

水稲用除草剤の確率論的生態リスク評価

Probabilistic ecological risk assessment of paddy herbicides

○永井孝志*, 稲生圭哉*, 横山淳史*, 岩船敬*, 堀尾剛*

Takashi NAGAI, Keiya INAO, Atsushi YOKOYAMA, Takashi IWAFUNE, Takeshi HORIO

Abstract. Probabilistic ecological risk assessment of 11 herbicides which is commonly used in Japanese paddy field was conducted. The effect assessment was based on species sensitivity distribution (SSD). The acute EC₅₀ values of standard toxicity tests for aquatic primary producers from open literature were fitted to log-normal distributions. Predicted environmental concentration (PEC) was calculated using environmental model defined by Ministry of Environment, Japan. The regional distribution of PEC was quantified using Monte Carlo analysis. Joint probability curve was derived by comparing SSD and PEC distribution, and area under the curve was defined as expected potentially affected fraction (EPAF) for quantitative risk index. The highest EPAF was 6.2% for bensulfuron-methyl.

Key Words: Pesticide, Herbicide, Ecological risk, Uncertainly

1. はじめに

農薬は安定した農業生産に必須の化学物質であるが、高い生理活性を持ち、水を媒介して河川に流出しやすいという特徴を持つため、水圏生態系への影響が懸念されている。このため、農薬取締法に基づく「水産動植物の被害防止に係る農薬登録保留基準(以下水産登録保留基準)」が改正され、平成17年より農薬の水生生物に対するリスク評価に基づいた基準値の設定が進められている¹⁾。毒性の基準値(急性影響濃度もしくは Acute Effect Concentration, 以下 AEC)は、魚類(メダカ又はコイ)、甲殻類(オオミジンコ)、藻類(*Pseudokirchneriella subcapitata*)のいわゆる「3点セット」の標準試験生物種を用いた急性毒性試験結果による LC₅₀(半数致死濃度)もしくは EC₅₀(半数影響濃度)をそれぞれの種間の感受性差に関する不確実性係数(魚類と甲殻類は10、藻類は1)で除したものの最小値と設定される。また河川水の環境中予測濃度(Predicted Environmental Concentration, 以下 PEC)はその算定のためのモデル流域における標準シナリオに基づいて、農薬使用時のピーク濃度として計算され、PEC<AECで

あるときにリスクは懸念レベル以下であるので農薬として登録可能と判定される。

現行のリスク評価はリスク有りもしくはリスク無しとの二者択一的な結論を導くものである。しかしこの手法ではリスク同士を比較することができないため、「農薬の使用量を減らす」、「より安全な農薬に切り替える」、「農薬の流出対策をとる」、などのリスク低減策をとった場合にリスクがどの程度減るのかを評価できない。効率的な農薬のリスク管理のためにはリスクを定量的な指標で表し、リスク低減対策の費用対効果の評価や優先順位付けを行うことが求められる。リスクの定量化を行うためには、毒性や曝露などの不確実なパラメータを一つに決定せずに分布として表現し、確率論的な評価を行うのが有効であると考えられている^{2), 3), 4)}。

水稲用の除草剤は用水を通じて水系に流出しやすいという特徴を持ち、加えて欧米においても水稲用除草剤のリスク評価はこれまでほとんど行われていない。そこで本研究では、代表的な水稲用除草剤11種(Table 1)を評価の対象として選定し、確率論的な生態リスク評価を行った。

* (独) 農業環境技術研究所 (National Institute for Agro-Environmental Sciences)

Table 1. 評価対象農薬と PEC 計算のためのパラメータ。水質汚濁性試験は小型の模擬実験水田を用いた田面水中農薬濃度の推移を調べる試験, Koc は土壌吸着係数, DT50 は水中半減期, 普及率は当該農薬が使われる水田面積の割合を示す。

