

# 家畜飼養から堆肥化過程でのクロピラリドの動態

農研機構 中央農業研究センター

阿部佳之

## 1. はじめに

クロピラリド (3,6-dichloro-2-pyridinecarboxylic acid) は、欧米などにおいて主にイネ科牧草や穀物の生産に使われる選択性除草剤の成分であり、専ら海外で使用されて日本での農薬登録はない (農林水産省 2018a)。米国では2000年ごろ、クロピラリドで防除した芝草を刈り取ってその残さを堆肥化したあと、仕上がった堆肥を肥料や育苗培土として使用した際に、堆肥に残留したクロピラリドにより作物被害が生じる大きな問題が生じた (Bezdicek 2001; Rynk 2002)。

その後まもなく、クロピラリドの農薬登録がない我が国においてもまた、チモシー乾草など輸入牧草に残留したクロピラリドが乳牛の体内を経てふん尿中に排せつされ、その乳牛ふん尿を原料にした堆肥が原因とされる作物被害が報告された (佐藤ら 2006; 佐藤ら 2010)。そのため当時の我が国では、乳牛ふん尿堆肥に関係するクロピラリド対策が検討され、国の事業で開発された被害低減対策技術 (農研機構 2009a) や飼料会社による輸入時の監視強化が効果を発揮してクロピラリド被害は収まるかに思われた。

ところが最近になって、小麦ふすまや大麦ぬかなどの加工穀類中にクロピラリドが検出され、それらを多用する肉牛由来の堆肥からクロピラリドが比較的高い濃度と頻度で検出された (農林水産省 2018b; 農林水産省 2020)。また、ミニトマトやスイートピーなどクロピラリドに感受性の高い作物では、牛ふん堆肥を施用した育苗中のポット栽培や施設栽培で生育障害が未だに発生している (農林水産省 2018c)。

一般的に、我が国の畜産業では、固形状の家畜排せつ物は畜産経営内外で流通あるいは利用しやすいように堆肥化するケースが多い一方で、肥育農家は酪農家よりも輸入飼料への依存度が高く自給飼料を生産する機会が少ないため、肉牛ふん尿を堆肥化処理しても自ら堆肥を利用することは少ない。そのため、生産した堆肥を安定的に外部流通することは肉牛生産を持続する上で不可避の条件であり、堆肥の流通を阻害するクロピラリドによる作物被害のリスクを低く抑えることは彼らの経営の中で優先順位が高い重要な課題となっている。

また、我が国では入手が年々難しくなっているオガクズ等の牛舎敷料や副資材の代替として、一度堆肥化したものを再利用する、いわゆる戻し堆肥 (中央畜産会 2016) の利用が増えている中で、戻し堆肥に含まれるクロピラリドが堆肥のクロピラリド濃度にどのような影響をもたらすのか調査された例は見られない。

そこで、本稿ではまず、農食事業での取り組みを中心に、消化試験を通じた肉牛ふん尿中へのクロピラリドの排せつについて得られた知見を報告する。次に、肉牛ふんを供して60℃以上の昇温を伴う堆肥化1次発酵や20℃一定下で3カ月間にわたる堆肥化2次発酵を堆肥化試験装置で再現し、これらの堆肥化過程で観察されたクロピラリドの動態について報告する。最後に、これまでの検討から堆肥化過程ではクロピラリドが分解されない前提に立ち、戻し堆肥を副資材として繰り返し利用した場合の堆肥中へのクロピラリド蓄積をモデル化してそのリスクを明らかにす

るとともに、現状で考えられるクロピラリド蓄積への対応策を提示して本稿を取りまとめる。

## 2. 肉牛におけるふん尿中へのクロピラリドの排せつ

### (1) 方法

摂取したクロピラリドの排せつ状況を肉牛において明らかにするため、農研機構那須塩原事業場で飼養する黒毛和種肥育牛4頭(平均14ヶ月齢、平均体重425kg)を供試して、馴致期7日間、予備期9日間、本試験期5日間とする消化試験を実施した。供試飼料はカラードギニアグラス乾草および市販の配合飼料とし、粗濃比約2:8で日増体量が0.2kgとなるよう飼料を給与した(農研機構2009b)。配合飼料には、クロピラリド濃度が1.0ppmとなるようクロピラリド標準品を水に溶解させてスプレーで均一に添加した。本試験ではふん尿分離機を備えたストールに供試牛を繋養し、全ふんおよび全尿を分離採取するとともに、飼料給与量と残飼量の差し引きから飼料摂取量を求めた。飼料摂取量、全ふん量および全尿量に対し、飼料、ふんおよび尿中のクロピラリド濃度を乗じてクロピラリドの摂取量と排せつ量を求め、さらに、排せつされたクロピラリドのふんあるいは尿中への分配率を求めた。

