

除草剤イマゾスルフロンの土壌環境中における動態に関する研究

味方 和樹

武田薬品工業株式会社アグロカンパニー農業科学研究所

A Study of the Fate of Herbicide Imazosulfuron in Soil Environment

Kazuki MIKATA

*Agricultural Research Laboratories, Agro Company, Takeda Chemical Industries, Ltd.
Tsukuba, 300-4247, Japan*

ABSTRACT

The fate of herbicide imazosulfuron in soil environment was investigated using two kinds of ^{14}C labeled imazosulfuron. Imazosulfuron was considered to indicate significant movement in upland soils judging from the half-life of approximately 2 months under laboratory condition, and relative small Freundlich K values of 0.96 to 5.27 obtained by batch method. The yearly mean concentrations of imazosulfuron in the leachate water from lysimeter, however, did never exceed 0.10 $\mu\text{g/L}$ during the 3-years monitoring period even after the applications of 50 g/ha in two subsequent years. From these findings, it was reasonably concluded that imazosulfuron will not reach environmentally significant concentrations in ground water in practical field use, and it was assumed that the increase of soil desorption constants in soil contributed to the low mobility of imazosulfuron in soils.

Keywords: Imazosulfuron; mobility; degradation; soil; environment

第1章 序論

人類は栽培作物から得られる食料を生活の礎としてきた。農薬は、農作物の安定供給、生産性の向上に大きく寄与してきた一方で、環境汚染という大きな社会問題も引き起こした。こういった背景の中で創出されたイマゾスルフロン、1-(2-chloroimidazo[1,2-*a*]pyridin-3-ylsulfonyl)-3-(4,6-dimethoxypyrimidin-2-yl)urea、を含めたスルホニル尿素系除草剤は、哺乳動物に対して極めて低毒性であり、また、イネやコムギ栽培の主要雑草に対して低薬量で効果を示すことから、近年、最も広く普及している選択性除草剤の一つである。しかしながら、本系統の化合物は一般に土壌に対する吸着性が弱いことから土壌中を移行し易いと考えられ、地下水汚染が懸念される。また、イマゾスルフロンは、イミダゾ[1,2-*a*]ピリジン環という農薬としては従来にない部分構造を有していることから、既

存の化合物で得られた知見を基に、土壌における動態を推定するのが困難である。

本研究では、イマゾスルフロンの土壌に対する吸着性と土壌における移行性の関係を明らかにすると共に、その湛水および畑地土壌における消失速度、主要分解物を同定することにより土壌における分解挙動についても明らかとした。更に、ライシメーターにイマゾスルフロンを処理し、地表下約 1 m の地点におけるその溶出量、および土壌層における残存量を分解物も含めて測定し、イマゾスルフロンによる地下水汚染の可能性、およびその長期土壌残留の可能性について検討を加えた。

第 2 章 湛水土壌における分解性

水田土壌における分解挙動を推定するために、湛水状態に維持した土壌にイマゾスルフロンを処理し、その分解性を明らかとした。

イマゾスルフロンの 2 種の ^{14}C -標識化合物を、好気的および嫌気的条件下に維持した湛水土壌に 0.2 $\mu\text{g/g}$ の割合で混和処理し、処理後 360 日間にわたってその残存量の測定、および分解物の同定、定量を行った。その結果、好気的条件下では、イマゾスルフロンは半減期約 1.5 カ月で土壌中より消失し、主要分解物として ADPM、2-amino-4,6-dimethoxypyrimidine、および IPSN、2-chloroimidazo[1,2-*a*]pyridine-3-sulfonamide、が同定された。また、比較的多くの炭酸ガスが発生した。一方、嫌気的条件下では、処理後 3 日目で対処理量の約 50 % にまで減少し、主要分解物として HMS、1-(2-chloroimidazo[1,2-*a*]pyridin-3-ylsulfonyl)-3-(4-hydroxy-6-methoxy-2-pyrimidinyl)urea を与えた。また、経時的に非抽出性成分が増大し、その多くは土壌有機物を構成するフルボ酸画分に分布していた。また、滅菌土壌にイマゾスルフロンを処理したところ、好気的および嫌気的のいずれの条件下においても、その分解性は、好気的条件下の非滅菌土壌中におけるそれと同傾向であった。以上の結果より、湛水土壌中におけるイマゾスルフロンは、好気的条件下では、主にスルホニルウレア結合の化学的な開裂を受けて ADPM および IPSN を与え、一方、嫌気的条件下では、主に土壌微生物による脱メチル化により HMS を与えるものと考えられた。また、水田における実使用場面を想定すると、水田土壌は表層の約 1 cm を除いて嫌気的狀態（還元層）に維持されていることから、イマゾスルフロンは水田土壌中において速やかに消失し、土壌下層部へと移行する可能性は小さいものと推定された。

