

(2) レタスにおける代謝試験

(資料 61)

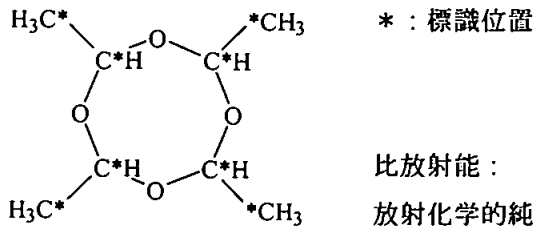
試験機関：

[GLP 対応]

報告書作成年：1996 年

供試標識化合物：

炭素原子を一様に標識した  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒド



標識位置選定理由：

供試植物：レタス（品種：lechuga）

本種は販売用の代表種である。

レタス種子を箱〔幅 61.0 cm×長さ 106.7 cm×高さ 68.6 cm、プラスチック内張り〕当たり 2 列に播種し、播種後は灌水した。発芽開始約 1 ヶ月後に、1 箱当たり 6 植物になるように間引いた。間引き 3 日後に薬剤処理を行った。

薬剤処理後の生育期間中に異常症状は認められなかった。

試験方法：

【試験溶液の調製】

処理当日に試験溶液 ( $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒド A.L.F.) は、放射能標識メタアルデヒド、非放射能標識メタアルデヒド及び白試料を混合して 4%液剤を調製した。試験溶液の比放射能は  $\text{dpm}/\mu\text{g}$  であった。対照区は白試料とした。

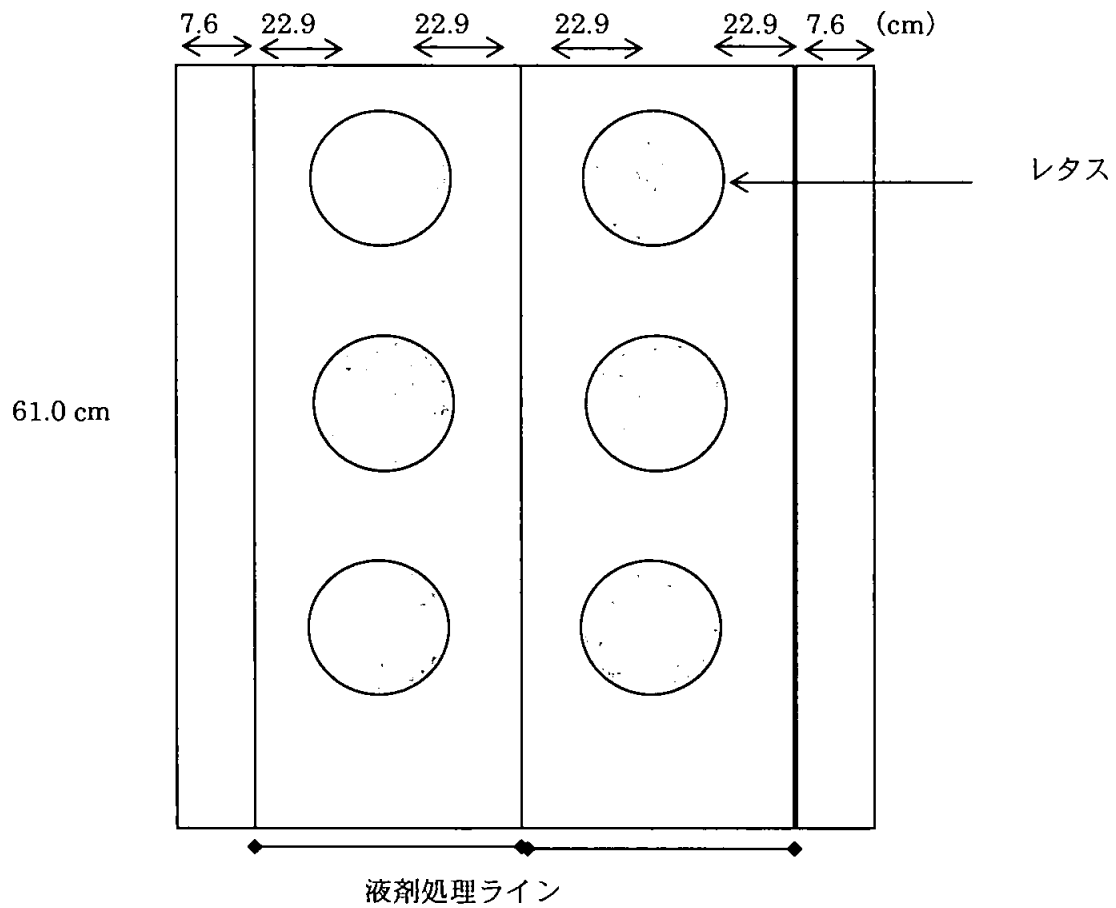
【処理方法】

$^{14}\text{C}$ -メタアルデヒド液剤を

の割合で、植物の列から約 22.9 cm 離して、平行に土壌処理した。1 つのラインは各作物列の外側に、1 つのラインは 2 つの作物列の間に  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドをそれぞれ約 8 g 処理した。(図 1)

対照区も同様に白試料を処理した。

図 1



【レタスの収穫】

薬液処理後 28 日、成熟レタスを収穫し、内葉と外葉に分けた。  
収穫後、重量を測定し凍結保存した。

【土壌試料の採取】

レタス収穫日に、薬液処理ラインをスパーテルを用いて削り取った。  
また、溶液処理ラインの幅 10.2 cm×深さ 10.2 cm の土壌も採取した。  
採取試料は重量を測定し、凍結保存した。

【抽出法】

【試料の調製及び放射能の測定】

採取試料をホモジナイズした後、オキシダイザーで燃焼して $^{14}\text{CO}_2$ を捕集し、液体シンチレーションカウンター（LSC）で総残留放射能（TRR）を測定した。

また、各洗浄液についても放射能を測定した。

【残留放射能の特性】

試料をジクロロメタンでホモジナイズ、抽出、濃縮して逆相高速液体クロマトグラフィー（HPLC）で分析し、残留放射能の特性を調べた。

結果：測定された放射能量を下記に示す。

1. 各試料中の平均残留放射能

試料名	対 照 区		処 理 区	
	dpm/g	ppm	dpm/g	ppm
レタス内葉	633	<0.005	235,336	2.36
レタス外葉	243	<0.005	243,920	2.44
土 壌	200	<0.005	389,391	3.90
処理ライン	92	<0.005	152,492,658	1,527.26

レタスは n=6、土壌及び処理ラインは n=3 の平均値

レタスの内葉と外葉の間では残留放射能濃度に顕著な差は認められなかった。

処理区のレタス、溶液処理ライン及び土壌からの放射能の総回収率は約 %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ロンザジャパン株式会社にある。

## 2. 各試料から溶媒抽出により抽出された放射能の割合

試料名	レタス	土壌	処理ライン
溶媒抽出性	96%	92%	99%
抽出残渣	4%	7%	1%

## 3. ジクロロメタン抽出物中の残留放射能の HPLC による同定

HPLC 分析の結果、3 試料とも抽出性放射能は全て  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドであった。

結論： 本試験の結果から、土壌に処理したメタアルデヒドは、わずかではあるが未変化のまま  
でレタスの葉に移行するものと推察される。

レタスの葉から低濃度のメタアルデヒドが検出されたが、これは室内試験ではメタアル  
デヒド溶液を過剰に処理したためであり、この様に高い残留量が実際圃場で認められる  
とは考えられない。

また、処理放射能に対する総回収率は約 22%であり、処理放射能の約 78%は処理から  
収穫までの 27 日間に土壌から消失したものと推察される。メタアルデヒドの土壌から  
の気化及び好氣的土壌代謝試験のデータから判断して、本試験における未回収の放射能  
の大部分は  $^{14}\text{CO}_2$  として気化したものと推察される。

(3) てんさいにおける代謝試験

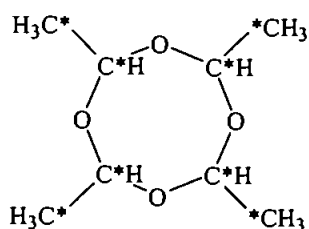
(資料 62)

試験機関：

[GLP 対応]

報告書作成年：1996 年

供試標識化合物：均一に標識した  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒド



\*：標識位置

比放射能：

放射化学的純度：

標識位置選定理由：

供試植物：てんさい（品種：remolacha）

てんさい種子を箱〔幅 61.0 cm×長さ 106.7 cm×高さ 68.6 cm、プラスチック内張り〕当たり 2 列に播種し、播種後に灌水した。発芽開始後約 2 週間に 1 箱当たり 12 植物になるように間引いた。間引き 2 日後に薬剤処理を行った。

薬剤処理後の生育期間中に異常症状は認められなかった。

試験方法：

【試験溶液の調製】

試験溶液 ( $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒド A.L.F.) は処理当日に、放射標識メタアルデヒド、非放射標識メタアルデヒド及び白試料を混合して 4%液剤を調製した。試験溶液の比放射能は dpm/ $\mu\text{g}$  であった。対照溶液は白試料とした。

