稻植物体における残留放射能の分布(抽出分析による)

試料 処理量 処理方法 収穫時点	穂 200 g a.i./ha 散布 PHI 14 日		穂 2000 g a.i./ha 散布 PHI 14 日	
	ppm	%TRR	ppm	%TRR
抽出	2.561	92.9	20.037	95.4
PES	0.203	7.1	0.971	4.6
合計	2.855	100.0	21.008	100.0

試料 処理量 処理方法 収穫時点	ワラ 200 g a.i./ha 散布 PHI 14 日		ワラ 2000 g a.i./ha 散布 PHI 14 日	
	ppm	%TRR	ppm	%TRR
抽出	1.075	91.2	15.512	96.8
PES	0.104	8.8	0.511	3.2
合計	1.179	100.0	16.023	100.0

#### 成熟した水稻植物体の総残留放射能

各試料の重量に基づき燃焼分析から求めた最終収穫時のワラ、もみ殻、玄米、根、土壌の総残留放射能を表 3 に示す。抽出により放出された放射エネルギー及び燃焼分析で求めた PES の放射エネルギーを合計して得られた TRR を表 4 に示す。

燃焼分析に基づき得られた表面洗浄液、もみ殻、玄米からの合計として算出した成熟全粒中の総残留放射能を表 5 に示す。全粒の表面洗浄液+もみ殻及び玄米の抽出により放出された放射エネルギー、及び PES の燃焼分析で得られた放射エネルギーから求めた最終収穫時の全粒における総残留放射能を表 6 に示す。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 3:最終収穫時のワラ、もみ殻、玄米、根、土壌の総残留放射能(燃焼分析)

処理方法	処理量 (g a.i./ha)	試料	表面洗浄 (ppm)	燃焼 (ppm)	合計 <sup>a</sup> (ppm)
茎葉処理	200	ワラ	1.111	3.156	4.267
		もみ殻 <sup>b</sup>	NA	5.211	5.211
		玄米 <sup>b</sup>	NA	0.070	0.070
		根	NA	0.007	0.007
		土	NA	0.002	0.002
	2000	ワラ	17.582	23.082	40.664
		もみ殻 <sup>b</sup>	NA	53.834	53.834
		玄米 <sup>b</sup>	NA	0.905	0.905
		根	NA	0.042	0.042
		土	NA	0.035	0.035
土壌処理	450	ワラ	0.021	0.141	0.162
		もみ殻 <sup>b</sup>	NA	0.038	0.038
		玄米 <sup>b</sup>	NA	0.054	0.054
		根	NA	0.085	0.085
		土	NA	0.225	0.225
	2000	ワラ	0.046	0.553	0.599
		もみ殻 <sup>b</sup>	NA	0.080	0.080
		玄米 <sup>b</sup>	NA	0.108	0.108
		根	NA	0.425	0.425
		土	NA	0.991	0.991

a 全粒試料は、アセトニトリルで表面洗浄後もみ殻と玄米に分離した。

表面洗浄液中の<sup>14</sup>C 残留量は LSC で測定した。

b 表面洗浄した全粒のもみ殻及び玄米を使用。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 4: 最終収穫時のワラ、もみ殻、玄米、根、土壌の総残留放射能(抽出分析)

処理方法	処理量 (g a.i./ha)	試料	表面洗浄		抽出物		非抽出物		TRR <sup>a</sup>
			ppm	%TRR	ppm	%TRR	ppm	%TRR	ppm
茎葉処理	200	ワラ	1.111	25.1	2.868	64.7	0.452	10.2	4.431
		もみ殻 <sup>b</sup>	NA	NA	5.014	85.0	0.886	15.0	5.900
		玄米 <sup>b</sup>	NA	NA	0.069	91.3	0.007	8.7	0.075
	2000	ワラ	17.582	43.4	20.486	50.6	2.413	6.0	40.481
		もみ殻 <sup>b</sup>	NA	NA	51.114	93.4	3.603	6.6	54.716
		玄米 <sup>b</sup>	NA	NA	1.060	94.8	0.059	5.2	1.118
		根	NA	NA	0.018	36.8	0.031	63.2	0.049
土壌処理	450	ワラ	0.021	11.6	0.123	68.1	0.037	20.3	0.181
		もみ殻 <sup>b</sup>	NA	NA	0.017	46.8	0.019	53.2	0.036
		玄米 <sup>b</sup>	NA	NA	0.004	8.0	0.041	92.0	0.044
		根	NA	NA	0.031	36.5	0.054	63.5	0.086
		土	NA	NA	0.103	48.1	0.111	51.9	0.213
	2000	ワラ	0.046	7.4	0.356	57.1	0.222	35.5	0.623
		もみ殻 <sup>b</sup>	NA	NA	0.035	43.3	0.046	56.7	0.080
		玄米 <sup>b</sup>	NA	NA	0.011	9.3	0.107	90.7	0.118
		根	NA	NA	0.192	43.0	0.255	57.0	0.447
		土	NA	NA	0.746	73.5	0.269	26.5	1.015

a 全粒試料は、アセトニトリルで表面洗浄後もみ殻と玄米に分離した。

表面洗浄液中の<sup>14</sup>C 残留量は LSC で測定した。

b 表面洗浄した全粒のもみ殻及び玄米を使用。

表 5: 成熟全粒中の総残留放射能(表面洗浄液、もみ殻、玄米の合計)(燃焼分析)

処理方法	処理量 (g a.i./ha)	試料	ppm	%TRR
茎葉処理	200	表面洗浄	0.530	31.9
		もみ殻	1.080	64.9
		玄米 <sup>b</sup>	0.053	3.2
		全粒 <sup>a</sup>	1.663	100.0
	2000	表面洗浄	10.045	45.0
		もみ殻	11.612	52.0
		玄米 <sup>b</sup>	0.671	3.0
	全粒 <sup>a</sup>	22.328	100.0	
土壌処理	450	表面洗浄	0.002	4.3
		もみ殻	0.008	15.4
		玄米 <sup>b</sup>	0.041	80.3
		全粒 <sup>a</sup>	0.051	100.0
	2000	表面洗浄	0.002	2.2
		もみ殻	0.016	16.4
		玄米 <sup>b</sup>	0.082	81.4
	全粒 <sup>a</sup>	0.100	100.0	

a 全粒試料は、アセトニトリルで表面洗浄後もみ殻と玄米に分離した。

表面洗浄液中の<sup>14</sup>C 残留量は LSC で測定した。

b 表面洗浄した全粒のもみ殻及び玄米を使用。



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 6:成熟全粒中の総残留放射能(表面洗浄液、もみ殻、玄米の合計)(抽出分析)

処理方法	処理量 (g a.i./ha)	試料	ppm	%TRR
茎葉処理	200	表面洗浄	0.530	29.3
		もみ殻	1.223	67.5
		玄米 <sup>b</sup>	0.057	3.2
		全粒 <sup>a</sup>	1.810	100.0
	2000	表面洗浄	10.045	44.3
		もみ殻	11.802	52.0
		玄米 <sup>b</sup>	0.829	3.7
		全粒 <sup>a</sup>	22.676	100.0
土壌処理	450	表面洗浄	0.002	5.0
		もみ殻	0.007	17.2
		玄米 <sup>b</sup>	0.034	77.8
		全粒 <sup>a</sup>	0.043	100.0
	2000	表面洗浄	0.002	2.0
		もみ殻	0.017	15.4
		玄米 <sup>b</sup>	0.089	82.6
		全粒 <sup>a</sup>	0.108	100.0

a 全粒試料は、アセトニトリルで表面洗浄後もみ殻と玄米に分離した。表面洗浄液中の<sup>14</sup>C 残留量は LSC で測定した。

b 表面洗浄した全粒のもみ殻及び玄米を使用。

## 6) 代謝

### 土壌処理

全粒における放射性残留レベルは低く、450 g a.i./ha 及び 2000 g a.i./ha では、各々 0.043ppm 及び 0.108ppm であった。玄米における放射性残留レベルは、各々 0.044 ppm 及び 0.118ppm であった。もみ殻中の残留レベルは各々 0.036ppm 及び 0.080ppm であった。玄米から抽出された放射エネルギーは総残留放射能(TRR)の 10%未満にとどまった。もみ殻における抽出可能な放射エネルギーは、46.8%TRR(450 g a.i./ha)及び 43.3%TRR (2000 g a.i./ha)であった。全粒における抽出可能な放射性残留量は、表面洗浄液+玄米及びもみ殻の抽出物の合算値として、19.3% TRR(450 g a.i./ha)及び 16.3%TRR (2000 g a.i./ha)であった。玄米、もみ殻、全粒における放射能分布の分析結果を表 7 及び表 8 に示す。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 7: 土壌処理(450 g a.i./ha)における玄米、もみ殻、全粒中の放射能分布

	玄米		もみ殻		全粒	
	ppm	%TRR	ppm	%TRR	ppm	%TRR
抽出可能						
親化合物 I (エトフェンプロックス)	-	-	0.006	15.7	0.001	2.7

表 8: 土壌処理(2000 g a.i./ha)における玄米、もみ殻、全粒中の放射能分布

	玄米		もみ殻		全粒	
	ppm	%TRR	ppm	%TRR	ppm	%TRR
抽出可能						
親化合物 I (エトフェンプロックス)	-	-	0.007	8.4	0.001	1.3

通常及び過剰な処理量における全粒中の親化合物 I (エトフェンプロックス)は各々  
2.7%TRR 及び 1.3%TRR であった。 土壌処理した

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

玄米抽出物では親化合物 I (エトフェンプロックス)は検出されなかったが、もみ殻では主要な放射性残留物であった。もみ殻中の親化合物 I (エトフェンプロックス)の残留レベルは、0.006ppm、15.7%TRR(450 g a.i. /ha)～0.007ppm、8.4%TRR(2000 g a.i./ha)であった。玄米抽出物中の抽出可能な放射能のほとんどは、

土壌処理したワラにおける総残留放射能は、0.181ppm(450 g a.i./ha)及び0.623ppm(2000 g a.i./ha)であった。ワラの表面洗浄によって、約 11.6%TRR(450 g a.i./ha)及び7.4%TRR(2000 g a.i./ha)が除去されたが、表面を洗浄したワラからは、68.1%TRR(450 g a.i./ha)及び 57.1%TRR(2000 g a.i./ha)が抽出された。土壌処理したワラにおける放射能分布の分析結果を表 9 に要約する。

表 9: 土壌処理におけるワラ中の放射能分布

	ワラ 450g a.i./ha		ワラ 2000g a.i./ha	
	ppm	%TRR	ppm	%TRR
抽出可能				
親化合物 I (エトフェンプロックス)	0.081	44.3	0.069	11.1

土壌処理したワラにおける主要な放射性残留物は親化合物 I (エトフェンプロックス)であり、ワラにおける親化合物 I (エトフェンプロックス)の濃度は、0.081 ppm(44.3%TRR: 450g a.i./ha)～0.069 ppm (11.1%TRR: 2000 g a.i./ha)であった

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

土壌処理した根における放射性残留量は低レベルであり、450 g a.i./ha 及び 2000 g a.i./ha 処理区において、各々0.086ppm 及び0.447ppm であった。抽出可能な放射能は、36.5%TRR(450 g a.i./ha)、43.0%TRR (2000 g a.i./ha)であった。親化合物 I (エトフェンプロックス)は根における主要な放射性残留物の 1 つであり、0.005ppm(5.5%TRR: 450 g a.i./ha)、及び 0.058ppm(13.1%TRR:2000 g a.i./ha)であった。

土壌は、450 g a.i./ha 処理区において、収穫前 28 日、14 日、最終収穫時の試料を分析した。親化合物 I (エトフェンプロックス)は収穫前 28 日の土壌から 0.319ppm (51.9% TRR)が検出されたが、その後減衰し、最終収穫時には 0.075ppm(35.0%TRR)であった。土壌中の親化合物 I (エトフェンプロックス)の半減期は 13 日と推測された。土壌処理した最終収穫時の土壌における放射性残留量は、0.213ppm(450g a.i./ha)~1.015ppm (2000 g a.i./ha)であった。約 48%TRR(450 g a.i./ha)~74%TRR(2000 g a.i./ha)が土壌から抽出された。親化合物 I (エトフェンプロックス)は土壌における主要な放射性残留物であった。親化合物 I (エトフェンプロックス)は、0.075 ppm、35%TRR(450 g a.i./ha)~0.623ppm、61.4%TRR(2000 g a.i./ha)に達した。

#### 茎葉処理

全米粒における総残留放射能は、1.810ppm(200 g a.i./ha)及び 22.675ppm(2000 g a.i./ha)であった。玄米中の残留量は、200 g a.i./ha 及び 2000 g a.i./ha の処理区について、各々0.075ppm 及び 1.118ppm であり、もみ殻中の残留量は 5.900ppm(200 g a.i./ha)、54.716ppm(2000 g a.i./ha)であった。

全粒の表面洗浄液における  $^{14}\text{C}$  残留量は、0.530ppm(29.3%TRR: 200 g a.i./ha)~

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

10.045ppm(44.3%TRR:2000 g a.i./ha)であった。親化合物 I (エトフェンプロックス)は全粒の表面洗浄液における主要な残留物であった(0.316ppm、59.6%TRR(200g a.i./ha)、7.228ppm、72.0%TRR(2000 g a.i./ha))。

玄米における抽出可能な放射能は、91.3%TRR(200 g a.i./ha)、94.8%TRR(2000 g a.i./ha)であった。もみ殻における抽出可能な放射能は、各処理区について、各々85.0%TRR 及び 93.4% TRRであった。玄米及びもみ殻の抽出物を HPLC で分析し、<sup>14</sup>C 残留物のプロファイルは定性的に同等であったことが判明した。親化合物 I (エトフェンプロックス)は、玄米及びもみ殻における抽出可能な放射性残留量の大多数を占めた

全粒の表面洗浄液、玄米、もみ殻、及び全粒における<sup>14</sup>C 残留量の分布を表 10 及び表 11 に示す。

表 10: 茎葉処理(200 g a.i./ha)における全粒表面洗浄液、玄米、もみ殻の最終収穫時の放射能分布

	表面洗浄液		玄米		もみ殻	
	ppm	%TRR	ppm	%TRR	ppm	%TRR
抽出可能						
親化合物 I (エトフェンプロックス)	0.316	59.6	0.040	53.4	3.425	58.1

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 11: 茎葉処理(2000 g a.i./ha)における、全粒表面洗浄液、玄米、もみ殻の最終収穫時の放射能分布

	表面洗浄液		玄米		もみ殻	
	ppm	%TRR	ppm	%TRR	ppm	%TRR
抽出可能						
親化合物 I (エトフェンプロックス)	7.228	72.0	0.854	76.4	36.332	66.4

全粒における抽出可能な放射性残留量は、表面洗浄液＋玄米及びもみ殻抽出物からの合計値とし、残留量は、89.6%TRR(200 g a.i./ha)及び96.4%TRR(2000 g a.i./ha)であった。親化合物 I (エトフェンプロックス)は全粒に存在する主要な <sup>14</sup>C 残留物で、58.4%TRR(200 g a.i./ha)～69.2%TRR(2000 g a.i./ha)であった。

茎葉処理

した全粒における <sup>14</sup>C 残留量の分布を表 12 に示す。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 12: 茎葉処理における最終収穫時の全粒中の放射能分布

	全粒 200 g a.i./ha		全粒 2000 g a.i./ha	
	ppm	%TRR	ppm	%TRR
抽出可能				
親化合物 I (エトフェンプロックス)	1.057	58.4	15.698	69.2

- 検出さなかった。

ワラにおける総残留放射能は、4.431ppm(200 g a.i./ha)及び 40.481ppm(2000 g a.i./ha)であった。約 90~94%TRR がワラから可溶化された。ワラ表面洗浄液及びワラ抽出物を HPLC で分析した。親化合物 I (エトフェンプロックス) が表面洗浄液における主要な構成要素であった。ワラにおける <sup>14</sup>C 残留物プロファイルは、玄米及びもみ殻のプロファイルと定性的に同等であった。

親化合物 I (エトフェンプロックス) は、ワラにおける抽出可能な放射性残留量の大多数を占めた。

最終収穫時の茎葉処理したワラにおける放射性残留量の分布を表 13 に示す。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 13: 茎葉処理における最終収穫時のワラ中の放射能分布

	ワラ 200 g a.i./ha		ワラ 2000 g a.i./ha	
	ppm	%TRR	ppm	%TRR
抽出可能				
親化合物 I (エトフェンプロックス)	2.167	48.9	22.706	55.1

以下の代謝物が同定された。



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

$^{14}\text{C}$  で標識した 2 種類の親化合物 I (エトフェンプロックス) 標識化合物をほぼ均等に混合し、有効成分として 200 g a.i./ha(通常施用量)及び 2000 g a.i./ha(通常施用の 10 倍量)を水田条件下で 1 回茎葉処理した水稻植物体、及び 450 g a.i./ha(通常施用量)及び 2000 g a.i./ha(通常施用の 4.45 倍量)を土壌処理した水稻植物体における総残留放射能及び残留放射能は次の通りであった。

#### 土壌処理

全粒中からは各々 0.043ppm 及び 0.108ppm が検出された。土壌処理した全粒表面からは約 0.002ppm 程度が検出された。全粒抽出物中の放射性残留量は 19.3%TRR 及び 16.3%TRR であった。親化合物 I (エトフェンプロックス) の残留量は、2.7%TRR 及び 1.3%TRR であった。TRR の 5%を超える代謝物は検出されなかった。玄米からは 0.044ppm 及び 0.118ppm が検出された。もみ殻からは 0.036ppm 及び 0.080ppm 検出された。玄米抽出物中の放射エネルギーは TRR の 10%未満であった。もみ殻抽出物中の放射エネルギーは 46.8%TRR 及び 43.3%TRR であった。もみ殻の主要残留物は親化合物 I (エトフェンプロックス) であった。残留量は、0.006ppm(15.7%TRR)～0.007ppm(8.4%TRR) であった。親化合物 I (エトフェンプロックス) は玄米抽出物からは検出されなかった。

#### 茎葉処理

全米粒における総残留放射能は、各々 1.810ppm 及び 22.675ppm であった。全粒の表面洗浄液の放射能は 0.530ppm(29.3%TRR)及び 10.045ppm(44.3%TRR) であった。玄米の残留量は各々 0.075ppm 及び 1.118ppm であり、もみ殻の残留量は各々 5.900ppm 及

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

び54.716ppmであった。玄米の抽出物中の放射エネルギーは各々91.3%TRR及び94.8%TRRであった。もみ殻の抽出物中の放射エネルギーは85.0%TRR及び93.4%TRRであった。全粒の表面洗浄液における主要残留物は親化合物 I (エトフェンプロックス)であった(0.316ppm、59.6%TRR 及び 7.228ppm、72.0%TRR)。

玄米及びもみ殻の抽出物中の主要残留物は親化合物 I (エトフェンプロックス)であった。

全粒の主要な残留物は親化合物 I (エトフェンプロックス)であり、58.4%TRR～69.2%TRR が検出された。

ワラ表面洗浄液及び抽出物中の主要な構成要素は親化合物 I (エトフェンプロックス)であった。

土壌処理した玄米サンプルの抽出残渣中の放射性残留量は、各々0.041ppm、92.0%TRR 及び 0.107ppm、90.7%TRR であった。ワラの約 20～36%、及びもみ殻の 53～57%超が抽出されなかった。PES における放射エネルギーのほとんどは放射性同位体が天然産物(炭水化物、タンパク質、リグニン)へ再取込みされた結果であった。茎葉処理した玄米、ワラ、もみ殻における抽出残渣中の残留量は、土壌処理試料(5～15%TRR)以下であった。

茎葉処理した玄米、もみ殻、ワラにおいては天然産物への放射性同位体の再取込みは主要経路ではなかった。茎葉処理した親化合物 I (エトフェンプロックス)は  
が確認された。

土壌から米粒に移行した残留親化合物 I (エトフェンプロックス)のほとんどは天然産物の成分に帰属した。水稻植物体に散布すると、親化合物 I (エトフェンプロックス)は散布で暴露部分にとどまり、玄米への浸透はごく僅かであった。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

水稻植物体における推定代謝分解経路を次表に示す。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

水稻植物体における推定代謝分解経路

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

3) エトフェンプロックスのインゲンにおける代謝分解試験

(資料 XV-5)

試験機関: 三井化学株式会社

報告書作成年: 1985 年

供試標識化合物: 標識位置の異なる下記 2 種の標識化合物をそれぞれ用いた。

1) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

2) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

供試植物: インゲン (品種:サーベル<sup>®</sup>)

試験方法: 暗所 25°C で発芽させたインゲンマメを 1/5000a ワグネルポットを用いて水耕液中で発育させた。これらの幼苗を人工光グローブキャビネット内で下記の条件で一定期間栽培した。

栽培条件: 以下に示す条件でインゲンを栽培した。

光量: 30000 ルックス (13 時間明 11 時間暗)

