

令和 4 年 4 月 25 日現在

機関番号：14301

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化(B)）

研究期間：2018～2021

課題番号：18KK0118

研究課題名（和文）アジアの都市水循環系におけるマイクロプラスチックの挙動および発生源の推定

研究課題名（英文）Study on behavior of microplastics in urban water cycle in Asia and estimation of the source

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） 13,500,000円

研究成果の概要（和文）：5mm未満のプラスチックによる水環境汚染が問題となっている。本研究では、プラスチックゴミの排出量が多いアジアの都市の水循環系におけるMPsの分布および動態を把握し、発生源の特定を行うことを主目的とした。ベトナム国ダナン市、ネパール国カトマンズ市、滋賀県草津市において道路塵埃中のMPs汚染の現況調査結果を整理し、発生源のひとつがタイヤ由来のプラスチックやプラスチック製のレジ袋であることが示された。さらに、紫外線、足踏などの物理的要因が交互作用となってプラスチックの微細化を促進することが示された。流域における環境動態を把握することで、緊急的に対策が必要な排出源の特定を行い、成果を社会に発信した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

マイクロプラスチック（MPs）の分析では前処理方法や計測、同定の方法など統一化されていないため、同一研究者が同じ方法で分析した結果が重要となる。本研究ではベトナム国ダナン市、ネパール国カトマンズ市、滋賀県草津市の3か所の道路塵埃、河川表流水を対象に、同一方法で調査、前処理、分析を行い、その結果を比較することができた。その結果、滋賀県と比較してカトマンズ市では2万～184万倍高く河川表流水がMPs汚染されていることが示された。廃棄物管理、下水処理などが河川表流水中のMPs汚染に有効に寄与していることが示されるとともに、途上国において有効な対策を立てるための礎となるデータを得ることができた。

研究成果の概要（英文）：Water environmental pollution by plastic less than 5 mm is one of the worldwide issues. Main objective of this study is to understand the distribution and dynamics of microplastics in the water cycle system of Asian cities with high plastic waste emissions, and to identify the source. Results of the survey of MPs contamination in road dusts in Da Nang, Vietnam, and Kathmandu in Nepal, and Kusatsu, Japan were summarized, and it was shown that one of the sources was plastic derived from tires and plastic bags. Furthermore, it was shown that physical factors such as ultraviolet rays and stepping acted as interactions to promote the miniaturization of plastics. By grasping environmental dynamics in watersheds, we identified emission sources that urgently need to be taken, and disseminated the results to society.

研究分野：環境工学

キーワード：マイクロプラスチック 水循環系 アジア 動態解析 路面塵埃

1. 研究開始当初の背景

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., *Envi. Sci. & Tech.*)、2013年にはプラスチックゴミを誤飲した海鳥の体内への臭素化燃焼剤の蓄積が報告された (Tanaka *et al*, *Mar. Poll. Bull.*)。2015年にUNEPが化粧品等へのMPs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る。海洋に排出されたプラスチックゴミの重量に関する報告では、排出量上位20か国のうち13か国がアジアの国であった。さらに2009~2017年に“Microplastics”をキーワードにした論文は1,605編発表されているが、排出源と推定される陸水、都市を対象とした論文は90編であり、全体の6%未満に過ぎなかった。

人間活動が日々盛んになるアジア新興国の都市部では、プラスチックによる汚染が顕在化してきている。先進国では焼却処分されるプラスチック廃棄物も埋め立てられるケースが多く、都市水循環系におけるプラスチックの残留が懸念される。自然環境中での滞留時間が長期化したプラスチックは、予め添加された化学物質以外に環境中から多様な化学物質を収着していることが疑われる。また、紫外線等により細分化されマイクロプラスチックとなることで水系に流出し、下水処理場等で他の環境化学物質を取り込み、それらの輸送媒体となる可能性もある。しかし、これらの知見は未だ十分ではない。

アジアの都市水循環を考えた際、健全な水環境を提供することが急務であると考えられる。特にエネルギーコスト面からも省エネで高効率な処理技術が必要不可欠であるといえる。特に途上国等の電力供給が不安定な地域では的確に水処理が行われず、病原微生物汚染が懸念される。これら病原微生物を適切に処理するための技術として消毒が必要不可欠となるが、施設面、電力面からも日本国内で利用されてきている技術をそのまま利用することは困難であると思われる。対応する地域に適切にカスタム可能な消毒手法を提案することが重要であるといえる。