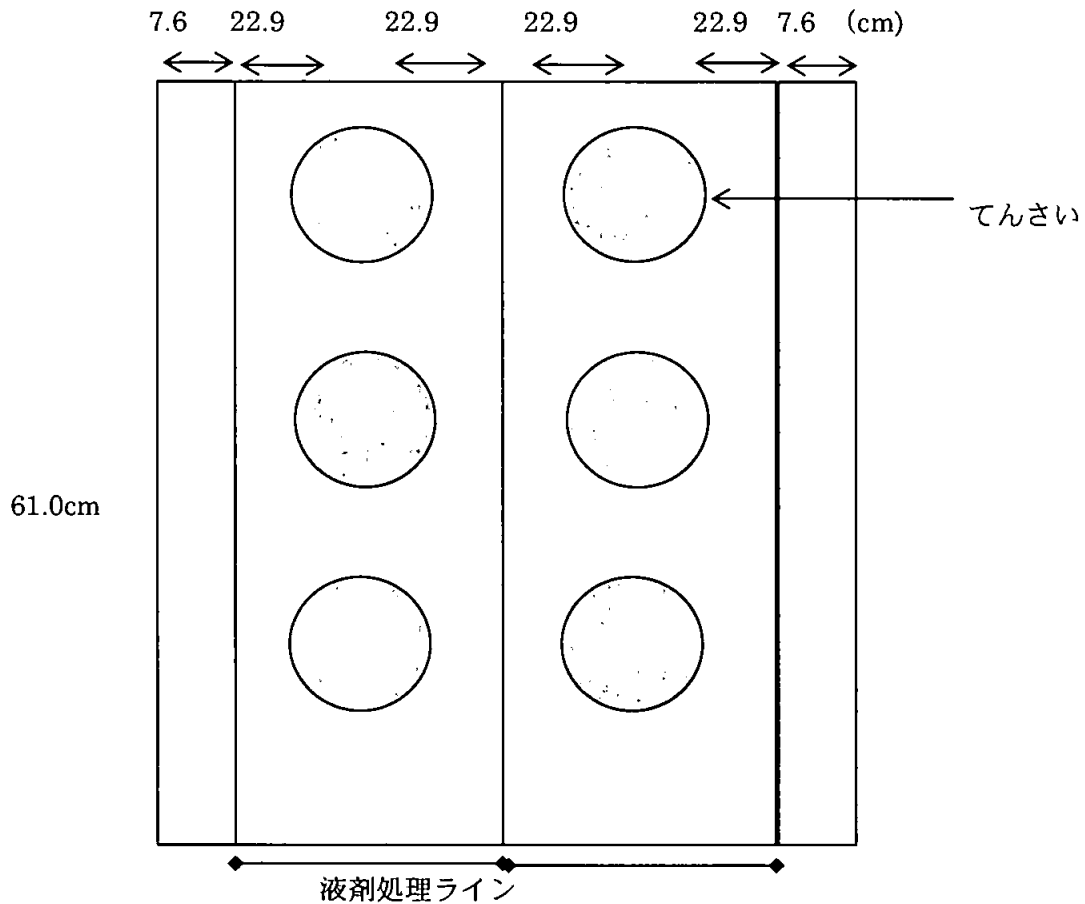
【処理方法】

$^{14}\text{C}$ -メタアルデヒド液剤を

の薬量で、植物の列から約 22.9 cm 離して、平行に土壌処理した。1 つのラインは各作物列の外側に、1 つのラインは 2 つの作物列の間に  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドをそれぞれ約 8 g 処理した。

対照区も同様に白試料を処理した。(図 1)

図 1



【作物の収穫】

薬液処理 48 日目に成熟てんさいを収穫し、葉と根部に分けた。  
収穫後、重量を測定し凍結保存した。

【土壌試料の採取】

作物収穫日に、薬液処理ラインをスパーテルを用いて削り取った。  
また、溶液処理ラインの幅 10.2 cm×深さ 10.2 cm の土壌も採取した。  
採取試料は重量を測定し凍結保存した。

## 【抽出法】

### 【試料の調製及び放射能の測定】

採取試料をホモジナイズした後、サンプルオキシダイザーで燃焼して発生した<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>を捕集し、液体シンチレーションカウンター（LSC）で総残留放射能（TRR）を測定した。また、各洗浄液についても放射能を測定した。

### 【残留放射能の特性検討】

試料をジクロロメタンでホモジナイズして、抽出し、濃縮して逆相高速液体クロマトグラフィー（HPLC）で分析し、残留放射能の特性を調べた。

結果：測定された放射能を下表に示す。

#### 1. 各試料における平均残留放射能

試料名	対 照 区		処 理 区	
	dpm/g	ppm	dpm/g	ppm
てんさいの根部	203	< 0.005	64,041	0.61
てんさいの葉部	606	< 0.006	301,595	2.87
土 壌	21.7	< 0.005	224,356	2.13
処理ライン	135	< 0.005	115,931,765	1,103.46

※てんさいは n=12、土壌及び処理ラインは n=3 の平均値

処理区のとんさい、溶液処理ライン及び土壌中を合わせた放射能の処理放射能に対する総回収率は約 %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ロンザジャパン株式会社にある。

## 2. 試料中の抽出性放射能の割合

試料名	てんさい全体	てんさい根部	土 壌	処理ライン
溶媒抽出性	40%	48%	64%	99%
残 渣	60%	52%	36%	1%

## 3. ジクロロメタン抽出物中の残留放射能の HPLC による同定

HPLC 分析の結果、3 試料とも抽出性放射能の 100%は  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドであった。

結 論： 本試験の結果から、土壌に処理したメタアルデヒドは、わずかではあるが未変化のままてんさいの葉及び根部に移行するものと推察される。

てんさいの葉及び根部から低濃度のメタアルデヒドが検出されたが、これはメタアルデヒド溶液を過剰に処理したためであり、このように高い残留量が実際の圃場で認められるとは考えられない。

また、処理放射能に対する総回収率は約 %であり、処理放射能の約 %が処理から収穫までの 48 日間に土壌から消失したものと推察される。メタアルデヒドの土壌からの気化及び好氣的土壌代謝試験のデータから判断して、本試験における未回収の放射能の大部分は  $^{14}\text{CO}_2$  として気化したものと推察される。



(4) 水稻における代謝試験

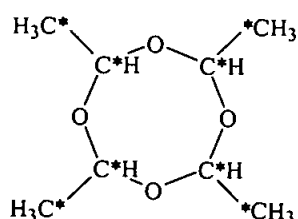
(資料 63)

試験機関：

[GLP 対応]

報告書作成年：1999 年

供試化合物：炭素原子を一様に標識した  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒド



\*：標識位置

比放射能：

放射化学的純度：

標識位置選定理由：

供試植物：ジャポニカ種イネ (*Oryza sativa* L. 品種：コシヒカリ)

イネ種子は、食塩水で選別しベントレート T で消毒した後、催芽させた。催芽させた種子は、市販の滅菌済み水稻用培養土に播き、表面をビニールラップで覆い、約 32℃ のインキュベーター中で約 2.5 日保存した後覆いを取り除いた。発芽した種子は、昼夜温度を約 25 及び 15℃ に設定した野外 RI 温室中で第 3 葉期まで生育させた。

第 3 葉期の幼苗を、佐賀県で採取した水田土壌を充填したワグネルポットに 2 ヶ所に分けて移植し、南九州地方の水稻慣行栽培期の月間平均気温と相対湿度に設定した温室で栽培した。収穫期の約 1 ヶ月前まで湛水約 3 cm を保った後、落水し、以降収穫日まで畑条件に維持した。

試験方法：

【試験溶液の調製】

$^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドの全量 ( ) をアセトニトリルに溶解し、  
の保存溶液を調製した。この 10 mL に非放射性メタアルデヒドのアセ  
トニトリル溶液 を加えて、 ppm の試験溶液を調製した。

【処理方法】

移植 1 週間後に、試験溶液 25 mL を田面水中に添加しガラス棒で緩く攪拌した。  
対照区として無処理のポットを同一温室内で栽培した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

【試料の採取】

施用後 114 日の登熟期に収穫し、根部、茎葉、玄米、籾殻を採取した。いずれの処理区の場合も根部は十分に水洗した後、籾わらはは直接、いずれも細切した。処理区は 5 ポット分の全試料を合わせ 1 点の混成試料とした。

【抽出法】

抽出操作フロー

[ 玄米は抽出溶媒に一夜浸漬した後、ホモジナイズ ]

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

米及び稲わらは、下記の方法に従って抽出した。

#### 稲わら中の代謝物分析フロー

稲わら中の代謝物は、上記の方法で多量の稲わらから抽出した後、下記方法で処理、分析した。

##### 【放射能の測定】

抽出試料は、直接あるいは燃焼後液体シンチレーション計測（LSC）した。

また代謝物等は TLC で分析し、代謝物等はバイオイメージングアナライザーで検出した。

展開後の TLC プレート を 4 画分に分けて掻き取り、溶媒を加えて放射性成分を抽出し、直接 LSC 法で定量した。

結果：結果の概要を表 1~4 にまとめた。

【総残留放射能 (TRR) の体内分布】 (表 1)

処理区の TRR は根部中が最も高く、次いで稲わら (0.65 mg/kg eq)、玄米 (0.59 mg/kg eq) と籾殻の順であった。一方、対照区試料からも有意な  $^{14}\text{C}$  が認められ、そのレベルは玄米が最も高く (0.17 mg/kg eq)、次いで籾殻、根部、稲わら (0.10 mg/kg eq) の順であった。これは  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドの土壌中での分解により生じた  $^{14}\text{CO}_2$  がイネ体に取り込まれ、炭酸同化作用で  $^{14}\text{C}$ -デンプンなどを生じ、それらが主要な TRR になるためであった。

表 1 登熟期稲体中の総残留放射能 (TRR) の分布 (mg/kg eq)

	処理区	対照区
玄米	0.591	0.174
籾殻	0.554	0.146
稲わら	0.649	0.096
根部	0.879	0.099

【玄米中の残留物】

抽出分析 (表 2)

