

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

SII-2-2 海洋プラスチックごみ及びその含有化学物質による 生態影響評価

J P M E E R F 1 8 S 2 0 2 2 0

平成30年度～令和2年度

Evaluation of Impacts of Microplastics and Associated Chemicals on Marine Ecosystem

(英文パンフレット等 : https://www.env.go.jp/policy/kenkyu/suishin/english/gaiyou/gaiyou_6.html)

<研究代表機関>

国立大学法人 東京農工大学

<研究分担機関>

国立大学法人 九州大学

国立大学法人 北海道大学

○図表番号の付番方法について

「Ⅰ. 成果の概要」の図表番号は「0. 通し番号」としております。なお、「Ⅱ. 成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。

「Ⅱ. 成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号. 通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

令和3年5月

目次

I. 成果の概要	・・・・・・・・・・	p.1
1. はじめに（研究背景等）		
2. 研究開発目的		
3. 研究目標		
4. 研究開発内容		
5. 研究成果		
5-1. 成果の概要		
5-2. 環境政策等への貢献		
5-3. 研究目標の達成状況		
6. 研究成果の発表状況		
6-1. 査読付き論文		
6-2. 知的財産権		
6-3. その他発表件数		
7. 国際共同研究等の状況		
8. 研究者略歴		
II. 成果の詳細		
II-1 海洋プラスチック及びその含有化学物質の海洋環境における分布と動態 （国立大学法人東京農工大学）	・・・・・・・・・・	p.17
要旨		
1. 研究開発目的		
2. 研究目標		
3. 研究開発内容		
4. 結果及び考察		
5. 研究目標の達成状況		
6. 引用文献		
II-2 マイクロプラスチックの生物影響評価 （国立大学法人九州大学）	・・・・・・・・・・	p.31
要旨		
1. 研究開発目的		
2. 研究目標		
3. 研究開発内容		
4. 結果及び考察		
5. 研究目標の達成状況		
6. 引用文献		
II-3 海洋プラスチック（マクロからマイクロまで）の海洋生態系への影響評価 （国立大学法人北海道大学）	・・・・・・・・・・	p.47
要旨		

1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
III. 研究成果の発表状況の詳細	・・・・・・・・・・ p.61
IV. 英文Abstract	・・・・・・・・・・ p.76

I. 成果の概要

課題名 海洋プラスチックごみ及びその含有化学物質による生態影響評価

課題代表者名 高田秀重
(国立大学法人東京農工大学 農学研究院 教授)

研究実施期間 平成30年度～令和2年度
但し、新型コロナウイルスの影響のため、令和3年5月まで延長

研究経費 (千円)

	契約額	実績額 (前事業年度繰越分支出額含む)
平成30年度	30,000	30,010
平成31年度(令和元年度)	32,006	31,907
令和2年度	32,373	32,494
合計額	94,379	94,411

本研究のキーワード マイクロプラスチック、粒子毒性、残留性有機汚染物質、内分泌攪乱化学物質、添加剤、海鳥、魚類、無脊椎動物、ベクター効果、遺伝子変動

研究体制

- (サブテーマ1) 海洋プラスチック及びその含有化学物質の海洋環境における分布と動態(国立大学法人 東京農工大学)
- (サブテーマ2) マイクロプラスチックの生物影響評価(国立大学法人 九州大学)
- (サブテーマ3) 海洋プラスチック(マクロからマイクロまで)の海洋生態系への影響評価(国立大学法人 北海道大学)

研究協力機関

研究協力機関はない。

1. はじめに(研究背景等)

海洋のプラスチックおよびマイクロプラスチックによる汚染は世界的に大きな懸念となってきた。プラスチックは生物が代謝・分解不能であるため、物理的異物として海洋生物へ粒子毒性を及ぼす可能性がある。特に、プラスチックの微細化に伴い、プラスチックを摂食し直接および食物連鎖を通して間接的に影響を受ける生物の種類が飛躍的に増えることから、マイクロプラスチック(5mm以下のプラスチック)の生物影響が大きな懸念となり、水棲生物への影響を調べるための室内実験が行われてきた。それらの室内実験結果から、欧州化学機関は暫定的ではあるが、6.65個/L¹⁾を粒子毒性の閾値として評価を行っている。日本の水環境のマイクロプラスチック(300 µm以上)濃度は東京湾で最大0.01個/L²⁾、首都圏の河川で最大0.005個/L³⁾と閾値より2桁以上低い値が報告されてきた。しかし、ごく最近300 µm以下のマイクロプラスチックまで測定した結果が報告され⁴⁾、隅田川河口の表層水中で2.3個/Lと閾値と同じオーダー、さらに下水処理水では8.7個/Lと閾値を超える値であることがわかってきた。生物への影響を考えるためには300 µm以下の微細なマイクロプラスチックの測定が必要であることが

示された。そこで本研究では、まず生物試料中の300 μm 以下のマイクロプラスチックの測定法を開発し、それを現場の生物に適用することを第一の目的とした。

物理的な影響に加えて、プラスチック製品に製造時に添加される様々な添加剤と海水中から吸着してくる疎水性有機汚染物質が含まれ、それらによる化学的な影響も懸念される。しかし、海洋生物へのプラスチックおよびマイクロプラスチックの取り込みは定量的には十分明らかにされておらず、特に生物組織への有害化学物質の蓄積とプラスチックの取りこみとの関連は野外の生物ではほとんど明らかにされていない。マイクロプラスチック中の有害化学物質の分布は吸着性の残留性有機汚染物質

(POPs)についてはInternational Pellet Watch等のモニタリングにより明らかにされてきたが、添加剤の存在・分布についての情報は極めて限定的である。さらに、プラスチックに吸着・含有される化学物質の摂食生物への移行・蓄積、さらに生物影響についてはほとんど明らかにされていない。本研究では、フィールドでの観測と室内実験によりプラスチックによる生物の汚染、プラスチック中の有害化学物質の含有実態を明らかにし、海洋プラスチックごみ/マイクロプラスチックの生体影響を評価することを目的とした。

本研究ではプラスチック添加剤に焦点を当てているが、対象添加剤の中のベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の一種UV328については、ストックホルム条約の2019年の残留性有機汚染物質検討委員会(POPRC)において、スイス代表よりUV328を規制対象物質に加える提案があり、POPRCにおいて検討が行われている。この過程で高田が招待され、第16回POPRCとその事前会議等でUV328のマイクロプラスチック中での分布、海鳥が摂食したプラスチックからのUV328の生物組織への移行・蓄積、UV328の海鳥汚染の地球規模での広がりなどについて、専門家として情報提供を行った。本研究成果はPOPRCで活用されている貴重なデータである。

引用文献

- 1) G. Everaert, L. Van Cauwenberghe, M. De Rijcke, A.A. Koelmans, J. Mees, M. Vandegehuchte, C.R. Janssen: Environmental Pollution, 242 1930-1938 (2018) Risk assessment of microplastics in the ocean: Modelling approach and first conclusions.
- 2) A. Isobe: Marine Pollution Bulletin, 110 (1) 432-437 (2016) Percentage of microbeads in pelagic microplastics within Japanese coastal waters.
- 3) T. Kataoka, Y. Nihei, K. Kudou, H. Hinata: Environmental Pollution, 244 958-965 (2019) Assessment of the sources and inflow processes of microplastics in the river environments of Japan.
- 4) M. Sugiura, H. Takada, N. Takada, K. Mizukawa, S. Tsuyuki, H. Furumai: Environmental Monitoring and Contaminants Research, 1 54-65 (2021) Microplastics in urban wastewater and estuarine water: Importance of street runoff.

2. 研究開発目的

- ・海洋生物中のプラスチックおよびマイクロプラスチックの存在を明らかにする。
- ・低次栄養段階生物へのマイクロプラスチック及びそれらに含有される化学物質の影響を明らかにする。
- ・様々なサイズの海岸漂着及び海洋漂流プラスチック中の化学物質の濃度・存在特性を明らかにし、それらの化学物質の吸脱着・溶出特性を明らかにする。
- ・餌経由での化学物質曝露との比較や、各種プラスチック等の添加剤や吸着性化学物質に着目し、プラスチックとそれが媒介する化学物質曝露と食物連鎖を通じた生態系への侵入とその影響を明らかにする。

3. 研究目標

プロジェクト全体目標	生物中のプラスチックおよびそれらに吸着・含有される有害化学物質の精密かつ網羅的な分析、摂食実験および野外での観測を行い、海洋プラスチックの生物および生態系への影響を評価する。
------------	---

テーマ1	海洋プラスチック及びその含有化学物質の海洋環境における分布と動態
テーマリーダー/ 所属機関	高田秀重/東京農工大学
目標	紫外線吸収剤や難燃剤を含め20種程度の添加剤および海水中に含まれる残留性有機汚染物質(POPs)3種について世界20地点程度で採取したマイクロプラスチック中での分布と分布特性を明らかにする。それらのマイクロプラスチックに含まれる化学物質の溶出・脱着特性や、海水中からの吸着特性を明らかにする。

テーマ2	マイクロプラスチックの生物影響評価
テーマリーダー/ 所属機関	大嶋雄治/九州大学
目標	低次栄養段階生物（モデルとしてアルテミア・シオダマリミジンコと海水・淡水メダカ）を対象として、マイクロプラスチックの取込みと体内動態、移行を調べ、栄養段階を介した濃縮を解明し、体内濃縮モデルを構築する。さらに、有害化学物質（PAH,生活関連医薬品）とマイクロプラスチックをメダカに複合曝露して、その体内動態と生体影響を調べる。

テーマ3	海洋プラスチック（マクロからマイクロまで）の海洋生態系への影響評価
テーマリーダー/ 所属機関	仲岡雅裕/北海道大学
目標	海洋プラスチックごみおよびそれに含まれる有害化学物質が海洋生物・生態系に与える影響について、小型甲殻類・底生魚類の食物連鎖を通じたマイクロプラスチック摂食と生物濃縮の相対的重要性と相乗効果、および海鳥のマクロプラスチック摂食による有害物質蓄積・濃縮が遺伝子発現機構に与える効果に着目して評価する。

4. 研究開発内容

4-1. 生物試料中微細マイクロプラスチック分析法の開発および海浜生物への応用

海洋生物消化管内の微細マイクロプラスチックの分析法を検討し、精製法と同定・定量法を検討し、300 μm以下の微細マイクロプラスチックの分析法を開発・確立した。

沖縄県座間味島のプラスチックゴミ大量漂着海岸（以下プラ漂着海岸）と漂着プラスチックゴミのほとんどない海岸（コントロール海岸）で生物試料（ムラサキオカヤドカリ、イソハマグリ）を採取し、確立した方法を用いて分析した。

4-2. 節足動物および魚類への MPの取込み、消失までの体内動態の評価

食物連鎖（アルテミアからメダカ）におけるMPの生物濃縮（biomagnification）を調べた。ポリスチレンマイクロプラスチック（PS-MP）を取り込んだアルテミアをメダカ成魚に餌として与えその体内濃度を調べた。さらに、アルテミアやメダカを用いてMPを複合投与して、生物影響を調べた。これらの結

果を基に、MP体内1-compartmentモデルを構築し、環境濃度から魚体中MPの体内濃度を予測した。

4-3. 海洋プラスチック及びその含有化学物質の海洋環境における分布と動態

世界25ヵ国33箇所および日本の7海岸で採取されたプラスチックレジンペレット中のポリ塩化ビフェニル(PCBs)、臭素系難燃剤、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の分析を行った。そのうち7地点についてはレジンペレットと同程度の大きさのプラスチック破片(1mm~5mm)の分析も行った。さらに、日本列島周辺沿岸海域9地点で採取された漂流マイクロプラスチック中のPCBs、臭素系難燃剤、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の分析を行った。漂流マイクロプラスチック試料は調査船にてニューストーンネット(目合い315 μ m)を係留し、低速航行し捕集した浮遊物試料をステンレス製容器に入れ、冷凍されて分析研究室に輸送されたものを用いた。試料は解凍後、ナイロンネット(目合い315 μ m)に乗せた後、凍結乾燥し、拡大鏡下でプラスチックと思われる全粒子(合計1635粒)を一粒一粒ピックアップし、各粒子をATR-FTIRにてプラスチックの材質判定を行った。本研究では、ポリエチレン製のポリマーのうち0.3 mm - 1 mm (S-MP) および1 mm - 5 mm (L-MP) の大きさのものを分析対象とした。分析に供した試料重量はL-MPでは3 mg~217 mg、S-MPでは1 mg~39.9 mgであった。マイクロプラスチック試料は溶媒としてジクロロメタン(DCM)を用いてソックスレー抽出し、サロゲートを添加後、アセチル誘導体化し、シリカゲルクロマトグラフィーによる分画・精製を行い、GC-MSおよびGC-MS/MSにて分析を行った。また、海鳥への添加剤の曝露を評価するため、北大西洋のフェロー諸島で採取されたフルマカモメ100個体の胃内から取り出されたプラスチック片140片とペレット19個と太平洋の鴛島のコアホウドリ(1個体)およびクロアシアホウドリ(5個体)が吐き戻したプラスチック片35片、計194プラスチック試料を網羅分析した。

添加剤由来の化学物質について吸着の寄与を評価するために、ポリエチレンシートを用いた係留吸着実験を行った。東京海洋大学内船着き場の浮棧橋に係留させ、吸着実験を行った。ポリエチレンシート(72×102cm、厚さ145 μ m)を90日間係留し、係留開始から7日間~30日の間隔でシートを引き上げ、シートの端から5cm幅をハサミで切り取り、化学分析に供した。

4-4. 吸着性の化学物質の体組織への移行促進(ベクター効果)の検討

アルテミアとメダカを用いて化学物質(アントラセン)とMPを複合投与して、生物影響を調べた。さらに、MPと抗うつ剤 diazepamのメダカの行動に対する複合影響を検討した。これらの結果を総合して、メダカ-アントラセン水曝露およびMP複合曝露モデルを比較することでMPのベクター効果を示した。

4-5. 低次消費者におけるマイクロプラスチックおよび含有化学物質の影響評価

二枚貝キタノムラサキイガイを利用して、野外由来の残留性有機汚染物質(POPs)を吸着させたマイクロプラスチックを摂食させる実験を行い、キタノムラサキイガイへのマイクロプラスチックを介したPOPs吸着の時間的変動について解析した。

4-6. 沖縄海浜生物へのプラスチック由来化学物質蓄積の観測

沖縄県座間味島のプラ漂着海岸とコントロール海岸採取した生物試料(ムラサキオカヤドカリ、イソハマグリ)の有害化学物質の分析を行った。オカヤドカリの肝臓およびイソハマグリの軟体部は凍結乾燥後、有機溶媒で抽出し、Surrogatesを添加後、ゲルクロマトグラフィーおよび二段階のシリカゲルクロマトグラフィーによる分画・精製を行い、ガスクロマトグラフ-質量分析計(GC-MS)およびGC-MS/MSにて、PCBsおよび各種添加剤の分析を行った。

4-7. 食物連鎖における添加剤の移行と蓄積

小型甲殻類であるイサザアミ属のアミ(以下、アミ)と底生魚類シモフリカジカ(以下、カジカ)を利用した飼育実験により、アミによるマイクロプラスチックの取り込み量、およびカジカに対する水中由来、アミの摂食を通じたマイクロプラスチックの移行量、さらにアミとカジカによるマイクロプラスチック断片化率を求め、比較した。続いて、マイクロプラスチックに含まれる添加剤がアミとカジカに取り込まれる量について実験的に検証した。アミについては、5種の異なる添加剤(UV327, UV234, BP12 BDE209, DBTPE)を含むマイクロプラスチック(平均粒径30 μ mのPE製)を製作し、アミに暴露した実験区(MP区)、事前に添加剤を暴露させてその後取り除いた海水で飼育した実験区(溶出

海水区)、および野外対照区の間で体内における添加剤蓄積量を測定した。カジカについては、添加剤入りマイクロプラスチックを取り込んだアミを摂食させる実験区(アミ区)、添加剤入りマイクロプラスチックを含む水中で飼育した実験区(水中区)、野外対照区で飼育した個体の筋肉および肝臓中の添加剤蓄積量を測定した。

4-8. 海鳥へのマイクロプラスチックと含有添加剤の影響解析

まずは海鳥におけるプラスチック摂食の状況とその効果を研究した。自然状態で親に育てられているオオミズナギドリの雛にプラスチックを投与する実験を新潟県粟島で行った。添加剤を含むレジンペレットとバージンペレットを様々な量投与し、体サイズ成長、ホルモン濃度、酸化ストレス、臓器重量を測定した。次に、我が国の海鳥におけるプラスチック摂食の実態把握にむけて、アホウドリ類の2種とオオミズナギドリの取り込み量を調べ、比較した。

新潟県粟島で野生個体のオオミズナギドリ雛に対して、添加剤を含むプラスチックの曝露、解剖と採材を行い、得た組織と血液の分析を行った。採取した組織について、各プラスチック添加剤の化学分析を行い、添加剤の組織移行を調べた。また、血液生化学分析、各組織重量、病理組織学的検査より、一般的な毒性影響について明らかにした。さらに、次世代シーケンスによって遺伝子発現量の網羅的解析を行い、変動が検出された遺伝子について詳細な比較を行った。変動がみられた遺伝子に関連する生理活性物質の血液濃度等の分析も行い、幅広く毒性影響を評価した。

