

報 文

不確実性を考慮した農薬の確率論的生態リスク評価：
水稲用除草剤シメトリンのケーススタディー

永井孝志*, 稲生圭哉, 堀尾剛

独立行政法人農業環境技術研究所

(平成 20 年 5 月 28 日受付, 平成 20 年 7 月 29 日受理)

Probabilistic ecological risk assessment of paddy herbicide in Japanese river waters
using uncertainty analysis: A case study for simetryn

Takashi NAGAI, Keiya INAO, Takeshi HORIO

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

We conducted a probabilistic ecological risk assessment of the herbicide simetryn which is used in Japanese paddy fields. The EC_{50} values for 31 algal genera were fitted to log-normal distribution, and the hazardous concentration for 5% of algal genera (HC_5) was estimated to be $8.2 \mu\text{g/l}$. The predicted environmental concentration (PEC) of simetryn was calculated to be $0.71 \mu\text{g/l}$ using an environmental model and the standard scenario defined by the Ministry of Environment, Japan. The distribution of PEC was quantified using Monte Carlo analysis, and the mean of PEC was $0.77 \mu\text{g/l}$ and the 95 percentile was $2.8 \mu\text{g/l}$. The joint probability curve was derived by comparing the species sensitivity distribution and the distribution of PECs, and the probability of exceeding HC_5 was estimated to be 1.5%. © Pesticide Science Society of Japan

Keywords: probabilistic risk assessment, species sensitivity distribution, Monte Carlo simulation, simetryn.

緒 言

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と略す）が改正され、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）、ミジンコ（オオミジンコ）、藻類（緑藻 *Pseudokirchneriella subcapitata*）の急性毒性試験結果による LC_{50} （半数致死濃度）もしくは EC_{50} （半数影響濃度）をそれぞれの不確実性係数で除したものの最小値と設定される。また環境中予測濃度（Predicted Environmental Concentration, 以下 PEC）はその算

定のための標準シナリオに基づいて計算され、 $PEC < AEC$ であるときにリスクは懸念レベルに無いと判定される。しかしこの評価スキームにおいて PEC 算定のシナリオは一つに限定され、地域差などの不確実性は考慮されていない。また毒性評価においては、魚類と甲殻類に限り種間の感受性差による不確実性係数が適用されるが、その明確な根拠は示されていない。従ってより高度に生態リスクを評価するためには、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望ましいと考えられる^{2,3)}。

一般的な生態リスク評価では毒性の基準値を予測無影響濃度（Predicted No Effect Concentration, 以下 PNEC：水産登録保留基準における AEC とほぼ同義である）で表し、水産登録保留基準と同様に PEC/PNEC 比（もしくはハザード比, Hazard Quotient, 以下 HQ）が 1 以上でリスクあり、1

* 〒305-8604 茨城県つくば市観音台 3-1-3
E-mail: nagait@affrc.go.jp
©Pesticide Science Society of Japan

未満でリスクなしと判定される⁴⁾。このような HQ によるリスク評価（決定論的リスク評価）は農薬の登録を保留するかしないかの判断には線引きが明確であるため効果的であるが、リスクの大小を評価したいときには問題点を多く含んでいる。例えば水産登録保留基準による Tier1 PEC（より安全側の高い値になる）を用いた HQ と Tier2 PEC（より現実的な値）を用いた HQ では意味するものが変わってくるため、HQ の大小でリスクを比較することは不可能である。また、魚類やミジンコでは種の感受性に関する不確実性係数 10 が適用されるが、追加試験種による試験データを提出することで不確実性係数は下がり、藻類では最初から 1 が適用される⁵⁾。つまり、HQ はリスクの大きさは直接関係のない不確実性係数の大きさで変化してしまう。これに対して不確実性を解析することによってリスクを確率として定量化する確率論的リスク評価は、(1) リスクの「ある」「なし」のみではなくその大きさを定量化できる、(2) 不確実性係数などの影響を受けないリスクそのものを評価できる、(3) 恣意的なリスクの有無の判断を回避できる、などの利点がある。

本研究では、水産登録保留基準における評価スキームの毒性評価や曝露評価の不確実性を定量的に解析し、確率論的な生態リスク評価を行った。評価の対象として水稻用除草剤として日本国内で一般的に使用されているシメトリン (N^2,N^4 -ジエチル-6-メチルチオ-1,3,5-トリアジン-2,4-ジアミン; CAS 番号 1014-70-6) を選定した。水田で使用する除草剤は農業排水路を通して直接水系に流出するため、水圏生態系へのリスクは畑作使用の農薬に比較して高いと考えられる。また、欧米ではコメは主要な作物ではないため水稻用除草剤のリスク評価はほとんど行われておらず、水稻用除草剤の生態リスクを評価する意義は大きいと考えられる。

方 法

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り、それ以外の期間において生態系は回復期間にある。生態系管理の目標は生物各個体の保護ではなく生態系の持続的な維持であり、濃度のピーク時に生物個体群の半数に影響がでても影響は一時的なためその後回復が見込まれる、というような想定の下に現状の農薬の生態リスク評価は成立している。本来であれば年間を通じた濃度推移とそれによる個体群に対する一時的影響とその後の回復過程を評価する必要があるが、そのための手法が現時点では実用化されていない。そこで、本研究では当面のものとして、急性毒性試験をベースとした LC_{50} もしくは EC_{50} 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し、限られた情報を基

Table 1. Physical-chemical properties of simetryn^{a)}

Molecular weight	213.3
Solubility in water (20°C)	428 mg/l
Vapour pressure (25°C)	4.96×10^{-5} Pa
Soil sorption constant (Koc, 25°C)	642–205,000
Octanol-water partition coefficient (20°C)	138
Half life for hydrolysis	>1 year
Half life for photolysis	>20 days

^{a)} Cited from ref. 9.

