資 料 [Material]

宍道湖水におけるネオニコチノイド濃度の予備的報告

土井慎一¹⁾・石原正彦¹⁾・江角敏明²⁾・神谷 宏²⁾・山室真澄^{3,4,*}

**Preliminary report on the concentration of neonicotinoid pesticides in the water
of Lake Shinji, Japan**

Shin-ichi DOI¹⁾, Masahiko ISHIHARA¹⁾, Toshiaki ESUMI²⁾, Hiroshi KAMIYA²⁾, Masumi YAMAMURO^{3,4,*}

Abstract

Although reductions in both the abundance of the zooplankton *Chironomus plumosus* and the fisheries yield of shrimps occurred immediately after the use of neonicotinoids began at Lake Shinji, Japan, there have been no studies on the actual concentration of neonicotinoids in the lake water. Thus, we performed a preliminary analysis of the concentration of neonicotinoids in the lake water and the water in the surrounding watershed. The concentration of neonicotinoids in the lake water at sampling sites influenced by the Hii River was under our detection limit, while lake water at sites influenced by the waste water from rice paddies contained neonicotinoids at concentrations more than the detection limit. The total concentration was below the chronic concentration. Because the concentration of neonicotinoids in the waste water from rice paddies was higher in June than in July, the concentration in Lake Shinji may become higher immediately after the planting of rice at this time.

Keywords: paddy water, imidacloprid, shoreline, *Chironomus plumosus*, shrimp

摘 要

宍道湖ではネオニコチノイドの使用開始直後からオオユスリカの減少や動物プランクトンの減少、エビ類漁獲量の減少が生じているが、宍道湖でのネオニコチノイド濃度の報告はこれまでになかった為、予備的に分析を行った。斐伊川の影響を受ける地点ではネオニコチノイドが検出されなかったが、水田排水を宍道湖に流す排水機場に近い地点でネオニコチノイドが検出された。その濃度は動物に慢性毒性を与える影響より小さかった。しかしながら水田排水が集積する排水機場で田植え期に近い6月の方が7月より高い濃度が見られたことから、田植え直後など大量に殺虫剤を使用する時期には濃度が高くなる

¹⁾ 島根県環境保健公社 〒690-0012 島根県松江市古志原1-4-6 Shimane Environment & Health Public Corporation, Koshibara, Matsue, Shimane 690-0012, Japan

²⁾ 島根県保健環境科学研究所 〒690-0122 島根県松江市西浜佐陀町582-1 Shimane Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science, Nishihamasada, Matsue, Shimane 690-0122, Japan

³⁾ 国立研究開発法人産業技術総合研究所地質情報研究部門 〒305-8567 茨城県つくば市東1-1-1 中央第7 Institute of Geology and Geoinformation, Geological Survey of Japan (GSJ), AIST, 1-1-1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki, 305-8567, Japan

⁴⁾ 東京大学大学院新領域創成科学研究科 〒277-8563 千葉県柏市柏の葉5-1-5 Faculty of Frontier Science. The University of Tokyo, 5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8563, Japan

^{*} 連絡先：山室真澄 Corresponding author: Masumi YAMAMURO, E-mail: m-yamamuro@aist.go.jp

可能性があると考えられた。

キーワード：水田排水, イミダクロプリド, 湖岸, オオユスリカ, エビ類

(2018年2月19日受付：2018年4月30日受理)

はじめに

ネオニコチノイド (neonicotinoid) はクロロニコチニル系殺虫剤の総称で、日本では1990年代から使用されるようになった。最初に登録されたのはイミダクロプリドで、1992年11月4日である。それまで主に使用されてきた有機リン系殺虫剤と比べて人体や哺乳類・鳥類・爬虫類への安全性が高い一方で昆虫に対する毒性は強く、また殺虫成分が植物体内に長期間残ることから、生態系への影響が世界中で懸念されている (Mitchell et al., 2017)。特に日本では水田に散布されるネオニコチノイドが水界生態系に与える影響が懸念される。例えば Kasai et al. (2016) は水田メソコスムを使ってネオニコチノイドの影響を検討し、ネオニコチノイドが水中での濃度が減少して以降も土壌中で長期間残存することや、昆虫だけでなくミジンコなどの節足動物にも影響を与えていると報告している。

