

令和 3 年 5 月 29 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18H03810

研究課題名（和文）レーザ分光を用いた海中浮遊粒子の現場計測の技術基盤に関する研究

研究課題名（英文）Fundamental technologies for using lasers for insitu measurement of the composition of marine particles

研究代表者

ソートン ブレア（Thornton, Blair）

東京大学・生産技術研究所・准教授

研究者番号：60526789

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 34,400,000円

研究成果の概要（和文）：有機炭素・無機炭素・マイクロプラスチック・鉱物など海を浮遊する粒子が、様々な空間スケールの化学循環にどう影響しているかを調べるため、海中粒子の化学成分をその場で計測できる新たなセンシング手法を開発した。センサーはレーザを海に照射し、自然な状態で浮遊する粒子に一度当たった光を分析することで、粒子の化学成分を特定することができ、機械学習を用いることで粒子の種類を自動分類できることを実験および実海域試験において検証した。試薬を使わず、物理的にサンプルを取る必要がないため、調査する環境への影響が少なく、電力供給のみで長期的なモニタリングに導く技術基盤を構築することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、長期・大規模に展開可能な小型・低消費電力及びローコストな海中浮遊粒子の化学センシング技術の基礎を構築し、これまでセンシングできなかった水中における粒子の化学成分の計測を実現した。今後、社会的に重大な地球環境問題のひとつであるマイクロプラスチックの計測をグローバルスケールで行うことが期待される。社会的意義としては、試薬等を使わないためコンタミの恐れがないため、発電所や自動車、また飲料水のパイプライン内に流れる液体中の腐食物質検出など、インフラのモニタリングに応用が可能であり、さらには、地球外の水環境調査への応用へと道が拓ける。

研究成果の概要（英文）：We developed a sensor capable of measuring different types suspended marine particles, including organic carbon, inorganic carbon, micro-plastics and minerals. The sensor uses a laser beam and observes the light that is scattered by particles in seawater. The sensor can differentiate between the different types of particle in the environment by analysing the scattered light signals using machine learning. We verified the performance of our system in controlled laboratory experiments and during sea-trials. Unlike sensors that mix chemical reagents to make measurements, or those that perform physical sampling, the method developed here can make observations continuously provided electrical power can be supplied, making the developed method highly suitable for the large scale, persistent observations needed to better understand the role of marine particles on global scale chemical cycles.

研究分野：海洋フォトンクス

キーワード：レーザ分光 ラマン分光 ホログラフィック 化学分析 現場計測 粒子分析 センシング

## 1. 研究開始当初の背景

海に浮遊する粒子の移動は、地球温暖化、マイクロプラスチックや資源開発による環境汚染など、様々なスケールの化学プロセスに関わっていることが知られている [SA04]。従来のセンシングでは、光の散乱、減衰、イメージングにより、粒子の形態や分布を長期的 (数ヶ月、年単位) に観測することが可能である。しかし、粒子が何によって構成されているのかを知るには、サンプリングを行う必要があり、調査船を長期間利用する必要があるためコストが高く、継続的な調査はできない。また、多くの海洋化学センサーが開発されているが、大半は水に溶けている物質の計測はできるが、粒子は計測できない。このため、海を浮遊する粒子が地球規模の化学循環にどれほど影響しているかを調べることは困難である。

申請者等は、これまで、深海で固体物質の化学成分をその場で計測する、光センシング技術を開発し、2013年に世界で初めて1000mを超える深海において、固体物質の化学成分のその場で計測することに成功し [TH15\*]、機械学習を用いて得られた信号を分析することで照射したターゲットの種類を分析することに成功した [Y018]。開発した手法は、レーザを用い、資源開発の現場を想定した濃さの粒子密度を想定した実験で、粒子計測の計測も物理的に可能であることを実証した [NA16]。しかし、これらの計測を実施した装置は、重量が100kg以上あり、消費電力も100Wと大きく、大規模に展開することは不可能であり、広い海を浮遊する、自然な分布密度で粒子を計測することはできない。

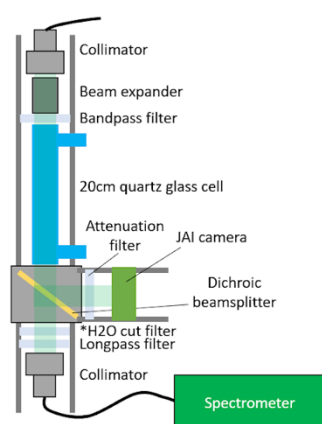
## 2. 研究の目的

レーザ分光を用いて、自然に海を浮遊する粒子を計測する新たな現場センシング手法を開発することを主目的とし、さらにレーザ分光センサーの大規模で長期的なモニタリングを可能とするため、大幅な装置の小型化、省エネ化の実現を目指した。試薬を必要としないため、コンタミすることなく、また、電力供給のみで浮遊粒子の化学成分を非破壊でその場計測できる新たなセンシング手法の技術基盤を築き、環境影響が少ないモニタリングに導く。

