＜報　文＞

福岡県内の河川マイクロプラスチック調査*

—土地利用及び水質分析の比較—

古賀智子**・藤川和浩**・板垣成泰**・古賀敬興**・鳥羽峰樹**

キーワード　①マイクロプラスチック　②河川　③土地利用　④水質分析

要　　旨

福岡県内の河川において，季節ごとにマイクロプラスチック採取調査を2020年2月から2022年2月まで2年間実施した。調査は土地利用の異なる5河川で行い，水質汚濁項目やイオン類，重金属類などの水質分析も併せて実施した。その結果，同一地点でも個数密度の変動は非常に大きく，これは河川流量との関連が示唆された。また，土地利用の異なる河川間でマイクロプラスチックに特徴がみられ，個数密度と複数の水質項目との間に有意な相関が示された。

1. はじめに

海洋プラスチックごみが近年問題視されており[1)]，自然環境中で生物が摂取することによる有害な影響が懸念されている。予想される生物への影響は二つに大別され，一つはプラスチックが生物の体内で異物として作用する物理的影響[2)-4)]で，もう一つはプラスチックに含まれる添加物や自然環境中で吸着した疎水性物質による化学的影響[5)-7)]である。プラスチックごみの中でも直径5 mm以下のプラスチックと定義されるマイクロプラスチック(MP)[8)] は，その大きさから生物が誤食しやすいことと，一度海洋へ流出してしまうと回収がほぼ不可能であることから特に問題視されている。MPは海洋のいたるところで検出されており，特に日本近海は浮遊MPのホットスポットであると言える[9)]。

このような状況の中，日本は2019年に「大阪ブルー・オーシャン・ビジョン」を提案し[10)]，2050年までに海洋プラスチックごみによる追加的な汚染をゼロにまで削減することを目指している。また同年，日本では海岸漂着物処理推進法[11)]に基づく政府の基本方針が変更され，海洋環境の保全の一つとしてMP対策が盛り込まれた。2022年には，国連環境総会においてプラスチック汚染に関する法的拘束力のある国際文書（条約）を作るための政府間交渉委員会の設置が決定[12)]し，2024年までに作業を完了することを目指している。

このように，世界的に海洋プラスチック汚染対策が急速に進められているが，海洋に流出するプラスチックの実態については，未だ十分なデータの蓄積には至っておらず，現在も実態把握につながる調査研究が求められている。それは，陸域の主要な流出源と考えられる河川についても同様で，先行研究では流出個数密度や年間流出量が一回の測定結果によって見積もられていることが多い[例えば，13)]。さらに，河川水の生物化学的酸素消費量や

表1　プラスチックの種類の略語

略語	プラスチックの種類
PE	ポリエチレン
PP	ポリプロピレン
PET	ポリエチレンテレフタレート
PAN	アクリル繊維
PS	ポリスチレン
PVA	ポリビニルアルコール
EPDM	エチレンプロピレンゴム
PA	ポリアミド
PU	ポリウレタン
PMMA	アクリル樹脂
ABS	アクリロニトリル・ブタジエン・スチレン樹脂
PVC	ポリ塩化ビニル
EVA	エチレン-酢酸ビニル共重合樹脂

*Study on the annual distribution of microplastics in rivers in Fukuoka prefecture

**Tomoko KOGA, Kazuhiro FUJIWARA, Naruyasu ITAGAKI, Takaoki KOGA, Mineki TOBA（福岡県保健環境研究所）
Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences

表2　調査地点及び調査河川の概要

地点	河川延長 (m)	流域面積 (km^2)	調査期間 (四半期に1回)	地点周辺の土地利用	流域人口 (人)	田及び農用地の割合	採取方法	採取時間
A	23,640	50.6	2020.2-2022.2（2年間）	都市域	274,326	3.4%	水中ポンプ	1 m^3採水するまで
B	12,930	27.0	2020.2-2022.2（2年間）	都市域	123,671	2.0%	自然通水	5分
C	9,290	29.1	2020.2-2022.2（2年間）	農業地帯	2,546	24.1%	自然通水	5分
D	4,240	15.7	2020.2-2021.2（1年間）	農業地帯	833	14.9%	自然通水	5分
E	3,230	11.8	2021.5-2022.2（1年間）	上流に工業団地と交通量の多い国道あり	11,354	29.0%	自然通水	5分

