

新規除草剤ピロキサスルホンの除草効果と特性に関する研究

2016年 1月

山地 充洋

新規除草剤ピロキサスルホンの除草効果と特性に関する研究

筑波大学大学院
生命環境科学研究科
生物機能科学専攻
博士（農学）学位論文

山地 充洋

目次

| | ページ |
|-----------------------------------|-----|
| 諸言 | 5 |
| 第1章 ピロキサスルホンの除草効果と殺草スペクトラム | 13 |
| 1-1. 寒天培地上での除草活性 | 15 |
| 1-2. 温室内ポット試験での処理時期別の除草効果 | 23 |
| 1-3. 温室内ポット試験における殺草スペクトラム | 28 |
| 1-4. 温室内ポット試験における作物安全性 | 32 |
| 1-5. 圃場での除草効果 | 35 |
| 1-6. 考察 | 39 |
| 第2章 ピロキサスルホンの除草効果と土性との相関 | 41 |
| 2-1. 異なる土壌における除草効果 | 43 |
| 2-2. 考察 | 54 |
| 第3章 ピロキサスルホンの残効および環境要因が除草効果に及ぼす影響 | 56 |
| 3-1. 圃場における残効期間 | 58 |
| 3-2. 土壌表面でのピロキサスルホンの拡散 | 62 |
| 3-3. 土壌中での薬剤層の位置と除草効果 | 66 |
| 3-4. 土壌混和処理での除草効果 | 69 |
| 3-5. 土壌表層の砕土が除草効果に及ぼす影響 | 72 |
| 3-6. 土壌水分が除草効果に与える影響 | 78 |
| 3-7. 考察 | 83 |

| | | |
|-------|------|----|
| 第4章 | 総合考察 | 86 |
| 要約と結論 | | 93 |
| 謝辞 | | 95 |
| 参考文献 | | 96 |

略語一覧

| | |
|------------------|----------------------------|
| VLCFA | 超長鎖脂肪酸 |
| VLCFAE | 超長鎖脂肪酸伸長酵素 |
| WP | 水和剤 |
| SC | フロアブル剤 |
| WDG | 顆粒水和剤 |
| EC | 乳剤 |
| a.i. | 有効成分 |
| g a.i./ha | ヘクタールあたりの有効成分量 |
| ED ₉₀ | 90%の生育抑制効果を得るために必要な薬量または濃度 |
| ED ₅₀ | 50%の生育抑制効果を得るために必要な薬量または濃度 |
| K _{oc} | 有機炭素補正土壌吸着係数 |
| OM | 有機物 |
| IPM | 総合的有害生物管理 |
| IWM | 総合的雑草管理 |

諸言

世界人口は 2050 年には 90 億人に達しようとしており、穀物需要は発展途上国における需要増加に加えて、バイオエタノールなどのエネルギー資源としての利用も見込まれ、世界的な食糧不足が懸念されている[1,2]。一方、穀物の収穫面積は過去 50 年間で 8%程度しか増加しておらず、ほぼ横ばいとなっており、今後も急激な増加は望めない。また、耕作地の拡大は過度の森林伐採などを招く恐れがあり、性急な耕地面積の拡大は環境破壊につながる懸念がある。現在、問題とされている食糧の分配に関して考慮する必要があるが、今後増大すると考えられる食糧またはエネルギー需要を満たすためには、限られた耕地でこれまで以上に単位面積当たりの収量を向上させるとともに、変動する地球環境の下で安定的な食糧生産を可能とする技術が求められてきている[3]。

食糧生産は、これまで肥料の開発、緑の革命と呼ばれる高収量品種の導入による増収、機械化による生産効率の上昇、農薬による生物ストレスや生産労力の軽減などによって支えられてきた。中でも農薬は、安定的で経済的な食糧生産に必要な不可欠な資材として広く使用され、農業を産業として成り立たせるに重要な役割を担ってきた。日本植物防疫協会が行った 1990 年から 2006 年におよぶ調査データによれば、農薬を使用しないで栽培した農作物の病虫害、雑草による被害は、畑作物では 30%から 70%の減収、果樹では 70%以上の減収となり、減収以上に品質低下による減益も大きいことが明らかとなっている[4]。中でも除草剤は、作物を雑草との競合による収量減を回避し、多大な農作業の労力軽減と効率化に寄与してきた。1970 年代から高度な作物、雑草間の選択性を有し、処理適期の広い除草剤が次々と開発され、生産現場で使用されてきた。1980 年代になると分岐鎖アミノ酸の生合成ルートにある律速酵素であるアセト乳酸合成酵素を阻害

する除草剤に関する研究が進み、生産現場で使用されるようになった。しかしながら、1980年代から同じ除草剤、もしくは同じ作用機序の除草剤を継続して使用することによって、特定の除草剤に耐性を示す雑草が顕在化して各地で報告されるようになり、除草剤抵抗性雑草の問題が徐々に大きく取り上げられるようになった[5]。

その後、画期的な技術として1995年に商品化され、急速に発展した遺伝子組み換え作物の技術によって、安価で強力な除草効果を有する非選択性の除草剤が直接使用できるようになり、除草体系は大きく変化した[6]。従来行われてきた耕起、土壌処理除草剤、茎葉処理除草剤、中耕および作物ローテーションといった除草体系は、ワタ、ダイズ、トウモロコシでは非選択性除草剤を作物の上から雑草に直接散布する方法へと変化した。生産者は、これまでのように雑草の種類や除草剤の組み合わせなどを考える必要性がなくなり、除草剤耐性の種子を購入して播種し、同じ除草剤を何度も処理するようになった。特に早くから遺伝子組み換え作物が導入されたダイズやワタでは、安価な同じ除草剤を連続して使用することを繰り返した結果、抵抗性雑草の発達、蔓延を助長することとなった。2006年に報告された非選択性除草剤グリホサートに耐性を獲得したオオホナガアオゲイトウ (*Amaranthus palmeri*: AMAPA)は[7]、雌雄異株で花粉によって抵抗性形質が拡散し、1本の植物体から非常に多くの種子を生産するため、アメリカ南部を中心に急速に広がった[8, 9]。この他にもホソバイヌビユ (*Amaranthus rudis*: AMATA)などにも抵抗性が認められ、遺伝子組み換えによって得た有用性の一部を失うこととなった。現在では、耕起などの物理的な雑草防除に加えて、除草剤の使用においては“同一の”もしくは“同一の作用機序の”除草剤に頼るのではなく、雑草の生育期に直接散布される茎葉処理剤に加えて、残効を有する土壌処理除草剤を有効に組み合わせ

て雑草防除の多様性を維持することが抵抗性の発達を遅らせ、有用な除草剤を長く使用するのに重要であると提唱されている[10, 11, 12, 13]。

こういった背景の中、近年研究開発された除草剤ピロキサスルホンは、雑草の発芽から出芽時に作用して効果を発揮する土壌処理型除草剤である[14]。作用機序は超長鎖脂肪酸 (very-long-chain fatty acid: VLCFA)の生合成阻害であることが種谷らの研究によって明らかにされており、Herbicide Resistance Action Committee (HRAC)の作用機序の分類では K3 に分類される[15, 16, 17]。VLCFA は、炭素鎖 20 から 30 以上の飽和、不飽和の脂肪酸であり、植物体の細胞膜やワックス等の主成分として重要な役割を果たしている。VLCFA は、マロニル CoA を基質として炭素鎖 18 以上の脂肪酸の炭素鎖を 2 つずつ伸長する反応によって生合成され、この反応には 4 つの酵素が関係し、その最初の縮合反応をつかさどるのが、K3 除草剤のターゲットである very-long-chain fatty acid elongase: VLCFAE である (Figs. 1, 2) [17,18]。

VLCFAE を阻害する K3 グループの除草剤は、クロロアセトアミド (アラクロール、アセトクロール、メトラクロール、ジメテナミド、プレチラクロールなど)、アセトアミド (ジフェナミド、ナプロパミドなど)、オキシアセトアミド (フルフェナセット、メフェナセット)、テトラゾリノン (フェントラザミド)、その他 (カフェンストロール、アニロホスなど) の構造で分類されている (Fig. 3)。このうち最も大きな化学構造グループであるクロロアセトアミドには、畑作用除草剤としてメトラクロール、アセトクロール、アラクロール、ジメテナミド、水田用としてプレチラクロール、ブタクロールなど世界中で広く使用されている除草剤が含まれる。また、種谷らの研究によって、脂質合成阻害 (非 ACCase 阻害) として HRAC の作用機序分類では N に分類されていたチオベンカルブなども VLCFAE

を阻害することも近年になって判明した[19]。

K3 に分類される除草剤に抵抗性を示す雑草は現時点で 4 種、7 例 (*Alopecurus myosuroides* : ドイツ、*Echinochloa crus-galli* var. *crus-galli* : 中国、タイ、フィリピン、アメリカ合衆国、*Lolium perenne* ssp. *Multiflorum* : アメリカ合衆国、*Lolium rigidum* : オーストラリア) が報告されており、これらのうち 5 例が複数の除草剤に抵抗性を示している[5]。100 種類以上の草種で抵抗性が報告されている光合成阻害剤 (HRAC グループ C) や 150 種以上で抵抗性が見つかっているアセト乳酸合成酵素阻害剤 (HRAC グループ B) と比較すると、すでに最初が開発、使用されてから 40 年以上が過ぎ、世界中で広く使用されている除草剤としては、抵抗性の発達度合いは他の作用機序の除草剤と比較して低いと考えられる。抵抗性雑草は、主に除草剤の作用点そのものが変異したことによって阻害活性が弱くなる場合、植物体内で除草剤の代謝、分解が起こることによって無毒化される場合が考えられる。K3 除草剤の抵抗性が少ない理由としては、植物体内には複数の VLCFAE が存在し、K3 除草剤は複数の VLCFAE を阻害していると考えられるため、作用点に変異してもすぐに抵抗性を獲得しにくいこと[17, 20, 21, 22]、使用方法として作物栽培期間に複数回使用されることはなく、暴露される機会が少ないこと、防除しきれなかった雑草は別の作用性の茎葉処理除草剤で防除されてきたことなどが関係していると考えられる。

K3 に分類される除草剤は土壌処理型の除草剤であり、特にクロロアセトアミド除草剤はトウモロコシ、ダイズなどの生産に広く使用され、穀物生産を支えてきた。雑草発生前に土壌に散布される除草剤は、すでに発生している雑草に直接散布する茎葉処理除草剤とは異なり、土壌表面に散布された後、雑草が発生してくるまでその効力を維持する必要がある。しかしながら、土壌表面に散布された薬剤は、環境中での分解、土壌表面から大

気中への揮散、土壌中での下方移動、土壌表面での拡散や土壌粒子に付着した状態での流亡などによって失われ、除草効果は時間とともに低下していく。また、除草剤は水に溶解した状態で雑草の種子や植物体に吸収されて効果を発揮することから、化合物の水溶解度、土壌吸着などの物理化学性が除草効果に影響を及ぼす。実際に、アラクロール、メトラクロールなどの除草剤が一定の期間、実用的な除草効果を発揮するには、ヘクタールあたりの有効成分量 (g a.i./ha) でおよそ 1000 g から 3000 g 程度の薬量が必要であり、より低薬量で必要な期間、十分な効果を示し、環境に与える負荷の小さい除草剤が求められてきた。

こういった背景のもと、本論文では K3 除草剤の中で新規な構造であるイソキサゾリン骨格を有する新規除草剤ピロキサスルホンに関して、その生物活性や特徴、環境の変動に対する除草効果の変動を検討、考察し、生産者がこの除草剤を適切に使用方法について提示するものである。この論文を通じて、除草剤の有効成分の環境中における特性や、実場面で起こりうる条件下における除草効果について理解して使用することは、除草剤をより有効に使用することにつながる。また、除草剤の効力をより発揮させ、高い雑草防除効果を得ることは、除草剤抵抗性雑草の発達を遅らせ、有効な除草剤をより長く使用できることとなり、食糧生産全体にかかわる環境負荷を低減しながら、今後の食糧問題の解決に貢献するものと考えている。

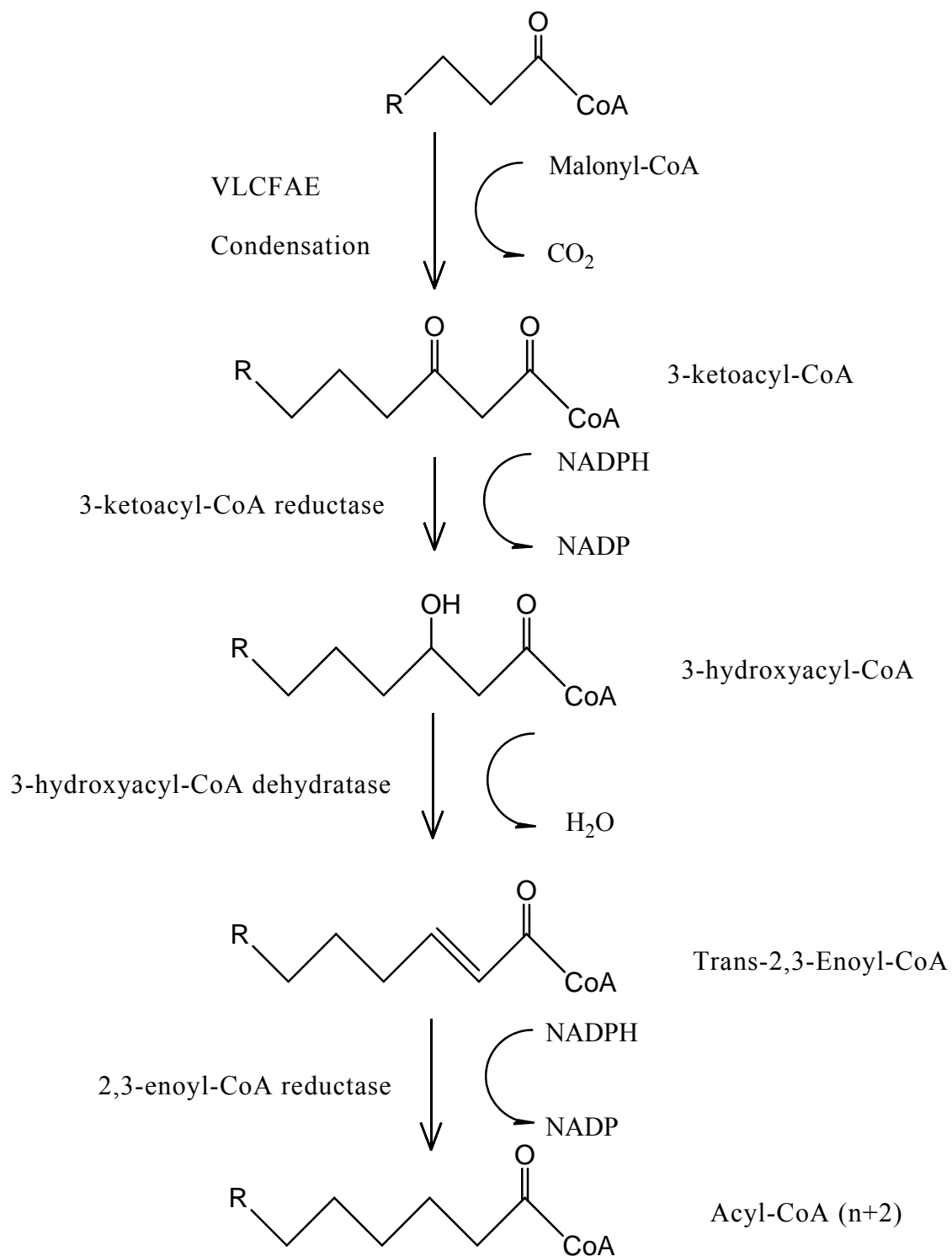


Fig. 1 Reaction scheme for elongation of carbon chain of fatty acids in plants.

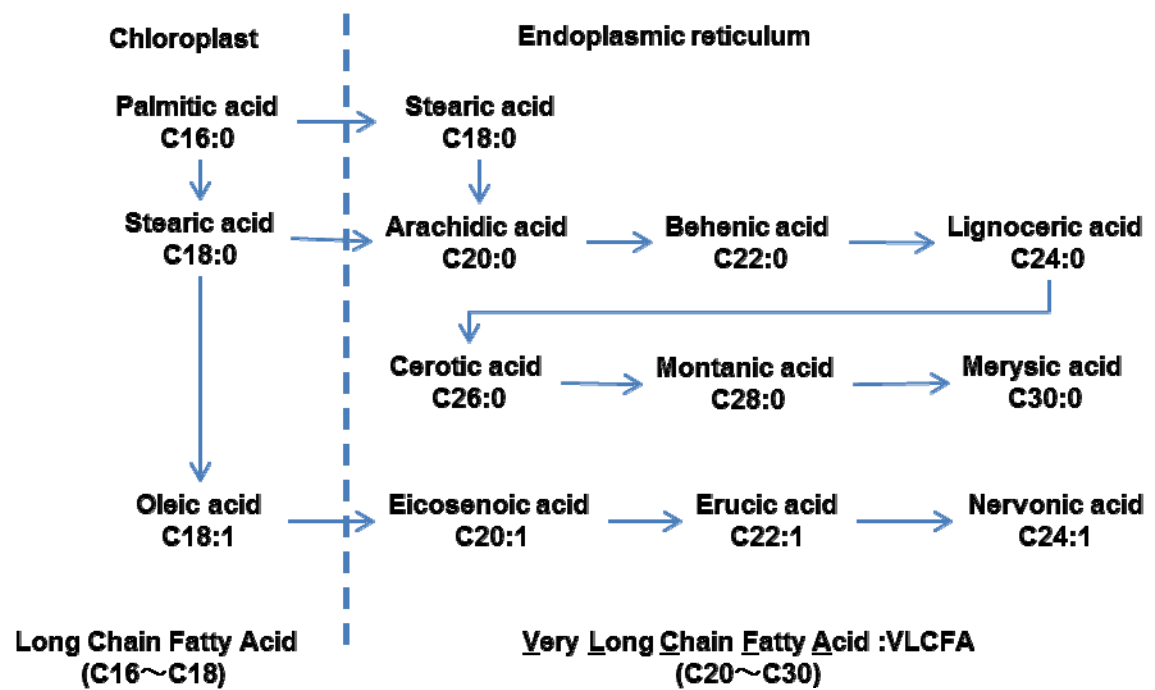
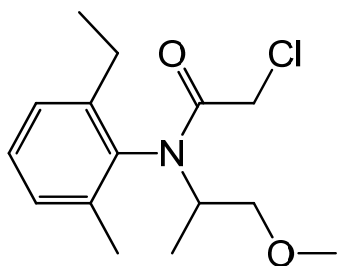
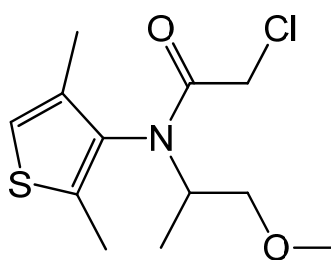


Fig. 2 Biosynthetic pathway of very-long-chain fatty acids in plants.

