

平成 21 年 6 月 5 日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19710021
 研究課題名 (和文) ダブルトレーサー試験による農薬の不飽和帯水層内移行メカニズムの解明
 研究課題名 (英文) Study on pesticide dynamics in unsaturated aquifers by the application of double-tracer experiments
 研究代表者
 吉本 周平 (YOSHIMOTO SHUHEI)
 独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構・農村工学研究所・農村総合研究部・地球温暖化対策研究チーム・研究員
 研究者番号：10435935

研究成果の概要：

農薬とラドンをトレーサーとする浸透試験によって不飽和帯の農薬移行メカニズムを解明するために、イムノアッセイ法による農薬測定法とラドン吸収フィルムによるラドン濃度測定法の適用性を検討した。イムノアッセイ法の測定結果は理論値によく対応することが示された。また、ラドン吸収フィルムのラドン吸収量は従来法によるラドン濃度測定値と強い相関があることが確認された。これらの手法は浸透試験に適用可能であるといえる。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,400,000	0	1,400,000
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,500,000	330,000	2,830,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境計測，土壤物理，環境放射能，農薬化学

1. 研究開始当初の背景

日本で登録されている殺虫剤，殺菌剤，除草剤などの農薬は，種類として 367 種，商品として 5,795 種あり，国内で年間約 60 万トンが使用されている。この量はアメリカについて世界第 2 位であるが，耕地面積で換算すると 1 ha あたりの農薬使用量は 10.8 kg で，アメリカの 7.2 倍，ヨーロッパの 5.7 倍にもなる。このような状況の中，多くの消費者は食品や土壤等に残留した農薬が健康や環境に与える影響について関心を持っている。

2006 年 5 月に改正食品衛生法が施行され，食品中の残留農薬に対する規制としてポジ

ティブリスト制が導入された。従来のネガティブリスト制では，残留してはいけない農薬について基準値が定められていたが，一方で基準値が定められていない農薬についてはいくら残留していても規制されず，食の安全確保上の大きな課題であった。今回の改正によって，基準値が未設定だった農薬について，国際基準である Codex や農薬登録保留基準などを参考として暫定基準が設定され，暫定基準が設定されない場合でも一律基準 (10 $\mu\text{g L}^{-1}$) が適用されることとなった。これらの基準を超える食品は流通が禁止される。

沖縄県では，島民の生活用水と農業用

水のほとんどを地下水に依存しているにもかかわらず、殺虫剤であるダイアジノンが水道水の安全基準 ($5 \mu\text{g L}^{-1}$) に達しないものの $3.3 \mu\text{g L}^{-1}$ 濃度で一部の地下水から検出されたことがあり、水源の汚染が危惧されている (南日本新聞 1997 年 2 月 5 日; 田代・谷山, 1996). このように、地下水の農薬汚染は顕在化しつつある. このような状況に対し、2005 年 10 月に示された農林水産省の「農地・水・環境の保全向上対策」では、農薬や肥料を半減させるなど環境保全型の取り組みを行う農家に対して支援することになった.

このように、農薬に関する制度が整備されたこととともに、消費者である国民は農産物を生産するためにどのように農薬が使われたかについて強く関心を持つようになった. 一方で、農家には農薬を減らす環境保全型の農業を実施することがこれまで以上に求められることとなった.

田畑に投入された農薬は、作物に吸収される農薬以外に、一部は土壤中に残留し、一部は河川や地下水へ移行する. しかし、地上で投入された農薬がどのようにして土壤に浸透し地下水へ移行するかは、不明な点が多く、農薬の地下水への移動メカニズムについて十分に理解されていないのが現状である. このため農家が農薬を半減したとしても、その効果がいつ、どの程度現れるのか不明なまま、農家は営農を続けなければならない. 環境保全型農業を推進するために、農薬の地下水への移行メカニズムの解明が急がれている.

水に溶ける肥料からの硝酸性窒素やガソリンなどの疎水性有機物の挙動については、近年アメリカを中心に研究が飛躍的に進んで、帯水層での汚染物質の挙動が明らかになりつつある. 例えば、Domenico and Schwartz (1990) は溶存有機化合物を含む地下水の輸送が吸着作用により減衰する事例を挙げている. しかし、農薬に関する記述は殆どなく、特に、土壤から地下水までの不飽和帯水層における移行メカニズムについての記述は皆無である. また、国内では、ゴルフ場からの農薬の流出 (須戸・國松, 1996, 1997) や水田流域からの農薬の流出 (山本・松丸, 2005; 須戸ら, 2003; 天野ら, 2001) を研究した例はあるが、土壤から地下水までの移行メカニズムの研究事例はみられない.