第 3 章 畑地土壌における分解性

水分含量の調整により畑地状態に維持した土壌にイマゾスルフロンを処理し、その分解挙動を検討した。その結果、イマゾスルフロンの畑地土壌中における半減期は約 2 ヶ月であり、主要分解物として IPSN と ADPM を与えた。すなわち、畑地土壌中における分解性は、第 2 章で明らかとなった好気的条件下の湛水土壌中における分解性と類似していた。また、第 2 章において、水田土壌中では、土壌下層部へと移行する可能性は小さいことが明らかとなったが、畑地においては、水田で見られる還元層は深部の滞水層まで存在しない。よって、畑地土壌中での半減期が約 2 ヶ月であることから、イマゾスルフロンの土壌吸着性が弱い場合には、畑地に処理されたイマゾスルフロンが鉛直浸透し、地下水へと到達する可能性が懸念された。

第4章 土壌に対する吸着性および脱着性

イマゾスルフロンの土壌に対する吸着性、および土壌からの脱着性について検討を加え、その土壌中における移行性を推定した。

土性の異なる5種の土壌をそれぞれ約5g秤量し、これに、¹⁴Cで標識したイマゾスルフロンの所定濃度(0.05, 0.5 および 5.0 μg/ml)の水溶液(100 ml)を加えて室温で振盪したところ、2時間で吸着平衡に到達した。吸着平衡時におけるイマゾスルフロンの溶液濃度および土壌中濃度の関係を、フロンドリッヒ吸着等温式で解析した結果、イマゾスルフロンの土壌吸着定数(K 値)は0.96~5.27と小さく、一部の土壌では K 値が1以下となった。すなわち、土壌によっては、イマゾスルフロンの吸着性が著しく弱いことが示された。

次に、¹⁴C-イマゾスルフロンを土壌に0.2 μg/mlの割合で混和処理し、土壌中に残存する本化合物の土壌脱着定数(K_d 値)を経時的に測定した。その結果、土壌吸着定数(K 値)が0.96を示した土壌中では、処理後0日目の K_d 値は0.98を示し、容易に土壌から脱着したが、その後、 K_d 値は経時的に増加して60日目では35.75を示した。このことから、本化合物は、時間の経過に伴ってより強く土壌に保持されることが明らかとなった。以上の結果より、イマゾスルフロンは土壌に対する吸着性が弱く、土壌の種類によっては、土壌中を移行しやすい可能性があるものと推定されたが、時間の経過に伴って土壌より脱着し難くなるという性質を有することにより、その土壌中における移行性は経時的に小さくなるものと考えられた。

第5章 土壌中における鉛直方向への移行性

第4章において、イマゾスルフロンは土壌中を移行しやすい可能性があることが示唆されたことから、その土壌中における鉛直方向への移行性を検討した。

4種の土壌をそれぞれガラス製カラムに充填して土壌カラム(4 cm × 30 cm)を作成し、イマゾスルフロンの2種の¹⁴C-標識化合物を1 μg/gの割合で混和処理した土壌を土壌カラム最上層部に積層した後に、カラム上部より2日間にわたって灌水(雨量換算 560 mm 相当量)した。その結果、土壌カラム中におけるイマゾスルフロンの移行性は、第4章において求めた土壌吸着係数(K 値)と負に相関することが示された。

