面源プルームモデルを用いた大気中の農薬濃度の予測

渡 辺 高 志*

独立行政法人農薬検査所

〒187-0011 東京都小平市鈴木町 2-772

(平成 14 年 4 月 8 日受付, 平成 14 年 7 月 31 日受理)

Prediction of Pesticide Concentrations in the Atmosphere Using an Area Source Plume Model

Takashi WATANABE*

Agricultural Chemicals Inspection Station, 2-772, Suzuki, Kodaira, Tokyo 187-0011, Japan

The model to predict concentration of pesticides in the atmosphere after application on the paddy field was investigated using the Gaussian plume equation as an atmospheric diffusion model. The model was on the assumption that the pesticide was constantly discharged from the emission source, the sprayed area was topographically flat, the wind direction and the wind speed were constant. The area source was combined by 50 m square of mesh, and a point source was located in the center of the mesh. The emission rate was derived from the observed concentration inside the sprayed area, and it was observed that the emission rate decreased with elapsed time and the emission rate had a positive correlation with vapor pressure. The emission rate was estimated by vapor pressure, a temperature and elapsed time after application, then an emission rate, a plume height and a meteorological and geographical conditions were input into the area source plume equation, a predicted concentration was calculated. As a result, the predicted concentration showed significant correlation with the observed concentration ($p < 0.01$). The predicted concentrations generally ranged from 1/10 to 10 times the observed concentrations. Therefore, this model is useful for predicting pesticide concentrations.

Key words: prediction of atmospheric concentration, area source plume model (ASPLM), pesticides, volatilization rate from paddy field.

緒 言

農薬は、農作物を病害虫から保護するために使用され、農作物の安定生産に資する資材の 1 つである。しかし、その使用に伴い、散布中のドリフト、散布後の農作物や土壌の表面からの揮発により、大気環境中に残留することが知られている。

大気中に存在する農薬による環境影響を事前に推定できれば、農薬の開発に当たって有益な情報が得られるので、大気汚染の予測手法として一般的な「大気拡散モデル」を用いて、農薬を農地に散布した後の大気中濃度を予測する

モデルの開発を行った。大気拡散モデルは、拡散方程式に基づくモデルと実験に基づくモデルに大別され、このうちの拡散方程式に基づくモデルには、「プルーム式」^{1,2)}、「パフ式」^{1,2)}、「ボックスモデル」¹⁾ 等がある。また、発生源は、その形状により、煙突のような「点源」、道路のような「線源」、点源や線源が複数集合した「面源」に分けられる。

農薬散布後の大気中濃度を予測するため、前報³⁾において、散布区域を 1 つの線源と仮定し、最も簡単な予測式の 1 つである「線源プルーム式」を用いた散布区域外の濃度を予測するモデルを開発したが、 ± 1.5 オーダー程度の予測誤差がみられ、散布区域内の濃度を予測することはできないので、散布区域をメッシュ化し、各メッシュの中心に点源をおいた面源をつくり、面源からの拡散を「面源プルー

* To whom correspondence should be addressed.

E-mail: watanabe@acis.go.jp

ム式」を用いて検討し、さらに、農地からの農薬の発生量（揮発速度）を推定する方法についても検討した。

方 法

1. プルーム式の選定

連続放出の発生源があり、地形が平坦、風向風速が一定のとき（すなわち、定常状態）、発生源から放出された煙の拡散は「ガウス型プルーム式」を用いて計算できる^{1,2,4)}。

発生源が点源の場合は、風向軸を x 軸（風下側を正とする）、これと水平面で直交する軸を y 軸、垂直軸を z 軸とすると、「点源プルーム式」は (1) 式で示される。ただし、(1) 式は拡散中の農薬の分解および地表沈着に伴う減量を考慮していない。

$$C_i(x, y, z) = Q_i (2\pi U \sigma_y \sigma_z)^{-1} \exp(-y_i^2 / 2\sigma_y^2) \times [\exp(-(HP + z_i)^2 / 2\sigma_z^2) + \exp(-(HP - z_i)^2 / 2\sigma_z^2)] \quad (1)$$

