

## N-methylcarbamate系 殺虫劑의 土壤中 吸着

金章億·洪鍾旭

慶北大學校 農科大學 農化學科

(1985년 2월 27일 수리)

### The Adsorption of N-methylcarbamate Insecticides on Soils

Jang-Eok Kim and Jong-Uck Hong

Dept. of Agricultural Chemistry, College of Agriculture,  
Kyungpook National University, Taegu, Korea

#### Abstract

Adsorption experiments of N-methylcarbamate insecticides on soils were carried out as a function of soil pH and soil organic matter content with wet-and dry-land soils that were either oxidized or non-oxidized. The results obtained may be summarized as follows:

The adsorption of N-methylcarbamate insecticides on soils was nearly reached to equilibrium after shaking for 12 hours.

The adsorption of N-methylcarbamate insecticides was higher on sandy clay than sandy loam. The presence of organic matter in soil increased the adsorption of N-methylcarbamate insecticides on soils.

The mode of isothermal adsorption of N-methylcarbamate insecticides on soils was coincident with the Freundlich equation. Little effect of soil pH on the adsorption might be interpreted as that the adsorption was due to physical adsorption between N-methylcarbamate molecules and soil surface.

#### 緒 論

農業의 生産性을 增大시키기 위하여 使用되는 農藥의 自然系 內에서의 行動을 究明하는 것은 藥効는 勿論 環境保全의 側面에서도 크게 意義있는 것으로 생각된다.

土壤環境中 農藥의 行動은 複雜多樣하여 農藥 그 自體의 特性<sup>1)</sup>과 土壤의 理化學的 特性<sup>2-9)</sup>, 土壤微生物<sup>10-12)</sup>, 氣象學的<sup>13-15)</sup> 因子 等에 따라 行

動樣相이 매우 相異하다고 알려져 왔다. 特히 Sheet<sup>16)</sup>와 Harris等<sup>17)</sup>은 農藥의 活性은 土壤에의 吸着으로 減少되며 土壤에서의 吸着量은 陽 이온 置換容量(C.E.C.), 土壤 pH, 有機物 및 粘土含量 等の 土壤性質에 依存한다고 하였다. 土壤의 有機物含量과 使用한 農藥과의 吸着 사이에는 正의 相關關係가 있음이 밝혀졌고<sup>18-20)</sup> Harter等은 農藥으로 使用되는 많은 種類의 有機化合物들이 土壤中에서 吸着되거나 流失되는 것은 化合物 自體의 性質뿐만 아니라 土壤 pH에도 매우 關聯이 있

다고 報告<sup>21)</sup>하였다.

따라서 本 實驗에서는 最近에 農藥의 種類 및 使用量 面에서 增加하고 있는 carbamate 系 農藥 中 N-methylcarbamate 系에 屬하는 藥劑를 選定 하여 土壤中의 有機物과 pH의 變化에 따른 吸着 程度를 究明하여 그 結果가 나왔기에 報告하는 바이다.

材料 및 方法

1. 土壤試料

供試土壤은 慶南 密陽의 嶺南作物試驗場에서 採取하여 風乾시킨 後 2mm 篩를 通過한 細土를 使用하였으며 이 土壤의 理化學의 特性은 Table 1과 같다.

土壤試料의 有機物 分解는 細土 一定量에 6% H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 溶液을 넣고 加熱하여 有機物을 分解시킨 後 分解生成物이 N-methylcarbamate系 農藥의 吸着에 미치는 形響을 考慮하여 methanol과 蒸溜水로 5回 洗滌한 다음 乾燥시켜 試料로 使用하였다.

2. 供試藥劑

供試藥劑인 N-methylcarbamate系 農藥의 一般名과 化學名은 Table 2와 같다.

이들 藥劑는 比較의 물에 難溶性이므로 methanol에 完全히 녹인 溶液을 母液으로 하여 一定量 取

해서 適正量까지 稀釋하여 使用하였다.

3. 吸着實驗

風乾細土 5g을 各 濃度의 農藥溶液 50ml와 混合하여 振盪시킨 後 12,000 rpm의 遠心分離機로 20分間 遠心分離하여 上澄液中의 農藥을 定量하고 添加濃度와의 着異를 農藥의 吸着量으로 換算하였다.