2. 研究の目的

土壤から地下水面までの不飽和帯における農薬の移行メカニズムを解明するためには、カラム試験と畑地圃場におけるトレーサー試験などによって浸透水および農薬の挙動を把握することが必要である. トレーサー試験では、吸着性トレーサーと非吸着性トレーサーによるダブルトレーサー試験が有用である. 本研究では、農薬を吸着性トレーサ

ーとし、ラドンを非吸着性トレーサーとするダブルトレーサー試験を実施するために必要な農薬測定法およびラドン測定法の適用性を確認した. ラドン吸収フィルムについては、フィルムの吸収特性など試験実施に必要な情報を実験によって収集した. また、トレーサー試験を実施し、試験結果から土壤への吸着による浸透の遅れなどの挙動を把握し、土壤から地下水面までの不飽和帯水層における農薬の移行メカニズムを考察した.

3. 研究の方法

(1) 本研究では、試験対象農薬として殺虫剤のフェニトロチオン (MEP) を用いた. フェニトロチオンは、一般に「スミチオン」などの商品名で販売されており、安価な殺虫剤として空中散布などによって広く用いられている. しかし、その毒性から、広域の生態系や人体の健康への影響が懸念されている. また、畑条件下での半減期が 12~28 日と比較的長く、砂質土のような有機物に乏しく透水性の良い土壤・地層では容易に溶脱する (滝本ら, 1976). 実際に、土壤中や地下水中にフェニトロチオン検出される事例も報告されており (例えば、伏脇, 1997; 田代・谷山, 1996), その影響が危惧されている. このため、土壤・地下水中の挙動を把握し残留性を評価することが重要である.

フェニトロチオンの分析にあたっては、イムノアッセイ法を適用した. フェニトロチオン用の分析キット (堀場製作所) を使用する. 適用にあたって、予め既知濃度の試料水を分析し、理論値と測定値の比較を行い、適用性を検討した.

(2) ラドン吸収フィルムは、ポリスチレンが水に対して高い (約 130 倍) ラドンの分配係数を持つ性質を利用している. このフィルムの吸収特性を把握するために、下記の試験を実施した.

まず、ラドン吸収フィルムを設置してから平衡状態になるまでに必要な時間を検討する. 井戸水にフィルムを 1~14 日間設置し、その後回収して水分を拭き取り、シンチレタである PPO (4.0 g L^{-1}) と POPOP (0.1 g L^{-1}) を溶解させたトルエン 20 mL に溶かして、液体シンチレーションカウンタ (パッカー社製 2250CA) でラドン吸収量を測定した. また、従来法による測定 (濱田ら, 1997) も実施し、フィルムのラドン吸収量との比較からフィルムの水に対するラドン分配率の推移を調べた.

また、従来法 (濱田ら, 1997) によるラドン濃度とラドン吸収フィルムによるラドン吸収量を比較し、フィルムの分配率と現地適用性を検討した. ラドン吸収フィルムは、つくば市内の湧水または観測用井戸に 1 週間 (6

日以上 8 日未満) 浸け置いた後、回収して水分を拭き取り、シンチレータに溶かして、液体シンチレーションカウンタでラドン吸収量を測定した。

さらに、不飽和土壌におけるフィルム吸収特性を明らかにするための試験を実施し、フィルムを不飽和土中に設置した場合のラドン吸収特性を把握した。まず、カラム内に充填したマサの中に図 1 のようにラドン吸収フィルムを一定間隔で設置し、カラム内を不飽和定常状態として 1 週間静置した後に回収して、フィルムのラドン吸収量を測定した。カラムの断面積は 20 cm^2 である。また、圃場に図 2 のような深さ約 2 m の縦穴を設置し、その壁面に図 3 の器具を使って図 2 のように土層中にフィルムを挿入した。挿入したフィルムは 24 時間後に回収し、フィルム吸収量を調べた。これらから、不飽和土壌中におけるフィルムの吸収特性を把握し、間隙水のラドン濃度の測定への適用性を検討した。

