

仁淀川水系柳瀬川流域における水稻用除草剤の流出調査

佐藤敦彦・清遠亜沙子・市原 勝

Herbicides released from paddy fields of Yananosegawa river basin

Atsuhiko SATO, Asako KIYOTO and Masaru ICHIHARA

要 約

仁淀川水系柳瀬川流域において、水稻栽培で使用された除草剤3成分(ダイムロン、プレチラクロール、メフェナセット)の流出状況を調査した。

1. 除草剤3成分の河川水中濃度は、それぞれの使用最盛期または、その直後にピークが認められた。しかし、調査期間中の環境基準点(黒岩橋)における河川水中濃度は、水産動植物の被害防止に係る農薬登録保留基準値を下回っていた。
2. 除草剤3成分の水田から河川への流出量は、使用最盛期間あるいは直後の降雨により増加する傾向が認められた。
3. 除草剤3成分の水田から河川への流出率は、ダイムロン>メフェナセット>プレチラクロールの順で高く、土壤吸着性が高い成分ほど低くなる傾向が認められた。

キーワード：水田、除草剤、流出、土壤吸着

はじめに

柳瀬川は高知県高岡郡佐川町古畑を源流として、伏尾川と合流して佐川平野を縦貫し、隣町の越知町柴尾において仁淀川に流入する一級河川である。流域のはほとんどは佐川町内、下流域の一部は越知町に位置し、流域面積79.4km²、流路延長18.2kmに及ぶ。流域の大半を占める佐川町は全体が山地で囲まれた盆地を形成しており、町内で水稻の作付けが行われている全水田群の内、流域外の加茂地区を除いた約9割の排水が柳瀬川へ流入していると考えられる。

特に水田条件においては、水田排水が排水路を経由して直接河川に流出し、畑条件に比べて処理した農薬が公共水域へ流出しやすい状況にあるため、流出による周辺環境の汚染や動植物への被害が懸念される。

そこで、柳瀬川流域における水稻用除草剤の河川への流出状況を確認するため、平成23、24年度の2カ年に渡り採水調査を実施したので、結果をとりま

とめて報告する。

なお、本調査は環境省農薬残留対策総合調査の水質農薬残留調査において実施した。本内容について環境省の取りまとめまたは見解ではなく、当センターの責任において取りまとめた。調査に当たってご協力いただいた環境省、検討委員の方々に深く感謝の意を表する。

調査方法

1. 地域概要

1) 地域概要と観測点

調査対象地域は柳瀬川の全流域とした。世界農林業センサス⁸⁾によると、柳瀬川流域での水稻栽培面積は348ha、畑87ha、樹園地60haが存在し、下流側より、黒岩(78ha)、佐川(123ha)、斗賀野(111ha)、尾川(35ha)の4つの水田群があり、これらに由来する水田排水が柳瀬川へ流入している。

本調査に当たっては各水田群を抉んだ形で観測点を配置した。柳瀬川には主観測点として黒岩橋(環

境基準点), 動態観測点として馬の原橋, 新由留岐橋, 新高平橋の4点, 支流の伏尾川には動態観測点として角ノ元橋, 橋(揚水)の2点, 合わせて6点を設け, 採水調査を行った(図1)。

2) 水稲栽培管理

調査対象地域での水稲栽培は, JAコスモスと県

が作成した水稲栽培ごよみ^{3,4)}に沿って行われている(図2). 黒岩の約半分(流域の全水田面積の約10%)で早期作, それ以外では普通期作による栽培が行われており, 二期作は行われていない. また, 排水は移植直前に行われ, 栽培中は基本的に排水を行わない. ただし, 栽培中でも中干し期に降雨が続いた際に排水, 登熟期に高温による登熟障害を防止するためにかけ流しが行われることがある. なお, 調査対象地域で除草剤使用の際は, 周辺環境への流出を防ぐため, 使用後7日間は落水, かけ流しを行わないよう指導が行われている.

