田園地河川における水稻移植後の農薬流出量の評価

沼 辺 明 博*   井 上 隆 信**   海老瀬 潜 一**

Estimation on the Runoff Amounts of Pesticides Applied after Transplanting of Rice Plant by Drainage River

Akihiro NUMABE*, Takanobu INOUE** and Senichi EBISE**

* Hokkaido Institute of Environmental Sciences, kita-19 Nishi-12, Kita-ku, Sapporo 060 Japan

** National Institute for Environmental Studies, 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305 Japan

Abstract

The runoff loadings and characteristics of pesticides applied to paddy fields after transplanting of rice plant were estimated by means of analysis of pesticides in drainage river water in weekly and at the rainfall events.

The largest loadings of herbicides were found between one and two weeks after transplanting of rice plant. On the other hand, the largest loadings of insecticides were found at about ten days later than that of herbicides.

The runoff loadings of herbicides during one rainfall event ranged 20 to 25% of total runoff amounts. Therefore, the runoff investigation of pesticides in river water at and after the rainfall are very important for estimation of pesticides runoff from agricultural fields to drainage river.

The runoff characteristics of insecticides and herbicides were differed, and it was recognized that the runoff loadings of insecticides were decreased more rapidly than herbicides at the rainfall event.

The runoff rates of pesticides were ranged from 25% for fenobucarb to 0.02% for fenitrothion.

From this results concerned in rainfall event, the runoff rates of pesticides from agricultural fields to river were more higher than that of the previous literature.

Key words: pesticides, paddy field, rainfall, runoff characteristics, runoff rates

1. 緒 言

近年、ゴルフ場で施用される農薬による環境汚染が大きな社会問題として取り上げられている。しかし、ゴルフ場で施用される農薬は全施用量の1%程度で、98%以上は農林業用に用いられ、さらに、その約半量が水田で施用されている¹⁾。水田は河川等の水系と密接につながっており、農薬による環境汚染を引き起こす危険性が高く、1970年代までは農薬の流出による魚

介類のへい死が数多く報告された²⁾。その後、毒性や残留性の高い農薬の施用は規制され、被害の発生もあまり聞かれなくなったが、低濃度長期暴露や複合作用による水生生物等の自然生態系への影響についても関心をもたれている^{3),4)}。

農薬による微量汚染を抑えるための最も有効な手段は流出をいかに制御するかである。このためには、数多く施用されている農薬の流出特性を知ることが前提となる。農薬の環境への流出に関する報告は数多く見

* 北海道環境科学研究センター 〒060 札幌市北区北19条西12丁目

** 国立環境研究所 〒305 茨城県つくば市小野川16-2

られるか^{5)~7)}、農薬の流出におよぼす降雨の影響や、流量観測と農薬施用量調査に基づいて流出負荷量と流出率を詳細に検討した報告はあまりみられない。

本報告では、1991年5、6月の2カ月間に、毎週1回定時の定期調査と降雨後の追加調査に加え、降雨時流出調査を行い、水稻移植期に施用される農薬の流出特性を明らかにし、総流出負荷量と調査頻度の関係について考察した。さらに、調査流域への農薬の出荷量調査を行い、各農薬の流出率について検討した。

2. 調査概要

2.1 調査地域の概要

調査地点は、霞ヶ浦高浜入に流入する恋瀬川の支流小桜川を中心に Fig. 1 に示す6地点で、全流域面積は127.5km²、調査区間の流路延長は約6.6kmである。

小桜川の St. 1, 3, 4 には流路内に取水堰が設けられ、周辺の水田にポンプで灌漑用水を供給している。小桜川には、ほかにも St. 1 と St. 2 の間に2カ所、St. 3 と St. 4 の間に1カ所のポンプ場がある。さらに、川

又川、恋瀬川にも多くのポンプ場があり、河川水は灌漑用水として繰り返し使用されている。取水堰は St. 1 にみられる簡単な羽目板式のものと、St. 3, 4 などに設置されているラバーダム方式のものがある。後者はゴム製の堰を空気で膨らませ止水するもので、増水時には自動的に堰の空気が抜けて開放されるようになっている。

各調査地点毎の流域面積、利用形態別農耕地面積を Table 1 に示す。各調査地点毎の流域面積に占める農耕地面積の比率は、小桜川の上流 (St. 1) 5.5%, 小桜川 (St. 4) 16%, 川又川 (St. 5) 21%, 恋瀬川 (St. 6) 25% である。農耕地の利用形態としては水田が最も多く54~64%を占め、次いで、小桜川と川又川の流域では畑地と樹園地がほぼ同面積(14~20%), 恋瀬川流域では畑地 (27.5%), 樹園地 (13.5%) の順である。また、下流ほど水田面積の割合が減少し、それにとまない畑地の比率が増加する。なお、水田の約1割は休耕地であった。

