

除草剤の残効と残留

—土壌処理剤を中心に—

農業研究センター 杉山 浩

1. はじめに

これまでに多くの除草剤が開発され、普及に移され、農業生産の向上に貢献している。その一方で内外の研究者が除草剤の効果変動によせる関心は高い。除草剤処理後の効果が一定しない問題があるからである。そしてそれは除草剤と環境との相互作用についての膨大な資料や報告にも拘らず、除草剤の活性が環境要因によって蒙る影響メカニズムについて不明な点が多いからである。除草剤の使用現場では一定の効果を持続させるために必要以上の量を投下せざるをえない状況にあることも事実である。そこで除草剤の残効と残留についての考え方を整理しておくことも除草剤の合理的利用技術を目指すうえで重要と考える。本稿では土壌処理剤に焦点をあててその残効と残留について、厳密に言えば除草剤の残留量と効果の関係についてのべてみたい。

2. 残効性と残留性について

一般には農薬の残効性と残留性は同じ意味に使われているが、残効性のイメージとしては農薬の活性を生物的に測定した効果を思いうかべ、残留性という場合には残留している農薬量を化学的に定量したものをイメージする。ところが、除草剤には残効性除草剤 (residual herbicide) と残留性除草剤 (persistent herb-

icide) という用語がある (改訂 雑草学用語集)。前者は処理後一定期間土壌中に残留して雑草の発生を抑えるものであり、後者は通常の薬量で処理しても後作物に悪影響を及ぼすような土壌残留の大きなものをいう。一般にいう農薬の残効性は効果の持続性に関連してのイメージをもち、残留性は概してマイナスイメージをうける。除草剤では残効性除草剤と残留性除草剤のもつイメージは逆である。このように農薬使用場面の違いによってうけとる意味も異なるというのが、率直に言って現在のわれわれの状況である。