にリスクを定量化するための検討を行った。なお、本研究における PEC は環境省の水産登録保留基準の中で定められた環境モデルに基づいて計算されたものと定義する。

2. 評価対象農薬

本研究で評価対象とした除草剤シメトリンの物理化学性状を Table 1 に示す。シメトリン原体の全国出荷量は、1969 年の登録以降 1970 年代をピークに出荷量が減少傾向にあり、2005 年度では約 70 トンとなっている⁶⁾。また、シメトリンは PRTR 第一種指定化学物質（政令番号 245）であり、用途別、都道府県別に排出量が推定されている⁷⁾。シメトリンを含む農薬製剤としてはモリネートや MCPB との混合剤が多く、シメトリン含有量として 0.5–4.5% の粒剤がある⁸⁾。適用は移植水稻に限られ、ほとんどが中期剤として移植後 15–30 日の範囲で使用される。

環境省はこれまでにシメトリンの水産登録保留基準値を設定しており、PEC は Tier2、止水期間 3 日、毒性試験期間 4 日の条件で $0.71 \mu\text{g/l}$ と計算されている。単回の農薬散布量は 1.5% 粒剤を 4 kg/10a 散布すると仮定して、シメトリンとして 600 g/ha を散布するとして計算されている。土壌吸着定数 (Koc) としては $6915 \text{ cm}^3/\text{g}$ が用いられている。粒剤であるためドリフトによる負荷は考慮されず、加水分解や光分解を受けにくい（Table 1）河川水中での分解は考慮されていない。また、AEC は藻類の EC_{50} 値である $6.2 \mu\text{g/l}$ （不確実性係数は 1）であり、 $PEC < AEC$ であることから登録可と判定されている⁹⁾。

3. 生態毒性評価

3.1. 毒性試験データ

シメトリンの淡水産水生生物に対する急性毒性試験データを以下により収集した：

環境省の生態影響試験¹⁰⁾、農薬ハンドブック¹¹⁾、米国 EPA の ECOTOX データベース¹²⁾、CiNii 論文情報ナビゲータ¹³⁾、ISI Web of Science、生態影響試験ハンドブック¹⁴⁾、水生生物と農薬—急性毒性資料編¹⁵⁾。

毒性試験の信頼性の評価基準は、(1) 試験生物や試験方

法等具体的な記載があり試験の再現が可能なものであること、(2) エンドポイント（死亡、生長、繁殖など）と曝露期間が明確に記されていること、とした。なお、すべて原論文を入手できたものに限って毒性データの収集を行った。ただし、環境省（環境庁）において実施して評価した生態影響試験報告、水産登録保留基準の設定に関する評価書のデータについては「信頼性の評価済み」としてそのまま用いた。

3.2. 種の感受性分布

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¹⁶⁾。この分布からある割合の種を守るための管理基準を設定することができ、米国やオランダ、デンマークなどで水質基準値の設定に使用されている。SSDの5パーセンタイル値に相当する濃度（5%の種が影響を受ける濃度）をHC₅（5% hazardous concentration）と表現し、スクリーニング評価におけるPNECとする方法が一般的になっている。SSD法は、ある生態系の中で影響を受ける種が5%以下に収まればその生態系の多様性は維持されるという仮定の下で、個体レベルの影響を群集レベルや生態系レベルの影響へと外挿する手法として位置付けられている。また、SSD法は生態系への影響を確率分布として表すことができるので、定量的なリスク評価方法として有用である。

本研究では、収集した毒性試験のEC₅₀値もしくはLC₅₀値の属平均値を対数正規分布に適合させ、Aldenbergら¹⁷⁾の方法に従いHC₅とその信頼区間を算出した。LC₅₀が>10,000などと報告されている場合には10000として扱い、10,000–40,000などと範囲を持って報告されている場合にはその中間値である25000とした。種ごとに複数の株で複数の試験期間で試験が行われている場合には、それぞれのEC₅₀値を独立データとして扱った（例えばA株で一つの試験期間、B株で二つの試験期間のEC₅₀値が得られる場合には、3つの独立データとする）。藻類の毒性試験において面積法と速度法の両方でEC₅₀値が評価されている場合には速度法による値を採用した。そして一つの種で複数あるEC₅₀値の幾何平均値を算出して種平均値とした。さらに同属で複数種のEC₅₀値が得られる場合には、種平均値の幾何平均値を算出して属平均値とした。対数正規分布への適合度はコルモゴロフ・スミルノフ検定とアンダーソン・ダーリン検定によって検定を行った（有意水準5%）。

4. 曝露評価

4.1. 感度分析

PECの不確実性分析のための予備的検討として、PEC算定の各パラメータの影響の大きさを把握するために感度分析を行った。感度分析の手法として(1)式による鋭敏比

(Sensitivity Ratio)を用いた¹⁸⁾：

$$\text{Sensitivity Ratio} = \{(Y' - Y)/Y\} / \{(X' - X)/X\} \quad (1)$$

ここで、Xは標準シナリオのパラメータ値、X'はXを10%増やした値、Yは標準シナリオのPEC、Y'はXをX'に代えたときのPECである。鋭敏比は絶対値が大きいほど感度が高く、PECに与える影響が大きい。正のときはXが大きいほどPECを増加させ、負のときはPECを減少させる事を意味する。

感度分析の結果、感度が最も高かったのは水田面積、流量、普及率、一日当たり表面流出水量であった（Table 2）。続いて感度が高かったのはKocと支川河川の底質への吸着に係るパラメータであった。畦畔浸透に係るパラメータは感度が低く、これらの不確実性はPECの値に与える影響は少ないことが示された。

4.2. モンテカルロシミュレーション

感度分析の結果を踏まえて、各パラメータの地域的な変動を統計学的な分布として表現し（Table 2）、モンテカルロシミュレーションによりPECのばらつきを解析した。シミュレーションのためのモデル構造をFig. 1に示す。パラメータの分布設定の根拠は以下に示す。

水田面積の分布は、山下ら¹⁹⁾が全国107の一級水系の土地利用をGISにより解析した流域毎の水田面積率から、対数正規分布を仮定して分布を決定した。なお、この水田面積は土地利用に基づいたものであり、実際に水稻が作付された面積ではない。そこで、水田面積に作付割合（cropping ratio）をかけて水稻作付面積とした。作付割合は農林水産省統計により平成17年度の都道府県別の普通田耕地面積²⁰⁾に対する水稻作付面積²¹⁾の割合として計算し、これより三角分布を仮定して分布を決定した（Fig. 2A）。

流量の分布は、全国108の一級水系の100km²あたりの平水流量（年間流量の50パーセンタイル値）のデータ²²⁾から対数正規分布を仮定し分布を決定した（Fig. 2B）。