評価対象農薬	2005年度 出荷量 (t)	水質汚濁性試験 データソース	Koc	DT50	普及率 の分布	分布のパラメータ
エスプロカルブ	147	登録保留基準	2990	93	指数分布	Rate=0.24
チオベンカルブ	348	農薬抄録	1202	21	指数分布	Rate=0.09
モリネート	169	丸論 ¹⁾	190	3.5	指数分布	Rate=0.2
メフェナセット	222	農薬抄録	1141	20	ガンマ分布	Scale=10.47, Shape=1.39
ブロモブチド	262	農薬抄録	235	77	ガンマ分布	Scale=4.65, Shape=2.14
カフェンストロール	69	農薬抄録	4020	14.9	ガンマ分布	Scale=7.23, Shape=2.86
ブタクロール	90	丸論 ¹⁾	950	48	指数分布	Rate=0.2
ベンスルフロンメチル	52	丸論 ¹⁾	3000	3.2	ガンマ分布	Scale=2.89, Shape=16.09
シメトリン	70	登録保留基準	6915	365	指数分布	Rate=0.15
ダイムロン	352	農薬抄録	973	3.3	正規分布	Mean=8.2, SD=3.8
ペントキサゾン	62	登録保留基準	10140	5	ガンマ分布	Scale=3.82, Shape=1.97

¹⁾参考文献 5)

2. 方 法

2. 1 問題設定

一般的に農薬は使用する時期が限定されており生態系への影響は一時的であるため, 本研究では, 急性毒性試験をベースとした EC₅₀ 値と農薬使用時のピーク濃度に相当する PEC の比較によりリスクを評価する手法を適用する。評価地点は農耕地系外である河川とし, 農業用水路のような小河川ではなく一級河川の中・下流地点を想定する。

2. 2 毒性評価

化学物質などのストレス要因に対する生物の感受性は一般的に種によって異なり, その違いを統計学的に表現したものが, 種の感受性分布 (Species Sensitivity Distribution, SSD) である⁶⁾。経験則により, 多数の生物種の感受性は対数正規分布に適合することが知られている。欧州では, SSD の 5 パーセントイル値に相当する濃度 (5%の種が影響を受ける濃度, もしくは 95%の種が保護される濃度) を HC₅ (5% Hazardous Concentration) と表現し, これを無影響濃度とすることで生態リスクの判定に用いている。また, 影響を受ける種の割合 (Potentially Affected Fraction, PAF) は化学物質の濃度との関数として表すことができるため, これを生態系への影響度指標とすることで定量的なリスク評価に活用できる。

評価対象農薬の急性毒性試験結果を文献などから収集し, EC₅₀ 値もしくは LC₅₀ 値をデータベース

としてまとめた。除草剤については藻類等の一次生産者に対して特に毒性が高いため, 一次生産者の毒性データのみを SSD 解析に使用した。一次生産者で 5 属以上のデータが得られる場合, 毒性データを Naito et al.⁷⁾に従い属毎に区間データとしてまとめ, 対数正規分布のパラメータ (対数平均, 対数標準偏差) を最尤法にて推定した。データ数が 5 属に満たない場合, ほぼすべての剤でデータがそろっている藻類標準種の EC₅₀ 値を用いて, 以下の二段階に分けて推定を行った:

- (1) 同じ作用機作の薬剤間では SSD の分散は同じであると仮定し⁸⁾, 外挿推定する。すなわち, 同じ作用機作の剤で 5 属以上の毒性データが得られる場合, 標準種 EC₅₀ 値の差だけ分布を平行移動させる。
- (2) (1)のデータも得られない場合はデフォルト値を用いる⁹⁾。5 属以上の毒性データが得られた除草剤 16 剤の SSD を解析し, 標準種 EC₅₀ 値と対数平均の差, 対数標準偏差のそれぞれ中央値をデフォルト値として採用し, 分布を推定する。

2. 3 曝露評価

モンテカルロシミュレーションにより PEC の地域的なばらつきを解析した。PEC の計算は環境省¹⁾の方法に従い, 地上防除の Tier2, 止水期間 3 日, 毒性試験期間 3 日の条件で計算した。計算に必要な農薬毎のパラメータは Table 1 に示す。普及率は 2005 年度の出荷量をベースに計算した。流域

