Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費　終了研究成果報告書

1RF-2001　農耕地におけるマイクロプラスチックの発生と海域への移行に関する研究

(JPMEERF20201R01)

令和２年度～３年度

Study on Generation of Microplastics in Agricultural Land and Transfer to Marine Environment

〈研究代表機関〉
石川県立大学

○図表番号の付番方法について
「Ⅰ．成果の概要」の図表番号は「０．通し番号」としております。なお、「Ⅱ．成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。
「Ⅱ．成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号．通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

令和４年５月

目次

Ⅰ．成果の概要 ・・・・・・・・ 1
１．はじめに（研究背景等）
２．研究開発目的
３．研究目標
４．研究開発内容
５．研究成果
５－１．成果の概要
５－２．環境政策等への貢献
５－３．研究目標の達成状況
６．研究成果の発表状況
６－１．査読付き論文
６－２．知的財産権
６－３．その他発表件数
７．国際共同研究等の状況
８．研究者略歴

Ⅱ．成果の詳細
Ⅱ－１　農耕地におけるマイクロプラスチックの発生と海域への移行に関する研究 ・・・・・・・・ 14
（石川県立大学）
要旨
１．研究開発目的
２．研究目標
３．研究開発内容
４．結果及び考察
５．研究目標の達成状況
６．引用文献

Ⅲ．研究成果の発表状況の詳細 ・・・・・・・・ 28

Ⅳ．英文Abstract ・・・・・・・・ 30

Ⅰ．成果の概要

課題名　　1RF-2001　農耕地におけるマイクロプラスチックの発生と海域への移行に関する研究

課題代表者名 勝見　尚也　（石川県立大学生物資源環境学部環境科学科　准教授）

重点課題　　主：【重点課題6】グローバルな課題の解決に貢献する研究・技術開発（「海洋プラスチックごみ問題への対応」

副：【重点課題1】持続可能な社会の実現に向けたビジョン・理念の提示

行政要請研究テーマ（行政ニーズ）　非該当

研究実施期間　令和２年度～令和３年度

研究経費
10,122千円（合計額）
（各年度の内訳：令和２年度：5,028千円、令和３年度：5,094千円）

研究体制
他のサブテーマはない。

研究協力機関
研究協力機関はない。

本研究のキーワード　マイクロプラスチック、被覆肥料、被膜殻、水田、土壌、顕微FT-IR

１．はじめに（研究背景等）

マイクロプラスチック（直径5 mm以下のプラスチック）による海洋汚染は新たな環境問題の一つとして注目されている。マイクロプラスチックを生物が誤食することで消化管が閉塞したり、吸着していた有害物質や可塑剤が体内に移行したりすることが懸念されている。これらの海洋マイクロプラスチックの多くは陸域に発生源があるため、汚染拡大を防ぐためには陸域における排出源への対策が効果的である。しかし、マイクロプラスチックは発生源が多岐にわたるため、実態把握が十分に進んでいない。本研究ではこれまで注目されず、ミッシングソースの一つになっている可能性の高い農業分野に着目した。

これまで農業生産現場ではビニールハウス、マルチ、サイレージラップ、被覆肥料（被覆肥料：肥料をプラスチックで被覆し、成分の溶出時間を制御した肥料）などのプラスチック製の農業資材を使用することで、高品質な農作物の生産、農作業の省力化、環境負荷低減が達成されてきた。その中でも被覆肥料は作物の生育に合わせて肥料成分の溶出を適切にコントロールできることから、（１）追肥の省略による農作業の省力化に加え、（２）硝酸塩の流出防止や温室効果ガスであるN_2Oの発生抑制など、農業生産の高度化に貢献しうる資材である。そのため、これまで水稲を始めとする多くの作物の栽培において被覆肥料が使用されるようになり、消費量は毎年増加を続け、2018年には日本国内における年間生産量と輸入量の合計は13万トンに達した（図1.1）。

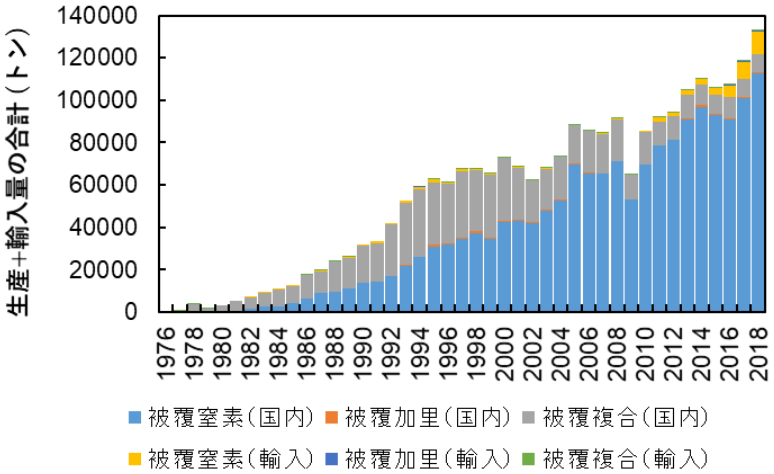

図1.1 日本国内における被覆肥料の生産と輸入量の推

その一方、被覆肥料から肥料成分が溶出した後に発生するプラスチック製のマイクロカプセル（以下、被膜殻と略す）はその回収の困難さゆえに使用後は放置されるケースが多い。その結果、被膜殻が農用地のみならず、農業用水を介して海岸に到達していることが見出されてきた（図0.1）。これらの被膜殻は5 mmよりも小さいことからマイクロプラスチックに区分され、農用地が海洋マイクロプラスチックの発生源になっていると考えられる。そこで被膜殻による海洋の汚染実態を明らかにするため、石川県の海岸線に堆積している粒子径が1mm以上のマイクロプラスチックの予備調査を行った。その結果、季節変動があるものの、汀線に堆積しているマイクロプラスチックの3～7割が被膜殻であり、農用地が海洋マイクロプラスチックの発生源となっていることが明らかとなった。その一方、農用地から海域へ移行プロセスや農用地での蓄積や微細化などの実態は不明であった。

図0.1 被覆肥料に由来するマイクロプラスチック

２．研究開発目的

本研究は、これまで予備調査を続けてきた被覆肥料に由来するマイクロプラスチックを対象に、陸域における動態および海岸における実態を明らかにする。具体的には、（１）水田におけるマイクロプラスチックの蓄積・変質・流出量の評価、（２）農業用水を介した海洋への移行プロセスの評価、（３）海岸線におけるマイクロプラスチックの定点モニタリング調査を実施する。これにより、陸域から海洋へのマイクロプラスチックの移行挙動の理解と、陸域から海洋へのマイクロプラスチックの流出抑制につながる新規知見の取得を目指す（図0.2）。

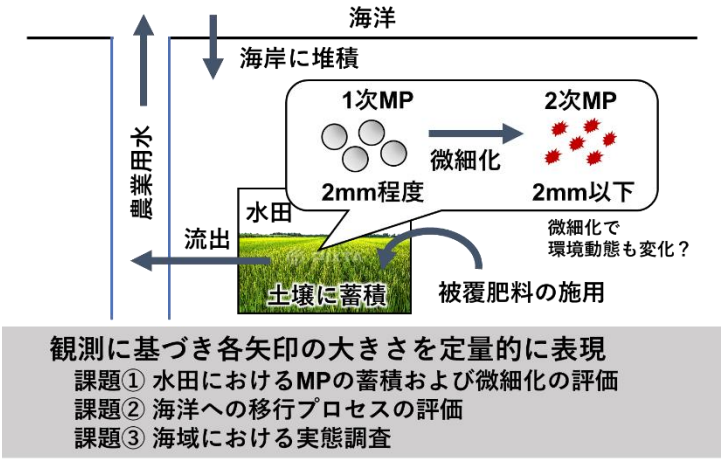

図0.2 本研究の概要

３．研究目標

課題１．水田におけるマイクロカプセルの蓄積・変質・流出量の評価

水田におけるマイクロカプセルの滞留時間や流出時期とその規定要因を明らかにし、農耕地からの流出低減に資する情報を得るとともに、マイクロカプセルの微細化による二次マイクロプラスチックの発生を明らかにする。

課題２．農業用水を介した海洋への移行プロセスの評価

マイクロカプセルの輸送量の季節変化や河川流量との関係性を明らかにするとともに、落差工などの用水路設備が海域への移行に与える影響をフィールド調査とモデル実験から評価する。

課題３．海域におけるマイクロカプセルの実態調査

令和元年度から3年度までの定点モニタリングと広域調査の結果をふまえ、海岸における被覆肥料由来のマイクロカプセルの実態を把握する。さらに、課題1と課題2で得られた情報を統合し、陸域から海域へのマイクロカプセルの移行プロセスモデルを提示する。

４．研究開発内容

課題１．水田におけるマイクロプラスチックの蓄積・変質・流出量の評価

石川県立大学付属実験農場の被覆肥料連用水田にて2 m × 2 mのグリッドを作成し、作土層に相当する表層から15 cmまでの土壌を採取した。採取には内径15 cmの自作コアサンプラーを用いた。採取後、土壌に含まれる被膜殻数を計測し、それらの濃度分布をGISにより可視化した。その結果、被膜殻は圃場内で不均一に分布しており、取水口付近では低濃度だったが排水口付近に高濃度のホットスポットが存在した（図1.7）。これは、代かきによって浮上した被膜殻が水の流れとともに排水口付近に集積したためと思われる。水田全体の被膜殻濃度の平均値を算出したところ、圃場の4隅と中央の計5地点の平均濃度とほぼ一致

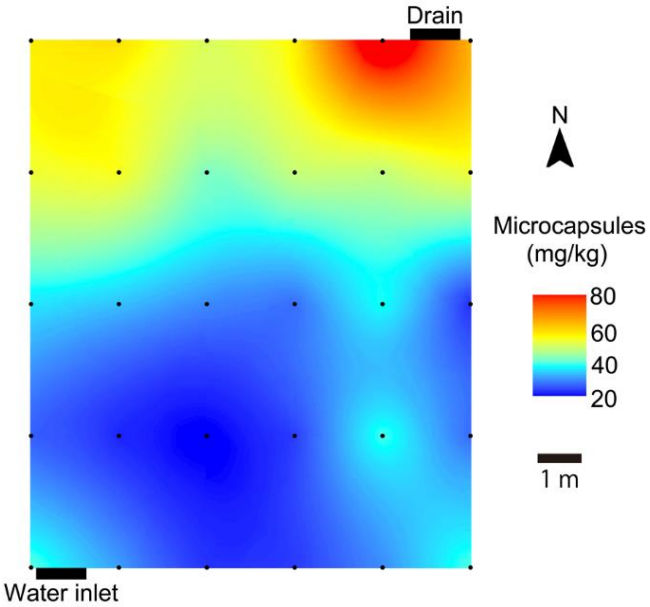

図1.7 水田土壌における被膜殻の分布

した。そのため、今後の土壌調査は1つの圃場につき4隅と中央の5点を採取することとした。

石川県手取川扇状地の19地点の水田（水稲単作の慣行栽培13地点、輪作5地点、有機栽培1地点）において、内径15cmの自作コアサンプラーを用いて作土層に相当する深さ15 cmまでの土壌を採取した。なお、一つの圃場につき5地点（圃場の四隅と中心）で採取した。得られたコアサンプルを、0～10 cm（表層）と10～15 cm（次表層）に分割し、水中篩別によってそれらに含まれる粒径1 mm以上の粒子を取り出した。60℃で2日乾燥した後、回収した試料の中から被膜殻を単離した。その後、被膜殻の粒子数と質量を測定した。

次いで、これまで開発してきた手法を用いて、土壌中に含まれる被膜殻に由来する二次マイクロプラスチックの寄与を調査した（図1.5）。土壌から密度分離により抽出したマイクロプラスチックを過酸化水素およびフッ化水素により精製し、アルミナフィルターの上に捕集した。アルミナフィルター上に得られたマイクロプラスチックの定性・定量分析は顕微FT-IRを使用した。マッピング測定には液体窒素冷却MCT検出器を用いた透過法を採用し、アパーチャーサイズを50 µm × 50 µm、測定間隔を49 µm、測定面積を100 mm2とした。なお、この条件での検出可能な最小粒子径は約30 µm、測定時間は2.5時間/試料である。マッピング後、フィルター上の粒子をランダムに300粒程度選択し、それらの粒子径、形態、色を記載した後、透過法によりそれらのFT-IRスペクトルを取得した。

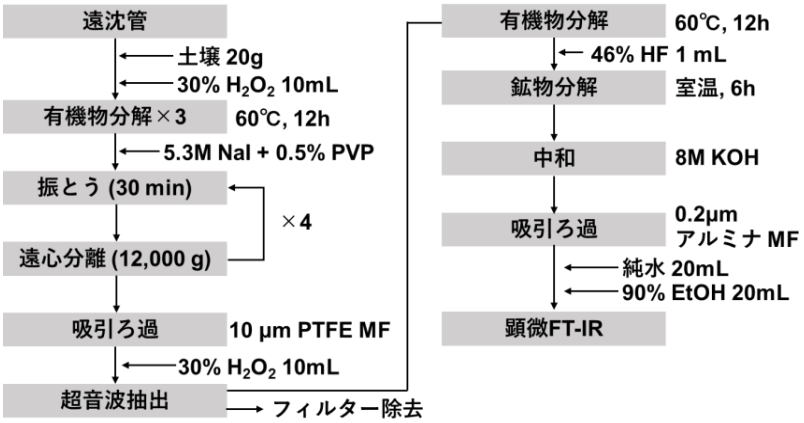

図1.5　土壌中マイクロプラスチックの分析フロー

水田における流出量のモニタリングは石川県立大学付属実験農場の被覆肥料連用水田および石川県内において実際に水稲栽培が行われている圃場にて行った。代かきの5日前より各圃場の排水口に孔径1 mm程度の網を設置し、定期的に網に捕集された試料を回収した。回収した試料を実験室に持ち帰り、2 mmおよび4 mmの篩を用いて粗大な植物残渣や土壌を除去した。除去しきれなかった植物残渣は過酸化水素を用いて分解した。過酸化水素処理によって分解しきれなかった植物残渣や土壌粒子などの夾雑物を除去した後、被膜殻の数を計測し、流出率（流出粒子数 / 施用粒子数×100）および1 m^2当たりの流出量（原単位）を算出した。

