

農薬が河床付着微生物群集の一次生産に与える影響

宮崎 さとえ* 朴 虎 東*
 横山 淳史** 北 條 敏 彦***

Effects of Pesticides on Community Productivity of Periphyton

Satoe MIYAZAKI*, Ho-Dong PARK*,
 Atsushi YOKOYAMA** and Toshihiko HOJYO***

* Department of Environmental Sciences, Faculty of Science, Shinshu University, Asahi 3-1-1, Matsumoto 390-8621, Japan

** Organochemicals Division, National Institute for Agro-Environmental Sciences, Kannondai 3-1-3, Tsukuba 305-8604, Japan

*** Eco-Science Corporation, Tomitake 173-2, Nagano 381-0006, Japan

Abstract

The effects of pesticides on the biomass and community productivity of periphyton were investigated for three years (2001-2003) in Hiroi stream. The biomass of periphyton was affected by the flow of the stream and precipitation. Pesticides, however, showed no effect on the species composition or biomass of periphyton during the study period. Thus, we measured the net community productivity (NCP) and community respiration (CR) rate of periphyton in June and August of 2003. The NCPs in June and August were 64 and 105 $\text{mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ and the CR rates were 74 and 18 $\text{mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$, respectively. In June, the main herbicide was detected simetryn, and the insecticide Trichlorfon (DEP) and the fungicide Tricyclazole were detected in August. The lower NCP in June than in August might have been caused by the high concentration of simetryn ($>5\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$). However, the NCP was higher in August than in June because DEP and Tricyclazole decreased the respiration rate of organisms such as insects and bacteria. Simetryn reduced NCP, and DEP and Tricyclazole lowered CR level, resulting in an increased NCP. We suggest that measuring the NCP and CR rate of periphyton in aquatic ecosystems is an effective method of assessing the effects of pesticides.

Key words: net community productivity, community respiration, periphyton, pesticide, Hiroi stream

1. はじめに

日本では、農薬の使用量のおよそ半量が水田で使用されているため、水系に入る比率が畑作農業を主体とする諸国に比べて高く¹⁾、稲作シーズンには河川が様々な農薬に汚染されることで河川生態系に大きな影響を与えている²⁾。1958年頃から水田を対象にヘリコプターによる空中散布が行われるようになり、農薬の環境中への拡散も助長されるようになった¹⁾。

河川や湖沼に流入した農薬の動態を明らかにするため、残留農薬のモニタリングが行われている。琵琶湖流入河川及び流出河川の瀬田川では水田で使用される除草剤のモリネート、シメトリン、オキサジアゾン、チオベンガルブ及び、殺菌剤のイソプロチオランが年間を通じて検出された。検出された農薬の最高値は河川によって異なるが、モリネートは $17\sim 48\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、シメトリン、オキサジアゾンは約 $10\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。最高値を示す時期は農薬の散布が行われる期間と一致した³⁾。

河川における一次生産は、河床礫面に発達する付着藻類 (periphyton) によって行われている⁴⁾。また、河床礫面の付着藻類は、剥ぎ取り食の水生昆虫などの一次消費者への餌資源として重要な存在であり、河川での一次生産力の量的把握は、上位の生物群集の環境収容能力を知るうえで重要とされている⁵⁾。

長野県飯山市を流れる広井川は稲作が5月中旬から10月上旬に行われ、年間を通じて様々な農薬が使用される地域である。5月上旬から6月中旬まで除草剤の散布が行われ、8月には害虫であるウンカ類の駆除を目的として有機リン系殺虫剤であるディブテックス乳剤、いもち病防除のために殺菌剤のビームゾルが航空防除される。ディブテックス乳剤の有効成分はトリクロロホン (DEP; dimethyl 2, 2, 2-trichloro-1-hydroxyethyl phosphonate) であり、還元的脱塩素や脱塩酸反応によって DDVP (2, 2-dichlorovinyl dimethyl phosphate) に分解される。ビームゾルの有効成分はトリシクラゾール (5-methyl-1, 2, 4-triazolo [3,4-b] benzothiazole) である。

* 信州大学理学部物質循環学科 〒390-8621 長野県松本市旭 3-1-1

** (独)農業環境技術研究所 〒305-8604 茨城県つくば市観音台 3-1-3

*** (株)エスコ 〒381-0006 長野県長野市富竹 173-2

本研究は農薬が河床付着藻類の現存量や種組成及び付着微生物群集の一次生産力に与える影響を把握する事を目的とした。

2. 材料と方法

2.1 調査地点

長野県北部に位置する飯山市を流れる広井川中流域を試料採取地点とした。広井川周辺はおよそ 520ha の水田が広がり、稲作は 5 月中旬から 10 月上旬にかけて行われ、8 月には殺虫剤と殺菌剤の航空防除が行われる地域である。

航空防除は、2001 年では数台の有人ヘリコプターによって地上から数十メートルの高さで DEP・トリシクラゾールが散布された。2002 年及び 2003 年は無人ヘリコプターによって数メートルの高さから散布が行われ、農薬の散布は数日かけて行われた。

2.2 付着藻類の種組成

調査地点の河床にあらかじめレンガ (10×21×2cm) を 2 週間設置し、2001 年 4 月～2003 年 10 月まで付着藻類を 5×5cm のコドラードで 4 コドラード採取し、ホルマリンで固定した。その一部を良く混合して顕微鏡観察による付着藻類の計数に用いた。

対照区として、広井川の支流であり、分析対象の農薬の流入が $0.1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 未満の滝沢川上流においても同様に付着藻類の種組成を求めた。

2.2.1 付着微生物群集の生産力の測定

調査地点において 2003 年 6 月 15, 16 日及び 8 月 4, 5, 6, 13 日に付着微生物群集の純生産力及び呼吸の測定を行った。測定に使用した付着藻類は、測定日の 2 週間前にレンガ (10×21×2cm) を調査地点の河床に設置し、付着藻類を定着させた。