5. 研究成果

5-1. 成果のまとめ

本課題では、マイクロプラスチックの粒子としての体内動態(取込と排泄)と影響、マイクロプラスチックに含まれる化学物質の特性、マイクロプラスチックを介した化学物質の生物への曝露・移行・蓄積と生物への影響を、低次栄養段階生物から高次栄養段階生物を対象に、3つの機関で研究を行った。全体まとめた主要な成果は以下の通りである。マイクロプラスチックは低次栄養段階生物に取り込まれ、消化管に濃縮され生物濃縮係数は 10^3 程度になるが、多くの粒子は速やかに排泄される。しかし、 $2\mu\text{m}$ 以下のマイクロプラスチックは排泄が遅く、体内への長期間の残留が示唆され、細胞間隙への貫入の可能性も考えられた。マイクロプラスチック自体の魚類の再生産への影響は認められなかったが、細胞接着に関与する遺伝子発現の上昇等、発遺伝子発現の変動が認められた。海鳥の場合は、体重比2%以上のプラスチック摂食があると、体重や肥満度への影響が懸念される。マイクロプラスチックへのPCBsや多環芳香族炭化水素類(PAHs)等の疎水性の汚染物質の吸着が確認された。プラスチック製品に配合されている添加剤の中で疎水性の高い成分は海洋漂流および海岸漂着マイクロプラスチックに残留しており、難燃剤や紫外線吸収剤は散発的(2%程度の出現頻度)に高濃度になることがあり、海洋生物への添加剤の曝露源となっていることが明らかになった。特に海洋漂流マイクロプラスチックの中でも 1mm 以下の微細なマイクロプラスチックにも高濃度に残留していることが明らかになり、低次栄養段階の生物を通して疎水性添加剤が生態系全体に広がっていることが示唆された。マイクロプラスチックが疎水性の化学物質を吸着して生物体内に輸送する効果(ベクター効果)はメダカや二枚貝について確認された。メダカの場合はマイクロプラスチックに輸送された化学物質による生物機能への影響も確認された。プラスチックに含有される添加剤はプラスチックマトリクスに練り込まれているので、生物への移行はないと考えられてきたが、甲殻類、魚類、海鳥の体内に移行し組織に蓄積されることが明らかになった。海鳥については、それらの添加剤による甲状腺ホルモン系や胆汁酸合成系に関連する脂質代謝遺伝子の発現量の変動が示された。

本研究では、プラスチック自体、およびプラスチックに吸着する化学物質とプラスチック添加剤が生物に影響を及ぼすことを、室内実験とフィールドの観測より明らかにした。手法、影響の程度と確度は対象生物や対象化学物質により違いがある。以下に具体的な研究成果を記載する。

5-1-1. 生物試料中微細マイクロプラスチックの分布

沖縄座間味島のムラサキオカヤドカリ消化管内のプラスチックはプラ漂着海岸の個体で293個~482個/g-湿重量とコントロール海岸の個体の0個~13個/g-湿重量に比べて1桁以上高かった。マイクロ

プラスチックのポリマー組成はプラ漂着海岸の個体ではポリスチレンが多い個体が観測された（図1-10）。イソハマグリの内臓塊中からもポリエチレン、エチレンプロピレンコポリマーが主要なマイクロプラスチックが275個/g-湿重量検出されたが、コントロール浜でも同程度のマイクロプラスチックが検出された。

5-1-2. 節足動物および魚類への MPの取込み, 消失までの体内動態の評価

MPの体内動態を明らかにするためモデル生物として魚からメダカ、節足動物からアルテミアを選び、サイズの異なるMPを水および餌から曝露してMPの取込み、消失までの体内動態を評価した。まずアルテミアを用い、蛍光を持つ2または6 μm polystyrene MP (PS-MP) を水曝露して、MPの取込みおよび消失から、体内動態を評価した。その結果、PS-MPはアルテミアに速やかに消化管に取り込まれて1日で平衡に達し、曝露をやめるとほぼ1日で体内から消失した。生物濃縮係数はそれぞれ 2.0×10^2 (2 μm)、 2.3×10^2 (6 μm) であった。次にメダカにおけるMPの体内動態を調べた。MPとして蛍光を持つ2 μm PS-MP, 20 μm PS-MP, 20 μm polyethylene (PE-MP) を 106 個/Lの濃度で、また 200 μm PE-MP を 104 個/L の濃度で2ヶ月齢のメダカに14日間曝露後、10日間清水で排泄させた。1, 3, 5, 7, 10, 12, 14, 15, 17, 19, 21, 24日目のメダカをサンプリングし、魚体を透明化後、MPの個数をカウントした。その結果、いずれのMPも急速に蓄積し、ほぼ1日で平衡状態となった。その生物濃縮係数は140, 15, 17, 116 L/kg (2 μm PS-MP, 20 μm PS-MP, 20 μm PE-MP, 200 μm PE-MP) であった。MPを含まない水に移して排泄させるとMPは急速に排泄されたが2 μm PS-MP は24日目でも残留しており、排泄され難かった（図2-7）。1-コンパートメントモデルとして解析した結果、排泄速度定数は2 μm PS-MP, 20 μm PS-MP, 20 μm PE, 200 μm PE-MPそれぞれで1.2, 0.94, 1.05, 0.90 /d, 生物学的半減期は0.58, 0.74, 0.69, 0.77 dとそれぞれ推定された（Liu et al 2021として国際誌に公表済）。

また食物連鎖（アルテミアからメダカ）におけるMPの生物濃縮（biomagnification）を調べた。PS-MPを取り込んだアルテミアをメダカ成魚に餌として与えてその体内濃度を調べた結果、餌アルテミアに対するメダカ成魚のMP濃度比は0.00054と低くMPの生物濃縮は認められなかった。

さらに、アルテミアやメダカを用いてMPを投与して、影響を調べた。まずメダカ産卵ペアを用いてPS-MP (2 μm , 107 particles/L) に3週間曝露してその生存と産卵、次世代のふ化への影響を検討した。その結果、生存率、産卵数および次世代の生存率に対照区と比べて有意な差は無く、MP単独では再生産へ影響を与えなかった。但し消化管内における遺伝子発現を網羅的に解析した結果、有意に変動する遺伝子があった。その中でも細胞接着に関与するカドヘリンの発現が有意に上昇しており、2 μm PS-MPが細胞間隙に貫入している可能性が考えられた。（Assas et al 2020として国際誌に公表済）

得られた結果を整理してMP魚体内1-compartmentモデルを構築し、実環境濃度からMPの体内濃度を予想した。その結果、現在推定される環境濃度のMP (0.04 mg/Lと仮定) で魚体内濃度を予想した。その結果、3 mg/L程度と考えられた。さらに50年後に予想されるMP濃度 (1 mg/L) を用いて体内濃度を予想した結果、60 mg/Lを越える体内濃度が予想された。

5-1-3. 海洋プラスチック及びその含有化学物質の海洋環境における分布と動態

消費者が日常的に使用するプラスチック製品について、フタル酸エステル、ベンゾトリアゾール紫外線吸収剤が広く含まれることを確認した。世界25カ国のレジンペレットの分析結果とフィールド吸着実験の結果から、PCBs、ベンゾトリアゾール紫外線吸収剤、臭素系難燃剤についてそれぞれ、数～数百ng/g、数十～数百ng/g、数ng/g～数十ng/gが吸着由来の汚染レベルであることを明らかにした。海岸漂着マイクロプラスチックおよび海洋浮遊マイクロプラスチックに添加剤が残留しており、散発的に高濃度のベンゾトリアゾール紫外線吸収剤（数万ng/g）やBDE209（数百ng/g）が検出された（図0-1、図1-6）。マイクロプラスチックが微細化して1mm以下となって海水中を漂っていても疎水性の高い添加剤が残留していることは、マイクロプラスチックが海洋生態系へ疎水性添加剤の曝露源になることを示している。高濃度の添加剤入りマイクロプラスチックの出現頻度は海岸でも海鳥胃内でも2%～4%程度であることを明らかにした。海洋生物が複数のプラスチック片やマイクロプラスチックを摂食することから、プラスチック中の添加剤が海洋生物への曝露源になる可能性を示した。

5-1-4 MPによる化学物質の取込仲介作用(以下ベクター効果)

MPによる化学物質の取込仲介作用（以下ベクター効果）を検討した。メダカにアントラセン（ANT, 0.1 mg/L）及びMP（PE-MP, 53-63 μm , 1×10^6 particles/L）を単独もしくは共存下で7日間曝露

後、3日間排泄させた。ANT区およびANT+MP区の魚体内ANT濃度は曝露終了7日目で差がなかった。得られた結果より吸収、排泄係数を求め、さらに共曝露区において、水相からANTのメダカ体内への蓄積を見積もった結果、ANT+MP区で魚体ANTの67%が水経路で取り込まれ、残り33%がMP経路だと推定された。ANTの一部はMP経路で取り込まれたと推定されMPのベクター効果が示された。初めてベクター効果を定量的に試算した。(Qiu et al 2020として国際誌に公表済)

さらにMPと抗うつ剤 diazepam (DZP) のメダカに対する複合影響を検討した。メダカに 2 μ m PS-MP (107 particles/L) およびDZP (0.03 mg/L) を単独もしくは複合で2日間曝露した。曝露後、メダカの群行動としてshoaling behavior (透明な別の水槽に入れたメダカ群に対して近寄る行動の時間) を調べた。その結果、DZP+MP複合曝露区のメダカではshoaling の時間が 5.42 ± 2.5 min/10 min ($P < 0.01$, 対照区 8.67 ± 1.35 min/10 min)と有意に短くなった。DZPがMPに吸着して体内への取り込みを促進(ベクター効果)することによって複合曝露区でDZP体内濃度が上昇しその影響が強くなったためと考察された。この実験結果(MPのベクター効果)は、メダカANT水曝露およびANT+MP複合曝露モデルから説明された。(図2-17)

5-1-5. 低次消費者におけるマイクロプラスチックおよび含有化学物質の影響評価

野外由来のPOPsを吸着させたマイクロプラスチックを暴露したキタノムラサキイガイにおける生殖腺中のPOPs濃度は、PCBsにおいてPH区で有意高く、PEビーズ摂食によってPOPsが生殖腺に移行・蓄積することが証明された。PAHsにおいてもPEビーズ摂食によって組織へ移行・蓄積することが示唆された。PEビーズから生殖腺へのPCBsの移行率は0-57%、PAHsの移行率は、0-20%であった。PCBsよりPAHsの方が体内で代謝を受けやすいため、移行率が小さくなっていると考えられる。

5-1-6. 海浜生物へのプラスチック由来化学物質蓄積の観測

沖縄座間味島のプラスチック漂着海岸で採取されたムラサキオカヤドカリの肝臓からポリ臭素化ジフェニルエーテルがコントロール海岸で採取された個体に比べて高濃度で検出された。検出された同族異性体は8臭素のBDE202, 7臭素のBDE179, 6臭素のBDE136, BDE146と同定された(図1-11)。オカヤドカリが摂食したプラスチックに含有されていた難燃剤のBDE-209が体内で代謝(脱臭素過程)を受けることにより、これらの同族異性体が生成したと考えられる。代謝系は異なるが、このムラサキオカヤドカリの代謝能の高さは同個体から検出されたPCBsの同族異性体の構成は、代謝抵抗性のある同族異性体が多く、易代謝性の同族異性体がほとんど検出されないことと調和的であった。ムラサキオカヤドカリの分析結果から、生物が添加剤を含んだマイクロプラスチックを取り込み、添加剤が体内で代謝され、代謝産物が体内に蓄積するという新たな曝露・蓄積機構が示唆された。

座間味島のプラ漂着海岸で採取した二枚貝イソハマグリの中体のイソハマグリ中のPCBs濃度はコントロール海岸のイソハマグリに比べて2桁程度高濃度であった(図1-12)。

5-1-7. 食物連鎖における添加剤の移行と蓄積

アミが摂食を通じてマイクロプラスチックを消化管に取り込むことが確認された。シモフリカジカはマイクロプラスチックを含んだアミの摂食により、水中から直接摂取するよりも粒子数で8~11倍、重量で3~5倍のマイクロプラスチックを取り込んでいた。また、アミおよびアミを摂食したカジカの消化管内のマイクロプラスチックの平均粒径は実験利用前および水中からマイクロプラスチックを摂取したカジカにおける平均粒径よりも小さかった。

添加剤入りのマイクロプラスチックを摂取したアミは4~2420倍の濃度の添加剤を野外対照群よりも取り込んでいた。また、添加剤入りマイクロプラスチックを取り込んだアミを捕食したカジカ(アミ区)においては、水中から添加剤入りマイクロプラスチックを取り込んだカジカ(水中区)、および野外対象区よりも、多くの添加剤が体内から検出される傾向があったが、その変異パターンは添加剤の種類およびカジカの組織間で異なっていた(図3-7)。臭素系難燃剤の筋肉での蓄積濃度は、アミ区が水中区と野外対照区より有意に高くなっていたが、肝臓では水中区との間に有意差はなかった。一方、紫外線吸収剤については、一部を除き、アミ区と水中区の濃度は野外対照区より有意に高かったが、アミ区と水中区の比較では、有意な濃度の差は検出できない場合が多かった。

以上より、底生無脊椎動物および魚類にマイクロプラスチックおよび吸着する化学物質が移行することが示された。カジカのマイクロプラスチック摂取においては、水中からの直接経路よりも、餌生物を介した間接経路の方がより重要であることが明らかになるとともに、マイクロプラスチックに含

まれる添加剤が餌生物によるマイクロプラスチックの摂取を通じて高次消費者に移行することが世界で初めて示された。

5-1-8. 海鳥へのマイクロプラスチックと含有添加剤の影響解析

オオミズナギドリ雛にレンジペレットを与えた実験の結果、外部形態の成長では、2020年の2g投与群でプラスチック投与後の期間に日齢とプラスチック投与量の交互作用項が有意な変数として選択された以外は、他の全ての年、計測期間、計測部位で、プラスチックの投与量、日齢とプラスチックの投与量の交互作用項は有意な説明変数に選択されず、プラスチック投与による影響は認められなかった。また、2017年実験群の腎臓重量を説明する有意な変数としてプラスチックの投与量が選択され、プラスチック投与群の腎臓は軽かったが、その他の臓器ではプラスチックの投与量の効果は認められなかった(図3-9)。

海鳥のマイクロプラスチック摂食量の比較では、北太平洋西部の本州沖にて混獲されたコアホウドリのうち胃内にプラスチックを持っていた個体の割合は91%で、クロアシアホウドリ(46%)より高かった。また各胃のプラスチック重量もコアホウドリの方がクロアシアホウドリより数倍重かった。コアホウドリは硬質プラスチック、クロアシアホウドリはひも状プラスチックを多く取り込んでおり、また、両種とも白/透明、橙/茶のプラスチックを飲み込んでいる傾向があった。日本海の粟島と太平洋の御蔵島において、これまではプラスチック摂食の報告がないオオミズナギドリの雛あるいは巣立ち雛の胃内容を分析したところ、いずれの島においても摂取されていたプラスチックの多くは繊維状でその重量は<0.001gとごく少なかった。出現個体数割合は粟島では5割から9割、御蔵島では8割から9割程度といずれにおいても高かった。

オオミズナギドリ雛へのレジンペレット投与実験では、成長、給餌量、血液のホルモン等に明瞭な影響はなかったことから、野外で普通観察される程度の体重の1%以下の摂取量では栄養状態への大きな負の影響はないだろうと考えられる。本研究を含めたこれまでの研究の比較では、プラスチック取り込みが体重や肥満度に影響したとする研究では、取り込まれたプラスチックの最大量は体重の2%を超えており、その影響がなかったとする研究ではプラスチックの最大量は体重の0.25%以下であった。今後プラスチック汚染が進み、体重の2%を超えるほどの大量の取り込み量となった場合何らかの影響が懸念される。また、我が国においても他の海域の海鳥と同等程度にプラスチックを飲み込んでいることが初めて明らかとなった。わが国でも海鳥のプラスチック取り込みは進んでおり、プラスチック誤飲による直接的な死亡に加え、汚染物質とりこみによる腎機能の変化などによる死亡が懸念される。

添加剤を用いないプラスチックの投与実験ではオオミズナギドリ雛に血中の酸化ストレスと抗酸化力にプラスチック投与の効果は見られなかった。添加剤入りプラスチックを投与したオオミズナギドリ雛と対照群の各組織内のプラスチック添加剤濃度を比較したところ、対照群組織ではほとんど添加剤が検出されなかったが、曝露群では一部を除く試料で添加剤が検出された。特に肝臓と脂肪組織では、すべての添加剤の濃度が曝露群で有意に高かった(図1-9)。曝露試料から検出されたプラスチック添加剤の組成は、組織ごとに異なっていた。肝臓ではBDE-209の割合が約80%を占めていた一方、腎臓では、BDE-209が約40~50%、ベンゾトリアゾール系紫外線安定剤が約50%を占めた。脂肪組織および大腸では大部分はベンゾトリアゾール系紫外線安定剤であった。以上より、プラスチック添加剤の組織移行が証明された。しかし、血液生化学検査、臓器重量、病理組織学検査などの一般毒性の検索では、プラスチック添加剤曝露による有意な影響は認められなかった。

次世代シーケンサーを用いて、添加剤入りプラスチックを取り込んだ個体の肝臓、下垂体、甲状腺、脾臓、副腎の遺伝子発現量の変化を網羅的に解析した。各組織で検出されたDEG(有意に発現量が変動している遺伝子)の数は、肝臓で96個、甲状腺で34個、下垂体で446個、脾臓で80個、副腎で63個であった。クラスター解析では、下垂体を除き、対照群と曝露群の間で発現パターンに違いは見られなかった。KEGGパスウェイマップのエンリッチメント解析では、肝臓ではPPARシグナル伝達経路と一次胆汁酸合成、甲状腺と下垂体では甲状腺ホルモン合成、脾臓と副腎では抗原提示関連遺伝子に、各々、対照群と曝露群で発現の異なる遺伝子が存在した。

