水和剤施用後のタバコ植物中のアセフェート およびメタミドホスの挙動

山崎 正雄, 堺 美幸, 後藤富士雄

日本専売公社中央研究所

(昭和56年12月18日受理)

Behavior of Acephate in Tobacco Plants Treated as Wettable Powder

Masao YAMAZAKI, Miyuki SAKAI and Fujio GOTO

*The Central Research Institute, Japan Tobacco and Salt Public Institute,
Umegaoaka, Midori-ku, Yokohama, Kanagawa 227, Japan*

Acephate, *O,S*-dimethyl acetylphosphoramidothioate, was applied to a tobacco leaf and its fate, incorporation and translocation in the leaf were studied. The compound decreased rapidly for 3-7 days after treatment and the concentration reached 1 ppm about 2 months later. In the leaves, acephate was metabolized to methamidophos, which was almost entirely accumulated after 7 days. The degradation of acephate applied on a glass plate was less than on a leaf surface. Acephate deposited on a leaf surface was incorporated into the leaf tissue with 22% of the residue after 24 hour and 82% after 7 days. Acephate applied on the left half surface of a leaf moved to the midrib for 2 days and then moved to the right half of the leaf as a metabolite, methamidophos. During the translocation, the concentration of methamidophos in the midrib was low. The translocation of acephate from the bottom half surface of a leaf to the upper portion was quicker than that of horizontal shift. It was also observed that the acephate translocated poorly from one leaf to another.

緒 言

有機リン系農薬のアセフェート *O,S*-dimethyl acetylphosphoramidothioate は殺虫剤として広く用いられ、その代謝産物のメタミドホス *O,S*-dimethylphosphoramidothioate も殺虫作用を示す¹⁻⁴⁾。この両者とも浸透移行性を有し^{1,3)}、葉面散布では葉面から浸透して植物の他の部位へ移行する。アセフェートの移行についてはキャベツの葉面の一部にアセフェート水和剤を施用し、未施用部での殺虫効果から移行の有無を判定し³⁾、また棉の葉に、¹⁴C でラベルしたアセフェートを散布した Bull⁴⁾ の報告があるが、両者とも移行農薬の定量は行なわれていない。Bull はまた経時的消長についても実験しているが、散布量に対する残留割合で表示がなされており、アセフェートの葉中濃度は示されていないし、散布後 4

日までしか行なわれていない。メタミドホスについてもトマトを材料として果実中の残留量について実験がなされているが⁵⁾、経時的な試料採取回数が少なく、その消長を示す曲線は得られていない。タバコ植物中のアセフェートの動向についても調査されていないので、本報ではタバコに対し適正に農薬を使用するための基礎資料を得る目的で、アセフェート水和剤をタバコ葉面に散布した場合の経時的な消長、葉面からの葉組織内への浸入、葉内移行、葉間移行などについて実験し、実態を明らかにした。

実 験 方 法

1. 材 料

供試タバコ：温室で 1/2,000 a ポットにより栽培した
在来種タバコ（白遠州）を試験材料とした。処理はすべ

Table 1 Tobacco for test.

Test terms	Treated time (days after sowing)	No. of leaves
Fate of acephate in leaves of various stalk position	89	27-30
Incorporation into leaf tissue	74	30
Translocation in a leaf	63	17
Translocation among leaves	78	30

