九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

Paddyモデルによる水田散布除草剤の流出特性の評価

中嶋，一郎
九州大学大学院農学研究院

原田，昌佳
九州大学大学院農学研究院

平松，和昭
九州大学大学院農学研究院

森，牧人
九州大学大学院農学研究院

他

https://doi.org/10.15017/8890

出版情報：九州大学大学院農学研究院学芸雑誌. 62 (2), pp.19-30, 2007-10-29. 九州大学大学院農学研究院
バージョン：
権利関係：

KYUSHU UNIVERSITY

九大農学芸誌（Sci. Bull. Fac. Agr., Kyushu Univ.）
第62巻　第2号　19-30　(2007)

Paddy モデルによる水田散布除草剤の流出特性の評価

中　嶋　一　郎[1]・原　田　昌　佳*・平　松　和　昭
森　　牧　人・望　月　俊　宏[2]・松　尾　直　樹[3]
九州大学大学院農学研究院生産環境科学部門地域環境科学講座水環境学研究室

(2007年6月28日受付，2007年7月17日受理)

Evaluation of Runoff Characteristic of Rice Herbicides from a Paddy Plot using the Paddy Model

Ichiro NAKASHIMA[1], Masayoshi HARADA*, Kazuaki HIRAMATSU, Makito MORI, Toshihiro MOCHIZUKI[2] and Naoki MATSUO[3]
Laboratory of Drainage and Water Environment, Division of Regional Environment Science, Department of Bioproduction Environmental Sciences, Faculty of Agriculture, Kyushu University, Fukuoka 812-8581, Japan

緒　　言

日本の稲作において，稲の生育を害する多種多様な病害虫や雑草の防除に農薬の使用は必要不可欠な資材となっている．その一方で農薬は病害虫あるいは雑草に対して生理活性を持つ化学物質であることから，近年，農耕地やゴルフ場などで使用される農薬が河川や湖沼などの公共用水域へ流出し，飲料水源の汚染や生態系への悪影響を及ぼしているのではないかという社会的懸念が強まっている．

これを受けて，農薬の使用場面から水道水に至るまでの監視体制が整備された1990年以降，水道法に基づく「水道水質基準」や環境基本法に基づく「人の健康の保護に関する環境基準」の改正を行うなど，農薬の水質汚濁防止に係る法制度が拡充されてきた．また，1993年に環境基準が定められていない水田散布農薬について，農薬取締法に基づく「水質汚濁に係る農薬登録保留基準」の設定を開始し，現在約130種類の農薬について当該基準が定められている．

このような農薬の規制・基準の設定により，湖沼や河川などの公共用水域において，使用農薬について一律にモニタリングが実施されている．農薬散布の結果として起こりうる環境への影響を未然に防止する対策を講じる上で，散布農薬の環境への放出量やその動態を把握することは極めて重要であることを考えると，環境モニタリングの実施が果たす役割は大きい．しかしながら，このようなモニタリングには多大な時間，労力，経費を必要する．さらに，モニタリング結果は農薬の使用条件や自然条件など様々な条件に依存したものであり，特定の条件下における結果でしかない．これらの農薬の挙動を支配する個々の要因および要因間の関連性を把握することは困難である．そのため，近年では，農薬の環境中動態を予測する数理モデルが広く利用されている．数理モデルを利用する利点とし

[1]九州大学大学院生物資源環境科学府生産環境科学専攻地域環境科学講座水環境学研究室
[2]九州大学大学院農学研究院植物資源科学部門農業生産生態学講座農業生産生態学研究室
[1]Laboratory of Drainage and Water Environment, Division of Regional Environmental Science, Department of Bioproduction Environmental Sciences, Graduate School of Bioresource and Bioenvironmental Sciences, Kyushu University
[2]Laboratory of Agricultural Ecology, Division of Agricultural Ecology, Department of Plant Resource, Faculty of Agriculture, Kyushu university
[3]Laboratory of Agricultural Ecology, Division of Agricultural Ecology, Department of Plant Resource, Graduate School of Bioresearch and Bioenvironmental Sciences, Kyushu university
*Corresponding author (E-mail: mharada@bpes.kyushu-u.ac.jp)

て，一定の評価シナリオにおいて農薬の環境動態を迅速に予測できること，土壌条件，気象条件，散布条件などの様々な条件の下での予測ができること，野外試験を行う際の適切な試験設計が行えること，圃場試験にかかる時間・経費を低減できること，などが挙げられる．現在では，農薬登録の際の環境リスク評価にも活用されている．

農薬の環境動態を予測する数理モデルの開発研究は欧米諸国で活発に進められており，数多くのモデルが利用されている．その多くは，畑地条件下での農薬の挙動予測モデルである．一方，水田を対象とした農薬の予測モデルに関する研究は畑地モデルの場合と比較して非常に少ないといわれている．わが国における水田モデルに関する最近の研究として，Inao and Kitamura (1999)，渡邊・高木 (2000)，岐部ら (2000) などが挙げられる．これらに共通したモデル構築の基本的概念は，水田環境内を１つのボックスとみなし，さらに，田内の田面水と水田土壌をコンパートメントとして表現し，各コンパートメントにおける農薬量の収支式を考えることで，農薬の田面水中濃度ならびに水田土壌中濃度の時間的変化を追跡するものである．このうち Inao and Kitamura (1999) は，粒剤の除草剤を対象とした一筆水田レベルにおける農薬の挙動予測モデル（Paddy モデル：Pesticide paddy field model）を構築し，水田内の農薬の動態特性について論じた．Paddy モデルは田面水深が一定の条件のもとで構築されたモデルであったことから，原田ら (2002) は，水田の水収支式を考慮することで，田面水深が時間的に変動する場合にも適用可能な Paddy モデルに改良し，農薬動態の予測精度の向上を図った．また，稲生 (2003，2004) も同様に水田の水収支式を加味した Paddy-2モデルを構築し，止水管理と掛け流し管理のそれぞれにおける水田内の農薬動態特性ならびに流出特性を考察した．本研究では，田面水深の時間的変動を考慮に入れた Paddy モデルを用いて，水田の水管理方法ならびに農薬の物性値が水田内の動態特性や環境中への流出特性に及ぼす影響を調べ，除草剤散布期間の適切な水管理方法を検討した．また，近年では，水稲用除草剤散布にフロアブル剤の使用が増えていることを鑑み，フロアブル剤に対する Paddy モデルの有効性について，圃場試験結果との比較を通じて検討した．