生産力の測定は密閉式の透明アクリル製ボックス (以下チャンパー; 26.2×15.2×11.6cm, 4.62l) に水中モーター及び DO (溶存酸素濃度) メーター (飯島電子工業株式会社製, B-505 型) を取り付けた測定装置を用いた (Fig.1)。付着微生物群集を定着させたレンガを入れ、内部を河川水で満たしたチャンパーと対照として河川水のみを満たしたチャンパーを用意した。測定中に過飽和になるのを防ぐため、試験に用いた河川水は窒素ガスで溶存酸素濃度を現場の河川水よりも約 $2\text{mgO}_2\cdot\text{l}^{-1}$ 減少させた。レンガ入りチャンパー及び河川水のみをチャンパーは気泡が入らないように河川水で満たし密閉した。チャンパーは全体が河川水に浸るように河床に設置した。溶存酸素濃度の測定は水中モーターで内部の水を攪拌させながら明

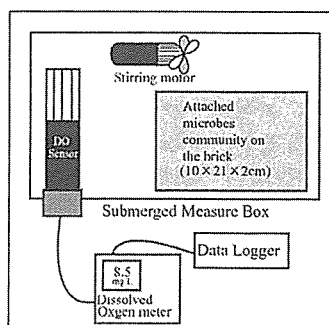


Fig.1 Measuring device of community productivity.

条件で 1.5 時間測定した後、暗条件で 1.5 時間測定を行った。生産力の測定は、繰り返し測定は行わなかった。DO 測定値の記録は自動記録計 (コーナシステム株式会社製, KADEC-U model II 型及び KADEC21-U/HTV) を用い 30 秒間隔で記録した。

生産力の測定終了後、付着微生物群集の Chl.a を測定するために、レンガを装置から取り出し付着物を採取した。生産力の測定と同時に水温 (コーナシステム株式会社製, KADEC21-U/HTV) 及び光量子束密度 (Onset Computer Corporation 社製, StowAwy[®]LI Light Intensity Logger) の測定も行った。

2.2.2 生産力の算出

測定で得られた溶存酸素濃度の値を y 軸、測定時間 (min) を x 軸にプロットし散布図を作成した。その散布図から最小二乗法により回帰直線を求めた。付着微生物群集を入れたチャンパー及び河川水のみを対照チャンパーそれぞれの散布図において回帰直線を求め、その回帰式から単位時間 (hr) あたりの溶存酸素濃度の増加、減少速度を算出した。

付着微生物群集の酸素濃度変化量は式 (1) により算出した。

$$\text{酸素濃度変化量 (mgO}_2\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{hr}^{-1}) = V/A \times (\alpha_p - \alpha_c) \times 60 \dots\dots\dots (1)$$

V ; チャンパー内の水容量 (l)

A ; 測定に用いたレンガの面積 (m²)

α_p ; 付着物の付いたレンガを入れたチャンパー内 DO 変化の回帰係数

α_c ; 河川水のみを満たしたチャンパー内 DO 変化の回帰係数

式 (1) によって得られた算出値を式 (2) により酸素量から炭素量へ変換した⁶⁾。

$$\text{gO}_2 \times 0.375 = \text{gC} \dots\dots\dots (2)$$

明条件で得られた溶存酸素濃度の測定結果からは付着微生物群集の純生産力 (NCP; Net Community Productivity) を算出し、暗条件により得られた結果からは呼吸量 (CR; Community Respiration) を算出した。

また、同化速度 (Chl.a 1mg 当たりの純生産力) は次式により算出した。

$$\text{同化速度 (mgO}_2\cdot\text{mgChl.a}^{-1}\cdot\text{hr}^{-1}) = \text{酸素濃度変化量 (mgO}_2\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{hr}^{-1}) / \text{Chl.a (mgChl.a}\cdot\text{m}^{-2})$$

Chl.a ; 測定に用いた付着微生物群集の Chl.a

2.3.1 河川水中の農薬分析

河川水の採水は週一回採水する定期採水と 2001 年～2002 年の航空防除が行われた 8 月上旬及び 2003 年の生産力の測定時 (6 月 16 日及び 8 月 4, 5, 6, 13 日) に自動採水器により 1～2 時間間隔で採水を行う自動採水を実施した。付着微生物群集の生産力の測定時に行った自動採水は、農薬の日変動及び、生産力の測定に使用したチャンパー内の農薬濃度を求めるために行った。河川水は保冷しながら実験室に持ち帰り、ろ過後、抽出を行った。

河川水中の農薬分析は、飯山市広井川の流域で散布されている農薬のうち有効成分 7 種類及び分解物 3 種について行った。農薬の分析は次に示した方法において 80% 以上の添加回収率が得られた。

カルボスルフアン、カルボフラン、シメトリン、テニ

ルクロール, カフェンストロール, カフェンストロール脱カルバモイル体, ピラゾスルフロンエチルの分析は, 次の通りに行った。

分液ロートに河川水 800ml, pH8 リン酸緩衝液 20ml, NaCl 20g, ジクロロメタン 100ml を加え 5 分間振とうの後, ジクロロメタン層を分取した。水層にジクロロメタン 50ml を加え同様の操作を行った。更に, 水層に塩酸 ($6\text{mol}\cdot\text{l}^{-1}$) 8ml, ジクロロメタン 50ml を加え, 振とうジクロロメタン層の分取を 2 回繰り返した。抽出液を無水硫酸ナトリウムで脱水後, 35°C 以下の水浴中で減圧濃縮し, 窒素気流下で乾固させ, ジクロロメタン/アセトン (9/2 v/v) 2ml に再溶解させた。

シリカゲル 7g をジクロロメタン/アセトン (9/1 v/v) でクロマト管 (内径 15mm, 長さ 300mm) に充填し, 試料を流下させた。ジクロロメタン/アセトン (9/1 v/v) で展開し, 溶出液 10~40ml 分取してカルボスルファン, カルボフラン, シメトリン, テニルクロール, カフェンストロール (以下 5 成分) の分画とした。次にジクロロメタン/アセトン (3/1 v/v) 50ml で展開し, 溶出液 50ml を分取しカフェンストロール脱カルバモイル体の分画とした。更に, 1%酢酸添加アセトン 20ml で展開して溶出液 20ml をピラゾスルフロンの分画とした。それぞれの分画の溶出液は 35°C 以下の水浴中で減圧濃縮し, 窒素ガスで乾固させた。