ここで、 $C_i(x, y, z)$ は地点 (x, y, z) における点源からの拡散濃度 (mg/m^3)、 Q_i は点源の発生量 (mg/sec)、 U は風速 (m/sec)、 σ_y と σ_z はそれぞれ水平拡散幅 (m) と垂直拡散幅 (m)、 HP はプルーム高 (m)、 y_i と z_i はそれぞれ地点 (x, y, z) の y 軸距離 (m) と地上高 (m) である。 HP は、発生源が煙突の場合の「有効煙突高」と称されるが、農地からのプルームの拡散計算にあたり、本論文では「プルーム高」と称する。 σ_y と σ_z は、パスキルによる大気安定度⁴⁾ ごとの分類による風下距離 (x_i) からの経験式⁵⁾ から計算し (Table 1)、この式は日本における大気中の窒素酸化物の規制に用いられている⁵⁾。なお、この大気安定度は風速と日射量（夜間は雲量）を基に強不安定 (A) から並安定 (F) まで 6 段階に分類されている。

次に、発生源が面源の場合、面源を幾つかのメッシュで区切り、1つのメッシュの中心に点源をおく。1つのメッシュにおける発生量を1つの点源に集約して $Q_i (\text{mg}/\text{mesh}/\text{sec})$ とする。「面源プルーム式」は、全てのメッシュから

Table 1. Atmospheric diffusion width⁵⁾

Atmospheric	$\sigma_y^{a)} = \gamma_y \cdot x_i^{\alpha_y}$			$\sigma_z^{a)} = \gamma_z \cdot x_i^{\alpha_z}$		
Stability ^{b)}	γ_y	α_y	$x_i^{c)}$	γ_z	α_z	$x_i^{c)}$
A	0.426	0.901	0-1000	0.0800	1.122	0-300
	0.602	0.851	1000-	0.00855	1.514	300-500
	0.000212	2.109	500-			
B	0.282	0.914	0-1000	0.1272	0.964	0-500
	0.396	0.865	1000-	0.0570	1.094	500-
C	0.1772	0.924	0-1000	0.1068	0.918	0-
	0.232	0.885	1000-			
D	0.1107	0.929	0-1000	0.1046	0.826	0-1000
	0.1467	0.889	1000-	0.400	0.632	1000-
E	0.0554	0.929	0-1000	0.0928	0.788	0-1000
	0.0733	0.889	1000-	0.433	0.565	1000-
F	0.0380	0.921	0-1000	0.0621	0.784	0-1000
	0.0452	0.896	1000-	0.370	0.526	1000-

^{a)} σ_y is horizontal diffusion width (m) and σ_z is vertical diffusion width (m).

^{b)} Atmospheric stability by Pasquill,⁴⁾ A: strongly unstable, B: middle unstable, C: weakly unstable, D: neutral, E: weakly stable, F: middle stable.

^{c)} x_i is downwind distance (m).

の拡散を積分した次式で示される.

$$C(x, y, z) = \sum C_i(x, y, z) \quad (2)$$

ここで, $C(x, y, z)$ は地点 (x, y, z) における面源からの拡散濃度 (mg/m^3).

2. 大気中濃度の測定データ

予測モデルの開発に当たって使用したデータ⁶⁻¹⁵⁾は, 農薬散布後に大気中濃度を測定し, 同時に気象条件が調査され, 濃度測定地点と散布区域との地理的關係が明らかとなっている調査報告から引用した (Table 2). 調査対象農薬は13種, 調査地域は延べ42カ所である. 対象地域は全て水田, 作物は水稻であり, 農薬散布時の生育ステージは, 概ね減数分裂期から出穂期, 散布時の作物の高さは約1mであった. 大気中濃度の測定高は, ほとんどの場合, 地上1.5mであった. 大気中濃度の測定地点は, 圃場内の地点と散布境界から2km以内の地点であり, 風下側の地点のデータのみ利用した. 大気中濃度は, 散布直後から最長5日後まで経時的に測定された.

3. パラメーターの検討

農薬を散布した農地全体を発生源 (面源) とし, 50m四方にメッシュ化する. 各メッシュの中心に点源をおく.

(1) 式中のパラメーターのうち, U , σ_y , σ_z , y_i 及び z_i は気象条件と地理条件から決定される. HP は, 発生源の地上高とプルームの上昇分の合計で定義されるものであり, 作物から揮発したプルームは熱量をもたないため上昇しないと考えられるので, 作物の高さ (1m) を定数値として使用した. z_i は, 大気中濃度の実測高の1.5mを使用した. 従って, 発生量 Q のみが未知の変数である.

3.1. 発生量の計算

実際の圃場において, 発生量の実測値を得ることは難しく, 今回利用したデータでは測定されていなかったため発生量を推定した.

