

アルドリン、ディルドリンの残留とその対策

山本公昭[※]・坂本信行[※]・奴田原誠克[※]

食品での農薬残留が社会問題化し、高知県でも農業生産サイドからの調査研究の必要性が認められ、昨年4月、農林技術研究所に農薬残留研究室が設置された。そして筆者らがその任に当たることとなったが、何さま未経験者の集りであり、その責任を果せるかどうか、すこぶる自信のない話であった。分析用の器具、器材の揃った昨年7月より実際の作業が開始されて以来、早くも1年が経過した。この間当面の問題点であったアルドリン、ディルドリンの残留に集点をしぼり、調査や試験を実施してきたので、こゝにその結果の概要を述べ、あわせて内外の研究紹介も行ない読者の皆様の参考に供することにした。

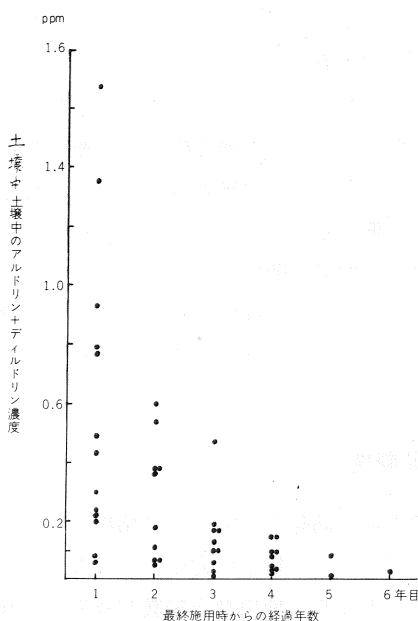
1. 土壌での残留期間

ネアブラムシ、ケラ、タネバエ、ウリバエなどの土壌害虫の防除を目的として施用されたアルドリン剤は、土壌中で酸化されてディルドリンに変化する。ともに土壌中で安定であり遅くまでその効果があるが、この性質が逆に残留面からみればマイナスとなり、使用禁止後数年経過した現在でも土壌に残留しており、キュウリなどの栽培農家をなやませている。そこで研究を始めるに当って、まずアルドリン剤施用後何年経過すれば、キュウリを安心して栽培できるかという疑問を解決しなければならぬと考えた。そのためには土壌中での消失状況をまず知らねばならない。

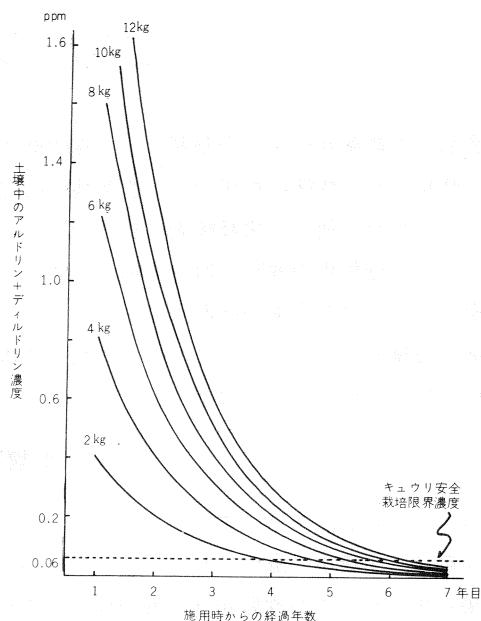
この農薬の土壌残留については、早くからアメリカやカナダで研究されており、エドワート (1966) は4%粉剤として10aあたり3~10kg程度施薬した場合、その95%が消失する期間は1~6年(平均3年)、ディルドリンは5~25年(平均8年)であろうと推定している。これらは畑地を対象とした考察であるが、高知県衛生研究所の上田氏ら(1971)は県下のビニールハウス土壌について調査し、アルドリンとディルドリンの含量でもってその減衰状況をみたところ、半減期が約1年であったと報じており、徳島農試の永井氏(1972)も同様な見解を示した。半減期1年とは、毎年1ppm→0.5ppm→0.25ppm→0.125ppmと減少することを指している。