て温室内で行ない、処理後も温室内でそのまま実験終了まで栽培した。各実験に用いたタバコの生育時期を Table 1 に示す。

土壌：腐葉土を 4，黒ボク土壌を 2 の割合で混合して使用した。

アセフェート水和剤：50%アセフェート含有の武田薬品工業製「オルトラン」を用いた。

農薬標準物質：アセフェートは西尾工業製「オルトラン」を用い，メタミドホスはナノゲン製の 1,000ppm 液を用いた。

試薬類：シリカゲルはマリンクロット製 AR-100 を用いた。その他の試験はすべて試薬特級を用いた。

2. 方 法

1) 分析方法

アセフェートおよびメタミドホスの定量は Leary^{6,7)}，日本食品分析センター⁸⁾などの方法に準じて Fig. 1 の方法により行なった。

2) 経時的消長

アセフェート水和剤をタバコ葉面に散布し，散布後の経過日数に従って，葉中アセフェート量とその代謝物のメタミドホス量とを定量した。

Table 1 (着葉位置別消長) に示すようなタバコを 9 株準備し，各株の上位葉（下から 21 枚目），中位葉（18 枚目），下位葉（15 枚目）の 3 枚をサンプルとして選んで，50% アセフェート水和剤の 1,500 倍希釈液（アセフェート 350 $\mu\text{g}/\text{ml}$ を含む）を損失のないよう注意しながら葉面全体に各 4 ml を散布した。その他の葉もサンプル葉とほぼ同様の散布状態になるように，この 3 枚の葉をビニール袋でおおい，飛沫がかからないようにしてから，株全体に 1,500 倍希釈液 40 ml を散布した。以後 63 日まで，一定日数ごとに 1 回 1 株から上，中，下位葉各 1 枚の葉を採取し，葉中アセフェートおよびその代謝物のメタミドホスを定量した。タバコは最大生長期を過ぎて

Fig. 1 Preparation of the sample solution and condition of gas chromatography.

Condition of gas chromatography;

Apparatus: Hitachi 073 type, detector FI-FTD, Column: 2% Reoplex 400, Gaschrom Q 100-120 mesh, glass column, Injection temperature: 230°C, Column temperature: 180°C, Carrier gas: He 60 ml/min.

*: S-benzyl diisopropyl phosphorothiolate

おり，葉重量は下位葉が黄変したのを除き試験中大きな変化はなかった。たとえば中位葉の葉重量変化は 35.1～42.7 g の範囲を上下し，漸増あるいは漸減するようなことはなかった。そこで分析結果の表示は残留農薬調査の観点から ppm で示した。

またガラス板上（内径 15 cm のシャーレ）に 750 倍希釈液 4 ml を上げたものを 5 個用意した。これを温室内に開放で放置し，一定日数ごとに 1 個ずつアセフェート，メタミドホスを定量して，生物的影響を除いた影響中での分解について求めた。

3) 葉組織内への浸入

アセフェート水和剤を散布した葉の表面を所定の日数経過後水で洗浄し，その残留量を定量して葉組織内浸入量とし，日数経過に伴うアセフェートの葉内浸入量の変動について調べた。すなわち Table 1（葉組織内への浸入）に示すようなタバコを 5 株準備し，各株の下から 12 枚目の葉の表面にアセフェート水和剤の 1,500 倍希釈液

5 ml (アセフェート 1,725 μg) を散布した。所定日数経過後、葉を水平に支持してから霧状の水を1時間葉面に落下させて、付着農薬を除去した。このときの落下水量は葉面 1 cm^2 に対し 11~15 ml とした。葉面が乾いてから葉を採取し、アセフェート、メタミドホスを定量して葉組織内浸入量とした。一方、同じ生育状態のタバコの株を別に5株準備し、同じ葉位に同量のアセフェートを散布して、その葉を水洗せずに採取して分析し、全残留量とした。

4) 葉内移行

(1) 半葉から他の半葉への移行

タバコの下から7~8枚目の葉(葉長約42 cm)の左半葉にアセフェート水和剤の750倍液の2 ml (アセフェート 1,396 μg) を散布した。このとき、散布葉はタバコ1株に1枚とし、散布葉以外はビニールシートでおおった。Fig. 2 左のように散布葉の右半分および主脈から左1 cm までをサランラップでおおい、散布液が右半葉にかからないようにした。散布後経時的に葉を採取し、右半葉、主脈中のアセフェート、メタミドホスを定量した。

(2) 葉元部から葉先端への移行

Fig. 2 の右のように葉先端部をサランラップでおおい、葉元部にアセフェート水和剤を散布した。散布後経時的に葉を採取し、Fig. 2 の試料切り取り線で葉元部と葉先端部とに分け、葉先端部中のアセフェート、メタミドホスを定量した。

5) 葉間移行

1枚の葉に散布したアセフェートが、他の未散布葉へ

Application to left half of leaf

Application to bottom portion of leaf

Fig. 2 Translocation from treated to another portion of leaf.