1. Chloroacetamide

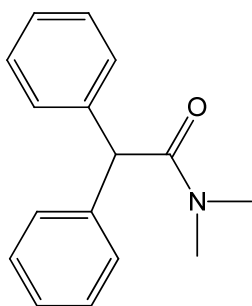


metolachlor



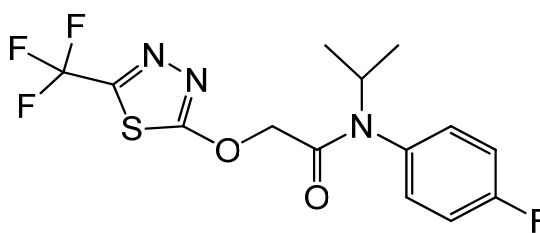
dimethenamid

2. Acetamide



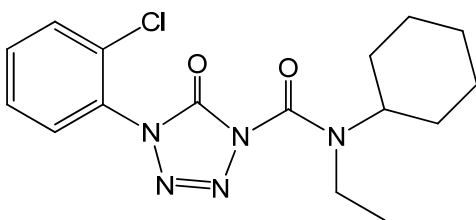
diphenamid

3. Oxyacetamide



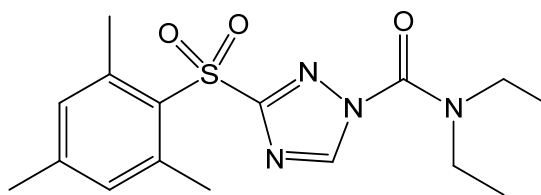
fulfenacet

4. Tetrazolinone



fentrazamide

5. Others



cafenstrol

Fig. 3 Herbicide structures classified in K3 group (mode of action site very-long-chain fatty acid elongase)

第1章 ピロキサスルホンの除草効果と殺草スペクトラム

新規除草剤ピロキサスルホンは、クミアイ化学工業株式会社、イハラケミカル工業株式会社が開発した超長鎖脂肪酸の生合成を阻害する除草剤であり、主に雑草の発芽から出芽前に作用して雑草を枯死に至らしめる[23,24,25]。世界中で広く使用されている超長鎖脂肪酸の生合成阻害作用を有する畑作用除草剤は、除草剤として有効な除草効果、残効期間を得るために一般的に 1000 g から 3000 g a.i./ha という薬量が必要であるが、ピロキサスルホンはおよそ 90 g から 240 g 程度の薬量で同等以上の効果を発揮する。また、VLCFAE 阻害作用を示す除草剤は、総じて発芽後生育期にある雑草に対する効果は限定的であり、生育期の雑草に直接散布して使用される茎葉処理除草剤と比べると作用が発揮される期間はごく初期に限られている。既存の VLCFAE 阻害作用を示す除草剤の多くは、イネ科雑草に対しては強い除草効果を示すが、広葉雑草に対する除草効果は草種によって異なり、十分な除草効果を示さない場合も多い。この作用機序を有する除草剤の作用症状として、生長点の生育が阻害され、子葉鞘もしくは生長点から本葉が展開せず、多くの場合に濃緑となって生育が停止する。イネ科雑草に対して強い効果を示す VLCFAE 阻害作用を示す除草剤は、トウモロコシ、イネなどのイネ科作物に対して選択性を有する剤が開発され、イネ科雑草防除に主に使用されてきた。また、トウモロコシに使用される薬剤の多くは輪作で栽培されるダイズにも選択性を有しており、トウモロコシ、ダイズの輪作体系をとる地域や、イネの主要栽培地域において重要な役割をはたしてきた。

除草剤を使用することは、単に食糧供給量を確保するだけでなく、限られた農耕地で可能な限り生産性を高めることで、耕地面積の拡大による森

林伐採などの環境破壊を抑えるとともに、農業を経済的に産業として成り立たせ、土壌流亡の防止や水資源の有効活用にも貢献している。したがって、除草剤が最も効力を発揮する処理方法、処理時期、効果の高い草種などをよく理解し、最大限の効果をj得ることは、環境負荷を減らしながら効率よく食糧生産に貢献することにつながる。

そこで、本章では VLCFA 合成阻害剤としてイソキサゾリン骨格という新規な化学構造を有するピロピロキサスルホンの除草効果とその特徴を明らかにする。また、ピロキサスルホンの処理時期別の除草効果、有効な除草効果を示す雑草種を明らかにし、同じ作用機序を示す他の除草剤との違いについて考察する。また、作物安全性としてトウモロコシ、ダイズに対する薬害を既存薬剤と比較し、圃場条件下での除草効果と薬害について明らかにすることで、この除草剤を有効に使う方法について提示する。

材料と方法

ピロキサスルホンおよび対照薬剤

ピロキサスルホン(3-[5-(difluoromethoxy)-1-methyl-3-(trifluoromethyl)pyrazol-4-ylmethylsulfonyl]-4,5-dihydro-5,5-dimethyl-1,2-oxazole)は、工業的合成法によってイハラケミカル工業株式会社で合成され、試験に使用した(Fig. 4)。ピロキサスルホンは固体結晶であり、蒸気圧 2.4×10^{-6} Pa (25 °C)、水溶解度 3.49 mg/L (20 °C)、また pH 5.7 and 9 (25 °C, 15 days)の条件下で安定な化合物である。ピロキサスルホンの製剤は、クミアイ化学工業株式会社(以下、クミアイ化学)の製剤技術研究所で 10%水和剤:wettable powder (WP)、42.7%フロアブル:suspension concentrate (SC)、60%顆粒水和剤:water dispersible granule (WDG)、85%顆粒水和剤:WDG がそれぞれ調整された。また、対照剤として使用したメトラクロール(デュアール乳剤, 45%

乳剤 (EC) 、シンジェンタジャパン)、*S*-メトラクロール (Dual II Magnum, 91.6% EC, Syngenta Crop Protection, NC, USA) 、ジメテナミド-P (Outlook, 74%EC, BASF Corporation, NC, USA)およびアラクロール (ラッソー乳剤、45%EC, 日産化学工業株式会社) はそれぞれ購入し、使用した。

1-1 寒天培地上での除草活性

材料と方法

ピロキサスルホンが直接雑草に作用した場合の効果を検討するため、土壌を介さない条件でのピロキサスルホンの除草活性について検討した。検定対象雑草として静岡県菊川市のクミアイ化学生物科学研究所内圃場にて採取したイヌビエ (*Echinochloa crus-galli* (L.) Beauv.: ECHCG) を使用し、対照剤としてピロキサスルホンと同じ作用機序に分類される *S*-メトラクロールを使用した。培地は 1 L の蒸留水に 8 g の粉末寒天と 0.9 g の Murashige & Skoog 混合塩類を溶解して調整した。調整した培地は、棒ビン (直径 2.5 cm、高さ 10 cm) に 20 ml ずつ注ぎ、各除草剤は培地が温かいうちに培地全量に対して 0.004、0.008、0.016、0.032、0.063、0.125 ppm となるように水 0.5ml に希釈し、添加してよく攪拌した。培地を室温で固化させた後、あらかじめ 0.5%次亜塩素酸ナトリウム溶液で消毒し、25 °C で 2 日間水に浸けてインキュベーションしたイヌビエ種子を 5 粒ずつ、深さ 1 cm にピンセットで播種し、12 時間明暗条件の蛍光灯下で 7 日間静置した後、生育阻害について調査した。調査は、観察によって 0 (無処理と同等) から 100 (完全枯死) の指数で評価し、試験は 3 反復で 2 回実施した。得られた各除草剤のイヌビエに対する除草効果データは、プロビットによって解析し、薬量反応曲線は Seefeldt らによって述べられた方法で処理し[26]、式 1 で示す 4 パラメーターLog-Logistic モデルによって処理した。

$$Y=C+ [(D-C)/ 1+(X/ED_{50})^b] \quad (\text{式 1})$$

ここで Y は除草活性、C は最低値、D は最高値、b は傾き、ED₅₀ は 50%の生育抑制を示す濃度、X は除草剤の濃度である。被験化合物は 50%除草効果、90%除草効果を示す除草剤の濃度は回帰式にて計算した。

結果と考察

非線形回帰によって得られたイヌビエに対する 90%生育阻害濃度(ED₉₀)はピロキサスルホンが 0.019 ppm、S-メトラクロールは 0.056 ppm、50%生育阻害濃度 (ED₅₀) はピロキサスルホンが 0.009 ppm、S-メトラクロールが 0.018 ppm であった (Table 1, Fig. 7)。両除草剤の ED₉₀ の差は約 3 倍、50%生育阻害濃度では約 2 倍の差があり、土壌や様々な環境要因を排除し、直接雑草種子に対する除草活性としては 2~3 倍の差があることが判明した。作物によっても異なるが、トウモロコシの場合の両除草剤の実際の使用薬量は、ピロキサスルホンが 90 から 240 g a.i./ha、S-メトラクロールが 1070 から 2140 g a.i./ha と約 8~10 倍程度の差があるが、化合物そのものの基礎活性差はそれよりも小さく、化合物そのものの生理活性だけでなく、土壌との相互作用などの要因が実際の薬量に大きく影響していることが示唆された。

また、ピロキサスルホンと S-メトラクロールでは、根部の抑制に差が認められた (Figs. 5, 6)。S-メトラクロールでは、0.125、0.063 ppm の濃度では生長点が強く抑制されても、根部の生育量にはそれほど大きな影響を与えていない。一方、ピロキサスルホンの 0.063、0.032 ppm では生長点が強く抑制されるのと同時に根部も強く抑制されていることがわかる。これらから、ピロキサスルホンの主たる作用機序はこれまで明らかになっている通り VLCFA 合成阻害と考えられるが、副次的に根端細胞の分裂を阻害し

ている可能性があると考えられた。また、HRACでK1に分類されている微小管重合阻害作用を示すジニトロアニリン骨格の除草剤ペンディメタリンは、同様の試験を実施すると生長点と根部が同時に強く阻害されると同時に、幼芽部の基部や根端細胞部分が膨れるような作用を示す（Fig. 6）。ピロキサスルホンの作用症状は、根部に対して抑制が強く、細胞分裂が阻害されているが、K1除草剤のように膨れるような作用症状は示さないことから、K1とは異なる作用機序によって根部に抑制を示していると考えられた。この症状については、十分な分子生物学的な証拠は得られていないが、こういった効果を有することが事実であれば、複数のターゲットを有していることになり、作用点変異による抵抗性雑草発達のリスクはさらに低いものになると考えられた。

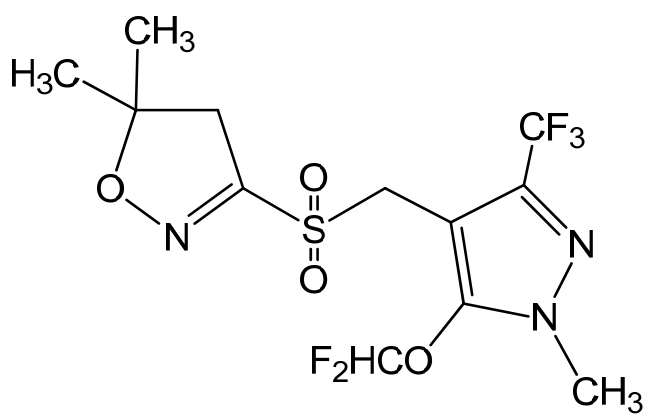


Fig. 4 Chemical structure of pyroxasulfone

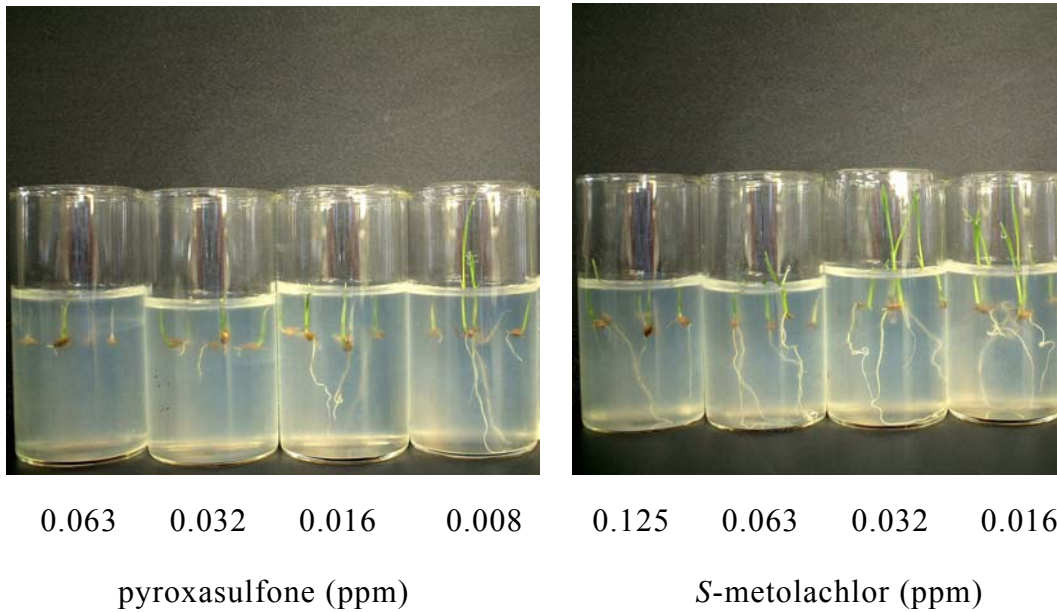


Fig. 5 The efficacy of pyroxasulfone and *S*-metolachlor on seedling growth of ECHCG in agar medium. Herbicides applied in worm ager medium at designed concentration. ECHCG seeds were planted at 1cm depth, and the photo were taken at 7 days after application.

ECHCG: *Echinochloa crus-galli* (L.) Beauv.



pyroxasulfone 0.032 ppm

S-metolachlor 0.063 ppm

pendimethalin 0.063ppm



pyroxasulfone 0.032 ppm

S-metolachlor 0.063 ppm

Pendimethalin 0.063 ppm

Fig. 6

The ECHCG growth inhibition symptoms of pyroxasulfone, S-metolachlor and pendimethalin. ECHCG seeds were planted in ager medium with chemicals at 0.032, 0.063, 0.063 ppm, respectively. ECHCG plant picked up from ager medium carefully at 7 days after application, and pictures were taken immediately before plants were getting to wilt.

ECHCG: *Echinochloa crus-galli* (L.) Beauv.

Table 1. Parameter for log-logistic model on the growth inhibition of pyroxasulfone and metolachlor for ECHCG control in agar medium

| Chemicals | C | D | ED ₅₀ | b | ED ₉₀ |
|---------------|--------|-------|------------------|------|------------------|
| Pyroxasulfone | 99.994 | 0.360 | 0.009 | 3.74 | 0.019 |
| S-metolachlor | 99.631 | 0.124 | 0.019 | 2.97 | 0.056 |

C=lower limit, D= upper limit, b= slope, ED₅₀=concentration of 50% growth inhibition, ED₉₀=concentration of 90% growth inhibition

ECHCG: *Echinochloa crus-galli* (L.) Beauv.

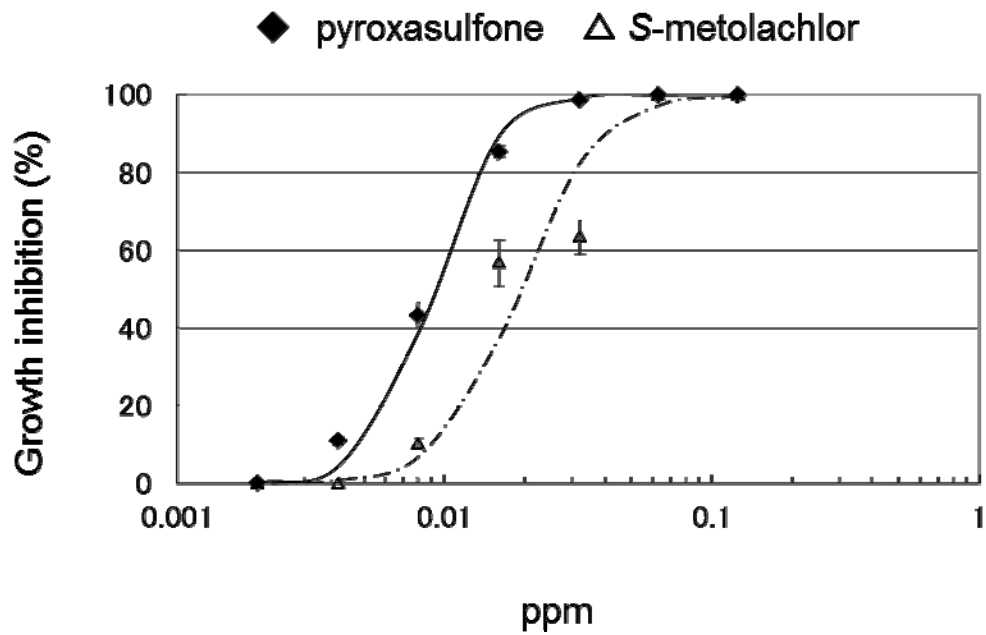


Fig. 7 Effects of chemicals on the growth of ECHCG seedlings on agar medium. The vertical axis represents the growth inhibition of ECHCG, and the horizontal axis represents herbicide concentration (ppm). Growth inhibition was visually assessed 7 days after planting using a scale of 0 to 100, with 0 representing no efficacy and 100 representing complete weed control. The experimental design was a randomized complete block with three replications repeated two times. The error bars represent the standard error of each data point.

1-2. 温室内ポット試験での処理時期別の除草効果

材料と方法

処理時期別の除草効果を検討するため、クミアイ化学生物科学研究所内のガラス温室で試験を実施した。除草効果比較は、対象植物としてイヌビエを供試し、ピロキサスルホンと S-メトラクロールの効果を比較した。11×11×11 cmのプラスチックコンテナに loam 土壌（有機物含量：2.7%、pH 5.9）を充填し、およそ 40 粒のイヌビエ種子を播種深度 1 cm で播種した。茎葉処理試験では同様に作成したコンテナのイヌビエが 2 葉期になるまで温室内で育成した。イヌビエは生育するにしたがって、生育の揃った個体を残していき、2 葉に生育したイヌビエを 1 コンテナあたり 5 本として試験に供試した。各除草剤は、土壌処理の場合は雑草を播種した後、底面から灌水して 1 日後に土壌表面に薬剤を処理した。また、茎葉処理では散布液の最終濃度で 0.1% になるよう、非イオン系展着剤（サーファクタント WK：丸和バイオケミカル製）を添加し、マイクロスプレーヤーを使用してコンテナの全面に均一に散布した。除草剤の薬量は、ピロキサスルホンは 1、3.9、15.6、62.5 および 250 g a.i./ha、S-メトラクロールは 8.4、33.3、133.8、535、2140 g a.i./ha となるように水で希釈し、500 L/ha の水量で実施した。灌水は、土壌処理したコンテナには処理直後、茎葉処理したコンテナには 2 日後に 5 mm 以下の水量をスプレーヤーによって上方から与え、その後は底面からの灌水のみを与えて管理した。除草効果は処理 30 日後に観察によって 0（無処理と同等）から 100（完全枯死）のスケールで評価し、1-1 と同様の手法で（式 1）の非線形回帰解析によってイヌビエに対する除草剤の効果を判定した。試験は 3 反復で実施した。

結果と考察

本試験条件における土壌処理でのピロキサスルホンと *S*-メトラクロールの 90%生育阻害に必要な薬量 (ED₉₀) は、それぞれ 26.7 g a.i./ha および 127.5 g a.i./ha であった。また、イヌビエ 2 葉期の茎葉処理での ED₉₀ は、ピロキサスルホンが 174.5 g a.i./ha、*S*-メトラクロールは 1144 g a.i./ha であった (Table 2、Fig. 8)。土壌処理におけるピロキサスルホンの ED₉₀ は、*S*-メトラクロールの約 1/5、茎葉処理では 1/6.5 であった。また、ピロキサスルホンは既存の K3 除草剤と同様に、茎葉処理での効果は土壌処理よりも低く、ED₉₀ を得るのに多くの薬量を必要とするが、ピロキサスルホンの土壌処理と茎葉処理の薬量差は約 6 倍、*S*-メトラクロールが約 9 倍であり、ピロキサスルホンは土壌処理と茎葉処理の間での薬量間差は小さかった。クミアイ化学社内試験 (データ未掲載) によって、土壌を変えて茎葉処理試験を実施すると、sandy loam ではより低薬量で効果を示すが、clay 土壌ではより多くの薬量が必要であることが判明している。茎葉処理の場合、薬剤は直接雑草の葉に散布され、化合物が葉面などから直接吸収され、植物体内を移行すれば、除草効果を発揮する。しかしながら、土壌によって茎葉処理の除草効果が異なることは、散布された薬剤が茎葉基部もしくは土壌を介して根部から吸収されることでも効果を発揮していると考えられた。また、それを確かめるために、ピロキサスルホン 125 g a.i./ha を終濃度 0.1% の非イオン系展着剤を加えた水に希釈して、2 葉期のイヌビエに直接塗布したが効果を示さず、茎葉処理でのイネ科植物に対する効果は葉に直接散布された薬剤を吸収して効果を発揮するのではなく、土壌に落ちた薬剤が植物体の基部もしくは根部を通じて吸収され効果を発揮していると考えられた。

本試験から土壌を介さない条件での除草活性の差は約 3 倍程度であり、

土壌を介した場合には土壌に対する土壌吸着性などが影響し、差が大きくなったと考えられた。土壌処理と茎葉処理との除草効果の差から考えれば、これら両化合物ともに茎葉処理で使用するよりも土壌処理で使用する方が適しており、効率的に除草剤の効果を得るには雑草の感受性が高い土壌処理で使用することが重要と考えられた。一方では、本試験で使用した loam 土壌での実用薬量はピロキサスルホンが約 150 g a.i./ha、S-メトラクロールが 1400 g a.i./ha であり、条件によっては 2 葉期程度のイヌビエであれば、防除できる可能性はあるが、圃場での雑草の発生は斉一ではないこと、土壌条件や作物残渣などによって、十分に効果を発揮しない可能性が考えられた。したがって、ピロキサスルホンを圃場で使用する場合には、雑草発生前での使用がもっとも有効であると考えられた。また、播種後の降雨や作業スケジュールの問題から作物播種の直後に除草剤が散布できない場合においても、発芽始めの条件で散布が可能であれば、十分に効果を発揮する可能性が考えられた。

Table 2. Parameter for log-logistic model on the efficacy of pyroxasulfone and metolachlor for ECHCG control in loam soil

| Chemicals | | C | D | ED ₅₀ | b | ED ₉₀ |
|---------------|------|--------|--------|------------------|------|------------------|
| Pyroxasulfone | Pre | 99.212 | 0.837 | 9.2 | 2.13 | 26.7 |
| | Post | 96.223 | 0.027 | 32.1 | 2.35 | 174.5 |
| S-metolachlor | Pre | 99.995 | 0.508 | 57.2 | 2.75 | 127.5 |
| | Post | 95.761 | 0.0281 | 373.0 | 2.15 | 1144.1 |

C=lower limit, D= upper limit, b= slope, ED₅₀=concentration of 50% growth inhibition, ED₉₀=concentration of 90% growth inhibition

ECHCG: *Echinochloa crus-galli* (L.) Beauv.