温度: 25~30°C

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

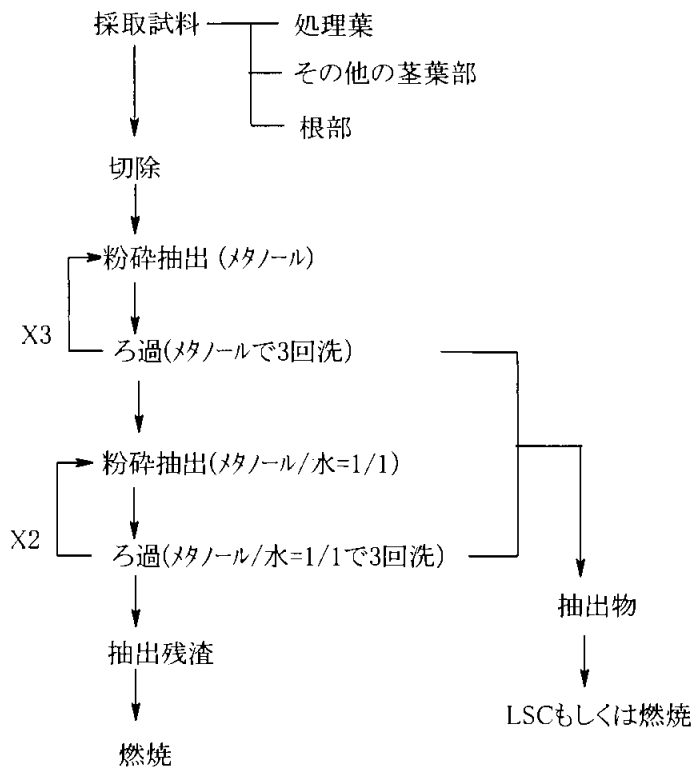
湿度：65%

水耕条件：空気ポンプで1日2回、1時間毎に水耕液を通気し、水耕液は一週間に一度、半量を交換してpHを調整した。

上記の方法で栽培した芽生え14日後の2葉期幼苗の1枚の葉に、エトフェンプロックスのそれぞれの標識化合物10 µgを含んだメタノール溶液100 µLをマイクロシリンジを用いて葉面塗布した。処理した葉の面積は最小23 cm<sup>2</sup>、最大44 cm<sup>2</sup>であった。処理した苗は前述の条件下で栽培した。

試料採取：標識化合物を処理したインゲンを1、2、3週間後に処理葉、その他の茎葉部及び根部の3部分に分けて採取し、メタノール或いはメタノール/水(1/1)溶液を加えて、ポリロンを用いて粉碎抽出した。抽出液は減圧濃縮してLSCで放射エネルギーを測定した。着色の強い試料と抽出残渣は、燃焼装置で<sup>14</sup>C<sub>2</sub>として捕集した後にLSCで測定した。上記の操作を以下にフローで示す。

#### 試料採取と抽出のフロー



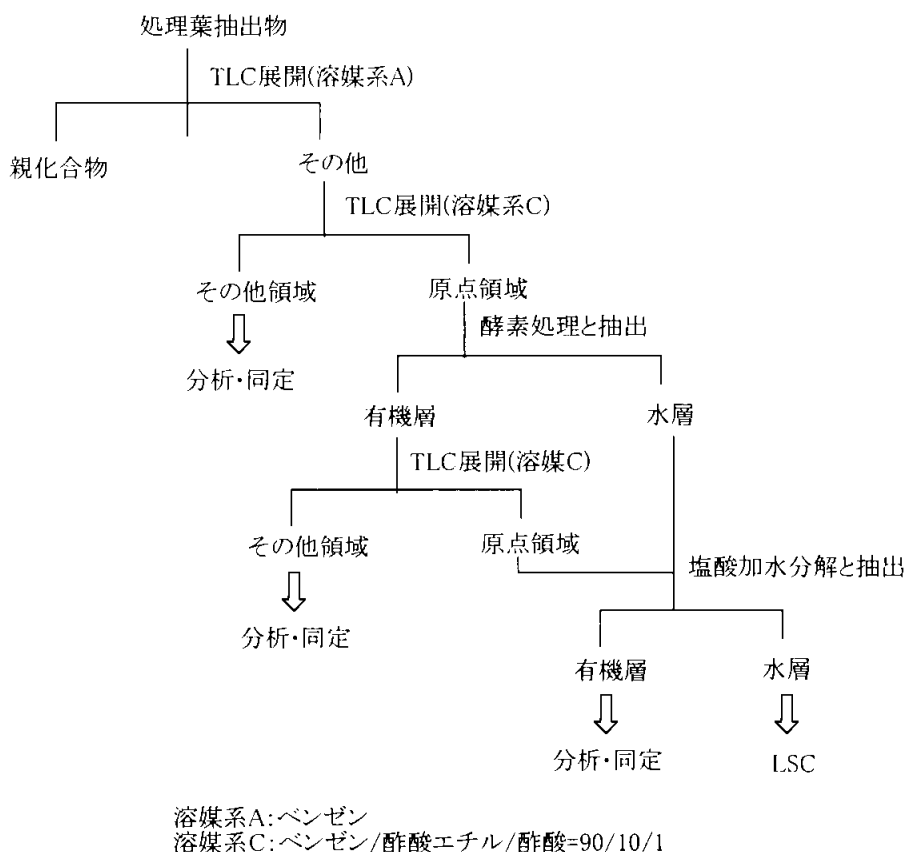
#### 代謝分解物の分離・同定:

処理葉抽出物はベンゼン[溶媒 A]を用いた薄層クロマトグラフィーで親化合物 I (エトフェンプロックス) を除去し、その他の部分はベンゼン/酢酸エチル/酢酸=90/10/1[溶媒系 C]を用いて展開した。原点部分以外の代謝分解物はいくつかの部分に分けて有機溶媒抽出し、それぞれ薄層クロマトグラフィーによる同定及びLSCによる定量を行った。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

原点部分の試料は $\beta$ -グルコシダーゼ 12 mg、セルラーゼ 12 mg、0.2M アセテートバッファー 4 mL を加えて 37°C で 48 時間インキュベートした。反応終了後、塩酸で pH1 に調整し、エーテル抽出を行った。エーテル抽出部は前述の同定、定量を行った。エーテル抽出部薄層クロマトグラフィーの原点部分とエーテル抽出後の水層の部分を併せて 6N-HCl 5 mL を加えて 90°C 以上で 1 時間反応させた。その後同様に代謝分解物のエーテル抽出、同定、定量を行った。以上の工程を以下にそのフローにて示す。

#### 処理葉の分析同定フロー



#### 試験結果:

##### a) 放射能の分布

標識化合物で処理後 1、2、3 週間後の処理葉とそれ以外の茎葉部及び根部の放射能処理量に対する割合を表 1 に示した。回収した全放射能の量は処理した親化合物 I (エトフェンプロックス) に対して 80-90%であった。処理葉中に残存する放射能の量は全試験期間を通じて全放射能の約 99%で、処理葉以外の部分に移行したと考えられる放射能量は 1%以下であった。



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

b) 代謝分解物の同定

1 週間及び 3 週間後の処理葉抽出物中における代謝分解物の推移を表 2 に示した。

処理葉から回収された放射能は両標識化合物とも処理した全放射エネルギーの 80%を超えた。1 週間後と 3 週間後の代謝分解物の量において、標識位置の違いによる差は小さかった。親化合物 I (エトフェンプロックス) は 1 週間後で 75%以下、3 週間後で 50%以下に速やかに減少した。

。結果を表 1 及び表 2 に示した。

処理量の 1%を超える代謝分解物は以下の通りである。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表1 インゲンにおける<sup>14</sup>C放射能分布

		処理放射能に対する割合(%)					
		1週		2週		3週	
処理葉	抽出物	87.7	90.1	86.3	86.2	85.2	82.3
	抽出残渣	0.4	0.2	0.4	0.4	0.1	0.1
その他茎葉部	抽出物	0.75	0.28	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
	抽出残渣	0.04	0.04	<0.01	0.09	<0.01	0.12
根部	抽出物	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.32
	抽出残渣	0.02	0.02	<0.01	0.04	<0.01	0.06
<sup>14</sup> C総放射能		88.9	90.6	86.7	86.7	85.3	82.9
1)	エトフェンプロックス						
2)	エトフェンプロックス						

表1別表(%TRRで表示)\* インゲンにおける<sup>14</sup>C放射能分布

		残留放射能に対する割合(%)					
		1週		2週		3週	
処理葉	抽出物	99.5	99.8	99.5	99.5	99.9	99.9
	抽出残渣	0.5	0.2	0.5	0.5	0.1	0.1
	合計	100	100	100	100	100	100
その他茎葉部	抽出物	94.9	87.5	-	0	-	0
	抽出残渣	5.1	12.5	-	100	-	100
	合計	100	100	-	100	-	100
根部	抽出物	0	0	-	0	-	84.2
	抽出残渣	100	100	-	100	-	15.8
	合計	100	100	-	100	-	100
1)	エトフェンプロックス						
2)	エトフェンプロックス						

\*【申請者注】報告書では処理放射能に対する割合(%TAR)を示したが本概要書では残留放射能に対する割合(%TRR)に換算した表を追加した

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表2 インゲンにおける親化合物 I (エトフェンブロックス)と代謝分解物

	処理放射能に対する割合(%)	
	1 週	3 週
処理葉 抽出物		
親化合物 I (エトフェンブロックス)	68.0	46.5
	73.6	49.0

- 1) エトフェンブロックス  
2) トフェンブロックス

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 2 別表 (%TRR で表示)\* インゲンにおける親化合物 I (エトフェンプロックス)と代謝分解物

	残留放射能に対する割合(%)			
	1 週		3 週	
	1)	2)	1)	2)
処理葉				
抽出物				
親化合物 I (エトフェンプロックス)	77.2	81.5	54.5	59.5

- 1) エトフェンプロックス  
2) エトフェンプロックス

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

インゲンにおける推定代謝分解経路

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

4) エトフェンプロックスのぶどうにおける代謝分解試験

(資料 XV-13)

試験機関: RCC Ltd.(スイス)

[GLP 対応]

報告書作成年: 2002 年

供試標識化合物: 標識位置の異なる下記 2 種の標識化合物を等量混合して用いた。

- 1) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

- 2) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

供試植物: ぶどう(品種:Verdelet)、4~5 年生植物

試験方法: 5 本のぶどう樹を用いて土壌の深さ約 30cm の各ポットに各 1 本植えた。

各 4 ポットのぶどう樹に対し 及び エトフェンプロックスを 1:1 に混合した試験液を収穫 14 日前及び 28 日前に 1 回茎葉処理して、ぶどう果実及び果柄部を採取し、残留する放射能を測定して抽出された代謝分解物を分離、同定及び定量した。

試験ポットの区分を次表に示す。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

ぶどう ポット	茎葉処理量	処理から収穫ま での期間(日間)	茎葉処理日	試料収穫日
	kg a.i./ha			
1	0.3 (通常量)	28	2000.9.8.	2000.10.6.
2	3.0 (10 倍量)	28	2000.9.8.	2000.10.6.
3	0.3 (通常量)	14	2000.9.22.	2000.10.6.
4	3.0 (10 倍量)	14	2000.9.22.	2000.10.6.
5(対照)*	—	—	—	2000.10.6.

\* 対照のぶどうは試験場周囲で薬剤処理を行わない樹を用いた。

#### 栽培方法:

ポットにぶどう樹1本を植え、実際の圃場条件に合わせた戸外で栽培した。灌水は各植物当たり2Lあるいは3Lを週1-2回行った。感染予防のため殺菌剤(75%mancozeb)を1回散布した

#### 試験液の調製方法:

各放射化合物を個別にシリカゲルカラムで精製し、アセトニトリル 10 mL の中に  
 エトフェンプロックスを、また、  
 エトフェン  
 プロックスを  
 に加えて原液を調製した。  
 上記の2標識化合物原液をほぼ等量ずつ混合し、それに非標識トフェンプロックスを  
 加え、さらにブランク製剤を添加して30%乳剤とした。  
 通常量散布のぶどう樹1及び3の散布液濃度はエトフェンプロックスとして16.5 mg/  
 精製水 33 mL、また、10倍量散布のぶどう樹2及び4に対  
 する散布液濃度はエトフェンプロックスとして150mg/精製水 30 mL  
 であった。

散布量: いずれの処理群でも上記乳剤散布液量をぶどう1株(1ポット)当たり30 mLとした。

#### 散布方法:

試験溶液散布には手持ち噴霧器を用い、散布時に周囲をプラスチックシートで覆い飛散を防いだ。散布作業時はノズルを移動させながらぶどう房及び葉に満遍なく試験溶液全量を散布した。散布後、使用した器具類を水/エタノール(1:1)で洗浄し、洗浄液中の放射能を測定して植物体及び土壌に処理した量を正確に把握するための計算に用いた。

#### 試料採取:

試験液茎葉処理後14日及び28日に対照群及び試験群のぶどう果実全量を採取した。対照群のぶどう果実は汚染を防ぐ為に最初に採取した。採取した試料は個別に秤量し、水次にエタノールで洗浄後次の作業まで冷凍保存した。



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

分析方法:

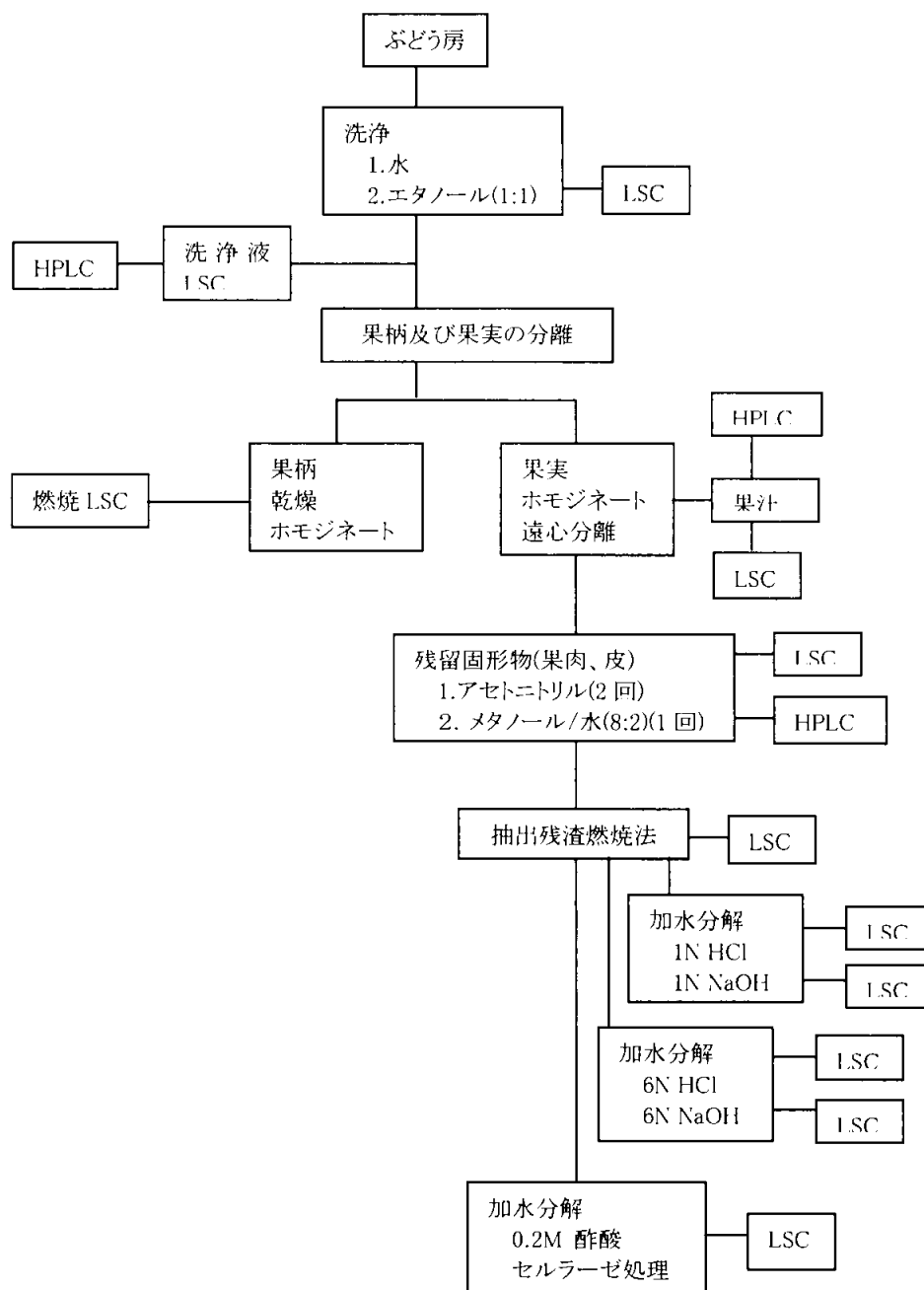
分析操作のスキームを次頁の図に示す。

分析法の概要:

- a) 秤量した果実は表面を先ず水で洗浄、次にエタノールで洗浄し、洗浄液の一部を凍結乾燥させエタノールに溶解させ、未溶解の残渣を水に溶解させた。両抽出液を合わせてHPLCで放射能を測定した。
- b) ぶどうの房は果実と果柄に分離、果実はブレンダーでホモジナイズし、遠心沈殿後に果汁と果肉及び皮に分離した。
- c) 果肉及び皮はアセトニトリルで抽出し、次にメタノール/水(8:2)で抽出した。抽出後、遠心分離により液層と固層に分離し、液層をろ紙で濾過、濾液を濃縮した後メタノールで希釈して、抽出液をHPLC/TLCで分析した。抽出残渣の一部を燃焼法により発生した $^{14}\text{CO}_2$ を捕集して放射能を測定した。  
更に抽出残渣を1N及び6Nの塩酸及び水酸化ナトリウムで処理、また、セルラーゼで処理し遠心分離して液相の濾過、濾液の放射能をLSCで測定した。
- d) 果汁の一部を減圧濃縮した。残りの果汁から固形分を採取、ヘキサン及び水で洗浄、洗浄液を水及びメタノール/水(1:1)で処理して抽出液をHPLCで分析した。
- e) 果柄は細切して凍結、凍結乾燥した一部を燃焼法により放射能を測定した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

### 分析操作スキーム



分析方法による検出限界及び定量限界：

a) 残留放射能の測定

抽出液は液体シンチレーションカウンター(LSC)で測定、残渣は燃焼処理で捕集した CO<sub>2</sub> を LSC で測定した。LSC の検出限界は 40 dpm であり、定量限界は 60 dpm であった。

b) 親化合物及び代謝物の定性及び定量は標準化合物を指標にして TLC 及び HPLC で測定した。HPLC の定量限界は 150 dpm(0.005mg/kg ぶどう)であった。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

試験結果:

本試験に使用した原液中における被験物質<sup>[14C]</sup>エトフェンプロックスの放射化学的純度を TLC 及び HPLC で測定した結果 95.1%以上であった。

a) 残留放射能の分布を次表に示す。

- ① 全ぶどう房における総残留放射能(TRR)は 0.3 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で親化合物として 2.664 及び 5.436 mg/kg(生重量)、一方、3.0 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日では 28.186 及び 58.325 mg/kg(生重量)であった。処理量に比例して残留放射能が増加し、また、茎葉処理から試料採取までの期間が短いほうが高い値を示した。
- ② 残留放射能はぶどう果実房洗浄液中に最も多く検出され、0.3 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で各々 TRR の 75.2%及び 82.1%、一方、3.0 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日では各々 TRR の 59.7%及び 80.9%が検出された。処理 14 日後に収穫した果実房洗浄液中の残留放射能は処理 28 日後に収穫したものに比較して高い値を示した。
- ③ ぶどう果実中の残留放射能は 0.3 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日の収穫で各々 0.518 及び 0.756 mg/kg(生重量)、一方、3.0 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日の収穫で各々 6.530 及び 6.886 mg/kg(生重量)を示し、茎葉処理量に比例して約 10 倍の差がみられた。しかし、果実中の TRR%は処理 28 日後に 19.5%及び 23.2%を示し、14 日後の 13.9%及び 11.8%に比較して高い割合を示した。
- ④ 果柄中の残留放射能は 0.3 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で 0.142 及び 0.215 mg/kg(生重量)を示し、3.0 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で 4.825 及び 4.277 mg/kg(生重量)を示した。

残留放射能分布

ぶどう房	茎葉処理量	散布— 収穫(日)*	%TRR mg/kg	果実房 洗浄液	果実	果柄	合計
	kg a.i./ha						
1	0.3 (通常量)	28	TRR%	75.2	19.5	5.3	100
			mg/kg	2.004	0.518	0.142	2.664
2	3.0 (10 倍量)	28	TRR%	59.7	23.2	17.1	100
			mg/kg	16.831	6.530	4.825	28.186
3	0.3 (通常量)	14	TRR%	82.1	13.9	4.0	100
			mg/kg	4.464	0.756	0.215	5.436
4	3.0 (10 倍量)	14	TRR%	80.9	11.8	7.3	100
			mg/kg	47.162	6.886	4.277	58.325

\* 茎葉処理から収穫までの日数

b) ぶどう果実中における放射能の分布(TRR%及び mg/kg)を次の 3 表に示す。

- ① 果実の果汁中残留放射能は 0.3 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で各々 TRR の 3.45%(0.092 mg/kg)及び 0.95%(0.203 mg/kg)、一方、3.0 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で 2.96%(0.834 mg/kg)及び 2.13%(1.242mg/kg)を示した。
- ② 果汁を分離した後の固形物(果肉、皮、種子)をアセトニトリル及びメタノール/水(8/2)で抽出した抽出物中の放射能は 0.3 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で各々 TRR の