全窒素など，一部の水質項目との関連は研究されている[13]が，イオン類や重金属類などとの関連はほとんど研究事例がない。

そこで，本研究では福岡県内の河川において，2020年2月から2022年2月までの2年間（一部の河川は1年間），季節ごとにマイクロプラスチック採取調査を実施し，個数密度を調査した。調査河川は土地利用状況の異なる地点を選定し，併せて水質汚濁項目やイオン類，重金属類などの水質分析を実施し，MPとの関連を調査した。なお，MPの種類は表1のように略語を用いることとする。

2. 調査及び実験方法

2.1 調査の概要

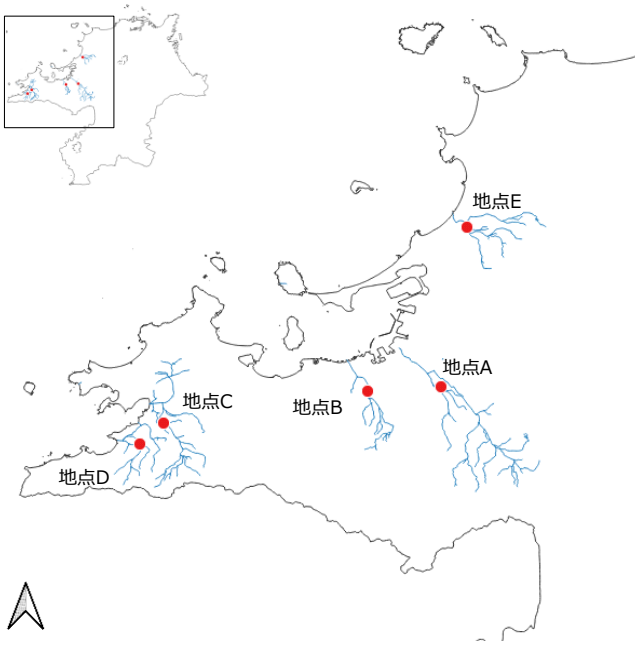

図1　調査地点及び調査河川

調査河川及び調査地点の概要を表2及び図1に示す。調査は，福岡県内を流れる二級河川の潮汐の影響を受けない5地点を選定した。地点A及びBは都市域を流れ，地点C及びDは農業地帯を流れる河川である。地点Eについては，工業団地の近傍を流れた下流地点であり，近くには片側3車線の国道が走っている交通量の多い地点である。調査期間は地点A，B,及びCは2年間，地点D及びEは1年間実施した。

2.2 マイクロプラスチックの採取

MPの採取方法は，地点A以外の4地点は目合い300 μmのプランクトンネット（簡易プランクトンネット，離合社，網地NMG58）及びろ水計（デジタルろ水計2030，GENERAL OCEANICS）を用い，表層水を5分間自然通水した（通水量1.46～11.67 m^3）。地点Aは，流速が小さく自然通水で採取できなかったため，表層水を水中ポンプ（BL-2512N，工進）にて吸水し，流量計（簡易タービン式流量計TB-K24-Ad，アクアシステム）を取り付け，ろ過量が約1 m^3となるまで上記と同じプランクトンネットでろ過した。その他，現場で河川流量，溶存酸素量(DO) 及び水温を測定した。プランクトンネットで採取した試料は，研究所に持ち帰った後，すぐにガラス瓶への移し替えを行った。

2.3 マイクロプラスチックの前処理及び測定方法

前処理は，まず試料を100 μmナイロンメッシュにろ過し，メッシュ上の試料をビーカーに移し替え，過酸化水素水（質量分率30.0～35.5%，富士フイルム和光純薬）で有機物の酸化分解を行った。その後，100 μmナイロンメッシュでろ過したものを，よう化ナトリウム（和光特級，富士フイルム和光純薬）水溶液で比重分離した。なお，汎用プラスチックの中で最も比重が大きいPVC（比重約1.4）を捕捉するため，よう化ナトリウム水溶液の比重を1.8に調製した。比重分離した上層を100 μmナイロンメッシュ上にろ過し，乾燥させたものを試料とした。