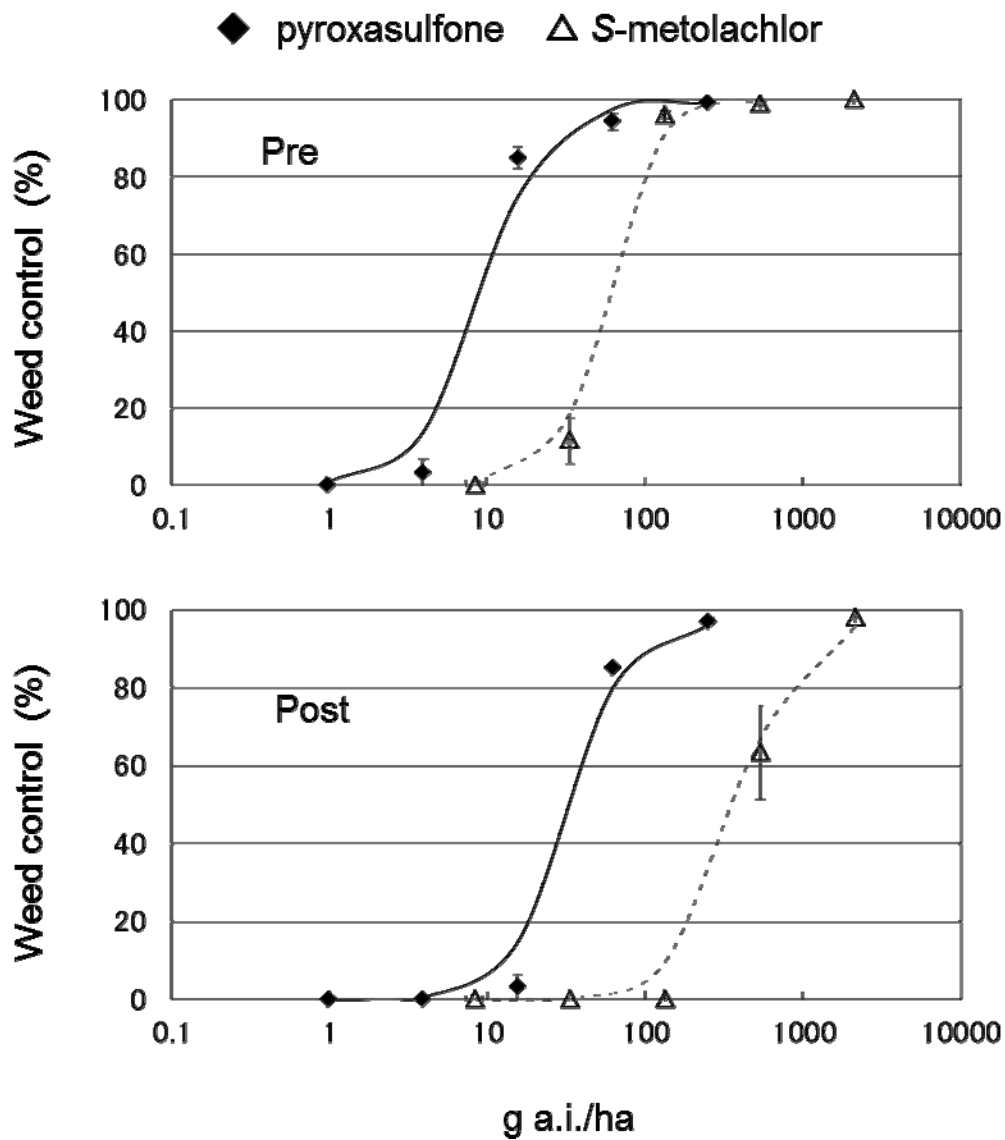


Fig. 8 Dose-response curves of pyroxasulfone and *S*-metolachlor applied preemergence and postemergence to ECHCG in a loam soil. Weed control was visually assessed 28 days after planting using a scale of 0 to 100, with 0 representing no efficacy and 100 representing complete weed control. The error bars represent the standard error of each data point. There were three replicate containers for each herbicide treatment and the untreated check.

ECHCG: *Echinochloa crus-galli* (L.) Beauv.

1-3. 温室内ポット試験における殺草スペクトラム

材料と方法

試験は、クミアイ化学工業株式会社生物科学研究所内のガラス温室で実施した。雑草は、イヌビエ、エノコログサ (*Setaria viridis* (L.) Beauv.: SETVI)、アキノエノコログサ (*Setaria faberi* Herrm.: SETFA)、キンエノコログサ (*Setaria pumila* (Poir.) Roemer & J.A. Schultes: SETLU)、メリケンクキビ (*Urochloa platyphylla* (Nash) R.D. Webster: BRAPP)、セイバンモロコシ (*Sorghum halepense* (L.) Pers.: SORHA)、オニメヒシバ (*Digitaria sanguinalis* (L.) Scop.: DIGSA)、オオクサキビ (*Panicum dichotomiflorum* Michx.: PANDI)、オヒシバ (*Eleusine indica* (L.) Gaerth.: ELEIN)、ナルコビエ (*Eriochloa villosa* (Thunb.) Kunth: ERIVI)、キハマスゲ (*Cyperus esculentus* L.: CYPES)、イチビ (*Abutilon theophrasti* Medik.: ABUTH)、アオゲイトウ (*Amaranthus retroflexus* L.: AMARE)、シロザ (*Chenopodium album* L.: CHEAL)、イヌホウズキ (*Solanum nigrum* L.: SORNI)、オオイヌタデ (*Polygonum lapathifolium* L.: POLLN.)、アメリカアサガオ (*Ipomoea hederacea* Jacq.: IPOHE) を試験に供試した。オオクサキビ、セイバンモロコシ、ナルコビエ、オニメヒシバ、アメリカアサガオについては外部から入手し、それ以外についてはクミアイ化学生物科学研究所にて採取した種子を使用した。供試雑草種子もしくは塊茎は、1 cm の深度で loam 土壌 (2.7% OM、pH 5.9) を充てんした 1200 cm² のプラスチックコンテナにイネ科雑草とキハマスゲを、380 cm² のプラスチックコンテナに広葉雑草を播種した。コンテナは土壌水分が最大容水量の約 60% 程度になるように水を底面から灌水して 1 日静置した。ピロキサスルホンは、8、16、32、63 および 125 g a.i./ha の薬量を 500 L/ha の散布水量となるように希釈してマイクロス

プレイヤーでコンテナ全面に処理された。処理後にコンテナ上方からミストプレイヤーで水を5 mm程度与え、それ以降は底面からの灌水のみで給水させた。また、各コンテナはそれぞれ2反復で処理された。除草効果は、1-1と同様の方法で処理28日後に0から100のスケールで観察調査を実施した。試験は2反復で2回実施した。

結果と考察

ピロキサスルホンの感受性を確認するため、温室内で試験を実施した。その結果、ピロキサスルホンは、イヌビエ、エノコログサ、アキノエノコログサ、キンエノコログサ、オニメヒシバ、オオクサキビ、オヒシバに16 g a.i./haの薬量で90%以上の除草効果を示した (Table 3)。メリケンクキビ、セイバンモロコシ、ナルコビエ、アオゲイトウには、32 g a.i./haで、またキハマスゲ、イチビ、シロザ、イヌハウズキ、オオイヌタデ、アメリカアサガオには63から125 g a.i./haの薬量で90%以上の除草効果を示した。この試験結果から、ピロキサスルホンはイヌビエやエノコログサといったイネ科の一年生雑草に最も高い効果を示し、メリケンクキビなどに対しては、やや多くの薬量が必要であった。広葉雑草に対して90%以上の除草効果を得るには、イネ科雑草よりも多くの薬量が必要であったが、中ではアオゲイトウに対して高い除草効果を示した。

通常、温室内試験では、雑草が一定の深度から斉一に発生すること、屋外よりも水分量が多いこと、土壌表面が細かく雑草と安定的に接触することなどから、屋外の実使用場面よりも高い除草効果を得ることができる。したがって、温室内試験で実用薬量に近い63から125 g a.i./haで90%以上の除草効果が得られる草種については、実場面で起こる環境要因の影響によって十分な除草効果が得られないことが考えられる。試験結果より、イ

ネ科雑草の中ではメリケンクキビ、セイバンモロコシ、ナルコビエなどに対する効果はイヌビエなどと比較するとやや弱く、圃場ではより効きにくい草種であることが考えられ、これらの雑草が優占する条件では効果が弱くなる可能性が考えられた。また、広葉雑草ではアオゲイトウに対しては比較的安定した効果が期待できると考えられるが、イヌホウズキ、シロザ、オオイヌタデ、イチビ、キハマスゲなどについては、圃場条件などによって効果が変動する可能性が考えられ、先のイネ科雑草や広葉雑草が多く発生する圃場においては、それらの雑草に効果を有する適切な薬剤を混合する、もしくは時期を逸しないよう茎葉処理除草剤にて防除する必要があると考えられた。実際の圃場での除草効果については、後の試験で検討しており、この差についても考察する。

Table 3. Herbicidal efficacy of pyroxasulfone against upland weeds using a preemergence application.

| Weeds | | pyroxasulfone (g a.i./ha) | | | | |
|--------------------------------|-------|---------------------------|------|------|------|------|
| | | 8 | 16 | 32 | 63 | 125 |
| <i>Echinochloa crus-galli</i> | ECHCG | 87.5 | 96.5 | 99 | 100 | 100 |
| <i>Setaria viridis</i> | SETVI | 88.5 | 94 | 99 | 100 | 100 |
| <i>Setaria faberi</i> | SETFA | 85 | 90 | 98 | 100 | 100 |
| <i>Setaria pumila</i> | SETLU | 87.5 | 98 | 100 | 100 | 100 |
| <i>Urochloa platyphylla</i> | BRAPP | 80 | 85 | 98 | 99 | 100 |
| <i>Sorghum halepense</i> | SORHA | 80 | 85 | 98 | 100 | 100 |
| <i>Digitaria sanguinalis</i> | DIGSA | 90 | 97.5 | 100 | 100 | 100 |
| <i>Panicum dichotomiflorum</i> | PANDI | 90 | 98 | 100 | 100 | 100 |
| <i>Eleusine indica</i> | ELEIN | 90 | 95 | 100 | 100 | 100 |
| <i>Eriochloa villosa</i> | ERBVI | 65 | 84.3 | 97.6 | 96.6 | 100 |
| <i>Cyperus esculentus</i> | CYPES | 10 | 40 | 82.5 | 97.5 | 100 |
| <i>Abutilon theophrasti</i> | ABUTH | 10 | 35 | 77.5 | 87.5 | 98 |
| <i>Amaranthus retroflexus</i> | AMARE | 70 | 85 | 95 | 99 | 100 |
| <i>Chenopodium album</i> | CHEAL | 53 | 65 | 75 | 96.7 | 100 |
| <i>Solanum nigrum</i> | SOLNI | 67.5 | 77.5 | 85 | 90 | 92.5 |
| <i>Polygonum lapathifolium</i> | POLLN | 55 | 81.6 | 75 | 92.6 | 96.6 |
| <i>Ipomoea hederacea</i> | IPOHE | 30 | 45 | 53.3 | 63.3 | 91.6 |

The trial was conducted in glass greenhouse. Tested weeds were planted at 1cm depth, and visual assessment was conducted at 28 DAA using a scale of 0 (no efficacy) to 100 (complete weed control). There were two replicate containers for each herbicide treatment, and the experiment was repeated two times.

1-4. 温室内ポット試験における作物安全性

材料と方法

ピロキサスルホンのトウモロコシ、ダイズに対する薬害試験を、クミアイ化学生物科学研究所内のガラス温室で実施した。トウモロコシ (*Zea mays* cv. Pioneer 33G26: ZEAMX) の種子は、loam 土壌 (2.7% OM、pH 5.9) を充てんしたプラスチックポット (11×11×11 cm) に、ダイズ (*Glycine max* cv. フクユタカ: GLXMA) は、sandy loam 土壌 (0.9% OM、pH 6.2) を充てんしたプラスチックコンテナに播種深度 3 cm で播種した。プラスチックコンテナは、土壌水分が最大容水量の約 60% 程度になるように給水した。コンテナは一晩静置した後、ピロキサスルホンは 125、250、500 g a.i./ha、S-メトラクロールは 1070、2140、4280 g a.i./ha となるように水に希釈し、プラスチックコンテナの全面にマイクロスプレーヤーを使用して散布水量 500 L/ha で散布した。処理後直ちにコンテナの上方から 5 mm 以下の降雨を与え、その後は底面から水を灌水して温室内で育成した。試験は 3 反復で実施し、薬害は処理 11、21、28 日後に 0 (無処理と同等) から 100 (完全枯死) の基準で調査を実施した。

結果と考察

ピロキサスルホンの薬害を、トウモロコシ、ダイズの生産に広く使用されている S-メトラクロールと比較した (Fig. 9)。トウモロコシにおいては、ピロキサスルホン 250 g a.i./ha の薬量では、5 から 10% 程度の薬害が処理 11 から 21 日後にかけて観察されたが、処理 28 日後には回復した。500 g a.i./ha では 21 日以降も薬害が続けて観察され、その状況は S-メトラクロールの 4280 g a.i./ha と同等であった。ダイズでは、ピロキサスルホンの薬

害は 11 日後に最も高かったが、すべての薬量で回復した。ピロキサスルホンのダイズに対する薬害は、S-メトラクロールよりもやや強く、回復もやや遅い傾向があった。特に 250 g a.i./ha 以上の薬量では初期の抑制がやや強く表れたが、それらは比較的速やかに回復した。

ピロキサスルホンのトウモロコシに対する薬害症状は、生育抑制と植物体がねじれるような症状を示した。この症状は、VLCFA 合成阻害の除草剤のトウモロコシに見られる薬害症状と同じであり、薬量が低い場合には作物の葉齢が進むにつれて生育抑制は回復したが、高薬量では試験期間中に十分な回復は認められなかった。コンテナでは根域が制限されることからこれ以降のトウモロコシの生育は十分ではないと考え、これ以上の試験は行わなかった。ただし、21 日後よりも 28 日後のほうが薬害は軽くなる傾向にあったことから、これ以降については薬害が回復していくものと推察され、ピロキサスルホンと S-メトラクロールの薬害の強さはほぼ同等と考えられた。ピロキサスルホンのダイズに対する薬害は、S-メトラクロールよりもやや強く表れた。ダイズでは砂壤土を使用したこともあり、薬量としてはやや高いことも影響したと考えられた。症状としては生育抑制が主で節間が短くなる傾向にあり、葉がやや椀状になるものが一部の個体で認められた。ダイズではピロキサスルホンの薬害は、S-メトラクロールよりも初期薬害が強く表れたが、いずれも最大で 15%程度であり、温室内試験の条件であることを考えれば、十分な選択性を有していると考えられた。また、ダイズについては初期生育の遅れは速やかに回復した。これらの薬害の症状は、VLCFA 合成阻害作用を示す S-メトラクロールと同様で、一時的なものであると考えられた。土壌種や土壌水分が多いなどの条件下での薬害については、十分な検証が必要であるが、本試験条件ではトウモロコシやダイズに対する安全性は、既存の薬剤と同程度であると考えられた。

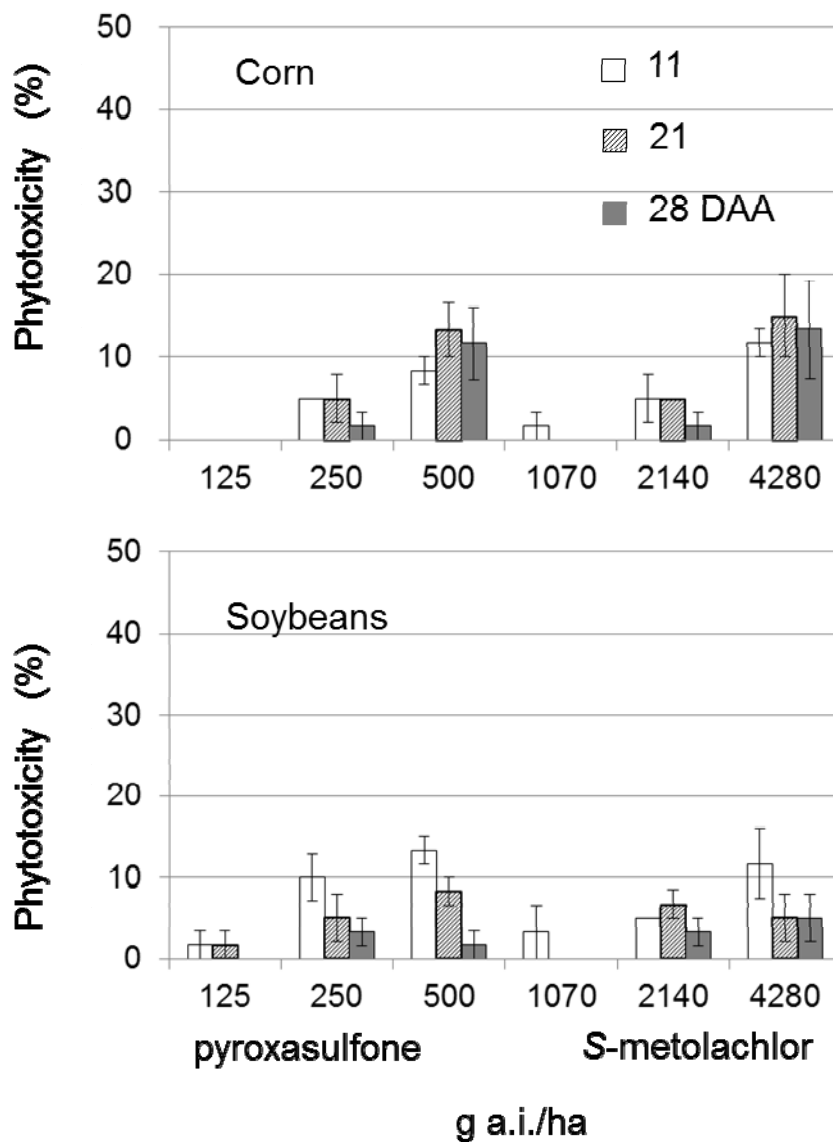


Fig. 9 Phytotoxicity of pyroxasulfone and *S*-metolachlor applied preemergence to corn and soybeans. Weed control was visually assessed using a scale of 0 to 100, with 0 representing no phytotoxicity and 100 representing complete plant death. The error bars represent the standard error for each data point. There were three replicate containers for each herbicide treatment and the untreated check.