本システムを用いて、地球温暖化に関わる、有機炭素粒子・無機炭素粒子、また、世界的に問題視されてくるマイクロプラスチック及び海底資源開発時に巻き上げられる鉱物粒子をモニタリングできる可能性を検証するため、室内実験及総括段階では実海域において技術実証を行う。

## 3. 研究の方法

本研究では、ラマン法を用いて、レーザを粒子を含む海水に照射し、粒子に散乱される光を分光分析することで含まれる成分を計測する。通常ラマン法では、計測するさいレーザをターゲットにピンポイントに集光し、反射される散乱光を観測する。しかし、流れのある水の中で粒子の場所をピンポイントで特定して、レーザの焦点を合わせることは困難であり、非現実的である。さらに、深海では粒子の数が比較的少ないため、狭い計測領域ではなかなか粒子に光が当たらない。そこで、本研究では計測できる海水のボリュームを大きくするため、透過散乱を用いた計測システムを新たに開発した (図1を参照)。開発したシステムでは、フローセルを用いてカメラで粒子の有無を確認しながら、粒子が見つかったらフローセルの入口と出口を閉じて、十分に強いラマン信号が得られるように設計してある。



#### 4. 研究成果

様々なレーザ波長で実験を行い、蛍光などの現象による信号がある中、ここで計測するラマン信号が十分計測可能であることを検証した。これにより、蛍光が起きる中、より強いラマン散乱を起こす短波長のレーザを用いることが効果的であることを実証した。なお、集光されたレーザではなく、平行光を使い透過で計測する新たなシステムを用いることによって、計測ボリュームを大幅に大きくすることに成功した。また、多くの海洋粒子は数10から数100 μmスケールと小さく、プランクトンなどの機炭素粒子で大半は半透明であるため、集光されていないレーザでも、透過で起きる散乱の割合が高く、十分分析に使えるラマン信号が得られることを、様々な粒子で検証することに成功した。この実験のデータの一部は[TA20]に結果が公表された。なお本論文では、マイクロプラスチックに注目し、二つの異なるタイプのマイクロプラスチックが識別できることが確認された。またプランクトンなどの有機物と無機物とも識別できることを確認し、さらに海洋調査でも装置を使い、船上(JAMSTEC「かいめい」調査公開KM20-11)において様々な粒子の計測を実施した。開発した装置を用いた計測結果を図2に示す。ラマンの特徴から十分自動的に粒子の種類を識別することが可能と言える。なお、開発した装置が、消費電力は数10W程度と、これまでのレーザ計測システムより大幅に少なく、装置の大きさも数10cmと大幅な小型化に成功した。しかし、長期的なモニタリングに使うには、去らなく省エネ化、また、圧力窓などの光学系への不純物の付着などの影響に関して、今後研究を進める必要がある。

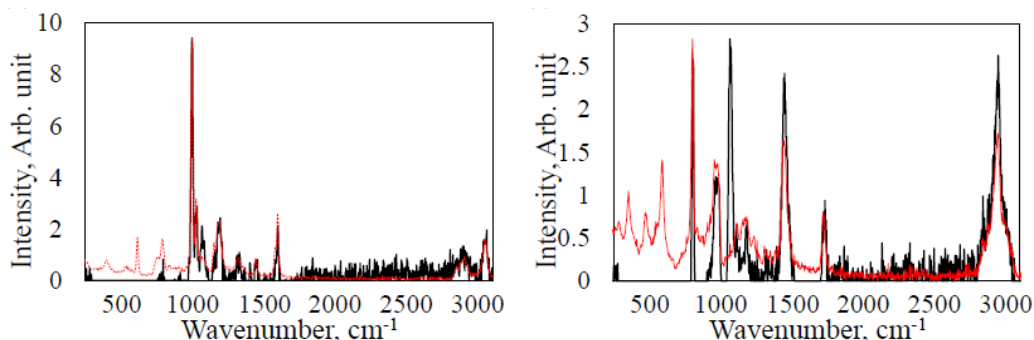


図2：透過型ラマンを用いた浮遊粒子で計測された信号(黒)及空气中で計測された信号を比較できるようオーバーレイ(赤)。左はPolystyrene、右はPolymethylmethacrylateと、異なるマイクロプラスチックから得られた信号を示し、異なる成分であることが同定可能である。