課題２．農業用水を介した海洋への移行プロセスの評価

水田から被膜殻の海域への輸送量を評価するため、七か用水の河口にてモニタリング調査を実施した。七か用水が加越海岸に直接流れ込んでいる地点は全部で8箇所あり、その中でも本調査では大川の河口を試料採取地点とした。

大川における被膜殻濃度の季節変動および日変動を明らかにするため、定期観測と集中観測を実施した。定期観測は4月16日から9月29日まで定期的に試料を採取した。4月16日から6月9日の期間は3日に1度、それ以降は2週間に1度の頻度で試料を採取した。定期観測は採取日の11時～12時の間に、5分間の採取を連続して5回実施した。なお、9月29日以降は河川の流量が極端に減少したため試料採取ができなかった。集中観測は2021年4月24日9時から26日18時にかけて30分毎に試料を採取した。試料の採取にはデジタルろ水計をセットしたプランクトンネットを使用した。橋の上から河川の流心付近にプランクトンネットを吊るし、試料を採取した。採取した試料は実験室に持ち帰り、60℃で2日間乾燥させた。乾燥後、試料全体の重量を測定し、それらに含まれる被膜殻の数と重量を測定した。

次いで落差工や植生による被膜殻の捕捉効果の評価を行うため、着色した被膜殻によるトレーサー実験を実施した。集中観測の期間、試料採取地から上流3.8 kmの地点にて赤色もしくは黄色に着色した

被膜殻（トレーサー）を約90 g放流した（放流日時：赤色 4月24日14時52分、黄色 4月25日17時3分）。集中観測の間、プランクトンネットに回収された着色被膜殻の数を計測し、被膜殻の流下速度や落差工などによる遅延の効果を評価した。

課題３．海岸線におけるマイクロプラスチックの実態調査

陸域から海域への被膜殻の輸送量を調査した地点（大川の河口）付近の海岸線をモニタリングサイトに設定し、定点調査を実施した。サンプリング頻度は2 回/月である。定点にてコドラートを5 mおきに3～5地点設置し、堆積物と表層5 cmの海岸砂を回収した。さらに、3月（非灌漑期）と5月（灌漑期）に七か用水の河口8地点全てにおいて定点調査と同様のコドラート調査を実施した（多点調査）。なお、この多点調査では日変動の影響を避けるため、一日で8地点を調査した。

実験室に持ち帰った試料から1 mm～4 mmの粒子を篩により選別し、その中から目視によりプラスチック粒子を取り出した。プラスチック粒子を形態的特徴から硬質プラスチック、発泡スチロール、フィルム、人工芝、被膜殻に分類し、それぞれスキャンスナップを用いて撮影した。それらの粒子数をImage J Fijiの粒子数解析ツールを用いて計測した。

日本国内29地点の海岸で被覆肥料に由来するマイクロプラスチックのサンプリングを実施した。砂浜の堆積物中から白色もしくは黄色の2～5 mm程度の中空状球体をピンセットで採取し、ガラス製のバイアルで保管した。採取した試料は、60℃で2日間以上乾燥させた後、FT-IRを用いてそれらの材質を同定した。測定は全反射測定法で行い、測定波数は500～4000 cm^{-1}、積算回数は10回とした。最後に海岸にて採取した被膜殻に含まれる各種元素濃度を測定した。

５．研究成果

５－１．成果の概要

課題１．水田におけるマイクロプラスチックの蓄積・変質・流出量の評価

（１）農耕地における被膜殻の蓄積量評価

図1.8に19地点の調査圃場における被膜殻濃度を示す。調査対象19地点の濃度は6～369 mg/kgであり、中央値は144 mg/kgだった。これらの濃度はこれまで報告されている土壌中のマイクロプラスチック濃度と比較して高かった。土壌中の被膜殻濃度は土壌の物理化学性や環境要因との相関は無く、これまでの被覆肥料の施用量に依存している可能性がある。

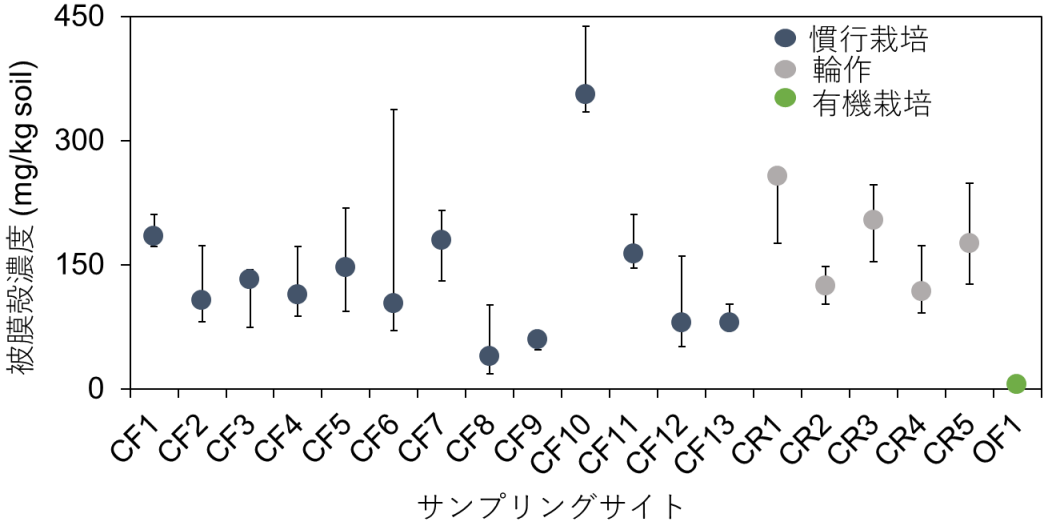

図1.8　サンプリングサイトにおける土壌中の被膜殻濃度

土地利用別に土壌中濃度の平均値を算出したところ、慣行栽培では151 mg/kg、輪作では155 mg/kg、

有機栽培では6.2 mg/kgだった。輪作では慣行栽培より被覆肥料を10 aあたり年間4 kg多く投入するので、輪作を行っている圃場の方が土壌中の被膜殻濃度が高くなると予想されたが、慣行栽培と輪作の間に有意差は無かった（$p = 0.442$）。調査対象地において輪作が本格的に始まったのは約10年前であり、10年程度では土壌中濃度に差が出なかったと考えられる。一方、これまで被覆肥料を一度も施用したことがない有機栽培圃場からも被膜殻が検出された。これは、七か用水が用排水兼用の農業用水であり、他の圃場から排出された被膜殻が農業用水に混入するためと考えられる。

表層（0-10 cm）と次表層（10-15 cm）における被膜殻の濃度を比較した。表層における被膜殻濃度は7～375 mg/kg（平均 147 ± 81 mg/kg, 中央値 131 mg/kg）、次表層は4～362 mg/kg（平均 139 ± 78 mg/kg、中央値 136 mg/kg）であり、表層の濃度の方が有意に高かった（$p < 0.05$）。これは、農業機械によって深さ15 cmまで均等に耕起されていないことが要因として考えられる。

（２）水田における収支のモニタリング

水稲の慣行栽培を実施している圃場において被膜殻の流出量が最も多かったのは代かきと移植時の強制落水のタイミングであり、年間流出量の6～9割が流出した。梅雨や台風など降水量が多い時期にも被膜殻が流出していることが確認されたものの、非灌漑期は被膜殻の流出がほとんど無かった。一方、V溝直播栽培を実施している圃場では、非灌漑期においても、冬季の代かきによって通常の代かき時と同等量の被膜殻流出していた。

図1.9に石川県立大学付属農場における被膜殻の日流出量を示す。石川県立大学付属農場の水田において、最も被膜殻の流出量が多かったのは代かき時であり、それ以外には強制落水時や、大雨による水位上昇時に流出していた。なお、中干し期以降は堰板を外していたため、水田に水が入るたび、水と共に被膜殻が流出したが、その量は代かきや強制落水時に比べるとわずかな量だった。

流出した被膜殻の色からそれらの施用時期を推定した。その結果、その年流出した被膜殻の74%が2年以上前に施用した被覆肥料に由来する被膜殻であり、25%が昨年度施用した被覆肥料に由来した。その年に施用した被覆肥料に由来する被膜殻の流出量は全体の1%程度だった。したがって、被膜殻の多くは土壌に2年以上蓄積してから、代かきによって水面に浮上し水と共に系外に流出していることが明らかとなった。

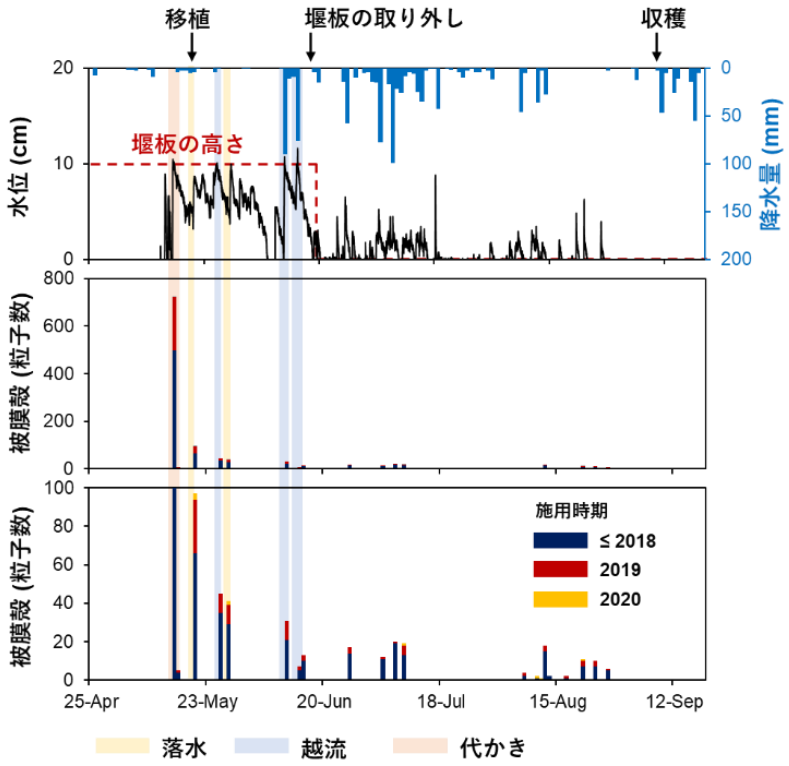

図1.9 石川県立大学付属農場における被膜殻の日流出量

本研究で得られた結果に農林水産省の実態調査の結果を併せることで16地点の圃場における流出原単位（個/m^2）および流出率（%）が得られた。流出量は4～96個/m^2（中央値：19 個/m^2）、流出率は1～28%（中央値：7.1%）だった。一方、流入量は被覆肥料の施用として228～413 個/m^2/year、用水からの流入が3 個/m^2/yearであり、流出量に比べて流入量の方が多かった。したがって、施用された被膜殻の多くは土壌に蓄積していることが明らかとなった（図1.10）。一方、被膜殻の流出率は1～28%と幅

があり、被膜殻が流出しやすい圃場と、流出しにくい圃場が存在することが示唆された。被膜殻が流出しやすい圃場の条件としては、（１）代かき時の水位が高い、（２）主風向の風下に排水口が存在することが挙げられる。これは、代かき時の水位が高いことにより、浮上した被膜殻が系外へ流出しやすくなることに加え、代かきによって水面に浮上した植物残渣や被膜殻が風によって排水口付近に集積し、系外へ流出しやすくためである。なお、七か用水は用排水兼用であるため、用水から被膜殻が流入していたが、用排水兼用ではない圃場では用水からの流入が無いと思われる。

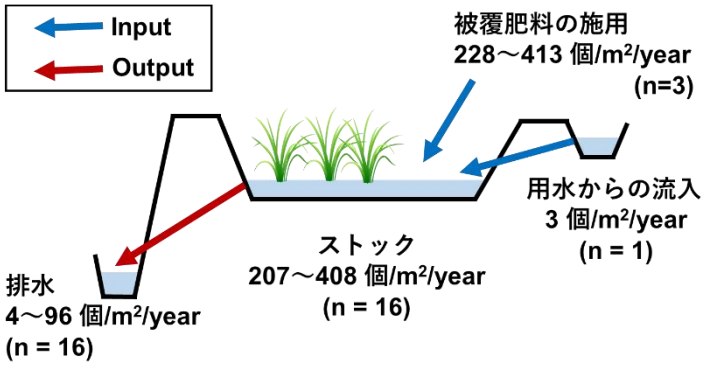

図1.10 水田おける被膜殻の収支

（３）土壌中の2次マイクロプラスチックの計測

顕微FTIRで同定されたポリマーは、ポリエチレンが最も多く（27%）、次いでエチレン酢酸ビニル（16%）、ポリウレタン（15%）、ポリプロピレン（12%）、ポリ塩化ビニル（7%）、ポリエチレンテレフタレート（6%）、ポリスチレン（6%）、ポリアミド（4%）、ポリアクリロニトリル（3%）、ポリメタクリル酸メチル（3%）、アクリレート・スチレン・アクリロニトリル（1%）の順だった。それらの粒子径は20-100μmが64%と最も多く、粒径が大きくなるにつれて減少した。

マイクロプラスチックの形態はフラグメントが大半を占め、繊維状、球状やフィルム状のマイクロプラスチックも存在した。繊維状のマイクロプラスチックの材質はポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレートおよびポリアクリロニトリルの3種類だった。ポリプロピレン製の繊維は農業資材として使用されており、ポリエチレンテレフタレートやポリアクリロニトリルの繊維状マイクロプラスチックは衣類に由来すると考えられた。球状のマイクロプラスチックの材質はポリウレタンやポリアミドが多く、粒径は20～30μm程度だった。それらの一部には破裂した形跡もあったため、農薬や柔軟剤のマイクロカプセル剤に由来する可能性がある。

