HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	水田施用農薬の河川流出特性
Author(s)	井上, 隆信; 海老瀬, 潜一
Description	第2回衛生工学シンポジウム（平成6年11月10日（木）-11日（金） 北海道大学学術交流会館） . 8 都市・水・室内等の環境 . P8-7
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 2, 341-346
Issue Date	1994-11-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/7640
Type	departmental bulletin paper
File Information	2-8-7_p341-346.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

８－７

水田施用農薬の河川流出特性

井上隆信，海老瀬潜一（国立環境研究所）

１．はじめに

河川・湖沼等の水域の環境問題として，昨今，富栄養化に加えて化学物質による微量汚染が取り上げられている。わが国において多量に使用されている化学物質の一つとして農薬があり，その多くが水田で使用されている。水田農薬の使用に関しては，除草剤・殺虫剤・殺菌剤それぞれで多種類の農薬が使用されていること，毎年新しい農薬が開発されるため多量に使用される農薬の種類が変化していること，水稲移植後にその使用が集中することが特徴となっている。この水稲移植後の水田施用農薬の河川や下流域の閉鎖性水域の生態系に及ぼす影響を明らかにするためにも，河川での流出特性・流出負荷量を定量的に評価する必要がある。

農薬の水域での動態に関する研究は数多く行われているが，頻度の高い調査研究例は少ない。また，ライシメータを用いた研究によって農薬の流出率は水溶解度が大きいほど高くなることが明らかにされている[1]が，実際のフィールドではさらにいろいろな要因が影響していると考えられる。このため，水稲移植後の河川での農薬の流出特性を定量的に評価することを目的として，詳密調査を実施した。なお，1991年の調査結果についてはすでに報告している[1]。

２．調査概要

２．１ 調査地点・調査期間

調査は，図1に示した茨城県の霞ヶ浦流入河川である恋瀬川とその支川の川又川，および，さらにその支川の小桜川で，1991年から3年間実施した。調査地点は，1992年と1993年が，小桜川で上流・中流・末流の3地点，川又川で恋瀬川合流直前の1地点，恋瀬川で川又川流入直後と霞ヶ浦流入直前の2地点であり，St.1からSt.6とした。なお，1991年は，St.6の調査頻度はSt.1～St.5より少なかった。この流域では，4月末から5月初めの連休中に水稲移植が集中するため，調査は4月中旬から始めた。調査期間及び回数は，1991年が4月27日から6月26日まで18回，1992年が4月17日から6月30日まで28回，1993年が4月24日から9月1日まで48回であった。その他に降雨時流出調査を1991年と1992年は1回，1993年は6回実施した。

表1は，各調査地点までの流域面積と耕地面積を示した。耕地面積は，農業センサスのデータをもとに，流域内の各集落の面積の総和として求めた。耕地面積の流域面積に対する比率は，下流に行くに従って増加し，St.1の5.5%からSt.6の25.1%となっている。水田面積の流域面積に占める比率も3.1%から12.9%と下流に行くほど高くなっている。また，耕地の中では水田面積の占める比率が高い。水田以外では梨や栗等の樹園地が多いことも特徴であり，小桜川や川又川流域では，畑地と同程度の面積となっている。

