

流域～河川～海岸におけるプラスチック片堆積状況の比較解析の試み ～神奈川県引地川流域を例に～

三島 聡子^{1)+3),†} 小澤 憲司²⁾⁺³⁾ 中山 駿一⁴⁾
菊池 宏海⁴⁾ 難波 あゆみ⁴⁾ 片岡 智哉⁵⁾
二瓶 泰雄⁶⁾

Comparative Analysis of Plastic Pieces in Basin, River and Coast: Case Study in the Hikiji River Basin, Kanagawa Prefecture

Satoko MISHIMA^{1)+3),†}, Kenji OZAWA²⁾⁺³⁾, Shunichi NAKAYAMA⁴⁾, Hiromi KIKUCHI⁴⁾,
Ayumi NAMBA⁴⁾, Tomoya KATAOKA⁵⁾ and Yasuo NIHEI⁶⁾

- ¹⁾ Shonan Region Prefectural Administration Center, Kanagawa Prefectural Government, 1-3-1 Nishiyawata, Hiratsuka 254-0073, Japan
²⁾ Water Purification Division, Waterworks Department, Kanagawa Prefectural Government, 1 Nihon-Odori, Naka-ku, Yokohama 231-8588, Japan
³⁾ Former Affiliation: Kanagawa Environmental Research Center, 1-3-39 Shinomiya, Hiratsuka 254-0014, Japan
⁴⁾ Kanagawa Environmental Research Center, 1-3-39 Shinomiya, Hiratsuka 254-0014, Japan
⁵⁾ Ehime University, 3 Bunkyocho, Matsuyama 790-8577, Japan
⁶⁾ Faculty of Science and Technology, Tokyo University of Science, 2641 Yamazaki, Noda 278-8510, Japan

Abstract

Research on plastic debris in the ocean and rivers is being vigorously conducted, but there is little research on the dynamics of plastic from the basin, which is one of the sources of plastic waste, to rivers and coasts. In this study, we conducted a field survey of basins (roads), rivers, and coasts in the Hikichi River basin, Kanagawa Prefecture, with the aim of clarifying the dynamics of plastic pieces in the basin, river, and coast. From the results of the sample particle recovery test, the target size of the plastic piece in this study was set to be > 1 mm. The results indicated that the numerical and mass concentration of plastic pieces in the road dust between districts considered were significantly higher in the commercial and residential areas, respectively, mainly because of the difference in plastic piece size distribution. A comparison of plastic materials on roads, rivers, and coasts showed that polyethylene (PE), polypropylene (PP), and polystyrene (PS), which have low specific gravity, were predominant in the river and materials washed up on the coast, but not significant in the road dust.

Keywords: Plastic pieces; Road dust; Microplastics; Basin

1. はじめに

プラスチックごみ問題は、近年、グローバルな環境問題として取り上げられ¹⁾、特に5 mm未満のプラスチックの総称であるマイクロプラスチック (MP)²⁾が注目されている。MPの材質や形態は多様であり、工業原料の樹脂ペレットなどの一次MP及び大きなプラスチック製品、ごみ等が物理的、あるいは紫外線や温度の変化などにより劣化・砕片化した二次MPに大別される³⁾。MPは、一端海洋に流れ出ると回収は事実上困難であるため、海に流出する前に河川や陸域でのMP発生・流出抑制策

を講じるが必要となる。

MPの汚染状況に関する調査研究は海洋において先行して進んでいる⁴⁻⁹⁾。プラスチック生産は1950年代以降急激に増加したが、海洋におけるMPは1960年代には既に発見・報告されていた⁴⁾。また、Eriksen *et al.*⁸⁾は、海洋中におけるMPの総量は少なくとも約5兆個、日本が面する北太平洋だけでも2兆個弱と見積った。また、河川のMP汚染状況についても調査が進められており¹⁰⁻¹⁴⁾、人口密度が高い都市部ほど河川のMP濃度が増加していることなどが指摘されている^{10, 14)}。さらに、陸域から海域へのプラスチック流出量の見積も行われてお

1) 神奈川県湘南地域県政総合センター 〒254-0073 平塚市西八幡 1-3-1
2) 神奈川県企業庁水道部浄水課 〒231-8588 横浜市中区日本大通 1
3) (元) 神奈川県環境科学センター 〒254-0014 平塚市四之宮 1-3-39
4) 神奈川県環境科学センター 〒254-0014 平塚市四之宮 1-3-39
5) 愛媛大学大学院理工学研究科生産環境工学専攻 〒790-8577 松山市文京町 3
6) 東京理科大学理工学部土木工学科 〒278-8510 野田市山崎 2641
† 連絡先: mishima.dtx@pref.kanagawa.jp

り、地球規模全体の推定^{15~17)}だけでなく、日本国内の詳細なプラスチック流出マップ¹⁸⁾も作成されている。

一方、著者らは、相模湾沿岸域におけるMP漂着特性について詳細な現地調査を実施している^{19~21)}。ここでは、相模湾の複数の砂浜海岸に漂着したMP堆積状況を調査したところ、海岸毎及び季節毎にMP堆積量が大きく変化していることが明らかとなった。海岸にて見つかったMPの材質は、販売実績²²⁾が卓越しているポリエチレン(PE)やポリプロピレン(PP)、ポリスチレン(PS)が顕著であった。ただし、ビーズクッションの封入材(PS球)や農業用被覆肥料(中空球状)、人工芝や玄関マットのかげら(緑色へら状)など特徴的なMPも見つかっており、その状況は地点毎に大きく異なっていた。このような海岸のMP漂着特性の差異は、河川を經由した流域からのMP流出状況の影響が大きいことが想定される。特に、市街地や農地周辺の道路上に堆積しているMPが、降雨で流出して海岸に漂着しているMPの発生源となっている可能性があり、その存在量の調査や^{23~26)}、雨天時の道路排水調査²⁷⁾がある。このように、海岸の漂着MPの発生源を解明し、対策を講じる上では、道路堆積物であるノンポイント汚染源と海岸、およびその輸送経路である河川におけるMP堆積状況を比較することが重要であるが、まだ検討事例は非常に少ない。

本研究では、5 mm未満のMPだけでなく、5 mm以上のプラスチックの欠片(以下、プラスチック片と称す)を対象とし、流域～河川～海岸にわたるプラスチック片の動態解明の一環として、流域(道路)と河川、海岸のプラスチック片の堆積状況を比較解析することを試みる。ここでは、相模湾に流入する主要河川の一つであり、流域の市街化が進んでいる引地川流域を研究対象とする。流域では、市街化区域(商業・住居・工業地域)と市街化調整区域(水田地域)の道路におけるプラスチック片堆積調査を行い、著者らによる既往研究(海岸²⁰⁾と河川²⁸⁾の調査結果に加えて、流域・河川・海岸におけるプラスチック片堆積状況の特徴を抽出する。合わせて、用途地域間のプラスチック片存在量や材質、サイズの違いについても比較・検討する。なお、研究対象をMPに限定することが多いが、道路や河川、海岸の堆積物には5 mm未満のMPだけでなく、5 mm以上のプラスチックの欠片が多く含まれていたため、ここでは、5 mm以上も含むプラスチック片を研究対象とした。