### (2) 結果

供試牛の飼料摂取量は、原物平均で配合飼料が4.7kg、カラードギニアグラスが1.3kgであった。供試牛のうち1頭の配合飼料摂取量が給与量の6割程度となったが、他の牛については供試した飼料をほぼ全量を摂取できた。また、飼料の乾物消化率は平均で74.6%であり、飼料の消化性に問題は認められなかった。

ふん尿中へ排せつされたクロピラリドのふん、尿それぞれへの分配率を求めたところ、ふんへは9%、尿へは91%の分配率であり(神谷ら2020)、クロピラリドの多くが尿中に排せつされたことはラットや反芻動物を対象にした既報と同様であった(USDA2004; 農研機構ら2009a)。

## 3. 堆肥化過程でのクロピラリドの動態

### (1) 方法

#### (1) - 1 堆肥化1次発酵試験

堆肥化1次発酵過程での堆肥原料中のクロピラリドの変化を明らかにするため、横江ら(2015)の堆肥化試験装置(10L規模のステンレス製堆肥発酵槽と、発酵温度制御を可能とするチャンバー等)を供して堆肥化1次発酵試験を行った。約11日間の試験期間で1条件につき3反復行い、試験期間の間に3~4日毎に2回の切り返しを行った。試験開始から1回目の切り返しまでは70℃以上に自然昇温させ、温度がピークに達した以降は有機物分解が活発となる60℃一定下で静置した(Nakasaki et al 1985)。なお、堆肥には1m<sup>3</sup>あたり20L/分の風量で連続的に通気を行った。

試験に供した堆肥原料は、農研機構那須塩原事業場の肉牛舎で集めた肉牛ふんと、副資材のオガクズであり、牛ふんに通気が可能となる含水率になるよう牛ふんと副資材の所定量を供した。これらをキルン型のミキサー内で混合・均一化する作業中に水に溶解させたクロピラリド標準品をスプレーで均一に添加した。

試験前後には堆肥の質量と含水率(105℃-24時間)、強熱減量(600℃-4時間)を測定するとと

もに、クロピラリド濃度を測定するためのサンプリングを行った。得られたサンプルは顯谷ら (2014) の方法に基づいて堆肥の前処理とクロピラリドの抽出を行い、この抽出液から Watanabe et al (2019) の方法で LC-MS/MS によりクロピラリド濃度を定量した。

### (1) - 2 堆肥化 2 次発酵試験

堆肥化 2 次発酵過程でのクロピラリドの変化を明らかにするため、1 次発酵を終了した堆肥と 3 種類のキノコ廃菌床 (A、B、C) とを容積比で 1 : 1 とした混合物 500mL (約 200g) を 900mL のマヨネーズ瓶に測り取り、20°C 一定下に好氣的に静置して堆肥化 2 次発酵試験を行った。3 カ月間の試験中に 1 カ月ごとにサンプリングができるよう、マヨネーズ瓶に測り取った堆肥は 1 条件当たり 3 反復で計 9 本用意した。なお、堆肥中のクロピラリド濃度については、前項 (1) - 1 の方法と同様に定量した。

## (2) 結果

### (2) - 1 堆肥化 1 次発酵試験

1 回目の切り返し前までに堆肥の温度は 70°C 以上に昇温した。また、堆肥化期間が約 11 日間と短かったため有機物分解率は 8.0% と低かったが、1 日当たりでは 0.7% と一般的な堆肥化処理と同等であり (畜産環境整備機構 2004)、実施設での堆肥化 1 次発酵の前半を再現できたと考えられる。しかし、このように有機物が通常に分解される環境下であっても、剪定枝や乳牛ふんの堆肥化と同様にクロピラリドに有意な減少は見られなかった (Recycled Organics Unit 2004; Ebato et al 2015)。