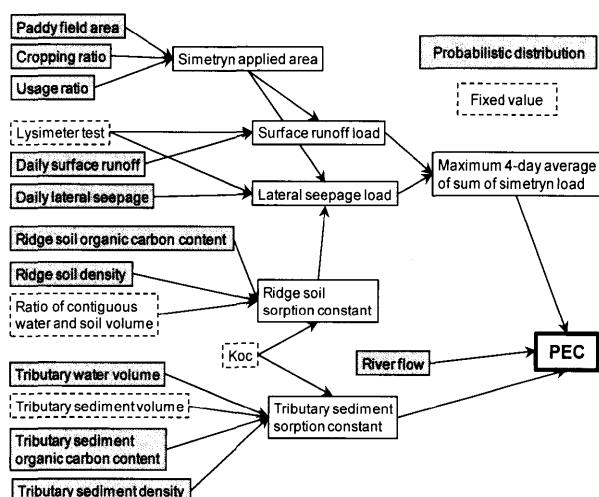
普及率（usage ratio）は、都道府県ごとに当該農業の使用量及び面積当たり使用量（600g/ha）から計算した推定使用面積が実際の水稻作付面積に占める割合で算出した。シメトリン使用量は平成17年度PRTRデータ²³⁾を用いた。PRTRの推定値は排出量であるが、使用量と排出量は同じであるとみなした。なお、山梨県の推定普及率は100%を超えたため、異常値として解析から除外した。この都道府県別のシメトリン普及率から、指数分布をとると仮定して分布を決定した（Fig. 2C）。

Vuら²⁴⁾による水田における水管理の調査結果をもとに、一日当たり表面流出水量（daily surface runoff）は三角分布をとるとし、一日当たり畦畔浸透水量（daily lateral seepage）は一樣分布をとると仮定した。

Table 2. Parameters for PEC calculation, the sensitivity analysis, and parameter distributions for Monte Carlo simulation^{a)}

Parameter	Standard value	Sensitivity ratio	Distribution	Value	Min-Max
Paddy field area	500 ha	1.00	Log-normal	Mean=1060, SD=726	0.0–3,872
Cropping ratio			Triangular	Mode=65.3	52.3–80.7
River flow	3 m ³ /s	−0.91	Log-normal	GM=2.71, GSD=1.56	0.87–9.18
Usage rate of simetryn	10%	1.00	Exponential	$\lambda=0.15$	0.0–31.0
Soil sorption constant (Koc)	6915 cm ³ /g	−0.32	Fixed	6915	
Daily surface runoff	30 m ³ /ha/day	0.99	Triangular	Mode=30	20–40
Daily lateral seepage	20 m ³ /ha/day	0.01	Uniformal		18–22
Ridge soil density	1 g/cm ³	−0.01	Normal	Mean=1.01, SD=0.29	0.23–2.14
Ratio of contiguous water and soil volume	2.4	0.01	Fixed	2.4	
Ridge soil organic carbon content	2.9%	−0.01	Log-normal	GM=2.71, GSD=1.56	0.1–24.3
Tributary water volume	86400 m ³ /day	0.30	Log-normal	Mean=86400, SD=40466	
Tributary sediment volume	2000 m ³	−0.31	Fixed	2000	
Tributary sediment density	1 g/cm ³	−0.31	Normal	Mean=1.01, SD=0.29	0.23–2.14
Tributary sediment organic carbon content	1.2%	−0.31	Log-normal	Mean=1.2, SD=1.08	

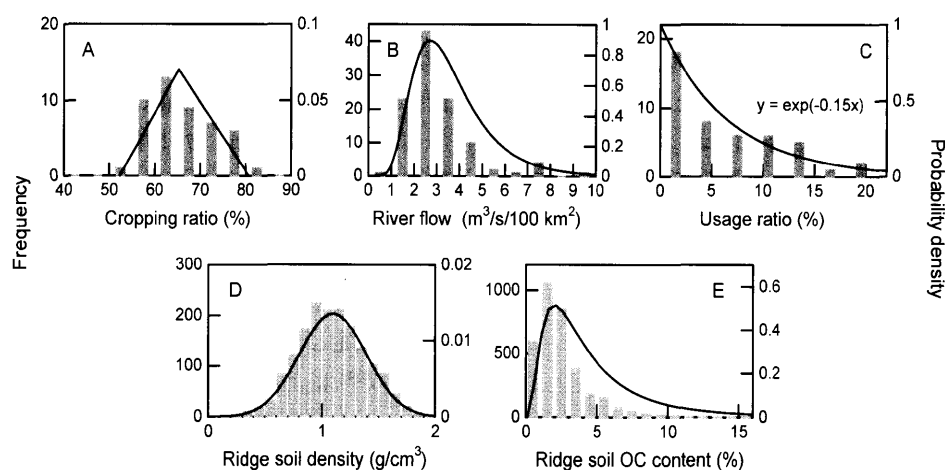
^{a)} SD, GM, and GSD indicate standard deviation, geometric mean, and geometric standard deviation, respectively.

**Fig. 1.** Model structure for PEC calculation and the Monte Carlo simulation.

畦土の比重 (ridge soil density), 畦土の有機炭素含有率 (ridge soil organic carbon content) は, 昭和 34 年から 54 年にかけて農林水産省が行った地力保全基本調査における水田土壌の全国 3670 個の測定データ^{25,26)} から分布を推定した (Fig. 2D, E).

支川河川の水量, 支川河川の底質の有機炭素含有量, 支川河川の底質の比重は, 分布に関するデータが得られなかったが, それぞれ本川の流量, 畦土の有機炭素含有率, 畦土の比重と同様の分布形になると仮定して分布を設定した.

シメトリンの Koc は 642-205,000 と報告値に広い幅があり (Table 1), この不確実性は変動性 + 未知性 (知識の不十分さ) を含んでいると考えられる. ここでは Koc の分布に関する情報が得られなかったため固定値としたが, Koc の影

**Fig. 2.** Distributions of parameters for PEC calculation and estimated probability density functions of the each parameter.