玄米中の TRR の大部分 (92%、0.573 mg/kg eq) は抽出残渣中に存在し、抽出可能な TRR は 0.051 mg/kg eq の極く低レベルであった。

抽出残渣 (表 2)

抽出残渣の  $\alpha$ -アミラーゼ処理で 43%TRR が、またプロテアーゼ処理で 26%TRR が、それぞれ可溶化した。これらの結果は  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドの  $^{14}\text{C}$  がデンプンのほか蛋白質の構成炭素としても取り込まれていることを示していた。なお、抽出液中の残留物は、低レベルであるためそれ以上の特徴付けは行わなかったが、下記の稲わら抽出液中成分と同様、可溶性の正常成分と推測された。

表 2 玄米中の放射性残留物の抽出と抽出残渣中  $^{14}\text{C}$  の特徴付け分析結果

	% TRR	mg/kg eq
抽出液	8	0.051
抽出残渣	92	0.573
緩衝液洗液	3	0.019
デンプン画分	43	0.267
蛋白質画分	26	0.162
最終残渣	22	0.134

【稲わら中の残留物】

抽出分析 (表 3)

稲わら中の TRR の大部分 (83%、0.594 mg/kg eq) は抽出残渣中に存在し、抽出可能な TRR は 0.124 mg/kg eq (17%) と低かった。

抽出残渣 (表 3)

抽出残渣のペクチンとヘミセルロース画分からは  $^{14}\text{C}$ -炭素が検出されなかったが、リグニン及びセルロース画分  $^{14}\text{C}$ -炭素が回収された。この結果から、 $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドの  $^{14}\text{C}$ -炭素が稲わらの正常成分に取り込まれたか、構成成分そのものに代謝されたと考えられた。

表 3 稲わら中の放射性残留物の抽出と抽出残渣中  $^{14}\text{C}$  の特徴付け分析結果

	% TRR	mg/kg eq
抽出液	17	0.124
抽出残渣	83	0.594
ペクチン画分	nd	nd
リグニン画分	6	0.043
ヘミセルロース画分	nd	nd
セルロース画分	13	0.090
最終残渣	49	0.349

抽出液中の放射性成分 (表 4)

稲わら抽出液中の放射性成分 (約 17% TRR) は、下記のように  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドの  $^{14}\text{C}$  が炭素源として正常成分に取り込まれたものであり、未代謝の  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドは検出されなかった (<0.2%TRR、<0.014 ppm)。すなわち、Bond Elut C18 を用いた固相抽出で抽出液を SPE-Aq 画分 (水溶性成分)、SPE-BE 画分 (低極性成分)、SPE-MeOH 画分 (極性成分) に分画した結果、それぞれの画分から 5、4 及び 6%TRR が回収された。SPE-BE 画分からは、溶媒先端の高脂溶性成分と TLC 原点成分を含む 6 種類以上の低極性成分が認められたが、 $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドは検出されなかった。TLC 展開部を 4 分画して定量した各 TLC 画分中の  $^{14}\text{C}$  は 0.4~1.5%TRR と低かった。

また、SPE-MeOH 画分からは TLC 原点部を含む 4 種類以上の極性成分が認められたが、同様の方法で定量した TLC の 4 画分中  $^{14}\text{C}$  も 0.9~3.1%と低かった。SPE-Aq 画分は主に水溶性の中性成分で構成されており (3%TRR)、陽イオン性及び陰イオン性成分も少量含有されていた ( $\leq 1\%$ TRR)。これらの結果から、稲わら抽出液中には 10%TRR を超える成分は存在しないこと、 $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドの  $^{14}\text{C}$  が正常成分と判断される脂溶性からイオン性までの様々な極性の多数の可溶性成分に代謝されていることが示された。

表 4 稲わら抽出液中の放射性成分の分画結果

		% TRR		mg/kg eq	
SPE-BE 画分		4		0.029	
	TLC 画分 1 <sup>a</sup>		1		0.011
	TLC 画分 3		<1		0.003
	TLC 画分 4		1		0.007
SPE-MeOH 画分		6		0.044	
	TLC 画分 1 <sup>a</sup>		1		0.008
	TLC 画分 2		1		0.007
	TLC 画分 4		3		0.023
SPE-Aq 画分		5		0.037	
	陽イオン性成分		1		0.008
	中性成分		3		0.024

a TLC 原点成分

田面水に施用された [<sup>14</sup>C] メタアルデヒドは、その <sup>14</sup>C が炭素源として水稻の正常成分に取り込まれ、デンプン、蛋白質、セルロースなどの正常成分となったものが玄米と稲わら中の TRR を構成する。これは、メタアルデヒドが水田土壌中で <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> に分解され、発生した <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> が炭酸同化作用で植物体中に吸収されること、及びメタアルデヒドの水田土壌中での代謝分解又は吸収後の水稻中での代謝で最終的に生成しうる や が ことに起因するものである。

(5) みかんにおける代謝試験

(資料 64)

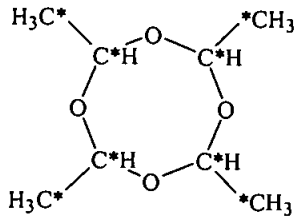
試験機関：

[GLP 対応]

報告書作成年：1999 年

供試標識化合物：

炭素原子を一様に標識した  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒド



\*：標識位置

比放射能：

放射化学的純度：

標識位置選定理由：

供試植物：みかん

みかんは未成熟果実の結実した株を 5 株入手し、日中温度 (AM 6:00~PM 6:00) を 25~32℃、夜間温度 (PM 6:00~AM 6:00) を 18~25℃に設定した温室内で栽培した。試験期間中はポットの土壌表面に適宜、灌水した。

試験方法：

【試験溶液の調製】

実際に圃場で処理する処理濃度及び剤型を想定し、非標識メタアルデヒド 1.49 g、標識メタアルデヒド 0.01 g に白試料 3.5 mL を混和して 30%フロアブルとし、さらに蒸留水 500 mL を加えて攪拌し、1.5 g a.i./500 mL の懸濁液を調製した。

【処理方法】

予めビニール袋で覆った 4 ポットのみかんに、噴霧器を用いて試験溶液を の割合でみかん全体に噴霧した。処理後ビニール袋を外して温室内で栽培した。対照区として無処理のみかん 1 ポットを同一温室内で した。

【試料の採取】

$^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドの処理直後、1 及び 2 ヶ月後に 4 個のポットの処理区から果実 6 個、葉 30 枚を無作為に採取し、その表面を 80%メタノールで洗浄した。果実は果肉と果皮に分別した。また、対照区の試料については処理後 2 ヶ月に採取した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

【抽出法】

。

処理後2ヶ月の果肉の水溶性画分及び抽出残渣については以下の方法に従ってさらに抽出し、分析した。



#### 【放射能測定法】

抽出試料中の放射能は直接あるいは燃焼後、液体シンチレーションカウンターで計測した。また、ジクロロメタン画分は HPLC により代謝物を分離し、放射能を放射能検出器で測定した。

結 果：処理直後の植物中放射能の処理量に対する割合の合計は 0.46% で、処理放射能の大部分は土壤に落下したものと考えられた。植物に残留した放射能の殆どはメタアルデヒドで、果実洗浄液に 6.608 ppm、葉洗浄液に 132.576 ppm と高濃度に検出された。また、処理後 1 ヶ月の植物中放射能の処理量に対する割合の合計は 0.06% で、そのうち果実洗浄液及び葉洗浄液中には放射能は検出されず、又は 0% であったことから、植物に残留した放射能の多くは 1 ヶ月間に消失し、一部は植物に吸収されることが確認された。

処理後 2 ヶ月の試料の植物中総回収放射能に対する割合は、果肉に 71.2%、果皮に 15.8% 及び葉に 12.0% で、可食部である果肉への移行が大きい割合で認められた。果肉中の放射能分布の内訳をみると、メタアルデヒドは検出されず、未同定代謝物が 0.008 ppm、その他が 0.049 ppm、水溶性画分が 0.481 ppm、抽出残渣画分が 0.764 ppm で、抽出残渣画分及び水溶性画分に大きい割合で分布していた。また、果皮及び葉での放射能の分布をみると、果皮でメタアルデヒドが 0.035 ppm 検出されたが、葉部はおおよそ果肉と同様であった。

一方、対照区の試料中にも放射能が認められたことから、 $^{14}\text{C}$  由来の放射能の存在が確認された。また、果肉中の放射能が水溶性画分や抽出残渣画分に多く分布し、糖などの貯蔵を行う果肉への移行性が大きいことから、植物中に残留した放射能には糖やセルロース等の植物成分として存在するものが含まれると推定された。そこで、果肉の水溶性画分及び抽出残渣画分中の  $^{14}\text{C}$ -グルコース及び  $^{14}\text{C}$ -セルロースの割合を調べたところ、水溶性画分中に植物中総回収放射能に対する割合で 8.3% の  $^{14}\text{C}$ -グルコースが存在し（水溶性画分：26.3%）、植物中放射能には植物成分として存在するものが含まれることが確認された。また、水溶性画分にはグルコース以外の糖や有機酸などが存在するため、そうした様々な植物成分として存在するものと推定された。抽出残渣画分についてはセルロース以外にペクチンやヘミセルロース等が存在し、それら様々な成分の妨害で誘導化ができなかったと考えられる。 $^{14}\text{C}$ -セルロースの割合は求められなかったが、水溶性画分同様、様々な植物成分として存在するものと考えられる。

みかんに処理した  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドの大部分は土壤に落下し、植物に残留する量は少量であった。植物に残留した放射能の多くは 1 ヶ月間に消失し、一部は植物に吸収された。植物中に吸収された放射能は  $^{14}\text{C}$  や他の低分子分解物を経て様々な植物成分として存在すると考えられた。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

