

## 水田に散布した除草剤の水および土壌中の濃度推移

谷川元一・西村憲三

Change of Benthocarb and Symetryn Concentration  
in Water and Soil in Paddy Field

Motokazu TANIGAWA and Kenzo NISHIMURA

## Summary

Fate and persistence of herbicides (benthocarb and symetryn) applied to paddy field in water and soil were investigated.

The maximum concentration of benthocarb and symetryn in flooding water were 0.327ppm and 0.209ppm, respectively, seven hours after the application. Then the concentration of two herbicides rapidly decreased for seven days and gradually thereafter. The concentration of benthocarb was higher for initial two days after the application and then became lower than symetryn.

The concentration of benthocarb and symetryn in leaching water were the maximal, 0.037ppm and 0.065ppm, respectively, four days after the application and then the concentration of herbicides gradually decreased thereafter.

The maximum concentration of benthocarb in upper soil layer was 0.759ppm, and its concentration decreased for 14 days and then little changed. The maximum concentration of symetryn in the upper layer was 0.110ppm, and the concentration decreased rapidly for 14 days and gradually after that. The concentrations of benthocarb and symetryn in lower soil layer were lower than that of upper soil. But there were no apparent change of two herbicides concentration in the layer. The concentration of benthocarb in both layers was higher than that of symetryn.

Key words : benthocarb, symetryn, paddy field, flooding water, soil

## 緒 言

水稻栽培において、除草剤は雑草防除の省力化および生産の安定化に大きな役割を果たしており、不可欠な資材となっている。一方で、水田で散布された除草剤の一部は河川へ流出しており<sup>1-5)</sup>、その軽減が求められている。

これを目的として、土壌カラムやライシメーターを用いた多くのモデル試験が実施され、表面排水や土壌浸透水、土壌中の除草剤について、水溶性と流出率および溶脱性の関係などが明らかにされてきた<sup>5-7)</sup>。河川への除草剤流出を軽減するた

めには、モデル試験の結果を実証するとともに、実態を把握することが必要であるが、実際の水田での調査は少なく<sup>1, 2, 6, 8)</sup>、資料も十分でない。特に、田面水、土壌浸透水および土壌中の除草剤について同時に調査した例はない。

今回、このような観点から、本県で多く使用されているベンチオカーブ7.0%・シメトリン1.5%粒剤(サターンS粒剤<sup>®</sup>)を水田に散布し、田面水、土壌浸透水および土壌について除草剤濃度の推移を同時に調査したので報告する。

なお、本研究の遂行において、吉田 弘主任技員と中 郁子氏には多大な援助と協力を得た。

### 材料および方法

#### 1.水田および除草剤

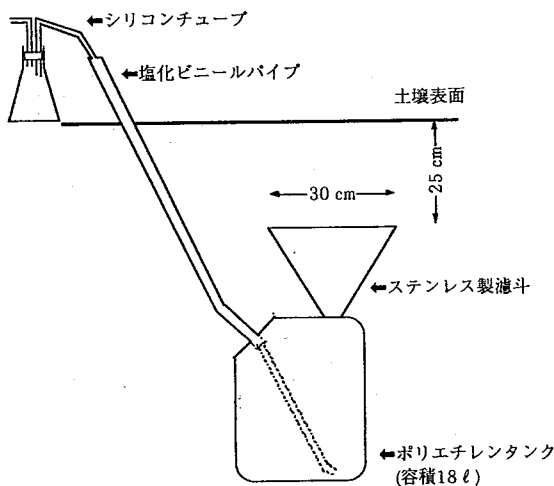
奈良県農業試験場内の水田（面積：7a [35×20 m]，土壤統：清武統，減水深：10mm/日）で調査を実施した。1998年6月9日に代かき，12日に田植え，22日に10a 当たり 3kgのサターン S<sup>®</sup>粒剤を散布した。