響は大きいと考えられるため不確実性は別途検討を行った（後に詳述）。畦畔浸透における接触水と接触土の体積比、支川河川の底質量は分布を推定できるような情報が無いため定数とした。感度の高いパラメータに関してはほぼ分布を設定することができた。

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 の計算を行うモンテカルロシミュレーションを行った。ソフトウェアは Crystal Ball ver7 を用い、試行回数は 10000 回、サンプリングはラテンハイパーキューブ法にて行った。

4.3. モニタリングデータ

上記により算出した PEC の妥当性を検討するため、比較的最近（年間出荷量が 100t 以下になった 1998 年以降）のデータに絞り、文献等からシメトリンの河川水中濃度の報告値を収集した。定期的にモニタリングされている場合には年度内の最大濃度を採用した。同一河川で複数地点あるいは複数年でモニタリングされている場合には、その地点あるいは年度内最大値の幾何平均値を計算して河川水中濃

度とした。

5. リスク評価

はじめに一般的な方法である PEC/PNEC 比（HQ）による決定論的リスク評価を行った。PEC は標準シナリオによるものと、ワーストケースシナリオに相当するモンテカルロシミュレーションとモニタリングデータそれぞれの 95 パーセンタイル値を採用した。PNEC は水産登録保留基準値によるものと SSD による HC_5 値を採用した。これらの組み合わせによる HQ を算出した。

次に、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）で求めて対数正規分布に適合させた。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³⁾。

Table 3. Ranked genus mean acute values (GMAV) of acute toxicity (EC_{50} or LC_{50}) of simetryn to freshwater organisms

<i>i</i>	Genus	Taxonomic group	GMAV ($\mu\text{g/l}$)	<i>i</i>	Genus	Taxonomic group	GMAV ($\mu\text{g/l}$)
1	<i>Gonium</i>	green algae	10.2	24	<i>Synedra</i>	diatom	71.1
2	<i>Pandorina</i>	green algae	10.6	25	<i>Penium</i>	Charophyceae	91.5
3	<i>Carteria</i>	green algae	11.2	26	<i>Euastrum</i>	Charophyceae	92.5
4	<i>Chlorogonium</i>	green algae	11.6	27	<i>Pseudanabaena</i>	cyanobacteria	96.8
5	<i>Anabaena</i>	cyanobacteria	13.6	28	<i>Nitzshia</i>	diatom	136.3
6	<i>Monomastix</i>	Prasinophyceae	15.9	29	<i>Eudorina</i>	green algae	146.1
7	<i>Chroomonas</i>	cryptophyte algae	16.6	30	<i>Cosmarium</i>	Charophyceae	153.0
8	<i>Chlamydomonas</i>	green algae	17.5	31	<i>Chlorella</i>	green algae	313.5
9	<i>Microcystis</i>	cyanobacteria	17.6	32	<i>Daphnia</i>	crustacean	5,000
10	<i>Coelastrum</i>	green algae	19.5	33	<i>Sigara</i>	aquatic insect	10,000
11	<i>Pediastrum</i>	green algae	21.1	34	<i>Paratya compressa</i>	crustacean	14,200
12	<i>Pseudokirchneriella</i>	green algae	24.6	35	<i>Oryzias</i>	fish	15,811
13	<i>Phormidium</i>	cyanobacteria	25.4	36	<i>Cloeon</i>	aquatic insect	22,000
14	<i>Cryptomonas</i>	cryptophyte algae	30.1	37	<i>Micronecta</i>	aquatic insect	22,000
15	<i>Leptolyngbya</i>	cyanobacteria	30.7	38	<i>Carassius</i>	fish	25,000
16	<i>Aulacosira</i>	diatom	32.4	39	<i>Cyprinus</i>	fish	25,446
17	<i>Echinospaerium</i>	green algae	32.8	40	<i>Misgurnus</i>	fish	28,000
18	<i>Micractinium</i>	green algae	38.3	41	<i>Monia</i>	crustacean	30,800
19	<i>Closterium</i>	Charophyceae	44.0	42	<i>Procambarus</i>	crustacean	40,000
20	<i>Merismopedia</i>	cyanobacteria	47.2	43	<i>Orthetrum albistylum</i>	aquatic insect	40,000
21	<i>Achnanthes</i>	diatom	57.8	44	<i>Sympetrum</i>	aquatic insect	40,000
22	<i>Staurastrum</i>	Charophyceae	58.4	45	<i>Bufo bufo</i>	amphibian	49,000
23	<i>Navicula</i>	diatom	59.9				

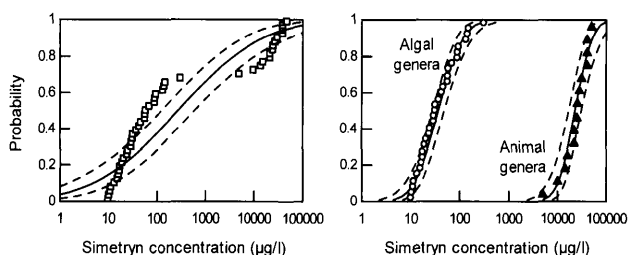


Fig. 3. Species sensitivity distributions (SSDs) for freshwater organisms (left side), and for freshwater algae and freshwater animals (right side). The solid lines show estimated log-normal distribution and the dashed lines show the 90% confidence intervals.

結 果

1. 生態毒性評価

1.1. 毒性試験データ

文献により 45 属にわたるシメトリンの水生生物に対する毒性試験の結果が収集された (Table 3). 藻類では緑藻 12 種, 車軸藻 6 種, 珪藻 8 種, プラシノ藻 1 種, クリプト藻 4 種, シアノバクテリア (藍藻) 8 種の合計 31 属 39 種にわたる EC_{50} が報告されている. 藻類の EC_{50} 値の属平均値は 10.2 から 313.5 $\mu\text{g/l}$ の範囲であった^{9,10,27,28)}. 甲殻類ではオオミジンコ (*Daphnia magna*) に対する影響が調べられており, 遊泳阻害の 48 h EC_{50} 値が 2,500 から >10,000 $\mu\text{g/l}$ と報告されている^{9,10)}. 他の甲殻類ではオオミジンコと同じミジンコ (枝角) 目のタマミジンコ (*Monia macrocopa*), エビ (十脚) 目のヌカエビ (*Paratya compressa improvisa*) とアメリカザリガニ (*Procambarus clarkii*) に対する影響が調べられており, LC_{50} 値が 14,200 から >40,000 $\mu\text{g/l}$ と報告されている^{29,30)}. 昆虫類ではカゲロウ目, カメムシ目, トンボ目から 5 種に対する毒性試験の報告があり, LC_{50} 値が 10,000 から >40,000 $\mu\text{g/l}$ と報告されている³¹⁾. 魚類ではメダカ (*Oryzias latipes*), コイ (*Cyprinus carpio*), キンギョ (*Carassius auratus*), ドジョウ (*Misgurnus anguillicaudatus*) の 4 種に対する影響が調べられており, 48–96 h LC_{50} 値が 10,000 から 40,000 $\mu\text{g/l}$ と報告されている^{9,10,30)}. 両性類ではヒキガエル (*Bufo bufo japonicus*), のオタマジャクシに対す

る影響が調べられており, 48 h LC_{50} 値が 49,000 $\mu\text{g/l}$ と報告されている³²⁾.