代謝分解物		ジクロロメタン画分			水溶性画分	残 渣	回収放射能 の合計	処理量に対す る回収率
		メタ アルデヒド	未同定 代謝物	その他				
処理直後	果実洗浄液	6.608ppm (25.4%)	N.D. (N.D.)	0.176ppm (0.7%)	0.057ppm (0.2%)		6.841ppm (26.2%)	0.12%
	葉洗浄液	132.576ppm (67.8%)	N.D. (N.D.)	3.260ppm (1.7%)	3.033ppm (1.6%)		138.87ppm (71.0%)	0.33%
	果 肉	0.010ppm (0.0%)	0.012ppm (0.0%)	0.044ppm (0.1%)	0.059ppm (0.1%)	0.012ppm (0.0%)	0.150ppm (0.4%)	0.00%
	果 皮	0.190ppm (0.2%)	0.049ppm (0.1%)	0.177ppm (0.2%)	0.059ppm (0.1%)	0.083ppm (0.1%)	0.559ppm (0.7%)	0.00%
	葉	0.340ppm (0.2%)	0.422ppm (0.2%)	1.069ppm (0.6%)	0.256ppm (0.1%)	0.853ppm (0.5%)	2.964ppm (1.6%)	0.01% 合計；0.46%
処理後 1ヶ月	果実洗浄液	— —	— —	— —	N.D. (N.D.)		N.D. (N.D.)	N.D.
	葉洗浄液	N.D. (N.D.)	0.027ppm (0.1%)	0.296ppm (1.3%)	0.298ppm (1.3%)		0.622ppm (2.8%)	0.00%
	果 肉	0.040ppm (1.7%)	0.032ppm (1.3%)	0.257ppm (10.6%)	0.534ppm (22.1%)	0.618ppm (25.6%)	1.480ppm (61.4%)	0.03%
	果 皮	0.194ppm (2.6%)	0.024ppm (0.3%)	0.207ppm (2.8%)	0.228ppm (3.1%)	0.386ppm (5.2%)	1.041ppm (14.0%)	0.01%
	葉	N.D. (N.D.)	0.204ppm (0.9%)	0.633ppm (2.8%)	0.455ppm (2.0%)	3.626ppm (16.1%)	4.920ppm (21.9%)	0.01% 合計；0.06%
処理後 2ヶ月	果実洗浄液	— —	— —	— —	N.D. (N.D.)		N.D. (N.D.)	N.D.
	葉洗浄液	N.D. (N.D.)	0.014ppm (0.0%)	0.205ppm (0.5%)	0.165ppm (0.4%)		0.383ppm (0.9%)	0.00%
	果 肉	N.D. (N.D.)	0.008ppm (0.5%)	0.048ppm (2.6%)	0.481ppm (26.3%) *	0.764ppm (41.8%)	1.301ppm (71.2%)	0.07%
	果 皮	0.038ppm (0.8%)	0.006ppm (0.1%)	0.081ppm (1.7%)	0.191ppm (4.1%)	0.427ppm (9.1%)	0.743ppm (15.8%)	0.02%
	葉	N.D. (N.D.)	0.162ppm (0.4%)	0.572ppm (1.4%)	0.461ppm (1.1%)	3.734ppm (9.1%)	4.928ppm (12.0%)	0.01% 合計；0.10%
				ジクロロメタン 画分	水溶性画分	抽出残渣 画分	回収放射能 の合計	
対照区	果 肉			0.000ppm	0.239ppm	0.063ppm	0.302ppm	
	果 皮			0.065ppm	0.226ppm	0.212ppm	0.503ppm	
	葉			0.219ppm	0.191ppm	3.378ppm	3.788ppm	

注) 括弧内は植物中総回収放射能に対する割合

\*：うち 8.3%は <sup>14</sup>C-グルコースと同定された。

N.D.：検出されなかった。

—：実施せず（ジクロロメタン画分が N.D.であった為）

空欄は相当する画分が存在しない部分

### 3 土壌における動態

#### (1) 好氣的土壌における動態試験

(資料 65)

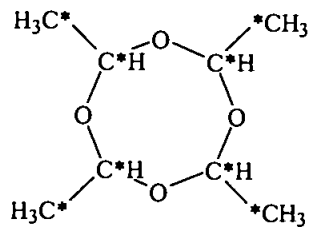
試験機関：

[GLP 対応]

報告書作成年：1990 年

供試標識化合物：

$^{14}\text{C}$  を均一に標識したメタアルデヒドを用いた。



\* :  $^{14}\text{C}$  標識位置

比放射能：

放射化学的純度：

標識位置選定理由：

供試土壌：より採取した 微砂質壤土を用いた。  
その土性は以下の通りである。

粗 砂	54%
微 砂	36%
粘 土	10%
有機炭素含量	0.8%
pH	6.5
塩基置換容量 (meq/100 g)	4.7

試験方法：

【処理、インキュベーション及び試料の採取】

乾土 10 g 相当の土壌を代謝ボトルに入れ、メタノールに溶解した  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドを添加（土壌乾土当たり  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドとして ）し、土壌水分を圃場容水量の 70~75%に調節して好氣的条件とし、25℃の暗黒下でインキュベートした。処理後0、1、3、7、14、30、59、89、120、181、273 及び 365 日目に土壌を採取した。また、この間にエチレングリコール及び 1N KOH とラップを用い揮発性代謝物を捕集すると共に、トラップを通過した揮発性代謝物は石英製燃焼カラムで燃焼した後捕集した。

【代謝物の分離及び分析】

土壌試料はメタノールで振とう抽出し、抽出液中の代謝物は高速液体クロマトグラフィー（HPLC）を用いて分析した。代謝物の確認は、GC/MSによって行った。

【放射能の測定】

放射能の測定は、液体シンチレーションカウンター（LSC）を用いて行った。土壌及び抽出残渣中の放射能は、燃焼法により LSC で測定した。

結 果：

【土壌中における放射能の推移】

結果の概要を下表に示す。

経過 日数	処理放射能に対する割合（％）					
	エチレングリコール 捕集液	KOH 捕集液	燃焼後 KOH 捕集液	メタノール 抽出画分	非抽出性 画 分	総回収率
0 <sup>a</sup>	0	0	0	99.5	0.5	100
1	0.5	0.5	0.3	98.4	2.0	101.7
3	0.5	0.6	0.3	95.7	3.0	100.1
7	0.7	2.4	0	95.2	4.1	102.4
14	1.2	3.9	0	88.2	5.4	98.7
30 <sup>a</sup>	2.5	7.5	0	78.5	7.7	96.2
59	3.7	12.6	0	70.8	7.2	97.3
89 <sup>a</sup>	4.8	18.6	0	63.6	8.2	95.2
120	5.8	24.7	0	50.1	12.3	92.9
181	8.1	35.0	0	27.0	15.1	85.2
273	9.7	43.5	0	15.1	17.3	85.6
365 <sup>a</sup>	11.0	74.3	0.1	4.0	17.1	106.5

a：2回の分析の平均値

処理後の時間の経過に伴って、メタノール抽出画分の放射能が徐々に減少し、エチレングリコール及び KOH に捕集された揮発性代謝物及び非抽出性画分が徐々に増加した。

【代謝物の性質及び同定】

試験開始後 9 ヶ月（273 日）までに KOH とラップに捕集された放射能は、98%以上が炭酸バリウムとして沈殿したことから、大部分が  $^{14}\text{CO}_2$  [D] であったと考えられる。一方、その後試験終了時まで KOH トラップで捕集された放射能は、その 86.5%が炭酸バリウムとして沈殿し、13.5% KOH 溶液中に残った。この様にかんがりの放射能（処理放射能の 5.31%）が KOH 溶液中に残ったことから、 $^{14}\text{CO}_2$  [D] 以外の揮発性代謝物 [E] が存在しているものと考えられる。

処理後 30、59 及び 120 日目にエチレングリコールに捕集された放射能を水で希釈した後、酢酸エチル/アセトニトリル（2：1、v/v）で抽出し、抽出液を濃縮して HPLC で代謝物

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

を分析した。濃縮の過程で 55.4～71.9%の放射能が失われたが、抽出物からは親化合物のメタアルデヒド [A] 及び未知代謝物が検出された。この未知代謝物は、土壌のメタノール抽出画分からは検出されなかったので、エチレングリコール中で生成したメタアルデヒド [A] と の縮合物と推定された。

土壌のメタノール抽出画分からはメタアルデヒド [A]、及び少量の が検出された。これらの結果を下表に示す。

経過日数	処理放射能に対する割合 (%)			
	メタノール抽出画分	メタアルデヒド [A]	アセトアルデヒド [B]	パラアルデヒド [C]
0 <sup>a</sup>	99.5	98.7	0	0
1	98.4	98.4	0	0
3	95.7	94.7	0	0
7	95.2	95.2	0	0
14	88.2	88.2	0	0
30 <sup>a</sup>	78.5	78.5	0	0
59	70.8	67.9	2.6	0.4
89 <sup>a</sup>	63.6	63.6	0	0
120	50.1	47.0	3.0	0
181	27.0	25.2	1.7	0
273	15.1	10.1	5.0	0
365 <sup>a</sup>	4.0	0.6	3.3	0

a : 2 回の分析の平均値

以上の結果から、メタアルデヒドは好氣的条件下の土壌中で直接又は、 を經由して二酸化炭素に代謝されるものと考えられる。メタアルデヒド [A] の好氣的条件下の土壌中における半減期は 67.2 日であった。