島根県に位置する宍道湖は、淡水流入量の約7割が斐伊川から供給される。その斐伊川では水田に施肥される肥料起源の窒素やカリウムなどが水質に影響を与えていることが報告されている (Tabayashi et al., 2017)。また山室ほか (2014) は、斐伊川集水域で使用される水田除草剤使用量の減少が宍道湖における水草大量繁茂の原因になったことを指摘しており、宍道湖水には集水域の水田で使用されている農薬がある程度流入していると考えられる。

その宍道湖では、かつてはオオユスリカ (*Chironomus plumosus*) が迷惑害虫として新聞報道されるほど発生していたが、1990年代に全く発生しなくなった。国土交通省出雲河川事務所による調査 (未公表資料) から、発生しなくなったのは1993年からであることが分かっている。また国土交通省出雲河川事務所が宍道湖湖心部で毎月行っている動物プランクトン調査 (未公表資料) でも、1993年4月に突如激減して以降、減少状態が継続していた。炭素量で換算した動物プランクトン量は、1984年4月から1993年3月までの平均値に対して、1993年4月から2002年3月までの平均値は7分の1だった。優占種は1993年以前以後ともに、*Synocalanus tenuis* もしくはそ

の幼生と考えられる Copepoda 幼生である。宍道湖では同じ年に、節足動物であるテナガエビ (*Macrobrachium nipponense*) やヨシエビ (*Metapenaeus ensis*) などの汽水性のエビ類の漁獲量が急減し、その後、回復せずに現在に至っている (<http://shinjiko.jp/relays/download/?file=/files/libs/96/20150604091741688.xls>)。

オオユスリカの減少は同じ頃に諏訪湖でも起こっていて、その原因として堆積物中有機物の減少が指摘されている (Hirabayashi et al., 2003)。しかし宍道湖では1990年代から今日まで堆積物中有機物はむしろ増加傾向にあり (小室ほか, 受理印刷中), 有機物減少が原因ではない。1993年は、日本で広く使用されているイミダクロプリドが登録された翌年に当たることから、オオユスリカや動物プランクトン、エビ類が急減した原因としてネオニコチノイドの影響が疑われるが、これまで宍道湖水のネオニコチノイド濃度は分析されたことがなかった。そこで本研究では予備的に、宍道湖とその周辺水域におけるネオニコチノイドの濃度を分析した。

方 法

Fig. 1 に示す宍道湖内3地点 (S6, S7 および S8) と、水田排水を宍道湖にポンプアップして流す排水機場で、2017年6月と7月にステンレスバケツを用いて表層水を採水した。7月は水田でも採水を行った。6月の排水機場での採水は6月2日に行い、前日の日降水量は出雲 (出雲市芦渡町, 標高: 20.0 m) のアメダスデータで19 mm だった。採水時の天候は晴れだった。S6~S8の採水は降雨から4日後の6月5日に行い、前日・当日とも晴天だった。7月は水田と排水機場で7月20日に採水を行った。前日は出雲で日降水量11.5 mmの降雨があったが、採水時は晴れていた。S6~S8の採水は7月19日に行い、上述のように日降水量11.5 mmの降雨があった。前日は晴れていた。

ネオニコチノイドの分析は液体クロマトグラフ-質量分析計を用いて行った。分析対象はアセタミプリド、イミダクロプリド、クロチアニジン、ジノテフラン、チアクロプリド、チアメトキサム、ニテンピラムで、分析条

宍道湖水におけるネオニコチノイド濃度の予備的報告

Fig. 1. Map showing sampling sites.

図1. 採水地点の位置.

Table 1. Analytical conditions of the liquid chromatography–mass spectrometry (LC/MS) procedure used for detecting neonicotinoids.

表1. ネオニコチノイドを対象にした液体クロマトグラフ-質量分析計の分析条件.