1.2. 種の感受性分布及び PNEC の導出

毒性データの属平均値を用いて SSD の解析を行った. 影響を受ける割合 (Probability) は $(i-0.5)/n$

($i=1\cdots 45, n=45$) と計算した¹⁷⁾. 45 属の全データを用いた SSD では Fig. 3 左に示すように一見して対数正規分布への適合度が悪い. そこで, 藻類と動物のデータを分けて種の感受性分布を表すと, 感受性において藻類と動物は明確に分離された (Fig. 3 右).

さらに藻類は 6 つの分類群のデータを含んでいるので, 各分類群の感受性に統計的に有意な差があるかどうかを一元配置分散分析により検定を行った. 5 つ以上のデータが得られる緑藻, 珪藻, シアノバクテリア, 車軸藻の 4 つの分類群について解析した結果, 有意水準 5% で各群の母平均に差があるとはいえないと判定された. よって, シメトリンの藻類に対する感受性は分類群によって有意な差が認められず, それ以上細かい分類群に分けた SSD の解析は行わなかった.

各 SSD の対数正規分布への適合度検定を有意水準 5% に行った結果, 全データでは両検定で適合していないと判定され, 藻類と動物に分けたデータでは両方とも適合度が両検定でパスした. そこで, 動物及び植物の各 SSD から HC_5 を個別に算出したところ, 動物では 7949 $\mu\text{g/l}$, 藻類では 8.2 $\mu\text{g/l}$ となった. SSD の解析をまとめると Table 4 のようになる.

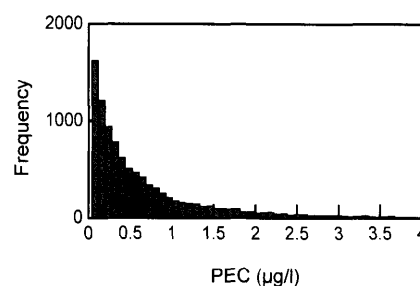


Fig. 4. Result of Monte Carlo simulation. The mean, median, and 95 percentile of PEC were 0.77, 0.38, 2.82 $\mu\text{g/l}$, respectively.

Table 4. Characteristics of SSDs (log-normal distributions of EC_{50} or LC_{50} values) for all freshwater organisms, animals, and algae.^{a)}

Data	Genus number	GM ($\mu\text{g/l}$)	GSD ($\mu\text{g/l}$)	KS test	AD test	HC_5 ($\mu\text{g/l}$)	90% CI of HC_5 ($\mu\text{g/l}$)
All data	45	271.5	22.6	×	×	1.6	0.4–4.5
Animals	14	22,651.9	1.9	○	○	7949	4,456–11,438
Algae	31	36.8	2.5	○	○	8.2	5.0–11.8

^{a)} Goodness of fit to log-normal distribution was tested by Kolmogorov–Smirnov (KS) test and Anderson–Darling (AD) test: ○ indicates rejection of a lack of fit and indicates a lack of fit (significance level of 5%). Hazardous concentrations of 5% species (HC_5) and the 90% confidence intervals (CI) are shown.

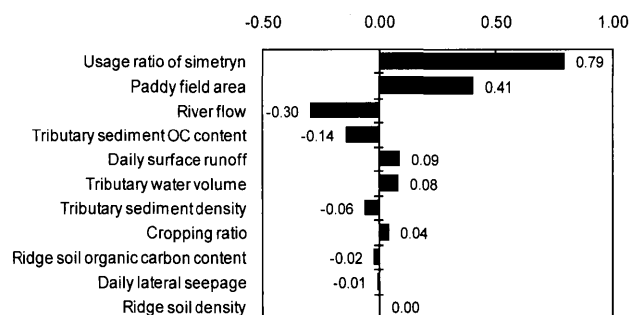


Fig. 5. Correlation coefficient between PEC and parameters for PEC calculation derived from Monte Carlo simulation.

以上により、藻類の SSD による HC_5 値から藻類の $PNEC=8.2 \mu\text{g/l}$ と導かれた。一方、水産登録保留基準に基づく $PNEC$ は緑藻の EC_{50} 値である $6.2 \mu\text{g/l}$ であり⁹⁾、両者は同程度の値となった。

2. 確率論的曝露評価

モンテカルロシミュレーションの結果、PEC の平均は $0.77 \mu\text{g/l}$ 、中央値は $0.38 \mu\text{g/l}$ 、95 パーセンタイル値は $2.82 \mu\text{g/l}$ となった (Fig. 4)。従って、標準シナリオによる PEC ($0.71 \mu\text{g/l}$) は PEC の分布において平均的な位置にあることが示された。各パラメータの感度を PEC との相関係数で表すと Fig. 5 のようになる。PEC に与える影響としては普及率のばらつきが最も大きく、水田面積、流量などがこれに続いて影響が大きいことが示された。

上記のシミュレーションでは Koc は 6915 の固定値を用いたが、シメトリンは水溶解度が 428 mg/l と大きく (Table 1)、土壌に吸着しにくく水田から流出しやすいことが知られている³³⁾。水溶解度 (C_{ws}) から Kenaga ら³⁴⁾ の式 ($\log Koc = -0.55 \times \log C_{ws} + 3.64$) によって推定した Koc は 156 であり、Kanazawa³⁵⁾ は Koc の実測値として 333 を報告している。そこで、Koc を Table 1 の最小値である 642 に設定した場合の PEC のモンテカルロシミュレーションを行った。その結果、PEC の平均は $1.20 \mu\text{g/l}$ 、中央値は $0.61 \mu\text{g/l}$ 、95 パーセンタイル値は $4.42 \mu\text{g/l}$ となり、分布が濃度の高い方へ若干移動した。結果として Koc が低いほど土壌への吸着量が低くなるため河川への流出量が大きくなり、PEC は

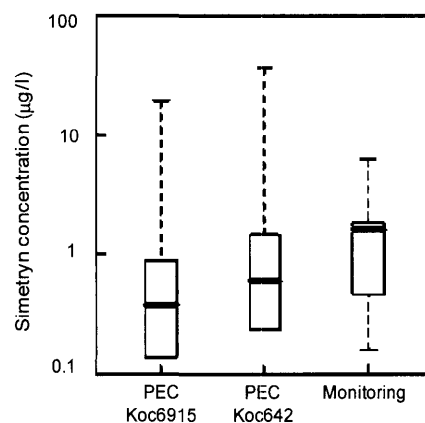


Fig. 6. Boxplot of estimated distributions of PEC and monitoring data. The boxes, lines dividing the box, and whiskers show the quartile values, median values, and min-max values, respectively.