除草剤散布後から調査期間中（平成10年6月22日～8月23日）は，田面水のかけ流しを一切行わず，減水深による田面水の減少に対しては随時水路から水田に給水し，常に水深1.2cm～7cmの湛水状態に管理した。

#### 2.田面水および土壤浸透水の採取

水田の4ヶ所から水をそれぞれ約200mlずつピッカーに採取し，合わせて分析用の田面水試料とした。

土壤浸透水を採取するため，第1図に示した採取器を製作し，1997年6月5日に畦畔から約2m離れた箇所に土壤表面から25cmの深さに敷設した。同年に水稻を栽培した後，本調査に用いた。シリコンチューブに接続した3ℓ容の三角フラスコ内を真空ポンプで減圧して，ポリエチレンタンクに貯まっている水を採取し，分析用の土壤浸透水試料とした。



第1図 土壤浸透水採取器

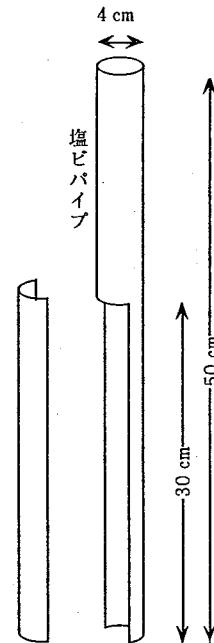
Fig. 1. The apparatus for collecting soil leaching water

ステンレス製濾斗の内側下半分をガラスウールで充填した。採水は三角フラスコを真空ポンプで吸引して行った。

散布当日は，散布の2，4，7時間後に田面水を採取した。さらに，1，4，7日後に，それ以降は7日毎に8月23日まで，田面水および土壤浸透水を午後1時に採取した。採取後，直ちに実験室に運び，濾過せずに除草剤の分析に供試した。

#### 3.水田土壤の採取

水田土壤を採取するため，第2図に示した採取器を製作した。水田の3ヶ所で，土壤表面から20cmの深さまで採取し，静かに傾斜させて田面水を除去した。採取器からカラム状の土壤を外し，トレイに載せて直ちに実験室まで運んだ。



第2図 土壤採取器

Fig. 2. The apparatus for soil sampling

予備調査の結果，採取したカラム状の土壤の長さは約16cmであることがわかっていたので，上部から8cmを上層，それ以下を下層とした。土壤を層毎に合わせ，それぞれをよく混和した後，除草剤濃度の測定に供試した。散布の1，4，7日後に，それ以降は7日毎に8月23日まで調査した。

#### 4.除草剤の分析操作

##### 4-1.田面水および土壤浸透水

それぞれの400mlを分液漏斗に入れ，飽和食塩

水40mlを加えて、ジクロロメタン40mlで2回抽出した。無水硫酸ナトリウムでジクロロメタン層を脱水し、減圧濃縮器を用いて溶媒を留去した。空気を通して乾固させ、アセトンに溶解し、除草剤濃度の測定に供試した。

#### 4-2. 土壌

土壌20g(生重)に水20mlおよびアセトン100mlを加えて、30分間振とうした。吸引濾過し、アセトン50mlで洗浄後、減圧濃縮器を用いて溶媒を留去した。濃縮液に水40mlと飽和食塩水40mlを加えて分液漏斗に入れ、ジクロロメタン40mlで2回抽出した。無水硫酸ナトリウムでジクロロメタン層を脱水し、溶媒を留去した後、空気を通して乾固させた。

残留物をヘキサン5mlに溶解し、予めヘキサン5mlで洗浄しておいたシリカゲルミニカラム(Sep-Pak)に注入した。ヘキサン10mlでカラムを洗浄した後、アセトン/ヘキサン(15:85)10mlで溶出し、溶出画分を減圧濃縮した。残留物をアセトン2mlに溶解し、除草剤濃度の測定に供試した。

#### 5. 除草剤濃度の測定の条件

ガスクロマトグラフィーの条件を第1表に示した。なお、本試験法におけるベンチオカーブおよびシメトリンの検出限界は、水で0.0001ppm、土壌で0.001ppmであった。また、両除草剤の回収率は、水および土壌で88%以上であった。