DAA: days after application

1-5. 圃場での除草効果

材料と方法

ピロキサスルホンの圃場における除草効果試験は、K-I Chemical U.S.A. Inc. の Mississippi Research Station (アメリカ ミシシッピ州リーランド) にて実施した。土壌は、silty clay (2.2% OM, pH 6.8)であった。イヌビエ、エノコログサ、イチビの種子は試験場所に散播し、ハローおよびパッカーによって土壌と混和、整地した。トウモロコシ(Dyna-Gro 57K66)は、3.5 cmの播種深度で 30 cm あたり 2.5 粒の種子を 4 月 12 日に播種した。試験場所は、オオホナガアオゲイトウ、アオゲイトウおよびアメリカツノクサネム (*Hemp sesbania*: SEBEX) が自然発生し、除草効果の評価に十分な発生量であった。試験区は 2×4 m、完全無作為で試験区を配置し、1 処理につき 3 反復で試験を実施した。各除草剤は、トウモロコシを播種した後、直ちに散布水量 200 L/ha、散布圧 276 KPa、散布水量 200 L/ha で散布した。散布は、炭酸ガスを使用したバックパックスプレーヤーを使用し、ノズルは TeejetAI8002 を使用した。除草効果と薬害は、処理 10、30、41 日後に 0 から 100 の指数で観察調査によって評価した。雑草のうち、オオホナガアオゲイトウ、アオゲイトウは幼植物での判別が困難であったため、アオビユ類 (*Amaranthus* species: AMASS) として評価した。除草効果と薬害のデータは、分散分析 (ANOVA) によって検定し、Student-Newman-Keuls (5% 信頼限界) によって除草剤処理区の効果比較を行った。試験区はランダムブロックとし、3 反復で実施された。

結果と考察

ピロキサスルホンの圃場での除草効果を、S-メトラクロールと比較した。

S-メトラクロールの薬量は、この土壌での推奨薬量である 2140 g a.i./ha とし、ピロキサスルホンの薬量は、アメリカ合衆国内の様々な場所で実施した屋外での薬量反応試験の結果から、250 g a.i./ha とした。圃場は、Minimum Tillage によって耕起し、雑草種子は土壌表面に手回し散粒機によって播いた後、表層 5 cm 程度を混和して整地した。土壌表面はスムーズな状態であり、ピロキサスルホンはイヌビエやエノコログサに対して優れた効果を示し、イチビやアオゲイトウ類に対して S-メトラクロールよりも高い除草効果を示した。いずれの除草剤もアメリカツノクサネムに対しては十分な除草効果を示さなかった (Table 4)。

有意差検定結果では、トウモロコシに対する薬害、イヌビエ、エノコログサでは両化合物間に有意差は認められなかった。イチビに対する効果はピロキサスルホンの 250 g a.i./ha > 125 g a.i./ha > S-メトラクロール 2140 g a.i./ha > 1070 g a.i./ha の順となり、ピロキサスルホンの効果が明らかに有意であった。アオゲイトウでは、ピロキサスルホンの 250、125 g a.i./ha、S-メトラクロール 2140 g a.i./ha では差が認められず、S-メトラクロールの 1070 g a.i./ha もわずかに劣る程度で、両化合物ともに十分な効果を有していると考えられた。一方、アメリカツノクサネムに対して、ピロキサスルホンは S-メトラクロールに対して低いレベルでの有意差は認められたが、実用的にはほとんど効果を示さなかった。

アメリカツノクサネムが発生する圃場では、広葉雑草に効果の高い薬剤を混用、もしくは混合剤を使用するか、茎葉処理除草剤によって防除する必要がある。アメリカツノクサネムでは除草剤抵抗性が報告されておらず、光合成阻害剤、アセト乳酸合成酵素阻害剤、GMO 作物であれば非選択性除草剤 (グリホセート、グルホシネート) などの効果の高い除草剤があり、作物に応じてこれらの作用性を有する除草剤を選択し、使用すれば効果的

に防除可能である。また、イチビについては、アメリカを中心に光合成阻害剤に対する抵抗性雑草が報告されているが、茎葉処理除草剤としてプロトポルフィリノーゲン酸化酵素阻害剤などで有効な除草剤があり、これらが繁茂する場合には選択的に防除する手段として有効である。

試験結果より、ピロキサスルホンは、広く使用されている S-メトラクロールよりもアオゲイトウ類やイチビに対して効果が高く、特にイチビに対しては明確な効果差が認められた。温室内試験ではイチビに対して 63 g a.i./ha で 87.5%、32 g a.i./ha で 77.5%の効果であり、土壌や土壌水分が異なるため一概には言えないが、この圃場試験の結果では温室内と屋外では 4 倍程度の効果差があるものと推察された。温室内外での効果差をそのまま当てはめたとすると、1-3 の温室内ポット試験による殺草スペクトラム試験において、32 g a.i./ha で ED₉₀ が得られない雑草種(キハマスゲ、シロザ、イヌホウズキ、オオイヌタデ、アメリカアサガオ) については、ピロキサスルホンのみでは十分な効果が得られない可能性があり、これらの草種が発生する圃場ではあらかじめ防除する手段を考慮に入れて、栽培する作物や除草剤を選択し、雑草管理プログラムを組み立てることが必要となる。

Table 4. Weed control and phytotoxicity of pyroxasulfone and *S*-metolachlor applied preemergence in corn. (Field trial)

| Chemicals | g a.i. | | | | | | | |
|-----------------------|--------|-------|-------|--------|----------|---------|---------|--|
| | /ha | ZEAMX | ECHCG | SETVI | ABUTH | AMASS | SEBEX | |
| pyroxasulfone | 125 | 0 a | 100 a | 99.7 a | 71.7 abc | 91.7 a | 20 bcd | |
| | 250 | 0 a | 100 a | 100 a | 88.3 a | 97.3 a | 35 a-d | |
| <i>S</i> -metolachlor | 1070 | 0 a | 100 a | 99 a | 41.7 c | 86.7 ab | 3.3 d | |
| | 2140 | 0 a | 100 a | 100 a | 50 bc | 98.7 a | 13.3 cd | |

Soil texture was silty clay (2.2% OM, pH 6.8). Weeds seeds were spread and incorporated in the plot area. SEBEX was indigenousness weed. Test plots arranged in a randomized complete block design, and replicated three times. Visual assessment was conducted at 41 days after application using a scale of 0 to 100, with 0 representing no efficacy or no phytotoxicity, and 100 representing complete weed control or plant death. Means followed by the same letter are not significantly different at P=0.05.

ZEAMX: *Zea mays* cv. Pioneer 33G26

ECHCG: *Echinochloa crus-galli* (L.) Beauv.

SETVI: *Setaria viridis* (L.) Beauv.

ABUTH: *Abutilon theophrasti* Medik.

AMASS: *Amaranthus* species

SEBEX: *Hemp sesbania*

1-6. 考察

本章ではピロキサスルホンの除草効果について明らかにした。植物の VLCFA 合成阻害作用を有するピロキサスルホンは、同じ作用機序を示す *S*-メトラクロールと同様にイヌビエ、エノコログサなどの一年生イネ科雑草に対して低薬量で高い効果を示すことが判明した。一方、広葉雑草に対しては、*S*-メトラクロールよりも効果が高く、特にアオビユ類には高い効果を示し、イチビに対しては *S*-メトラクロールが実用的な効果を示さないのに対して、ピロキサスルホンは高い抑制効果を示すことが明らかとなった。実圃場においても同じ傾向が認められ、ピロキサスルホンはイチビに対しては実用薬量 250 g a.i./ha でも ED₉₀ を得ることはできず、環境変動によっては十分な効果が得られないことも予想された。また、圃場試験で自然発生したアメリカツノクサネムについても実用的な効果を示さないことが明らかとなり、これらの防除には有効な除草剤との組み合わせや、発生後に茎葉処理剤を散布するなどの対応が必要となると考えられた。また、ピロキサスルホンは土壌処理における除草効果は高いが、茎葉散布では限られ、雑草の発芽前と茎葉散布の間では 90%以上の除草を得るために必要な薬量の差は 6 倍以上あり、低薬量で効果的に雑草を防除するためには感受性の高い雑草の発芽時に使用することが有効であると考えられた。

本章での試験結果から、ピロキサスルホンは *S*-メトラクロールと比較して化合物そのものは 2、3 倍の活性でしかないが、温室内で土壌を介した試験、つまり土壌吸着を加味した試験では 5、6 倍の活性を示すことが明らかとなった。屋内でのポット試験では、均一な土壌表面に処理されること、十分な土壌水分条件で雑草が一定の深度から、斉一に発生してくる条件であるため、屋外よりも低薬量で除草効果が得られる。また、実場面では様々

な土壌種が存在し、土壌処理剤は雑草の発生前に土壌に散布され、一定の期間防除効果を維持する必要がある。したがって、除草剤を有効に使用するためには土壌との相互作用や除草効果の減衰に関して知見を得ることは重要であり、次章以降ではこれらについて検討する。

第2章 ピロキサスルホンの除草効果と土性との相関

土壌処理剤の多くは、土壌の種類によって必要となる薬量が異なる。除草剤は、その効果を発揮するには水に溶解した状態もしくは気層に拡散した状態で植物体に吸収されるが、化合物が土壌に散布された場合には土壌に吸脱着され、吸着の大きな土壌では除草効果を得るのにより多くの薬量が必要となる。一般的に clay を多く含む土壌では、土壌の粒子の表面積は大きくなり、化合物は鉱物に吸着されやすくなる。また、分極していない有機化合物の場合も、水素結合やファンデルワールス力が吸着の主要因となり、有機物表面に吸着される。さらに clay の多い土壌では sand の多い土壌よりも有機物が多く、除草効果を発揮するためにはより多くの薬量が必要となる[27]。

日本では、除草剤の使用薬量はほぼ固定されており、土壌の種類による薬量の幅や変動はあるが、OM 含量によって薬量を変えることはしない。簡便な薬量設定は、使用者の利便性や誤使用を防止するなどの利点があるのと同時に、除草剤の必要薬量がより少ないと考えられる sand の多い土壌では必要以上の除草剤を散布し環境に負荷を与えている可能性やそれに伴って薬害リスクが大きくなることが考えられる。また、逆に clay や有機物が多い土壌では、薬量が不足して除草効果が不十分となったり、残効期間が短くなるなどが考えられる。

一方、海外では地域、土壌種、OM 含量などで使用薬量が異なり、化合物の消長（翌年への残留リスク）などを考慮した使用量、使用方法が使用ラベルに記載されている国もある。例えば、畑作用土壌処理剤として広く使用されているペンディメタリンは、3つの土壌グループ、3つの OM 含量によって使用薬量が細かく分けられている場合がある。また、雑草種、

作物ごとに異なる薬量が設定され、使用者は実際に使用する圃場や作物に合わせて使用薬量を決定する。そのため、土壌処理除草剤の土性別の除草効果を知ることは、大枠で実圃場での必要薬量を検討する上で重要である。それと同時に、OM 含量と除草効果の関係をすることも適切に除草剤を使用する上で重要な情報となる。よって、本章ではピロキサスルホンについて、異なる土壌での除草効果を検討し、除草効果と OM との関係についても考察する。

2-1. 異なる土壌における除草効果

材料と方法

イヌビエに対するピロキサスルホンと *S*-メトラクロールの異なる土壌における除草効果試験は、クミアイ化学生物科学研究所で実施された。試験は A から F までの異なる 6 土壌(A: sandy loam, 0.7% OM, pH 6.6; B: sandy loam, 4.7% OM, pH 5.4; C: loam, 12.5% OM, pH 4.7; D: loam, 1.3% OM, pH 6.8; E: loam, 4.7% OM, pH 6.5; F: clay loam, 10.0% OM, pH 5.6)を使用した (Table. 5)。透明プラスチックカップ (60 ml) に、2 mm の篩でふるった 10 g の風乾土壌を充填した。除草剤は 2 ml の水に終濃度で 0.016~2 ppm となるように 2 ml の水に希釈し、マイクロピペットで土壌にまんべんなく滴下した。およそ 40 粒のイヌビエ種子(菊川産)を入れて土壌をよく攪拌し、トータルの水量はその土壌における飽和状態となるように添加した。プラスチックカップは 25 °C、明暗 12 時間とした蛍光灯下で育成した。試験は 3 反復で実施し、生育抑制の程度は処理 7 日後に観察調査によって 0 (無処理と同等) から 100 (完全除草) の指数で評価した。得られたデータはプロビットによって解析した。

結果と考察

異なる土壌におけるピロキサスルホンと *S*-メトラクロールの ED₉₀ を比較すると、4 から 11 倍の差が認められた (Table 5, 6)。6 種類の供試土壌で試験した結果、ピロキサスルホンの ED₉₀ と OM との相関係数は 0.51 と低い傾向にあった (Fig. 10)。C 土壌の OM 値は高いが、ピロキサスルホンはこの土壌でも明らかに高い除草効果を示したため、C 土壌を除いた相関係数を検討した結果、0.83 と比較的高い値となり、C 土壌を除いた場合

は比較的良好な関係を示すことが判明した (Fig. 11)。一方、*S*-メトラクロールでは6種の土壌における除草効果との相関係数は0.86とピロキサスルホンと比べて高く、C土壌を除いた場合には0.96となった(Figs. 12, 13)。一般的に、ピロキサスルホンを含めていくつかの除草剤について、その除草効果とOMとは関係があると報告されている [28, 29, 30]。それらの結果として、ピロキサスルホンは効果的な除草効果を得るには3% OM土壌において200から300 g a.i./haの薬量が必要であり、高いOM土壌ではより多くの薬量が必要とされている。しかしながら、Oderoらは、非常に高い有機物含量の土壌(80% OM)でピロキサスルホンを使用した結果、この土壌種での実用薬量とされている214 g a.i./haでイネ科雑草、広葉雑草を含めて十分な除草効果を示したと報告している[31]。土壌処理除草剤は主に水に溶解した状態で植物体に吸収されて除草効果を発揮するため、除草効果に土壌水分が影響する。Oderoらの試験ではイリゲーションによって土壌水分はコントロールされており、除草剤の効果が得やすい条件であったことを考慮しなければならないが、80% OMでも通常使用薬量で高い除草効果が得られたこと、また本試験結果でも有機物含量が高い土壌であっても除草効果が得られる土壌があることが判明した。土壌吸着定数(Kd)は、土壌処理除草剤の除草効果に影響し、クミアイ化学社内試験(データ未掲載)ではピロキサスルホンの場合もそれぞれの土壌におけるED₉₀は、土壌吸着と密接な関係があり、*S*-メトラクロールも同じ傾向にある。OMは土壌吸着に影響することが知られているが、主に化合物を吸着する炭素の種類としては芳香環炭素、アルキル炭素などがあり、それぞれの化合物との親和性は異なる。また、土壌粒子とくにclayとのファンデルワールス力による結合、水素結合などによっても異なる相互作用を示すと考えられる[32]。したがって、ピロキサスルホンではOMの少ない土壌では有機炭

素が薬量に及ぼす影響が比較的小さく、OMの多い土壌ではより強く大きく影響していると考えられた。これら有機炭素の種類とピロキサスルホンの相互作用や鉱物種ごとの結合に関して、また世界各国の異なる物理化学性を有する土壌におけるピロキサスルホンの除草効果については十分に検討されていないことから、今後さらなる解明が必要と考えられた。

Table 5. Soil properties for seedling growth inhibition tests of pyroxasulfone in different soils.

| | A | B | C | D | E | F |
|----------------|------|------|------|------|------|------|
| Soil texture | SL | SL | L | L | L | CL |
| clay (%) | 10.2 | 20.0 | 22.1 | 25.9 | 26.4 | 27.8 |
| Organic Matter | 0.7 | 4.7 | 12.5 | 1.3 | 4.7 | 10 |
| pH | 6.6 | 5.4 | 4.7 | 6.8 | 6.5 | 5.6 |

SL: sandy loam, L: loam, CL: clay loam

Table 6. The efficacy of pyroxasulfone and *S*-metolachlor for ECHCG growth inhibition in different soils.

| | soil | A | B | C | D | E | F |
|--|------|-----|------|------|------|------|------|
| pyroxasulfone (pED ₉₀) | ppm | 1.7 | 3.5 | 3.9 | 3.9 | 5.9 | 6.6 |
| <i>S</i> -metolachlor (mED ₉₀) | ppm | 7.4 | 23.4 | 43.8 | 20.9 | 31.3 | 62.5 |
| mED ₉₀ /pED ₉₀ | | 4.4 | 6.7 | 11.2 | 5.4 | 5.3 | 9.5 |

Herbicides were applied by micropipette to a plastic cup with 10g of soils.

Approximately 40 ECHCG seeds were mixed with soil, and the total volume of water in each soil was adjusted to the field capacity. Test cups were kept in a growth chamber maintained at 25 °C. Growth inhibition was evaluated visually with three replications at 7 days after planting using a scale of 0 to 100, with 0 representing no effect and 100 representing complete control. Data for visible growth inhibition were analyzed by probit analysis.

ECHCG: *Echinochloa crus-galli* (L.) Beauv.

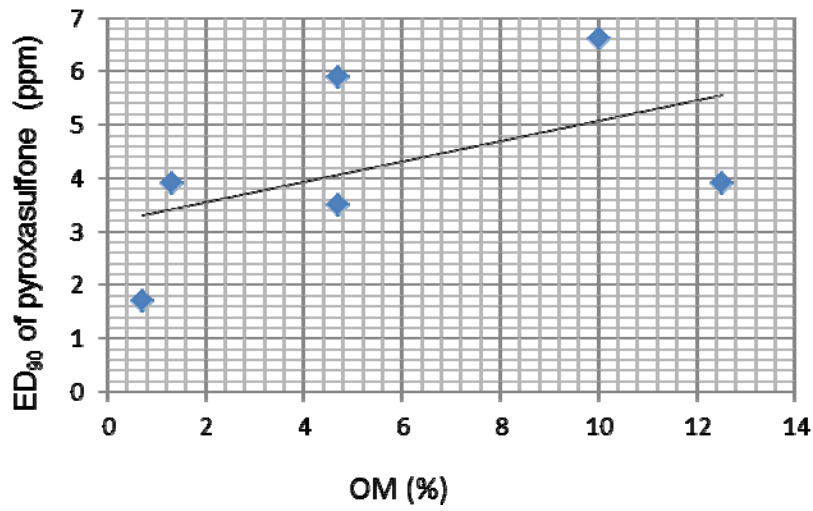


Fig. 10 The correlation between pED₉₀ and OM of tested soil A to F. The correlation coefficient is 0.51. Growth inhibition was evaluated with three replications using a scale of 0 to 100. Data for visible growth inhibition were analyzed by probit.

pED₉₀: ED₉₀ of pyroxasulfone

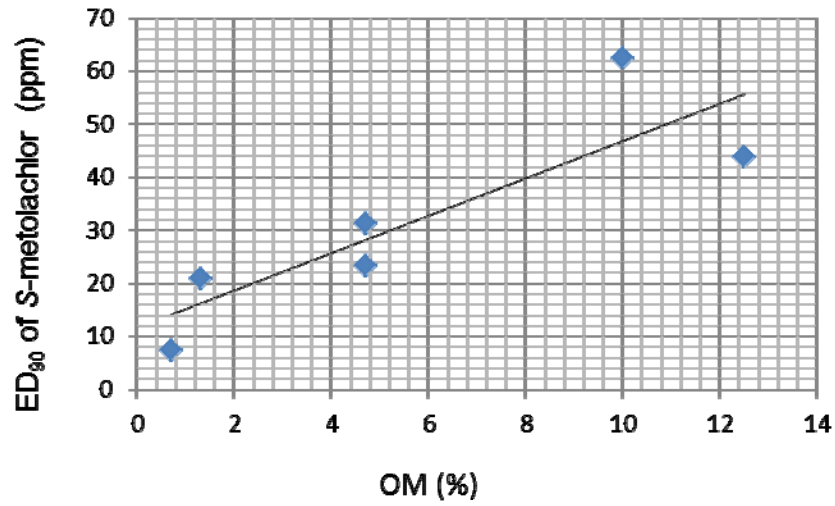


Fig. 11 The correlation between mED₉₀ and OM of tested soil A to F. The correlation coefficient is 0.86. Growth inhibition was evaluated with three replications using a scale of 0 to 100. Data for visible growth inhibition were analyzed by probit.

mED₉₀: ED₉₀ of *S*-metolachlor

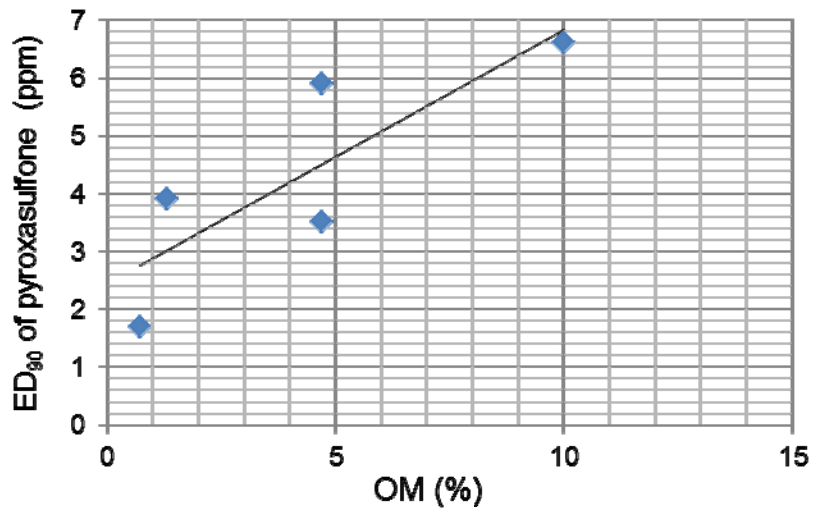


Fig. 12 The correlation between pED₉₀ and OM of tested soils without soil C. The correlation coefficient is 0.83. Growth inhibition was evaluated with three replications using a scale of 0 to 100. Data for visible growth inhibition were analyzed by probit.

pED₉₀: ED₉₀ of pyroxasulfone

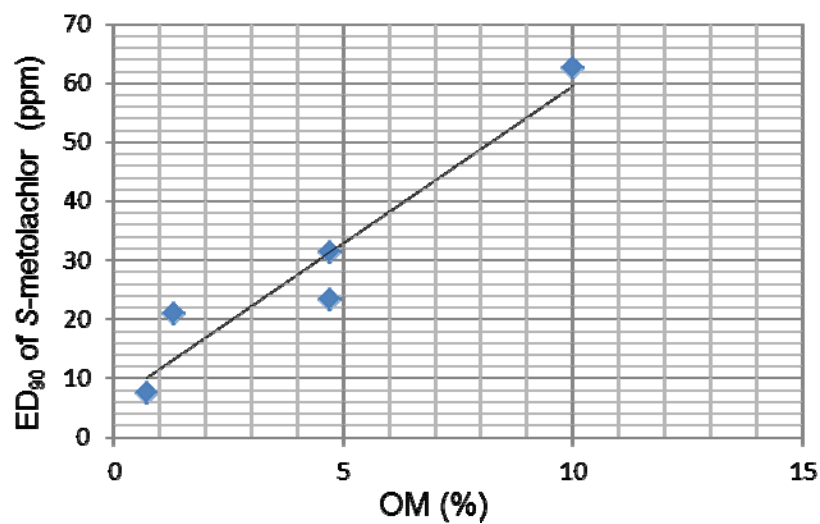


Fig. 13 The correlation between mED₉₀ and OM of tested soils without soil C. The correlation coefficient is 0.96. Growth inhibition was evaluated with three replications using a scale of 0 to 100. Data for visible growth inhibition were analyzed by probit.

mED₉₀: ED₉₀ of *S*-metolachlor

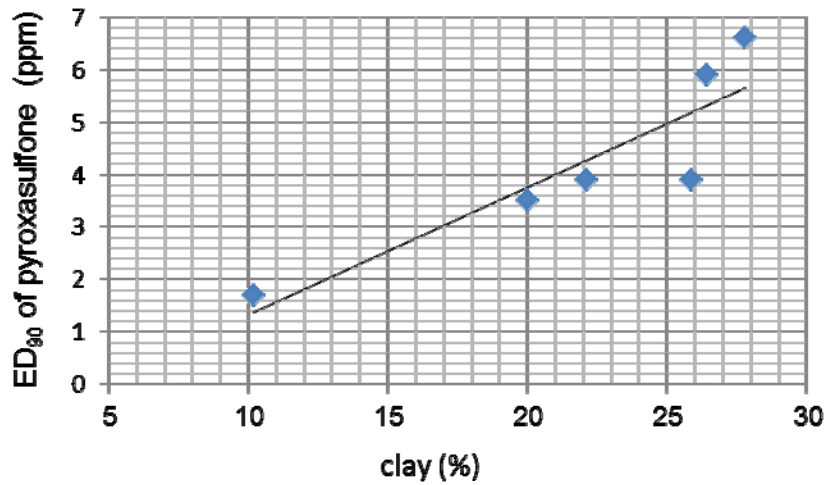


Fig. 14 The correlation between pED₉₀ and clay of tested soils A to F.