Table 5. Monitoring data for simetryn concentration (geometric mean, GM) in Japanese river waters since 1998

Site	Prefecture	Year	GM ($\mu\text{g/l}$)	Reference
Hasu River	Fukui	1998	0.90	36)
Takase River	Fukui	1998	3.00	36)
Bessyo River	Fukui	1998	1.80	36)
Kozakura River	Ibaraki	1998	1.41	37)
Old-Yubari River	Hokkaido	1998–1999	0.50	38)
Horomui-Unga River	Hokkaido	1998–1999	1.57	38)
Tone River		2000	0.47	39)
Kinu River		2000	0.68	39)
Tsuchiura Canal	Ibaraki	2000	1.80	39)
Kokai River	Ibaraki	2000	3.50	39)
Uso River	Shiga	2001	6.00	40)
Hino River	Shiga	2001	6.20	40)
Yadoori River and Motoarakawa River	Saitama	2002	0.18	41)
Iinuma River and Sugao marsh	Ibaraki	2003	1.73	42)
Kakogawa River	Hyogo	2004	0.16	43)
Sakura River	Ibaraki	2001–2005	1.68	44)
Tsurumi River	Kanagawa	2004–2005	0.20	45, 46)

Table 6. PEC/PNEC ratio (HQ)

PNEC ($\mu\text{g/l}$)	PEC ($\mu\text{g/l}$)			
	0.71 (Standard scenario)	2.82 (Monte Carlo 95 percentile, Koc 6915)	4.42 (Monte Carlo 95 percentile, Koc 642)	6.0 (Monitoring 95 percentile)
6.2 (Registration criterion)	0.11	0.45	0.71	0.97
8.2 (Algal HC_5)	0.09	0.34	0.54	0.73

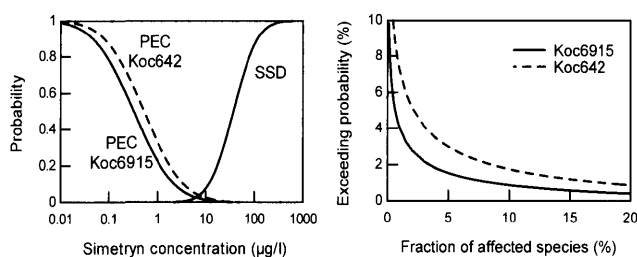


Fig. 7. Comparison of PEC distributions and SSD for freshwater algae (left) and joint probability curves (risk curves) for simetryn and algae (right). In cases of Koc 6915 (solid line) and Koc 642 (dashed line) were shown.

高めに算出された。

文献により、1998年以降の河川水中シメトリン濃度の実測値として17の値が得られ (Table 5), 平均値は $1.86 \mu\text{g/l}$, 中央値は $1.57 \mu\text{g/l}$, 95パーセンタイル値は $6.0 \mu\text{g/l}$ であった。PECとモニタリングデータのばらつきを比較するため、箱ひげ図をFig. 6に示す。PEC (Koc6915), PEC (Koc642), モニタリングデータの順に濃度の分布が高い方へシフトしているが、ばらつきの程度を表すそれぞれの箱の大きさ (25–75パーセンタイル値の範囲) は同程度であった。

3. リスク評価

決定論的リスク評価として、PEC/PNEC比 (HQ) の組み合わせをTable 6に示す。すべての組み合わせでHQは1を下回った。

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の超過確率の分布を藻類のSSDと重ね合わせるとFig. 7左のようになり、この重なり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. 7右のようになる。このリスクカーブより、Kocを6915と設定したとき、1%の種が影響を受ける確率は4.0%, 5%の種が影響を受ける確率は1.5%, 10%の種が影響を受ける確率は0.9%と算出された。またKocを642と設定したとき、1%の種が影響を受ける確率は7.2%, 5%の種が影響を受ける確率は3.0%, 10%の種が影響を受ける確率は1.8%と算出された。

考 察

1. 毒性評価

シメトリンの種の感受性分布は藻類とそれ以外 (動物) で完全に分離された (Fig. 3)。畑作で使用する除草剤でもこれまで同様の傾向が報告されている⁴⁷⁾。除草剤の特性を考慮すれば、植物である藻類に対して動物よりも毒性が強いのは当然のことである。工業用途の化学物質の場合は、特定の分類群の生物に毒性が強くなるようデザインされたものではないため、生態影響評価では全生物の感受性がランダムに確率分布に適合するという仮定のもとに種の感受

性分布が解析される。しかしながら農薬で種の感受性分布の解析を行う場合には、毒性値の得られる全生物のデータを分布へ適合させるのではなく、感受性が有意に高い分類群に分けて感受性分布の解析を行うのが適切であると考えられる。

SSDによって推定された HC_5 の $8.2 \mu\text{g/l}$ と水産登録保留基準によるPNECの $6.2 \mu\text{g/l}$ は非常に近い値となった。 HC_5 は種間の感受性差を考慮して、多くの分類群に属する藻類の EC_{50} 値から求めたものであるためPNECとしての信頼性は高い。登録保留基準によるPNECの $6.2 \mu\text{g/l}$ は HC_5 値よりもわずかに低い値であり、適切な基準値となっていると考えられる。今後様々な種類の農薬で同様の比較を試みることで、水産登録保留基準の評価スキームの適切性を判断できるだろう。

生態リスク管理のエンドポイントは「各個体の保護」ではなく、「生態系機能の維持」を考えるのが現実的であるとされている。水産登録保留基準においても、「水産動植物の被害が発生し、かつ、その被害が著しいものとなるおそれがある」ということを保留要件にしているため、各生物個体の保護を目的としているわけではない。本研究で用いたSSD法は個体レベルの評価を生態系レベルへと外挿する手法であるが、あくまで従来の急性毒性試験を基にした手法であるため、個体群の長期的な動態や食物連鎖などは考慮されていない。よって今後は生態学的意義の高いより高次のリスク評価手法の開発と実用化が求められる。