2. 方法

2.1 研究サイト

引地川は全長21.3 km、流域面積67 km²の二級河川であり、調査した海岸²⁰⁾の中でMP漂着量が多かった鶴沼海岸を河口とする。流域の土地利用は、元々農用地が主であったが、昭和30年代以降、小田急線の駅を中心に商業地域及び住居地域の市街化が進み、残った段丘崖の緑地は保全・活用が図られ、市街地と田園地帯の境となっている^{29, 30)}。また、河川沿いには、いくつかの商業地域、住居地域、工業地域及び水田や畑などの田園地帯が存在する(Fig. 1)。流域内の人口は約43万人、人口密度は流域平均で約6,000人 km⁻²である(2010年時点)。

2.2 道路堆積物サンプリング方法と前処理

用途地域別のプラスチック片堆積状況を把握するため

に、商業地域(Stn.C1(大和), Stn.C2(湘南台), Stn.C3(辻堂)), 住居地域(Stn.R1(下草柳), Stn.R2(円行), Stn.R3(鶴沼海岸付近)), 工業地域(Stn.I1(桐原), Stn.I2(本藤沢))及び水田地域(Stn.P1(長後), Stn.P2(大庭))の計10のエリアとし、各エリアにて5地点、合計50地点にて調査を行った(Fig. 1, Table 1)。道路の中でも堆積量が最も大きい路肩³¹⁾を対象とした。各エリアの代表地点の写真の一例は付録Fig. S1に示す。採取場所として選定された地点は、商業地域は商業施設前、住居地域は駐車場などカラーコーンを設置している場所やごみ集積場が多い。なお、Stn.R3は(鶴沼海岸)の住宅脇には戸別収集のごみ置き場になっている場所もあった。各エリアにおける下水道整備状況としては、Stn.C1(大和)が合流式で引地川の隣の境川に放流し、Stn.R3(鶴沼海岸付近)が合流式で相模湾に放流しているが、その他は分流式で雨水を引地川に放流している。

各エリアの5地点としては路肩に堆積しているプラスチック片の多い地点を選定し、各用途地域において得られたデータ群について比較した。このような地点選定方法を採用したのは、海岸^{9, 19, 32)}や河川²⁸⁾のプラスチック片堆積調査と同じであると共に、海岸調査により漂着物の多い地点にて採取する方が平均的(例えば一定距離間隔)に採取するよりも結果のばらつきが小さいためである¹⁹⁾。ただし、サンプリング地点の選定方法が調査結果に一定の程度のバイアスを与える可能性は残る。本研究

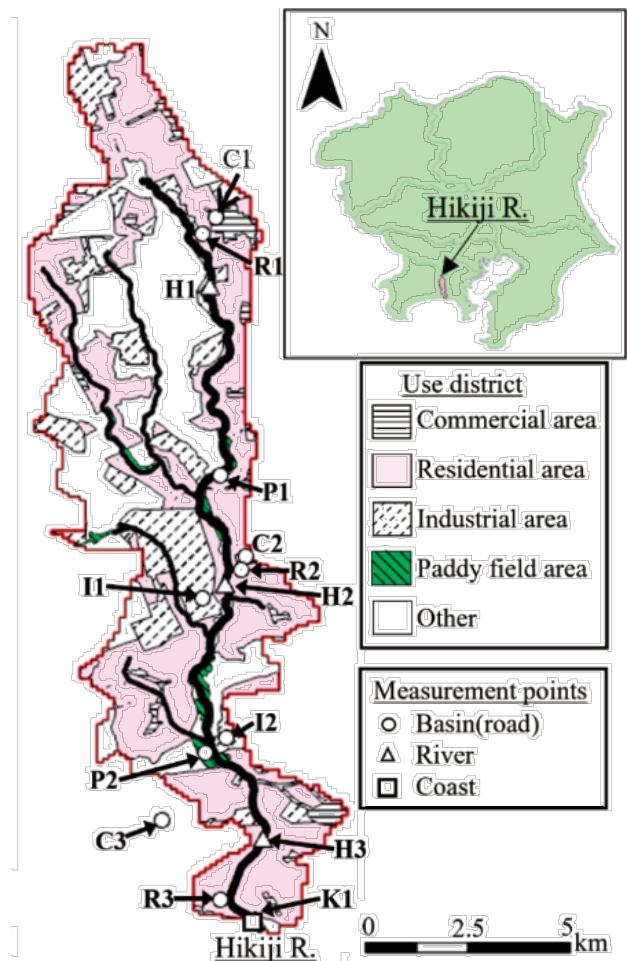


Fig. 1 Sampling area in this study.

ではその影響を少しでも減らすために観測地点数・サンプル数を多く設定しており、本研究（後述の用途地域間の比較用では $n = 70$ ）は既往研究²⁶⁾ ($n = 37$) と比べてもそんな色ない。エリア内における選定地点の代表性に関しては、慎重な検討が必要であり、今後も検討すべき課題と認識している。

各地点の路肩では、 $2\text{ m} \times 0.2\text{ m} (= 0.4\text{ m}^2)$ の範囲にて堆積している塵埃を採取した。コンタミネーション防止のため、採取用具に黒シダの毛のホウキ及びトタン製チリトリを使用し、エリア毎に採取用具を交換した。

後述する分析の前処理として、採取した堆積物からプラスチックと目視で推測されるもの（以降、プラスチック候補物と称す）をルーペで探してピンセットで採取した。天然物と見分けのつかない色や形をしている場合は判別がつきにくいので、約 1 mm 以上の大きさのものをピンセットで取り出した。残った採取物に関しては、水道水を加えて攪拌し、その後、6時間静置させ、水表面に浮いたものからプラスチック候補物をピンセットで採取した。一般的には、堆積物中のMP分析の前処理方法として、有機物分解や比重の大きな溶液（ヨウ化ナトリウム等）を用いた比重分離を行っているが²⁶⁾、本論文ではこれらとは異なっている。そのため、本処理の精度検証を行うために、後述のプラスチック片回収試験を実施した。

各エリア・地点における調査日程を **Table 1** に示す。調査1回目（2019年2-3月）では、全エリア各5地点（計50地点）のサンプリングを行った。また、その結果に基づき、各エリアの上位2地点については2019年11月にサンプリングを行った（計20地点）。さらに、プラスチック片の年内変動を把握するため、Stn.C2（湘南台）、Stn.R2（円行）、Stn.I1（桐原）、Stn.P2（大庭）の上位2地点では、2019年9月と2020年1月にもサンプリングを行った。データ解析と用いたデータの対応は2.8に示す。調査日の天候はいずれも晴天もしくは曇天であり、かつ、先行無降雨日数（降雨日：日雨量 1 mm 以上）は、2019年2月22日と11月18日を除いて、3日以上であった。2019年2月22日では、2日前に、時間雨量 1 mm 以下の非常に弱い雨であった。一方、同年11月18日の1日前に日雨量 12 mm 、最大時間雨量 6.5 mm が記録された。