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

13.96%(0.373 mg/kg)及び 11.81%(0.643 mg/kg)、一方、3.0 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で 17.62%(4.976 mg/kg)及び 8.74%(5.103 mg/kg)を示した。

③ 抽出残渣中の放射能は 0.3 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で各々 TRR の 2.04%(0.054 mg/kg)及び 1.15%(0.063 mg/kg)、一方、3.0 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で 2.60%(0.732 mg/kg)及び 0.94%(0.548 mg/kg)を示した。

表 1 茎葉処理 28 日後に収穫したぶどう試料の放射能分布:TRR(%)及び mg/kg

処理後 28 日収穫	ぶどう樹 No.1 (0.3 kg a.i./ha 茎葉処理)						ぶどう樹 No.2 (3.0 kg a.i./ha 茎葉処理)							
	物質名	%	房洗浄液		果汁	果肉 皮 種子*	合計 房	%	房洗浄液		果汁	果肉 皮 種子*	合計 房	
			mg	水					EtOH	mg				水
親化合物 I (エトフェンプロックス)	TRR%		2.02	69.99	-	12.38	84.39	TRR%		0.41	53.80	-	15.10	69.30
	mg/kg		0.054	1.864	-	0.330	2.248	mg/kg		0.115	15.164	-	4.255	19.533

\* 果肉、皮、種子抽出物の値

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグリ株式会社にある。

表 2 茎葉処理 14 日後に収穫したぶどう試料の放射能分布:TRR(%)及び mg/kg

処理後 14 日収穫	物質名	ぶどう樹 No.3 (0.3 kg a.i./ha 茎葉処理)					ぶどう樹 No.4 (3.0 kg a.i./ha 茎葉処理)						
		% mg	果実房洗浄液		果汁	果肉 皮 種子 *	合計 房	% mg	果実房洗浄液		果汁	果肉 皮 種子*	合計 房
			水	EtOH					水	EtOH			
	親化合物 I	TRR%	3.40	72.54	-	10.85	86.79	TRR%	10.18	66.64	-	7.73	84.55
	(エトフェンプロックス)	mg/kg	0.185	3.943	-	0.590	4.718	mg/kg	5.936	38.86 8	-	4.510	49.31 3

\* 果肉、皮、種子抽出物の値

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 3 ぶどう果実抽出残渣中における放射能:TRR(%)及び mg/kg

茎葉処理後収穫まで日数		28 日		14 日		
ぶどう樹 No.		1	2	3	4	
茎葉処理量		0.3 kg a.i./ha	3.0 kg a.i./ha	0.3 kg a.i./ha	3.0 kg a.i./ha	
抽出残渣	残留%	100	100	100	100	
	TRR%	2.04	2.60	1.15	0.94	
	mg/kg	0.054	0.732	0.063	0.548	
抽出・3時間	1N HCl	残留%	3.52	3.14	3.14	3.91
		TRR%	0.07	0.08	0.04	0.04
		mg/kg	0.002	0.023	0.002	0.021
	1N NaOH	残留%	10.53	10.34	11.13	8.89
		TRR%	0.21	0.27	0.13	0.08
		mg/kg	0.006	0.076	0.007	0.049
加水分解還流	6N HCl	残留%	2.47	3.54	2.42	5.30
		TRR%	0.05	0.09	0.03	0.05
		mg/kg	0.001	0.026	0.002	0.029
	6N NaOH	残留%	71.47	74.46	101.32	52.05
		TRR%	1.46	1.93	1.17	0.49
		mg/kg	0.039	0.545	0.063	0.285
酵素	セルラーゼ	残留%	1.82	1.53	1.50	2.12
		TRR%	0.04	0.04	0.02	0.02
		mg/kg	0.001	0.011	0.001	0.012

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

代謝： ぶどう房の洗浄液、果実(果汁及び固形物)の抽出物中に 放射性画分が検出された。親化合物 I (エトフェンプロックス)が主な放射性画分であり、0.3 kg a.i./ha 処理の洗浄液から処理 28 日後及び 14 日後の収穫時に各々 1.918 mg/kg(TRR の 72.0%) 及び 4.128 mg/kg(TRR の 75.9%)が検出された。一方、3.0 kg a.i./ha 処理の洗浄液中から処理 28 日後及び 14 日後の収穫時に各々 15.279 mg/kg(TRR の 54.2%)及び 44.804 mg/kg(TRR の 76.8%)が検出された。しかし、果汁中に親化合物は検出されなかった。固形物の抽出物中には親化合物が 0.3kg a.i./ha 及び 3.0kg a.i./ha 処理の 28 日後及び 14 日後の収穫時に各々 0.330 mg/kg(TRR の 12.4%)及び 0.590mg/kg(TRR の 10.9%)ならびに 4.255 mg/kg(TRR の 15.1%)及び 4.510 mg/kg(TRR の 7.7%)が検出された。

有機溶媒で抽出されなかった残渣中の残留放射能は HCl 及び NaOH で加水分解処理あるいはセルラーゼ処理によって抽出された。

- 結論： a) 2 箇所を  $^{14}\text{C}$  で標識したエトフェンプロックスをほぼ均等に混合し、有効成分として 0.3 kg a.i./ha(通常処理量)及び 3.0 kg a.i./ha(通常処理の 10 倍量)を 1 回茎葉処理したぶどうにおける総残留放射能は、処理後 28 日で各々 2.664 及び 28.186 mg/kg を示し、処理後 14 日では各々 5.436 及び 58.325 mg/kg を示した。
- b) 残留放射能は果実房洗浄液中に最も多く検出され、茎葉処理量に比例して残留放射能が増加した。
- c) ぶどう果実中の残留放射能は 0.3 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日の収穫で各々 0.518 及び 0.756 mg/kg、一方、3.0 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日の収穫で各々 6.530 及び 6.886mg/kg を示し、茎葉処理量に比例して約 10 倍の差がみられた。
- d) 果実の果汁中残留放射能は 0.3 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で各々 TRR の 3.45%(0.092 mg/kg)及び 0.95%(0.203 mg/kg)、一方、3.0 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で 2.96%(0.834 mg/kg)及び 2.13%(1.242 mg/kg)を示した。
- e) 果汁を分離した後の固形物の抽出物中残留放射能は 0.3 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で各々 TRR の 13.96%(0.373mg/kg)及び 11.81%(0.643 mg/kg)、3.0 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で 17.62%(4.976mg/kg)及び 8.74%(5.103mg/kg)であった。
- f) 抽出残渣中の放射能は 0.3 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で各々 TRR の 2.04%(0.054 mg/kg)及び 1.15%(0.063 mg/kg)、3.0 kg a.i./ha 処理後 28 日及び 14 日で

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

2.60%(0.732 mg/kg)及び 0.94%(0.548 mg/kg)であった。

g) ぶどう房の洗浄液、果実果汁あるいは固形物の抽出物中に

主な放射性画分は親化合物の親化合物 I (エトフェンプロックス)であった。しかし、果汁中に親化合物は検出されなかった。

同定された代謝分解物の化学名及び化学構造を以下に示す。



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

ぶどうにおける推定代謝分解経路

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

5) エトフェンプロックスのなたねにおける代謝分解試験

(資料 XV-15)

試験機関:RCC Ltd.(スイス)

[GLP 対応]

報告書作成年:2002 年

供試標識化合物: 標識位置の異なる下記 2 種の標識化合物を等量混合して用いた。

1) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

2) 供試標識化合物: エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

供試植物: なたね(品種:Express)

試験方法:

栽培条件:

表面積 0.263 m<sup>2</sup>、深さ 40 cm のポットに発泡粘土 10 cm とその上部に圃場土壌を詰め、最終的な高さを約 38 cm とした。播種は 2000 年 9 月 14 日、試験液茎葉処理 2001 年 4 月 17 日、収穫は 2001 年 6 月 12 日とした。試験ポットは通常圃場の 4 m<sup>2</sup> 区画内におき、通常圃場条件で栽培した。なお、無処理の植物は試験区画周囲の対照圃場で同様に栽培した。施肥は起耕時に行い、硝酸アンモニウムを追肥した。他の農薬は使

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

用しなかった。

試験ポットの区分を次表に示す。

なたね ポット	茎葉処理量	処理から収穫までの 期間(日間)	播種日	茎葉処理日	試料収穫日
	g a.i./ha				
1	120 (通常量)	56	2000.9.14.	2001.4.17.	2001.6.12.
2	1200 (10 倍量)	56	2000.9.14.	2001.4.17.	2001.6.12.
3(対照)*	—	—	2000.9.14.	—	2001.6.12.

\* 対照のなたね植物は試験区画周囲の無処理株を用いた。

#### 試験液の調製方法:

各標識化合物を個別にアセトンに溶解し、10 mL 中  
スは 10.423 mg/10mL エトフェンプロック  
及び エトフェンプロックス  
は 10.275 mg/10mL の各原液を調製した。

上記の2被験物質原液をほぼ等量ずつ混合し、窒素ガス気流下でアセトンを除き、それ  
に非標識エトフェンプロックスを混合して EC 製剤を調製した。

120 g a.i./ha 茎葉処理(推奨最高施用量:以降通常使用量とする)に用いた EC 製剤中  
エトフェンプロックスの含量は 23%(w/w)、1200 g a.i./ha 茎葉処理(通常使用量の 10 倍)  
に用いたエトフェンプロックスの含量は 29%(w/w)であった。

#### 茎葉処理量:

上記試験液をなたね植物 1 ポット当たり 120 g a.i./ha 茎葉処理でエトフェンプロックスは  
3.18 mg a.i./ポット及び 1200 g a.i./ha 茎葉処理ではエトフェンプロックスは 32.33 mg  
a.i./ポットの割合で散布した。ポット表面積 0.263 m<sup>2</sup>から計算すると茎葉処理量は各々  
120.2 g a.i./ha 及び 1229 g a.i./ha であった。

#### 茎葉処理方法:

試験液散布には手動式噴霧器を用い、散布時に周囲を保護カバーで覆い飛散した農  
薬を捕捉した。茎葉処理はなたねの開花時で、散布作業はノズルを移動させながら花  
及び葉に均一に試験液全量を茎葉処理した。対照植物には茎葉処理を行わなかった。  
散布後、使用した器具類をエタノールで洗浄し、洗浄液中の放射能を測定して植物体  
及び土壌に処理した量を正確に把握するための計算に用いた。

#### 試料採取:

試験液茎葉処理 56 日後(2001 年 6 月 12 日)に充分成長したなたね植物を採取して、  
地上部(種子及び葉)及び根部に分離した。根部は水洗してプラスチックバッグにシー  
ルして保存し、地上部は室温で乾燥後種子を分けて採取した。各試料は採取直後に  
秤量した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

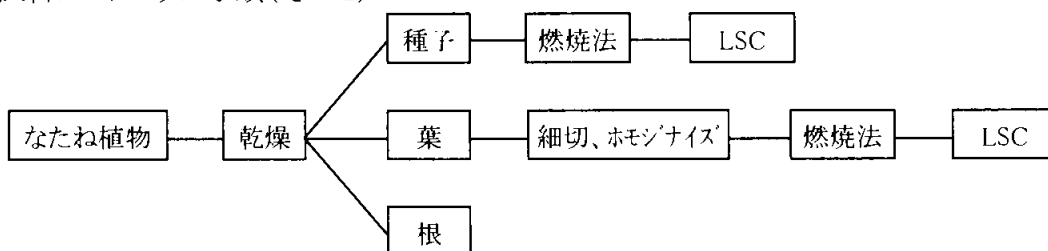
分析方法：分析操作の手順を以下の図に示す。

分析法の概要：

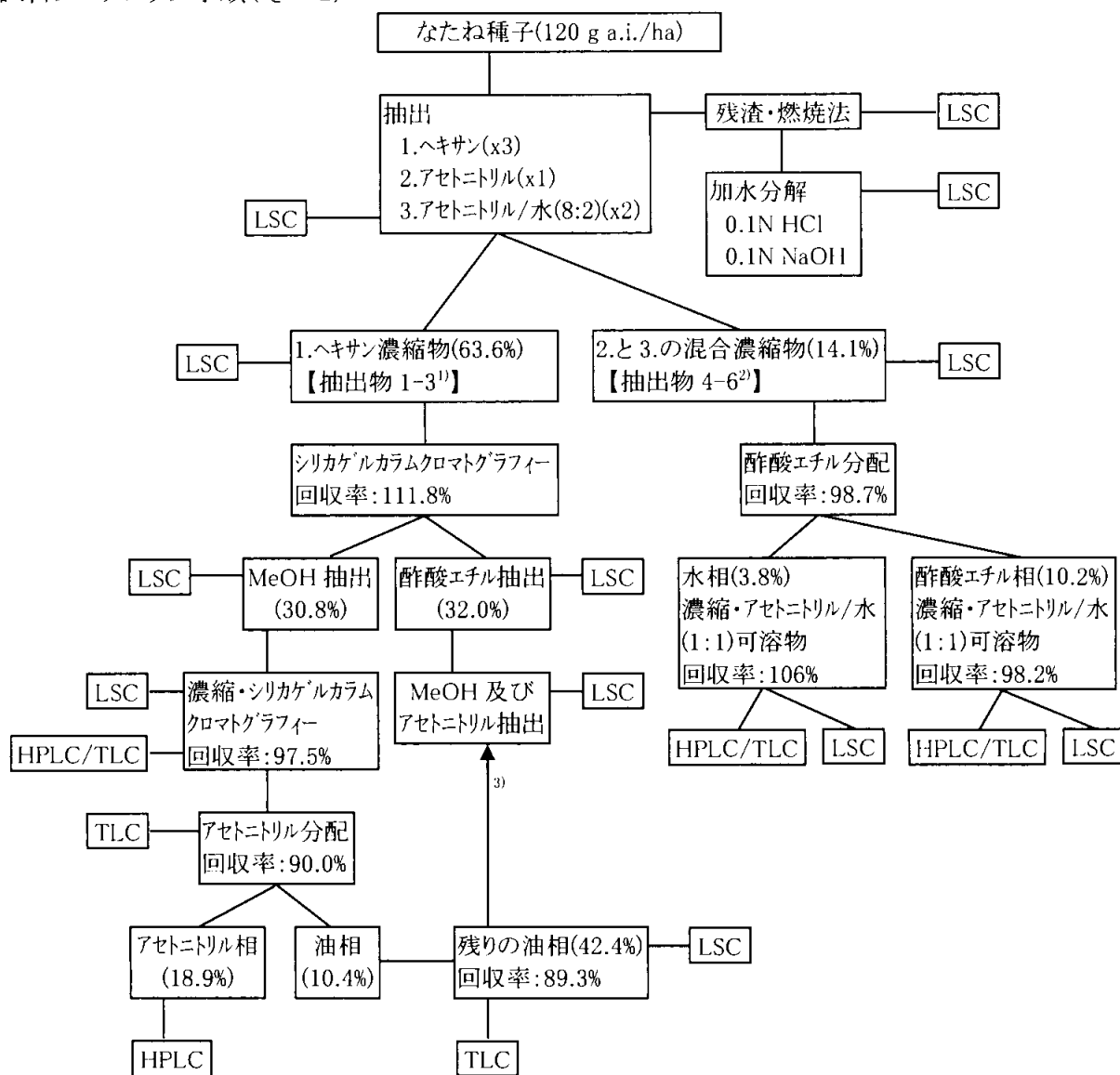
- 1) 種子及び葉の一定量を乳鉢でホモジナイズし、溶媒で抽出した。抽出液は更に分画して各画分の放射能を LSC で測定した。抽出残渣は燃焼法により発生した  $^{14}\text{CO}_2$  を捕集して LSC で放射能を測定した。
  
- 2) 120 g a.i./ha 茎葉処理のなたね種子 40 g を乳鉢でホモジナイズして秤量、最初にヘキサンで抽出し、次にアセトニトリル及びアセトニトリル/水(8:2v/v)で抽出して、遠心沈殿法により分離、濾過した。各抽出液の放射能を LSC で測定した。抽出残渣は燃焼処理後 LSC で測定した。非極性抽出物(ヘキサン抽出)及び極性抽出物(アセトニトリル及びアセトニトリル/水による抽出)を別々にプールし、非極性抽出物を濃縮し、シリカゲルクロマトグラフィーを用いてメタノール及び酢酸エチルで溶出した。メタノール画分は更にシリカゲルを用いてヘキサンで溶出した後酢酸エチルを加えた勾配法で溶出、主な抽出画分の放射能を TLC で分析し、更にアセトニトリルで分配した画分を HPLC で分析した。  
  
酢酸エチル抽出画分はメタノール及びアセトニトリルで抽出して HPLC で分析した。  
混合した極性画分(アセトニトリル及びアセトニトリル/水抽出)は濃縮後、酢酸エチルで分配した。水相及び酢酸エチル相は濃縮し TLC 及び HPLC で分析した。
  
- 3) 1200 g a.i./ha 茎葉処理のなたね種子は上記同様に抽出し、ヘキサン抽出の油層を濃縮し、クリーンアップ後シリカゲルクロマトグラフィーによりメタノールで溶出した。得られた画分を TLC 及び HPLC で分析した。アセトニトリル及びアセトニトリル/水による抽出物は上記同様に処理して分析した。
  
- 4) 全ての溶媒抽出後の残渣は 0.1N の塩酸で抽出し、抽出液の放射能を LSC により測定した。残りの残留物は 0.1N の水酸化ナトリウム溶液で抽出し、抽出液の放射能を LSC により測定した。
  
- 5) 葉 50 g を細切してドライアイス存在下でホモジナイズし、アセトニトリル、次にアセトニトリル/水(1:1 v/v)で抽出、更に還流装置を用いたアセトニトリル/水(1:1 v/v)で抽出して、各抽出物の放射能を TLC 及び LSC により分析した。  
抽出残渣は乾燥後、ホモジナイズし、一部を燃焼処理して発生した  $^{14}\text{CO}_2$  を捕集、放射能を LSC で測定した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

試料ワークアップ手順(その1)



試料ワークアップ手順(その2)



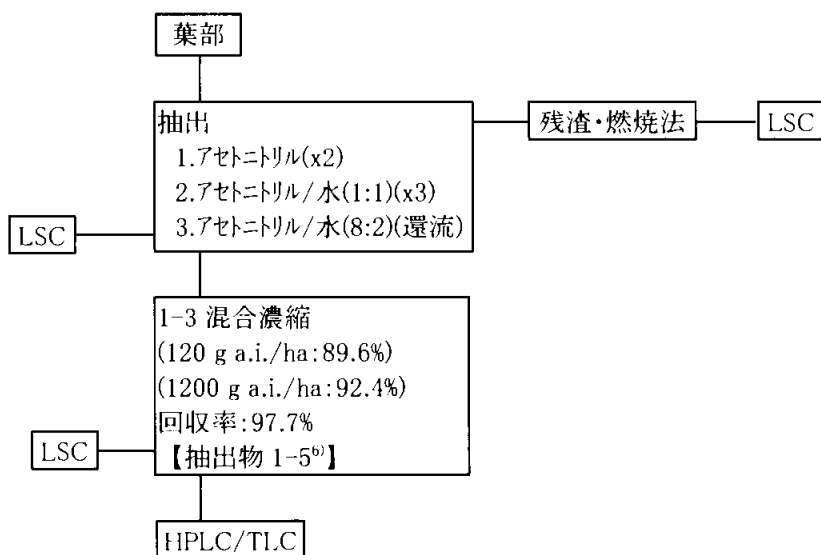
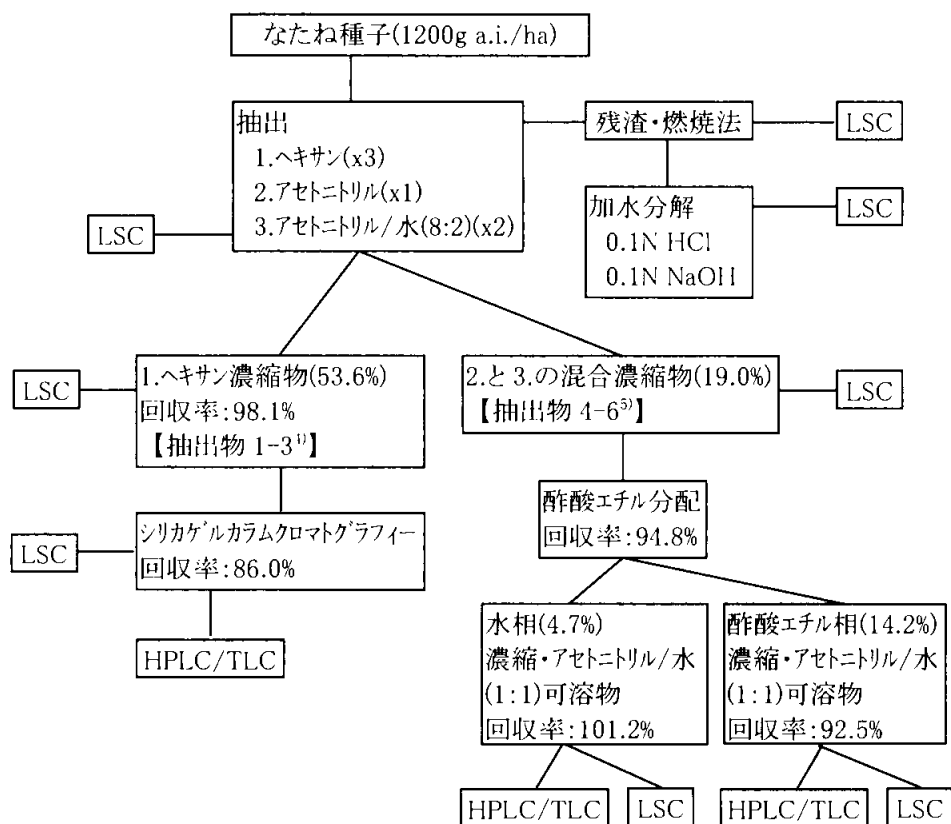
1)、2) 申請者注: 表1中の抽出物を示す