2. 曝露評価

本研究ではモンテカルロシミュレーションによりPECが日本国内で地域的にどの程度ばらつくのかという不確実性の解析を行った。結果として、水産登録保留基準で使用されている標準シナリオによるPECは、その分布中の平均値に相当するという位置付けが示された。すなわち標準シナリオによるPECは、安全側の評価になっていないと考えられる。PECの値と各パラメータの間の相関分析から、シメトリンの普及率はPECとの相関係数が0.79と高く、PECの不確実性に最も大きく寄与していた (Fig. 5)。シメトリンの普及率は全国単位で計算すると6.9%となり、標準シナリオの10%は安全側の値ととらえることもできるが、県単位で計算すると10%を超える県が13あった。このようにPECの位置づけを考慮する際には農薬使用の地域性に注意が必要である。なお、物質毎に使用量の地域分布は異なるため、物質毎にPECの位置付けは変化すると予想される。また、Fig. 5に示した相関分析からは、どの情報を整備すれば効率的にPEC推定の信頼性を上げられるか、という優先順位を知ることが可能である。本研究の結果は、正確な普及率を求めるための地域毎の詳細な農薬の使用実態のデータベースを整備することが今後優先的に求められる、ということ

を示している。

モンテカルロシミュレーションによる PEC の分布推定の不確実性について以下に述べる。まず Koc の値の設定については、6915 の場合と 642 の場合に分けてシミュレーションを行った。リスク評価の結果もこれによって変化するため (Fig. 7)、このような情報の質に左右されることに留意が必要である。また、本来は地域が決まれば水田面積や流量、普及率、土壌の特性などが決定するはずであるが、本研究ではそれらのパラメータは独立変数として扱った。そのため、モンテカルロシミュレーションの中で、実際にはあり得ないパラメータの組み合わせが起こり、現実的でない PEC の値が計算される可能性がある。これらパラメータ間の相関性を考慮すると、PEC のばらつきは現実的にはもう少し小さくなる可能性がある。さらに、本研究では PEC のばらつきが示されたがその地域特異性は明らかにはなっていない。このため、GIS を用いて流域毎の PEC を解析するような研究が今後望まれる。

モニタリングデータによるシメトリン濃度の分布はモンテカルロシミュレーションにより推定された PEC の分布よりも高い方へ位置していた。モニタリングでは周囲に水田が多い個所など農薬の濃度が高い地点でサンプリングされる傾向があるためバイアスがかかり、実際の濃度の地域分布よりも濃度が高い方へシフトすると考えられる。さらに PEC の算出は環境基準点が存在する本川を対象としているのに対し、モニタリングではその支川や農業排水路の濃度も含まれているため濃度の分布は高めにシフトすると考えられる。従ってモニタリングデータの濃度分布が推定された PEC の分布よりも高めに位置することは十分妥当であると判断できる。

3. リスク評価

環境省による化学物質の環境リスク初期評価ガイドライン⁴⁸⁾によると、PEC/PNEC 比 (HQ) による決定論的な生態リスクの判定は次の 3 段階で行うとされている：(1) $HQ < 0.1$ 、現時点では作業は必要ない；(2) $0.1 \leq HQ < 1$ 、情報収集に努める必要がある；(3) $1 \leq HQ$ 、詳細な評価を行う候補と考えられる。本研究の事例では評価のシナリオ (PEC, PNEC にどの値を採用するか) によって HQ は最大 10 倍程度異なる結果となり (Table 6)、リスクの判定も変化した。シナリオは主観的なバイアスが入りやすく、恣意的なリスクの判定がされやすいのが決定論的リスク評価の限界であると指摘できる。

本研究では決定論的リスク評価を発展させた確率論的リスク評価を行い、リスクカーブにより「5% の種が影響を受ける確率は 1.5% である」などと表現し、リスクを確率として定量化した。しかし、この確率がどの程度であればリスクが懸念され、リスク低減対策が必要となるかについての

コンセンサスは形成されていない。Solomon ら⁴⁹⁾ は、種の感受性と曝露濃度の分布の重ね合わせからリスクを評価する際には、10% の種が影響を受ける確率が 10% 以上か未満か、というスクリーニングの判定基準を提案している。しかし、これはスクリーニングの判定基準であり、この基準を超えたとしても直ちに生態系への影響が大きいことを意味するのではなく、個体群の長期的な動態などを考慮したより高次のリスク評価が必要になると解釈すべきである。なお、この基準からすると本研究のシメトリンのケースでは生態リスクは懸念レベルに無いと判定できる。

確率論的なリスクの定量化は、リスクの絶対値の意味付けよりも統一された問題設定のもとでのリスクの相対比較を行う際に有用となる。リスク低減対策を行うべき優先順位の高い物質はどの物質なのか、リスク低減対策を行ったときにどの程度リスクは下がるのか、慣行型防除体系と環境保全型防除体系ではどの程度の生態リスクが違うのか、などを把握するために威力を発揮するであろう。ここでは例として、除草剤散布後の止水期間を 3 日間から 7 日間にした場合のリスク低減効果を試算した。その結果、Tier2 PEC は $0.71 \mu\text{g/l}$ から $0.34 \mu\text{g/l}$ に減少し、5% の藻類種が影響を受ける確率は 1.5% から 0.45% に減少すると算出された。リスク低減対策の効果は、「濃度」がどの程度減少したかではなく、「リスク」がどの程度減少したかで評価されるべきであろう。

また、最終的に農薬のリスク管理はベネフィットとの兼ね合いで行われるべきである。農薬のようにベネフィット (農薬を使わなかった場合に失われる便益) の大きな化学物質に関しては、ただ単にリスクを減らすのではなく、リスクとベネフィットとの比較からどこまでリスクを受容できるかといった管理が必要になろう。そのためにはリスクとベネフィットの比較を行う手法が必要であり、リスクを確率として定量化する本研究の手法は有用なツールとなると期待される。

要 約

高度な生態リスク評価のためには、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望ましいと考えられる。そこで本研究では除草剤シメトリンを対象とし、毒性評価や曝露評価の不確実性を分析することにより確率論的な生態リスク評価を行った。毒性評価では文献からシメトリンの生態毒性試験の結果を収集し、種の感受性分布から曝露濃度と影響を受ける種の割合の関係を解析した。31 属の淡水産藻類の EC_{50} 値を対数正規分布に適合させ、5% の藻類種が影響を受ける濃度を $8.2 \mu\text{g/l}$ と推定した。曝露評価では、環境省によって定義された環境モデル中の PEC 算定に用いるパラメータの変動を確率分布として表現し、モンテカルロ

