

アルドリン・ディルドリンの土壌残留および作物による吸収とその対策

永井 洋三

Persistence of Aldrin in Field Soils and Absorption of Aldrin and Dieldrin in Cucumber and Spinach.

Yōzō Nagai

は し が き

土壌に施用されたアルドリンは主として土壌微生物の作用によりディルドリンに変化し長期間土壌中に残留し土中のアルドリン、ディルドリンはともにその土壌に栽培された作物の根から吸収され収穫物に移行することが知られている。

筆者らは、この事実が作物生産上極めて重大な問題であることを意識し、残留許容量（現在の残留基準）の設定された食品のうち、本県の重要産物であり吸収汚染について検討を要すると思われたきゅうりおよびほうれんそうらについて、栽培土壌におけるアルドリンおよびディルドリンの含有量と収穫物における含有量との関係を明らかにするため、1970年に一連の調査を行なった。さらにこの調査結果にもとずき、残留基準をこえるような作物を生産しないようにするための対策として、1970年10月および11月に後述の安全栽培基準を作り作物指導の資料とした。これらの調査計画および調査結果ならびに安全栽培基準作成の過程等について述べ批判を仰ぎたいと思う。

この調査にあたって分析等に絶大な援助をたまわった各位にお礼申し上げる。また試料採取にあたって、調査対象選定のため各農家における農薬使用歴の聴取、農協の出荷伝票の調査等、多大のお手数をわずらわした関係地区の農業改良普及員、地区予察員、農協職員各位に感謝の意を表する。また分析方法について懇切なご指導を賜った高知県衛生研究所上田雅彦氏、農林省農業技術研究所金沢純氏に厚くお礼申し上げる。

この報告の一部は1971年4月日本応用動物昆虫学会大会および1971年8月そ菜病虫害に関する中国・四国九州地域試験研究打合せ会議で発表した。

I 調査方法および材料

(1) 試料の採取

徳島県内でやさいの主要産地と考えられる3市6郡下から、1966～1970年の間にアルドリン粉剤を施用したほ場で、栽培歴、農薬使用歴の明らかなほ場約50点を取り、土壌についてアルドリン、ディルドリンおよびその他の有機塩素系殺虫剤の分析を行ない、これらのう

ち、きゅうり、ほうれんそう等の作物が栽培されているものについては収穫物を分析に供した。ほうれんそうについてはこの調査と併行して、徳島市鮎喰町の旧農業試験場ほ場にアルドリン4%粉剤を10aあたり1kg 1.5kg、3kg施用した区と無散布区とを設け、9月21日処理播種して11月上旬に収穫し分析して吸収程度を調査した。

(2) 分析方法

土壌は調査対象ほ場内10点から深さ10cmまでの土をとり、よく混和して2kg前後をポリエチレン袋につめて分析場所に運び、風乾して約2mm目のふるいでふるった後30gをとり、アセトン100mlを加えて振盪抽出を行なった。作物はほうれんそうでは20g、きゅうり果実では50gにそれぞれアセトン100mlを加えて振盪抽出した。本法は一般に公定法よりも抽出率がよく、結果の再現性もよいので、より安全な対策樹立のため採用した。

定量はB C Dガスクロマトグラフ（日本電子製JGC-1100型）によった。各試料ごと表に示したカラム2種類以上を使用し、保持時間はストップウォッチ（ヤマト科学製デジタルストップウォッチSW-11）により秒単位で測定してピークを同定した。

分析の対象がきわめて広汎にわたること、分析担当者が経験に乏しいこと、標準試薬が充分用意できないことなどの理由により、絶対検量線法によりアルドリン、ディルドリン等の定量を行なった。

第1表 分析に使用したカラム

| 液相* | 担体** | 粒度 | 長さ |
|----------|-----------------|------------|-----|
| PEG A 5% | Chromosorb W-AW | 60-80 mesh | 1 m |
| QF-1 5% | " | " | 2 m |
| OV-17 2% | " | " | 2 m |
| OV-17 3% | " | " | 2 m |
| QF-1 1% | " | " | 2 m |