２．２ 調査・分析方法

調査は上流のSt.1から下流のSt.6まで毎回同時刻に順次実施し，現地では流量算定のための流水断面積と流速の測定，ｐＨ・電気伝導度・水温の測定及び採水を行った。

農薬分析用の試水は，褐色ガラス瓶に採水し氷冷

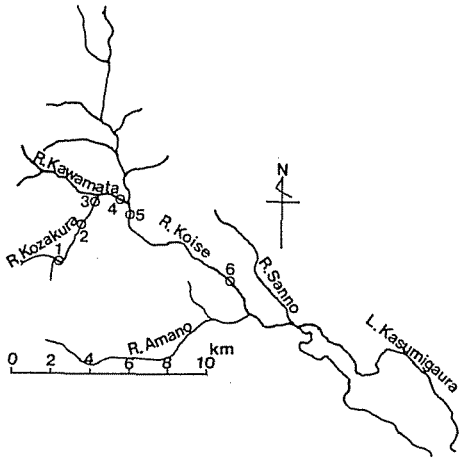

図１　調査地点

して持ち帰った。試水は，あらかじめアセトンで洗浄したガラス繊維フィルター（ワットマン，GF/C）を用いてろ過し，ろ液500mlを，コンディショニングした固相抽出カートリッジ（ボンドエルート，C-18）に通した後，アセトン6mlで溶出させた。このアセトン溶液を，遠心濃縮機で1ml程度に濃縮した後，窒素ガスを吹き付けアセトンを気散させ，ヘキサン1mlを正確に加えた。その後，冷凍庫で水分を凍結させ，ヘキサン溶液を測定用試料保存瓶に移し変えて冷凍保存し分析用試料とした。GF/Cろ紙上の懸濁物質中の農薬を測定する場合は，ろ紙をアセトン10ml溶液の中に入れ，氷冷しながら15分間の超音波抽出を３回行った。抽出ろ液は，GF/Cろ紙でろ過した後，遠心濃縮機で1ml程度に濃縮し，純水500mlを加えた後，ろ液と同様の操作を行い分析試料とした。

表１　調査地点の流域面積と耕地面積

	St.1	St.2	St.3	St.4	St.5	St.6
流域面積(km²)	9.4	16.5	18.2	39.8	127.5	147.4
耕地面積(km²)	0.52	2.02	2.93	8.23	31.8	37.0
水田面積(km²)	0.29	1.16	1.66	4.19	15.6	19.0
畑地(km²)	0.07	0.28	0.46	1.61	8.75	10.1
樹園地(km²)	0.05	0.29	0.46	1.63	4.28	5.5
耕地比率(%)	5.5	12.2	16.1	20.7	24.9	25.1
水田比率(%)	3.1	7.0	9.1	10.5	12.2	12.9

表２　農薬の回収率と検出限界

	回収率(%)	検出限界(μg/l)
メフェナセット	92.4	0.1
エスプロカルブ	74.9	0.1
ブタクロール	86.1	0.2
ＢＰＭＣ	85.9	0.1
ＭＰＰ	70.5	0.005
ＩＢＰ	95.4	0.006

農薬の分析は，ガスクロマトグラフ（島津GC-17A)を用い，検出器はFTDで検量線法で定量分析した。カラムは，ワイドボアカラム（DB-1またはDB-5，0.53mm，30m）を用い，１μlを注入した。また，ガスクロマトグラフ質量分析計（島津QP-5000）を用いてマススペクトルの確認を行った。解析対象とした農薬は，除草剤がメフェナセット，エスプロカルブ，ブタクロール，殺虫剤がＢＰＭＣ（フェノブカルブ），ＭＰＰ（フェンチオン），殺菌剤がＩＢＰ（イプロフェンホス）である。それぞれの農薬の回収率と検出限界濃度を表2にまとめて示すが，70%以上の回収率が得られている。なお，後述する農薬濃度は回収率で補正は行っていない。

３．流域の農薬使用量

調査対象流域の農協において出荷量調査を実施した。農薬は１種類又は数種類の有効成分が含まれた商品として出荷されているため，商品毎の出荷量と有効成分比率から有効成分毎の出荷量を求めた。また，各調査地点までの流域面積の境界線と農協各支所の境界が異なるため，流域毎の各有効成分の使用量を算定した。1991年と1992年については，流域内の各集落単位毎の水田面積を農業センサスデータをもとに求め，

ａ流域の使用量=Σ（ａ流域中ｉ支所の水田面積／ｉ支所の水田面積×ｉ支所の出荷量）

の式を用いて算定した。しかし，1993年は農協の出荷システムが変更され，各支所毎の出荷量のデータが得られなかった。このため，各流域の使用量は農薬毎に，1991年と1992年の各流域の使用量とA地区の使用量の比の平均値と，1993年のA地区の出荷量の積として算定した。