2.2 調査方法

調査は、採水と同時に pH, 水温, 流量の測定を行った。試料は、農薬分析用には500ml の褐色ガラス瓶、SS 等の分析用には1 l のポリ瓶を用い、流路のほぼ中央約10cm の深さから直接採取した。試料は氷冷して実験室に持ち帰り、直ちに分析を行った。流量は既報⁸⁾と同様、流水断面積の計測とプロペラ型流速計による流速測定から求めた。ポンプ場のある St. 1 と St. 4 は灌漑用水の取水直後、St. 3 は直前を調査地点とした。降水量は調査地域に最も近い水戸地方気象台柿岡気象観測所のデータを用いた。

この地域の水稲移植は、おもに4月27日から5月6日のゴールデンウィーク期間中に行われ、特に、連休後半(5月3日~6日)に集中した。調査期間は移植が本格化する前の5月1日から6月26日までの57日間とし、毎週水曜日に9回の定期調査、10mm 前後の降雨後に8回の追加調査を行った。調査は、同時刻とな

Fig. 1 Location of observation points

Table 1 Classified area by land use types in observation basin

	Distance (km)	Watershed area (km ²)	Agricultural land (km ²)	Paddy* field (km ²)	Plowed field (km ²)	orchard (km ²)
St.1	0	9.4	0.521	0.29	0.074	0.052
St.2	2.475	16.2	1.84	1.05	0.262	0.255
St.3	2.725	16.5	2.02	1.16	0.279	0.291
St.4	4.425	18.2	2.93	1.66	0.460	0.456
St.5	5.575	39.8	8.23	4.19	1.61	1.63
St.6	6.575	127.5	31.8	15.6	8.75	4.28

* Cultivated paddy field

るように9時半前後に上流の小桜川 St. 1 より開始し、恋瀬川の St. 6 まで約3時間を要した。

降雨時流出調査は、小桜川末流地点 (St. 4) において、5月15日から16日の降雨について行った。採水は16日3時20分から15時まで、河川の流量変化に応じて30分から90分の間隔で9回行った。

農薬の流出率は、農協における出荷量より算出した。1991年2月から6月の5カ月間に農協から調査流域に販売された全農薬量を地域別に調べ、農薬製剤毎の有効成分含有率⁹⁾ (液剤、乳剤は比重を1として換算) から各成分の出荷量を調査地点流域毎に算出した。

なお、本調査に先立ち4月27日に、小桜川の St. 1, 3, 4 において農薬分析用のための採水を行っている。

2.3 分析方法

調査対象農薬は施用量の多い成分の中から標準品が入手でき、同一操作で分析可能な除草剤5種; Mefenacet (MFN), Pyrazoxyfen (PYR), Butachlor (BUT), Pretilachlor (PRE), Esprocarb (ESP), 殺虫剤3種; Fenobucarb (BPMC), Fenthion (MPP), Fenitrothion (MEP) である。

分析試料の調製は、試水400ml をアセトンで洗浄したガラス繊維濾紙 (Whatman GF/C) を用いて吸引濾過し、濾液は溶存態、濾紙は懸濁態の分析試料とした。

溶存態の分析は、濾液を ODS カラム (Bond Elute C18) に約10ml・min⁻¹の流速で吸引しながら、農薬をカラムに吸着させた。カラムを遠沈管に入れ、3,000~4,000rpm で20分間遠心脱水後、アセトン6ml で農薬を溶出させた。アセトン溶液は遠心濃縮機で約1ml まで濃縮し、さらに純窒素ガスを吹き付けてアセトンを揮散させた後、ヘキサン1ml に転溶した。これを冷凍庫に入れて残留した水分を凍結分離後、ガスクロマトグラフ (GC) で定量した。懸濁態は、濾紙を100ml の三角フラスコに入れ、アセトン10ml を加え超音波による抽出を3回繰り返した。抽出液は遠心濃縮機で約1ml まで濃縮し、蒸留水で約300ml に希釈後、溶存態と同様の方法で分析した。ヘキサン溶液は GC で定量するまでは冷凍庫内に保存した。

蒸留水400ml に MEP, MPP を0.1μg, その他の農薬を2μg 添加して得られた回収率、および定量下限値を Table 2 に示す。本報告ではこれらの回収率による補正は行っていない。

GC の分析条件は下記のとおりである。

GC: 島津 GC-14A (FTD 検出器)

カラム: DB-1, 0.53mm i.d., 30m Length

1.5μm Film Thickness

カラム温度: 100°C (1 min) → 8°C・min⁻¹ → 260°C (3 min)