毒性学的影響として示唆される遺伝子発現変化では、肝臓や甲状腺の甲状腺ホルモン系に関連する遺伝子に発現量変動が認められ、曝露による影響が示唆された(図3-12)。一方、血漿中・肝臓中の甲状腺ホルモン濃度には対照群と曝露群の間で差はみられなかった。また、肝臓の胆汁酸合成系遺伝子では一部で曝露群が対照群よりも有意に低下していた。肝臓中胆汁酸濃度は、有意差はみられないものの、対照群と曝露群で分散が有意に異なっており、曝露による影響が示唆された。脂質代謝系

遺伝子では発現量に有意差はみられなかったが、対照群と曝露群で分散が有意に異なる遺伝子があり、脂質代謝系への影響の可能性も考えられた。

本研究の結果、海鳥が添加剤を含むプラスチックを摂取することで、組織内に添加剤が蓄積され、鳥類に遺伝子発現レベルでは影響を及ぼすことが明らかになった。特に、甲状腺ホルモン系や胆汁酸合成系への影響が強く示唆された。また、添加剤の含むプラスチックにより、脂質代謝遺伝子の発現量も変化することも示唆された。一方、今回の研究では甲状腺ホルモンや性ステロイドホルモン、胆汁酸など、生理活性物質の濃度に有意な影響はなかった。したがって、添加剤入りのプラスチックに曝露されることの影響は遺伝子レベルでの変化が起こるが、本実験の条件では生理機能など恒常性への顕著な影響は認められなかった。

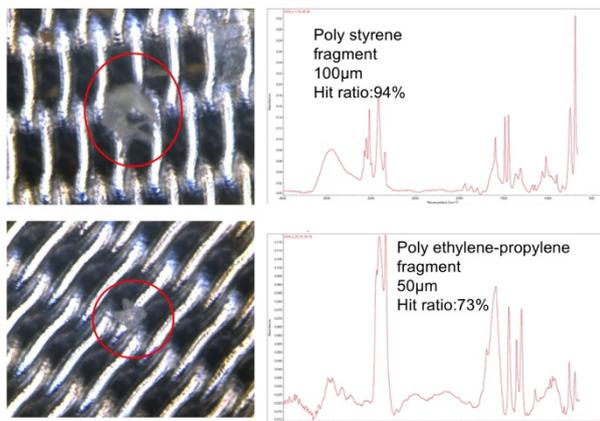


図1-10. 沖縄座間味島のオカヤドカリ消化管内から検出されたマイクロプラスチック(バックはマイクロプラスチックを濾したったステンメッシュのフィルター)

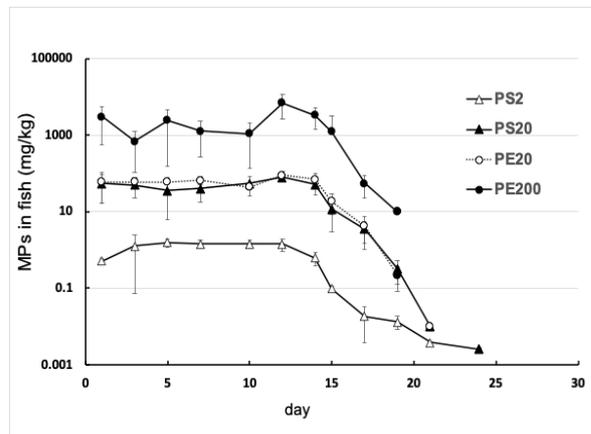


図2-7. 粒径 2, 20 µm PS-MP, 20 µmPE-MPおよび200 µm PE-MPに曝露したメダカにおけるMPの体内濃度変化

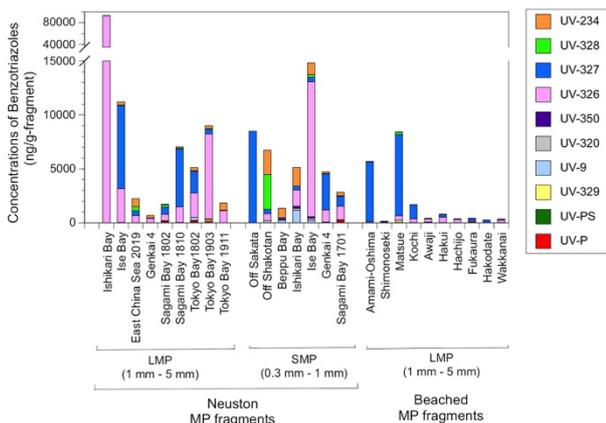


図1-6.海洋漂流および海岸漂着マイクロプラスチック中のベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤濃度

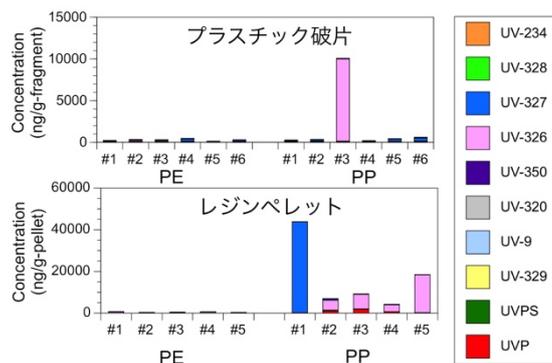


図0-1. 海岸漂着マイクロプラスチック中のベンゾトリアゾール紫外線吸収剤濃度

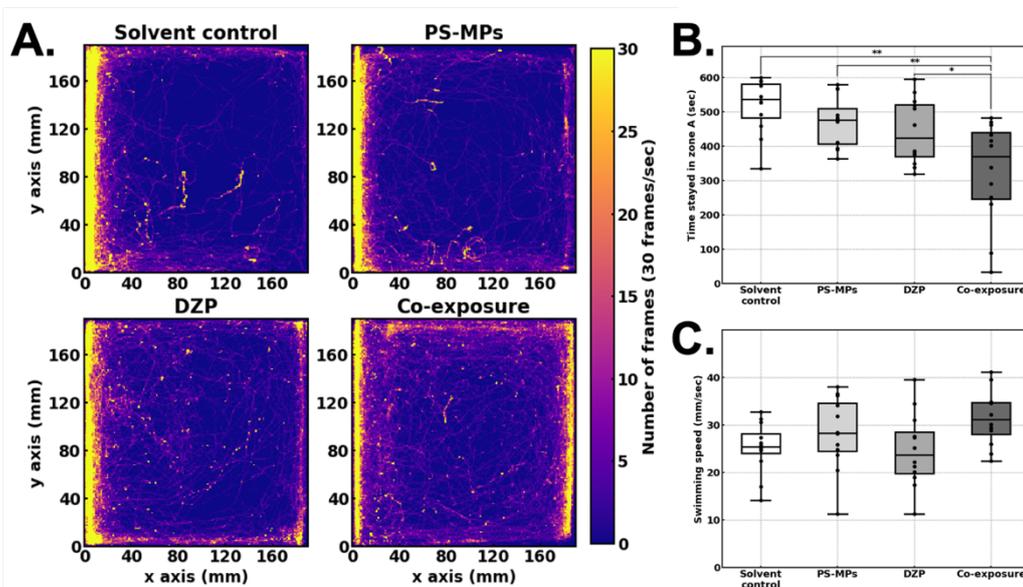


図 2-17. ジアゼパムおよび/または PS-MP に曝露されたメダカの Shoaling behavior 試験の結果

A. メダカの遊泳ポジションのヒートマップ, 黄色はメダカが 1 秒以上 (30 フレーム以上) 留まった位置, B. メダカがゾーン A 内に滞在した期間の箱ひげ図, C. メダカの遊泳速度 (mm /秒) の箱ひげ図 ボックス内の黒点は, 各メダカのデータ, PS-MP; 107 particles/L PS-MP 曝露, DZP; 0.03 mg/L ジアゼパム曝露, Co-exposure; 0.03 mg/L ジアゼパムと 107 particles/L PS-MP の複合曝露, **, P < 0.01, *, P < 0.05

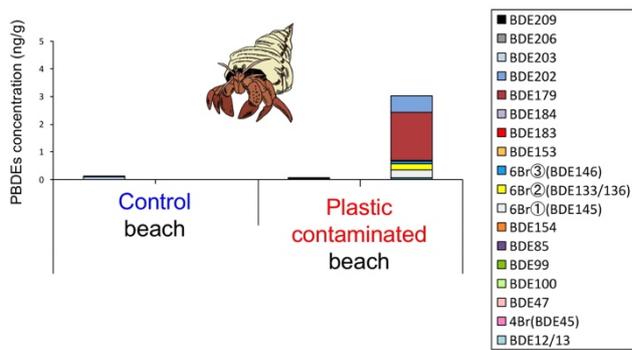


図1-11. 沖縄座間味島プラスチック漂着の多い浜と少ない浜で採取されたムラサキオカヤドカリ肝臓中のポリ臭素化ジフェニルエーテル濃度

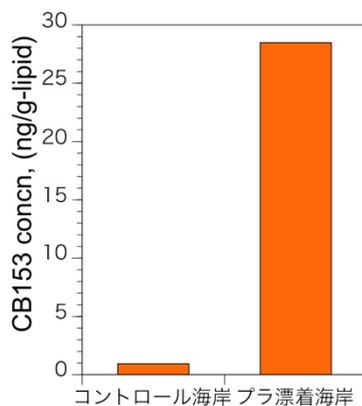


図1-12. 沖縄座間味島プラスチック漂着の多い浜と少ない浜で採取されたムラサキオカヤドカリ肝臓中のPCBs濃度

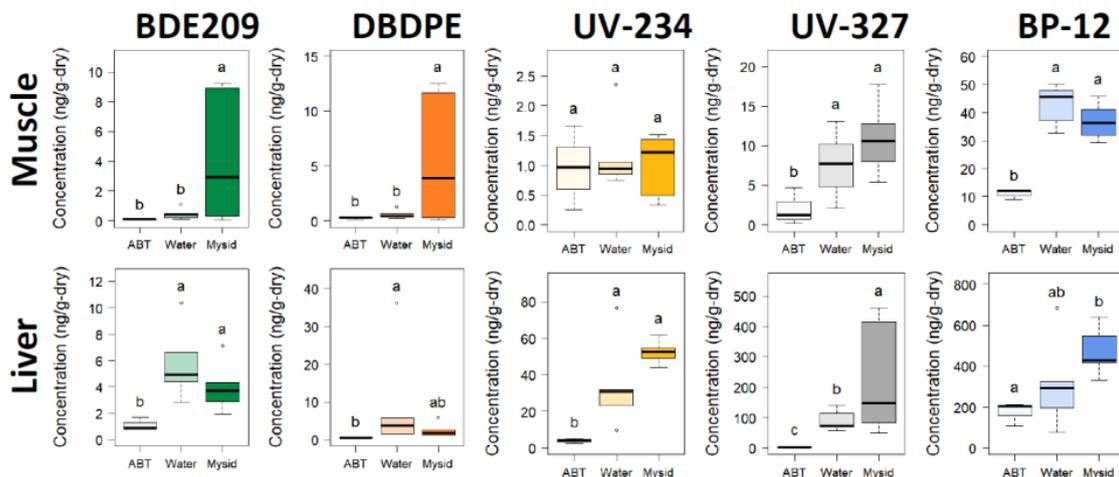


図3-7 カジカの筋肉(上段)および肝臓(下段)における5種の添加剤の濃度をボックスプロットで示す。

ABTは野外から採集して直ちに保存した野外対照区、LCTは添加剤が溶出した海水で飼育したカジカ、MPsは添加剤入りマイクロプラスチックに暴露したアミを捕食させた実験群を示す。事後検定(Tukey's HSD)で有意な差があった群は異なるアルファベット (a, b)で示している。

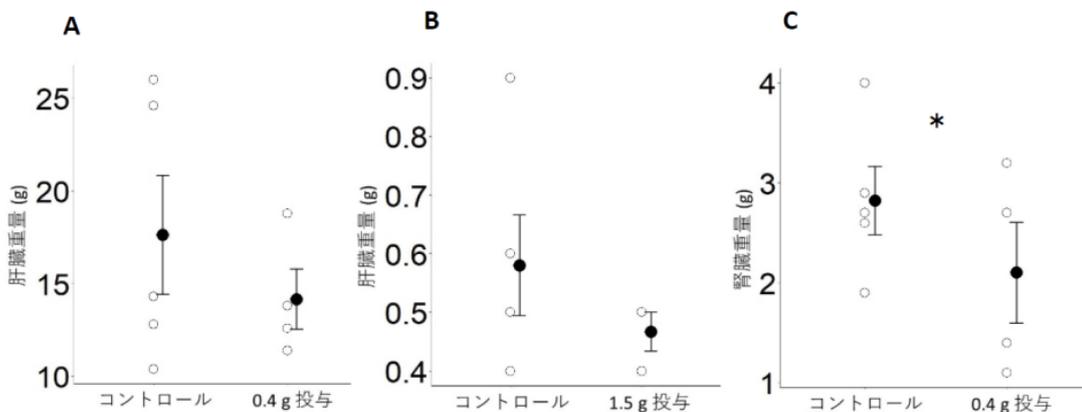


図3-9. オオミズナギドリ雛の臓器重量に対するプラスチック投与の影響。

A: 2017年の投与後2週間群、B: 2017年の投与後1か月群、C: 2019年の投与後52日群。

*は有意差があったものを示す。

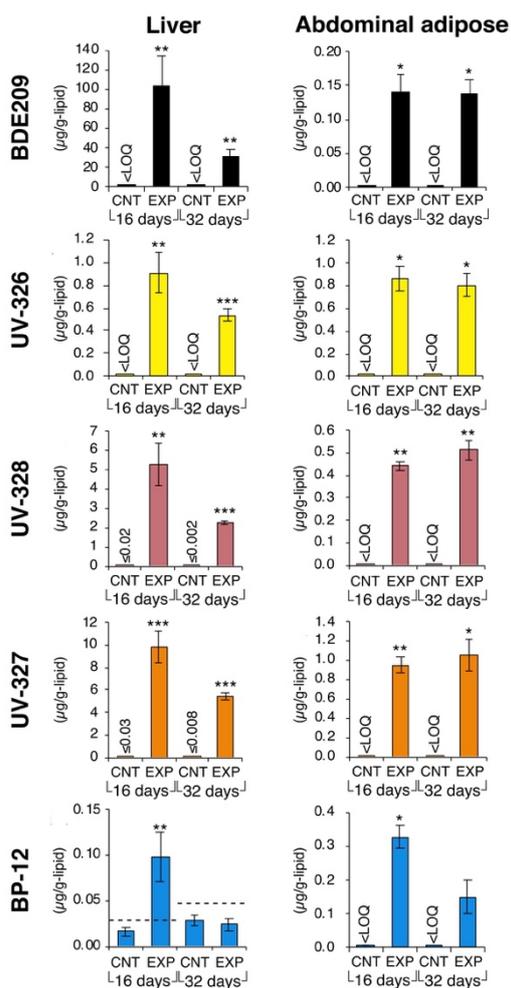


図1-9.添加剤入りプラスチック摂食実験における海鳥の肝臓と腹腔の添加剤濃度

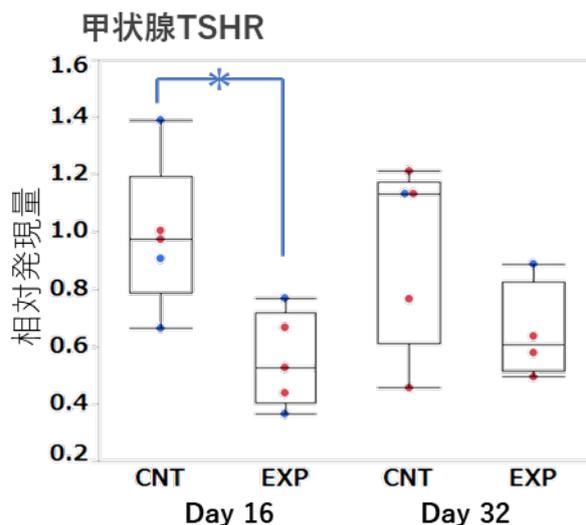


図3-12.甲状腺に発現する甲状腺刺激ホルモン受容体の発現量
16日目、32日目の甲状腺について、TSHRのmRNA量を定量的PCRによって解析した。CNT、コントロール、EXP、曝露。*は、対照群と曝露群間において統計解析有意差を示した(p<0.05)

5-2. 環境政策等への貢献

<行政等が既に活用した成果>

2021年3月にオンラインで開催された令和2年度海洋プラスチックごみ学術シンポジウムにおいて高田と大嶋が研究成果を紹介し、環境省の海洋プラスチック汚染とその生物影響について認識強化につながった。

2021年1月11日～16日にオンラインで行われたストックホルム条約の第16回残留性有機汚染物質検討委員会（POPRC）とその事前会議に高田が招待され、本研究の対象添加剤の一種ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤UV328について、そのマイクロプラスチック中での分布、海鳥が摂食したプラスチックからのUV328の生物組織への移行・蓄積、UV328の海鳥汚染の地球規模での広がりなどについて、本研究の成果を情報提供し、国際的な枠組みでの化学物質規制に活用された。

2021年6月1日の参議院環境委員会における日本共産党の山下議員の質問に本研究の成果「添加剤が食物連鎖を通してヒトにも曝露される可能性」が紹介され、小泉環境大臣との間での現状認識の共有に活用された。

本研究期間中に行われた115回の講演会の半分以上が地方自治体主催の会や、国家公務員の研修会、国立国会図書館の職員向けの講演であり、そこで本研究成果を紹介し、地方自治体職員、国家公務員、さらには広く市民がプラスチック問題を認識し、その解決策を考えるための意識啓発の材料として本研究成果は活用された。