(2) 好氣的土壌における動態試験

(資料 66)

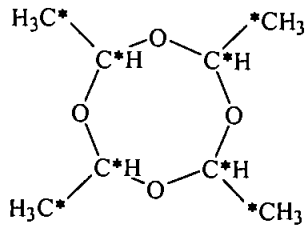
試験機関：

[GLP 対応]

報告書作成年：1991 年

供試標識化合物：

<sup>14</sup>C で一様に標識したメタアルデヒド



\* : <sup>14</sup>C 標識位置

比放射能：

放射化学的純度：

標識位置選定理由：

供試土壌： 近郊より採取した微砂質壤土及び埴壤土並びに 砂壤土から採取した砂壤土を用いた。その土性は以下の通りである。

	微砂質壤土	埴壤土	砂壤土
粗 砂	2.2%	12.2%	29.1%
微 砂	77.3%	56.0%	46.9%
粘 土	20.5%	31.8%	24.0%
有機炭素	0.73%	1.48%	0.84%
pH	6.22	6.71	6.24

試験方法：

【処理、インキュベーション及び試料の採取】

乾土で 100 g 相当の土壌をガラス容器に入れ、水に溶解した <sup>14</sup>C-メタアルデヒドを添加(土壌乾重 100 g 当たり <sup>14</sup>C-メタアルデヒドとして )し、土壌水分を最大容水量の 40% に調節して好氣的条件とし 20℃の暗黒下でインキュベートした。処理後 7、14、30、50、70、100、150 及び 200 日目に土壌を採取した。

【分 析】

土壌試料はメタノール/水 (1 : 1、v/v)、次いでメタノールで振とう抽出し、抽出残渣はクロロホルムで抽出した。全ての抽出液をプールし、その一部を採って NaHSO<sub>3</sub> を添加して有機溶媒不溶性の 付加物を生成させた後、ジクロロメタンでメタアルデヒドを抽出した。

【放射能の測定】

放射能の測定は、液体シンチレーションカウンター（LSC）を用いて行った。土壌及び抽出残渣中の放射能は、燃焼法により LSC で測定した。

結果：結果の概要を下表に示す。

経過日数	処理放射能に対する割合（％）								
	微砂質壤土			埴壤土			砂壤土		
	溶媒抽出画分	非抽出性画分	総放射能	溶媒抽出	非抽出	総放射能	溶媒抽出画分	非抽出性画分	総放射能
0	92.4	0.38	92.78	94.1	1.35	95.45	99.0	0.53	99.48
7	33.4	14.93	48.28	45.2	13.43	58.63	75.1	0.88	75.88
14	13.4	25.25	38.60	27.2	17.04	44.24	38.8	7.39	46.19
30	22.6	17.23	39.78	28.6	19.52	48.12	0.8	4.73	5.53
50	6.1	14.48	20.58	43.5	13.80	57.25	0.9	3.87	4.72
70	2.4	16.46	18.81	42.3	15.09	57.39	1.0	5.12	6.12
100	1.5	16.91	18.43	1.8	24.23	25.96	0.9	5.49	6.41
150	2.1	24.28	26.36	8.5	16.46	24.91	—	—	—
200	1.6	15.07	16.64	1.3	17.29	18.56	—	—	—

表中の数値は 2 回の分析の平均値<sup>13</sup>

いずれの土壌でも溶媒抽出性放射能は、急速に減少した。一方、非抽出性放射能は試験開始直後から 1～2 週間で急速に増加したが、その後はほぼ一定であった。溶媒抽出性画分中の放射能量に基づいて Laska 法により求めた半減期は、以下の通りであった。

微砂質壤土 : 5.18 日  
 埴壤土 : 6.56 日  
 砂壤土 : 1.36 日

溶媒抽出画分中の放射能は、NaHSO<sub>3</sub> を添加してもジクロロメタン抽出率に大きな変化がなく、大部分がメタアルデヒドであった。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

土 壤	DT <sub>50</sub> (日)	R <sup>2</sup>
微砂質壤土	5.33	0.930
埴壤土	43.1	0.621
埴壤土 (50 及び 70 日目のデータを除く)	9.62	0.916
砂壤土	9.89	0.974

減衰を 0～14 日の第 1 相及び 30 日以降の第 2 相に分けて、それぞれ最小二乗法により求めた半減期は以下の通りであった。

土 壤	第 1 相の半減期及び R <sup>2</sup>		第 2 相の半減期及び R <sup>2</sup>	
	半減期	R <sup>2</sup>	半減期	R <sup>2</sup>
微砂質壤土	5.0 日	0.9990	58 日	0.5420
埴壤土	7.8 日	0.9890	36 日	0.6130
砂壤土	10 日	0.9467	(減衰なし)	—



(3) 嫌氣的土壤における動態試験

(資料 67)

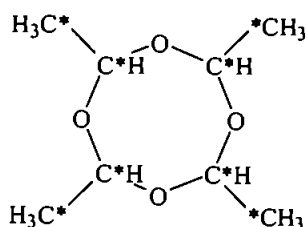
試験機関：

[GLP 対応]

報告書作成年：1990 年

供試標識化合物：

$^{14}\text{C}$  で均一に標識したメタアルデヒド



\* :  $^{14}\text{C}$  標識位置

比放射能：

放射化学的純度：

標識位置選定理由：

供試土壤：

より採取した 微砂質壤土を用いた。

その土性は以下の通りである。

粗砂	54%
微砂	36%
粘土	10%
有機炭素含有量	0.8%
pH	6.5
塩基置換容量 (meq/100 g)	4.7

試験方法：

【処理、インキュベーション及び試料の採取】

乾土 10 g 相当の土壤を代謝ボトルに入れ、メタノールに溶解した  $^{14}\text{C}$  メタアルデヒドを添加（土壤乾重当たり  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドとして ）し、土壤水分を圃場容水量の 75%に調節して好氣的条件とし、25℃の暗黒下で 30 日間インキュベートした。次いで代謝ボトルに水を添加して湛水状態とし、窒素ガスを通しながら嫌氣的条件下で更にインキュベートした。処理後 0、1、3、7、15、30、45、60、75 及び 90 日目に土壤又は水/土壤を採取した。またエチレングリコール及び 1N KOH とラップを用いて揮発性代謝物を直接捕集すると共に、トラップを通過した揮発性代謝物は石英製燃焼カラムで燃焼した後捕集した。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

【代謝物の分離及び分析】

湛水後の土壌試料は土壌と水に分別し、土壌試料はメタノールで振とう抽出し、水試料は濃縮後ジクロロメタンで抽出した。抽出液中の代謝物は高速液体クロマトグラフィー（HPLC）を用いて分析した。代謝物の確認は、GC/MSによって行った。

【放射能の測定】

放射能の測定は、液体シンチレーションカウンター（LSC）を用いて行った。土壌及び抽出残渣中の放射能は、燃焼法により LSC で測定した。

結 果：

【土壌中における放射能の推移】

結果の概要を下表に示す。

	経過 日数	処理放射能に対する割合 (%)						
		エチレングリコール 捕集液	KOH 捕集液	燃焼後 KOH 捕集液	水 相	メタノール 抽出画分	非抽出性 画 分	総回収率
好 気 的 条 件	0 <sup>a</sup>	0	0	0	—	99.51	0.49	100
	1	0.35	0.55	0.21	—	97.32	1.92	100.34
	3	0.63	1.43	0.21	—	99.95	2.45	104.66
	7	1.04	3.60	0.21	—	97.22	4.61	106.67
	15	1.35	4.64	0.21	—	88.33	6.33	100.88
	30	2.06	8.31	0.21	—	87.84	10.39	108.81
嫌 気 的 条 件	45	2.10	8.99	0.21	66.57	14.36	5.04	97.27
	60	2.10	9.19	0.21	65.72	14.53	5.34	97.09
	75	2.10	9.34	0.21	73.27	11.63	5.39	101.92
	90	2.10	9.48	0.21	66.07	10.98	4.87	93.72

a：2回測定した平均値

好気的条件下で 30 日間インキュベートした場合、メタノール抽出画分の放射能が徐々に減少し、エチレングリコール及び KOH に捕集された揮発性代謝物及び非抽出性画分が徐々に増加した。好気的条件下の土壌中におけるメタアルデヒドの半減期は 166 日であった。湛水して嫌気的条件下とした場合、土壌中の放射能の大部分が水相に移行し、土壌からのメタノール抽出画分中の放射能が急激に低下した。非抽出性画分の放射能は試験期間中殆ど変化がなく、処理放射能の約 5%を占めていた。エチレングリコール及び KOH とラップに捕集された放射能は、殆どが好気的条件下で生成したもので、嫌気的条件下に変えた後に生成したこれら揮発性代謝物の量はわずか 1.21%に過ぎなかった。

【代謝物の性質及び同定】

結果の概要を下表に示す。

	経過 日数	処理放射能に対する割合 (%)								
		水相	メタール 抽出 画分	総可溶性 残留 放射能	メタアル デヒド [A]	アセトア ルデヒド [B]	パラアル デヒド [C]	未知代謝物		
								1	2	3
好 気 的 条 件	0 <sup>a</sup>	—	99.51	99.51	97.82	0	0	1.79	0	0
	1	—	97.32	97.32	96.25	0	0.97	0	0	0
	3	—	99.95	99.95	99.95	0	0	0	0	0
	7	—	97.22	97.22	97.22	0	0	0	0	0
	14	—	88.33	88.33	88.33	0	0	0	0	0
嫌 気 的 条 件	30	—	87.84	87.84	87.84	0	0	0	0	0
	45	66.57	14.36	80.93	71.90	4.55	0.87	2.75	0	0
	60	65.72	14.53	80.25	70.12	6.34	0	0.61	0	0
	75	73.27	11.63	84.89	74.32	7.37	0	0.31	0.02	0.44
	90	66.07	10.98	77.05	68.38	7.00	0	0	0	0

a : 2 回の分析の平均

嫌気的条件下でインキュベートした場合の主な放射能成分はメタアルデヒド [A] であり、僅かながら 及び が検出された。その他、3 種の少量の未知代謝物が検出された。好気的条件下に保った場合と比較して、嫌気的条件下では の蓄積量がやや高かった。嫌気的条件下におけるメタアルデヒド [A] の半減期は 222 日であった。