供試土壌から分離したマイクロプラスチックの中には、ポリエチレンの白色の断片が存在した（図1.12）。形状や色から、被膜殻に由来する二次マイクロプラスチックと考えられた。実際に、土壌を採取した水田では15年以上被覆肥料が連用されており、被膜殻が57.6 mg/kg蓄積している。蓄積している被膜殻の一部が耕起によって微細化し、ポリエチレン製の二次マイクロプラスチックとして検出された可能性がある。なお、FT-IRスペクトルや形態観察から、被膜殻由来の二次マイクロプラスチックと、その他の白色のポリエチレン二次マイクロプラスチックを分別することはできない。そのため、今回の結果は被膜殻から二次マイクロプラスチックが生成した直接的な証明となっていない。ただし、今回検出されたマイクロプラスチック全体に占めるポリエチレンの割合は3割程度であり、仮にそれらが全て被覆肥料に由来したとしても、それら以外の発生源の寄与が大部分を占めている。したがって、今回の結果から、被膜殻の微細化による二次マイクロプラスチックの発生は起きている可能性があるものの、土壌中マイクロプラスチック全体からみるとその寄与は小さいと思われる。一方、被膜殻の崩壊性を高めた被覆肥料が開発されており、今後それらが普及することで被膜殻に由来する二次マイクロプラ

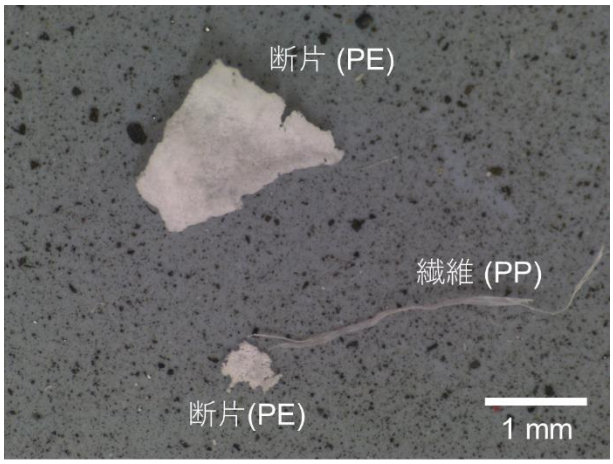

図1.12 白色のマイクロプラスチック

スチックの発生は増加する可能性がある。

課題２．農業用水を介した海洋への移行プロセスの評価

（１）輸送量のモニタリング

大川における被膜殻濃度は4月23日から5月14日の間、高濃度で推移したが（中央値49.2 mg/m^3）、5月25日以降、濃度が急速に低下し、6月以降はほとんど検出されなかった（図1.13）。したがって、本研究サイトにおいて、被膜殻の海域への移行は4月中旬から5月下旬の約1カ月半に集中していることとなる。この期間は水田からの流出時期とほぼ一致しており、水田から流出した被膜殻が比較的短時間で海域まで到達していることが示唆される。

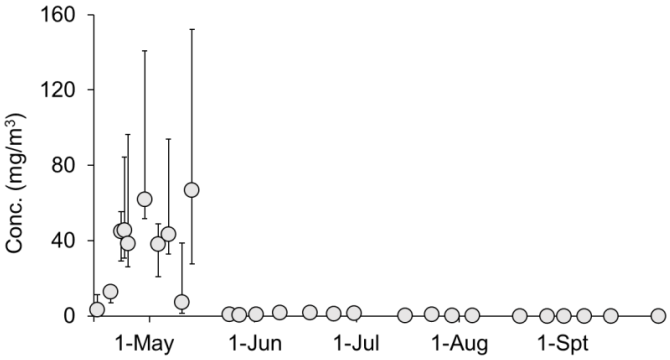

図1.13 大川における被膜殻濃度の季節変動

図1.14に大川における集中観測の結果を示す。被膜殻の濃度は時間変動が大きく（最大値：783 mg/m^3、最小値：7 mg/m^3）、その差は110倍に達した。したがって、河川水中のマイクロプラスチック濃度を調べる際には、この大きな時間変動も考慮して試料採取を行う必要がある。

日中（6:00～18:00）と夜間（18:00～6:00）の濃度を比較したところ、日中の濃度の方が高かった（$p<0.01$）。被膜殻は代かきや強制落水など人為的な作業により流出するため、日中の方が高濃度になったと考えられる。ただし、夜間においても高濃度となる時間帯があることから、（１）夜間においても水田から流出している、あるいは（２）上流においてに中に流出した被膜殻が時間をかけて流下している可能性が考えられた。

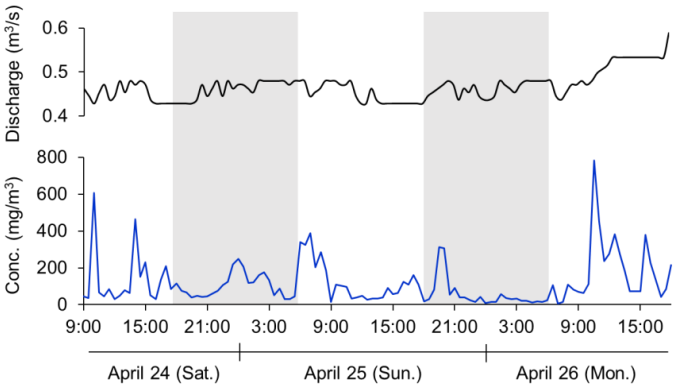

図1.14 大川の流量と被膜殻濃度の日変動

河川の横断面において被膜殻の濃度分布は不均一であり、流心の表層付近が高濃度であることが観察された。したがって、今回得られた濃度に流量を乗じて流下負荷量を算出すると、過大評価する可能性が高い。さらに、上述のとおり、被膜殻の河川水中濃度は季節変動と時間変動が大きい。そのため、L-Q式による負荷量の解析は行わなかった。今後、河川断面内での被膜殻の濃度分布に関するモデルを作成し、流下負荷量を求める手法を開発する必要がある。

（２）落差工の影響評価

集中観測の期間、トレーサーの大部分が放流してから2時間後に回収された。したがって、集中観測期間における被膜殻の流下速度は2 km/hとなる。取水口から採取地点までの流路長は16 kmであり、流下速度が常に一定と仮定すると、最上流から試料採取地点（海域）までは最低8時間要する。したがって、夜中に回収した被膜殻は扇頂付近の水田から流出したものも含まれている可能性がある。なお、放流して2日後に回収されるトレーサーも存在した。そのため、流下途中で落差工や植生にトラップされ、遅延した可能性がある。しかし、それらの遅延したトレーサーの量は僅かであり、大部分はトラップされずに流下した。七か用水のように動水勾配が大きく三面コンクリートの水路では、水田から流出した後は速やかに海域へ移行するものと考えられる。この結果は、定期観測の結果と整合性がとれる。

課題３．海岸線におけるマイクロプラスチックの実態調査

（１）石川県の海岸における実態調査

図1.15に定点モニタリングの結果を示す。汀線におけるマイクロプラスチックの密度は明瞭な季節変動があった。4月から6月にかけて被膜殻の密度が上昇し、7月から9月にかけて徐々に低下し、10月以降は低密度で推移した。これらの明瞭な季節変動は被膜殻の堆積量の大小によって生じていた。マイクロプラスチック全体に占める被膜殻の割合は灌漑期に高く（70～90%）、非灌漑期に低下した。12月から3月にかけてはほとんど堆積していなかった。これらの結果は、定点モニタリングを実施している地点だけではなく、他7地点のサンプリングサイトでも同様にみられた。以上のことから、本調査地のような水稲栽培が盛んな地域は水田が海洋マイクロプラスチックの主要な発生源といえる。

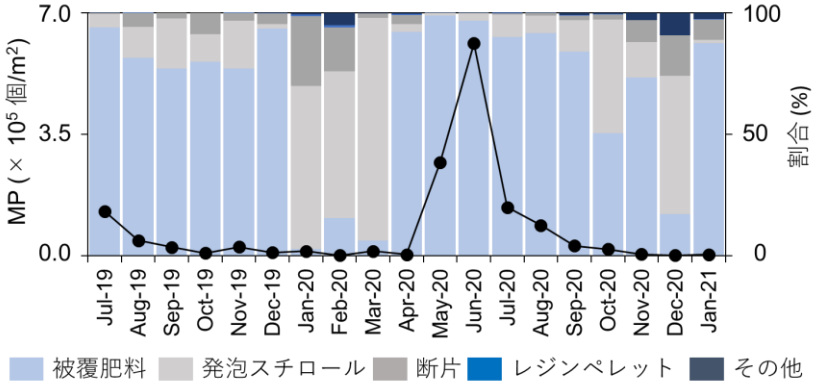

図1.15 石川県の海岸線における定点観測の結果

各流域の水田面積と汀線における被膜殻の密度を比較したところ、両者の間に相関は無かった。したがって、汀線における被膜殻の密度は河川からの総負荷量だけではなく、その地点の堆積環境（砂浜の傾斜、砂の粒度など）にも影響を受けていることが推察された。なお、汀線に堆積している被膜殻の密度は時空間変動が大きく、コドラートの設置位置だけでも誤差が生じる。したがって、今後はドローンなどを利用した広域モニタリング手法を開発する必要がある。

（２）日本全国の海岸における実態調査

被覆肥料を製造している会社によって被膜殻に使用するポリマーが異なり、海岸で回収した被膜殻は大きく分けてポリエチレンとポリウレタンの2種類が存在した。海岸で回収した被膜殻一粒当たりの質量はポリエチレンで0.003170 g、ポリウレタンで0.002238 gであり、ポリエチレンの方が約1.4倍重かった。

全国の海岸で回収した被膜殻を素材別に集計したところ、全体の71.5%がポリエチレン、28.2%がポリウレタン、0.3%が分類不可だった。石川県ではほとんどがポリエチレンだったが、関西地方ではポリウレタンが比較的多く、琵琶湖ではポリウレタンが9割以上だった。これらの地域差は各県における肥料メーカーのシェアを反映していると考えられる。

酸分解液に含まれる元素濃度を測定したところ、ポリエチレンではMgが最も濃度が高かった。その濃度はポリウレタンと比較すると、18倍高かった。ポリエチレン製の被膜殻には無機フィラーとしてタルクが含まれており、それらからMgが溶出したと考えられる。その他にはAlやFeの濃度が高く、被膜殻に付着していた土壌粒子や無機フィラーの影響と考えられる。

地殻中のAl濃度を基準に各元素のエンリッチメントファクター（EF）を材質別に算出した。その結果、ポリエチレンではほとんどの元素が1以下であり、EFの中央値が2以上となったのはAs、Mg、Pであった。一方、ポリウレタンではAs、Cd、La、Ce、Pb、Bi、Fe、Mn、Na、P、ZnのEF（中央値）が2以上となった。したがって、ポリエチレンよりもポリウレタンの方が各種元素を濃縮しやすい。なお、EFは採取地点間の差が大きく、東京湾で採取した試料のCd、NiおよびCrのEFは特に高かった。

５－２．環境政策等への貢献

＜行政等が既に活用した成果＞

1. 環境省：令和3年度プラスチックごみの海洋への流出実態把握等業務において、本研究成果である

水田からの被膜殻の流出率についての知見を提供し、プラスチックごみ排出インベントリの精度向上に貢献した。

2. 農林水産省：本課題の成果が被覆肥料の被膜殻の流出防止に向けた勉強会の資料に活用され、被膜殻の流出対策の策定や各地方農政局との情報共有に使用された。
3. 大阪府：おおさかプラスチック対策推進プラットフォームプラスチック流出対策分科会にて、被膜殻の流出防止対策と代替肥料を検討するための基礎資料として本課題の成果が活用された。
4. 福井県：肥料由来のマイクロプラスチックに関する研修会にて本課題の成果をまとめた資料が使用され、福井県におけるマイクロプラスチックの流出防止対策の策定や農家への指導に活用された。

＜行政等が活用することが見込まれる成果＞

1. 本研究は農耕地から流出する一次マイクロプラスチックと既に蓄積しているマイクロプラスチックを定量的に示すことができた。今後、マイクロプラスチックの実態把握のための調査や発生抑制対策の実施にあたり、その実施内容、実施場所・時期や取組の優先順位付け等を検討する際に本知見を活用することが見込まれる。
2. 土壌中マイクロプラスチックのサンプリング方法：図1.7に示したように、農用地において被膜殻は不均一に分布しており、これまで実施されてきたような土壌の採取方法では蓄積量を見誤る可能性がある。したがって、土壌中のマイクロプラスチックを調査する際は、圃場内でのばらつきを考慮したうえで最適なサンプルサイズを確保する必要がある。
3. 河川水中の被膜殻濃度と負荷量の推計：図1-13および図1-14に示したとおり、河川水中の被膜殻濃度は季節変動があり、日変動も非常に大きい。さらに、河川水中の被膜殻濃度は横断面に対して不均一に分布している。したがって、河川水中の被膜殻濃度と流量の関係から面源負荷量を算出する際は、それらの事項を考慮する必要がある。

５－３．研究目標の達成状況

課題１．水田におけるマイクロプラスチックの蓄積・変質・流出量の評価

図1.9に示したように、本研究は観測に基づき水田からの被膜殻の流出プロセスの解明や被膜殻の施用年代の推定に成功し、被膜殻の流出低減に資する情報を得ることができた。加えて、被膜殻の流出率と肥料の統計資料から国内総排出量と総蓄積量を推測し、水田からの流出抑制技術や既に蓄積した被膜殻の除染技術の開発が必要であることを明らかにした。また、被膜殻の微細化による二次マイクロプラスチックの発生については、これまで開発してきた微細なマイクロプラスチックを土壌から分離する手法を水田土壌に適用し、被膜殻由来と思われる白色のポリエチレン製の二次マイクロプラスチックが多数検出されることを示した。今後、これらの二次マイクロプラスチックの動態を明らかにする必要がある。上記のとおり本課題では当初の目標を全て達成したことに加え、予定していたより多くの圃場で流出と蓄積に関する情報が得られた。さらに、複数年にわたる被膜殻の流出プロセスを実測値として得る事ができたため、当初の目標を上回る成果をあげたと考える。

課題２．農業用水を介した海洋への移行プロセスの評価

図1.13に示したとおり、河川水中の被膜殻濃度は明瞭な季節変動があり、4月下旬から5月下旬に高く、それ以降は低濃度で推移することが明らかとなった。当初の予定になかったが、3日間にわたる集中観測を実施することにより、河川水中の被膜殻濃度の日変動も明らかにすることができた（図1.14）。トレーサーを用いた調査より、落差工や植生にトラップされ、流下が遅延する被膜殻が存在することが明らかとなった。ただし、落差工や植生にトラップされた被膜殻の量は僅かであり、大部分はトラップされずに流下していることも判明した。これらの結果は、調査地点の用水は三面コンクリートであり、流れも急であるため、用水路施設の影響が小さかったためと考えられた。以上のことから、本