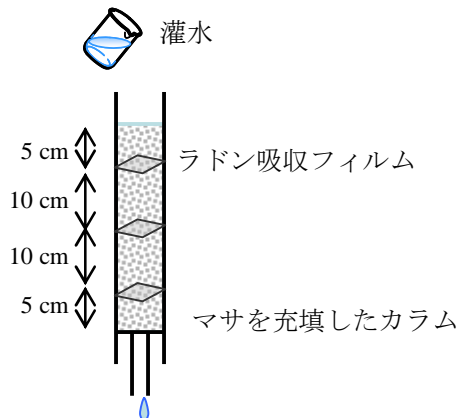


図 1 カラム装置の概要とフィルムの配置

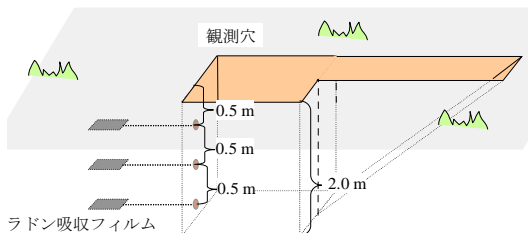


図 2 実験圃場に設置した縦穴の概要

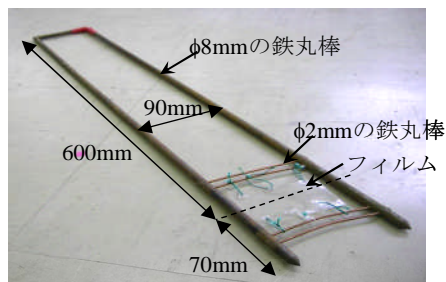


図 3 ラドン吸収フィルム挿入装置

(3) 不飽和土壌中の垂直方向の農薬移行特性を把握するために、カラム試験を実施した。図 1 のカラムを 6 本用意し、豊浦標準砂とローム土をそれぞれ 3 本ずつ充填した (フィルムは設置しない)。試験期間は 8 日間とし、試験の最初と 1 日後、4 日後、5 日後、7 日後に、カラムの上面から 200 mL を一度に灌水して、非定常の不飽和状態とした。最初の灌水の際に、各土壌を充填した 3 本のカラムにフェニトロチオンをそれぞれ $100 \mu\text{g}$ 、 $50 \mu\text{g}$ 、 $20 \mu\text{g}$ 投入した。カラムの下方で採取した浸透水のフェニトロチオン濃度を測定し、その結果から農薬の挙動の特性を検討した。

4. 研究成果

(1) イムノアッセイ法によるフェニトロチオン分析については、理論値と分析値の比較によった。比較結果を図 4 に示す。希釈による濃度の理論値との関係は、決定係数 R^2 が 0.68 で、強い相関を有していることから、イムノアッセイ法がフェニトロチオン濃度の測定に適用可能であると考えられた。

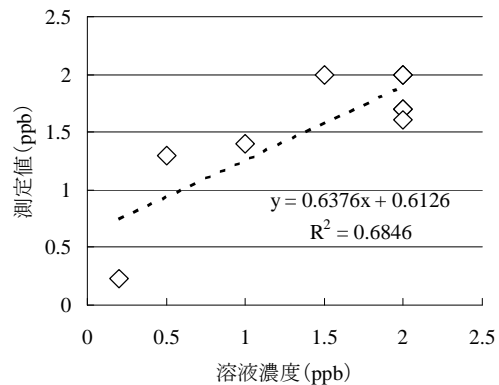


図 4 イムノアッセイ法の測定値と理論値

(2) 観測用の井戸にラドン吸収フィルムを設置し、設置日数によるフィルムのラドン分配率を調査した結果を図 5 に示す。孔口から 15 m 付近 (地下水面から深さ約 8 m) では、約 1 週間でほぼ平衡に達し、それ以降はほとんど分配率が上昇しないことが明らかになった。このことから、フィルムの設置は 1 週間程度が適していると判断される。一方、水面直下では降雨の影響と見られるラドン濃度の変動が大きく、設置日数と分配率との間に明瞭な関係が見られなかった。

また、つくば市内の湧水地点 4 箇所と観測用井戸にラドン吸収フィルムを設置し、フィルムのラドン吸収量と従来法によるラドン濃度を比較した結果を図 6 に示す。降雨の影響を受けてラドン濃度が大きく変動する観測用井戸の水面直下の結果を除けば、フィルムのラドン吸収量とラドン濃度の間に良好な相関関係が示された。表 1 に各地点におけ

る分配率の平均値と標準偏差を示す。標準偏差が大きい地点では分配率が大きくなる傾向がある。相関関係が良好であることから、ラドン吸収フィルムは現地適用性があるといえる。降雨の影響が大きい地点ではフィルムの適用に際して注意が必要である。

