



Title	表流水における農薬の検出可能性の推定 [論文内容及び審査の要旨]
Author(s)	成田, 健太郎
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第15234号
Issue Date	2022-12-26
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/87759">https://hdl.handle.net/2115/87759</a>
Rights(URL)	<a href="https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/">https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/</a>
Type	doctoral thesis
File Information	Kentaro_Narita_abstract.pdf, 論文内容の要旨



## 学位論文内容の要旨

博士の専攻分野の名称 博士（工学） 氏名 成田 健太郎

### 学位論文題名

表流水における農薬の検出可能性の推定  
(Estimating the Detectability of Pesticides in Surface Water)

農薬は農作物の安定的な生産に重要な役割を果たしているが、自然環境系に隣接した水田や畑地などの農耕地に使用されて表流水などの水系に流入することがあるため、水道水質管理において注意を払うべき化学物質群の一つに挙げられている。水道における農薬の規制は、各国政府や非政府組織における水道水質のガイドラインで個別に設定されている。日本では 2022 年 4 月時点で 206 種類の農薬が水質管理目標設定項目の農薬類に分類されており、このうち浄水で検出される可能性の高い農薬として対象農薬リスト掲載農薬類に 115 種類の農薬が掲げられている (2012 年度までは「1 群」として 102 農薬が登録、以下総称して優先リスト)。このように、農薬は測定すべき種類が多く、また地域ごとの農薬の使用実態も大きく異なり、どの程度の量がいつ、どこに使用されるかを把握することが極めて困難である。そのため、定期的なモニタリングにより水道水源における実態を把握する必要があるものの、すべての農薬を監視するには多大な人的・経済的リソースを必要とすることから、規制や監視すべき農薬を効果的にスクリーニングすることが求められている。本研究では主たる水道水源である表流水を対象として、農薬が検出される可能性を推定するための手法を提案して有効性を検証するとともに、検出可能性に寄与する主な要因を特定し、その特徴を明らかにすることを目的とした。

はじめに、検出可能性を推定するための指標 (以下、検出可能性指標) を検討し、優先リストに掲載すべき農薬の候補選定に適用した。検出可能性指標の検討では、農薬出荷量、水田農薬の分解性/吸着性、農薬濃度のガイドライン値 (GV) および降水量を説明変数として乗法モデルで表現し、水田農薬と畑地農薬それぞれの指標を作成した。さらに、地域における農薬使用実態を考慮するため、日本国土を 10 地域に分割して地域別出荷量に基づき地域別に指標を算定し、それらの最大値を各農薬の指標値とした。この検出可能性指標を用いて、2012 年度時点で測定実績がまったくなかった 131 種類と水道事業体における測定実績がある 105 種類 (そのうち 81 種類が検出、24 種類が不検出) の農薬について、今後の検出可能性を推定し、優先リストの候補に含めるか、あるいは優先リストから除外すべきかを検討した。まず、水道事業体における測定実績がある 105 種類の農薬を対象に、検出/不検出の実績と検出可能性指標の値の関係から、検出と不検出を分ける検出可能性指標値の閾値を設定した。236 種類の農薬を閾値によって分類したところ、44 種類の未測定農薬を含む 108 種類が検出される可能性が高い農薬として選択された。一方、既存の優先リストに掲げられている農薬のうち、17 種類の農薬は検出指標値がきわめて小さく、かつ実際に検出されておらず、優先リストから除外すべきであると考えられた。なお、この成果は実際に 2013 年の日本の水質基準の優先リスト (対象農薬リスト掲載農薬類) に掲載する農薬の改定に利用された。

さらに、本研究では優先リストの改定後の 2013 年度から 2015 年度の全国の水道事業体における測定結果を用いて検出可能性指標の妥当性を評価するとともに、指標の改良を検討した。優先リストに掲載された 120 種類の農薬のうち、90 種類は検出可能性指標で検出の可能性が高いと推定され

ていた農薬で、その内 65 種類が実際に検出された (的中率=72%)。残りの 30 種類は、検出可能性が低いものの過去の検出実績などを踏まえて優先リストに残された農薬で、その内、実際に検出された農薬は 15 種類であり、的中率=50% にとどまった。両者の検出率には有意な差 ( $p$  値=0.047) がみられ、検出可能性指標によって選択された農薬は実際に表流水において検出されやすいことがわかった。120 種類のうち、不検出であった 40 種類の特徴を調べたところ、優先リスト候補の検討時点から実際に測定が開始されるまでの間に出荷量が減少、またはもともと少なかった農薬 (20 種類)、半減期が 2 日未満で環境中において分解しやすい主に畑地で使用される農薬 (11 種類) が特定された。この結果を踏まえ、従来の検出可能性指標で考慮していない畑地農薬の分解性に関する説明変数を加えるとともに、農薬出荷量を最新のデータに更新し、さらに閾値を最適化した。その結果、検出の可能性が高いと推定された農薬の検出率は従来指標の 72% から 91% に飛躍的に向上した。次いで、地域別に算出した検出可能性指標と各地域における検出率の関係を分析したところ、検出率は 20~60% 程度の範囲に分布し、多くの地域で検出可能性ありと判定された農薬の半数以上が検出されていなかった。検出率が低い原因を調査したところ、農薬の測定回数と検出率との間に強い相関 ( $R^2=0.71$ ) があることを見いだした。このため、一部の地域で観測された低い検出率は、モニタリングの頻度が低いことを一因としている可能性が示唆された。

本研究では、さらに、検出可能性の推定精度のさらなる向上を目指して機械学習モデルの適用についても検討した。機械学習モデルの特徴量 (説明変数) には検出可能性指標の説明変数項目のほか、農薬の年間測定回数 (モニタリングの頻度) や農地面積を加えた。機械学習モデルには Random Forest (RF)、XGBoost (XGB) および LightGBM (LGB) を用い、それぞれ検出/不検出を推定する分類モデル、農薬濃度を予測する回帰モデルの計 6 モデルを構築して精度を検証した。モデル予測の評価指標である再現率、適合率および F1 値を比較したところ、分類モデルでは LGB の再現率が最も高く、また適合率や F1 値は回帰モデルに比べて分類モデルが全般的に優れており、LGB 分類モデルが最良なモデルであると考えられた。このモデルと検出可能性指標の評価指標を比較したところ、LGB 分類モデルの精度は検出可能性指標を上回り、機械学習モデルは検出可能性指標に比べ表流水中の農薬の検出可能性を効率的に推定できると考えられた。さらに、機械学習モデルの予測結果に解釈性を与える SHAP 手法を用いて、特徴量が検出可能性に与える影響を解析した。その結果、年間測定回数、水田農薬出荷量、GV および土壌中半減期が検出可能性へ影響を与える上位の因子であることがわかった。このうち、GV には検出可能性との間に負の関係がみられ、数値が大きいほど検出可能性が低下した。一方、年間測定回数、水田農薬出荷量および土壌中半減期は検出可能性に正の作用を与えるが、単純な比例的な関係ではなく、特徴量の作用に閾値が存在することが示唆された。検出可能性が低いと推定されたが実際には検出されていた農薬の特徴を調べたところ、農薬登録が失効され出荷されていない農薬や分解代謝物を測定していた農薬があった。本研究の機械学習モデルには登録失効や代謝物の存在を説明できる特徴量が含まれておらず、特徴量を増やすことで検出可能性の推定精度をさらに向上させることができると考えられた。

以上をまとめると、本研究では、提案した検出可能性指標が表流水における農薬の検出可能性を推定できること、機械学習モデルの適用によってその精度をさらに高めることができるが、特徴量の選択に改善の余地があることを明らかにした。