

資料

水田農薬を対象とした排出推定モデルの甲突川への適用 (第Ⅱ報)

湯田 達也 永井 里央¹ 須納瀬 正
今泉 圭隆²

1 はじめに

農薬は、耕作地等に広範囲にわたって散布される化学物質であるため、近年環境への生態影響が懸念されている。本県では1997～1999年に県内の河川や湖沼の広域調査が行われ、その結果いくつかの地点で農薬が検出されたが、その多くは水田農薬であった¹⁾。水田に適用される農薬は排水路等を介して河川に排出されやすく、水環境への影響が大きいと考えられる。しかし、広範囲に及ぶ水環境中の農薬の濃度分布や時間的変動を把握するには多大な労力を要するため、ほとんど把握されていないのが現状である。そこで、数理モデルを用いて分布や変動を予測することが効果的であると考えられる。

当所では2009年から国立環境研究所との共同研究「水田農薬を対象とした排出推定モデルの検証とモデル向上に資する調査研究」において県内河川の調査を行っている。この研究においては、全国各地の河川を対象に、河川水中の水田農薬について調査し、国立環境研究所で開発している農薬排出推定モデルPeCHREM (Pesticide Chemicals High Resolution Estimation Method) 及び環境多媒体モデルG-CIEMS (Grid-Catchment Integrated Environmental Modeling System)²⁾による予測結果との検証を行っている^{3),4)}。

第Ⅰ報⁵⁾では、2009年に甲突川で行った河川水中の水田除草剤の調査結果を基に、モデルを用いて濃度変動を検証した。本報では、同河川で2012年に行った河川水中の水田除草剤、2011年及び2012年に行った殺菌剤及び殺虫剤の調査結果を基に、モデルによる予測との比較を行ったので報告する。

2 方法

2.1 調査地点及び調査期間等

調査対象地点は、図1に示す甲突川河頭大橋とした。年度毎の調査期間、調査間隔・回数は表1に示す。

2011年は水稻の作付期間を通して長期間調査を実施し、2012年は夏期に集中して調査を行った。

採取したサンプルは国立環境研究所に送付した。農薬の測定については、河川水試料500mLをガラス繊維ろ紙(Whatman, GF/C)でろ過し、Oasis HLBで固相抽出し、LC/MS/MS (Agilent1200+6460 Triple Quad LC/MS)にて定量を行った。



図1 調査地点

表1 調査期間及び調査間隔・回数

年	調査期間	調査間隔	回数
2011	4月1日～9月30日	約2週間	14
2012	7月23日～8月20日	1週間	5

2.2 排出推定モデルによる予測

モデルによる予測の概要としては、PeCHREMにて水田から河川中へ排出される農薬濃度を求め、G-CIEMSにて河川水中の農薬の大気、底質等の媒体間の移動を計算し、濃度分布を予測した。

1 鹿児島県立始良病院

〒899-5652 鹿児島県始良市平松6067

2 国立環境研究所

〒305-8506 茨城県つくば市小野川16-2

具体的には、まずPeCHREMにて次の手順で環境中へ排出される水田除草剤、殺菌剤、殺虫剤の濃度を予測した。水稲に用いられる除草剤製剤には一発処理剤、初期除草剤、後期除草剤などがあり、用途に応じて使用時期の範囲が設定されている。また、殺菌剤及び殺虫剤製剤には田植え前の育苗箱施薬剤、田植え後の本田防除剤があり、後者では稲の生育状況や病害虫の発生状況に対応した時期に防除が行われる。そこで、農薬製剤の使用記録を用いて、農薬登録上の使用時期と実際の使用時期の関係を解析した。解析結果と県内の農薬出荷量⁶⁾、田植え時期情報から水田除草剤、殺菌剤、殺虫剤の使用時期の分布を求めた。今回の予測には2010農薬年度に出荷された農薬の出荷量データを用いた。なお、田植え時期に関しては、本県では早期栽培と普通期栽培があるため、作付面積により農薬使用量を按分した。

次に、水田内の農薬原体の動態について、挙動予測モデルPADDY (Pesticide paddy field model)⁷⁾と水田農薬の溶解度と流出率の関係式⁸⁾を用いて大気への揮発量及び河川中への排出量の時空間的分布を求めた。最後に、土地利用GISデータを用いて各排出量をG-CIEMS上の各大気メッシュ及び河道に按分し、G-CIEMSにより環境中濃度変動を計算した。

3 結果及び考察

3. 1 水田除草剤

2012年に水田除草剤31種類を測定した結果、12種類の農薬が検出された。図2に甲突川河川水中の水田除草剤の実測濃度及び予測濃度の変動を示す。実線は予測濃度の日間変動を、黒丸は各調査日の実測濃度を表しており、濃度については対数軸で表示している。また、表2に最大濃度を実測値と予測値で比較した。この予測値は、モデルの予測のうち7月23日から8月20日までの期間の最大値である。

