

令和 2 年 6 月 8 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K20062

研究課題名(和文)日用品からのナノプラスチック生成ポテンシャル定量方法の確立と環境試料への適用

研究課題名(英文) Development of a Quantitative Method of Nano-plastics Formation Potential from Daily Use Products and its Application to Environmental Samples

研究代表者

田中 周平(TANAKA, Shuhei)

京都大学・地球環境学堂・准教授

研究者番号：00378811

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、10  $\mu\text{m}$ レベルのマイクロプラスチック(以下MPs)の採取、前処理、計測、同定の手順を開発し、表層水、底泥、下水、下水汚泥中の存在実態を明らかにした。琵琶湖流域の下水処理場4か所から合計30種類のMPsが検出され、流入水中のMPs個数密度は158～5,000個/ $\text{m}^3$ であった。放流水中では0.3～2.2個/ $\text{m}^3$ であった。一方、100  $\mu\text{m}$ 未満のMPsの除去は急速砂ろ過を行っても不十分であると示唆された。2次元アレイを用いた高速FT-IRイメージング技術により、最小1.1  $\mu\text{m}$ 四方のMPsの同定が可能となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在、環境中では300  $\mu\text{m}$ より大きな粒子が計測されることが多い。微細片については測定方法が確立されていないのが現状である。マイクロプラスチックが環境中で分解されていくとナノプラスチックになることは容易に予想できる。ナノサイズとなると摂食する生物も多くなり、生物濃縮過程を含めて議論が必要となる。本研究により、最小1.1  $\mu\text{m}$ 四方の分析が可能となることで、ナノプラスチックの動態解明に大きく寄与することができた。

研究成果の概要(英文)：In this study, we developed procedures for collecting, pretreatment, measuring, and identifying 10  $\mu\text{m}$  level microplastics (MPs), and clarified the actual existence of surface water, bottom mud, sewage, and sewage sludge. A total of 30 Types of MPs were detected from four sewage treatment plants in the Lake Biwa basin, mps number density in the inflow water was 158～5,000 pieces /  $\text{m}^3$ . In the discharged water, it was 0.3 to 2.2 pieces/ $\text{m}^3$ . On the other hand, removal of MPs of less than 100  $\mu\text{m}$  was suggested to be insufficient even if rapid sand filtration. High-speed FT-IR imaging technology using two-dimensional arrays enables identification of MPs with a minimum of 1.1  $\mu\text{m}$  square.

研究分野：環境工学

キーワード：マイクロプラスチック ナノプラスチック 生成ポテンシャル 日用品

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

5 mm 以下のプラスチックによる海洋汚染が世界的に問題となっていた。2001 年に海洋でのプラスチックペレットによる毒性化学物質の輸送に関する論文が発表され (Mato, Y., *Environ. Sci. & Tech.*) 2013 年にはプラスチックゴミを誤飲した海鳥の体内に臭素化燃焼剤が蓄積されていると報告された (Tanaka *et al*, *Marine Pollution Bulletin*)。2015 年に UNEP が化粧品等へのマイクロプラスチックの使用禁止を要請するなど、地球環境への影響が懸念されていた。生物への影響については、物理的側面、化学的側面から検討されており、ポリスチレンの微粒子を曝露することで牡蠣の再生産能力が低下した事例 (Sussarellu, R., *Proc. of the Nation. Acad. of Sciences*, 2016) 淡水魚の孵化率が低下した事例 (Lonnstedt, O.M., *Science*, 2016) が報告されていた。さらに化学物質を吸着させたマイクロプラスチックを魚やゴカイに曝露した結果、肝機能障害や腫瘍が生成したとの報告 (Browne, M.A., *Cur Biology*, 2013, Rochman, C.M., *Scientific Reports*, 2013) も出ていた。

研究代表者は 2015 年 11 月に大阪湾の底泥からマイクロプラスチックを検出した結果、粒径が小さくなるにつれて個数が増加していることが読み取れた。既存研究の大部分は 300  $\mu\text{m}$  以上を対象に分析しており、洗顔剤等に使用されているマイクロビーズ (100~300  $\mu\text{m}$ ) は、当時の調査・分析方法では検出することが難しかった。微細片の計測、同定の手順開発に成功すれば、微細片プラスチックの動態解明を飛躍的に進歩させることができ、さらにナノサイズのプラスチックが環境中でどのように挙動し、生物等に移行しているのかを明らかにすることで、ナノサイズの粒子を摂食する生物への生物濃縮過程を含めて、本研究フィールドにおける現象の解明が飛躍的に進むと着想し、本研究を提案した。

## 2. 研究の目的

本研究では、微小なマイクロプラスチックおよびさらに極微小なナノプラスチックの計測および同定方法を開発し、環境試料に適用することで、日用品からの生成量を把握することを主目的とした。

