

令和 3 年 6 月 21 日現在

機関番号：32503

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K11683

研究課題名(和文) 河川、内湾水中マイクロプラスチック挙動解明と代替物質利用による将来濃度予測

研究課題名(英文) Environmental behaviors of microplastics in surface water of rivers and bays and predictions of future concentrations after the usage of alternatives of plastics

研究代表者

亀田 豊 (Kameda, Yutaka)

千葉工業大学・創造工学部・准教授

研究者番号：60397081

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：環境中における20 $\mu\text{m}$ 以上のマイクロプラスチック調査分析手法を開発し、鶴見川における存在状況を調査した。その結果、従来の調査方法よりも数倍から10倍程度の濃度が上流から下流域まで測定された。この原因は粒度分布のメディアン径が50 $\mu\text{m}$ 程度であったことから、従来の調査の対象粒径である330 $\mu\text{m}$ ではマイクロプラスチックのごく一部しか測定していないためと推定された。一方、環境中のメディアン径は各ポリマーのバージン状態の引張強度と正の相関が観察され、物理的強度の高いポリマーは環境中で細粒化しにくいことが明らかとなった。一方、AIST-SHANELを用いて、多摩川及び鶴見川の河川水中濃度の推定も行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

環境中の20 $\mu\text{m}$ 以上のマイクロプラスチックの調査分析方法を確立した。この点は学術的に解明すべき100 $\mu\text{m}$ 以下のマイクロプラスチックの環境中挙動の解析に大きな貢献を果たすものと期待される。また、環境中マイクロプラスチックの調査は世界的にも技術的に困難であるが、システムティックな本手法により世界的に調査が促進されるものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：A novel method to measure microplastics greater than 20 micron in aquatic environment was established and their occurrences in surface water of Tsurumi river was investigated. The observed concentrations were several to 10 times higher than previous reports. This may be caused that their median sizes of the size distributions were approximately 50 micron, indicating that previous microplastics data greater than 330 micron was only a small part of all microplastics. The median sizes were correlated significantly to the tensile strengths of their virgin polymer. This is the important evidence that physically strong polymers can not be fragmented easier than "soft" polymers.

On the other hand, microplastics concentrations were predicted in Tama river and Tsurumi river by using an AIST-SHANEL simulation model.

研究分野：環境化学

キーワード：マイクロプラスチック 微細粒子 顕微FTIR 河川 粒度分布 AIST-SHANEL 細粒化

1. 研究開始当初の背景

- (1) 環境中のマイクロプラスチック (以後 MPs と称す) の調査は非常に労力がかかるとともに分析精度の低さや不安定さにも大きな問題があった。さらに、300 μm 程度以下の MPs の定量的な分析調査自体は不可能に近かった。
- (2) 環境中の MPs の挙動は不明な点が多く、特に粒度分布や環境中における微細化に関する研究は大きく遅れていた。
- (3) 河川水中の MPs 濃度の把握は (1) に前述したような背景で困難なため、シミュレーションによる予測が有効と考えられた。しかし、MPs の河川への排出負荷量原単位等のパラメーターの不足により予測の試みは困難であった。

2. 研究の目的

- (1) 20 μm 以上の河川水中 MPs の汎用的な高精度調査分析手法の確立
- (2) 上記手法を用いた国内代表河川 (鶴見川、多摩川) における MPs 存在調査
- (3) 河川水中 MPs の濃度分布及び粒度分布
- (4) 河川水中 MPs の粒度分布に与える影響因子の推定
- (5) 産総研-水系暴露解析モデル (national institute of Advanced Industrial Science and Technology- Standardized Hydrology-based Assessment tool for chemical Exposure Load: 通称 AIST-SHANEL)を用いた鶴見川および多摩川水中 MPs 濃度予測