* B H Cの分析を行わない場合はDC-11, OV-101などがよい結果を得る。

** この担体ではシリコン系液相でエンドリンが分解しやすい。

II 分析結果および考察

(1) 土壌の分析結果

分析を行なった土壌は砂土から埴土までの種々の土質のものを含み、畑作地帯、水田裏作の土壌あり、露地、ハウス内等かなり変化に富むものであった。

第2表 アルドリン粉剤施用量、施用後経過年数とアルドリン、ディルドリンの土壌残留量

| 経過年数 10a の 施用量 | 0 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 |
|-------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|--------------|
| 1 kg以下 | 0.007~0.8 (2) | | 0.062 (1) | | | |
| 2 kg以下 | 0.275~1.2 (2) | | 0.056 (1) | | 0.154 (1) | |
| 3 kg以下 | 0.075~2.07 0.72 (4) | 0.184~0.50 (2) | 0.094~0.78 0.30 (4) | 0.045~0.38 0.16 (7) | 0.008~0.49 0.19 (6) | 0.006 (1) |
| 5 kg以下 | 0.025~1.69 0.80 (3) | 0.106~0.35 0.19 (4) | 0.061~0.22 0.15 (3) | 0.14 (1) | | |
| 6 kg以下 | 0.009~0.90 (2) | | 0.86 (1) | 0.28~0.31 (2) | 0.020 (1) | |
| 9 kg以下 | | 1.64 (1) | | 0.173 (1) | | |
| 12 kg以下 | 0.69 (1) | | 0.12 (1) | | | |
| 15 kg以下 | 3.0~14.8 7.8 (4) | 3.0 (1) | | 0.029 (1) | | |

- 1) アルドリンとディルドリンとの合計量 (ppm) で示した。
- 2) 各欄の上段は最小値~最大値、中段は平均値、下段 () 内は例数を示した。

土壌のアルドリンおよびディルドリンの分析結果から両者の合計値 (風乾土あたり ppm) を算出し、アルドリン粉剤の施用年次、施用量別に整理したものを第2表に示す。後述のように土壌におけるアルドリンとディルドリンとの合計の半減期は一般に1年弱と考えられるので、2年以上にわたって施用されている場合は施用量の半分を次年の施用量に加えて一度に施用したものとして記入した。

アルドリンとディルドリンとの合計値は、施用年が同一で施用量が同じであってもかなり大巾な変動があり、土壌中の残留量には一見一定の傾向はないのではないかとさえ思われる。この調査のような試料採取方法では、農家の記帳または記憶等に頼らねばならず、したがってきき取りによるアルドリン粉剤の使用履歴は必ずしも正確なものとはいえない。使用歴の中でも施用年についてはかなり正確に記載できるが、施用量については不正確なものが多いのは否定できない。

この調査結果で同じ年に同一量が施用された場合にも残留量に大きい差があったり、施用後の経過年数、施用量と残留量との関係が逆になったりしていることは、土壌の種類、状況、腐植その他の成分等の影響もあろうが

使用歴の不正確さ、特に施用量の不正確さによることが大きいと考えられる。

しかし、この分析結果から同一施用量について経過年数別に検討してみると、この調査の範囲すなわちアルドリン粉剤 1.5 kg/a (成分量でアルドリン 60g/a) 程度までの施用量ならば、これら土壌におけるアルドリンとディルドリンの合計量の半減期は1年もしくはそれ以下と考えてよいと思われる。しかし、土壌微生物等の分解能力には限度があると思われるので、Lichtenstein et al. (1970) の報告にもみられるように著しく多量に施用された場合の半減期はさらに長くなるものと考えなければならない。

