

第3章 土壤中におけるプレチラクロール、ダイムロンおよびフェンクロリムの挙動とイネに対する生育抑制作用あるいは軽減効果との関係

3-1 はじめに

第2章では、水耕法において、プレチラクロールのイネ生育抑制作用に対するダイムロンとフェンクロリムの軽減効果が認められ、また、フェンクロリムの軽減効果がダイムロンよりも大きいことを明らかにした。一方、土耕法におけるプレチラクロールのイネ生育抑制作用に対する軽減効果について調べたところ、混和処理では、土壤間で竜ヶ崎土壤における軽減効果が、取手土壤よりも大きく、また薬剤間では、ダイムロンの軽減効果がフェンクロリムよりも大きいことを明らかにした。さらに、減水条件下における湛水処理では、イネの移植深度の相違により両剤の軽減効果に差が発現することを明らかにした。

本章では、第2章で明らかにした土壤間差異、薬剤間差異、ならびに移植深度による軽減効果の差が発現する要因を明らかにすることを目的として、各剤の土壤水中濃度ならびに土壤吸着量を中心として各剤の土壤中における挙動を、混和処理した場合と湛水処理した場合の両方について調べた。これにより、実際の圃場を想定した条件下でのプレチラクロールによるイネの生育抑制作用に対するダイムロンとフェンクロリムの軽減効果と土壤中での挙動との関係を明らかにしようとした。

3-2 混和処理したプレチラクロール、ダイムロンおよびフェンクロリムの存在形態と生育抑制作用あるいは軽減効果との関係

1) 材料および方法

「処理土壤」の調製は第2章2-3の混和処理における生育試験の方法に準じ

た。Fig. 3-1 に示すように、「処理土壌」は、処理時ならびに処理後 1、3、6 日に約 25 g 採取し、「二層遠心管法」を用いて遠心分離した(Kobayashi *et al.* 1994)。有効水と想定される土壌水(pF 4.2 以下)を採取するために 13,000×g、30 分間遠心して、土壌水と土壌残さ(以後「遠心土壌」と呼ぶ)に分離した(Kobayashi *et al.* 1994)。遠心後、土壌水は、直接高速液体クロマトグラフィー(HPLC)で定量した。遠心土壌は、80%アセトニトリル溶液(40 ml)で 1 時間振とう後抽出し、ろ液を HPLC で定量した。さらに、以上により求めた土壌水および遠心土壌中の各薬剤の存在量の総和から、処理土壌中の存在量を求めた。

遠心土壌中には、遠心分離によって採取される有効水以外の土壌水が含まれているので、中村(1996)の方法に準じ、上記の遠心土壌を 105℃、48 時間の条件で乾燥させて重量の減少を測定することで、遠心土壌中の土壌水の量を算出した。

また、本実験は、プレチラクロール、ダイムロン、フェンクロリム各々に関して、別々に処理して行った。乾土あたりの存在量(固相吸着量)は Kobayashi *et al.* (1999a)の方法に従って算出した。

乾土あたりの存在量 (nmol/g 固相)

$$= \frac{[\text{遠心土壌中の総量 (nmol)} - \text{遠心土壌に含まれる土壌水中の総量 (nmol)}]}{\text{乾土重量(g)}}$$

各薬剤の分析方法に関して、プレチラクロールは Kobayashi *et al.* (1999a)の方法に従い、フェンクロリムは Deng *et al.*(1995)の方法を一部修正して行った。さらに、ダイムロンは、小林ら(1999)の方法に従って定量した。なお、プレチラクロール、フェンクロリム、ダイムロンの測定条件は、以下の通りである。

[HPLC による測定条件]

1. プレチラクロールおよびフェンクロリム

HPLC 島津 LC-10AS

カラム Shimpack CLC-Phenyl カラム ϕ 6.0×150 mm + ガードカラム
検出器 島津 SPD-10A VP
波長 210 nm
移動相 メタノール：蒸留水=65:35 (v/v)
流速 1.2 ml/min
注入量 20 μ l
検出限界 2 pmol

2. ダイムロン

HPLC 島津 LC-10AS
カラム Inertsil ODS-2 カラム ϕ 4.6×250 mm + ガードカラム
検出器 島津 SPD-10A VP
波長 242 nm
移動相 アセトニトリル：蒸留水=60:40 (v/v)
流速 1.0 ml/min
注入量 20 μ l
検出限界 1 pmol

また、二層遠心管を用いて、遠心分離された遠心土壌中の各剤の存在量を定量する際の前段階の実験として、上記のアセトニトリル抽出法によって、遠心土壌からのプレチラクロール、ダイムロンおよびフェンクロリムの回収率を求めた。すなわち、10 nmol/ml の各薬剤の溶液 100 ml(溶液中の薬剤総量 1,000 nmol)と竜ヶ崎および取手土壌 40 g を混和し、1 時間静置し、上澄みを除去後、さらに 1 日静置して重力水と「処理土壌」を分離した。処理土壌は、13,000×g、30 分で遠心分離して、土壌水と遠心土壌に分けた。上澄み、重力水および土壌水

は、直接 HPLC で定量した。遠心土壌は、80 %アセトニトリル(40 ml)で抽出し、ろ液を HPLC で定量した。抽出回数は 3 回繰り返して行い、抽出回数と回収率との関係を調べた。上澄み、重力水、土壌水およびアセトニトリル抽出液中(遠心土壌中)の各薬剤の総量を、各薬剤の処理液の総量で割ったときの割合を、百分率表示したものを回収率とした。

一方、遠心土壌に含まれる土壌水中のプレチラクロール、ダイムロン、フェンクロリムの濃度を明らかにするために、中村(1996)の方法に準じて、13,000×g の遠心力で残存する土壌水を、16,000×g で遠心することにより採取した。また 5,000×g の低い遠心力でも土壌水を採取した。各薬剤ともいずれの遠心力の場合についての土壌水中濃度を測定し、比較検討を行った。

これと平行して、処理土壌中のプレチラクロール、ダイムロン、フェンクロリムの全存在量を濃度に換算するために、竜ヶ崎および取手土壌の遠心分離土の重量あたりの容積の比を算出した。すなわち、100 ml のメスシリンダーに遠心土壌の入った遠心管を沈めた時の容積 V_1 (ml)を測定し、対照として土壌の入っていない遠心管の容積 V_2 (ml)を測定し、 $V_1 - V_2$ (ml)を遠心土壌の容積とした(中村 1996)。生土あたり全存在量は、処理土壌の薬剤総量(nmol)を遠心土壌の容積(ml)と土壌水の容積(ml)の総和で割った値とした(中村 1996)。

なお、 I_{25} の算出法等については第 2 章 2-2 で記述した通りである。

2) 結果および考察

上記の方法により求めた遠心土壌からの 80 %アセトニトリル抽出によるプレチラクロール、ダイムロンおよびフェンクロリムの回収率は、3 回抽出時点で、それぞれ、竜ヶ崎土壌で 95、94、93 %、取手土壌で 98、98、92 %であった。従って、アセトニトリル抽出法では、各薬剤とも 90 %以上回収できていることが確認された。また、1 回抽出による回収率は、竜ヶ崎土壌で 90、91、91 %、

取手土壌で 93、93、90 %と各サンプルとも 90 %以上回収でき、またサンプル間でのばらつきも認められなかったことから、今後の遠心土壌からのアセトニトリル抽出回数は、実験の簡易化を図るために 1 回抽出とした。

遠心土壌中に含まれる土壌水の容積(ml)は、乾土 g 当りで、竜ヶ崎土壌が 0.153 ml/g、取手土壌が 0.254 ml/g であった。以後はこれらの比率と、遠心土壌の重量から、遠心土壌中に含まれる土壌水の容積を算出した。

遠心力と土壌水中濃度の関係を Fig. 3-2 に示す。有効水と想定される土壌水を採取する 13,000×g の場合、プレチラクロール、ダイムロン、フェンクロリムの土壌水中濃度は竜ヶ崎土壌で(処理濃度 10 nmol/ml)、1.8、2.2、0.6 nmol/ml であった。16,000×g の高い遠心力で分離した場合には、各薬剤とも竜ヶ崎土壌で(いずれも 10 nmol/ml)、1.9、2.1、0.5 nmol/ml、5,000×g の低い遠心力の場合には竜ヶ崎土壌で(いずれも 10 nmol/ml)、1.9、2.1、0.6 nmol/ml であった。このように、いずれの場合でも、各薬剤とも遠心力の違いに関わらず土壌水中濃度はほぼ一定であることが示された。また、取手土壌の土壌水中濃度も、遠心力に関係なく土壌水中濃度は一定であった。これらの結果は、中村(1996)のメフェナセットにおける結果と一致した。従って、遠心土壌に含まれる土壌水の濃度は、13,000×g で遠心した場合と同じとみなして差し支えないと判断した。土壌固相あたりの各薬剤の存在量(固相吸着量)は、本章 3-2 の 1)の材料および方法における計算式(Kobayashi *et al.* 1999a)より算出した。

遠心土壌の容積(ml)/重量(乾土 g)比は、竜ヶ崎土壌で 0.346 ml/g、取手土壌で 0.401 ml/g であった。従って、遠心土壌の容積はここで得られた容積/重量比を用いて算出し、処理土壌の容積は、遠心土壌の容積と土壌水の総和により算出した。

Fig. 3-3 には、竜ヶ崎および取手土壌における、プレチラクロール、ダイムロン、フェンクロリムの土壌水中濃度の経時変化を示した。竜ヶ崎土壌において、

処理直後のプレチラクロールとダイムロン(処理濃度 10 nmol/ml)の土壤水中濃度は、ほぼ同程度(1.9 および 2.0 nmol/ml)であったのに対して、フェンクロリム(処理濃度 10 nmol/ml)の土壤水中濃度は 0.6 nmol/ml と低かった。プレチラクロールの濃度は経時的に減少したが、ダイムロンの経時的な濃度の減少は、全体を通して小さかった。一方、取手土壤におけるプレチラクロール、ダイムロン(処理濃度 10 nmol/ml)の土壤水中濃度は、1.1、1.2 nmol/ml と竜ヶ崎土壤より低かった。処理濃度 20 nmol/ml と濃度が 2 倍の場合において、2.2、2.2nmol/ml と竜ヶ崎土壤(10 nmol/ml)と近い値になった。フェンクロリムも、竜ヶ崎土壤の 2 倍の処理濃度(20 nmol/ml)で、0.5 nmol/ml であり、竜ヶ崎土壤(処理濃度 10 nmol/ml)の土壤水中濃度と同程度になった。取手土壤においても、各剤とも全体的に土壤水中濃度は経時的に減少した。しかし薬剤間で比較すると、プレチラクロールの減少が最も大きく、フェンクロリム、ダイムロンの順に小さくなった。土壤間では、取手土壤より竜ヶ崎土壤でプレチラクロールの減少が大きかったものの、ダイムロンとフェンクロリムに関して、ほぼ同程度の減少(約 20 %)であった。なお、プレチラクロール、ダイムロン、フェンクロリムを単独で処理した場合とプレチラクロール-ダイムロン、プレチラクロール-フェンクロリムの混合で処理した場合について、それぞれ実験した結果、両者の間で土壤水中濃度に差がほとんど見られず、吸・脱着あるいは分解における薬剤間の相互作用の影響はほとんどないことをあらかじめ確認した(データ未掲載)。本研究と同様に、李ら(1996)の研究でもプレチラクロールとダイムロンを混合処理した場合には、土壤水分含量に関係なく他化合物による土壤水中濃度への影響を受けないことが確認されている。