実測結果については、複数回検出されたものが多かったが、ピラゾレートでは検出されたのが5回のうち1回、シクロスルフアムロンでは2回のみであった。各水田除草剤の最大濃度は、0.002~0.033 $\mu\text{g/L}$ であり、0.1 $\mu\text{g/L}$ を超えるものは確認されなかった。

次に、モデルにより予測した水田除草剤の日間濃度変動と実測値を比較した。モデルによる予測では、栽培時期に応じて2つのピークが現れる山型の変動を示すものが多い。調査期間中に継続的に検出された水田除草剤のうち、プロモブチド、メフェナセット、ダイムロン、プレチラクロール、ベンスルフロンメチル、ACN、ピリノバックメチルZの実測値は、初期に検出された濃度か

ら減少していく推移であった。プロモブチドデプロモのみ、初期に検出された濃度から増加した。

また、図2より実測濃度と調査日の予測濃度を比較すると、実測濃度が予測濃度よりも高い濃度で推移する場合が多いことが見て取れる。

表2より調査期間内の最大濃度を実測値と予測値で比較すると、最大濃度の比が1/10から10までの範囲内に入っている除草剤は、メフェナセット、ダイムロン、プレチラクロール、ジメタメトリン、ピラゾレートの5種類であり、ピラゾレート以外は実測値が予測値を上回った。シクロスルフアムロン及びベンスルフロンメチルは、予測モデル上では本県で水稲に対してほとんど使用していないものと見なしているため、予測濃度が極めて低く、実測値が予測値を大きく上回った。オキサジクロメホン、ACN、プロモブチドデプロモ、ピリノバックメチルZは、物性値が不確定のため予測計算を行っていない。

モデルによる予測で2つのピークが現れる山型の変動を示す要因として、本県では早期栽培と普通期栽培の2つの栽培体系があり、除草剤は田植え時期に集中的に用いられることから、田植え時期の後にそれぞれピークが現れる。既報のとおり、甲突川流域の水田ではほとんどが普通期栽培であり、その田植え最盛日(6月中下旬)の約1週間後をピークとして徐々に除草剤の濃度が減少する。図2より実測値の濃度変動も予測と同様に徐々に減少しており、予測より実測のほうが濃度が高くなる傾向はあるものの、6月下旬のピーク以後に濃度が減少するという予測結果と、実測による7~8月の濃度推移が概ね一致することが明らかとなった。

3. 2 水田殺菌剤及び殺虫剤

3. 2. 1 濃度についての検証

(1) 水田殺菌剤

2011年、2012年に水田殺菌剤12種類を測定した結果、それぞれ9種類の農薬が検出された。図3、図4に甲突川河川水中の水田殺菌剤の実測濃度及び予測濃度の変動を示す。また、表3、表4に最大濃度を実測値と予測値で比較した。予測最大濃度は、表3ではモデルの予測による最大濃度となる日の値であり、表4ではモデルの予測のうち7月23日から8月20日までの期間の最大値である。

実測結果については、すべての水田殺菌剤で複数回検出されており、メトミノストロビンE及びアゾキシストロビンは2011年には検出された回数が少なかったが、2012年には連続して検出された。各殺菌剤の最大濃度は、2011年は0.002~0.223 $\mu\text{g/L}$ 、2012年は0.001