アルドリン、ディルドリン以外の有機塩素系殺虫剤では BHC がどの試料からも検出され、特に前作が水稻であった土壌には残留量の高いものが多かった。しかし水田における BHC の施用量からみると、その残留量は著しく少ないといえるようである。DDT は使用例が少ないので検出されたものは少なかった。前作でエンドリンが多量に散布された土壌ではエンドリンが検出された。

(2) きゅうり果実のアルドリンおよびディルドリンの含有量と栽培土壌残留量との関係

アルドリンおよびディルドリンのきゅうり果実における含有量の合計値と栽培土壌におけるそれとの関係を第1図に示した。

これら図上の点は上下2本の曲線でかこむと指数曲線型の曲線 (以下吸収曲線とよぶ) に巾をもたせた帯となり、両者の関係を概念的に把握することができる。すなわち、作物体における含有量 (C) と土壌の含有量 (S) との関係は単純な直線的比例関係とは考えられず、これらの比 (以下 C/S 比とする) は土壌中の含有量 (S) によって異なり同一作物でも一定の値をとらないと考えられる。

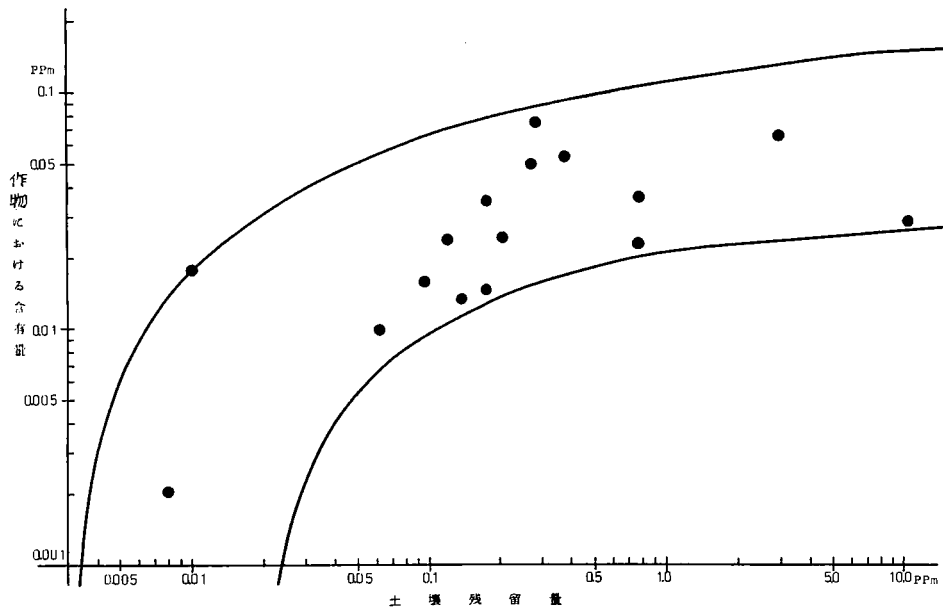
(3) ほうれんそうのアルドリンおよびディルドリン含有量と土壌残留量との関係

旧農業試験場のほ場で行った吸収程度検定試験での収穫時における土壌およびほうれんそう (地上部) の分析値を第3表に示した。

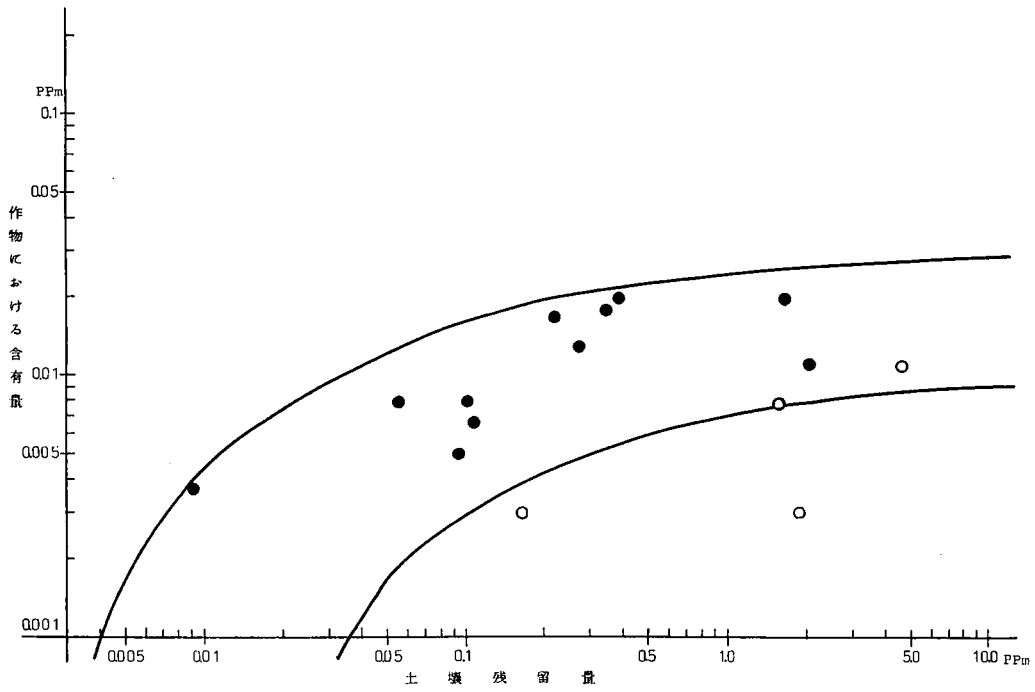
第3表 アルドリン粉剤施用土壌に栽培したほうれんそうによるアルドリン、ディルドリンの吸収

| 10a あたり 施用量 | 土 | | | ほうれんそう | | |
|-------------------|-------------|-------------|-------------|---------------|--------------|--------------|