課題では当初の目標を全て達成したことに加え、3日間の集中観測から河川水中の被膜殻濃度の日変動を明らかにすることができたため、当初の目標を上回る成果をあげることができたと考える。

課題３．海域におけるマイクロプラスチックの実態調査

図1.15に示した通り、海岸線におけるマイクロプラスチックの密度は4月下旬から6月上旬にかけて増大し、9月以降は顕著に減少した。4月～9月のマイクロプラスチック全体に占める被膜殻の割合は9割を超え、水稲栽培が盛んな地域では農地がマイクロプラスチックの発生源となっていることが明らかとなった。ただし、マイクロプラスチックの堆積密度は時空間変動が大きく、コドラート調査では限界があった。今後、ドローンなどを用いた広域調査法を確立し、より詳細な実態を明らかにする必要がある。以上のことから、本課題では海岸における被膜殻の実態を明らかにし、調査の問題点を抽出することができたため、目標を達成することができたと考える。

全体を通して本研究は当初設定した研究目標を全て達成し、課題１および２においては当初の目標を上回る成果をあげることができた。特に、（１）農用地における被膜殻の蓄積量と年間流出量の推定値と（２）被膜殻の流出時期については、農用地におけるプラスチックごみの管理方法を検討する上で基盤となる知見である。今後は、微細化した被膜殻の実態把握を進めるとともに、追加的な汚染を防ぐため環境分解性プラスチックを用いた被覆肥料の開発を進めるとともに、農用地から被膜殻の流出抑制技術と除染技術の確立が重要となるだろう。

６．研究成果の発表状況

６－１．査読付き論文

＜件数＞ 3件

＜主な査読付き論文＞

1. N. Katsumi, T. Kusube, S. Nagao and H. Okochi: Chemosphere, 279, 130574 (2021) （IF:7.086）. The input–output balance of microplastics derived from coated fertilizer in paddy fields and the timing of their discharge during the irrigation season.
2. N. Katsumi, T. Kusube, S. Nagao and H. Okochi: Chemosphere 267, 129185 (2021) （IF:7.086）. Accumulation of microcapsules derived from coated fertilizer in paddy fields.
3. N. Katsumi, T. Kusube, S. Nagao and H. Okochi: Marine Pollution Bulletin 161, 111727 (2019) （IF:5.553）. The role of coated fertilizer used in paddy fields as a source of microplastics in the marine environment

６－２．知的財産権

特に記載すべき事項はない。

６－３．その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	0件
その他誌上発表（査読なし）	0件
口頭発表（学会等）	6件
「国民との科学・技術対話」の実施	10件
マスコミ等への公表・報道等	0件

本研究に関連する受賞	2件

７．国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

８．研究者略歴

研究代表者

勝見　尚也

石川県立大学生物資源環境学部卒業、博士（生物資源環境学）、現在、石川県立大学生物資源環境学部環境科学科　准教授

Ⅱ．成果の詳細

Ⅱ－１　農耕地におけるマイクロプラスチックの発生と海域への移行に関する研究

石川県立大学
　生物資源環境学部環境科学科　勝見　尚也

［要旨］
被覆肥料に由来するマイクロプラスチック（被膜殻）が水田のみならず海域においても見出されることから、農用地が海洋マイクロプラスチックの発生源となっていることが指摘されてきたが、その実態は不明だった。そこで本研究は、環境中における被膜殻の実態把握を目的に、水田における被膜殻の蓄積・変質・流出量の評価、農業用水を介した海洋への移行プロセスの評価、海域における被膜殻の実態調査を実施した。汀線におけるマイクロプラスチックの密度は灌漑期に上昇し、非灌漑期になると低下した。灌漑期において、汀線のマイクロプラスチックの7～9割が被膜殻であり、水稲栽培が盛んな地域では水田がマイクロプラスチックの発生源の一つとなっていることが明らかになった。水田からの被膜殻の流出量が最も多いのは5月であり、代かきや移植時の強制落水が被膜殻の流出に関与していた。被膜殻の流入量と流出量を比較したところ、流入量に対する流出率は1～28%（中央値7.1%）であり、多くは水田土壌に蓄積していることが明らかとなった。実際に、水田土壌中には被膜殻が比較的高濃度で蓄積していた。今回得られた流出率をもとに日本国内の水田からの総流出量を試算したところ、年間435トン（中央値）の被膜殻が海域へ移行していることが推察された。Nihei et al. (2020) の試算 によると、日本の河川から海洋へ流出するマイクロプラスチックは年間1,310トン（中央値）であり、それらの値と比較すると、被覆肥料に由来するマイクロプラスチックだけで日本全体の3割に相当する量が水田から流出していることとなる。一方、既に農用地に蓄積している被膜殻は10万トン以上と推定され、今後それらが流出する可能性がある。したがって、今後海洋への追加的な汚染を防ぐためには水田からの被膜殻の流出抑制技術の開発が急務である。農業用水の河口において負荷量のモニタリングを実施したところ、被膜殻の海域への移行は4月中旬から5月下旬に集中しており、水田からの流出時期と一致した。今回得られた結果は一次マイクロプラスチックのみを測定対象としており、それらが微細化した二次マイクロプラスチックの実態を明らかにすることが今後の最重要課題である。

１．研究開発目的

マイクロプラスチック（直径5 mm以下のプラスチック）による海洋汚染は新たな環境問題の一つとして注目されている。これらの微小なプラスチックを海洋生物が誤食することで消化管が閉塞したり、吸着していた有害物質や可塑剤が体内に移行したりすることが懸念されている。海洋マイクロプラスチックの多くは陸域に発生源があるため、汚染拡大を防ぐためには陸域における各排出源への対策が効果的である。しかし、マイクロプラスチックは発生源が多岐にわたると考えられ、まずは各発生源の実態把握が必要である。本研究ではこれまで注目されず、ミッシングソースの一つになっている可能性の高い農業分野に着目した。

これまで農業生産現場ではビニールハウス、マルチ、サイレージラップ、被覆肥料（被覆肥料：肥料をプ

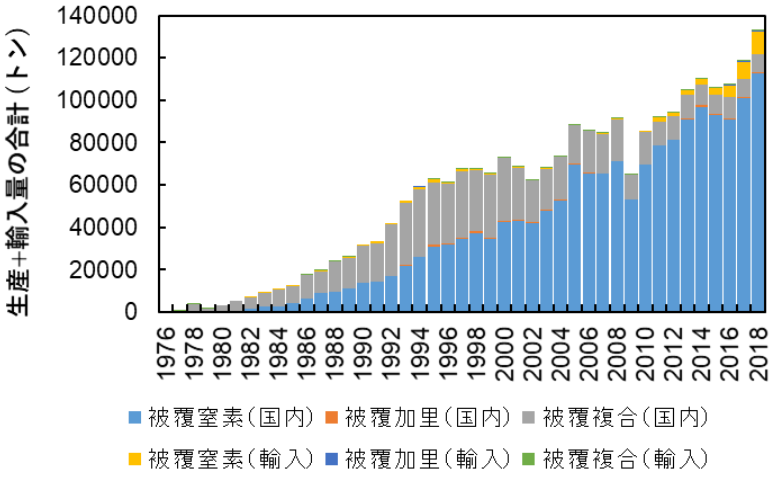

図1.1　日本国内における被覆肥料の生産と輸入量の推

ラスチックで被覆し、成分の溶出時間を制御した肥料）などのプラスチック製の農業資材を使用することで、高品質な農作物の生産、農作業の省力化、環境負荷低減が達成されてきた。その中でも被覆肥料は作物の生育に合わせて肥料成分の溶出を適切にコントロールできることから、（１）追肥の省略による農作業の省力化に加え、（２）硝酸塩の流出防止や温室効果ガスであるN_2Oの発生抑制など、農業生産の高度化に貢献しうる資材である。そのため、これまで水稲を始めとする多くの作物の栽培において被覆肥料が使用されるようになり、消費量は毎年増加を続け、2018年には日本国内における年間生産量と輸入量の合計は13万トンに達した（図1.1）。

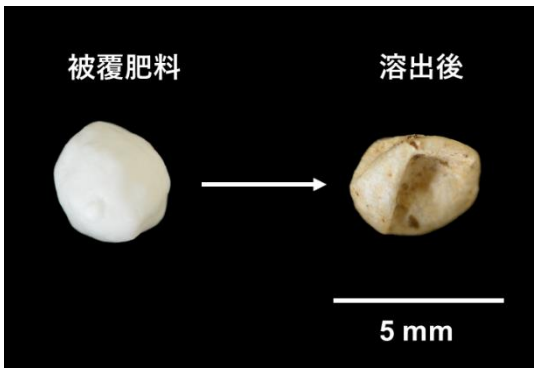

図1.2 被覆肥料と被膜殻

一方、被覆肥料を使用した後に発生するプラスチック製のマイクロカプセル（以降、被膜殻と略す）は使用後、ほとんど回収されることはない。水田の場合、海域と農業用水を介して繋がっているため、被膜殻は水田のみならず、海岸でも大量に見いだされている。なお、被膜殻の粒径は2～4 mm程度であることから、それらは環境中の一次マイクロプラスチックとなる（図1.2）。そこで、それらの汚染実態を明らかにするため、石川県の海岸線に堆積している粒子径が1 mm以上のマイクロプラスチックの調査を行った。その結果、汀線に堆積しているマイクロプラスチックの3～7割が被覆肥料由来のマイクロプラスチックだった。このことから、農耕地は海洋マイクロプラスチックの発生源となっているが示唆された。そこで、本研究ではこれまで予備調査を続けてきた被覆肥料由来のマイクロプラスチックを研究対象とし、陸域における動態および海岸における実態を明らかにする。これにより（1）陸域から海洋への移行挙動の理解と、（2）陸域から海域へのマイクロプラスチックの排出抑制につながる新規知見の取得を目指す。

２．研究目標

２－１　水田におけるマイクロカプセルの蓄積・変質・流出量の評価

水田におけるマイクロカプセルの滞留時間や流出時期とその規定要因を明らかにし、農耕地からの流出低減に資する情報を得るとともに、マイクロカプセルの微細化による二次マイクロプラスチックの発生を明らかにする。

２－２　農業用水を介した海洋への移行プロセスの評価

マイクロカプセルの輸送量の季節変化や河川流量との関係性を明らかにするとともに、落差工などの用水路設備が海域への移行に与える影響をフィールド調査とモデル実験から評価する。

２－３海域におけるマイクロカプセルの実態調査

令和元年度から3年度までの定点モニタリングと広域調査の結果をふまえ、海岸における被覆肥料由来のマイクロカプセルの実態を把握する。さらに、課題1と課題2で得られた情報を統合し、陸域から海域へのマイクロカプセルの移行プロセスモデルを提示する。

３．研究開発内容

３－１　水田におけるマイクロプラスチックの蓄積・変質・流出量の評価

（１）研究サイト

本研究は石川県の手取川扇状地を研究サイトとした。手取川扇状地は石川県白山市鶴来を扇頂部とした典型的な扇状地であり、その面積は1.77×10^8 m^2である。扇状地の42.6%が水田として利用され、その他は住宅地や道路として利用されている（図1.3）。扇頂部の標高は約80 mであり、扇状地の平均傾斜は1/150である。手取川扇状地には七か用水（主に手取川の右岸）と宮竹用水（主に手取川の左岸）が網目状に流れており、これらの用水から供給される灌漑水を使用して稲作が行われる。

（２）農耕地における被膜殻の蓄積量評価

水田における蓄積量を評価するため、まずは水田における土壌の採取方法を検討した。石川県立大学付属実験農場の被覆肥料連用水田（10m×12m）にて2 m × 2 mのグリッドを作成し、作土層に相当する表層から15 cmまでの土壌を30点採取した。採取には内径15 cmの自作コアサンプラーを用いた。採取後、水中篩別によってそれらに含まれる粒径1 mm以上の粒子を取り出した。それらを60℃で2日乾燥した後、試料の中から被膜殻のみを単離した。土壌に含まれる被膜殻数を計測し、それらの濃度分布をGISにより可視化した。その後、合理的なサンプリング数を検討した。

水田土壌における被膜殻の蓄積量の評価は石川県の手取川扇状地にて実施した。手取川扇状地では様々な営農が行われており（例えば、輪作、直播、有機栽培など）、農耕地の使用履歴や面積等によって被膜殻の蓄積量が変動することが予想される。そこで、実際に水稲栽培がおこなわれている水田において被膜殻の蓄積量、さらに、それらと土地利用形態や環境条件などの関係について精査した。調査対象の19地点の水田（水稲単作の慣行栽培13地点、輪作5地点、有機栽培1地点）において（図1.3）、圃場の四隅と中心の5地点で内径15cmの自作コアサンプラーを用いて作土層に相当する深さ15 cmまでの土壌を採取した。得られたコアサンプルを、0～10 cm（表層）と10～15 cm（次表層）に分割し、水中篩別によってそれらに含まれる粒径1 mm以上の粒子を取り出した。それらを60℃で2日乾燥した後、試料の中から被膜殻を単離した。その後、被膜殻の粒子数と質量を測定した。なお、調査対象地域における輪作では水稲→オオムギ→ダイズを2年間で栽培し（2年3作）、その後2年間は水稲栽培を行い、再度水稲→オオムギ→ダイズの2年3作を行う。なお、調査地域では水稲栽培だけではなく、オオムギとダイズの栽培にも被覆肥料が使用されている。そのため、水稲単作の慣行栽培に比べ、輪作では被覆肥料の投入量が4 kg/10 a/年多い。