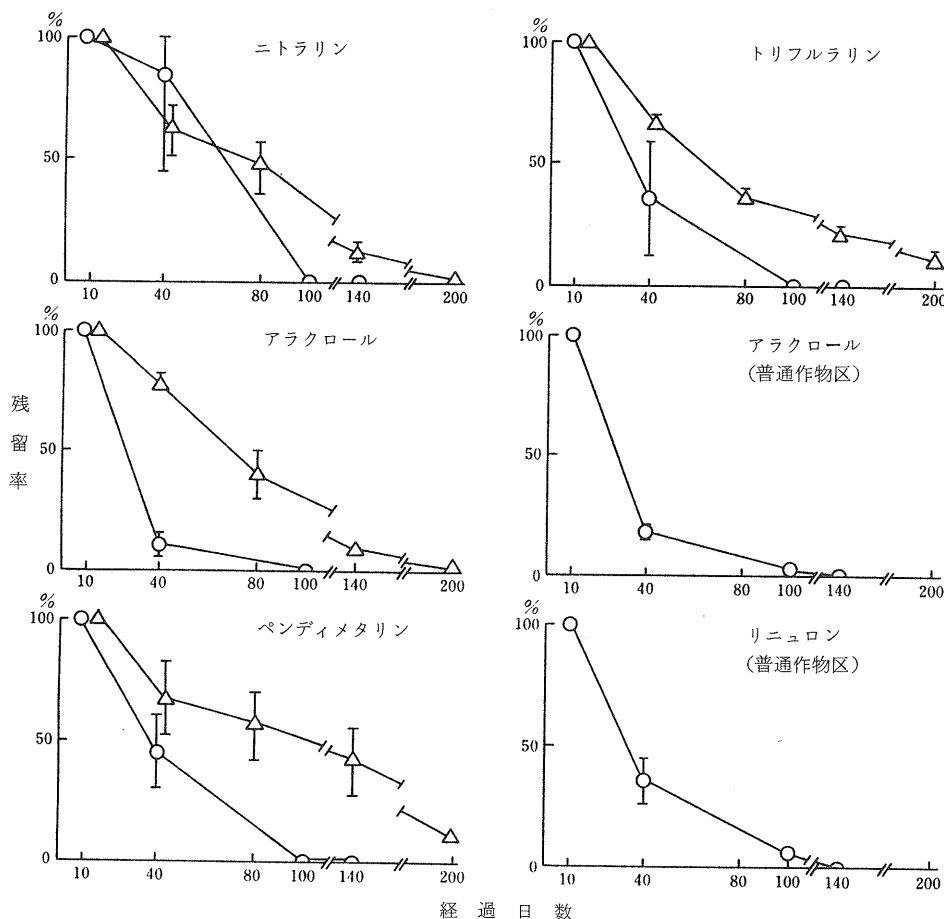
3. 残留型の多様性

水稻用除草剤： わが国における水稻用除草剤の土壌および環境中の残留 (土壌中の動態も含む) に関しては多くの論文があるが、まとめられたものとしては鋤塚 (1977)、山田 (1984)、山田 (1985) および日本植物調節剤研究協会 (1990) の論文あるいは総説が優れている。鋤塚 (1977) は室内試験を中心に 7 グループ、11 除草剤の土壌系における吸着、代謝等について調べ、また植物への吸収、移行、代謝、選択作用性についても調べている。そして除草剤の湛水、畑地状態における半減期などを算出している。湛水状態における CNP やクロメトキシニルの半減期は平均 15 日、ベンチオカーブは 40 日

だが、畑地状態では前2者は50日以上と長くなり、一方ベンチオカーブは26日と半減期はむしろ短くなる。山田(1984)は圃場におけるベンチオカーブとエチルエーテル系除草剤の動態について調べ、ベンチオカーブについては脱塩素ベンチオカーブの生成と水稻矮化症発生との関係を明らかにした。また、土壌中のCNPの平均残留率は地域によって異なり、北海道で高く東北地方を経て西南暖地に行くほど低くなり平均気温と逆の相関をしめすことを明らかにしている。同じ地域においても、また土性によっても残留率は異なる。土壌をはじめ環境、とくに水路、河川および水棲生物における除草剤の動

態に関する総説もまとめられている(山田, 1985)。日本植物調節剤研究協会(1990)の水稻用除草剤(畑地用除草剤を若干含む)の永年使用による土壌中での動向に関する報告も大きな示唆を与えている。10年以上にわたる実用量使用での除草剤の土壌残留分析を積み重ね、供試した全ての除草剤の土壌への蓄積が認められなかったという結果を提示しているからである。また水田圃場における除草剤の半減期も報告されている。

畑地用除草剤： 使用されている除草剤はいろいろな系に分類される化合物であり、土壌中の残留に関しては多くの報告がある。土性のち



第1図 土壌中における除草剤残留量の変化

—○—夏作 —△—冬作

(杉山ら, 1987)

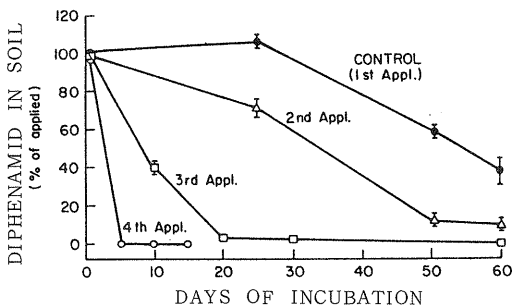
がいをはじめ降雨、温度、湿度、光などさまざまな環境要因によって残留の態様も異なる。半減期の算出によってそれぞれの除草剤の性質をつかむ手段もあるが、ここでは残留の変動を5つのタイプに分けてみた。

1) 季節的変動

第1図は夏作の野菜畑と普通作畑及び冬作の野菜畑に処理した粒状除草剤の土壤残留率を示したものである。夏作に処理した4種類の除草剤、トリフルラリン、ニトラリン、アラクロールおよびリニュロンは100日あるいは140日で検出されなくなる。一方冬作の場合は200日経過しても残留する(杉山ら, 1987)。夏作と冬作にみられる残留率の違いは地温の差に起因すると考えられ、それはまた、土壤微生物の活性にも影響されているといえるだろう。

2) 施用回数による変動

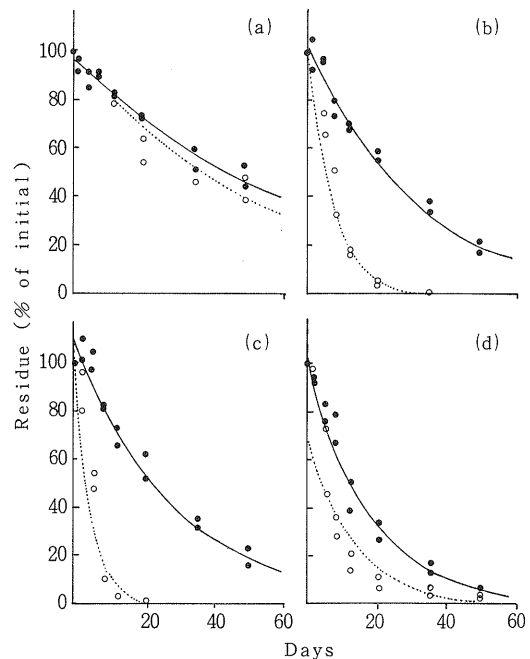
室内試験の結果だが、ジフェナミドを繰り返し施用したのちの土壤中の残留率の変化を第2図に示した。1回施用のときは60日後でも当初量の40%が残留する。2回施用では10%となるが、3回施用すると20日後には検出されなくなる。4回施用すると5日後に検出されなくなる。メチルプロマイドくん蒸処理土壌や殺菌剤処理