<行政等が活用することが見込まれる成果>

本研究では「プラスチック自体、およびプラスチックに吸着する化学物質とプラスチック添加剤が生物に影響を及ぼす」ことを明らかにした。個々の添加剤やポリマーについてその有害性の定量的な評価を行い、有害の高い添加剤やポリマーの規制につなげていく必要がある。そのような流れの一つとして、ストックホルム条約の残留性有機汚染物質検討委員会（POPRC）でのUV328の評価に本研究成果の活用が見込まれる。具体的には2021年7月のPOPRCでの情報提供が見込まれる。このような形で一つ一つの添加剤について条約や既存の化学物質規制の枠組みを使って規制していくことが本研究成果の活用の一つの方向である。同時に、予防原則的な視点と廃棄物管理、資源問題、温暖化抑止の視点から、プラスチックの使用量自体を削減していくための行政的な枠組み作りの際の科学的根拠として本研究が活用される見込みがある。同時にプラスチック使用量削減の意識を広く市民や行政機関が共有するための科学的根拠としても本研究成果は活用される見込みがある。

5-3. 研究目標の達成状況

以下の各サブテーマの目標達成状況と各サブテーマで得られた成果を総合して「プラスチック自体、およびプラスチックに吸着する化学物質とプラスチック添加剤が生物に影響を及ぼすことを、室内実験とフィールドの観測より明らかにした。」ことから研究目標を達成したと判断される。各サブテーマの達成状況配下の通り。

サブテーマ1：紫外線吸収剤や難燃剤を含めた添加剤と残留性有機汚染物質（POPs）の世界25地点で採取したマイクロプラスチック中での分布と分布特性を明らかにし、それらのマイクロプラスチックに含まれる化学物質の溶出・脱着特性と、海水中からの吸着特性を明らかにしたことから、研究目標を達成

したと判断される。

サブテーマ2：魚類および節足動物を対象として、マイクロプラスチックの取込みと体内動態、移行、生存等への影響を調べ、プラスチック粒子の生物影響を解明することを目標として設定したが、目標はほぼ達したと考えられる。

サブテーマ3：食物網を通じた高次消費者への移行、水中由来とプラスチック由来の相対的重要性を評価した点。さらに添加剤がマイクロプラスチック経由で魚類に移行することを示した初めての研究であり、研究分野全体に与えるインパクトも非常に高い。また、海鳥の研究については、プラスチックに含まれる添加剤の組織移行と蓄積が証明され、甲状腺ホルモン系や胆汁酸合成系への影響が示唆された。特にプラスチックに含まれる添加剤の移行に関する研究は、サブテーマ1との効果的な共同研究により、世界に先駆けた研究成果導出につながり、海洋プラスチックの生物影響リスクの解明に貢献する重要な情報を提供した。以上より、研究目標に掲げたサブテーマの目標に対して順調に研究を行い、十分な成果を得ることができた。

6. 研究成果の発表状況

6-1. 査読付き論文

<件数>

12件

<主な査読付き論文>

- 1) T. Ohgaki, H. Takada, R. Yoshida, K. Mizukawa, B.G. Yeo, M. Alidoust, N. Hirai, R. Yamashita, T. Tokumaru, I. Watanabe, S. Onwona-Agyeman, P. Gardiner, M. Eriksen, J.F. Kelly, C.J. Rodríguez-Sierra, L. Colasse, J. Baztan, F.P. Barretto, G.I. Mendes, D. Abessa, M.P. Zakaria, C.S. Kwan, M. Saha, P.G. Ryan, S. Weerts, J. Ofosu-Anim, E.B. Sabi, L.G. Akita, H. Tait, C. Eriksson, H. Burton: *Environmental Monitoring and Contaminants Research*, 2 in press (2021) International Pellet Watch : Global monitoring of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in plastic resin pellets.
- 2) M. Alidoust, G.B. Yeo, K. Mizukawa, H. Takada: *Marine Pollution Bulletin*, 165 112052 (2021) Monitoring of polycyclic aromatic hydrocarbons, hopanes, and polychlorinated biphenyls in the Persian Gulf in plastic resin pellets. (IF:4.05)
- 3) Y. Liu, X. Qiu, X. Xu, Y. Takai, H. Ogawa, Y. Shimasaki, Y. Oshima: *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 212 112007 (2021) Uptake and depuration kinetics of microplastics with different polymer types and particle sizes in Japanese medaka (*Oryzias latipes*). (IF: 4.9)
- 4) Hasegawa, T. and Nakaoka, M. (2021) Trophic transfer of microplastics from mysids to fish greatly exceeds direct ingestion from the water column. *Environmental Pollution* 273: 116468. Doi: 10.1016/j.envpol.2021.116468 (IF: 6.8)
- 5) Yu, S-P., Nakaoka, M. and Chan, B.K.K. (2021) The gut retention time of microplastics in nauplius larvae of barnacles from different climatic zones and marine habitats. *Environmental Pollution* 268: 115865. Doi: 10.1016/j.envpol.2020.115865 (IF: 6.8)
- 6) K. Tanaka, Y. Watanuki, H. Takada, M. Ishizuka, R. Yamashita, M. Kazama, N. Hiki, F. Kashiwada, K. Mizukawa, H. Mizukawa, D. Hyrenbach, M. Hester, Y. Ikenaka, S.M.M. Nakayama: *Current Biology*, 30 (4) 723-728.e3 (2020) In Vivo Accumulation of Plastic-Derived Chemicals into Seabird Tissues. (IF:9.60)
- 7) M. Assas, X. Qiu, K. Chen, H. Ogawa, H. Xu, Y. Shimasaki, Y. Oshima: *Marine Pollution Bulletin*, 158 111446 (2020) Bioaccumulation and reproductive effects of fluorescent microplastics in medaka fish. (IF:4.05)
- 8) X. Qiu, S. Saovany, Y. Takai, A. Akasaka, Y. Inoue, N. Yakata, Y. Liu, M. Waseda, Y. Shimasaki, Y. Oshima: *Aquatic Toxicology*, 228 105643 (2020) Quantifying the vector effects of polyethylene microplastics on the accumulation of anthracene to Japanese medaka (*Oryzias latipes*). (IF:3.9)

- 9) B.G. Yeo, H. Takada, R. Yamashita, Y. Okazaki, K. Uchida, T. Tokai, K. Tanaka, N. Trenholm: *Marine Pollution Bulletin*, 110806 (2019) PCBs and PBDEs in microplastic particles and zooplankton in open water in the Pacific Ocean and around the coast of Japan. (IF:4.05)
- 10) K. Tanaka, J.A. van Franeker, T. Deguchi, H. Takada: *Marine Pollution Bulletin*, **145** 36-41 (2019) Piece-by-piece analysis of additives and manufacturing byproducts in plastics ingested by seabirds: Implication for risk of exposure to seabirds. (IF:4.05)

6-2. 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

6-3. その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	0件
その他誌上発表（査読なし）	5件
口頭発表（学会等）	33件
「国民との科学・技術対話」の実施	115件
マスコミ等への公表・報道等	208件
本研究に関連する受賞	5件

7. 国際共同研究等の状況

海外研究機関：GEOMAR Helmholtz Centre for Ocean Research Kiel（ドイツ）

国際共同研究計画名：Global Approach by Modular Experiment (モジュール実験による全球的アプローチ)

カウンターパート氏名・所属・国名：Dr. Mark Lenz (GEOMAR・ドイツ)

事業概要：本事業は世界各地の大学院生を対象とした教育研究プログラムで、海洋底生生物を対象とした実験生態学を同じデザインで各地で行い、その結果を比較することで生態学的プロセスの条件依存性を明らかにすることを目的としている。

連携内容：2019年度にはムラサキイガイを対象にマイクロプラスチックと天然鉱物粒子が摂食活動や成長率に与える影響の比較解析をした。

本研究成果にもたらした効果：当該研究で検討・実施された飼育実験手法は、本研究における底生無脊椎動物を対象とした飼育実験の条件設定に有効に生かされた。また、本研究の成果の比較検討に利用された。

海外研究機関：台湾中央研究院

国際共同研究計画名：マイクロプラスチックが解散底生動物に与える影響の広域比較研究

カウンターパート氏名・所属・国名：Dr. Benny K.K> Chan (台湾中央研究院)

連携内容：本共同研究は底生生物によるマイクロプラスチック取り込みの変異について水温や生息場所の環境条件の効果を明らかにするもので、台湾と日本において異なる底生動物（フジツボ）を同じ条件でマイクロプラスチックに暴露し、消化管内におけるマイクロプラスチックの動態を比較解析した。

本研究成果にもたらした効果：当該研究は、本事業の一環として行われ、成果は共同研究の形で国

際誌に掲載された(Yu et al. 2021, Environmental Pollution)。当該研究の手法および成果は、本研究の主要な課題の一部である底生無脊椎動物を対象とした実験の方法および考察に有効に生かされた。

8. 研究者略歴

研究代表者

高田秀重

東京都立大学卒業、博士（理学）、現在、国立大学法人東京農工大学 教授

研究分担者

大嶋雄治

九州大学農学部卒業、博士（農学）、現在、国立大学法人九州大学 教授

仲岡雅裕

東京大学大学院理学系研究科博士課程修了、博士（理学）、東京大学海洋研究所助手、千葉大学大学院理学研究科准教授、現在、北海道大学北方生物圏フィールド科学センター教授

綿貫豊

北海道大学大学院農学研究科博士課程修了、農学博士、国立極地研究所助手、北海道大学大学院農学研究科准教授、現在、北海道大学院水産科学研究院教授

石塚真由美

北海道大学大学院獣医学研究科博士課程修了、獣医学博士、国立環境研究所研究員、北海道大学大学院獣医学研究科助教、北海道大学大学院獣医学研究科准教授、現在、北海道大学大学院獣医学研究院教授

中尾実樹

九州大学農学部卒業、博士（農学）、現在、国立大学法人九州大学 教授

島崎洋平

九州大学農学部卒業、博士（農学）、現在、国立大学法人九州大学 准教授

II. 成果の詳細

II-1 海洋プラスチック及びその含有化学物質の海洋環境における分布と動態

国立大学法人東京農工大学
農学研究院 環境資源科学科 高田秀重

国立大学法人東京農工大学
農学研究院 環境資源科学科 水川薫子

国立大学法人東京農工大学
農学研究院 環境資源科学科 堀川祥生

国立大学法人東京農工大学
農学研究院 環境資源科学科 小瀬亮太

研究協力者
国立大学法人東京農工大学
農学研究院 環境資源科学科 Yeo Bee Geok

[要旨]

消費者が日常的に使用するプラスチック製品について、フタル酸エステル、ベンゾトリアゾール紫外線吸収剤が広く含まれることを確認した。世界25カ国のレジンペレットの分析結果とフィールド吸着実験の結果から、対象化学物質（PCBs、ベンゾトリアゾール紫外線吸収剤、臭素系難燃剤）についてそれぞれ、数～数百ng/g、数十～数百ng/g、数ng/g～数十ng/gが吸着由来の汚染レベルであることを明らかにした。海岸漂着マイクロプラスチックおよび海洋浮遊マイクロプラスチックに添加剤が残留しており、散発的に高濃度のベンゾトリアゾール紫外線吸収剤（数万ng/g）やBDE209（数百ng/g）が検出された。高濃度の添加剤入りマイクロプラスチックの出現頻度は海岸でも海鳥胃内でも2%～4%程度であることを明らかにした。海洋生物が複数のプラスチック片やマイクロプラスチックを摂食することから、プラスチック中の添加剤が海洋生物への曝露源になる可能性を示した。プラスチックに含有される添加剤の生物体内への移行・蓄積について、海鳥雛への投与実験、カジカへの曝露実験によって得られた生物試料を分析し、添加剤の移行・蓄積を明らかにした。野外における生物によるプラスチックの取込とそれに付随した化学物質の移行・蓄積について、沖縄座間味島をフィールドに調査を行った。イソハマグリ軟体部のPCBs濃度はプラスチック漂着の多い浜でコントロールの浜のイソハマグリ30倍であった。座間味島のプラスチック漂着の多い浜のムラサキオカヤドカリの消化管内からコントロールの浜に比べて、2桁多い数のマイクロプラスチックが検出され、同時に高い濃度のBDE209代謝産物が検出された。プラスチックに含まれる添加剤が体内に移行し、生体内のシステムで代謝されて有害性を増していることが確認された。

1. 研究開発目的

サブテーマ1「海洋プラスチック及びその含有化学物質の海洋環境における分布と動態」では、以下を目的とした。1)様々なサイズの海岸漂着及び海洋漂流プラスチック中の添加剤を中心とした化学物質の濃度・存在特性を明らかにし、それらの化学物質の吸脱着・溶出特性を明らかにする。2)海洋生物中のプラスチックおよびマイクロプラスチックの存在を明らかにする。3)他のサブテーマと共同し、低次および高次栄養段階生物へのプラスチック及びそれらに含有される化学物質の影響を明らかにする。

2. 研究目標

紫外線吸収剤や難燃剤を含め20種程度の添加剤および海水中に含まれる残留性有機汚染物質(POPs)3種について世界20地点程度で採取したマイクロプラスチック中での分布と分布特性を明らかにする。それらのマイクロプラスチックに含まれる化学物質の溶出・脱着特性や、海水中からの吸着特性を明らかにする。

3. 研究開発内容

3.1. 海洋プラスチック及びその含有化学物質の海洋環境における分布と動態

ペットボトルのキャップ、レジ袋、食品パッケージ、およびアウトドア水筒を日本の市場で購入し、それらの製品に含まれるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤、およびフタル酸エステル類の分析を行った。購入製品はまず近赤外分光光度計で素材判別を行い、数cmを切り出し、ヘキサンにより浸漬抽出(24h×3回)した。回収率補正用内部標準物質を添加後、シリカゲルクロマトグラフィーによる分画・精製を行い、ガスクロマトグラフ-質量分析計(GC-MS)およびGC-MS/MSにて分析を行った。研究対象成分の構造式を図1-1に、物理化学的性質を表1に示す。

2019年～2020年に世界25カ国33箇所および日本の7海岸で採取されたプラスチックレジンペレット(Fig.1a)中のポリ塩化ビフェニル(PCBs)、臭素系難燃剤、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の分析を行った。そのうち7地点についてはレジンペレットと同程度の大きさのプラスチック破片(1mm～5mm; Fig.1b)の分析も行った。各地点について、ペレット5粒、破片については10片程度を一組にして5組程度を分析した。ペレット試料および破片試料はヘキサンにより浸漬抽出(24h×3回)した。抽出液はSurrogatesを添加後、アセチル誘導体化し、シリカゲルクロマトグラフィーによる分画・精製を行い、GC-MSおよびGC-MS/MSにて分析を行った。紫外線吸収剤についてはアセチル化により高感度で安定した分析が可能となったが、フタル酸エステル類についてクロスエステル化と操作ブランクが高いため、定量できなかった。ペレットについては、得られた化学物質濃度の中央値を取り、その地点の化学物質濃度として表現した。

2018年および2019年に日本列島周辺沿岸海域9地点で採取された漂流マイクロプラスチック中のPCBs、臭素系難燃剤、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の分析を行った。試料は調査船にてニューズトンネット(目合い315 μm)を係留低速航行し捕集した浮遊物試料をステンレス製容器に入れ、冷凍されて分析研究室に輸送されたものを用いた。試料は解凍後、ナイロンネット(目合い315 μm)に乗せた後、凍結乾燥し、拡大鏡下でプラスチックと思われる粒子をピックアップし、各粒子をATR-FTIRにてプラスチックの材質判定を行った。本研究では、ポリエチレン製のポリマーのうち0.3 mm - 1 mm (S-MP; Fig.1c) および1 mm - 5 mm (L-MP; Fig.1c) の大きさのものを分析対象とした。分析に供した試料重量はL-MPでは3 mg～217 mg、S-MPでは1 mg～39.9 mgであった。マイクロプラスチック試料は溶媒としてジクロロメタン(DCM)を用いてソックスレー抽出し、サロゲートを添加後、アセチル誘導体化し、シリカゲルクロマトグラフィーによる分画・精製を行い、GC-MSおよびGC-MS/MSにて分析を行った。

海鳥への添加剤の曝露を評価するため、北大西洋のフェロー諸島(N 62°25', W 7°20')で採取されたフルマカモメ100個体の胃内から取り出されたプラスチック片140片とペレット19個と太平洋の髯島のコアホウドリ(1個体)およびクロアシアホウドリ(5個体)が吐き戻したプラスチック片35片、計194プラスチック試料を網羅分析した。プラスチック片はヘキサンにより浸漬抽出(24h×3回)ご、一部を分取し、1mgのプラスチックに相当する抽出液をシリカゲルカラムで簡単な精製を行い、高極性成分を除去後、GC-MSのスキアンモードおよび電子捕獲型検出器付きGC(GC-ECD)で網羅分析を行った。

沖縄県座間味島のプラスチックゴミ大量漂着海岸(以下プラ漂着海岸)と漂着プラスチックゴミのほとんどない海岸(コントロール海岸)で生物試料(ムラサキオカヤドカリ、イソハマグリ)を採取し、分析した。ムラサキオカヤドカリ、イソハマグリは採取後、冷蔵状態で東京農工大学に輸送し、溶媒洗浄したステンレススチール製の器具を使って解剖し、それぞれ消化管および内臓塊(中腸腺・生殖

腺・消化管をまとめた組織)を取り出した。消化管の内容物を酸で、内蔵塊はアルカリで加水分解後、ヨウ化ナトリウム飽和水溶液で密度分離し、プラスチックを金属フィルター(ステンレススチール、孔径10 μ m)でろ過し、フィルター上に粒子を捕集した。フィルターをデシケータ乾燥し、顕微FTIRを用いマイクロプラスチックを同定・定量した。オカヤドカリの肝臓およびイソハマグリの軟体部は凍結乾燥後、有機溶媒で抽出し、Surrogatesを添加後、ゲルクロマトグラフィーおよび二段階のシリカゲルクロマトグラフィーによる分画・精製を行い、ガスクロマトグラフ-質量分析計(GC-MS)および GC-MS/MSにて、PCBsおよび各種添加剤の分析を行った。