11月18日分に関しては降雨影響が多少含まれ、路面塵埃の降雨流出の影響が含まれているが、観測データ全体としては降雨影響がなく平常時のデータと見なせるものと考えられる。

2.3 河岸漂着物のサンプリング方法

河川の調査地点は、引地川の3地点（Stn.H1（柳橋）、Stn.H2（円行新橋）、Stn.H3（富士見橋）²⁸⁾）とし（**Fig. 1**）、河岸漂着物に加えて、河川水のMPサンプリングも行った。河岸漂着物採取では、上記の地点周辺にてごみの集積度の高い2地点を選定しサンプリングを行った（計6サンプル）。 50 cm 四方のコドラート内にて、表層 2 cm 分の底質をスコップで採取した。採取物はろ紙上で水分を除いて乾燥させ、質量 M_1 を測った。採取物の全分析は労力が多くかかるため、採取物から一部を取り出し、その質量 M_2 を計測し、道路堆積物と同様にプラスチック候補物の抽出を行った。抽出後のプラスチック候補物の分析を経てられたプラスチック片の個数と質量に M_1/M_2 を乗じて、採取物全体のMPの個数・質量を求めた。河川水のMPサンプリングとしては、Kataoka *et al.*¹⁴⁾ と同様に、橋上よりプランクトンネット（目合い 0.335 mm ）を用いて河川水表面に5分間設置した。その他の詳細は小林ら²⁸⁾ を参照されたい。なお、河岸漂着物の一部の分析を行うに当たり採取物の均一化を行うことは必要であるが、その作業は容易ではなく定量的な評価もできないため、ここでは均一化に必要な特別な作業は行っていない。

調査日は2019年7月4日であり、調査日の天候は小雨であった。調査直前の8~10時にて、時間雨量 $4\sim 5\text{ mm}$ を記録し、調査中の10~14時では $0\sim 1.5\text{ mm h}^{-1}$ であった。また、この調査日前の先行無降雨日数は3日であった。河川水サンプルには、一部の地点にて降雨影響が含まれているが、河岸漂着物の採取地点までは水位が上がっていないため、河岸漂着物には降雨影響はないものと見なせる。

2.4 海岸漂着物のサンプリング方法

海岸における調査地点は引地川河口西側のStn.K1（鵠沼海岸）²⁰⁾ である（**Fig. 1**）。採取日は2017年5月9日と2018年5月22日である。採取方法としては、満潮線の漂着状況を目視により確認し、プラスチック片を含む漂着物が多い部分を任意に2地点選び、 40 cm 四方のコド

Table 1 Sampling points in this study.

Use district	Stn.	Area	Feb.-Mar. 2019	Sept. 2019	Nov. 2019	Jan. 2020
Commercial	C1	Yamato	19-Mar.	/	5-Nov.	/
	C2	Shonandai	22-Feb.	2-Sept.	18-Nov.	14-Jan.
	C3	Tsujido	27-Feb.	/	12-Nov.	/
Residential	R1	Shimosouyagi	19-Mar.	/	5-Nov.	/
	R2	Engyo	22-Feb.	2-Sept.	18-Nov.	14-Jan.
	R3	Kugenumakaigan	27-Feb.	/	12-Nov.	/
Industrial	I1	Kirihara	22-Feb.	2-Sept.	18-Nov.	14-Jan.
	I2	Honfujisawa	27-Feb.	/	7-Nov.	/
Paddy field	P1	Chogo	19-Mar.	/	5-Nov.	/
	P2	Oba	27-Feb.	2-Sept.	7-Nov.	14-Jan.
Number of sampling points in each area			5	2	2	2
Total number of sampling points			50	8	20	8

ラートにおいて表層2~3 cm分の砂をスコップで採取した。その他は、道路堆積物と同様にプラスチック候補物の抽出を行った。

2.5 プラスチック片の材質及び形態の分析方法

道路堆積物から抽出したプラスチック候補物は、1個ずつ、実体顕微鏡 (OLYMPUS 製 SZ61) を使用して長軸長さや形状を確認し、紙や砂、植物、虫の一部など天然物であると判明したものを除去した。残ったものをフーリエ変換赤外分光光度計 (FT/IR-4600 TGS 検出器、日本分光(株)製) の ATR 法による赤外吸収スペクトルを測定して材質を判定した。材質の分類としては、海岸漂着物調査^{19, 20)} に倣い、海岸漂着物に卓越していた PE と PP, PS に加えて、汎用樹脂として身の回りの製品に使われている PET と PVC³³⁾ とし、それ以外を「その他」に区分した。その他に区分された材質のうち主なものは、PE-PP 共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体 (EVA)、たばこフィルターのセルロースアセテート、ナイロンに加えて、路上で標識として使われている塗料があった。塗料については、サンプリング地点周辺の路面に塗布しているものと目視で同じと判断できるものも塗料とした。塗料の材質は一般にはアルキド樹脂、アクリル樹脂、溶融系は石油樹脂が主流であるが³⁴⁾、上記で塗料と判断された粒子を IR で構造解析したところ EVA と推定できるものがあった。区分したプラスチックは、材質毎に質量を測った。得られたプラスチック片の個数と質量を集計し、瀘水量や採取面積で除すことにより、プラスチック片数密度・質量濃度を算出した。

これらの材質判定時には、KnowItAll サドラーズスペクトルデータベースのスタンダード及びヒュメルポリマライブラリ (Bio-Rad Laboratories 製) 及び高分子ライブラリ (日本分光(株)製) を使用し、ヒット率 70% 以上でポリマー材質を判定した。また、ヒット率 50-70% に関しては、計測したスペクトルのピークが既知ポリマーの特徴的なピーク波数と一致する場合は、その判定結果を採用した。ヒット率 50-70% でも特徴的なピークが一致しない場合やヒット率 50% 以下の場合には、鮮やかな色のものや明瞭なピークが出ているがセルロースやたんぱく質と一致しないものについては、材質不明ポリマーとして「その他」に分類した。なお、プラスチック表面に有機物などが付着して汚れ、明瞭なスペクトルが得られない場合は、メタノールで拭いて乾燥させ、赤外吸収スペクトルを測定した。

2.6 ブランク試験

分析時におけるプラスチック片のコンタミネーションの可能性や、その影響を定量評価するためのブランク試験について説明する。採取した道路堆積物からプラスチック候補物を抽出する際に、使用器具や大気中からのプラスチック片の混入の恐れがある。ピンセットはステンレス製のものを、容器はガラス製のものを使用し、プラスチック製のものは使用しなかった。作業衣及び分析者の私服に化学繊維が含まれ、化学繊維片が大気経路で試料に混入することは完全には防げないと想定される。そこでブランク試験として、分析を行う実験室において、大気から降下するプラスチック片や使用した水道水中のプラスチック片の存在を確かめるため、水道水を入れた 1 L ビーカー (内径約 11.5 cm) を実験室内に置いた。そ

の水道水を、アルミホイルでろ過器の蓋をしながらニトロセルロースフィルター (孔径 0.45 μm) でろ過し、2.5 と同じプラスチック片の分析を行った。

ブランク試験の結果、繊維は 3 個確認されたものの、繊維を除く 300 μm 以上の破片等のプラスチック片は検出されなかった。以上より、研究対象から繊維を除外し、それ以外のプラスチック片を対象とした。