土壤의 pH는 0.1N HCl 溶液과 0.1N NaOH 溶液을 加하여 一定한 pH로 調節하여 위와 같은 方法으로 吸着量을 決定하였다.

4. 農藥分析

供試藥劑인 N-methylcarbamate 農藥의 分析은 diazo化에 依한 比色法<sup>22,23)</sup>에 따랐다.

遠心分離한 上澄液을 一定量 取하여 dichloromethane으로 抽出하여 減壓濃縮시킨 뒤 acetonitroile에 溶解하여 發色試料로 使用하였다. 0.05%(w/v)의 aniline-0.1N HCl 溶液과 5%(w/v) NaNO<sub>2</sub> 溶液의 存在 下에서 形成되는 N-methylcarbamate系 農藥의 diazo 化合物에 對한 最大吸收波長은 isoprocarb 450nm, carbofuran 460nm, XMC 400nm, propoxur 450nm, carbaryl 500nm이었다.

結果 및 考察

Slurry 方法에 依한 吸着實驗에서 振盪時間은

Table 1. Physico-chemical properties of the soil

| Soil sample | pH <sup>1</sup><br>(H <sub>2</sub> O) | O·M<br>(%) | CEC<br>(me/100g) | Particle size<br>distribution |             |             | Exchangeable<br>cation(me/100g) |      |      | Soil class <sup>2</sup> |
|-------------|---------------------------------------|------------|------------------|-------------------------------|-------------|-------------|---------------------------------|------|------|-------------------------|
|             |                                       |            |                  | Clay<br>(%)                   | Silt<br>(%) | Sand<br>(%) | Ca                              | Mg   | K    |                         |
| Wet-land    | 5.25                                  | 4.01       | 10.98            | 30.58                         | 37.62       | 31.8        | 2.97                            | 0.5  | 0.23 | SC                      |
| Dry-land    | 6.2                                   | 1.89       | 8.49             | 11.27                         | 21.2        | 67.53       | 3.27                            | 0.42 | 0.2  | SL                      |

1. Soil : H<sub>2</sub>O=1 : 5

2. SC : sandy clay, SL : sandy loam

Table 2. Nomenclature of N-methylcarbamate insecticides employod

| Common name | Chemical name   |
|-------------|---|
| Isoprocarb  | 2-Isopropylphenyl N-methylcarbamate                       |
| Carbofuran  | 2,3-Dihydro-2,2-dimethyl-7-benzofuranyl N-methylcarbamate |
| XMC         | 3,5-Dimethylphenyl N-methylcarbamate                      |
| Propoxur    | 2-Isopropoxyphenyl N-methylcarbamate                      |
| Carbaryl    | 1-Naphthyl N-methylcarbamate                              |

吸着量에 크게 影響을 주는 境遇가 많기 때문에 吸着實驗에 가장 効果的인 振盪時間을 求하고자 振盪時間別吸着量을 調査한 結果 6~12時間 振盪으로 吸着量의 增加는 거의 없이 平衡濃度에 到達하였음을 알 수 있어서 本 實驗에서는 振盪時間을 12時間으로 하였다.

本 實驗에서 使用된 여러가지 性質이 다른 두 土壤 wet-land와 dry-land에 2.5ppm, 5ppm, 10 ppm, 15ppm 間의 4 단계 濃度를 가진 N-methylcarbamate系 農藥溶液을 使用하여 濕式으로 吸着實驗을 하였다.

供試藥劑와 農藥-土壤 懸濁液을 遠心分離하여 얻은 上澄液中的 農藥의 濃度와 吸着된 量間의 吸着等溫曲線을 求한 結果는 Fig. 1, 2, 3, 4, 5와 같았다.