### (2) - 2 堆肥化 2 次発酵試験

副資材を投入せずに堆肥だけで堆肥化 2 次発酵を行った対照区では、有意差はないものの堆肥化開始時に比べてクロピラリドが 3 カ月後に 17% 減少したのに対し、副資材 A は対照区の 2 倍以上となる 42% の有意な減少が確認された。しかし、別の農場から採取した同種のキノコ廃菌床 B ではクロピラリドは減少せず再現性は確認できなかった。また、他のキノコ廃菌床 C を混合した条件についても 3 カ月後でも有意な減少は見られず、クロピラリドを分解できる副資材の選定には至らなかった。

## 4. 戻し堆肥利用時のクロピラリド蓄積の解明とその対応方法

### (1) 方法

3 の堆肥化試験の結果を受けて、堆肥化過程ではクロピラリドは分解しないという前提で、戻し堆肥が副資材として繰り返し利用される場合には、牛ふんと戻し堆肥中のクロピラリドが蓄積されていく状態を漸化式でモデル化した。また、このモデルから得られたクロピラリドの蓄積比の推定値と実測値とを比較してモデルの妥当性を検証した。さらに、このモデルを使い、クロピラリドが過度に蓄積しない対策について検討した。

### (2) 結果

堆肥中のクロピラリド濃度の初回値に対する任意の n 回目の濃度比 (蓄積比:  $X_n/X_1$ ) について、仕上り堆肥に対する利用した戻し堆肥の乾物割合 (戻し堆肥の再利用率:  $B/A$ ) から成る漸化式で

モデルを示した（式1）。

$$\frac{X_n}{X_1} = -\frac{1}{A/B-1} \times \left(\frac{B}{A}\right)^{n-1} + \frac{1}{1-B/A} \quad (\text{式1})$$

このモデル式について、前出の3.（1）－1の堆肥化試験装置を使い、戻し堆肥を副資材として8回繰り返した堆肥化試験で検証したところ、モデルで推定したクロピラリドの蓄積比と堆肥化試験で得たクロピラリド実測値から求めた蓄積比はよく一致した。

このモデルにより、蓄積比を高める要因は戻し堆肥の再利用率で説明でき、この再利用率が高まるほどクロピラリドの蓄積比も高くなった。再利用率は、含水率の低い戻し堆肥を利用することや他の副資材で戻し堆肥を代替することで低く抑えられることから、戻し堆肥の乾燥や他の副資材の一部利用により、堆肥中にクロピラリドが過度に蓄積することを防ぐことが可能と考えられる。

## 5. おわりに

肉牛の消化試験からは、摂取されたクロピラリドの多くは尿として排出されたことから、家畜ふん尿を固液分離してから固分を堆肥化することはクロピラリドのリスクを低減する有効な方法と考えられる。一方で、牛舎の構造上、固液分離ができない牧場では、尿の混入によりクロピラリドの濃度が高まりやすいことに留意が必要である。

堆肥化処理過程でのクロピラリドの動態調査からは、堆肥化過程でクロピラリドを減らす方法は残念ながら見いだせなかった。むしろ、戻し堆肥を副資材として繰り返し利用する場合にはクロピラリドが蓄積されて高濃度化するリスクが確認されたことから、戻し堆肥を副資材として利用する場合にはできるだけ乾いた戻し堆肥を利用する、あるいは、他の副資材と併用するなどクロピラリドを堆肥中に過度に蓄積させないことが現状では現実的な被害低減策と考えられる。

## 謝辞

発表内容の一部は、H29年度 農林水産業・食品産業科学技術研究推進事（29030C）の助成を受けた。また、試験の実施や取りまとめにあたっては、農業環境変動研究センターの清家伸康氏、渡邊栄喜氏、並木小百合氏、畜産研究部門の田村健一氏、中央農業研究センターの神谷裕子氏、樋口幹人氏、小島陽一郎氏、技術支援部 那須業務科 的場和弘前科長（現東北農業研究センター）、那須家畜技術チーム各位から格別なご支援や有益なご助言をいただいた。関係する皆様にこの場をお借りして厚く御礼申し上げます。