2. 調査対象農薬

調査対象農薬は, 県内出荷量の多い水稲用除草剤である, ダイムロン, プレチラクロール, メフェナセットの3成分とし, その物理化学性を表1に示した. これら除草剤の調査対象地域での一般的な使用時期を県の防除指針⁵⁾より調査した. また, 実際の使用最盛期をJAコスモス組合員の栽培履歴(平成23年度は262戸のべ102ha, 平成24年度は217戸のべ92haを対象とした)により確認した. 調査対象地域全体での使用量は主要な販売元であるJAコスモスと民間業者1社の年間販売量の合計値とした. この使用量から推定される使用面積を流域の水稲栽培面積で除した値を普及率として算出した.

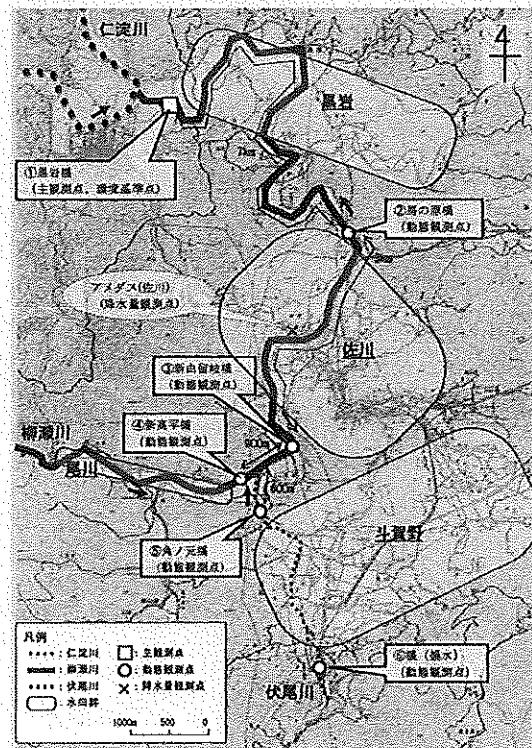
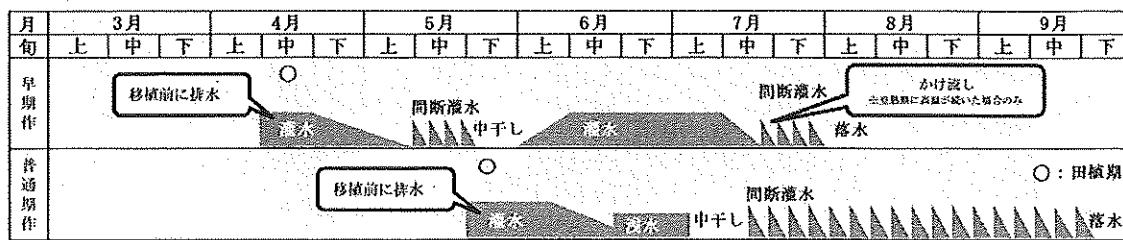


図1 観測点の配置図

表1 調査対象農薬の一般物理化学性

成分名	logPow	蒸気圧 (Pa)	水溶解度 (μg/L)	土壤吸着係数 (Koc)	水中光分解性半減期
ダイムロン	2.70	4.53×10^{-7} (25°C)	7.9×10^2 (20°C)	732~1213 (25°C)	> 7日 (滅菌蒸留水)
プレチラクロール	3.9	6.5×10^{-4} (25°C)	7.4×10^4 (25°C)	398~3362 (25°C)	約2日 (河川水, pH 7.3)
メフェナセット	3.23 (21°C)	4.5×10^{-7} (25°C)	5.2×10^3 (室温)	431~1850 (23°C)	80日 (滅菌蒸留水)

注) 農業ハンドブック2011年度版より抜粋



注) 原図: 2012年度早期水稲栽培ごよみ、2012年度普通期水稲栽培ごよみより抜粋、加筆

図2 水稲栽培ごよみによる水管理

3. 河川水中農薬残留濃度の測定

1) 採水

各観測点において、定期的に採水を行った。採水間隔は対象農薬の使用最盛期で2~3日、その前後で約1週間とし、平成23年度調査では5月18日から7月11日にかけて計14回、平成24年度調査では5月7日から7月10日にかけて計18回実施した。