The correlation coefficient is 0.89. Growth inhibition was evaluated with three replications using a scale of 0 to 100. Data for visible growth inhibition were analyzed by probit.

pED₉₀: ED₉₀ of pyoxasulfone

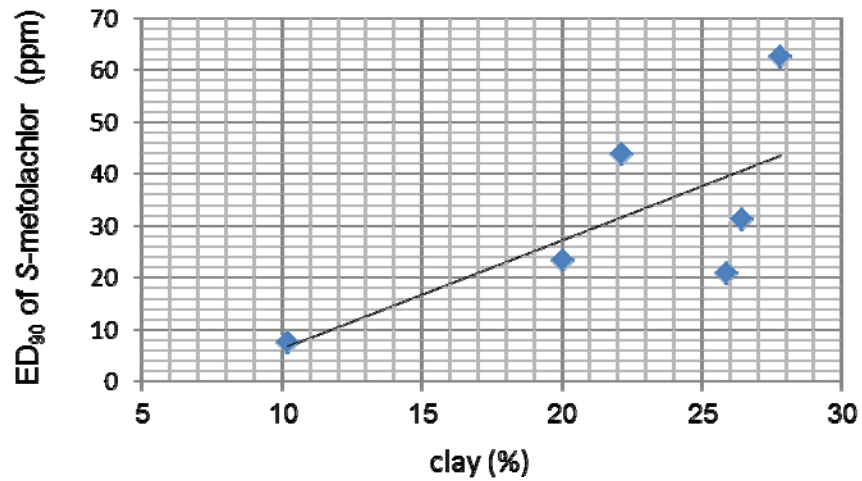


Fig. 15 The correlation between mED₉₀ and clay of tested soils A to F. The correlation coefficient is 0.70. Growth inhibition was evaluated with three replications using a scale of 0 to 100. Data for visible growth inhibition were analyzed by probit.

mED₉₀: ED₉₀ of *S*-metolachlor

2-2 考察

本章の冒頭で述べたように、既存の除草剤は実際に土壌中の OM 含量によって除草剤の使用薬量を変えることが推奨されている場合も多い。土壌中の有機物含量は植物残渣（茎、根）などの有機物の混和などで継時的に変化し、同じ圃場内でも均一な OM 値を有するとは考えにくい。また、オーストラリアなどで行われているように雑草種子を焼却したりする物理的な雑草防除を実践した場合などにも圃場の OM 値は大きく変化する[33]。一方、土壌の土性は継時的な変化の影響は小さく、年次による変動は少ないと考えられる。むしろ、圃場中の clay 含量がグラデーションのように変化している場所もあるため、耕起などによって少しずつ土性が変化する場所もあるが、圃場中の土性の変化は OM の変化と比較すればその変動は小さいと考えられる。したがって、OM 含量によって薬量を変動させる場合、生産者が圃場の OM 含量まで把握するためにはある程度の頻度で土壌分析を実施する必要があるが、土性についてはそれほど頻繁に調査する必要はないと考えられ、除草剤の薬量と土性の関係をより深く知ることは除草剤の薬量をより簡便な方法で知ることができる。本試験で得られた除草効果試験の結果と、土壌の clay 含量との相関係数はピロキサスルホンでは 0.89 となった (Fig. 14)。一方、S-メトラクロールでは 0.70 とピロキサスルホンよりもやや低い値となった (Fig. 15)。S-メトラクロールの場合、揮散しても除草効果を示すことがわかっており、本試験のように閉鎖系での試験と実場面と同じ条件とはならないが、ピロキサスルホンの場合は揮発による除草効果への影響は小さいため、より信頼性は高いと考えられる。本章の試験結果から、全土壌を用いたピロキサスルホンの ED₉₀ と土性との相関係数としては、OM とは 0.51 であったが、clay とは 0.89 とより高い相関

係数を示した。したがって、ピロキサスルホンの場合には土壌別の除草効果をある程度 clay 含量（土性）で想定することができると考えられた。さらに多くの土壌で検証する必要があるが、このことはより除草剤を簡便に、正確に使用することができる指標として有用であると考えられた。

本章では、ピロキサスルホンの除草効果と土壌との関係について検討した。その結果、ピロキサスルホンの除草効果と土壌の種類や OM とは一定の関係があるが、高い OM 含量の土壌においては、除草効果と OM 含量との関係性は低い場合があると考えられた。また、ピロキサスルホンの除草効果と clay との関係は OM よりも密接であり、ピロキサスルホンの薬量を考える場合、clay の量で推定することが可能と考えられた。一方、雑草の発生前に散布される土壌処理除草剤では、雑草害によって作物の収量が減少しなくなる期間いわゆる要防除期間にわたって除草効果を維持する必要があり、残効期間は重要な性質である。残効は、化合物の土壌中での分解、揮散、リーチングなどの要素が関係することから、本章で検討した初期の除草効果のみならず、その効果の持続性についても検討が必要となる。よって、次章では生物効果によって各除草剤の残効期間を比較し、ピロキサスルホンの残効について検討するとともに、環境要因がピロキサスルホンの除草効果に与える影響について検討する。

第3章 ピロキサスルホンの残効および環境要因が除草効果に及ぼす影響

作物栽培において雑草防除は、収量の確保に重要である。しかしながら、諸言で述べたように特定の除草剤に頼り、長期間同じ薬剤や同じ作用機序の薬剤を使用した場合には、除草剤抵抗性雑草を選抜し、優占化させてしまうリスクが伴う。そこで、近年特に **Integrated Pest Management (IPM)**、雑草防除としては **Integrated Weed Management (IWM)** の重要性がより大きく取り上げられている[34]。IWMとは、利用可能なすべての除草方法を利用して、雑草の発生を抑制することであり、雑草防除の多様性を維持しながら長期にわたって永続的な雑草防除を実践するというアプローチである。雑草防除の方法としては、雑草の焼却、輪作体系、カバークロープ、中耕、肥培管理、畝幅の調整、キャノピーの形成、耕起の方法、除草剤の使用などがあり、これらの方法から現実的に使用可能な方法を組み合わせ、環境負荷を軽減しながら経済的に許容できる雑草防除を実施することである。この中でも除草剤の果たす役割は経済的にも、最も大きく寄与するものである。また、除草剤を使用することで **No-till** や **Minimum till** などの耕種方法が可能となり、耕起をしないことによって燃料の消費や土壌の流亡が抑えられるだけでなく、作物残渣が土壌表面を覆うことで余計な水分の蒸発を抑えて水資源の枯渇を防ぐなど、環境保護にも貢献している。一方では、化学物質を環境中に放出することによって、環境に負荷を与えることも事実である。土壌への残留、大気中への拡散、地下水への流入や河川への流出、標的外動植物に及ぼす影響リスクなどが考えられ、これらに対する不安が急性毒性の強い農薬を使用していた時代に起こった問題を思い起こさせ農薬の環境影響へ不安を高める要因ともなっている。特に適切な使用方法、使用場所や薬量が守られないことで、こういった問題を引

き起こすことがないように除草剤の特性をしっかりと把握し、有効に使用することが持続的な農業の発展にも重要である。

今後の世界の食糧問題に対応するため、持続可能な雑草防除アプローチとして IWM (IPM) を実践し、抵抗性雑草の発達を抑えて除草剤を有効に使用するには、その薬剤が効果を発揮する草種や処理時期、または土壌による薬量の選択といった除草剤の基本的な性能の他、環境の違いに対してどのように除草効果変動するかを理解した上で使用する必要がある。本論文の第 1 章では、ピロキサスルホン処理時期別の除草効果、殺草スペクトラムといった基本的な性能について述べ、第 2 章では土壌別の除草効果と土性との相関について述べてきた。そこで本章では、圃場における残効期間、土壌表面での拡散、処理層の位置、土壌水分、碎土条件などがピロキサスルホンの除草効果に及ぼす影響について検討し、環境要因が除草効果に与える影響を考慮して、この除草剤を有効に利用するための条件について考察する。

3-1. 圃場における残効期間

材料と方法

ピロキサスルホンの圃場における残効期間を同じ作用機序の除草剤メトラクロール、アラクロールおよびジメテナミド-Pと比較した。薬剤処理後、所定の期間が経過した後、新たに播種した雑草に対する除草効果で残効期間を検証した。試験は、クミアイ化学掛川農場内の圃場（clay loam 土壌、0.9% OM、pH 6.3）で実施した。供試雑草のイヌビエは、圃場を耕起、整地した後、播種機で播種深度 1 から 3 cm で処理区の前半分と後半分の 2 列植え付け、その 1 日後に除草剤は 1000 L/ha の散布水量で CO₂ バックパックスプレーヤーを使用して 2×16 m のプロットに反復なしで散布した。薬剤の散布後は、圃場を耕起することなく、土壌表面をできる限り壊さないようにイヌビエ種子を、処理後 28、63、93 および 127 日後にディスクプラントで播種深度 1 から 3 cm で播種した。イヌビエは前回播種した場所から 1 m 程度離れた場所に播種し、播種日の 10 から 14 日前には非選択性除草剤を使用して処理区内に自然発生した雑草を防除した。除草効果はイヌビエ播種後 28 日後に播種したイヌビエに対して 0（無処理と同等）～100（完全除草）の基準で観察評価した。

結果と考察

ピロキサスルホンは、土壌処理で高い除草効果と残効を示す除草剤であり、トウモロコシでは、90 から 240 g a.i./ha の範囲で使用されている[35, 36, 37]。この試験では、圃場での残効に関して、同じ作用機序の除草剤であるメトラクロール、アラクロール、ジメテナミド-Pと比較した。ピロキサスルホンは、200 g a.i./ha で処理 63 日後まで 98%以上の高い除草効果を示

した (Fig. 16)。90%以上の除草効果を示す残効期間は、アラクロールの 1736 g a.i./ha で 0 から 28 日まで、ジメテナミド-P の 1138 g a.i./ha で 28 から 63 日まで、メトラクロールでは 63 から 93 日までであった。これらの結果からピロキサスルホンは、1/6 から 1/9 の薬量でこれらの除草剤と同等以上の残効期間を与えることができることが明らかとなった。

ピロキサスルホンのような土壌処理除草剤は、雑草が発生する前に土壌に処理され、作物を雑草との競合から保護する役割を果たす。作物にとって初期生育は非常に重要であり、初期生育時の雑草との競合は最終的な収量の減少を招くことが明らかとなっている[38]。雑草競合と収量の関係には、雑草の密度や作物の栽植密度、畝幅等が影響するが、一般的には 5% 以上の収量減がおこらない期間を要雑草防除期間 (The critical weed free period) とされており、土壌処理剤はこの期間作物を保護することが期待されている[39, 40, 41]。トウモロコシやダイズの雑草防除に必要な期間について、Swanton や Tardif らによって述べられているところによれば、トウモロコシの場合には雑草害を 5% 以下の減収にとどめるには発芽時から 8 から 10 葉まで雑草フリーの状態を保つことが重要であり、ダイズの場合には発芽時から複葉が 2 から 3 枚までの期間とされている[42]。作物の播種から発芽までの日数の変動はあるが、トウモロコシであればおよそ 40 日間は完全に雑草を抑える必要があり、逆に言えばそれ以降は雑草防除をしなくとも雑草害からおよぼされる収量減はないと言える。本試験では、各除草剤の効果の高い草種の一つとしてイヌビエを選択してそれに対する除草効果を検討し、ピロキサスルホンは他の VLCFA 合成阻害作用を示す除草剤と比べて低薬量で長い残効を示すことを明らかにした。実際の生産現場にイヌビエのみが発生することはなく、広葉雑草も含めて多種多様な雑草が発生し、収量を減じる要因となるため、ピロキサスルホンなどの除

草剤一剤ですべて防除できることにはならないが、圃場に発生する雑草種に合わせて、他の除草剤との組み合わせなどによって、十分な期間雑草を防除できる可能性が考えられた。一方、IWM では要防除期間を防除すればよいが、雑草との生育競合を避けるための要防除期間以後は、雑草が他の病虫害の温床ともなることから、作物の栽培体系全体で IPM を考えていく必要もある。

本試験結果によって、同じ作用機序を有する土壌処理除草剤においてもその残効は異なることが判明した。化合物の物理化学性がこれらの差に影響していることが考えられることから、この違いについては 3-7 において総合的に考察する。

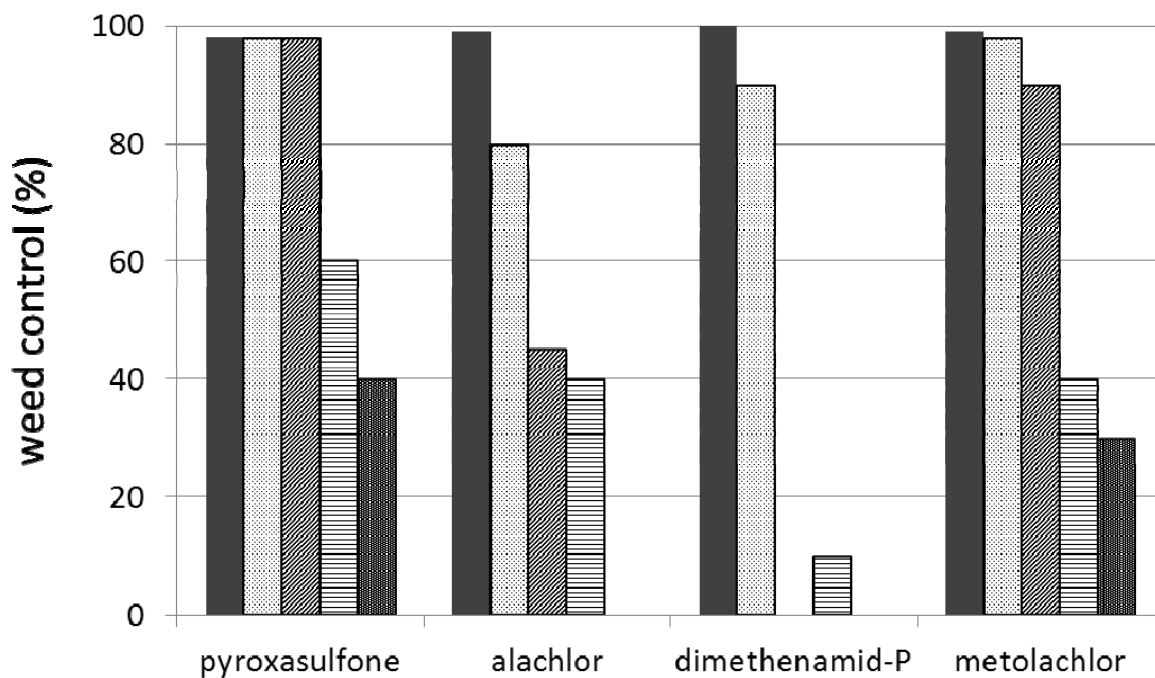


Fig. 16 Plant back tests for residual ECHCG control with pyroxasulfone and chloroacetamide herbicides in a field. Weed control was visually assessed 28 days after planting. Herbicides were applied at 200 g a.i./ha for pyroxasulfone, 1736 g a.i./ha for alachlor, 1138 g a.i./ha for dimethenamid-P, and 1800 g a.i./ha for metolachlor. ECHCG seeds were planted using a mechanical planter one day before herbicide application (■), and 28 (▤), 63 (▥), 93 (▦), and 127 days after application (▧).

ECHCG: *Echinochloa crus-galli* (L.) Beauv.

3-2. 土壌表面でのピロキサスルホンの拡散

材料と方法

試験はクミアイ化学生物科学研究所内のガラス温室で実施した。プラスチックコンテナ(11×11×11 cm)に完全に風乾した clay 土壌(5 mm メッシュ, 9.6 % OM, pH 5.4)を充填し、あらかじめ 1 mm の篩でふるった供試土壌 100 ml あたりにギョウギシバ (*Cynodon dactylon*: CYNDA) 1 g の種子を混和した土壌 25 ml を土壌表面に均一に広げた。除草剤はコンテナの中心に直径 1.5 cm の円形の枠を入れその中にコンテナ面積分に必要な薬量となるように調整した薬液 1ml を滴下処理した。滴下した薬液は 3 から 4 滴ごとに時間を空け、すべての希釈液を処理した。処理直後に、コンテナ上方からスプレーヤーを使用して 5 mm の水を与え、2、4、6 および 8 日後にも同様の方法で給水した。除草剤の効果は、生育阻止円として表れ、処理 14 日後にスケールによって円の大きさを 4 か所測定し平均した。試験は、2 反復で行った。

結果と考察

ピロキサスルホンの土壌表面での拡散に関して、生物効果で評価した。本試験方法では土壌表面での水平方向の移動性は、ギョウギシバの生育阻止円としてあらわれ、ピロキサスルホンの 250 g a.i./ha と S-メトラクロールの 2140 g a.i./ha が拡散した円の直径の大きさは、それぞれ 4.3 cm と 9.5 cm であり、カバーできる面積としてはピロキサスルホンが 14.5 cm²、S-メトラクロールが 70.8 cm² と大きく異なった (Table 7、Fig. 17)。これらの結果からピロキサスルホンの水平方向の移動距離は S-メトラクロールの約半分程度であり、ピロキサスルホンは S-メトラクロールと比較して土壌表

面で拡散しにくい化合物であると考えられた。また、ピロキサスルホンは薬量によらずにほぼ同じ生育阻止円を示したが、*S*-メトラクロールでは、薬量によって円の大きさは異なった。

この *S*-メトラクロールの炭素補正土壌吸着係数 K_{oc} は 189 (平均) で、水溶解度 480 mg/L であり [43]、ピロキサスルホンの K_{oc} は 57-114、水溶解度 3.49 mg/L である [35]。土壌吸着係数は、高いほど土壌と強く結合して土壌中を移動しにくいことを示している。ピロキサスルホンの K_{oc} は、*S*-メトラクロールよりも小さく、土壌表面の拡散は小さい。一方、水溶解度は 100 倍程度異なることから、土壌表面での拡散には水溶解度が影響していると考えられた。また、ピロキサスルホンの阻止円が小さいことについては、土壌の縦方向への移動が考えられたが、クミアイ化学社内試験 (データ未掲載) では、この土壌での縦方向への移動は小さく、本試験で与えた降雨量の 2 倍の降雨を与えてもピロキサスルホンの場合には全薬量の 51%、*S*-メトラクロールの場合には全薬量の 44% が土壌表層 1 cm 以内に存在することが確認されている。このため、両化合物ともに同等の比率で化合物が残存しており、下方への移動については無視できるものと考えられた。

試験結果から、ピロキサスルホンは土壌表面で拡散しにくいことから、丘陵地など傾斜がある圃場で使用した場合でも化合物としては比較的土壌表面から流亡しにくく、安定した除草効果が得られると考えられた。一方、土壌表面に均一に処理されない場合は、処理後に土壌全体をカバーする範囲が狭いため、雑草がエスケープし、除草効果が低下する可能性が考えられる。また、土壌表面での広がりが少ないことは、圃場の砕土が粗い場合には、土塊の下から発生する雑草には十分な除草効果を発揮しない可能性が考えられるため、後に本章の中で検討する。

Table 7. Horizontal movement of pyroxasulfone on the soil surface

| Herbicide | dosage | diameter* |
|---------------|-----------|-------------|
| | g a.i./ha | cm |
| pyroxasulfone | 250 | 4.3 ± 0.4** |
| | 125 | 4.3 ± 0.4 |
| S-metolachlor | 2140 | 9.5 ± 0.7 |
| | 1070 | 7.8 ± 1.1 |

*Diameter represents the diameter of a circle of *Cynodon dactylon* growth inhibition area controlled by herbicide on soil surface. The diameter was measured by scale at 14 days after application. There were two replicate containers for each herbicide treatment and the untreated check.

