

河川におけるサイズ別プラスチックごみの堆積分布特性と劣化状況の把握

藤山 朋樹¹・吉田 拓司²・宮本 颯太³・村上 依里子⁴・岡本 洋輔⁵・片岡 智哉⁶・二瓶 泰雄⁷

¹ 学生会員 東京理科大学大学院 理工学研究科土木工学専攻 (〒278-8510 千葉県野田市山崎 2641)
E-mail:7618529@ed.tus.ac.jp

² 正会員 東京理科大学大学院 理工学研究科土木工学専攻 (〒278-8510 千葉県野田市山崎 2641)
兼 八千代エンジニアリング(株) 事業開発本部 (〒111-8648 台東区浅草橋 5-20-8)
E-mail: tk-yoshida@yachiyo-eng.co.jp

³ 非会員 元東京理科大学 理工学部土木工学科 (〒278-8510 千葉県野田市山崎 2641)

⁴ 非会員 東京理科大学分析補佐員 理工学部土木工学科 (同上)

⁵ 非会員 東京理科大学 理工学部土木工学科 (同上)

⁶ 正会員 東京理科大学助教 理工学部土木工学科 (同上)

⁷ 正会員 東京理科大学教授 理工学部土木工学科 (同上)

E-mail:nihei@rs.noda.tus.ac.jp

本研究では、河川におけるプラスチックごみ輸送過程を明らかにするために、荒川の縦断方向複数地点においてマクロ・メソ・マイクロプラスチックごみの堆積量及び吸光スペクトルを用いた劣化状況の把握を行った。その結果、荒川下流部のプラスチックごみ堆積量は上・中流部よりも多かった。また、各地点の横断方向では、水際に比べてコンクリート護岸上の方が、メソ及びマイクロプラスチックの堆積量が多いことから、護岸上に長期滞在することで微細化が進行していることが示唆された。また、サイズ別の劣化度を調べたところ、マイクロ>メソ>マクロであり、細かなプラスチックほど劣化が進行している一方で、ほとんど劣化していないマイクロプラスチックも相当数存在することが明らかになった。

Key Words: microplastics, macroplastics, mesoplastics, river deposits, Arakawa River

1. 序論

プラスチックは軽くて安価で耐久性が高く、我々人間の生活の利便性を向上させる一方で、一度海洋中に流出すると自然環境下で分解されずに海洋中を漂い続ける。このようなプラスチックを代表とする「海ごみ」^{1)~4)}の多くは陸域から海洋に流出している⁵⁾。そのため、プラスチックごみ(以下、プラごみ)は、海の問題だけでなく発生源である陸域も含めた問題として国際的に認識され、G7等のサミットでも議題に取り上げられている⁶⁾。微細化した5mm以下のプラスチック(マイクロプラスチック, microplastics)⁷⁾は海洋に流れ出ると事実上回収困難である。これより、低次から高次までの多様な生物に悪影響を与える汚染源として危惧される⁸⁾。そのため、現在、プラごみ汚染の中でもマイクロプラスチックが非常に注目されている。

このような海洋におけるプラごみに関するグローバルな環境問題に対処するために、陸域から河川、沿岸域、海洋にわたるマイクロプラスチックの動態を把握する必

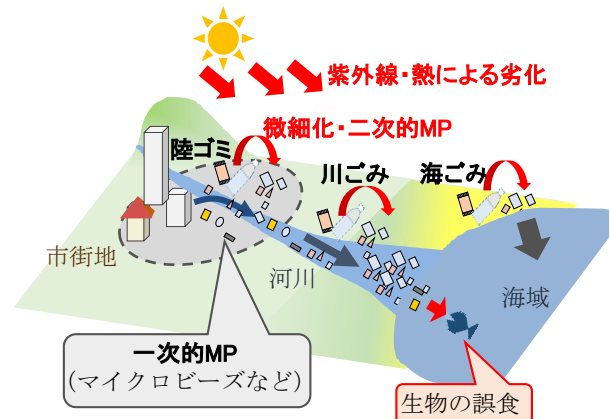


図-1 陸域～河川～海域のMP動態の模式図⁹⁾

要がある。想定されるマイクロプラスチックの動態に関する模式図を図-1に示す⁹⁾。マイクロプラスチックはそもそも製造段階で5mm以下の一次的MP(primary microplastics)と大きなサイズで製造されたプラスチックが微細化された二次的MP(secondary microplastics)からなる。