3. 研究の方法

- (1) <高精度調査分析手法の確立>  
従来の分析方法では分析者の主観による MPs 選別過程により、微小な MPs の分析や高精度の分析が困難であった。そこで、顕微 FTIR を用いた MPs の自動検出方法を利用した。また、簡便な前処理方法の開発、導入により前処理時のコンタミネーションの削減により定量化現地の低下及び分析の高速化を行った。
- (2) <MPs 存在調査>  
2018 年及び 2020 年に、基底状態における鶴見川および多摩川にて源流から下流にわたる計 5 地点にて河川水中 MPs を採取した。現場にて河川水 1m<sup>3</sup> を 10 μm のプランクトンネットで濾過し、MPs を含む懸濁態を研究室に持ち帰り、(1) で開発した分析手法を用いて、MPs 濃度、MPs 粒子の短径及び長径、ポリマー組成を分析した。
- (3) (2) で得られたデータを利用した。
- (4) (2) で得られたデータを利用した。
- (5) 別研究で得られた、十数か所の下水処理場における下水原水中の MPs 調査結果を用いて、ポリマー別に人口一人当たり一日当たり排出量原単位を推定した。なお、今回は処理場における計画人口と一日当たりの下水処理場への MPs 流入量との間に統計学的に有意な相関のあったアルキド樹脂 (Alkyd) およびポリエチレンテレフタレート (PET) の排出量原単位を利用した。AIST-SHANEL 予測では平常時の MPs 濃度を対象として、入力データを下水処理場からの流入水及びその除去率から、河川水中へ流入する MPs 量を推定した。さらに、河川水中の MPs は、流下過程で沈降、沈着、分解はしない条件とし、最終的に多摩川及び鶴見川における MPs 濃度分布を推定した。

4. 研究成果

(1) 調査分析方法の確立

図 1 に開発した MPs 分析手法を示す。開発した MPs 分析方法では、まず現場にて河川水 1m<sup>3</sup> を 10 μm のプランクトンネットで濾過し、MPs を含む懸濁態を研究室に持ち帰った。懸濁態は 200mL のトルビーカー内で 30% 過酸化水素水で酸化後、NaI 水溶液で比重分離を行い、上澄み液を PTFE メンブレンで濾過した。最後にメンブレン上の懸濁態を顕微 FTIR (ThermoScientific 社製 Nicolet iN10MX : 図 1) にて自動分析を行った。従来の分析方法では、分析者が MPs らしきものをピンセットで拾い、それを FTIR に一つ一つセットし、その材質を同定することで MPs を測定していた。さらに、プラスチックであった粒子のサイズを顕微

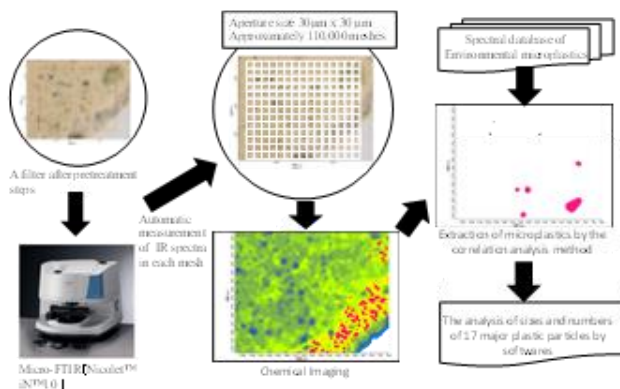


図 1 開発した顕微 FTIR による 20 μm 以上の MPs 分析手法

鏡等で測定していた。しかし、開発した手法では分析者はMPsを一切拾う必要はなく、さらに、拾えないほどの小さなMPsまで、顕微FTIRによる測定が自動で行われ、同時にサイズも測定される。この手法により、分析者の分析技術に依存せず、かつ20 $\mu\text{m}$ 以上までのMPsを高精度で測定できるようになった。