Table 2. PEC 計算のための流域パラメータの標準値とその推定地域分布。

パラメータ	標準シナリオ	分布	値	最小-最大
圃場群面積(水田)	500 ha	対数正規分布	Mean=1060, SD=726	0.0-3872
水稲作付け割合		三角分布	Mode=65.3	52.3-80.7
本川の流量	3 m ³ /s	対数正規分布	GM=2.71, GSD=1.56	0.87-9.18
農薬の普及率	10 %	Table 1 参照	-	-
表面流出水量	30 m ³ /ha/day	三角分布	Mode=30	20-40
畦畔浸透による流出水量	20 m ³ /ha/day	一様分布	-	18-22
畦土壌の比重	1 g/cm ³	正規分布	Mean=1.1, SD=0.29	0.23-2.14
接触水と接触土の体積比	2.4 -	固定値	2.4	-
畦土壌の有機炭素含有率	2.9 %	対数正規分布	GM=1.98, GSD=2.17	0.1-24.3
支川河川の水量	86400 m ³ /day	対数正規分布	Mean=86400, SD=40500	-
支川河川の底質量	2000 m ³	固定値	2000	-
支川河川の底質の比重	1 g/cm ³	正規分布	Mean=1.1, SD=0.29	0.23-2.14
支川河川の底質の有機炭素含有率	1.2 %	対数正規分布	Mean=1.2, SD=1.08	-

Table 3. 毒性作用機作, SSD データ (5 属以上でデータ有り) と対数正規分布のパラメータ, HC₅ 値。

評価対象農薬	作用機作	SSDデータ	ln Mean	ln SD	HC ₅ (μg/l)
エスプロカルブ	Lipid ¹⁾	外挿推定	7.23	1.78	74.4
チオベンカルブ	Lipid ¹⁾	データ有り	6.64	2.25	19.1
モリネート	Lipid ¹⁾	データ有り	8.42	1.31	525.4
メフェナセット	VLCFAs ²⁾	データ有り	6.73	1.81	42.9
プロモブチド	Other	デフォルト	9.00	1.29	974.1
カフェンストロール	VLCFAs ²⁾	データ有り	5.89	2.21	9.5
ブタクロール	VLCFAs ²⁾	外挿推定	4.36	2.53	1.2
ベンスルフロンメチル	ALS ³⁾	データ有り	5.29	3.70	0.5
シメトリン	PSII ⁴⁾	データ有り	3.53	0.85	8.5
ダイムロン	Other	デフォルト	8.97	1.29	943.1
ペントキサザン	PPO ⁵⁾	デフォルト	0.96	1.29	0.3

¹⁾脂質生成性阻害²⁾超長鎖脂肪酸生成成阻害³⁾アセト乳酸合成酵素阻害⁴⁾光化学系II阻害⁵⁾プロトポルフィリノーゲンIXオキシダーゼ阻害

パラメータの標準値¹⁾と推定地域分布³⁾は Table 2 に示す。これらの分布を用いてパラメータをランダムに発生させて、PEC の計算を行う試行を 10000 回繰り返すモンテカルロシミュレーションを行った。

PEC 推定の検証として、茨城県桜川を対象として行われた 2005 年度の河川水中農薬濃度モニタリングデータ¹⁰⁾を用いて、実測濃度のピーク値と

桜川流域のデータを用いて推定した PEC の比較を行った。

2. 4 リスクキャラクターゼーション

曝露の分布と毒性の分布から確率論的リスク評価を行った。PEC のモンテカルロシミュレーションの結果から、PEC の超過確率を (1-PEC の累積確率密度) で求めた。それを SSD と重ね合わせ、ある割合の種が影響を受ける濃度レベルの曝露を

受ける確率を Joint Probability Curve (リスクカーブ) として表した^{2), 3)}。リスクカーブの下の面積を EPAF (Expected PAF, 期待影響割合) とした²⁾。ここでの EPAF は、全国平均的にどのくらいの割合の種が影響を受けるか、というリスクの定量的な指標として意味付けられる。

参考として、水産登録保留基準に準じ、標準シナリオの値を用いて計算した標準 PEC を藻類標準種の EC₅₀ 値で除した、いわゆるハザード比を計算した。

3. 結果と考察

推定した SSD のパラメータ (対数平均 ln Mean と対数標準偏差 ln SD) を Table 3 に示す。例えば エスプロカルブの場合、SSD 解析のためのデータが不足していたが、同じ作用機作のチオベンカルブとモリネートでデータがそろっているので、対数標準偏差は二剤の平均値となり、藻類標準種の EC₅₀ 値の差から推定した二つの対数平均の平均値が推定値となる。プロモブチドの場合、対数標準偏差はデフォルト値の 1.29、対数平均は藻類標準種 EC₅₀ 値の対数値にデフォルト値 0.91 を足したものが推定値となる。