第2図 ジフェナミド(5 μ g/g)の連続施用がその分解におよぼす影響 (Rehoveer 土壌, 室内試験)

(AVIDOV ら, 1988)

土壌ではジフェナミドの加速分解はみられなくなる (AVIDOV ら, 1988)。また、圃場において慣行量の除草剤を4回施用したのち、この土壌を室内にもちかえりさらに除草剤を処理してその残留率を調べた結果が第3図である (WALKER and WELCH, 1991)。プロピサミドとリニュロンの残留率は低くなり前者は20日、後者は40日後に検出されなくなる。また、アラクロールの減衰もはやくなる。しかしながらシマジンの残留率は施用回数に影響されないようである。ミカン園に連年使用したブロマシル剤の残効期間と土壤残留を調べた報告もある (高橋ら, 1978)。ブロマシルを7年間連年使用した土壌では処理後3カ月以降は初処理土壌に比べて殺草効果が劣る。また、処理後3カ月における土壌中のブロマシル残留量は初処理土



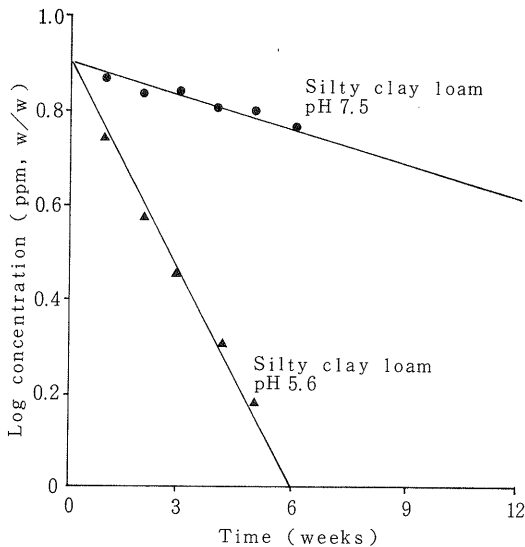
第3図 シマジン(a), プロピサミド(b), リニュロン(c)とアラクロール(d)の分解

● 除草剤を処理しない圃場の土壌
○ 適量を4回前処理した圃場の土壌 (WALKER and WELCH, 1991)

壤の14%に減少するという。チオカーバメート除草剤を処理した土壤に butylate や EPCT を処理してその残効性を調べた報告もある (TUXHORN ら, 1986, BEAN ら, 1988 a, 1988 b)。上述した例はほんの一例であるが、これらの現象は除草剤の分解が土壤微生物によって行われており、反復施用によって分解菌の活性が誘導されることも明らかになっている (山田, 1986)。

3) 土壤 pH による変動

一般にスルフォニルウレア系化合物の溶解度は pH 依存性である。chlorsulfuron の残留量が土壤 pH の違いで異なる例を第 4 図 (FREDICKSON and SHEA, 1986) に示した。これは埴壤土の場合だが埴土においてもここに示した結果と同様に土壤 pH が低いと chlorsulfuron 濃度は急激に減衰する。土



第 4 図 pH 5.6 と pH 7.5 の埴壤土における chlorsulfuron の分解

回帰直線 pH 5.6 $Y = -0.16X + 0.94$
($r^2 = 0.99$)

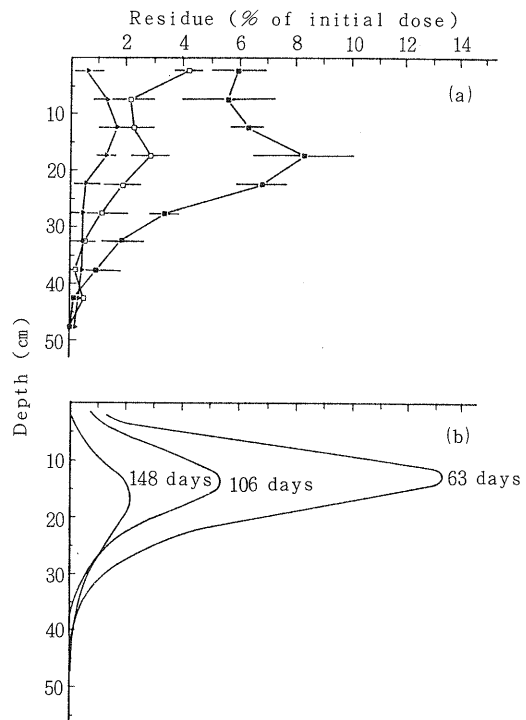
pH 7.5 $Y = -0.03X + 0.95$
($r^2 = 0.87$)