2.7 前処理妥当性検証のためのプラスチック標本粒子の回収試験

前述したように、本論文では、道路堆積物の前処理として、有機物分解せず、比重分離を水道水で行う、という簡便な方法を採用している。この前処理方法の妥当性を検証するために、プラスチック標本粒子の回収試験を行った。ここでは、比重が 1 より軽い PE と、1 より重い PET と PVC、という 3 種類の材質の標本粒子を採取物に混ぜて、ピンセットによる抽出と比重分離でどの程度回収できるかの試験を実施した。標本粒子の作成には、既製のプラスチックを 0.4~3.0 mm にカットし、PE には白色土砂と混同しやすい白色の洗剤容器、PET にはガラス破片と混同しやすい透明 PET ボトル、PVC には灰色土砂と混同しやすい灰色 PVC 管をそれぞれ用いた。この標本粒子を、調査時に採取した土砂 120 g (比重 1.3 のジクロロメタンを用いて、プラスチック片を除去) に添加した。この土砂の質量は、平均的な路肩採取物の質量と同じである。この標本粒子を含むサンプルに対して、上述した前処理とプラスチック候補物の分析を行った。試験回数は 3 回であり、それぞれ独立して行い、毎回、同じ数の標本粒子を入れて回収試験を実施した。

2.8 データ解析

上記のデータを用いて、①用地地域間における道路堆積物中のプラスチック片濃度の比較、②道路・河岸・海岸漂着物のプラスチック片濃度の比較、③道路堆積物中のプラスチック片年内変動、の検討を行う。①、②で用いている道路堆積物データとしては、全 10 エリアで計測した 2019 年 2-3 月 (10×5 地点) と 11 月 (10×2 地点) のデータを用いた。また、③については、4 つの時期で観測が行われた Stn.C2 (湘南台)、Stn.R2 (円行)、Stn.II (桐原)、Stn.P2 (大庭) のデータを用い、2019 年 2, 9, 11 月と 2020 年 1 月の結果を比較した。

また、③のプラスチック片濃度の年内変動特性を把握するために、市街地面源負荷の時間変動特性は一般に先行降雨状況の影響を強く受けることから³¹⁾、調査日における先行降雨指標 API (Antecedent Precipitation Index) と比較・検討する。API は次式のように定義される³⁵⁾。

$$API = \sum_{i=0}^{i=N} b_i P_i \quad (1)$$

ここで、 P_i は i 日前の日雨量、 b_i は係数であり、 N 日前までの雨量影響を考慮していることとなる。係数 b_i は、以下のように与えられる。

$$b_i = K^i \quad (2)$$

この K は減衰係数であり、ここでは経験値の範囲³⁵⁾ の $K = 0.90$ とし、 $N = 60$ 日とする。なお、調査日前の降雨状況を示す指標としては、単純に先行無降雨日数も想定されるが、道路上の面源負荷は降雨量の大小で流出状

況が変化することが想定される³¹⁾。そのため、APIは一般に土壌水分量評価に用いられるもの、先行の降雨量の大小を考慮できる指標であるため、ここではAPIを先行降雨指標として用いている。

3. 結果及び考察

3.1 回収試験に基づく対象プラスチック片サイズの検討

まず、回収した堆積物に対して本論文で行った前処理方法の妥当性や適用範囲を検証するために、プラスチック標本粒子の回収試験結果を **Table 2** に示す。ここでは、PE (粒子数 34) と PVC (同 36), PET (同 30) に対する結果について、粒径サイズを 1 mm 未満と 1 mm 以上、の 2 段階に分け、3 回の試験結果の回収率平均値と変動係数 (RSD) を表示している。これより、1 mm 以上の標本粒子の回収率は、プラスチックの材質によらず最小で 94.1% であり、変動係数も概ね小さい。また、これらの回収の大多数はピンセットによるものであった。このことより、今回対象とした 1 mm 以上のプラスチック標本粒子に関しては、材質や比重に関わらず、概ね良好な精度で回収できたことが分かる。また、1 個ずつ実体顕微鏡を使用し、紙や砂、植物、虫の一部などを除去することによって、周辺の土粒子と類似した色を有する標本粒子に対しても 1 mm 以上ならばピンセットで見つけることができおり、本前処理方法は今回未検証のポリマーにも有効といえる。

1 mm 未満の標本粒子の作成も難しく、各材質とも 10 個以下の添加を試みた。その結果、1 mm 未満については、3 つの材質ともに回収率は 70% 未満と低い。前処理時の回収過程 (ピンセット回収、その後に水道水浮上試験後の回収) の内訳としては、PE の回収率は、ピンセットのみで 11.1%、水道水浮上試験後に 66.7% となり、浮上試験は重要であるが、1 mm 未満で小さすぎて目視で見つけることが難しかった。比重が 1 より重い PVC や PET はピンセットのみで回収したものが最終結果となっており、当然のことながら、水道水浮上試験では回収できていない。以上より、本研究では、目視判別が可能であり、回収率の精度も高い 1 mm 以上のみのプラスチック片を調査対象とした。

3.2 道路堆積物中のプラスチック片濃度の比較

道路における 1 mm 以上のプラスチック片の堆積状況を把握するために、用途地域毎のプラスチック片濃度の箱ひげ図を **Fig. 2** に示す。図中には、市街地面源負荷把握の観点で基礎データである堆積塵埃の単位面積当たりの質量も表示する。ここでは、各エリアで 2019 年 2～3 月 (5 地点) と 2019 年 11 月 (2 地点) に行われた調査結果を商業・住居・工業・水田地域毎に分け、単位面積当たりのプラスチック片の数密度と質量濃度を算出した結果を図示している。また、用途地域間の差異があるかどうかを検討するため、各用途地域のデータが対数正規分布であることを確認したため、各データの対数に対して

Table 2 Recovery of microplastics (n = 3).

Particle size (mm)	PE			PVC			PET		
	Recovery (%)	RSD (%)	Added piece numbers	Recovery (%)	RSD (%)	Added piece numbers	Recovery (%)	RSD (%)	Added piece numbers
< 1	66.7	50	3	37.5	0	8	63.3	9.1	10
1 ≤ and ≤ 3	96.8	2.8	31	98.4	2.8	28	94.1	0	20