LC	: Agilent 1260 Infinity		
Column	: Xterra MS C18 (2.1 mm, 150 mm, 3.5 mm)		
Mobile phase	: A 0.1% formic acid, 10 mM ammonium formate/water		
	: B 0.1% ammonium formate/acetonitrile		
Gradient	: B 5% (0–1.5 min) –60% (2.5 min) –70% (5.5 min) –98% (6.5–12 min)		
Flow rate	: 0.4 mL min ⁻¹		
Injection	: 80 µL		
MS	: Agilent 6460		
Ionization	: Agilent jet stream electrospray		
Drying gas	: N ₂ (300°C, 10 mL min ⁻¹)		
Nebulizer gas	: N ₂ (50 psi)		
Sheath gas	: N ₂ (350°C, 12 mL min ⁻¹)		
Capillary volt	: 3500 V		
Nozzle volt	: 0 V		
Monitoring ion	Precursor ion (m/z)	Product ion (m/z)	Polarity
Acetamiprid	223	126	Positive
	223	99	Positive
	223	90	Positive
	223	56	Positive
Imidacloprid	256	209	Positive
	256	175	Positive
Clothianidin	250	169	Positive
	250	132	Positive
	250	113	Positive
	250	110	Positive
Dinotefuran	203	129	Positive
	203	113	Positive
Thiacloprid	253	126	Positive
	253	90	Positive
Thiamethoxam	292	211	Positive
	292	181	Positive
	292	132	Positive
	292	69	Positive
Nitenpyram	271	56	Positive
	271	225	Positive
	271	126	Positive
	271	99	Positive

Table 2. Concentration of neonicotinoids in the water of Lake Shinji, Japan. The detection limit was $0.002 \mu\text{g L}^{-1}$, and 'N.D.' denotes that the concentration was below the detection limit.

表2. 宍道湖におけるネオニコチノイドの濃度。検出限界は $0.002 \mu\text{g L}^{-1}$ で、N.D.は検出限界未満であったことを示す。

Compound	Concentration ($\mu\text{g L}^{-1}$)								
	June				July				
	S6	S7	S8	Pump station	S6	S7	S8	Pump station	Rice paddy
Acetamiprid	N.D.	N.D.	N.D.	0.280	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
Imidacloprid	N.D.	N.D.	N.D.	0.149	N.D.	0.015	N.D.	0.035	0.012
Clothianidin	N.D.	N.D.	N.D.	0.019	N.D.	0.006	N.D.	0.011	0.011
Dinotefuran	N.D.	N.D.	N.D.	0.032	N.D.	0.005	N.D.	0.016	0.008
Thiacloprid	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
Thiamethoxam	N.D.	N.D.	N.D.	0.009	N.D.	0.005	N.D.	0.012	0.031
Nitenpyram	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.

件はTable 1の通りとした。試料10 mLを採取して減圧下で試料が5 mL以下になるまで濃縮後、純水で5 mLに定容した。その溶液をメンブランフィルターろ過装置でろ過し、初めのろ液約数mLは捨て、次のろ液を試験溶液として用いた。

調査を行った水田における農薬散布は5月3日のみで、ネオニコチノイド系農薬のイミダクロプリドを主成分(2%)とするルーチンエキスパート箱粒剤を $800 \text{ g}/1000 \text{ m}^2$ で散布している。この農薬散布を行っている営農組合はこの水田の近くの10 haを耕作している。この散布方法は出雲JA斐川町支所が推奨するもので、斐川町の水田はほぼ同じ農薬散布を行っていると考えられる。耕作は2年で3回行われており、初年度水稻を作付けした場合、翌年度は水稻以外の作物を2回耕作するようになっている。排水機場の集水域は約 3.3 km^2 で、内訳は水田が 1.6 km^2 、生産調整面積（ほとんどが二条麦と大豆）が 1.2 km^2 、宅地が 0.5 km^2 である。

結 果

分析結果をTable 2に示す。6月は湖内では検出されなかったが、排水機場で5種類のネオニコチノイドが検出された。最も濃度が大きかったのはアセタミプリドの $0.28 \mu\text{g L}^{-1}$ だった。7月は排水機場から最も近いS7で4種類のネオニコチノイド系殺虫剤が検出され、最も濃度が大きかったのはイミダクロプリドの $0.015 \mu\text{g L}^{-1}$ だった。また検出された殺虫剤濃度の和は $0.031 \mu\text{g L}^{-1}$ だった。排水機場と水田では、総和にしてS7の2倍前後のネオニコチノイドが検出された。最も濃度が大きかったのは、排水機場ではイミダクロプリド、水田ではチアメトキサムと、傾向が一致しなかった。