二次的 MP は、陸域や河川、海岸における大きなプラごみが、各々の場所で太陽光や熱、波・流れ等により細分化され、水の流れにより、陸域～河川～海域へと流出しており、特に洪水時に大量の MP が運ばれる可能性が高い¹⁰⁾。以上より、流域圏におけるマイクロプラスチックの動態を考える上では、5 mm 以下のマイクロプラスチックだけでなく、大きなサイズのプラごみであるマクロ (>25 mm) ・メソ (5~25 mm) プラスチック¹¹⁾の動態も把握する必要がある。しかしながら、プラごみの動態に関する調査はマイクロプラスチックに集中し¹²⁾、マクロ・メソプラスチックの海域への流入量や劣化状況は不明である。

本研究では、流域圏におけるプラごみ動態を把握するための第一歩として、河川に堆積するプラごみを対象として、マクロ・メソ・マイクロプラスチックの堆積分布特性や劣化状況を把握する。そのため、荒川に堆積しているサイズ別プラごみに関する現地調査を行った。その結果より、サイズ別プラごみの堆積量や種類、劣化度 (カルボニルインデックス^{13)・14)}を調査・解析し、河川水中のマイクロプラスチック汚染状況とも比較する。

2. 研究方法

(1) 荒川の概要

本論文では、関東を代表する一級河川である荒川を研究対象サイトとする。荒川は、流域面積 2,940 km²、流路延長 173 km の一級河川である。流域には埼玉県と東京都を含み、流域人口が 1,020 万人 (利根川、淀川に次いで全国 3 位)、人口密度は 3,470 人/km² (鶴見川に次いで全国 2 位)、下水道普及率は 91% である。土地利用特性は、市街地 33%、農地 15%、山林 44% となっており、荒川は人口密度や市街地率が高い大河川である^{15)・16)}。

(2) 調査地点と調査日

荒川における堆積プラごみの調査地点は、図-2 に示すように、上流・玉淀大橋 (河口から 92 km)、中流・開平橋 (同 48 km)、下流・船堀橋 (同 3 km) の 3 つの橋とする。玉淀大橋では礫河原が広がり、開平橋では高水敷にヨシ原が存在している。船堀橋付近では、消波ブロックと陸側の低水護岸の間に河川内干潟が存在し、ごみが堆積しやすい場所である¹⁷⁾。水際を基準とした比高差により川ごみ堆積状況やプラスチックの劣化度が変化するものと想定し、各橋で 3 つの比高についてそれぞれ 2 箇所、計 6 箇所を調査対象とする (トータルで 18 箇所)。3 つの比高条件としては、冠水頻度大の水際 (地点 1) と、水際からの比高差が 1 m 程度で冠水頻度が年数回の地点 2、ほぼ冠水しない比高差が 2 m 以上の地点 3 とし、