3) 申請者注 残りの油層を NaOH 及びアセトニトリル抽出に追加して LSC 分析実施を示す

\* 括弧内の%で示した数値は TRR(%)を示す

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

試料ワークアップ手順(その3)



4)、5) 申請者注:表1中の抽出物を示す

6) 申請者注:表2中の抽出物を示す

\* 括弧内の%で示した数値は TRR(%)を示す

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

分析方法による検出限界及び定量限界：

- 1) 液体シンチレーションカウンター(LSC)の検出限界は 40dpm であり、定量限界は 60 dpm であった。非抽出物の燃焼法により発生する  $^{14}\text{C}$  を捕集、LSC の分析における検出限界は 40 dpm であり、定量限界は 60 dpm であった。
- 2) HPLC による試料中における放射性画分の定量限界は 200 dpm(0.0004 mg/kg なたね種子)であった。
- 3) TLC による検出限界は 10 dpm、定量限界は 20 dpm(0.0001 mg/kg なたね種子)であった。

試験結果：

- 1) 本試験に使用した被験物質の放射化学的純度は処理前に TLC で測定した結果、  
 エトフェンプロックス及び  
 エトフェンプロックスともに  
 であった。茎葉処理液の均一性は十分であり、処理前及び処理後における処理液中被験物質の安定性は HPLC 分析で  
 を示し、安定であった。
- 2) 茎葉処理量から散布装置及び散布時に使用した被覆プラスチックシート等に付着してロスした放射能濃度を差し引いた正味の散布量(ポット散布量)を算出した。なたね植物のポットに散布された放射能の割合を次表に示す。

なたね株 ポット	茎葉処理量	土壌面積	ロスした放射能		供試標識化合物	ポット散布量
	g a.i./ha	m <sup>2</sup>	mg	%	mg	対茎葉処理量(%)
1	120 (通常量)	0.263	0.76	24.19	2.39	75.81
2	1200 (10 倍量)	0.263	2.95	9.34	28.61	90.66

- 3) 試験液茎葉処理 56 日後に収穫したなたね種子は 120 g a.i./ha 処理株で 62.8 g(ha 当たり換算 2387 kg)、1200 g a.i./ha 処理株で 52.0 g(ha 当たり換算 1976 kg)であった。
- 4) 残留放射能の分布を次表に示す。

総残留放射能(TRR)は収穫した部位の重量を計測し、種子及び葉を燃焼処理後 LSC で測定して求めた。更に各部位を抽出して、全ての抽出物の放射能を測定し、各抽出残渣は燃焼処理後放射能を測定した。

なたね植物中の TRR は低く、120 g a.i./ha 及び 1200 g a.i./ha 処理群でポット散布量の各々 3.3%及び 7.6%であり、なたね全植物 1 kg 当たりの残留量は親化合物として各々 0.105 mg/kg 及び 3.490 mg/kg、その内葉部には各々 0.111 mg/kg 及び 3.785 mg/kg、また、種子には各々 0.032 mg/kg 及び 0.253 mg/kg 残留した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

なたね株 ポット	茎葉処理量 g a.i./ha	試料 部位	収穫重量(g)		残留放射能*		濃度* (mg/kg)
			新鮮	乾燥	μg	ポット散布量の%	
1	120 (通常量)	種子	62.8	62.8	2.0	0.09	0.032
		葉	693.3	190.1	77.2	3.2	0.111
		合計	756.1	252.9	79.2	3.3	0.105
2	1200 (10 倍量)	種子	52.0	52.0	13.2	0.05	0.253
		葉	569.7	162.6	2156.5	7.5	3.785
		合計	621.7	214.6	2169.6	7.6	3.490

\*新鮮(生)重量に対する親化合物相当量

5) なたね種子及び葉の抽出物中放射能濃度を次表に示す。

ヘキサン、アセトニトリル及びアセトニトリル/水(8:2 v/v)で抽出した種子中の放射能は120 g a.i./ha 及び1200 g a.i./ha 処理で各々TRRの77.6%及び72.6%を示し、また、非抽出物質中の放射能は各々22.4%及び27.4%を示した。

一方、アセトニトリル及びアセトニトリル/水(1:1 v/v)で抽出した葉中における放射能は120 g a.i./ha 及び1200 g a.i./ha 処理で各々TRRの89.6%及び92.4%を示し、また、非抽出物質中の放射能は各々10.4%及び7.6%を示した。

なたね株 ポット	茎葉処理量 g a.i./ha		種子		葉	
			TRR%	mg/kg	TRR%	mg/kg
1	120 (通常量)	抽出物	77.6	0.025	89.6	0.100
		非抽出物	22.4	0.007	10.4	0.012
		合計	100	0.032	100	0.111
2	1200 (10 倍量)	抽出物	72.6	0.184	92.4	3.497
		非抽出物	27.4	0.069	7.6	0.288
		合計	100	0.253	100	3.785

6) 代謝

(1) なたね試料を分析し、代謝物の同定または特徴づけを行った。

なたね種子の分析結果を次表に示す。

代謝パターンは茎葉処理量に関係なく同様に、種抽出物画分から

が確認された。最も多く検出された残留放射能は親化合物 I (エトフェンプロックス)であり、120 g a.i./ha 茎葉処理で TRR の 62.1%(0.020 mg/kg)、また、1200 g a.i./ha 処理で TRR の 56.5%(0.143 mg/kg)を示した。

ヘキサン抽出物のシリカゲルクロマトグラフィーによる分画で、親化合物 I (エトフェンプロックス)を含む



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

以下の代謝物が同定された。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表1 茎葉処理 56 日後に収穫したなたね種子試料の放射能分布:TRR(%)及び mg/kg<sup>1)</sup>

処理後 56 日収穫	なたね種子 ポット No.1 (120 g a.i./ha 茎葉処理)						なたね種子 ポット No.2 (1200 g a.i./ha 茎葉処理)							
	物質名	%	抽出物 1-3 *)		抽出物 4-6 **)		種子 合計	%	抽出物 1-3 *)			抽出物 4-6 **)		種子 合計
			MeOH相	油層	水層	酢酸層			画分1	画分2	画分3	水層	酢酸層	
親化合物 I (エト フェンプロックス)	TRR%	16.6	39.7	0.3	5.5	62.1	TRR%	0.7	47.1	-	0.5	8.1	56.5	
	mg/kg	0.005	0.013	<0.001	0.002	0.020	mg/kg	0.002	0.119	-	0.001	0.021	0.143	

1) 未同定放射性画分については親化合物に換算した mg/kg 値を記載し、同定代謝物については代謝物の mg/kg 値を記載した  
それ故に放射性画分の合計値が抽出部分からの合計値と僅かにずれている

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

(2) なたね葉部の分析結果を次表に示す。

親化合物 I (エトフェンプロックス)は  
120 g a.i./ha 処理で TRR の 7.9%(0.009 mg/kg)、1200 g a.i./ha 処理では TRR の 35.2%  
(1.332 mg/kg)が検出された。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表2 茎葉処理 56 日後に収穫したなたね葉部試料の放射能分布:TRR(%)及び mg/kg<sup>1)</sup>

処理後 56 日収穫	なたね葉部 ポット No.1 (120 g a.i./ha 茎葉処理)		なたね葉部 ポット No.2 (1200 g a.i./ha 茎葉処理)	
	物質名	抽出物 1-5*)+還流 アセトニトリル及びアセトニトリル/水抽出	抽出物 1-5*)+還流 アセトニトリル及びアセトニトリル/水抽出	抽出物 1-5*)+還流 アセトニトリル及びアセトニトリル/水抽出
親化合物 I (エト フェンプロックス)	TRR%	7.9	TRR%	35.2
	mg/kg	0.009	mg/kg	1.332

1) 未同定放射性画分については親化合物に換算した mg/kg 値を記載し、同定代謝物については代謝物の mg/kg 値を記載した  
それ故に放射性画分の合計値が抽出部分からの合計値と僅かにずれている

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

(3) なたね種子非抽出物の分析結果を次表に示す。

なたね種子から溶媒で抽出されなかった放射能は TRR の 22.4~27.4%を示した。その抽出残渣を 0.1N 塩酸で 3 時間処理、続いて 0.1N 水酸化ナトリウムで 3 時間処理しそれぞれほぼ同量の放射能が抽出された。120 g a.i./ha 及び 1200 g a.i./ha 茎葉処理試料から各々 TRR の 6.2%(0.002 mg/kg)及び 14.5%(0.037 mg/kg)を超える放射能は検出されなかった。

この加水分解によって分離された物質は、植物に結合された代謝物あるいは代謝物の断片と考えられる。

茎葉処理 56 日後に収穫したなたね種子試料の有機溶媒抽出残渣及び水抽出残渣における放射能分布:TRR(%)及び mg/kg

処理後 56 日収穫		なたね種子		
		ポット No.1	ポット No.2	
茎葉処理量		120 g a.i./ha	1200 g a.i./ha	
有機溶媒 抽出残渣	残留%	100	100	
	TRR%	22.36	27.43	
	mg/kg	0.007	0.069	
抽出	0.1N HCl	残留%	39.03	21.38
		TRR%	8.73	5.86
		mg/kg	0.003	0.015
	0.1N NaOH	残留%	33.26	25.75
		TRR%	7.44	7.06
		mg/kg	0.002	0.018
非抽出残渣	残留%	27.71	52.87	
	TRR%	6.20	14.50	
	mg/kg	0.002	0.037	

結論:  $^{14}\text{C}$  で標識したエトフェンプロックス 2 種をほぼ均等に混合し、有効成分として 120 g a.i./ha(通常茎葉処理量)及び 1200 g a.i./ha(通常処理の 10 倍量)を 1 回散布したなたねの種子における総残留放射能は、処理量の各々 0.1%(0.032 mg/kg)及び 0.05%(0.253 mg/kg)であった。葉における総残留放射能は各々 0.111 mg/kg 及び 3.785 mg/kg であった。

種子の抽出物中から  $^{14}\text{C}$  が確認された。主な残留化合物は親化合物 I (エトフェンプロックス)であり、120 g a.i./ha 及び 1200 g a.i./ha 茎葉処理により TRR の各々 62.1%(0.020 mg/kg)及び 56.5%(0.143 mg/kg)が検出された。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

なたねにおける推定代謝分解経路

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

6) エトフェンプロックスのレタスにおける代謝分解試験

(資料 XV-21)

試験機関:RCC Ltd.(スイス)

[GLP 対応]

報告書作成年:2002 年

供試標識化合物:標識位置の異なる下記 2 種の標識化合物を等量混合した製剤を用いた。

1) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

2) 供試標識化合物: エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

供試植物: レタス

試験方法:

栽培条件:

栽培用 4 m<sup>2</sup> の小圃場にライシメーター用コンテナを埋設した。コンテナ内に植物ポットを 2 個地面と同じ高さに埋め、ポット内で栽培した。排水 (<sup>14</sup>C 残留物を含む可能性のある水) をライシメーターコンテナの浸出水タンクに収集し、土壌汚染を防止する設計にした。ポットはプラスチック製、表面積 0.263 m<sup>2</sup>、深さ 40 cm、多孔性粘土を鉢底から 10



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

cm の深さに詰め、さらに試験実施施設近くの農業用圃場(過去 5 年間は農薬無処理)から試験実施前に採取したシルト質土壌を詰め、鉢底からの高さを約 38 cm にした。レタスは、2001 年 7 月 4 日にポット内及びポットの周囲に植えた。試験液茎葉処理 2001 年 8 月 8 日、収穫は 2001 年 8 月 16 日とした。無処理の植物は試験区画周囲の対照圃場で同様に栽培した。施肥は植え付け時に行い、窒素及び硝酸アンモニウムを追肥した。カタツムリ防除用顆粒は 2001 年 7 月 4 日、7 月 23 日及び 7 月 27 日に撒いた。

試験ポットの区分を次表に示す。

レタス ポット	茎葉処理量 g a.i./ha	処理から収穫ま での期間(日間)	植付日	茎葉処理日	試料収穫日
1	180 (通常量)	8	2001.7.4.	2001.8.8	2001.8.16.
2	1800 (10 倍量)	8	2001.7.4.	2001.8.8	2001.8.16
3(対照)*	—	—	2001.7.4.	—	2001.8.16

\* 対照のレタス植物は試験区画周囲の無処理株を用いた。

試験液の調製方法:

各放射化合物を個別にアセトンに溶解し、10 mL 中 エトフェンプロック  
スは 7.847 mg/10mL 及び エトフェンプロックスは  
8.043 mg/10mL の各原液を調製した。

上記の 2 被験物質原液をほぼ等量ずつ混合し、窒素ガス気流下でアセトンを除き、それ  
に非標識エトフェンプロックスを混合して EC 製剤を調製した。

180 g a.i./ha 茎葉処理(推奨最高施用量:以降通常施用量とする)に用いた EC 製剤中  
エトフェンプロックスの含量は 27%(w/w)、1800 g a.i./ha 茎葉処理(通常施用量の 10 倍)  
に用いたエトフェンプロックスの含量は 29%(w/w)であった。

茎葉処理量:

上記試験液をレタス植物 1 ポット当たり 180 g a.i./ha 茎葉処理でエトフェンプロックスは  
4.73 mg a.i./ポット及び 1800 g a.i./ha 茎葉処理ではエトフェンプロックスは 47.34 mg  
a.i./ポットの割合で散布した。

茎葉処理方法:

試験液散布には手動式噴霧器を用い、散布時に周囲を保護カバーで覆い飛散した農  
薬を捕捉した。茎葉処理はレタスの葉全体に満遍なく茎葉処理した。対照植物には茎  
葉処理を行わなかった。

散布後、使用した器具類をエタノールで洗浄し、洗浄液中の放射能を測定して植物体  
及び土壌に処理した量を正確に把握するための計算に用いた。

試料採取:

試験液茎葉処理 8 日後(2001 年 8 月 16 日)に十分に成長したレタス植物体を採取して、

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

地上部(葉)及び根部に分離した。根部は水洗して重量を測定しプラスチックバッグにシールして約-20℃で保存し、地上部(葉)は新鮮重量を測定した。その後、地上部分をセクション 2.4 に記載されているように操作した。

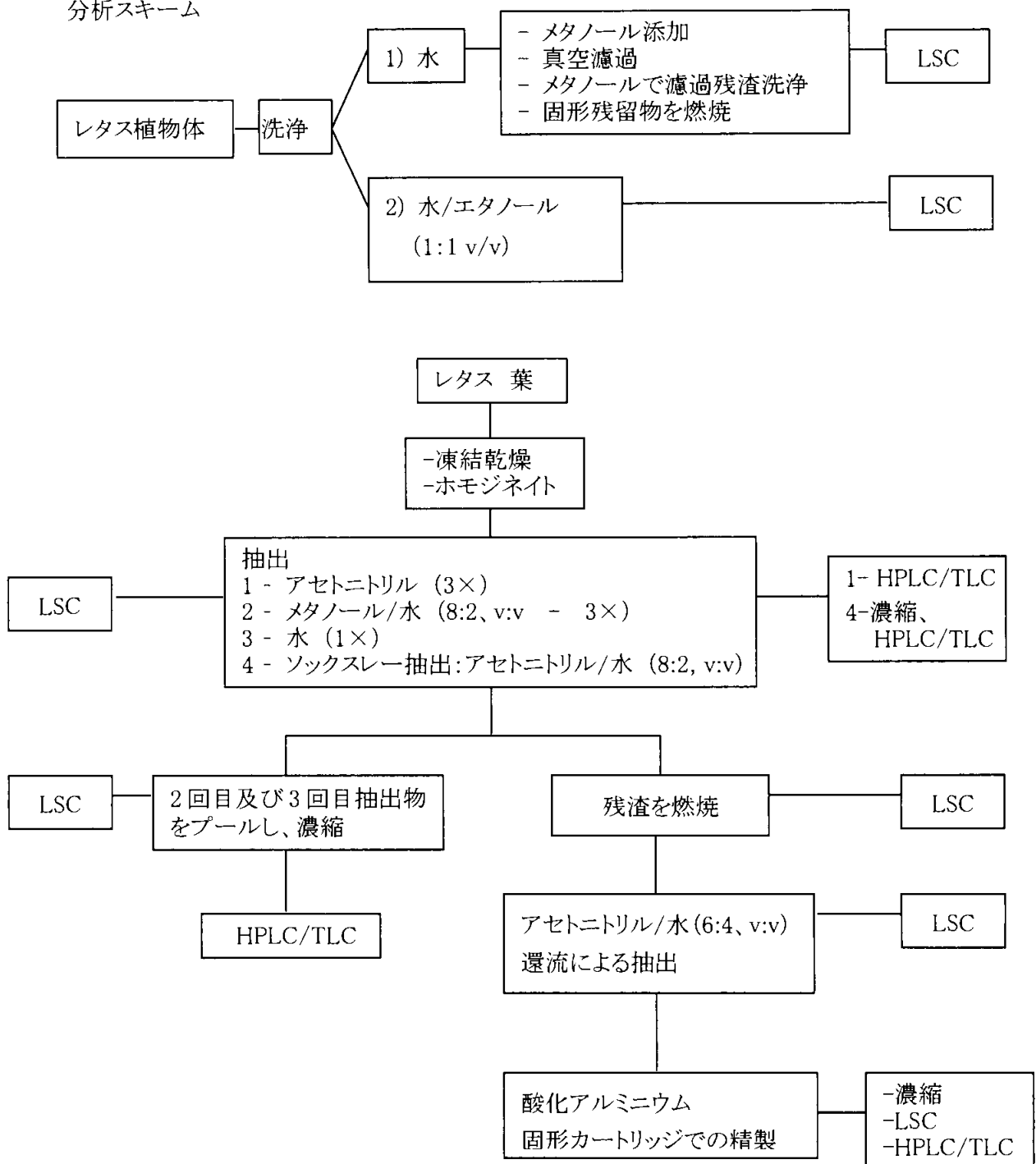
分析方法：分析操作の手順を次頁以降の図に示す。

分析法の概要：

- 1) 茎葉処理したレタスの葉を水及び水/エタノール(1:1 v:v)で洗浄した。洗浄液を LSC で分析した。水洗浄液にメタノールを加え真空フィルターにかけて得られた濾過残渣(残留固形物:植物粒子及び土壌を含む)をメタノールで数回洗浄した。濾過液およびメタノールを LSC で定量測定した。濾過残渣中の放射能は燃焼法により LSC で定量測定した。総残留放射エネルギーは最初の洗浄液とメタノール液及び濾過残渣の定量的値を加算して算出した。
- 2) 葉を凍結乾燥し、ホモジナイズ後、乾燥重量を測定した。通常の処理量区および 10 倍量処理区の試料約 15 g をアセトニトリル 3 回、メタノール/水 (8:2 v:v) 3 回、水 1 回で抽出し LSC で定量分析した。アセトニトリル/水 (8:2) 抽出物でソックスレー抽出を行い、放射能を LSC で定量分析した。サンプルを濃縮し、残渣を乾燥し、重量を測定した。さらにホモジナイズし、燃焼法により LSC で定量分析した。
- 3) アセトニトリル/水(6:4)で還流抽出し、中性カートリッジで精製し、メタノール洗浄した。水 1 mL 及びメタノール/水(1:1 v/v) 3 mL で溶出させ、濃縮し、HPLC 及び TLC で分析した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

分析スキーム



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

分析方法による検出限界及び定量限界：

- 1) 液体シンチレーションカウンター(LSC)の検出限界は40dpmであり、定量限界は60 dpmであった。非抽出物の燃焼法により発生する <sup>14</sup>C を捕集、LSC の分析における検出限界は40 dpmであり、定量限界は60 dpmであった。
- 2) HPLC による試料中における放射性画分の定量限界は200 dpm(0.000035 mg/kg レタス)であった。
- 3) TLC による検出限界は10dpm、定量限界は20 dpmであった。

試験結果：

- 1) 本試験に使用した被検物質の放射化学的純度を処理前に TLC で測定した結果、  
 エトフェンプロックス及び  
 エトフェンプロックスともに  
 であった。茎葉処理液の均一性は十分であり、処理前及び処理後における処理液中被験物質の安定性はHPLC 分析で  
 を示し、安定であった。
- 2) 散布装置及び散布時に使用した被覆プラスチックシート等に付着してロスした放射能濃度を減じて算出した、レタス植物のポットに散布された放射能の割合を次表に示す。

レタス ポット	茎葉処理量	土壌面積	ロスした放射能		供試標識化合物	植物体付着量
	g a.i./ha	m <sup>2</sup>	mg	%	mg	対茎葉処理量(%)
1	180 (通常量)	0.263	0.03	0.52	5.11	99.48
2	1800 (10 倍量)	0.263	0.37	0.78	46.93	99.22