測定は，試料中のMP候補粒子を顕微鏡を用いてピッキングし，画像を撮影すると共に形状及び色の記録並びに長径の計測を行った。その後，フーリエ変換赤外分光光度計（FTIR-8X，日本分光，1回反射ATR PRO ONE X付き）または顕微フーリエ変換赤外分光光度計（Agilent Cary

620 FTIR，アジレント・テクノロジー）を用いてプラスチックの種類を同定した。

2.4 水質分析

MPの採取と併せて水質分析を行った。分析項目及び分析方法は以下の通りとした。水素イオン濃度（pH），電気伝導率（EC），化学的酸素消費量（COD），生物化学的酸素消費量（BOD），浮遊物質量（SS），全窒素（T-N），全燐（T-P），全有機炭素（TOC），ナトリウムイオン（Na^+），カリウムイオン（K^+），カルシウムイオン（Ca^{2+}），マグネシウムイオン（Mg^{2+}），塩化物イオン（Cl^-），硝酸態窒素（NO_3-N），硫酸イオン（SO_4^{2-}），ホウ素（B），アルミニウム（Al），全鉄（T-Fe），全マンガン（T-Mn），溶解性鉄（S-Fe），溶解性マンガン（S-Mn），銅（Cu）及び亜鉛（Zn）は日本産業規格工場排水試験方法JIS K 0102（2019）に準拠した。重炭酸イオン（HCO_3^-）は鉱泉分析法指針（平成26年改訂）に従った。直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩（LAS）は，環境庁告示第59号付表12に従った。すなわち，pHはガラス電極法，CODは100℃における過マンガン酸カリウムによる酸素消費量，SSは重量法，T-Nは紫外線吸光光度法，T-Pはペルオキソ二硫酸カリウム分解法，TOCは燃焼酸化 - 赤外線式TOC分析法，Na^+，K^+，Ca^{2+}，Mg^{2+}，Cl^-，NO_3-N及びSO_4^{2-}はイオンクロマトグラフ法，B，Al，T-Fe，T-Mn，S-Fe及びS-Mnは誘導結合プラズマ発光分光分析法，Cu及びZnは誘導結合プラズマ質量分析法，HCO_3^-は炭酸水素イオン，炭酸イオンおよび水酸化物イオンの分離滴定法，LASは液体クロマトグラフ質量分析法を用いた。

3. 結果と考察

3.1 マイクロプラスチックの詳細

5河川の個数密度の推移を図2に示す。2020年は夏季に個数密度が若干高くなる傾向があったが，2021年は8月にどの河川も低くなり，2022年2月には高い値を示すなど季節性は見られなかった。2年間の調査を通じて各地点の個数密度は大きく変動し，5河川の個数密度の最大