次に、イマゾスルフロンを混和処理した土壌を、1ヶ月間エイジングした後に土壌カラム最上層部に積層して灌水したところ、混和直後に灌水した場合と比して、土壌カラム中における鉛直方向への移行性が減少した。また、エイジング期間中に生成した主要分解物ADPMおよびIPSNは、いずれも親化合物と比較してより強く土壌に吸着された。以上のことから、土壌中への移行したイマゾスルフロンは、移行直後は土壌の種類によっては比較的下層部へと移行し易いものの、その移行性は時間の経過に従って低下していくものと推定された。また、土壌中で分解を受けて、より移行性の小さい化合物を与えることが明らかとなった。

第6章 畑地圃場における地下水汚染の可能性、および土壌残留性

イマゾスルフロンを畑地圃場条件に維持したライシメーターに処理し、3年間にわたって地下1 mの地点における溶出量を測定して、地下水汚染の可能性について検討した。

イマゾスルフロンの2種の¹⁴C-標識化合物を、ライシメーター表面に栽培したコムギ等の作物に50

g ai/ha の割合で慣行施用し、ライシメーター下部より得られた溶出液を分析したところ、イマゾスルフロンおよび分解物の年間平均濃度は、2年連続でイマゾスルフロンを処理した場合でも、飲料水中の農薬濃度の許容量としては国際的に最も厳しいとされるEU (欧州連合) の規制値 $0.1\mu\text{g/L}$ を下回った。このことから、地下水中に人や環境に影響を与える有意な量で、イマゾスルフロンやその分解物が移行する可能性は低いものと推察された。栽培作物の可食部を分析したところ、 ^{14}C -濃度は $2.0\mu\text{g/kg}$ 以下と極めて低く、本化合物の哺乳動物に対する毒性値を勘案すると、ヒトに対する影響は無いものと考えられた。また、処理後3年間を経過した後に土壌を分析したところ、残存する ^{14}C の大部分は表層から 20 cm までに分布し、その大部分は非抽出性 ^{14}C であった。また、処理した ^{14}C の回収率は33.57%-70.17%であり、未回収部分は炭酸ガスとして土壌中より揮散したものと考えられた。以上の結果より、イマゾスルフロンは土壌中において長期に残留する可能性は低く、時間の経過と共に炭酸ガス、もしくは非抽出性成分へと変換されていくものと推定された。

第7章 総合考察

本研究により、イマゾスルフロンは水田と畑地土壌中における動態が顕著に異なることが明らかとなったが、いずれの土壌環境中においても長期に残留することはなく、鉛直浸透により地下水を汚染する可能性も低いことが示唆された。また、イマゾスルフロン特有の部分構造であるイミダゾ[1,2-*a*]ピリジン環を有する分解物についても、親化合物と同様に、環境汚染の可能性は低いものと推定された。農薬による地下水汚染の可能性を見積もる際には、土壌吸着定数は重要なパラメーターとして広く用いられている。本定数が小さく、更に、半減期が約2ヶ月を示す畑地土壌中においては、イマゾスルフロンは土壌中を下方移行しやすいものと予想されたが、実圃場を模したライシメーターにイマゾスルフロンを処理した場合、ライシメーター下部からの溶出量は極めて僅かであった。これは本研究中で示されたように、イマゾスルフロンが経時的に土壌より脱着し難くなることが寄与しているものと推定された。スルホニル尿素系除草剤において、このような土壌脱着性の経時変化に関する報告は今までになされていない。よって、本系統の化合物の環境動態を検討する上で、今回の研究結果は重要な知見を与えることができたものと考えられる。

本研究では、イマゾスルフロンの土壌中での分解過程において生成する非抽出性残渣に関しては、腐植酸及びフルボ酸等の土壌有機画分に分画することに止めた。しかし、例えば、非抽出残渣の作物による取り込み等を検討することにより、本化合物の環境動態についてより踏み込んだ議論が可能であろう。農薬の土壌中における動態研究は、その環境動態を明らかにするための基点と言える。一方で、水田においては田面水の流出、畑地においては表流水の発生や表層土壌の流亡、また、薬剤散布時のドリフトにより周辺河川や池への農薬の混入が指摘されている。これら周辺水系におけるイマゾスルフロンの動態を研究することにより、その環境動態をより詳細に、かつ総合的に解明できるものと思われる。