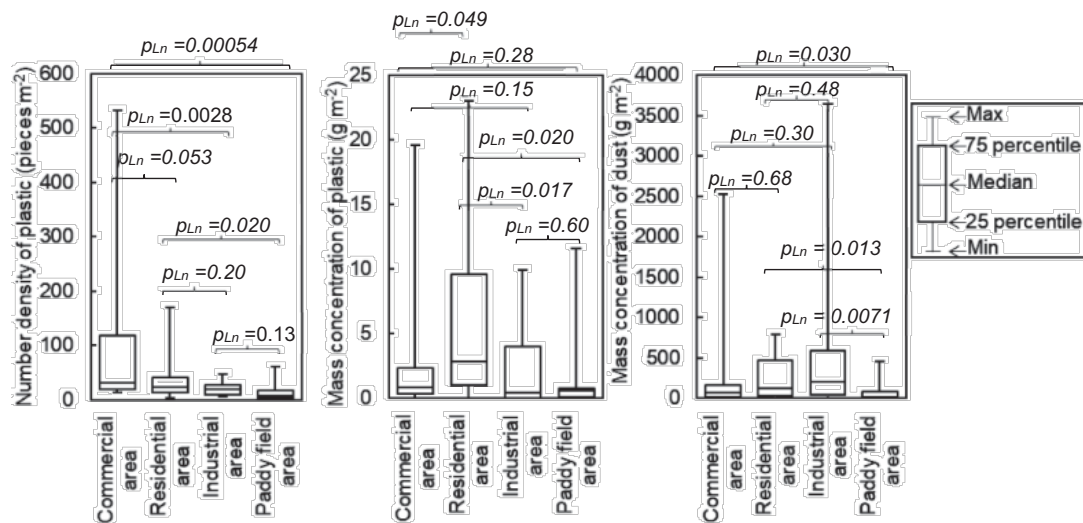


Fig. 2 Number density of plastic pieces (left), mass concentration of plastic (middle) and mass concentration of road dust (right). Sampling was conducted on Feb.-Mar. in 2019 and Nov. in 2019. The averaged values of each use district were displayed. p_{Ln} values between each area were shown.

Welch の t 検定により得られた p_{Ln} 値も表示している。まず、プラスチック片の数密度の平均値 ± 標準偏差は、商業地域 104 ± 141 個 m^{-2} 、住居地域 37 ± 39 個 m^{-2} 、工業地域 21 ± 13 個 m^{-2} 、水田地域 14 ± 17 個 m^{-2} となっていた。対数正規分布に関する t 検定結果より、商業地域と工業・農業地域の差は 5% 有意水準であり、住居地域との差は 10% 有意水準であり、商業地域におけるプラスチック片数密度が他の地域よりも有意に大きいことが示された。この商業地域中でも、特に Stn.C1 (大和) におけるプラスチック片数密度の中央値が 210 個 m^{-2} と高く、その多くを歩行者や自転車のレーンを示す路面標識塗料が摩耗・劣化してできた破片 (Fig. S2) が占めていた (全体の 84%)。これは、Stn.C1 (大和) では、車両交通量が多いことと関係していると推測される。また、Yukioka *et al.*²⁶⁾ は、道路堆積物中のマイクロプラスチック濃度を調査し、滋賀県草津市では 2.0 ± 1.6 個 m^{-2} と報告しており、本研究の結果の方が高い。Yukioka *et al.*²⁶⁾ におけるプラスチックの採取地点は車道を含む路面で、対象サイズは 0.1~5 mm と本研究の対象よりも小さい。プラスチックサイズが小さいとプラスチック片の数は一般に多くなるが、本研究の方のプラスチック片濃度が高くなった原因として、本研究においては、道路の中でも堆積量が最も大きい路肩³¹⁾ を対象とし、プラスチック片が多い地点でサンプリングした影響があるものと推察される。

一方、プラスチック片の質量濃度に関しては、住居地域は 6.1 ± 7.1 g m^{-2} 、商業地域は 2.3 ± 4.3 g m^{-2} 、工業地域は 2.3 ± 3.4 g m^{-2} 、水田地域は 1.4 ± 3.0 g m^{-2} であり、住居地域が最も大きい。プラスチック片質量濃度について住居地域と他の地域の差があるかを対数正規分布の t 検定の結果、住居地域と商業・工業・水田地域の差は 5% 有意水準であった ($p_{Ln} < 0.05$)。住居地域内では、住居やカラーコーンなどの置いている駐車場、ごみ集積場の脇において、壊れたプラスチック製品の破片やごみ回収時に落とされたと考えられるプラスチック片が散乱している様子が散見された。これらの地点では、他の用途地域と異なり、定期的にプラスチックごみが集められ、また、壊れたプラスチック製品が常に存在していた。このように、住居地域内の観測地点では、大きなプラスチック片が劣化・破片化して、質量の大きいプラスチック片が多く、結果としてプラスチック片質量濃度が大きくなったものと考えられる。

プラスチック片数密度と質量濃度の大小関係が異なった要因を探るために、各用途地域におけるプラスチック片のサイズ分布を Fig. 3 に示す。ここでは、各エリアで 2019 年 2~3 月と 11 月にて行われた調査結果を対象に、プラスチック片の長軸サイズに関する累計加積曲線を図示すると共に、10 mm 未満の分布も拡大して表示した。なお、ここでの累積値の計算には、質量ではなく、プラスチック片の数を用いていることに注意されたい。これより、プラスチック片サイズは、全体的に住居地域や工業地域で大きく、商業地域や水田地域では小さいことが分かる。各用途地域におけるプラスチック片の 50% (90%) サイズ (累積値が 50% (90%) のプラスチック片サイズ) は、商業・住居・工業・水田地域でそれぞれ 2.2 mm (5.8 mm)・4.5 mm (35 mm)・6.1 mm (30 mm)・

1.7 mm (22 mm) であった。これより、住居地域ではプラスチック片の 50%・90% サイズが大きい一方、商業地域では、両サイズ共に小さくなっている。このように住居地域では大きなサイズのプラスチック片が顕著に存在しており、結果として、プラスチック片数密度がそれほど大きくなかった住居地域におけるプラスチック片質量濃度が最大になったものと考えられる。

単位面積当たりの堆積塵埃の質量については、商業地域 310 ± 590 g m^{-2} 、住居地域は 250 ± 270 g m^{-2} 、工業地域は 600 ± 1020 g m^{-2} 、水田地域は 67 ± 120 g m^{-2} であった。地域の差があるかを t 検定で検討したところ、最小であった水田地域と他の地域では統計的な有意差がある結果となった ($p_{Ln} < 0.05$)。

3.3 道路堆積物と河岸・海岸漂着物におけるプラスチック片の比較

次に、流域から河川、海岸に至るプラスチックごみ動態を把握するべく、道路堆積物と河岸・海岸漂着物中に含まれるプラスチック片の材質の質量割合を Fig. 4 に示す。ここでの材質としては、PE, PP, PS, PET, PVC とその他に区分し、その他に関しては路上標識に使われている塗料とそれ以外に分けている。なお、図中には、堆積物・漂着物に加えて、河川水中の MP の材質も示している。各試料を比較すると、河川水や河岸漂着物、海岸漂着物では、代表三種である PE と PP, PS が卓越しており、代表三種の和は、河川水・河岸漂着物や海岸漂着物でそれぞれ 93, 97, 97% となっている。一方、道路堆積物のプラスチック片の材質割合は大きく異なっており、代表三種の割合は、商業・住居・工業・水田地域で各々 18, 70, 14, 7.3% であり、河岸や海岸に堆積するプラスチック片の材質構成は大きく変化している。各材質の比重の代表値としては、PP は 0.91, PE は 0.94, PS (樹脂) は 1.06 であり、代表三種には比重が小さいものが集中している^{36, 37)}。このように、流域内の道路面では比重が 1