DEP, ジクロロボス (DDVP), トリシクラゾールの分析はアセトニトリル 5ml, リン酸酸性 H_2O (pH3) 5ml でコンディショニングをした OASIS HLB (Waters, USA) に試料 (リン酸で pH3 に調整) を $20\text{ml}\cdot\text{s}^{-1}$ で 40 分間通水させた。洗浄 (H_2O 5ml), 乾燥 (2 分間通気) の後アセトニトリル (10ml) で溶出し, 溶出液に 2%ジエチレングリコール含有アセトン溶液数滴を添加した。 35°C 以下の水浴中で溶媒を減圧濃縮, 窒素気流下で乾固させ, ヘキサン (2ml) に再溶解した。

Supelclean LC-Si (SUPELCO, USA) をヘキサン/アセトン (25/75 v/v) 5ml でコンディショニング後, 試料を流下させ, ヘキサン 4ml, ヘキサン/エチルエーテル (95/5 v/v) 10ml で洗浄後, ヘキサン/アセトン (25/75 v/v) 20ml で溶出した。溶出液に 2%ジエチレングリコール含有アセトン溶液数滴を添加し, 35°C 以下の水浴中で溶媒を減圧濃縮し窒素気流下で完全に溶媒を留去した。

先に抽出した 5 成分及びトリシクラゾールの定量は試料をアセトンで定容しキャピラリーカラム (HP-50+, 内径 0.53mm×長さ 15m, フィルム厚 $1\mu\text{m}$) を接続したガスクロマトグラフ (HP 6890, Hewlett Packard, USA) により NPD 検出器を用いて行った。カラムの初期温度を 150°C (0.5min) に設定し, その後 280°C まで $20^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ で上昇させ 280°C で 8min 保持した。注入口の温度を 250°C , 検出器の温度を 320°C に設定してキャリアーガスとしてヘリウムガスを $6\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}$ で流した。

DEP 及び DDVP の定量は試料をアセトンに定容し島津 GC-14A ガスクロマトグラフ (FPD-P) を用いキャピラリーカラム (RESTEC Rtx-200, 内径 0.53mm×長さ 30m, フィルム厚 $1.0\mu\text{m}$) を 125°C で保持した。注入口の温度は 250°C , 検出器の温度を 280°C に設定してキャリアーガスとしてヘリウムガスを $20\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}$ 流した。

5 成分及びトリシクラゾール, DEP, DDVP の検出限

界は $0.05\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。DEP と分解物 DDVP から次式により Total DEP 値を算出した。

$$\text{Total DEP } (\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}) = \text{DEP} (\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}) + \text{DDVP} (\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}) \times 1.16$$

分析結果の DEP は Total DEP を意味する。

カフェンストロール脱カルバモイル体の定量は試料をアセトニトリルに定容し, 高速液体クロマトグラフ (LC-6A, Shimadzu, Japan), カラム (Inertsil ODS-3, 内径 4.6mm×長さ 250mm) を使用して行った。紫外部吸光光度計 SPD-6A は検出波長 242nm , 移動相はアセトニトリル:リン酸酸性 H_2O (pH3) = 5:5 を用い, 流量を $0.7\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}$ に設定した。検出限界は $0.05\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。

ピラゾスルフロンエチルは試料をアセトニトリルに定容し, 高速液体クロマトグラフ (LC-6A, Shimadzu, Japan), カラム (Inertsil ODS-80A, 内径 4.6mm×長さ 150mm) を使用した。紫外部吸光光度計 SPD-10vp は検出波長を 254nm に設定し, 移動相はアセトニトリル:水:酢酸 = 50:50:0.02 を用い, 流量を $0.8\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}$ に設定した。検出限界は $0.2\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。

2.3.2 農薬負荷量及び流出率の算出

シメトリン, DEP 及びトリシクラゾールの広井川への年間流出負荷量 L を式(3)³⁾, 流出率 (%) R は式(4)より算出した。

$$L = \sum C_i Q_i (T_{i+1} - T_{i-1}) / 2 \dots\dots\dots (3)$$

C_i ; 時間 T_i における広井川河川水中の農薬濃度 ($\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$)

Q_i ; 時間 T_i における広井川の流量 ($\text{l}\cdot\text{s}^{-1}$)

広井川の流量は定期採水時には一定距離をおいた上流, 下流の 2 点において河川幅と水深を測定し, 面積 A_1 , A_2 を算出した。2 点間の距離 (L) を流れるのに要した時間 (t) を測定し, 下の式によって流量を算出した。

$$Q = (A_1 + A_2) / 2 \times S / 1000$$

Q ; 流量 ($\text{l}\cdot\text{s}^{-1}$)

A_1 ; 上流の断面積 (cm^2)

A_2 ; 下流の断面積 (cm^2)

S ; 流速 ($\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$) = $L(\text{cm}) / t(\text{sec})$

自動採水時は 1 時間毎に水深及び流速を自動測定し流量を算出し, 河川水中の農薬濃度 ($\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$) は自動採水及び定期採水の値を使用した。

$$R = L/A \times 100 \dots\dots\dots (4)$$

A ; 調査地点に流入する水田に散布された農薬量

L ; 式(3)より算出した年間流出負荷量

水田に散布された農薬量は農家への聞き取り調査より推定した。

3. 結果

3.1 付着藻類に及ぼす農薬の影響

3.1.1 河川水中の農薬濃度及び流出率

河川水中から検出された農薬は使用期間に応じて変わり, 2001 年から 2003 年に検出された農薬の最高値及び検出最小値を Table 1 に示した。カルボスルファンは 3 年通じ検出されなかった。3 年間で比較的高濃度で検出されたシメトリンの濃度変化を Fig.2-1 に示した。

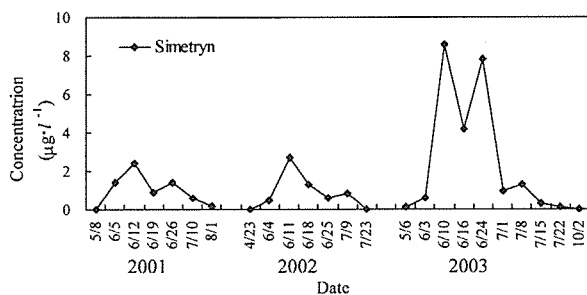
シメトリンは除草剤の中で最も高い濃度で検出され, 2001 年は $0.2\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (8 月 1 日) から $2.4\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (6 月 12 日), 2002 年は $0.5\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (6 月 4 日) から $2.7\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (6 月 11 日) で検出された。2003 年は 6 月 16 日 14 時に最高値 $9.6\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ を示し, 検出最小値は $0.09\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (5 月 6

Table 1 Pesticides concentration in Hiroi stream.