- 3) 試験液茎葉処理43日後に収穫したレタスは180 g a.i./ha 処理株で1153 g(ha 当たり換算 43840 kg)、1800 g a.i./ha 処理株で942 g(ha 当たり換算 3581 kg)であった。
- 4) 残留放射能の分布を次表に示す。  
 総残留放射能(TRR)は、収穫した部位の新鮮重量を計測し、2 回の洗浄液、抽出物、燃焼物中の放射エネルギーの合計として求めた。更に葉全体を抽出して、全ての抽出物の放射能を測定し、各抽出残渣は燃焼処理後放射能を測定した。  
 放射能のほとんどは植物の表面で検出された。180 g a.i./ha 処理株では、TRR の8.4%及び36.3%が、水洗浄液及びエタノール/水(1:1、v/v)洗浄液から各々検出された。1800 g a.i./ha 処理株では、各々24.9%及び38.1%であった。
- 5) 洗浄後、レタスを室温でアセトニトリル、次いでメタノール/水(8:2 v:v)、さらに水で抽出した。アセトニトリル/水(8:2 v:v)によるソックスレー抽出、及びアセトニトリル/水(6:4 v:v)による還流条件での追加抽出も実施した。180g 及び1800 g a.i./ha 処理株の抽出性放射能の合計は各々TRR の53.5%(1.301 mg/kg)～35.8%(6.880 mg/kg)であった。アセトニトリル抽出物中の放射能は各々TRR の39.2%および26.0%であった。
- 6) 抽出残渣中の残留放射能は、TRR の1.8%(0.043 mg/kg、180g a.i./ha 処理)及び1.2%(0.229 mg/kg、1800 g a.i./ha 処理)であった。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

レタス ポット	茎葉処理量 g a.i./ha		葉	
			TRR%	mg/kg
1	180 (通常量)	洗浄液	44.69	1.086
		抽出物	53.53	1.301
		非抽出物	1.79	0.043
		合計	100	2.431
2	1800 (10 倍量)	洗浄液	62.97	12.089
		抽出物	35.84	6.880
		非抽出物	1.19	0.229
		合計	100	19.198

代謝:

レタス試料を分析し、代謝物の同定または特徴づけを行った。

レタスの分析結果を次表に示す。

最も多く検出された残留放射能は親化合物のエトフェンプロックスであり、180g a.i./ha 茎葉処理で TRR の 88.22%(2.145 mg/kg)、また、1800g a.i./ha 処理で TRR の 90.06%(17.290 mg/kg)を示した。

以下の代謝物が同定された。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アgro株式会社にある。

表 1 茎葉処理 8 日後に収穫したレタス試料の放射能分布:TRR(%)及び mg/kg<sup>1)</sup>

処理後 43日 収穫	レタスポット No.1 (180 g a.i./ha 茎葉処理)								レタスポット No.2 (1800 g a.i./ha 茎葉処理)							
	物質名	% mg	洗浄*		抽出物*				合計	% mg	洗浄*		抽出物*			
水			BOH:水	ACN	MeOH: 水	ソクレー	還流 ACN:水	水			BOH:水	ACN	MeOH: 水	ソクレー	還流 ACN:水	
親化合物	TRR%	7.86	34.42	38.14	7.64	0.06	0.09	88.22	TRR%	24.41	35.66	25.28	4.52	0.08	0.10	90.06
エトフェンプロックス	mg/kg	0.191	0.837	0.927	0.186	0.002	0.002	2.145	mg/kg	4.686	6.847	4.854	0.869	0.015	0.019	17.290

1) 未同定放射活性画分については親化合物に換算した mg/kg 値を記載し、同定代謝物については代謝物の mg/kg 値を記載した  
それ故に放射活性画分の合計値が抽出部分からの合計値と僅かにずれている。  
\*) 試料ワークアップ手順参照のこと  
ACN:アセトニトリル

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

結論:  $^{14}\text{C}$  で標識したエトフェンプロックス 2 種をほぼ均等に混合し、有効成分として 180 g a.i./ha(通常施用量)及び 1800 g a.i./ha(通常施用の 10 倍量)を 1 回散布したレタスにおける総残留放射能は各々 2.43 mg/kg 及び 19.198 mg/kg が検出された。

残留放射能のほとんどはレタスの葉表面の洗浄液から検出され、180 g a.i./ha 及び 1800 g a.i./ha 茎葉処理により TRR の約 45% および 63% を示した。洗浄後、TRR の 53.5% が室温抽出物および過酷抽出物から検出された。抽出残渣中の放射能は TRR の 1.2%~1.8% の範囲であった。

検出された主な放射性画分は親化合物であった。180 g a.i./ha 及び 1800 g a.i./ha 茎葉処理により TRR の約 90%(2.15mg/kg 及び 17.29 mg/kg 新鮮重量)を示した。親化合物以外に  
が検出された。

推定代謝分解経路を次頁に示す。



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

レタスにおける推定代謝分解経路

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

### 3. 土壌中動態試験

#### 1) エトフェンプロックスの水田土壌における代謝分解試験

(資料 XV-6)

試験機関: 三井化学株式会社

報告書作成年: 1985 年

供試標識化合物: 標識位置の異なる 2 種の化合物を用いた(植物の代謝分解試験に同じ)。

#### 1) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

#### 2) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

供試土壌: 以下の特性を有する 2 種類の土壌を湛水条件で用いた。

土壌採取地	土性	有機物含有(%)	粘土含量(%)	塩基置換容量 (meq/100g)	pH
埼玉	沖積埴壌土	1.54	21.2	15.8	5.0
栃木	火山灰埴壌土	9.12	16.3	47.6	5.9

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

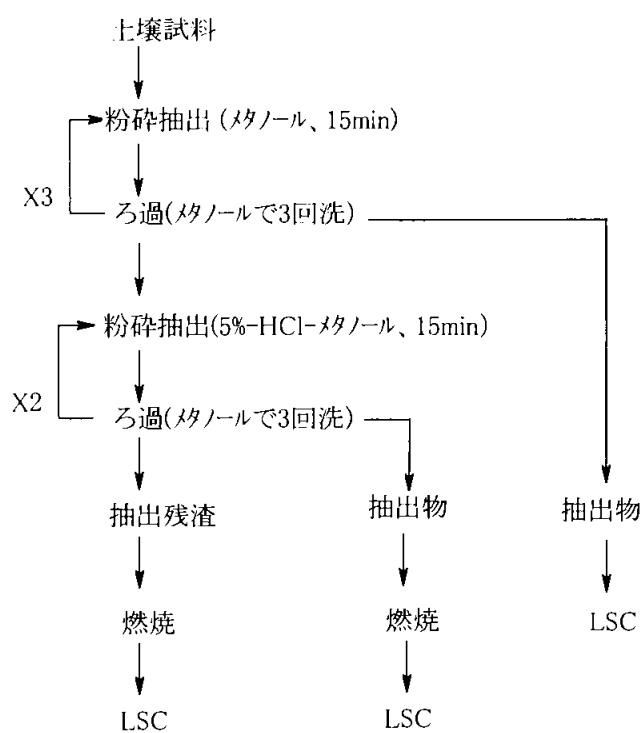
試験方法： 乾土換算 100 g の土壌を 300 mL の三角フラスコにとり、水を加えてプレインキュベーションした後、2 種の標識化合物のアセトン溶液をそれぞれ別々に乾土重量に対し 1ppm になるように添加し、よく混合した。下記の表に示した条件下に放置した。

実験条件一覧

土壌	光条件	温度	プレインキュベーション期間
埼玉	明	25~30°C	14 日間
	暗		14、31 日間
栃木	明		14 日間
	暗		14、31 日間

一定期間後にメタノール及び塩酸-メタノールで抽出し、各抽出液中及び土壌に残留する放射能を測定した。試料採取のフローを以下に示す。

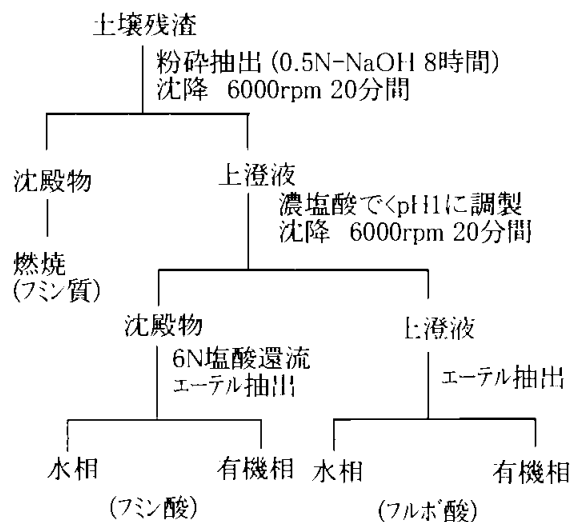
土壌からの抽出と分析フロー



土壌の結合放射能の分布測定は栃木土壌の明条件での実験について 2 週間目及び 7 週間目の抽出後の土壌残渣に関して水酸化ナトリウム水溶液及び塩酸水溶液による処理でフミン質画分、フルボ質画分及び残渣部に分別して行った。そのフローを以下に示す。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

### 土壌の結合放射能の分布測定フロー



なお、予備試験で得られた知見から、本条件下では代謝分解物の検索は行わなかった。

試験結果：明条件下においては、土壌の種類、標識位置の違いによる差はなく、親化合物 I (エトフェンプロックス)の半減期は 2～3 週間で、7 週間後の土壌結合放射能は約 50%であった。

暗条件下においては、土壌の種類、標識位置、プレインキュベーション期間の違いによる差はなく、処理後 10～12 週間後でも処理放射能の 70～80%が親化合物 I (エトフェンプロックス)のままで残留していた。

栃木土壌の明条件下 7 週間後の放射能の分別測定の結果、その分布はメタノール抽出分が約 30%、塩酸-メタノール抽出分が約 17%で、フミン質画分が約 36%、フミン酸画分が 1.2%、フルボ酸画分が 3.2%であった。

また、メタノール抽出された放射能のうち約 72%(処理量の約 21%)は親化合物 I (エトフェンプロックス)のままであり、放射能の回収率は約 87%であった。

結果を以下の表 1～5 に示した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 1 埼玉、栃木土壌における  $^{14}\text{C}$  放射能分布(暗条件、25°C、14 日プレインキュベーション)

	処理放射能に対する割合(%)							
	1 週		2 週		4 週		12 週	
埼玉土壌								
メタノール抽出物	95.6 (89.1) <sup>3)</sup>	95.9 (87.2)	94.5 (88.2)	92.0 (81.4)	91.8 (83.6)	88.7 (79.0)	82.8 (75.7)	79.4 (72.3)
5% $\text{HCl-MeOH}$ 抽出物	1.1	0.8	2.6	2.0	4.4	4.1	5.9	5.4
土壌残渣	0.6	0.6	0.8	0.9	1.2	1.0	3.0	2.2
$^{14}\text{C}$ 総放射能	97.3	97.3	97.9	94.9	97.4	93.8	91.7	87.0
栃木土壌								
メタノール抽出物	95.1 (92.2) <sup>3)</sup>	94.6 (91.2)	95.8 (91.9)	93.7 (89.2)	94.7 (90.5)	93.3 (89.1)	91.0 (86.9)	90.6 (87.2)
5% $\text{HCl-MeOH}$ 抽出物	2.3	1.8	2.5	2.1	2.8	3.1	4.3	3.5
土壌残渣	1.9	1.8	2.5	2.1	2.5	2.0	2.7	1.6
$^{14}\text{C}$ 総放射能	99.3	98.4	100.6	98.2	100.0	98.5	98.0	95.7
1)	エトフェンプロックス							
2)	エトフェンプロックス							
3) ( ):	親化合物 I (エトフェンプロックス)の割合							

表 2 埼玉、栃木土壌における  $^{14}\text{C}$  放射能分布(暗条件、30°C、14 日プレインキュベーション)

	処理放射能に対する割合(%)							
	埼玉土壌				栃木土壌			
	5 週		10 週		5 週		10 週	
メタノール抽出物	85.2 (78.9) <sup>3)</sup>	86.8 (79.7)	82.0 (75.8)	82.0 (74.9)	81.9 (78.0)	82.9 (78.3)	70.2 (64.6)	72.5 (66.9)
土壌残渣	10.7	8.3	8.7	7.7	12.1	9.6	18.8	15.1
$^{14}\text{C}$ 総放射能	95.9	95.1	90.7	89.7	94.0	93.0	89.0	87.6
1)	エトフェンプロックス							
2)	エトフェンプロックス							
3) ( ):	親化合物 I (エトフェンプロックス)の割合							

表 3 埼玉、栃木土壌における  $^{14}\text{C}$  放射能分布(暗条件、25°C、31 日プレインキュベーション)

	処理放射能に対する割合(%)									
	2 週		4 週		6 週		8 週		10 週	
埼玉土壌										
メタノール抽出物	93.5 (82.1) <sup>3)</sup>	94.1 (83.1)	92.5 (82.6)	91.9 (81.2)	90.2 (80.5)	91.8 (81.1)	88.5 (78.8)	89.1 (78.0)	87.6 (78.5)	90.1 (79.3)
土壌残渣	4.4	3.6	4.5	5.2	6.4	5.8	8.2	7.1	10.3	8.5
$^{14}\text{C}$ 総放射能	97.9	97.7	97.0	97.1	96.6	97.6	96.7	96.2	97.9	98.6
栃木土壌										
メタノール抽出物	89.5 (81.9) <sup>3)</sup>	91.4 (82.3)	79.6 (72.4)	85.4 (78.6)	82.1 (75.4)	82.1 (75.2)	81.9 (76.0)	83.2 (76.8)	80.3 (74.0)	81.8 (75.5)
土壌残渣	10.1	8.1	14.1	10.2	14.3	12.2	14.6	12.2	17.6	14.9
$^{14}\text{C}$ 総放射能	99.6	99.5	93.7	95.6	96.4	94.3	96.5	95.4	97.9	96.7
1)	エトフェンプロックス									
2)	エトフェンプロックス									
3) ( ):	親化合物 I (エトフェンプロックス)の割合									

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表4 埼玉、栃木土壌における<sup>14</sup>C放射能分布(明条件、25-30°C、14日プレインキュベーション)

	処理放射能に対する割合(%)									
	2週		4週		5週		6週		7週	
	埼玉土壌									
メタノール抽出物	85.8 (69.4) <sup>3)</sup>	82.4 (63.3)	51.7 (27.7)	64.5 (40.3)	46.2 (25.1)	44.0 (21.4)	38.9 (17.6)	47.6 (25.6)	40.8 (21.8)	43.8 (23.9)
土壌残渣	15.3	11.8	41.9	28.5	46.3	42.1	55.2	41.7	50.4	42.6
<sup>14</sup> C総放射能	101.1	94.2	93.6	93.0	92.5	86.1	94.1	89.3	91.2	86.4
栃木土壌										
メタノール抽出物	56.7 (42.8) <sup>3)</sup>	64.3 (48.5)	45.5 (33.4)	40.7 (27.4)	32.2 (21.1)	45.5 (32.8)	33.7 (23.1)	37.9 (26.6)	30.9 (23.1)	29.8 (21.4)
土壌残渣	31.6	25.3	41.7	43.3	57.2	44.2	55.3	44.8	61.4	53.1
<sup>14</sup> C総放射能	88.3	89.6	87.2	84.0	89.4	89.7	89.0	82.7	92.3	82.9

- 1) エトフェンブロックス  
 2) エトフェンブロックス  
 3) ( ): 親化合物 I (エトフェンブロックス)の割合

表5 栃木土壌における<sup>14</sup>C放射能分布

	処理放射能に対する割合(%)			
	栃木土壌			
	2週		7週	
メタノール抽出物	65.9	66.7	30.3	29.8
5%HCl-MeOH抽出物	13.8	11.1	19.1	14.6
土壌残渣	12.8	12.1	41.2	38.5
(フミン質)	11.7	10.1	36.8	34.2)
(フミン酸)	0.4	0.7	1.1	1.3)
(フルボ酸)	0.7	1.3	3.3	3.0)
<sup>14</sup> C総放射能	92.5	89.9	90.6	82.9

- 1) エトフェンブロックス  
 2) エトフェンブロックス

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

2) エトフェンプロックスの畑土壌における代謝分解試験

(資料 XV-7)

試験機関: 三井化学株式会社

報告書作成年: 1985 年

供試標識化合物: 標識位置の違う 2 種の化合物を用いた(植物の代謝分解試験に同じ)。

1) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

2) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

供試土壌: 以下の特性を有する 3 種類の土壌を用いた。

土壌採取地	土性	有機物含有(%)	粘土含量(%)	塩基置換容量 (meq/100g)	pH
山梨	沖積砂壤土	1.04	11.3	12.7	6.6
千葉	火山灰軽埴土	5.56	32.4	38.1	6.0
静岡	沖積軽埴土	3.17	31.8	20.7	6.6

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

試験方法:

(1)暗条件下における分解性試験

乾土換算 100 g の土壌を 300 mL の三角フラスコにとり、2 週間インキュベーションした後、2 種の標識化合物のアセトン溶液をそれぞれ別々に乾土重量に対し 1ppm になるように添加し、よく混合した。25°C の暗条件下に放置し、一定期間後にメタノール及び塩酸-メタノールで抽出し、各抽出液中及び土壌に残留する放射能を測定した。

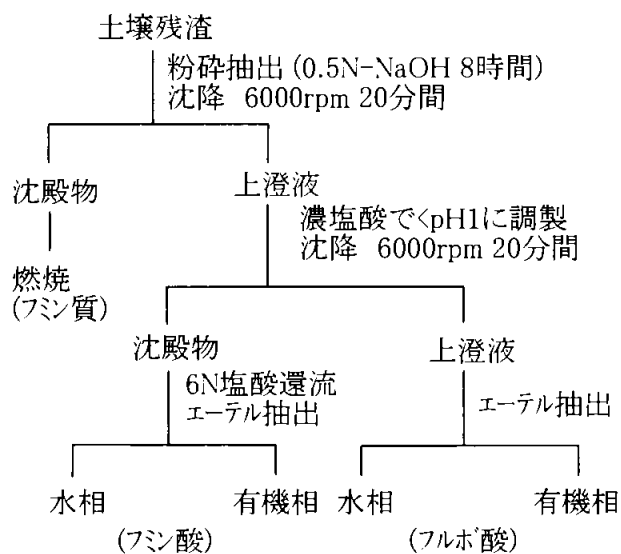
(2)滅菌条件下における分解性試験

山梨土壌について、オートクレーブ処理したものと、しないものについて明(人工光)及び暗条件で上記(1)と同じ方法により比較した。

(3)代謝分解物の同定

上記(1)の3種の土壌のメタノール抽出液について、TLC による標品とのクロマトグラフィーにより行った。千葉土壌については、塩酸-メタノール抽出液及び抽出残渣への放射能の分布を調べた。土壌の分析と代謝物同定手順を以下のフローに示した。<sup>14</sup>CO<sub>2</sub> の捕集は通常の方法により千葉土壌についてのみ実施した。

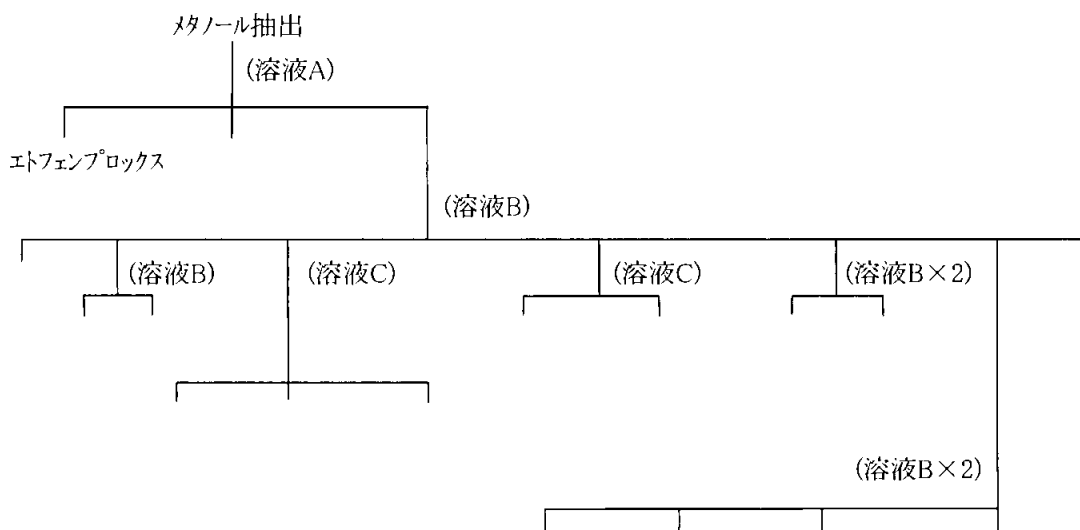
土壌の結合放射能の分布測定フロー





本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

### TLC を用いたメタノール抽出物の代謝物同定



溶液 A:ベンゼン

溶液 B:ベンゼン/酢酸エチル/酢酸=90/10/1

溶液 C:ヘキサン/アセトン=2/1

### 試験結果:

#### (1)暗条件下における分解性

土壌の種類、標識位置の違いによる差は小さく、親化合物 I (エトフェンプロックス)の半減期は6~9日間で、3週間後の親化合物 I (エトフェンプロックス)の残留量は約15%であった。時間の経過とともにメタノール抽出画分の放射能は少なくなり、土壌に残留する放射エネルギーが増加した(2週間後で約30~40%)。放射能の回収率は約75%であった。