注入口温度: 250°C

キャリアーガス: He 50ml・min⁻¹

3. 結果と考察

3.1 農薬の流出特性

St. 4 および St. 6 の河川流量の変化を降水量と共に Fig. 2 に示す。月間降水量は4月98mm, 5月112mm, 6月139mm であった。調査期間中の一降雨における最大降水量は6月22~24日の49mm であるが、3日間にわたる降雨のため平均降雨強度は小さい。次いで、6月13~14日の32mm, 5月15~16日の29mm と、例年に比べ降水量は少なかった。降雨後に河川流量は増加するが減衰も速く、降雨の影響が顕著にみられたのは、降雨後十数時間程度であった。St. 4 の最大流量は、降雨時流出調査の5月16日に見られた。他の地点では、5月16日の調査を行っていないため、この降雨時調査のデータを除いて比較すると、St. 4 と St. 6 は同様の流出パターンを示した。他の調査地点に関しても St. 6 と同様であった。

Fig. 3~5 に、St. 1, 4, 6 における除草剤 (BUT, MFN, PRE) の濃度と流出負荷量および殺虫剤 (MEP, MPP) の流出負荷量の経日変化を溶存態について図示した。St. 4 については5月16日のデータを含めて示した。Table 3 には各調査地点における農薬の最高濃度と最大負荷量を示した。

懸濁態は MFN, MPP, MEP が降雨後の増水時に検出された。MEP は懸濁態の流出割合が10~40% と大きい。MFN と MPP は1% 以下で大半が溶存態として流出していることが明らかとなった。

除草剤の多くは移植後の5月8日から検出され始め、5月20日過ぎまで高い濃度で推移している。最高濃度は5月13~15日に多く観測された。流出負荷量も5月10~23日に多く、最大負荷量は5月13日に出現したものが多かった。St. 4 では5月16日の降雨時調査で最大負荷量が見られ、施用最盛期の降雨により除草剤

Table 2 Detection limits and recovery of pesticides spiked into distilled water

	MFN	PYR	BUT	PRE	ESP	BPMC	MPP	MEP
Recovery ratio (%)	92.4	85.0	86.1	91.0	74.9	85.9	70.5	90.9
Detection limit (μg・l ⁻¹)	0.1	0.25	0.2	0.1	0.1	0.1	0.005	0.006

Fig. 2 Changes of flow rate at St. 4 and St. 6
 $\triangle$: St. 4 $\blacktriangle$: St. 6

Fig. 3 Changes in concentration and loading of dissolved pesticides at St. 1
 $\circ$: MFN ; $\bullet$: BUT ; $\bullet$: PRE ;
 $\square$: MPP ; $\blacksquare$: MEP

が多量に流出することが明らかとなった。小桜川での除草剤は濃度の高い時期に下流ほど濃度が高くなる傾向が見られた。飯塚¹⁰⁾も灌漑用水の反復利用により下流部で除草剤の濃度が高くなることを報告している。

殺虫剤のBPMCとMPPは同様の流出パターンを示し、除草剤と同様5月8日頃から検出されるが、小桜川では濃度、負荷量とも除草剤より1週間から10日ほど遅れて5月20日頃にピークが見られた。川又川、

Fig. 4 Changes in concentration and loading of dissolved pesticides at St. 4
 $\circ$: MFN ; $\bullet$: BUT ; $\bullet$: PRE ;
 $\square$: MPP ; $\blacksquare$: MEP

Fig. 5 Changes in concentration and loading of dissolved pesticides at St. 6
 $\circ$: MFN ; $\bullet$: BUT ; $\bullet$: PRE ;
 $\square$: MPP ; $\blacksquare$: MEP

Table 3 Maximum concentrations and loadings of pesticides at sampling sites

		BUT		PRE		PYR		MFN		ESP		BPMC		MPP		MEP	
St.1	Conc	5/22	5.36	5/20	0.92		0	5/13	8.36	5/13	5.36	5/22	12.4	5/22	1.31	5/22	0.025
	Load	5/22	0.56	5/13	0.16		0	5/13	1.52	5/13	0.98	5/22	3.95	5/22	0.42	5/22	0.008
St.2	Conc	5/15	5.50	5/15	1.72	5/20	0.43	5/13	6.04	5/15	4.75	5/20	14.2	5/20	2.34	5/22	0.072
	Load	5/13	2.49	5/20	0.72	5/20	0.22	5/13	4.03	5/13	2.17	5/22	7.20	5/20	1.17	5/22	0.052
St.3	Conc	5/13	5.08	5/20	1.65	5/20	0.38	5/13	7.86	5/13	4.33	5/20	14.8	5/20	2.34	5/22	0.056
	Load	5/13	2.87	5/20	0.87	5/20	0.20	5/13	4.43	5/13	2.44	5/20	7.78	5/20	1.23	5/22	0.042
St.4	Conc	5/15	9.02	5/15	3.36	5/15	0.58	5/13	14.6	5/15	6.03	5/20	10.1	5/20	1.45	5/22	0.069
	Load	5/16	9.12	5/16	1.88	5/16	0.48	5/16	18.4	5/16	8.33	5/22	6.65	5/20	0.65	5/22	0.060
St.5	Conc	5/15	5.63	5/ 8	3.63	5/15	0.67	5/13	16.5	5/15	3.22	5/20	7.55	6/ 1	1.06	6/ 5	0.144
	Load	5/13	8.87	5/ 8	2.53	5/13	0.84	5/13	28.9	5/13	5.13	5/20	7.70	6/ 1	1.36	6/16	0.297
St.6	Conc	5/13	5.02	5/ 8	2.98	5/15	0.67	5/15	16.9	5/13	3.91	5/20	6.13	5/20	0.60	6/ 5	0.064
	Load	5/13	28.3	5/13	15.1	5/13	3.71	5/13	85.7	5/13	22.0	5/20	21.6	5/20	2.11	6/16	0.467