6月と7月の比較が可能な排水機場での濃度は、チアメトキサム以外は6月の方が高かった。

おわりに

Morrissey et al. (2015)は、最も敏感な無脊椎動物に対してネオニコチノイドの濃度が $0.035 \mu\text{g L}^{-1}$ 以上だと慢性毒性が、 $0.200 \mu\text{g L}^{-1}$ 以上だと急性毒性が生じると報告している。一方、相模川流域で河川水中のネオニコチノイド濃度を調べた研究では、降雨によって農薬が河川によって流出した可能性が高い6月に、イミダクロプリドとクロチアニジンの和が $0.19 \mu\text{g L}^{-1}$ に達していた(佐藤ほか, 2016)。

今回の調査では、宍道湖でネオニコチノイドが検出されたのは排水機場に最も近いS7で、その総和は $0.031 \mu\text{g L}^{-1}$ だった。この濃度は最も敏感な無脊椎動物に対するネオニコチノイドの慢性毒性濃度である $0.035 \mu\text{g L}^{-1}$ に達していないが、斐伊川流域の農地の大部分を占める水田(Tabayashi et al., 2017)で殺虫剤を大量に使用する田植え直後には、これより高い濃度になる可能性がある。また、斐伊川からの流入水の影響を受ける地点ではなく、水路からの排水の影響を受けるS7でネオニコチノイドが検出されたことは、水田を経由する水路や小河川の流出口付近でネオニコチノイド濃度が高くなり、沿岸に生息するエビ類が影響を受けた可能性が考えられる。

湖沼生態系に農薬が与える影響はこれまで見過ごされてきたが、水田で使用されたネオニコチノイドは畑よりも水域に直接流入する可能性が高い。集水域に水田が多い宍道湖においてはその影響が大きい可能性があり、またその影響は公共用水質測定地点である沖合域よりも、水深1 m未満の湖岸域で生じている可能性がある。

今回の調査で、排水機場での濃度は田植期に近い6月

の方が7月より濃度が高かったことから、田植え期には宍道湖でもさらに高い濃度が検出される可能性がある。ネオニコチノイドが宍道湖の生態系に与える影響を検討するためには、田植え直後など大量に殺虫剤を使用する時期に、湖岸部も含めて調査を行う必要があると考えられる。

水植物大量発生前後の水質. 陸水学雑誌, 75, 99-105.

謝 辞

本研究は国土交通省河川砂防技術研究開発地域課題分野河川生態「人との相互作用によって持続する汽水湖生態系の構築」の一環として行われた。

引用文献

- Hirabayashi, K., Hanazato, T., Nakamoto, N. (2003): Population dynamics of *Prosilocerus akamusi* and *Chironomus plumosus* (Diptera: Chironomidae) in Lake Suwa in relation to changes in the lake's environment. *Hydrobiologia*, 506(1-3), 381-388.
- Kasai, A., Hayashi, T. I., Ohnishi, H., Suzuki, K., Hayasaka, D., Goka, K. (2016): Fipronil application on rice paddy fields reduces densities of common skimmer and scarlet skimmer. *Scientific Reports*. DOI: 10.1038/srep23055
- 小室隆・田林雄・神谷宏・嵯峨友樹・加藤季晋・山室真澄：宍道湖における過去30年間の表層堆積物中有機炭素濃度の増減. 陸水学雑誌, 印刷中.
- Mitchell, E. A. D., Mulhauser, B., Mulot, M., Mutabazi, A., Glauser, G., Aebi, A. (2017): A worldwide survey of neonicotinoids in honey. *Science*, 358, 109-111.
- Morrissey, C. A., Mineau, P., Devries, J. H., Sanchez-Bayo, F., Liess, M., Cavallaro, M. C., Liber, K. (2015): Neonicotinoid contamination of global surface waters and associated risk to aquatic invertebrates: A review. *Environment International*, 74, 291-303.
- 佐藤学・上村仁・小坂浩司・浅見真理・鎌田素之 (2016) : 神奈川県相模川流域における河川水及び水道水のネオニコチノイド系農薬等の実態調査. 水環境学会誌, 39(5), 153-162.
- Tabayashi, Y., Miki, K., Godo, T., Yamamuro, M., Kamiya, H. (2017): Multi-tracer identification of nutrient origin in the Hii River watershed, Japan, *Landscape Ecology and Engineering*, 13, 119-129, DOI 10.1007/s11355-016-0307-5
- 山室真澄・神谷宏・石飛裕 (2014) : 宍道湖における沈