(FREDICKSON and SHEA, 1986)

壌への吸着が pH に依存することもイマザキンと imazethapyr とで調べられている (RENNER ら, 1988)。これらの化合物の土壤吸着は pH が 8 から 3 に低下するに従って増大する。

4) 垂直分布

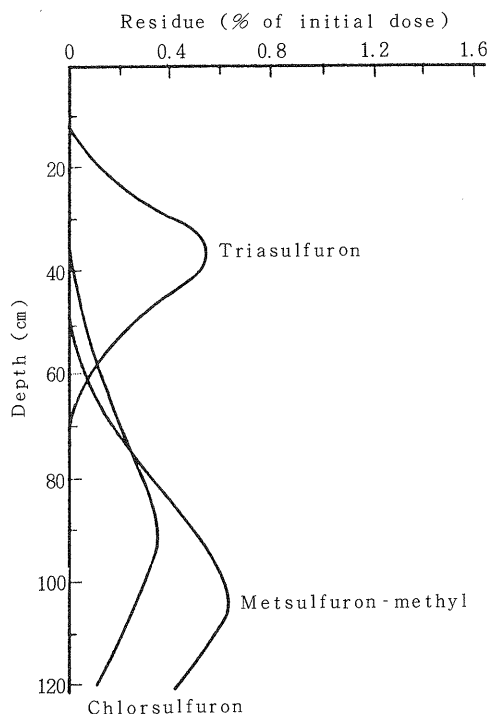
除草剤散布後、土壤中残留率の垂直分布を調べた報告がある。スルフォニルウレア系除草剤の 3 化合物, chlorsulfuron, metsulfuron, および triasulfuron である。第 5 図は春期に処理した chlorsulfuron の垂直分布と残留率である。(a) は実測値, (b) は計算値である。150 日後の残留率は 2% 程度で表層から 10~20 cm 下にピークが認められる。第 6 図は



第 5 図 春季、圃場に処理した chlorsulfuron 残留の垂直分布

(a) 実測値 ■ 63日後, □ 106日後, ▲ 148日後
(b) 計算値

(WALKER and WELCH, 1989)



第6図 処理後355日のchlorsulfuron met-sulfuronおよび Triasulfuron 残留の垂直分布

(WALKER and WELCH, 1989)

3化合物の処理後355日後の垂直分布と残留率

である。地表から40cmにtriasulfuronのピーク、他の2化合物は100cmにピークが移動する。

垂直分布の季節的変動も調べられている(WALKER, 1987)。5月に処理したプロピサミドは表層から1cmにピークがみられ、そのまま減衰し125日後の残留率は5%程度となる。一方10月に処理した場合は174日後、地表下5cmのところにピークが認められ残留率はやはり5%である。

5) 連用による土壌蓄積

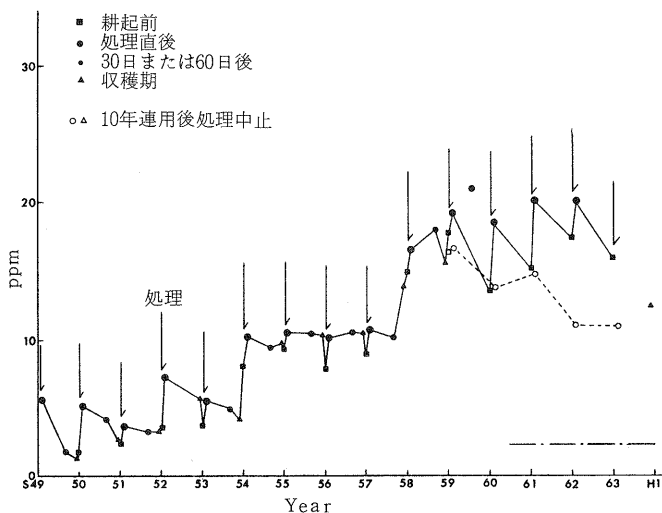
化合物の特性から土壌にイオン吸着する除草剤の例としてはパラコートがあり第7図に示した。パラコートの土壌蓄積は連用11年以降はプラトーとなりその濃度も15ppm程度で地表下10cm以内にとどまる(日本植物調節剤研究協会, 1990)。また、茶園に5年間連用したパラコート及びジクワットはそれぞれ4~7ppm, 5~9ppmで他の除草剤に比べて残留率が高い(中村, 1990)。