(Conc: $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ Load: $\text{mg}\cdot\text{s}^{-1}$)

恋瀬川では6月1日にも高いピークがあった。河川水中の濃度は小桜川で高く、川又川、恋瀬川と下流ほど低くなる傾向が見られた。MEPは、他の農薬と異なった流出傾向を示し、降雨後にのみ検出された。

水田除草剤は、移植前後から移植後1週間までに初期除草剤、移植後1～2週間後に中期除草剤の散布が行われる^{6),10)}。しかし、近年、除草剤の散布を一度で済ませる一発処理剤が開発され、除草剤の主流となっている。一発処理剤も散布時期から2つに分類され、初期除草剤である BUT, PRE, PYR 等を含む混合剤(ワンオール粒剤, クサカリン粒剤等)は移植直後から7～10日以内に用いられる。一方, MFN, ESP の混合剤(アクト粒剤, フジグラス粒剤等)は移植後5日から15日の間に施用するとなっている⁹⁾。今回の調査結果から、以下のような特徴が明らかとなった。

初期除草剤の成分は5月中旬までの早い時期に大半が流出している。特に, PRE, BUT は5月8日の濃度が5月10日より常に高く, BUT は St.1 において4月27日に低濃度ながらすでに検出されていた。一方, MFN は、全地点で5月8日から検出されたが、5月20日以降も高濃度で検出され流出負荷量も大きい。6月に入ると濃度は徐々に低くなるが, St.1, 5, 6 では6月26日にも $0.1\sim0.2\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ と低濃度ながら検出され、流出が長期にわたっている。ESP も MFN について長期間検出され、5月15日頃までは BUT より低濃度で推移するが、その後は BUT より高濃度となり6月中旬まで検出されている。しかし、いずれの除草剤も流出ピークは同じ時期に見られた。これらの結果は、各農薬の施用時期とよく一致している。

なお、一部の地域で6月5日前後に BUT, 10日前後に ESP の濃度が上昇している。これは5月末から6月初旬に一部の水田で移植が行われた影響と思われる。

また、農薬の濃度は土曜日から週の前半に高くなり、週末に向かって低くなる傾向が見られ、兼業農家が多いことから農薬散布がおもに土・日曜日に行われていることが明らかとなった。

畠山ら⁴⁾は致死濃度以下であっても複合影響でヌカエビの死亡率が著しく増大することを報告している。今回の調査で、移植後1週間頃から多くの農薬が同時に高濃度検出されることから、水生生物への影響が懸念される。特に、農業人口の減少や兼業農家の増加により、省力化のもと、各種薬剤の同時施用や一斉散布が多くなることが予想され、薬剤の適正施用や散布後の水管理等に十分配慮することが望まれる。

3.2 農薬の降雨時流出特性

降雨時流出調査を行った5月15～17日は、除草剤散布の最盛期にあたり、河川水中の除草剤濃度が最も高い時期である。殺虫剤は、まだそれほど高い濃度にはなっていない。また、この5月15～16日の降雨は、全調査期間中の一降雨としては降水量、降雨強度とも大きな規模のものであり、河川水質に与える影響が最も大きかったものと推定される。

溶存態の MFN, BUT, BPMC, MEP の濃度と流出負荷量の経時変化を降水量と流量の変化とともに Fig. 6 に示す。降雨は5月15日16時から17時の時間降雨4 mm で始まり、19時には最大時間降雨7 mm を記録した。その後一旦弱まるが、16日0時から7時まで時間降雨1～3 mm で降り続き、最終は9時の1 mm であった。

調査開始時には、河川はすでに増水しており、初期流出は捉えることができなかった。しかし、流量の最大ピークは16日5時(Rf-3)に現れており、一降雨による流出量の評価は十分可能と思われる。これまでの小桜川での降雨時流出の観測結果から降雨流出の開始

Fig. 6 Changes in concentration and loading of dissolved pesticides at the rainfall event

△ : Flow rate ; ○ : MFN ; ● : BUT ;
■ : BPMC ; ■ : MEP

時刻 (Rf-0) を強い降雨が記録された15日19時と推定し、17日11時 (Rf-10) までの40時間を一降雨流出とした。なお、初期値としては15日10時に行った定期調査のデータを用いた (Table 4 参照)。