Pesticides	Year	Highest concentration ($\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$)	Date	Lowest concentration ($\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$)	Date
Carbofuran ^(a)	2001	0.8	5/29	0.4	5/22, 6/19, 7/17
	2002	0.6	6/11	0.3	5/21, 5/28, 6/4, 6/18
	2003	3.4	5/20	0.1	10/21
Simetryn	2001	2.4	6/12	0.2	8/1
	2002	2.7	6/11	0.5	6/4
	2003	9.6	6/16 14:00	0.09	5/6, 7/22
Thenylchlor	2001	5.4	5/22	0.2	5/29
	2002	1.1	5/14	1.0	5/21
	2003	0.9	5/27	0.06	6/3
Cafenstercol	2001	0.7	5/22	0.2	5/29
	2002	0.9	6/4	0.1	5/28
	2003	0.6	6/16 9:00	0.1	6/16
Degradation product of Cafenstercol	2001	0.3	6/5, 6/12	0.2	6/26
	2002	-	-	-	-
	2003	2.3	6/16 7:00	0.06	6/3
Pyrazosulfuron-ethyl	2001	5.9	6/30	0.2	7/10
	2002	-	-	-	-
	2003	-	-	-	-
DEP ^(b)	2001	43	8/3 9:00	0.23	8/14 12:00
	2002	4.7	8/7 15:00	0.07	8/16 18:00
	2003	11	8/6 11:00	0.07	8/4 13:00
Tricyclazole	2001	19	8/3 9:00	0.20	8/28 12:00
	2002	6.6	8/12 23:00	0.92	8/18 3:00
	2003	2.8	8/6 11:00	0.06	8/19 12:00

(a), Degradation product of Carbofuran.

(b), DEP was including DDVP that is a degradation product of DEP.

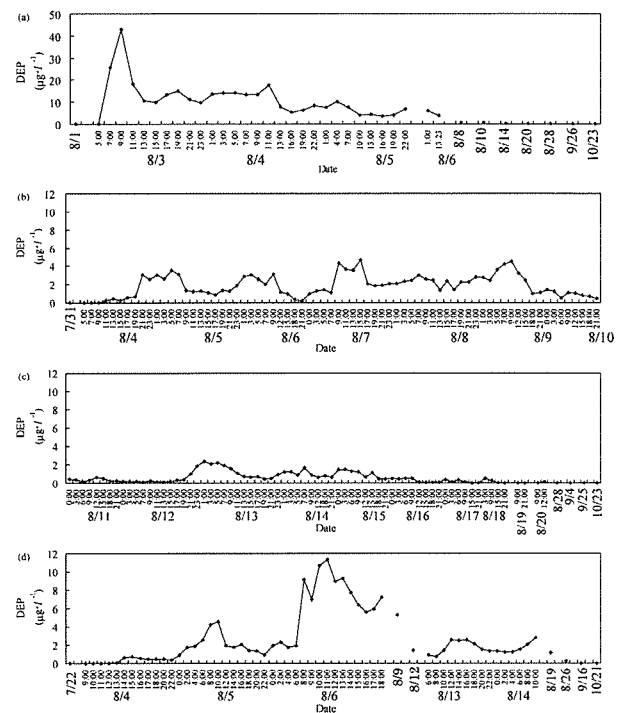
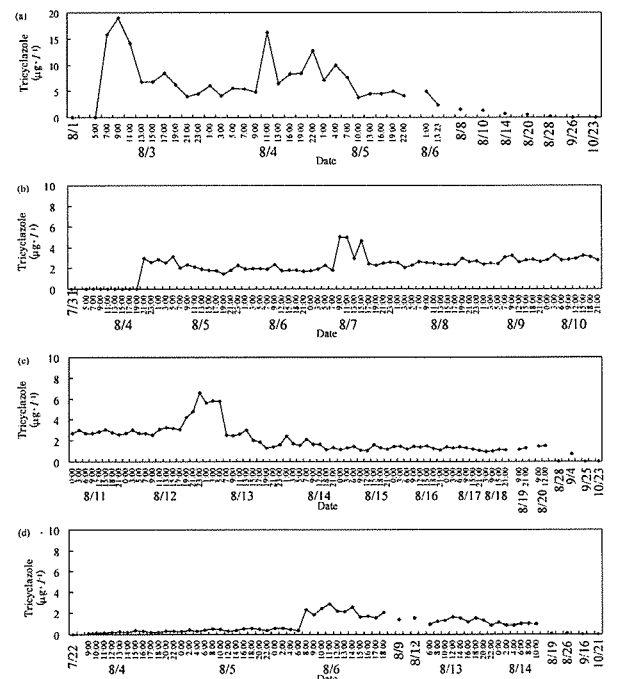
**Fig.2-1** Seasonal changes in simetryn concentration in Hiroi stream from 2001 to 2003.

日、7月22日)であった。シメトリンは約2ヶ月間河川水中から検出され、全年ともほぼ同時期に検出された。

広井川流域は8月上旬に航空防除によって殺虫剤及び殺菌剤が散布された。2001年は8月3日に有人ヘリコプターによって地上から数十メートルの高さでDEP・トリシクラゾールが散布され、最高濃度は8月3日9時にDEPが $43 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 、トリシクラゾールが $19 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ を示した (Figs.2-2 (a), 2-3 (a))。DEPは散布直後に最高濃度に達し、その後急速に減少し、10日後には定量限界以下になった。一方、トリシクラゾールは約1ヶ月間河川水中から検出された。