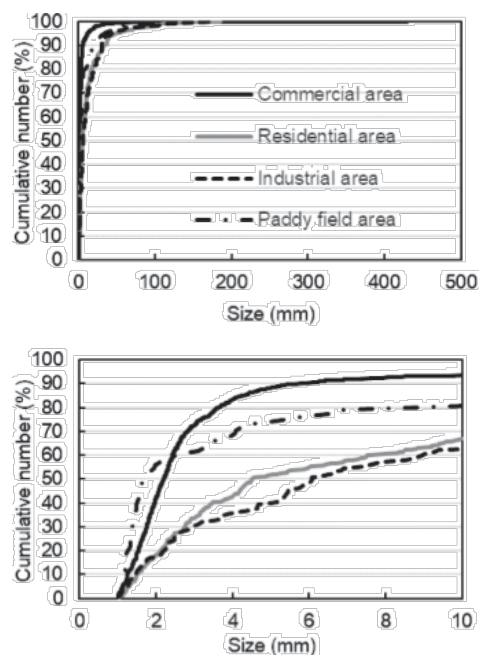


Fig. 3 Percent of cumulative number of plastic pieces in each use district of road dust.

より重いプラスチック片が多く存在するものの、比重の小さい材質のもののみが河岸や海岸に漂着している可能性が考えられる。道路面から流出して、河岸、海岸への漂着過程において、比重が大きなプラスチック片は沈降・分級している可能性があり、道路排水でも類似の結果が得られている²⁷⁾。ただし、本研究では、1 mm 以上と比較的大きめのプラスチック片を対象としているため、沈降効果は顕著に出ている可能性がある。また、本研究では河床や海底の堆積物の調査は行っていないため、比重の大きなプラスチック片が河川や海岸に流出していないことを示すものではない。そのため、1 mm 未満のより小さなプラスチックの挙動に関しては、観測データの収集などを含めて今後検討すべき課題である。

また、住居地域では、比重1以下の割合が61%と他の用途地域と比べても突出して多いと共に、プラスチック片質量濃度が他の用途地域よりも大きい。そのため、住居地域では他の用途地域よりも河川に流出し、海岸に漂着するプラスチック片の量が多いことが予想され、住居地域のプラスチック片削減が海域に流出するMP抑制対策として重要であると考えられる。

3.4 道路堆積物中のプラスチック片濃度の年内変動

道路面において採取されたプラスチック片の質量濃度に関する季節変化を含む年内変動を Fig. 5 に示す。ここでは、観測期間中4回観測した商業地域 (Stn.C2 (湘南台)), 住居地域 (Stn.R2 (円行)), 工業地域 (Stn.I1 (桐原)), 水田地域 (Stn.P2 (大庭)) における結果を表示し

ている。なお、各エリアでは、毎回2地点の計測を行ったため、その平均値が図示されている。これより、各エリアにおける年内変動は非常に大きく、Stn.C2では0.080～2.0 g m⁻²、Stn.R2では4.3～9.6 g m⁻²、Stn.I1では0.40～5.2 g m⁻²、Stn.P2では0.58～13 g m⁻²となっており、採取時期によって最大で2オーダーも違いがあった。また、季節毎における全エリアのプラスチック片質量濃度の平均値は、2019年2月、9月、11月、2020年1月ではそれぞれ5.5、1.7、3.3、5.6 g m⁻²となっており、夏季(2019年9月)や秋季(2019年11月)よりも冬季(2019年2月及び2020年1月)のほうがやや大きい。

各調査日のAPIを式(1)、(2)で算出した結果、2019年2月22日、9月2日、11月18日、2020年1月14日では各々5.6、42.9、20.9、15.0 mmとなった。各調査日における得られたAPIと同日採取したStn.C2 (湘南台)、Stn.R2 (円行)、Stn.I1 (桐原)のプラスチック片質量濃度平均値の相関図を Fig. 6 に示す。ここでは、プラスチック片質量濃度に関しては、3つのエリアの平均値とその標準偏差を図示している。これより、APIとプラスチック片質量濃度平均値に関しては負の相関関係が見られ、直線の近似式に関する決定係数R²は0.70となった。道路上に堆積するプラスチック片質量濃度の時間変動特性に対する先行降雨状況の影響が一定程度見られ、先行降雨量が大きいほどプラスチック片質量濃度が減少する傾向が見られた。ただし、プラスチック片質量濃度のばらつきは大きく、プラスチック片質量濃度の生データとAPI

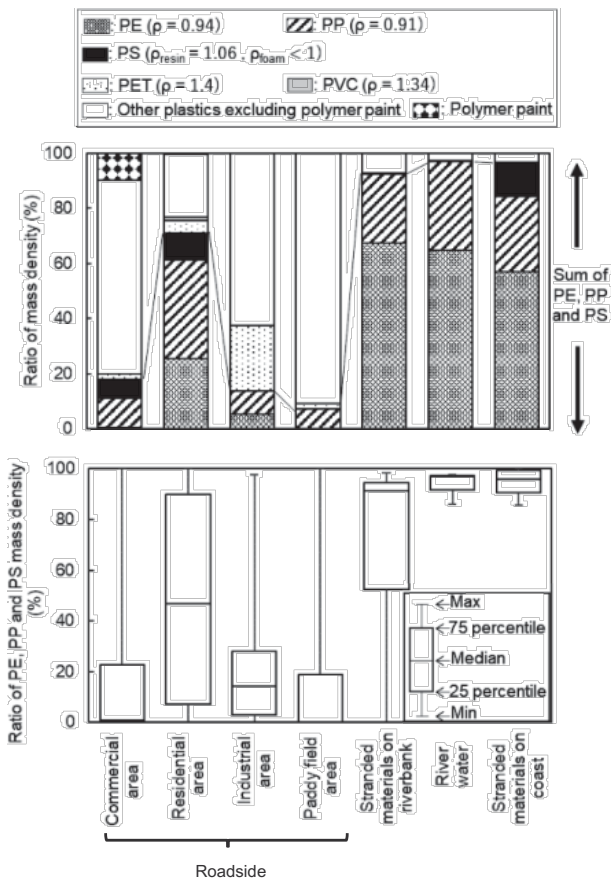


Fig. 4 Ratio of plastic material in road dust, stranded materials on riverbank, river water and stranded materials on coast.

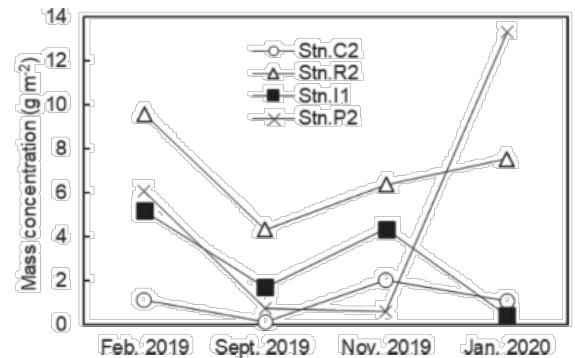


Fig. 5 Seasonal variation of mass concentration of plastic pieces in road dust.