移行する状態について調べた。タバコの下から17枚目の葉(葉長約50 cm)にアセフェート水和剤の750倍液5 ml (アセフェート 3,500 μg) を散布した。このとき、他の葉をビニールシートでおおい、飛散液が他の葉にかからないようにした。散布後10日に処理葉およびその上下の葉を採取し、分析した。

結果と考察

1. 経時的消長

アセフェート水和剤をタバコ葉面に散布した場合の葉中農薬量の経時的な消長を求めた。

上, 中, 下位葉に同一量の水和剤を散布した場合の葉中アセフェートおよびその代謝産物のメタミドホスの消長を Fig. 3 に示す。

Fig. 3 に示すように葉中アセフェート量を片対数で表わすと、ほぼ直線的に減少しているが、処理直後の経過日数が3~7日までの傾斜がやや大きいようにみえる。農薬残留量が指数的に減少することは、一般によく知られている事実^{1, 9-11)}であるが、さらに処理直後の減少の大きい原因としては、散布直後の水分の蒸発に伴って成分が蒸発すること¹⁾、また不安定な付着状態のものが脱

Fig. 3 Concentration of acephate and methamidophos in leaves of various stalk positions after application of acephate.

○: Upper leaf, △: Middle leaf, □: Lower leaf.

落するもの¹⁰⁾といわれている。なお Fig. 3 で下位葉が56日以降直線からはずれているのは、葉が黄変して葉重量が減少したためである。

Fig. 3 から残留量の半減期を求めると、上位葉で 6.7 日(残留量 23 ppm)、中位葉 5.3 日(残留量 18 ppm)、下位葉 8.3 日(残留量 11 ppm)で、総括すると 5～8 日となる。残留量は処理後約 2 カ月で 1 ppm 程度まで減少した。葉位による曲線の傾斜の差はとくにみられなかったが、散布量が同一にもかかわらず、上位葉が高く下位葉が低い濃度になったのは、上位葉のほうが 1 枚当りの重量が小さいためである。

一方、アセフェートの代謝物であるメタミドホスの生成量を Fig. 3 (下図)からみると、散布後 7 日までは、葉中存在量が増加し、以後減少する傾向を示して、63 日後には約 1 ppm を示した。7 日後までの急増は、散布直後アセフェートの代謝分解によるメタミドホスの生成量が、その消失量よりも多くなったことを示している。その後の状態はアセフェートのように指数的な減少曲線はみられなかった。これは散布農薬のように消失だけでなく、アセフェートからの代謝生成による増加があるので、見掛け上このような減少状態を示したものと考えられる。散布後のアセフェート+メタミドホス(アセフェートに換算)に対するメタミドホスの割合を、Fig. 3 から計算すると、3 日後の 10% から経過日数に従って高くなり、散布後 42 日で 41～45% となった。これはア

セフェートは減少し続けるのに対し、メタミドホスのほうは分解する一方、生成も行なわれるためである。上位葉と下位葉とでは、上位葉のほうがこの割合が大きかった。

つぎに、アセフェートの分解過程から生物的影響を除いて環境中での分解をみるために、ガラス板上にアセフェート溶液を置き、タバコ葉面に散布した場合と比較した。結果を Fig. 4 に示す。これによると葉面散布のほうが明らかに減少割合が大きい。これは葉面の場合には脱落とか、微生物および植物酵素による分解などの可能性を示唆している。またガラス板上ではメタミドホスはほとんど検出されなかった。このことからアセフェートからメタミドホスへの変化には、生物的作用が大きく影響しているものと考えられる。

2. 葉組織内への浸入

残留アセフェートのどの程度が葉組織内へ浸入するかについて実験した。アセフェートの葉組織内浸入については、トマトの葉および棉の葉を用いた Lindquist¹²⁾と Bull⁴⁾の実験例があるが、これらではアセフェート水和剤の散布葉をアセトンあるいはメタノールで洗浄し、葉面付着農薬を除去し残りを葉組織内浸入量としている。しかしアセフェートは水に最もよく溶解し、水 100 g に 65 g も溶解する²⁾ので、本報では葉面のアセフェートを除くのに水を使用した。霧状の水を 1 時間葉表面に落下させて、葉面付着農薬を洗浄除去し、残りの農薬を葉組

Fig. 4 Residues after application on the glass plate and leaf.

○: On glass plate, △: On leaf.

Fig. 5 Incorporation of acephate into leaf tissue. ○: Total acephate, ●: Acephate incorporated into leaf tissue, △: Total methamidophos, ▲: Methamidophos incorporated into leaf tissue.

Fig. 6 Incorporation rates of acephate into leaf.

○: Incorporated rates of acephate, ×: Incorporated rates of acephate plus methamidophos.