筆者らも県下の水田地帯の土壌(ビニールハウス土壌も含む)について、そのほ場の履歴調査と土壌分析を行なった。その結果、(1)同一ほ場に数年間にわたってアルドリン粉剤が用いられている例が多いこと、(2)その施薬量は1回につき10aあたり2~9kgと巾が広いこと、(3)施用後4~5年経過してもなおアルドリンが検出されるほ場もあれば、2年ですでに消失しているほ場もあること、(4)施用後の年数が経過するにしたがいディルドリンの占める割合が大きくなることなどを知った。そして施薬後の経過年数別にアルドリン、ディルドリン含量を並べてみると第1図のような関係図が得られた。たゞしこゝでいう経過年数は最終施用年次から起算したものであって、同一ほ場に5年前4年前、3年前に用いられている場合は3年目の土壌として取扱っている。なおこの図には上田氏らのデータも加えてある。年数が経過するにしたがって土壌中の濃度が順次減少しており、各年度の平均値を結べば、ほゞきれいな減衰曲線が画ける。しかし一方各年度の中で大きなバラツキがある点は見逃せない。施薬量や土壌条件がそれぞれ異なっているので、バラツキは当然のことである。

※高知県農林技術研究所 「楠農報」第26巻、第8号、1972



第1図 アルドリン剤施用ほ場におけるアルドリン、ディルドリンの残留実態



第2図 アルドリン剤施用土壌における推定減衰曲線
(図中の数値は4%アルドリン粉剤の10aあたり施用量)

うが、何らかの方法でこれを整理する必要がある。

そこでまず上田氏の提案した半減期1年という考え方を用地、理論的推定値と実際の値が合致するかどうかを検討した。県下の水田の作土量は10万kg~15万kgであり、使用されていた粉剤は4%のものであったから、施薬直後のアルドリン濃度は計算できる。この濃度が毎年 $\frac{1}{2}$ 量づつ減少すると仮定して計算すれば施薬年次さえ判れば分析時の濃度を推定できる。履歴調査のうち調査項目すべてに回答のあったほ場について、推定値と実際の分析値を比較したところ、第1表のような結果となった。

第1表 分析値と推定値の対比

分析値が推定値より高い試料の数	4 点	16%
分析値が推定値の範囲内に入った試料の数	7 点	29%
分析値が推定値の範囲からわずかにはみ出た試料の数	6 点	25%
分析値が推定値より明らかに低い試料の数	7 点	29%
計	24 点	100%

きっちり調査のうち、施薬量は記憶にたよっており、ある程度の誤りはあろうかと思われるので、分析値と推定値が完全に一致することはあり得ないが、分析値が推定値の範囲からわずかにはみでた試料数を含めて両

者が合致した試料数は過半数を占めた。そして約30%に相当する試料が推定値より分析値が低くなっていた。これらは半減期が約1年またはそれ以下という考え方の妥当性を示すものと思われた。

念のため半減期1年とし、10aの作土量を10万kgとした場合の経過年数と残留量との関係、つまり推定減衰曲線を第2図に示しておいた。第1図と対比してみるとよく似ていることに気付かれるはずである。そして施薬量が異なっても6~7年経過すると残留量はほとんど差がなくなる点に注