水試料はステンレス製のパケツで河川表層から採水し、褐色瓶にとって輸送し、抽出および精製に供した。

2) 抽出および精製

平成23年度は未ろ過の水試料、平成24年度はガラス纖維ろ紙でろ過したものを分析用試料とした。

あらかじめアセトニトリル5mL、水5mLで洗浄したC18ミニカラム(MEGA Bond Elut C18 1g/6mL, Agilent Technologies社製)に分析用試料500mLを約1時間かけて負荷し、10分間の通気により乾燥させた。さらにアセトニトリル15mLで溶出させ、減圧濃縮後、窒素ガスで乾固した。残留物をアセトニトリル2mLに溶解したものをLC-MS/MS用試験溶液とした。

なお、精製操作は、厚生労働省水質管理目標設定項目検査方法⁶⁾を参考にし、分析操作はすべてn=2で実施した。

2) 定量

農薬成分の定量分析には、高速液体クロマトグラフ質量分析装置(LC-MS/MS: HPLC; 1200series, MS; 6410 triple quadrupole LC-MS, Agilent Technologies社製)を用いた。前項で調製した試験溶液5μLを機器に注入し、データ処理装置(Mass Hunter Workstation, Agilent Technologies社製)を用いて、得られたクロマトグラムのピーク面積から、絶対検量線法により定量した。

4. 農薬流出量・流出率の推定

1) 河川流量の算出

主観測点である黒岩橋においては、採水日に河川の幅および深さを測定し、河川断面積を算出した。さらに、電磁流速計(東邦電探 TK-105X)を使用して河川流速を測定し、河川断面積と流速の積より河川流量を算出した。

2) 農薬流出量・流出率の算出

主観測点である黒岩橋での各農薬成分の流出量を以下の式によって求めた。

$$L_i = (T_i - T_{i-1}) (C_i Q_i + C_{i-1} Q_{i-1}) / 2$$

$$L = \sum L_i$$

L_i : 時刻 T_{i-1} と T_i の間の農薬流出量(g)

L : 調査期間中の農薬の総流出量(g)

C_i : 時刻 T_i における農薬濃度(g/L)

Q_i : 時刻 T_i における河川流量(L/h)

また、流域での総使用量と調査期間中の総流出量の比から流出率を算出した。

5. 気象観測情報

採水調査期間中の降水量について、アメダス(佐川)での観測データを収集した。

結 果

1. 農薬の使用時期・量

調査対象農薬の使用時期や流域での総使用量等を表2に示した。ダイムロン、プレチラクロール、メフェナセットの使用時期(流域での使用最盛期)はそれぞれ移植時~13日後(平成23年度; 5月24日~6月13日, 平成24年度; 5月26日~6月10日), 植代時~移植30日後(平成23年度; 5月21日~6月2日, 平成24年度; 5月25日~6月10日)および移植5~15日後(平成23年度; 6月1日~17日, 平成24年度

表2 農薬の使用実態

成分名	商品名	調査年度	総使用量(g/流域)	普及率(%)	使用時期	使用最盛期
ダイムロン	イノーバ粒剤	23	30,465	20	移植時~	5月24日~6月13日
	ザークD17粒剤など	24	24,755	15	移植13日後	5月26日~6月10日
プレチラクロール	エリジャン乳剤	23	92,544	54	植代時~	5月21日~6月2日
	スラッシュヤ粒剤 ホクト粒剤など	24	104,214	62	移植30日後	5月25日~6月10日
メフェナセット	ザークD17粒剤	23	113,320	32	移植5日後~	6月1日~6月17日
	ポッシブルジャンボ リードゾン粒剤など	24	113,640	32	15日後	5月25日~6月14日

注) 使用時期は2012年7月時点での登録情報に基づく

; 5月25日～6月14日)であり、各成分の総使用量は30kg, 100kg, 110kg程度であった。普及率は、プレチラクロール(約60%), メフェナセット(約30%), ダイムロン(約20%)の順で高かった。