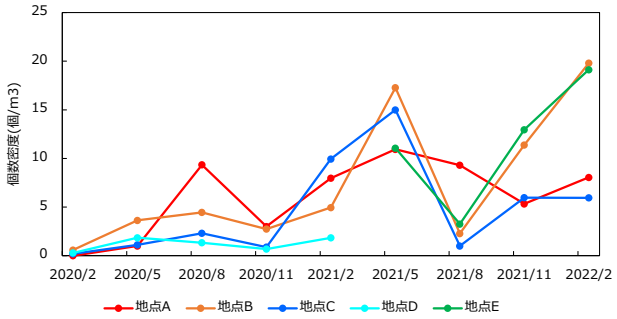

図2　個数密度の推移

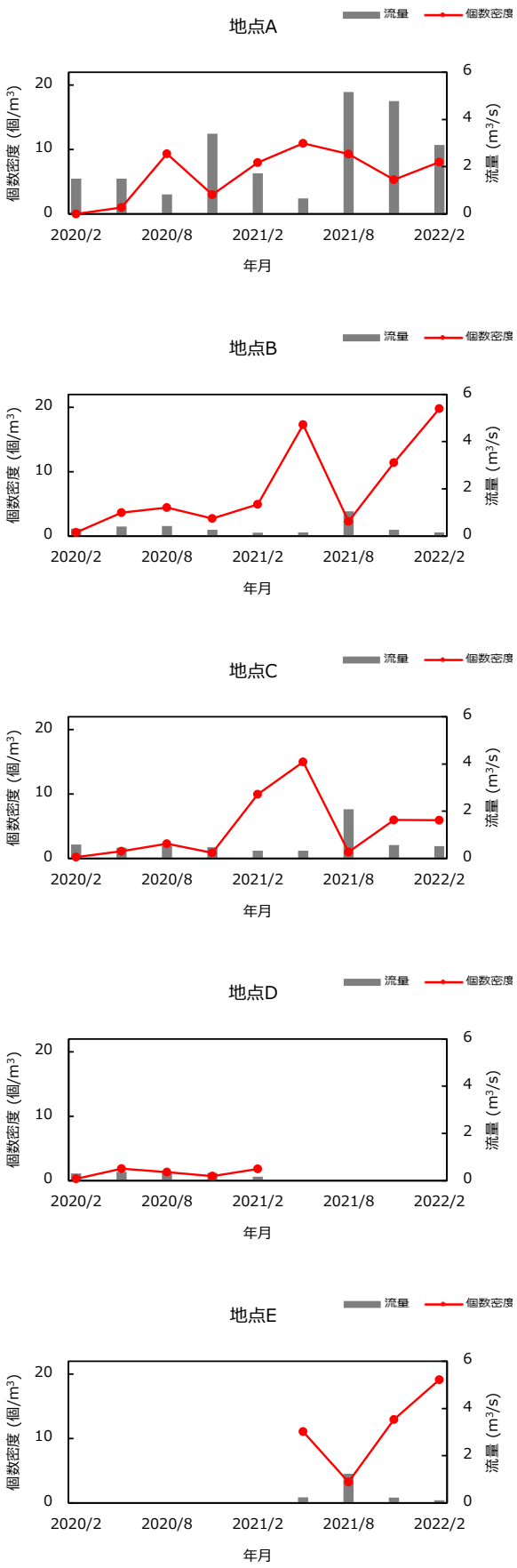

図3　個数密度と流量の推移

値は地点Bで19.8個/m^3，最小値は地点Aで0個/m^{3}であった。このことから，MPの個数密度の変動が非常に大きいため，河川の個数密度を見積もる際には複数回の調査を実施する必要があることが分かった。

個数密度が変動する要因の一つとして，河川流量の影響が考えられたため，図3に各河川の個数密度と河川流量の推移を示す。全ての河川で流量が大きいときに個数密度が低くなる傾向が見られた。この理由として，調査は雨が降っていない日に実施したが，調査日前の降雨の影響によってMPが既に流出した後であったか，または流量が大きいことでMPが希釈された可能性が考えられる。この検証には今後，出水時の調査を行ったり，週次や日次などサンプリング間隔を狭めて調査を実施したりする必要があると考えられる。

今回の調査全体の個数密度の平均値は6.0個/m^{3}となり，先行研究[13]の1.6個/m^{3}より高い結果であった。

3.2 土地利用が異なる河川のマイクロプラスチック比較

各地点の個数密度の平均値を表3に示す。個数密度は工業団地近傍の地点Eが最も高く，都市域河川の地点A及びB，農業地帯河川の地点C及びDの順で低くなっており，産業活動が盛んな地域や人口密度が高い地域ほどMPが多く流出している可能性が考えられる。