なお，農薬濃度の分析にあたり，（財）九州環境管理協会の大平裕氏と當時久保理佐氏の協力を得た．記して謝意を表します．

データと方法

１．Paddy モデル

(1) モデル構成式

Paddy モデル（Inao and Kitamura，1999）は，粒剤の農薬を水田に散布した後の田面水中および水田土壌中の農薬濃度の予測をするものであり，その概念は図１で示される．同図のように，本モデルは水田環境を１つのボックスと見なし，そのボックス内を田面水と水田土壌の２つのコンパートメントで表現する．さらに田面水コンパートメントは田面水相と表層土壌相から構成され，水田土壌コンパートメントは間隙水相と土粒子相の２相から構成される．水田土壌の物理・化学的特性の鉛直構造を配慮し，さらに数値計算の安定性の問題から，田面水コンパートメントの下に複数

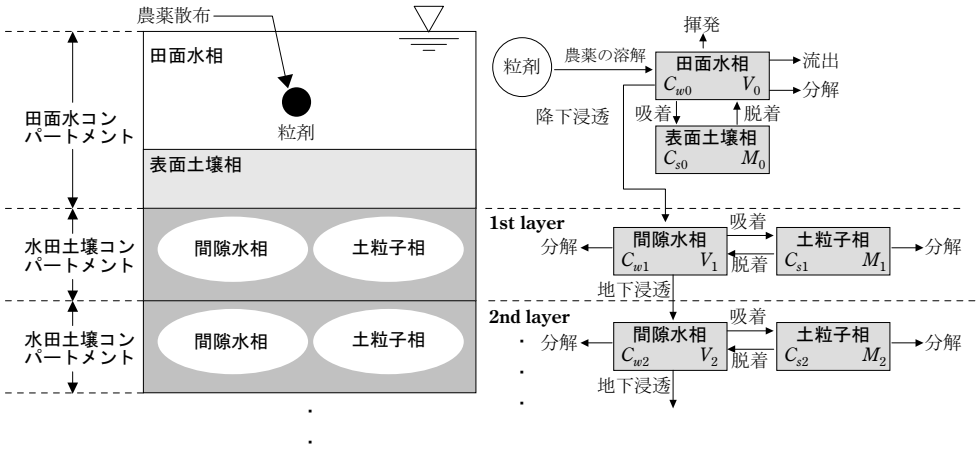


図１　Paddy モデルの概念図

の水田土壌コンパートメントが層状に配置される．本研究では，表層土壌相の厚さを 5 mm とし，この表層土壌の間隙水は田面水に含まれるものとする．また，水田土壌コンパートメントは 7 層から構成され，1 層あたりのコンパートメントの厚さは 5 mm とした．したがって，水田土壌の厚さは表層土壌相を含めて40 mm（＝5 mm×8 層）である．

図 1 に示したように，水田内の農薬の挙動は，粒剤からの溶解過程，土粒子への吸着過程，土粒子からの脱着過程，排水および地下浸透による流出過程，大気への移動（揮発）過程，水中および土壌中での農薬の化学的・微生物学的分解過程の以上の過程より説明されるものとし，各コンパートメントの各相で農薬量の収支式を考える．なお，植物の農薬成分の吸収過程は考慮しない．また，コンパートメント間の物質移動は，各コンパートメント内の農薬濃度の勾配によって生じるものとし，さらにコンパートメントに流入した農薬は速やかに混合され均一に分布するものと仮定する．

Paddy モデルは，水田における水収支は定常状態（すなわち，田面水深，流入水量，表面流出水量，浸透量が一定）の仮定のもとで構築されたモデルである．しかしながら，実際の水田において田面水深を一定に管理されることは少なく，水田における農薬の挙動予測モデルの構築に当たり，田面水深の時間的変動を考慮するべきである．そこで本研究では，次式の水田の水収支式を加味し，田面水深の時間的変動を考慮に入れた Paddy モデル（原田ら，2002；稲生，2003；稲生，2004）を採用した．

$$A\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}t} = Q_{\mathrm{in}} - Q_{\mathrm{out}} + A(P - ET) - Q_v - Q_h \qquad (1)$$

ここで A が水田面積，Q_{in} が用水の流入量，Q_{out} が田面水の流出量（表面流出量），P が降水量，ET が蒸発蒸散量，Q_v が降下浸透量，Q_h が畦畔浸透量である．なお，このようなモデルを稲生（2003，2004）は Paddy-2モデルと呼んでいるが，本論では原田ら（2002）に従って Paddy モデルと呼ぶことにする．

まず，田面水コンパートメントの田面水相における農薬の動態は，①製剤からの溶出，②系外からの流入，③系外への表面流出，④鉛直浸透による流出，⑤土壌への吸着，⑥土壌からの脱着，⑦大気への揮発および⑧水中での分解で構成される．田面水深 h の時間的変動を考慮したとき，田面水相における農薬量の収支式は(2)式で表現される．

$$A\frac{\mathrm{d}(hC_{w0})}{\mathrm{d}t} = Ahk_s(C_{ws} - C_{w0}) + Q_{\mathrm{in}}C_{\mathrm{in}} - Q_{\mathrm{out}}C_{w0} - Q_vC_{w0} - Ad_0\rho_{b0}k_{ads}K_f{C_{w0}}^{1/n} + Ad_0\rho_{b0}k_{des}C_{s0} - K_LAC_{w0} - Ahk_{dw}C_{w0} \qquad (2)$$

ここで C_{w0} は田面水中の農薬濃度，k_s は溶出速度定数，C_{ws} は農薬の水溶解度，C_{s0} は水田土壌中の農薬濃度，k_{ads} は吸着速度定数，k_{des} は脱着速度定数，K_f はフロインドリッヒ吸着平衡定数，$1/n$ はフロインドリッヒ吸着式に含まれる指数（定数），K_L は揮発速度定数，K_{dw} は水中の分解速度定数，C_{in} は用水中の農薬濃度である．