#### (2)滅菌条件下における分解性

滅菌と非滅菌条件下で親化合物 I (エトフェンプロックス)の分解に大きな差が認められた。すなわち、2週間後の分解率は非滅菌土壌では65~75%であったのに対し、滅菌土壌では約95%の親化合物 I (エトフェンプロックス)が残り、殆ど分解は認められなかった。この場合、明条件と暗条件では差は認められなかった。

#### (3)代謝分解

##### (a)メタノール抽出画分の成分について

各土壌とも

同定された代謝分解物は下記の通りである。

##### (b)各抽出画分及び抽出残渣中の放射能の分布

千葉土壌の8週間後の放射能分布は、メタノール抽出画分が約23%、両標識化合物の間には差が認められたが、塩酸-メタノール画分10~20%で、抽出残渣中の分布量は

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

同じく9～17%であった。 $^{14}\text{CO}_2$ 量を含めて8週間後の放射能の回収率は約90%で、この条件下における親化合物 I (エトフェンプロックス)の半減期は両標識化合物ともに約2週間であった。

(c)  $^{14}\text{CO}_2$ について

上記千葉土壌から発生した  $^{14}\text{CO}_2$  量は時間の経過とともに増加し、8週間後で添加放射能の32～44%になった。

同定された主な代謝物を以下に示す。分析結果は表1から4に示した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 1 山梨、千葉、静岡土壌における  $^{14}\text{C}$  放射能分布(処理後 1、2、3 週間)

	処理放射能に対する割合(%)					
	1 週		2 週		3 週	
山梨土壌						
メタノール抽出物	75.8 (60.5) <sup>3)</sup>	74.5 (58.9)	39.8 (27.4)	34.7 (25.7)	24.8 (16.2)	20.2 (14.7)
土壌残渣	16.8	9.3	35.5	24.7	37.0	30.2
$^{14}\text{C}$ 総放射能	92.6	83.8	75.3	59.4	61.8	50.4
千葉土壌						
メタノール抽出物	56.6 (40.9) <sup>3)</sup>	54.3 (39.5)	32.1 (22.2)	34.3 (23.2)	21.3 (14.0)	20.7 (13.9)
土壌残渣	32.4	29.5	44.4	33.7	44.9	38.5
$^{14}\text{C}$ 総放射能	89.0	83.8	76.5	68.0	66.2	59.2
静岡土壌						
メタノール抽出物	57.8 (43.7) <sup>3)</sup>	57.1 (44.9)	35.5 (26.6)	34.3 (25.7)	26.5 (14.5)	22.6 (15.7)
土壌残渣	32.1	26.9	41.2	30.8	40.8	33.7
$^{14}\text{C}$ 総放射能	89.9	84.0	76.7	65.1	67.3	56.3

- 1) エトフェンプロックス  
 2) エトフェンプロックス  
 3) ( ): 親化合物 I (エトフェンプロックス) の割合

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 2 各土壌中における親化合物 I (エトフェンプロックス)及びその代謝物の量

	処理放射能に対する割合(%)											
	山梨				千葉				静岡			
	1 週		2 週		1 週		2 週		1 週		2 週	
メタノール抽出物 親化合物 I (エトフェンプロックス)	60.5	58.9	27.4	25.7	40.9	39.5	22.2	23.2	43.7	44.9	26.6	25.7

ND: 検出限界以下、- : 測定せず、1)

エトフェンプロックス、2)

エトフェンプロックス

表 3 千葉土壌における  $^{14}\text{C}$  放射能分布

	処理放射能に対する割合(%)											
	1 週		2 週		3 週		4 週		6 週		8 週	
メタノール抽出物	78.3	76.5	64.5	60.1	55.2	50.3	41.0	38.4	34.7	27.1	22.7	23.6
5% $\text{HCl}$ - $\text{MeOH}$ 抽出物	9.3	5.1	12.7	7.7	13.4	8.1	13.8	8.6	21.7	12.7	20.0	10.3
$^{14}\text{CO}_2$	2.9	6.5	8.2	11.8	13.8	20.9	18.4	27.5	25.8	37.1	31.7	44.2
Bound $^{14}\text{C}$	3.8	2.9	7.1	4.7	7.7	6.1	12.7	7.8	14.1	8.1	17.1	8.8
$^{14}\text{C}$ 総放射能	94.3	91.0	92.5	84.3	90.1	85.4	85.9	82.3	96.3	85.0	91.5	86.9

1) エトフェンプロックス、2)

エトフェンプロックス

表 4 千葉土壌における  $^{14}\text{C}$  結合放射能分布(処理後 2、8 週間)

	処理放射能に対する割合(%)			
	2 週		8 週	
メタノール抽出物				
5% $\text{HCl}$ - $\text{MeOH}$ 抽出物	12.7	7.7	20.0	10.3
(水相)	2.5	1.7	12.0	1.5)
(有機相)	10.2	6.0	8.0	8.8)
$^{14}\text{CO}_2$	8.2	11.8	31.7	44.2
土壌残渣	7.1	4.7	17.1	8.8
(フミン質)	5.9	3.9	12.4	8.0)
(フミン酸)	0.9	0.5	3.4	0.1)
(フルボ酸)	0.3	0.3	1.3	0.7)
$^{14}\text{C}$ 総放射能	92.5	84.3	91.5	86.9

1) エトフェンプロックス、2)

エトフェンプロックス

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

畑土壌における推定代謝分解経路

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

3) エトフェンプロックスの土壤中移行試験

(資料 XV-8)

試験機関:三井化学株式会社

報告書作成年:1985年

供試標識化合物:標識位置の違う下記の2種の化合物を用いた(土壤の代謝分解試験に同じ)。

1) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

2) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

供試土壤:下記の特性を有する3種類の土壤を用いた。

土壤採取地	土性	有機物含有(%)	粘土含量(%)	塩基置換容量 (meq/100g)	pH
山梨	沖積砂壤土	1.04	11.3	12.7	6.6
千葉	火山灰軽埴壤	5.56	32.4	38.1	6.0
静岡	沖積軽埴土	3.17	31.8	20.7	6.6

試験方法:試験直前に両標識化合物をそれぞれ乾土当り1ppm添加した土壤を調製した。この処理土壤をそれぞれ、エトフェンプロックス無添加の3種の土壤を20cmの高さに充填したガラスカラム(内径4cm、長さ50cm)に5cmになるように加え、カラムの保水量の3

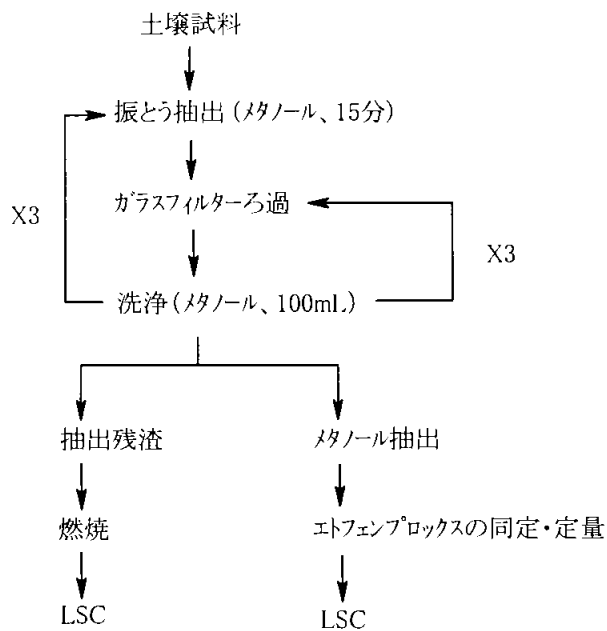
本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

～5 倍の蒸留水をゆっくりと流した。処理後の土壌カラムを 5 cm 毎に 5 画分し、メタノールで抽出して抽出液中と土壌に残留している放射能を測定するとともに、溶出液中の放射能を調べた。

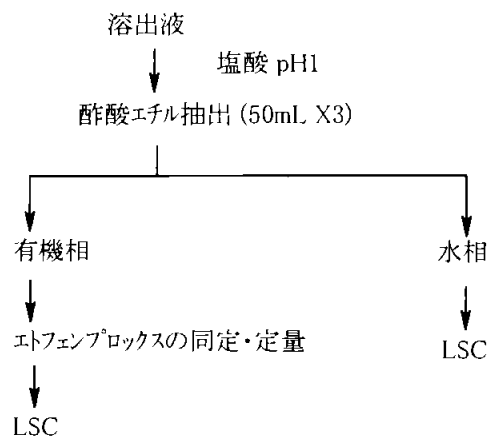
さらに、代謝分解物の挙動を調べるために、標識化合物を添加した後 2 週間インキュベーションした土壌を調製し、上記と同様に試験した。

上記の操作を行った土壌の分析フローを次頁に示す。

#### リーチング試験土壌分析フロー



#### リーチング試験溶出液分析フロー



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

試験結果：直前添加の場合、土壌カラム中の放射能は両標識化合物ともいずれの土壌においても最上部の 5 cm を占める処理土層に添加量の 74%以上が存在しており、その大部分が親化合物であった。次の 5~10 cm の層への移行率は、平均 1.4%であったが、親化合物は僅かであった。それより下層への移行率は 1.3%以下であったが、親化合物は認められなかった。

十分に代謝分解させた土壌を供試した場合も、回収放射能の 90%以上が最上部の 0~5 cm 層に存在し、下層への移行率は僅かであった。

溶出液中の放射能は、直前添加の場合では両標識化合物とも、いずれの土壌においても添加放射能の 4%以下であり、親化合物は認められなかった。

代謝分解土壌の場合も、回収された放射能は 5%以下であり、親化合物は認められなかった。分析結果を以下の表 1~4 に示す。

表 1 土壌カラム中の移行した放射能量(山梨土壌 供試標識化合物で処理)

処理放射能に対する割合(%)								
非インキュベーション土	MeOH抽出物	エトフェンブロックス濃度	土壌残渣	<sup>14</sup> C 総放射能	MeOH抽出物	エトフェンブロックス濃度	土壌残渣	<sup>14</sup> C 総放射能
0-5(cm)	81.2	72.2	6.3	87.5	82.3	73.3	5.2	87.5
5-10	1.3	0.7	0.3	1.6	1.2	0.7	0.2	1.4
10-15	0.4	- <sup>3)</sup>	0.2	0.6	0.2	-	-	0.2
15-20	0.3	-	0.1	0.4	0.2	-	-	0.2
20-25	0.2	-	0.2	0.4	0.1	-	-	0.1
Effluent	-	-	-	1.5	-	-	-	4.0
Total				92.0				93.4
インキュベーション土								
0-5(cm)	25.5	19.5	26.5	52.0	51.4	39.6	14.1	65.5
5-10	0.2	-	0.6	0.8	1.4	0.5	0.7	2.1
10-15	0.2	-	0.3	0.5	0.5	-	0.3	0.8
15-20	0.1	-	0.2	0.3	0.3	-	0.2	0.5
20-25	-	-	0.1	0.1	0.2	-	0.2	0.4
Effluent	-	-	-	0.9	-	-	-	3.4
Total				54.6				72.7

1) エトフェンブロックス

2) エトフェンブロックス

3) 検出割合 0.1%以下



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 2 土壌カラム中の移行した放射能量(静岡土壌 供試標識化合物処理)

処理放射能に対する割合(%)								
非インキュベーション土	MeOH抽出物	エトフェンブロックス濃度	土壌残渣	<sup>14</sup> C 総放射能	MeOH抽出物	エトフェンブロックス濃度	土壌残渣	<sup>14</sup> C 総放射能
	0-5(cm)	39.3	31.7	34.5	73.8	72.8	66.7	12.1
5-10	0.2	0.1	1.1	1.3	0.8	0.5	0.7	1.5
10-15	- <sup>3)</sup>	-	0.2	0.2	0.1	-	0.3	0.4
15-20	-	-	0.1	0.1	-	-	0.2	0.2
20-25	-	-	-	-	-	-	0.2	0.2
Effluent	-	-	-	0.2	-	-	-	0.9
Total				75.6				88.1
インキュベーション土								
0-5(cm)	22.0	15.2	44.5	66.5	14.6	10.7	30.0	44.6
5-10	0.1	-	0.7	0.8	-	-	0.6	0.6
10-15	-	-	0.1	0.1	-	-	0.3	0.3
15-20	-	-	0.2	0.2	-	-	0.4	0.4
20-25	-	-	-	-	-	-	0.1	0.1
Effluent	-	-	-	0.3	-	-	-	0.7
Total				67.9				46.7

- 1) エトフェンブロックス  
 2) エトフェンブロックス  
 3) 検出割合 0.1%以下

表 3 土壌カラム中の移行した放射能量(千葉土壌 供試標識化合物で処理)

処理放射能に対する割合(%)								
非インキュベーション土	MeOH抽出物	エトフェンブロックス濃度	土壌残渣	<sup>14</sup> C 総放射能	MeOH抽出物	エトフェンブロックス濃度	土壌残渣	<sup>14</sup> C 総放射能
	0-5(cm)	82.7	71.9	7.8	90.5	76.2	66.1	9.7
5-10	0.4	0.2	0.6	1.0	0.5	0.2	1.0	1.5
10-15	- <sup>3)</sup>	-	-	-	-	-	-	-
15-20	-	-	0.1	0.1	-	-	-	-
20-25	-	-	-	-	-	-	-	-
Effluent	-	-	-	-	-	-	-	-
Total				91.6				87.4
インキュベーション土								
0-5(cm)	18.3	11.9	41.3	59.6	18.6	11.2	31.4	50.0
5-10	-	-	0.3	0.3	-	-	0.3	0.3
10-15	-	-	0.1	0.1	-	-	-	-
15-20	-	-	0.1	0.1	-	-	-	-
20-25	-	-	0.1	0.1	-	-	-	-
Effluent	-	-	-	-	-	-	-	0.1
Total				60.2				50.4

- 1) エトフェンブロックス  
 2) エトフェンブロックス  
 3) 検出割合 0.1%以下

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

参考試験-----土壌からの溶脱性に関する試験(参考資料-1)

試験方法: 全国から入手した各種土壌 8 種類を用いた。各土壌 10 g(生土)にエトフェンプロックスの 10ppm アセトン溶液 1 mL を滴下し(1ppm 相当)、3 時間風乾後、水 1 L を加えて 30 分間激しく振とうした。静置後、上澄液をガラスろ過器でろ過し、分析に供した。

試験結果: ろ液の分析結果は石英砂を除いてすべて 0.05ppb 以下であり、溶脱性は認められなかった。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

#### 4. 土壌吸着性試験

エトフェンプロックスの土壌吸脱着性試験

(資料 XV-16)

試験機関: Fraunhofer Institute for Molecular Biology  
and Applied Ecology (ドイツ)

[GLP 対応]

報告書作成年: 2005 年

供試標識化合物:

エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

放射化学的純度:

比放射活性:

供試土壌: OECD ガイドライン 106 及び 12 農産第 8147 号に準拠して 5 種類の土壌を使用した。  
4 土壌は外国土壌であり、1 土壌は日本植物防疫協会の土壌(No.4、茨城土壌)を用いた。各土壌の特性を表 1 に示した。

試験方法:

予備試験:

土壌タイプ 2、Andosols を用いて約 15 µg/L の供試標識化合物を含む 0.01M 塩化カルシウム溶液を 1/5、1/10、1/50 の土壌/溶液比で 24 時間振とうし、最適な土壌/溶液比を求めた。また、土壌/溶液比=1/50 について供試した 5 土壌全てについて 24 時間振とう後の物質収支を求めた。

本試験: 土壌タイプ 2、3、4、5 及び Andosols を用い、約 1 mg/L から 5 mg/L までの 5 濃度の供試標識化合物のアセトン溶液を 50 µL 添加し(被験物質初期濃度 1 µg/L~5 µg/L)、20~25 °C で 2 時間振とう後の物質収支を求めた。

吸脱着速度試験:

供試全土壌を用い最も高い被験物質初期濃度(設定濃度 5 µg/L)で吸着速度試験を行った。また、上記濃度で 2 時間振とう後、上清液を除去し、除去した溶液と同量の塩化カルシウム溶液を加え脱着速度試験を行った。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

#### 吸脱着等温式:

供試した5土壌全てについて被験物質初期濃度(1 µg/L~5 µg/L)における水相中および土壌中の被験物質濃度をフロイントリッヒ等温式へ当てはめ、吸着係数( $K_F^{ads}$ )と吸着指数(1/n)を求めた。さらに吸着係数と有機炭素含有率から土壌吸着係数( $K_F^{ads}_{OC}$ )を求めた。また、供試した5土壌全てについて被験物質初期濃度(1 µg/L~5 µg/L)で2時間振とう後に上清液を除去し、除去した溶液と同量の塩化カルシウム溶液を加え4時間振とうし、水相中および土壌中の被験物質濃度をフロイントリッヒ等温式へ当てはめ、脱着係数( $K_F^{des}$ )と脱着指数(1/n)を求めた。さらに脱着係数と有機炭素含有率から土壌脱着係数( $K_F^{des}_{OC}$ )を求めた。

#### 試験結果:

##### 予備試験:

最適な土壌/溶液比は 1/50 であった。土壌存在下での物質収支では 89.4~107.6%と良い回収率が得られ、エトフェンプロックスは土壌吸着性の強い物質であることが確認された。各土壌の物質収支を表 2 に示した。

本試験: 各土壌における物質収支を表 3 に示した。回収率は 82.0~100.0%であった。

#### 吸脱着速度試験:

吸脱着速度試験結果を表 4 に示した。エトフェンプロックスは土壌吸着性の高い物質で、吸着が平衡に達する時間は 2 時間であった。また、脱着速度試験の結果、エトフェンプロックスの脱着平衡に達する時間は 4 時間であった。

#### 吸脱着等温式:

吸脱着等温式(フロイントリッヒ等温式)を求めた。パラメータを表 5 に示す。 $K_F^{ads}$  は 156~114183、 $K_F^{ads}_{OC}$ (吸着)は 5778~4197904、 $K_F^{des}$  は 14~111481、 $K_F^{des}_{OC}$ (脱着)は 378~4098551 であった。

表 1: 供試土壌の特性

土壌タイプ	社内 No.	pH(CaCl <sub>2</sub> )	有機炭素%	粘土%	土性
2	05-A	7.1	2.72	36.5	Clay loam
3	02-G	5.7	2.7	24.3	Silt loam
4	10-G	5.1	3.75	20.7	Loam
5	01-A	4.6	0.8	2.9	Loamy sand
Andosols	No.4*	5.8	5.28	19.5	Loam

Clay loam: 埴壤土、Silt loam: 砂壤土、Loam: 壤土、Loamy sand: 壤質砂土

\*日本植物防疫協会研究所 No.4 茨城土壌

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 2: 物質収支(予備試験)

土壌タイプ	供試標識化合物の添加回収率(%)				総回収率
	0.01 M CaCl <sub>2</sub>	土壌抽出物	抽出土壌残渣	洗浄抽出物	
05-A	13.7	48.0	27.5	0.2	89.4
Andosols*	2.4	99.5	5.4	0.3	107.6
10-G	1.3	104.3	1.3	-	106.9
02-G	3.7	95.4	5.6	0.1	104.8
01-A	1.9	94.8	2.8	0.1	99.6
対照	54.1			25.0	79.1

\*日本植物防疫協会研究所 No.4 茨城土壌

表 3-1: 物質収支(05-A)

添加 <sup>14</sup> C 放射能(Bq)	初期濃度 (µg/L)	供試標識化合物の添加回収率(%)				合計 回収率(%)
		CaCl <sub>2</sub> 上澄み液	土壌抽出部	残土抽出部	ガラス洗浄部	
ブランク	-	<sup>14</sup> C 放射能は測定不能				
162.93	1.01	4.7	47.6	37.5	<1.0	89.8
		4.1	48.0	30.6	<1.0	82.7
328.12	2.03	3.6	53.0	27.3	<1.0	83.9
		3.7	49.4	28.9	<1.0	82.0
492.95	3.04	3.7	56.7	27.0	<1.0	87.4
		3.7	54.6	26.0	<1.0	84.3
645.89	3.99	3.0	58.5	24.6	<1.0	86.1
		2.6	99.4	11.7	<1.0	113.7*
797.06	4.92	1.8	64.6	6.8	<1.0	73.2*
		2.6	57.0	24.8	<1.0	84.4

\*外れ値

表 3-2: 物質収支(Andosols)

添加 <sup>14</sup> C 放射能(Bq)	初期濃度 (µg/L)	供試標識化合物の添加回収率(%)				合計 回収率(%)
		CaCl <sub>2</sub> 上澄み液	土壌抽出部	残土抽出部	ガラス洗浄部	
ブランク	-	<sup>14</sup> C 放射能は測定不能				
162.93	1.01	3.4	84.3	7.9	<1.0	95.6
		2.2	83.8	7.3	<1.0	93.3
328.12	2.03	2.1	86.3	5.8	<1.0	94.2
		1.3	87.0	6.3	<1.0	95.4
492.95	3.04	1.5	87.2	6.4	<1.0	95.1
		1.6	91.4	5.5	<1.0	98.5
645.89	3.99	1.7	86.7	5.7	<1.0	94.1
		1.8	83.4	6.5	<1.0	91.7
797.06	4.92	2.3	87.6	2.9	<1.0	92.8
		1.0	86.5	4.1	<1.0	91.6