3.2.紫外線吸収剤の吸脱実験

溶存態(truly dissolved phase)中のベンゾトリアゾールの測定を行うために、高密度ポリエチレンシート(デュボン社製タイベック 1442R)を東京海洋大学内船着き場の浮棧橋に係留させ、吸着実験を行った。ポリエチレンシート(72 \times 102cm、厚さ145 μ m)を90日間海水中に係留し係留開始から7日間~30日の間隔でシートを引き上げ、シートの端から5cm幅をハサミで切り取り、アルミホイルに包んで研究室に持ち帰った。持ち帰ってきたシートを風乾させ、化学分析に供した。

添加剤の溶出実験は比較的高濃度のベンゾトリアゾール紫外線吸収剤が検出されたランニングボトルに蒸留水を入れ、30分間30度で振とうし、30分後に蒸留水をガラス容器に移し、無水酢酸と炭酸カリウムを加えて直接アセチル誘導体化し、C18カートリッジで抽出し、シリカゲルカラムで精製した後に、GC-MSにて分析した。ボトルに蒸留水を入れた振とう溶出は2回繰り返した。

3.3.生物試料中微細マイクロプラスチック分析法の開発および沖縄海浜生物への応用

海洋生物消化管内の微細マイクロプラスチックの分析法を検討し、精製法と同定・定量法を検討した。確立した方法を、実際の環境試料に適用した。沖縄県座間味島のプラスチックゴミ大量漂着海岸(以下プラ漂着海岸)と漂着プラスチックゴミのほとんどない海岸(コントロール海岸)で生物試料(ムラサキオカヤドカリ、イソハマグリ)を採取し、分析した。ムラサキオカヤドカリ、イソハマグリは採取後、冷蔵状態で東京農工大学に輸送し、溶媒洗浄したステンレススチール製の器具を使って解剖し、それぞれ消化管および内臓塊(中腸腺・生殖腺・消化管をまとめた組織)を取り出した。消化管の内容物を酸で、内臓塊はアルカリで加水分解後、ヨウ化ナトリウム飽和水溶液で密度分離し、プラスチックを金属フィルター(ステンレススチール、孔径10 μ m)でろ過し、フィルター上に粒子を捕集した。フィルターをデシケータ乾燥し、顕微FTIRを用いマイクロプラスチックを同定・定量した。

3.4.沖縄海浜生物へのプラスチック由来化学物質蓄積の観測

沖縄県座間味島のプラ漂着海岸とコントロール海岸採取した生物試料(ムラサキオカヤドカリ、イソハマグリ)の有害化学物質の分析を行った。オカヤドカリの肝臓およびイソハマグリの軟体部は凍結乾燥後、有機溶媒で抽出し、Surrogatesを添加後、ゲルクロマトグラフィーおよび二段階のシリカゲルクロマトグラフィーによる分画・精製を行い、ガスクロマトグラフ-質量分析計(GC-MS)および GC-MS/MSにて、PCBsおよび各種添加剤の分析を行った。

3.5.添加剤入りプラスチック曝露実験の海鳥試料(腹腔内脂肪および肝臓)の添加剤の分析

海鳥に対するプラスチックの影響を直接的に評価するために行った野外(新潟県粟島)でのオオミズナギドリへ添加剤5種(臭素系難燃剤のBDE209とDBDPE、紫外線吸収剤のUV326、UV328,およびBP12)を練り込んだプラスチック(直径5mm)の投与実験における腹腔内脂肪および肝臓試料について、化学分析を行った。プラスチックに添加して投与した5種の化学物質について、オオミズナギドリ21個体の体組織(肝臓、腹腔内脂肪)、12個体の投与プラスチック(n=70)の化学分析を行った。

3.6.二枚貝キタノムラサキイガイをへのPCB・PAH吸着させたマイクロプラスチックの摂食実験におけるマイクロプ

ラスチックおよび生物組織中のPCBsおよびPAHsの分析

二枚貝キタノムラサキイガイを利用して、野外由来の残留性有機汚染物質（POPs）を吸着させたマイクロプラスチックを摂食させる実験を行い、キタノムラサキイガイへ組織中のPCBsとPAHsの分析を行いマイクロプラスチックを介したPOPs吸着の時間的変動について解析した。本項目はサブテーマ3との共同により行われたため、研究成果はサブテーマ3の部分に記載されている。

3.7. 添加剤入りマイクロビーズ曝露実験におけるアミおよびカジカ組織中の添加剤の分析

小型甲殻類であるイサザアミ属のアミと底生魚類シモフリカジカを利用した飼育実験により、食物連鎖を通じた添加剤の魚類への移行・蓄積を調べる実験を行った。添加剤入りマイクロビーズをシモフリカジカに直接曝露した系、アミを介して曝露した系、コントロールを設定し、実験を行った。添加剤入りマイクロビーズを曝露後に得られた生物組織試料中の臭素系難燃剤と紫外線吸収剤の精密分析を行った。本項目はサブテーマ3との共同により行われたため、研究成果はサブテーマ3の部分に記載されている。

4. 結果及び考察

4.1. 市場で購入したプラスチック製品中の添加剤の分布

分析したプラスチック製品の素材分析結果と添加剤分析結果を表2～表4に示す。FTIRによる素材分析の結果、レジ袋は全てPE製、食品容器（本研究では豆腐のパック）は全てPP製、ペットボトルの蓋は10種中7種がPE、3種がPP製であった。ランニングボトルはポリウレタン(PU)製であった。分析した添加剤の中では、フタル酸エステル類特にDEHPが高濃度であり、DEHPの生産量の多さを裏付ける結果であった。製品別のフタル酸エステル類の濃度では、ペットボトルの蓋で 1997 ± 1309 ng/g (n=19)、食料品容器で 1687 ± 1045 ng/g (n=6)、レジ袋で 7728 ± 4708 mg/g (n=4)であり、レジ袋で濃度が高い傾向にあり、フタル酸エステル類の使用目的(柔軟性を付与する)と整合性のある結果となった。今回分析したPE, PPからのDEHPの検出はDEHPが主に塩ビ樹脂(PVC)に配合されることと一見整合性がないようにみえるが、PVC以外のポリマーでも全生産量の1%程度が配合されていたことを考えると妥当な結果と考えられる¹⁾。

ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤は成分や製品によって検出傾向が異なった。UV-P, UV-326, UV-329, UV-PS, UV-9の5成分が数十～数百ng/gと比較高濃度であった。UV-320, UV-327, UV-350の3成分は数ng/g以下の低濃度であった。ペットボトルの蓋では、UV-326が相対的に高濃度であり、オレンジジュースボトルの蓋では数百ng/gであった。UV-326は、アリルヒドロカーボンレセプター(AhR)との結合能も報告されていることから²⁾、その溶出や環境残留性について精査する必要がある。UV-Pはペットボトルの蓋から広く検出された。UV-Pが女性ホルモン受容体との結合能を持つことが最近報告されたこと³⁾、UV-Pの疎水性が比較的低い(log Kow = 3)ことから、その飲み物への溶出も視野に入れて、動態と影響を調査する必要がある。ランニングボトルからUV-329, UV-P, UV-9が数百 ng/g～千 ng/gのオーダーで検出されたことは注視すべきである。いずれも女性ホルモンレセプターとの結合能が報告されている化合物である^{3) 4)}。特に、後述するようにボトルの中に水を入れて振とうした場合にUV-Pが水から検出されたことから、製造者に対する注意喚起が必要であると考えられる。ベンゾフェノン系紫外線吸収剤はBP-12が食品パッケージとレジ袋から検出された。

4.2. 吸着実験

環境中でマイクロプラスチックより検出される有機汚染物質には二つの起源が考えられる。一つがもともとプラスチック製品に配合された添加剤の残留、もう一つは周辺海中からの吸着である。PCBsは吸着と考えられているが、本研究で対照とした他の成分については添加剤と吸着の寄与の両方の可能性が考えられる。その識別のために行われた現場吸着実験の結果を図1-2に示す。PCBsについてはCB66～CB138のPEシート中の濃度は係留後7日目から増加し始め、28日まで増加傾向を示していた。ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤についても濃度が経時的に上昇する、すなわち海水中からプラスチックに吸着することが確認された。多くの成分で係留開始から90日後でも濃度は増加傾向にあり吸着平衡

に達していないことが示された。一方UVPについては10日程度で吸着濃度は最大値をしめし、吸着が早く進行していると考えられた。疎水性化学物質の吸着速度が物質の疎水性に依存し、疎水性が低ければ吸着速度が速く平衡に達するまでの時間は短く、疎水性が大きいと吸着速度が遅く平衡に達するまでの時間が長い⁵⁾。UVPのlog Kowが3であり、他のベンゾトリアゾールよりも疎水性が小さいため早く吸着平衡に達したのと考えられる。90日後の濃度は、成分により異なり8ng/g(UV234)～155 ng/g (UV326)であった。同様の現場吸着実験系で30日後のPCBs濃度 (Σ 13PCBs : 30 ng/g) は東京湾奥の海岸漂着レジンペレットで観測される濃度 (300 ng/g程度) よりも1桁程度低かったことも考えると、都市水域で採取されたマイクロプラスチック中ベンゾトリアゾール類についてもUVP以外の成分は30日後の濃度より10倍程度 (数十～数百 ng/g) が吸着に由来する濃度として予想される。

比較的高濃度のベンゾトリアゾール紫外線吸収剤を含有していたランニングボトル (ポリウレタン製) に蒸留水を入れて30°Cで30分振とうしたところ、60 ng/L のUVPが検出された。一方、もともとボトルに含まれていたUV329はほとんど検出されなかった (<0.7 ng/L)。これは両化合物の物性を考えると妥当である。すなわち、疎水性の低いUVP(log Kow:3)は水に溶け出したが、疎水性の高いUV329(log Kow: 6.21)はプラスチックから溶け出さなかったと考えられる。固相と水溶液中の濃度から分配係数を計算するとUVPのlog Kpwは4.21と計算され、log Kow値よりも大きく、まだ平衡に達していないため、分配がプラスチック相に偏っていたと考えられる。

4.3. レジンペレット中の吸着性POPsおよび添加剤の分布

図1-3 (上) に世界25カ国のレジンペレット中のPCBs濃度 (CB66, CB 101, CB 110, CB 149, CB 118, CB 105, CB 153, CB 138, CB 128, CB 187, CB 180, CB 170, CB 206の合計濃度 ; Σ 13PCBs) を示す。南アフリカ、セネガル、チュニジアで500 ng/g～7000 ng/gと他の国比べて極めて高かった。これらの国ではPCBsの使用履歴がないことから、先進工業化国から輸入された電子電気廃棄物(E-waste)等について発生源としての可能性を検討していく必要がある。その他は、ギリシャと日本の大阪湾(Japan#4)で高く、200 ng/g～400 ng/gと、これまで先進工業化国で観測されたレベルと同等のレベルとなった。

ベンゾトリアゾール紫外線吸収剤(図1-3(下))は、特定の紫外線吸収剤が散発的に高濃度になることがあり、例えばコンゴ、イランでUV-327が数百ng/g以上検出されたが、多くの地点で各成分数十ng/g程度、10成分の合計濃度は数百 ng/gであった。吸着実験の結果とも整合性があり、これが吸着由来の紫外線吸収剤のバックグラウンドを考えられる。

臭素系難燃剤も全体に吸着由来の組成を示した (図1-4) 。ペンタ製品を過去に大量に使用していたアメリカで高濃度であり、低臭素BDEsが卓越していた。アメリカに次いで西ヨーロッパ、日本で高濃度となり、ここでも低臭素BDEsが卓越していた。また、ガーナなど経済的発展途上国で比較的高濃度のPBDEsが検出され先進工業化国から輸入されたE-wasteの寄与が示唆された。全体としてはBDE-209が卓越する場合は少なく、海水中からの吸着由来のバックグラウンドは数ng/g～数十ng/gと考えられた。

4.4. 海岸漂着プラスチック破片の分析結果

表5には海岸漂着プラスチック破片およびレジンペレット中のPCBs、PBDEs、ベンゾトリアゾール紫外線吸収剤濃度を示す。同じ地点にいて3組～6組を分析しており、各地点について最低濃度の組より2桁高い濃度を示す場合を、散発的な高濃度として、赤字 (破片の場合) か青字 (ペレットの場合) で濃度を示した。散発的な高濃度はUV326, UV327, UV328, UV329, UV234, BDE209, 低臭素BDEsについて観測された。添加剤が用途に応じて配合されているためこのような散発的に高濃度を示す分布になるものと考えられる。散発的な高濃度の出現頻度はUV326, UV327, およびBDE209について5組中1組から2組、1組が10片のプラスチック片から構成されるので、1/50～2/25、2%～4%の頻度となる。濃度は、高い場合には数万ng/g (数十 μ g/g) で検出される場合も散見された。破片の場合は一組に10粒使って分析しているので、1粒高濃度で添加剤が含まれていると仮定すると数百 μ g/gのオーダーで添加剤が含有されていることを意味する。前述した製品中の紫外線吸収剤濃度の方が一桁から二桁低く、今回測定対象とした製品 (ペットボトルの蓋、レジ袋、食品パッケージ、ランニングボトル) 以外の製品により

高濃度の紫外線吸収剤を添加している製品の存在が示唆される。野外で使用する製品も含め、より多くの種類のプラスチック製品中の添加剤の測定が必要である。プラスチック破片（44組中組）の方でペレット（44組中18組）よりも高頻度で散発的な高濃度が検出された。これは、ペレットから製品を加工する段階で添加剤が配合されることと符合する。ただし、ケニアのペレットでは破片よりも高頻度で散発的な高濃度の添加剤が検出された。添加剤を含む製品からリサイクルされたリサイクルペレットの可能性も考えていく必要がある。また、PPで組、PEで14組とPPで高頻度で添加剤が検出された。PPの方が劣化しやすいため、添加剤の配合機会が多いためと考えられる。

ニューストンネットで採取した漂流マイクロプラスチックと海岸漂着マイクロプラスチック破片中のPCBsとベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤濃度を図1-6に示す（これらの試料の採取地点は図1-5に示した）。PCBs濃度は東京湾の一つの試料（1802）で他よりも高濃度であったが、水環境中の滞留時間が長い破片が含まれているためと考えられた。前報(Yeo et al., 2020)⁶⁾ではS-MPの方がL-MPよりもPCBs濃度が高かったが、今回はS-MPの方がL-MPよりPCBs濃度が高いという傾向は認められなかった。滞留時間が長いマイクロプラスチックが多いためではないかと考えられた。PBDEsについてはS-MP, L-MP共に高臭素BDEsが卓越して高濃度の地点が散発的に出現する添加剤由来のパターンが観測された。BDE209の濃度は数百ng/gであった（図1-7）。ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤についても、UV326, UV327, UV328等の特定の成分が卓越しながら高濃度を示すパターンがS-MP, L-MPについて観測され、吸着由来でなく添加剤由来であるためと考えられ、微細化と海洋を漂流する間に添加剤が溶出しきらずに、プラスチックに保持されていることが示された。これまで海洋漂流マイクロプラスチック、特に0.3 mm- 1 mmの微細なMPにベンゾトリアゾールの残留を報告した例はなく、世界的にも新規性の高いデータが得られた。散発的に出現する添加剤濃度はUV327とUV328については数千ng/g、UV326については数万ng/gのレベルであった。

4.5.海鳥摂食プラスチック片中の添加剤および副産物の網羅分析結果

海鳥が摂食していたプラスチック片（ペレット含む）194試料から検出された添加剤はUV-328 (1.1 µg/g - 1.4 µg/g ; n=2), UV-326 (23 µg/g - 180 µg/g ; n=2), UV-327 (5.8 µg/g - 860 µg/g ; n=4), BP-12 (1700 µg/g ; n=1), スチレントリマー (24 µg/g - 3200 µg/g ; n=4), ヘキサプロモシクロドデカン (HBCDD; 3 µg/g - 29 µg/g ; n=3)、BDE-209 (81 µg/g ; n=1)であり（図1-8）、検出頻度は0.5%～2%であった。ベンゾトリアゾール紫外線吸収剤とBDE-209については海岸漂着プラスチック破片で散発的に観測される高濃度の添加剤と検出頻度と検出濃度は整合性のある結果となった。今回の分析の結果から、プラスチック添加剤は海鳥への有害化学物質の曝露源となる可能性が示唆された。海鳥摂食プラスチックから高濃度(1 µg/g以上)で検出された添加剤は、UV-328, UV-326, UV-327, BP-12, HBCDD, BDE-209であり、いずれもlog K_{ow}が5より大きい。K_{ow}が小さいものは水中を浮遊する間に溶出したと考えられる。海鳥への曝露・蓄積という点で考えると、log K_{ow}が5より大きい添加剤が問題となる。一方、K_{ow}が小さい添加剤は河川水や海水の汚染源、飲食に使用される場合はヒトへの曝露源となる点も考慮する必要がある。