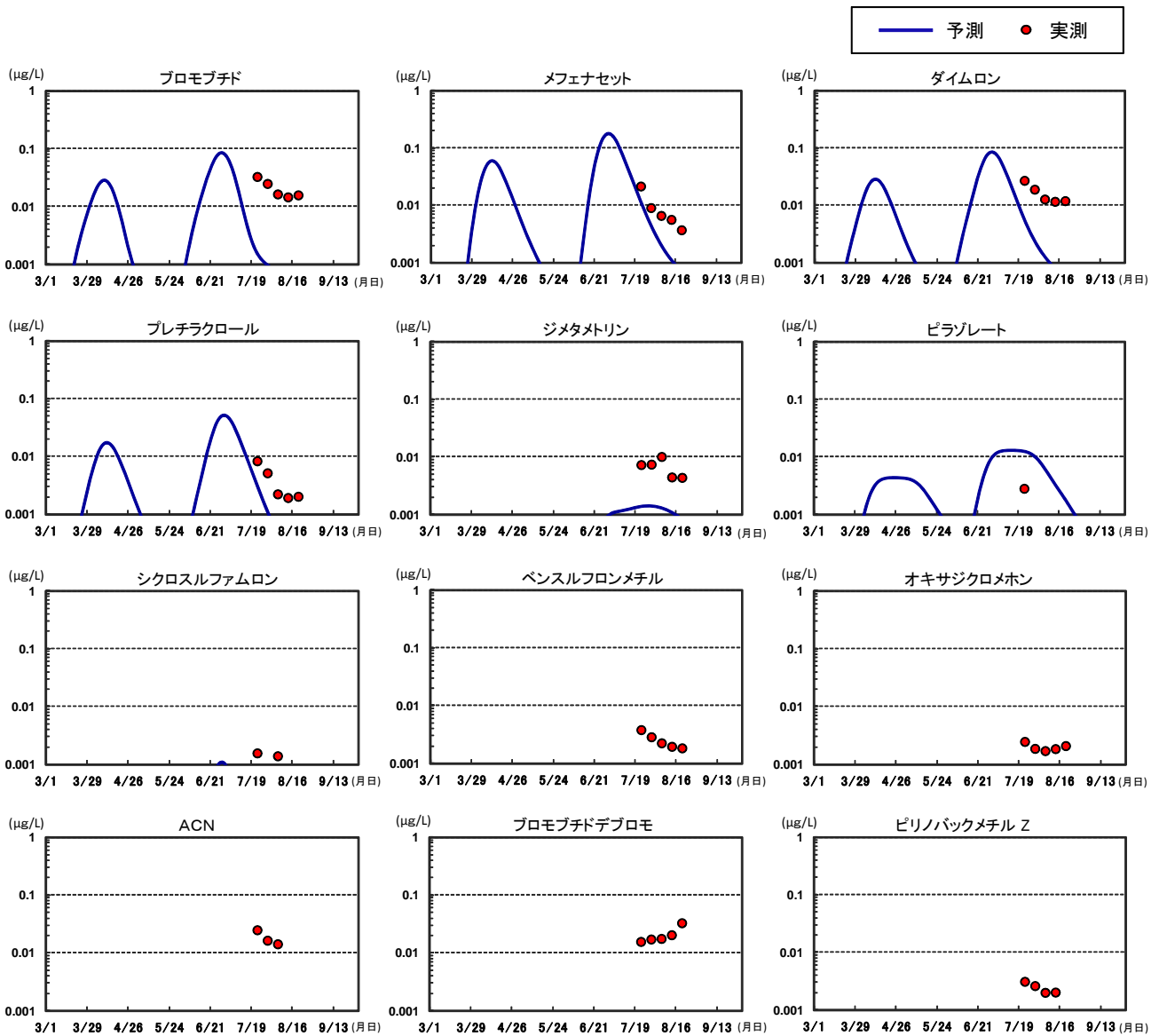


図2 甲突川河川水中の水田除草剤の濃度変動 (2012年)

表2 甲突川河川水中の水田除草剤の最大濃度 (2012年7月23日～8月20日)

物質名	最大濃度 (単位: µg/L)	
	予測	実測
プロモブチド	0.002	0.033
メフェナセット	0.012	0.022
ダイムロン	0.006	0.027
プレチラクロール	0.003	0.008
ジメタメトリン	0.001	0.010
ピラゾレート	0.012	0.003
シクロスルフアムロン	2.5×10^{-7}	0.002
ベンスルフロンメチル	2.4×10^{-7}	0.004
オキサジクロメホン	—	0.002
ACN	—	0.025
プロモブチドデプロモ	—	0.033
ビリミノバックメチルZ	—	0.003

～1.690µg/Lであり、2012年のフェリムゾンが特に高濃度で検出された。

次に、モデルにより予測した水田殺菌剤の日間濃度変動と実測値を比較した。予測は図3、図4ともに共通である。モデルによる予測では、2つのピークが現れる山型の変動を示すものがあり、ピロキロン、フラメトピル、イソプロチオランでは4月上旬と6月下旬に、フェリムゾンとフルトラニルでは7月上旬と8月下旬にピークを示した。それに対し、水稻の作付期間を通して長期間調査を実施した2011年の濃度変動では、明確に2つのピークを示す水田殺菌剤は認められなかった。前述のように甲突川流域での早期水稻の作付けは少ないことから、実測では4月上旬のピークは現れにくいものと考えられた。

また、図3、図4より実測濃度と調査日の予測濃度を比較すると、フルトラニルでは実測濃度が予測濃度よりも高い濃度で推移しているが、例えば2011年のフェリムゾンでは7～8月にかけて実測濃度と予測濃度の推移がほぼ重なるなど、時期によっては多くの水田殺菌剤で予測と実測がよく一致していることが見て取れる。2011年と2012年の実測値の推移を比較すると、7～8月の濃度変動が似ているものが多くみられ、今回調査した地域では水田殺菌剤の使用状況が1年程度ではほとんど変わらないことが推察される。しかし、指導機関が稲作栽培こよみを作成して基幹防除として掲載している農薬製剤は、同一県内でも地域によって異なることがあり、同じ年次でも水系が変われば河川中濃度の種類や量が異なることが考えられる。

表3、表4より最大濃度を実測値と予測値で比較すると、最大濃度の比が1/10から10までの範囲内に入っている予測精度が高い殺菌剤は、2011年が6種類、2012年が4種類と半数前後を占めた。アゾキシストロビン及びIBP（イプロベンホス）は、予測モデル上では本県で水稲に対してほとんど使用していないものと見なしているため、予測濃度が極めて低く、実測値が予測値を大きく上回った。トリシクラゾールは、物性値が不確定のため予測計算を行っていない。