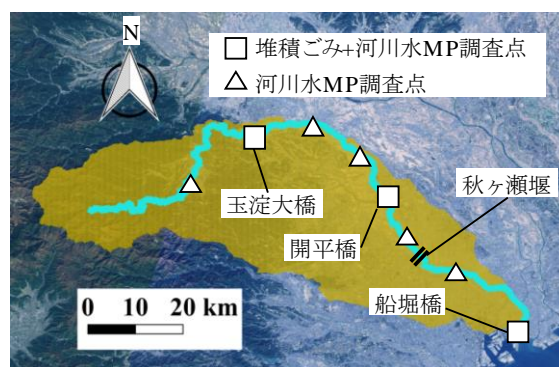


図-2 調査地点

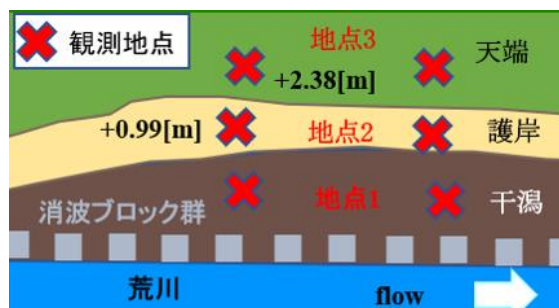


図-3 船堀橋の観測地点

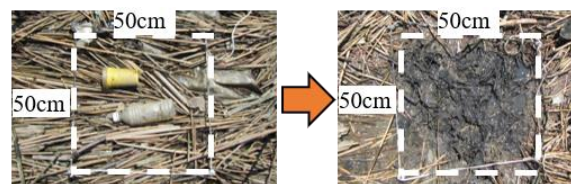


図-4 堆積ごみ調査の様子 (船堀橋・地点 1, 左:採取前, 右:採取後)

一例として、船堀橋の観測地点を図-3 に示す。

一方、河川水の MP 調査地点は、河口から 3~120 km の計 8 地点で実施しており、上記の 3 つの橋も含む (図-2)。この観測地点は河口付近から上流まで広く等間隔にし、支流の影響を考慮して選定した。感潮域は河口から 34 km の秋ヶ瀬堰までで、下流 2 地点は感潮域である。堆積ごみ調査は 2019 年 5 月 8 日に行った。また河川水 MP 調査は 2018 年の夏 (8/22~23)、秋 (11/7)、冬 (12/19) に行い、本論文では秋のデータのみを用いる。

(3) 堆積ごみ採取方法と分析方法

a) 採取手順

堆積ごみを採取するにあたり、50 cm 四方のコドラート調査を行った。相対的に人工系ごみが堆積している位置を選定して、コドラートを設置する (図-4)。その後、コドラート内における人工系・自然系ごみを全て採取し、ビニール袋 (袋 A) に入れる。この際、自然系ごみとして、漂着せずにその場で枯死したものを回収しないよう注意する。また、土壌中に含まれるプラごみを採取するため、表層 1 cm 程度をスコップで採取し、ジップロック (袋 B) に入れる。

b) サンプルの後処理と分析手順



(a) 船堀橋・地点1



(b) 船堀橋・地点2

図-5 採取された自然系・人工系ごみの分類状況

2種類の袋を持ち帰り、自然系ごみと人工系ごみ（マクロプラスチック、メソプラスチック、マイクロプラスチック、プラスチック以外（非プラと称す））の計5種類に分類する。マイクロプラスチックはフーリエ変換赤外分光光度計（Fourier Transform Infrared Spectroscopy, FTIR, IRAffinity-1S, 株式会社島津製作所製）を用いてプラスチック判定を行い、その他は目視や触感で判定した。

サンプルの後処理方法を述べる。まず、大きなごみが多い袋Aからサンプルを取り出し、バケツの中の水につけて泥を落とす共に、大きなごみに付着したマイクロプラスチック候補物も落とす。バケツ内の沈殿物を目あい0.1mmのネットですろ過し、マイクロプラスチック候補物のみ取り出した。分類された自然系ごみは100度で2時間乾燥させた後、質量を測定した。人工系ごみは24時間自然乾燥させて、質量を測定した。

袋Bに含まれる多量の土砂を全て分析することは非現実的なため、以下のように簡略化する。まず、目視で確認できる大きな自然系・人工系ごみを取り出す。残った土砂をかき混ぜて10gづつ3サンプルを取り（サンプル土砂量30g）、飽和食塩水（比重1.20）に入れて、比重分離（5分間攪拌、1時間静置）し、上澄み液をステンレス製容器に移し、マイクロプラスチック候補物を抽出した。抽出したマイクロプラスチック候補物*n*個の内、