### (2) 鶴見川河川水中調査

図2に、代表例として、鶴見川の上流から下流に向けての河川水中MPs濃度結果を示す。A地点から順に下流を示すが、鶴見川の源流域(A地点)でも約300個/ $\text{m}^3$ 程度のMPsが検出された。その主なポリマーはポリエチレン(PE)であった。下流に向かうにつれ、濃度は増加した。これは、各調査地点間に下水処理場からの下水処理水の流入があるためと考えられた。なお、C地点での濃度の減少は清澄な支流が合流したことによる希釈と考えられた。最も濃度が高かったのは、河口域のE地点で約1200個/ $\text{m}^3$ であった。下流地点では、PEのほかにも、ポリプロピレン(PP)やAlkyd、PETなどが大幅に増加するとともに検出されたポリマー数も増加していった。この結果やこれらのポリマー組成を多成分解析することで、鶴見川の河川水中MPsは下水処理水や都市地域からの越流水等による流入が主な原因と推定された。

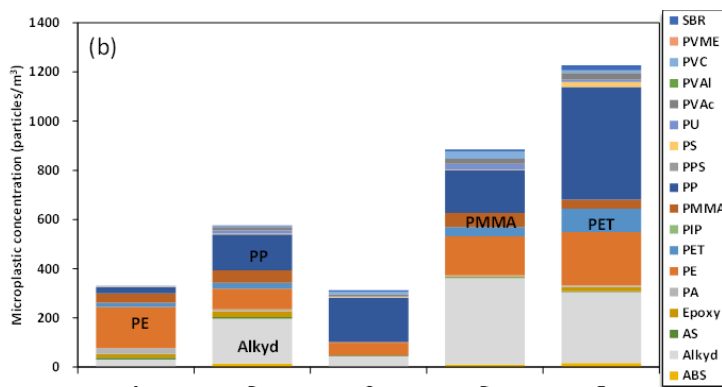


図2 鶴見川上流から下流における河川水中MPs濃度

### (3) 粒径分布

図3に代表例として鶴見川河川水中のMPsの粒度分布を示す。また、流域内の下水処理場の原水と処理水の粒度分布も併せて示す。鶴見川には全体流量の約7割を下水処理水が占めているが、MPsの粒度分布は下水や下水処理水も粗いことがわかる。つまり、この原因は下水処理水以外の発生源、例えば都市域からのMPsのノンポイントソース汚染が考えられた。この傾向はB, D, Eといった下流地点のMPsの粒度分布がAやC地点よりも粗いことから、都市域からのノンポイントソース汚染が考えられた。

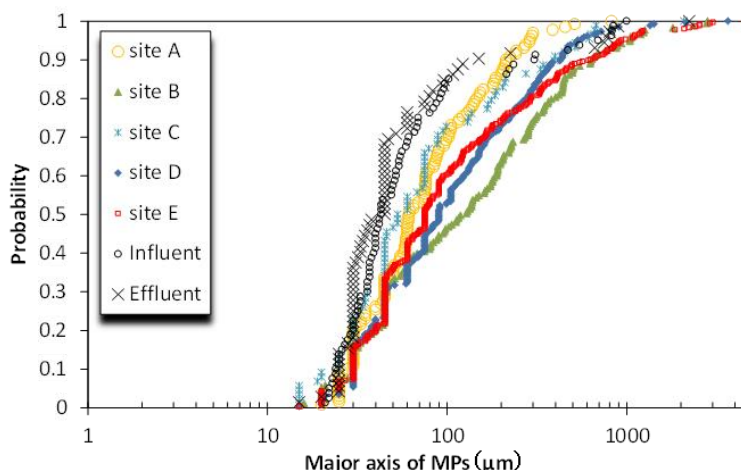


図3 鶴見川上流から下流における河川水中MPsの粒度分布

MPsの粒度分布のメディアン径はおよそ50~100 $\mu\text{m}$ であった。このことは、従来のMPs調査が330 $\mu\text{m}$ で採取できるものを中心とした調査であることを考慮すると、従来の調査ではMPs濃度をかなり数倍から10倍程度過小評価していることが明らかとなった。