目して頂きたい。なお図中0.06ppmのところには点線を記入してあるが、これは後述のキュウリ安全栽培限界線である。

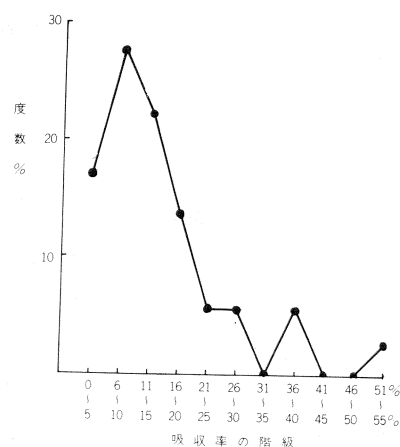
ただここで注意をうながしておきたいのは、以上の結果は毎年水稻を栽培するとか、ハウス栽培ほ場で毎年夏季に湛水するようなほ場を対象にしているという点である。水田でも周年にわたり畑作物を栽培しているほ場や畑地は対象外である。その理由は、今回の調査で畑地土壌の試料が少なかったので検討対象となり得なかったこと、および後述の土壌中のディルドリン分解実験において、湛水条件ではかなりの分解が認められたにもかかわらず、畑条件ではほとんどそれがみられなかったためである。

2. キュウリでの残留と安全栽培基準

作物の種類、栽培条件、気象、土壌および生育のステージなどによって作物体内のアルドリン、ディルドリンの残留濃度が異なる。この度合を調べる指標として、あまり適切でないが吸収率（または移行率）という言葉が用いられている。たとえば、土壌濃度が1.00ppmであり、キュウリ果実中の濃度が0.05ppmであった場合、 $(\text{キュウリ果実のppm} / \text{土壌中のppm}) \times 100 = 0.05 / 1.00 \times 100 = 5\%$ と表示するように約束されている。キュウリ果実の吸収率については、アメリカのリヒテンシュタイン（1970）は12～14%，上田氏ら（1971）は県下のハウス栽培キュウリの平均値が約13%であったと報じている。

今回行なったハウスキュウリについての調査データと、上田氏のデータを合わせた36例の吸収率の度数分布を示したのが第3図である。こゝで吸収率の最低は3%，最高は51%そして平均は16%であったが、6～10%のものが最も多く、それ以上吸収率が高くなるにしたがって順次調査例数が少なくなっていた。これら調査は農薬安全対策の一方法として農家の作物選定の目安をたてるため、土壌濃度からキュウリの残留量を推定しようとして進められたものであるが、その趣旨から考えて吸収率の平均値を用いるよりは、その上限を用いるほうがより安全であることはいうまでもない。ただ第3図の上限である51%を用いるのは、その調査例数が少ないことから、あまりにも安全性を強調しすぎるように思われた。そこでこの図の分布からみて上限を30%と考えることとした。すなわち土壌濃度が0.1ppmならキュウリ果実では多くても0.03ppm止りであろうと推定するわけである。

厚生省告示で示されているキュウリ果実でのアルドリン、ディルドリン含量の残留基準（昨年まで残留許容量といわれていた言葉で現在はこのように呼ばれている）は0.02ppmであるから、これ以下の残留量を期待するには、上記の吸収率上限である30%から計算して土壌濃度は $0.02 \times 100 / 30 \div 0.06\text{ppm}$ 以下にする必要がある。したがって、第2図の推定減衰曲線からみて、0.06ppm以下になるには、施薬量が2kgなら4年目、3～5kgなら5年目、6～10kgなら6年目、11～12kgなら7



第3図 キュウリ果実の吸収率のバラツキ

年目であることが判る。

徳島農試の永井氏は第2表に示しているようなキュウリの安全栽培基準を昭和45年10月に発表し、その基準作成過程の詳細を今年報告している。筆者らの導き出した数値を第2表の形式に合わせて記載すると第3表のようになる。第2表は実測値にもとずき基準を作成しているの、分析試料のなかった5年以上の基準はないが、第3表では実測値にもとずき推定減衰曲線を作成し、吸収率の上限を定め、これより基準を作成したので、分析試料のなかった7年目のものについても推定できた。