50m四方のメッシュの中心を原点とし, 点源をおいた. 次に, 当該メッシュ内の点源からの拡散によるメッシュ中心での濃度は $x_i=0$ m となるため求められないので, 当該メッシュと風下側で隣接するメッシュとの x 軸上の中間地点 $(x, y, z=25 \text{ m}, 0 \text{ m}, 1.5 \text{ m})$ を散布区域内での測定地点と仮定し, 区域内での測定濃度, 測定時のパラメーター (風速等) 及び中間地点の座標を (1) 式に入力し, 散布区域内での測定データ全てについて, 50mメッシュからの発生量 $Q_i(\text{mg}/\text{mesh}/\text{sec})$ を逆算した.

次に, 農薬散布条件は Table 2 に示したとおり, 農薬ごとで異なっていたので, Q_i を単位面積当たりの有効成分投下量 ($\text{AR}: \text{g}/\text{m}^2$) で除して $Q_i'[(\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{sec})/(\text{g}/\text{m}^2)]$ を求めた. $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{sec}$ を g/m^2 で割ることにより単位の変換が図

(1) fenitrothion

O: A-C (<40 hr), ●: A-C (>40 hr), △: D

(2) fenobucarb

O: A-C (<40 hr), ●: A-C (>40 hr), △: D

Fig. 1. Relationship between emission rates (Q_i') and elapsed time (t).

(1) fenitrothion

$$Q_i' = 0.773 \exp(-0.0543 t); 0-40 \text{ hr, A-C, } r^2=0.77$$

$$Q_i' = 0.175 \exp(-0.0244 t); >40 \text{ hr, A-C, } r^2=0.31$$

$$Q_i' = 0.115 \exp(-0.0856 t); \text{D, } r^2=0.67$$

(2) fenobucarb

$$Q_i' = 1.192 \exp(-0.0467 t); 0-40 \text{ hr, A-C, } r^2=0.42$$

$$Q_i' = 0.343 \exp(-0.0254 t); >40 \text{ hr, A-C, } r^2=0.11$$

$$Q_i' = 0.263 \exp(-0.0914 t); \text{D, } r^2=0.75$$

*: An emission rate from 1 mesh ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{sec}$) divided by an application rate of active ingredient (g/m^2) is Q_i' .

られるが, わかりやすくするため単位の変換はしなかった.

$$Q_i' = Q_i / \text{AR} \quad (3)$$

3.2. 発生量の推定

大気中濃度の対数値を散布後の経過時間に対してプロットすると負の相関が得られるので, Q_i' の対数値を経過時間に対してプロットしたところ, 同様に負の相関が得られた. この相関は, 大気安定度が A~C のとき (天候が晴) と大気安定度が D (天候が曇) のときの 2 つのパターンに分かれた. なお, 大気安定度 F, F に該当する測定はなかった. これは, 日射量が葉面温度に影響し, 発生量に違いを生じさせたためと考えられる. 大気安定度の違いにより Q_i' が異なったので, 以降は, この 2 つのパターンごとに

Table 2. Measurement data of concentration of pesticides in the atmosphere after its application on paddy field