**Data represent means ± s.d.

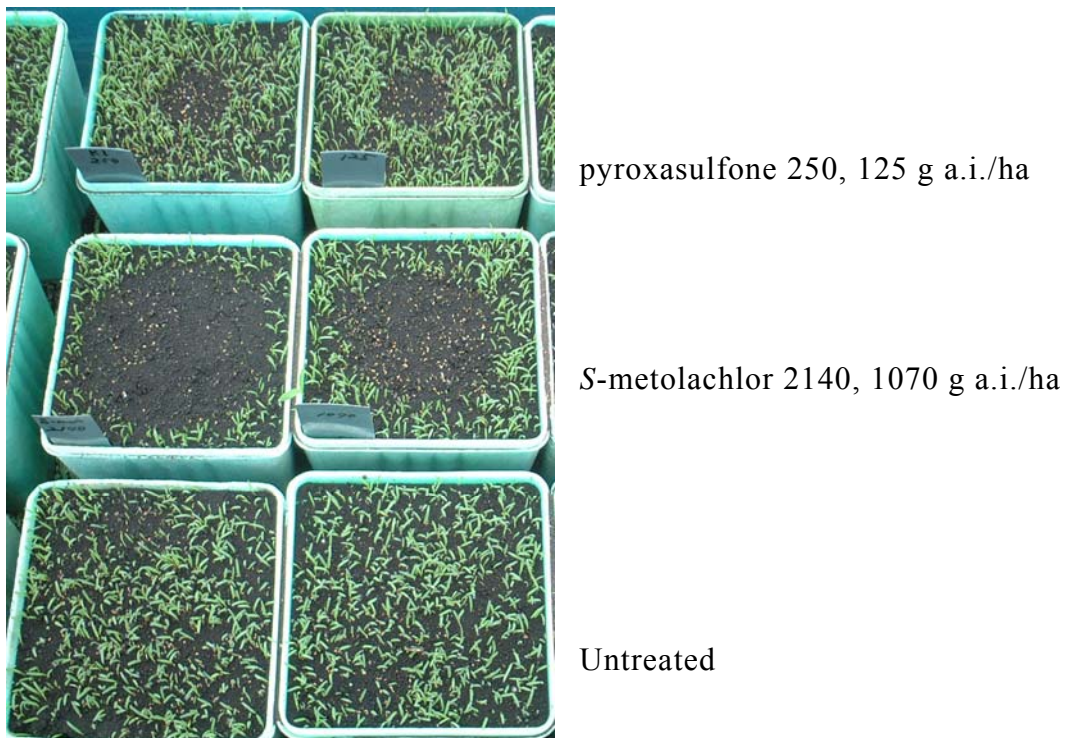


Fig. 17 Horizontal movement of pyroxasulfone and *S*-metochlchlor on soil surface. Herbicide was applied the center of container ($11 \times 11 \times 11$ cm) by micro pipette within 1.5 cm. The total amount of applied herbicide active ingredient was the amount required for application to the container's surface area at the required dosage. The area in which the herbicide completely controlled seedling growth was described as a circle. There were two replicate containers for each herbicide treatment and the untreated check.

3-3. 土壌中での薬剤層の位置と除草効果

材料と方法

ピロキサスルホンの土壌中処理層と除草効果の関係を明らかにするため、温室試験をクミアイ化学生物科学研究所で実施した。金属製のトレイ(14×24×3 cm, 1 L)に clay 土壌(9.6% OM, pH 5.4)を充填し、スプレイヤーでピロキサスルホンを 500 L/ha の散布水量で散布した。散布後に土壌をビニール袋に入れ、均一に薬剤が混ざるように十分に攪拌した。薬剤を混和した土壌はプラスチックコンテナの土壌表面の 0 から 1 cm、1 から 2 cm、2 から 3 cm の層になるようにし、エノコログサの種子を表層から 1.5 cm の位置に播種した。水は処理の 1 日前にコンテナの底面から与え、その後は表層が乾燥した場合に底面から給水した。試験は 3 反復で実施し、除草効果は、処理 21 日後に 0 (無処理と同等) ~100 (完全除草) の基準で観察評価した。

結果と考察

土壌中に除草剤の存在する層とその除草効果との関係を検討した。ピロキサスルホンと S-メトラクロールを処理し、均一に混和した土壌を 1 cm の厚さとし、エノコログサの種子を除草剤処理層の下、中、上に播種し、除草効果を検定した。その結果、ピロキサスルホンの処理層は供試雑草の上、中にあるときに高い除草効果を示し、S-メトラクロールの場合は処理層が播種位置から上にある場合に高い除草効果を示した (Fig. 18)。ピロキサスルホンは、S-メトラクロールと同様に生長点に接触した場合に最も高い効果を示すが、生長基部、根部に処理層が存在する場合には S-メトラクロールよりも高い除草効果を示した。この結果から、ピロキサスルホン

は生長点や生長基部に接触することで主に効果を発揮されるが、根部からも吸収されるため、土壌中である程度拡散した場合にも除草効果を発揮すると考えられた。したがって、ピロキサスルホンの吸収部位については、主に幼芽部から吸収されて高い効果を発揮するが、幼芽部の基部や根部からも吸収されて除草効果に寄与していると考えられた。また、通常は土壌表面に散布され、降雨などによって土壌中に拡散していくため、多くの場合は雑草の幼芽部、基部、根部とすべての部位から吸収されることで高い効果を示していることが示唆された。一方、植物体に根部からも吸収されて除草効果を発揮することから、作物-雑草間の選択性が不十分な作物の場合にはピロキサスルホンが根から吸収されて薬害の原因になる可能性も考えられた。また、本章で示されたように残効が長いことを加味して考えれば、一定期間は土壌中にピロキサスルホンが残っている可能性があり、自然災害や病害虫のために目的とした作物の栽培を断念した場合には、次に植える作物がピロキサスルホンを根から取り込むことによって薬害を起ささないかどうかについて、十分留意する必要があると考えられた。

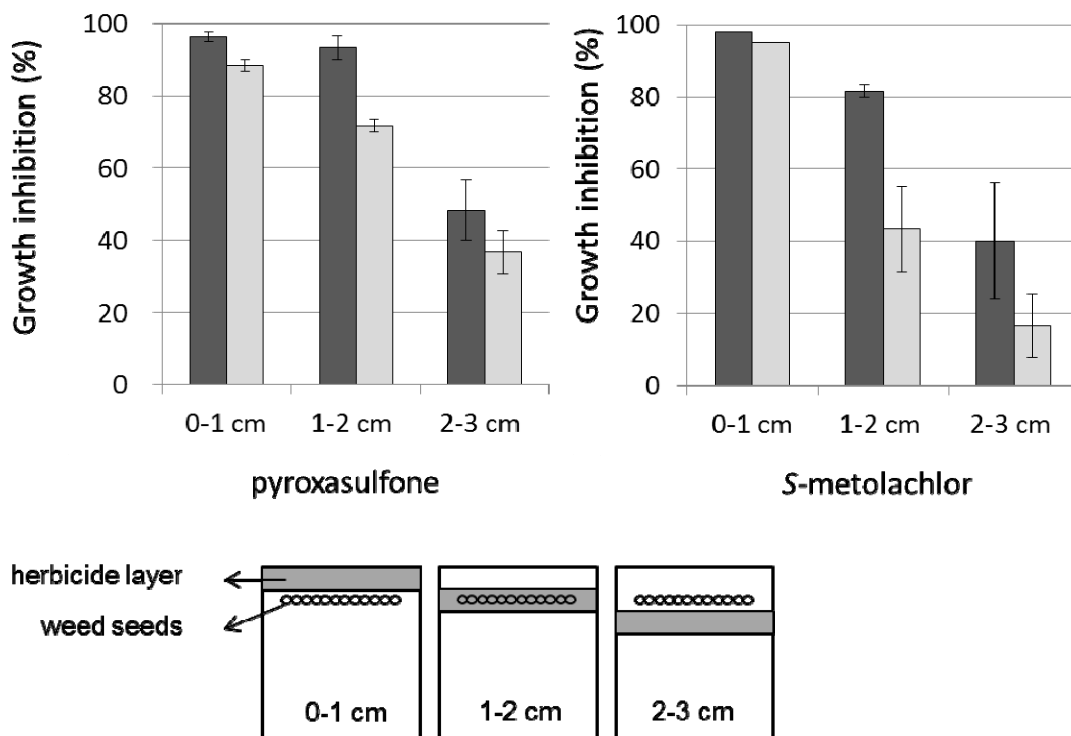


Fig. 18 Influence of the location of the herbicide-treated soil layer on growth inhibition of SETVI. Herbicides were applied on the soil surface at 125 (■) and 63 (◻) g a.i./ha for pyroxasulfone and 1070 (■) and 535 (◻) g a.i./ha for S-metolachlor. The herbicide-treated soils were mixed in plastic bags and placed in layers at depths from 0 to 1 cm, 1 to 2 cm, and 2 to 3 cm in a plastic container; SETVI seeds were placed at a depth of 1.5 cm. Growth inhibition was visually evaluated 21 days after application. There were three replicate containers for each herbicide treatment and the untreated check.

SETVI: *Setaria viridis* (L.) Beauv.

3-4. 土壌混和処理での除草効果

材料と方法

ピロキサスルホンの土壌混和処理における除草効果を明らかにするため、クマイ化学生物科学研究所内温室で試験を実施した。プラスチックコンテナ（11×11×11 cm）に loam 土壌（2.7% OM, pH 5.9）を表層から 3 cm まで充填した。土壌処理は、あらかじめ土壌 1000 cm³ にエノコログサ 1.5 g を混和した同じ土壌をコンテナ表層から 3 cm までに充填し、所定の薬量に水で希釈したピロキサスルホンを 200 L/ha の散布水量で散布した。一方、土壌混和処理はあらかじめエノコログサを混和した土壌を金属製のトレイ（14×24×3 cm, 1 L）に充填し、スプレイヤーでピロキサスルホンを 200 L/ha の散布水量で散布し、散布後に金属バットの土壌をビニール袋に入れ、均一に薬剤が混ざるように十分に攪拌した。攪拌した土壌は、プラスチックコンテナの表層から 3 cm までに充填し、土壌混和処理とした。一つのプラスチックバッグから 3 つのポットを作成した。コンテナ作成後に 5 mm の降雨を上方から与え、その後 2 日おきに 5 mm の降雨を処理 9 日後まで与え、その後は底面から給水して管理した。除草効果は、処理 21 日後に 0（無処理と同等）～100（完全除草）の基準で観察評価した。

結果と考察

ピロキサスルホンの土壌混和処理での除草効果について検討した。その結果、ピロキサスルホンの土壌処理での除草効果に対して、土壌混和処理では除草効果が弱いことが判明した（Fig. 19）。その効果は、薬量が少なくなればなるほど差が大きかった。土壌混和処理では、すべての薬量が均等に混和され、薬剤は均一に土壌中に分配される。一方、土壌表面処理で

は、降雨によって薬剤は下方に移動するが、土壌表面に多くの薬剤が存在し、下方に移動するにしたがってその存在は少なくなっていくため、3-3で見られた幼芽部での吸収がピロキサスルホンの除草効果に大きく影響を与えていることが支持された結果となった。また、ピロキサスルホンの場合には、ベーパーによる効果はほとんどなく、化合物と雑草との接触が重要であることも推察され、土壌によって薬剤を希釈するような土壌混和处理では除草効果がやや低下する可能性が示唆された。

土壌混和处理は、混和に多大な労力、時間、燃料を消費すること、土壌混和处理をしなくとも効果が得られる除草剤が開発されていることなどから、現在では一般的な方法ではない。しかしながら、特定の除草剤を使用する場合に部分的に混和する方法や特定の草種を防除する方法などでは現在でも使用されることがある。また、土壌混和处理での除草効果を検討することは、土壌処理剤を散布した後中耕などの耕種方法を実施する場合などのデータとして有効であり、試験結果からピロキサスルホンの場合には、処理後の中耕などの場合には、ごく浅い部分のみの混和とすることで効果の低下幅は低くなるものと考えられた。

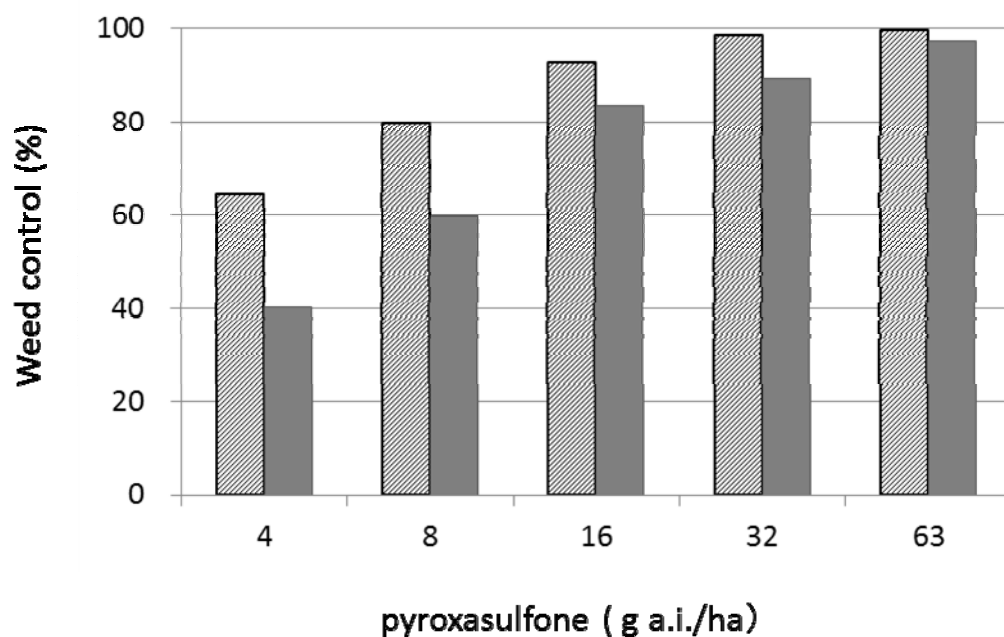


Fig. 19 SETVI control of pyroxasulfone at preemergence (▨) and pre plant incorporate (■). Pyroxasuofone was sprayed on the soil surface for preemergence, or incorporated with soil and SETVI seeds in a plastic bag for pre-plant incorporate. There were three replicate containers for each treatment method and the untreated check. Weed control was visually evaluated 21 days after application.

SETVI: *Setaria viridis* (L.) Beauv.

3-5. 土壌表層の砕土が除草効果に及ぼす影響

材料と方法

土壌表面の状態（土壌の砕土条件）がピロキサスルホンの除草効果に及ぼす影響を明らかにするため、クマイイ化学生物科学研究所内温室で試験を実施した。プラスチックコンテナ(11×11×11 cm)に clay 土壌(9.6% OM, pH 5.4)を表層から 3 cm まで充填し、底面から給水させた。篩でふるった 3 つの大きさの土塊サイズ(5 mm 以下, 5-15 mm, 15 mm 以上)の土壌とエノコログサの種子(200 mg 種子/100 mL 土壌)を混ぜて、事前に準備したコンテナの上まで充填した。5 から 15 mm および 15 mm 以上の土塊を充填したコンテナの土塊の上に細かな土壌や種子は、コンテナ側面を軽くたたいて隙間から落とした。ピロキサスルホンは 4~63 g a.i./ha の薬量で土壌表面に 500 L/ha でスプレイヤーを使用して均一に処理した。灌水は底面から行って管理した。試験は 3 反復で実施し、除草効果は処理 28 日後に 0（無処理と同等）~100（完全除草）の指数で観察調査を実施した。非線形回帰分析を薬剤のエノコログサに対する影響について実施し、観察調査による除草効果データは R ソフトウェア (ver.3.1.2, R foundation) によって解析した。[44] 1-1 と同様にデータは 4 パラメーター log-logistic モデル (式 1) で解析し、 $Y = C + [(D - C) / 1 + (X / ED_{50})^b]$ (式 1) 90%の除草効果は回帰式によって計算した。

結果と考察

本章 3-2 に示した土壌表面での拡散試験によって、ピロキサスルホンは土壌表面での拡散が小さいことが判明した。その結果、実場面で起こりうる変動要因として土塊が大きな条件では土壌表面での拡散が不十分で、土

塊の下から発芽、生育してくる雑草は薬剤に接触する機会が少なくなり、十分な効果を発揮しない可能性が考えられた。一方、土壌表面が細かく、均一に砕土されている条件では同じ薬量の薬剤でも高い効果が得られ、この除草剤の効果を最大限に利用できるかと推察された。よって、土壌表面の状態（土塊の砕土条件）が、ピロキサスルホンの除草効果にどの程度の影響を与えるか検討することは、この除草剤の効果を最大限に発揮し、有効に利用するために有用な情報となると考えられた。プラスチックコンテナを用いた試験では面積が限られることから、実際の圃場で見られるよりも土塊の条件を小さく設定し、砕土条件を 5 mm 以下、5-15 mm、15 mm 以上として試験を実施した。コンテナの表層 3 cm 分の土壌を取り除き、決められたエノコログサの種子量を土塊と一緒に混ぜたのちにコンテナ上面まで土壌を充填した（Fig. 20）。

試験結果より、ピロキサスルホンの ED₅₀ は、5 mm 以下の土塊では 6.2 g a.i./ha、5-15 mm では 10.2 g a.i./ha、15 mm 以上では 14.3 g a.i./ha、ED₉₀ ではそれぞれ 14.9 g a.i./ha、24.9 g a.i./ha、40.8 g a.i./ha であった。予想された通り、大きな土塊を含むコンテナでは土塊の隙間から雑草がエスケープし、同じ薬量でも除草効果が劣った（Table 8、Fig. 21）。特に、大きな土塊では、土塊の基部、および隙間から発生した雑草が抑制を受けながらも生育する個体が見受けられ、除草効果は低下した。実現場では本試験のように細かな土壌表面にすることは難しく、降雨条件によっても除草効果は変動を受けるが、基本的に細かく砕土され、スムーズな土壌表面ではピロキサスルホンは高い除草効果を示し、この除草剤の効果を最大限に発揮させ、薬剤を有効に使用できることが明らかとなった。また、一般的には clay が多い土壌ほど土塊は大きくなる傾向にあり、砕土を細かくすることは難しいと考えられ、実圃場で clay 土壌での薬量が大きくなる原因の一つとも考

えられた。一方、砂壤土などの clay が少ない土壌では、土塊が小さくなり、ピロキサスルホンが均一に土壌表面に存在することで、雑草との接触機会が保たれることも、効果が高い要因の一つとして考えられた。



Fig. 20 Soil surface with sieved soil in plastic container. A container was filled with clay to 3 cm from the top, and initial watering was conducted. Sieved soils of three particle sizes were mixed with SETVI seeds, and placed into the pre-prepared containers up to their maximum capacity. (Left < 5 mm, Center 5 mm to 15 mm, Right > 15 mm)

SETVI: *Setaria viridis* (L.) Beauv.

Table 8. Parameter for log-logistic model on different soil cold size in loam soil and ED₉₀

| size | C | D | ED ₅₀ | b | ED ₉₀ |
|---------|--------|---------|------------------|-------|------------------|
| < 5 mm | 99.725 | -19.035 | 6.245 | 2.534 | 14.87 |
| 5-15 mm | 95.965 | -5.512 | 10.231 | 2.470 | 24.903 |
| > 15 mm | 90.558 | -8.747 | 14.299 | 2.097 | 40.772 |

C=lower limit, D= upper limit, b= slope, ED₅₀=concentration of 50% growth inhibition, ED₉₀=concentration of 90% growth inhibition

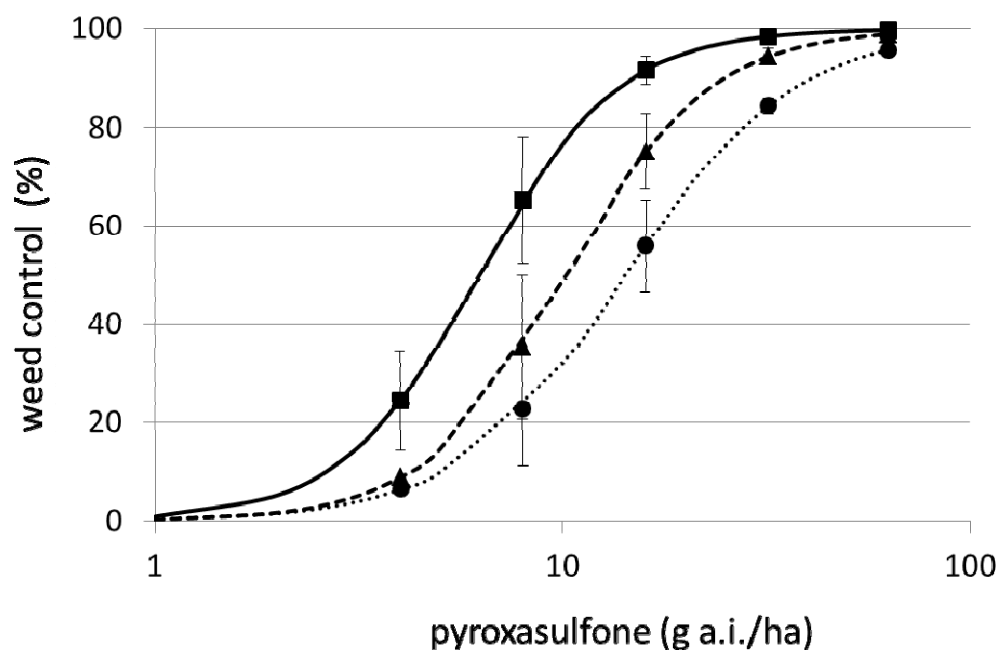


Fig. 21 Influence of clod size on the efficacy of pyroxasulfone for weed control. Pyroxasulfone was applied on sieved soil of three particles sizes (< 5 mm (■), 5-15 mm (▲), and > 15 mm (●)) mixed with SETVI seeds. There were three replicate containers for each herbicide treatment and the untreated check. Weed control was individually evaluated 28 days after application.