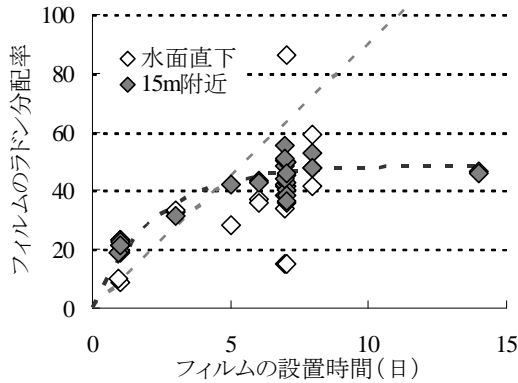


図5 フィルムの設置時間と分配率の関係

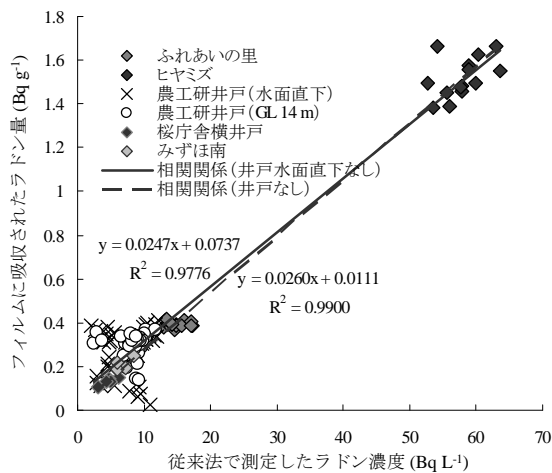


図6 ラドン濃度とフィルム吸収量の関係

表1 分配率の平均と標準偏差

採水地点	試料数	平均	標準偏差
ふれあいの里	14	26.18	2.58
ヒヤミズ	14	26.30	1.63
みずほ南	4	28.94	4.19
桜庁舎横井戸	5	30.90	4.30
農工研井戸水面直下	64	38.30	17.99
農工研井戸 GL 14 m	64	44.66	29.99

マサを充填したカラムに設置したフィルムのラドン吸収量を図7に示す。試験は2回実施され、その両方で下部のフィルムほど多量のラドンを吸収していることが明らかになった。これは、マサから供給されるラドンが浸透水に徐々に付加されることにより、下部の浸透水ほどラドン濃度が高くなることに対応しているものと考えられる。また、圃場の土層に設置したフィルムのラドン吸

量を図8に示す。この結果でも概ね深い位置のフィルムの方がラドン吸収量が大きく、実際の圃場でも浸透に伴ってラドンが浸透水に付加されていくことに対応していると考えられる。なお、この試験では、2日目と3日目の間に40mmの降雨があった。3日目のラドン吸収量が小さいのは、ラドン濃度の小さい雨水の浸透によるものと考えられる。

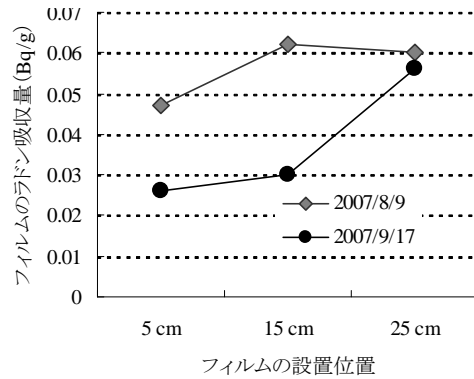


図7 フィルムの設置位置とラドン吸収量

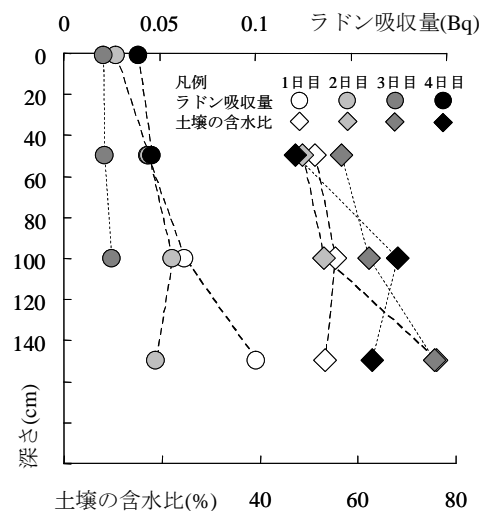


図8 土壌の含水比とラドン吸収量の変動

(3) 農薬の浸透特性を把握するために、豊浦標準砂およびマサ土を充填したカラムにおける農薬不飽和浸透試験を実施した(図9)。結果を図10に示す。豊浦標準砂を充填したカラムでは、最初の灌水での浸透水にはフェニトロチオンが含まれなかったが、1日後に採取した浸透水には含まれ、4日目にも1日目と同等の通過量を記録した。1日目から4日目の間に通過量のピークを迎えたと推定される。浸透水はほぼピストン流で1日程度で通過するため、農薬の浸透は最大で3倍程度の遅れがあると推定される。一方、ローム土の浸透水には殆どフェニトロチオンが見られなかった。これは、ローム土の粘土鉱物や有機物にフェニトロチオンが吸着したため、溶脱しなかった可能性が考えられる。