モデルによる予測で8月下旬にピークが現れるのは、普通期栽培では生育後半の8月（穂の発育期～出穂期）に、いもち病や紋枯病等の基幹防除として、効果の高い殺菌剤であるフェリムゾン、フルトラニル等が用いられることから、その防除時期に山型のピークが現れる。フェリムゾン及びフルトラニルでは、実測においても2011年、2012年ともに8月下旬にかけて濃度が高くなる推移を示しており、予測濃度と実測濃度の変動傾向がよく一致している。また、フェリムゾン等は無人ヘリコプターの防除薬剤としても用いられることから、その影響についても今後検証する必要がある。

(2) 水田殺虫剤

2011年、2012年に水田殺虫剤12種類を測定した結果、それぞれ9種類の農薬が検出された。図5、図6に甲突川河川水中の水田殺虫剤の実測濃度及び予測濃度の変動を示す。また、表3、表4に最大濃度を実測値と予測値で比較した。予測最大濃度の説明は殺菌剤と同様である。

実測結果については、各殺虫剤の最大濃度が2011年は0.003～0.622 $\mu\text{g/L}$ 、2012年は0.002～0.564 $\mu\text{g/L}$ であり、両年ともにBMPC（フェノブカルブ）の濃度が最も高かった。複数回検出された殺虫剤が多かったが、

マラチオン、テブフェノジド、チアメトキサムは検出された回数が少なかった。

次に、モデルにより予測した水田殺虫剤の日間濃度変動と実測値を比較した。予測は図5、図6ともに共通である。モデルによる予測では、イミダクロプリド、ダイアジノン、クロチアニジンで3つのピークが、ジノテフラン、マラチオン、テブフェノジドでは後半に2つのピークが現れる山型の変動を示した。それに対し、水稲の作付期間を通して長期間調査を実施した2011年の濃度変動では、明確に2つまたは3つのピークを示す水田殺虫剤は認められなかった。水田殺菌剤と同様の理由により、実測では4月上旬のピークは現れにくいものと考えられた。

また、図5、図6より実測濃度と調査日の予測濃度を比較すると、テブフェノジド及びブプロフェジンを除き実測濃度が予測濃度よりも低い濃度で推移している。イミダクロプリドでは、2011年の多くの調査日で実測濃度と予測濃度の推移がほぼ重なっており、2012年のイミダクロプリド、クロチアニジン、BMPCでも予測と実測がよく一致していることが見て取れる。2011年と2012年の実測値の推移を比較すると、7～8月の濃度変動が似ているものが多くみられ、水田殺菌剤と同様に水田殺虫剤の使用状況が1年程度ではほとんど変わらないことが推察される。

表3、表4より最大濃度を実測値と予測値で比較すると、最大濃度の比が1/10から10までの範囲内に入っている予測精度が高い殺虫剤は、2011年が5種類、2012年が4種類と半数前後を占めた。フィプロニルは、物性値が不確定のため予測計算を行っていない。

モデルによる予測で8月下旬から9月上旬にピークが現れるのは、普通期栽培では8月から9月にかけてウンカ類、コブノメイガ、カメムシ類等の発生が多くなるため、各害虫に効果の高い殺虫剤が用いられることから、その防除時期に山型のピークが現れる。今回の実測結果では、8月下旬から9月上旬に明確なピークが現れる水田殺虫剤は認められなかった。今回検出された殺虫剤の半数以上は、水稲以外の野菜や果樹にも適用があるため、種類によっては水田以外からの流出が河川中濃度に影響している可能性もある。

イミダクロプリドなど、予測濃度と実測濃度の変動傾向がよく一致している殺虫剤がある一方で、予測との乖離が大きい種類も認められることの要因として、①水稲の早期栽培及び普通期栽培の地域による割合の違い、②地域毎の使用農薬の違い、③水稲以外にも適用のある農薬が特に殺虫剤では多いことが考えられる。