Pesticide	Sampling area		Application condition		ref.
	date	place	rate ^{a)}	area(ha)	
buprofezin	89.8.19-8.21	Saitama Pref., Misato	0.020	570	7
	91.8.14-8.18	Saitama Pref., Misato	0.020	— ^{b)}	11
	92.8.14-8.27	Saitama Pref., Oosato	0.020	—	12
	93.8.15-8.22	Saitama Pref., Oosato	0.020	500	13
diazinon	88.7.30-8. 1	Saitama Pref., Hanyuu	0.025	760	15
	88.7.30-8. 1	Saitama Pref., Hanyuu	0.025	760	7
fenitrothion	88.8. 3-8. 5	Chiba Pref., Sakura	0.045	375	8
	88.8. 3-8. 8	Chiba Pref., Sakura	0.045	375	7
	89.8. 7-8. 9	Chiba Pref., Sakura	0.045	375	15
	89.8.10-8.13	Niigata Pref., Jouetsu	0.045	143	9
fenobucarb	91.7.23-8.13	Chiba Pref., Sakura	0.045	—	11
	92.7.30-8.18	Chiba Pref., Sakura	0.045	—	12
	93.7.27-8.18	Chiba Pref., Sakura	0.045	270	13
	93.6.17-7.18	Niigata Pref., Maki	0.050	2,014	13
	87.8.25-8.29	Saitama Pref., Hanyuu	0.040	760	6
	88.8. 3-8. 5	Chiba Pref., Sakura	0.040	—	8
	88.7.30-8.21	Saitama Pref., Hanyuu	0.040	—	15
	89.8. 7-8. 9	Chiba Pref., Sakura	0.040	375	14
	88.8. 1-8. 8	Niigata Pref., Niigata	0.040	1,100	9
	89.7.24-7.29	Niigata Pref., Niigata	0.040	1,085	9
	91.7.23-8.23	Chiba Pref., Sakura	0.040	—	11
	92.7.30-8.28	Chiba Pref., Sakura	0.040	—	12
	93.7.27-8.28	Chiba Pref., Sakura	0.040	270	13
fenthion	88.8.15-8.16	Ibaraki Pref., Ishige	0.050	621	7
malathion	87.8.25-8.26	Saitama Pref., Hanyuu	0.030	760	6
	88.8. 1-8. 5	Niigata Pref., Niigata	0.030	1,100	9
	89.7.24-7.26	Niigata Pref., Niigata	0.030	1,085	9
pyridafenthion	94.7. 6-7.15	Niigata Pref., Maki	0.040	2,050	7
tetrachlorvinfos	88.6.26-7.21	Niigata Pref., Niigata	0.038	1,100	9
	89.6.27-6.30	Niigata Pref., Niigata	0.038	1,085	9
	91.8. 1-8.10	Niigata Pref., Nishikawa	0.0375	670	11
trichlorfon	88.8. 5-8.10	Gunma Pref., Chiyoda	0.0525	461	7
fthalide	91.8.14-8.18	Saitama Pref., Misato	0.020	—	7
	92.8.14-8.27	Saitama Pref., Oosato	0.020	—	12
	93.8.15-8.22	Saitama Pref., Oosato	0.020	500	13
	93.8. 8-8.16	Niigata Pref., Maki	0.020	2,014	13
	94.8. 8-8.16	Niigata Pref., Maki	0.025	2,050	14
isoprothiolane	90.8.21-8.23	Tochigi Pref., Ashikaga and Sano	0.040	308	10
mepronil	89.7.30-8. 1	Miyagi Pref., Sanbongi	0.048	400	7
tricyclazole	89.7.30-8. 1	Miyagi Pref., Sanbongi	0.013	400	7
	93.7.20-7.28	Niigata Pref., Maki	0.012	2,014	13
	94.7.22-8.22	Niigata Pref., Maki	0.012	2,050	14

^{a)} Application rate (AR: g/m²) shows weight of active ingredient.

^{b)} Unreported.

検討した。減衰定数 $k(\text{hr}^{-1})$ は Fig. 1 に示したように、大気安定度が A から C の場合のみ散布約 40 時間後以降に、 Q_i の相関式の傾きが小さくなった。光分解の促進等によ

る発生源（圃場）内での稲体中の農薬濃度の低下のためと考えられたので k を 2 つに分け、散布直後から 40 時間後までを k_1 、40 時間後以降を k_2 とした。

Fig. 2. Relationship between initial emission rates (Q_0) and vapor pressures (VP).

$$Q_0 = 0.2600 \text{ VP}^{0.3306}, \text{ A-C, } n=9, r^2=0.97$$

$$Q_0 = 0.0578 \text{ VP}^{0.3937}, \text{ D, } n=7, r^2=0.97$$

Fig. 3. Relationship between decreasing constants (k) and vapor pressures.

$$k_1 = 0.0405 \text{ VP}^{0.1215}, n=9, r^2=0.84$$

$$k_2 = 0.0160 \text{ VP}^{0.1215}, n=2$$

*: It was assumed that the exponent of k_2 was equal to it of k_1 .

発生量と経過時間の相関の代表例として、 k_1 と k_2 を求めることができた fenitrothion と fenobucarb をそれぞれ Fig. 1 (1) と Fig. 1 (2) に示す。この相関から、 Q_i' は (4) 式で示される。

$$Q_i' = Q_0 \exp(-k t) \quad (4)$$

ここで、 Q_0 は 0 時間のときの Q_i' [$\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{sec}$]/(g/m^2)], k は減衰定数 (hr^{-1}), t は散布後の経過時間 (hr)。

次に、植物体の表面からの農薬の揮発速度 (hr^{-1}) は、蒸気圧 (VP) との間に高い相関をもつことが認められているので¹⁶⁾、農薬ごとの Q_0 あるいは k と VP との相関を調べた (Fig. 2 と Fig. 3)。その際、蒸気圧は温度により変動するため、大気中濃度を測定したときの気温の平均値を求め、Clapeyron-Clausius 式 (5) を用いて蒸気圧データを気温で補正した。

$$\text{VP}_j = \text{VP}_k \exp(-\Delta H/R(1/T_j - 1/T_k)) \quad (5)$$

Fig. 4. Correlation between observed emission rates (flux) and Q_0 calculated by equation (6).