問題はこれら表を利用する際の施薬量の換算方法である。両者とも半減期を約1年と考えたので、2年以上にわたって施薬されたほ場については、永井氏の換算方法をそのまま利用させて貰うこととした。たとえば、5年前、4年前、2年前に各々10aあたり4kg、6kg、4kg施用されている場合は、 $(4 \times \frac{1}{2} \times \frac{1}{2} \times \frac{1}{2}) + (6 \times \frac{1}{2} \times \frac{1}{2}) + 4 = 0.5 + 1.5 + 4 = 6.0$ の計算により、2年前に6.0kg施用されたものとして取扱い、第3表の相当欄をみてキュウリ栽培の可否を決めるわけである。

昨年まで県では施薬後3～4年経過すれば安全な栽培が可能であろうとの見解を示していたが、これは応急的にたてた農林省の見解に従ったためであり、現場の一部ではこれが適用されるほ場もあるが、今後はかなりの安全性を見込んだ第3表を利用して頂きたいものである。

3. そ菜の種類別にみた残留量

土壤にアルドリノやディルドリンが多量残留している場合の対策として、もっとも確実な方法はこれら農薬を吸収、残留しないような作物を栽培することであろう。作物の吸収の難易を調べた成績として農林省農業技術研究所の金沢氏(1971)がアメリカやカナダの研究結果を取まとめ紹介しているところによると、吸収率の平均値はニンジン24.2%、パレイシヨ9.6%、ダイコン8.7%、ダイズ8.3%、キュウリ6.4%、レタス4.1%、カブ3.1%、セルリー0.9%、タマネギ0.9%となっている。これらは各地の調査結果を単純平均したものであるから、必ずしもこの順位で吸収しやすいとは限らないが、およその目安をたてることはできる。また上田氏(1970)は県下の実態調査結果からキュウリの吸収率の平均が13%であり、ピーマン、ナス、トマトでは1%以下であったと報じている。そしてナス科のものは高濃度汚染土壤を除いてほとんど問題はないとのべている。

筆者らは既往の成績を調べているうちに、それらの大部分が現地の実態調査や数種類の作物間の比較試験より得られていることに気付き、同一条件下または同一ほ場内で多種の作物を栽培し、その吸収と残留の状況を直接比較しようと考え、畑心土を用いたポット試験と水田や畑地におけるほ

第2表 アルドリノ粉剤施用ほ場における
キュウリの安全栽培基準(徳島県)

経過年数 施用量※	0	1	2	3	4
1 kg以下	△	△			
3 kg以下	×	×	△	△	
6 kg以下	×	×	×	△	△
9 kg以下	×	×	×	△	△
12kg以下	×	×	×	×	△

無印：栽培可 ×：栽培不可
△：基準をこえることがある。

※ 10aあたりの施用量

第3表 アルドリノ粉剤施用からキュウリ
安全栽培までの経過年数
(高知県)

経過年数 施用量※	1	2	3	4	5	6	7
1 kg	×	×	○	○	○	○	○
2 kg	×	×	×	○	○	○	○
3～5 kg	×	×	×	×	○	○	○
6～10kg	×	×	×	×	×	○	○
11～12kg	×	×	×	×	×	×	○

○：栽培可 ×：栽培不可

※ 10aあたりの施用量

第4表 そ菜可食部についてのアルドリン、ディルドリンの残留比較

(残留量はアルドリン、ディルドリン含量、比較値はキュウリを100とした値、n dは0.001ppm以下)

作物の分類		作物名	分析部位	ポット試験		ほ場試験(水田)		ほ場試験(畑)	
				残留量	比較値	残留量	比較値	残留量	比較値
				ppm		ppm		ppm	
果菜類	ウリ科	キュウリ	果実	0.024	100	0.022	100	0.051	100
		シロウリ	〃					0.034	67
	ナス科	ナス	〃	nd	0	nd	0	nd	0
		トマト	〃	nd	0				
		ピーマン	〃	nd	0	nd	0	nd	0
葉菜類	マメ科	インゲン	〃	nd	0	0.001	5	nd	0
	十字科	ハクサイ	葉			0.003	13		
		キャベツ	〃			0.004	18	0.002	4
	アカザ科	ホーレンソウ	〃			0.010	45		
		フダンソウ	〃			0.004	18		
根菜類	十字科	ダイコン	根	0.017	71	0.016	73		
	カラカサバナ科	ニンジン	〃	0.023	96	0.112	509		
	ヒルガオ科	サツマイモ	〃			0.008	36	0.034	67
	ナス科	パレイショ	地下茎			0.046	209		