表3　平均個数密度

地点名	平均個数密度（個/m^3）
地点A（都市）	6.1
地点B（都市）	7.5
地点C（農業）	4.7
地点D（農業）	1.2
地点E（工業）	11.6

各地点のMPの形状別割合を図4に示す。全地点で破片，繊維状，フィルムの3種類で全体の98%以上を占めた。また，都市域河川である地点A及びBでのみ円柱・球状のものが検出された。MPは，製品の原料や添加物として用いられる一次MPと，製品が紫外線，熱，風や波などの物理的な力によって破砕，細片化された二次MPに分けられる。円柱・球状のものは一次MPと考えられ，製品そのものに含まれるMPが流出していることが示唆された。その他，工業団地近傍河川である地点Eのみ発泡状のMPが検出された。このMPは全てPSであったことから産業活動で発生した発泡スチロールの可能性が考えられる。

各地点のMPの色別割合を図5に示す。どの地点も白と青のMPが多く検出された。都市域河川で緑の割合が多い傾向が見られた。これは，近年MPの流出源と考えられている人工芝[14]の可能性が考えられる。また，橙色のMPも

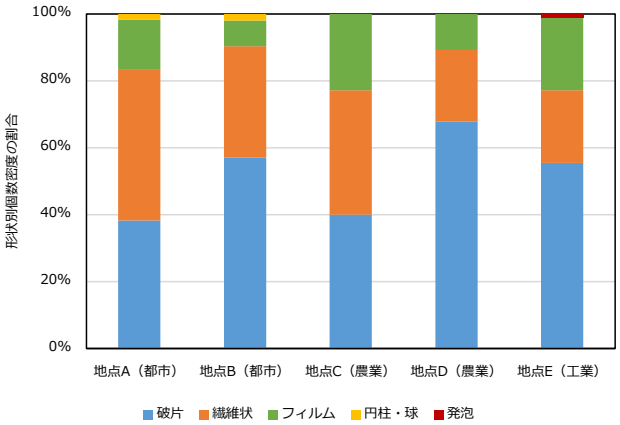

図4　MPの形状別割合

地点A及びBのみで検出されたことから，都市域特有のプラスチック製品からの流出と推察されるが，製品の特定には至らなかった。その他の特徴として，地点Eでは紫色のMPが検出され，地点C，D及びEではその他の色（褐色，ピンクなど）が比較的多く検出された。しかし，これらのMPについても何の製品由来かは不明であった。

各地点のMPの材質別割合を表4に示す。どの地点もPE，PP，PETの割合が高かった。また，PANは全て繊維状であり，2月，5月，11月に検出され8月は検出されなかった。このことから，セーターなどのニット製品からの剥離・流出の可能性が推察される。農業地帯河川の地点C及びDではPVAが多く検出され，これはロープなどに使用されることから農業資材の可能性が考えられる。本調査では比重1.8のよう化ナトリウム水溶液を用いて，汎用プラスチックの中で比重の大きいPVCの捕捉を試みたが，調査全体を通じて地点Cにおいて1個しか検出されなかった。PVCは河川への流出量は少ないか，流出したとしても河川表層にはほとんど存在せず，底層や河川底質にただちに移行しているものと考えられる。

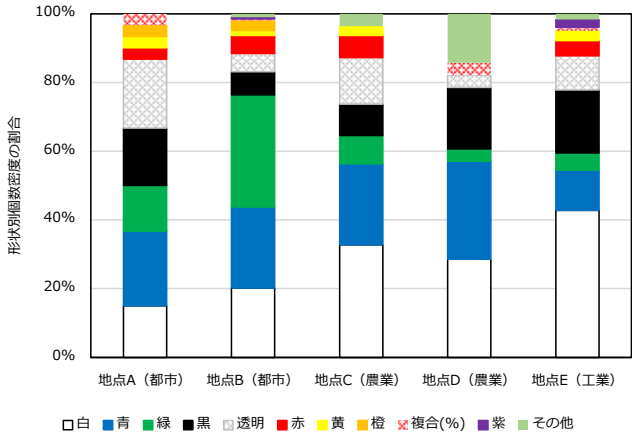

図5　MPの色別割合

表4　MPの材質別割合

地点名	PE (%)	PP (%)	PET (%)	PAN (%)	PS (%)	PVA (%)	EPDM (%)	PA (%)	PU (%)	PMMA (%)	ABS (%)	PVC (%)	EVA (%)
地点A（都市）	25.0	26.8	18.3	3.3	8.3	5.0	0	3.3	3.3	0	5.0	0	1.7
地点B（都市）	30.3	42.2	19.2	3.4	2.9	0.5	0	0.5	0	1.0	0	0	0
地点C（農業）	37.3	25.5	22.7	4.5	1.8	6.4	0.9	0	0	0	0	0.9	0
地点D（農業）	64.3	7.1	3.6	3.6	0	10.7	0	7.1	0	3.6	0	0	0
地点E（工業）	41.7	36.6	13.3	2.2	2.8	0	2.8	0	0.6	0	0	0	0