図9 浸透試験装置と試験のようす

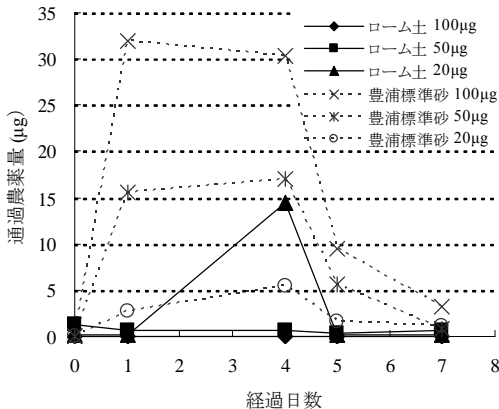


図10 浸透試験におけるフェニトロチオンの経過日数ごとの通過量

(4) 本研究では、浸透水中に含まれるラドンと農薬をトレーサーとするダブルトレーサー試験によって土壌から地下水面までの不飽和帯の農薬移行メカニズムを解明するために、イムノアッセイ法による農薬分析およびラドン吸収フィルムによる不飽和土壌中の間隙水のラドン濃度測定方法の適用性を検討した。結果をまとめると、以下のとおりである。

イムノアッセイ法については、既知濃度のフェニトロチオンを測定し、その結果が実際の濃度とよく対応することを確認した。このことから、実験に適用可能であるといえる。ラドン吸収フィルムについては、つくば市内の湧水や観測用井戸にフィルムを設置し、1週間設置したフィルムのラドン吸収量と従来法によるラドン濃度の関係からフィルムの吸収特性および適用性を調べた。フィルムのラドン吸収量は、フィルム設置1週間後に

は平衡とみなせること、ラドン吸収量は従来法によるラドン濃度と強い相関があることから、現地に適用可能であることが確認された。また、マサを充填したカラムにフィルムを設置した実験や、圃場の深さ2mの縦穴の側壁にフィルムを設置した実験では、間隙水が浸透に伴ってラドンを取り込んでいくことを反映して下方に設置したフィルムほどラドン吸収量が大きくなること、圃場では降雨後にはラドン吸収量が減少することが明らかになり、不飽和帯水層でもラドン吸収フィルムが適用可能であることが示された。

また、カラムを用いてフェニトロチオンの浸透試験を実施し、試験結果から土壌への吸着による浸透の遅れなどの挙動を検討した。豊浦標準砂を充填したカラムでは浸透の遅れが最大で水の浸透速度の3倍程度であると推定された。一方、ローム土の浸透水には殆どフェニトロチオンが見られず、粘土鉱物や有機物による可能性が考えられる。

今後、吸着や分解を含む農薬の土壌中での挙動を解明するためには、フィルムのラドン吸収量から不飽和土壌中の間隙水のラドン濃度を推定し、間隙水のラドン濃度から浸透水の土壌中での滞在時間を推定する方法を確立することが必要である。ラドン吸収フィルムは不飽和帯水層にも適用可能であると考えられることから、研究の進展によって、間隙水のラドン濃度が測定可能となり、農薬をはじめとする環境負荷物質の浸透メカニズムの解明に寄与することが期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

- ① 土原健雄, 吉本周平, 石田聡, 今泉眞之, ELISA法を用いた農薬測定法の地下水質モニタリングへの適用性, 農業農村工学会論文集, 77(2), 207-217, 2009, 査読有

〔学会発表〕(計1件)

- ① 吉本周平, 土原健雄, 石田聡, 今泉眞之, 茨城県つくば市における湧水中のラドン濃度とラドン吸収フィルムの適用, 第45回アイソトープ・放射線研究発表会, 2008年7月2日, 日本青年館

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉本 周平 (YOSHIMOTO SHUHEI)
 独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構・農村工学研究所・農村総合研究部・地球温暖化対策研究チーム・研究員
 研究者番号: 10435935