SETVI: *Setaria viridis* (L.) Beauv.

3-6. 土壤水分が除草効果に与える影響

材料と方法

試験は、クマイ化学工業(株)生物科学研究所の実験室内で実施した。60 ml の透明なプラスチックカップ（直径 5 cm、高さ 3.5 cm）にあらかじめ 2 mm の篩でふるい風乾した土壌（A: sandy loam, 0.7% OM, pH 6.6, Field capacity 36%、C: loam, 12.5% OM, pH 4.7, Field capacity 58%）10 g を量り取った。A 土壌の入ったカップには水 0.8 ml、C 土壌の入ったカップには 1 ml を添加し、すべてのカップにエノコログサの種子約 40 粒を入れてよく攪拌した。その後、A 土壌の 75%区には 0.9 ml、100%区には 1.8 ml、C 土壌の 50%区には 0.4 ml、75%区には 1.9 ml、100%区には 3.3 ml の水を土壌表面にまんべんなく滴下した。薬剤は、土壤水分量 50%の区には 3.91～500 g a.i./ha、土壤水分 75%の区では 1.96～250 g a.i./ha、土壤水分 100%の区では 0.24～31.25 g a.i./ha まで公比 2 の段階に希釈し、A 土壌には 1 ml、C 土壌には 1.5 ml の薬液を上方から土壌表面にまんべんなく滴下した。薬液を添加したカップはただちに蓋をして、25 °C、明暗 12 時間とした蛍光灯下にて育成した。試験は 3 反復で 2 回実施し、生育抑制は処理 7 日後に 0（無処理と同等）から 100（完全除草）の指数で評価した。データはプロビットによって解析した。

結果と考察

土壤水分と除草効果の関係について調べるため、土壤水分の異なる条件でエノコログサに対する除草効果を検討した。試験は 2 種類の土壌を使用して、それぞれ最大圃場容水量の 50、75、100%となるように土壤水分を調整して実施した。土壌は、OM が 0.7%と小さな sandy loam 土壌および

OM が 12.5%と高い loam 土壌を使用した。土壌中水分は、土壌空隙のおよそ 15%は吸着水として土壌粒子に吸着されるため、土壌水分が約 20%程度になるように水を添加した後攪拌した。土壌水分状態を一定にした後、エノコログサの種子を混和し、トータルの水分量が所定の量になるよう希釈した薬液を処理した。最大圃場容水量の 50%水分量において、無処理区のエノコログサの発芽は良好であり、本試験領域の土壌水分は植物にとって利用可能な水分量（有効水分容量）と考えられた。試験の結果、ピロキサスルホンは sandy loam 土壌での ED₉₀は、土壌水分 100%の時には 2.3 g a.i./ha であったが、50%時には 59 g a.i./ha と 25 倍以上の薬量が必要であった。また、OM の高い loam 土壌では 100%土壌水分時に 6.3 g a.i./ha、50%土壌水分時に 210.5 g a.i./ha と約 40 倍の薬量が必要であった。また、75%土壌水分時には sandy loam 土壌では 26.9 g a.i./ha と 50%土壌水分時の約半分の薬量で ED₉₀ が得られ、loam 土壌では 63.1 g a.i./ha と 50%土壌水分時の 3 分の 1 程度の薬量で ED₉₀ が得られた（Table 9, Fig. 22）。ピロキサスルホンは、蒸気圧が非常に低い化合物（ 2.6×10^{-6} mPa）であり、気層に分布することは少ない。したがって、土壌中では水に溶解して植物体に吸収されて除草効果を発揮すると考えられ、土壌水分条件の影響を大きく受けると考えられる。ピロキサスルホンは、十分に土壌水分がある場合には土壌粒子や OM に吸着された有効成分以外の量は水に溶解することができ、雑草と接触することができるが、75%、50%と土壌水分が少なくなるにしたがって、土壌中の空隙が大きくなり、雑草と接触する機会が少なくなるため、より多くの有効成分が土壌中に存在する必要があるものと考えられた。

一方、実場面において loam 土壌の圃場での除草効果は実用薬量である 150 g a.i./ha で高い除草効果が得られることから、ED₉₀ を得るのに 210 g a.i./ha が必要であった本試験の結果は現場とは矛盾している。屋外では常

に土壤水分が 50%という条件は存在せず、降雨があれば土壤表層はほぼ 100%の土壤水分になり、下方への水分の移動によってそこから減少していくと考えられる。また、降雨がなくとも空気中の水分は露点温度を下回ると露となって土壤表面に水分をもたらす。これらの自然の要因によって、最も除草効果に影響する土壤表面の土壤水分は一時的に上昇することが考えられ、実場面では効果を発揮しているものと考えられた。本試験結果によって、ピロキサスルホンは性質として土壤水分が除草効果に与える影響は大きいと考えられ、実現場においても処理後の乾燥が予想される場合には、適切なイリゲーションなどを与えることが必要と考えられた。

表 9. The efficacy of pyrooxasulfone for SETVI control under different moisture conditions.

| Soil | Texture | Soil moisture, ED ₉₀ (g a.i./ha) | | |
|------|------------|---|------|------|
| | | 50% | 75% | 100% |
| A | Sandy loam | 59.0 | 26.9 | 2.3 |
| C | Loam | 210.5 | 63.1 | 6.3 |

Moisture is percentage of field capacity. The experimental design was a randomized complete block with three replications repeated two times.

SETVI: *Setaria viridis* (L.) Beauv.

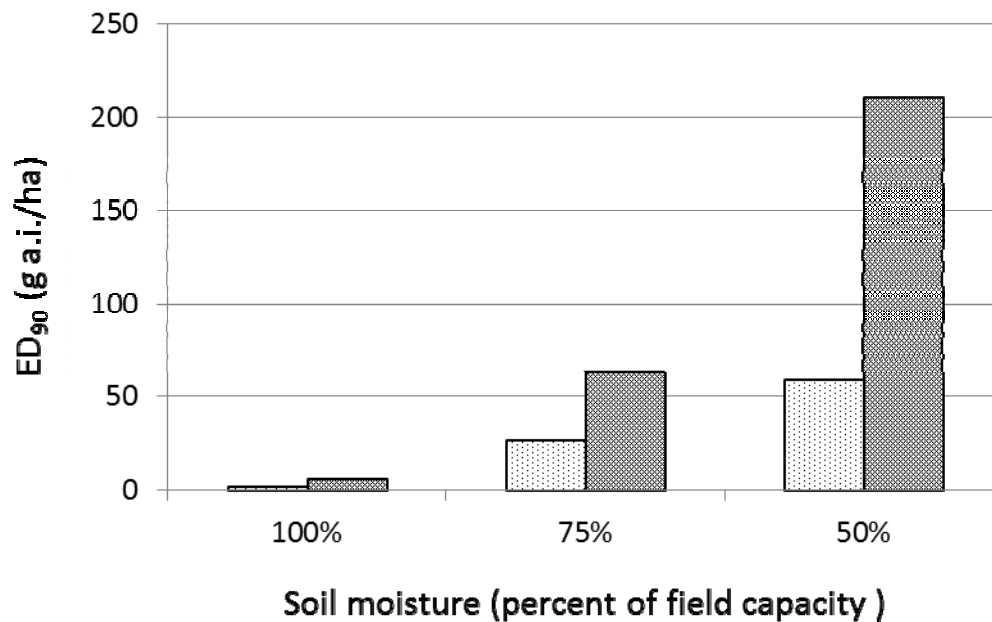


Fig. 22 ED₉₀ of pyroxasulfone for SETVI control under the different moisture conditions. Herbicides were applied by micropipette to a plastic cup with 10 g of soil A (▨) and soil C (▩). Approximately 40 SETVI seeds were mixed with soil, and the total volume of water was adjusted to 50, 75 and 100 percent of the field capacity. Test cups were kept in a growth chamber maintained at 25 °C. The experimental design was a randomized complete block with three replications repeated two times. Growth inhibition was evaluated visually with three replications at 7 days after planting using a scale of 0 to 100, with 0 representing no effect and 100 representing complete control.

SETVI: *Setaria viridis* (L.) Beauv.

3-7. 考察

本章では、ピロキサスルホンの特徴を明らかにするとともに、各種の環境要因がピロキサスルホンの除草効果に与える影響について検討した。3-1ではピロキサスルホンが、同じ作用機序を有する除草剤と比較して、長い残効を示すことを明らかにした。ピロキサスルホンは広く使用されているクロロアセトアミド構造を有する K3 除草剤とは異なる物理化学性を有している。その水溶解度は約 3.5 ppm であり、アラクロール (170.3 ppm)、S-メトラクロール(480 ppm)、ジメテナミド (1449 ppm) と比較して水溶解度が非常に小さい。また、蒸気圧はピロキサスルホンが 2.4×10^{-6} Pa に対して、アラクロール (2.7×10^{-3} Pa)、S-メトラクロール (3.7×10^{-3} Pa)、ジメテナミド (3.7×10^{-2} Pa) であり、これらの蒸気圧はピロキサスルホンの 1000 倍程度高い[35, 45]。残効に直接的に影響を与えると考えられる土壌吸着以外にもこれらの物理化学性の違いは、化合物が土壌表層の適正な位置にとどまって効果を発揮するのに重要な性質であり、既存の K3 除草剤とは環境中での有効成分の消失に差があると考えられる。また、除草剤の残効は有効成分の土壌中での分配や分解、大気中への揮散、流亡、リーチングなどによる有効成分の消失に影響される[46, 47, 48]。

Gish らはメトラクロールなどの除草剤に関する圃場条件での消失について、8年間の圃場での揮散や流亡について評価した[49]。その結果、メトラクロールの流亡は最大で 2.5%程度であったが、メトラクロールの積算の揮散量は散布後 5 日以内に 5~63 %が土壌表面から消失したと報告している。メトラクロールの蒸気圧は 4.2×10^{-3} Pa (25 °C) であり、その異性体の S-メトラクロールも 3.7×10^{-3} Pa (25 °C) とほぼ同様である[49, 50]。ピロキサスルホンとメトラクロールもしくは S-メトラクロールと同じ条件下で実証した試験はないが、ピロキサスルホンの蒸気圧は 2.4×10^{-6} Pa (25 °C)

と 1/1000 程度低く、ほとんど揮散しないと考えられる。また、除草剤の残効は、除草剤の土壌中での分解性が大きく影響する。S-メトラクロールの土壌中半減期 (DT₅₀) は 6~49 日 (12 試験地) であり、ピロキサスルホンの DT₅₀ は 16~26 日 (4 試験地) と報告されている[35, 45]。Mueller らや Westra らは、ピロキサスルホンと S-メトラクロールを同じ条件下での土壌中消失試験が実施し、ピロキサスルホンの半減期はメトラクロールと比較してより長い傾向にあった[51, 52]。これらの結果から、ピロキサスルホンが低薬量で長い残効を示すのは、ピロキサスルホンの化合物としての高い除草活性と、揮散などによる原体のロス (消失) が少ないことが原因と考えられた。一方で、ピロキサスルホンはメトラクロールと比較して Koc が低く、過剰な降雨条件では下方への移動は多い傾向にある。また、3-3 の薬剤処理層と除草効果の関係の結果から、ピロキサスルホンは植物の根部からも吸収されている可能性が示唆され、低い Koc と根部吸収という性質によって、選択幅の狭い作物では薬害の原因になる可能性も考えられた[51, 52]。

また、前述のようにピロキサスルホンは他の K3 除草剤と比較して水溶解度が低いという特徴を有する。植物は気層や水層に存在する除草剤を吸収して除草効果が発現するため、蒸気圧が低く気層に分配されないピロキサスルホンは、土壌水分の影響を強く受けると考えられることから、本章でも土壌水分の影響について検討した[54]。試験の結果、ピロキサスルホンは土壌水分が一定の条件下では、土壌水分の影響を強く受けたが、実場面では除草効果を発揮するのに必要な表層は降雨があればほぼ 100%に近い土壌水分となると考えられ、また空気中の水分 (露) や地下からの水分供給などがあり、モデル試験から想定されるよりも少ない薬量で効果を示すと推察した。生産者にとって問題であるのは、どの程度の降水量、もし

くはイリゲーションを与えれば高い除草効果が期待できるかという点である。生産者が必要な降水量を知ることは、除草剤を有効に使用し、最大限の効果を引き出すためには重要な情報である。特に十分な降雨が期待できない地域の場合、多くは地下水をくみ上げるために燃料を必要とし、その地下水の利用も環境への影響を考慮して使用制限がある場合がある。こういった環境下では水資源は重要であり、これを効率的に利用することは、重要なことである。一方、土壌の種類、初期水分量および露や地下水などによる土壌水分の供給があり、除草剤が十分な除草効果を発揮するのに必要な降雨量やイリゲーションの量を定量的に述べるのは非常に難しい。そこで、ピロキサスルホンに関して実施した 100 試験以上の圃場試験データ（125 g a.i./ha、アキノエノコログサに対する防除効果）を降雨もしくはイリゲーション別に解析した。その結果、処理 7 日後までに 6.25 mm～12.5 mm の降雨もしくはイリゲーションがあった試験事例では 88%以上の高い除草効果を示したのに対して、処理 7 日までに 6.25 mm 以下の降雨であった場合には 62 %程度の効果であった。この結果から、実用的な除草効果を示すためには、いずれの土壌であっても処理 7 日後までに 6.25 mm 以上の降雨が望まれ、12.5 mm 程度の降雨があれば十分な除草効果が得られると考えられた。

第4章 総合考察

世界的な人口増加に伴う食糧の安定供給を支えるためには広大な農地を必要とするが、作物を保護しないで食糧生産を維持することは不可能である。その中で農薬は、食糧を経済的に、かつ安定的に生産するために必要な資材として重要な役割を担っている。作物を単一で栽培するとそこには人為的に作り上げられた生態系が構築されるが、その生態系に望まれない病害虫や雑草が適応して減収の要因となるため、これらの加害から作物を保護する必要がある。特に、除草剤は作物の収量確保、農作業の効率化に多大な寄与をしてきたが、今後さらに環境への負荷を軽減しながらその効果を最大限に発揮することが求められている。

本論文では、新規除草剤ピロキサスルホンに関して、除草効果と除草剤としての特性について研究したものである。除草剤の特徴、特性を研究することは、除草剤を適切な場面、条件下で使用するための有用な情報となる。また、除草剤の効果を最大限に発揮することにより、作物を保護するだけでなく、除草剤に抵抗性を示す雑草の発達を抑制し、限りある有効な除草剤をより長く使用することで、IPM や IWM といった総合的な作物保護に貢献するものである。

ピロキサスルホンは、VLCFAE を阻害することによって除草効果を発揮する除草剤であり、イソキサゾリン環を有する骨格は VLCFAE 阻害剤の中では新規な構造である。現在世界で広く使用されている主な VLCFA 合成阻害作用を示す除草剤は、ヘクターあたりおよそ 1000 g~3000 g 程度の薬量を必要とするが、ピロキサスルホンは 90~240 g 程度で同等以上の効果を示す化合物である。この除草剤は、雑草の発生前に土壌に直接散布すること（土壌処理）によって高い除草効果を発揮するが、雑草が生育して

から直接雑草に散布する茎葉処理では十分な効果を発揮せず、除草効果を得るのに多くの薬量を必要とする。これらの結果から、茎葉処理で得られる効果は限定的であり、この除草剤を有効に使用するためには雑草の発生前土壌処理が有効である。殺草スペクトラムについては、全般的にイネ科雑草に高い除草効果を示し、広葉雑草に対する除草効果は草種によって大きく異なった。イネ科の中では、イヌビエ、エノコログサなどに高い効果を示し、メリケンクキビ、セイバンモロコシ、ナルコビエなどにはやや多くの薬量が必要であった。また、広葉雑草ではアオゲイトウには高い除草効果を示したが、シロザ、イヌホウズキ、オオイヌタデなどにはやや効果が低く、イチビやアメリカアサガオにはより多くの薬量が必要と考えられた。温室内試験では、雑草の播種深度も一定で斉一に発生すること、土壌水分も十分にあることから高い除草効果が得られるが、実圃場では様々な変動要因を受けるため必要となる薬量は多くなると考えられる。除草剤を有効にかつ正確に使用するにはどんな種類の雑草が発生するかを知る必要がある、圃場に発生する雑草の同定も重要となるため、注意して観察することが必要となる。特に高薬量が必要となる草種が優占する場所では、栽培する作物を選択した上で、それらに有効な他の除草剤を使用して防除することが望ましい。また、広葉雑草の中でもアメリカアサガオやイチビには十分な効果を発揮しないと考えられ、その他にもオオブタクサ、ヒマワリといった雑草には効果が低いことが判明しており、これらには有効な除草剤を混合する、あるいは茎葉処理除草剤で防除するなどの対策が必要となる。また、連作は使用できる除草剤の選択肢が狭まるため、作物ローテーションによって使用する除草剤の幅を広げ、雑草防除の多様性を維持することが重要となる。

ピロキサスルホンは土壌処理で効果を発揮する除草剤であることから、

土壌とのインタラクションを知ることはピロキサスルホンの薬量を想定するのに必要である。第2章で述べたように、土壌処理除草剤は土壌の土性とOM含量によって薬量の変動する可能性があるため、この違いを明らかにしておくことは重要である。第2章での試験結果から、ピロキサスルホンのED₉₀とOM含有量との相関については、特にclayの含量に比べてOM含量が高い土壌でも高い除草効果を示し、全体としてED₉₀とOM含量との相関係数が小さくなった。OM含量はclayの含量が多い土壌では多くなる傾向にあるが、OM含量が極端に高い土壌でもピロキサスルホンは効果を発揮する可能性が考えられた。一方、ピロキサスルホンのED₉₀とclayの含量とはより高い相関係数を示し、本試験で供試した土壌ではclayの含量でおおよそその薬量の変動が把握できると考えられ、このことは作物残渣や有機物の投入などで変動の大きなOM値を指標とするよりも、除草剤の必要薬量を予測するのに有効であると考えられた。

ピロキサスルホンは土壌処理除草剤であり、雑草の発生前に散布し、一定の間雑草が発生するのを防ぐことが期待されている。そこで同じ作用機序を有する除草剤を同時に散布し、定期的に新たな雑草種子を播種し、播種した雑草への効果によって、その残効期間を比較した。その結果、ピロキサスルホンは他の薬剤と比較して1/6~1/9の薬量であるにもかかわらず、最も長い残効を示した。3-3で示したように、ピロキサスルホンもS-メトラクロールも雑草種子が処理層の上、もしくは中に存在する場合に高い除草効果を発揮することを確認しており、本試験方法では見た目の残効ではなく、化合物が土壌表層もしくは土壌中に残存していることによる残効ということが出来る。ピロキサスルホンは、S-メトラクロールに比べて1/10程度の薬量で長期間にわたって雑草を防除できるということは、化合物が土壌表層に維持されていると考えられる。これまでに得られている結果か

ら、ピロキサスルホンは *S*-メトラクロールと同じ条件下で比較すると土壤中での分解は遅く、水溶解度や蒸気圧が小さいことから土壤表層からの揮散や流亡によって消失する有効成分量は少ないと考えられる。ピロキサスルホンが低薬量でも長い残効を示すのは、化合物の活性以外にも物理化学性によるところが大きいと考えられた。