各 Fig.에서 보는 바와 같이 本 實驗에 使用된 供試藥劑는 濃度가 增加함에 따라 吸着量도 增加하는 傾向을 보였으나 그 吸着率은 比例하지 않

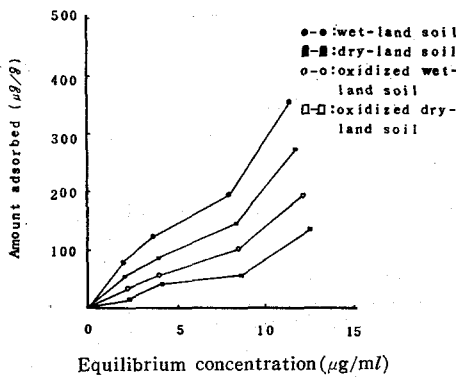


Fig. 1. Isothermal adsorption curves of isoprocab on soils at different equilibrium concentrations

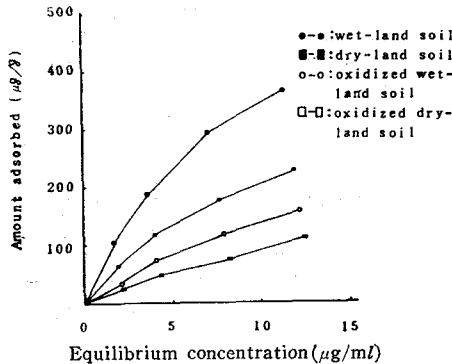


Fig. 2. Isothermal adsorption curves of carbofuran on soils at different equilibrium concentrations

았다. 또한 土壤의 理化學的 性質이 다른 두 土壤 wet-land와 dry-land에서는 吸着量에 있어서는 wet-land가 dry-land보다 더 많은 量이 吸着되었

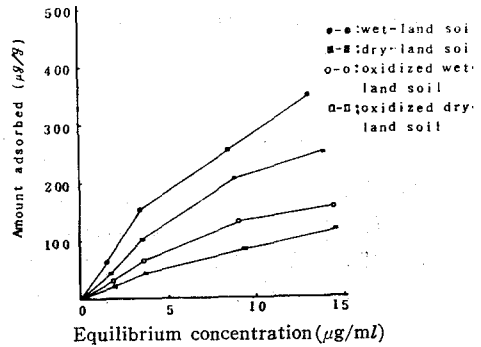


Fig. 3. Isothermal adsorption curves of XMC on soils at different equilibrium concentrations

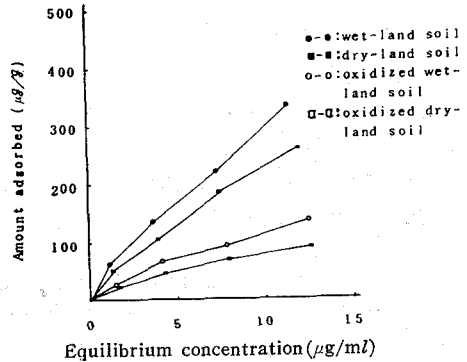


Fig. 4. Isothermal adsorption curves of propoxur on soils at different equilibrium concentrations

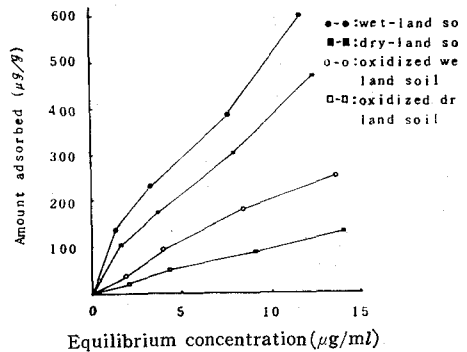


Fig. 5. Isothermal adsorption curves of carbaryl on soils at different equilibrium concentrations

으나 供試藥劑의 濃度가 높아짐에 따라 吸着量의 增加率은 비슷한 傾向을 보였다. 그리고 이들 두 土壤에 過酸化水素를 處理하여 有機物을 分解시킨 土壤의 境遇에도 대체로 本 實驗에서의 藥劑의 濃度區間에서는 吸着量이 增加하는 傾向을 보였다.

供試藥劑의 吸着等溫曲線에서 보는 바와 같이 土壤의 理化學的 性質이 다른 두 土壤 wet-land 와 dry-land에서의 吸着量에는 상당한 差異가 있음이 나타났다.

이러한 吸着量의 差異와 土壤의 有機物含量과의 關係를 알고자 이들 두 土壤에 過酸化水素를 處理하여 有機物을 分解시켰다. 有機物을 分解시키고 난 뒤의 土壤組成에는 變化가 없었으며, 단지 土壤反應에서 pH가 wet-land에서는 4.9로, dry-land에서는 5.7로 各各 低下하였다.