このほか土性や土壌中の有機物含量の違いによる除草剤の吸着, 残留量, 残留率についての

第1表 効果の変動要因

環境要因	除草剤が受けるプロセス
大気温度	除草剤成分の土壌中の保持の多少
相対湿度	
放射強度	
降水量	植物への取り込み
風	
地温, 水温	移動
土壌水分	
土壌微生物 など	代謝
	土壌中の効力
	土壌からの流出
	土壌への吸着 など

(DEVINE, 1988 一部改変)



第7図 パラコートの牛久水田土壌中の残留量の推移

(日本植物調節剤研究協会, 1990)

報告は非常に多い。第1表に環境諸要因と除草剤が蒙るプロセスの諸項目 (DEVINE, 1988) をあげたがこれらの要因の組み合わせによって除草剤の残留には予期しない結果があらわれるかもしれない。

4. 残留量と作用性はパラレルか

1) 土壌からの除草剤の抽出

除草剤の残留型の多様性を水稲用および畑地用除草剤についてみてきた。そこではふれなかったのが土壌中の除草剤の抽出法である。除草剤の残留分析では土壌中にある微量の除草剤成分を抽出し精製し分析に供する。微量の成分を効率よく抽出するためにいろいろな溶媒が使われる。常法としては数種の有機溶媒が用いられているが、多くの除草剤は含水アセトンで抽出できる。CNP, クロメトキシニル, オキサジアゾン, ピラゾレート, ピラゾキシフェンなどの抽出には酸性アセトンが用いられる。またダイムロンは含水メタノールで抽出される。最も苛酷な方法で抽出されるのはパラコートやジクワットである。18N硫酸で加熱抽出される。これらの化合物は土壌吸着が強く、またこのような方法によっても安全なためである。前項残留型の多様性のところであげたすべての除草剤は有機溶媒 (パラコートおよびジクワットは18N硫酸加熱抽出) で抽出されている。

2) 濃度の表現

土壌中の除草剤濃度の分析値は乾土重量当たりの濃度 (ppmまたはppb) で表現されている。性状の異なる土壌を扱う場合この表現が常識的であり、また都合がよいことが多いのである。ところが除草剤の効果、土壌中の残効期間等を考える場合、乾土重量当たりの濃度の表現では解釈できない場面に遭遇する。とくに土壌処理

除草剤では除草剤成分と植物の器官、とりわけ根や生長点等の機能と密接な関係がある。そしてなによりも注目しなければならないことは植物の生育に必要な土壌容積と土壌水分ではなからうか。前項でとりあげたすべての除草剤の土壌中の濃度表現は乾土重量当たりの濃度あるいは土壌重量当たりの当初施用量に対する残留率で表現されている。

3) 残留量と作用性がパラレルでないいくつかの例

残留が土壌pHに依存する chlorsulfuron はpHが7.5や8.0と高くなると分解は遅く、5.6や6.3と低いときには分解は速い (FREDICKSON and SHEA, 1986)。ところがこのような土壌でソルガムを5週間栽培すると chlorsulfuron処理量に拘らずpHが高くなると生育量も上昇しpH7.5では無処理区との差はみられなくなる。しかしpH5.9では大きな差がみられた。この現象は土壌中の残留濃度と全く反対である。この理由としてpHが高くなると chlorsulfuronの効果がなくなるか、またはソルガムへの吸収が容易でなくなるためであるとしている。

つぎに同じ chlorsulfuronの残留率を地表下の垂直分布として調べた分析値とその圃場におけるレタスおよびてんさいを供試してバイオアッセイしその残効を比べた報告 (WALKER and WELCH, 1989) の例をもうすこし詳しくみてみよう。高薬量区 (32 g/ha, 慣行量は7.5 g/ha) では処理後12カ月後でも薬害を示し、残留率は当初量の0.5%以下であったが、垂直分布の分析値とバイオアッセイによる供試植物の生育量とが予想された結果と一致しない。この理由として供試植物がきわめて感受性であること、土壌残留の量が理想的条件下の栽培試