### (4) 粒度分布に与えるポリマーの物理的強度の影響

(3)ではMPs全体の粒度分布を評価したが、実際のMPsは様々なポリマーの粒子や繊維の集合体であるため、物質別の正確な粒度分布を表していない。そこで、図4にポリマー別の粒度分布から求めたメディアン径と、そのポリマーのバージン状態における引張強度との関係性を示す。鶴見川において最も小さいメディアン径であったのはスチレンブタジエンゴム(SBR)であり、ついでポリビニルアセテート(PVAc)、PEであった。一方、メディアン径が大きかったのはPET、Alkydであった。また、図4から明らかのように引張強度と水中におけるメディアン径の間には統計学的にとっても強い正の相関が確認された。つまり、使用する前のプラスチックの引張強度が大きいものほど、つまり切れにくいものほど環境中には大きな粒子や繊維として残留していることが明らかになった。この結果は従来から多くの科学者から予想されていたが、環境中の実測データを用いて明らかにしたのは世界初となる。

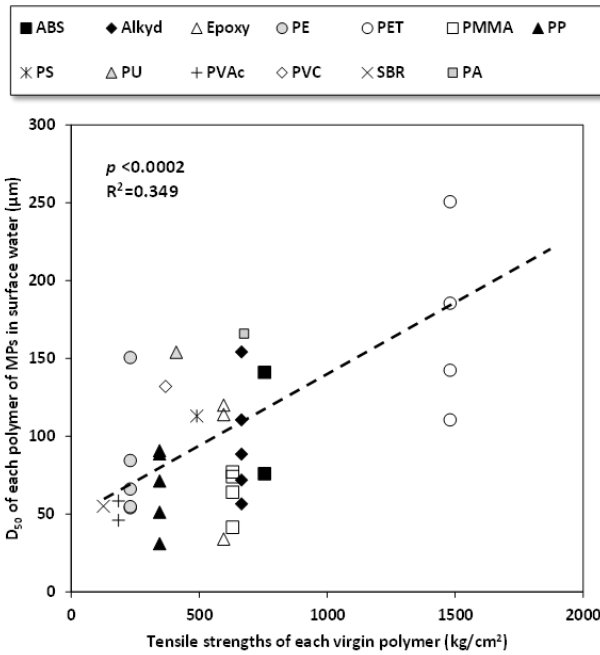


図 4 鶴見川河川水中 MPs のポリマー別メディア径とバージンポリマーの引張強度との関係

(5) 多摩川 AIST-SHANEL 推定

AIST-SHANEL を用いた河川水中濃度推定結果の一例として多摩川の事例を図 5 に示す。さらに、図 6 に流下方向の推定濃度結果、図 7 に推定結果と実測値の比較を示す。今回は、シミュレーションの前提として、下水処理水からのみ MPs が多摩川に流入するとした。図 5 や図 6 から明らかなように、シミュレーションにより下水処理水が流入するたびに多摩川河川水中の MPs 濃度はシグナル上に増加していることが明らかとなった。

一方、図 7 に実測値とシミュレーションによる推定値との割合を示すが、全 MPs や Alkyd では、実測値が推定地の数十～千倍以上高いことがわかる。つまり、シミュレーションにより過小評価している結果となった。この理由は全 MPs や Alkyd は下水処理水のみならず、都市域からのノンポイントソース的な由来が大きいと考えられた。したがって、これらの濃度の推定にはノンポイントソースを入力データとして追加することの重要性が示唆された。

これとは比較して PET の比率は釜の淵公園を除く四地点でいずれも 2 倍以内に収まった。下水中には各家庭の洗濯時の衣服からのほつれが由来の PET 繊維が数多く存在することが既往の報告で明らかとなっている。このことから、多摩川河川水中の PET マイクロプラスチックは、洗濯由来が大半を占めていることが推定され、都市からのノンポイントソースの影響は小さいことが示唆された。