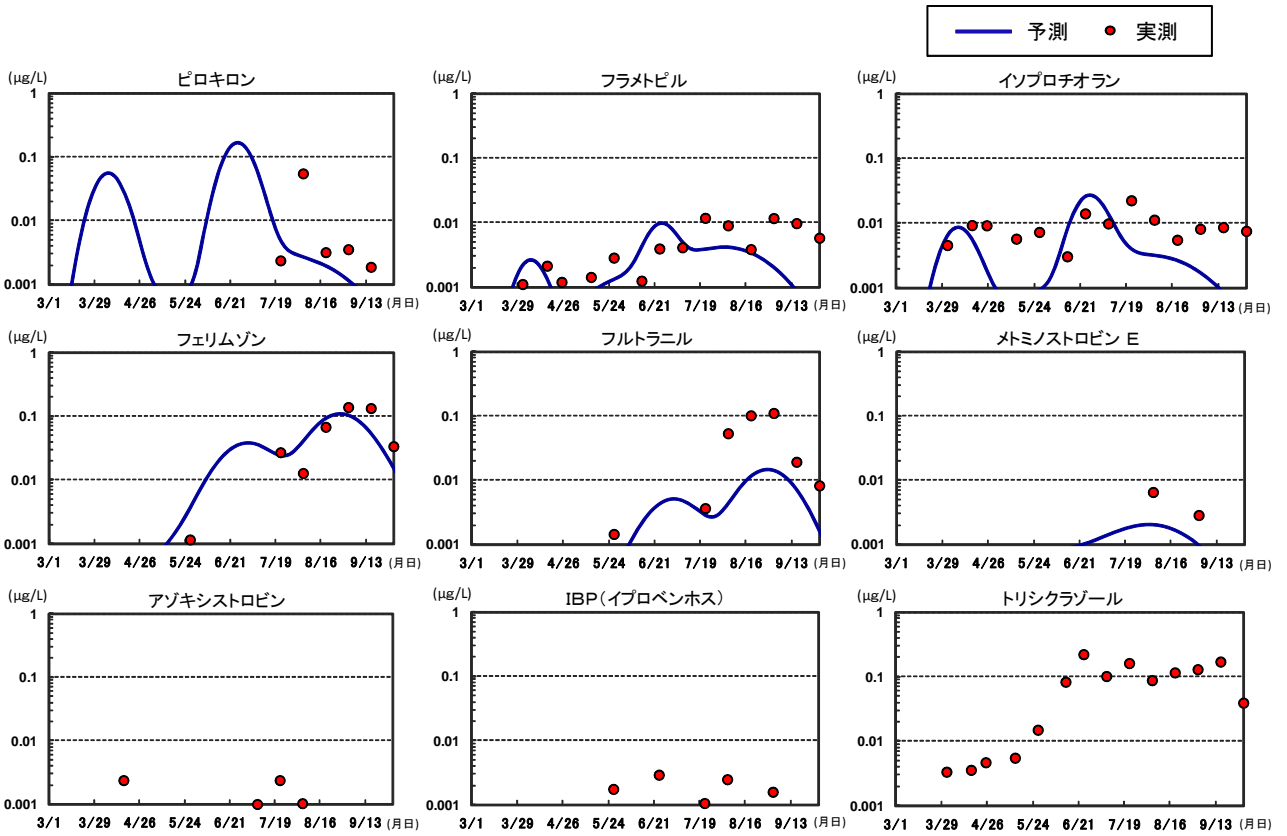


図3 甲突川河川水中の水田殺菌剤の濃度変動 (2011年)

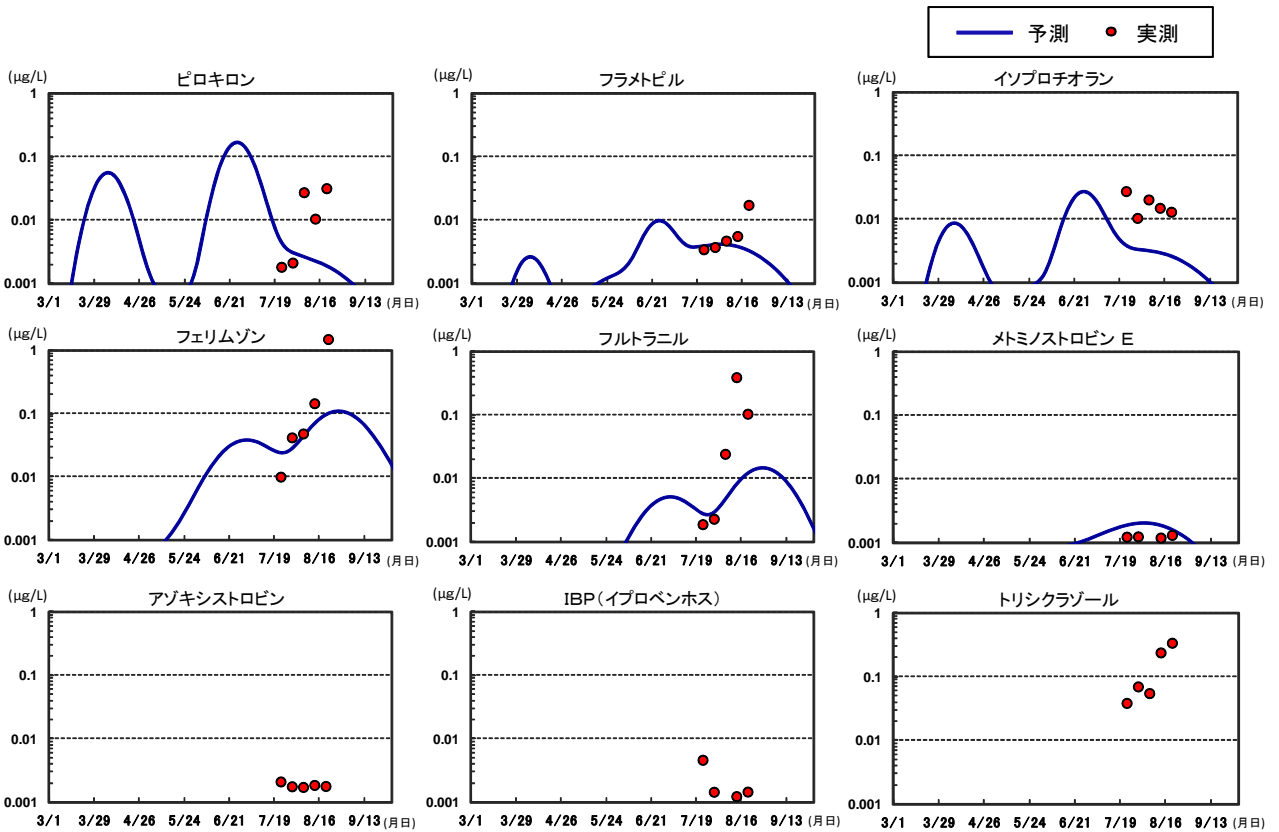


図4 甲突川河川水中の水田殺菌剤の濃度変動 (2012年)