験では供試植物にとっては厳しいこと、土壤の極めて表層に残留している痕跡量も考慮にいれる必要があるとしている。そして春季に慣行量を使用しているかぎりでは後作物に影響はないとしている。

チオカーバメート系除草剤 butylate の土壤残留量とバイオアッセイの結果が一致しない例もある (TUXHORN ら, 1986)。すでに butylate を前処理させた土壤では butylate 分解が速いことはさきにのべたが、燕麦を用いたバイオアッセイの結果は残留量の化学分析の結果と一致しない。すなわち butylate を前処理しない土壤の butylate の殺草活性は分析値の 3~4 倍高い活性を示し、butylate を前処理した土壤では 20~30 倍高い活性を示す。butylate の残留量とバイオアッセイとの結果が一致しない理由として土壤中において butylate のスルホキシル化が生じ、この変成物による殺草活性がバイオアッセイの結果にあらわれたものとしている。

私たちの研究室においても除草剤の土壤中の残留量の分析値と植物の生育量との相関を調べているが、常法 (アセトン抽出) による除草剤成分の抽出による分析値は植物に対する作用性 (生育量を指標にして) との相関が低い (杉山ら, 未発表)。すなわち夏作における大豆栽培にメトラクロール乳剤を処理した土壤 (観音台, 淡色黒ボク土) のアセトン可溶態濃度 ($\mu\text{g}/\text{ml}$ 生土壤) とその土壤による植物 (イタリアンライグラス) の生育量との相関を調べると Y (生育量, 無処理対比) = $82.0813 - 24.4771 \ln X$ ($r = -0.5995^*$) で相関係数は低い。ところがメトラクロール処理土壤を蒸留水で抽出した水可溶態濃度 ($\mu\text{g}/\text{ml}$ 生土壤), さらに土壤水分率から算出した土壤水分当たりの水

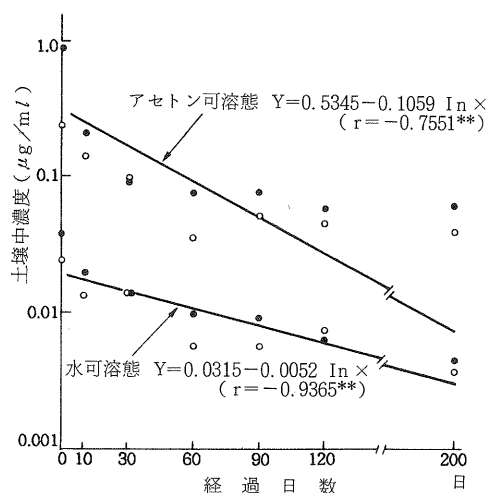
可溶態濃度と生育量の関係を見ると前者は $Y = 29.3054 - 20.4179 \ln X$ ($r = -0.8935^{**}$), 後者は $Y = 51.4642 - 21.359 \ln X$ ($r = -0.8925^{**}$) と高い相関を示す。

ソルガムに対するアラクロールの葉害を土壤の諸要因との関係で調べた報告 (REINHARDT and NEL, 1988) ではアラクロールの活性は土壤中の有機物含量や粘土含量と逆の相関を示すが、土壤水分含量はその活性と正の相関を示すという。

土壤処理剤にとってその効果, あるいは残効を支配している大きな要因のひとつは土壤水分中の除草剤濃度ではないだろうか。

4) 土壤水分中の除草剤濃度と作用性

第 8 図に小麦作にペンディメタリン粒剤を処理した土壤 (観音台, 淡色黒ボク土) のペンディメタリン濃度と処理後の経過日数との関係を, また第 9 図には処理土壤の除草剤濃度と植物 (イタリアンライグラス) の生育量との関係を示した (杉山ら, 1990b)。土壤中のペンディ

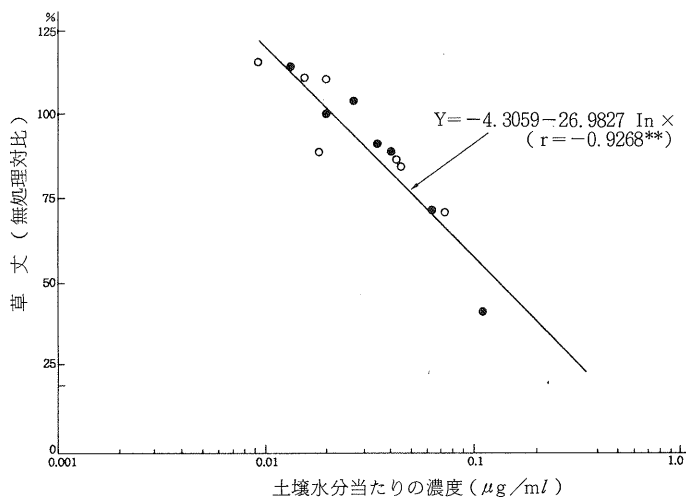


第 8 図 土壤中のペンディメタリンのアセトンおよび水可溶態別濃度 (観音台圃場)