Fig. 3-4 には、竜ヶ崎および取手土壤における、プレチラクロール、ダイムロン、フェンクロリムの土壤固相吸着量の経時変化を示す。処理直後には、処理濃度 10 nmol/ml の場合、竜ヶ崎土壤でプレチラクロール、ダイムロン、フェン

クロリムがそれぞれ 18.6、25.3、21.7 nmol/g とプレチラクロールでやや低かったものの、吸着量の薬剤間差は約 1.4 倍以内で、土壤水中濃度の差(約 3.5 倍)に比べて相当に小さかった。このような傾向は、取手土壤の場合でもほぼ同じで、プレチラクロールとダイムロンの吸着量は、処理濃度 10 および 20 nmol/ml の場合、各々 20.7、20.4 nmol/g(処理濃度 10 nmol/ml)および 36.4、38.1 nmol/g(処理濃度 20 nmol/ml)となり、フェンクロリムは、処理濃度 20 nmol/ml の場合、39.0 nmol/g で、プレチラクロールやダイムロンと同程度であった。しかし、フェンクロリムの軽減効果はダイムロンよりも小さく、土壤吸着量と軽減効果の関連性は小さいと想定される。これに対して、土壤間で比較した場合も、各薬剤とも竜ヶ崎土壤と取手土壤では同程度の吸着量となり、土壤間による差が少なかった。土壤間による軽減効果は、竜ヶ崎土壤の方が大きいことから、この場合にも土壤吸着量と軽減効果との直接的関連性は小さいと想定される。

Fig. 3-5 に、竜ヶ崎および取手土壤における、プレチラクロール、ダイムロン、フェンクロリムの生土あたりの全存在量の経時変化を示す。各薬剤、各土壤とも Fig. 3-4 の固相吸着量と同様の傾向を示した。処理直後には、プレチラクロール、ダイムロン、フェンクロリムの全存在量は、竜ヶ崎土壤で 35.4、47.5、39.4 nmol/ml(処理濃度 10 nmol/ml)と薬剤間で差が少なかった。取手土壤でもプレチラクロールとダイムロンでは、27.7、27.3 nmol/ml(処理濃度 10 nmol/ml)、3 薬剤間では 48.9、51.0、51.0 nmol/ml(処理濃度 20 nmol/ml)と同様の傾向が見られた。しかし、土壤間で比較した場合は、竜ヶ崎土壤が取手土壤に比べ、1.2~1.7 倍高かった。これは、処理直後の土壤水分含量が竜ヶ崎土壤で 36.7 %であるのに対し、取手土壤は 46.7 %と高いことから、処理土壤の容積が大きい取手土壤に比べて容積が小さい竜ヶ崎土壤で、容積当たりの全存在量がより大きくなることと関係していると考えられる。

土壤固相吸着量、土壤中全存在量の経時的变化は、プレチラクロール、フェ

ンクロリム、ダイムロンの順に減少率が小さくなり、土壤水中濃度の減少傾向と一致していた。この理由としては、プレチラクロールでは、土壤水中濃度の減少に伴う土壤吸着量からの脱着による補填が大きいと想定され、脱着性については第4章での検討課題とした。

以上述べた薬剤の存在形態と土壤中のプレチラクロールのイネ根部の生育抑制作用またはダイムロン、フェンクロリムによる軽減効果との関係を明らかにするために、各薬剤の土壤水中濃度、土壤中全存在量とイネの生育との関係について Fig. 3-6 および Fig. 3-7 に示した。なお、Fig. 3-6 および Fig. 3-7 の薬剤濃度は Fig. 3-3 および Fig. 3-5 から、活性のデータは Fig. 2-2 および Fig. 2-3 から算出した。

プレチラクロールの生育抑制作用は、竜ヶ崎および取手土壤の土壤水中濃度が等しいときにほぼ同程度を示した。すなわち、水耕液中濃度が 1.0 nmol/ml のとき、対照区と比較して 46 % の生育抑制を示した (Fig. 2-1(c)) のに対し、竜ヶ崎土壤では土壤水中濃度が 1.1 nmol/ml のとき、同様に 41~45 % の生育抑制 (Figs. 3-6 (a) および (c))、取手土壤に関しては、土壤水中濃度が 1.1 nmol/ml のとき、45 % の生育抑制 (Figs. 3-6 (b) および (d)) となることが示された。

ダイムロンにおいて、竜ヶ崎土壤のプレチラクロールの土壤水中濃度 (1.1 nmol/ml) と水耕液中濃度 (1.0 nmol/ml) がほぼ等しいとき、竜ヶ崎土壤のプレチラクロールによる生育抑制およびダイムロンによる軽減効果は水耕法とほぼ同程度を示した。第2章で前述したような I_{25} を示すダイムロンの濃度は、土壤水 (竜ヶ崎) で 2.1、水耕液で 2.4 nmol/ml であった。また、取手土壤におけるこれらの生育抑制および生育抑制軽減効果も、竜ヶ崎土壤および水耕法における活性とほぼ一致し、 I_{25} を示すダイムロンの土壤水中濃度 (取手) は 2.1 nmol/ml であった (Fig. 3-6)。しかし、土壤中全存在量との関係を見ると、 I_{25} を示すダイムロンの濃度は、竜ヶ崎で 46.2、取手で 48.3 nmol/ml と、水耕法における活性と一致し

なかった(Fig. 3-7)。

フェンクロリムに関しても、ダイムロンと同様の関係が認められた。すなわち、土壤水中濃度と水耕液中濃度が等しい場合には、竜ヶ崎および取手土壤の生育抑制または生育抑制軽減効果は水耕法とほぼ同程度を示した。プレチラクロールの土壤水中濃度が 1.1 nmol/ml の場合、 I_{25} を示すフェンクロリムの濃度は、土壤水(竜ヶ崎)で 2.0、同(取手)で 1.5、水耕液で 1.6 nmol/ml であった(Fig. 3-6)。しかし、土壤中全存在量との関係で見ると、 I_{25} を示すフェンクロリムの濃度は、竜ヶ崎で 112.9、取手で 147.7 nmol/ml と、水耕法における軽減効果と一致しなかった(Fig. 3-7)。

土壤中での薬剤の活性は土壤中の全存在量でなく、土壤水中濃度に依存することは、これまでに先行報告で確認されている(Kobayashi *et al.* 1994, 1996, 1999a, 1999b; Onoe *et al.* 1995; Nakamura *et al.* 1996; Takahashi *et al.* 2000)。土壤中でのダイムロンまたはフェンクロリムによる生育抑制軽減効果もまた、土壤水中濃度に依存することが明らかになった。しかし、本章 3-2 での結果は薬剤と土壤を均一に混和した条件下での研究であり、水の下方移動が起こる圃場における薬剤の挙動とは異なる。よって、減水条件下における薬剤の挙動について研究する必要がある、これに関して本章 3-3 で述べる。

3-3 湛水処理したプレチラクロール、ダイムロンおよびフェンクロリムの存在形態と生育抑制作用あるいは軽減効果との関係

1) 材料および方法

高さ 1 cm、直径 10.7 cm の輪切 5 個と高さ 5 cm、直径 10.7 cm の輪切 1 個を組み合わせた塩ビ製カラム(Fig. 3-8)に、風乾した竜ヶ崎または取手土壤を入れ、全体を代かきして湛水状態に保ち水深を 1 cm に設定した。2 日後に各薬剤とも

10 nmol/ml の濃度(プレチラクロール 519 g-a.i./ha、ダイムロン 447 g-a.i./ha、フェンクロリム 375 g-a.i./ha)に相当するように溶液 150 ml をそれぞれ処理した。各薬剤処理後 1、3、6 日目に深さ 5 cm まで 1 cm の層ごとに分けて、二層遠心管に移して 13,000×g で 30 分遠心することにより土壌水と遠心分離土に分け(Kobayashi *et al.* 1994)、各層ごとの土壌水中濃度と土壌吸着量を測定した。分析は本章 3-2 と同様の方法で行った。

2) 結果および考察

Fig. 3-9 に、湛水処理における竜ヶ崎および取手土壌のプレチラクロール、ダイムロン、フェンクロリムの田面水中および土壌水中濃度の経時変化を示した。各薬剤とも田面水中の濃度は、処理直後に 6.3 nmol/ml(Fig. 3-9)を示したが、その後、時間の経過につれて急激に減少した。この傾向は、フェンクロリムの場合で最も顕著で、処理後 3 日目までに竜ヶ崎、取手のいずれの土壌においても検出限界以下となった。一方、プレチラクロールとダイムロンは、竜ヶ崎、取手とも処理後 1 日目に、それぞれ 2.7、3.2 および 3.3、2.9 nmol/ml、同 6 日目にはそれぞれ 0.7、1.3 および 0.9、1.0 nmol/ml となり、フェンクロリムよりも緩やかな減少となった。

竜ヶ崎および取手土壌のプレチラクロールとダイムロンの 0-1 cm 層の土壌水中濃度は、処理後 1 日目にはそれぞれ 1.0、1.4 および、0.5、0.7 nmol/ml であり、処理後 6 日目はそれぞれ 0.6、0.8 および 0.5、0.7 nmol/ml とわずかに減少ないしは横ばいであった。これに対して、フェンクロリムの 0-1 cm 層の土壌水中濃度(処理後 1 日目)はプレチラクロールとダイムロンよりも低く(それぞれ 0.5、0.1 nmol/ml)、また減少速度も大きかった。土壌間で比較した場合、各薬剤のいずれの土壌水中濃度も竜ヶ崎土壌が取手土壌より高いことが確認された。フェンクロリムの田面水および 0-1 cm 層の濃度の減少が大きいことから、フェンクロ

リムの土壌水中濃度は処理期間を通して相当小さくなったが、本章 3-2 の混和処理の場合、フェンクロリムに比べて、逆にプレチラクロールの土壌水中濃度の減少が大きく(Fig. 3-3)、湛水処理と混和処理で異なっていた。湛水処理では田面水に光が当たることから、フェンクロリムは光などによる化学的分解が起こる(Hatzios 1998)ので、プレチラクロールやダイムロンよりも減少が大きいものと思われる。0.5 cm 移植時におけるイネのプレチラクロール生育抑制作用に対するダイムロンの軽減効果がフェンクロリムよりも大きいことは、0-1 cm 層のダイムロンの土壌水中濃度が、フェンクロリムよりも大きいことに起因していると考えられる。また、土壌間でも、軽減効果の大きい竜ヶ崎土壌が土壌水中濃度においても高いことと関係していると想定される。

処理後 1 日目の 0-1 cm 層の乾土あたり土壌固相吸着量(Fig. 3-10)ならびに土壌中全存在量(Fig. 3-11)は、プレチラクロールやダイムロンがフェンクロリムよりも高かったが、このことは、田面水中での分解がフェンクロリムでプレチラクロールやダイムロンよりも高いことと関係していると考えられる(Fig. 3-9)。また、竜ヶ崎土壌が取手土壌より吸着量が多かった。その理由としては、取手土壌では竜ヶ崎土壌に比べて、土壌水分含量が高いこと、ならびに沈降速度が遅いので、0-1 cm 層の土壌容積に関して、竜ヶ崎土壌より取手土壌が大きい。それゆえに、単位重量あたりの土壌吸着量(Fig. 3-10)は竜ヶ崎土壌でより大きくなったと考えられる。また、生土壌容積あたりの全存在量も同じ理由で竜ヶ崎土壌において大きくなった(Fig. 3-11)と考えられる。次に、経時的な挙動を見ると、各薬剤の吸着量および全存在量は、両土壌ともプレチラクロールとダイムロンで経時的な増加傾向を示したが、その経時的増加は竜ヶ崎土壌が取手土壌より高かった。また、プレチラクロールとダイムロンは、処理後 3 日目以降に 1-2 cm 層でもわずかに存在したのみであり、これら 2 薬剤の移動性は小さいと考えられる。フェンクロリムは実験期間を通して増加が見られず、1-2 cm 層で