シミュレーションを用いて PEC の取りうるばらつきを解析した。その結果、PEC の平均値は $0.77 \mu\text{g/l}$ 、95 パーセントイル値は $2.8 \mu\text{g/l}$ となった。PEC の分布と種の感受性の分布の重なりから、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計算し、リスクカーブとして表した。結果、5% の種が影響を受ける確率は 1.5% と計算された。

謝 辞

本研究は「農林水産生態系における有害化学物質の総合管理技術の開発」プロジェクトの一環として行われました。関係各位に謝意を表します。

引用文献

- 1) <http://www.env.go.jp/water/sui-kaitei/kijun.html>
- 2) 中西準子, 花井莊輔, 蒲生昌志, 吉田喜久雄: リスク評価の知恵袋シリーズ2 不確実性をどう扱うか—データの外挿と分布—, 丸善, 2007.
- 3) <http://www.eufram.com/>
- 4) 吉田喜久雄, 中西準子: 環境リスク解析入門, 東京図書, 2006.
- 5) http://www.env.go.jp/water/sui-kaitei/h16rep_suisan.pdf
- 6) <http://db-out.nies.go.jp/kis-plus/>
- 7) <http://www.env.go.jp/chemi/prtr/risk0.html>
- 8) <http://www.acis.famic.go.jp/ddownload/index.htm>
- 9) http://www.env.go.jp/water/sui-kaitei/kijun/rv/s02_simetryn.pdf
- 10) <http://www.env.go.jp/chemi/sesaku/seitai.html>
- 11) 日本植物防疫協会編: 農薬ハンドブック 2005 年, 日本植物防疫協会, 2005.
- 12) <http://cfpub.epa.gov/ecotox/>
- 13) <http://ci.nii.ac.jp/cinii/servlet/CiNiiTop#>
- 14) 日本環境毒性学会編: 生態影響試験ハンドブック, 朝倉書店, 2003.
- 15) 田中二良編: 水生生物と農薬—急性毒性資料編—, サイエンティスト社, 1978.
- 16) L. Posthuma, G. W. Suter and T. P. Traas (eds.): "Species Sensitivity Distributions in Ecotoxicology (Environmental and Ecological Risk Assessment)," Lewis Pub, Boca Raton, U.S.A., 2001.
- 17) T. Aldenberg and J. S. Jaworska: *Ecotoxicol. Environ. Saf.* **46**, 1–18 (2000).
- 18) U.S.EPA: Risk Assessment Guidance for Superfund: Volume III—Part A, Process for conducting a probabilistic risk assessment, EPA 540-R-02-002, 2001.
- 19) 山下亜紀郎: 地理情報システム学会講演論文集 **13**, 79–82 (2004).
- 20) <http://www.maff.go.jp/www/info/bunrui/bun01.html>
- 21) <http://www.maff.go.jp/www/info/bunrui/bun02.html>
- 22) 日本河川協会: 平成 14 年版流量年表, 2003.
- 23) <http://www.env.go.jp/chemi/prtr/result/todokedegaiH17/suikai/2-1.xls>
- 24) S. H. Vu, S. Ishihara and H. Watanabe: *Pest Manag. Sci.* **62**, 1193–1206 (2006).
- 25) 織田健次郎, 三輪睿太郎, 岩元明久: 日本土壌肥料学雑誌 **58**, 112–131 (1987).
- 26) <http://riss.narc.affrc.go.jp/kssys/soil/query.asp>
- 27) F. Kasai, N. Takamura and S. Hatakeyama: *Environ. Pollut.* **79**, 77–83 (1993).
- 28) 石原 悟: 農業環境技術研究所報告 **25**, 1–92 (2008).
- 29) S. Hatakeyama and Y. Sugaya: *Environ. Pollut.* **59**, 325–336 (1989).
- 30) 吉田孝二, 西内康浩: 農薬検査所報告 **12**, 122–128 (1972).
- 31) 西内康浩: 生態化学 **4**, 31–46 (1981).
- 32) 西内康浩, 吉田孝二: 農薬生産技術 **26**, 29–36 (1971).
- 33) 丸 論: 千葉農試特報 **18**, 18–26 (1991).
- 34) E. E. Kenaga and C. A. I. Goring: "Aquatic Toxicology, ASTM STP 707" ed. by J. G. Eaton, P. R. Parrish and A. C. Hendricks, American Society for Testing and Materials, Philadelphia, pp. 78–115, 1980.
- 35) J. Kanazawa: *Environ. Toxicol. Chem.* **8**, 477–484 (1989).
- 36) 西澤憲彰, 次田啓二, 落井 勲: 福井県環境科学センター年報 **28**, 114–121 (1998).
- 37) Y. Nakano, A. Miyazaki, T. Yoshida, K. Ono and T. Inoue: *Water Res.* **38**, 3017–3022 (2004).
- 38) A. Numabe and S. Nagahora: *Water Sci. Technol.* **53**, 139–146 (2006).
- 39) <http://www.nies.go.jp/edc/edrep/report/1-1-2-1.htm>
- 40) M. Sudo, T. Okubo and R. Kaneki: *Limnology* **6**, 91–99 (2005).
- 41) 田中仁志, 海渡ゆり子, 金 主鉉: 用水と廃水 **45**, 743–750 (2003).
- 42) T. Kawakami, H. Eun, T. Arao, S. Endo, M. Ueji, K. Tamura and T. Higashi: *J. Pestic. Sci.* **31**, 6–13 (2006).
- 43) 吉田光方子, 藤森一男: 兵庫県立健康環境科学研究所センター紀要 **2**, 28–36 (2005).
- 44) 石原 悟, 石坂眞澄, 堀尾 剛, 小原裕三, 上路雅子: 雑草学会誌 **51**, 69–81 (2006).
- 45) 酒井 学: 横浜市環境科学研究所報 **30**, 46–49 (2006).
- 46) 酒井 学: 横浜市環境科学研究所報 **31**, 102–107 (2007).
- 47) P. J. Van den Brink, N. Blake, T. C. M. Brock and L. Maltby: *Hum. Ecol. Risk Assess.* **12**, 645–674 (2006).
- 48) <http://www.env.go.jp/chemi/report/h18-12/pdf/chpt1/1-2-1.pdf>
- 49) K. R. Solomon, D. B. Baker, R. P. Richards, K. R. Dixon, S. J. Klaine, T. W. La Point, R. J. Kendall, C. P. Weisskopf, J. M. Giddings, J. P. Giesy, L. W. Hall Jr and W. M. Williams: *Environ. Toxicol. Chem.* **15**, 31–76 (1996).