○ 細粒剤 4kg/10 a

● 細粒剤 8kg/10 a

(杉山ら, 1990)



第9図 土壌水分当たりの水可溶態ペンディメタリン濃度とイタリアンライグラスの生育量（観音台圃場）

○ 細粒剤 4kg/10 a, ● 細粒剤 8kg/10 a

（杉山ら, 1990b）

メタリンは処理後の経過に従って減衰するが、経過日数との相関はアセトン可溶態に比べて水可溶態の方が高い。また、アセトン可溶態濃度から水可溶態を引いたものは蒸留水では抽出できないもの、言い換えれば植物には利用されにくいものであるといえよう。土壌水分当たりのペンディメタリン濃度と植物の生育量との相関も高い。またペンディメタリンの雑草種子生育濃度は無菌MS培地においてスベリヒユで 0.01 ppm, メヒシバでは 0.005 ppm で生育抑制する（江森・杉山, 1986）。

水稲用除草剤の場合も、これは酸アミド系化合物という限られた除草剤（ブタクロール、プレチラクロール、メフェナセット）の試験結果だが、土壌中濃度と稲に対する作用性との関係をみるとアセトン可溶態濃度よりも、水可溶態濃度、さらには土壌水分当たりの水可溶態濃度との相関が高い（杉山ら, 1990 a, 1990 c）。また作用性は埴壌土よりも砂壌土の方に強くあらわれるが、そのときの土壌水分当たりの除草

剤濃度も砂壌土の方がやはり高い。

一般にパラコートやジクワットは土壌吸着が強く、一度吸着されると植物への作用性はなくなるとされているが、高濃度が施用された場合、とくに火山灰土では作物葉害を生じる（中村, 1991）。これらの除草剤処理土壌を30%塩安で抽出し、溶出濃度が2 ppm（パラコート）、あるいは5 ppm（ジクワット）を越えると小麦に生育障害をおこすという（宮原ら, 1988）。

連年施用や、高濃度施用の場合、パラコートやジクワットも土壌水中に溶出する可能性を示唆していると言えよう。

土壌中の除草剤を蒸留水や低濃度イオン水で抽出することは常識的でない。もっとも低濃度イオン水（0.01 M CaCl_2 など）で抽出した例はいくつかある（HANCE, 1976, HANCE and EMBLING, 1979, WALKER, 1987, BLAIR and MARTIN, 1988, CLAY, 1988）。しかし、いずれも土壌吸着に関連した試験のなかで行われている。除草剤の効果との関係からみれば、土壌水分に注目しこれらの結果を土壌水分当たりの除草剤濃度をバイオアッセイの結果との関係で見直すことによってそれぞれの除草剤の土壌中の物理化学的性状と作用性との関係も明らかになると考える。残効や残留を考える際に、とくに除草剤の場合は土壌水分という要因を加えることが重要ではなかろうか。

5. 再び残効性と残留性について

一定期間効果が持続する残効性除草剤が、様々な環境要因によっては後作物にも悪影響を及ぼす残留性除草剤に転化する可能性はある。しかしながら、近年開発され、普及に移されている除草剤は速分解、非残留、低毒性という範疇にはいるものばかりである。しかも今後は低薬量化がますます指向されるであろう。多様に変化する環境要因、複雑に組み合わさった環境条件下においても効果の変動を小さくし、効果の持続性を保つためには除草剤の主成分の性状も重要だが製剤の大部分を占める補助剤が大きな役割をはたしているのではないだろうか。除草剤の製剤技術の急速な進歩のなかで既存の成分を見直し新しい製剤技術によってその価値を高めようとする考え方も強まっている（中村，1989）。補助剤の役割に一層注目すべきであろう。

6. お わ り に

除草剤の効果の持続性を予測し、その適正使用を奨めるために内外の多くの研究者が「残効と残留」の問題に取り組んでいる。

本稿ではふれることができなかったが、栽培形態との関係、たとえば不耕起栽培と関連した除草剤の効果と残留などについても欧米を中心に多くの研究報告がある。いずれにしても除草剤の効果の予測、効果の定量化は土壤中の除草剤の化学的定量化とともに生物的定量化という複雑な研究手法をあわせて駆使した新しい体系が確立されなければならないだろう。道程は遠いように見えるが近年の先端技術、素材に関する研究の成果などの導入によりその実現を早めたいものである。