の存在が確認されなかったが、この理由として高い吸着性および分解性が関係していると考えられる。以上のことから、竜ヶ崎および取手土壌では、プレチラクロールとダイムロンはわずかに下方移動をするけれども、フェンクロリムも含めて各薬剤とも 0-1 cm 層にはっきりとした薬剤処理層が形成されることが示された。

プレチラクロールの生育抑制は、イネの茎葉基部および根部と処理層の接触により発現することが報告されている(Murakami *et al.* 1983; Murakami 1990; Kobayashi *et al.* 1999a)。また、本研究において、プレチラクロールによる生育抑制ならびにダイムロンおよびフェンクロリムの軽減効果は 2.0 cm 移植時よりも 0.5 cm 移植時で大きかったことを第 2 章 2-4 で明らかにした。これらの結果は、除草剤および薬害軽減剤の活性が表層に形成される薬剤処理層と密接に関係していることを示している。減水条件下におけるプレチラクロールのイネ根部の生育抑制作用またはダイムロン、フェンクロリムによる軽減効果(移植深度 0.5 cm)と、0-1 cm の土壌水中濃度または土壌中全存在量(いずれも処理後 1 日目の値)との関係について Figs. 3-12~15 に示した。なお、Figs. 3-12~15 の土壌水中濃度と土壌中全存在量は、それぞれ Fig. 3-9 および Fig. 3-11 から算出した。0.5 cm 移植時のプレチラクロールの生育抑制作用は、竜ヶ崎土壌では 0-1 cm 層の土壌水中濃度が 1.0 nmol/ml の場合には、対照区と比較して 42 %の生育抑制、取手土壌では 1.0 nmol/ml の場合には、同様に 42 %の生育抑制となり、第 2 章 2-2 の水耕法ならびに本章 3-2 の混和処理における活性とほぼ一致し、土壌水中濃度に依存していることが確認された。

プレチラクロールの土壌水中濃度が 1.0 nmol/ml の場合、ダイムロンに関して、前述した I_{25} を示すダイムロンの 0-1 cm 層の土壌水中濃度(nmol/ml)は、竜ヶ崎で 1.3、取手で 1.3 とほぼ一致し(Fig. 3-12)、また、本章 3-2 で示した混和処理(竜ヶ崎:2.1、取手:2.1)ならびに水耕法における I_{25} (2.4)と、大差はなかった(Fig. 3-5)。

これに対して、土壌中全存在量との関係で見ると、 I_{25} を示すダイムロンの濃度 (nmol/ml) は、竜ヶ崎で 25.2、取手で 26.9 と、水耕法(第 2 章 2-2)および混和処理(本章 3-2)における軽減効果と比較すると約 11~12 倍と土壌水中濃度の場合より大きく、これらの間には密接な関係が見られなかった(Fig. 3-13)。

フェンクロリムの軽減効果も、ダイムロンと同様に土壌水中濃度に依存した。プレチラクロールの土壌水中濃度が 1.0 nmol/ml の場合、 I_{25} を示すフェンクロリムの濃度は、竜ヶ崎で 0.7、取手 1.1 nmol/ml で水耕法および混和処理のそれに近い値を示した。しかし、土壌中全存在量との関係で見ると、ダイムロン同様に土壌間では大きな差が見られなかったけれども、水耕法における活性とは大きな差があり、 I_{25} は、竜ヶ崎で 30.6、取手で 56.1 nmol/ml であった(Fig. 3-14 および Fig. 3-15)。

以上の結果から、湛水条件下で、田面水に処理した場合のイネに対するプレチラクロールの生育抑制作用に対するダイムロンおよびフェンクロリムの軽減効果は土壌水中濃度に依存し、これらを支配する土壌水中濃度は、各剤の移動性や分解性、さらにはイネの移植深度により影響を受けることが明らかにされた。従って、土壌中におけるイネのプレチラクロール生育抑制作用に対するダイムロンとフェンクロリムの軽減効果は、土壌中の吸着や分解、移動に支配されて存在する処理層中の土壌水中に溶存する薬剤とイネの薬剤吸収部位が接触することにより発現すると考えられる。

本章 3-2 の混和処理における挙動も含め、土壌中における各剤の挙動は主として土壌吸着により支配されるが、移動性や分解性などの要因も活性の主因である土壌水中濃度への寄与する点で重要であると考えられ、第 4 章で検討した。

3-4 要約

二層遠心管を用いた遠心分離法を用いて、混和処理および湛水処理における

プレチラクロール、ダイムロンおよびフェンクロリムの土壌水中濃度および固相吸着量を直接測定することによって、土壌中における各剤の挙動を調べ、それらの活性との関係を解析した。結果は以下の通りである。

1. 混和処理における処理直後の土壌水中濃度は、竜ヶ崎土壌が取手土壌より高く、プレチラクロールとダイムロンがフェンクロリムより高かった。一方、処理直後の土壌固相吸着量および全存在量は、土壌間および薬剤間で差異が見られなかった。
2. 混和処理における土壌水中濃度の経時的減少は、プレチラクロール、フェンクロリム、ダイムロンの順に低下したのに対し、土壌間では著しい差が見られなかった。土壌水中濃度の経時的減少の薬剤間差は分解に起因すると考えられた。固相吸着量および全存在量でも減少が見られたが、土壌水中濃度の減少にともなう脱着によると思われた。
3. 湛水処理における処理後 1 日目の田面水中濃度および土壌水中濃度は、竜ヶ崎土壌が取手土壌より高く、プレチラクロールとダイムロンがフェンクロリムより高かった。各薬剤の田面水中濃度および土壌水中濃度は経時的に減少する傾向が見られ、フェンクロリムの減少が最も大きかった。
4. 湛水処理における 3 薬剤の下方移動性は小さく表層 1 cm 以内に処理層を形成した。しかし、竜ヶ崎土壌と取手土壌の間で移動性に差が見られず、取手土壌では竜ヶ崎土壌に比べて、土壌水分含量が高いこと、ならびに沈降速度が遅く 0-1 cm の土壌固相容積が大きいために、単位重量あるいは容積あたりで求めた土壌固相吸着量は竜ヶ崎土壌よりも少なかったことが関与しているものと考えられた。処理直後の土壌固相吸着量および全存在量も、薬剤間および土壌間では土壌水中濃度と類似の傾向となったが、土壌水中濃度に比べると差異は小さかった。この要因として、各薬剤の吸着速度ならびに 0-1 cm の土壌固相容積の相違が関係しているものと考えられた。

固相吸着量ならびに全存在量の経時変化はプレチラクロールとダイムロンで増加傾向が見られたのに対し、フェンクロリムではほとんど増加しなかった。

5. 混和処理ならびに湛水処理におけるダイムロンおよびフェンクロリムの軽減効果と土壤水中濃度の間には密接な関係が認められ、土壤水中濃度が同じであれば、竜ヶ崎土壤と取手土壤でほぼ一致した。これに対して、土壤中全存在量との間には、密接な関係は認められなかった。以上より、土壤中での軽減効果は、薬剤吸収部位の接触する場における土壤水中濃度に依存して発現し、また、この濃度が土壤間で異なることにより、土壤間差が発現するものと考えられた。

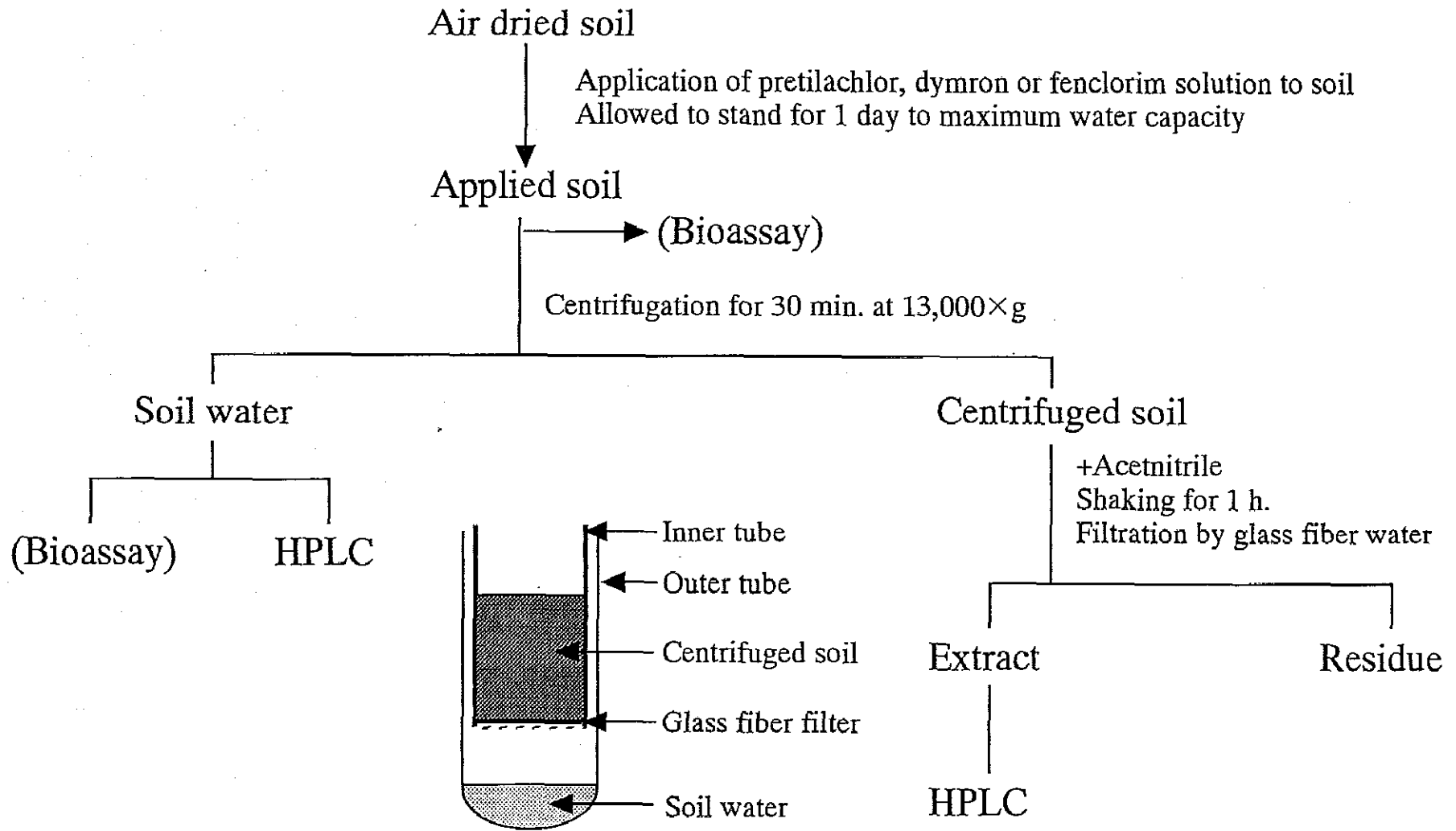


Fig. 3-1. Scheme for determination of the content of pretilachlor, dymron or fenclorim in soil water and soil solid.