St.3からSt.5の各流域までの殺菌剤・殺虫剤・除草剤の使用量を，水稲移植後の水田で使用される代表的な農薬について表3に示した。

除草剤の使用量は，1991年のSt.3とSt.4では，クサカリン粒剤に含まれているピラゾレートが最大となった。1992年からアクト粒剤に含まれるメフェナセットがどの地点でも最大と

なり，ピラゾレート，エスプロカルブ，ブタクロール，ＣＮＰ等の使用量が減少している。また，シーゼットフロアブルに含まれるブロモブチド，ベンゾフェナップの使用量が1992年から増加している。

殺虫剤では，ＭＰＰ，ＭＥＰ，ＢＰＭＣ，エチルチオメトン，ダイアジノンの使用量が多くなっている。1992年にバサジット粒剤の使用量の減少によってＭＰＰの使用量も減少したが，1993年はＭＰＰが含まれる殺虫殺菌剤のヒノバイジット粉剤が増加したことによって再びＭＰＰの使用量が増加している。ヒノバイジット粉剤に含まれる殺菌剤のＥＤＤＰも1993年は使用量が増加した。ＭＥＰの使用量が殺虫剤の中では最大となっているが，ＭＥＰは水田だけではなく畑地や樹園地などで使用されているものも多い。また，ＢＰＭＣはバサジット粒剤としての使用量は減少したが，トレボンバッサとしての使用量が増加したため，使用量にはあまり変化がなかった。

殺菌剤は，キタジンP粒剤やタフジンP粉剤に含まれるＩＢＰの使用量が，除草剤や殺虫剤を含めても最も多くなっており，次いでイソプロチオラン，ＥＤＤＰの使用量が多い。また，1993年はいもち病の発生が多かったため，前の2年に比べて殺菌剤の使用量が増加している。

表３　農薬の使用量

単位	St.3			St.4			St.5		
kg	1991	1992	1993	1991	1992	1993	1991	1992	1993
除草剤									
ﾋﾟﾗｿﾞﾚｰﾄ	95.0	67.8	65.1	216.9	155.2	149.0	647.2	476.0	450.9
ｴｽﾌﾟﾛｶﾙﾌﾞ	69.7	60.6	42.7	109.5	85.7	63.2	468.7	299.1	242.6
ﾒﾌｪﾅｾｯﾄ	65.3	78.6	84.1	182.9	216.9	233.7	784.0	923.4	998.5
ﾌﾞﾀｸﾛｰﾙ	39.1	28.2	27.2	90.2	64.7	62.5	273.8	199.0	191.0
CNP	30.4	22.1	20.6	48.3	36.3	33.2	236.7	161.6	155.0
ﾋﾟﾗｿﾞｷｼﾌｪﾝ	18.8	12.2	11.3	52.3	34.3	31.8	239.5	152.1	143.3
ﾅﾌﾟﾛｱﾆﾘﾄﾞ	13.5	8.5	0.4	33.9	21.3	0.9	138.9	92.3	4.0
ﾀﾞｲﾑﾛﾝ	10.8	8.0	8.3	23.3	17.8	18.3	167.5	107.1	119.9
ﾌﾞﾛﾓﾌﾞﾁﾄﾞ	9.8	18.9	12.3	26.6	59.4	35.9	99.3	219.3	133.5
ﾌﾟﾚﾁﾗｸﾛｰﾙ	5.0	3.0	2.9	13.4	8.6	8.0	60.2	38.1	35.8
ﾍﾞﾝｿﾞﾌｪﾅｯﾌﾟ	2.5	16.9	15.3	8.7	56.6	51.8	24.0	199.9	160.8
殺虫剤									
MPP	50.5	17.7	46.3	148.9	70.8	154.9	387.4	237.4	455.0
MEP	42.2	49.3	61.3	168.6	166.3	226.3	378.9	408.9	529.9
BPMC	27.8	26.6	18.2	89.1	70.6	53.0	230.6	179.5	136.0
ｴﾁﾙﾁｵﾒﾄﾝ	8.7	10.2	12.6	34.3	32.3	44.4	152.2	154.6	204.3
ﾀﾞｲｱｼﾞﾉﾝ	6.6	8.5	16.2	35.2	27.4	64.2	77.3	60.4	141.4
ｴﾄﾌｪﾝﾌﾟﾛｯｸｽ	1.8	7.0	4.4	3.7	14.0	9.0	28.8	45.2	41.7
殺菌剤									
IBP	204.8	200.6	258.4	532.8	571.8	703.5	2163.5	2242.2	2806.5
ｲｿﾌﾟﾛﾁｵﾗﾝ	15.9	7.0	23.4	45.3	15.1	60.0	138.6	66.7	212.4
EDDP	8.8	7.6	25.9	21.3	22.4	68.2	78.1	105.7	281.0
ﾌﾙﾄﾗﾆﾙ	5.6	5.7	14.1	9.9	9.0	23.4	37.8	25.5	77.8