3.3 水質項目との関連

MPと水質項目の関係を解析するため，IBM製のSPSS Statistics（バージョン24）を用いてMPと各水質項目の間においてスピアマンの順位相関係数を求めた。有意な相関関係があったものについて，その結果を表5に示す。1%水準で有意な相関関係があったものは，BOD，EC，Ca^{2+}，TOC，Na^{+}，K^{+}，SO_4^{2-}及びHCO_3^{-}であった。5%水準で有意な相関関係があった項目は，S-Mn，T-Mn，Cu，Zn，B及びS-Feであった。一方，有意な相関関係が見られなかった項目は，水温，pH，DO，COD，SS，T-N，T-P，LAS，Mg^{2+}，Cl^{-}，NO_3-N，Al及びT-Feであった。Kataokaら[13]は，BOD，DO，T-N，T-Pについて個数密度との間に有意な相関が認められたとしているが，本研究ではBODのみ有意な相関が見られた。BODは，相関係数0.728と最も強い相関関係であった。このことから，MPは易分解性有機物が河川に流入するのと似た経路で河川に流入していることが考えられ，水質汚濁が進行した河川におけるBODの流入負荷要因を調査すればMPの主要な汚染源が判明することが推察される。ただし，本研究のBODは最大で2.4 mg/Lと比較的低く，より高いBOD値の地点においてBODとMPの相関関係があるかを検証しなければならないことに注意を要する。水質汚濁負荷の主な要因としては，生活系，産業・工業系，畜産・水産系，市街地系，農地系，自然系などがある。表3の結果もふまえると，本研究では産業・工業系，市街地系，農地系の順で汚濁負荷への寄与が大きいことが示唆された。

表5　MP個数密度と水質項目の相関

水質項目	最大値	最小値	平均値	相関係数
BOD (mg/L)	2.4	<0.5	1.1	0.728**
EC (μS/cm)	456	111	201	0.575**
Ca^{2+} (mg/L)	37.9	7.8	18.8	0.575**
TOC (mg/L)	2.5	0.5	1.2	0.545**
Na^{+} (mg/L)	37.7	8.2	14.4	0.544**
K^{+} (mg/L)	2.9	1.1	1.7	0.511**
SO_4^{2-} (mg/L)	31.0	4.4	13.8	0.463**
HCO_3^{-} (mg/L)	120	39.1	67.4	0.454**
S-Mn (mg/L)	0.109	0.003	0.026	0.401*
T-Mn (mg/L)	0.111	0.005	0.032	0.390*
Cu (mg/L)	0.003	<0.001	0.001	0.376*
Zn (mg/L)	0.011	<0.001	0.003	0.355*
B (mg/L)	0.053	0.002	0.022	0.341*
S-Fe (mg/L)	0.171	0.009	0.050	0.333*

** 1%水準で有意（両側）
* 5%水準で有意（両側）

また，イオン類や重金属類など無機物質において，多数の水質項目と相関関係が見られた。これらは過去に報告がほとんどなく，無機物質についてもMPとの関連があることが示唆された。しかし，これらの項目は自然界に普遍的に存在するため流入源が判然としなかったり，BODと同様に測定値が低かったりした。そのため，MPとの関係性については現在のところ不明であり，今後更なる調査を要する。