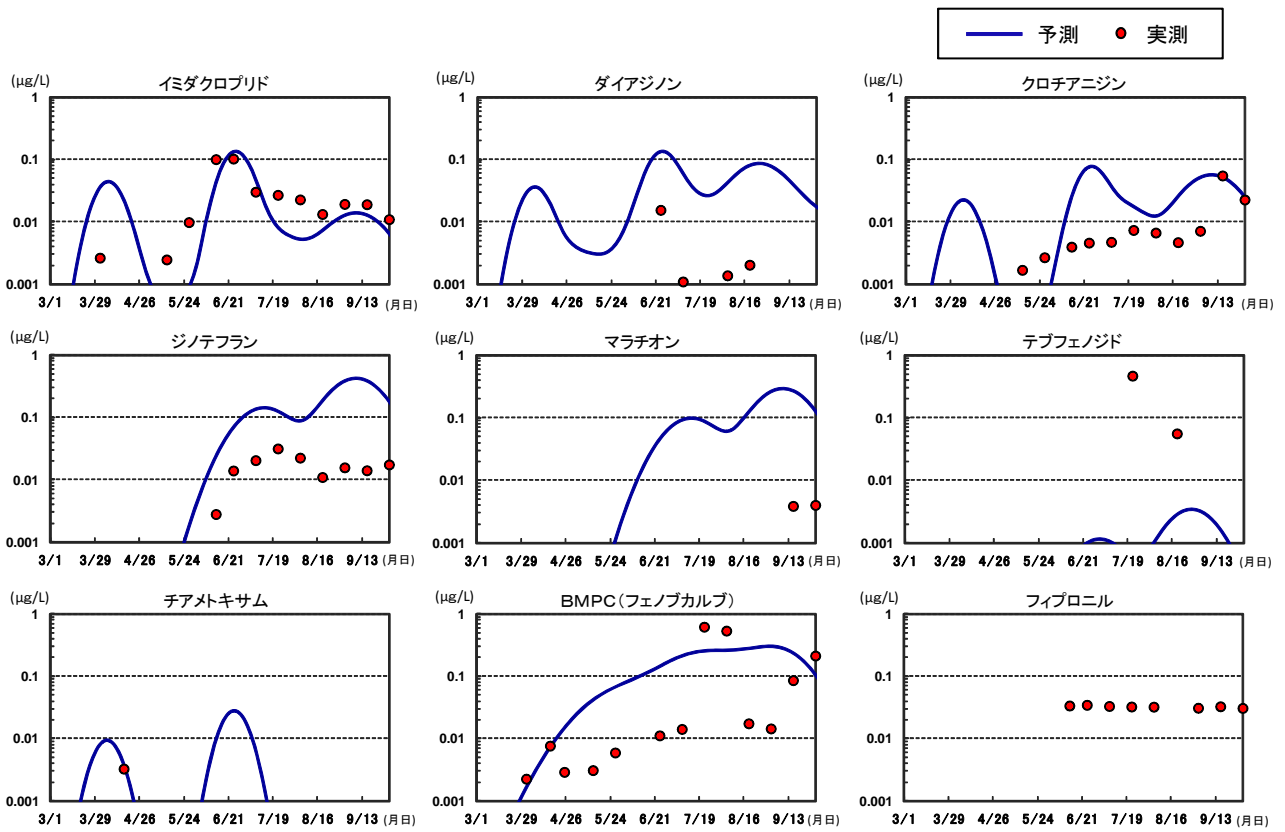


図5 甲突川河川水中の水田殺虫剤の濃度変動 (2011年)