以上の結果から、メタアルデヒド [A] は、嫌気的条件下の土壤中で に代謝されるものと考えられる。

#### 4 水中光分解性

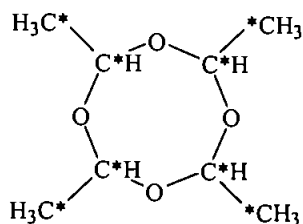
(資料 69)

試験機関：

[GLP 対応]

報告書作成年：1989 年

供試化合物： $^{14}\text{C}$  メタアルデヒド



\*：標識位置

比放射能：

放射化学的純度：

供試水：pH 7 緩衝液

N-2-ヒドロキシピペラジン-N'-2-エタンスルホン酸 2.39 g を 1 L のイオン交換水に溶解し、1.0 N 水酸化カリウムを滴下し、pH 7 に調整した。調製した緩衝液は 121°C で 1 時間高圧蒸気滅菌した。

光源：キセノンアーク灯

光量：269 W/m<sup>2</sup> (300~750 mm)

試験方法：

##### 【照射条件】

25±1°C の恒温槽に置き、キセノンアーク灯システムで照射した。試料に到達する照射光が太陽光の約半分になるように置き、24 時間照射した。

##### 【分析方法】

標識化合物の放射能は液体シンチレーションカウンターにより測定した。

試料の特性検討

ODS カラムを用いたグラジエント溶出による HPLC 分析

試験条件

カラム：ODS カラム

検出器：液体シンチレーションカウンター

移動相：水及びメタノール、1 mL/L で濃アンモニアを添加

流量：1 mL/L

##### 【予備試験】

おおよその光分解速度と本試験のサンプル採取時期を求めるために行った。加水分解予備試験に基づき pH 9 で試験を行った。

### 1. 緩衝液の調製

0.2 M ホウ酸 (100 mL) + 118 mL 0.2 M ホウ砂 (118 mL) → イオン交換水で 400 mL にする。

調製後、121℃、1 時間高圧蒸気滅菌する。

### 2. 試験溶液の調製

<sup>14</sup>C-メタアルデヒド 5.7 mg を pH 9 緩衝液に溶解し 200 mL に定容し、15 分間超音波処理し完全溶解した。pH を測定したところ 9.01 であった。この液を 10 mL のスクリーキャップ付き培養管 20 本に分注し、19 本を 25±1℃のチャンバーに置き、キセノン光を照射した。残りの 1 本は 0 時間の試料として使用した。

### 3. 供試試料の処理

キセノン光照射後 0、1、17.2、143.1 及び 626 時間にそれぞれサンプルを採取し、pH、LSC による <sup>14</sup>C 放射能、HPLC によりメタアルデヒド、  
の濃度を測定した。試料中の <sup>14</sup>C 放射能及び <sup>14</sup>C 放射能中のメタアルデヒドの割合を用いて物質収支を算出し、分解速度を推定した。

## 【本試験】

### 1. 供試溶液の調製

非光増感試験溶液：<sup>14</sup>C-メタアルデヒド 9.5 mg を pH 7 緩衝液 300 mL に溶解した。

光増感用試験溶液：<sup>14</sup>C-メタアルデヒド 8.4 mg を pH 7 緩衝液

(1 v/v%のアセトンを含む) 300 mL に溶解した。

両試験溶液を 30 分間超音波処理した後、10 mL のスクリーキャップ付き培養管 30 本に分注した。各試験溶液から 2 本を取り照射 0 時間の試料として保存した。残りの試料を二等分し、一方はアルミホイルで包み、もう一方はそのまま光分解槽に置いてキセノン光を照射した。

### 2. 供試試料の処理

照射後 0、1、3、7、14 及び 30 日に試料を採取し、分析時まで冷凍保存した。室温解凍した試料から 100 µL を 2 点採り、LSC シンチレーター 5.0 mL を加えて <sup>14</sup>C 放射能を測定した。

### 3. 計算

#### 3.1 DPM から質量への換算、比放射能及び回収率

$$\text{DPM から質量及び濃度への換算} : (\text{dpm}) \times \frac{1}{\text{比放射能}(\text{dpm}/\mu\text{g})} \times \frac{1}{\text{測定試料量}(\text{mL})} = \mu\text{g}/\text{mL}$$

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

$$\text{メタアルデヒドの比放射能} = 10.7(\mu\text{Ci}/\text{mg}) \times 2.22 \times 10^6 (\text{dpm}/\mu\text{Ci}) \frac{1\text{mg}}{1000\mu\text{g}} = 2.38 \times 10^4 \text{ dpm}/\mu\text{g}$$

回収率は、上記の式の値を総処理量 ( $\mu\text{g}/\text{mL}$ ) で除して求めた。

### 3.2 $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドの一次光分解速度

$$\text{式 1: 供試化合物の半減期}(t_{1/2}) = \frac{\text{Ln}2}{\text{速度定数}(k)}$$

$$\text{式 2: 従属変数}(y) = \text{直線の傾き}(m) \times \text{独立変数}(x) + \text{定数}(b)$$

試料中のメタアルデヒドの濃度は、試料から検出されたメタアルデヒドに相当する総  $^{14}\text{C}$  放射能に HPLC で確認されたメタアルデヒド画分を乗じることで求めた。物質収支は、各時点で採取した試料の総  $^{14}\text{C}$  放射能を照射 0 時間の放射能で除して求めた。

メタアルデヒドの分解速度は一次式を仮定して算出した。0 時の濃度に対する割合 (%) の自然対数を時間に対してプロットし、式 2 を用いて回帰分析を行い、速度定数  $k$  を求め、式 1 より半減期を求めた。

結 果:

#### 【予備試験】

	結 果
速度定数	$8.40 \times 10^6/\text{時間}$
半減期	$8.25 \times 10^4$ 時間 (3438 日)

予備試験の結果から、本試験の試験期間を 30 日とした。

#### 【本試験】

何れの条件下でも  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドの分解には統計的有意差は認められなかった。さらに全ての条件下で計算から求めた速度定数も照射 0 日からの統計的有意差は認められなかった。各試料の物質収支は光照射 0 日と比べ 100~107%で推移した。HPLC による  $^{14}\text{C}$  放射能の回収率は、処理放射能の 94.8~112%に達した。

供 試 水	pH 7 緩衝液	
	光照射区	暗所対照区
増感区	526	2220
非増感区	1110	1380

HPLC 分析からキセノンランプの連続照射により、いずれの条件下でも有意な分解は認められなかった。本試験の結果に基づきメタアルデヒドは、環境中において光分解的に安定であると想定される。

## 5 加水分解性

(資料 70)

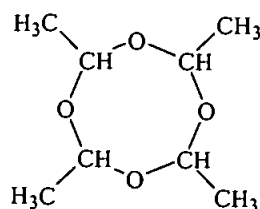
試験機関：

[GLP 対応]

報告書作成年：2001 年

供試化合物：高品位の下記化合物を用いた。

化学構造：



化学名：2,4,6,8-テトラメチル-1,3,5,7-テトラオキサシクロオクタン

略称：メタアルデヒド

純度：

供試水溶液：精製水を用いて、下記の3種類の緩衝液を調製して用いた。

pH 4.0：クエン酸一カリウム/水酸化ナトリウム

pH 7.0：リン酸一カリウム/水酸化ナトリウム

pH 9.0：ホウ酸/塩化カリウム/水酸化ナトリウム

試験方法：

### 1) 予備試験

滅菌緩衝液を用いて調製したメタアルデヒドの 5 µg/mL 水溶液を、暗黒下 50℃の恒温器内で7日間インキュベーションした。0及び7日後に残存するメタアルデヒドをガスクロマトグラフ法により定量した。

### 2) 長期試験

予備試験と同様に調製したメタアルデヒドの各水溶液を、暗黒下 25 及び 40℃の恒温器内で最長 60 日間インキュベーションした。予備試験の結果に基づいて決定した少なくとも 6 時点に試料を取り出して、残存するメタアルデヒドをガスクロマトグラフ法により定量した。温度の測定は、分析用試料の採取時に行った。

結果：

### 1) 予備試験

結果を表 1 に示した。7日間で pH 4.0 において顕著な分解が認められたが、pH 7.0 及び 9.0 では分解はみられなかった。

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

## 2) 長期試験

結果を表 2 及び 3 に示した。なお、試験温度を測定した結果、水溶液の温度は設定通りに維持されていたことが確認された。

pH 4.0 においては、両温度共に顕著な分解が認められ、25℃、45 日後では添加量の 88% が分解し、40℃、5 日後では 90% が分解した。

pH 7.0 及び 9.0 では、両温度共に殆ど分解は認められなかった。

推定半減期を表 4 に示した。pH 4.0 においては高温ほど分解速度が大きかった。pH 7.0 及び 9.0 では、分解率が小さく計算による半減期の推定は困難であった。