2. 降水量と河川流量

アメダスで観測された1時間当たりの降水量と採水調査時における河川流量を合わせて図3に示した。平成23年度は調査期間55日中30日で降雨(積算降水量917mm)が観測され、5月30日の台風時と6月20日の雨天時に、それぞれ日降水量が170mm, 110mmで1時間当たり最大30mmを超える降雨が発生していた。一方、平成24年度は65日中33日で降雨(積算降水量831mm)が観測され、6月12, 16, 19, 21日の雨天時に、日降水量62mm, 100mm, 113mm, 162mmの降雨が発生していた。なお、両年度の調査において、降水量に応じた河川流量の増減が認められた。

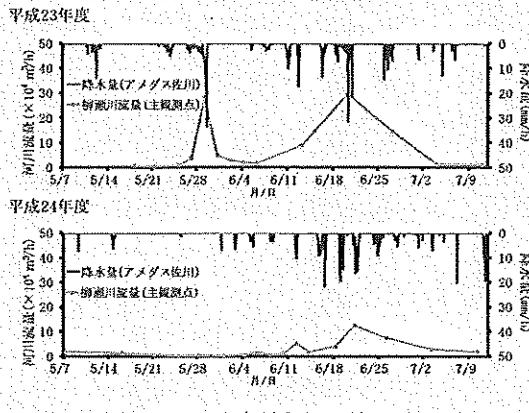


図3 降水量と河川流量

3. 農薬成分の河川水中濃度

各農薬成分の河川水中濃度と使用最盛期、1時間当たりの降水量を合わせて図4～6に示した。

河川水中濃度については、いずれの成分とも使用最盛期あるいはその直後にピークが認められた。平成23年度調査における、各農薬成分の最大検出濃度(観測点、観測日)は、ダイムロン、プレチラクロール、メフェナセットでそれぞれ $0.6 \mu\text{g/L}$ (黒岩橋, 6月6日), $2.0 \mu\text{g/L}$ (角ノ元橋, 5月27, 29日), $0.6 \mu\text{g/L}$ (角ノ元橋, 6月6日)を示した。また、同様に平成24年度調査では、それぞれ $1.4 \mu\text{g/L}$ (馬の原橋, 6月12日), $4.8 \mu\text{g/L}$ (角ノ元橋, 6月4日), $4.1 \mu\text{g/L}$ (角ノ元橋, 6月8日)を示した。いずれの成分においても、平成24年度調査で高い濃度を示した。