2002, 2003年は無人ヘリコプターによって数メートルの高さから散布が行われた。2002年はDEPが $0.07 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (8月16日18時) ~ $4.7 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (8月7日15時)で検出され、トリシクラゾールは $0.92 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (8月18日3時) ~ $6.6 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (8月12日23時)で検出された (Figs.2-2 (b), 2-3 (b))。DEPは約2週間、トリシクラゾールは約1ヶ月間河川水中から検出された。2003年は8月6日11時に最高濃度 $11 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (DEP), $2.8 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (トリシクラゾール)を示した。DEP, トリシクラゾールの検出最小値はそれぞれ $0.07 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (8月4日13時), $0.06 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (8月19日12時)であった (Figs.2-2 (c), 2-3 (c))。DEP及びトリシクラゾールは河川水中から約20日間検出された。

広井川へ流入する水田の農薬散布量 (A), 年間流出負荷量 (L) 及び流出率 (R) を Table 2 に示した。シメトリンの流出率は2001年, 2002年, 2003年ではそれぞれ24, 12, 37%であった。2001年はトリシクラゾールより

**Fig.2-2** Seasonal changes in DEP concentration in Hiroi stream from 2001 to 2003. (a), 2001; (b), 2002; (c), 2002; (d), 2003.**Fig.2-3** Seasonal changes in Tricyclazole concentration in Hiroi stream from 2001 to 2003. (a), 2001; (b), 2002; (c), 2002; (d), 2003.

もDEPが高濃度で検出されたが、流出率はDEPが1.6%, トリシクラゾールが5.7%でありトリシクラゾールの流出率がDEPよりも高くなった。

3.1.2 付着藻類の種組成及び現存量

2001年から2003年の調査期間中で各年において細胞数及び出現頻度が上位であった5種は、珪藻類の *Nitzschia frustulum*, *Nitzschia palea*, *Navicula gregaria*,

Table 2 Annual applications, loading and losses of pesticides from Hiroi stream basin.

Pesticides	Year	Highest concentration ($\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$)	A Amount of application (g)	L Loading of pesticide ($\text{g}\cdot\text{year}^{-1}$)	R Loss of pesticide (%)
Simetryn	2001	2.4	4016	965	24
	2002	2.7	6552	792	12
	2003	9.6	5636	2069	37
DEP	2001	43	84900	1384	1.6
	2002	4.7	75561	475	0.6
	2003	11	75561	1253	1.7
Tricyclazole	2001	19	22640	1296	5.7
	2002	6.6	20150	1263	6.3
	2003	2.8	20150	274	1.4

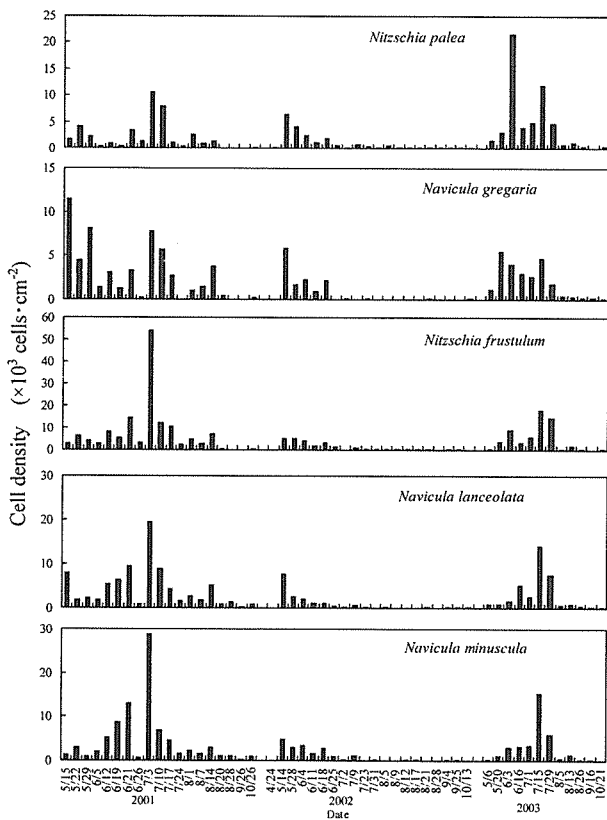


Fig.3 Seasonal changes in cell density of five dominant species of Bacillariophyta in Hiroi stream from 2001 to 2003.

Navicula lanceolata, *Navicula minuscula*であった。これらの細胞数の変動を Fig.3 に示した。特に *N. lanceolata* 及び *N. minuscula* は 2001 年, *N. frustulum* 及び *N. palea* は 2002 年の調査期間中を通じ観察された。2003 年は上記した 5 種が全ての調査日で確認された。

3.2 付着微生物群集の生産力

3.2.1 河川水中の農薬

Fig.4 に河川水中の農薬濃度の変動を示した。6 月は除草剤のシメトリン, カフェンストロールとその分解物, カルボフランが検出され, シメトリンが最も高濃度 ($10\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$) で検出された (Fig.4(a))。8 月は DEP, トリシクラゾール濃度が 4 日から徐々に増加し, 無人ヘリコプターによる散布が調査地点付近の水田に行われた 8 月 6 日に DEP, トリシクラゾールはそれぞれ最高値 11 及び $2.8\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ を示した (Fig.4(b))。

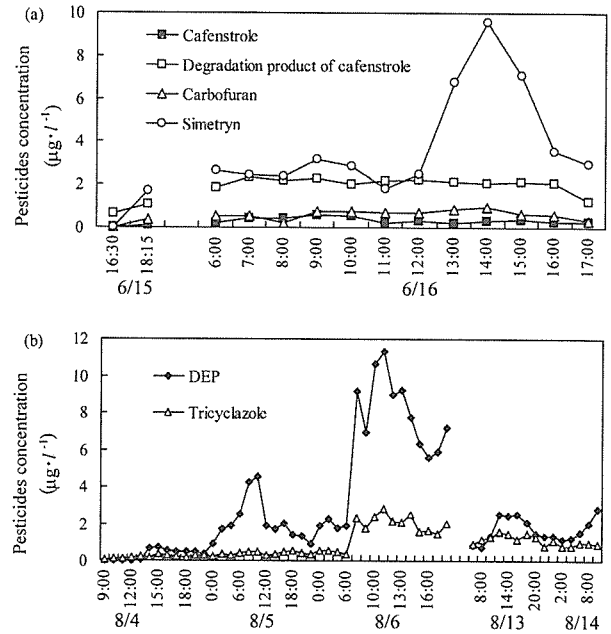


Fig.4 Diel changes in pesticide concentrations during productivity experiments with periphyton community in Hiroi stream in 2003. (a), Jun. 15-16; (b), Aug. 4-6 and 13-14.