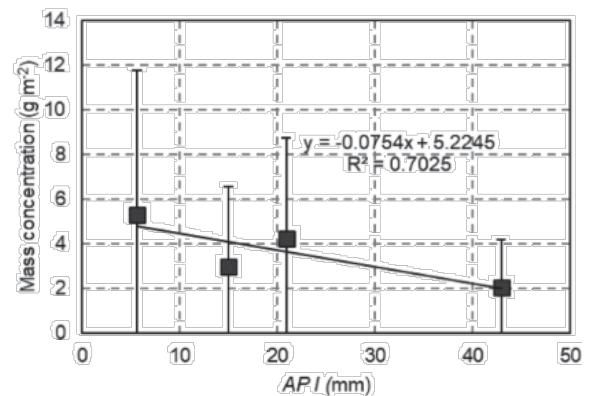


Fig. 6 Correlation between API and averaged mass concentration of plastic pieces in surface road dust. Square and error bars show the average and one standard deviation, respectively.

の相関性は見られなかった。また、API算出時に用いた係数 K を経験値の範囲 (= 0.85~0.98) で変えると、Fig. 6には決定係数は減る傾向が確認された。このため、道路上のプラスチック片濃度に関する詳細な季節変化を把握するには、時間解像度をより細かくした現地調査が必要であり、今後の課題とする。

4. まとめ

本研究では、繊維を除く1 mm以上のプラスチック片を対象として、流域～河川～海岸にわたるプラスチック片の動態を解明するために、引地川流域における道路堆積物及び河岸・海岸漂着物の現地調査を実施した得られた主な結論は、以下のとおりである。

- (1)用途地域間の道路堆積物中のプラスチック片濃度を比較したところ、プラスチック片数密度に関しては商業地域が他地域よりも有意に大きかったが、プラスチック片質量濃度については住居地域が顕著であった。プラスチック片数密度と質量濃度の大小関係が異なった要因としては、プラスチック片サイズが住居地域>商業地域の大小関係となり、結果として、サイズの大きな住居地域におけるプラスチック片質量濃度が最大になったものと考えられる。
- (2)プラスチック片の材質を道路・河川・海岸で比べたところ、河川水や河岸漂着物、海岸漂着物では代表三種 (PEとPP, PS) が卓越し、代表三種の和は93~97%となった。一方、道路堆積物に関しては代表三種の割合は7.3~70%であり、河川や海岸に堆積するプラスチック片よりも大幅に少ない。このように、道路上には比重が1より重いプラスチック片が多く存在しているが、道路からの流出と河岸、海岸への漂着過程にて、比重の小さい材質のみが河岸や海岸に到達していることが示された。また、住居地域は他の用途地域よりもプラスチック片の質量濃度や代表三種の割合が最大であることから、住居地域における重点的なプラスチックごみ削減対策の立案・実施が有用であることが示唆された。
- (3)道路堆積物中のプラスチック片質量濃度の年内変動を調べたところ、採取時期により最大で2オーダーも変化するなど大きな時間変化特性を示すと共に、先行降雨の影響を受けている可能性が示された。

本研究では、道路堆積物中のプラスチック片の対象サイズは1 mm以上と大きめのプラスチック片を選定したが、今後はより小さなプラスチック片も調査対象とするように分析方法を改良することが必要である。また、道路堆積物のサンプリング・分析方法を効率化し、より多くのサンプル分析を行った上で、用途地域間のプラスチック片濃度の比較をより精緻行う必要があり、今後の課題とする。

謝 辞

本研究の一部は、東京理科大学・学長特別研究推進費及び神奈川県政策局 政策部総合政策課 成果展開型研究推進事業費の助成を受けました。ここに記して謝意を表します。

付録：補足資料

補足資料は下記より閲覧可能である。

<https://www.jstage.jst.go.jp/browse/jswe/-char/ja/>

(原稿受付 2021年6月18日)

(原稿受理 2021年10月21日)

参 考 文 献

- 1) 外務省, 2015. G7 エルマウ・サミット首脳宣言 (仮訳) (平成27年6月8日). URL: http://www.mofa.go.jp/mofaj/ecm/ec/page4_001244.html (2021年10月時点).
- 2) Cole, M., Lindeque, P., Halsband, C., Galloway, T.S., 2011. Microplastics as contaminants in the marine environment: A review. *Marine Pollution Bulletin* 62(12), 2588-2597.
- 3) The Joint Group of Experts on the Scientific Aspects of Marine Environmental Protection (GESAMP), 2015. GESAMP Reports and Studies 90 "Sources, Fate and Effects of Microplastics in the Marine Environment: a Global Assessment". International Marine Organization, London, UK, pp.14-29.
- 4) Carpenter, E.J., Smith, K.L., 1972. Plastics on the Sargasso Sea surface. *Science* 175(4027), 1240-1241.
- 5) Rothstein, S.I., 1973. Plastic particle pollution of the surface of the Atlantic Ocean: Evidence from a seabird. *Condor* 75(3), 344-345.
- 6) 栗山雄司, 小西和美, 兼広春之, 大竹千代子, 神沼二真, 間藤ゆき枝, 高田秀重, 小島あずさ, 2002. 東京湾ならびに相模湾におけるレジンペレットによる海域汚染の実態とその起源. *日本水産学会誌* 68(2), 164-171.
- 7) Thompson, R.C., Olsen, Y., Mitchell, R.P., Davis, A., Rowland, S.J., John, A.W.G., McGonigle, D., Russell, A.E., 2004. Lost at sea: where is all the plastic?. *Science* 304(5672), 838.
- 8) Eriksen, M., Lebreton, L.C.M., Carson, H.S., Thiel, M., Moore, C.J., Borerro, J.C., Galgani, F., Ryan, P.G., Reisser, J., 2014. Plastic pollution in the world's oceans: more than 5 trillion plastic pieces weighing over 250,000 tons afloat at sea. *PLoS ONE* 9(12), e111913.
- 9) Isobe, A., Uchida, K., Tokai, T., Iwasaki, S., 2015. East Asian seas: a hot spot of pelagic microplastics. *Marine Pollution Bulletin* 101(2), 618-623.
- 10) Mani, T., Hauk, A., Walter, U., Burkhardt-Holm, P., 2015. Microplastics profile along the Rhine River. *Scientific Reports* 5, 17988 (2016).
- 11) Moore, C.J., Lattin, G.L., Zellers, A.F., 2011. Quantity and type of plastic debris flowing from two urban rivers to coastal waters and beaches of Southern California. *Integrated Coastal Zone Management* 11(1), 65-73.
- 12) Eerkes-Medrano, D., Thompson, R.C., Aldridge, D.C., 2015. Microplastics in freshwater systems: A review of the emerging threats, identification of knowledge gaps and prioritisation of research needs. *Water Research* 75(15), 63-82.
- 13) 工藤功貴, 片岡智哉, 二瓶泰雄, 日向博文, 島崎穂波, 馬場大樹, 2017. 日本国内における河川水中のマイクロプラスチック汚染の実態とその調査手法の基礎的検討. *土木学会論文集 B1 (水工学)* 73(4), I_1225-I_1230.
- 14) Kataoka, T., Nihei, Y., Kudou, K., Hinata, H., 2019. Assessment of the sources and inflow processes of microplastics in the river environments of Japan. *Environmental Pollution* 244 (January), 958-965.
- 15) Jambeck, J.R., Geyer, R., Wilcox, C., Siegler, T.R., Perryman, M., Andrady, A., Narayan, R., Law, K.L., 2015. Plastic waste inputs from land into the ocean. *Science* 347(6223), 768-771.
- 16) Lebreton, L.C.M., van der Zwet, J., Damsteeg, J.-W., Slat, B., Andrady, A., Reisser, J., 2017. River plastic emissions to the world's oceans. *Nature Communications* 8, 15611 (2017).
- 17) Schmidt, C., Krauth, T., Wagner, S., 2017. Export of plastic debris by rivers into the sea. *Environmental Science & Technology* 51(21), 12246-12253.
- 18) Nihei, Y., Yoshida, T., Kataoka, T., Ogata, R., 2020. High-resolution mapping of Japanese microplastic and macroplastic