PEC 推定の検証として、桜川河川水中実測濃度

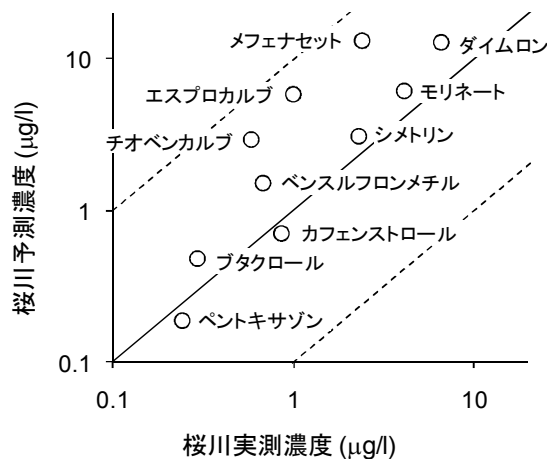


Fig. 1. 桜川における実測ピーク濃度と予測濃度の比較。実線は 1:1, 破線は 1:10, 1:0.1 のラインを示す。

のピーク値と、桜川流域のパラメータと茨城県の普及率を用いて推定した PEC の比較を行ったところ、その差は最大で 6 倍以内であった。チオベンカルブ、メフェナセット、エスプロカルブは若干安全側推定になっており、これらを除くと実測値と推定値は良く一致し、PEC についてはおおむね現況を再現できていることが確認された (Fig.1)。

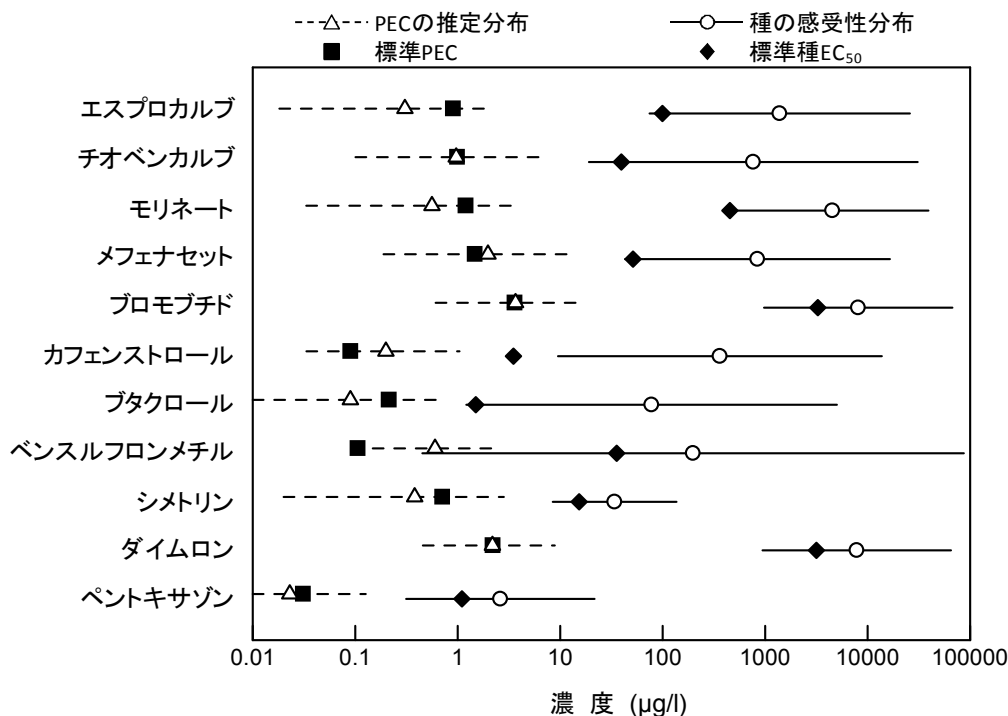


Fig. 2. PEC の推定地域分布と種の感受性分布(SSD)。中央値 (○, △) と 90 パーセント信頼区間 (実線, 破線) を示す。参考として標準シナリオによる PEC と藻類標準種 EC₅₀ 値を示す。