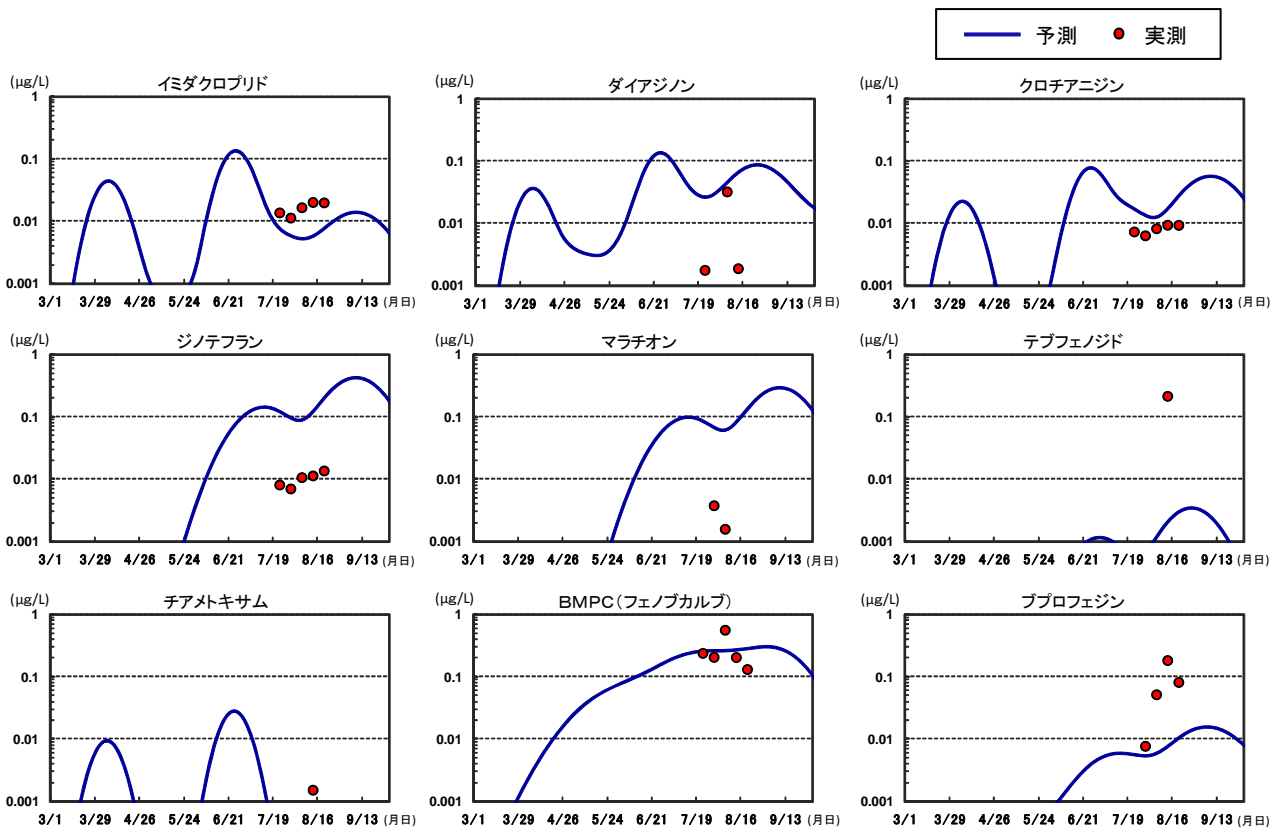


図6 甲突川河川水中の水田殺虫剤の濃度変動 (2012年)

表3 甲突川河川水中の水田殺菌剤及び殺虫剤の最大濃度並びに最大濃度日(2011年)

(上段：予測 下段：実測)

物質名	最大濃度 (µg/L)	最大濃度日 (月日)			
		4~5月	6~7月	8~9月	
殺菌剤	ピロキロン	0.168 0.055	4/7	6/26 8/5	
	フラメトビル	0.010 0.012	4/6	6/26 7/22	
	イソプロチオラン	0.027 0.023	4/8	6/26 7/22	
	フェリムゾン	0.108 0.139		7/2	8/28 9/2
	フルトラニル	0.014 0.111		7/2	8/29 9/2
	メトミノストロビンE	0.002 0.007			8/3 8/5
	アゾキシストロビン	5.1×10^{-11} 0.002		7/22	9/14
	I B P (イプロベンホス)	1.4×10^{-9} 0.003		6/24	9/30
	トリシクラゾール	— 0.223		6/24	
	イミダクロプリド	0.137 0.103	4/7	6/26 6/24	9/10
	ダイアジノン	0.134 0.016	4/6	6/25 6/24	8/25
	殺虫剤	クロチアニジン	0.077 0.055	4/6	6/26
ジノテフラン		0.426 0.032		7/14 7/22	9/9
マラチオン		0.297 0.004		7/14	9/10 9/30
テブフェノジド		0.003 0.469		7/1 7/22	8/28
チアメトキサム		0.028 0.003	4/6 4/16	6/25	
BMP C (フェノブカルブ)		0.298 0.622		7/22	9/1
フィプロニル		— 0.035		6/24	

表4 甲突川河川水中の水田殺菌剤及び殺虫剤の最大濃度(2012年7月23日~8月20日)

(単位：µg/L)

物質名	最大濃度	
	予測	実測
殺菌剤	ピロキロン	0.005 0.032
	フラメトビル	0.004 0.017
	イソプロチオラン	0.004 0.028
	フェリムゾン	0.095 1.690
	フルトラニル	0.012 0.392
	メトミノストロビンE	0.002 0.001
	アゾキシストロビン	3.9×10^{-11} 0.002
	I B P (イプロベンホス)	1.1×10^{-9} 0.005
	トリシクラゾール	— 0.339
	イミダクロプリド	0.008 0.020
殺虫剤	ダイアジノン	0.081 0.032
	クロチアニジン	0.027 0.009
	ジノテフラン	0.196 0.014
	マラチオン	0.134 0.004
	テブフェノジド	0.003 0.216
	チアメトキサム	4.8×10^{-5} 0.002
	BMP C (フェノブカルブ)	0.277 0.564
	ブプロフェジン	0.010 0.184