| | アルドリン | ディルドリン | 合計 | アルドリン | ディルドリン | 合計 |
| 3 kg | ppm 4.27 | ppm 0.48 | ppm 4.75 | ppm <0.001 | ppm 0.011 | ppm 0.011 |
| 1.5 kg | 1.29 | 0.39 | 1.58 | <0.001 | 0.008 | 0.008 |
| 1 kg | 1.58 | 0.30 | 1.88 | - | 0.003 | 0.003 |
| 0 | 0.01 | 0.15 | 0.16 | <0.001 | 0.003 | 0.003 |

これらの分析値および一般農家ほ場におけるほうれんそうのアルドリンおよびディルドリンの含有量 (C) と栽培土壌におけるそれ (S) との関係を第2図に示した。



第1図 きゅうりにおけるアルドリン・ディルドリンの含有量(合計)と土壌残留量との関係



第2図 ほうれんそうにおけるアルドリン・ディルドリンの含有量(合計)と土壌残留量との関係

ほうれんそうはきゅうりに比べて、かなり土壌からの吸収は少ないようであり、同一土壌残留量に対し、作物体の含有量はきゅうりに比し低い値を示している。C/S比（いわゆる吸収率）は土壌残留量(S)の低い場合で40%から高い場合で0.5%で、4~8%の例が多かった。

これらの図上の点を第1図と同様に上下の2本の曲線でかこむと、同様の傾向を示す曲帯（巾をもった曲線）となる。農試ほ場での試験結果（図中の○）はこれらの中で低い位置にあり、C/S比は一般ほ場のそれよりも低い値をとっている。この試験では、アルドリン粉剤が約5cmまでの深さの表土に混和されており、一般ほ場では前作もしくはそれ以前に施用され、その後耕耘されて耕土に広く薬剤が分布しているとは様相が異なっている。表層だけに薬剤がある場合、かなりの部分の根は薬剤と無関係となり、吸収量が少なくなってC/S比が低下するものと考えられる。