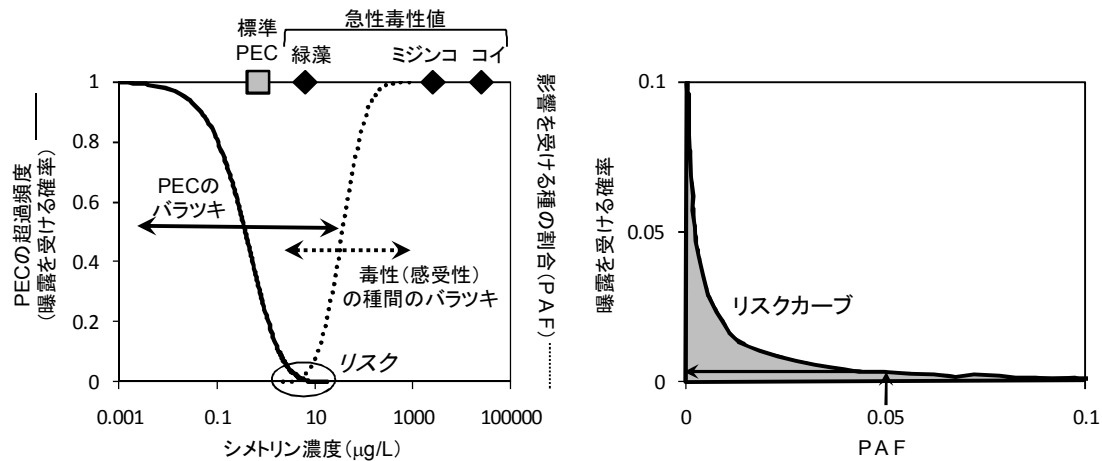


Fig. 3. シメトリンを例にした、PEC の分布と SSD (左) とリスクカーブ (右)。右図の塗りつぶした部分の面積が EPAF となる。

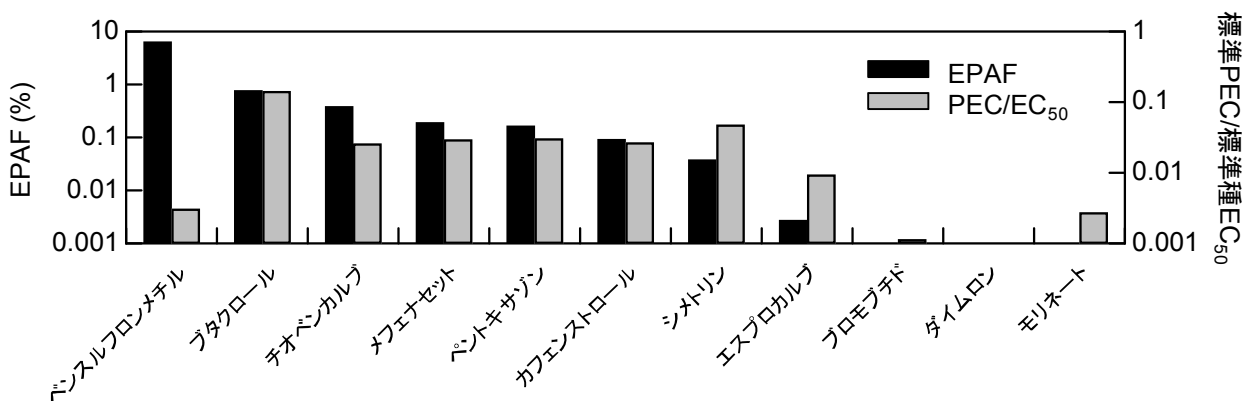


Fig. 4. EPAF と標準 PEC/標準種 EC₅₀ (ハザード比) の計算結果。

PEC の推定地域分布と SSD を重ね合わせると Fig. 2 のようになる。ベンシルフロンメチルは感受性の差 (分布の分散) が大きく、PEC の分布との重なりが大きかった。藻類の標準種は常に感受性分布の中で低濃度側 (安全側) に位置していたが、標準 PEC は地域分布の中で必ずしも高濃度側 (安全側) に位置していなかった。剤毎の標準 PEC の位置けの変化は、感度分析の結果から、普及率の大きさとその地域分布が大きく影響していると考えられる。

シメトリンを例に、PEC の超過確率の分布を SSD と重ね合わせると Fig. 3 左のようになり、この重なる部分の大きさがリスクの大きさとなる。これより導出したリスクカーブは Fig. 3 右のようになる。このリスクカーブより、1%の種が影響を受ける確率は 1.8%、5%の種が影響を受ける確率は 0.3%、10%の種が影響を受ける確率は 0.1%と算

出された。地域毎のリスクのばらつき加減を見たい場合には、リスクカーブによるリスクの表現が適している。リスクカーブの下の面積 (EPAF) はシメトリンの場合 0.04%と算出された。これはシメトリンによって、全国平均的に河川水中一次生産者の 0.04%の種が影響を受けている、と意味付けられる。リスクを一つの数字にまとめて比較したい場合には EPAF による表現がわかりやすい。