表 1 予備試験結果

インキュベーション時間	pH 4.0	pH 7.0	pH 9.0
	2 点の平均値 ( $\mu\text{g/mL}$ )	2 点の平均値 ( $\mu\text{g/mL}$ )	2 点平均値 ( $\mu\text{g/mL}$ )
0	4.9	4.7	4.6
7 日	<0.2	4.8	4.8
分解率 (%)	>96	0	0

表 2 長期試験結果 (25℃)

インキュベーション時間 (日)	pH 4.0		pH 7.0		pH 9.0	
	平均値 ( $\mu\text{g/mL}$ )	分解率 (%)	平均値 ( $\mu\text{g/mL}$ )	分解率 (%)	平均値 ( $\mu\text{g/mL}$ )	分解率 (%)
0	4.9		4.7		4.6	
1	4.6	6.1	—	—	—	—
3	3.8	22	—	—	—	—
7	3.6	26	4.8	0	4.8	0
10	2.8	43	—	—	—	—
14	2.4	51	4.4	6.4	4.6	0
18	2.1	57	—	—	—	—
21	1.8	63	—	—	—	—
30	1.1	78	4.6	2.1	4.6	0
45	0.6	88	4.8	0	4.8	0
60	—	—	4.6	2.1	4.6	0



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

表 3 長期試験結果 (40℃)

インキュベーション時間	pH 4.0		pH 7.0		pH 9.0	
	平均値 (µg/mL)	分解率 (%)	平均値 (µg/mL)	分解率 (%)	平均値 (µg/mL)	分解率 (%)
0	4.9		4.7		4.6	
5 時間	4.4	10	—	—	—	—
10 時間	4.1	16	—	—	—	—
24 時間	3.2	35	—	—	—	—
28 時間	3.0	39	—	—	—	—
32 時間	2.7	45	—	—	—	—
48 時間	2.0	59	—	—	—	—
56 時間	1.8	63	—	—	—	—
3 日	1.4	71	—	—	—	—
5 日	0.5	90	—	—	—	—
7 日	—	—	4.6	2.1	4.9	0
14 日	—	—	4.4	6.4	4.8	0
30 日	—	—	4.6	2.1	4.8	0
45 日	—	—	4.7	0	4.8	0
60 日	—	—	4.6	2.1	4.6	0

表 4 推定加水分解半減期

温度 (℃)	pH	推定半減期
25	4.0	15 日 算出できず 算出できず
	7.0	
	9.0	
40	4.0	37 時間 算出できず 算出できず
	7.0	
	9.0	

参考データ----メタアルデヒドの加水分解物に関する検討

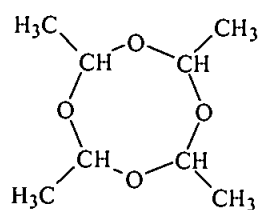
( )

試験機関：

報告書作成年：2001年

供試化合物：高品位の下記化合物を用いた。

化学構造：



化学名：2,4,6,8-テトラメチル-1,3,5,7-テトラオキサシクロオクタン

略称：メタアルデヒド

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ロンザジャパン株式会社にある。

2017年10月1日現在					
2017年9月30日現在					

2017年10月1日現在					
2017年9月30日現在					

(参考資料)

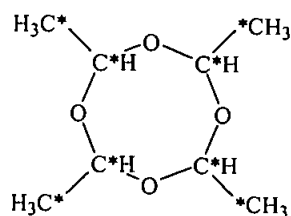
新ガイドラインによる加水分解性試験を実施したので、本試験を参考資料とした。

試験機関：

[GLP 対応]

報告書作成年：1989 年

供試化合物：<sup>14</sup>C メタアルデヒド



\*：標識位置

比放射能：

放射化学的純度：

供試水溶液：

pH	緩衝溶液	調製方法
5	酢酸塩	0.2 M 酢酸 (14.8 mL) + 0.2 M 酢酸ナトリウム (35.2 mL) → 水で 100 mL にする
7	TRIS	0.2 M 塩酸 (46 mL) + 0.2 M トリスヒドロキシメチルアミン (50 mL) → 水で 100 mL にする
7	HEPES	0.01M N-2-ヒドロキシethyl-N'-2-ヒドロキシエチルエタンスルホン酸 (50 mL) → 水で 200 mL に希釈し、0.2 M 水酸化カリウムを滴下して pH 7 に調整する
9	ホウ酸塩	0.2 M ホウ酸 (50 mL) + 0.2 M ホウ砂溶液 (59 mL) → 水で 200 mL にする

試験方法：

【放射能の測定】

放射能の測定は全てマイクロプロセッサ制御卓上スペクトロメーターを用いた。

LSC システムは、Beckman 伝送装置に接続し、IMB PC-XT システムを用いて解析を行った。

【HPLC による分析法】

以下の 2 つの条件による HPLC 法を用いた。

1. 酸加水分解試料及び予備試験試料

C18 カラム、メタノール/脱イオン水 (80:20、1 mL/L 濃度に濃アンモニア水を添加)、<sup>14</sup>C-RAM 検出器

2. 後半に溶出するピークの確認用

カラム：ODS カラム (2 種類)

検出器：<sup>14</sup>C-RAM フロースルー検出器

移動相：メタノール：水のグラジエント (共に 1 mL/L 濃度で濃アンモニア水を添加)

### 【予備試験】

#### 1. 試験溶液の調製

400 µg/mL の  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドのメタノール溶液から 60 µL を採り、各 pH の緩衝液 25 mL と混合した後、10 mL のスクリューキャップ付き試験管 3 本に分注し、 $25 \pm 1^\circ\text{C}$  の環境チャンバーに設置した。

#### 2. 分解速度の計算

予備試験 33、39、41 及び 60 日目に分析を行った。その結果、本試験の加水分解期間を 30 日とした。

### 【本試験】

#### 1. 試験溶液の調製

所定量の  $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドをフラスコ 4 本に秤量し、それぞれの緩衝液を 200 mL 加え、15 分間超音波処理をして溶解した。10 mL のスクリューキャップ付き試験管に試験溶液を満たし、アルミホイルで遮光して  $25^\circ\text{C}$  の Norlake 環境チャンバーに設置した。

#### 2. 供試試料の処理

試験 0、1、3、6、9、14、22 及び 32 日目に各試験溶液から 50 µL を 2 点採取し、Beckman Ready Gel LSC シンチレーター 5.0 mL を添加した。またこれとは別に、各試験溶液から 50 µL を 1 点採取して HPLC により分析した。フラクションコレクターを使い、試料注入後 1 分から 30 分間、30 秒毎に画分を採取し  $^{14}\text{C}$  放射能を測定した。

、及び非放射能標識メタアルデヒドについても 234 nm での UV 吸収検出により、クロマトグラフィーした。

#### 3. 計 算

##### 3.1 DPM から質量への換算、比放射能及び回収率

DPM から質量及び濃度への換算：

$$(\text{dpm}) \times \frac{1}{\text{比放射能}(\text{dpm}/\mu\text{g})} \times \frac{1}{\text{測定試料量}(\text{mL})} = \mu\text{g}/\text{mL}$$

メタアルデヒドの比放射能 =

回収率は、上記の式の値を総処理量 (µg/mL) で除して求めた。

##### 3.2 $^{14}\text{C}$ -メタアルデヒドの一次加水分解速度

$$\text{式 1: 供試化合物の半減期}(t_{1/2}) = \frac{\text{Ln}2}{\text{速度定数}(k)}$$

式 2 : 従属変数 (y) = 直線の傾き (m) × 独立変数 (x) + 定数 (b)

メタアルデヒドの分解速度は一次式を仮定して算出した。0 時の濃度に対する割合 (%) の自然対数を時間に対してプロットし、式 2 を用いて回帰分析を行い、速度定数 k を求め、式 1 より半減期を求めた。

結 果 :

試験温度	pH	推定半減期
25℃	5	メタアルデヒドは緩衝液中で安定であり、30 日間の試験期間中に顕著な分解が認められなかったため、正確な半減期を算出することが出来なかった。
	7	
	9	

4 種類の緩衝液系の物質収支では、<sup>14</sup>C 放射能の損失は殆ど認められず、試験試料の平均物質収支は 99.9±2.5%以内であった。試験試料を分析したところ、顕著な分解が認められたのは、試験 22 日の pH 5 の試料のみであった。この結果は長時間グラジエント HPLC 分析でも確認された。

本試験の結果に基づき、メタアルデヒドは環境において加水分解的に安定であると想定される。

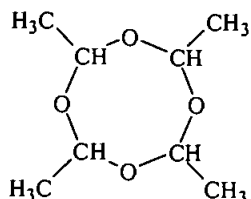
6 土壌吸着係数

(資料 68)

試験機関：

報告書作成年：1998年

供試化合物：メタアルデヒド（純度 %）



試験法ガイドライン：OECD No.106

【試験法ガイドライン】

OECD ガイドライン No.106

【供試土壌】

土壌番号	5	8	13	16
土 壌 名	洪積埴壤土	沖積鈹質土壌	細粒グライ土	洪積埴壤土
採取場所	植調研牛久圃場	日植防高知	石川農試	和歌山農試
土 性	LiC	LiC	LiC	LiC
砂 %	39.8	42.2	53.1	41.7
シルト%	24.0	31.9	19.6	29.4
粘土%	36.2	25.9	27.3	28.9
有機炭素含有率%	2.83	1.29	1.02	1.33
有機炭素測定法	アリソ式重量法	アリソ式重量法	アリソ式重量法	アリソ式重量法
pH H <sub>2</sub> O	6.4	6.3	7.1	5.2
KCl	5.7	6.5	5.8	3.7
陽イオン交換容量 (me/100 g)	22.9	11.3	20.3	11.0
りん酸吸収係数	920	390	720	410
粘土鈹物の種類	アロフェンハロイサイト	クワイトイライト	カオリン鈹物 モンモリロナイト	カオリン鈹物 パーミキュライト
水分 (%)	4.8	1.6	3.4	1.9