過酸化水素를 處理하여 有機物을 分解시킨 土壤에서의 供試藥劑의 吸着量은 상당한 減少를 나타내었음을 알 수 있다.

이러한 吸着現象을 固體가 溶液과 接觸 할 때 그 界面에 溶質이 吸着되어 平衡이 成立된다는 理論을 展開한 Freundlich 定溫吸着方程式에 適用시켜 보았다.

$$\frac{x}{m} = k \cdot c^{\frac{1}{n}} \dots \dots \dots (1)$$

$$\log \frac{x}{m} = \frac{1}{n} \log c + \log k \dots \dots \dots (2)$$

where,  $\frac{x}{m}$  : 土壤에 依해 吸着된 農藥의 量 ( $\mu\text{g/g}$ )

$c$  : 吸着平衡 後의 溶液의 濃度 ( $\mu\text{g/ml}$ )

$k, \frac{1}{n}$  : Freundlich 吸着常數

여기서 (1)式은 吸着等溫式이고 (2)式은 이의 直線式이다.

Table 3. Linear regressional analysis adsorption isotherm by Freundlich adsorption equation

| Pesticide    | Soil sample |                     | Linear relationship              | r <sup>1</sup>     |
|--------------|-------------|---------------------|----------------------------------|--------------------|
| Isoproc carb | wet-land    | N <sup>2</sup><br>O | Y=1.122X+2.387<br>Y=0.785X+3.821 | 0.988*<br>0.956*   |
|              | dry-land    | N<br>O              | Y=1.130X+1.916<br>Y=0.869X+3.335 | 0.962*<br>0.974*   |
| Carbofuran   | wet-land    | N<br>O              | Y=0.941X+2.786<br>Y=0.597X+4.412 | 0.991**<br>0.981*  |
|              | dry wand    | N<br>O              | Y=0.884X+2.512<br>Y=0.652X+3.805 | 0.993**<br>0.992** |
| XMC          | wet-land    | N<br>O              | Y=0.875X+2.831<br>Y=0.993X+3.548 | 0.953*<br>0.968*   |
|              | dry-land    | N<br>O              | Y=0.915X+2.372<br>Y=0.930X+3.218 | 0.987*<br>0.951*   |
| Propoxur     | wet-land    | N<br>O              | Y=0.769X+2.988<br>Y=0.791X+3.890 | 0.992**<br>0.997** |
|              | dry-land    | N<br>O              | Y=0.618X+2.881<br>Y=0.731X+3.704 | 0.994**<br>0.998** |
| Carbaryl     | wet-land    | N<br>O              | Y=1.064X+2.880<br>Y=0.642X+4.737 | 0.972*<br>0.990**  |
|              | dry-land    | N<br>O              | Y=0.981X+2.316<br>Y=0.721X+4.254 | 0.996**<br>0.989*  |

1. Correlation coefficient Y = log x/m  
 2. N : natural soil X = log c  
 O : oxidized soil  
 \* : Significant at 5% level  
 \*\* : Significant at 1% level

(2)式에 供試藥劑의 吸着量과 吸着平衡後의 濃度를 代入하여 求한 直線回歸式은 Table 3에서 보는 바와 같이 供試藥劑의 土壤의 吸着量은 Freundlich 定溫吸着方程式에 잘 符合됨을 알 수 있다. 또한 最少自乘法에 依하여 求한 Freundlich 常數  $k$ 와  $\frac{1}{n}$ 의 값은 Table 4와 같았다.

**Table 4.** Freundlich isotherm constants of N-methylcarbamate insecticides adsorption on soils

| Pesticide  | Soil sample |    | $k$    | $1/n$ |
|------------|-------------|----|--------|-------|
| Isoprocarb | wet-land    | N* | 45.66  | 0.79  |
|            |             | O  | 10.88  | 1.12  |
|            | dry-land    | N  | 28.09  | 0.87  |
|            |             | O  | 6.79   | 1.13  |
| Carbofuran | wet-land    | N  | 82.41  | 0.60  |
|            |             | O  | 16.22  | 0.94  |
|            | dry-land    | N  | 44.93  | 0.65  |
|            |             | O  | 12.33  | 0.88  |
| XMC        | wet-land    | N  | 34.73  | 0.99  |
|            |             | O  | 16.19  | 0.87  |
|            | dry-land    | N  | 24.98  | 0.93  |
|            |             | O  | 10.71  | 0.91  |
| Propoxur   | wet-land    | N  | 48.90  | 0.79  |
|            |             | O  | 19.85  | 0.77  |
|            | dry-land    | N  | 40.59  | 0.73  |
|            |             | O  | 17.84  | 0.62  |
| Carbaryl   | wet-land    | N  | 114.10 | 0.64  |
|            |             | O  | 17.82  | 1.06  |
|            | dry-land    | N  | 70.37  | 0.72  |
|            |             | O  | 10.14  | 0.98  |