11 種の水稲用除草剤の EPAF は Fig. 4 のようになり、ベンシルフロンメチルが 6.2%で最も大きかった。標準 PEC/標準種 EC₅₀ (ハザード比) はすべて 1 以下であった。EPAF によるリスクランキングとハザード比によるリスクランキングでは異なる結果となり、特にベンシルフロンメチルでその差は大きかった。これは、実際の普及率の値を用いていること (標準シナリオでは 10%だが、実際の全国レベルでの普及率は 41%に上る)、感受

性分布の分散が大きいことが寄与しているものと考えられる。

確率論的な評価には必要とされるデータの数も多くなるが、実際には農薬の剤毎に得られるデータは質、量ともにバラバラである。従って、いかに入手可能なデータを有効に利用して多数の剤を横並びで評価するか、という部分に工夫が必要になる。本研究では毒性評価において、毒性データの不足している剤でも SSD パラメータを推定する手法を開発し、多数の農薬を横並びで評価することができた。曝露評価においては、水質汚濁性試験の結果が入手できない剤が多く、その場合、PADDY モデル¹¹⁾などの数理モデルで推定することで補っていく等の工夫が必要になる。

本研究では、曝露や毒性のばらつき（変動性）を定量的に表現し、リスクを確率として定量化した。しかしながら、データが不足していることによる推定の不確実性の定量化は行っていない。林⁴⁾はベイズ法を用いて EPAF 推定の不確実性を定量化して、信頼区間を計算している。これによると、EPAF 推定の不確実性は毒性データが不足していることの影響が大きく、本研究においても、推定の不確実性を定量化し EPAF を範囲で示すことが今後の課題となる。また、EPAF の値と実際の生態系の応答との関係を築くことも、EPAF の生態学的な意味付けを深めるために重要な課題となるであろう。

EPAF の値は冒頭に記したように、あくまでも効率的なリスク管理対策を考える上で有用であるもので、値が幾つ以下であれば安全、幾つ以上なら危険、などの判断に用いるものではないことに留意が必要である。特に実際のリスク管理では様々なトレードオフ関係を考慮する必要があるため、本研究の成果はこのようなトレードオフ関係を見える化する上で、今後有用なツールとなることが期待される。

参考文献

- 1) 環境省 水産動植物の被害防止に係る農薬登録保留基準について
<http://www.env.go.jp/water/sui-kaitei/kijun.html>
- 2) EUFRAM: Probabilistic approaches for assessing environmental risks of pesticides,
<http://www.eufram.com/>
- 3) 永井孝志, 稲生圭哉, 堀尾剛 (2008) 不確実性を考慮した農薬の確率論的生態リスク評価: 水稻用除草剤シメトリンのケーススタディー. 日本農薬学会誌, 33, 393-402
- 4) 林岳彦 (2009) ベイズ推定を用いた種の期待影響割合による確率論的生態リスク評価法の開発. 環境科学会誌, 22, 204-211
- 5) 丸論 (1991) 水系環境の農薬の動態に関する研究. 千葉農試特報, 18, 1-62
- 6) L. Posthuma, G. W. Suter and T. P. Traas (2001) "Species Sensitivity Distributions in Ecotoxicology (Environmental and Ecological Risk Assessment)", Lewis Pub
- 7) W. Naito, Y. Gamo and K. Yoshida (2006) Screening-level risk assessment of di(2-ethylhexyl) phthalate for aquatic organisms using monitoring data in Japan. *Environ. Monit. Assess.*, 115, 451-471
- 8) N. Chevre, C. Loepfe, H. Singer, C. Stamm, K. Fenner and B. I. Escher (2006) Including mixtures in the determination of water quality criteria for herbicides in surface water. *Environ. Sci. Technol.*, 40, 426-435
- 9) M. Whiteside, P. Mineau, C. Morrison and L. D. Knopper (2008) Comparison of score-based approach with risk-based ranking of in-use agricultural pesticides in Canada to aquatic receptors. *Integr. Environ. Assess. Manag.*, 4, 215-236
- 10) 石原悟 (2008) 河川生態系の一次生産性に及ぼす除草剤の影響評価手法開発. 農業環境技術研究所報告, 25, 1-92
- 11) 稲生圭哉 (2004) 水田環境における農薬の挙動予測モデルの開発と有効性の検証. 農業環境技術研究所報告, 23, 27-76