試験方法：

【土壌の調製】

遠心管に試験土壌（風乾細土）5 g を秤取し、純水 5 mL を加え、一夜放置する。

#### 【試験溶液の調製】

メタアルデヒド純品の一定量を 0.001 M 塩化カルシウム溶液に溶解して 4.96 ppm 溶液を調製する。

#### 【スクリーニング試験】

土壌に上記試験溶液 20 mL を加えて密栓後、恒温槽内 (25±1℃) で 16 時間振とうする。振とう後、試料を取り出して 3000 rpm で 20 分間遠心分離する。

##### A) 水相

遠心分離後の上澄液に緩衝液を加えて攪拌後、カラムクロマトグラフィーで精製し、ガスクロマトグラフィー (FID) で分析する。

##### B) 固相 (土壌)

遠心分離後の固相 (土壌) に緩衝液、アセトンを加え抽出後ろ過する。ろ液を減圧濃縮し、カラムクロマトグラフィーで精製し、ガスクロマトグラフィー (FID) で分析する。同時にコントロール試料 (土壌なし) についても実施する。

#### 【物質の収支】

スクリーニング試験で使用した遠心管及び空試験の遠心管内部の残土をアセトンで抽出後、カラムクロマトグラフィーで精製し、ガスクロマトグラフィーで土壌中のメタアルデヒド量を求め、スクリーニング試験より求めた水相中のメタアルデヒド濃度から物質の収支を求める。

#### 【ガスクロマトグラフィー操作条件】

検出器 : FID (ヒューレットパッカード社製 6890)  
カラム : DB-WAX 30 m x 0.53 mm I.D., 膜厚 ; 1.0 μm  
カラム温度 : 70℃ (3分) →10℃/min →140℃、50℃/min →220℃ (22分)  
注入口温度 : 220℃  
検出器温度 : 250℃  
ガス流量 :

ガス	流量 (mL/min)
窒素	18.7
水素	40
空気	450

以下の試験におけるガスクロマトグラフィー操作条件もこれと同様とした。



試験結果：

①スクリーニング試験

水相；水相中に残存するメタアルデヒドは添加量に対して90%以上であった。

土壌相；土壌にメタアルデヒドは殆ど吸着されていなかった。

②コントロール試料（土壌なし）

回収率は98.8%であった。

③物質の収支

92.8～101%であった。

④試薬及び試験土壌ブランク

メタアルデヒドは検出限界以下であった。

⑤分析操作における回収率

0.01 M 塩化カルシウム溶液の1 ppm 添加で96.0%、土壌への4 ppm 添加では92.1%であった。

以上の試験結果より、メタアルデヒドは水相での残存率は90%以上で、土壌への吸着性が弱く、以降の高次試験の実施は不可能であった。

そこで、現行法で用いられている土壌と水の比を1：5（v：v）から2：3（v：v）に、また振とう時間を48時間に延長して再度試験した。

土壌と水の比を2：3（v：v）とし、振とう時間を48時間にした土壌吸着試験（追加試験）

試験機関                   ：  
報告書作成年            ：1998年  
供試化合物               ：メタアルデヒド（純度        ）、ロット番号  
試験法ガイドライン    ：OECDガイドライン No. 106 に一部準ずる。  
供試土壌                  ：前記試験に同じ。

①予備試験

【土壌の調製】

遠心管に試験土壌（風乾細土）20 g を秤取し、0.01 M 塩化カルシウム溶液 20 mL を加え、一夜放置する。

【試験溶液の調製】

メタアルデヒド純品の一定量を0.01 M 塩化カルシウム溶液に溶解して        -ppm 溶液を調製する。

【試験操作】

土壌に上記試験溶液 10 mL を加えて密栓後、恒温槽内（25±1℃）で48時間振とうする。振とう終了後、恒温槽より試料を取り出し、3000 rpm で20分間遠心分離する。

A) 水相

遠心分離後、上澄液より 15 mL を分取し、カラムクロマトグラフィーで精製した後、ガスクロマトグラフィー (FID) で水相中濃度を求める。

B) 土壌相

遠心分離後の固相 (土壌) に緩衝液及びアセトンを加え抽出後、ジクロロメタンに転溶し、カラムクロマトグラフィーで精製した後、ガスクロマトグラフィー (FID) で土壌中のメタアルデヒド量を測定する。

同時にコントロール試料 (土壌なし) についても実施する。

【試験結果】

土壌番号	添加量 ( $\mu\text{g}$ )	振とう時間 (hr)	水相中の濃度及び回収率 (%)					土壌相中の回収率 (%)	
			濃度 ( $\mu\text{g/mL}$ )		回収量		回収率	平均値	回収率
			実測値	平均値	水相中 ( $\mu\text{g}$ )				
					実測値	平均値			
5	93.3	48	2.84	2.88	88.0	89.4	95.8	0	0
			2.92		90.7			0	
8	93.3	48	2.92	2.99	88.6	90.7	97.2	0	0
			3.06		92.8			0	
13	93.3	48	2.56	2.59	78.5	79.4	85.2	10.1	8.7
			2.62		80.4			7.4	
16	93.3	48	2.82	2.85	85.6	86.6	92.8	0	0
			2.88		87.6			0	
コントロール試験			-		91.8	93.0	99.7		
					94.1				

なお各土壌に 1.0  $\mu\text{g/g}$  の濃度で添加した場合の回収率は、81.4~88.2%であった。

※予備試験より、石川県農業試験場内畑地土壌のみに約 10%の吸着が認められたので、以降の試験は本土壌のみを対象とした。

## ②平衡化試験

### 【土壌の調製】

①予備試験と同じ

### 【試験溶液の調製】

メタアルデヒド純品の一定量を 0.01 M 塩化カルシウム溶液に溶解して 6.09 ppm 溶液を調製する。

### 【試験操作】

土壌に上記試験溶液の 10 mL を加えて密栓後、恒温槽内 ( $25 \pm 1^\circ\text{C}$ ) で 16、24 及び 48 時間振とうする。振とう終了後、恒温槽より試料を取り出し、3000 rpm で 20 分間遠心分離して得られた上澄液より 15 mL を分取する。以降の操作は予備試験と同じとした。

同時にコントロール試料（土壌なし）についても実施する。

### 【試験結果】

土壌 番号	添加量 ( $\mu\text{g}$ )	振とう時間 (hr)	振とう後の水相中の濃度 ( $\mu\text{g/mL}$ )	
			実測値	平均値
13	60.90	16	1.67、1.65	1.66
		24	1.59、1.58	1.58
		48	1.62、1.57	1.60

平衡に到達した時間は 48 時間であったので、高次試験においても同様とした。

## ③高次試験

### 【土壌の調製】

①予備試験と同じ

### 【試験溶液の調製】

メタアルデヒド純品の一定量を 0.01 M 塩化カルシウム溶液に溶解し、9.56 ppm 溶液を調製後、さらに 0.01 M 塩化カルシウム溶液で希釈して 1.53、2.35 及び 5.74 ppm の 4 濃度に調製した。

### 【試験操作】

土壌に上記試験溶液の 10 mL をそれぞれ加えて密栓後、恒温槽内 ( $25 \pm 1^\circ\text{C}$ ) で 48 時間振とうする。振とう終了後、恒温槽より試料を取り出し、3000 rpm で 20 分間遠心分離して得られた上澄液より 15 mL を分取する。以降の操作は予備試験と同じとした。

同時にコントロール試料（土壌なし）についても実施する。

#### ④物質の収支

高次試験で保存した 5.74 ppm の試験溶液を添加した遠心管及び空試験の遠心管内部の残土をアセトンで抽出後、カラムクロマトグラフィーで精製し、ガスクロマトグラフィーで土壌中のメタアルデヒド量を求め、平衡化試験より求めた水相中のメタアルデヒド濃度から物質の収支を求める。

#### 【試験結果】

吸着指数 1/n <sub>1</sub> )	吸着平衡定数 k	相関係数 r <sub>1</sub> )	有機炭素含有量 OC% <sub>2</sub> )	有機炭素吸着係数 Koc' <sub>3</sub> )
1.17	0.318	0.996	1.02	31.2

1) Freundlich の吸着等温式による定数項と相関係数

2) 土壌中の有機炭素含有率

3) K を土壌の OC% で割求めた有機炭素吸着係数 (Koc' = K × 100/OC)

Koc =	—	a =	—	r =	—
-------	---	-----	---	-----	---

K 値と OC の 1 次相関をとり、その勾配を Koc とする。a は切片、r は相関係数。

※有機炭素含有率 OC% と吸着平衡定数 K との相関係数、土壌吸着平衡定数 Koc は 1 試料のため求められない。

なお、コントロールの回収率は 91.6~99.6%であった。物質収支は 91.0%であった。

## メタアルデヒドの代謝分解のまとめ

### (1) 動物における代謝

### (2) 植物における代謝

いちご：

レタス・てんさい：

水稻：

みかん：

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

植物におけるメタアルデヒドの主要な代謝経路は、以下の通りである。

### (3) 土壌における代謝

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

## メタアルデヒドの動植物等における代謝分解経路図

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

代謝分解の概要



本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

No.	品名	数量	単位	2023年度							2024年度	
				1Q	2Q	3Q	4Q	累計	1Q	2Q		

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。



加水分解性試験・水中光分解性試験

本資料に記載された情報に係る権利及び内容の責任はロンザジャパン株式会社にある。

(附) メタアルデヒドの開発年表