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 3-3: 物質収支(02-G)

添加 <sup>14</sup> C 放射能(Bq)	初期濃度 (µg/L)	供試標識化合物の添加回収率(%)				合計 回収率(%)
		CaCl <sub>2</sub> 上澄み液	土壌抽出部	残土抽出部	ガラス洗浄部	
ブランク	-	14C 放射能は測定不能				
164.48	1.02	<LOD	46.9	35.1	<1.0	82.0
		<LOD	49.5	33.5	<1.0	83.0
332.95	2.06	1.3	50.6	32.1	<1.0	84.0
		1.7	91.4	2.8	<1.0	95.9
498.97	3.08	1.0	32.3	21.9	<1.0	55.2*
		1.3	60.5	26.3	<1.0	88.1
656.18	4.05	1.8	51.7	29.6	<1.0	83.1
		1.9	59.9	26.1	<1.0	87.9
813.30	5.02	1.7	59.2	25.4	<1.0	86.3
		1.7	59.0	26.0	<1.0	86.7

\*外れ値

表 3-4: 物質収支(10-G)

添加 <sup>14</sup> C 放射能(Bq)	初期濃度 (µg/L)	供試標識化合物の添加回収率(%)				合計 回収率(%)
		CaCl <sub>2</sub> 上澄み液	土壌抽出部	残土抽出部	ガラス洗浄部	
ブランク	-	14C 放射能は測定不能				
164.48	1.02	<LOD	85.3	8.1	<1.0	93.4
		1.3	81.6	5.2	<1.0	88.1
332.95	2.06	1.8	87.1	11.1	<1.0	100.0
		2.1	85.6	3.1	<1.0	90.8
498.97	3.08	1.7	87.6	4.7	<1.0	94.0
		2.3	86.7	4.5	<1.0	93.5
656.18	4.05	1.6	89.9	5.3	<1.0	96.8
		1.9	87.3	4.2	<1.0	93.4
813.30	5.02	1.6	86.2	3.5	<1.0	91.3
		1.9	87.6	4.9	<1.0	94.4

表 3-5: 物質収支(01-A)

添加 <sup>14</sup> C 放射能(Bq)	初期濃度 (µg/L)	供試標識化合物の添加回収率(%)				合計回収率(%)
		CaCl <sub>2</sub> 上澄み液	土壌抽出部	残土抽出部	ガラス洗浄部	
ブランク	-	14C 放射能は測定不能				
164.48	1.02	3.1	66.5	17.1	<1.0	86.7
		2.3	65.0	13.5	<1.0	80.8
332.95	2.06	3.3	67.4	12.7	<1.0	83.4
		3.4	68.3	14.5	<1.0	86.2
498.97	3.08	3.3	76.2	15.5	<1.0	95.0
		3.2	68.1	15.6	<1.0	86.9
656.18	4.05	3.3	73.0	11.5	<1.0	87.8
		3.4	67.8	13.4	<1.0	84.6
813.30	5.02	3.3	66.7	14.9	<1.0	84.9
		3.1	66.5	14.8	<1.0	84.4

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 4-1: 吸着速度試験

土壌タイプ	吸着時間	
	0.5 時間	2.0 時間
05-A	97.6%	97.6%
Andosols*	97.6%	98.2%
02-G	98.6%	98.3%
10-G	97.7%	98.2%
01-A	95.6%	96.8%

\*日本植物防疫協会研究所 No.4 茨城土壌

表 4-2: 脱着速度試験

土壌タイプ	脱着時間		
	0.5 時間	2 時間	4 時間
05-A	5.4%	5.5%	5.4%
Andosols*	0.6%	1.6%	1.4%
02-G	1.3%	2.3%	3.3%
10-G	1.0%	0.8%	1.5%
01-A	1.8%	1.9%	2.2%

\*日本植物防疫協会研究所 No.4 茨城土壌

表 5: 吸脱着等温式パラメータ

パラメータ		土壌				
		05-A	Andosols	02-G	10-G	01A
吸着	相関係数: $R^2$	0.888	0.8944	0.8663	0.9733	0.9931
	切片: $\log K_f^{ads}$	5.0576	4.9258	2.1929	4.1827	2.7971
	勾配: (1/n)	1.478	1.3594	0.6933	1.1841	0.9068
	吸着係数 $K_f^{ads}$ ( $\text{cm}^3/\text{g}$ )	114183 118750*	84295 90196*	156 158*	15230 15535*	627 627*
	有機炭素含有率(%)	2.72	5.28	2.7	3.75	0.8
	土壌吸着係数 $K_f^{ads_{OC}}$	4197904	1596496	5778	406133	78375
脱着	相関係数: $R^2$	0.9511	0.9988	0.8168	0.8852	0.9625
	切片: $\log K_f^{des}$	5.0472	1.6786	1.6479	1.1512	1.981
	勾配: (1/n)	1.5881	0.5482	0.589	0.423	0.6468
	脱着係数 $K_f^{des}$ ( $\text{cm}^3/\text{g}$ )	111481	48	44	14	96
	有機炭素含有率(%)	2.72	5.28	2.7	3.75	0.8
	土壌脱着係数 $K_f^{des_{OC}}$	4098551	904	1646	378	11965

\*乾土重量換算

申請者注:

報告書では  $K_f^{ads_{OC}}$  および  $K_f^{des_{OC}}$  を  $K_{oc}$  と記載していた。本概要書ではその定義を明確にするためそれぞれの本来の記号を用いて表記した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

## 5. 水中における分解試験

1) エトフェンプロックスの水中光分解試験(緩衝液及び自然水中)

(資料 XV-14)

試験機関:RCC Ltd.(スイス)

[GLP 対応]

報告書作成年:2003 年

供試標識化合物: 標識位置の異なる下記 2 種の標識化合物を等量混合して用いた。

1) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

2) エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

試験方法:

供試水: 緩衝液:市販の Baker 緩衝液(pH7) No.5656(リン酸)を用いた。

自然水:池(Ormalingen BL/スイス)で採水した水を 0.2 mm のふるいにかけた。

何れの供試水も使用前に 121°C・30 分間以上オートクレーブで滅菌した。

試験容器:

試験容器はスクリー栓つき石英ガラスプレートを使用し、試験前に 121°C・30 分間以上オートクレーブで滅菌した。



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

試験方法:

標識化合物を加えた個別試料(22.4 mL)を 25 mL の試験容器に加え、15 日間連続的に照射した。試験容器は  $25 \pm 1^\circ\text{C}$  に保った。

試験溶液の濃度及び調製方法:

各放射化合物を個別にシリカゲルカラムで精製し、純粋画分をプールした後、溶媒を窒素ガス気流で蒸発乾固させ、残渣を別々にアセトン 5 mL で溶解して原液を調製した。精製した被験物質の全放射エネルギーを LSC で測定した。その結果、アセトン 5 mL あたり  
おおよび  
であった。各標識化合物の原液 40  $\mu\text{L}$  を三角フラスコで混合し、緩やかな窒素ガス気流で溶媒を蒸発させた。残渣をアセトニトリル 105 mL で溶解し、試験溶液とした。試験溶液 400  $\mu\text{L}$  の一定分量を 2 連で LSC にかけて。測定された放射エネルギーおよび計算で求めた新たな比活性に基づき、標識物の含有量は 0.288 mg/L と算出された。

光照射機器:

水中光分解性試験装置: Suntest CPS, Original Hanau 装置

光源: キセノンランプ(紫外線及び赤外線フィルター付、カットオフ波長 300 nm)

光強度:  $17.2 \text{ W/m}^2$  (300~400 nm)

a) サンプル採取

照射区の分析試料は 2 連性で採取した。採取時点は、緩衝液で連続照射 0、1、1.8、4.6、11.7、15 日後、池水では同 0、1、1.8、4.6、6.7、13.5、15 日後であった。被験物質が加水分解試験において安定であるため、暗所対象区は緩衝液および自然水ともにインキュベーションの day 1.8、4.6、6.7、11.7、15 日後に採取し分析に供した。

b) 分析方法

分析試料は pH 値を測定してから操作を行った。試料採取後、一定分量(1 mL)を 2 連で LSC による測定を実施した。その後、分析試料中の放射エネルギーが低いため、試料全量について次の手順を行った(表 1)。

試験液を分液漏斗に移した。試験容器は酢酸エチル 20 mL で洗浄し、洗浄液は分液漏斗に移した。振盪した後、各液相を分離し LSC でそれぞれ分析した。各相を 2 連で一定分量 0.5~1.0 mL をカウントした。その後、有機溶媒相を約  $40^\circ\text{C}$  で蒸発乾固させ、アセトニトリル 1 mL で再溶解した。そのうち一定分量 50  $\mu\text{L}$  を 2 連で LSC による測定を行い、精密な回収率を求めた。濃縮した試料を TLC および HPLC 分析に供した。

試験結果: 緩衝液での試験では、親化合物 I (エトフェンプロックス) の濃度は経時的に減少し、15 日間の照射後における残留濃度は 9.4%であった。1 次反応の反応速度式を用いて、半減期は 4.7 日と算出された。この数値は、北緯  $35^\circ$  (東京)の春期の太陽光の日数に換

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

算すると 10.4 日に相当する。

暗所対象区の親化合物 I (エトフェンプロックス)の濃度は安定していた。(表 2 及び表 3 参照)

自然水(池水)での試験では、親化合物 I (エトフェンプロックス)の濃度は安定的に減少し、15 日間の照射後における残留濃度は 32.5%であった。1 次反応の反応速度を用いて、半減期は 7.9 日と算出された。この数値は、北緯 35° (東京)の春期の太陽光の日数に換算すると 17.5 日に相当する。最大 7 種の光分解物が検出された

暗所対象区の親化合物 I (エトフェンプロックス)の濃度は安定していた。(表 4 及び表 5 参照)

自然水での光分解は緩衝液より緩徐であった。この理由として考えられるのは、親化合物 I (エトフェンプロックス)の水溶解度が非常に低いことおよび被験物質がガラス壁へ吸着した可能性があり、その結果として溶液中の分子が減少した、さらに紫外線の一部が池水中の溶存有機性物質によって吸収されたことなどである。

親化合物 I (エトフェンプロックス)の量子収量は、pH7 緩衝液で  $\Phi=0.248$ 、自然水(池水)で  $\Phi=0.147$  が得られた。これらの数値および GCSOLAR コンピュータプログラムを用いて、各種の緯度および四季における純水での環境中の半減期を算出した。結果を以下の換算半減期一覧に示す。

換算半減期一覧

水表面での 理論的半減期(日)*	春	夏	秋	冬
北緯 30°	9.2	7.8	13.8	21.8
北緯 40°	11.2	8.4	20.6	44.2
北緯 50°	14.9	9.5	38.4	131.0

\*以下の条件で算出:

表面近くの純水、経度 10°、地球タイプの大気、典型的な天文暦及びオゾン濃度

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 1 採取試料の放射能分布

日数	水系	試料 番号	pH 値	照射後試料 (22.4mL)の放射 能分布(%)*	後処理に掛け た溶液量(mL)	後処理後溶液 の溶液中放射 能分布(%)			
0.0	緩衝液	B1	7.1	82.3	19.5	60.5	**		
		B2	7.1	74.6	19.5	83.1			
1.0		B11	7.1	52.2	20.0	101.3			
		B12	7.1	66.0	20.0	93.7			
1.8		B15	7.1	55.6	20.0	94.5			
		B16	7.1	58.9	20.0	103.0			
4.6		B5	7.1	33.0	20.0	102.6			
		B6	7.1	24.6	20.0	75.2			
11.7		B7	7.1	52.3	19.5	76.8			
		B8	7.1	43.8	19.5	79.4			
15.0		B17	7.1	40.9	20.0	101.8			
		B18	7.1	49.0	20.0	100.3			
0.0		自然水 (池)	P1	8.1	63.2	19.5		84.7	**
			P2	8.1	66.9	19.5		45.2	
1.0			P12	8.1	35.0	20.0		100.7	
			P13	8.1	18.1	20.0		104.5	
1.8			P18	8.2	61.0	20.0		100.9	
			P19	8.1	51.7	20.0		108.2	
4.6	P16		8.2	43.9	20.0	100.6			
	P17		8.1	52.2	20.0	88.1			
6.7	P14		8.2	26.5	20.0	43.5	**		
	P15		8.2	26.8	20.0	93.2			
13.5	P8		8.2	41.2	20.0	77.9			
	P9		8.2	39.5	20.0	79.1			
15.0	P20		8.1	51.8	20.0	103.7			
	P21		8.1	53.4	20.0	74.1	**		
1.8	暗所 対象区 (緩衝液)		C2	7.1	—	20.0	104.3	**	
4.6			C4	7.1	9.3	20.0	109.6		
6.7			C12	7.1	12.0	20.0	85.6		
11.7			C6	7.1	38.0	20.0	71.2	**	
15		C8	7.1	24.2	20.0	40.4	***		
1.8	暗所 対象区 (自然水)	C1	8.1	—	20.0	111.8			
4.6		C3	8.2	28.1	20.0	102.1			
6.7		C11	8.2	29.0	20.0	102.9			
11.7		C5	8.2	38.4	20.0	59.1	**		
15		C7	8.2	38.3	20.0	33.5	***		

注:  $^{14}\text{CO}_2$ は試料から捕集されなかった

— : 測定していない

\* : 低い回収率は試験化合物のガラス表面の吸着で説明でき、そのために後処理に際して酢酸エチルを用いて流し込んでいる

\*\* : 回収率が75%以下の試料は半減期の計算には用いなかった

\*\*\*: 特に目立った分解はこれらの試料から見出されていない

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 2 pH7 緩衝液試料中の放射能分布(全放射エネルギーへの割合(%))

		採取日(日)					
		Suntest <sup>1</sup>	0.0	1.0	1.8	4.6	11.7
日光換算 <sup>2</sup>		0.0	2.2	4.0	10.2	25.9	33.2
親化合物 I (エトフェンプ ロックス)	A	100.0	83.2	75.4	39.7	17.2	9.5
	B	100.0	79.0	77.7	56.6	22.9	9.3
	平均	100.0	81.1	76.5	48.2	20.1	9.4

注: <sup>14</sup>C<sub>2</sub> は試料から捕集されなかった

- 1 : Suntest による照射時間
- 2 : 春の東京(北緯 35° )の日照に換算した日数

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表3 pH7 緩衝液試料中の放射能濃度(ppb(μg/L))

		採取日(日)						
		Suntest <sup>1</sup>	0.0	1.0	1.8	4.6	11.7	15.0
		日光換算 <sup>2</sup>	0.0	2.2	4.0	10.2	25.9	33.2
親化合物 I (エトフェンプ ロックス)	A		5.24	4.39	3.95	2.08	0.91	0.50
	B		5.24	4.16	4.07	2.97	1.21	0.50
	平均		5.24	4.27	4.01	2.52	1.06	0.50

注: <sup>14</sup>C<sup>14</sup>O<sub>2</sub> は試料から捕集されなかった

1 : Suntest による照射時間

2 : 春の東京(北緯 35° )の日照に換算した日数

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 4 自然水(池水)試料中の放射能分布(全放射能量への割合(%))

		採取日(日)						
		Suntest <sup>1</sup>	0.0	1.0	1.8	4.6	6.7	13.5
	日光換算 <sup>2</sup>	0.0	2.2	4.0	10.2	14.8	29.8	33.2
親化合物 I	A	100.0	89.1	80.9	61.6	35.7	36.4	29.6
(エトフェンプ	B	100.0	86.7	83.2	67.6	51.1	40.9	35.3
ロックス)	平均	100.0	87.9	82.0	64.6	43.4	38.6	32.5

注: <sup>14</sup>C<sup>14</sup>O<sub>2</sub>は試料から捕集されなかった

- 1 : Suntest による照射時間
- 2 : 春の東京(北緯 35° )の日照に換算した日数

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 5 自然水(池水)試料中の放射能濃度(ppb(μg/L))

		採取日(日)						
		Suntest <sup>1</sup>	0.0	1.0	1.8	4.6	6.7	13.5
	日光換算 <sup>2</sup>	0.0	2.2	4.0	10.2	14.8	29.8	33.2
親化合物 I (エトフェンプ ロックス)	A	5.24	4.70	4.26	3.22	1.88	1.92	1.57
	B	5.24	4.57	4.38	3.54	2.69	2.15	1.87
	平均	5.24	4.64	4.32	3.38	2.29	2.04	1.72

注: <sup>14</sup>C<sup>14</sup>O<sub>2</sub> は試料から捕集されなかった

1 : Suntest による照射時間

2 : 春の東京(北緯 35° )の日照に換算した日数

分析対象とした想定代謝物と構造式を以下に示す。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

2) エトフェンプロックスの加水分解性試験(緩衝液中)

(資料物化 13)

試験機関:(株)化学分析コンサルタント

報告書作成年:1992 年

供試化合物:

一般名: エトフェンプロックス

化学名: 2-(4-エトキシフェニル)-2-メチルプロピル 3-フェノキシベンジル エーテル

純度:

供試水溶液:

以下の 3 種の緩衝液を使用した。調製した緩衝液は 5 分間窒素ガスを吹き込んで酸素を排除した後、オートクレーブで滅菌した。

pH5: 0.1N NaOH 水溶液 23.85 mL と 0.1M フタル酸水素カリウム水溶液 50 mL を混合し、水を加えて 100 mL とした。

pH7: 0.1N NaOH 水溶液 29.63 mL と 0.1M リン酸一カリウム水溶液 50 mL を混合し、水を加えて 100 mL とした。

pH9: 0.1N NaOH 水溶液 21.30 mL と 0.1M ホウ酸/0.1M KCl 50 mL を混合し、水を加えて 100 mL とした。

試験方法:

試験溶液の調製および保管方法:

エトフェンプロックス 100 mg をアセトニトリルに溶解し、100 mL に定溶して 1000 mg/L 標準溶液とした。標準溶液 2 mL(予備試験では 2.5 mL)を分取して予め滅菌済みの 3 種類の緩衝液 500 mL に添加後、軽く攪拌して試験溶液とした。(尚、被験物質の水溶解度が低いため、試験溶液調製時にはアセトニトリルを体積比で 1%を超えない量用いた)

a) 予備試験

各 pH の滅菌緩衝液で調製したエトフェンプロックス試験溶液を遮光下で  $50 \pm 1^\circ\text{C}$  の恒温器内暗所に静置した。0 時間と 5 日後、のサンプルを採取し、試験溶液中の親化合物 I (エトフェンプロックス) の濃度測定を行った。

b) 本試験

各 pH の滅菌緩衝液で調製したエトフェンプロックス試験溶液を遮光下で  $25 \pm 1^\circ\text{C}$  の恒温器内暗所に静置した。0 時間、30 日、62 日、90 日、120 日、181 日が経過したところでサンプルを採取し、試験溶液中の親化合物 I (エトフェンプロックス) の濃度測定を行った。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

c) 分析方法

供試化合物の定量に用いた HPLC の分析条件は以下のとおりである。

機器： 島津製作所製 LC-10AD  
島津製作所製 SPD-10AV  
充填剤： Senshu Pak ODS-1201 P  
カラム： 4.6 mm φ × 200 mm ステンレス製  
カラム温度： 50°C  
移動相： メタノール/水(8/2 v/v)  
流量： 0.9 mL/min  
測定波長： 227 nm

試験結果：

予備試験と本試験の分析結果を表 1 と表 2 に示し、それらの結果から推定された半減期を表 4 と表 5 に示す。本試験の推定半減期は 1 年以上となった。従って親化合物 I (エトフェンプロックス) は本条件下では安定と考えられた。

表 1 予備試験分析結果

経過時間	試験結果(μg/mL)					
	pH5.0 緩衝液		pH7.0 緩衝液		pH9.0 緩衝液	
	実測値	平均値	実測値	平均値	実測値	平均値
直後	4.6	4.6	4.4	4.2	4.8	4.7
	4.7		4.1		4.6	
5 日後	4.4	4.5	3.3	3.3	4.6	4.6
	4.6		3.3		4.7	

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 2 本試験分析結果

経過時間	試験結果(μg/mL)					
	pH5.0 緩衝液		pH7.0 緩衝液		pH9.0 緩衝液	
	実測値	平均値	実測値	平均値	実測値	平均値
直後	4.2	4.2	3.9	3.9	4.0	4.0
	4.2		3.9		4.1	
30 日後	4.1	4.1	3.8	3.8	3.7	3.8
	4.1		3.7		3.8	
62 日後	4.1	4.0	3.7	3.6	3.6	3.7
	3.9		3.6		3.8	
90 日後	3.9	4.0	3.7	3.7	3.8	3.8
	4.1		3.7		3.8	
120 日後	3.7	3.8	3.7	3.6	3.8	3.8
	3.9		3.5		3.8	
181 日後	3.7	3.7	3.2	3.4	3.8	3.8
	3.7		3.5		3.9	

表 3 予備試験推定半減期

試験用液	推定半減期
pH5.0 緩衝液	1 年以上
pH7.0 緩衝液	1 年以内
pH9.0 緩衝液	1 年以上

表 4 本試験推定半減期

試験用液	推定半減期
pH5.0 緩衝液	1 年以上
pH7.0 緩衝液	1 年以上
pH9.0 緩衝液	1 年以上

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

6. その他の試験

1) エトフェンプロックスの光分解試験

(資料 XV-9)