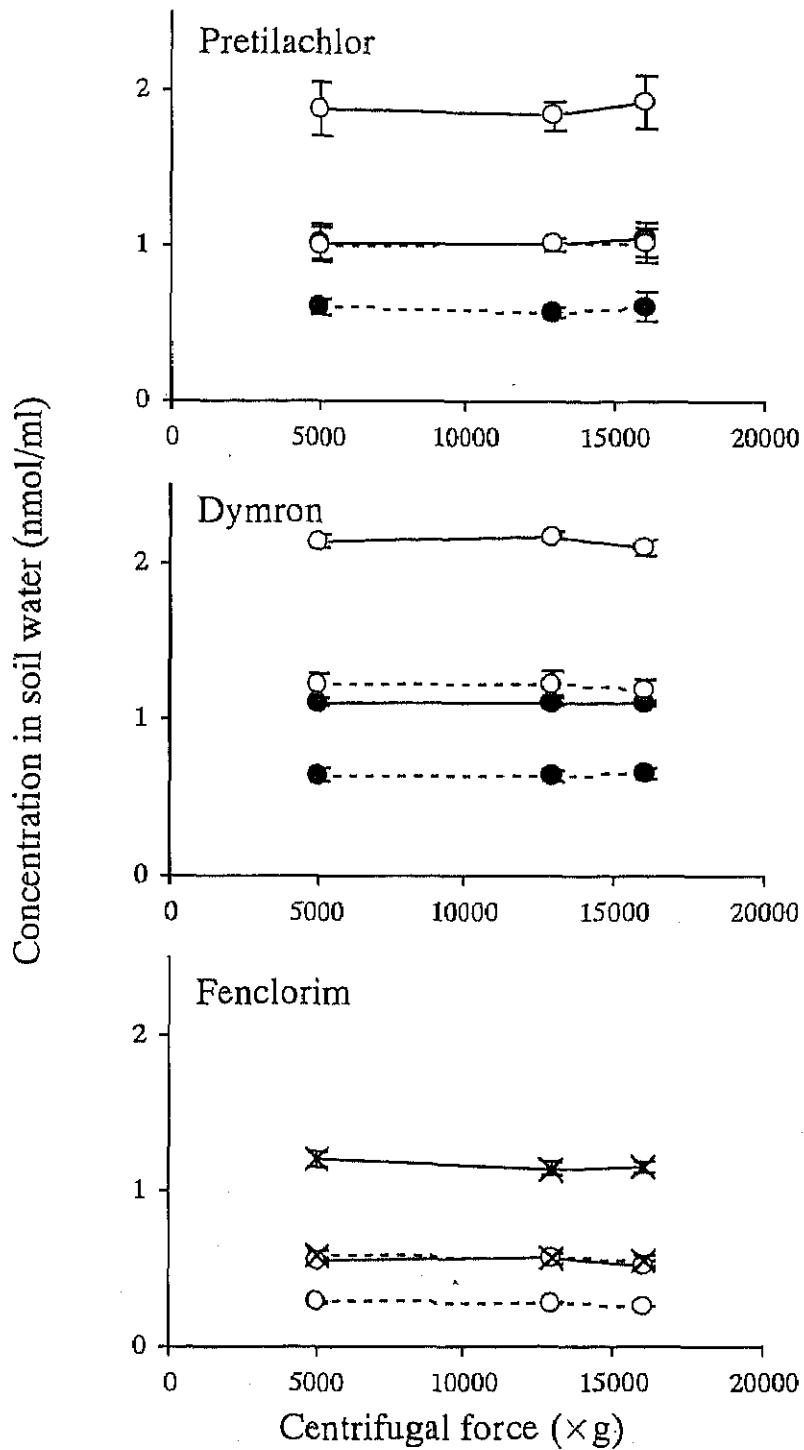


Fig. 3-2. Concentration of pretilachlor, dymron and fenclorim in soil water at different centrifugal forces.

- Ryugasaki (5 nmol/ml)
- Ryugasaki (10nmol/ml)
- ×— Ryugasaki (20nmol/ml)
- Toride (5 nmol/ml)
- Toride (10nmol/ml)
- ×--- Toride (20nmol/ml)

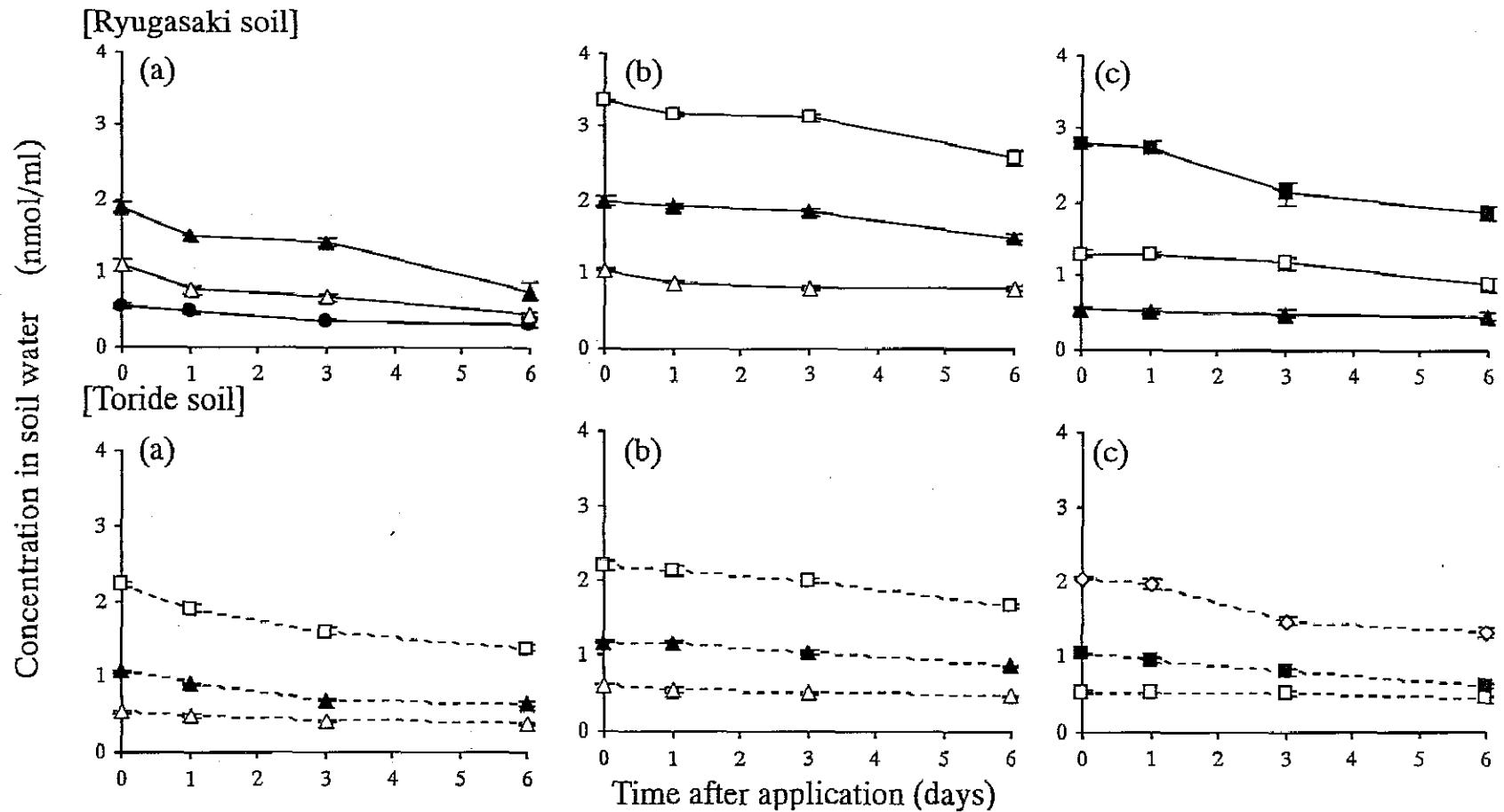


Fig. 3-3. Time-course of the concentration of (a) pretilachlor, (b) dymron and (c) fenclorim in soil water in Ryugasaki and Toride soils. Applied concentration of the herbicides (nmol/ml); ●, 2.5; △, 5.0; ▲, 10.0; □, 20.0; ■, 40.0; ◇, 80.0, respectively. Vertical bars indicate standard errors.

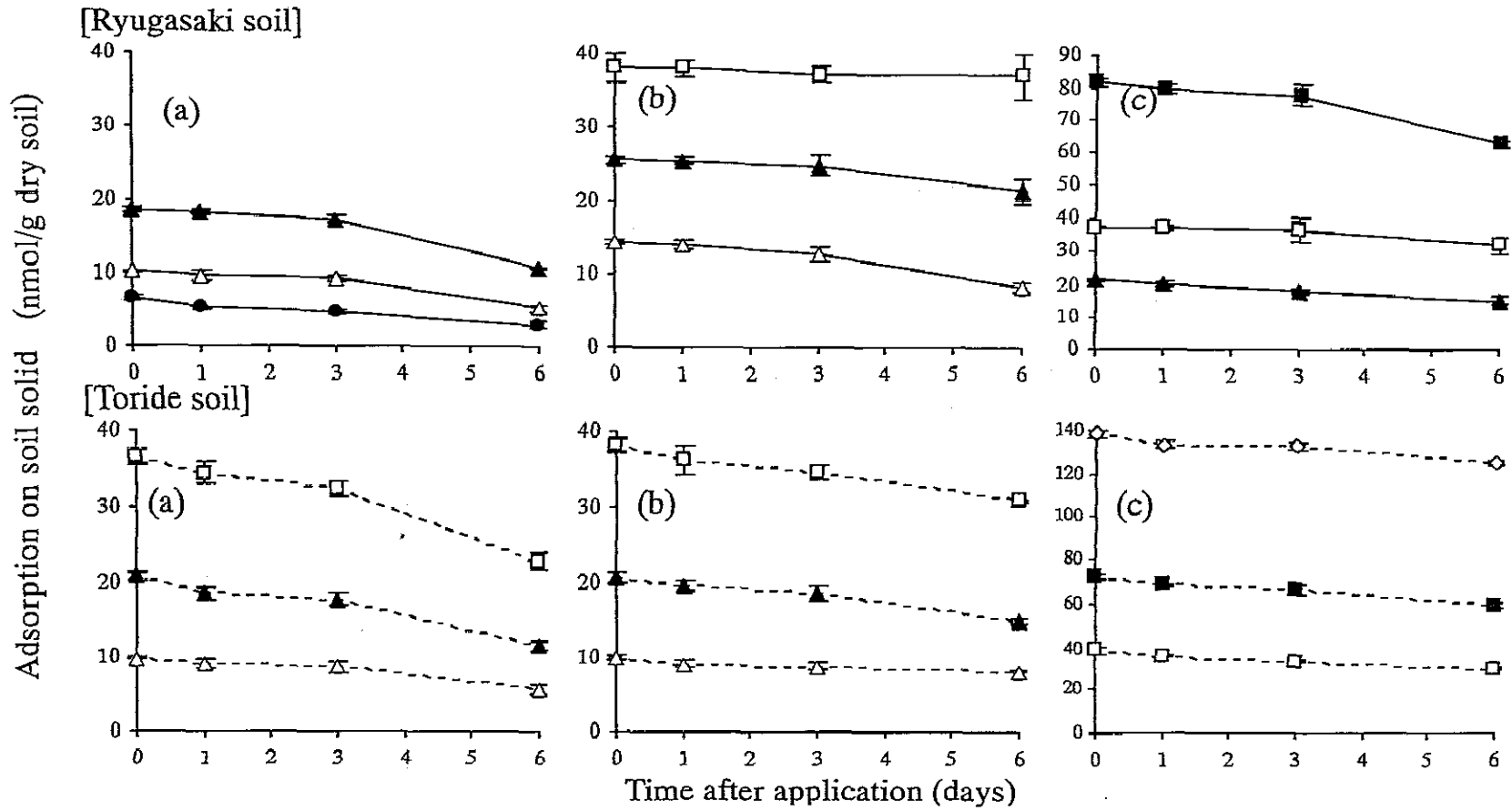


Fig. 3-4. Time-course of the amount of adsorption of (a) pretilachlor, (b) dymron and (c) fenclorim on soil solid in Ryugasaki and Toride soils. Applied concentration of the herbicides (nmol/ml); ●, 2.5; △, 5.0; ▲, 10.0; □, 20.0; ■, 40.0; ◇, 80.0, respectively. Vertical bars indicate standard errors.