また，表面土壌相での農薬の挙動は，①土壌への吸着，②土壌からの脱着，③土壌中での分解で構成され，(3)式で表現される．

$$Ad_0\rho_{b0}\frac{\mathrm{d}(C_{s0})}{\mathrm{d}t} = Ad_0\rho_{b0}k_{ads}K_f{C_{w0}}^{1/n} - Ad_0\rho_{b0}k_{des}C_{s0} - Ad_{b0}\rho_{b0}k_{ds}C_{s0} \qquad (3)$$

ここで，d_0 は表層の土壌厚さ，ρ_{b0} は表層土壌の土粒子乾燥密度である．

つぎに，水田土壌コンパートメントの間隙水相における農薬の挙動は，①上層からの鉛直浸透による流入，②下層への鉛直浸透による流出，③土壌への吸着，土壌からの脱着および④水中における分解で構成される．また，土壌粒子相での農薬の挙動は，①土壌への吸着，②土壌からの脱着，③土壌中における分解で構成される．以上から，水田土壌コンパートメントにおける農薬量の収支式は(4)，(5)式で与えられる．

$$Ad_i\phi_i\frac{\mathrm{d}C_{w,i}}{\mathrm{d}t} = Q_vC_{w,i-1} - Q_vC_{w,i} - Ad_i\rho_{b,i}k_{ads,i}K_{f,i}{C_{w,i}}^{1/n} + Ad_i\rho_{b,i}k_{des,i}C_{s,i} - Ad_i\phi_ik_{dw,i}C_{w,i} \qquad (4)$$

$$Ad_i\rho_{b,i}\frac{\mathrm{d}C_{s,i}}{\mathrm{d}t} = Ad_i\rho_{b,i}k_{ads,i}K_{f,i}{C_{w,i}}^{1/n} - Ad_i\rho_{b,i}k_{des,i}C_{s,i} - Ad_{b,i}\rho_{b,i}k_{ds,i}C_{s,i} \qquad (5)$$

ここで，添え字 i は i 番目の下層の土壌層を表し，d_i は第 i 層の土壌厚さ，$\rho_{b,i}$ は第 i 層の土粒子乾燥密度，ϕ_i は第 i 層の間隙率，$C_{w,i}$ は第 i 層における間隙水相の農薬濃度，$C_{s,i}$ は第 i 層における土粒子相の農薬濃度である．

以上の Paddy モデルを用いて，田面水中と土壌中の農薬濃度の経時変化はつぎのように計算される．まず，(1)式の水田の水収支式から田面水深 h を計算した．ついで，(2)～(5)式の連立常微分方程式の数値解を Runge-Kutta-Gill 法により求めた．農薬の田面水中

濃度は C_{w0} で，土壌中濃度は C_{s0}，$C_{w,i}$，$C_{s,i}$ の合計量をもって評価した．なお，計算タイムステップは0.1dとした．

本研究では，後述するようにフロアブル剤に対してもPaddyモデルを適用した．フロアブル剤は水に懸濁分散させた製剤であることから，ここでは，その懸濁液に有効な農薬成分が完全に溶解したものと考え．さらに水田に散布したとき農薬成分は瞬時に混合され均一に分布するものと考えた．これらより，フロアブル剤を対象とする場合では，製剤からの溶出を表す(2)式右辺第1項は省略され，水田に投入された農薬成分量を田面水容積で除して求めた濃度を田面水中濃度 C_{w0} の初期条件として与えた．

(2) モデルパラメータの設定

(2)〜(5)式中のモデルパラメータは，農薬成分の特性値として決定され，一般にそれらは実験的に求められる．本研究では，農薬の環境特性値がまとめられたデータ集（金澤，1996）よりパラメータ値を設定した．なお，フロインドリッヒ吸着平衡定数 K_f，吸着速度定数 k_{ads}，脱着速度定数 k_{des}，揮発速度定数 K_L，ならびに水中・土壌中分解速度定数 k_{dw}，k_{ds} については，以下に示すような経験式を用いて決定した．

フロインドリッヒ吸着定数 K_f は土壌吸着平衡定数 K_d にほぼ等しいことが知られている（金澤，1996）．また，K_d の値は土壌吸着定数 K_{oc}，土壌中の有機炭素含有率 oc ならびに農薬の水溶解度 C_{ws} を用いて(6)，(7)式より求められる．

$$\log K_{oc} = -0.55 \times \log C_{ws} + 3.64 \tag{6}$$

$$K_d = K_{oc} \times \frac{oc}{100} \tag{7}$$

なお，K_f を土壌吸着平衡定数 K_d で代用する場合，フロインドリッヒの吸着等温式中の指数は $1/n = 1$ とする．

脱着速度定数 k_{des} は水溶解度 C_{ws} との間に正の相関が見られ，次式の実験式から求められる（稲生，2004）．

$$k_{des} = 0.039 + 3.0 \times 1.0^{-4} \times C_{ws} \tag{8}$$

なお，吸着速度定数 k_{ads} と脱着速度定数 k_{des} は等しいと仮定した．

揮発速度定数 K_L はLiss and Slater（1974）およびMackay and Leinonea（1975）が与えた次式により求められる．

$$K_L = \left(\frac{1}{k_l} + \frac{1}{Hk_g}\right)^{-1},\ k_l = K_l \times \sqrt{\frac{44}{MW}},$$
$$k_g = K_g \times \sqrt{\frac{18}{MW}} \tag{9}$$

ここで，K_l（=4.752）は水中における CO_2 の物質移動係数，K_g（=720）は大気中における H_2O の物質移動係数である．また，MW と H はそれぞれ農薬成分の分子量とヘンリー定数である．化学物質の蒸気圧を V_p とすると，絶対温度 T に対するヘンリー定数 H の値は次式から算出される．

$$H = \frac{16.04 \times MW \times V_p}{C_{ws} \times T} \tag{10}$$

水中分解速度定数 k_{dw} と土壌中分解速度定数 k_{ds} は，農薬の水中半減期 $DT_{50\mathrm{water}}$ ならびに土壌中半減期 $DT_{50\mathrm{soil}}$ が既知である場合，次式を用いて算定される．

$$k_{dw} = \frac{0.693}{DT_{50\mathrm{water}}} \tag{11}$$

$$k_{ds} = \frac{0.693}{DT_{50\mathrm{soil}}} \tag{12}$$

本研究では，農薬の水中半減期 $DT_{50\mathrm{water}}$ に関するデータが得られないものについては以下のように考えた．土粒子に吸着されない農薬の土壌中の滞留時間は，吸着された農薬のそれと比較して短いと推測される．そこで，水田内の農薬動態に対する間隙水中の分解の寄与は十分小さいものと考え，水中分解速度定数は $k_{dw} = 0$ とした．