試験機関: 三井化学株式会社

報告書作成年: 1985 年

供試標識化合物: 標識位置の異なる下記 2 種の化合物を用いた(土壌の代謝分解試験に同じ)。

1) エトフェンプロックス

化学構造

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

2) エトフェンプロックス

化学構造

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

試験方法:

(1)エトフェンブロックスの光分解性と分解生成物の消長

両標識化合物のそれぞれ 200 µg をアセトン溶液で別々にガラス製シャーレの表面に塗布し、植物栽培用のキャビネット内に以下の条件下で放置し、1、3、7、14 日後にメタノール抽出して、放射能の測定及び分解生成物の同定を TLC による標品との 2 次元クロマトグラフィーにより行った。

光量: 30000 ルクス

温度: 25~30°C

湿度: 65%

光条件: 13 時間-明、11 時間-暗

(2)キセノンランプ照射による分解生成物の検討

両標識化合物のそれぞれ 1 mg をアセトン溶液で別々に石英フラスコの底部に薄膜状に塗布し、キセノンランプを照射(光量:550 µw/cm<sup>2</sup>)した。各分解生成物は高速液体クロマトグラフィー及び TLC で精製後、TLC による標品とのクロマトグラフィー及びマスマスペクトロメトリーにより同定した。

試験結果:

- (1) 植物栽培用のキャビネット内での親化合物 I (エトフェンブロック)の分解は比較的速やかであり、両標識化合物ともその半減期は約 4 日で、11 日後には約 10%に減少した。7 日後における分解生成物の主要なものは化合物 IV で、処理放射能の約 25%であった。この他少量の分解生成物数種が認められた。結果を表 1 にまとめた。
- (2) キセノンランプ照射により生成した分解物は                      であった。結果を表 2 にまとめた。

上記の二つの試験により同定された分解生成物のうち主要なものは、下記の通りである。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

表 1.  $^{14}\text{C}$  放射能の割合(人工光 1、3、7、14 日間照射)

	$^{14}\text{C}$ 処理放射能に対する割合(%)							
	1 日		3 日		7 日		14 日	
親化合物 I (エトフェンブロック)	78.8	81.3	53.5	51.2	16.8	18.3	1.9	5.7
1)	エトフェンブックス、2)				エトフェンブックス			

表 2. キセノンランプによる分解物の残存量

	$^{14}\text{C}$ 処理放射能に対する割合(%)			
	3 日		7 日	
親化合物 I (エトフェンブロック)	53.5	51.2	16.8	18.3
1)	エトフェンブックス、2)		エトフェンブックス	

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

光分解における推定代謝分解経路



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。


本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。


本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

## 7. 魚介類における濃縮試験

### 1) エトフェンプロックスのブルーギルを用いた魚類濃縮性試験

(資料 G-I-4)

試験機関:RCC

[GLP 対応]

報告書作成年:2002 年

供試標識化合物:

エトフェンプロックス

化学構造:

化学名:

比放射能:

放射化学的純度:

供試生物: ブルーギル(*Lepomis macrochirus*), 221 匹、体重:  $1.6 \pm 2.1$  g

試験方法: 1 週間以上順化したブルーギルを、75 L のガラス製水槽内にて、一定の被験物質濃度に調製された試験液に対し流水条件にて 60 日間の暴露を行った。暴露期間終了後、引き続き被験物質を含まない希釈水中での 62 日間の排泄期間を設けた。

試験水の設定濃度は、0.0002 mg/L(低濃度区)及び 0.001 mg/L(高濃度区)とし、試験液の調製は、被験物質をジメチルホルムアミド(DMF)に完全に溶解させた高濃度試験原液を、試験水槽につながる混合チャンバー内にて希釈液と混合することによって行った。

暴露開始後 0 日、4 日、10 日、19 日、40 日、49 日及び 60 日、排泄開始後 2 日、5 日、15 日、35 日、62 日に魚体及び試験水を採取し、放射能を分析し被験物質濃度を求めた。試験水中の平均被験物質濃度と魚体中の被験物質の定常状態における被験物質濃度から、生物濃縮係数(BCF<sub>ss</sub>)を算出した。

試験結果: エトフェンプロックスの魚体濃縮試験の結果を次頁の表に示した。

エトフェンプロックスの生物濃縮の平均(BCF<sub>ss</sub>)は魚体全体において 4108 であった。定常状態には 19 日後に達し、排泄半減期は約 16 日であり、エトフェンプロックスの魚体への取り込みは可逆性であることが示された。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

魚体濃縮試験の結果(魚全体)

項目	0.0002 mg/L(低濃度区)	0.001 mg/L(高濃度区)
暴露期間中の試験水中での平均被験物質濃度 (µg 親化合物等量/kg)	0.16	0.85
魚体中における被験物質濃度の定常状態への到達期間(日)	19	19
魚体中における定常状態での被験物質濃度 (µg 親化合物等量/kg)	633	3621
生物濃縮係数(BCF <sub>ss</sub> )	3956	4260
平均生物濃縮係数(BCF <sub>ss</sub> )	4108	
排泄期間中の半減期(T <sub>0.5</sub> )	16.0	15.9

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

2) エトフェンプロックスのコイを用いた魚類濃縮性試験

(資料 XV-17)

試験機関:(財)化学品検査協会

報告書作成年:1984年

供試化合物: エトフェンプロックス

検体の純度:

供試生物: コイ(*Cyprinus carpio*), 20匹、平均体重: 24.3g

試験方法: 14日間順化したコイを100Lのガラス製水槽内にて、一定の被験物質濃度に調製された試験液に対し流水条件にて8週間の暴露を行った。

試験水の設定濃度は、5 µg/L(第1濃度区)及び0.5 µg/L(第2濃度区)とした。分散助剤としてHCO-40を被験物質の10倍量加えて1000 mg/Lの分散液を調製し、更に脱塩水で希釈して1 mg/L及び0.1 mg/Lの原液を調製した。原液4 mL/分に希釈水800 mL/分の流水(1158 L/日)を流して設定濃度とした。飼育開始後、2、4、6及び8週目に1回当たり各濃度について2尾(ただし、4週目第1濃度区においては別に1尾追加)魚体及び試験水分析試料を採取し、被験物質濃度を分析した。

試験水中の平均被験物質濃度と魚体中の被験物質濃度から、生物濃縮係数(BCFss)を算出した。

試験結果: エトフェンプロックスの魚体濃縮試験の結果は以下の通りである。

濃縮係数 第1濃度区: 245~875倍  
第2濃度区: 76~440倍

魚体中濃度と水槽中濃度と濃縮係数

週	項目/設定濃度	5 µg/L(第1濃度区)			0.5 µg/L(第2濃度区)	
2W	魚体中濃度(ppb)	2150	1550		31.3	26.6
	平均被験物質濃度(ppb)	3.82			0.348	
	濃縮係数	563	405		90.0	76.4
4W	魚体中濃度(ppb)	1350	3340	2020	156	101
	平均被験物質濃度(ppb)	3.82			0.378	
	濃縮係数	354	875	529	413	267
6W	魚体中濃度(ppb)	934	972		182	153
	平均被験物質濃度(ppb)	3.81			0.414	
	濃縮係数	245	255		440	369
8W	魚体中濃度(ppb)	1410	1660		179	109
	平均被験物質濃度(ppb)	3.94			0.426	
	濃縮係数	357	421		421	257

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

## 親化合物 I (エトフェンプロックス)の代謝分解について

親化合物 I (エトフェンプロックス)の哺乳動物、植物、土壤中及び光照射下における代謝、分解の要約は以下の通りであり、結果の概要を 754 頁、代謝経路を 755 頁に示した。

### 【動物代謝試験】

#### (1)吸収・排泄(ラット、イヌ:資料 XV-1、XV-2)

ラット及びイヌにおける吸収、排泄試験の結果から、親化合物 I (エトフェンプロックス)は短時間に排泄されることが明らかになった。すなわち、30 mg/kg(混餌した場合の 300ppm に相当)をラットに単回経口投与した場合、雌雄とも 48 時間以内に全投与放射能の 80%以上が糞及び尿に排泄された。この傾向は影響レベルである 180 mg/kg(混餌した場合の 1800ppm に相当)の場合も同様で、雌雄とも 48 時間以内に 70%以上が排泄された。イヌにおいては、30 mg/kg を単回投与したとき、雌雄とも 24 時間以内に投与放射能の 80%以上が糞及び尿に排泄された。投与放射能の総回収率はすべての投与群において、ラット 94%以上、イヌ 85%以上で、親化合物 I (エトフェンプロックス)の排泄は速やかであり、主な排泄経路は糞であった。

#### (2)組織内分布(ラット、イヌ:資料 XV-18、XV-1、XV-2)

臓器・組織中の残留放射能は、ラット 30 mg/kg(実投与用量 33.5 mg/kg)単回投与で 48 時間後に、腸管(24ppm)、脂肪(17ppm)、肝臓(3ppm)、皮膚(3ppm)、精巢上皮(2ppm)、膵臓(2ppm)であったが、他はすべて 1ppm 以下であった。また、30 mg/kg/day の投与量でラット及び妊娠ラットに 7 日間連続投与した場合、最終投与 5 日後の臓器中の残留値は、最大で膵臓中の約 11ppm であったが、これは脂肪組織に由来するものと考えられた。妊娠ラットの 5 日後の乳腺中の濃度は約 32ppm であり、妊娠していないラットの脂肪組織の濃度に近似していた。14 日間連続投与した母ラットの乳汁への放射能の移行は初期に認められたが、時間の経過とともに減少した。ラットの全身オートラジオグラフィーの結果からも本剤が特定の臓器に蓄積する傾向は認められず、脂肪組織に関連する部位に僅かに認められたのみであった。

#### (3)代謝物の解析・定量(ラット、イヌ:資料 XV-1、XV-2)

ラットの糞、胆汁、肝における主要放射能量は、親化合物 I (エトフェンプロックス)、  
であった。尿中では

が確認された。脂肪中放射能の 93%以上が未変化体であり、  
であった。

イヌの糞、胆汁、肝における主要放射能量は、ラットと同様に親化合物 I (エトフェンプロックス)、  
であった。尿中では

が確認された。脂肪中放射能の大部分が未変化体で

あった。

親化合物 I (エトフェンプロックス)は、

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

②親化合物 I (エトフェンプロックス) 投与試験(資料 XV-18)

エトフェンプロックス 30 mg/kg を雄ラットに単回経口投与すると、放射能は主として糞経路で排泄され、投与放射エネルギーの 64% 以上が糞尿経路で投与後 48 時間以内に排泄された。臓器及び組織では、消化管、脂肪、肝臓、皮膚、精巣上体、屠殺体、脾臓において比較的高い放射エネルギーが検出された。

①及び②の試験結果から、

⑤エトフェンプロックスを用いた動物代謝試験(資料 XV-24)

微量の代謝物を検出・同定するため、ラットにおける代謝試験(資料 XV-1)での高用量群の2倍用量(360mg/kg)のエトフェンプロックスを投与した。尿及び各組織中には、複数の代謝物が検出されたが、そのプロファイルは大きく異なっており、尿>血漿>肝臓>脂肪の順でより高極性の代謝物が含有される傾向であった。検出された代謝物のうち、及び未変化の親化合物 I (エトフェンプロックス)の存在が確認された。

親化合物 I (エトフェンプロックス)は肝臓(98.3 mg eq./kg)、脂肪(71.5 mg eq./kg)及び血漿(3.8 mg eq./L)で検出された。また、何れの試料においてもは検出されず、エトフェンプロックスのラットにおける代謝反応において

【植物代謝試験】

(1)水稲(温室)(資料 XV-20)

450g a.i./ha(通常施用量)及び2000 g a.i./ha(通常施用の4.5倍量)を土壌処理した水稲植物体及び有効成分として200 g a.i./ha(通常施用量)及び2000 g a.i./ha(通常施用の10倍量)を水田条件下で1回散布処理した水稲植物体における総残留放射能(TRR)及び残留放射能を分析した。

①土壌処理

450g a.i.処理及び2000 g a.i.処理の全米粒における総残留放射能(TRR)は、各々0.043ppm、0.108ppmであり、玄米からは各々0.044ppm及び0.118ppmの放射エネルギーが検出され、もみ殻からは0.036ppm、0.080ppm検出された。玄米抽出物中の放射エネルギーはTRRの10%未満であり、親化合物 I (エトフェンプロックス)及びは検出されなかった。



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

稲わら中における総残留放射能(TRR)は、450 g a.i.処理及び2000 g a.i.処理で各々0.181ppm、0.623ppmであった。親化合物 I (エトフェンプロックス)は、各々0.081ppm、0.069ppm、TRR は44.3%、11.1%であった。

## ②散布処理

200 g a.i.処理及び2000 g a.i.処理の全米粒における総残留放射能(TRR)は、各々1.810ppm、22.675ppmであり、玄米からは各々0.075ppm及び1.118ppmの放射エネルギーが検出され、もみ殻からは5.900ppm、54.716ppm検出された。玄米の抽出物中の親化合物 I (エトフェンプロックス)の放射エネルギーは、各々0.040ppm、0.854ppm、TRR は53.4%、76.4%であった。

稲わら中における総残留放射能(TRR)は、200 g a.i.処理及び2000 g a.i.処理で各々4.431ppm、40.481ppmであった。主要代謝物は親化合物 I (エトフェンプロックス)2.167ppm、22.706ppm、であった。

## (2)ぶどう(野外圃場)(資料 XV-13)

0.3 kg a.i./ha(通常施用量)及び3.0 kg a.i./ha(通常施用の10倍量)を1回散布処理した場合に、総残留放射能は、処理後28日で各々2.664及び28.186ppmを示し、処理後14日では各々5.436ppm及び58.325ppmであった。

処理28日後のぶどう果実全体では、親化合物 I (エトフェンプロックス)が0.3 kg a.i./ha及び3.0 kg a.i./ha散布区でTRRとして、84.39%及び69.30%残存していた

## (3)なたね(野外圃場)(資料 XV-15)

120 g a.i./ha(通常散布処理量)及び1200 g a.i./ha(通常処理の10倍量)を1回散布した場合に、種子では、総残留放射能(TRR)は各々0.09%(0.032ppm)及び0.05%(0.253ppm)を示し、葉では各々3.2%(0.111ppm)及び7.5%(3.785ppm)が検出された。

処理56日後に収穫した種子全体の抽出物中から、120 g a.i./ha及び1200 g a.i./ha処理で、親化合物 I (エトフェンプロックス)がTRRの各々62.1%及び56.5%が検出された。

## (4)レタス(野外圃場)(資料 XV-21)

180 g a.i./ha(通常散布処理量)及び1800 g a.i./ha(通常処理の10倍量)を1回散布した場合に、総残留放射能(TRR)は葉の洗浄液(水、水/アセトニトリル)で各々約45%(1.086ppm)及び約63%(12.089ppm)、葉の抽出液で約54%(1.301ppm)及び36%(6.880ppm)を示した。

処理8日後に収穫した葉全体の試料中から、180 g a.i./ha及び1800 g a.i./ha処理で、親化合物 I (エトフェンプロックス)がTRRの各々88.22%及び90.06%検出された。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

### 【土壌代謝試験、環境中運命試験】

#### (1)好氣的湛水土壌(資料 XV-6)

暗所では分解は遅く、10～12 週間後でも半減期をむかえなかった。人工気象室内の植物栽培条件下(明所)では速やかに分解し、半減期は2～3 週間であった。

#### (2)好氣的土壌(資料 XV-7)

速やかに分解し、半減期は6～9 日であった。炭酸ガスの発生が認められ、半減期付近では13～20%の生成であった。滅菌条件では顕著な分解は認められず、土壌中での分解には土壌微生物の関与が示唆された。

#### (3)土壌移行試験、土壌吸着試験(資料 XV-8、XV-16)

移行試験と土壌吸着試験の結果から、親化合物 I (エトフェンプロックス)は土壌に強く吸着されて水では溶脱されず、その結果、土壌中での下方への移動性がほとんどなく、土壌代謝分解物も同様に下方への移動性がないが明らかとなった。

#### (4)水中光分解、加水分解性試験、薄膜光分解

緩衝液、自然水中における光照射条件で親化合物 I (エトフェンプロックス)は速やかに分解し、その半減期は北緯35度の春期の太陽光に換算するとそれぞれ10.4日、17.5日であった。

緩衝液中での加水分解性試験では、顕著な分解は認められず、推定半減期は1年以上であった。ガラス表面上の薄膜条件で人工気象室の植物栽培条件では、親化合物 I (エトフェンプロックス)は速やかに分解して半減期は約4日であった。

### 【まとめ】

親化合物 I (エトフェンプロックス)の哺乳動物での排泄は速やかで、特定の臓器に蓄積する傾向は認められなかった。主要な排泄経路は糞で、

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任は三井化学アグロ株式会社にある。

土壌処理した水稲代謝試験で、可食部(全米粒)及び稲わらの残留放射エネルギーが僅かであったことから、親化合物 I (エトフェンプロックス)の植物体中での移行性はほとんどないことが判明した。散布処理した場合には、代謝物組成及び生成量に植物による顕著な違いは少なく、

土壌中において、好氣的湛水条件では暗所で分解が遅く、植物栽培可能な光条件では速やかに分解し、半減期は 2~3 週間であった。好氣的土壌条件では、速やかに分解を受けて半減期は 6~9 日であった。土壌中での分解には、光及び微生物の関与が考えられた。

移行試験と土壌吸着試験の結果から、親化合物 I (エトフェンプロックス)は土壌に強く吸着されて水では溶脱されず、その結果、土壌中での下方への移動性がほとんどなく、土壌代謝分解物も同様に下方への移動性がないことが明らかとなった。緩衝液、自然水中における光照射条件で親化合物 I (エトフェンプロックス)は速やかに分解し、その半減期は北緯 35 度の春期の太陽光に換算するとそれぞれ 10.4 日、17.5 日であった。

ガラス表面上の薄膜条件で人工気象室の植物栽培条件では、親化合物 I (エトフェンプロックス)は速やかに分解して半減期は約 4 日であった。

以上の結果から、親化合物 I (エトフェンプロックス)及びその代謝分解物は植物の可食部内部への移行が殆どなく、動物体内からの排泄も速いことから、人畜に影響を及ぼす可能性は小さく、かつ自然環境中に長期間残留する可能性も小さいものと判断する。

代謝・分解物			I																		
動物	ラット	30mg/kg 単回 投与	♂	糞(0~3日間) 尿(0~1日間) 肝腎 胃と内容物 血液(5日間)	6.6	○															
			♀	糞(0~3日間) 尿(0~1日間) 肝腎 胃と内容物 血液(5日間)	14.0	○															
		180mg/kg 単回 投与	♂	糞(0~3日間) 尿(0~1日間) 肝腎 胃と内容物 血液(5日間)	22.6																
			♀	糞(0~3日間) 尿(0~1日間) 肝腎 胃と内容物 血液(5日間)	29.0																
	イヌ	30mg/kg 単回 投与	♂	糞(0~1日間) 尿(0~1日間) 肝(2~4時間) 血液	48.5	○															
			♀	糞(0~1日間) 尿(0~1日間) 肝(2~4時間) 血液	59.0	○															
	ラット	30mg/kg 単回投与	♂	糞(24-48時間)	11.5																
	植物	水稻 <sup>8)</sup> (14日後)	処理葉		25.9																
			非処理部	茎葉部 根部 種子部																	
		インゲン苗 <sup>8)</sup> (21日後)	処理葉		47.8																
非処理部			茎葉部 根部																		
ぶどう (14日後)		処理葉																			
		非処理部	房合計	86.8																	
なたね (56日後)		処理葉		7.9																	
		非処理部	種子	62.1																	
水稻 <sup>8)</sup>		散布処理																			
		非最終収穫時	全粒洗浄液		59.6																
	玄米		53.4																		
	もみ殻		58.1																		
ワラ			48.9																		
レタス	処理葉		88.22																		
土壌	千葉 土壌	畑条件(7日後) <sup>9)</sup>		40.2																	
水中 光分 解	緩衝液(pH 7、15日後)			9.4																	
	自然水(池水、15日後)			35.2																	
光	薄膜・人工光照射(7日後)			17.6																	

数字は処理放射能に対する検出放射能の百分率を示す。  
 ○印は検出されているが、処理量に対する割合が明らかでないか、値が小さいことを示す。  
 2)連続投与試験より得られた試料から検出されている。  
 4)他の土壌から検出されている。 5)動物は5日間の値を示す。  
 7)8週間後の値を示す。  
 エトフェンプロックス及び エトフェンプロックスの値の平均の値を示す。

試験の種類	エトフェンプロックスの動植物、土壌等における代謝分解
代謝・分解 の経路	
(A) 動物体内 (No.XV-1) (No.XV-2) (No.XV-3) (No.XV-12) (No.XV-18) (No.XV-19) (No.XV-22) (No.XV-23) (No.XV-24)	
(P) 植物体内 (No.XV-4) (No.XV-5) (No.XV-13) (No.XV-15) (No.XV-20) (No.XV-21)	
(S) 土壌中 (No.XV-7)	
(hν) 光 (No.XV-9)	