## 3. 研究の方法

### 3.1. 分析方法の開発

顕微 FTIR を用いて 10  $\mu\text{m}$  のマイクロプラスチックの計測・同定方法の開発を行い、研究 1 年目には、底質中のマイクロプラスチックについて、10  $\mu\text{m}$  までの計測・同定手順を明らかにした。2 年目には、1  $\mu\text{m}$  レベルのマイクロプラスチックを同定するために、2 次元アレイを用いた高速 FT-IR イメージング技術を取り入れ、3 年目には最小 1.1  $\mu\text{m}$  四方のマイクロプラスチックの同定に取り組んだ。

### 3.2. 微量化学物質の吸着特性試験

粒径の異なるマイクロプラスチック標準品を用いて、Anthracene を対象とした回分式吸着試験を行った。さらに、琵琶湖・大阪湾で採取したマイクロプラスチックを粒径・成分ごとに分け、PAHs 吸着量を測定した。マイクロプラスチック標準品と実環境中サンプルにおいて、PAHs 吸着量と比表面積の関係から、吸着特性を比較し検討した。

「水環境中のマイクロプラスチックの粒径に着目した多環芳香族炭化水素類の吸着特性の検討」では、Anthracene の初期濃度が 1 mg/L となるよう超純水で調整した試験瓶に、粒径 75  $\mu\text{m}$  以下、250~500  $\mu\text{m}$ 、3 mm のポリエチレンを 0~720 mg/L となるように添加した。試験瓶を 25°C、120 rpm で 72 時間振とうさせ、前処理の後、GC-MS/MS を用いて Anthracene を測定した。

### 3.3. 下水処理場における挙動調査

「下水処理場の各処理工程における粒径 100  $\mu\text{m}$  以上のマイクロプラスチックの存在実態調査」と「下水処理場における粒径 100  $\mu\text{m}$  以上のマイクロプラスチックの挙動把握」では、凝集剤添加多段硝化脱窒法および砂ろ過法 (275,000  $\text{m}^3/\text{day}$ ) の A 下水処理場の各処理工程間において、目開き 100  $\mu\text{m}$  のプランクトンネットに 102~3,780 L の水試料を通水し、前処理を行った後、実体顕微鏡および FT-IR を用いて、粒径の計測および成分分析を行った。さらに流量情報を掛け合わせることで、マイクロプラスチックの日負荷量を推計した。

開発した手法をもとに琵琶湖流域の下水処理場 4 か所におけるマイクロプラスチックの挙動調査を実施し、琵琶湖への負荷量を推定した結果を土木学会論文集 G (環境) に発表した (下水処理工程におけるマイクロプラスチックの挙動と琵琶湖への負荷量の推定)。

### 3.4 路面塵埃、魚貝類中の調査

路面塵埃 (アジア 3 都市の路面塵埃におけるマイクロプラスチックの存在実態の把握) 魚貝類中への蓄積 (琵琶湖・大阪湾における魚貝類中のマイクロプラスチックの存在量とその肛門径の関係) などについて 5 編の口頭発表を行った。

## 4. 研究成果

### 4.1. 分析方法の開発

10  $\mu\text{m}$  レベルのマイクロプラスチックの採取、前処理、計測、同定の手順を開発し、表層水、

底泥、下水、下水汚泥中のマイクロプラスチックの存在実態が徐々に明らかとなってきた。特に、水環境中におけるマイクロプラスチックに吸着した微量有機化学物質について、粒径に着目し査読論文として土木学会論文集 G (環境) に発表した。その中で、粒径が小さくなるにつれて単位重量あたりの微量有機化学物質の吸着量が大きくなるのが分かり、現在、環境中で注目されている 10 µm レベルのマイクロプラスチックには、高いものでは 300 万倍程度の化学物質が、周辺の環境水と比べて存在していることが分かってきた。

1 µm レベルのマイクロプラスチックを同定するために、2 次元アレイを用いた高速 FT-IR イメージング技術を取り入れ、最小 1.1 µm 四方のマイクロプラスチックの同定が可能となった。本サイズはナノプラスチックの領域であり、研究の主目的であるナノプラスチックの計測および同定方法の開発にたどり着くことができた。

#### 4.2. 微量化学物質の吸着特性

粒径 4.75 mm 以上のポリエチレンへの Σ 27PAHs 含有量は 270 ng/g-dry、粒径 2 ~ 4.75 mm では 1,220 ng/g-dry、粒径 850 µm ~ 2 mm では 1,260 ng/g-dry、粒径 315 ~ 850 µm では 12,080 ng/g-dry であった。成分別の吸着量は、ポリプロピレンはポリエチレンと同程度であり、大阪湾のポリスチレンへの PAHs 吸着量は、ポリエチレンに比べ 1 ~ 2 桁程度高かった。