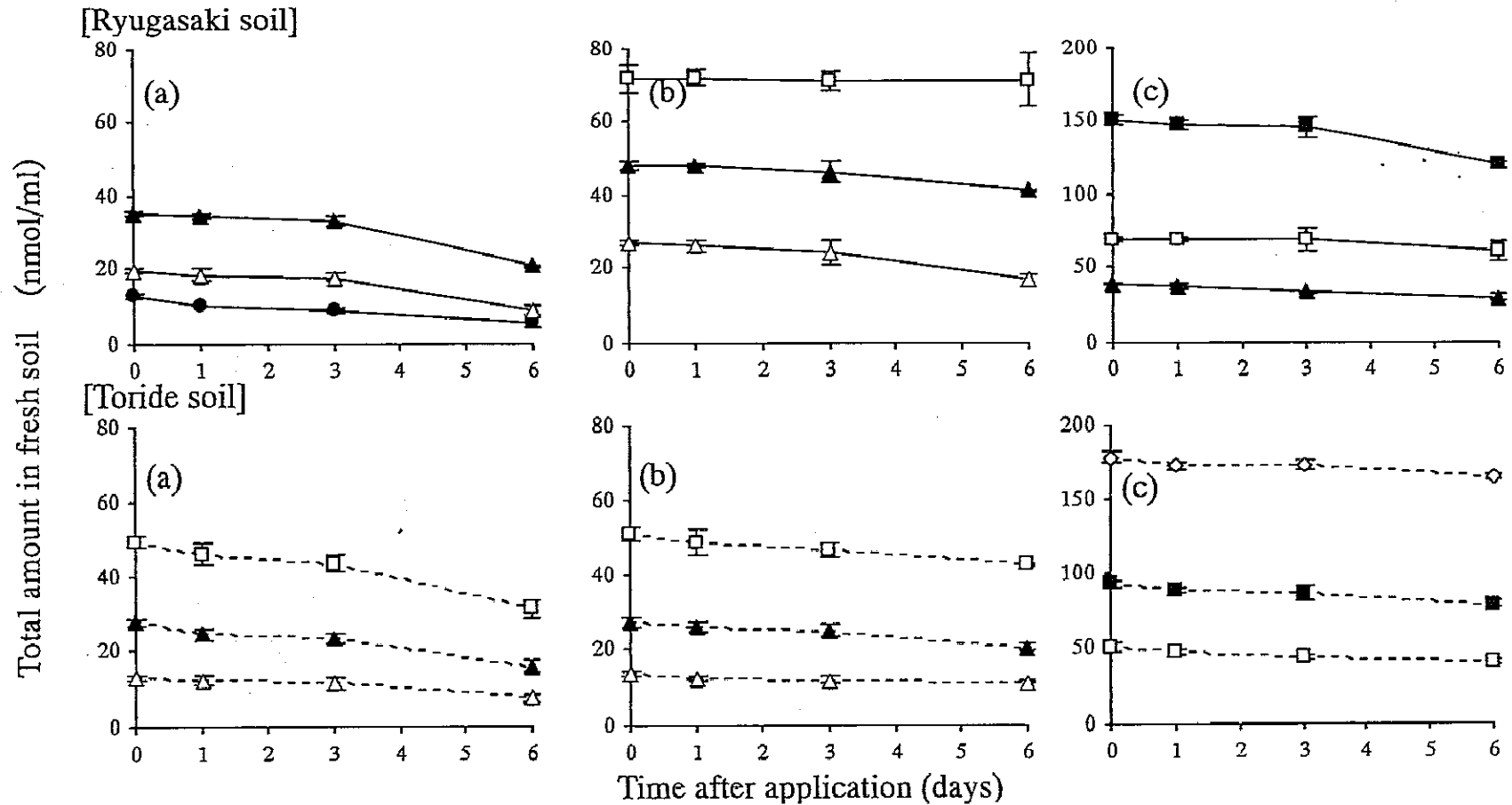


Fig. 3-5. Time-course of the total amount of (a) pretilachlor, (b) dymron and (c) fenclorim in Ryugasaki and Toride fresh soils. Applied concentration of the herbicides (nmol/ml); ●, 2.5; △, 5.0; ▲, 10.0; □, 20.0; ■, 40.0; ◇, 80.0, respectively. Vertical bars indicate standard errors.

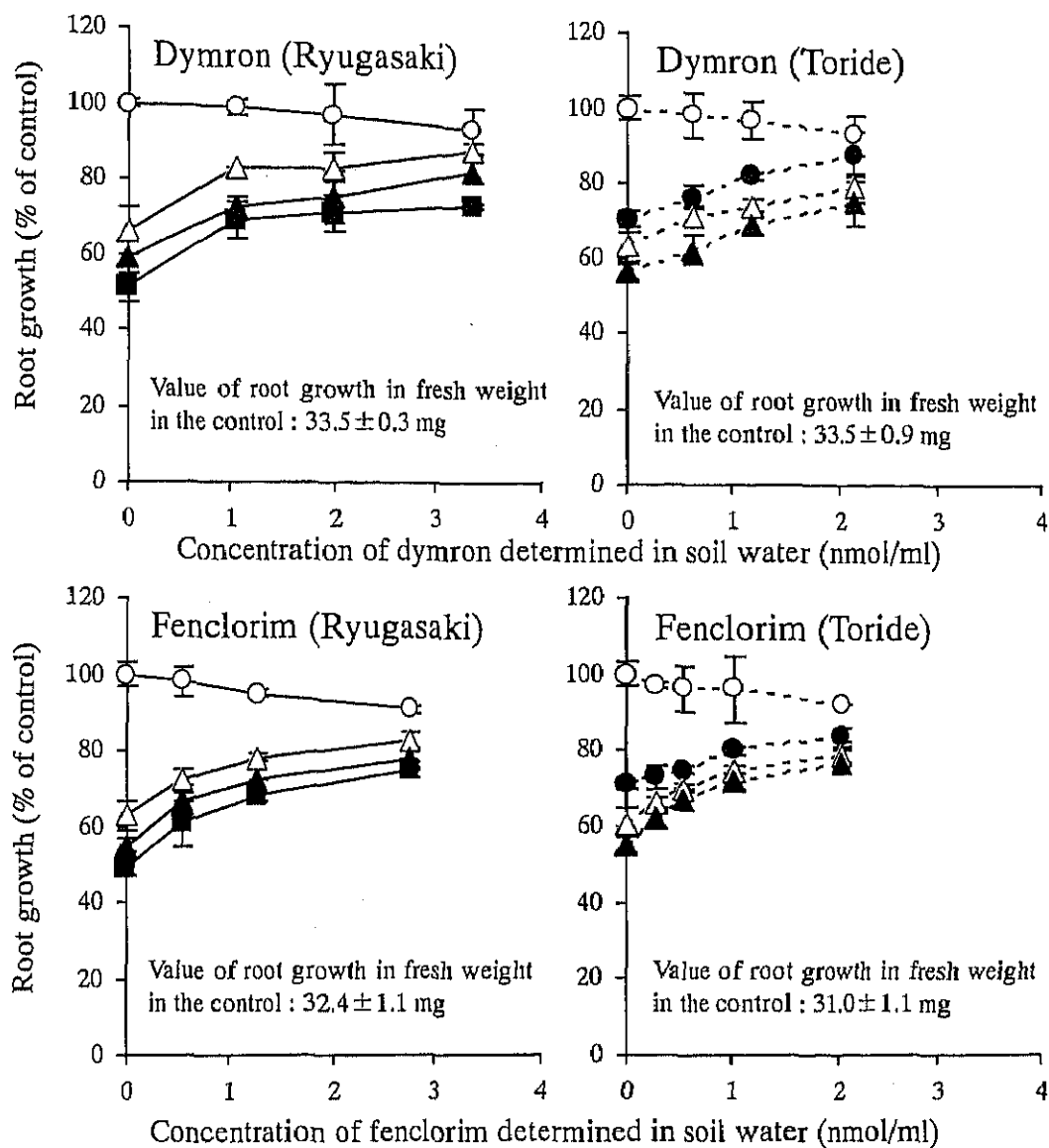


Fig. 3-6. Relationship between the growth of rice and the amount of pretilachlor, dymron and fenclorim in soil water in Ryugasaki and Toride soils. Vertical lines indicate standard error of the means. The growth of rice in water culture is shown in Fig. 2-1.

The concentration of pretilachlor determined in soil water (nmol/ml)
 ○, 0.0 △, 0.6 ▲, 1.1 ■, 1.9