2．圃場試験と再現計算

(1) 農薬調査と水収支測定

Paddyモデルは，粒剤を対象とした一筆水田内の農薬挙動予測モデルである．ところで，現在使用されている水稲用除草剤には，主なものとして粒剤タイプとフロアブル剤タイプなどがある．フロアブル剤は，水に溶けにくい固体原料を微粉砕して水に懸濁分散させた製剤である．フロアブル剤は噴霧時の簡便さ，安全性，拡散性が高いことが特徴であり，近年利用が広がっている．本研究では，フロアブル剤の使用率が高まっていることを鑑み，このような除草剤に対するPaddyモデルの有効性を検証するために圃場試験を実施した．使用した試験圃場は，九州大学農学部附属農場の水田圃場内にある一筆水田（田面積96m^2）であり，ここで農薬濃度の追跡調査ならびに水収支測定

をおこなった．本水田は用排水路が分離されており，また，水口と水尻はそれぞれ１ヵ所である．

農薬濃度の追跡調査では，田植え１週間後に除草剤であるサラブレッドフロアブルを51.5g 散布し，田面水中の農薬濃度を経時的に測定した．この農薬はフロアブル剤であり，含有成分はダイムロン18%，イマゾスルフロン1.7%，オキサジクロメホン1.2%である．田面水のサンプリングを散布後2.5時間，１日，２日，６日の計４回実施し，農薬分析に供した．１回につき水田内の２ヶ所でサンプリングし，上記３成分の農薬濃度を高速液体クトマトグラフ法（JIS K 0128-2000-7.3）に基づいて分析した．なお，試験期間中に一度，用水中の農薬濃度の分析を実施したところ，３成分ともに検出限界以下であった．したがって，灌漑用水を通じた農薬の流入はないものとした．

本研究では，上記の圃場試験で得られた農薬濃度の経時変化を再現する場合，水田における水収支を考慮した．使用した水田ではその畦畔にビニールシートを埋設し，畦畔浸透が遮断されていることから，この水田の水収支式は降水量，流入量，表面流出量，蒸発散量ならびに降下浸透量で構成される．そこで，除草剤散布後から30日経過までを観測期間として，この期間内の水深，流入量，減水深，降水量を測定した．なお，付属農場内での計測された気象データを用いてペンマン法により蒸発散量を推定した．また，用水の流入・流出および降水が認められなかった期間の減水深と蒸発散量のデータを用いて，圃場試験期間中の平均的な降下浸透量を推定した．さらに，表面流出量については，水深，降水量，用水の流入量，蒸発散量および降下浸透量から水収支式により推定した．

また，水田土壌の物理化学的特性を調べるために，長さ５cm の採土円筒を用いて表層土壌を採取し，乾燥密度，間隙率ならびに有機炭素含有量の測定に供した．

(2) 計算条件

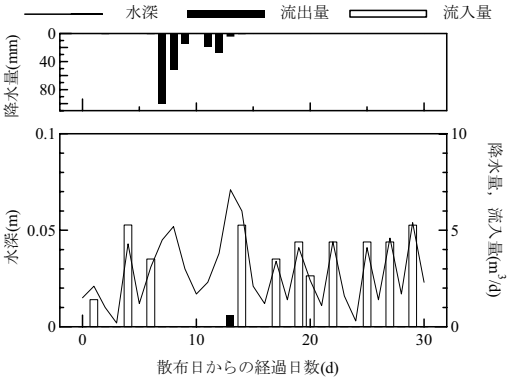
圃場試験により得られたダイムロン，イマゾスルフロン，オキサジクロメホンの各成分に対する農薬濃度の経時変化を Paddy モデルにより再現した．再現期間は除草剤散布後から30日経過までとし，計算条件は以下の通りである．

観測期間中の田面水深，表面流出量，降水量および用水流入量の経時変化を図２に示す．降水ならびに表面流出のいずれも認められなかった期間を対象に，式⑴を用いて田面水深，用水流入量および蒸発蒸散量から降下浸透量を計算した．その結果，平均的な降下浸透量は0.0114m/d（1.075m^3/d）であり，これを観測期間中の Q_v（＝一定）とした．さらに，表面流出があった期間については，式⑴を用いて田面水深，流入量，降水量，降下浸透量および蒸発蒸散量から表面流出量を計算した．図２中の表面流出量は，このような計算から求められた値である．

水田土壌の物理特性ならびに農薬の物性値をそれぞれ表１，表２にまとめる．図２ならびに表１，２に示した水田圃場条件の下で，上記３成分の田面水中・土壌中濃度の経時変化を求めた．また，観測期間中の平均水深である2.8cm を用いて，水深の時間的変動を考慮しない場合の数値計算も合わせて行った．なお，この場合の用水の流入量，表面流出量ならびに降下浸透量はそれぞれ1.095m^3/d，0.020m^3/d，1.075m^3/d である．

３．シナリオ分析の計算条件

水田の水管理方法ならびに農薬の物性値が一筆水田における農薬の動態に及ぼす影響を調べ，除草剤散布期間の適切な水管理方法を検討するために，シナリオ分析を行った．



試験期間における雨量，水深，降水量，流入量

図２　圃場試験期間中の水田環境条件

表１　試験圃場における水田土壌の物理的特性

土粒子の密度（kg/m^3）	2610
乾燥密度（kg/m^3）	1130
含水比（%）	49.1
間隙比	1.30
飽和度（%）	97.1
有機炭素含有率（%）	1.61