\*N : natural soil  
O : oxidized soil

Table 4에서  $k$ 의 값은 1 ppm의 平衡濃度에서 吸着된 農藥의 量을 나타내는 값으로 有機物의 含量이 많은 wet-land가 dry-land에서 보다 큰 값으로 나타났고 有機物을 分解시킨 土壤에서  $k$ 의 값이 상당히 적게 나타난 것으로 미루어 볼 때 供試藥劑는 土壤의 有機物 含量에 따라 吸着量이 상당히 左右됨을 알 수 있었다.

또한, 이러한 吸着現象을 分配係數(distribution coefficient)로 나타내면 Table 5와 같다.

**Table 5.** Kd values on the soils at different initial concentration of N-methylcarbamate insecticides

| Pesticide  | Soil sample | Initial pesticide conc. ( $\mu\text{g/ml}$ ) |      |      |      |      |
|------------|-------------|--|------|------|------|------|
|            |             | 2.5  | 5.0  | 10.0 | 15.0 |      |
| Kd         |             |  |      |      |      |      |
| Isoprocarb | wet-land    | N*   | 42.1 | 33.2 | 24.5 | 31.7 |
|            |             | O  | 11.4 | 14.5 | 11.9 | 16.2 |
|            | dry-land    | N  | 27.5 | 22.3 | 17.5 | 24.3 |
|            |             | O  | 6.8  | 10.5 | 6.7  | 11.0 |
| Carbofuran | wet-land    | N  | 62.4 | 52.5 | 41.4 | 27.9 |
|            |             | O  | 14.3 | 16.9 | 14.8 | 13.0 |
|            | dry-land    | N  | 34.2 | 29.5 | 23.3 | 17.8 |
|            |             | O  | 11.4 | 10.7 | 8.7  | 9.9  |
| XMC        | wet-land    | N  | 28.6 | 45.9 | 30.4 | 34.9 |
|            |             | O  | 12.1 | 18.6 | 14.6 | 10.4 |
|            | dry-land    | N  | 18.3 | 30.9 | 23.6 | 18.0 |
|            |             | O  | 8.8  | 11.4 | 8.8  | 8.2  |
| Propoxur   | wet-land    | N  | 45.7 | 37.9 | 30.0 | 30.8 |
|            |             | O  | 16.9 | 16.2 | 11.5 | 11.0 |
|            | dry-land    | N  | 37.9 | 26.5 | 24.5 | 20.9 |
|            |             | O  | 14.4 | 10.7 | 8.5  | 6.3  |
| Carbaryl   | wet-land    | N  | 10.6 | 69.4 | 51.0 | 51.7 |
|            |             | O  | 15.5 | 24.8 | 23.2 | 17.6 |
|            | dry-land    | N  | 66.9 | 43.2 | 38.0 | 37.7 |
|            |             | O  | 9.5  | 10.9 | 9.1  | 9.7  |

\*N : natural soil  
O : oxidized soil

分配法則은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$x/m = Kd \cdot C \dots\dots\dots(3)$$

(3)式에서  $x, m, C$ 는 (1)式과 같은 항이며  $Kd$ 는 分配係數이다.

Table 5에서의  $Kd$  值값은 有機物이 많은 wet-land가 有機物이 적은 dry-land보다 더욱 크게 나타났고 有機物을 分解시킨 土壤이 分解시키지 않은 土壤보다 상당히 적은 값을 나타내었다. 有機物을 分解시킴으로 因한 吸着量의 減少率은 初期濃度 10 ppm을 基準으로 했을 때 wet-land에서 isoprocarb 51.5%, carbofuran 40.1%, XMC 51.6%, propoxur 41.6%, carbaryl 50.8% 程度를 나타내었고 dry-land에서는 isoprocarb 40%, carbofuran 40.1%, XMC 40%, propoxur 38%, carbaryl 28% 程度를 나타내었다.