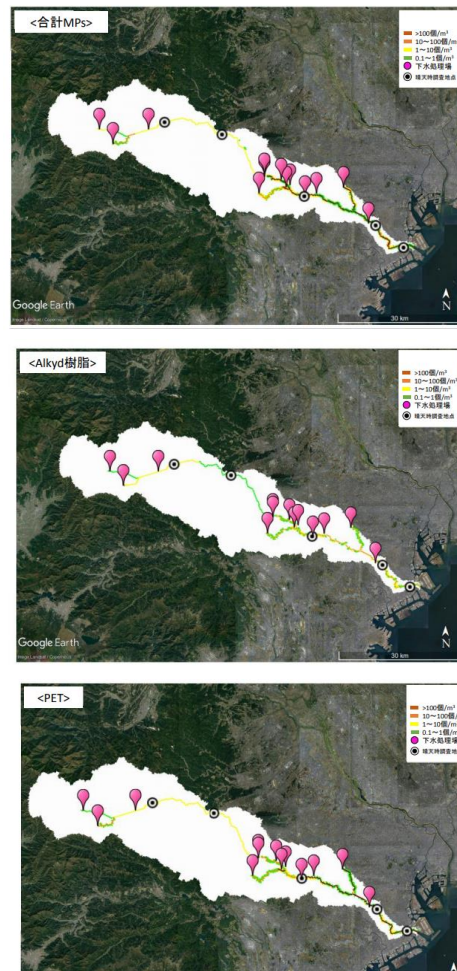


図 5 多摩川河川水中 MPs 濃度シミュレーション結果 (上: 全 MPs、中: Alkyd、下: PET)