水辺ではレジ袋やペットボトル等のプラスチックゴミを見かけるが、これらの環境運命は明らかになっていなかった。研究代表者らは琵琶湖、大阪湾で合計1,768のMPsを分析し、26種類を検出したが、ポリエチレンテレフタレート (PET) は検出されなかった。PETの歴史は約45年であり、45年間では環境中で微小片化していない可能性が考えられる。その後の使用量を考えると、今後、環境中で現れるPET成分MPsの数は膨大となる。MPsはどこで発生し、どのような大きさで、どこに存在しているのか。本「問い」に答えるべく、流域単位でのMPsの挙動把握の研究課題を設定した。

2. 研究の目的

海洋プラスチックゴミの排出量が多いアジアの都市水循環系におけるMPsの分布および動態を把握し、発生源の特定を行うことを主目的とした。従来の研究では300 μ m~5mmのMPsを対象とすることが多かった。研究代表者らは100 μ mまでの測定方法を確立しており、本研究では、さらに微小細片の採取、計測、成分同定方法を検討する。並行して、アジアの都市水循環系における道路塵埃・雨天時排水、家庭排水、下水処理工程、農業排水、工業廃水、水環境での存在実態を明らかにする。MPsを介した有害化学物質の生物へ移行量を定量的に把握し、微細片化した断片の生成経路を予測する。病原微生物については、小型化かつ省エネルギーで汎用性が高いと考えられる深紫外LEDならびに既存の紫外線消毒として用いられている低圧および高圧紫外線ランプを用い、病原微生物の不活化特性を評価し、深紫外LEDの利用可能性を評価することを目的に研究を行った。

3. 研究の方法

環境水、底泥など対象物に合わせた有機物分解法による分離法を適用し、夾雑物を取り除いた試料をステンレス製のフィルター (孔径10 μ m) に通し、顕微FTIRを用いてMPsの計測、同定した。蛍光物質はある特定の波長の光を吸収して、それに比べてより長い波長の光を放出する性質を持つ。ファイバー状のMPsは特定が困難であったが、本特性を利用し、MPsのみを染色することで蛍光顕微鏡により計測、同定する方法を検討した。

本手法を用いて、ベトナム国ダナン市Phu Loc川流域およびネパール国カトマンズ盆地のBagmati川流域において、道路塵埃と河川水を採水し、現地でも前処理を行った後、試料を日本に持ち帰り、MPsの計測、同定を行った。また、カトマンズの路面に放置されたプラスチック製レジ袋から紫外線照射と足踏み作用によりMPsが生成する過程を模擬した試験系を開発し、紫外線と足踏みの交互作用によって微細化している過程を示すことができた。

プラスチックと化学物質の吸着に関する研究では、4種のプラスチック (ポリエチレン (PE)、PET、ポリスチレン (PS)、ナイロン (Ny6)) を各々50~500mgの4段階濃度で模擬廃水中に準備し、そこに都市下水中に多く含まれると予想される医薬類として、下水からの検出事例が国内外で報告されているアジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェン、カフェイン、クロタミトン、サルファメトキサゾールの7種を個別に20 μ g/L添加して、120hの回分吸着試験を実施した。実験終了後、各試料から医薬品類を溶脱させ、前処理

をして、LC-MS/MSに供した。

環境中から検出される頻度が高い材質の一つである PE の標準粒子を用いて、実下水試料への曝露実験を行い、曝露前後の PE 粒子をノンターゲット分析に供して、下水中で吸脱着しやすい化学物質群の探索を試みた。曝露実験は、PE 粒子と下水試料の接触時間を 0 h (曝露直後)、8 h、24 h、72 h とし、ろ過した粒子を凍結乾燥後、超音波抽出により前処理して LC-QToF-MS 測定に供して、データ非依存 MS/MS 情報として取り込み解析した。さらに新興国で重要となる分散型生活排水処理装置として浄化槽に着目し、躯体や生物処理用の担体に用いられる素材について関連業者にヒアリングをするとともに、FTIR を用いて 5 種の浄化槽関連素材の材質の同定を試みた。

指標病原微生物として取り扱いが容易な大腸菌および大腸菌 phage MS2 を用いて、一般的に紫外線消毒で利用されている低圧および高圧紫外線ランプ、近年市場規模が拡大している深紫外 LED を用い、実験室規模で照射試験を行った。さらに遺伝子定量装置 (Real-time PCR 装置) を用い、紫外線照射前後での発現遺伝子の減少割合を検討した。評価方法として使用した紫外線ランプの主波長がすべて異なるため、一律の評価基準として「有効放射紫外線量」を定義し、波長 254 nm での紫外線照度に換算した値を用い評価を行った。