引 用 文 献

- 1) AVIDOV, E., N. AHARONSON and J. KATAN (1988): WEED SCIENCE **36**, 519-523.
- 2) BEAN, B. W., F. W. ROEH, A. R. MARTIN and R. G. WILSON (1988 a): WEED SCIENCE **36**, 70-77.
- 3) BEAN, B. W., F. W. ROEH, A. R. MARTIN and R. G. WILSON (1988 b): WEED SCIENCE **36**, 524-530.
- 4) BLAIR, A. M. and T. D. MARTIN (1988): proc. EWRS symp. p 289-294.
- 5) CLAY, D. V. (1988): proc. EWRS symp. p 301-306.
- 6) DEVINE, M. D. (1988): proc. EWRS symp. p 219-226.
- 7) 江森 京・杉山 浩 (1986): 雑草研究, **31** (別), 39-40.
- 8) FREDICKSON, D. R. and P. J. SHEA (1986): WEED SCIENCE **34**, 328-332.
- 9) HANCE, R. J. (1976): WEED RESEARCH **16**, 317-321.
- 10) HANCE, R. J. and S. J. EMBLING (1979): WEED RESEARCH **19**, 201-205.
- 11) 鉄塚昭三 (1977): 農薬誌 **2**, 201-213.
- 12) 宮原克祐他 7 名 (1988): 第12回農薬残留分析研究会 資料集 p. 50-52.
- 13) 中村完治 (1988): 「農薬の製剤技術と基礎」日本植物防疫協会, 東京. pp 103-126.
- 14) 中村幸二 (1990): 農薬誌 **15**, 271-281.
- 15) 日本植物調節剤研究協会 (1990): 植調 **24**, 388-402.
- 16) REINHARDT, C. F. and P. C. NEL (1988): proc. EWRS symp. p 251-256.
- 17) RENNER, K. A., W. F. MEGGITT and D. PENNER (1988): WEED SCIENCE **36**, 78-83.

- 18) 杉山 浩・江森 京・佐藤姚子 (1987): 雑草研究 **32**, 104-111.
 19) 杉山 浩・駒宮一雄・小林勝一郎 (1990 a): 雑草研究 **35**, 116-121.
 20) 杉山 浩・駒宮一雄・小林勝一郎 (1990 b): 雑草研究 **35**, 122-128.
 21) 杉山 浩・駒宮一雄・小林勝一郎 (1990 c): 雑草研究 **35**, 180-182.
 22) 高橋健二・坂井義春・原田 豊・広瀬和栄 (1978): 雑草研究, **23**, 28-31.
 23) TUXHORN, G. L., F. W. ROETH, A. R. MARTIN and R. G. WILSON (1986): WEED SCIENCE **34**, 916-965.
 24) WALKER, A. (1987): WEED RESEARCH **27**, 143-152.
 25) WALKER, A. and S. J. WELCH (1989): WEED RESEARCH **29**, 375-383.
 26) WALKER, A. and S. J. WELCH (1991): WEED RESEARCH **31**, 49-57.
 27) 山田忠男 (1984): 雑草研究 **29**, 179-187.
 28) 山田忠男 (1985): 雑草研究 **30**, 1-20.
 29) 山田忠男 (1986): 「微生物と農業」岸・大畑編 全農教, 東京 pp371-383.

【ポラリス】 だったら、 5満足。

ポラリスはここが満足。
数えたら、5つありました。

- ① いろいろな雑草に効きます。
- ② 効きめじっくり、効果は長持ち。
- ③ サラッと撒いて、ラクに使えます。
- ④ 人にも自然にも安心成分です。
- ⑤ 値段もお手頃、経済的です。

● 詳しい資料をご希望の方は、下記住所までご請求ください。

ポラリス普及会 塩野義製薬株式会社・北興化学工業株式会社

事務局 日本モンサント株式会社 アグロサイエンス事業部 〒100 東京都千代田区丸の内3-1-1 国際ビル Tel.(03)287-1251

水田・畑・家まわりの除草に。
黄色いボトルで新登場。



新刊

改訂 雑草学用語集

日本雑草学会／編集・発行 B5判 234頁 定価7,210円(税込)

呈内容見本

全国農村教育協会 〒110 東京都台東区台東1-26-6(植調会館) 電話/03-3833-1821 FAX/03-3833-1665