

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：13601

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K21863

研究課題名（和文）マイクロ流体技術によるマイクロ&ナノプラスチック濃縮回収への挑戦

研究課題名（英文）Challenges in micro- and nano-plastic enrichment and recovery using microfluidic technology

研究代表者

秋山 佳丈（Akiyama, Yoshitake）

信州大学・学術研究院繊維学系・教授

研究者番号：80585878

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、マイクロ流体技術の1つである音響泳動を用いて、10マイクロメートル程度の微細なものを含まれたマイクロプラスチック濃縮回収技術を確立した。電気回路アナロジーを用いてマイクロ流体ネットワークを設計することで、4連続で濃縮機構を設けることで100倍濃縮可能なデバイスを開発した。一方で、音響泳動力が粒子サイズに比例するために、ナノ粒子であるナノプラスチックを音響泳動を用いた本手法をそのまま適用することは難しい。そこで、ナノプラスチックを含むそれ以下の微細なものについては、ペクチンと鉄イオンによる凝集沈殿技術を確立した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、5 mm以下の小さなプラスチック片（マイクロプラスチック）が、食塩やペットボトル水など食品へ混入しているだけでなく、生物濃縮により有害物質のキャリアとして働くなどの生体へ悪影響を引き起こしている可能性が指摘されている。これらマイクロプラスチックの回収は、濾過という古典的手法に限定されており、フィルタの目詰まりなどにより連続的な回収ができないことが問題となっていた。そこで、超音波による微粒子操作技術などの微小流体制御技術を組み合わせることで、世界初の濾過によらないマイクロプラスチック連続濃縮回収技術を確立する。

研究成果の概要（英文）：In this study, we established a microplastic enrichment and recovery technology, including those as small as 10 micrometers, using acoustophoresis, one of the microfluidic technologies. By designing a microfluidic network using the electric circuit analogy, we developed a device capable of 100-fold enrichment by making four serial enrichment steps. It is difficult to apply this method directly to nano-sized microplastics (nanoplastics), because the acoustic radiation force is proportional to the particle size. For smaller microplastics including nanoplastics, we established a coagulation and precipitation technique using pectin and iron ions.

研究分野：マイクロフルイディクス

キーワード：マイクロプラスチック 音響収束 超音波

1. 研究開始当初の背景

近年、5 mm 以下の小さなプラスチック片は、マイクロプラスチック（特にナノサイズのものはナノプラスチック）と呼ばれ、食塩やペットボトル水など食品へ混入しているだけでなく、生物濃縮により有害物質のキャリアとして働くなどの生体影響を引き起こしている可能性が指摘されている。しかし、これまでのマイクロプラスチック回収技術は、比重分離などを経るものの、最終的に濾過という古典的手法に限定されており、孔径を小さくすればするほどフィルタの目詰まりや、その後の分析に向けたフィルタからの回収が困難であることが問題となっていた。

また、近年、合成繊維から脱落したフラグメントが、マイクロプラスチックの主要な発生源のひとつであることがあきらかにされつつある。そのため、洗濯排水として排出されるマイクロプラスチックファイバーを削減する目的で、プロトタイプから市販品まで含めて 3 タイプの製品が開発されて一部は既に市販されている[1]。まず、洗濯ネットタイプとして、既に市販されている Guppy friend や Fourth element が挙げられる。これらは、目開き 50 μm 程度の細かい洗濯ネットであり、50 %程度のマイクロプラスチックファイバーの放出を抑制できる。次に、洗濯時に衣類と共に入れておくことでマイクロプラスチックファイバーを吸着するタイプの Cora ball があるが、この抑制効果は 25 %程度と低い。最後に、排水パイプに取り付けるフィルタタイプとして、Xfiltra や Lint LUV-R が挙げられる。特に、Xfiltra は開発中ではあるものの、遠心力ポンプを使い目開き 60 μm のフィルタで濾過することで、8 割近く排出抑制ができる。