場試験を実施した。このうちポット試験では成分量が0.2ppmになるようアルドリンのアセトン溶液を土壤に添加し、水田土壤での試験では10aあたり4%アルドリン粉剤を5kg施用し、畑試験ではアルドリン、ディルドリン含量が2.03ppm残留している畑地を選んで実施した。これらはアルドリン施用直後の栽培もあり、一般ほ場より高い濃度の土壤における試験も含んでいるので吸収率による比較をやめ、キュウリ果実の残留濃度を100として他の作物の可食部の指数を求め、3試験の結果を一括して比較した。その結果、ホーレンソウを「や、多いグループ」に入れるのが妥当かも知れないという心配が残されたが、およそ第5表のような分類が可能と思われた。

つまり高い土壤残留が予想されるほ場では、キュウリや根菜類の作付は適当でなく、ナス科のものやインゲンがまず安全であり、ついで葉菜類が安全であるといえる。

つぎに作物学的な分類にしたがって、類別の残留傾向をいまいし説明してみよう。

〔果菜類〕ウリ科：スイカ、メロンについて調査していないので確かではないが、カボチャがキュウリと同程度の残留を示すことを別の調査で確かめているので、第4表のシロウリの結果と考えあわせ、ウリ科の果実は残留が多いのではないかと考えている。キュウリの出荷時期と残留量の関係を知るため、果実濃度の時期的変化を調べたところ、ごく初期のものを除いて、濃度はある範囲内で一定していた。また体内分布をみたところ、40葉展開時で、根>茎>葉>果実の順で濃度が高く、その比率は18.6:6.9:1.2:1.0であり、根に著るしく多いことを知った。

マメ科：インゲンでの残留が少ないことは前述したが、ダイズでは多いようである。ダイズに

第5表 そ菜（可食部）のアルドリノ、ディルドリン
の残留程度

残留の多いグループ	ニンジン（根）、キュウリ、バレイショ
残留のやゝ多いグループ	シロウリ、ダイコン（根）、サツマイモ
残留の少ないグループ	ホーレンソウ、ハクサイ、キャベツ、フダンソウ
残留のほとんどないグループ	ナス、トマト、ピーマン、インゲン

示しているが、県下の調査や試験結果ではほとんど残留しておらず、トマト、ピーマンも同様であった。しかし葉には結構残留しており根葉類の葉よりも高い値を示す場合もあるので、ナス科では葉から果実への移行が少ないのではないかと考えられる。

〔葉菜類〕 一部レタスやホーレンソウでやゝ高い値が報告されていることもあるが、一般に葉菜類の葉の残留濃度は低いようである。第4表のホーレンソウで他の葉菜よりも高い濃度が示されているが、これは葉の分析にあたり、根も食用に供するからとの判断で根の一部を葉と混合して分析したため、高濃度の根の影響をうけて高い値を示したのではないかと考えている。

〔根菜類〕 ゴボウ、ニンジン、ダイコン、バレイショ、サツマイモなどの根または塊茎は、一般に高い残留を示す。そして例外なく濃度は根と葉の関係にある。根菜類の葉の濃度が果菜類や葉菜類の葉よりも低い場合があるので、根菜類がとくに多く吸収する性質をもっているとはいえないようである。根菜類の残留が多いといわれるのは、食用部位が根という残留の多い部位であることからきているのである。たゞニンジンのみは別格できわめて多くのものを吸収するようである。