4. 研究成果

2018 年 9 ~ 10 月にネパール国カトマンズ市街において、河川表層水を 5 地点で、道路塵埃を 4 地点で採取した。その後 H_2O_2 (30%)、NaI を用いて夾雑物を除去したのち、100 μm 以上の MPs を対象とし、顕微鏡と FTIR-ATR により計測、成分同定を行った。その結果、カトマンズ市街を流れるビシュマティ川の上流から 400 個/ m^3 の MPs を検出した。中流ではさらに 9,400 個/ m^3 に増加し、下流では 36,800 個/ m^3 に達した。またバグマティ川でも 1,500 ~ 4,800 個/ m^3 の MPs を検出した。琵琶湖流入河川で実施した同様の調査の結果と比較すると、20,000 ~ 1,840,000 倍高い結果となった。日本の分流式下水処理場の流入水中の MPs 含有密度は 600 個/ m^3 と報告されており、カトマンズの河川の MPs 汚染の深刻さを示す結果となった。

ベトナム国ダナン市、ネパール国カトマンズ市、滋賀県草津市において道路塵埃中のマイクロプラスチック汚染の現況調査結果を整理して、*Environmental Pollution* に発表した。ダナン工科大の Quang 博士、トリバン大の Sangeeta 博士との共同研究の成果であり、都市水循環系の一経路である道路塵埃にもマイクロプラスチックが存在し、特にカトマンズ市で高い結果を示した。さらにカトマンズにおける存在実態を詳細に解析し河川への負荷源の検討を行った結果を、「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」として、土木学会論文集 G (環境) に発表した。さらに、The North Pacific Marine Science Organization-2019 Annual Meeting において口頭発表した。若手研究者に国際学会での口頭発表という機会を与えることができた。ダナン市においてはマイクロプラスチックに吸着し水環境中を挙動していると考えられる多環芳香族炭化水素類について、河川、道路面のみならず、水循環系における挙動の把握を試みた。カトマンズ市においては水利用目的別のペルおよびポリフルオロアルキル物質の排出原単位を検討した。

路上におけるレジ袋およびストローからの MPs の生成試験の試験系を開発し、計 6 種類のレジ袋とストローからの MPs の生成挙動を検討した。その結果、紫外線による劣化と足踏作用による物理的影響により、1 cm^2 の試料から 5,000 以上の MPs の生成を確認した (20 μm 以上)。さらに、全体の 40% が 20 μm よりも小さくなっていることが示された。すなわち、路上において目に見えない大きさの MPs が生成していることが示された。また、MPs の劣化指標の検討を行い、マルテンス硬度が有効な指標の一つであることが示された。

分子量が大きく正電荷を持つアジスロマイシンやクラリスロマイシンが PET, PE, PS に吸着されやすく、正電荷を持つ Ny6 では他の材質では吸着されにくかったケトプロフェンが強く吸着される傾向があった。ケトプロフェンは水中で陰イオンとして存在しやすく ($pK_a = 4.45$)、MPs と医薬品の物性が相互に吸着機構に影響していることが示唆された。

ESI (-) データの解析結果から、標準品として準備した PE 粒子から下水に曝露したことにより水中に脱着された化学物質が多く存在する可能性が示唆された。また、下水中からマイクロプラスチックに吸着されやすい化学物質群を同定する有力な解析手順が見出された。

新たに製造される多くの浄化槽では内壁にガラス繊維強化型プラスチック (Fiber Reinforced Plastics) が用いられていること、耐久性が弱く経年劣化して脆くなりやすいウレタンは使用頻度が下がり、近年では低密度 PE が多く用いられていることが分かった。また、FRP では、ガラス繊維の表面にゴム素材が加工され、PTFE でコーティングされていた。また、担体では、ヒアリング情報と同様に、ポリウレタンやポリエチレンが同定された一方で、再生ポリプロピレンを用いた担体から、変異原性物質の一種である Trenimon が検出された。再生プラスチックではない素材からは同様の検出がみられなかったことから、一度使用されて再生利用されるまでの間に、環境中で吸着された可能性が示唆された。令和 4 年 4 月からプラスチックに係る資源循環の促進等に関する法律が施行され、今後ますますプラスチック資源の循環利用が促進される。本研究では、プラスチックの再生利用には、共存化合物の適切な前処理が重要であることが見出された。

新光源として注目されている深紫外 LED および既存の水処理技術として利用されている低圧紫外線ランプおよび高圧紫外線ランプを用い、指標微生物として大腸菌および抗生物質耐性