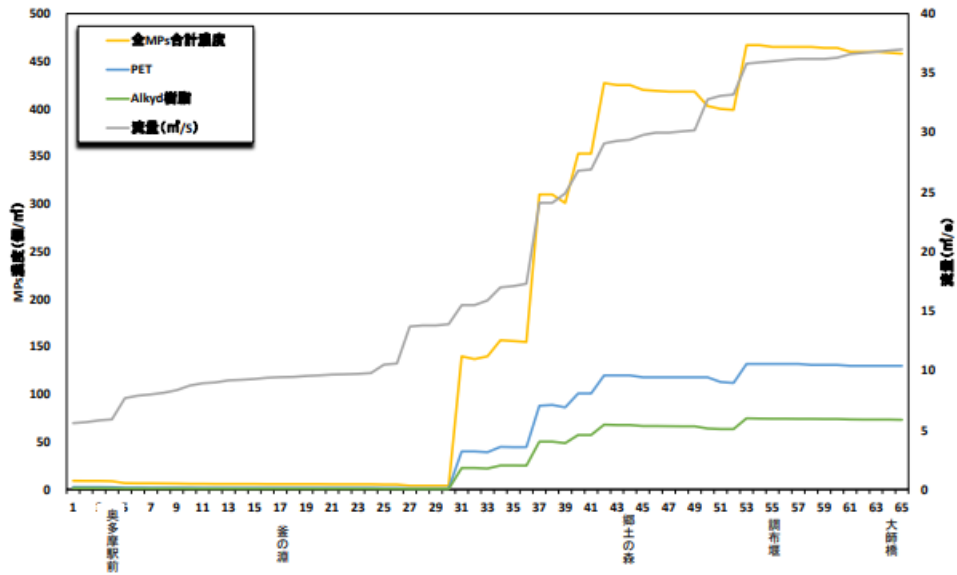


図 6 多摩川河川水中 MPs 濃度シミュレーション河川流下方向結果

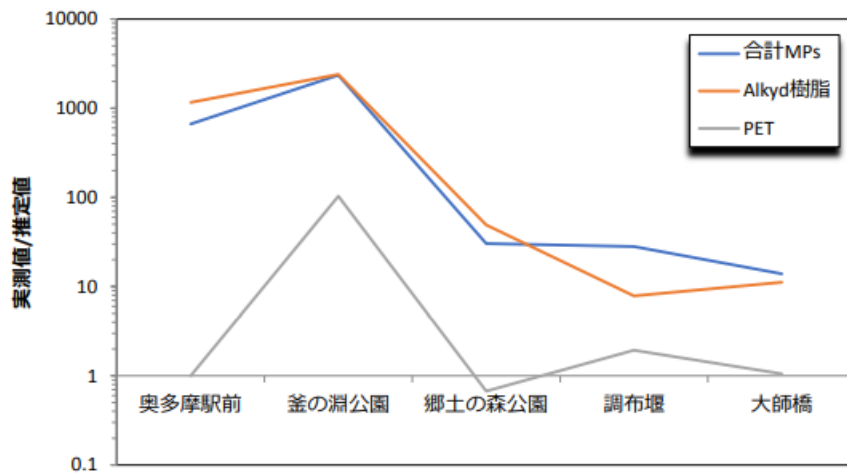


図 7 多摩川河川水中 MPs 濃度シミュレーション結果と実測値の比較

<結論>

本研究では 20  $\mu\text{m}$  以上の MPs の高精度分析手法を確立し、多摩川や鶴見川河川水中の MPs の濃度、ポリマー組成、粒度分布、それらに与える物理因子や発生源について解析を行い、世界的にも新たな知見を得た。今後より詳細な MPs 情報が確立された調査分析手法で明らかになることが期待される。また、MPs の環境中動態の解明や削減対策の立案に大きな貢献も果たすことが予想される。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 2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 亀田豊	4. 巻 64
2. 論文標題 微細マイクロプラスチックの自動分析技術とその展開	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ケミカルエンジニアリング	6. 最初と最後の頁 28-32
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 -

1. 著者名 亀田豊	4. 巻 24
2. 論文標題 環境試料中マイクロプラスチックの調査分析方法の整理と課題	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 EICA	6. 最初と最後の頁 30-34
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 -

1. 著者名 亀田豊	4. 巻 18
2. 論文標題 下水及び下水処理水中の微細マイクロプラスチックの測定技術と調査事例	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 環境浄化技術	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 -

1. 著者名 亀田豊	4. 巻 7
2. 論文標題 下水および淡水域におけるマイクロプラスチック汚染の状況	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 月刊下水道	6. 最初と最後の頁 24-29
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 -

1. 著者名 Yutaka Kameda, Naofumi Yamada, Emiko Fujita	4. 巻 284
2. 論文標題 Source- and polymer-specific size distributions of fine microplastics in surface water in an urban river	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Pollution	6. 最初と最後の頁 117516
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.envpol.2021.117516	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 大塚 佳臣, 高田 秀重, 二瓶 泰雄, 亀田 豊, 西川 可穂子	4. 巻 44
2. 論文標題 マイクロプラスチック汚染研究の現状と課題	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 水環境学会誌	6. 最初と最後の頁 35-42
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2965/jswe.44.35	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28件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 亀田豊
2. 発表標題 環境中微細マイクロプラスチックの分析技術の国際標準化と新しい研究/規制の動向
3. 学会等名 JASIS 2020 最先端科学・分析システム&ソリューション展 (招待講演)
4. 発表年 2019年~2020年

1. 発表者名 亀田豊
2. 発表標題 環境中微細マイクロプラスチック研究の現在とこれから
3. 学会等名 日本分析化学会 (招待講演)
4. 発表年 2019年~2020年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 Non-target analysis to measure microplastics and emerging debris by automatic microFTIR with Multivariate Curve Resolution analysis and Correlation analysis
3. 学会等名 SETAC Europe 29th Annual meeting
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 Occurrence of fine microplastics and other emerging debris in Lake Baikal
3. 学会等名 SETAC Europe 29th Annual meeting
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 Occurrence of fine microplastics and other emerging debris in seawater from Japanese tropical area
3. 学会等名 SETAC Europe 29th Annual meeting
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 Occurrence of fine microplastics and other emerging debris in aquatic biota at a contaminated bay compared with those in Japanese tropical area
3. 学会等名 SETAC Europe 29th Annual meeting
4. 発表年 2019年～2020年