織内浸入量とした。別に水洗しない葉を分析し、全アセフェート、メタミドホス量とした。その結果を Fig. 5 に示す。

Fig. 5 に示すように、散布直後ではアセフェートの葉内浸入量は小さい ($93 \mu\text{g}/\text{葉}$) が、処理後 3 日間は増加し、その後増加はややゆるやかとなった。一方、メタミドホスの葉内量は散布後 7 日でも上昇の傾向を示した。

つぎに残留量に対する葉組織内存在量の比率を Fig. 6 に示す。これによると散布後の日数に従って葉組織内量の比率は増加し、1 日後で 22%，7 日後で 82% に達している。散布後 24 時間して 10 mm 程度の降雨があっても、22% は残る。トマトの葉についての Lindquist¹²⁾ らの、葉内の値から比率を計算すると 97% にもなる。また Bull⁴⁾ の棉の葉についての値からの計算では 73% になる。これらの値と本報の値とを比較すると、タバコの場合葉組織内へ浸入する率は非常に低い。次の 3, 4 節の結果をみても、タバコの葉面からの浸入は比較的小さいように思われる。

3. 葉内移行

アセフェート剤は浸透移行性農薬であるので、葉面から葉組織内に浸入して無散布部分へ移行してゆくものと考えられるので、その移行量と時間との関係について調べた。すなわち 1 枚の葉で主脈をはさんで半葉に散布したアセフェート水和剤の他の半葉への移行と、葉元部分から葉先部への移行とにわけて実験した。

1) 左半葉から右半葉への移行

アセフェート水和剤を左半葉に散布した場合に、主脈および右半葉へのアセフェートとメタミドホスの移行についての結果を Fig. 7 に示す。ここに示すように、左半

Fig. 7 Translocation of acephate and methamidophos after application of acephate to the left half of leaf.

○: Acephate in right half of leaf, ●: Acephate in midrib, △: Methamidophos in right half of leaf, ▲: Methamidophos in midrib.

葉に散布したアセフェートは、2 日後主脈中に多く移行した。これが減少するに従って右半葉中のメタミドホスが増加し、見掛け上代謝物のメタミドホスの形で右半葉中に移行残留するように見える。このとき主脈中にはメタミドホスの存在量は少ない。Fig. 7 から、主脈中のアセフェート+メタミドホス（アセフェートに換算）に対するメタミドホス量の割合を算出すると、処理後 7 日で 22%，14 日後で 28% となる。一方葉肉中では 7 日後、14 日後ともに 73% である。このようにメタミドホスは比率的にも主脈中に少ない。これはメタミドホスが主脈中に滞留する時間がアセフェートよりも短く、ただちに葉肉中に移行してしまうか、アセフェートからのメタミドホスの代謝量が、主脈中では少ないためかのいずれかであると考えられる。そこでこれを裏づけるために次のような実験を行なった。

左半葉に試薬のメタミドホスを散布 ($1,280 \mu\text{g}$) し、主脈および右半葉中のメタミドホスの移行、消長を求めた。この結果を Fig. 8 に示す。

図に示すように左半葉に散布されたメタミドホスは主脈を通過し、右半葉へ移行するにもかかわらず、この場合も主脈中にはメタミドホスの存在量は少ない。すなわちメタミドホスは主脈を通過するだけで、貯留されることは少ない。

一方、主脈中にアセフェートを注入した場合、主脈中にメタミドホスが生成するかどうかを調べた。半葉を削除したタバコの葉の主脈中に、アセフェート $50 \mu\text{g}$ を 3

Fig. 8 Translocation of methamidophos after application to left half of leaf.
△: In right half of leaf, ▲: In midrib.

Fig. 9 Translocation of acephate and methamidophos after injection of acephate to the midrib.

○: Acephate in mesophyll, ●: Acephate in midrib, △: Methamidophos in mesophyll, ▲: Methamidophos in midrib.

カ所に分けて注入した。この際、注入の針先が維管束に入らないように注意した。処理後経時的に葉を採取し、主脈、葉肉に分けてアセフェートおよびメタミドホスを定量した。その結果を Fig. 9 に示す。この場合にも葉肉中には経過日数に従ってメタミドホスが生成してくるが、主脈中には多くのアセフェートが存在してもメタミドホスの生成量は少ない。

以上3種の実験結果 (Fig. 7, 8, 9) から、主脈中には常にメタミドホスの存在が少なく主脈中に滞留しないことがわかった。また主脈中に少ないことから、アセフェートの代謝活性が葉肉部よりも主脈のほうが弱いことが推測される。

Fig. 10 Translocation of acephate and methamidophos from bottom to top portion.
○: Acephate, △: Methamidophos.