を有している大腸菌（薬剤耐性菌）ならびに大腸菌 phage MS2 を対象に、実験室規模で紫外線照射実験を行った結果、波長 278 nm、350 mA の深紫外 LED 照射で十分に既存のランプと同等以上に不活化することが確認された。またエネルギー消費の観点から評価した結果、深紫外 LED が最も効率よく対象病原微生物を不活化可能であることが明らかとなった。特に大腸菌の不活化では既存の紫外線ランプよりも深紫外 LED を用いることで概ね 1.5 ~ 1.8 倍の不活化が達成された。また、大腸菌 phage MS2 を対象に、Real-time PCR 法により紫外線照射前後の発現遺伝子減少割合を評価した結果、発現遺伝子減少割合が 1 Log 見込まれる場合、培養法による感染価では概ね 7 Log の不活化が見込まれることが明らかとなった。この結果は深紫外 LED および低圧紫外線ランプを用いた場合と同等の結果であった。LED は通常利用されている紫外線ランプよりも小型かつ省エネルギーであるため、途上国等の電力供給が不安定な場所でも深紫外 LED を用いることで、消毒が不十分な水に対しても効果的に消毒が可能であることが示唆された。

<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/jscej.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/jscej.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/jscej.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 2件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 芳野浩志, 田中周平, 藤井滋穂, 雪岡聖, 北地優太, 寺岡秋津, 濱島健太郎, Tran Van Quang, Sangeeta Singh	4. 巻 vol.34, No.3
2. 論文標題 後発開発途上国と新興国の水利用目的別のペルおよびポリフルオロアルキル物質 (PFASs) の排出原単位の比較	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 環境衛生工学研究	6. 最初と最後の頁 31-33
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 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) 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 岡本 萌巴美, 田中 周平, 雪岡 聖, 藤井 滋穂, Sangeeta Singh, 高田 秀重	4. 巻 56
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 環境工学研究論文集	6. 最初と最後の頁 111_127-111_134
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2208/jscej.75.7_111_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 和田一将, 田中周平, 藤井滋穂, Tran Van Quang	4. 巻 19
2. 論文標題 ベトナム国ダナン市における水環境中の多環芳香族炭化水素類の分布調査	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 環境技術学会年次大会予稿集	6. 最初と最後の頁 19
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 該当する

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 山田雄太, 田中周平, 雪岡聖, 芳野浩志, 藤井滋穂
2. 発表標題 滋賀県山寺川市街地における塵埃中の塩素化および臭素化PAHs の粒径別存在実態調査
3. 学会等名 日本水環境学会年会講演集
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 片岡弘貴, 田中周平, 岡本萌巴美, 雪岡聖, 藤井滋穂, 高尾和也, 生田久美子
2. 発表標題 路上におけるレジ袋およびストローからのマイクロプラスチックの生成挙動と劣化指標の検討
3. 学会等名 日本水環境学会年会講演集
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Moemi Okamoto, Shuhei Tanaka, Satoru Yukioka, Shigeo Fujii, Sangeeta Singh, 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 Moemi OKAMOTO, Shuhei TANAKA, Satoru YUKIOKA, Taishi Ushijima, Masaki KAKITA, Shigeo FUJII, Sangeeta SINGH, and Hideshige TAKADA
2. 発表標題 Microplastics Surveys in Surface Water of Bisunumati and Bagmati Rivers, and on the Roads in Kathmandu City, Nepal
3. 学会等名 The 28th Joint KAIST-KU-NTU-NUS Symposium on Environmental Engineering (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 有末大輝, 田中周平, 和田一将, 藤井滋穂, Ngoc An Hoang, Tran Van Quang
2. 発表標題 東南アジア新興国の都市河川流域における全窒素・全リンの循環実態および主要な負荷経路の推定
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 芳野浩志, 田中周平, 雪岡聖, 藤井滋穂, 北地優太, 寺岡秋津, 松川桜子, Tran Van Quang, Hoang Ngoc An
2. 発表標題 新興国の一般家庭における水利用目的別のペルおよびポリフルオロアルキル物質 (PFASs) の排出原単位の検討
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会
4. 発表年 2020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

〔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	鈴木 裕識 (SUZUKI Yuji) (20762272)	岐阜大学・工学部・准教授 (13701)	

6. 研究組織（つづき）

	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	安井 宣仁 (YASUI Nobuhito) (90547481)	近畿大学工業高等専門学校・総合システム工学科 都市環境 コース・講師 (54103)	

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