表 2　圃場試験対象農薬に関するモデルパラメータ

	W	MW	C_{ws}	V_p	H	K_{oc}
ダイムロン	90	268.4	1.7	3.7×10^{-10}	3.2×10^{-9}	32.6
イマゾスルフロン	8.5	412.8	308	3.3×10^{-11}	2.4×10^{-9}	1.87
オキサジクロメホン	6	376.3	0.15	1.2×10^{-11}	1.6×10^{-9}	123.9
	k_s	K_{ads}	k_{des}	K_L	K_{dw}	k_{ds}
ダイムロン	−	3.9×10^{-2}	3.9×10^{-2}	6.0×10^{-7}	0	1.3×10^{-2}
イマゾスルフロン	−	1.3×10^{-2}	1.3×10^{-2}	3.7×10^{-10}	0	1.1×10^{-2}
オキサジクロメホン	−	3.9×10^{-2}	3.9×10^{-2}	2.5×10^{-7}	0	6.9×10^{-2}

W：10a あたりの農薬有効成分の散布量（g）

(1) 圃場条件

散布除草剤の周辺環境に対する悪影響を低減するためには，適正水深で田面水を管理するとともに，高濃度の農薬成分の流出を防止するために散布直後に止水期間を設けることが重要となる．そこで，農薬散布期間におけるこのような水田管理が適切に行われなかった場合の農薬動態に関して検討するために，まず，次の 3 つのシナリオを設定した．すなわち，①止水期間が設定されていない場合を想定した掛け流し管理，②適正水深が保たれていない場合を想定した浅水管理，③規定された水深を超過した場合の深水管理である．ところで，近年では，最終的な無農薬化や省力化を目的とした不耕起栽培や，水管理の省力化のために間断的に水田の水深を管理する間断灌漑が注目されている．そこで，このような水管理のケースについても検討するために，不耕起栽培管理と間断灌漑管理をシナリオ条件に加えた．本研究では，一般的な水田の管理条件（以降，通常水管理）を設定し，この条件を基本に，掛け流し管理，浅水管理，深水管理，不耕起栽培管理，間断管理の各条件を設定した．

水田面積を $A=1000\mathrm{m}^2$として，通常水管理に関する圃場条件を次のように設定した．一般に，農薬製造元が指定している除草剤散布時の適正水深が 5 cm 程度であることから，田面水深を $h=5$ cm に設定し，時間的に一定とした．通常の水管理において表面排水率は10％程度であるとの報告から（稲生，2004），表面流出量は田面水容積の10％と考え，$Q_{\mathrm{out}}=5\mathrm{m}^3/\mathrm{d}$ とした．また，十分に代掻きをした水田の降下浸透量は 5 ～ 8 mm/d であることから，畦畔浸透の存在も考慮して $Q_v/A=10\mathrm{mm/d}$ とした．水田土壌の物理特性については，日本の代表的な水田土壌である灰色低地土，グライ土に関する平均値から設定し，土の乾燥密度を$1000\mathrm{kg/m}^3$，有機炭素含有率を2.2％，固相容積を35％とした．さらに，除草剤散布直後の止水期間は 3 日とし，その間の表面流出量はゼロとした．

以上の通常水管理条件を基本に設定した掛け流し管理，浅水管理，深水管理，不耕起栽培管理，間断管理の各条件を以下にまとめる．

① 掛け流し管理条件では，止水期間を設けずに農薬散布直後から表面流出量 $Q_{\mathrm{out}}=5\ \mathrm{m}^3/\mathrm{d}$ を与えた．

② 浅水管理条件と深水管理条件では，田面水深のみをそれぞれ 2 cm，8 cm に変更した．なお，表面流出量（$Q_{\mathrm{out}}=5\ \mathrm{m}^3/\mathrm{d}$）については変更していない．

③ 不耕起栽培では，通常の水田灌漑の場合と比べて，降下浸透量や水田土壌中の有機炭素含有量が大きくなることが知られている．そこで，不耕起栽培管理条件では，降下浸透量と有機炭素含有率の値を通常水管理条件の 2 倍，すなわち，20mm/d と4.4％に設定した．

④ 間断管理条件では，日減水深を 2 cm，田面水の最低水深を0.5cm，さらに，満水（水深 5 cm）までに要する時間を0.2d として，田面水深と用水流入量を時間的に変化させた．

(2) 農薬条件

シナリオ分析の対象農薬は，福岡県内で出荷量が比較的多い除草剤の中から設定した．すなわち，水稲用初期除草剤であるホームラン粒剤，リボルバー粒剤，サムライフロアブル，サラブレッドフロアブル，バサグラン粒剤とし，これらの含有成分であるダイムロン（90g），オキサジクロメホン（8 g），ベンタゾン（385 g），ブロモブチド（60g），シハロホップブチルを（15g）を対象とした．ここで，括弧内の数値は農薬成分の投入量を表し，上記除草剤の製造元が指定した 1 a あたりの散布量を基に設定した．また，オキサジクロメホン，ベンタゾン，シハロホップブチルは粒剤，

表 3　シナリオ分析対象農薬の物性値とモデルパラメータ

	W	MV	C_{ws}	V_p	H
オキサジクロメホン	8	376.3	0.15	1.2×10^{-11}	1.6×10^{-9}
シハロホップブチル	15	357.4	0.7	7.5×10^{-12}	0.2×10^{-9}
ダイムロン	90	268.4	1.7	3.8×10^{-10}	3.2×10^{-9}
ベンタゾン	385	240.3	630	1.0×10^{-9}	2.1×10^{-11}
ブロモブチド	60	312.3	3.54	5.6×10^{-5}	2.7×10^{-4}
	k_s	K_{oc}	k_{des}, k_{ads}	k_{ds}	K_L
オキサジクロメホン	3.60	123.9	3.9×10^{-2}	6.9×10^{-2}	2.6×10^{-7}
シハロホップブチル	5.5×10^{-1}	53.1	3.9×10^{-2}	9.9×10^{-2}	3.4×10^{-8}
ダイムロン	−	32.6	3.9×10^{-2}	1.4×10^{-2}	6.0×10^{-7}
ベンタゾン	1.3×10^{-2}	1.3	2.3×10^{-1}	2.1×10^{-2}	4.1×10^{-9}
ブロモブチド	−	21.8	4.0×10^{-2}	1.5×10^{-2}	4.5×10^{-2}