20個を選択した。選択した20個の候補物をFTIRでプラスチック判定し、マイクロプラスチック個数*N_{MP}*の割合 α （ $\alpha = N_{MP}/20$ ）を算出した。最終的に、各サンプルのマイクロプラスチックの総質量*M_{MP}*を次式で算出した。

$$M_{MP} = \frac{M_{sed}}{30} \times M_c \times \alpha \quad (1)$$

ここで、サンプル土砂の総質量を*M_{sed}*、30g中のMP候補質量を*M_c*とする。上式の精度を確認するため、10g×9個のサンプルを分析した結果、質量の誤差（標準偏差/平均値）は26.7%であった。

3. 河川におけるサイズ別プラごみ堆積分布

(1) 河川堆積ごみの内容物

採取した堆積ごみを分類した一例として、船堀橋・地点1と2におけるごみ分類状況を図-5に示す。ここでは、自然系ごみ及びマクロ・メソ・マイクロプラスチック、非プラに分類している。マイクロプラスチックは、シャーレに入れた状態である。これより、水際の地点1とそこから高さ1m上の地点2（コンクリート護岸上、図-3）では、堆積物の内容が大きく異なる。地点1では、自然系やマクロプラスチックが多いが、地点2ではメソ・マ

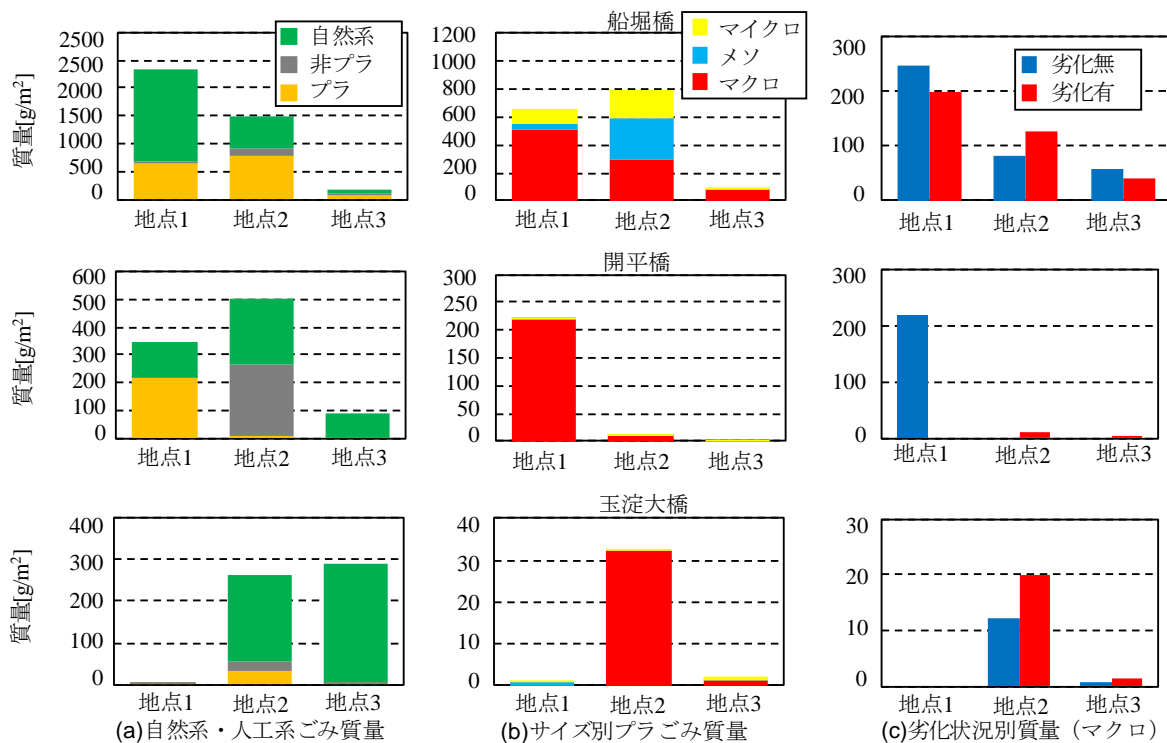


図-6 単位面積あたりの堆積ごみ質量の比較（上から船堀橋、開平橋、玉淀大橋）

マイクロプラスチックが相対的に多くなっている。また、マクロプラスチックはビニール袋、弁当の容器などの大きめのごみからストロー、洗濯ばさみのかけらなどの中くらいのもの、原型がわからない小さな破片まで様々なものが堆積していた。メソ・マイクロプラスチックは破片、球体、シート状のものが確認された。

(2) 堆積ごみ質量の比較

このような河川堆積ごみを地点間で定量的に比較するために、各橋における単位面積当たりの堆積ごみ質量を比べた結果を図-6に示す。ここでは、自然系と人工系（プラと非プラ）、サイズ別プラごみ、劣化有無別マクロプラスチック、について比較する。なお、各橋にて同一比高では2箇所ずつサンプリングしており、ここではその平均値を表示している。