1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 Microplastics loading estimation on urban areas to sewage treatment plants based from a monitoring campaign in Japan
3. 学会等名 SETAC Europe 29tn Annual meeting
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 Occurrence of fine microplastics and other emerging debris from a river in Japanese urban area
3. 学会等名 SETAC Europe 29tn Annual meeting
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 亀田豊、藤田恵美子
2. 発表標題 AIST-SHANELを用いた鶴見川水中洗顔料及び口紅由来ポリエチレン
3. 学会等名 第28回環境化学討論会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 亀田豊、藤田恵美子
2. 発表標題 沖縄ビーチにおける水中及び砂浜中マイクロプラスチックの存在特性-陸域からの流入及び砂浜の濃縮特性に関する考察-
3. 学会等名 第28回環境化学討論会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 亀田豊、藤田恵美子
2. 発表標題 鶴見川における水中マイクロプラスチックの存在特性～微細マイクロプラスチックの測定は必要か？～
3. 学会等名 第28回環境化学討論会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 Occurrence of fine microplastics in seawater from Japanese tropical area and their partitioning between seawater and beach sand
3. 学会等名 SETAC 40th North America annual meeting
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 Occurrence of fine microplastics in surface water from a river contaminated by sewage treatment plant effluent in Japan
3. 学会等名 SETAC 40th North America annual meeting
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 Prediction of polyethylene microplastic concentration originated from face wash products and lip products in surface water by AIST-SHANEL model
3. 学会等名 SETAC 40th North America annual meeting
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 Microplastics loading estimation and their daily variation on urban area to sewage treatment plants in Japan
3. 学会等名 SETAC 40th North America annual meeting
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 An International research about environmental behaviors of fine microplastics along Kuroshio Current (Western Pacific Ocean)
3. 学会等名 SETAC 40th North America annual meeting
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 亀田豊、藤田恵美子
2. 発表標題 鶴見川水中マイクロプラスチックのワイブル分布関数による粒径特性評価
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 加谷真悟、藤田恵美子、亀田豊
2. 発表標題 太平洋西部海域におけるマイクロプラスチック環境中挙動解明研究
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 西野琉来、藤田恵美子、亀田豊
2. 発表標題 下水処理場におけるマイクロプラスチックの流入負荷量、除去、処理水特性の把握
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 前田広大、西野琉来、徳田大地、亀田豊
2. 発表標題 柔軟剤製品中のマイクロプラスチックの存在特性実態
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 平井一帆、亀田豊
2. 発表標題 水道水中のマイクロプラスチックの分析方法の確立と汚染特性調査
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 A novel technique to qualify and quantify fine microplastics in surface water
3. 学会等名 SETAC North America annual meeting (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yutaka Kameda
2. 発表標題 Microplastics loading estimation from urban areas to sewage treatment plants
3. 学会等名 SETAC North America annual meeting (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 安田貴政、亀田豊
2. 発表標題 顕微FTIRによる微小マイクロプラスチック自動分析手法の確立
3. 学会等名 日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 亀田豊、藤田恵美子
2. 発表標題 顕微FTIRによる下水流入水中マイクロプラスチック特性と負荷量原単位推定
3. 学会等名 日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 寺川太志、水間咲、亀田豊
2. 発表標題 沖縄のビーチにおける海水及び砂浜中マイクロプラスチック存在量調査
3. 学会等名 日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山田直史、 亀田豊
2. 発表標題 顕微FTIRによる鶴見川における
3. 学会等名 日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 六川寛紀、鎗田愛生、佐藤良亮、亀田 豊
2. 発表標題 東京湾に生息する牡蠣体内中マイクロプラスチックの存在量調査
3. 学会等名 日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 亀田豊	4. 発行年 2020年
2. 出版社 技術情報協会	5. 総ページ数 446
3. 書名 生分解,バイオマスプラスチックの開発と応用	

〔産業財産権〕

〔その他〕

千葉工業大学 水環境化学研究室 <a href="https://sites.google.com/a/p.chibakoudai.jp/yutaka-kameda/">https://sites.google.com/a/p.chibakoudai.jp/yutaka-kameda/</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	田代 豊  (Tashiro Yutaka)  (20441959)	名城大学・国際学部・教授     (28003)	

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