4.6.添加剤入りプラスチック曝露実験の海鳥試料(腹腔内脂肪および肝臓)の添加剤の分析結果

今回の分析の結果から、プラスチック添加剤は海鳥への有害化学物質の曝露源となる可能性が示唆された。ただし、摂食プラスチックによる添加剤曝露が体内組織（肝臓や脂肪）への添加剤の蓄積につながるのかどうかの検証が必要であった。そこで、添加剤を練り込んだプラスチックペレットを作製し、それを鳥に摂食させる海鳥の飼育実験から得られた海鳥体内組織（肝臓と脂肪）の分析から、添加剤の移行・蓄積の検証を行った。分析の結果、添加剤入りプラスチックの曝露後16日、32日の個体の添加剤（UV-328, UV-326, UV-327, BDE-209）濃度はコントロール個体に対して290倍～120000倍の濃度を示し、摂食させたプラスチックからUV-328, UV-326, UV-327, BDE-209の移行と脂肪と肝臓への蓄積が確認された（図1-9）。すなわち、摂食プラスチック片中に添加剤が高濃度で含まれていれば、海鳥組織へ添加剤が移行・蓄積することが確認された。

今回、海鳥摂食プラスチックから検出された添加剤5種の検出頻度は0.5%~2%であった。いずれの添加剤も検出されないプラスチック片は178個で検査した194個中91.75%であった。コアホウドリが1羽当たり15片のプラスチックを摂食していたことから、コアホウドリへの添加剤曝露と組織への移行・蓄積の確率は73%（4羽のコアホウドリを調べると3羽が摂食プラスチックからの添加剤蓄積が起こっている可能性）と考えられる。また、今後海洋プラスチック浮遊量が増え1個体あたりのプラスチック摂食個数が27個（現状の2倍）を超えると、9割の海鳥個体が摂食プラスチックによる添加剤の曝露・蓄積を受ける可能性がある。今回の分析の結果から、プラスチック添加剤は海鳥への有害化学物質の曝露源となることが明らかとなった。

4.7. 離島海浜生物消化管内のマイクロプラスチックと組織中の有害化学物質濃度

沖縄座間味島のムラサキオカヤドカリをプラ漂着海岸で採取した2個体とコントロール海岸で採取した2個体を分析した。消化管内のプラスチックはプラ漂着海岸の個体で293個~482個/g-湿重量とコントロール海岸の個体の0個~13個/g-湿重量に比べて1桁以上高かった。マイクロプラスチックのポリマー組成はプラ漂着海岸の個体ではポリスチレンが多い個体が観測された（Fig.10）。この個体についてはポリ臭素化ジフェニルエーテルがコントロール海岸で採取された個体に比べて高濃度で検出された。検出された同族異性体は8臭素のBDE202, 7臭素のBDE179, 6臭素のBDE136, BDE146と同定された

（Fig.11）。オカヤドカリが摂食したプラスチックに含有されていた難燃剤のBDE-209が体内で代謝（脱臭素過程）を受けることにより、これらの同族異性体が生成したと考えられる。代謝系は異なるが、このムラサキオカヤドカリの代謝能の高さは同個体から検出されたPCBsの同族異性体の構成は、代謝抵抗性のある同族異性体が多く、易代謝性の同族異性体がほとんど検出されないことと調和的であった。ムラサキオカヤドカリの分析結果から、生物が添加剤を含んだマイクロプラスチックを取り込み、添加剤が体内で代謝され、代謝産物が体内に蓄積するという新たな曝露・蓄積機構が示唆された。

座間味島のプラ漂着海岸で採取した二枚貝イソハマグリの軟体部のイソハマグリ中のPCBs濃度はコントロール海岸のイソハマグリに比べて2桁程度高濃度であった（Fig.12）。プラ漂着海岸のイソハマグリ内蔵塊からは多数のマイクロプラスチックが検出されている。前述（表5）のように座間味島のマイクロプラスチック中のPCBs濃度は低いが、多数のマイクロプラスチックに曝露されると体内に取り込まれる吸着性のPOPs量も多くなる可能性が示唆された。こちらも今後、個体数を増やして現象の再現性を確認することと、吸着性POPsの移行・蓄積機構を解明していく必要がある。なお、今回のムラサキオカヤドカリとイソハマグリの採取と分析の費用の一部は「平成30年度沖縄県海岸漂着物等地域対策推進事業」によって、サポートされた。

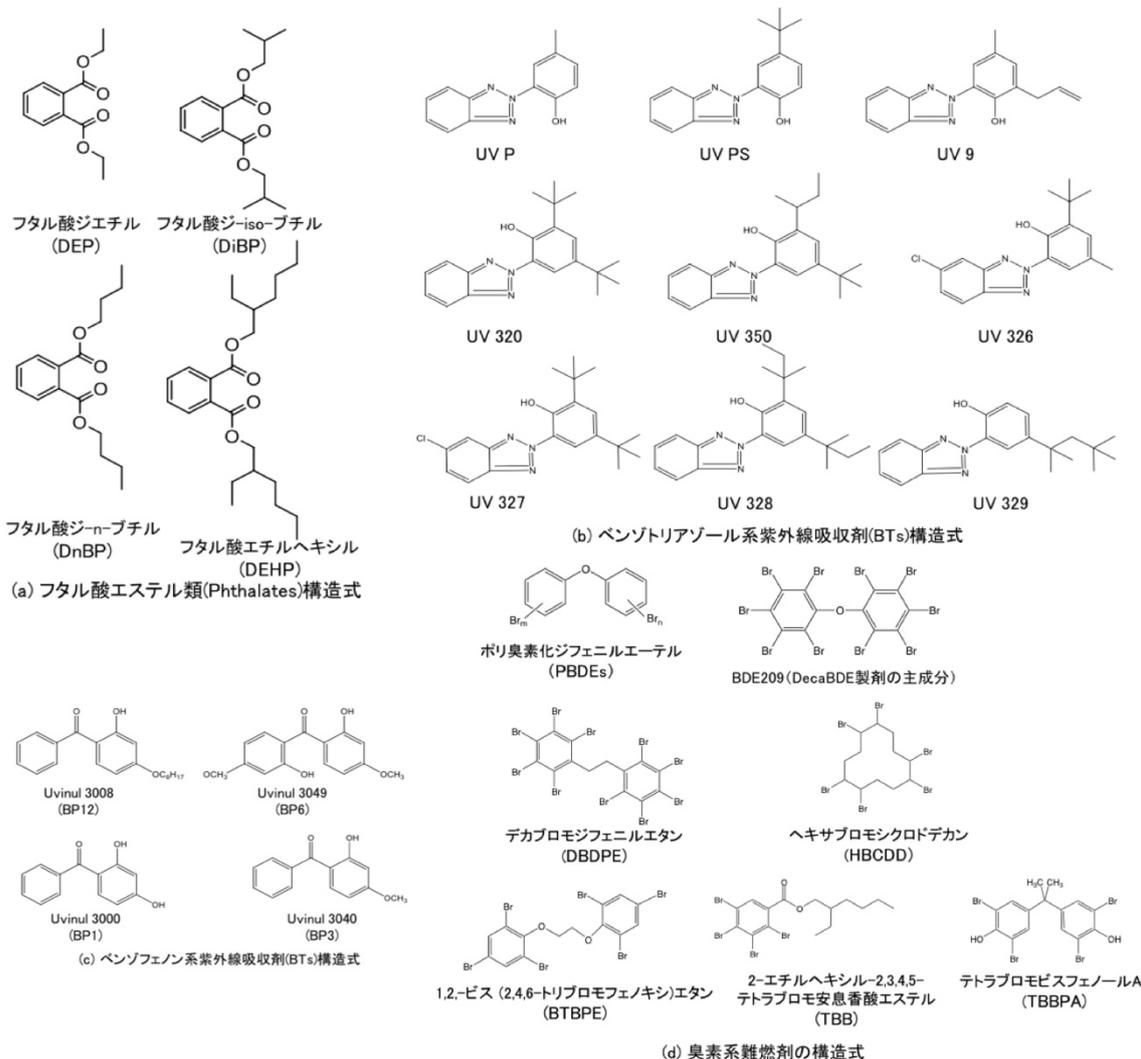


図1-1. 対象成分の化学構造式

	MW	log Kow*	Water solubility**	log Koa
BDE209	959	12.11	2.84E-11	18.4
DBDPE	971	13.64	1.16E-12	19.2
HBCD	642	7.74	2.09E-05	11.9
DEP	222	2.65	287	7.0
DiBP	278	4.46	5.1	8.4
DnBP	278	4.61	2.4	8.6
DEHP	390	8.39	0.001	12.6
BP3	228	3.52	68.6	10.0
BP12	326	6.96	0.04	12.3
UVP	225	3.00	25.6	15.9
UV326	316	5.55	0.7	16.9
UV329	323	6.21	0.2	17.0
UV328	351	7.25	0.01	17.8
UV327	358	6.91	0.03	17.9
UV234	448	7.67	0.002	20.9

* EPI Suite™ version4.11 ** (mg/L)

製品名	材質	DEP	DisoBP	DnBP	DEHP
ペットボトルのキャップ					
お茶	PP	16	71	252	1339
ミネラルウォーター	PE	12	140	89	577
紅茶	PE	19	169	342	3106
お茶	PE	16	63	194	344
スポーツドリンク	PE	19	237	585	790
スポーツドリンク	PE	17	687	375	692
オレンジジュース	PP	34	129	192	460
炭酸飲料	PE	14	75	269	986
オレンジジュース	PP	15	74	208	916
炭酸飲料	PP	11	208	439	1186
レジ袋					
#1	PE	89	421	1792	3797
#2	PE	64	245	6067	8397
#3	PE	40	103	319	3994
#4	PE	30	427	968	4289
食品パッケージ					
#1	PP	64	31	67	491
#2	PP	57	173	154	793
#3	PP	49	251	448	900
#4	PP	14	33	118	772
定量限界以下					

表1-3. 容器包装プラスチックから検出されたベンゾトリアゾール紫外線吸収剤 (ng/g)と内分泌攪乱作用

製品名	材質	UV-P	UV-9	UV-PS	UV-329	UV-326	UV-320	UV-350	UV-328	UV-327
ペットボトルのキャップ										
お茶	PP	104	n.d.	n.d.	n.d.	12	n.d.	n.d.	n.d.	0
ミネラルウォーター	PE	5	n.d.	5	n.d.	1	n.d.	n.d.	0	n.d.
紅茶	PE	47	n.d.	n.d.	n.d.	26	0	0	1	n.d.
お茶	PE	10	1	0	8	9	0	1	0	0.04
スポーツドリンク	PE	120	0	2	n.d.	15	0	0	1	0.1
スポーツドリンク	PE	57	n.d.	2	8	6	0	1	1	0.2
オレンジジュース	PP	16	n.d.	n.d.	n.d.	73	n.d.	0	3	0.3
炭酸飲料	PE	160	n.d.	30	n.d.	9	n.d.	n.d.	1	0.2
オレンジジュース	PP	34	n.d.	n.d.	6	234	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
炭酸飲料	PP	24	n.d.	2	2	4	n.d.	n.d.	2	0.2
レジ袋										
#1	PE	209	n.d.	93	6	21	0.1	0.1	3	n.d.
#2	PE	13	n.d.	111	31	126	n.d.	n.d.	1	n.d.
#3	PE	31	n.d.	119	22	22	0	n.d.	1	n.d.
#4	PE	n.d.	13	n.d.	27	3	n.d.	n.d.	1	n.d.
食品パッケージ										
#1	PP	n.d.	4	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.2	n.d.
#2	PP	n.d.	18	n.d.	3	15	0.09	0.1	0.3	0.3
#3	PP	n.d.	26	28	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.6
#4	PP	n.d.	10	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.2	0.4
アウトドア水筒										
ランニングボトル	PU	966	729	n.d.	2012	7	n.d.	3	10	31
内分泌攪乱作用										
女性ホルモン受容体結合能	A	A	A	C						
アрилハイドロカーボン受容体結合能	B	B			B					
定量限界以下										

表1-4. 容器包装プラスチックから検出されたベンゾフェノン紫外線吸収剤 (ng/g)

製品名	材質	BP3	BP12
ペットボトルのキャップ			
お茶	PP	n.d.	11
ミネラルウォーター	PE	1.4	8
紅茶	PE	n.d.	4
お茶	PE	2.1	3
スポーツドリンク	PE	n.d.	6
スポーツドリンク	PE	6.5	5
オレンジジュース	PP	0.9	16
炭酸飲料	PE	3.7	12
オレンジジュース	PP	n.d.	2
炭酸飲料	PP	n.d.	1
レジ袋			
#1	PE	n.d.	172
#2	PE	n.d.	69
#3	PE	n.d.	36
#4	PE	n.d.	877
食品パッケージ			
#1	PP	n.d.	n.d.
#2	PP	n.d.	11
#3	PP	n.d.	842
#4	PP	n.d.	47
定量限界以下			

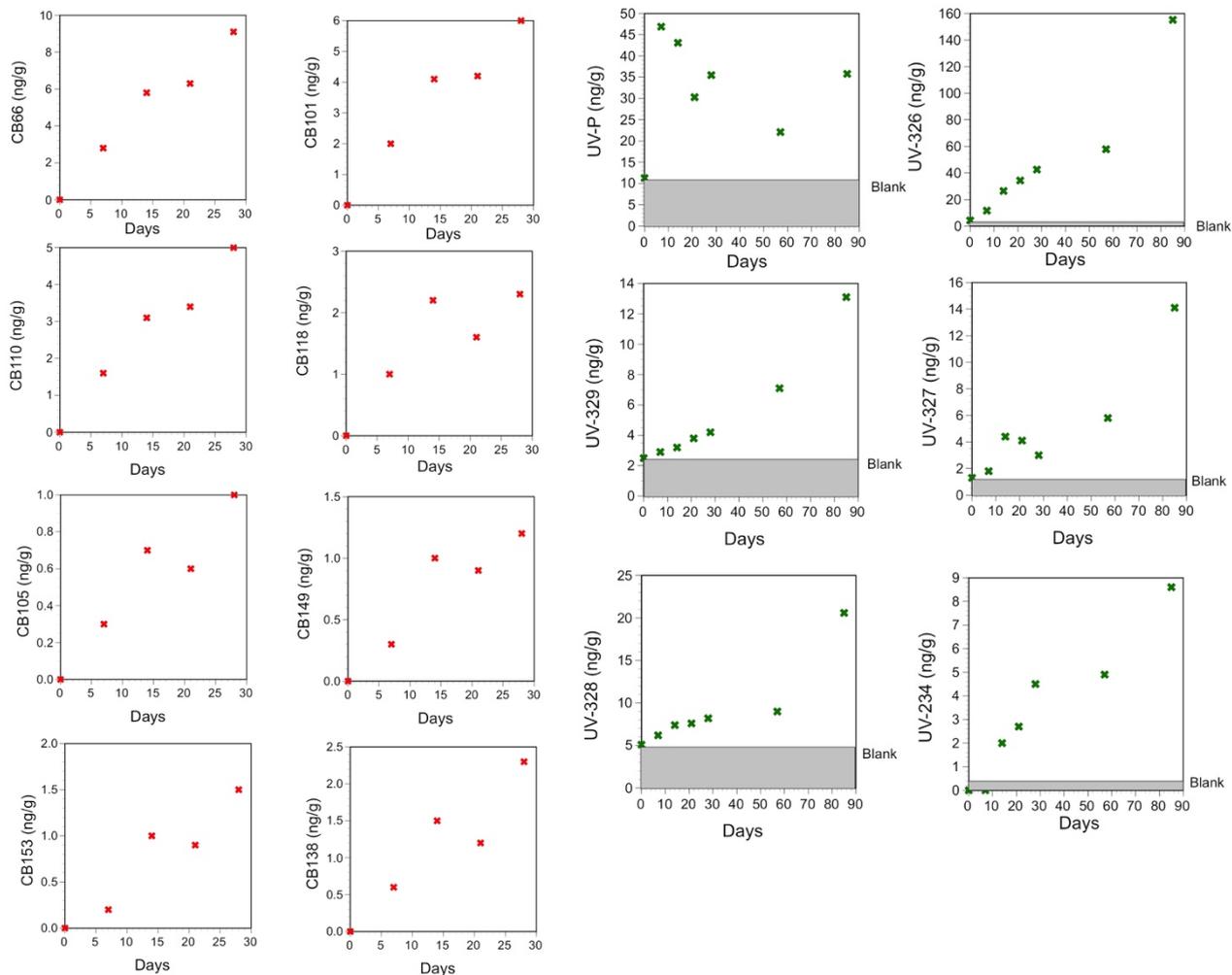


図1-2. ポリエチレン(PE)シート係留吸着実験におけるPEシート中PCBs濃度(左2列)とベンゾトリアゾール紫外線吸収剤濃度(右2列)の経時変化

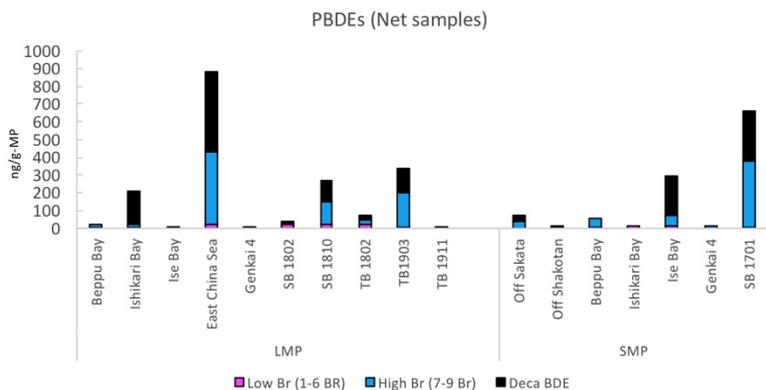
図1-6.海洋漂流および海岸漂着マイクロプラスチック中のPCBs濃度(左)とベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤濃度(右)