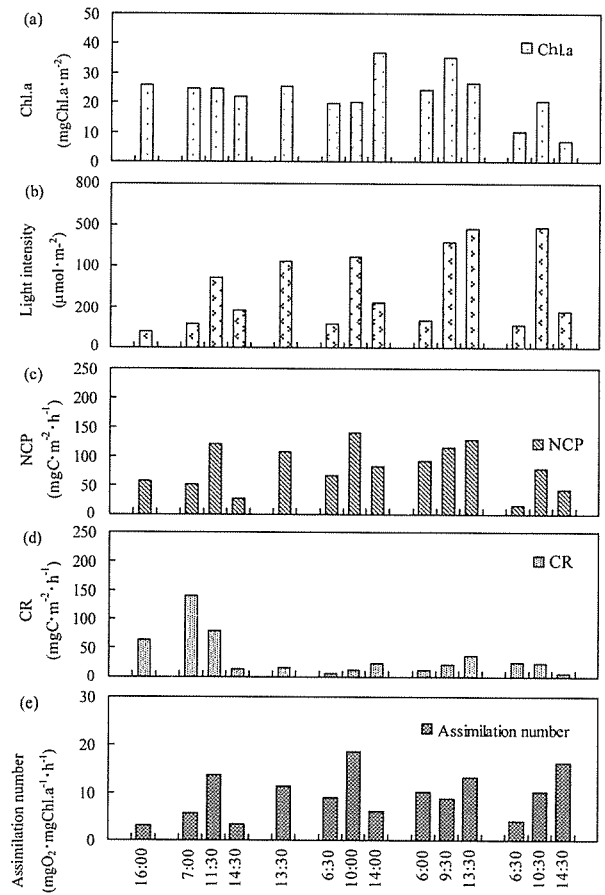


Fig. 5 Changes in Chl.a, net community productivity (NCP), community respiration rate (CR) and assimilation number of periphyton community in Hiroi stream in 2003. Time indicates the start time of a measurement. (a), Chl.a amount; (b), light intensity; (c), net community productivity (NCP); (d) community respiration rate (CR); (e), assimilation number.

3.2.2 付着微生物の生産力

生産力の測定中に光量子束密度及び水温を同時に測定した。その結果、光量子束密度は6月では $31\sim 620\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 、8月では $44\sim 760\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ で変動した。各測定時の平均光量子束密度は Fig.5(b)に示した。水温は6月においては $18\sim 22^\circ\text{C}$ で変動し、8月上旬の調査時では $22\sim 28^\circ\text{C}$ 、中旬では $20\sim 26^\circ\text{C}$ で変動した。

生産力の測定を行った付着微生物群集の Chl.a 量を Fig.5(a)に示し、付着微生物群集の純生産力 (NCP) 及び呼吸量 (CR) の測定結果を Fig.5(c), (d)に示した。除草剤の散布が行われていた6月中旬の NCP は $27\sim 121\text{mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 、CR は $14\sim 140\text{mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ で変動した。殺菌・殺虫剤の散布が行われた8月上旬では NCP が $66\sim 140\text{mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 、CR が $5\sim 37\text{mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 、中旬では NCP、CR がそれぞれ $15\sim 42$ 、 $5\sim 25\text{mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ であった。同化速度は6月で $3\sim 14\text{mgO}_2\cdot\text{mgChl.a}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}$ を示し、8月上旬の同化速度は $6\sim 19\text{mgO}_2\cdot\text{mgChl.a}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}$ 、中旬で $4\sim 16\text{mgO}_2\cdot\text{mgChl.a}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}$ であった (Fig. 5(d))。

生産力測定時の付着微生物群集の優占種は6月では、*Navicula minuscula*, *Synedra ulna*, *Nitzschia frustulum* であり、8月上旬では、*Oscillatoria* sp., *Stigeocolonium* sp., *Synedra ulna*, 中旬では、*Synedra ulna*, *Nitzschia palea*, *Nitzschia frustulum* であった。

4. 考察

4.1 付着微生物群集に与える農薬影響

4.1.1 付着藻類の種組成・現存量

N. frustulum は中汚濁性、*N. palea* は強汚濁性の水質で主に見られる種である⁷⁾。広井川で優占していた珪藻類は *N. frustulum*, *N. palea*, *N. minuscula*, *N. lanceolata*, *N. gregaria* であり汚濁に強い種であった。

単位面積あたりの細胞数 (藻類現存量) に影響を与える要因は、降雨等による河川水の流量変化、群集自体の遷移、底生動物による摂食などが知られている。特に、降雨による流量の増加は藻類の剥離を引き起こす⁸⁾。

付着藻類の中で最も現存量が多かった珪藻類の細胞数は8月よりも河川水中から除草剤が検出される時期 (5月~7月) に多い傾向が見られた。広井川の支流であり、農薬の流入が $0.1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 未満の滝沢川上流においても8月になると現存量の低下が見られた。さらに、種組成の変動にも除草剤の散布時期に種組成が減少する等の影響は見られなかったことから、除草剤は付着藻類の種組成及び現存量に影響を与えていない事が示唆された。

4.1.2 付着微生物群集の生産力

6月16日14:30及び8月13日6:30, 14:30の河床付着微生物群集の NCP は $50\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 未満であった。河床付着物の酸素発生量は付着藻類の Chl.a 量と関係しており、その値によって NCP が大きく変わる。Chl.a 量と酸素発生量との間には正の相関があり⁹⁾、Chl.a 量が大きいと NCP が増加する。また、多摩川の付着微生物群集を用い光合成量活性を測定した結果、NCP は Chl.a 量と対応した変動を示し、最高値は春季と夏季に差は見られなかったと報告されている¹¹⁾。8月13日6:30及び14:30の実験に用いた付着微生物群集の Chl.a 量はそれぞれ、 10 , $7\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}$ であり、その他の実験に使用した付着微生物群集の Chl.a 量 ($20\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}$ 以上) と比較し低い Chl.a 量であった。