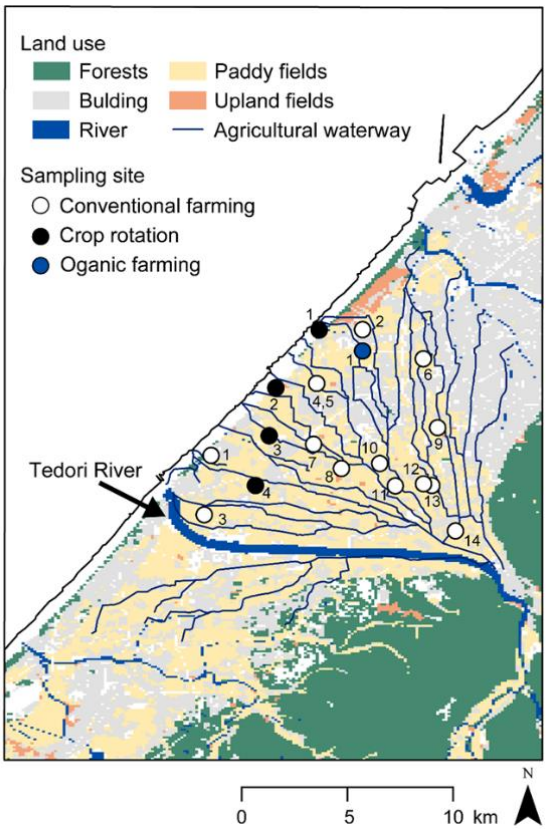

図1.3 石川県手取川扇状地と土壌試料採取地点

（３）水田における収支のモニタリング

モニタリングは石川県立大学付属実験農場の被覆肥料連用圃場（10 m×12 m）で行った（図1.4）。水田への流入量は施肥前に被覆肥料の粒子数を計測した。なお、施用年度を識別するため施用前に被覆肥料を染色した。2019年赤色に染色、2020年度は黄色に染色した被覆肥料を施用した。流出量を調査するため、水田の排水口に孔径1 mm程度のネットを設置した。毎日ネッ

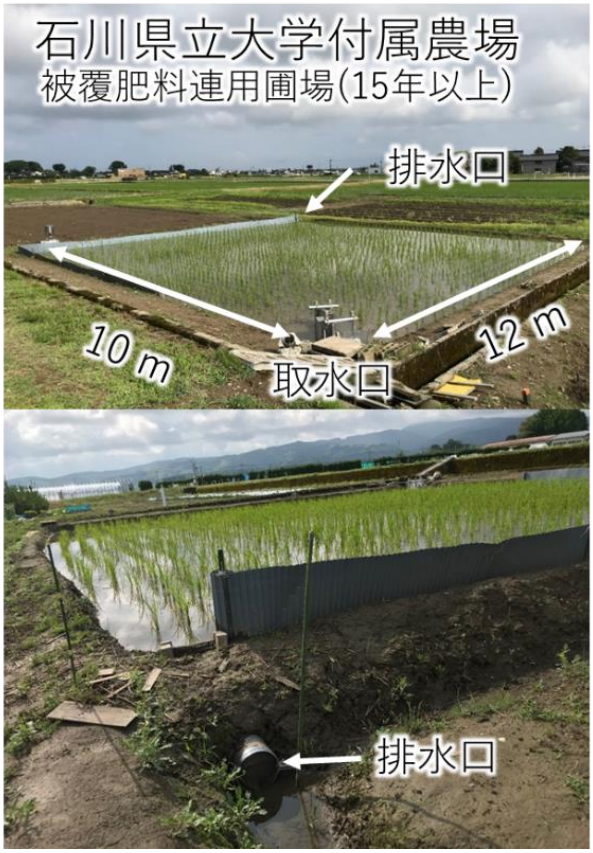

図1.4 調査圃場

トを回収し、捕集された被膜殻の数を計測した。回収された被膜殻が白色の場合は2018年度以前、赤色であれば2019年度、黄色であれば2020年度に施用した被覆肥料に由来することになる。加えて、水口に孔径1 mm程度のネットを取り付け、農業用水からの流入量も併せて計測した。

石川県内において実際に水稲栽培が行われてい水田（394 m^2～3534 m^2）において被膜殻の流出実態調査を行った。代かきの5日前より各圃場の排水口に孔径1 mm程度の網を設置し、網に捕集された試料を定期的に回収した。回収した試料を実験室に持ち帰り、2 mmと4 mmの篩を用いて粗大な植物残渣や土壌を除去した。除去しきれなかった植物残渣は過酸化水素を用いて分解した。過酸化水素処理によって分解しきれなかった植物残渣や土壌粒子などの夾雑物を除去した後、スキャンスナップで被膜殻の画像を取得した。ImageJ Fijiの粒子数解析ツールを用いて被膜殻の数を計測し、流出率（流出粒子数 / 施用粒子数×100）および1m^2当たりの流出量（原単位）を算出した。

（３）土壌中の2次マイクロプラスチックの計測

これまで科研費基盤Ｂの採択課題（20H04355）により、土壌や堆積物に含まれる100 μm以下の微小なマイクロプラスチックの定量手法を開発してきた（図1.5）。この手法を水田土壌に適用し、被膜殻に由来する二次マイクロプラスチックの有無を調査した。

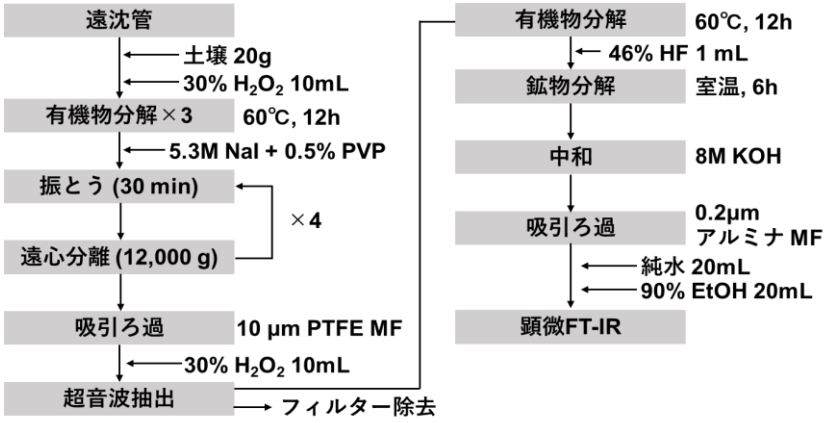

図1.5　土壌中マイクロプラスチックの分析フロー

土壌10 gに30%過酸化水素を10 mL加え60℃で一晩静置した。この操作を1試料につき3回繰り返した。その後、5.3 mol/L ヨウ化ナトリウム水溶液（比重1.6 g/cm^3）にポリビニルピロリドンを0.5%（w/v）添加した抽出液を100 mL加え、30分振とうした。振とう後、遠心分離（12,000 g×30 min）により上澄みを回収した。この抽出操作を1試料につき4回繰り返した。その後、上澄みに含まれるマイクロプラスチックをメンブランフィルターに捕集し、それらに過酸化水素およびフッ化水素酸を加えることで分析を妨害する有機物と鉱物を分解した。水酸化カリウムで中和した後、マイクロプラスチックをアルミナフィルター上に回収した。この手法の精度を添加回収試験で評価したところ、粒径125−150 μm、63−75 μmおよび27−45 μmのポリエチレン製マイクロプラスチックの回収率はそれぞれ98%、94%、90%だった。

アルミナフィルター上のマイクロプラスチックの定性・定量分析は顕微FT-IR（LUMOS II, Bruker）を使用した。マッピング測定には液体窒素冷却MCT検出器を用いた透過法を採用し、アパーチャーサイズを50 μm × 50 μm、測定間隔を49 μm、測定面積を100 mm^2とした（測定面積はアルミナフィルターの約20%）。なお、この条件での検出可能な最小粒子径は約30 μm、測定時間は2.5時間/試料である。マッピング後、フィルター上の粒子をランダムに300粒程度選択し、それらの粒子径、形態、色を記載した後、透過法によりそれらのFT-IRスペクトルを取得した。

３－２　農業用水を介した海洋への移行プロセスの評価

（１）輸送量のモニタリング

被膜殻の海域への輸送量を評価するため、七か用水の河口にてモニタリング調査を実施した。七か用水が加越海岸に流れ込んでいる地点は全部で8箇所あり、その中でも本調査では大川（4-5支線）が流れ込んでいる箇所を試料採取地点とした。この地点は試料採取に使用するプランクトンネットを流心に吊るすことができる橋があることに加え、七か用水土地改良区が大川の流量観測を行っている。さらに、この地点より先に農業用水の合流がないため、大川流域からの負荷を直接的に評価することができ

る。このような経緯を踏まえこの地点を本調査の対象地とした。

試料の採取にはデジタルろ水計（General Oceanic製）をセットしたプランクトンネット（離合社製簡易プランクトンネット、口径30 cm、メッシュサイズ1 mm）を橋の上から河川の流心付近に5分間吊るすことで、試料を回収した。なお、プランクトンネットのメッシュサイズは標準で100 μmであるが、そのような微細な目合では目詰まりが起こりやすい [1)]。そこで本研究では被膜殻の粒径を考慮し、メッシュサイズを1 mmとすることで目詰まりを防ぐことにした。

大川における被膜殻濃度の季節変動と日変動を明らかにするため、定期観測と集中観測を実施した。定期観測では、4月16日から9月29日まで一定間隔で試料を採取した。4月16日から6月9日の期間は3日に1度、それ以降は2週間に1度の頻度で試料を採取した。定期観測は採取日の11時～12時の間に、5分間の採取を連続して5回実施した。なお、9月29日以降は河川の流量が極端に減少したため試料採取ができなかった。集中観測は2021年4月24日9時から26日18時にかけて30分毎に試料を採取した。

採取した試料は実験室に持ち帰り、60℃で2日間乾燥させた。乾燥後、試料全体の重量を測定し、それらに含まれる被膜殻の数と重量を測定した。大川の流量は採取地点の水位からマニング式を用いて算出した。なお、水位データは手取川七か用水土地改良区から提供を受けた。

（２）落差工の影響評価

予備調査において、水田から流出した被膜殻は海域へ移行する過程で落差工や植生に捕捉され、海洋への流出が遅延することが示唆された。これらの捕捉効果は今後の流出モデルの開発において重要な因子となる。そこで落差工や植生による被膜殻の捕捉効果の評価を行うため、着色した被膜殻によるトレーサー実験を実施した。集中観測の期間、試料採取地から上流3.8 kmの地点にて赤色もしくは黄色に着色した被膜殻（トレーサー）を約90 g放流した（放流日時：赤色 4月24日14時52分、黄色 4月25日17時3分）。集中観測の間、プランクトンネットに回収された着色被膜殻の数を計測し、被膜殻の流下速度や落差工などによる遅延の効果を評価した。

３－３　海岸線におけるマイクロプラスチックの実態調査

（１）石川県の海岸における実態調査

七か用水が加越海岸へ流れ込んでいる地点は8箇所ある（図1.6）。そのうち、陸域から海域への被膜殻の輸送量を調査した地点（大川が加越海岸へ流れ込んでいる地点）をモニタリングサイトに設定し、定点調査を実施した（サンプリング頻度：2 回/月）。定点にてコドラートを3～5地点設置し（コドラート間の距離：5 m）、堆積物と表層5 cmの海岸砂を回収した。さらに、非灌漑期（3月）と灌漑期（5月）に七か用水が海洋に流れ込む8地点全てにおいて定点調査と同様のコドラート調査を実施した（多点調査）。なお、この多点調査では日変動の影響を避けるため、一日で8地点を調査した。

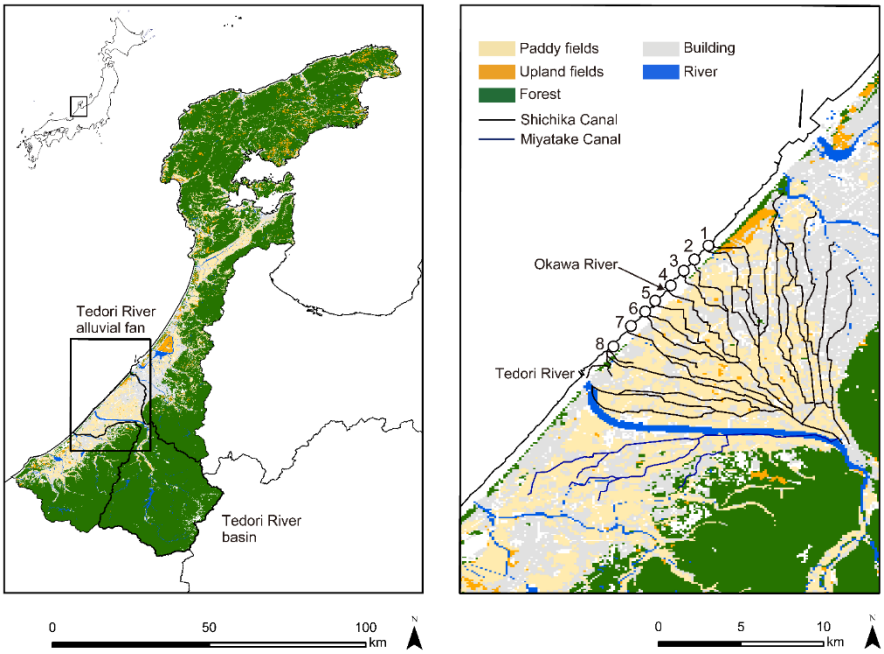

図1.6 調査地点のマップ

実験室に持ち帰った試料から1 mm～4 mmの粒子を篩により選別し、その中から目視によりプラスチ

ック粒子を取り出した。プラスチック粒子を形態的特徴から硬質プラスチック、発泡スチロール、フィルム、人工芝、被膜殻に分類し、それぞれスキャンスナップを用いて撮影した。それらの粒子数をImage J Fijiの粒子数解析ツールを用いて計測した。

（２）日本全国の海岸における実態調査

日本国内29地点の海岸で被覆肥料に由来するマイクロプラスチックのサンプリングを実施した。砂浜の堆積物中から白色もしくは黄色の2～5 mm程度の中空状球体をピンセットで採取し、ガラス製のバイアルで保管した。サンプリングサイト1地点につき粒子数12～1594個、質量0.0347～5.2262 gの被膜殻を採取した。採取した試料は、60℃で2日間以上乾燥させた。乾燥後、FT-IR（HORIBA　FT-720）を用いてそれらの材質を同定した。測定は全反射測定法で行い、測定波数は500～4000 cm^{-1}、積算回数は10回とした。

海岸にて採取した被膜殻に含まれる各種元素濃度を測定した。まず、15mL容PP製の遠沈管に被膜殻0.1 gと濃硝酸8ml加えた。その後、90℃で2時間加熱した、放冷後、溶液をPTFE製の0.2μmメンブランフィルターでろ過した。この溶液に含まれる主要元素（Al、Ca、Cr、Fe、K、Mg、Mn、Na、P、Si、Zn）および微量元素（Ti、Cr、Co、Ni、Cu、As、Rb、Sr、Y、Mo、Cd、Sn、Sb、Cs、La、Ce、Pb、Bi、Th）をICP-OESおよびICP-MSを用いて測定した。