Table 1-5. Concentrations (ng/g-plastic) of target additives in beached pellets and fragments in remote islands and urban coastal zones																	
			UVF	UVPS	UV329	UV9	UV320	UV350	UV326	UV327	UV328	UV234	BDE-209	LBDEs	PCBs		
Japan Zamami Is	PE pellet	#1	3	14	1	5	0	1	30	31	2	n.d.		1	0.4	6	
		#2	2	9	2	2	0	1	29	31	4	1		n.d.	1.1	6	
		#3	3	3	1	3	0	0	36	6	4	3		0	1.4	3	
		#4	1	2	1	2	0	0	20	11	2	1		n.d.	0.2	18	
		#5	1	2	1	2	0	2	16	256	3	2		0	1.7	8	
	PP pellet	#1	7	20	3	40	n.d.	n.d.	7	25	12	20		0	5.0	32	
		#2	8	13	25	4	n.d.	1	49	24	4	n.d.		0	0.0	2	
		#3	7	9	4	7	0	3	25	25	13	10		0	0.2	1	
		#4	7	14	1	11	n.d.	n.d.	17	2	3	n.d.		0	0.0	1	
		#5	6	8	1	6	n.d.	n.d.	18	15	5	n.d.		0	0.1	3	
	PE fragment	#1	21	26	13	24	n.d.	8	201	1071	15	n.d.		0	2.4	2	
		#2	9	17	2	7	n.d.	1	448	73	73	26		n.d.	3.3	9	
		#3	5	7	1	4	n.d.	n.d.	5	16	4	2		0	0.1	1	
		#4	3	13	2	5	n.d.	n.d.	20	33	12	8		1	0.2	1	
		#5	5	4	1	8	n.d.	n.d.	4	6	5	5		0	0.0	15	
	PP fragment	#1	15	14	6	23	n.d.	n.d.	52	11	13	n.d.		0	0.5	2	
		#2	6	13	5	40	n.d.	n.d.	19	29	10	44		9	0.3	2	
		#3	7	0	23	42	0	4	132	792	n.d.	3		35	1.6	14	
		#4	6	9	5	30	n.d.	n.d.	109	17	29	13		3	0.6	2	
		#5	19	4	68	38	74	n.d.	67	65	23	8		48	1.0	1	
	Henderson	PE pellet wh	#1	16	1	1	0	0	0	6	2	5	0		0	0.1	0
			#2	26	2	3	0	n.d.	n.d.	7	4	7	n.d.		0	0.0	0
			#3	17	1	1	n.d.	0	0	7	5	5	n.d.		0	0.0	0
		PE pellet bla	#1	12	2	1	1	n.d.	n.d.	7	15	6	50		31	0.1	8
			#2	23	2	2	n.d.	0	0	68	10	7	96		1	0.4	23
#3			14	2	1	0	0	0	18	14	26	30		0	0.2	3	
PE fragment		#1	10	2	1	n.d.	n.d.	n.d.	12	4	2	n.d.		0	0.4	0	
		#2	19	6	2	1	1	2	40	188	9	3		1	0.0	1	
		#3	10	3	0	2	n.d.	n.d.	2	25	3	n.d.		0	0.0	0	
PP fragment		#1	40	22	2	12	n.d.	n.d.	6	1	6	n.d.		0	0.0	0	
Japan Tokyo Bay Kasai	PE pellet	#1	n.d.	18	n.d.	11	1	10	529	54	121	n.d.		0	2.5	168	
		#2	6	9	10	2	1	2	223	55	50	38		n.d.	2.1	57	
		#3	10	5	6	1	1	2	198	245	16	3		0	2.1	121	
		#4	12	106	n.d.	7	1	2	470	60	12	10		n.d.	1.6	264	
		#5	7	6	5	2	1	2	222	82	24	9		1	1.6	289	
	PP pellet	#1	10	18	4	2	n.d.	15	166	43567	n.d.	2		n.d.	4.6	280	
		#2	534	4	15	1	193	n.d.	4692	522	226	2		n.d.	6.1	43	
		#3	1976	4	102	65	4	1	6919	226	33	5		2	2.0	38	
		#4	547	17	15	8	n.d.	6	3273	194	12	3		5	370.9	243	
		#5	114	2	69	3	0	2	18012	118	17	6		1	28.1	85	
	PE fragment	#1	51	13	25	n.d.	5	4	80	15	13	30		n.d.	0.9	8	
		#2	36	13	70	n.d.	5	1	117	23	37	44		5	1.1	13	
		#3	11	17	58	n.d.	4	2	104	69	11	43		0	0.7	13	
		#4	18	8	22	10	1	1	81	250	72	22		1	1.5	17	
		#5	20	5	15	n.d.	1	3	47	15	9	32		0	1.2	11	
		#6	19	1	40	n.d.	0	6	81	130	9	29		1	0.5	29	
	PP fragment	#1	50	18	32	15	1	1	80	40	18	23		1	6.7	22	
		#2	41	18	19	11	0	1	78	130	11	45		1	0.2	14	
		#3	74	18	38	8	3	12	9837	58	3	32		613	1491.3	26	
		#4	36	6	7	14	1	1	74	33	10	31		2	0.7	13	
		#5	29	5	17	9	1	1	107	215	7	52		2	2.9	6	
		#6	40	6	16	16	1	2	95	333	67	37		1	0.7	17	
	Japan Fujisawa	PE pellet	#1	9	15	3	n.d.	n.d.	n.d.	105	519	10	1		0	0.3	378
			#2	6	6	7	n.d.	3	3	802	9	5	1		0	1.0	24
			#3	9	7	8	n.d.	1	1	208	22	49	22		2	109.5	51
#4			10	8	7	n.d.	n.d.	n.d.	12	51	8	2		1	4.0	175	
#5			8	5	2	n.d.	n.d.	n.d.	13	14	8	1		0	0.2	50	
PP pellet		#1	6	9	3	n.d.	n.d.	n.d.	14481	31	4	1		0	0.2	37	
		#2	7	16	2	n.d.	0	2	11194	7	4	1		1	1.6	42	
		#3	5	14	2	n.d.	0	2	15864	91	4	1		0	0.5	116	
		#4	7	12	10	n.d.	n.d.	n.d.	67	34	3	1		3	0.3	62	
		#5	7	10	31921	n.d.	n.d.	n.d.	680	576	22	7		1	13.1	60	
PE fragment		#1	9	38	4	9	1	1	19	4	6	4		1	0.6	14	
		#2	9	37	4	4	n.d.	n.d.	45	39	447	3		1	0.5	19	
		#3	4	17	5	9	0	1	46	11	10	2		3	2.3	57	
PP fragment		#1	6	22	4	3	1	2	647	1107	7	3		0	14.5	108	
		#2	5	n.d.	79904	5	1	4	34512	76	6	1		1	1.2	23	
	#3	3	12	72	5	n.d.	n.d.	33	5	3	2		0	0.2	8		

Continued

Table 1-5. Concentrations (ng/g-plastic) of target additives in beached pellets and fragments in remote islands and urban coastal zones

Country	Sample Type	Sample ID	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15		
Lebanon	PE pellet	#1	9	5	2	n.d.	2	2	114	145	82	n.d.	n.d.	4.0	364				
		#2	10	7	3	n.d.	3	1	518	83	45	35	1	6.5	79				
		#3	13	5	3	n.d.	2	7	98	118	33	3	n.d.	3.2	113				
		#4	8	4	1	n.d.	0	6	84	88	11	8	0	1.7	23				
		#5	7	4	3	n.d.	1	2	155	201	23	6	0	2.5	84				
	PP pellet	#1	4	8	1	n.d.	2	1	39	35	11	n.d.	n.d.	2.9	53				
		#2	10	10	1	n.d.	1	2	135	216	40	34	n.d.	1.7	203				
		#3	8	6	2	n.d.	n.d.	n.d.	241	60	21	4	n.d.	1.6	56				
		#4	22	7	5	n.d.	n.d.	n.d.	72	18	13	11	n.d.	1.7	466				
		#5	9	7	1	n.d.	1	2	145	20	9	7	0	1.9	37				
	PE fragment	#1	33	10	23	22	4	4	9731	115	41	n.d.	30	3.4	73				
		#2	13	12	11	11	2	2	1099	136	52	92	12	9.2	73				
		#3	21	11	2	43	0	1	466	38	14	8	1	4.9	12				
		#4	23	10	7	10	7	12	11645	299	25	21	10	4.4	23				
	PP fragment	#1	112	7	5	12	1	1	1823	87	22	n.d.	7	6.6	27				
		#2	40	9	111	15	3	3	1187	164	240	103	31	4.1	30				
		#3	25	24	18	33	5	1	2959	25	56	9	17	6.1	28				
		#4	44	13	57	22	4	2	838	100	59	26	194	7.4	18				
		#5	28	17	7	7	n.d.	n.d.	2200	45	125	15	4	30.4	47				
		#6	21	16	15	17	n.d.	n.d.	512	24	256	12	51	10.9	26				
	Costa Rica	PE pellet	#1	4	16	7	2	n.d.	n.d.	5	2	7	2	0	7.9	9			
			#2	4	7	3	1	n.d.	n.d.	31	4	8	1	0	0.5	10			
			#3	4	87	7	2	n.d.	n.d.	12	13	21	9	0	7.8	16			
			#4	5	5	10	3	0	1	5	3	4	1	0	1.5	5			
#5			6	7	4	2	n.d.	n.d.	10	3	22	2	7	2.2	2				
PP pellet		#1	4	3	2	1	1	2	501	n.d.	4	n.d.	1	0.3	2				
		#2	3	4	1	n.d.	3	2	39	3	4	2	0	1.5	1				
		#3	4	5	7	n.d.	n.d.	n.d.	6	99	17	3	0	0.9	13				
		#4	8	2	1	n.d.	n.d.	n.d.	5	3	4	0	0	0.5	27				
		#5	3	4	1	n.d.	0	1	4	3	4	1	0	1.8	15				
PE fragment		#1	4	6	14	9	1	8	4922	10986	15	3	1	2.0	14				
		#2	5	6	57	9	n.d.	n.d.	30	32	14	7	1	1.4	1				
		#3	4	8	15	6	n.d.	2	27	16	13	2	1	2.6	6				
		#4	4	6	16	5	n.d.	1	79	52	5	n.d.	0	1.1	1				
PP fragment		#1	3	9	54	16	n.d.	1	53	54	25	13	7	0.7	2				
		#2	3	7	53	4	n.d.	1	126	40	9	n.d.	1	0.6	2				
		#3	2	5	15	3	1	1	20	14	26	n.d.	1	7.1	2				
		#4	9	6	161	14	1	2	108	216	70	163	184	13.6	5				
		#5	6	9	14	13	1	4	30	31	19	4	1	0.9	1				
Kenya		PE pellet	#1	0	10	3	10	2	1	154	156	10	n.d.	16	0.0	2			
			#2	10	1	4	n.d.	0	1	112	211	7	n.d.	1	6389.1	8			
			#3	14	3	3	n.d.	n.d.	126	136	29566	18	n.d.	1	3.5	8			
			#4	13	2	2	n.d.	0	1	107	143	7	n.d.	1	1.1	3			
			#5	10	3	2	17	n.d.	n.d.	129	126	11	n.d.	1	0.3	6			
	PP pellet	#1	12	4	2	10	1	3	87	210	9	276	1	0.2	2				
		#2	11	4	2	n.d.	n.d.	77	146	45911	7	61	0	0.3	4				
		#3	11	4	3	9	n.d.	143	92899	590	78	96	1	0.1	9				
		#4	8	3	3	13	n.d.	68	214	42951	4	27	1	0.2	9				
		#5	9	3	3	16	n.d.	2	120	168	10	32	1	0.2	8				
	PE fragment	#1	16	5	2	4	2	1	161	103	11	n.d.	1	0.2	1				
		#2	12	7	4	5	1	1	196	80	22	6	2	0.2	1				
		#3	11	2	1	2	0	0	119	52	7	n.d.	0	0.0	0				
	PP fragment	#1	25	25	4	29	0	1	25	49	27	20	1	0.8	1				
		#2	29	24	10	32	5	4	89	145	69	20	78	2.1	3				
		#3	28	19	59	24	0	15	39	602	90	28	313	0.9	6				
		#4	14	13	4	n.d.	1	2	22	38	18	7	1	0.1	1				



←図1-7.海洋漂流マイクロプラスチック中のポリ臭素化ジフェニルエーテル(PBDEs)濃度(左)



図1-8.高濃度の添加剤が検出された海鳥の胃内のプラスチックと添加剤濃度

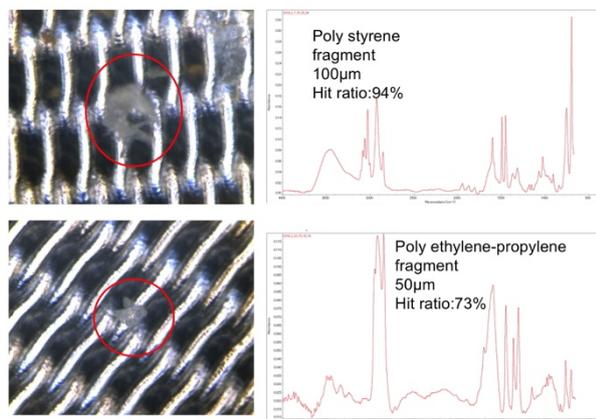


図1-10. 沖縄座間味島のオカヤドカリ消化管内から検出されたマイクロプラスチック(バックはマイクロプラスチックを濾しとったステンメッシュのフィルター)

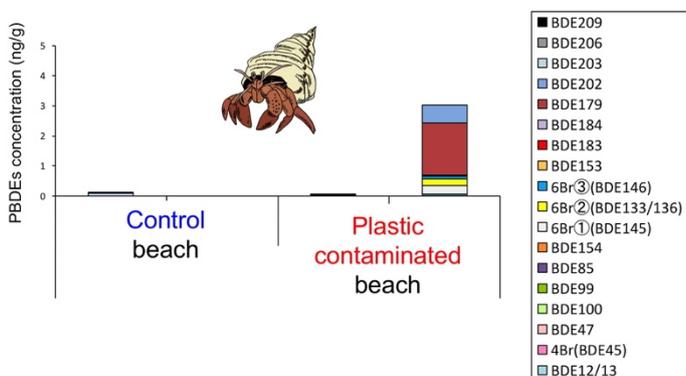


図1-11.沖縄座間味島プラスチック漂着の多い浜と少ない浜で採取されたムラサキオカヤドカリ肝臓中のポリ臭素化ジフェニルエーテル濃度

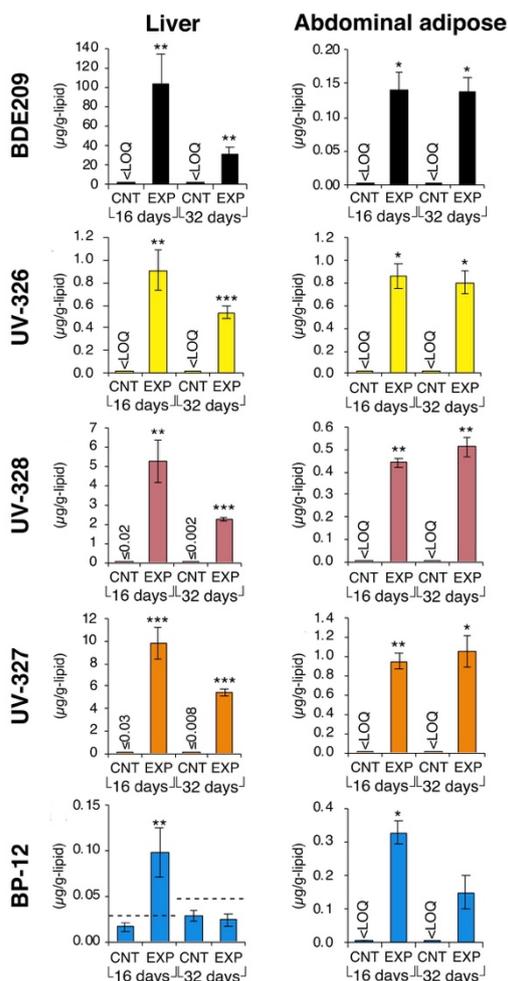


図1-9.添加剤入りプラスチック摂食実験における海鳥の肝臓と腹腔脂肪中の添加剤濃度

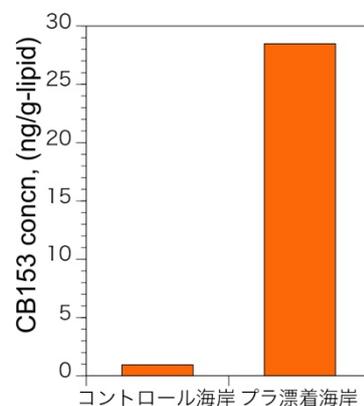


図1-12. 沖縄座間味島プラスチック漂着の多い浜と少ない浜で採取されたムラサキオカヤドカリ肝臓中のPCBs濃度

5. 研究目標の達成状況

紫外線吸収剤や難燃剤を含めた添加剤と残留性有機汚染物質(POPs)の世界25地点で採取したマイクロプラスチック中での分布と分布特性を明らかにし、それらのマイクロプラスチックに含まれる化学物質の溶出・脱着特性と、海水中からの吸着特性を明らかにしたことから、研究目標を達成したと判断される。

6. 引用文献

- 1) 独立行政法人・製品評価技術基盤機構: (2003) フタル酸エステル類リスク評価管理研究会中間報告書・要約.
- 2) H. Nagayoshi, K. Kakimoto, S. Takagi, Y. Konishi, K. Kajimura, T. Matsuda: *Environmental science & Technology*, **49** (1) 578-587 (2015) Benzotriazole Ultraviolet Stabilizers Show Potent Activities as Human Aryl Hydrocarbon Receptor Ligands.
- 3) H. Feng, H. Cao, J. Li, H. Zhang, Q. Xue, X. Liu, A. Zhang, J. Fu: *Science of the Total Environment*, **727** 138549 (2020) Estrogenic activity of benzotriazole UV stabilizers evaluated through in vitro assays and computational studies.
- 4) Y. Sakuragi, H. Takada, H. Sato, A. Kubota, M. Terasaki, S. Takeuchi, A. Araki, Y. Watanabe, S. Kitamura, H. Kojima: *Science of the Total Environment*, (submitted) An analytical survey of benzotriazole UV stabilizers in plastic products and their endocrine-disrupting potential via human estrogen and androgen receptors.
- 5) S. Endo, M. Yuyama, H. Takada: *Marine Pollution Bulletin*, **74** (1) 125-131 (2013) Desorption kinetics of hydrophobic organic contaminants from marine plastic pellets.
- 6) B.G. Yeo, H. Takada, R. Yamashita, Y. Okazaki, K. Uchida, T. Tokai, K. Tanaka, N. Trenholm: *Marine Pollution Bulletin*, **151** 110806 (2019) PCBs and PBDEs in microplastic particles and zooplankton in open water in the Pacific Ocean and around the coast of Japan.