吸着試験の結果、マイクロプラスチックの粒径が小さいほど Anthracene の吸着能力が高く、マイクロプラスチックの表面積と吸着量は比例した。

#### 4.3. 下水処理場における挙動

下水処理場の流入水から、マイクロビーズや破片状のポリエチレンなどが検出された。本処理場へは一日 1 億 2,000 万個のマイクロプラスチックが流入していると推計された。処理工程において 99.64% のマイクロプラスチックが除去され、43 万個が下水処理場を通過し放流されていると推定された。生物反応槽と最終沈殿池では返送汚泥を介してマイクロプラスチックが循環していることが示唆された。

調査の結果、下水、処理水、汚泥、スカムなどから合計 30 種類のマイクロプラスチックが検出され、流入水中のマイクロプラスチック個数密度は 158 ~ 5,000 個/m<sup>3</sup> であった。放流水中では 0.3 ~ 2.2 個/m<sup>3</sup> であり、放流先の琵琶湖水中の個数密度と同等であった。一方、10 ~ 100 µm のマイクロプラスチックの除去率は 76.3% であった。100 µm 未満のマイクロプラスチックの除去は急速砂ろ過を行っても不十分であると示唆された。4 つの下水処理場からの合計負荷量は 501,630 個/日と推計され、晴天時の琵琶湖流入河川からの総負荷量とほぼ同じであることが示された。

#### 4.4. 路面塵埃、魚貝類における挙動

魚類の消化管へのマイクロプラスチックの蓄積傾向は、これまで測定してきた 100 µm 以上と今回測定することができるようになった 10 ~ 100 µm レベルでは、大きく異なることが分かってきた。魚類は 10 µm レベルのマイクロプラスチックを数十個程度消化管の中に蓄積しており、今後、この大きさでの挙動の把握が重要となると考えられた。

#### < 引用文献 >

- 1) Mato, Y., T. Isobe, H. Takada, H. Kanehiro, C. Ohtake, and T. Kaminuma, Plastic Resin Pellets as a Transport Medium of Toxic Chemicals in the Marine Environment, *Env.Sci. and Tech.*, 35(2), 318-324, 2001
- 2) Kosuke Tanaka, Hideshige Takada, Rei Yamashita, Kaoruko Mizukawa, Masaaki Fukuwaka, Yutaka Watanuki, Accumulation of plastic-derived chemicals in tissues of seabirds ingesting marine plastics, *Marine Pollution Bulletin*, 69, 219-222. 2013
- 3) 雪岡聖, 田中周平, 鍋谷佳希, 鈴木裕識, 藤井滋穂, 高田秀重, 水環境中におけるマイクロプラスチックの粒径に着目した微量有機汚染物質の吸着特性, 土木学会論文集 G (環境), doi:10.2208/jscejer.74.III\_527
- 4) 田中周平, 垣田正樹, 雪岡聖, 鈴木裕識, 藤井滋穂, 高田秀重, 下水処理工程におけるマイクロプラスチックの挙動と琵琶湖への負荷量の推定, 土木学会論文集 G (環境), doi.org/10.2208/jscejer.73.III\_1
- 5) 岡本萌巴美, 田中周平, 雪岡聖, 藤井滋穂, Sangeeta Singh, 高田秀重, ネパール国カトマンズ市におけるマイクロプラスチックの存在実態の把握および河川への負荷源の推定, 土木学会論文集 G (環境), doi.org/10.2208/jscejer.75.7\_III\_127
- 6) Satoru Yukioka, Shuhei Tanaka, Yoshiki Nabetani, Yuji, Suzuki, Taishi Ushijima, Shigeo Fujii, Hideshige Takada, Quang Van Tran, Sangeeta Singh, Occurrence and Characteristics of Microplastics in Surface Road Dust in Kusatsu (Japan), Da Nang (Vietnam), and Kathmandu (Nepal), *Environmental Pollution*, doi.org/10.1016/j.envpol.2019.113447