以上の結果로 볼 때 本實驗에 使用된 供試藥劑는 土壤의 有機物에 依해서 吸着이 상당히 支配됨을 再確認할 수 있었다. 이러한 結果는 phenoxyurea系 除草劑<sup>24)</sup> 및 parathion<sup>25)</sup>의 吸着實驗結果와 비슷한 傾向을 나타내었다. 또한 吸着等溫線의 non-linearity의 程度을 나타내는  $\frac{1}{n}$ 의 값은 대체로 1 以下로 나타났는데 이는  $\frac{1}{n}$ 의 값이 1 보다 크면 粘土鑛物에 依해 農藥의 吸着이 左右되고  $\frac{1}{n}$ 의 값이 1 보다 작으면 土壤有機物에 따라 吸着이 左右된다고 한 Yoshiro Hata等의 piperophos를 利用한 實驗結果<sup>26)</sup>로 미루어 볼 때 本實驗에서는  $\frac{1}{n}$ 의 값이 대체로 1 以下로 나타났으므로 土壤의 粘土鑛物보다 土壤有機物에 依해 吸着이 더욱 支配된다고 생각된다.

以上の結果를 綜合해 볼 때 N-methylcarbamate系 農藥의 土壤에서의 吸着은 다른 有機鹽素系나 有機燐系 農藥과 마찬가지로 土壤에서의 有機物 含量에 따라 상당히 左右됨을 알 수 있었고 이러한 吸着現象은 Freundlich 定溫吸着方程式에 잘 符合됨을 알 수 있었다.

土壤에 依한 農藥의 吸着은 土壤의 pH가 變化함에 따라 크게 影響을 받았다는 報文<sup>27-29)</sup>이 많다. 따라서 土壤에 一定濃度로 調節된 供試藥劑의 溶液을 넣고 0.1N HCl과 0.1N NaOH 溶液으로 一定한 pH로 調節한 後 吸着實驗을 한 結果

Fig. 6에서와 같이 平衡溶液의 pH가 變化함에도 불구하고 吸着量에는 變化가 없는 것으로 나타났. 이러한 現象이 5가지 供試藥劑에 모두 나타난 것으로 보아 本實驗에 使用한 農藥은 非이온性임을 나타내고 또 imino基가 있어도 protonation 現象이 일어나지 않음을 보여준다.

이는 非이온성 農藥인 parathion에서도 pH의 變化에 따른 吸着量은 變化가 없다고 한 Sarina Saltzman 等의 報告<sup>25)</sup>와도 一致하였다.

이러한 結果는 wet-land와 dry-land에서는 勿論 有機物을 分解한 土壤에서도 같은 傾向을 나타내었다.

이와같이 土壤의 pH가 變化함에 따라 吸着量에 變化가 없는 것은 非이온性 農藥인 供試藥劑는 土壤表面에 荷電을 띤 部分과 강한 이온性 結合을 함으로써 吸着되는 것이 아니고 土壤表面의 hydrophobic한 部分에 物理적으로 Vander waals 힘에 依해서 吸着되는 것으로 思料된다.

要 約

두가지 性質이 다른 土壤과 이들에 過酸化水素를 處理하여 有機物을 分解시킨 후 N-methylcarbamate系 農藥과의 吸着實驗을 濕式振盪法으로 行한 結果는 다음과 같았다.

N-methylcarbamate系 農藥은 12時間의 振盪으로 平衡濃度에 到達하였다. 또한 土性別로는 sandy clay가 sandy loam보다 N-methylcarbamate系 農藥을 더 많이 吸着하는 것으로 나타났다. 有機物 含量을 달리했을 때 N-methylcarbamate系 農藥의 吸着은 有機物含量에 상당한 影響이 있음이 나타났다.

N-methylcarbamate系 農藥의 吸着現象은 Freundlich 定溫吸着方程式에 잘 符合되었다. 土壤의 pH를 變化시켰을 때 N-methylcarbamate系 農藥의 吸着量에는 變化가 없었으며 이는 土壤表面에 hydrophobic한 部分에 物理적으로 Vander waals 힘에 依해서 吸着되는 것으로 思料된다.