*: Q_0 was calculated under the assumption that application rate (AR) was $0.035 \text{ g}/\text{m}^2$ which was the average of AR in Table 2.

ここで、 VP_j と VP_k は温度 T_j と T_k (K) における蒸気圧、 R は気体定数で $8.314 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$ 、 ΔH は相転移の潜熱で 50 kJ mol^{-1} ¹⁷⁾。

なお、 k_1 値に大気安定度 A~C と D による大きな違いはみられなかったため、両者を平均した。その結果、 Q_0 及び k は蒸気圧と正の相関がみられたので、それぞれ、(6) 式と (7) 式で示される経験式が得られた。

$$Q_0 = \text{AQ} \cdot \text{VP}^{\text{BQ}} \quad (6)$$

$$k = \text{Ak} \cdot \text{VP}^{\text{Bk}} \quad (7)$$

ここで、AQ と BQ 及び Ak と Bk は定数、VP は蒸気圧 (mPa)。ただし、 k_2 と VP の相関については、 k_2 のデータ数が fenitrothion と fenobucarb の 2 つのみと少なかったため、 k_1 と VP の相関と同一の傾きをもつと考え、Bk をそのまま使用した。

結果及び考察

1. 発生量の検証

Q_0 の計算方法を検証するため、Woodrow らによる植物やガラス等の表面からの単位面積当たりの揮発速度 (flux: $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{sec}$)¹⁸⁾ と比較した。Woodrow らが利用した 12 種類の化合物のうち、今回の供試農薬の VP の範囲である $10^{-2} \sim 10^2 \text{ mPa}$ の 8 化合物について、大気安定度 A~C と大気安定度 D~E ごとに、Woodrow らの蒸気圧を (6) 式に代入した Q_0 と揮発速度の実測値を比較した。 Q_0 の単位を揮発速度の単位に統一するための AR は、Table 2 の農薬散布条件の平均値 $0.035 \text{ g}/\text{m}^2$ を使用した。その結果、(6) 式から求めた Q_0 と揮発速度の実測値の間に正の相関がみられ (大気安定度 A~C, D とともに $r=0.93$)、同一化合物の Q_0 と揮発速度を比べるとほぼ同じオーダーであった (Fig. 4)。なお、揮発速度は、気温が $20 \sim 30^\circ\text{C}$ で測定されたものであり、大気安定度は不明であった。

Fig. 5. Distribution of $\log(\text{pred}/\text{obsd})$ by distance from sprayed area, elapsed time and vapor pressure of pesticides.

Fig. 6. Correlation between observed concentrations and predicted concentrations.

2. 予測精度

農薬の VP を (6) 式と (7) 式に代入して、 Q_0 と k を求めた。なお、VP は (5) 式を用いて大気中濃度が測定された時の気温で変換しておく。散布後の経過時間 t から、その時点での Q_i を (4) 式により計算し、さらに (3) 式により単位面積当たりの有効成分投下量 AR から Q_i を求めた。面源は、50 m 四方のメッシュで構成し、風上側に 20 メッシュ、左右に 20 メッシュずつを配置した。従って、面源の大きさは幅 2050 m、奥行 1000 m である。ただし、奥行については実際の圃場の大きさに合わせて入力した。各メッシュの中心に上記 Q_i をもつ点源を置き、個々の点源からの拡散を計算するため、気象条件と地理的条件を (1) 式に代入し、さらに、全ての点源分を (2) 式により合計して予測濃度を求めた。

(予測濃度/実測濃度) の対数値 (以下、「log 値」と略す) を求め、log 値を散布区域からの距離、散布後の経過時間あるいは蒸気圧の違いに対してプロットしたところ、距離、経過時間、蒸気圧の違いによる log 値に偏りはみられず (Fig. 5)、log 値全体では 0 を中心とした分布を示し、log 値の標準偏差 (SD) は 0.51 であった。中央値 $\pm 2 \times \text{SD}$ で全体の 95.5% を占めるので、この 2SD を予測誤差とする