a) 自然系・人工系ごみ

図-6(a)に示す自然系・人工系ごみに着目すると、各橋のごみの総和は、船堀橋が他の橋よりも1オーダー以上大きく、特に地点1、2が突出している。各橋の地点間を比べると、船堀橋では水際の地点1からほぼ冠水しない地点3へごみ堆積量が減少する傾向が見られた。開平橋では地点1でプラごみ、地点2で非プラごみがそれぞれ自然系ごみより多い。これは、地点1では1.5Lのペットボトル（新品）が、地点2では金属製廃棄物がそれぞれ堆積していたためである。開平橋における観測地点は人の出入りの痕跡があったため、これらのごみがポイ捨てによるものと推測される。上流の玉淀大橋では水際の

地点1では全く堆積しておらず、地点2、3においても人工系ごみはほとんど堆積していなかった。このように、人工系ごみは人為的な環境負荷が小さい上流部では非常に少なく、人為的な環境負荷が増加する下流部では大きくなっている。

b) マクロ・メソ・マイクロプラスチック

サイズ別プラごみを比べると（図-6(b)）、大量のごみが堆積していた船堀橋の地点1ではマクロプラスチックが卓越しているが、地点2ではメソプラスチックやマイクロプラスチックの堆積量も大きく、図-5の様子と一致する。ほぼ冠水しない地点3でもマクロプラスチックがわずかだが存在し、風で飛来したものと推測される。開平橋と玉淀大橋では元のプラごみ堆積量が小さく（1.5Lペットボトルが1本存在した開平橋地点1以外）、明確な傾向はない。

船堀橋・地点1に対して、地点2のほうがメソ・マイクロプラスチックが増加する要因として、地点2ではマクロプラスチックが微細化している可能性が高い。地点2は冠水頻度が低く（1年間で10回）、流れ着いたマクロプラスチックが長く滞留する。加えて、地点2はコンクリート製護岸上のため高熱であり、かつ日射を遮るものがないため、マクロプラスチックが劣化しやすい環境であると考えられる。