4．農薬の河川流出特性

4．1 定時調査時の河川流出特性

農薬の分析は，懸濁態と溶存態に分けて行った。しかし，懸濁態の農薬は，降雨時など河川懸濁物質濃度の高い場合に検出されたが，通常は濃度が低いことと検出回数が少ないことから，ここでは溶存態の流出特性について検討を行った。図2には，1991年から1993年まで3年間の除草剤のメフェナセット，ブタクロール，エスプロカルブの河川濃度の経日変化を，St.3を例に示した。また，図3には同様にSt.3における流量の変化を示した。最大濃度は，1991年のメフェナセットで14.6μg/l，ブタクロールで9.0μg/l，エスプロカルブで6.0μg/lとなった。最大濃度の時期を比較すると，1991年は1992年や1993年より4日程度早く出現している。これは，1991年の連休期間が4月27～29日の前半と5月3～6日の後半に二分されたのに対して，1992年は4月29日と5月2～5日，1993年は4月29日と5月1～5日と後半にまとまったために，後者の2年間はその後半に水稲移植作業も集中し，水稲移植後の除草剤散布時期もそれに対応してずれた結果である。3種類の農薬の最大濃度の出現時期を比較すると，ブタクロールが最初に現れ，その後，メフェナセット・エスプロカルブが最大濃度となった。ブタクロールが含まれるクサカリン粒剤の使用時期が移植後1～10日であるのに対して，メフェナセットが含まれるアクト粒剤，エスプロカルブが含まれるフジグラス粒剤の使用時期が移植後5～15日と遅いためにこのような結果となった。これらの除草剤は，5月初めから濃度が上昇し，6月末にはほとんど検出されなくなった。また，流域で同時期に一度だけ散布されるため，降雨時等に変動があるが全般的に滑らかな濃度の経日変化を示している。

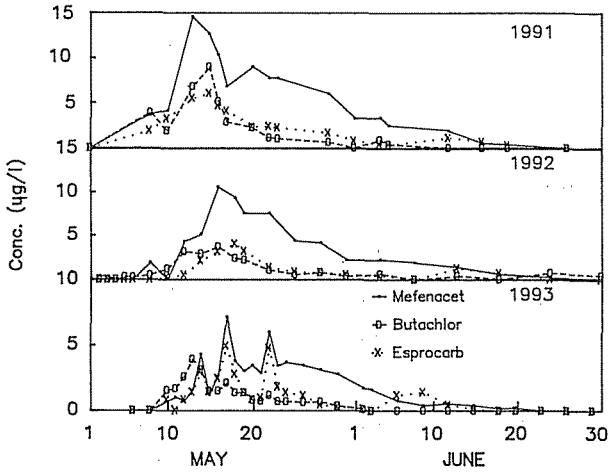

図2　除草剤濃度の経日変化

3年間の最大濃度を比較すると1993年が他の2年に比べて低くなっている。図3に示したように，1993年の流量は河川水中の除草剤濃度が最も高くなる5月下旬に1991年や1992年に比べて30%程度とかなり少なくなった。このため，水田からの流出が少なくなり，除草剤の最大濃度が1993年で低くなったものと考えられる。