４．結果及び考察

４－１　水田におけるマイクロプラスチックの蓄積・変質・流出量の評価

（１）農耕地における被膜殻の蓄積量評価

図1.7に水田における被膜殻の濃度分布を示す。被膜殻は水口付近では低濃度だったが、排水口付近に高濃度のホットスポットが存在した。これは、入水によって浮上した被膜殻が水の流れとともに排水口付近に集積したためと思われる。水田全体の被膜殻濃度の平均値を算出したところ、圃場の4隅と中央の計5地点の平均濃度とほぼ一致した。そのため、今後の土壌調査は1つの圃場につき4隅と中央の5点を採取することとした。

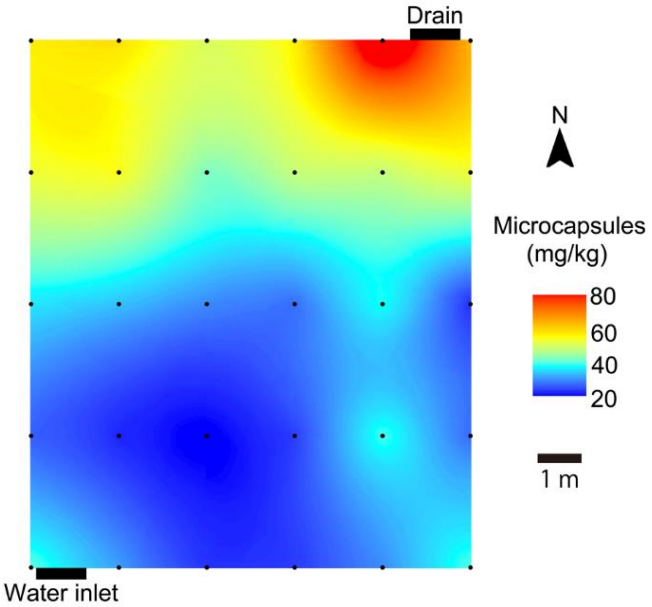

図1.7 水田土壌における被膜殻の分布

図1.8に19地点の調査圃場における被膜殻濃度を示す。調査対象19地点の濃度は6～369 mg/kgであり、中央値は144 mg/kgだった。これらの濃度は既報と比較して極めて高かった[2), 3), 4)]。土壌中の被膜殻濃度は土壌の物理化学性（粘土含量、シルト含量、砂含量、全炭素、全窒素、土壌pH、土壌EC）やその他の環境要因（圃場面積、標高など）と相関は無く、これまでの被覆肥料の施用量に依存していることが示唆された。

土地利用別に土壌中濃度を集計したところ、慣行栽培では151 mg/kg、輪作では155 mg/kg、有機栽培では6.2 mg/kgだった。輪作では慣行栽培より被覆肥料を10 aあたり年間4 kg多く投入するので、輪作を行っている圃場の方が土壌中の被膜殻濃度が高くなると予想された。しかし、慣行栽培と輪作の間に有意差は無かった（$p = 0.442$, U検定）。調査対象地において輪作が本格的に始まったのは約10年前であり、10年程度では土壌中濃度に差が出なかったと考えられる。一方、これまで被覆肥料を一度も施用したことがない有機栽培圃場からも被膜殻が検出された。これは、七か用水が用排水兼用の農業用水であり、他の圃場から排出された被膜殻が農業用水に混入するためと考えられる。

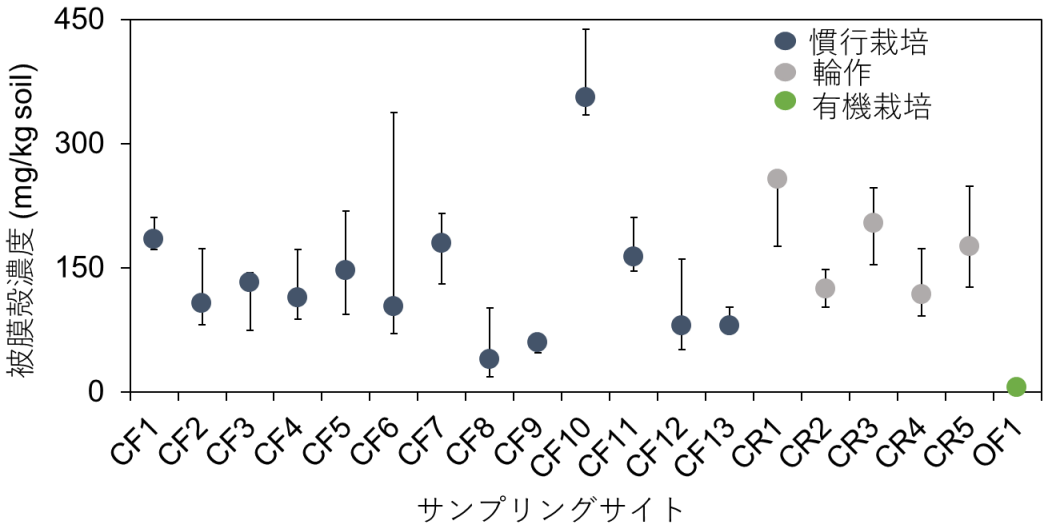

図1.8　サンプリングサイトにおける土壌中の被膜殻濃度

次に、表層（0-10 cm）と次表層（10-15 cm）における被膜殻の濃度を比較した。表層における被膜殻濃度は7～375 mg/kg（平均 147 ± 81 mg/kg, 中央値 131 mg/kg）、次表層は4～362 mg/kg（平均 139 ± 78 mg/kg、中央値 136 mg/kg）であり、表層の濃度の方が有意に高かった（Wilcoxonの符号順位検定, $p < 0.05$）。これは、農業機械によって深さ15 cmまで均等に耕起されていないことが要因として考えられる。

（２）水田における収支のモニタリング

慣行栽培を実施している圃場において被膜殻の流出量が最も多かったのは5月であり、年間流出量の6～9割に相当する量が流出した。一方、それらの圃場において、非灌漑期は被膜殻の流出がほとんど無かった。5月における被膜殻の流出の多くは代かきと移植時の強制落水によって生じていた。また、梅雨や台風など降水量が多い時期にも被膜殻が流出していることが確認された。一方、非灌漑期においても、V溝直播栽培を実施している圃場では、冬季の代かきによって通常の代かき時と同等量の被膜殻流出していた。

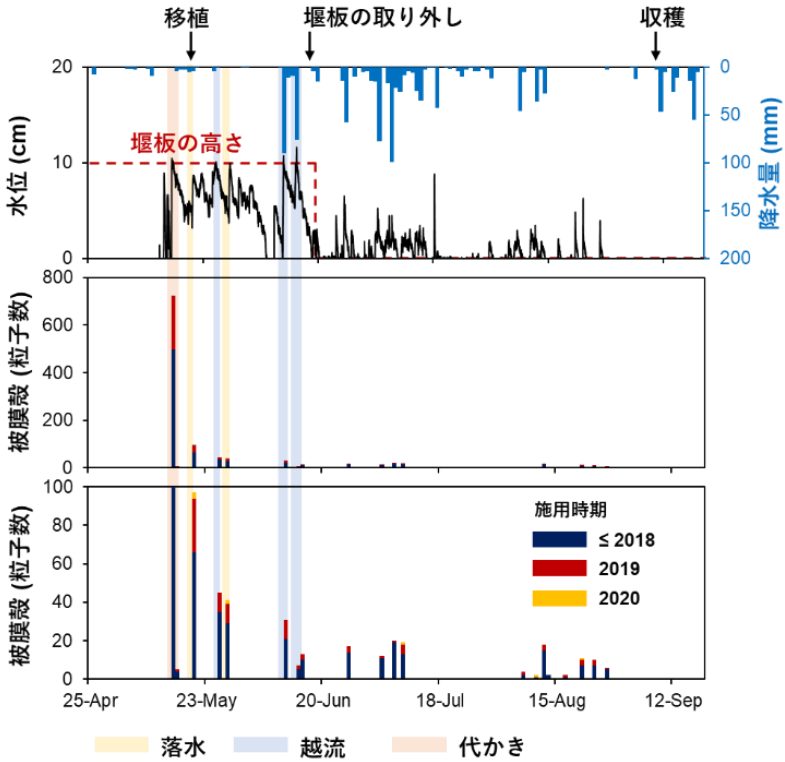

図1.9 被膜殻の日流出量

図1.9に石川県立大学付属農場における被膜殻の日流出量を示す。石川県立大学付属農場の水田において、最も被膜殻の流出量が多かったのは代かき時であり、それ以外には強制落水時や、大雨による水位上昇時に流出していた。なお、中干し期以降は堰板を外していたため、水田に水が入るたび、水と共に被膜殻が流出したが、その量は代かきや強制落水時に比べるとわずかな量だった。

流出した被膜殻の色からそれらの施用時期を推定した。その結果、その年流出した被膜殻の74%が2年以上前に施用した被覆肥料に由来する被膜殻であり、25%が昨年度施用した被覆肥料に由来した。その年に施用した被覆肥料に由来する被膜殻の流出量は全体の1%程度だった。したがって、被膜殻の多くは土壌に2年以上蓄積してから、代かきによって水面に浮上し水と共に系外に流出していることが明らかとなった。

本研究で得られた結果に農林水産省の実態調査の結果を併せることで16地点の圃場における流出原単位（個/m2）および流出率（%）が得られた。流出量は4～96個/m2（中央値：19 個m^2）、流出率は1～28%（中央値：7.1%）だった。一方、流入量は被覆肥料の施用として228～413 個/m^2/year、用水からの流入が3 個/m^2/yearであり、流出量に比べ流入量の方が多かった。したがって、施用された被膜殻の多くは土壌に蓄積していることが明らかとなった（図1.10）。一方、被膜殻の流出率は1～28%と幅があり、被膜殻が流出しやすい圃場と、流出しにくい圃場が存在することが示唆された。被膜殻が流出しやすい圃場の条件としては、（１）代かき時の水位が高い、（２）主風向の風下に排水口が存在することが挙げられる。これは、代かき時の水位が高いことにより、浮上した被膜殻が系外へ流出しやすくなることに加え、代かきによって水面に浮上した植物残渣や被膜殻が風によって排水口付近に集積し、系外へ流出しやすくためである。なお、七か用水は用排水兼用であるため、用水から被膜殻が流入していたが、用排水兼用ではない圃場では用水からの流入が無いと思われる。

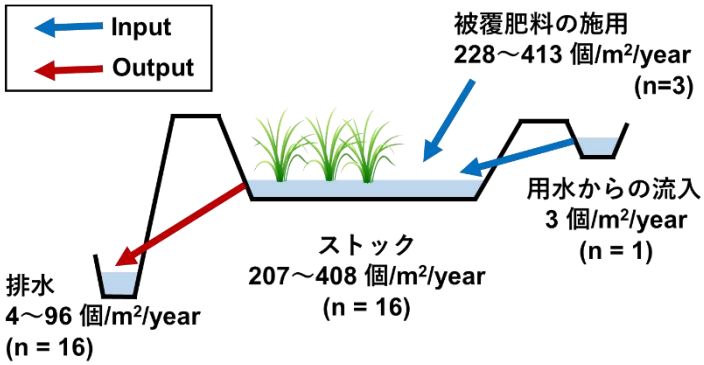

図1.10 水田おける被膜殻の収支

（３）土壌中の2次マイクロプラスチックの計測

図1.11に土壌から分離したマイクロプラスチックとそのFTIRスペクトルの一例を示す。顕微FTIRで同定されたポリマーは、ポリエチレンが最も多く（27%）、次いでエチレン酢酸ビニル（16%）、ポリウレタン（15%）、ポリプロピレン（12%）、ポリ塩化ビニル（7%）、ポリエチレンテレフタレート（6%）、ポリスチレン（6%）、ポリアミド（4%）、ポリアクリロニトリル（3%）、ポリメタクリル酸メチル（3%）、アクリレート・スチレン・アクリロニトリル（1%）の順だった。それらの粒子径は20-100μmが64%と最も多く、粒径が大きくなるにつれて減少した。

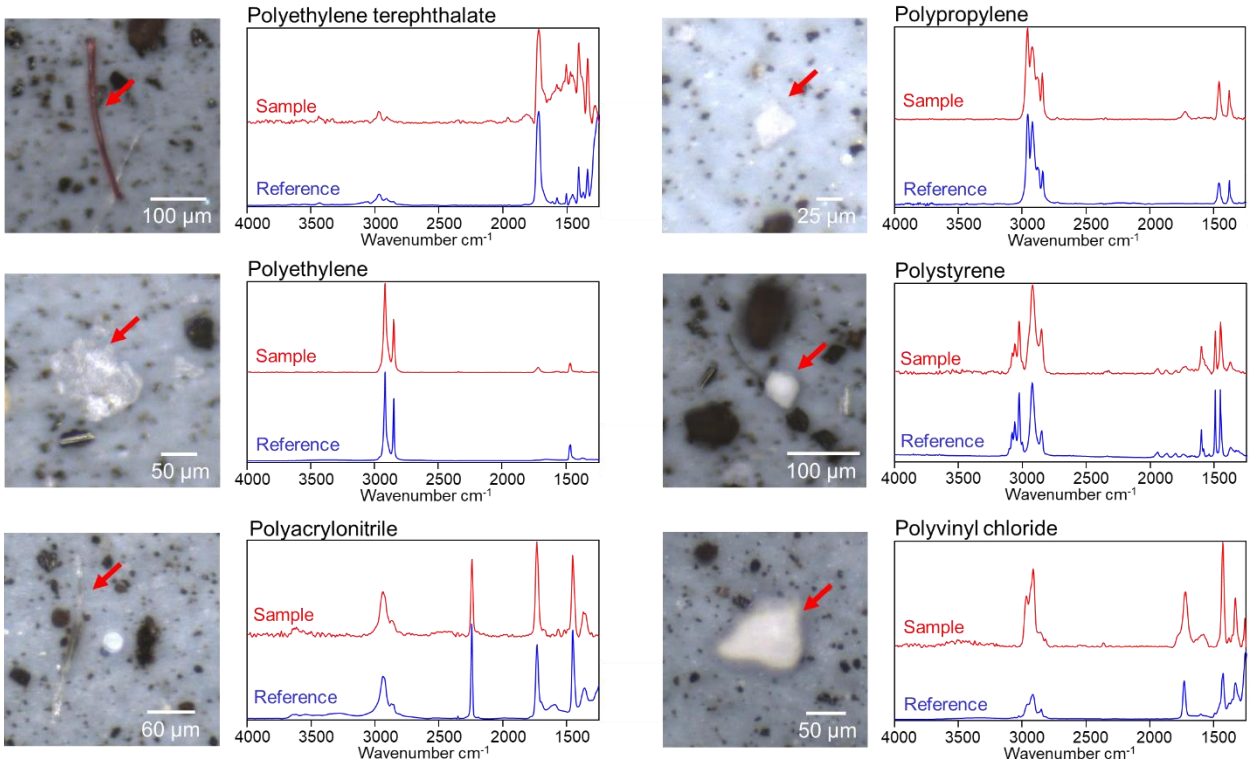

図1.11 水田土壌から分離されたマイクロプラスチックとそれらのFT-IRスペクトル

マイクロプラスチックの形態はフラグメントが大半を占め、繊維状、球状やフィルム状のマイクロプラスチックも存在した。繊維状のマイクロプラスチックの材質はポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレートおよびポリアクリロニトリルの3種類だった。ポリプロピレン製の繊維は農業資材として使用されており、ポリエチレンテレフタレートやポリアクリロニトリルの繊維状マイクロプラスチックは衣類に由来すると考えられた。球状のマイクロプラスチックの材質はポリウレタンやポリアミドが多く、粒径は20～30 µm程度だった。それらの一部には破裂した形跡もあったため、農薬や柔軟剤のマイクロカプセル剤に由来する可能性がある。