流量の変動には、2つのピークが見られた。最大流量は Rf-3 の $2.01 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ で、Rf-6 の第二のピーク (流量: $1.91 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) は取水堰が開放された (St. 4 では 8:30頃) ための増水である。

除草剤と殺虫剤では異なる流出パターンを示し、さらにそれぞれが2つのタイプに分けられる。

除草剤の第1のタイプは BUT でその特徴が明瞭に見られ、河川流量の増加とともに濃度は低下し、途中で流量が減少すると一時的に濃度は高くなった。しかし、常に初期濃度より低く推移し、最終的に初期濃度の約30%まで低下した。ESP, PRE も同様の変化を示し、最終濃度は初期濃度のそれぞれ約65%, 25%となった。PYR も Rf-1, Rf-4, Rf-7 に、それぞれ $0.30, 0.32, 0.27 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ (初期値: $0.57 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$) 検出されており、同様の変化をしているものと考えられる。

第2のタイプは MFN で、Rf-1 で初期濃度の 12.6 から $14.1 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ まで上昇した。その後は BUT と同様の变化を示し、最終濃度は初期濃度の約50%となった。

流出負荷量は両タイプとも河川流量が増加すると多くなる傾向を示すが、流量ピークと負荷量ピークは一致していない。Rf-5, Rf-6 を谷として2つの大きな

Fig. 7(a) Changes of loadings of insoluble pesticides at the rainfall event

(b) Changes of concentration of pesticides in suspended solids

▲ : SS ; ○ : MFN ; □ : MPP

ピークに分けられ、第1のピークには、さらに小さな2つのピークが見られる。第1のタイプと第2のタイプで最大負荷量は異なる時刻に見られたが、ともに最大流量より早く現れ、その後のピークは流量ピークの直後に見られた。そして流量のピーク時にはいずれも流出負荷量は低くなる傾向が見られる。

殺虫剤では、濃度と流出負荷量の変化は同じ傾向を示した。殺虫剤の第1のタイプは BPMC で、Rf-1 で濃度、負荷量とも最大となり、その後徐々に低下した。Rf-6 以降はほぼ一定となるが、常に初期値より高く推移した。MPP も BPMC と同じ変化を示した。

MEP は流量の最大ピーク時 (Rf-3) に濃度、流出負荷量とも最大を示した。その後、徐々に減少するが Rf-7 で濃度、流出負荷量ともわずかに高くなり、Rf-8 以降は検出されなくなった。

次に、懸濁態での流出が見られた MFN と MPP について、SS と懸濁態での流出負荷量および単位 SS 重量当りの農薬量 (SS の農薬濃度) の経時変化を Fig. 7 に示す。懸濁態 ESP の検出は Rf-6 ($0.25 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$) の1回だけであった。MFN は SS と同じ流出パターンを示したが、MPP は Rf-1 で流出負荷量は最大となり、SS と懸濁態 MFN がともに最大となる Rf-6 でも増加するが、Rf-1 の約85%にとどまった。

SS の農薬濃度では、MFN は Rf-1 と Rf-5 で高く、MPP は Rf-1 で高いが、Rf-5 ではわずかに濃度が高くなる程度であった。SS の流出負荷量が多い Rf-3, 4, 6 では、MFN, MPP とも低くなる傾向が見

Table 4 Comparison of cumulative loadings of mefenacet with observation frequency

Date / Time	Loading (mg·s ⁻¹)	Pattern1 (g)	Rainfall (g)	Pattern2 (g)	Pattern3 (g)	Pattern4 (g)
5/01 Wed. 11:40	0	0				
08 Wed. 11:15	0.76	294		295	295	459
10 Fri. 10:45	1.44	310		312	312	
13 Mon. 10:45	7.92	1703		1711	1711	
15 Wed. 10:10	3.21	325		416	554	1941
Rf-0 19:00	3.21	99				
16 Rf-1 03:20	23.2	404	399			
Rf-2 04:35	21.8	67	103			
Rf-3 05:00	21.7	57	33			
Rf-4 06:00	22.6	104	82			
Rf-5 07:30	16.8	93	109			
Rf-6 09:00	16.4	95	94			
Rf-7 10:30	18.4	119	98	1627		
Rf-8 12:30	13.6	111	117			
Rf-9 15:00	10.5	424	109			
5/17 Fri. 11:00	3.23	532	493	558	698	
20 Mon. 10:25	4.02	865		868	868	
22 Wed. 10:40	6.69	866		867	867	4045
23 Thu. 10:20	2.29	692		692	692	
29 Wed. 10:30	1.51	586		586	586	911
6/01 Sat. 10:25	1.85	481		480	480	
04 Tue. 10:40	2.27	392		392	392	
05 Wed. 10:20	1.01	348		349	349	610
12 Wed. 10:30	0.29	137		137	137	175
16 Sun. 10:30	0.50	152		152	152	
19 Wed. 10:25	0.11	48		48	48	68
26 Wed. 10:15	0	0		0	0	
Total Discharge		9304	1637	9490	8141	8209