2. 研究の目的

本研究では、マイクロ流体技術の 1 つである音響泳動を用いて、10 μm 程度の微細なものを含めたマイクロプラスチック濃縮回収技術を確立する。特に、4 連続で濃縮機構を設けることで 100 倍濃縮可能なデバイスを開発する。一方で、音響泳動力が粒子サイズに比例するために、ナノ粒子であるナノプラスチックを音響泳動を用いた本手法をそのまま適用することは難しい。そこで、ナノプラスチックを含むそれ以下の微細なものについては、ペクチンによる凝集沈殿回収技術の確立を試みる。

3. 研究の方法

(1) 音響収束による濃縮

音響収束による MP の濃縮原理を図 1 に示す。マイクロ流路を高周波で振動させ、流路幅の長さが半波長となるような定在波を形成すると、流路を流れる粒子は水平方向からの音響放射力により、流路断面の中央に縦に収束する（1D 収束）。粒子を収束後、直線流路を 3 つに分岐させ、中央の流路にのみ粒子を流すことで、外側 2 つの流路には粒子除去液が流れ、中央の流路からは粒子濃縮液が回収できる。ここで、3 つに分岐した流路の流量分割比を左：中：右 = 1.1 : 1 : 1.1 とすると、中央流路における流量は入口流量の 1/3.2 となり、粒子懸濁液の濃度は 3.2 倍に濃縮される。

(2) デバイスの設計と作製

本研究では粒子を 100 倍以上に濃縮できるデバイスを開発する。すなわち 3 分岐を 4 段連続で設け、4 回 3.2 倍濃縮し、3.2 の 4 乗で 100 倍濃縮を目指す。まず、各分岐において 3.2 倍濃縮できるように、流路は電気回路へのアナロジーを用いて設計した。次に、ガラスに設計した流路を切削加工し、熱融着することで、マイクロ流路チップを作製した。最後に、流路を振動するための圧電素子 (PZT) をチップに接着し、デバイスを作製した。

(3) ペクチンと鉄イオンによるナノプラスチックの凝集沈殿

ポリスチレンナノプラスチック懸濁液（直径 110 nm, 10 mg/L）に、天然高分子であるペクチン（15 mg/L）と鉄イオン (III) (0.10 mM) を添加し、2 日間静置することで、凝集沈殿させた。また、ナノプラスチックの濃度は、203 nm における吸光度を用いて定量した。

4. 研究成果

(1) 粒子サイズ別回収率の評価

音響放射力は粒子体積に比例するため、粒子サイズ別に印加電圧を調整する必要がある。まず、粒子サイズごとに 4 連続分岐デバイスにおける印加電圧と回収率の関係を求めた。ここでは、各

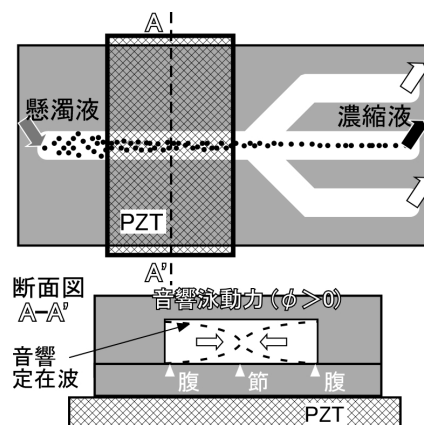


図 1 音響収束による濃縮原理

分岐において流れる粒子をカウントし、中央流路に流れた粒子数を分岐に流れ込む全粒子数で除し、各分岐における回収率を求めた。デバイスに直径5, 10, 15, 25, 50, 200 μm のプラスチック粒子懸濁液を1 mL/minで流し、PZTの励起電圧を2.5 Vp-pから35 Vp-pまで変化させ、回収率を粒子サイズ別に評価した。図2から10, 15, 25 μm の粒子は22.5 Vp-p, 25, 50, 200 μm の粒子は15 Vp-pで同時に80%以上回収できることが示唆された。また、一例として中央流路における50 μm 粒子の収束の様子を図3に示す。