供試土壌から分離したマイクロプラスチックの中には、ポリエチレンの白色の断片が存在した（図1.12）。形状や色から、被膜殻に由来する二次マイクロプラスチックと思われた。実際に、土壌を採取した水田では15年以上被覆肥料が連用されており、被膜殻が57.6 mg kg^{-1}蓄積している[7]。蓄積している被膜殻の一部が耕起によって微細化し、ポリエチレン製の二次マイクロプラスチックとして検出された可能性がある。ただし、FT-IRスペクトルや形態観察から、被膜殻由来の二次マイクロプラスチックと、その他の白色のポリエチレン二次マイクロプラスチックを分別することはできない。そのため、本研究で得られた結果は、被膜殻から二次マイクロプラスチックが生成した証拠とはなっていない。ただし、今回検出されたマイクロプラスチック全体に占めるポリエチレンの割合は3割程度であり、仮にそれらが全て被覆肥料に由来したとしても、それら以外の発生源の寄与が大部分を占めている。したがっ

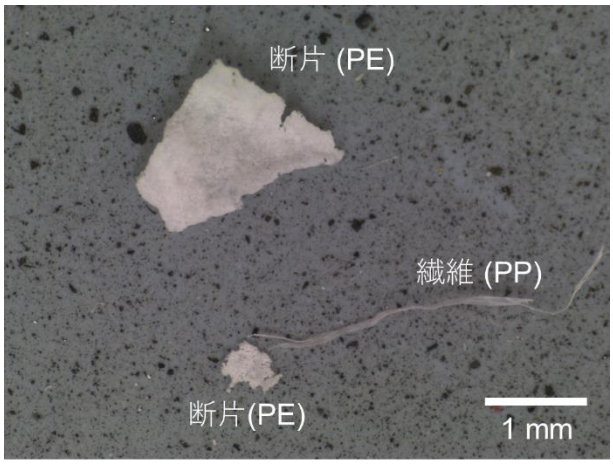

図1.12 白色のマイクロプラスチック

て、被膜殻の微細化による二次マイクロプラスチックの発生は起きている可能性があるものの、土壌中マイクロプラスチック全体からみるとその寄与は小さいと考えられる。なお、近年、被覆材に鉄錯体を混合することで被膜殻の崩壊性を高めた被覆肥料が開発されている。それらが普及することで被膜殻に由来する二次マイクロプラスチックの発生は増加する可能性がある。

フィルターの単位面積当たりのマイクロプラスチックの個数から土壌1kg当たりの濃度に換算したところ、本研究で使用した水田土壌に含まれるマイクロプラスチックの濃度は29,494 particle/kgだった。Zhou et al (2021) [8]は既往研究から各国の土壌中マイクロプラスチック濃度を集計したところ、平均値は4510 particle/kgと報告しており、それらの結果と比較して本研究で得られた濃度は高い。土壌中のマイクロプラスチックの起源は (1) 農業用マルチ [9]、(2) 有機質肥料やコンポスト [10]、(3) 下水汚泥[11]、(4) 被覆肥料 [7]、(5) 大気沈着 [12]が想定されている。今回の調査圃場では過去にプラスチックマルチや下水汚泥の使用が無いため、コンポスト、被覆肥料および大気沈着が主な起源となっていると考えられる。加えて、今回調査した圃場は水田であり、灌漑水にマイクロプラスチックが含まれていた場合は、それらも給源の一つとなりうる。今後、灌漑水に含まれるマイクロプラスチックを調査し、土壌中マイクロプラスチックとの関係性を調査する必要がある。

一方、マイクロプラスチックの抽出条件が異なる場合、土壌マイクロプラスチック濃度を直接比較することは困難となることもある。例えば、より高比重の溶液を使用し、微小なマイクロプラスチックまで分析すると、検出されるマイクロプラスチックの量は増加する [13), 14)] 。本研究では密度1.6のNaI溶液を使用し、微小なマイクロプラスチックまで分析したため、濃度が高くなったことが考えられる。さらに、本研究ではPVPを用いることで、微小なマイクロプラスチックをより効率よく抽出できため、従来の報告よりも濃度が高くなった可能性もある。

４－２　農業用水を介した海洋への移行プロセスの評価

（１）輸送量のモニタリング

大川における被膜殻濃度は4月23日から5月14日の間、高濃度で推移した（中央値 49.2 mg/m^3）。しかし、5月25日以降、濃度が急速に低下し、6月以降はほとんど検出されなかった（図1.13）。したがって、本研究サイトにおいて、被膜殻の海域への移行は4月中旬から5月下旬の約1カ月半に集中していることとなる。この期間は水田からの流出時期とほぼ一致しており、水田から流出した被膜殻が比較的短時間で海域まで到達していることが示唆された。なお、河川断面において被膜殻の濃度分布は不均一であり、流心の表層付近が高濃度であることが観察された。そのため、今回得られた濃度に流量を乗じて流下負荷量を算出すると、負荷量を過大評価する可能性が高い。そのため、本研究ではL-Q式による負荷量の解析は行わなかった。今後、河川断面内での被膜殻の濃度分布に関するモデルを作成し、流下負荷量を求める手法を開発する必要がある。

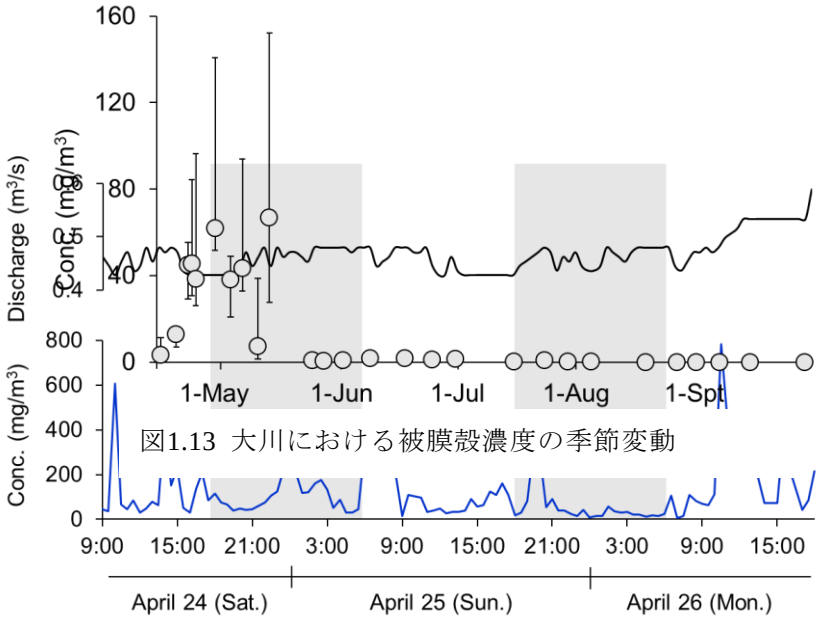

図1.13 大川における被膜殻濃度の季節変動

図1.14 大川における被膜殻の日変動

図1.14に大川における集中観測の結果を示す。被膜殻の濃度は時間変動が大きく（最大値：783 mg/m^3、最小値：7 mg/m^3）、その差は110倍に達した。日中（6:00～18:00）と夜間（18:00～6:00）の濃度を比較したところ、日中の濃度の方が高かった（$p<0.01$）。被膜殻は代かきや強制落水など人為的な

作業により流出するため、日中の方が高濃度になったと考えられる。ただし、夜間においても高濃度となる時間帯がある（例えば、4月24日から25日にかけて）。これは、① 夜間においても水田から流出している、あるいは、② 上流においてに中に流出した被膜殻が時間をかけて流下している可能性が考えられた。これらの可能性については次節にて述べる。

プランクトンネットに回収された試料の全重量とその中に含まれていた被膜殻の重量の間に正の相関があった。一方、定期観測と同様に被膜殻濃度と流量の間には相関が無かった。

（２）落差工の影響評価

集中観測の期間、トレーサーの大部分が放流してから2時間後に回収された。。一方、放流して2日後に回収されるトレーサーも存在した。そのため、流下途中で落差工や植生にトラップされ、流下が遅延した可能性がある。しかし、それらの遅延したトレーサーの量は僅かであり、大部分はトラップされずに流下した。七か用水のように動水勾配が大きく三面コンクリートの水路では、水田から流出した後は速やかに海域へ移行するものと考えられる。この結果は、定期観測の結果と整合性がとれる。

試料採取地点から上流3.8kmの地点からトレーサーを放流し、両日ともに大部分が2時間後に回収されたことから、集中観測期間における被膜殻の流下速度は2 km/hとなる。七か用水の取水口から採取地点までの流路長は16 kmである。仮に、七か用水における流下速度が常に一定と仮定すると、最上流から試料採取地点（海域）までは最低8時間要する。したがって、4月24日のように夜間に回収した被膜殻は扇頂付近の水田から流出したものも含まれている可能性がある。

４－３　海岸線におけるマイクロプラスチックの実態調査

（１）石川県の海岸における実態調査

図1.15に汀線における定点モニタリングの結果を示す。汀線におけるマイクロプラスチックの密度は明瞭な季節変動があった。4月から6月にかけて被膜殻の密度が上昇し、7月から9月にかけて徐々に低下し、10月以降は低密度で推移した。これらの明瞭な季節変動は被膜殻の堆積量の大小によって生じていた。マイクロプラスチック全体に占める被膜殻の割合は灌漑期に高く（70～90%）、非灌漑期に低下した。12月から3月にかけてはほとんど堆積していなかった。これらの傾向は、定点モニタリングを実施している地点だけではなく、他7地点のサンプリングサイトでも同様の現象がみられた。以上のことから、石川県手取川扇状地のような水稲栽培が盛んな地域は水田が海洋マイクロプラスチックの主要な排出源といえる。

次いで、多点調査において調査した河川の流域に占める水田面積と、その河口（汀線）における被膜殻の密度を比較したところ、両者の間に相関は無かった。したがって、汀線における被膜殻の密度は河川からの総負荷量だけではなく、その地点の堆積環境（砂浜の傾斜、砂の粒度など）にも影響を受けていることが推察された。なお、汀線に堆積している被膜殻の密度は時空間変動が大きく、調査日によって結果が多少変化し、コドラートの設置位置だけでも誤差が生じることが分かった。したがって、今後はドローンなどを利用した広域モニタリング手法を開発し、これまでの点の情報を面に広げ、被膜殻の堆積量の時空間変動を評価する必要がある。

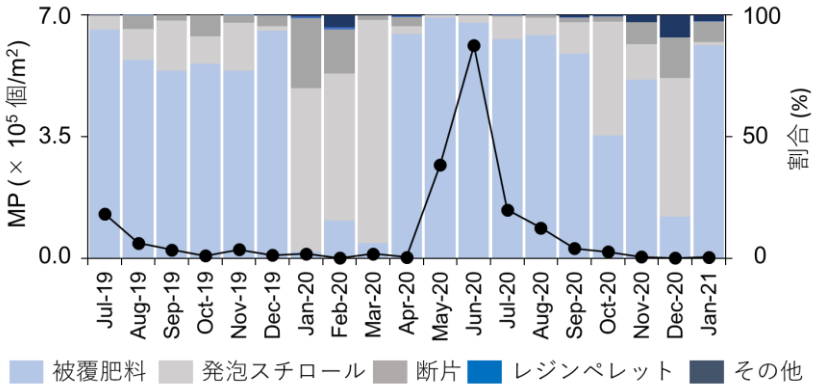

図1.15 石川県の海岸線における定点観測の結果

（２）日本全国の海岸における実態調査

被覆肥料を製造している会社によって被膜殻に使用するポリマーが異なり、海岸で回収した被膜殻

は大きく分けてポリエチレンとポリウレタンの2種類が存在した。海岸で回収した被膜殻一粒当たりの質量はポリエチレンで0.003170 g、ポリウレタンで0.002238 gであり、ポリエチレンの方が約1.4倍重かった。

全国の海岸で回収した被膜殻を素材別に集計したところ、全体の71.5%がポリエチレン、28.2%がポリウレタン、0.3%が分類不可だった（図1.16）。石川県ではほとんどがポリエチレンだったが、関西地方ではポリウレタンが比較的多く、琵琶湖ではポリウレタンが9割以上だった。これらの地域差は各県における肥料メーカーのシェアを反映していると考えられる。

硝酸抽出液に含まれる元素濃度を測定したところ、ポリエチレンではMgが最も濃度が高かった。その濃度はポリウレタンと比較すると、約18倍高かった。ポリエチレン製の被膜殻には無機フィラーとしてタルクが含まれており、それらからMgが溶出したと考えられる。その他にはAlやFeの濃度が高く、被膜殻に付着していた土壌粒子や無機フィラーの影響と考えられる。