3. ディルドリンの土壤中での分解方法

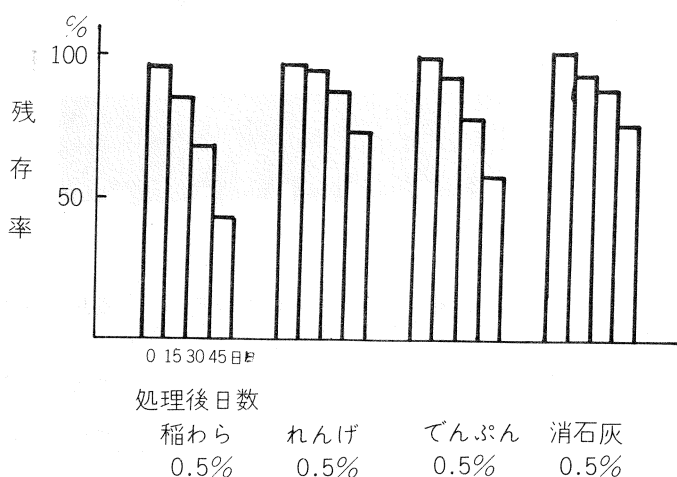
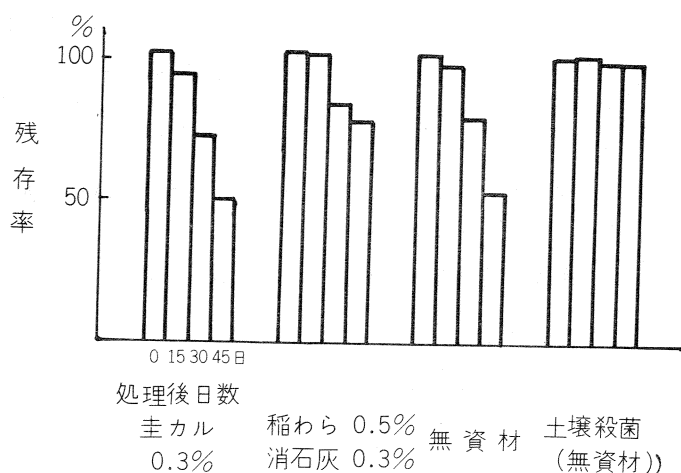
フィリピン国際稲作研究所の吉田氏ら（1970, 1971）は、土壤中の有機塩素系殺虫剤の分解消失が、畑条件と湛水条件でどのように異なるかを4種の土壌を用いて検討している。それによると、BHC, DDT, DDD, ヘプタクロール、メトオキシクロールなどは、湛水条件下での消失が畑条件よりも早い、クロールデン、ディルドリンは両条件で消失速度に差はなく、しかもその速度が遅いと報告している。

筆者らは単なる湛水处理のみでなく、これと同時に何らかの資材を添加することにより、ディルドリンの分解が可能になるのではないかと考え、当研究所の水田土壌（風乾細土）を大型試験管に入れ、0.5ppmになるようディルドリンを添加したのち、設計に従って稲わら、れんげ、でんぷん、消石灰、珪カルを加え、別に土壌殺菌した区も設け、これらを畑状態と湛水状態でもって30℃の恒温槽に放置し、15日、30日、45日目に取出し分析した。その結果、湛水条件では第4図に示したような消失がみられたが、畑条件ではほとんど消失が認められなかった。これらは吉田氏らの結果と様相を異にしたが、土壌の差がこのような結果をもたらしたのであろう。

第4図によると無資材区で45日間に添加量の47%が消失しており、これに対して土壌殺菌区では全然消失してなかった。このことは消失が土壌微生物の働きによる分解であることを示している。分解促進を狙った各地の動向をみると、稲わら0.5%添加区は56%の分解がみられ、約10%の促進となった。しかしでんぷん0.5%、珪カル0.3%添加では効果はなく、れんげ0.5%と消石灰0.3%ではむしろ分解を抑制した。土壌殺菌区を除き土壌は還元しており、畑土壌で分解がみられなかったこ