第1表 ガスクロマトグラフィーの条件

Table 1. Conditions of gas-chromatographic analysis

種類	HEWLET PACKERD HP 6890
検出器	日本電子automas15Ⅱ質量分析計 イオン化：電子衝撃法、イオン化エネルギー：70eV
カラム	GLサイエンス社製NB-1、内径0.25mm、膜厚0.4μm、長さ30m
注入法	スプリットレス
温度	気化室：250℃、インターフェイス：230℃、イオン化室：255℃ カラム：100℃で1分間保持、8℃/分の昇温で240℃ 20℃/分の昇温で310℃、10分間保持
ガス	ヘリウムガス、流量1ml/分
モニターイオン (m/z)	ベンチオカーブ100/257、シメトリン213/170

### 結果および考察

#### 1. 田面水中の除草剤濃度

田面水中における両除草剤の濃度推移を第3図に、半減期を第2表に示した。ベンチオカーブは散布後7時間で最高の0.327ppmに達し、その後7日間で急激に減少して0.037ppmになり、以降は緩やかに減少した。シメトリンは散布後7時間で最高の0.209ppmに達した後、7日で急激に減少して0.081ppmになり、以降は緩やかに減少した。

第2表 田面水におけるベンチオカーブおよびシメトリンの減衰\*1

Table 2. Half life of herbicides in flooding water

農薬名	回帰式*2	半減期(日)
ベンチオカーブ	$\log y = -0.0311x + 2.10$ ( $R^2 = 0.844$ )	3.4
シメトリン	$\log y = -0.0286x + 2.18$ ( $R^2 = 0.923$ )	3.8

\*1 最高濃度に達した7時間以降

\*2 x:経過日数、y:農薬濃度(ppb)

水面に施用した粒剤の表面排水中の濃度推移は、ほとんどの場合、散布直後に粒剤から溶出して最高濃度に達した後、土壌吸着によって急激に濃度低下し、その後、緩慢に減少するというパターンが得られる<sup>5)</sup>。本調査では、かけ流しを一切行わなかったため、表面排水は発生しなかった。このため、田面水中の濃度推移を調査の対象にしたが、そのパターンは先の表面排水のものと同様であった。

サターンS<sup>®</sup>粒剤の場合、均一な除草効果の発現と河川への流出軽減のために、水管理として、散布後3~4日間はかけ流しをしないように指導されている。今回の試験では、4日後でもベンチオカーブは最高濃度の25%以上、シメトリンは50%以上が田面水に含まれていた。栽培条件や自然条件の異なる他の水田に今回の結果を直接適用することはできないが、除草剤の流出を軽減するには上記の期間では不足であり、両除草剤とも急激に低下する期間である散布後7日間は止水状態にしておく必要があると考える。また、給排水の省力化のため、除草剤散布後も水口を開放状態にしている水田があるが、散布後は水口を完全に閉

鎖し、田面水の流出を防ぐことが重要である。少なくとも、水路と水口の間、必要な湛水の深さに相当する高さの仕切板を設け、さらに、水路を流れる水をそれよりもやや高くするように調節することで、給水はできて自由には排水できないようにする工夫が必要である。

過去の調査では、田面水の水位を深くすると、ベンチオカーブ濃度が低くなることが報告されている<sup>1)</sup>。しかし、奈良県では梅雨に入ってから田植えをする地域が多く、降雨によって田面水が水路や河川に溢れ出る場合があるので、不必要に深い湛水にしないことが必要である。

### 2. 土壌浸透水中の除草剤濃度

土壌浸透水中における両除草剤の推移を第3図に示した。散布後4日にシメトリンが0.065ppm、ベンチオカーブが0.037ppmで最高濃度に達し、その後は両除草剤とも緩やかに減少した。また、散布後28日間までシメトリンの濃度がベンチオカーブよりも高かった。