と $10^{(0.51 \times 2)} = 11$ となり、予測値と実測値は約 ± 1 オーダーの範囲で一致することを示し、また、両者の間には危険率 1% で有意な相関が認められた ($r=0.69$, Fig. 6)。Table 2 に示したデータのうち、散布区域外で測定されたものについて、線源プルーム式を用いて予測した濃度と実測値を比較した場合の相関係数が 0.52、log 値の SD が 0.68 であった³⁾ ことから、予測精度は向上した。

今回利用したデータは、大気の吸引を 20 分から 1 時間かけて行ったもので大気中濃度は平均値となり、風向と風速も同一時間における平均を用いたが、風向と風速は常に変動するものである。これらの変動をパラメーターとしてモデルに組み込むこと等による改良の必要があると考えられる。

要 約

大気汚染の予測手法として一般的な「大気拡散モデル」を用いて、農薬を農地に散布した後の大気中濃度を予測するモデルの開発を行った。モデルでは、連続放出の発生源、平坦な地形、一定の風向風速を仮定し、「ガウス型プルーム式」を用いた。さらに、水田全体を発生源とし、50 m 四方にメッシュ化し、各メッシュの中心に発生源をおき、面源を構成させた。散布区域内で測定された濃度から発生量を逆算し、これと蒸気圧、気温、散布後の経過時間との相関を調べ、発生量を推定する方法を検討した。

この推定式を用いて発生量を計算し、気象条件と地理的条件等のパラメーターを面源プルーム式に代入して予測濃度を求めた。予測濃度と実測濃度を比較してモデルの適合性を調べたところ、散布区域からの距離、散布後の経過時間、蒸気圧の違いに影響されず、危険率 1% で有意な相関が認められ、約 ± 1 オーダーの範囲ではほぼ一致した。

農薬を散布した後の農地からの発生量 (揮発速度) は、蒸気圧 (今回のシミュレーションに利用した農薬の範囲は $10^{-3} \sim 10^2$ mPa) と気温・経過時間 (散布 5 日後まで) で計算でき、発生源から揮発した農薬の拡散についても、散

布区域から風下 1~2 km まではブルーム式で計算できることを確認した。

引用文献

- 1) 横山長之：大気汚染の機構と解析—環境科学特論，鈴木武夫編，産業図書，pp. 37-66，1980.
- 2) 横山長之：大気環境シミュレーション—大気の流れと拡散—，横山長之編，白亜書房，pp. 1-67，1992.
- 3) T. Watanabe: *Chemosphere* **40**, 79-90 (2000).
- 4) F. Pasquill and F. B. Smith: "Atmospheric Diffusion (Third Edition)," Ellis Horwood Publisher, 1983.
- 5) 環境庁大気保全局大気規制課：窒素酸化物総量規制マニュアル，公害研究対策センター，pp. 130-179，1982.
- 6) 農林水産航空協会：昭和 62 年度農林水産航空技術合理化試験成績書，1988.
- 7) 農林水産航空協会：平成元年度農林水産航空技術合理化試験成績書，1990.
- 8) 渡辺高志：農薬検査所報告 **30**，19-28 (1990).
- 9) 新潟県衛生公害研究所：平成 63 年度，平成元年度特定研究報告書「薬剤の空中散布による環境中の分布等に関する調査研究」，1990.
- 10) 農林水産航空協会：平成 2 年度農林水産航空技術合理化試験成績書，1991.
- 11) 農林水産航空協会：平成 3 年度農林水産航空技術合理化試験成績書，1992.
- 12) 農林水産航空協会：平成 4 年度農林水産航空技術合理化試験成績書，1993.
- 13) 農林水産航空協会：平成 5 年度農林水産航空技術合理化試験成績書，1994.
- 14) 農林水産航空協会：平成 6 年度農林水産航空技術合理化試験成績書，1995.
- 15) 渡辺高志：未発表.
- 16) T. Watanabe: *J. Pesticide Sci.* **18**, 201-209 (1993).
- 17) National Institute of Public Health and the Environment (RIVM), the Netherlands: Simple Box 2.0, a nested multimedia fate model for evaluating the environmental fate of chemicals, 1996.
- 18) J. E. Woodrow, J. N. Seiber and L. W. Baker: *Environ. Sci. Technol.* **31**, 523-529 (1997).