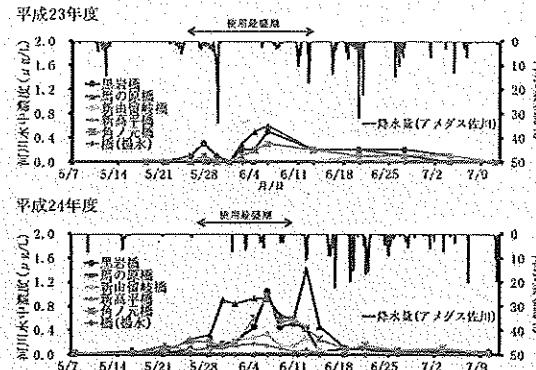


図4 ダイムロンの河川水中濃度

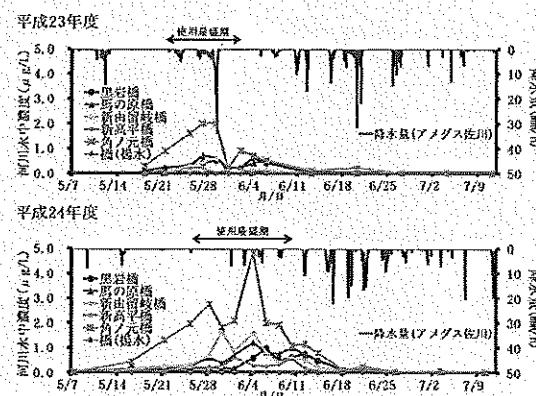


図5 プレチラクロールの河川水中濃度

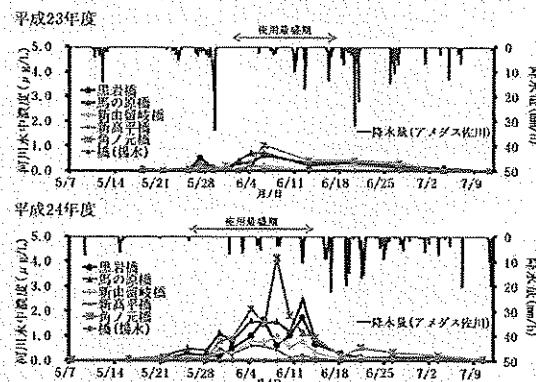


図6 メフェナセットの河川水中濃度

4. 農薬成分の流出量・流出率

各農薬成分の1時間当たりの流出量については、各成分とも農薬使用最盛期間あるいは直後に発生した降雨の際に最大値を示した(図7)。平成23年度調査における、各農薬成分の最大流出量(観測日)は、ダイムロン、プレチラクロール、メフェナセットでそれぞれ 59.3 g/h (6月20日), 141.2 g/h (5月29日), 89.0 g/h (6月20日)であった。また、同様に平成24年度調査では、それぞれ 21.6 g/h (6月12日), 37.7 g/h (6月12日), 86.9 g/h (6月12日)であった。

また、各農薬成分の流出率を表3に示した。平成

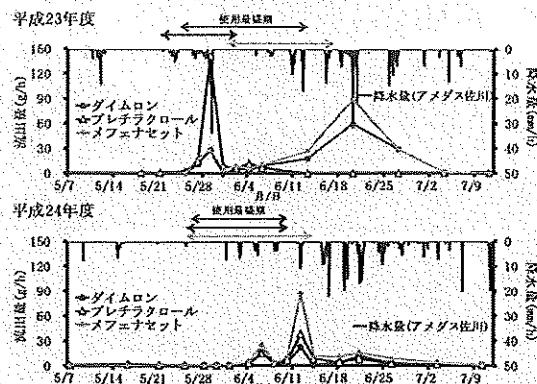


図7 主観測点における農薬の河川流出量

表3 農薬成分の流出率

成分名	調査年度	総流出量(g/流域)	流出率(%)
ダイムロン	23	21,283	69.9
	24	4,662	18.8
プレチラクロール	23	9,738	10.5
	24	5,606	5.4
メフェナセット	23	28,686	25.3
	24	11,457	10.1

23年度調査における流出率は、ダイムロン、プレチラクロール、メフェナセットでそれぞれ69.9%，10.5%，25.3%であった。また、同様に平成24年度調査では、それぞれ18.8%，5.4%，10.1%であった。流出率はダイムロン、メフェナセット、プレチラクロールの順で高く、いずれの成分においても、平成23年度調査でより高い値を示した。

考 察

水田から河川へ農薬成分が流出する経路は、調査地域での栽培管理を考慮すると、(1)降雨または灌水による田面水の表面流出、(2)意図的な排水、(3)水田からの浸透や漏水によると考えられる。水田からの除草剤の流出には、田面水中の除草剤濃度と降雨とが大きく影響し、除草剤の処理から田面水留去までの期間が短いほど、流出量が多くなることが報告されている^{1,9)}。田面水中濃度は未確認であるが、本調査においても農薬使用最盛期間あるいは直後の降雨によって、農薬成分の流出量が多くなることが確認された。特に日降水量10mm程度の降雨が1週間に数回発生した際や日降水量60mmを超える降雨の直後に流出量が増大し、その後減少する傾向が認められた。そのため、流域における除草剤の流出に

は、余剰貯留水深を超える降雨による田面水の表面流出が大きく影響していることが示唆された。

なお、平成23年度調査においては、農薬の使用最盛期あるいはその直後で日降水量100mmを越える降雨のあった5月30日、6月20日の当日あるいはその翌日に調査を実施できた。しかし、平成24年度調査においては、農薬の使用最盛期直後で日降水量100mmを越える降雨のあった6月16日に調査を実施できなかつたため、河川流出量については、やや低めの結果が得られた可能性が考えられた。

水稻用除草剤の物理化学性については、水溶解度が高い成分ほど、流出率が高くなることが報告されている²⁾。しかし、本調査においては、水溶解度が高いほど流出率が低く、土壤吸着係数が低いほど流出率が高くなる傾向が認められた。高知県環境研究センターにより、調査対象地域に隣接した土佐市の水田土壤を用いた湛水中におけるダイムロン、プレチラクロール、メフェナセットの土壤吸着率がそれぞれ30%，50%，50%前後であることが報告されており⁷⁾、水田に処理された成分が土壤に保持されたことで、各農薬成分の流出率に差が生じたと考えられた。