られた。

以上の結果から、除草剤と殺虫剤の流出特性に明らかな違いが認められた。また、殺虫剤でも MEP の流出が MPP などと異なることが示された。MEP は、他の農薬がすべて検出された降雨前には検出されないこと、河川流量の最大ピークと濃度、流出負荷量の最大値が一致することから、MEP はおもに水田以外からの流出によるものと考えられる。

溶存態の流出では殺虫剤は除草剤と異なり、後半の流出負荷量ピークが見られない。すなわち、殺虫剤は初期流出で多く流出し、水田の残留量が除草剤より速く減少したことを示すものである。今回の調査結果から、除草剤と殺虫剤の水田土壌への吸着残留性と流出特性の違いが明らかとなったが、殺虫剤の散布量が除草剤のそれに比べ少ないため、このような見かけ上の違いが生じたことも考えられ、殺虫剤に関しても施用最盛期の降雨時流出調査など、より詳細な調査が必要と思われる。

3.3 農薬の流出量と調査頻度の影響

降雨時流出調査を行った St. 4 の調査結果より、4 つの調査パターン（調査頻度）を想定し総流出負荷量を求めた。その計算結果を MFN を例に Table 4 に示す。

Table 5 Relative total loadings calculated with pattern 2 and other patterns

	Rainfall	Pattern 1	Pattern 2	Pattern 3	Pattern 4
Flow	0.065	0.99	1.00	0.95	0.85
BUT	0.237	0.97	1.00	0.81	0.84
PRE	0.214	0.97	1.00	0.87	1.11
PYR	0.274	0.55	1.00	0.41	1.44
ESP	0.197	0.97	1.00	0.85	0.80
MFN	0.172	0.98	1.00	0.86	0.86
BPMC	0.088	1.04	1.00	0.97	1.30
MPP	0.097	1.05	1.00	0.93	1.88
MEP	0.052	0.96	1.00	0.97	0.90

一降雨による総流出負荷量 (Rf-0~10) についても一緒に示した。

パターン 1 は降雨時流出調査の 9 回のデータも含めた全データから、採水間隔を時間単位でとり、算出した総流出負荷量である。

パターン 2 は定時・定点観測のデータから、採水間隔を日単位として求めた総流出負荷量である。降雨時調査については 16 日 10 時 30 分 (Rf-7) のデータを用いた。

パターン 3 はパターン 2 から 5 月 16 日の降雨データを除いた総流出負荷量である。

パターン 4 は毎週 1 回水曜日の定期調査から算出した総流出負荷量である。

パターン 1 とパターン 2 では、PYR 以外はほぼ同じ

流出負荷量が得られ、降雨後の増水時に調査を行うことにより降雨時流出をカバーできることがわかる。

次に、パターン2とその他のパターンの総流出負荷量との比を Table 5 に示す。

各農薬の一降雨総流出負荷量は調査期間中の総流出負荷量に対し、除草剤で20～25%、殺虫剤で5～10%であった。このためパターン3による総流出負荷量は、パターン2に対し殺虫剤で約95%、除草剤で81～87%であった。まだ散布のピーク時期でない殺虫剤ではデータの削除による影響はそれほど大きくないが、除草剤は散布のピーク時にあたり、この1回の降雨調査を省いただけで約15%過小に見積もられたことになる。

パターン4では80%から約2倍まで大きく変動している。水田用農薬は、散布される時期が限定されており、検出期間も比較的短期間であることから、週1回の定期調査だけでは流出量を定量的に評価することは難しいと思われる。特に、PYRは検出頻度が極端に少なく、検出の継続時間も数時間から長く見積もっても2～3日と見られる。もし、週1回の定期調査で検出されたとすると、その流出負荷量に7日間の流出期間がかけられ過大に算定することになる。逆に調査間隔が長い場合には検出されないことも考えられ、正確な総流出負荷量が得られないことになる。したがって、PYRのような検出期間の短い成分の流出特性を知るためには、散布直後からできるだけ短い調査間隔で流出を把握する必要がある。

海老瀬¹¹⁾は栄養塩等の負荷量の算定においても、高流量時に高い流出負荷量を呈する成分について、毎週1回の調査では降雨時の流出負荷量を正確に見積もることができず不十分であるとしている。農薬も降雨時の流量増加に伴い高負荷量を与え、しかも、流出期間も短期間に限定されることから、降雨の影響を十分考慮して調査を行うことが重要である。