次いで、地殻中のAl濃度を基準に各元素のエンリッチメントファクター（EF）を材質別に算出した。その結果、ポリエチレンではほとんどの元素が1以下であり、EFの中央値が2以上となったのはAs、Mg、Pであった。一方、ポリウレタンではAs、Cd、La、Ce、Pb、Bi、Fe、Mn、Na、P、ZnのEF（中央値）が2以上となった。したがって、ポリエチレンよりもポリウレタンの方が各種元素を濃縮しやすい。なお、EFは採取地点間の差が大きく、東京湾で採取した試料のEFは特に高かった（Cd 15, Ni 3.9, Cr 1.8）。

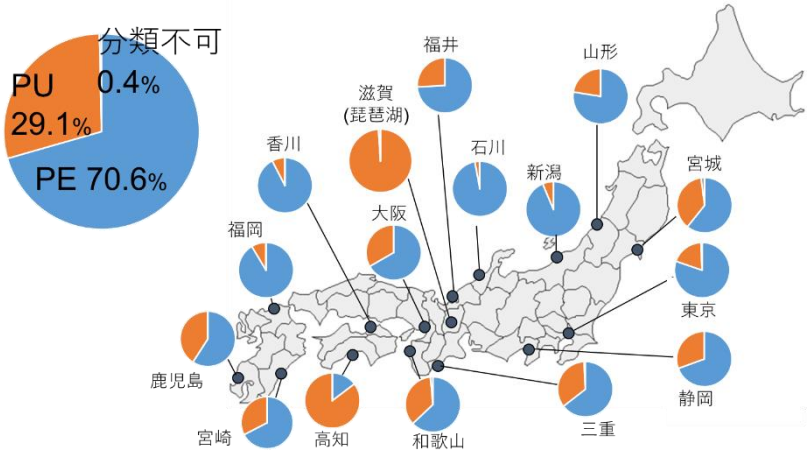

図1.16 日本全国の海岸で採取した被膜殻の材質

５．研究目標の達成状況

課題１ 水田におけるマイクロプラスチックの蓄積・変質・流出量の評価

目標	水田におけるマイクロカプセルの滞留時間や流出時期とその規定要因を明らかにし、農耕地からの流出低減に資する情報を得るとともに、マイクロカプセルの微細化による二次マイクロプラスチックの発生を明らかにする。
実施状況	（１）水田内での滞留時間 トレーサーを用いて流出した被膜殻の施用時期を求めたところ、全体の57%が4年以上前に施用したもの、28%が3年前のもの、15%が2年前のものが15%であり、その年の施用した被膜殻はほとんど流出しないことを明らかにした。 （２）流出量・流出時期・規定要因 施用量の7%に相当する被膜殻が流出した。流出時期は5月に最も多く、代かき、移植時の強制落水により年間流出量の6～9割が流出した。 （３）二次マイクロプラスチックの発生 土壌から微小なマイクロプラスチックを分離し、定性・定量する手法を開発した。本手法を水田土壌に適用したところ、白色のPE製の二次MPが検出された。ただし、それらが全体に占める割合は20%程度だった。
自己評価	目標を上回る成果をあげた （予定していたより多くの圃場で流出量に関する情報が得られたことに加え、複数年にわたる流出プロセスを実測値として得る事ができたため）

課題２ 農業用水を介した海洋への移行プロセスの評価

目標	マイクロカプセルの輸送量の季節変化や河川流量との関係性を明らかにするとともに、落差工などの用水路設備が海域への移行に与える影響をフィールド調査とモデル実験から評価する。
実施状況	（１）河川中濃度 河川中濃度は明瞭な季節変動があった。4月下旬から5月下旬に高く(中央値 49.2 ppm)、それ以降はほぼ0 ppmで推移した。ただし、河川中濃度は時空間変動が大きく、サンプリング手法を検討する必要がある。なお、河川流量と河川中濃度の間に関係性はみられなかった。 （２）用水路施設の影響 落差工にトラップされ、流下に遅延する被膜殻が存在した。ただし、量としては僅かであり、大部分はトラップされずに流下した。調査地の用水は三面コンクリートであり、流れも急であるため、用水路施設の影響は小さいと考えられた。
自己評価	目標を上回る成果をあげた （当初の計画に加え、高時間分解能で3日間の集中観測を実施できたため）

課題３ 海洋におけるマイクロプラスチックの実態調査

目標	令和元年度から3年度までの定点モニタリングと広域調査の結果をふまえ、海岸における被覆肥料由来のマイクロカプセルの実態を把握する。さらに、課題1と課題2で得られた情報を統合し、陸域から海域へのマイクロカプセルの移行プロセスモデルを提示する。
実施状況	（１）モニタリング 海岸線におけるMPs密度は4月下旬から6月上旬にかけて増大し、9月以降は顕著に減少した。4月～9月のMP全体に占める被膜殻の割合は9割を超え、水稲栽培が盛んな地域では農地がMPの発生源となっていることが明らかとなった。ただし、MPの堆積密度は時空間変動が大きく、コドラート調査では限界がある。今後、ドローンを用いた広域調査法を確立する必要がある。 （２）水田から海域への移行プロセス 昨年以前に施用した被膜殻が代かきによって水面に浮上し、排水と共に農業量水に流入する。水田からは5月が最も流出量が多く、そのことを反映して河川水中濃度も5月が高く、6月以降はほとんど検出されない。
自己評価	目標通りの成果をあげた

６．引用文献

1) Kataoka, T., Nihei, Y., Kudou, K., Hinata, H. 2019. Assessment of the sources and inflow processes of microplastics in the river environments of Japan. Environ. Pollut. 244, 958-965.
2) Scheurer, M., Bigalke, M., 2018.Microplastics in Swissfloodplain soils. Environ. Sci.Technol. 52, 3591–3598
3) Piehl, S., Leibner, A., Löder, M.G.J., Dris, R., Bogner, C., Laforsch C., 2018. Identification and quantification of macro- and microplastics on an agricultural farmland. Sci. Rep. 8, 17950.
4) Huang, Y., Liu, Q., Jia, W., Yan, C., and Wang, J. 2020. Agricultural plastic mulching as a source of microplastics in the terrestrial environment, Environ. Pollut., 260, 114096.
5) 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, 951.
6) Katsumi, N., Kusube, T., Nagao, S., Okochi, H. 2021. The input–output balance of microplastics derived from coated fertilizer in paddy fields and the timing of their discharge during the irrigation season. Chemosphere 279, 130574.
7) Katsumi, N., Kusube, T., Nagao, S., Okochi, H. 2021. Accumulation of microcapsules derived from coated fertilizer in paddy fields. Chemosphere 267, 129185.
8) Zhou, Y., He, G., Jiang, X., Yao, L., Ouyang, L., Liu, X., Liu、W., Liu, Y., 2021. Microplastic contamination is ubiquitous in riparian soils and strongly related to elevation, precipitation and population

density. J. Hazard Mater. 411 125178.

9) Huang, Y., Liu, Q., Jia, W., Yan, C., Wang, J., 2020. Agricultural plastic mulching as a source of microplastics in the terrestrial environment. Environ. Pollut. 260, 114096.
10) Watteau, F., Dignac, M.-F., Bouchard, A., Revallier, A., Houot, S., 2018. Microplastic Detection in soil amended with municipal solid waste composts as revealed by transmission electronic microscopy and pyrolysis/GC/MS. Frontiers in Sustainable Food Syst., 2, 81.
11) van den Berg, P., Huerta-Lwanga, E., Corradini, F., Geissen, V., 2020. Sewage sludge application as a vehicle for microplastics in eastern Spanish agricultural soils. Environ. Pollut. 261, 114198.
12) Allen, S., Allen, D., Phoenix, V.R., Le Roux, G., Jiménez, P.D., Simonneau, A., Binet, S., Galop, D., 2019. Atmospheric transport and deposition of microplastics in a remote mountain catchment. Nat. Geosci. 12, 339.
13) Li, Q., Wu, J., Zhao, X., Gu, X., Ji, R., 2019. Separation and identification of microplastics from soil and sewage sludge. Environ. Pollut., 254, 113076.
14) Constant, M., Billon, G., Breton, N., Alary, C., 2021. Extraction of microplastics from sediment matrices: Experimental comparative analysis. J. Hazard Mater. 420, 126571.

Ⅲ．研究成果の発表状況の詳細

（１）誌上発表

＜査読付き論文＞

1） N. Katsumi, T. Kusube, S. Nagao and H. Okochi: Chemosphere, 279, 130574 (2021) （IF:7.086）. The input–output balance of microplastics derived from coated fertilizer in paddy fields and the timing of their discharge during the irrigation season.

2) N. Katsumi, T. Kusube, S. Nagao and H. Okochi: Chemosphere 267, 129185 (2021) （IF:7.086）. Accumulation of microcapsules derived from coated fertilizer in paddy fields.

3) N. Katsumi, T. Kusube, S. Nagao and H. Okochi: Marine Pollution Bulletin 161, 111727 (2019) （IF:5.553）. The role of coated fertilizer used in paddy fields as a source of microplastics in the marine environment.

（２）口頭発表（学会等）

1) 川崎美佐子、勝見尚也、楠部考誠、長尾誠也、大河内博：日本土壌肥料学会（2021）「被覆肥料に由来するマイクロカプセルの環境動態」

2) 勝見尚也、二上栞、大河内博：日本土壌肥料学会（2021）「土壌マイクロプラスチックの分析手法の開発」

3) 勝見尚也、二上栞、大河内博：第29回環境化学討論会「土壌中マイクロプラスチックの分析手法の開発」

4) 勝見尚也、楠部孝誠、長尾誠也、大河内博：第29回環境化学討論会（2021）「陸域における被覆肥料に由来するマイクロプラスチックの動態解明」

5) 勝見尚也、楠部孝誠、長尾誠也、大河内博：日本土壌肥料学会中部支部例会（2020）「被覆肥料に由来するマイクロカプセルの環境動態」

6) 二上栞、勝見尚也、大河内博：日本土壌肥料学会中部支部例会（2020）「比重分離および顕微FT-IRを用いた土壌中マイクロプラスチックの分析手法の開発」

（３）「国民との科学・技術対話」の実施

1) 公開セミナー「プラスチックの未来を考える会プレセミナー」（主催：一般社団法人JAIST支援機構　共催：国立大学法人北陸先端科学技術大学院大学エクセレントコア推進本部、2022年3月18日、オンライン）にて講演

2) 肥料由来のマイクロプラスチックに関する研修会（主催：福井県、2022年3月8日、オンライン）にて講演

3) おおさかプラスチック対策推進プラットフォーム流出対策分科会（主催：大阪府、2022年1月26日、オンライン）にて講演

4) 日本土壌肥料学会中部支部特別講演会「持続可能な食糧生産における土壌肥料の新展開」（2021年12月2日、じゅうろくプラザ）にて講演

5) 応用生態工学会金沢WEB研修会「海辺のグリーンリカバリーを考える」（主催：応用生態工学会、2021年11月17日、オンライン）にて講演

6) 金沢大学市民講演会「豊かな海を守るためには?? -海洋における地球環境問題とSDGsへの取り組み／持続可能な社会環境構築を目指して-」（主催：金沢大学、2021年10月23日、金沢大学サテライトプラザ）にて講演

7) 企画講演会「データ農業とSDGs」（主催：関西農業食料工学会　2021年9月30日、オンライン）にて講演

8) プラスチックを使用した被覆肥料の被膜殻の流出防止に向けた勉強会（主催：農林水産省2021年7月26日、オンライン）にて講演

9) 早稲田大学環境資源未来塾（主催：早稲田大学創造理工学部環境資源工学科、2021年3月23

日、オンライン）にて講演

10) 令和2年度海洋プラスチックごみ学術シンポジウム（主催：環境省、2021年3月3日、オンライン）にて講演

（４）マスコミ等への公表・報道等＞

特に記載すべき事項はない。

（５）本研究費の研究成果による受賞

2022年度　日本土壌肥料学会　若手優秀発表賞受賞

2021年度　日本土壌肥料学会中部支部例会　ベストポスター賞受賞

Ⅳ．英文Abstract

Study on Generation of Microplastics in Agricultural Land and Transfer to Marine Environment

Principal Investigator: KATSUMI Naoya
Institution: Ishikawa Prefectural University, Nonoichi City, Ishikawa, JAPAN
Tel: 076-227-7220 / Fax: 076-227-7410
E-mail: n-katsu@ishikawa-pu.ac.jp

[Abstract]

Key Words: Microplastics, microcapsules, coated fertilizer, paddy fields, soil, micro FT-iR

The use of plastic materials in agriculture has achieved the production of high-quality crops, labor savings, and reduction of environmental impact. On the other hand, the recent problem of plastic waste in the ocean has created a need to address new issues, such as the proper disposal of plastic materials used in agricultural fields and prevention of their runoff. Fertilizer-containing plastic microcapsules with a diameter of 2 to 5 mm (coated fertilizer) are not recovered after use, and after diffusion of the fertilizer components these microcapsules are found in large quantities, not only on agricultural land but also along the coast, which suggest that agricultural lands are a source of marine microplastics, but the actual situation has remained unclear. This study evaluated (1) the accumulation and discharge of microcapsules in rice paddies, (2) the migration process to the ocean via agricultural water, (3) and monitoring of microcapsules at the shoreline in order to understand the actual condition of microcapsules in the environment.

The density of microplastics in the shoreline increased during the irrigated season and decreased during the non-irrigated season. During the irrigated season, 70-90% of the microplastics at the shoreline were microcapsules, and rice paddies were one of the sources of microplastics in areas where rice cultivation was prevalent.

The highest amount of microcapsule runoff from the paddy fields occurred in May. Microcapsules were discharged from the paddy fields primarily during puddling, when the weir plate was overflowed, and when surface drainage was implemented. Comparing the inflow and outflow of microcapsules, the outflow rate to inflow was 7.1%, indicating that most of the applied microcapsules accumulated in the paddy soil. Indeed, a survey of the accumulation of microcapsules derived from coated fertilizers in 19 paddy fields revealed that microcapsules were detected in all paddy fields, with concentrations ranging from 6 to 369 mg/kg, much higher than microplastic concentrations in agricultural land in other countries. In order to prevent additional pollution to the ocean in the future, the development of technology to control the outflow of microcapsules from paddy fields is urgently needed.

Monitoring of loadings at the mouths of agricultural waterways revealed that the migration of microcapsules into the sea was concentrated from mid-April to late May, coinciding with the timing of paddy field runoff. The most important issue for the future is to clarify the actual status of secondary microplastics, which are the miniaturization of primary microcapsules.