#### 参考文献

[SA04] Sabine C., The Oceanic Sink for Anthropogenic CO<sub>2</sub> *Science* 305, (2004) 367-371  
 [TH15] B. Thornton, T. Takahashi, T. Sato, T. Sakka, A. Tamura, A. Matsumoto, T. Nozaki, T. Ohki, and K. Ohki, Development of a deep-sea laser-induced breakdown spectrometer for in situ multi-element chemical analysis, *Deep-Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers* 95, pp. 20-36, 2015  
 [Y018] S. Yoshino, B. Thornton, T. Takahashi, Y. Takaya, T. Nozaki, Signal preprocessing of deep-sea laser-induced plasma spectra for identification of pelletized hydrothermal deposits using Artificial Neural Networks, *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* 145, pp. 1-7, 2018  
 [NA16] Y. Nakajima, T. Sato, B. Thornton, G. Dodbiba, T. Fujita, Development of seafloor mineral processing for seafloor massive sulfides, *IEEE Techno-Oceans Conference*, pp 119-126, 2016  
 [TA20] T. Takahashi, Z. Liu, T. Thevar, N. Burns, S. Mahajan, D. Lindsay, J. Watson, B. Thornton, Identification of microplastics in a large water volume by integrated holography and Raman spectroscopy, *Applied Optics* 59(17), 2020

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Takahashi, T., Thornton, B., Sato, T., Ohki, T., Ohki, K. & Sakka, T.	4. 巻 57
2. 論文標題 Partial least squares regression calculation for quantitative analysis of metals submerged in water measured using laser-induced breakdown spectroscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Optics	6. 最初と最後の頁 5872-5883
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/AO.57.005872	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Yoshino, S., Thornton, B., Takahashi, T., Takaya, Y. & Nozaki, T.	4. 巻 145
2. 論文標題 Signal preprocessing of deep-sea laser-induced plasma spectra for identification of pelletized hydrothermal deposits using Artificial Neural Networks	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.sab.2018.03.015	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Yelameli, M., Thornton, B., Takahashi, T., Weerkoon, T. & Ishii, K.	4. 巻 Vol.33, No.2
2. 論文標題 Classification and statistical analysis of hydrothermal seafloor rocks measured underwater using laser-induced breakdown spectroscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Chemometrics	6. 最初と最後の頁 e3092
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cem.3092	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Tomoko Takahashi, Soichi Yoshino, Yutaro Takaya, Tatsuo Nozaki, Koichi Ohki, Toshihiko Ohki, Tetsuo Sakka, Blair Thornton	4. 巻 158
2. 論文標題 Quantitative in situ mapping of elements in deep-sea hydrothermal vents using laser-induced breakdown spectroscopy and multivariate analysis	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Deep Sea Research Part I	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.dsr.2020.103232	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 Tomoko Takahashi, Zonghua Liu, Thangavel Thevar, Nicholas Burns, Sumeet Mahajan, Dhugal Lindsay John Watson, Blair Thornton,	4. 巻 -
2. 論文標題 Identification of microplastics in a large water volume by integrated holography and Raman spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Optics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/AO.393643	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 Zonghua Liu, Tomoko Takahashi, Dhugal Lindsay, Thangavel Thevar, Mehul Sangekar, Hiromi Watanabe, Nick Burns, John Watson, and Blair Thornton,	4. 巻 -
2. 論文標題 Digital In-line Holography for Large-Volume Analysis of Vertical Motion of Micro-scale Marine Plankton and Other Particles	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Oceanic Engineering (Accepted)	6. 最初と最後の頁 -
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 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3件(うち招待講演 0件/うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Takahashi, T., Yoshino, S., Takaya, Y., Nozaki, T., Ohki, T., Ohki, K., Sakka, T. & Thornton, B
2. 発表標題 Development of in-situ LIBS and Raman spectroscopic analysers for exploration of deep-sea hydrothermal vent fields
3. 学会等名 SciX, USA (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Nakajima, Y., Yamamoto, J., Takahashi, T., Dodbiba, G., Thornton, B., Fujita, T.
2. 発表標題 Measurement of metal grade of ore particles in slurry using laser-induced breakdown spectroscopy
3. 学会等名 OCEANS '18 Kobe, Kobe, Tokyo (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Z. Liu, T. Takahashi, T. Thevar, D. Lindsay, N. Burns, J. Watson and B. Thornton
2. 発表標題 Comparison of region proposal methods for marine holograms
3. 学会等名 Global OCAENS 2020 Singapore - U.S. Gulf Coast (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<a href="https://schmidtocean.org/artificial-intelligence-guides-rapid-data-driven-exploration/">https://schmidtocean.org/artificial-intelligence-guides-rapid-data-driven-exploration/</a>
---

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	高橋 朋子  (Takahashi Tomoko)  (20806301)	国立研究開発法人海洋研究開発機構・超先鋭研究開発部門(超先鋭技術開発プログラム)・ポストドクトラル研究員    (82706)	
研究分担者	L i u Z o n g h u a  (Liu Zonghua)  (90844449)	東京大学・生産技術研究所・特任研究員    (12601)	

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
---------	---------