多い理由は子実に含まれている油にアルドリノやディルドリンが溶け込むためであろうと説明されている。

ナス科： 川原氏（1971）によるとナス果実の吸収率が4.4～6.9%と比較的高い値を



第4図 土壌処理がディルドリン分解におよぼす影響（湛水条件）

とから、微生物が嫌気性菌であることは判るが、稲わらで分解が促進され、でんぷんで効果がなかった理由は判然としない。多分稲わら添加で分解菌の増殖をうながしたのであろうが、その点、れんげ施用は嫌気分解で有害有機酸が生成され、分解菌の活性阻害が起ったとも考えられる。現地ほ場の試験ならば有害有機酸は下層へ溶脱されるので、これほど長期に影響が残るとは考えられないが、本実験が試験管で実施されているところに問題がある。消石灰 0.3% (10 a あたり 300 kg に相当) 施用で分解を抑制した理由も明らかでなく、今後施用量を変えるなどして、さらに検討する予定である。

現在、解毒に関する室内および現地ほ場試験を実施中であるので、これらの結果が出て改めてお知らせすることにするが、不十分な成績であって汚染対策を指示するならばつぎようになる。

(1) 周年にわたる畑作物の栽培は残留期間を長くするから好ましく

ない。水稻を栽培するとか、湛水処理を行なってディルドリンの分解をはかる。

(2) 水稻を栽培する場合には、早期の土壌還元を狙って稲わらを10 a あたり300kg程度施用する。

(3) ハウス跡地で湛水処理を行なう場合は、稲わらがあれば10 a あたり500程度施用し、水を張り

充分代かきを行ない水持ちを良くし、早期の土壌還元化をはかる。湛水期間は長いほどよく、その期間中は水を切らさないようにする。

お わ り に

十分な知識、技術を持たないまま、研究を開始したので、当初予定していた研究計画から大巾の遅れをとったことをまずお断りしなければならない。研究目標は、(1) 土壌に残留しているアルドリ、ディルドリンが何年経過すれば安全領域にまで低下するか、(2) 安全領域にまで低下していないほ場にはどのような作物を栽培すればよいか、(3) 汚染土壌でキュウリを栽培する場合、ドリンのキュウリへの吸収を抑制する方法はないか、(4) 土壌中のドリンの実用的な解毒法はないか、な

どであった。結局(1), (2)は不完全ながら一応消化したが, (3)は数回にわたる実験でも良い方法が見付からず, ついには急がば廻れとばかり「キュウリ体内残留分布とその時期別変化の追跡」というような基礎的な問題から解決してゆくこととし, (4)は足がかりをつかんだもののさらに効果的な方法を求めて現在なお検討中である。

今後は国や各県の研究成果が続々と出るはずであるから, 単にドリン剤のみでなく各種の農薬について, 当研究所の成果も含めて順次紹介するつもりである。

終りに調査や試料採取にご協力を頂いた各農業改良普及所の職員の方々に厚くお礼を申し上げます。

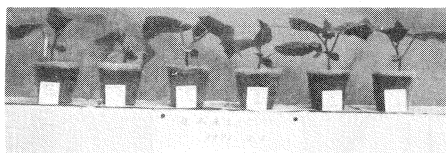
お詫び

7月号(第26巻)4ページの第1図, 第2図の写真が印刷所の手違いにより抜けていましたので補足しおわびします。



第1図 ピートモスの混合割合, 水管理の違いとキュウリ苗の生育

左から	{	ピートモス A : 土	1 : 3	湛水
		"	1 : 3	慣行
		"	1 : 1	湛水
		"	1 : 1	慣行
		"	1 : 0	湛水
		"	1 : 0	慣行



第2図 バーク堆肥の混合割合, 施肥量の違いとキュウリ苗の生育

左から	{	木質堆肥	1 : 3, 160mg	
		バーク堆肥 A	1 : 1, 160	
		"	1 : 3, 160,	無石灰
		"	1 : 3, 480	
		"	1 : 3, 320	
		"	1 : 3, 160	