農薬の公共用水域への流出による被害防止の観点から、水産動植物の被害防止に係る農薬登録保留基準値(ダイムロン42 µg/L、プレチラクロール2.9 µg/L、メフェナセット32 µg/L)が定められている。この基準値は環境基準点での最高濃度を対象とするが、本調査では全成分とも、環境基準点である黒岩橋において基準値を超過することはなかつた。なお、プレチラクロールにおいては、角ノ元橋でやや高い濃度を示したが、これは橋付近での河川流量が非常に少なく、排水が滞ったことが原因だと考えられた。また、各農薬成分の河川水中濃度については、いずれの観測地点においても、降雨の多い平成23年度でより低い傾向を示した。これは流域からの集水によって河川流量が多くなり、水田から流出した成分が希釈されたためだと考えられた。

調査対象地域である柳瀬川流域においては、農地改良が比較的進んでおり、調査期間中に視察した限りでは、水尻の適正な止水管理がなされていた(写真1)。しかしながら、改良の進んでいない地域では、水尻の不良等によって、農薬成分の流出が多くなることが予想される。田面水中の除草剤濃度は散布後1日ないし数日で最高濃度に達し、1週間から10日



写真1 水尻の止水管理の様子

に渡って比較的高い濃度が維持されるため¹⁰⁾、この間に降雨を考慮した十分な余剰貯留水深の確保や漏水の防止といった水尻の止水管理を徹底することが、水稻用除草剤の河川への流出を低減するうえで重要だと考えられた。

引用文献

- 1) 井上隆信・海老瀬潜一(1994). 水田施用農薬の河川流出特性. 衛生工学シンポジウム論文. No.2, 341-346.
- 2) 伊藤和子(2002). 水田における農薬の流出実態と数理モデル(PADDY)予測の可能性. 栃木農試験報51: 29-36.
- 3) JA コスマス・高知高吾農改・JA 全農こうち(2012). 2012年度早期水稻栽培ごよみ.
- 4) JA コスマス・高知高吾農改・JA 全農こうち(2012). 2012年度普通期水稻栽培ごよみ.
- 5) 高知県(2012). 平成24年度版除草剤使用指針.
- 6) 厚生労働省健康局水道課(2003). 水質管理目標設定項目の検査方法.
- 7) 桑尾房子(2008). 波介川流域における水田農薬の河川流出状況(H19-20年). 高知環研所報25: 37-48.
- 8) 農林水産省(2011). 2010年世界農林業センサス. <http://www.e-stat.go.jp/SG1/estat/Xlsdl.do?sinfid=000012677415> (2014年10月21日参照)
- 9) 田中十城・村岡哲郎・高橋宏和・竹下孝史(2007). 除草剤の水田系外流出低減を目的とした水管理方法—除草剤処理後の田面露出の影響—. 雑草研究. Vol.52 No.1, 28-35.
- 10) 渡邊裕純・Julien Boulange・近藤圭(2009). 水田の水管理と農薬の流出について. 水田から流出する農薬の水系への影響. 37-44.

Summary

In the Yananosegawa river basin, part of the Niyodogawa water system, the river runoff of 3 herbicides (dymron, pretilachlor and mefenacet) used in paddy-rice cultivation were investigated.

1. The concentrations of the 3 herbicides in the river water were increased during the period of largest use or immediately after the period. However, the concentrations of the herbicides in the river water collected at an environmental reference point (Kuroiwa Bridge) during the study period were less than the transitional maximum residue levels of agricultural chemicals to prevent aquatic animals and plants from serious damage.
2. The volumes of the runoff of the 3 herbicides from the paddy fields to the river were increased during the period of largest usage or because of rainfall just after application.
3. The runoff rate of the 3 herbicides from the paddy fields to the river decreased because of soil adsorption of the active ingredients. The runoff rate of dymron was higher than pretilachlor, and pretilachlor was higher than mefenacet.

Key words: paddy fields, herbicides, runoff, soil adsorption