3. 2. 2 ピーク日についての検証

水田農薬の環境への影響を評価するには、ピークとなる時期を捉えることが重要であると考えられる。そこで、水稻の作付期間を通して長期間調査を行った2011年の14回の調査のうち、水田殺菌剤及び殺虫剤が最大濃度となった調査日(実測最大濃度日)と、モデルの予測により最大濃度となる日(予測最大濃度日)を比較した。

実測と予測の最大濃度月日を表3に示す。水田殺菌剤及び殺虫剤のモデルによる予測では、2つのピークまたは3つのピークが現れる山型の変動を示すことがあることから、4~5月、6~7月、8~9月の3つの期間に分けて各期間の最大濃度日を示した。そのうち、各水田殺菌剤及び殺虫剤の予測最大濃度日は網掛けで示している。

実測最大濃度日と予測最大濃度日の差が小さかった予測精度が高い農薬は、水田殺菌剤ではフェリムゾン、フルトラニル、メトミノストロビンEの3種類、水田殺虫剤では、イミダクロプリド、ダイアジノンの2種類で、その差は5日以内であった。2011年は調査間隔が約2週間であったが、上記の5種類以外で実測日と予測日の差が2週間以内に入る農薬はなく、20日から2ヶ月以上の差がみられるものもあった。ジノテフランでは、実測最大濃度日と予測最大濃度日が合わなかったものの、予測のピークのうち6~7月の期間の最大濃度日と実測最大濃度日の差が8日と小さく、このことは図5の濃度推移でも見て取れる。

4 まとめ

甲突川の河川水中の水田除草剤、殺菌剤、殺虫剤について調査し、モデルを用いて濃度変動を検証した結果、以下のことが分かった。

- 1) 水田除草剤では、予測より実測のほうが濃度が高くなる傾向はあるものの、6月下旬のピーク以後に濃度が減少するという予測結果と、実測による7~8月の濃度推移が概ね一致することが明らかとなった。
- 2) 水田殺菌剤及び殺虫剤の2011年と2012年の実測値の推移を比較すると、7~8月の濃度変動が似ているものが多くみられ、今回調査した甲突川流域では水田農薬の使用状況が1年程度ではほとんど変わらないことが推察される。
- 3) 水田殺菌剤及び殺虫剤の最大濃度を実測値と予測値で比較すると、最大濃度の比が1/10から10までの範囲内に入っている予測精度が高い農薬は半数前後を占めた。
- 4) 実測最大濃度日と予測最大濃度日の差が小さかった予測精度が高い農薬は、水田殺菌剤ではフェリムゾン、

フルトラニル，メトミノストロビンEの3種類，水田殺虫剤では，イミダクロプリド，ダイアジノンの2種類で，その差は5日以内であった。

これらの結果から，甲突川河川水中の水田除草剤，殺菌剤，殺虫剤について排出推定/環境動態モデル（PeCHREM/G-CIEMS）を適用して河川中濃度の変動をある程度の精度で予測できることが分かった。2011年のフェリムゾン，イミダクロプリドなど，予測濃度と実測濃度の変動傾向がよく一致している殺菌剤及び殺虫剤がある一方で，特にピーク日に関しては予測との乖離が大きい種類も認められる。この要因として，①水稻の早期栽培及び普通期栽培の地域による割合の違い，②地域毎の使用農薬の違い，③水稻以外にも適用のある農薬が特に殺虫剤では多いことが考えられ，今後，予測精度のさらなる向上に向けて検討の余地がある。

参考文献

- 1) 中俣宏二郎，中村宏，福留充；県内の公共用水域における農薬の調査結果，本誌，**2**，91～95（2001）
- 2) 鈴木規之，村澤香織，他；全国河川の河道構造データに基づく化学物質のGIS河川動態モデル（G-CIEMS）の開発と空間分布評価の試み，環境化学，**15**，385～395（2005）
- 3) 今泉圭隆，白石不二雄，他；日本全国の残留水田除草剤の濃度予測手法の開発と検証，第20回環境化学討論会要旨集，252～253（2011）
- 4) 今泉圭隆，白石不二雄，他；河川水中の農薬濃度モニタリングと水田農薬の環境中排出推定モデルの構築，第21回環境化学討論会要旨集，212～213（2012）
- 5) 永井里央，長井一文，今泉圭隆；水田農薬を対象とした排出推定モデルの甲突川への適用，本誌，**13**，105～108（2012）
- 6) 日本植物検疫協会；農薬要覧（2011）
- 7) 稲生圭哉；水田環境における農薬の挙動予測モデルの有効性の検証，農業環境技術研究報告，**23**，27～76（2004）
- 8) 丸論；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（1993）