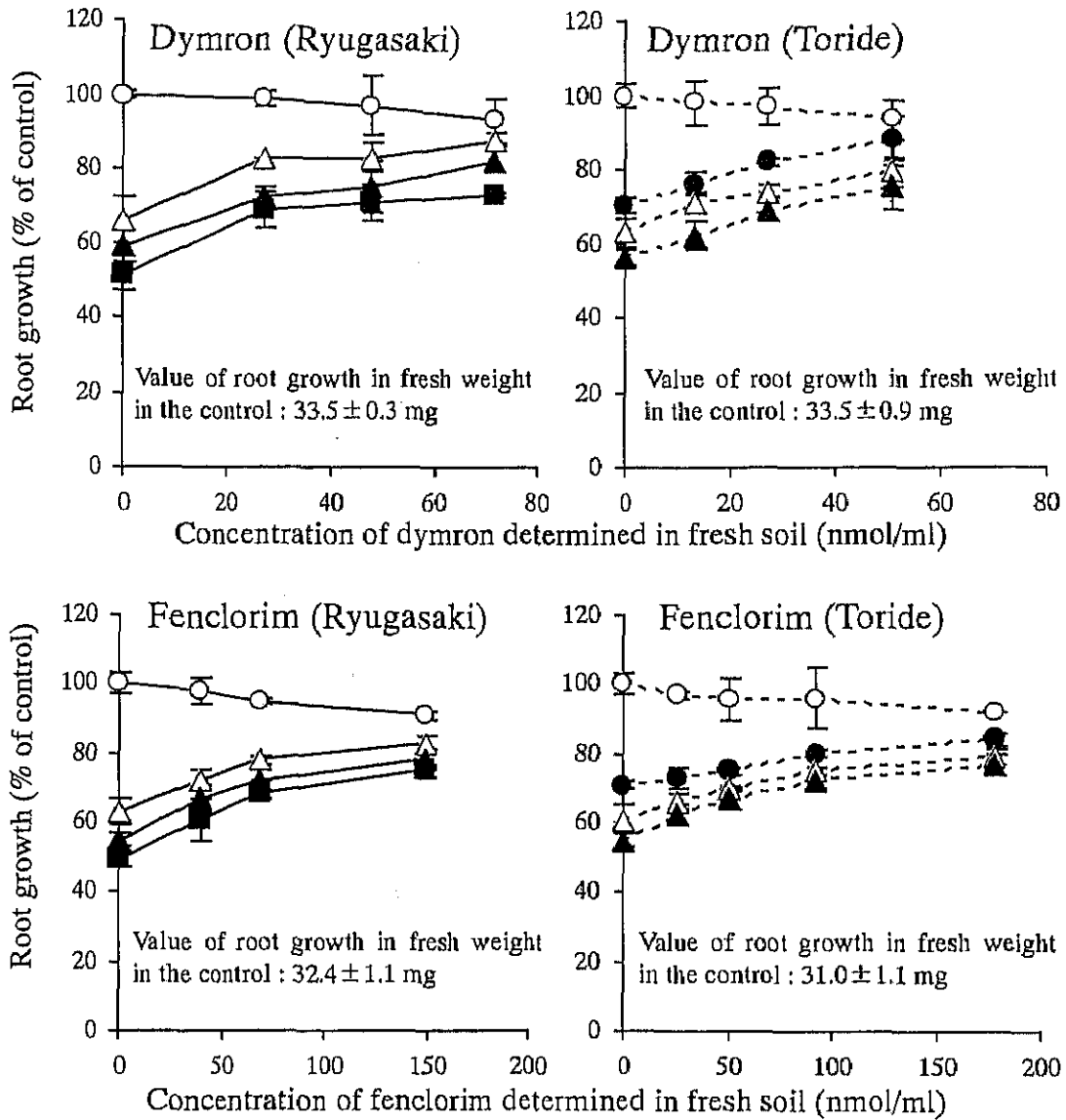


Fig. 3-7. Relationship between the growth of rice and the amount of pretilachlor, dymron and fenclorim in fresh soil in Ryugasaki and Toride soils. Vertical lines indicate standard error of the means. The growth of rice in water culture is shown in Fig. 2-1.

The concentration of pretilachlor determined in fresh soil (nmol/ml)

○, 0.0 △, 12.9 ▲, 19.6 ■, 35.4 (Ryugasaki)

○, 0.0 ●, 6.9 △, 13.5 ▲, 27.7 ■, 48.9 (Toride)

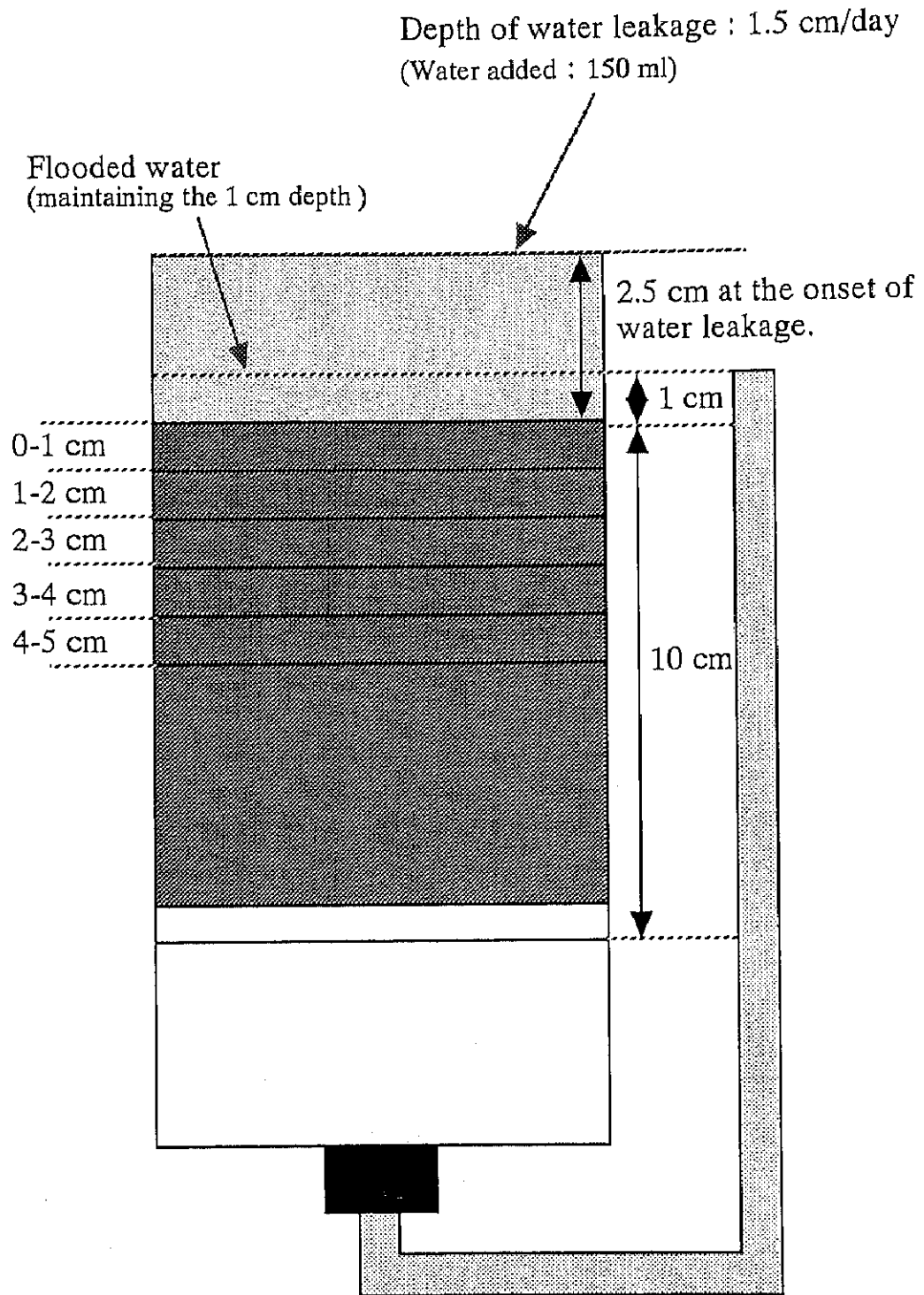


Fig. 3-8. Scheme for determination of the content of pretilachlor, dymron or fenclorim in soil-surface application under water leakage condition.

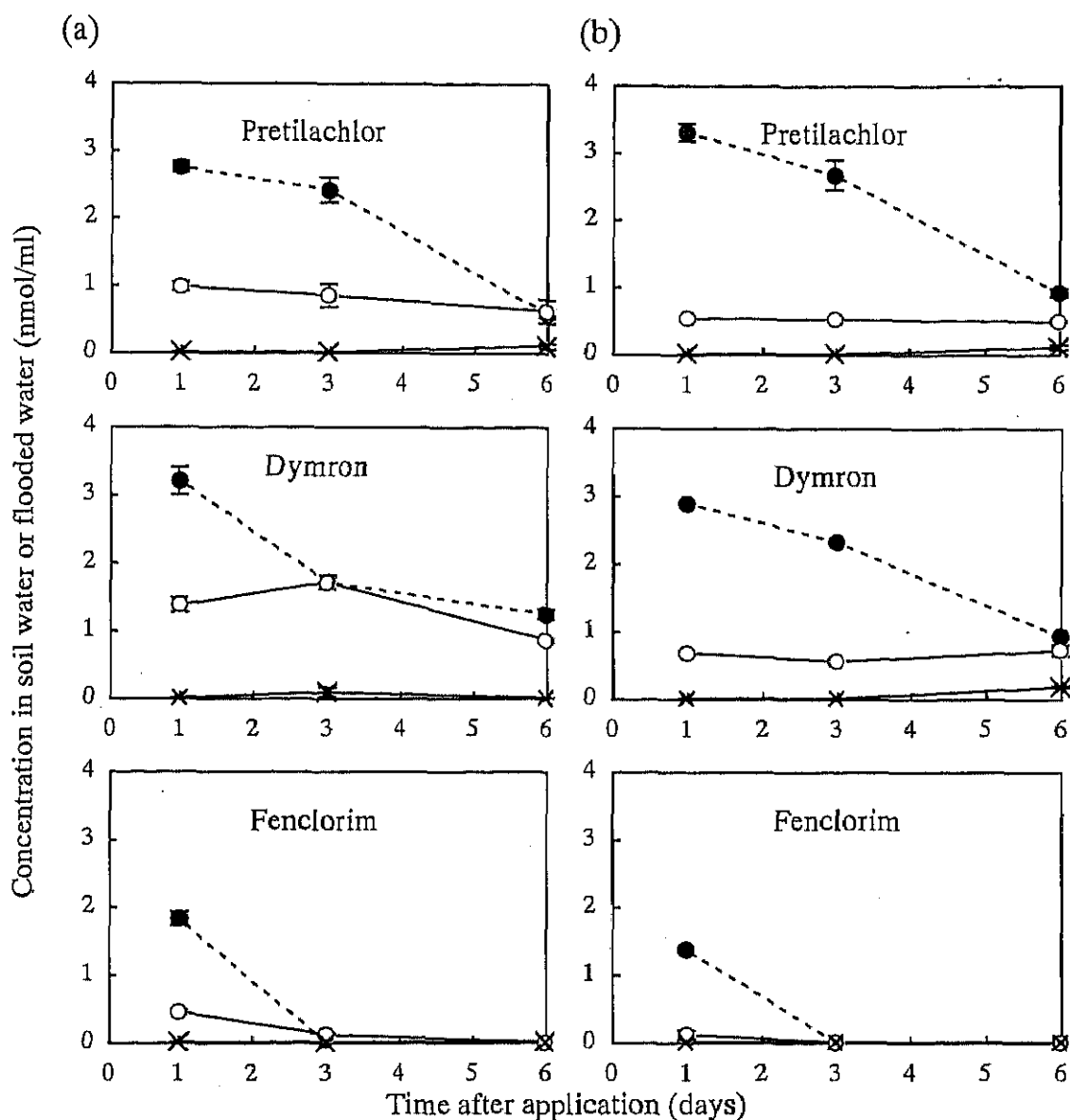


Fig. 3-9. Time-course of the concentration of pretilachlor, dymron and fenclorim in soil water in (a) Ryugasaki and (b) Toride soils. Applied concentration of each chemical is 10 nmol/ml, and its concentration in flooded water is 6.3 nmol/ml, respectively. The soil layer (cm) from surface; (●) flooded water, (○) 0-1, (×) 1-2. Vertical lines indicate SE. Each chemical was not detected in the 2-3 cm and the deeper layers.