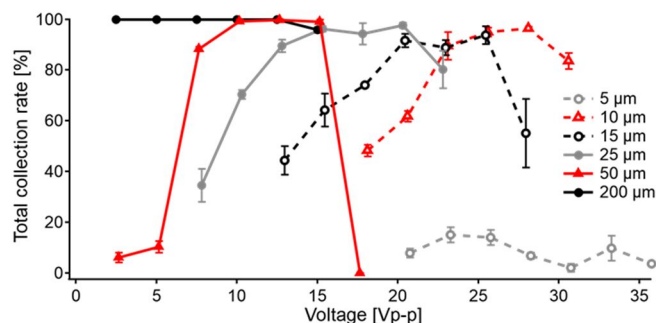


図2 印加電圧と回収率の関係 (n=3, Error bars: S.D.)

また、一例として中央流路における50 μm 粒子の収束の様子を図3に示す。

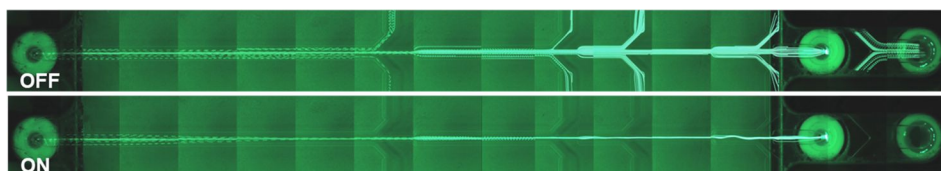


図3 流路を流れるポリスチレン粒子の重ね合わせ合成像 (上: OFF, 下: ON)

(2) 混合粒子懸濁液での評価

マイクロプラスチックは、さらに500 μm 以下を微小マイクロプラスチック、25 μm 以下を超微小マイクロプラスチックとサブカテゴリの分類することも提案されている。そこで、微小マイクロプラスチック懸濁液(直径25 μm , 50 μm , 200 μm 粒子の混合)と超微小マイクロプラスチック懸濁液(直径10 μm , 15 μm , 25 μm 粒子の混合)の2つを用意し、同デバイスで濃縮回収実験を行った。微小マイクロプラスチック懸濁液の回収では、最小の直径25 μm 粒子を濃縮回収するために必要な最低電圧15 Vを印加した。その結果、全粒子について80%を越える回収率が得られた。しかし、この電圧は、直径200 μm の粒子に対しては強すぎるため、一部で直径200 μm 粒子の音響放射力による捕捉が見られ、回収率が低下しバラツキが大きくなった。超微小マイクロプラスチック懸濁液の回収においても、最小の直径10 μm 粒子に必要な最低電圧22.5 Vを印加した。その結果、直径10 μm 粒子については1分岐目で中央以外の分岐に流れ込む様子が見られ、回収率が70%程度まで低下してしまっただけでなく、他のサイズの粒子については、80%以上の回収率が得られた。

今後は、流量も含めて最適化することで、粒子の補足を抑制し、広範囲な粒子サイズへの適用を試みる。また、本デバイスの濃縮率は100倍であるが、循環処理することで濃縮率を向上させることが可能である。

(3) ナノプラスチックの沈殿除去評価

ナノプラスチックの凝集沈殿に要する時間を評価した。10 mg/Lでは24時間で90%以上のナノプラスチックが凝集沈殿することが確認できた。そして、濃度が濃くなるにつれて凝集沈殿時間が増加し、500 mg/Lでは72時間かかった。以上から、高濃度のナノプラスチック懸濁液であっても処理時間を長くすることがほぼ除去出来ることが確認できた。今後、音響収束と合わせることで、ナノサイズも含めたマイクロプラスチックの濃縮回収技術開発に繋げたい。