殺虫剤は，測定可能であったＭＰＰとＢＰＭＣについて図4に示した。1991年は，ＢＰＭＣとＭＰＰの混合剤であるバサジット粒剤としてそのほとんどが散布された。そのため，ＭＰＰとＢＰＭＣの挙動はほぼ一致している。また，バサジット粒剤の散布時期が，ニカメイチュウに対しては移植後7～14日後，または発蛾最盛期の7～14日後となっているため，他の2年に比べて早く5月下旬に濃度が最大となり，ＢＰＭＣは10μg/l，ＭＰＰは1.5μg/lとなった。1992年は，バサジット粒剤の使用量が減少し，ＭＰＰの使用量も1991年の35%に減少した。

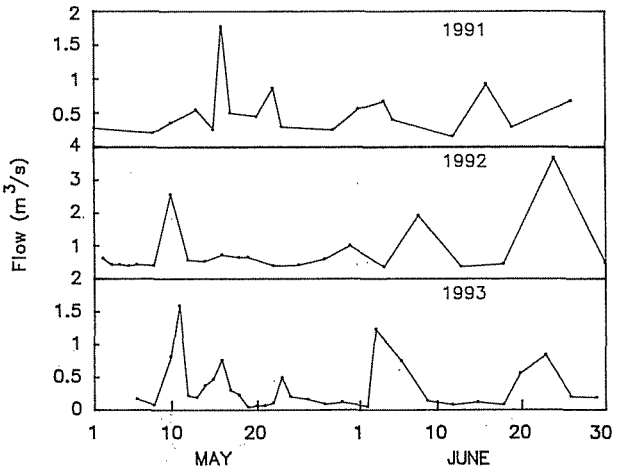

図3　流量の経日変化

このため，1992年のＭＰＰの濃度は低くなっている。1993年になると，ＭＰＰはヒノバイジット粉剤としての使用量が多くなり，最大濃度は0.5μg/lになった。ＢＰＭＣが含まれる商品がバサジット粒剤からトレボンバッサ粒剤に変わったことによって，1992年や1993年はＢＰＭＣの最大濃度の出現は6月初旬となり，流出期間も長くなった。このように，同じ農薬でもそれが含まれる商品によって使用時期・使用方法が違うため，異なった流出特性を示す。

殺菌剤は使用量が多いＩＢＰの測定が可能であった。ＩＢＰは，6月初旬から濃度が上昇するため，9月1日まで調査を実施した1993年について，St.3，St.4，St.6の経日変化を図5に示す。ＩＢＰは，水田に数回散布されるため濃度の変動は大きく，6月中旬から7月下旬まで高濃度であった。また，上流のSt.3で濃度は高く，下流のSt.4，St.6で低くなっているが，7月7日のように散布された地区によって，下流の濃度が高くなっている場合もある。

殺虫剤，殺菌剤は病害虫の発生状況によって使用時期・使用量が異なるため，毎年同様の流出特性や濃度となるとは限らない。また，流域で一斉に散布されないことと年数回散布されることから，濃度の経日変化は除草剤と比較して変動の幅が大きくなっている。