(4) 総合考察

(2)および(3)の調査結果によれば、きゅうり、ほうれんそうともに土壌中の残留量が多くなると収穫物における含有量は増加する傾向が認められるが、土壌中に著しく多い場合は一定の値に近づくように思われる。このような関係は他の作物についても成立するものと考えられる。川原（1971）は、かぶにおけるアルドリンとディルドリンとの土壌含有量と作物含有量との関係はシグモイド曲線になったと述べている。土壌含有量と作物による吸収との関係は指数曲線型が一般的であり、かぶの例もこの型に該当すると思われるが、多くの事例による今後の検討にまちたい。

第1図および第2図に示した曲帯はかなり広い巾をもったものであるが、この巾は種々雑多な土性、土壌水分、土壌有機物含量、あるいは土壌中におけるアルドリンとディルドリンの比率等、作物による吸収に影響する諸因子の差によって生ずるものと思われる。

これらの図を利用すれば、土壌残留量(S)から、そこにきゅうり、あるいはほうれんそうを栽培した場合の収穫物における含有量(C)を推定することが可能である。しかしその逆にCから土壌残留量を推定することは精度も悪く無理であり、実用性はあまりない。

3 安全栽培基準の作成と利用法

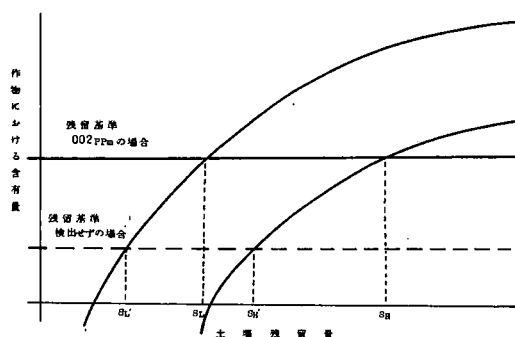
わが国のやさしい生産地、たばこを栽培している地帯では多くのほ場で多年にわたってアルドリン粉剤が施用されており、これらのほ場に作物を栽培した場合、果してアルドリン、ディルドリンの残留基準をこえないように栽培できるかどうかは、農家にとっても出荷団体にとっても重大な問題である。本県においてもその例にもれず個々の農家の個々のほ場について作物を栽培して出荷が可能となるかどうかの目安がつけられるような指導資料の必要性が極めて高くなった。

そこで前記の調査結果にもとずき、きゅうり、およびほうれんそうの栽培可能な限界を示す「安全栽培基準」を作成し、1970年10月および11月にそれぞれ徳島県農林水産部長名で県内に公表した。ここにその安全栽培基準を紹介し、その作成過程、利用方法を説明する。

(1) 安全栽培基準の作り方

前述のように第1図および第2図から、きゅうり、ほうれんそうにおけるアルドリン、ディルドリンの合計値が土壌中の残留量から推定できる。そこで第2表の土壌分析結果から、調査対象となったほ場でこれらの作物が作付けされていなかったものについても、それぞれのほ場にこれらの作物を栽培した場合の収穫物における含有量を推定し、これら作物の残留基準と比較して栽培可否を判定する。

栽培可否の判定には、第1図または第2図上に各作物の残留基準を示す線をx軸に平行に引き、この線と吸収曲線の上限および下限との交点をとり、これらの点のx座標すなわち土壌残留量をよみとる。（第3図参照）



第3図 作物と土壌との関係図による栽培可否の判定

上限との交点を S_L (ppm), 下限との交点 S_H (ppm) とする。判定しようとするほ場の土壌残留量を S (ppm) とすれば、次のようになる。

$S < S_L$ ならば栽培可（残留基準をこえない）

$S_H \leq S$ ならば栽培不可（残留基準をこえる）

$S_L \leq S < S_H$ ならば要注意（残留基準をこえることがある）

判定結果をアルドリン粉剤の施用後経過年数、施用量別に表として整理する。2年以上にわたって施用されたほ場は、成分の半減期を1年として、最終施用年の施用量に換算する。例えば5年前、4年前、3年前に各10aあたり4kg施用されている場合は、 $(4 \times \frac{1}{2} \times \frac{1}{2} + 4 \times \frac{1}{2} + 4 = 7)$ の計算により3年前に10aあたり7kg施用されたものとする。