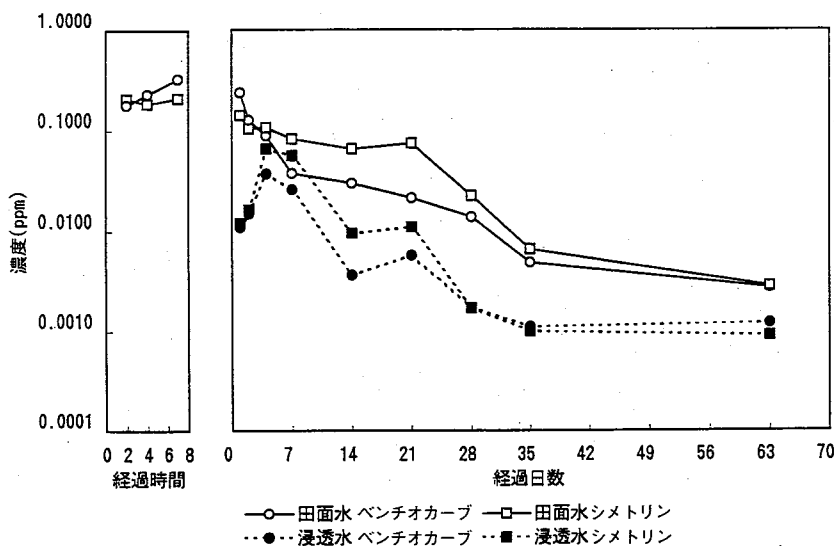
土壌カラムやライシメーターを用いた調査で、浸透水中の濃度および流出率は水溶性の高い除草剤ほど高いことが報告されている<sup>5-7)</sup>。ベンチオカーブとシメトリンの水に対する溶解度はそれぞれ、30ppmと450ppmであり<sup>9)</sup>、今回の調査でも、浸透水中のシメトリンの濃度は散布21日までベンチオカーブの濃度よりも高かった。

深さ60cmで減水深30mm以内/日のライシメーターを用いた調査によると、両除草剤とも土壌充填直後には浸透水中に検出されるものの、3年後にはほとんど検出限界以下 (<0.1ppb) になっている<sup>6)</sup>。また、深さ60cmで減水深30mm/日の土壌カラムを用いた調査では、両除草剤とも0.05ppb以下になっている<sup>7)</sup>。今回の調査では、調査期間中を通して先の調査の結果よりも著しく高い濃度で推移した。採取器の設置時に耕盤層を破壊したことや、採取器を深さ25cmに敷設したために、採取器で得られた水量は実際の減水深よりも約9倍多かった。これが原因で、田面水中の除草剤が実際の減水深による浸透水よりもはるかに多く降下していったものと考えられた。

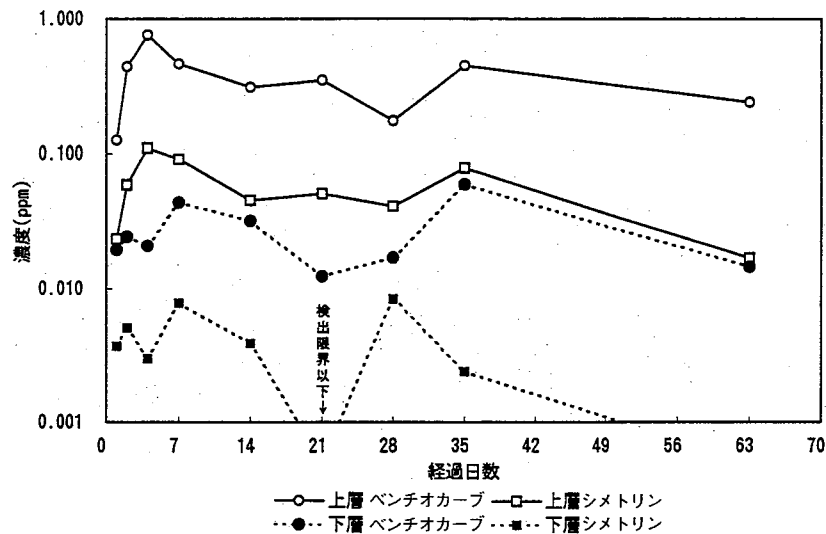
今回の調査は実際の土壌浸透水ではなく、むしろ、深さ25cmの土壌カラムから採取した浸透水のものといえる。このことから、薄い土層を浸透する水には高濃度の除草剤が含まれていると考えられた。薄い土層の浸透水が発生する例としては、水田畦畔における小動物の孔隙による漏水がある。これは水田から水路・河川への水平方向の浸透水であるが、除草剤の散布直後は高濃度の浸透水が流出するので、畦シートの設置や畦塗りを十分に、漏水防止策を構ることが重要である。