4. まとめ

福岡県内の二級河川において，2年間MP採取調査と水質調査を実施した。MP個数密度は，季節的な変化は見られず調査日によって大きく値が変動した。これは，河川流量との関連が考えられるため，河川の個数密度を見積もる場合には平水時の調査を多く行ったり，流量が異なるときに複数回の調査を実施したりする必要があることが分かった。また今後，出水時の調査や週次，日次などサンプリング間隔を狭めて調査を実施しMP個数密度の変化を詳細に捉える必要があることも分かった。

河川周辺の土地利用による比較では，どの河川からも普遍的に検出されるMPもあれば，土地利用によって特徴的なMPも検出された。水質項目との比較では，水質汚濁項目との関連が示唆された。

今後，水質汚濁の程度が高い河川においてさらなる検証を要するものの，本研究においては水質汚濁が進行し

た河川でMP排出抑制対策を重点的に行うことが効果的であることが考えられる。また，土地利用によらず普遍的に検出されるMPの排出抑制対策を行うと共に、個々の地域において特徴的なプラスチックの排出源があることが示唆されたため，各地域に応じたMP排出抑制対策を実施する必要もある。

5. 引用文献

1)　日本学術会議　健康・生活科学委員会　環境学委員会合同　環境リスク分科会：提言「マイクロプラスチックによる水環境汚染の生態・健康影響研究の必要性とプラスチックのガバナンス」，https://www.scj.go.jp/ja/info/kohyo/pdf/kohyo-24-t288-1.pdf（2023.10.9アクセス）

2)　Barboza L. G. H., Vieira L. R., Branco V., Figueiredo N., Carvalho F., Carvalho C., Guilhermino L.：Microplastics cause neurotoxicity, oxidative damage and energy-related changes and interact with the bioaccumulation of mercury in the European seabass, Dicentrarchus labrax (Linnaeus, 1758). *Aquatic Toxicology*, **195**, 49-57, 2018

3)　Bour A., Haarr A., Keiter S., Hylland K.：Environmentally relevant microplastic exposure affects sediment-dwelling bivalves. *Environmental Pollution*, **236**, 652-660, 2018

4)　Choi J. S., Jung Y., Hong N., Hong S. H., Park J.：Toxicological effects of irregularly shaped and spherical microplastics in a marine teleost, the sheepshead minnow (Cyprinodon variegatus). *Marine Pollution Bulletin*, **129**, 231-240, 2018

5)　Guo X., Wang J.：Sorption of antibiotics onto aged microplastics in freshwater and seawater. *Marine Pollution Bulletin*, **149**, 110511, 2019

6)　Sleight V.A., Bakir A., Thompson R. C., Henry T. B.：Assessment of microplastic-sorbed contaminant bioavailability through analysis of biomarker gene expression in larval zebrafish. *Marine Pollution Bulletin*, **116**, 291-297, 2017

7)　鍋谷佳希，田中周平，鈴木裕識，雪岡聖，藤井滋穂，高田秀重：琵琶湖・大阪湾におけるマイクロプラスチックへのペルフルオロ化合物類および多環芳香族炭化水素類の吸着特性．環境工学研究論文集，**73**，7，Ⅲ_1-Ⅲ_8，2017

8)　Arthur C., Baker J., Bamford, H.：International Research Workshop on the Occurrence, Effects, and Fate of Microplastic Marine Debris. 2009

9)　磯部篤彦：海洋プラスチックごみの発生・移動とその行方．廃棄物資源循環学会誌，**29**，(4)，270-277，2018

10)　環境省：大阪ブルー・オーシャン・ビジョン，https://www.env.go.jp/water/post_75.html（2023.10.9アクセス）

11)　環境省：海岸漂着物処理推進法関係，https://www.env.go.jp/water/marine_litter/law.html（2023.10.9アクセス）

12)　環境省：Draft resolution ”End plastic pollution: Towards an international legally binding instrument” https://www.env.go.jp/content/900518598.pdf（2023.10.9アクセス）

13)　Kataoka T., Nihei Y., Kudou K., Hinata H.：Assessment of the sources and inflow processes of microplastics in the river environments of Japan. *Environmental Pollution*, **244**, 958-965, 2019

14)　小林俊介，岡本洋輔，片岡智哉，向高新，二瓶泰雄：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_1356，2020