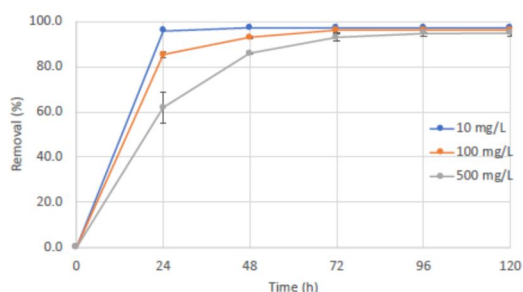


図4 ナノプラスチックの除去率の時間変化

<引用文献>

- [1] I.E. Napper, A.C. Barrett, R.C. Thompson, The efficiency of devices intended to reduce microfibre release during clothes washing, Science of The Total Environment, 738, 2020, 140412.
- [2] T. Jonai, Y. Ohori, T. Fujii, A. Nakayama, H. Moriwaki, Y. Akiyama, A collection device for various-sized microparticles that uses four serial acoustic separations: working toward microplastic remediation, Under review.
- [3] T. Jonai, Y. Akiyama, Two-dimensional acoustic focusing of microparticles in a rectangle microchannel by a dual-frequency driven single transducer, Sensors and Actuators B: Chemical, 378(1):133127, 2023
- [4] H. Moriwaki, N. Komori, Y. Akiyama, Interaction between nanoplastics and pectin, a water-soluble polysaccharide, in the presence of Fe(III) ion, Journal of Environmental Chemical Engineering, 10(3):108054, 2022

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 0件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Jonai Tatsuki, Akiyama Yoshitake	4. 巻 378
2. 論文標題 Two-dimensional acoustic focusing of microparticles in a rectangular microchannel using a dual-frequency-excited single transducer	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Sensors and Actuators B: Chemical	6. 最初と最後の頁 133127 ~ 133127
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.snb.2022.133127	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Moriwaki Hiroshi, Komori Naoya, Akiyama Yoshitake	4. 巻 10
2. 論文標題 Interaction between nanoplastics and pectin, a water-soluble polysaccharide, in the presence of Fe(III) ion	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Chemical Engineering	6. 最初と最後の頁 108054 ~ 108054
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jece.2022.108054	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Jonai Tatsuki, Ohori Yuimaru, Fujii Tadahiko, Nakayama Akemi, Moriwaki Hiroshi, Akiyama Yoshitake	4. 巻 315
2. 論文標題 A collection device for various-sized microparticles that uses four serial acoustic separations: Working toward microplastic emission prevention	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Separation and Purification Technology	6. 最初と最後の頁 123697 ~ 123697
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.seppur.2023.123697	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 秋山佳丈	4. 巻 8
2. 論文標題 音響収束によるマイクロプラスチックの濃縮回収	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 プラスチック	6. 最初と最後の頁 1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 城内健希, 森脇洋, 秋山佳丈
2. 発表標題 マイクロプラスチックの高濃度濃縮回収に向けた音響収束による連続分離機構の実証
3. 学会等名 日本機械学会ロボティクス・メカトロニクス講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 秋山佳丈
2. 発表標題 超音波による繊維くずを含むマイクロプラスチックの回収技術の開発
3. 学会等名 日本繊維機械学会 秋季セミナー（招待講演）（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 秋山佳丈, 城内健希, 中山明美, 森脇洋
2. 発表標題 音響収束によるマイクロプラスチック高濃度濃縮デバイスの開発
3. 学会等名 環境化学物質 3 学会合同大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 城内健希, 田村和樹, 森脇洋, 秋山佳丈
2. 発表標題 二次元音響収束を利用したマイクロプラスチックの連続画像分析プログラムの開発
3. 学会等名 ロボティクス・メカトロニクス講演会2021 (Robomech2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田村和樹, 城内健希, 藤井忠彦, 森脇洋, 秋山佳丈
2. 発表標題 マイクロプラスチックの画像検出に向けた音響泳動による二次元収束の検討
3. 学会等名 計測自動制御学会 システムインテグレーション部門講演会(SI2020)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤井 忠彦, 森脇 洋, 秋山 佳丈
2. 発表標題 マイクロプラスチック回収のための音響泳動による連続分離機構の検討
3. 学会等名 日本機械学会 2020年度年次大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	森脇 洋 (Moriwaki Hiroshi) (30321938)	信州大学・学術研究院繊維学系・教授 (13601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------