きゅうり、ほうれんそうについて、このようにして栽培可否の判定を行なった結果をまとめて作成した安全栽培

培基準が第4表および第5表である。

第4表 アルドリン粉剤施用ほ場における
きゅうりの安全栽培基準

| 経過年数 10a あたり施用量 | 0 | 1 | 2 | 3 | 4 |
|-----------------------|---|---|---|---|---|
| 1kg以下 | △ | △ | | | |
| 3kg以下 | × | × | △ | △ | |
| 6kg以下 | × | × | × | △ | △ |
| 9kg以下 | × | × | × | △ | △ |
| 12kg以下 | × | × | × | × | △ |

無印：栽培可 ×：栽培不可
△：基準をこえることがある

(2) 安全栽培基準の利用法

農薬の使用歴は一般にほ場ごとに異なっており、個々のほ場すべてについてこれら農薬の土壌残留量を分析することは不可能に近いが、前項のようにして各種の作物について安全栽培基準を作成することにより、個々のほ場についてアルドリン粉剤の施用年次と施用量とが判れば、この表にあてはめてこれら作物の栽培が可能であるか否かを推定することができる。

前記の一連の調査は特定の土壌について行なったものではなく、土性、土壌成分等の諸条件が雑多なものについて行なったものである。したがって得られた結果はかなり広い巾をもったものになっている。しかし、このことは逆に適用範囲を広くしており、少なくとも徳島県下にはかなりの普遍性をもって適用できるものと思われる。

この安全栽培基準は農薬による土壌汚染を解消または軽減するような抜本的対策ではないが、作付を計画している作物についてこの基準によって、そのほ場では残留基準をこえると判定された場合、より吸収程度の少ない適当な代替作物の作付に切りかえたり休耕する等の対策をとることができ、残留基準をこえるような作物の生産を未然に防止することができる。

第5表 アルドリン粉剤施用ほ場における
ほうれんそうの安全栽培基準

| 経過年数 10a あたり施用量 | 0 | 1 | 2 | 3 | 4 |
|-----------------------|---|---|---|---|---|
| 1kg以下 | △ | | | | |
| 3kg以下 | × | △ | | | |
| 4kg以下 | × | × | △ | | |
| 6kg以下 | × | × | × | △ | |
| 9kg以下 | × | × | × | △ | △ |
| 12kg以下 | × | × | × | × | △ |

記号は第4表と同様。

4 摘 要

1 徳島県内の各地から1966~1970年の間に1回

以上アルドリン粉剤の施用されたほ場約50点を取り、土壌中におけるアルドリンおよびディルドリンの残留量を測定した。

2 これらの土壌におけるアルドリン、ディルドリンの合計量の半減期はおおむね1年弱と考えられる。

3 これらのほ場に栽培されたきゅうり、ほうれんそうを分析して、土壌残留量との関係を求めた。

4 ほうれんそうはきゅうりに比し土壌からの吸収程度は少ないが、土壌残留量との関係はいずれもよく似た傾向を示した。

5 ほ場におけるアルドリン粉剤の施用量と施用後経過年数とから、そのほ場においてきゅうりまたはほうれんそうが栽培可能かどうかを判定する安全栽培基準を作った。

参 考 文 献

- 1 川原哲城(1971):農薬検査所報告,(11):81-86.
- 2 Lichtenstein, E.P. et al.(1970):J.Agr. Food Chem.,18(1):100-106.
- 3 永井洋三(1971):そ菜病害虫に関する中国・四国・九州地域試験研究打合せ会議報告書(要録),(農林省四国農業試験場編):12-14.