ピロキサスルホンの土壤表層での拡散について検討した結果、*S*-メトラクロールと比較して明らかに拡散が小さいことが判明した。使用した土壤中でのピロキサスルホンと *S*-メトラクロールの下方への移動性はほぼ同等であることが確認されたことから、ピロキサスルホンは、土壤中での横方向への拡散が小さい化合物であると考えられた。ピロキサスルホンと *S*-メトラクロールとを比較すると、ピロキサスルホンは *K_{oc}* が低く、土壤吸着が低いにもかかわらず、拡散は小さい。このことから、横方向への拡散はピロキサスルホンの水溶解度の低さが影響していると考えられた。農地は常に平らではなく、丘陵地も多く存在する。こういった場合は、丘陵地の上から下に水は流れ、土壤粒子や除草剤も移動する危険がある。また、谷の部分から水系へ流出する場合も想定され、ピロキサスルホンのように横への拡散の小さな化合物は、こういったリスクが少ないと考えられた。一方で、カバーできる範囲が限られるということは、土壤表面に均一な散布がされないと除草効果が十分に発揮されない可能性があり、散布には注意が必要であると考えられた。また、土壤表面での拡散が少ないことは、砕土が荒く、土塊が大きな場合には土塊の上に除草剤が散布され、下の土壤から発生してくる雑草には接触しないことが考えられた。モデル試験の結果、採土が 5 mm 以下の場合と 15 mm 以上の場合では 2~3 倍の薬量が必要となることが判明した。特に clay の多い土壤では土塊が大きい状態になりやすく、第 2 章で述べたように clay の含量が多くなると高い除草効果を発揮

するために必要となる薬量が増える傾向にあるため、この除草剤を有効に使用するには、採土をできる限り細かくすることで高い除草効果が得られると考えられた。

また、ピロキサスルホンは水溶解度が比較的小さい化合物であり、水に溶解して雑草に吸収される除草剤としては、乾燥条件では効果が低下する可能性が考えられることから、土壌水分別の除草効果を確認した。土壌水分を最大容水量の 50、75、100%としてモデル試験を実施した結果、50%時に ED₉₀を得るのには 100%時と比べて 25 倍以上の薬量が必要であり、モデル試験では実用薬量よりも高い薬量が必要であった。実場面では、モデル試験のように全土壌の水分が一定して 50%ということではなく、土壌表面は降雨によって一時的に 100%の状態となり、露などによっても土壌表面の土壌水分は高くなることから、実場面では乾湿を繰り返している。さまざまな環境要因が影響するため、除草剤の効果発現に必要な水分量を定量的に述べるのは難しいが、この除草剤を使用する場合には、どの程度の降雨があれば有効な除草効果を示すか、また降雨が期待できない場合には、どの程度のイリゲーションを行えばよいかは重要な情報であるため、これまでに実施してきた圃場試験データを解析した。ピロキサスルホンに関して実施した 100 試験以上のデータ (125 g a.i./ha、アキノエノコログサに対する除草効果) と降雨またはイリゲーションとの関係を解析した結果、処理 7 日後までに 6.25~12.5 mm の降雨もしくはイリゲーションがあった試験事例では平均で 88%以上の高い除草効果を示したのに対して、処理 7 日までに 6.25 mm 以下の降雨であった場合には平均で 62%程度の効果であった。この結果から、実用的な効果を発揮するためには処理 7 日後までに 6.25 mm 以上の降雨が望まれ、12.5 mm 程度の降雨があれば十分な除草効果を発揮すると推察された。

以上、本論文ではピロキサスルホンに関する生物効果試験の結果や物理化学性のデータから、この除草剤の性質について明らかにした。ピロキサスルホンは、土壌処理によってイネ科を中心に、アオゲイトウなどに有効で、かつ長い残効を有する。また、土壌表面での拡散が小さいことから散布を均一にする必要が考えられた。一方、水溶解度が低いため、使用に当たっては砕土を細かくすることが重要であり、特に土塊が大きくなりやすい clay 含量の多い土壌では、ピロキサスルホンの薬量が多く必要であるため注意が必要となる。また、高い除草効果を発揮するには処理後 7 日以内に 6.25 mm 以上の降雨もしくはイリゲーションが必要となり、12.5 mm 以上の降雨などがあれば、高い効果が期待できると考えられた。

除草剤分野では新たな作用機序を有する除草剤の開発が進まない中、既存除草剤に対する抵抗性雑草が顕在化し、穀物生産に影響を及ぼし始めている。VLCFA 合成阻害の作用機序を有する除草剤は、抵抗性雑草発達のリスクは小さいと考えられるが、抵抗性雑草が発達しない除草剤はなく、ピロキサスルホンも例外ではない。したがって、まだ抵抗性が発達していない除草剤については、その特性を熟知して効果を最大限発揮させ、長く生産現場で使用することが、今後の穀物生産の維持に重要である。また、最大限の効果を発揮させることは、化学物質の無駄な使用をおさえ、環境負荷を低減させることに加えて、耕地面積の一方向的な拡大による環境破壊を抑制することにもつながる。地球環境への負荷を低減しながら、安定した食糧生産を実現するためには、除草剤のほかにも作物ローテーションや中耕といった雑草防除方法も取り入れ、総合的な雑草防除管理を行っていくことで自然と人類が共存し、持続可能な食糧生産が実現していくと考える。本論文で、ピロキサスルホンの特性や環境中での効果の変動について

いくつか検討したが、世界の農業現場では、栽培体系、土壌、気象、対象草種などは様々であり、これだけでは到底対処できるものではない。今後も生産現場で起こる問題についてその要因を明らかにし、生産者が安全で安心して使用できる農薬、また消費者から信頼される農薬の研究・開発を通じて、世界の農業に貢献していく。

要約と結論

本論文は、新規除草剤ピロキサスルホンの除草効果とその特性についての研究報告であり、ピロキサスルホンの除草剤としての特性を明らかにし、得られた知見を基に生産者がこの除草剤を有効に利用するために必要な情報を提示するものである。

イソキサゾリン骨格を有するピロキサスルホンは、VLCFA 合成阻害の作用機序を示す除草剤である。ピロキサスルホンは、同じ作用機序を示す除草剤である S-メトラクロールと比較して、化合物そのものの活性は ED₉₀ では 3 倍程度高く、loam 土壌を使用した温室内試験では 6 倍程度の除草効果を有していた。また、その殺草スペクトラムは同じ作用機序の除草剤と同様に一年生イネ科雑草に対して強く作用するが、S-メトラクロールと比較して広葉雑草、特にアオゲイトウに代表される *Amaranthus* 類に高い除草効果を有しており、現在抵抗性が問題となっているオオホナガアオゲイトウを含む草種に有効である。一方、アサガオ類など大型の広葉雑草については、十分な除草効果を示さないため、他の適切な除草剤との混用や体系処理が必要となる。また、トウモロコシ、ダイズに対する安全性は現在使用されている除草剤と同程度で問題は認められなかった。

土壌とのインタラクションでは、6 種の異なる土壌を使用し、特に土壌吸着に大きな影響を与える OM 含量と除草効果について考察した。その結果、ピロキサスルホンの ED₉₀ と OM 含量との相関係数は低く、特に高い OM 含量の土壌においても高い除草効果を示し、化合物を吸着する要因と考えられる有機炭素種によってその吸着が異なる可能性が考えられた。一方、ED₉₀ と clay 含量との相関係数は高く、土壌の clay 含量はピロキサスルホンの薬量に影響を及ぼす重要な要素であると考えられた。

土壌処理剤の特性の中で重要である残効に関して、ピロキサスルホンは同じ作用機序を示す除草剤の 1/6 から 1/9 の薬量でも、同等以上の残効期間が得られた。これには、ピロキサスルホンの特徴的な物理化学性である蒸気圧の低さや水溶解度の低さが土壌表層からの消失に影響していると考えられた。また、ピロキサスルホンは幼芽部だけでなく、根部から植物体に吸収されても効果を発揮するため、広範囲の土壌層に移動しても効果が発揮されると考えられた。一方、低い水溶解度では土壌表層での拡散範囲は狭く、丘陵地でも流亡しにくいという利点があるが、土壌表面に均一に処理されない場合には除草効果が低くなる可能性が考えられた。さらに、土壌表面での拡散が少ないことから、土壌表面の碎土が粗い条件では除草効果が低くなる可能性が考えられ、碎土条件別の試験を実施した。その結果、碎土が細かいほど除草効果は高く、5 mm 以下と 15 mm 以上では必要となる薬量が 2 から 3 倍の差となることが判明し、碎土を細かくすることでより有効に使用できると考えられた。また、モデル試験の結果、ピロキサスルホンの除草効果は土壌水分の影響を受けると考えられた。実場面で除草剤の活性化に必要な降水量を定量的に述べるのは難しいが、これまでに実施した圃場試験の結果から、播種後 7 日以内に 6.25 mm 以上の降水量があることが重要であり、12.5 mm の降雨があれば十分な効果を発揮すると考えられた。

ピロキサスルホンは、世界中のムギ、ダイズ、トウモロコシなどの作物生産に使用されており、この除草剤を有効に使用することは環境負荷を軽減しながら、世界の食糧生産に貢献することにつながる。今後も生産現場で起こる問題についてその要因を明らかにすることで、食糧の安定供給に寄与し、かつ生産者、消費者から信頼を得られるような農薬の開発を通じて世界に貢献していく。

謝辞

本研究、論文をまとめるにあたり、熱心かつ親身なご指導を賜りました筑波大学大学院生命環境科学系教授 松本 宏博士に深く感謝し、ここに御礼申し上げます。

本研究の査読、ご助言いただきました筑波大学大学院生命環境系教授 佐藤誠吾博士、筑波大学大学院生命環境系教授 戒能洋一博士、筑波大学大学院生命環境系講師 春原由香里博士に感謝申し上げます。

本研究の機会を賜ったクミアイ化学工業株式会社 前社長 石原英助博士（故人）、同前取締役 永山孝三常務（故人）、株式会社エコプロリサーチ社長 井沢典彦博士、K-I Chemical do Brazil 高橋 智社長、クミアイ化学工業株式会社研究開発部の皆様、株式会社 K-I 研究所の皆様、イハラケミカル工業株式会社の皆様に厚く御礼申し上げます。

また、本研究の取りまとめに関して多大なるご理解とご支援を賜りましたクミアイ化学工業株式会社 小池好智社長、同研究開発部 副本部長 清水力博士、井上淳部長、同生物科学研究所 花井涼所長、およびご協力いただきました生物科学研究所の皆様にご深く感謝いたします。

参考文献

- [1] 農林水産省「平成 25 年度食料・農業・農村白書」 p. 24-27
- [2] OECD Agricultural Outlook HP, OECD-FAO「Agricultural Outlook 2013-2022 Database」 Accessed 2015.9.15,
http://stats.oecd.org/Index.aspx?DataSetCode=HIGH_AGLINK_2013
- [3] Council for Agricultural Science and Technology (CAST). *The Contributions of Pesticides to Pest Management in Meeting the Global Need for Food Production by 2050*. Issue Paper #55. CAST, Purdue university November 2014, p. 28
- [4] 社団法人日本植物防疫協会:「病害虫と雑草による農作物の損失」(平成 20 年 6 月)、 p. 7-8
- [5] Number of resistant species for several herbicide sites of action, International survey of herbicide resistant weeds HP, Accessed 2015.8.21,
<http://weedscience.org/>
- [6] Herbicide Resistant crops , GMO compass HP, Accessed 2015.8.21,
http://www.gmo-compass.org/eng/agri_biotechnology/breeding_aims/146.herbicide_resistant_crops.html
- [7] A. S. Culpepper, T. L. Grey, W. K. Vencill, J. M. Kichler, T. M. Webster, S. M. Brown, A. C. York, J. W. Davis and W. W. Hanna: Glyphosate-resistant Palmer amaranth (*Amaranthus palmeri*) confirmed in Georgia., *Weed Sci.*, 54(4), 620-626. (2006).
- [8] A. S. Culpepper, T. M. Webster, L. M. Sosnoskie and A. C. York, Edited by Nandula, Vijay K: Glyphosate-resistant Palmer Amaranth in the United States., *Glyphosate Resistance in Crops and Weeds*, 195-212 (2010).

- [9] B. A. Sellers, R. J. Smeda, W. G. Johnson, J. A. Kendig, M. R. Ellersieck: Comparative growth of six amaranthus species in Missouri., *Weed Sci.*, 51(3), 329-333 (2003).
- [10] M. D. K. Owen and I. A. Zelaya: Herbicide-resistant crops and weed resistance to herbicides., *Pest Manag. Sci.*, 61(3), 301-11 (2005).
- [11] H. J. Beckie: Herbicide-resistant weed management: focus on glyphosate., *Pest Manag. Sci.*, 67(9), 1037-1048 (2011).
- [12] J. M. Green and M. D. K. Owen: Herbicide-resistant crops: utilities and limitations for herbicide-resistant weed management., *J. Agr. Food. Chem.*, 59(11), 5819-29 (2011).
- [13] M. D. K. Owen, H. J. Beckie, J. Y. Julia, J. K. Norsworthy and L. E. Steckel: Integrated pest management and weed management in the United States and Canada, *Pest. Manag. Sci.*, 71(3), 357-376 (2015).
- [14] M. Nakatani, T. Yoshimura, R. Hanai, Y. Tanetani and T. Shimizu: Modern Crop Protection Compounds, Second Revised and Enlarged Edition Volume 1:Herbicide, ed. by W. Krämer, U. Schirmer, P Jeschke and M. Witschel, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, p. 326-327
- [15] Herbicide Resistant Action Committee HP, Accessed 2015.8.28, <http://hracglobal.com/>
- [16] 種谷良貴、藤岡智則、角康一郎、清水力: 超長鎖脂肪酸伸長酵素阻害型除草剤、植物の化学調節 47(2), 120-126 (2012).
- [17] Y. Tanetani, T. Fujioka, K. Kaku, T. Shimizu: Studies on the inhibition of plant very-long-chain fatty acid elongase by a novel herbicide, pyroxasulfone., *J. Pestic. Sci.*, 36(2), 221-228 (2011).
- [18] P. Böger, B. Matthes and J. Schmalfluss: Towards the primary target of

- chloroacetamides -new findings pave the way., *Pest. Manag. Sci.*, 56(6), 497-508 (2000).
- [19] Y. Tanetani, K. Kaku, M. Ikeda, T. Shimizu: Action mechanism of a herbicide, thiobencarb., *J. Pestic. Sci.*, 38(1), 39-43 (2013).
- [20] S. Trenkamp, W. Martin and K. Tietjen: Specific and differential inhibition of very-long-chain fatty acid elongases from *Arabidopsis thaliana* by different herbicides, *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 101(32), 11903-8 (2004).
- [21] S. Trenkamp, W. Martin and K. Tietjen: Specific and differential inhibition of very-long-chain fatty acid elongases from *Arabidopsis thaliana* by different herbicides, *P. Natl. Acad. Sci. USA*, 101(32), 11903-11908 (2004).
- [22] P. Böger: Mode of action for chloroacetamides and functionally related compounds, *J. Pestic. Sci.* 28(3), 324-329 (2003).
- [23] M. Nakatani, R. Kugo, M. Miyazaki, K. Kaku, M. Fujinami, R. Ueno, S. Takahashi (Ihara Chemical Industry Co., Ltd., Kumiai Chemical Industry Co., Ltd.): WO2002062770 (2002).
- [24] S. Takahashi, R. Ueno, Y. Yamaji, M. Fujinami (Kumiai Chemical Industry Co., Ltd.): WO2004014138 (2004).
- [25] Y. Yamaji, H. Honda, M. Kobayashi, R. Hanai (Kumiai Chemical Industry Co., Ltd.): WO2008075743 (2008).
- [26] S.S. Seefeldt, J. E. Jensen and E.P Fuerst: Log Logistic Analysis of Herbicide Dose Response Relationships. *Weed Technol.* 9, 218-227 (1995).
- [27] W. A. Jury and R. Horton: *Soil Physics*, 6th Ed, John Wiley & Sons, Inc. p.

1-34 and p. 45-47

- [28] M. J. Walsh, T. M. Fowler, B. Crowe, T. Ambe and S. B. Powles: The potential for pyroxasulfone to selectively control resistant and susceptible rigid ryegrass (*Lolium rigidum*) biotypes in Australian grain crop production systems., *Weed Technol.* 25, 30–37 (2011).
- [29] A. M. Szmigielski, E. N. Johnson and J. J. Schoenau: A bioassay evaluation of pyroxasulfone behavior in prairie soils., *J. Pestic. Sci.* 39, 22–28 (2014).
- [30] S.Z. Knezevic, A. Datta, J. Scott and P. J. Porpiglia: Dose-response curves of KIH-485 for preemergence weed control in corn., *Weed Technol.* 23, 34–39 (2009).
- [31] D. C. Odera and A. L. Wright: Response of sweet corn to pyroxasulfone in high-organic-matter soils., *Weed Technol.* 27, 341–346 (2013).
- [32] Y. Motoki, T. Iwafune, N. Seike, T. Otani and M. Asano: Effects of organic carbon quality on the sorption behavior of pesticides in Japanese soils., *J. Pestic. Sci.* 39, 105–114 (2014).
- [33] GRDC: Grains Research and Development Corporation HP, Accessed 2015.10.31, <http://www.grdc.com.au/Media-Centre/Media-News/South/2014/08/Destruction-weed-seeds-with-narrow-windrow-burning>
- [34] IOWA State University HP, Integrated Weed Management, Newsletter May, 28, 2001. Accessed 2015.10.1, <http://www.ipm.iastate.edu/ipm/icm/2001/5-28-2001/critcorn.html>
- [35] Pyroxasulfone Global Technical Bulletin, Kumiai Chemical Industry 2011.

- [36] 吉村巧: 食の安全・安心と 環境保全に貢献する新農薬の創製. -ピリミスルファンおよびピロキサスルホンの開発- 化学と生物 50, 552-557 (2012).
- [37] Y. Yamaji, H. Honda, M. Kobayashi, R. Hanai and J. Inoue: Weed control efficacy of a novel herbicide, pyroxasulfone, *J. Pestic. Sci.* 39, 165-169 (2014).
- [38] N. D. Fickett, C. M. Boerboom and D. E. Stoitenberg: Soybean yield loss potential associated with early-season weed competition across 64 site-years. *Weed Sci.*, 61(3), 500-507 (2013).
- [39] D. Mulugeta and C. M. Boerboom, Critical time of weed removal in glyphosate-resistant *Glycine max.*, *Weed Sci.*, 48(1), 35-42 (2000).
- [40] S. Vizantinopoulos and N. Katranis: Weed management of *Amaranthus* in corn (*Zea mays*), *Weed Tech.* , 12(1), 145-150 (1998).
- [41] S. D. Murphy, Y. Yakubu, S. F. Weise and C. J. Swanton: Effect of planting patterns and inter-row cultivation on competition between corn (*Zea mays*) and late emerging weeds., *Weed Sci.*, 44(4), 865-870 (1996).
- [42] University of Guelph Weed Science HP, Accessed 2015.10.29
http://www.plant.uoguelph.ca/research/weedsci/extension/ext_iwm.html
- [43] The Pesticide Manual, 16th Ed, British Crop Production Council, p. 772, (2012).
- [44] The R Project for Statistical Computing HP by The R foundation, Accessed 2015.1.21, <http://www.R-project.org>
- [45] The Pesticide Manual, 16th Ed, British Crop Production Council, (2012). p. 21-22, p. 366-369 and p. 773-775
- [46] G. B. Beestman and J. M. Deming: Dissipation of acetanilide herbicides

- from soils., *Agron. J.* 66, 308–311 (1974).
- [47] C. Accinelli, R. Mallegni, C. Screpanti and A. Vicari: Factors influencing field-scale variability of metolachlor persistence in soil., *Pestic. Air Plant Soil Water Syst., Proc. 12th. Symp. Pestic. Chem.*, 203–209 (2003).
- [48] J. R. Vogel, M. S. Majewski and P. D. Capel: Pesticides in rain in four agricultural watersheds in the United States., *J. Environ. Qual.* 37, 1101–1115 (2008).
- [49] T. J. Gish, J. H. Prueger, C. S. T. Daughtry, W. P. Kustas, L. G. McKee, A. L. Russ and J. L. Hatfield: Comparison of field-scale herbicide runoff and volatilization losses: an eight-year field investigation., *J. Environ. Qual.* 40, 1432–1442 (2011).
- [50] J. Hassink, J. A. Guth, F. J. Reischmann, R. Allen, D. Arnold, C. R. Leake, M. Skidmore and G. L. Reeves: Vapor pressure and volatile losses of plant protection products from plants and soils., *Pestic. Air. Plant. Soil Water Syst., Proc. 12th. Symp. Pestic. Chem.*, 359–366 (2003).
- [51] T. C. Mueller and L. E. Steckel: Efficacy and dissipation of pyroxasulfone and three chloroacetamides in a Tennessee field soil., *Weed Sci.* 59, 574–579 (2011).
- [52] E. P. Westra, D. L. Shaner, P. H. Westra and P. L. Chapman: Dissipation and leaching of pyroxasulfone and S-metolachlor., *Weed Technol.* 28, 72–81 (2014).
- [53] M. Jursik, M. Kocarek, K. Hamouzova, J. Soukup and V. Venclova: Effect of precipitation on the dissipation, efficacy and selectivity of three chloroacetamide herbicides in sunflower., *Plant Soil Environ.* 59, 175–182 (2013).

- [54] S. Otto, L. Riello, R. Düering, H. E. Hummel and G. Zanin: Herbicide dissipation and dynamics modeling in three different tillage systems., *Chemosphere* 34, 163–178 (1997).