### 3. 土壌中の除草剤濃度

土壌の上層および下層における両除草剤の推移



第3図 田面水および浸透水中における除草剤濃度の推移  
Fig. 3. Time-course of herbicides concentrations in water



第4図 土壌中における除草剤濃度の推移

Fig. 4. Chaging of herbicides concetrations in water

を第4図に示した。上層では、ベンチオカーブは散布後4日で最高の0.759ppmに達し、14日まで速やかに減少した後、ほぼ横這いで推移した。シメトリンも同様の傾向を示し、散布後4日で最高の0.110ppmに達し、14日まで減少した後、漸次減少した。また、調査期間を通して、シメトリンに対するベンチオカーブの土壌中濃度は4.3~7.5倍であり、両除草剤の成分含有率の割合である4.7(≒7.0%/1.5%)が大きく影響していることが示唆された。

下層では、両除草剤は上層よりも低い濃度で推移したが、はっきりとした増減の傾向は認められなかった。シメトリンに対するベンチオカーブの土壌中濃度は散布後1週間まで4.2~7.0倍であり、上層と同様、成分含有率の割合が大きく影響していることが示唆された。

ライシメーターおよび土壌カラムを用いた調査では、湛水状態の場合、ベンチオカーブおよびシメトリンとも表層5cmまでに多く残留することが報告されている<sup>6,7)</sup>。今回の調査でも、両除草剤とも上層の濃度が高かった。また、比較的水溶性の高い除草剤は土壌中を移行しやすく、反対に、難溶性のものは移行しにくいと報告されている<sup>6,10)</sup>。しかし、今回の調査では、上層と下層の両除草剤の濃度の割合は両薬剤の成分含有率の割合に近く、ベンチオカーブよりもシメトリンが高いという傾向は見られなかった。この原因としては次のこと

が考えられる。先の試験では減水深を20~50mm/日に設定してあり、今回の水田の10mm/日より大きい。このため、水溶性の高い除草剤ほど、実際よりも多く浸透水とともに下層に移行した可能性がある。

また、表層20cmまでの両除草剤の土壌残留率(土壌残留量/散布量×100)は、散布後4日にベンチオカーブが62.3%、シメトリンが42.2%で最高になり、調査終了時(63日後)には、16.9%、5.2%に減少した。一方、田面水中の残留率(水中残留量/散布量×100)は、散布後7時間でベンチオカーブが10.9%、シメトリンが32.5%で最高になり、以降漸次減少し、4日後でそれぞれ2.1%、11.7%、調査終了時(63日後)には、それぞれ0%、0.1%に減少した。河川への除草剤流出には、土壌粒子に吸着された状態で田面水とともに河川へ流出する経路がある。降雨によって土壌粒子を含む田面水が溢れ出すのを防ぐためにも、不必要に深い湛水にしないことが必要である。また、水尻近くの作業で、不用意に田面水と土壌粒子を汚濁状態にしないことも必要であろう。

今回、実際の水田にベンチオカーブおよびシメトリンを散布して、田面水、土壌浸透水および土壌中の動態について調査した。その結果はモデル試験で得られたものと多くの点で一致したが、土壌浸透性など一部で異なった結果が得られ、モデ