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 田中周平, 垣田正樹, 雪岡聖, 鈴木裕識, 藤井滋穂, 高田秀重	4. 巻 75
2. 論文標題 下水処理工程におけるマイクロプラスチックの挙動と琵琶湖への負荷量の推定	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 土木学会論文集G (環境)	6. 最初と最後の頁 _35- _40
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) doi.org/10.2208/jscejer.73.III_1	査読の有無 有
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 岡本萌巴美, 田中周平, 雪岡 聖, 藤井滋穂, Sangeeta Singh, 高田秀	4. 巻 75
2. 論文標題 ネパール国カトマンズ市におけるマイクロプラスチックの存在実態の把握および河川への負荷源の推定	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 土木学会論文集G (環境)	6. 最初と最後の頁 _127- _134
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) doi.org/10.2208/jscejer.75.7.III_127	査読の有無 有
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 該当する
1. 著者名 Satoru Yukioka, Shuhei Tanaka, Yoshiki Nabetani, Yuji, Suzuki, Taishi Ushijima, Shigeo Fujii, Hideshige Takada, Quang Van Tran, Sangeeta Singh	4. 巻 256
2. 論文標題 Occurrence and Characteristics of Microplastics in Surface Road Dust in Kusatsu (Japan), Da Nang (Vietnam), and Kathmandu (Nepal)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Environmental Pollution	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) doi.org/10.1016/j.envpol.2019.113447	査読の有無 有
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 該当する
1. 著者名 雪岡聖, 田中周平, 鍋谷佳希, 鈴木裕識, 藤井滋穂, 高田秀重	4. 巻 74(7)
2. 論文標題 水環境中におけるマイクロプラスチックの粒径に着目した微量有機汚染物質の吸着特性	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 土木学会論文集G (環境)	6. 最初と最後の頁 -527- -535
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) doi:10.2208/jscejer.74.III_527	査読の有無 有
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11件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 田中周平, 岡本萌巴美, 鈴木裕識, 阿部翔太, 雪岡聖, Sangeeta Singh, 藤井滋穂, 高田秀重
2. 発表標題 紫外線照射および路上を模擬した物理作用によるマイクロプラスチックの生成試験
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会（紙面発表）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 近藤泰仁, 田中周平, 雪岡聖, 牛島大志, 垣田正樹, 岡本萌巴美, 藤井滋穂, 高田秀重
2. 発表標題 琵琶湖・大阪湾における魚貝類の肛門径に着目した10 $\mu\text{m}$ 以上のマイクロプラスチックの存在実態
3. 学会等名 第22回日本水環境学会シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Moemi Okamoto, Shuhei Tanaka, Satoru Yukioka, Shigeo Fujii, Sangeeta Singh and Hideshige Takada
2. 発表標題 Occurrences of Microplastics in Surface Water of Bisunumati and Bagmati Rivers, and on the Roads in Kathmandu city, Nepal
3. 学会等名 The North Pacific Marine Science Organization (PICES) -2019 Annual Meeting ( ( 国際学会 ) )
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 雪岡 聖, 田中周平, 鈴木裕識, 鍋谷佳希, 牛島大志, 垣田正樹, 藤井滋穂, 高田秀重, Quang Tran Van, Sangeetha Sign
2. 発表標題 アジア 3都市の路面塵埃におけるマイクロプラスチックの存在実態の把握
3. 学会等名 環境化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 田中周平, 垣田正樹, 雪岡聖, 藤井滋穂, 鈴木裕識, 高田秀重
2. 発表標題 下水処理工程におけるマイクロプラスチックの挙動調査と負荷量の推定
3. 学会等名 第53回日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岡本萌巴美, 田中周平, 雪岡聖, 牛島大志, 垣田正樹, 近藤泰仁, 藤井滋穂, Sangeeta Singh
2. 発表標題 ネパール国カトマンズ市街におけるマイクロプラスチック汚染の現況調査と劣化指標の検討
3. 学会等名 第53回日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 近藤泰仁, 田中周平, 雪岡聖, 牛島大志, 垣田正樹, 岡本萌巴美, 藤井滋穂, 高田秀重
2. 発表標題 琵琶湖・大阪湾における魚貝類中のマイクロプラスチックの存在量とその肛門径の関係
3. 学会等名 第53回日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masaki Kakita, Shuhei Tanaka, Yuji Suzuki, Satoru Yukioka, Yoshiki Nabetani, Taishi Ushijima, Shigeo Fujii and Hideshige Takada
2. 発表標題 Behavior of Microplastics in Primary, Secondary, Tertiary, and Sludge Treatment Processes in Wastewater Treatment Plants in Japan
3. 学会等名 The North Pacific Marine Science Organization (PICES) -2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 垣田正樹, 田中周平, 鈴木裕識, 雪岡聖, 鍋谷佳希, 牛島大志, 藤井滋穂, 高田秀重
2. 発表標題 下水処理場の各処理工程における粒径100 μm以上のマイクロプラスチックの存在実態調査
3. 学会等名 第19回日本水環境学会シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 垣田正樹, 田中周平, 鈴木裕識, 雪岡聖, 鍋谷佳希, 牛島大志, 藤井滋穂, 高田秀重
2. 発表標題 下水処理場における粒径100 μm以上のマイクロプラスチックの挙動把握
3. 学会等名 第52回日本水環境学会年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鍋谷佳希, 田中周平, 鈴木裕識, 雪岡聖, 牛島大志, 垣田正樹, 塩田憲司, 藤井滋穂, 高田秀重
2. 発表標題 水環境中のマイクロプラスチックの粒径に着目した多環芳香族炭化水素類の吸着特性の検討
3. 学会等名 第52回日本水環境学会年会
4. 発表年 2018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