c) 目視による劣化有無別マクロプラスチック

各地点のプラごみの劣化状況の差異を比較するために、まずは目視により劣化の有無でマクロプラスチックを分類した（図-6(c)）。ここではプラスチックの端部が自然

表-1 マクロプラスチックの製品毎の劣化有無別質量と劣化有無の比率（黄色は上位3位までを示す）

No		質量[g/m ²]		劣化有/劣化無
		劣化無	劣化有	
1	生活用品	68.00	31.80	0.47
2	ペットボトル	177.05	62.00	0.35
3	ビニール袋	110.27	105.03	0.95
4	食品包装, おかしの棒	16.93	4.92	0.29
5	食品容器	9.40	28.00	2.98
6	容器その他	75.00	20.00	0.27
7	ラベル	0.20	13.00	65.00
8	発砲スチロール・スポンジ	4.00	22.00	5.50
9	ストロー	10.73	17.87	1.66
10	タグ	2.04	0.00	0.00
11	結束バンド	24.04	23.05	0.96
12	破片	56.78	78.93	1.39
13	プラモデル	-	5.40	-
14	その他	30.61	3.93	0.13

に切れ、マイクロプラスチックが発生しているものを「劣化有」と判別した。これより、船堀橋においては、地点1では劣化無>劣化有であるが、地点2では劣化無<劣化有となり、前述のメソ・マイクロプラスチックの差の議論と一致する。また、開平橋・玉淀大橋の地点2, 3でも、量は小さいが劣化無<劣化有となっており、冠水頻度が少ない地点では滞留時間が長い為、プラスチックの劣化が進むことが示唆された。

劣化の有無で分類したマクロプラスチックの種類毎の質量[g/m²]を表-1に示す。ここでは、出来る範囲で種類を特定し、不明分はその他とし、全地点の合計値を表示している。これより、劣化無のマクロプラスチックでは、ペットボトル、ビニール袋（レジ袋など）が多く、劣化有ではビニール袋、破片、ペットボトルの順となっている。特筆すべき点としては、劣化有/劣化無の比が1以上の種類が多く存在し、ラベル、発砲スチロール、食品容器などである。プラ製品による堆積・流出機構に大きな差がないとすると、劣化有/劣化無が1以上の製品は劣化が早くマイクロプラスチックに移行しやすいことになり、マイクロプラスチック汚染解決のために喫緊の対策を講じる製品である。

4. カルボニル基による劣化状況の把握

(1) プラスチックの劣化度指標

FTIRにより得られた赤外線の吸光度スペクトルを用いて、プラスチックの劣化度を客観的に評価する。紫外線や熱により表面が酸化され、分子鎖が切れることでカルボニル基が生成される。カルボニル基が生成されると波数1700cm⁻¹付近の吸光度が顕著に増加する。カルボニルインデックスはカルボニル基（波数:1714cm⁻¹）の吸光度と、劣化の有無で変化しないメチレン基（波数:1450cm⁻¹）の吸光度の比を用いて示す。図-7にペットボトル