3.4 農薬の流出率

農薬の流出率を求めるためには、前節で検討した流

出量とともに、調査流域での農薬施用量の把握が重要である。しかし、施用実態を正確に把握することは大変困難である。ここでは、調査流域への農薬の販売量が最も多いと考えられる農協からの出荷量を基に流出率の算定を試みた。Table 6 に調査地点流域における水田1ヘクタール(ha)当たりの施用量を示した。本調査流域(St.6)で最も施用量の多かった農薬は、MFNで780kg、次いでESP470kg、MPP390kgの順で、最小はPREの60kgであった。しかし、同一農協内であっても地区毎に出荷される農薬の種類や量が異なっており、他農協間ではさらに大きな違いのあることが明らかとなった。したがって、この調査流域では、農薬毎に指定された標準施用量¹⁰⁾や県内全域へのお荷量⁶⁾からでは正確な流出率を求めることはできない。

Table 7 に調査地点毎の各農薬の流出率と水溶解度^{12),13)}を示した。また、丸¹⁴⁾によって示されたライシメーターでの水溶解度と流出率の回帰式より求めた流出率も併せて示した。流出率の算定には、パターン3の流出負荷量を用い、St.4についてはパターン2による流出率も併せて示した。

Fig. 8 に水溶解度と流出率の関係を図示した。農薬の流出率は水溶解度と相関が高い^{10),14),15)}ことが報告されており、同様の結果が得られた。PYRの流出負荷量は前節で述べたように正確さに欠けるが、流出し難い農薬であることは確かである。

MEPの流出率は非常に小さい。これは、出荷量調査でMEPの混合剤であるトラサイドA、パーマチオン等の栗、ぶどう、梨等に用いられる農薬が出荷されており、おもに全耕地面積の10～20%を占める樹園地からの流出であると考えられる。

St.1は除草剤の流出率が他の地点と比べ常に小さい傾向が見られる。これはSt.1の河川の比流量が小さいこともあり、灌漑用水の取水による影響と考えられる。

今回得られた流出率を全体的に見ると、一部の農薬を除き小桜川のSt.2,3で高い流出率が得られ、流下

Table 6 Specific cumulative discharge and amount of applied pesticides

	Discharge	BUT	PRE	PYR	ESP	MFN	BPNC	MPP	MEP
St.1	87.58	153	28.1	106	414	366	153	282	222
St.2	148.4	157	29.6	111	467	383	157	294	210
St.3	140.9	157	29.6	111	468	383	157	293	209
St.4	131.4	168	30.0	114	421	394	168	305	255
St.5	138.1	213	31.9	125	262	437	213	356	403
St.6	136.7	148	38.6	154	301	503	148	248	243

(Discharge: $\times 10^3 \text{ m}^3 \cdot \text{km}^{-2}$

Pesticides: $\text{g} \cdot \text{ha}^{-1}$)

Table 7 Runoff rate of applied pesticides from observation areas with runoff pattern 3

	BUT	PRE	PYR	ESP	MFN	BPMC	MPP	MEP
Solubility ($\mu\text{g}\cdot\text{ml}^{-1}$)	20	50	0.9	4.9	4.0	660	55	14
Runoff rate (%)								
St.1	4.85	9.78	0.00	3.02	7.99	23.2	1.28	0.021
St.2	7.99	11.6	0.40	4.58	11.7	24.8	1.63	0.069
St.3	7.65	12.1	0.33	5.18	12.2	23.9	1.49	0.049
St.4	6.81	14.1	0.13	4.60	12.5	13.1	0.85	0.043
St.5	6.02	16.5	0.58	4.52	10.9	9.42	0.80	0.100
St.6	5.95	14.0	0.69	3.68	10.0	9.42	0.59	0.082
St.4 ^a	8.39	16.2	0.32	5.40	14.5	13.5	0.87	0.046
Runoff rate ^b (%)	6.29				9.10	17.1	2.17	3.14
Runoff rate ^c (%)	9.04	12.2	3.3	5.71	5.35	28.4	12.6	8.05

a: Calculation with pattern 2 ; b: Runoff from lysimeter test¹⁴⁾c: Calculation with regression equation¹⁴⁾ ($\log[Y]=0.531+0.327\log[X]$ X:solubility Y:runoff rate)

Fig. 8 Relationship between solubility and runoff rate

○ : St. 1 ; ● : St. 2 ; ◐ : St. 3 ;
□ : St. 4 ; ■ : St. 5 ; △ : St. 6

に伴い低くなっている。飯塚¹⁰⁾は水田面積が広く流下距離が長くなるほど分解、揮散、土壌吸着等が促進され流出率が低下するとしている。降雨時流出の際、SSの流出負荷量が最大の時に懸濁態のMFN、MPPの流出が多くなったこと、BPMCの流出負荷量がSt.3と