ル試験と様々な条件下にある生産現場における除草剤の動態に違いがあることが類推された。

水田では今回用いた除草剤以外にも数多くの除草剤が使用されており<sup>11)</sup>、それらについても水田での実態調査をさらに積み重ね、除草剤の動態を精密に把握することが必要である。また、近年、新規の除草剤が多く登場しており、使用量も増加している<sup>11)</sup>。しかし、これらの動態についての調査は少ない<sup>12-15)</sup>。このため、新規の除草剤についてもモデル試験による基礎データを収集し、水田で実証する必要がある。

### 摘 要

水田にベンチオカーブ7.0%・シメトリン1.5%粒剤を10a当たり3kg散布して、田面水、土壤浸透水、土壤中の動態について調査した。

田面水中では、ベンチオカーブおよびシメトリンは散布後7時間で、それぞれ、最高の0.327ppm、0.209ppmに達し、その後7日間で急激に減少した後、緩やかに減少した。散布後2日まではベンチオカーブの濃度がシメトリンよりも高かったが、以降は逆転した。

土壤浸透水中では、散布後4日後にベンチオカーブが0.037ppm、シメトリンが0.065ppmで最高濃度に達し、その以降は両除草剤とも緩やかに減少した。

土壌の上層では、ベンチオカーブは散布後4日で0.759ppmと最高になり、14日まで減少した後、ほぼ横這いで推移した。シメトリンは散布後4日で0.110ppmと最高になり、14日まで速やかに減少した後、漸次減少した。下層では、両除草剤とも上層よりも低い濃度で推移したが、はっきりとした増減の傾向は認められなかった。また、両層とも、ベンチオカーブがシメトリンよりも高い濃度であった。

### 引用文献

1. 築地邦晃・小澤龍生・飯村茂之. 1982. ベンチオカーブ剤の水田および河川における消長. 岩手農試研報. 23:105-112
2. 半川義行. 1985. 田面水および河川におけるモリネートの消長. 日本農薬学会誌. 10:107-112
3. 飯塚宏栄. 1989. 水田除草剤の水系における動態. 農環研報. 6:1-18
4. 小竹美恵子・豊田一郎. 1993. 水田排水が流入する小河川への水田農薬の流出. 愛知農総研報. 25:69-79
5. 丸 諭. 1993. 水系環境における農薬の動態に関する研究. 日本農薬学会誌. 18:135-143
6. 中村幸二. 1993. 農耕地における土壤・水圏環境における農薬の動態に関する研究. 埼玉農試研報. 46
7. 大谷良逸. 1988. 農業生産現場における農薬残留実態解明に関する研究. 兵庫中央農技センター特別研報. 12
8. 山田忠夫. 1984. 水田土壤中における除草剤の動態に関する研究. 雑草研究. 29:179-187
9. 上杉安彦・上路雅子・腰岡政二. 1997. 第3版最新農薬データブック. ソフトサイエンス社
10. 鎌塚昭三. 1977. 除草剤の土壤および植物体における分解, 代謝, 行動に関する研究. 日本農薬学会誌. 2:201-213
11. 農薬便覧. 1998. 日本植物防疫協会
12. Arita, H. and Kuwatsuka, S. 1991. Relationship between the degradation rate of the herbicide pyrazoxyfen and soil properties. J. Pesticide Sci. 16:71-76.
13. Wang, Y.S., Hwang, K.L., Hsieh, Y.N. and Chen, Y.L. 1992. Fate of the herbicide naproanilide in a rice paddy model ecosystem. J. Pesticide Sci. 17:161-167.
14. Srivastava, A. and Gupta, K.C. 1994. Dissipation of tralkoxydin in water-soil system. J. Pesticide Sci. 19:145-149.
15. Dermiyati, Kuwatsuka, S. and Yamamoto, I. 1997. Degradation of the herbicide halosulfuronmethyl in two soils under different environmental conditions. J. Pesticide Sci. 22:282-287.