W：シナリオ分析において用いた農薬有効成分の散布量（g）

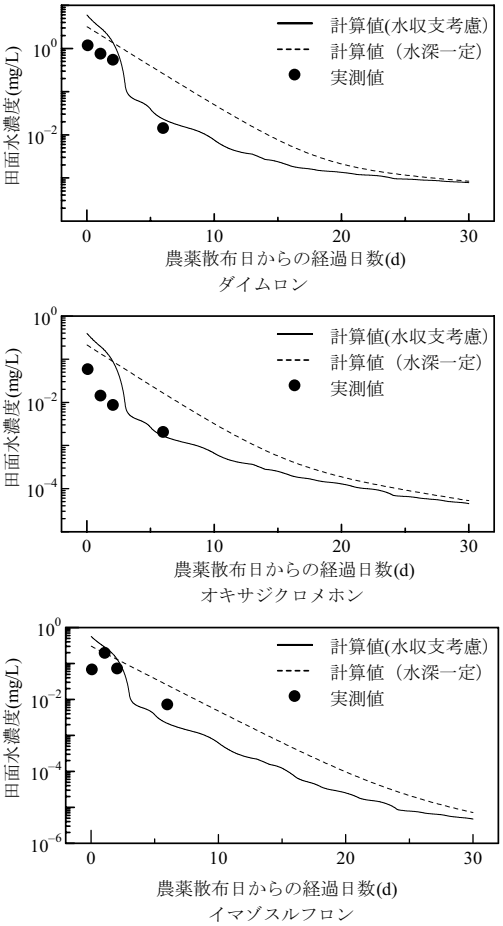


図 3　試験圃場における田面水中農薬濃度の実測値と計算値の比較

ダイムロン，ブロモブチドはフロアブル剤として散布されものとした．

これら 5 種の農薬の物性値とモデルパラメータ値を表 3 に記す．オキサジクロメホンは，吸着性，分解性が高く，水溶解度が低いことが特徴である．シハロホップブチルは，分解性は高いが，吸着性は低い．ダイムロンは，吸着性，分解性ともに低く，ベンタゾンは投入量が非常に多いことと，吸着性が非常に少ないことが特徴である．ブロモブチドは他の農薬と比較して，非常に高い揮発性を持つことが特徴である．

結 果 と 考 察

1．圃場の動態の再現結果

ダイムロン，イマゾスルフロン，オキサジクロメホンに関する圃場試験結果と Paddy モデルによる再現結果を図 3 に示す．なお，再現結果については田面水中濃度のみを図示している．同図中の実線は田面水深の経時変化を考慮した場合の計算結果であり，また点線は，田面水深を平均水深2.8cm の一定とした場合の計算結果を表す．

図 3 より，観測期間内の田面水深の経時変化を考慮した場合の計算結果では，散布直後の濃度を過大に評価しているものの，3 成分いずれも農薬散布後 6 日までの期間では農薬濃度の経時変化を概ね再現されていることが分かる．一方，田面水深を一定とした場合では，計算結果は観測値よりも過大に評価している．以上から Paddy モデルに水田の水収支式を加味し，田面水深の経時変化を考慮することにより，フロアブル剤であっても農薬濃度の経時変化の予測は可能であるといえる．

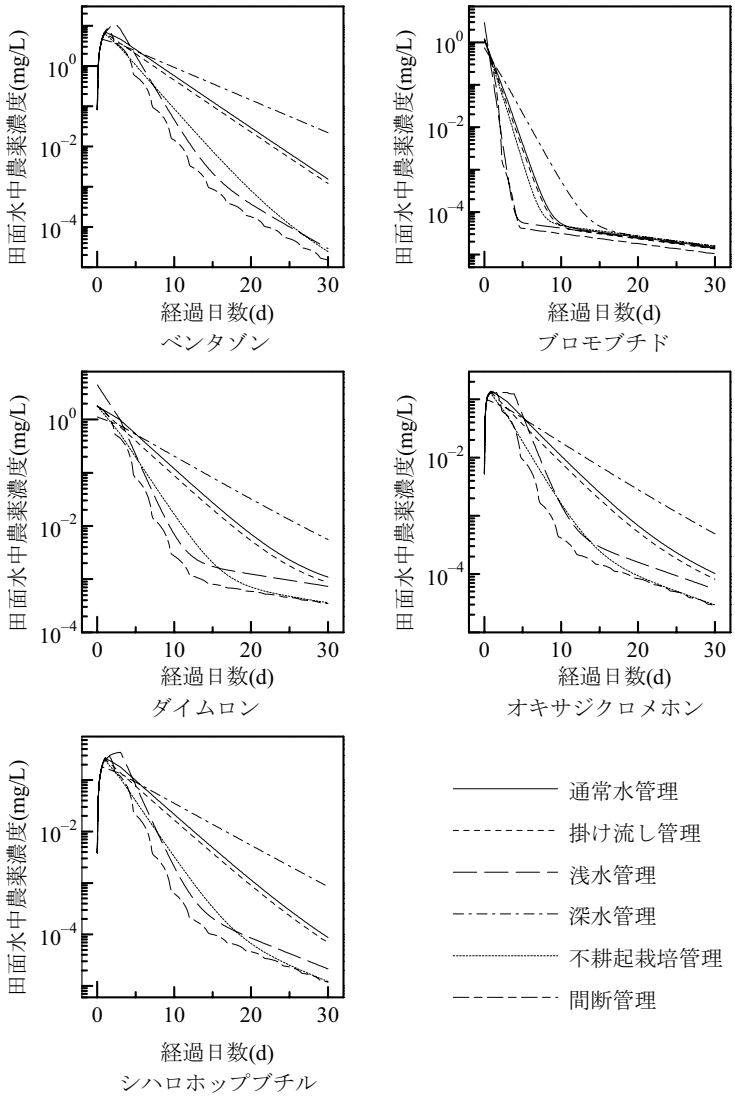


図 4　田面水中濃度の経時変化に関するシナリオ分析結果

2．シナリオ分析結果

農薬散布から30日経過後までを計算期間とし，その結果を図 4 と表 4 に示す．図 4 は各水管理条件における田面水中濃度の経時変化を農薬別に示したものである．また，農薬の挙動要因を表面流出，揮発，分解，降下浸透，残留の 5 つに分類し，30日間の各要因の寄与率を水管理条件別にまとめたものが表 4 である．ここで，残留量は田面水中と土壌中の農薬量の合計である．なお，残留については30日経過後の残留量を，他の 4 要因については30日間で流出あるいは消失した量を意味し，これらを散布量に対する比（%）で表示している．