4の間でかなり少なくなることなどから、分解と土壌吸着を生じているものと考えられる。しかし、殺虫剤の流出率の低下は、殺虫剤が収穫前まで数回にわたって施用されることから、農協からの出荷量のうち一部は使われずに農家にストックされていることも一つの要因と考えられる。また、灌漑水の繰り返し使用が農薬の流出量評価に与える影響、水田土壌への残留、河川底質への吸着、水中での分解など、環境中での農薬の動態に関してさらに詳細な検討が必要である。

4. 結 論

水稻移植期に毎週水曜日の定期調査と降雨時および降雨後の追加調査を行い、農薬の流出特性と流出負荷量を明らかにした。また、各調査地点毎の農薬出荷量を基に農薬施用量と流出率について検討し、以下の結果が得られた。

1) 水稻移植期に施用される農薬は、湛水状態で用いられるため散布直後よりおもに溶存態で河川水中に検出された。

2) 除草剤の流出は移植後1～2週間後にピークが見られ、MFN、ESPは、BUT、PRE、PYRより長期間検出された。

3) 殺虫剤は除草剤より約1週間から10日遅れて流出ピークが見られた。

4) 降雨時流出調査の結果、除草剤は総流出負荷量の20～25%が一降雨で流出し、農薬の環境中への流出を評価するには、施用最盛期における降雨時の調査が

重要である。

5) 除草剤と殺虫剤で降雨時流出において異なった流出パターンを示し、殺虫剤は降雨初期に多く流出することが認められた。

6) 農薬の総流出負荷量を求めるためには週1回の調査頻度では不十分であり、降雨による流出を考慮した詳細な調査を行う必要がある。

7) 移植後1週間頃から多種類の農薬が同時に高濃度検出され水生生物への影響が懸念される。

8) 調査地点毎の農薬出荷量調査の結果、同一町村内であっても地区毎に出荷量に大きな違いが見られた。

9) 降雨影響を考慮し調査を行った結果、今までの河川への流出率より大きい流出率が得られ、この値は試験田等による流出率に近い結果となっている。

謝 辞

本研究を行うにあたり、ICI ジャパン(株)、石原産業(株)、日本チバガイギー(株)、日本バイエルアグロケム(株)の各社には農薬標準品のご提供を、茨城県の農協には農薬の出荷量調査にご協力をいただいた。また、国立環境研究所環境化学部伊藤裕康、芹沢茂子両氏にはGC-MSによる農薬の同定をお願いした。ここに記して深く感謝の意を表します。

(原稿受付 1992年5月31日)

(原稿受理 1992年8月3日)

引 用 文 献

- 1) 金澤純 (1991) 農薬と水質, 水質汚濁研究, **14**, 69.
- 2) 西尾建 (1978) 沿岸漁業から見た農薬の問題点, 生態化学, **1**, 131-148.
- 3) 茂岡忠義 (1991) 農薬の水生生態系への影響評価, 水質汚濁研究, **14**, 88-91.
- 4) 畠山成久, 白石寛明, 浜田篤信 (1991) 霞ヶ浦水系河川のヌカエビ (*Paratya compressa improvisa*) 生物試験による農薬毒性の季節変動, 水質汚濁研究, **14**, 460-468.
- 5) 御厨初子, 宮原和夫 (1983) 佐賀県における水田地帯のクリーク水の農薬による汚染, 生態化学, **6**, 23-33.
- 6) 丸論 (1985) 千葉県内河川の農薬モニタリング, 生態化学, **8**, 3-10.
- 7) Shiraishi, H., Pula, F., Otsuki, A. and Iwakuma, T. (1988) Behaviour of pesticides in Lake Kasumigaura, Japan, *Sci. Total Environ.*, **72**, 29-42.
- 8) 海老瀬潜一, 井上隆信 (1991) 支流の合流を伴う河川流下過程における水質変化量の定量評価, 水質汚濁研究, **14**, 243-252.
- 9) 香月繁孝, 飯塚慶久, 後藤宗玄, 数賀山靖 (1990) 農薬便覧・第7版, 農山漁村文化協会.
- 10) 飯塚宏栄 (1989) 水田除草剤の水系における動態, 農業環境技術研究所報告, **6**, 1-18.
- 11) 海老瀬潜一 (1988) 流域からの無機イオン流出負荷量原単位と流出特性, 国立公害研究所報告, **116**, 111-131.
- 12) 富澤長次郎, 上路雅子, 腰岡政二 (1989) 最新農薬データブック, ソフトサイエンス社.
- 13) 日本植物防疫協会 (1985) 農薬ハンドブック.
- 14) 丸論 (1990) 水田ライシメーターからの農薬流出と水溶解度の関係, 日本農薬学会誌, **15**, 385-394.
- 15) 渡辺貞夫, 渡辺重信, 伊藤和敏 (1984) モデル水田における除草剤 (CNP, Molinate, Simetryne) の水系への流出と土壌中での消長, 日本農薬学会誌, **9**, 33-38.