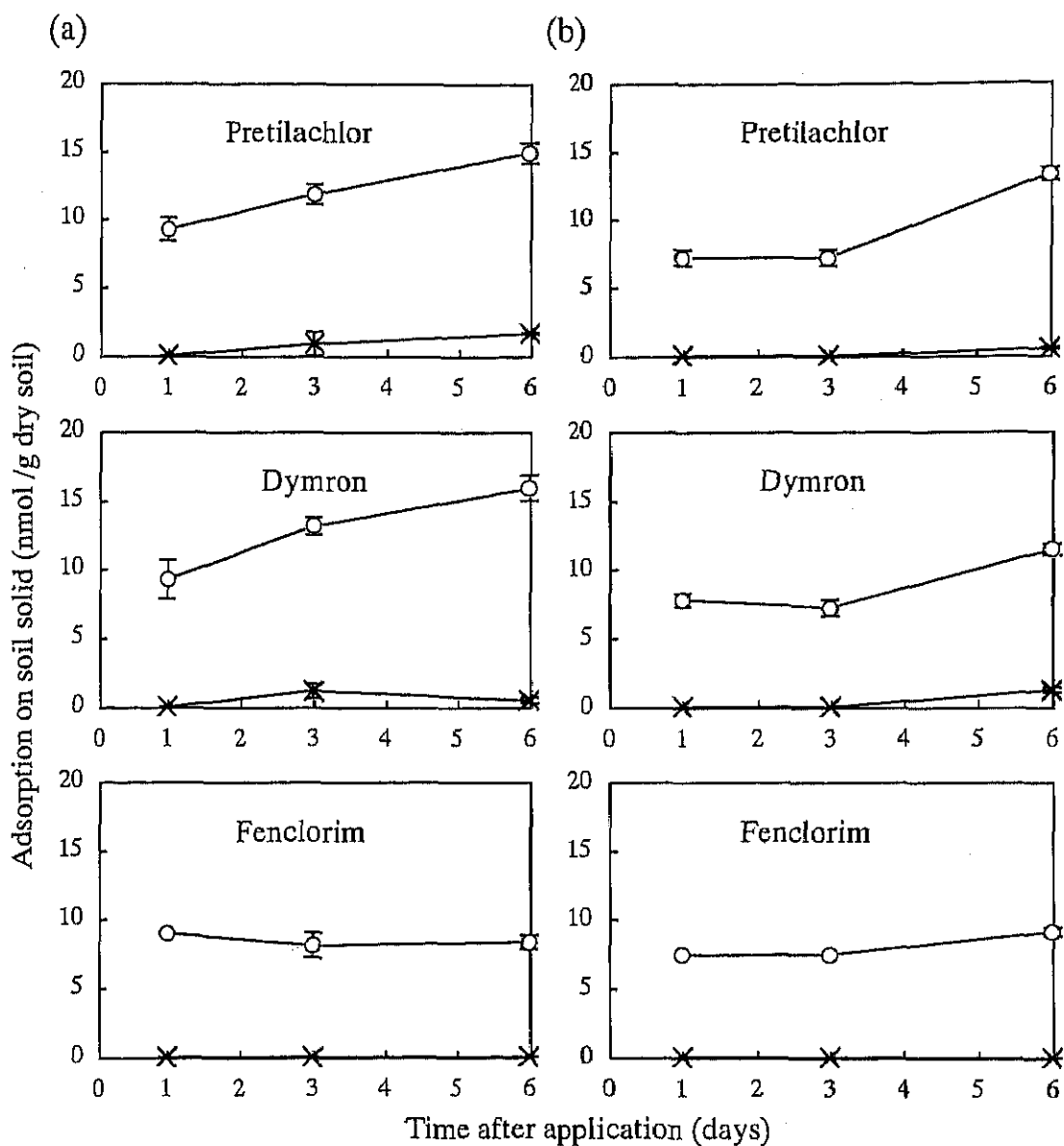


Fig. 3-10. Time-course of the amount of adsorption of pretilachlor, dymron and fenclorim on soil solid in (a) Ryugasaki and (b) Toride soils. Applied concentration of each chemical is 10 nmol/ml. The soil layer (cm) from surface; (O) 0-1, (×) 1-2. Vertical lines indicate SE. Each chemical was not detected in the 2-3 cm and the deeper layers.

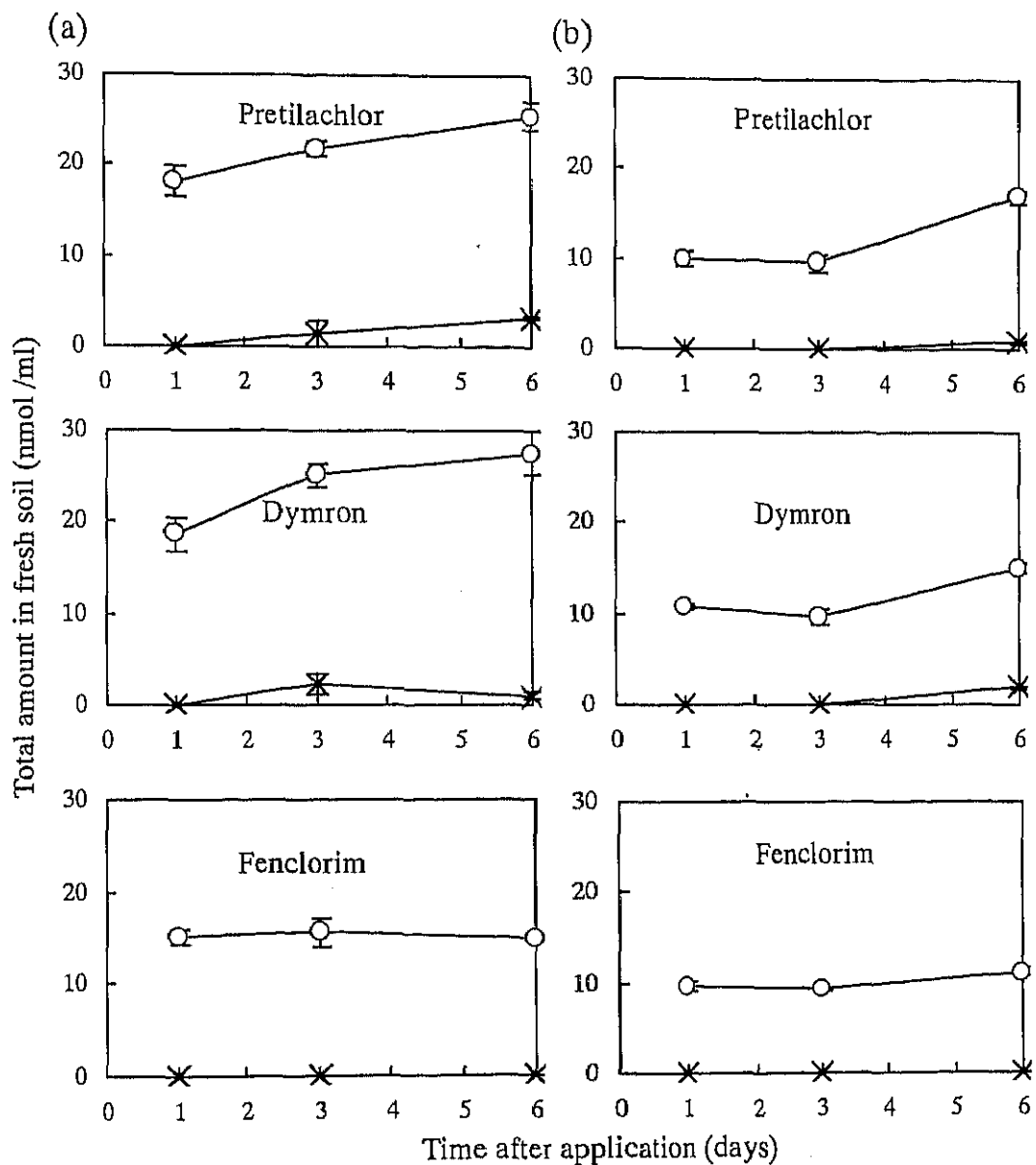


Fig. 3-11. Time-course of the total amount of pretilachlor, dymron and fenclorim in fresh soil in (a) Ryugasaki and (b) Toride soils. Applied concentration of each chemical is 10 nmol/ml. The soil layer (cm) from surface; (O) 0-1, (x) 1-2. Vertical lines indicate SE. Each chemical was not detected in the 2-3 cm and the deeper layers.

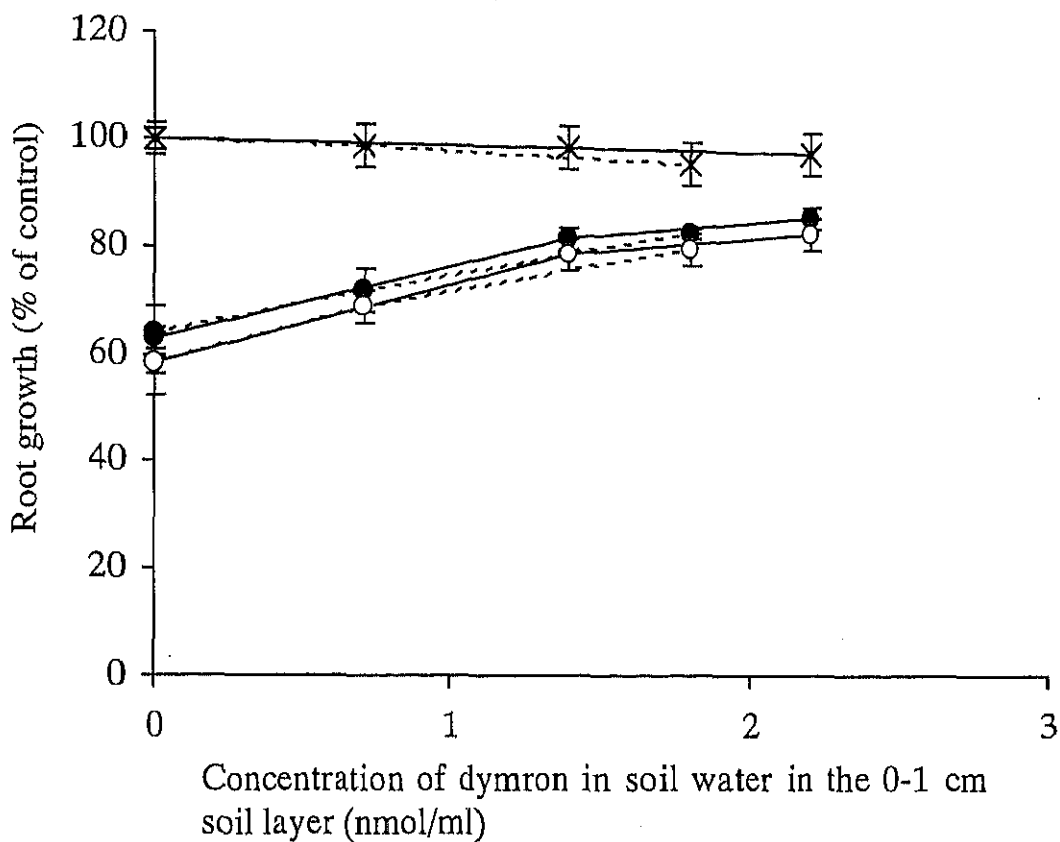


Fig. 3-12. Relationship between the growth of rice transplanted at 0.5 cm depth in soil and the amount of pretilachlor and dymron in soil water. Values of growth of root fresh weight of control were 80.1 ± 2.4 mg in the case of Ryugasaki soil and 80.8 ± 1.4 mg in the case of Toride soil. Vertical lines indicate standard errors. The growth of rice in water culture is shown in Fig. 2-1.