- emissions from the land into the sea. *Water* 12(4), 951.
- 19) 池貝隆宏, 長谷部勇太, 三島聡子, 小林幸文, 2017. 海岸漂着量の評価のためのマイクロプラスチック採取方法. *全国環境研会誌* 42(4), 54-59.
- 20) 池貝隆宏, 三島聡子, 菊池宏海, 難波あゆみ, 小林幸文, 2018. 相模湾沿岸域のマイクロプラスチック漂着特性. *神奈川県環境科学センター研究報告* 41(1), 1-10.
- 21) 三島聡子, 小澤憲司, 中山駿一, 菊池宏海, 2020. 相模湾漂着マイクロプラスチックの有機フッ素化合物の吸着実態と流入河川の影響. *環境化学* 30, 66-81.
- 22) 経済産業省, 2020. 経済産業省生産動態統計. URL. https://www.meti.go.jp/statistics/tyo/seidou/result/ichiran/08_seidou.html (2021年10月時点).
- 23) Evangeliou, N., Grythe, H., Klimont, Z., Heyes, C., Eckhardt, S., Lopez-Aparicio, S., Stohl, A., 2020. Atmospheric transport is a major pathway of microplastics to remote regions. *Nature Communications* 11, 3381(2020).
- 24) 高田秀重, 2019. 海洋プラスチック汚染とその対策. *学術の動向* 2019(10), 44-48.
- 25) 北原健一, 中田晴彦, 2019. 陸域におけるマイクロプラスチックの発生源検証. 第53回日本水環境学会年会講演集, p.5.
- 26) Yukioka, S., Tanaka, S., Nabetani, Y., Suzuki, Y., Ushijima, T., Fujii, S., Takada, H., Tran, Q.V., Singh, S., 2020. Occurrence and characteristics of microplastics in surface road dust in Kusatsu (Japan), Da Nang (Vietnam), and Kathmandu (Nepal). *Environmental Pollution* 256 (January), 113447.
- 27) Sugiura, M., Takada, H., Takada, N., Mizukawa, K., Tsuyuki, S., Furumai, H., 2021. Microplastics in urban wastewater and estuarine water: Importance of street runoff. *Environmental Monitoring and Contaminants Research* 1, 54-65.
- 28) 小林俊介, 岡本洋輔, 片岡智哉, 向高新, 二瓶泰雄, 2020. 河川水・堆積物中に含まれるマイクロプラスチックの製品特定の試み. *土木学会論文集 B1 (水工学)* 76(2), I_1351-I_1356.
- 29) 神奈川県県土整備局河川下水道部河川課, 2014. 引地川水系の河川整備計画. URL. <https://www.pref.kanagawa.jp/docs/f4i/cnt/f70089/index.html> (2021年10月時点).
- 30) 小田急電鉄株式会社. 会社小史・略年表. URL. <https://www.odakyu.jp/company/history/> (2021年10月時点).
- 31) 砂田岳彦, 二瓶泰雄, 坂井文子, 吉田拓司, 2006. 模擬降雨流出水採取法(MOS法)に基づく路面上のノンポイント汚染源調査. *水工学論文集* 50, 1513-1518.
- 32) 無州孝哲, 2019. 浜松市の海岸域におけるマイクロプラスチック調査. *浜松市保健環境研究所年報* 30(1), 47-49.
- 33) 日本プラスチック工業連盟, 2020. プラスチック入門 こんにちはプラスチック 主なプラスチックの特性と用途. URL. <http://www.jpif.gr.jp/00plastics/plastics.htm> (2021年10月時点).
- 34) 建設 MiL, 2009. 塗料解説. *建設資材情報* 2009(12), 26-29.
- 35) 水村和正, 1998. 水圏水文学. 山海堂, 東京, pp.82-88.
- 36) 樹脂プラスチック材料協会, 2020. 用語集-比重とは-主なプラスチックの比重一覧. URL. <http://www.jushiplastic.com/specific-gravity> (2021年10月時点).
- 37) 樹脂プラスチック材料協会, 2020. プラスチックの基礎知識. URL. <http://www.jushiplastic.com/プラスチックの基礎知識> (2021年10月時点).

[論文要旨]

プラスチックの発生源である流域から河川、海岸にわたるプラスチック動態に関する研究事例は少ない。本研究では、流域～河川～海岸における5 mm以上も含むプラスチック片の動態を解明することを目的として、神奈川県引地川流域における流域(道路)・河川・海岸漂着物のプラスチック片調査を行った。標本粒子の回収試験結果より、本研究のプラスチック片の対象サイズを1 mm以上とした。観測結果より、用途地域間の道路堆積物中のプラスチック片数密度と質量濃度は、各々商業、住居地域が有意に大きく、その要因にプラスチック片サイズ分布が影響していることが示された。プラスチック片の材質を道路・河川・海岸で比べたところ、河岸・海岸漂着物では比重の小さいPE(ポリエチレン)とPP(ポリプロピレン)、PS(ポリスチレン)が卓越するが、道路堆積物では大幅に少ないことが明らかとなった。

キーワード: プラスチック片; 道路塵埃; マイクロプラスチック; 流域

Fig. S1



Fig. S1 Photographs of sampling points in this study.

Fig. S2

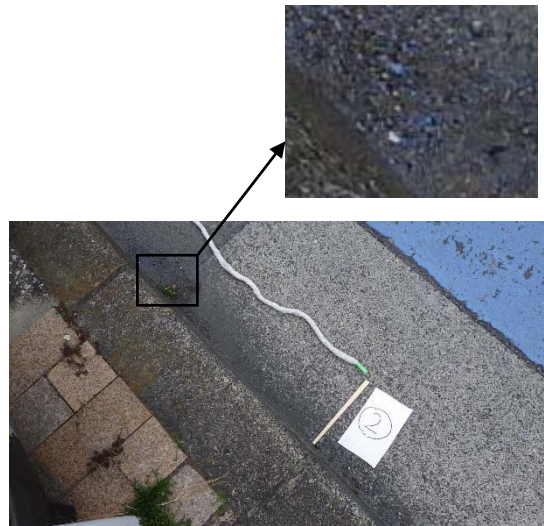


Fig. S2 Photographs of traffic paint in commercial area.