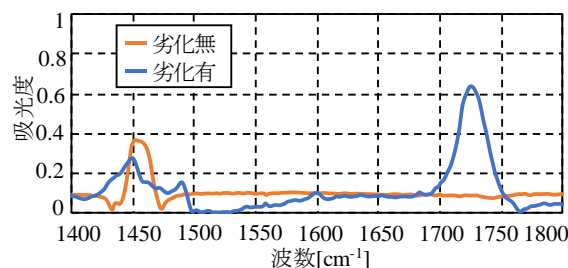


図-7 劣化無・有の吸光スペクトルの比較

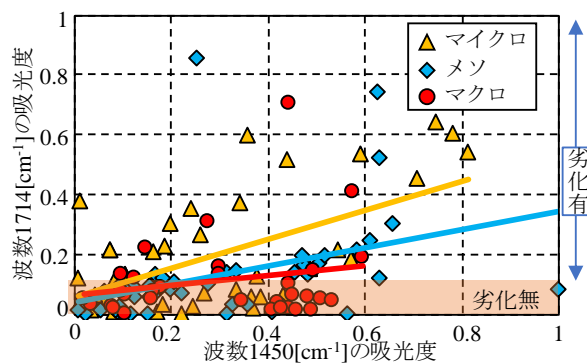


図-8 サイズ別プラごみのカルボニルインデックスの比較（図中に実線は各プラに対する近似直線を示す）

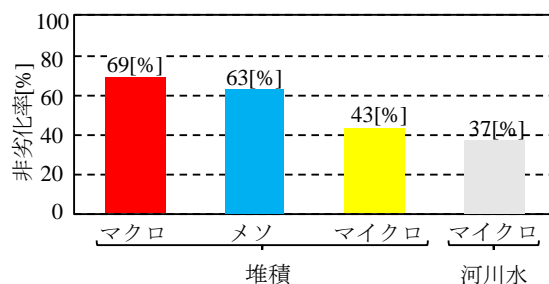


図-9 プラごみの非劣化率の比較

のラベルの劣化無・有のスペクトルを示す。劣化有の方がカルボニル基の吸光度が増加している。新品のプラスチック製品のスペクトルを測定した結果、カルボニル基の吸光度はすべて0.12以下になったことから、吸光度0.12を閾値とし、劣化有無を定義した。

(2) カルボニルインデックスの比較

図-8は、サイズ別プラごみに関するカルボニル基とメチレン基の吸光度の相関図を示す。実測値に対する近似直線も図示している。これより、近似直線の傾きから、堆積ごみの劣化度合いは、マイクロ>メソ>マクロの順であり、大きなプラスチックが太陽による自然営力で熱や紫外線により劣化・微細化している。一方、劣化無の範囲にも観測値が含まれている。このことを定量的に比べるために、劣化無の割合（非劣化率）を図-9に示す。これより、マイクロプラスチックの非劣化率は堆積ごみでは43%、河川水では37%もある。自然条件下の劣化による微細化だけでなく、別の要因でマクロプラスチックが破断され微細化した可能性が考えられる。

5. 結論

本研究では、荒川の縦断方向3地点の河岸でマクロ・メソ・マイクロプラスチックの堆積量調査を行い、その堆積分布特性を明らかにするとともに、各地点のプラスチックの劣化特性の把握を行った。プラスチックの堆積量は、下流の船堀橋で多く堆積していた。船堀橋における横断方向のサイズ別堆積量をみると、水際にはマクロ>マイクロ+メソなのに対し、コンクリート護岸上ではマイクロ+メソ>マクロであり、河岸で長期的に堆積することでプラスチックの微細化が進行していることが示唆された。さらに、カルボニルインデックスを用いてサイズ別に劣化特性を把握した結果、マイクロ>メソ>マクロの順に劣化度が高く、プラスチックが小さくなるほど劣化度が高いことが示された。その一方、ほとんど劣化していないマイクロプラスチックも相当数存在することが示唆された。

謝辞：本研究の一部は JSPS 科研費・若手（A）（17H04937）の助成、並びに公益財団法人河川財団の河川基金助成事業により実施された。東京理科大学理工学部土木工学科水理研究室学生には大変なプラスチック分析作業を手伝って頂いた。ここに深く感謝の意を表す。