Fig. 11 Translocation of acephate from applied leaf to other leaves.

2) 葉元部から葉先端への移行

アセフェート水和剤を葉元部に散布した場合の、葉先端への移行状態の結果を Fig. 10 に示す。図に示すように葉先端への移行アセフェート量は、散布後7~14日で最高値となった。一方、メタミドホスは処理後21日まで増加傾向を示した。これらを主脈をはさんだ半葉間での移行結果 (Fig. 7) と比較すると、処理後の移行量増加の期間も長く、移行量も多い。このことは葉の縦方向の移動は横方向よりも容易であることを示している。植物の蒸散流はおおむね縦方向であるので、これが移行に関与していることが考えられる。

以上の結果でみると葉内の移行量は小さく、量も移行量の多い葉元から葉先端への移行の14日後でも、散布部位の残留量に対して、移行量は1.6% (アセフェート+メタミドホス) であった。散布したアセフェートの大部分は散布部位に留っており植物組織内部の移動経路にま

では到達していないことを示している。

4. 葉間移行

アセフェート散布葉から、他の無散布葉への散布 10 日後の移行状態を Fig. 11 に示す。図に示すようにアセフェート移行量は散布葉から遠ざかるに従って小さくなり、散布葉から上位へ 5 枚目の葉では検出されなかったが、メタミドホスの形ではわずかに存在した。メタミドホスも上位葉は散布葉から遠ざかるに従って低くなる傾向を示したが、両者とも移行量は小さい。

以上 2, 3, 4 節の結果、アセフェート剤は浸透移行性農薬といわれているが、タバコの葉面散布では葉面から組織内への侵入はあるが、1 枚の葉の部位、着葉間とも移行は小さいことがわかった。

要 約

有機リン系殺虫剤のアセフェート水和剤をタバコ葉面に散布した場合の、アセフェートおよびその代謝物のメタミドホスのタバコ植物中での動向について調べた。すなわち水和剤散布後の経時的消長、葉組織内への侵入、葉内移行および葉間移行などについて実験を行ない、次の結果を得た。

経時的消長：経過日数に対して残留量を対数で表わすと、タバコ葉中のアセフェート濃度はほぼ直線状態で減少したが、散布後 3～7 日まではやや減少が早く、約 2 カ月で 1 ppm まで減少した。そのときのアセフェートからの代謝により生成するメタミドホスは、散布後 7 日までは増加し、それ以降は経過日数に従って減少した。またガラス板上に放置したアセフェートは、葉面上よりも分解が少なく、メタミドホスへの代謝もみられなかつ

た。

葉組織内への侵入：アセフェートは散布処理後 24 時間で残留量の 22%，7 日後で 82% は葉組織内に侵入した。

葉内移行：左半葉に散布したアセフェートは、2 日後に主脈に多く移行し、その後右半葉にメタミドホスの形で残留した。葉元部から葉先端部への移行のほうが、半葉間の移行よりも移行量が多かった。

葉間移行：散布葉から遠い葉ほど移行量は小さくなる傾向を示したが、移行量は非常に少なかった。

引用文献

- 1) 山本 出・深見順一：農薬，ソフトサイエンス社，p. 87, 318, 1127, 1128, 1979
- 2) 福永一夫編：農薬ハンドブック，日本植物防疫協会，p. 55, 359, 1976
- 3) 山本隆司・中臣謙太郎・石部公一：農薬生産技術 **28**, 12 (1972)
- 4) D. L. Bull: *J. Agric. Food Chem.* **27**, 268 (1979)
- 5) J. A. Lubkowitz, J. Baruel, A. P. de Revilla & M. M. Cermeli: *J. Agric. Food Chem.* **21**, 143 (1973)
- 6) J. B. Leary: *J. Assoc. Off. Anal. Chem.* **54**, 1396 (1971)
- 7) J. B. Leary: *J. Assoc. Off. Anal. Chem.* **57**, 189 (1974)
- 8) 日本食品分析センター，私信 (1978)
- 9) 後藤真康：農薬誌 学会設立記念号，57 (1975)
- 10) 金沢 純・湯嶋 健・桐谷圭治：科学 **41**, 426 (1971)
- 11) 鈴木直治：農薬の生理作用，南江堂，p. 48, 1978
- 12) R. K. Lindquist & H. R. Krueger: *J. Food Chem.* **23**, 122 (1975)