まず，図 4 の田面水中濃度の経時変化についての結果をまとめると以下のとおりである．

① 農薬の物性値に関係なく，深水管理条件での田面水中濃度は，他の管理条件のそれと比較して高い値で推移し，経過時間に対する濃度の減少率は小さい．

② 田面水中濃度の経時変化の観点では，いずれの農薬成分で通常管理と掛け流し管理で大きな違いは見られない．

③ 農薬成分の違いに依らず，不耕起栽培管理条件，

表 4 散布後30日間の農薬の挙動要因の寄与率

(1) 通常水管理

	表面流出	揮発	分解	降下浸透	残留
オキサジクロメホン	18.63	0.00	17.50	61.18	2.69
シハロホップブチル	19.77	0.00	9.41	70.65	0.17
ダイムロン	18.13	0.00	1.71	77.50	2.66
ベンタゾン	20.20	0.00	0.17	79.61	0.02
ブロモブチド	0.31	81.53	0.29	17.54	0.33

(2) 掛け流し管理

	表面流出	揮発	分解	降下浸透	残留
オキサジクロメホン	33.59	0.00	14.52	50.94	0.95
シハロホップブチル	33.11	0.00	7.86	58.98	0.05
ダイムロン	33.17	0.00	1.40	63.30	2.13
ベンタゾン	33.48	0.00	0.14	66.37	0.01
ブロモブチド	8.31	74.98	0.26	16.14	0.31

(3) 浅水管理

	表面流出	揮発	分解	降下浸透	残留
オキサジクロメホン	17.35	0.00	17.98	62.54	2.13
シハロホップブチル	15.92	0.00	9.91	73.69	0.48
ダイムロン	7.41	0.01	2.01	87.93	2.64
ベンタゾン	14.25	0.00	0.18	85.56	0.01
ブロモブチド	0.01	81.76	0.29	17.61	0.33

(4) 深水管理

	表面流出	揮発	分解	降下浸透	残留
オキサジクロメホン	22.65	0.00	16.38	58.86	2.11
シハロホップブチル	23.34	0.00	8.80	67.28	0.58
ダイムロン	22.58	0.00	1.53	72.54	3.35
ベンタゾン	23.60	0.00	0.16	75.59	0.65
ブロモブチド	1.05	80.92	0.28	17.41	0.34

(5) 不耕起栽培管理

	表面流出	揮発	分解	降下浸透	残留
オキサジクロメホン	22.65	0.00	16.38	58.86	2.11
シハロホップブチル	23.34	0.00	8.80	67.28	0.58
ダイムロン	22.58	0.00	1.53	72.54	3.35
ベンタゾン	23.60	0.00	0.16	75.59	0.65
ブロモブチド	1.05	80.92	0.28	17.41	0.34

(6) 間断管理

	表面流出	揮発	分解	降下浸透	残留
オキサジクロメホン	4.78	0.00	10.53	84.06	0.63
シハロホップブチル	5.68	0.00	5.94	88.37	0.01
ダイムロン	3.61	0.00	0.95	93.46	1.98
ベンタゾン	5.68	0.00	0.10	94.21	0.01
ブロモブチド	0.01	60.22	0.21	39.31	0.25

浅水管理条件，間断管理条件の順で通常管理条件よりも田面水中濃度は小さい．また，これらの管理条件では，農薬散布から10日経過後までの期間で濃度の減少率は大きい．言い換えると，田面水中濃度の半減期が短い結果となっている．

④ 浅水管理条件下でのオキサジクロメホンの止水期間中の田面水中濃度は，高い値（約0.13mg/L）で維持したまま推移し，その値が水溶解度（0.15mg/L）とほぼ一致していることから，飽和状態にあったと考えられる．浅水管理では田面水容積が小さいために，田面水中濃度は高くなる傾向にある．オキサジクロメホンのように難溶解性の物質で，散布直後で飽和状態に達すると，粒剤からの溶出期間が長くなる．そのため，田面水中濃度は高い値を維持し，その結果として，止水期間終了直後で表面流出による水田系外への負荷が高くなると考えられる．

次に，表４に示した散布後30日間の各挙動要因の寄与率に関する結果をまとめると以下のとおりである．

① 各水管理条件に共通して，ブロモブチドでは揮発による消失が全体に占める割合が非常に高い．表３中に示したように，ブロモブチドのヘンリー定数は2.68×10^{-4}と大きく，これは水中から大気への揮発性が極めて高いことを示す．ブロモブチドに関する表４の結果は，このような物理化学的特性を反映した結果といえる．

② 各水管理条件に共通して，揮発性の低い農薬成分では，表面流出ならびに降下浸透の水の動きに伴う挙動が卓越している．この中で，オキサジクロメホンの降下浸透への寄与は他の成分（ダイムロン・ベンタゾン・シハロホップブチル）のそれと比較して小さい．これは，表３中の土壌吸着定数K_{oc}から明らかなように，オキサジクロメホンは土粒子への吸着性は高い．土壌中分解が吸着によって生じることを踏まえると，このような高い吸着性により，オキサジクロメホンの降下浸透の寄与は低く，分解の寄与は高いと考えられる．シハロホップブチルについては，その吸着性は低いが，土壌中分解速度定数k_{ds}の値は大きいことを反映し，オキサジクロメホンに次いで降下浸透の寄与は低く，分解の寄与は高いと考えられる．ダイムロン・ベンタゾンについては，吸着性，分解性ともに低い農薬であることから，降下浸透の寄与は高く，分解の寄与は低い結果になったと考えられる．

③ 農薬散布時における水田の不適切な水管理が農薬動態に及ぼす影響は，表面流出と降下浸透において顕著に見られ，分解と残留に関しては認められなかった．すなわち，掛け流し管理と深水管理では，表面流出の寄与率が通常管理のそれと比較して増大し，特に，掛け流し管理の場合では，1.5倍程度の増大が見られた．浅水管理では，表面流出の寄与率が減少し，降下浸透の寄与率が増加する傾向が見られた．特に，吸着性と分解性がいずれも低いダイムロン・ベンタゾンでは，その傾向が顕著であった．