参考文献

- 1) Derraik, J.G.. The pollution of the marine environment by plastic debris: a review, *Marine Pollution Bulletin*, Vol. 44, pp. 842-852, 2002.
- 2) Cole, M., Lindeque, P., Halsband, C., and Galloway, T. S.: Microplastics as contaminants in the marine environment: A review, *Marine Pollution Bulletin*, Vol. 62, Issue 12, pp. 2588-2597, 2011.
- 3) Eriksen, M., Lebreton, L.C.M., Carson, H.S., Thiel, M., Moore, C.J., Bornerro, J.C., Galgani, F., Ryan, P.G. and Reisser, J.: Plastic Pollution in the World's Oceans: More than 5 Trillion Plastic Pieces Weighing over 250,000 Tons Afloat at Sea, *PLOS ONE*, Vol. 9, e111913, 2014.
- 4) 小島あずさ, 眞淳平: 海のごみ拡大する地球環境汚染, 中公新書, pp.1-232, 2007.
- 5) Jambeck, J.R., Geyer, R., Wilcox, C., Siegler, T.R., Perryman, M., Andrady, A., Narayan, R. and Law, K.L.: Plastic waste inputs from land into the ocean, *Science*, Vol.347, Issue 6223, pp.768-771, 2015.
- 6) 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), http://www.mofa.go.jp/mofaj/ecm/ec/page4_001244.html.
- 7) Thompson, R. C., Olsen, Y., Mitchell, R. P., Davis, A., Rowland, S. J., John, A.W.G., McGonigle, D. and Russell, A.E.: Lost at sea: Where is all the plastic?, *Science*, Vol.34, 838p., 2004.
- 8) 高田秀重, 田中厚資, 青木千佳子, 市川馨子, 山下麗: プラスチックが媒介する有害化学物質の海洋生物への暴露と移行, *海洋と生物*, Vol.36, No.6, pp. 579-587, 2014.
- 9) 二瓶泰雄, 片岡智哉: 市街地のごみ堆積状況と河川水中のマイクロプラスチック汚染状況, 用水と廃水, Vol.60, No.1, pp.48-55, 2018.
- 10) 工藤功貴, 片岡智哉, 二瓶泰雄, 北浦郁弥: 平常時・出水時河川のマイクロプラスチック濃度の時間変動特性と年間輸送量評価, 土木学会論文集 B1 (水工学), Vol.74, No.4, pp.1_529-1_534, 2018.
- 11) Blettler, M.C.M., Ulla, M.A., Rabuffetti, A.P. and Garell, N.: Plastic pollution in freshwater ecosystems: macro-, meso-, and microplastic debris in a floodplain lake, *Environ. Monit. Assess.*, 189: 581, 2017.
- 12) Kataoka, T., Nihei, Y., Kudou, K. and Hinata, H.: Assessment of the sources and inflow processes of microplastics in the river environments of Japan, *Environmental Pollution*, Vol.244, pp.958-965, 2019.
- 13) 森北浩通, 田中伸幸, 畑千登, 高木光司: カルボニル基分布によるポリエチレンの寿命予測, パナソニック電気技報, Vol.58, No.1, pp.58-63, 2010.
- 14) 飯塚智則, 大武義人, 田中敬二: 光と熱の相乗効果がポリプロピレンの劣化に与える影響, *J. Soc. Materials Science, Japan*, Vol.66, No.3, pp. 238-243, 2017.
- 15) 埼玉県: 荒川水系荒川上流ブロック河川整備計画 (県管理区間), 2006.
- 16) 国交省関東地整: 荒川水系河川整備計画, 2015.
- 17) 片岡智哉, 馬場大樹, 二瓶泰雄, 工藤功貴, 今村和志, 五十嵐実: 消波ブロックで囲まれた河口干潟における川ゴミの現地観測と収支解析, 土木学会論文集 B2 (海岸工学), Vol.73, No.2, pp.1_1435-1_1440, 2017.

(Received May 31, 2019)

(Accepted August 7, 2019)

ACCUMULATION AND DEGRADATION OF MACRO-, MESO- AND MICRO-PLASTICS ON RIVER BANKS OF ARAKAWA RIVER

Tomoki FUJIYAMA, Takushi YOSHIDA, Hayata MIYAMOTO, Yoriko MURAKAMI, Yosuke OKAMOTO, Tomoya KATAOKA and Yasuo NIHEI

In order to clarify the transport process of plastic debris from land, the accumulation of macro-, meso- and micro-plastic debris on river banks were investigated in the Arakawa River. The plastic debris were accumulated at the downstream site comparing with the upstream sites. The amounts of meso- and micro-plastics on the higher river bank was more than that near the river edge, indicating that the degradation of plastic debris could progress on the river bank. In addition, the degradation level of plastic debris collected from the river banks was understood by measuring a ratio of absorbance at carbonyl and methylene groups. The degradation level was high in order of micro-, meso- and macro-plastics, indicating that the degradation level of smaller plastic debris was high.