## 参考文献

- 顯谷久典ら (2014) 液体クロマトグラフタンデム型質量分析計 (LC-MS/MS) による堆肥及び汚泥肥料中のクロピラリド、アミノピラリド及びピクロラムの測定、肥料研究報告 7: 1-9.
- Bezdicek D. et al. (2001) Persistent herbicides in compost. *BioCycle*, 42(7): 25-30
- 畜産環境整備機構 (2004) 家畜ふん尿処理施設の設計・審査技術、畜産環境整備機構、東京
- 中央畜産会 (2016) おが粉の代替となる敷料の事例集、  
<https://www.maff.go.jp/j/chikusan/kankyo/taisaku/pdf/ogako.pdf>
- Ebato M. et al. (2015) Dynamics of clopyralid herbicide during composting in small composting experiment units. *J. Pestic. Sci.*, 40(4): 184-190.
- 神谷裕子ら (2020) 肥育牛における糞尿中へのクロピラリド排泄、日本畜産学会報、91(3)、289-293.
- Nakasaki K. et al. (1985) Effect of Temperature on Composting of Sewage Sludge. *Appl. Environ. Microbiol.*, 50: 1526-1530.
- 農研機構 (農業・食品産業技術総合研究機構) 編 (2009a) 飼料及び堆肥に残留する除草剤の簡易判定法と被害軽減対策マニュアル、  
[http://www.naro.affrc.go.jp/publicity\\_report/publication/pamphlet/tech-pamph/011167.html](http://www.naro.affrc.go.jp/publicity_report/publication/pamphlet/tech-pamph/011167.html)
- 農研機構 (農業・食品産業技術総合研究機構) 編 (2009b) 日本飼養標準・肉牛、2008年版、中央畜産会、東京
- 農林水産省 (2018a) 牛等の排せつ物に由来する堆肥中のクロピラリドが原因と疑われる園芸作物等の生育障害の発生への対応について、  
<http://www.maff.go.jp/j/seisan/kankyo/clopyralid/attach/pdf/clopyralid-31.pdf>
- 農林水産省 (2018b) 平成29年度輸入飼料中及び堆肥中に含まれるクロピラリドの調査結果について、  
<http://www.maff.go.jp/j/seisan/kankyo/clopyralid/attach/pdf/clopyralid-33.pdf>
- 農林水産省 (2018c) クロピラリドが原因と疑われる生育障害の発生状況、  
<https://www.maff.go.jp/j/seisan/kankyo/clopyralid/attach/pdf/clopyralid-41.pdf>
- 農林水産省 (2020) 流通飼料価格等実態調査 (速報版)、  
[https://www.maff.go.jp/j/chikusan/sinko/lin/l\\_siryu/cyosa/attach/pdf/kako-45.pdf](https://www.maff.go.jp/j/chikusan/sinko/lin/l_siryu/cyosa/attach/pdf/kako-45.pdf)
- 佐藤強ら (2006) 牛糞堆肥によるミニトマトの異常生育について、日本土壌肥料学会関東支部2005年度講演会講演要旨集、52: 277.
- 佐藤強ら (2010) 堆肥に残留する除草剤クロピラリドによる作物の生育障害、日本土壌肥料学雑誌、81:158-161.
- Recycled Organics Unit (The University of New South Wales) (2004) Persistent Herbicides Risk Management Program.  
<https://www.epa.nsw.gov.au/~media/EPA/Corporate%20Site/resources/warrlocal/050365-herbicides.ashx>
- Rynk, R. (2002). Prevalence and fate of clopyralid in compost. *BioCycle*, 43(2), 57-60.

- USDA (United States Department of Agriculture) (2004) Clopyralid -human health and ecological risk assessment- Final Report. USDA, Forest Service.  
[https://www.fs.fed.us/foresthealth/pesticide/pdfs/120504\\_clopyralid.pdf](https://www.fs.fed.us/foresthealth/pesticide/pdfs/120504_clopyralid.pdf)
- Watanabe E. et al. (2019) Highly sensitive analytical method for herbicide clopyralid residue in cattle manure compost with ultraperformance liquid chromatography tandem mass spectrometry. *J. Pestic. Sci.*, 44(3), 186-191.
- 横江未央ら (2015) 発酵熱によるソフトバイオマスの乾燥、農業施設 46(4): 82-89.