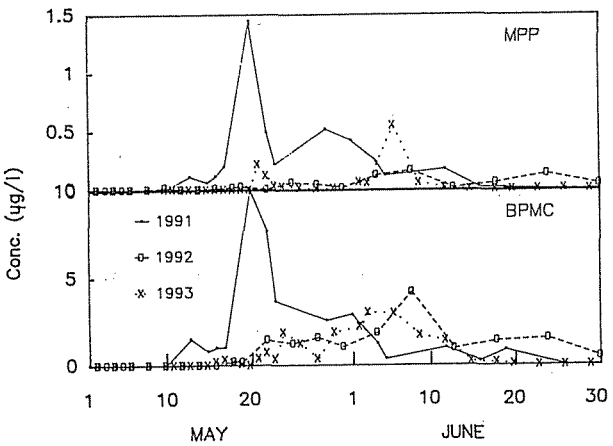

図４　殺虫剤濃度の経日変化

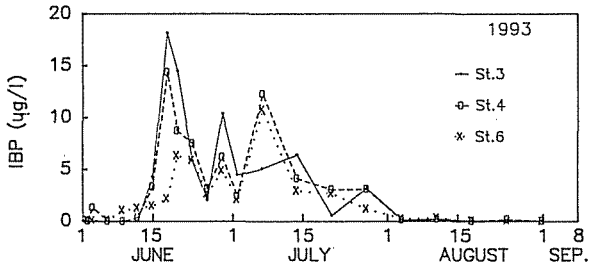

図５　ＩＢＰ濃度の経日変化

４．２　降雨時の河川流出特性

農薬は面源からの流出特性を示すため，降雨時に負荷量だけでなく濃度も上昇する。このため，水稲移植後の除草剤の流出が最も多いと考えられる降雨について，降雨時流出調査を3年間実施した。図6～8には，3年間の降雨時の流量と除草剤のメフェナセット，ブタクロール，エスプロカルブの負荷量変化を示した。調査を実施した降雨は，1991年が5月15～16日の29mm，1992年が5月17～18日の18mm，1993年が5月14日の26mmの降雨と，ほぼ同じ時期の同程度の降雨量であった。この3回の降雨時流出は，降雨パターンが異なったけれども，いずれ

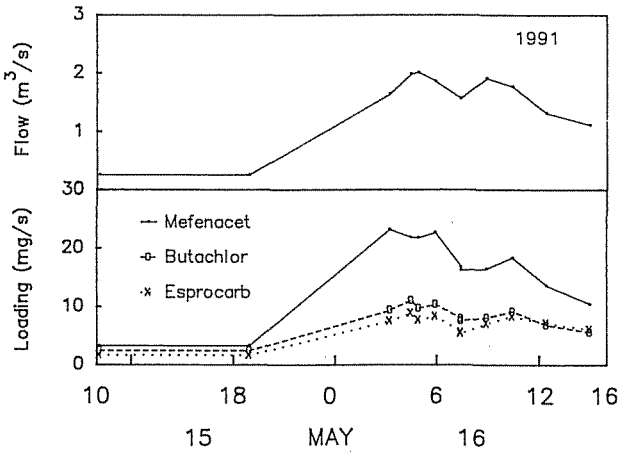

図６　降雨時の除草剤流出負荷量の変化(1991/5/15-16)

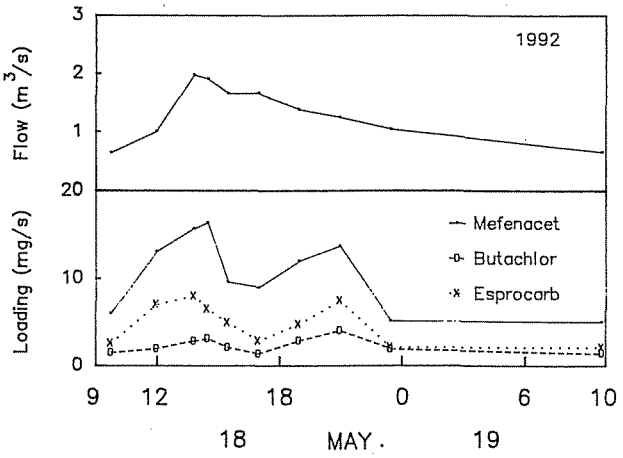

図７　降雨時の除草剤流出負荷量の変化(1992/5/18-19)

の場合も2m³/s前後と同じピーク流量レベルとなった。しかし，流出負荷量の最大値は1991年，1992年，1993年の順に小さくなり，その差が著しい。メフェナセットでみると1991年と1992年は，経日変化で最大濃度に達したときの降雨の調査結果のため負荷量が大きくなっている。しかし，1991年は，5月5日以降，5月9日に10mm，12～13日に18mmの降雨があっただけなのに対して，1992年はメフェナセットが最大濃度になっていた15～16日に23mmの降雨があったため，この降雨で流出したものも多くなり調査降雨時の負荷量が1991年に比べて小さくなったものと考えられる。さらに，1993年は，図3に示したようにメフェナセットの最大濃度が5月14日の降雨時調査以降に出現しており，最大濃度になる直前の降雨であったため負荷量が小さくなった。このように，散布後の降雨量が，農薬の流出に最も影響を与えている。