④ 不耕起栽培管理では表面流出の寄与率が，間断管理では降下浸透の寄与率が高くなる．特に，間断管理で揮発性の低い成分で80％を超える値であり，揮発性の高いブロモブチドにおいても約40％にまで上昇している．間断管理では，表面流出による系外への環境負荷は大幅に削減されるが，その一方で，降下浸透量が増大し，特に，吸着性の低い農薬については地下水への負荷を十分に配慮する必要があると考える．

要　　約

本研究では，農薬挙動予測モデルのうち田面水深の時間的変動を考慮に入れた Paddy モデルを用いて，水田の水管理方法と農薬の物性値の観点から，農薬の水田内の動態特性や環境中への流出特性について検討した．また，Paddy モデルは粒剤タイプの除草剤を対象に構築されたモデルであるが，近年において水稲用除草剤散布にフロアブル剤の使用が増えていることを鑑み，フロアブル剤に対する Paddy モデルの有効性についても合わせて検討した．

まず，九州大学農学部附属農場で圃場実験を行い，フロアブル剤として散布した除草剤ダイムロン，イマゾスルフロン，オキサジクロメホンの田面水中濃度の経時変化を調べた．これらの実験結果と Paddy モデルにより再現した計算結果を比較したところ，計算値は散布直後の農薬濃度を過剰評価するものの，実験結果を概ね再現できた．このことから，本モデルの妥当性，およびフロアブル剤への適用性が示された．

次に，水田の水管理と農薬の物性値が水田内の農薬動態に及ぼす影響を調べるためにシナリオ分析を行った．圃場条件として，通常水管理，掛け流し管理，浅水管理，深水管理，不耕起栽培管理，間断管理の６条件を設定した．また，対象農薬は，福岡県内で使用頻度の高い初期除草剤であるオキサジクロメホン，ベン

タゾン，シハロホップブチル，ダイムロン，ブロモブチドの５成分とし，これらは吸着性，分解性さらには揮発性の物理化学的特性で大きく異なる．

まず，田面水中濃度の経時変化の観点からシナリオ分析の結果を考察した．その結果，農薬成分の違いに依らず，深水管理，通常管理，掛け流し管理，不耕起栽培管理条件，浅水管理条件，間断管理条件の順で田面水中濃度は小さいが，通常管理と掛け流し管理はほぼ同程度の濃度で推移した．また，浅水管理条件において，難水溶性の農薬は，散布直後に設定された止水期間でも高濃度を維持するため，止水期間終了直後で表面流出による水田系外への負荷が高くなると考えられた．

ついで，散布後30日間の挙動要因の寄与率について考察した．その結果，揮発性の低い農薬成分では，表面流出と降下浸透の水の動きに伴う挙動が卓越し，そのうち，吸着性の低い農薬では降下浸透の寄与が高く，ブロモブチドのような高揮発性の農薬では，揮発の全変動に対する寄与率が70～80％に達した．また，掛け流し管理，深水管理，不耕起栽培管理では，表面流出の寄与率は通常管理のそれと比較して増大し，一方，浅水管理と間断管理では降下浸透の寄与率が増加した．特に，掛け流し管理の場合では，1.5倍程度の増大が見られた．また，間断管理では，表面流出による系外への環境負荷は大幅に削減されるが，その一方で，降下浸透量が増大し，とくに，吸着性の低い農薬については地下水への負荷を十分に配慮する必要があると考えられた．

文　　献

原田昌佳・吉田　勲・井尻　亮　2002　PADDY モデルによる一筆水田内の動態予測．鳥大農研報，**55**：27-32

稲生圭哉　2003　水稲用農薬の挙動予測モデルの開発．日本農薬学会誌，**28**：338-344

稲生圭哉　2004　水田環境における農薬の挙動予測モデルの開発と有効性の検証．農環研報，**23**：27-76

Inao, K. and Y. Kitamura　1999　Pesticide paddy field model (PADDY) for predicting pesticide concentration in water and soil in paddy fields. *Pesticide Sci.*, **55**：38-46

金澤　純　1992　農薬の環境科学．合同出版，東京

金澤　純編　1996　農薬の環境特性と毒性データ集．合同出版，東京

岐部香織・高野浩至・亀屋隆志・浦野紘平　2000　水田除草剤シメトリンの水環境への流出負荷のモデル予測．水環境学会誌，**23** (6)：343-351

Liss, P.S. and P.G. Slater　1974　Flux of Gases across the Air-Sea Interface. *Nature*, **247**: 181-184

Mackey, D. and P.J. Leinonen　1975　Rate of Evaporation of Low Solubility Contaminants from Water Bodies to Atmosphere. *Environ. Sci. Technol.*, **9**：1178-1180

渡邊裕純・高木和広　2000　水田土壌における農薬の動態予測モデル（PCPF-1）によるプレチラクロールの動態予測と農薬流出管理への応用．農土論集，**68** (5)：43-50

Summary

The pesticide paddy field model (PADDY-model) was improved by considering the water balance in a paddy plot, and applied to the evaluation of runoff characteristics of rice herbicides from a paddy field. This model focused particularly on granule formulation, and has been developed for predicting pesticide concentration of water and soil in paddy fields. Recently, not only granule formulations but also floable formulations have been widely utilized as herbicides on paddy fields in Japan. From this viewpoint, field experiments and numerical simulations were performed to examine the applicability of PADDY-model to floable formulations. A comparison between the calculated results and the observed data for the pesticide concentrations in paddy water showed that the PADDY-model could approximately reproduce the observed of herbicide concentration, and that this model could be applied to floable formulations. A scenario analyses was conducted to evaluate the impact of physicochemical properties of pesticide, as well as irrigation water management, on the behavior of rice herbicides in paddy fields. As a result, the behavior of pesticide (of which adsorptivity and volatility were low) was attributable to vertical percolation. Furthermore, surface runoff amounts of pesticide under management of spill-over irrigation, deep ponding irrigation, and non-tilled cropping were larger compared with the runoff amount under the normal irrigation regardless of physicochemical properties. In the cases of mamegement for shallow ponding and intermittent irrigations, vertical percolation amounts increased and surface runoff amounts decreased in comparison with those obtained in the case of normal irrigation management.