Chl.a 量以外に NCP 与える影響として、水温及び光条件が考えられる。水温は 15°C 付近で最も NCP が高く、水温の増加に伴い NCP は減少すると報告されている¹⁰⁾。6月16日14:30及び8月13日6:30, 14:30の NCP 測定時の平均水温は、それぞれ 21.9 ($21.7\sim 22.0$) $^\circ\text{C}$, 20.0 ($19.6\sim 20.7$) $^\circ\text{C}$, 25.5 ($25.0\sim 25.7$) $^\circ\text{C}$ であった。8月6日13:00が NCP の測定で最も水温が高く $27.6\sim 28.3^\circ\text{C}$ であったが、NCP は調査期間中で2番目に高い $130\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}$ を示した。そのため、6月16日14:30及び8月13日6:30, 14:30の NCP の減少が水温に起因するとは考えにくい。8月13日6:30の NCP 測定中の平均光量子束密度は $107\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ であり、他の測定時よりも低い値であった。以上から、8月13日6:30の付着微生物群集の NCP の低下は用いた付着微生物群集の Chl.a 量及び光量子束密度が低かった事に起因し、8月13日14:30の NCP の低下は付着微生物群集の Chl.a 量が低かったためであると考えられる。

広井川では5月下旬から6月下旬まで除草剤が河川水中から検出され、生産力の測定時にはシメトリン、カルボフラン、カフェンストールとその分解物が検出された (Fig.4)。除草剤は光合成阻害及びエネルギー代謝阻害、ホルモン作用の攪乱等により植物に作用する¹²⁾。2001から2003年に最も高濃度で検出された除草剤はシメトリンであった。シメトリンはトリアジン系除草剤であり強力な Hill 反応阻害活性を示す光合成阻害剤である¹²⁾。6月16日14:30の NCP は、NCP の測定に用いた付着微生物群集の Chl.a 量と測定中の光量束密度が同程度であった6月16日7:00, 8月5日6:30, 8月6日6:00の NCP と比較しても低い値であった。

緑藻 (*Pseudokirchneriella subcapitata*) を用いたシメトリン曝露実験 (24時間) では、シメトリン濃度 $1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ で酸素発生量がコントロール ($2.5\text{mgO}_2\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$) よりも $1.0\text{mgO}_2\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$ 減少した。また、付着微生物群集にシメトリンを24時間曝露させた結果ではコントロールの酸素発生量 $8.4(\pm 0.24)\text{mgO}_2\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$ に対し、シメトリン $10\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ では、酸素発生量 $7.5(\pm 0.24)\text{mgO}_2\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$ に減少した (布目 私信)。

また、琵琶湖流入河川から採水した河川水で行った緑藻 (*Pseudokirchneriella subcapitata*) の生長阻害では、シメトリンの影響が示唆されている¹³⁾。

6月16日の付着微生物群集の生産力測定時にシメトリンが $9.6\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (14:00) 検出されたことから、6月16日14:30の NCP の低下の原因としてシメトリンの影響が考えられた。

付着微生物群集の CR は6月16日14:30を除く6月が高く、8月で低くなった。6月16日14:30の低い CR は NCP 及び同化速度も低いため、光合成呼吸量の低下であると考えられる。多摩川の付着微生物群集の CR は夏季で $100\text{mgO}_2\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 、春季で $100\sim 300\text{mgO}_2\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ を示し、春季に CR が高くなるのは藻類の現存量が夏季に比べ高く、河川水との接触面が大きいためである¹¹⁾。しかし、広井川では6月及び8月上旬の付着微生物群集の Chl.a 量は同程度であったことから、広井川では藻類の現存量に関係なく夏季に呼吸速度が低下する事が明らかになった。

殺菌・殺虫剤が付着微生物群集の NCP 及び CR に与える影響を把握するために室内曝露実験を行った。付着微

生物群集を明暗条件でそれぞれ2時間トリシクラゾール ($50\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$) に曝露させた結果、NCP がコントロールよりも $13\text{ mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 増加し、CR には差が見られなかった。しかし、付着微生物群集に DEP 及びトリシクラゾールをそれぞれ $13\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 曝露させた実験では、NCP が増加し、CR が減少した。その原因として、付着微生物中のバクテリアや原生動物の呼吸が抑制されたためであると考えられる (宮崎 未発表)。

8月4日早朝から調査地点より上流では DEP, トリシクラゾールの散布が行われており、NCP 及び CR の測定時には低濃度であるが河川水から DEP 及びトリシクラゾールが検出されていた。DEP 及びトリシクラゾールが河川水中から検出された期間に CR の低下が見られた。殺虫・殺菌剤の同時散布及び河川水中から約 20 日間 DEP・トリシクラゾールが検出された事を考慮し、DEP・トリシクラゾールの複合影響及び長期曝露による影響の検討が今後必要である。

4.2 河川水中の農薬濃度

4.2.1 流入農薬の季節変化

飯山市広井川流域の稲作は5月中旬から開始され、7月に中干し、10月上旬に収穫が行われる。稲の生長に合わせて使用される農薬に伴い、季節により河川水中から検出される農薬が除草剤 (5月~6月) から殺菌剤・殺虫剤 (8月) へと変化した。他の地域でも同様に季節によって河川水中から検出される農薬の種類が変わる事が知られている。例えば、琵琶湖流入河川においては除草剤のモリネート、シメトリン、オキサジアゾン、チオベンガルブが5月~6月に最大値を示し³⁾、恋瀬川においても5月~6月に高濃度で除草剤のシメトリンやチオベンガルブが検出され、殺菌剤は7月~8月に検出されると報告されている¹⁴⁾。

調査地点において河川水中から検出されたシメトリンの最高値は2001と2002年で違いは見られなかったが2003年は $9.6\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ (6月16日14:00) と高濃度で検出された。琵琶湖流入流出河川において検出されるシメトリンの地点毎の最高濃度は $3\sim 23\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ ³⁾、法竜川では $23\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ であったと報告されており¹³⁾、広井川から検出されたシメトリン濃度 $9.6\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ は他で報告される濃度レベルと同程度であった。

自動採水器による高頻度の採水により、農薬の日変動が明らかになった。DEP 及びトリシクラゾールは航空防除が採水地点付近で行われた時間に最高値を示し、農家が各自で散布するシメトリンの場合は 14 時にピークを示す事が明らかになった。