また，図9,10には，1993年に実施した他の2回の降雨時流出負荷量変化について示した。この2回の降雨時流出調査では流量の増加が少なかったこともあるが，除草剤の負荷量の増加はそれほど大きくなかった。また，5月10日の降雨では，この時期に最大濃度であったブタクロールの負荷量の増加が他の農薬に比べて大きくなっている。しかし，22日の降雨では，ブタクロールの最大濃度の時期が過ぎていたため負荷量の増加はみられなかった。このように，降雨時の負荷量は除草剤濃度の経日変化の中での降雨直前の濃度レベルの高さによって異なる。この降雨時直前の濃度レベルは，散布からの経過日数とその間の先行降雨の影響によって定まると考えられる。さらに，降雨の規模，降雨パターンによっても流出特性は異なると考えられる。

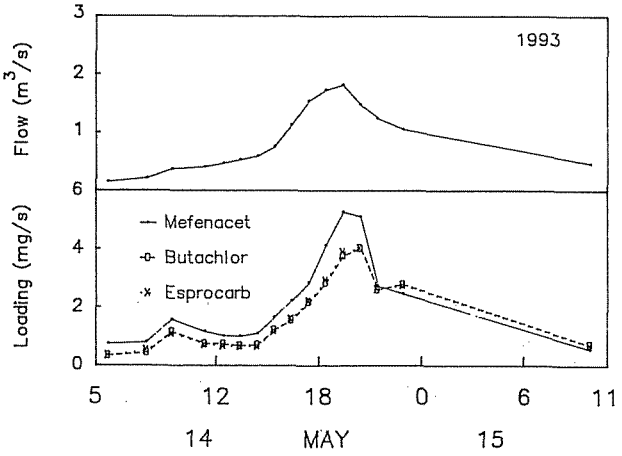

図8 降雨時の除草剤流出負荷量の変化(1993/5/14-15)

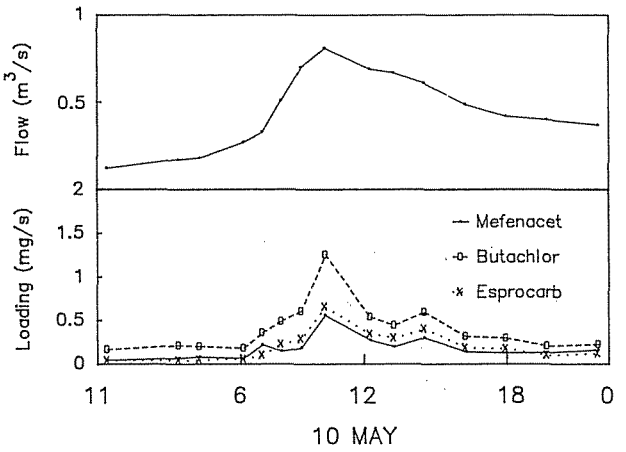

図9 降雨時の除草剤流出負荷量の変化(1993/5/10)

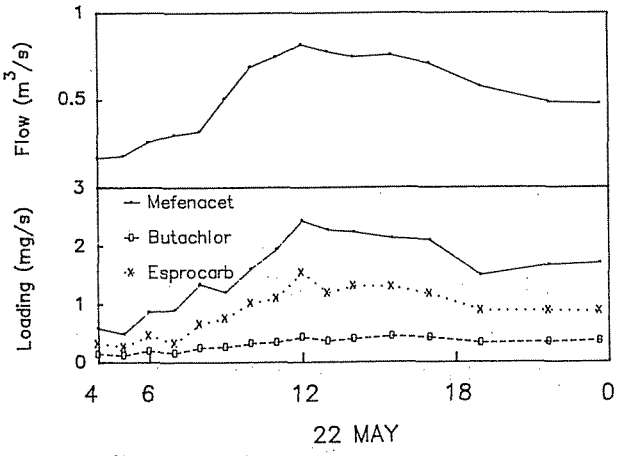

図10 降雨時の除草剤流出負荷量の変化(1993/5/22)

引 用 文 献

1) 丸諭(1990)水田用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.
2) 沼辺明博，井上隆信，海老瀬潜一(1992)田園地河川における水稲移植後の農薬流出量の評価，水環境学会誌，**15**，662-671.