參 考 文 獻

1. Hance, R.J., and C.E., Mckone.: Pestic. Sci., 2 : 31(1971).
2. Getzin, L.W.: Environ. Entomol., 2 : 461 (1973).

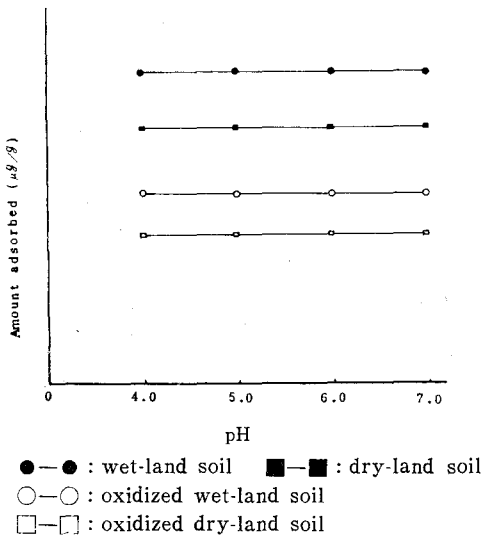


Fig. 6. A relationship of the apparent adsorption on soils at different pH values of the supernatant(initial concentration : 10ppm)

3. Rajaram, K.P., and N. Sethunathan.: Soil Science, 119 : 296(1975).
4. Mustafa, M.A., and Y. Gamar.: Soil Sci. Soc. Am. Proc., 36 : 561(1972).
5. 洪鍾旭, 崔炆: 慶北大學校 論文集 第17輯, 31 (1973).
6. Kuwatsuka, S.: Environ. Toxicol. Pestic., 385(1972).
7. Rao, D.M.R., and A.Z. Murty.: J. Agric. Food Chem., 28 : 1099(1980).
8. Bromilow, R.H., and Baker, R.J., Freeman, M.A.H. and K. Görög.: Pestic. Sci., 11 : 371 (1980).
9. Leenheer, J.A., and J.L. Ahlrichs.: Soil Sci. Soc. Am. Proc., 35 : 700(1971).
10. Wainwright, M.J. Soil Sci., 29 : 287(1978).
11. Williams, I.H., Pepin, H.S., and M.J. Brown: Bull. Environ. Contam. Toxicol., 15 : 244(1976).
12. Johnen, B.G., and E.A. Drew.: Soil Science, 123 : 319(1977).
13. Isensee, A.R., Plimmer, J.R., and B.C. Turner: Weed Sci., 17 : 520(1969).
14. Archer, T.E.: J. Agri. Food Chem., 24 : 1057(1976).
15. Crosby, D.G., and C.S. Tang.: J. Agric. Food Chem., 17 : 1041(1969).
16. Sheets, T.J., Crafts, A.S., and H.R. Drever: J. Agric. Food Chem., 10 : 458(1962).
17. Harris, C.I., and G.F. Warren.: Weeds, 12: 120(1964).
18. Harris, C.I., and T.J. Sheets.: Weeds, 13: 215(1965).
19. Talbert, R.E., and O.H. Fletchall.: Weeds, 13 : 46 : 52(1965).
20. Nearpass, D.C.: Weeds, 13 : 341(1965).
21. Harter, R.D., and J.L. Ahlrichs.: Soil Sci. Soc. Amer. Proc., 31 : 30(1967).
- 22) Rangawani, J.R., Vijayashankar, Y.N., and S.R. Prakash.: J.A.O.A.C., 59 : 1276(1976).
23. 吳秉烈, 鄭永浩, 朴英善: 韓國環境農學會誌, 1 : 14(1982).
24. Hance, R.J.: Weed Research, 5 : 108 (1965).
25. Saltzman, S., Kliger, L., and B. Yaron.: J. Agric. Food Chem., 20 : 1224(1972).
26. Yoshiro Hata, and Toru Nunoshige.: J. Pesticide Sci., 7 : 155(1982).
27. Jyung CHOI, and Shigenori Aomine.: Soil Sci. Plant Nutr., 20 : 135(1974).
28. McGlamery, M.D., and F.W. Slife.: Weeds, 14 : 237(1966).
29. Weber, J.B., Weed, S.B., and T.M. Ward.: Weed Sci., 17 : 417(1969).