4.2.2 農薬の流出率

農薬の流出は濃度のみが注目されがちである。しかし、農薬の流出負荷量の算出は、農薬の使用量に対する流出量の算定や流域面積や水田面積が異なる河川での流域面積当たりの流出重量の算定を行う事が基本になる¹⁵⁾。

流出率は、農薬の表面流出、浸透流出、降水、調査頻度に影響を受ける事が知られている^{16,17)}。琵琶湖流域で使用されるシメトリンが瀬田川へ流出する割合は、使用量の5~10%であり³⁾、琵琶湖集水域の水田群でのシメトリンの流出率は10~25%¹⁶⁾、千葉県味庄地区ではシメトリンの流出率は19~51%であった¹⁸⁾と報告されている。また、圃場を用いた実験ではシメトリン散布後に止水期

間を設けないと散布量の23%が水田から河川に流出すると報告されている¹⁹⁾。広井川におけるシメトリンの流出率は過去の報告とほぼ一致した。

5. まとめ

河川における一次生産は河床礫面に発達する付着藻類によって行われ、付着藻類は剥ぎ取り食の水生昆虫などの餌資源として重要な存在である。よって、本研究は水田地帯を流れる広井川を研究地点とし、農薬が付着藻類の種組成・現存量及び付着微生物群集の生産力に与える影響を評価する事を目的とした。

2001年4月から2003年10月まで調査地点より付着藻類を採取し、同定・計数を行った。また、2003年6月と8月に付着微生物群集の純一次生産力 (NCP; Net Community Productivity) ・呼吸量 (CR; Community Respiration) の測定を行った。

珪藻類の現存量は、3年間を通し8月よりも除草剤が検出された時期 (5月~7月) に多くなり、更に、種組成の変動にも除草剤の影響は見られなかった。よって、珪藻類の種組成・現存量の変動には除草剤の影響は示唆されなかった。

2003年6月16日14:30の付着微生物群集のNCPは $27\text{ mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ を示した。測定時の付着微生物群集のChl.a量及び光量子束密度が同程度の他の測定時と比べ明らかにNCPは低い値であった。6月と8月のCRはそれぞれ $74, 18\text{ mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ であり、8月にCRが減少した。広井川流域では6月に除草剤、8月には殺虫剤と殺菌剤が散布される。6月除草剤が検出され、8月には殺虫・殺菌剤が河川水中から検出された。付着微生物群集のNCP及びCRには農薬の検出状況と関係があるように見えたが、河川では様々な要因があるため、今後更に検討が必要である。

(原稿受付 2006年12月12日)

(原稿受理 2007年8月17日)

参考文献

- 1) 金澤純 (1992) 第3章 農薬の環境における動態, pp. 39-53, 第6章 農薬の水における動態, pp. 141-208, 「農薬の環境科学」, 合同出版社, 東京.
- 2) Hatakeyama, S., Shiraiishi, H. and Sugaya, Y., (1991) Monitoring of the overall pesticide toxicity of river water to aquatic organisms using a freshwater shrimp, *Paratya compressa improvisa*, *Chemosphere* **22**, 229-235.
- 3) Sudo, M., Kunimatsu, T. and Okubo, T. (2002) Concentration and loading of pesticide residues in Lake Biwa basin (Japan), *Wat Res* **36**, 315-329.
- 4) Vannote, R. L., G. W. Minshall, K. W. Cummins, J. R. Sedell and C. E. Cushing (1980) The river continuum concept. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* **37**, 130-137.
- 5) 川那部浩哉 (1970) アユの社会構造と生産 II ~15年間の変化を見て~, 日本生態学会誌 **20**, 144-150.
- 6) Westlake, D.F. (1969) Units and comparability, in "A manual on methods for measure primary production in aquatic environments" (Ed Vollenweider R.A.), pp. 133-117, IBP Handbook 12, Blackwell.
- 7) 窪田英夫 (1997) 激流千曲川を育む水環境, 珪藻の目で水質汚濁, 217pp. 信毎書籍出版センター.
- 8) 森川和子 (1984) 多摩川上流域における好気性従属栄養細菌数の季節変動とそれの環境要因の関係について, 陸水学会誌 **45**, 69-78.

- 9) Moschini-Carlos, V., Henry, R. and Pompeo, M. L. M. (2000) Seasonal variation of biomass and productivity of the periphytic community on artificial substrata in the Jurumirim Reservoir (Sao Paulo, Brazil), *Hydrobiologia*, **434**, 35-40.
- 10) 沖野外輝夫(2002) 新生態学への招待 河川の生態学, 132pp., 共立出版(株), 東京.
- 11) 相崎守弘 (1980) 富栄養河川における付着微生物群集の発達にともなう現存量及び光合成量の変化, *陸水学雑誌*, **41**, 225-234.
- 12) 高橋信孝 (1989) 基礎農薬学, 279pp., 養賢堂, 東京.
- 13) Okamura, H., Mingyu Piao, Aoyama, I., Sudo, M., Okubo, T. and Nakamura, M. (2002) Algal growth inhibition by river water pollutants in the agricultural area around Lake Biwa, Japan, *Environmental pollution*, **117**, 411-419.
- 14) 菅原敦, 安野正之, 畠山成久, 花里孝幸 (1990) 水界生態系に及ぼす有害汚染物質の影響評価に関する研究, 国立公害研究所特別研究報告, SR-4-'90, 29-35.
- 15) 海老瀬潜一, 福島勝英, 尾池宣佳 (2003) 淀川本支川の農薬の流出特性と流出リスクの評価, *水環境学会誌*, **26**, 699-706.
- 16) 須戸幹, 川地武 (2006) 琵琶湖流域の水田群における除草剤の流出とその要因, *水環境学会誌*, **29**, 715-721.
- 17) 海老瀬潜一, 川村裕紀 (2006) 淀川本川の高頻度定時調査と出水時調査による農薬流出評価, *水環境学会誌*, **29**, 705-713.
- 18) 丸論 (1991) 水系環境における農薬の動態に関する研究, 千葉県農業試験場特別報告, 18, 34-41.
- 19) Inao, K. and Kitamura, Y. (1999) Pesticide paddy field model (PADDY) for predicting pesticide concentrations in water and soil in paddy fields, *Pestic Sci.*, **55**, 38-46.