The concentration of pretilachlor determined in soil water in the 0-1 cm soil layer (nmol/ml)

- | | | | |
|-----|-----------------|---------|--------------|
| —x— | 0.0 (Ryugasaki) | ---x--- | 0.0 (Toride) |
| —●— | 0.5 (Ryugasaki) | ---●--- | 0.5 (Toride) |
| —○— | 1.0 (Ryugasaki) | ---○--- | 1.0 (Toride) |

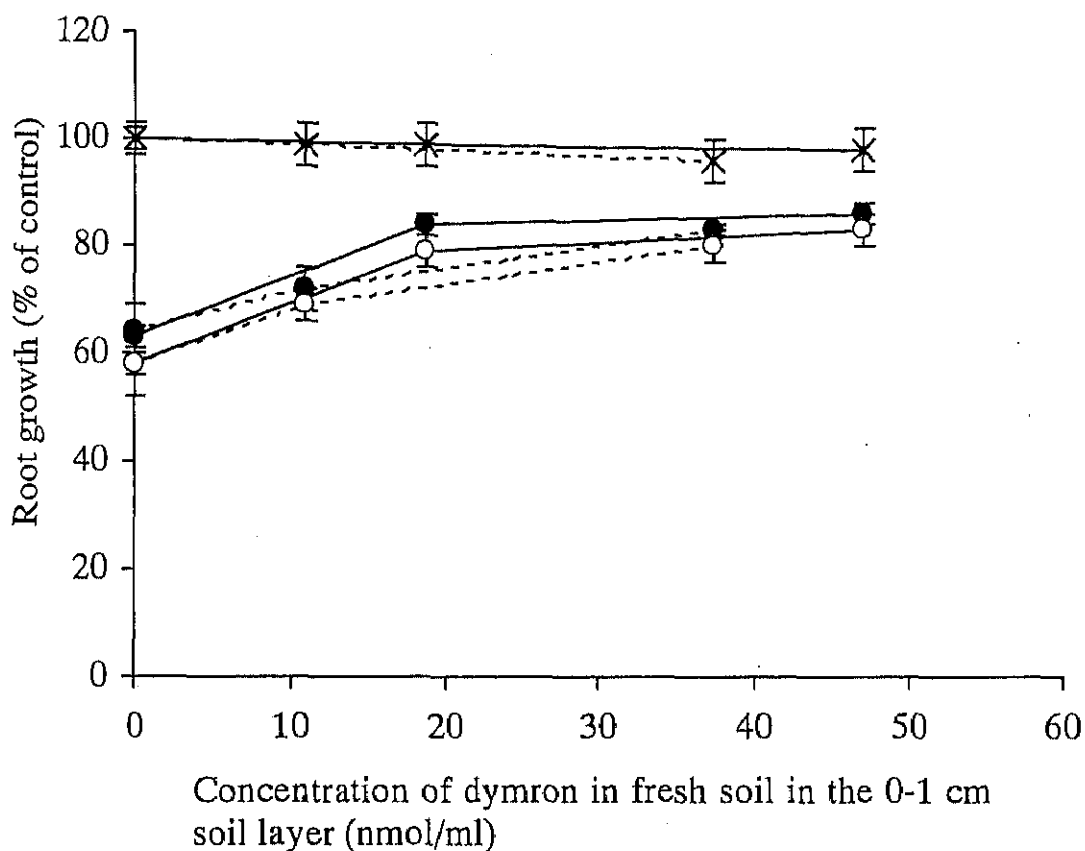


Fig. 3-13. Relationship between the growth of rice transplanted at 0.5 cm depth in soil and the amount of pretilachlor and dymron in fresh soil. Values of growth of root fresh weight of control were 80.1 ± 2.4 mg in the case of Ryugasaki soil and 80.8 ± 1.4 mg in the case of Toride soil. Vertical lines indicate standard errors. The growth of rice in water culture is shown in Fig. 2-1.

The concentration of pretilachlor determined in fresh soil in the 0-1 cm soil layer (nmol/ml)

- | | | | |
|-----|------------------|---------|---------------|
| —×— | 0.0 (Ryugasaki) | ---×--- | 0.0 (Toride) |
| —●— | 8.5 (Ryugasaki) | ---●--- | 9.8 (Toride) |
| —○— | 17.3 (Ryugasaki) | ---○--- | 21.3 (Toride) |

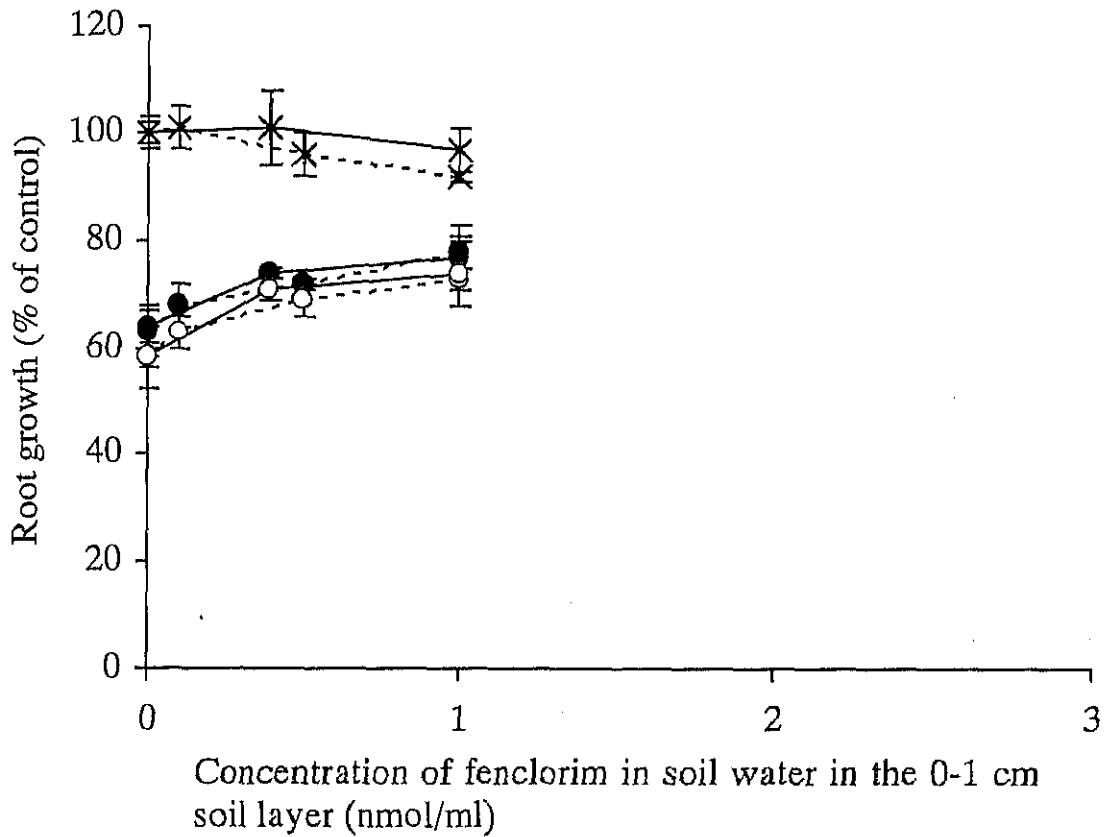


Fig. 3-14. Relationship between the growth of rice transplanted at 0.5 cm depth in soil and the amount of pretilachlor and fenclorim in soil water. Values of growth of root fresh weight of control were 78.4 ± 2.4 mg in the case of Ryugasaki soil and 79.5 ± 2.1 mg in the case of Toride soil. Vertical lines indicate standard errors. The growth of rice in water culture is shown in Fig. 2-1.

The concentration of pretilachlor determined in soil water in the 0-1 cm soil layer (nmol/ml)

- | | |
|---------------------|----------------------|
| —×— 0.0 (Ryugasaki) | ---×--- 0.0 (Toride) |
| —●— 0.5 (Ryugasaki) | ---●--- 0.5 (Toride) |
| —○— 1.0 (Ryugasaki) | ---○--- 1.0 (Toride) |

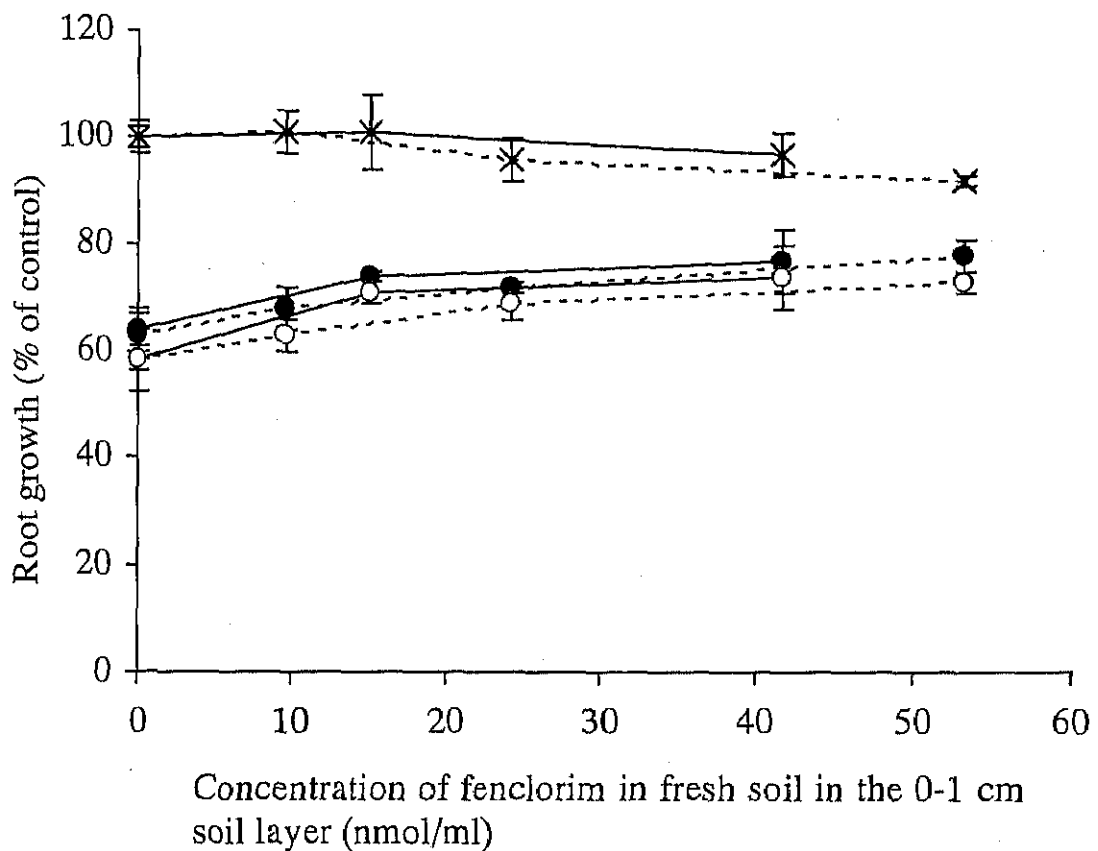


Fig. 3-15. Relationship between the growth of rice transplanted at 0.5 cm depth in soil and the amount of pretilachlor and fenclorim in fresh soil. Values of growth of root fresh weight of control were 78.4 ± 2.4 mg in the case of Ryugasaki soil and 79.5 ± 2.1 mg in the case of Toride soil. Vertical lines indicate standard errors. The growth of rice in water culture is shown in Fig. 2-1.

The concentration of pretilachlor determined in fresh soil in the 0-1 cm soil layer (nmol/ml)

- | | | | |
|-----|------------------|---------|---------------|
| —x— | 0.0 (Ryugasaki) | ---x--- | 0.0 (Toride) |
| —●— | 8.5 (Ryugasaki) | ---●--- | 9.8 (Toride) |
| —○— | 17.3 (Ryugasaki) | ---○--- | 21.3 (Toride) |