SII-2-2 サブテーマ (2) 「マイクロプラスチックの生物影響評価」

研究代表者

大嶋雄治

研究分担者

中尾実樹

島崎洋平

【要旨】

サブテーマ2「マイクロプラスチックの生物影響評価」では、魚類および節足動物を対象として、マイクロプラスチック(MP)の取込みと体内動態、移行、生物の生存を調べ、MP粒子の生物影響を解明することを目標として設定した。目的を達成するため、以下の研究を行った。

モデル生物として魚からメダカ、節足動物からアルテミアを選び、サイズの異なるポリスチレンマイクロビーズ (PS-MP) を水および餌から曝露して、PS-MPの取込みおよび消失から体内動態を評価した。まずアルテミアを用い、2, 6 μm PS-MPを水曝露してその取込み、消失から体内動態を評価した。その結果、PS-MPは1日で取り込まれて平衡に達し、曝露をやめるとほぼ1日で消失した。生物濃縮係数はそれぞれ 2.0×10^2 (2 μm)、 2.3×10^2 (6 μm)であった。

次にメダカにおけるMPの体内動態を調べた。MPとして、蛍光を持つ2 μm polystyrene (PS-MP), 20 μm PS-MP, 20 μm polyethylene (PE-MP) を 10^6 particles/Lの濃度で、また200 μm PE-MP を 10^4 beads/L の濃度で2ヶ月齢のメダカに14日間曝露後、10日間清水で排泄させた。1, 3, 5, 7, 10, 12, 14, 15, 17, 19, 21, 24日目のメダカをサンプリングし、魚体を透明化後、MPの個数をカウントした。その結果、いずれのMPも急速に蓄積し、ほぼ1日で平衡状態となった。その生物濃縮係数は140, 15, 17, 116 L/kg (2 μm PS-MP, 20 μm PS-MP, 20 μm PE-MP, 200 μm PE-MP)であった。MPを含まない水に移して排泄させるとMPは急速に排泄されたが2 μm PS-MP は24日目でも検出された。1-コンパートメントモデルとして解析した結果、排泄速度定数 (ke) は1.2, 0.94, 1.05, 0.90 /d, 生物学的半減期は0.58, 0.74, 0.69, 0.77 d (2 μm PS-MP, 20 μm PS-MP, 20 μm PE-MP, 200 μm PE-MP)とそれぞれ推定された (Liu et al 2021として国際誌に公表済)²⁾

さらに食物連鎖 (アルテミアからメダカ) におけるMPの生物濃縮 (biomagnification) を調べた。MPを取り込んだアルテミアをメダカ成魚に餌として与えてその体内濃度を調べた結果、アルテミアに対するメダカ成魚の濃度比は0.00054とMPの生物濃縮 (biomagnification) は認められなかった。

アルテミアやメダカを用いてMP単独もしくは化学物質とMPを複合投与して、生物影響を調べた。メダカ産卵ペアを用いてPS-MP粒子 (2 μm , 10^7 particles/L)に3週間曝露してその生存と産卵、次世代のふ化への影響を検討した。その結果、生存率、産卵数および胚の生存率に有意な差は無く、再生産へ影響を与えなかった。但し消化管内における遺伝子発現を網羅的に解析した結果、有意に変動する遺伝子があった。その中でも細胞接着に関与するカドヘリンの発現が有意に上昇しており、2 μm MPが細胞間隙に貫入している可能性が考えられた。(Assas et al 2020として国際誌に公表済)¹⁾ MPによる化学物質の取込仲介 (ベクター) 効果を検討した。メダカにアントラセン (ANT, 0.1 mg/L) 及びMP (PE, 53-63 μm , 1×10^6 particles/L) を単独もしくは共存下で7日間曝露後、3日間排泄させた。ANT区およびANT+MP区の魚体内ANT濃度は曝露終了7日目まで差がなかった。得られた結果より吸収、排泄係数を求め、さらに共曝露区において、水相からANTのメダカ体内への蓄積を見積もった結果、ANT+MP区で魚体内ANTの67%が水経路で取り込まれ、残り33%がMP経路だと推定された。よってANTの一部はMP経路で取り込まれたと推定され、MPのベクター効果が示された。(Qiu et al 2020として国際誌に公表済)³⁾

さらにMPと抗うつ剤 diazepam (DZP) のメダカに対する複合影響を検討した。メダカに2 μm PS-MP (10^7 particles/L) および環境中で検出されるDZP (0.03 mg/L) を単独もしくは複合で2日間曝露した。曝露後、メダカの群行動 shoaling behavior (透明な別の水槽に入れたメダカ群に対して、近寄る行動の時間) を調べた。その結果、DZP+MP複合曝露区のメダカではshoaling の時間が 5.42 ± 2.5 min/10 min

($P < 0.01$, 対照区 8.67 ± 1.35 min/10 min) と有意に短くなった。DZPがMPに吸着して体内への取り込みを促進（ベクター効果）することによって複合曝露区でDZP体内濃度が上昇しその影響が強くと考察された。

得られた結果よりメダカMP体内1-compartmentモデルを構築し、推定環境濃度からマイクロプラスチックの体内濃度を予想した。その結果、現在推定される環境濃度のMP (0.04 mg/L) で体内濃度を計算した結果、3 mg/L程度と考えられた。さらに50年後に予想されるMP濃度を用いて体内濃度を計算した結果、60 mg/Lを越える体内濃度が予想された。今後MP—化学物質ベクターモデルと統合することで、環境中のMP濃度変化が体内化学物質の蓄積に及ぼす影響の評価が期待される。

1. 研究開発目的

サブテーマ2「マイクロプラスチックの生物影響評価」では、魚類および節足動物を対象として、マイクロプラスチックの取込みと体内動態、移行、生存を調べ、プラスチック粒子の生物影響を解明することを目標として設定した。

2. 研究目標

低次栄養段階生物（モデルとしてアルテミア・シオダマリミジンコと海水・淡水メダカ）を対象として、マイクロプラスチックの取込みと体内動態、移行を調べ、栄養段階を介した濃縮を解明し、体内濃縮モデルを構築する。さらに、有害化学物質（PAH,生活関連医薬品）とマイクロプラスチックをメダカに複合曝露して、その体内動態と生体影響を調べる。

3. 研究開発内容

3.1.1 アルテミアにおけるMPの体内動態

アルテミアに対する曝露排泄実験には2週齢のアルテミアを用いた。粒径2 μm , 6 μm のPS-MP (2.0×10^7 particles/L) 曝露区（2区）および対照区の3グループを設定し、各試験区あたり3水槽ずつ繰り返しを行った。1Lの飼育水で満たした1L容ガラス製水槽の中に、水槽あたり300個体ずつ入れた。実験開始から72時間経過後に水替えを行い、144時間曝露した。曝露終了後、MPを含まない1Lの飼育水で満たした水槽の中に、パストールピペットを用いて曝露後のアルテミアを移し、48時間かけて体内のMPを排泄させた。また、アルテミアの体内に取り入れられたMPの粒子数を計測するため、実験開始6, 12, 24, 48, 96, 144, 145, 147, 150, 168, および192時間目にそれぞれの曝露区からサンプルを採取した ($n=5$)。サンプルは中性ホルマリンに浸漬し4℃で保存した。曝露実験中、水槽中のMPを拡散させるため、エアーストーンを用いて緩やかに通気を行った。

実験にはコペポダイト期のチグリオパス(*Tigriopus japonicus*)を用いた。粒径2 μm , 6 μm のPS-MP (2.0×10^7 particles/L) 曝露区（2区）および対照区を設定し、各試験区あたり3水槽ずつ繰り返しを行った。1Lの飼育水で満たしたガラス製水槽の中に、1水槽あたり300個体ずつ入れた。実験開始から72時間経過後水替えを行い、144時間曝露した。曝露終了後、MPを含まない1Lの飼育水で満たしたガラス製の水槽の中に、パストールピペットを用いて曝露後のチグリオパスを移し、曝露終了後から72時間経過後水替えを行い、144時間かけて体内のMPを排泄させた。また、チグリオパスの体内に取り入れられたMPの粒子数を計測するため、実験開始6, 12, 24, 48, 72, 96, 120, 144, 145, 147, 150, 168, 192, 240および288時間目にそれぞれの曝露区からサンプルを採取した ($n=3\sim 5$)。サンプルは中性ホルマリンに浸漬し、4℃で保存した。曝露実験中、水槽中のMPを拡散させるため、エアーストーンを用いて緩やかに通気を行った。

消化管内のMPは蛍光顕微鏡（BZ-X810, Keyence, Japan）の緑色蛍光フィルターを用いて計測した。サンプルの消化管は立体的であるので、フォーカスの位置をz軸方向に変え正確にMPの計数した。

MPの吸収・蓄積・排泄等の体内動態を明らかにするため、生物濃縮係数（BCF）は図2-1に示す式で求めた（OECD, 2012）。

$$\text{BCF} = \frac{\text{アルテミア消化管内のMP濃度 (particles/L)}}{\text{水槽中のMP濃度 (particles/L)}}$$

図2-1. BCFの計算方法

3.1.2 メダカにおけるMPの体内動態

実験には2ヶ月齢のメダカ (*O. latipes*) を用いた。粒径20 μm の緑色蛍光ポリスチレン (PS-MP, Tianjin baseline, China, 10^6 粒子/L), 粒径20 μm および粒径200 μm の緑色蛍光ポリエチレン (PE, Cospheric, USA, 10^6 粒子/Lおよび 10^4 粒子/L) を1週間に3回水替えをしながら2週間曝露した (3曝露区, $n = 3$, 25個体/水槽)。曝露終了後, MPを含まない飼育水で10日間かけて体内のMPを排泄させた。メダカの体内に取り込まれたMPの粒子数を計測するため, 実験開始1, 3, 5, 7, 10, 12, 14, 15, 17, 19, 21, および24日目にそれぞれの曝露区からサンプルを採取し ($n = 5$), 体重を測定後, 透明化処理を行った。魚体を蛍光顕微鏡 (BZ-X810, Keyence, Japan) で観察し消化管内のMP粒子数を計測し, MPの生物濃縮係数 (BCF) を求めた。

メダカにおけるMPの吸収・蓄積・排泄等の体内動態を明らかにするため, 生物濃縮係数 (BCF) をアルテミアと同様にして求め, 取り込み速度定数 (k_u) および排泄速度定数 (k_e) 生物学的半減期 ($t_{1/2}$) を図2-2 をもとに求めた (OECD, 2012)。

$$\frac{dC_f}{dt} = k_1 C_w - k_2 C_f$$

C_w は一定なので

$$C_f = \frac{k_1}{k_2} C_w (1 - e^{-k_2 t})$$

定常状態のとき ($t \rightarrow \infty$)

$$C_f = \frac{k_u}{k_e} C_w$$

$$\text{BCF} = \frac{C_f}{C_w} = \frac{k_u}{k_e}$$

C_f : 定常状態におけるアルテミア消化管内のMP濃度 (particles/L)

C_w : 水槽内のMP濃度 (particles/L)

k_u : 取り込み速度定数 (/h)

k_e : 排泄速度定数 (/h)

図2-2. 取り込み速度定数および排泄速度定数の計算方法

3.1.3 食物連鎖 (アルテミアからメダカ) におけるMPの生物濃縮 (biomagnification)

蛍光ポリスチレンマイクロビーズ (PS-MP, 6 μm) を使用した。なお, MP粒子は緑色蛍光 (励起および検出波長はそれぞれ488および 518 nm) で標識されている。

6ヶ月齢メダカとして本研究室にて継代しているメダカ (*O. latipes*, CERI系統) は塩分濃度0.1‰の飼育水で, 水温 $25 \pm 1^\circ\text{C}$, 明暗周期14h:10hの条件下において飼育された。1日に2回, 孵化後24時間以内のアルテミア幼生を約30分間でほぼ摂食する量を与えた。実験開始1週間前から1日に1回, 孵化後24時間以内のアルテミア幼生を1 ml与えた。

実験には6カ月齢メダカを用いた。21個体の6カ月齢メダカを1Lの飼育水で満たした1Lのガラス製の水槽の中に、1水槽あたり1個体ずつ入れた。実験開始から粒径6 μmのPS-MP(1.0×10⁶ particles/L)を24時間曝露したアルテミアを、一日にメダカ1個体あたり5個体給餌し、96時間曝露した。曝露終了後、MPを含まない1Lの飼育水に移し、72時間かけて体内のMPを排泄させた。水替えは毎日行った。アルテミアを給餌してから2時間後、全てのアルテミアが捕食されていることを確認し、サンプルの採取を開始した。また、実験開始24, 48, 72, 96, 120, 144および168時間目にそれぞれの水槽からサンプルを採取した (n=3)。サンプルは中性緩衝ホルマリンに浸漬し、4°Cで保存した。実験中、水槽内のMPを拡散させるため、エアーストーンを用いて通気を行った。

サンプリングしたメダカの中のMPを観察しやすくするため、以下の方法で透明化処理を行った。まず、ホルマリンで組織を固定したメダカを脱イオン水に1日間浸漬し、脱ホルマリンを行った。飽和ホウ砂ナトリウム水溶液中に1日間浸漬した後、50%エタノールで2回洗浄し(10分間)、50%エタノールに再び浸漬して1日間静置した。その後、メダカのタンパク質を分解するため、トリプシン混合液(飽和ホウ砂水溶液:脱イオン水=3:7の混合液に100 mLあたり0.3 gのトリプシンを溶解させて調製、pH=8.0)に浸漬し、インキュベート(3.7°C, 50 rpm, 4日間)を行った。トリプシンの作用を止めるため、メダカの入った容器からトリプシンを取り除き、脱イオン水でメダカを3回洗浄した。その後、グリセリン混合液(0.5%水酸化カリウム水溶液:グリセリン=3:1, 1:1, 3:1の順に1日間ずつ浸漬した。)で処理をし、グリセリンへ置換した。最後に、サンプルをグリセリンに浸漬し、透明化処理を完了した。

消化管内のMP計測は蛍光顕微鏡(BZ-X810, Keyence, Japan)の緑色蛍光フィルターを用いて計数した。サンプルの消化管は立体的であるので、フォーカスの位置をz軸方向に変えていくことでより正確にMPの計数を可能にした。MPの蓄積の体内動態を明らかにするため、餌からの経口摂取による生物濃縮係数(biomagnification, BMF)を求めた。BMFの計算方法は図2-3に示す(OECD, 2012)。

$$BMF = \frac{\text{メダカの体内のMP濃度 (p/kg - bw)}}{\text{餌生物のMP濃度 (p/kg - bw)}}$$

図2-3. BMFの計算方法

3.2. MP単独もしくは化学物質の複合影響

3.2.1 アルテミアの遺伝子発現に及ぼすMPの影響

6 μm PS-MPを6日間曝露したアルテミア(曝露区, 対照区各3検体)についてRNAlater (Qiagen, Hilden, Germany)を加えた後すりつぶし、-20°Cで保存した。RNAの抽出はRNeasy Minikit (Qiagen)を用いて行った。RNAの品質をBioanalyzer (Agilent 2100)で確認した後、ライブラリ調製し、Novaseq 6000を用いてペアエンド150 bpsで解読した。得られた結果について、遺伝子の発現変動をOmics Box (BioBam)を用いてdenovo mappingを行い解析した。得られたデータはMDSプロットによりデータを確認した後、ヒートマップを作成し、有意な変動をした遺伝子についてannotation(推定)を行った。

3.2.2 メダカの再生産と遺伝子発現におよぼすMPの影響

メダカ産卵ペアを用いてポリスチレンPS-MP粒子(2 μm, 10⁷ particles/L)に3週間曝露し、その生存と産卵、次世代のふ化への影響を検討した。またに3週間曝露した曝露区, 対照区各3検体の消化管についてRNAlater (Qiagen, Hilden, Germany)を加えた後すりつぶし、-20°Cで保存した。RNAの抽出はRNeasy Minikit (Qiagen)を用いて行った。RNAの品質をBioanalyzer (Agilent 2100)で確認した後、ライブラリ調製し、Novaseq6000を用いてペアエンド150bpsで解読した。得られた結果について、遺伝子の発現変動をOmics Box (BioBam)を用いて解析した。得られたデータはMDSプロットによりデータの変動を確認した後、ヒートマップを作成し、遺伝子を推定した。

3.2.3 アントラセンとMPを複合曝露したメダカの体内濃度

ヒメダカに、アントラセン (ANT) 及びマイクロプラスチック (MP) としてPE-MP (53-63 μm) を用いた。設定区についてはANT区, ANT+MP区及び対照区とし, それぞれの濃度をANT: 0.1 mg/L及びMP: 62.5 mg/L (1×10^6 particles/L) とした。曝露方法は半止水式 (1回/日, 全量交換, スターラーで緩やかに攪拌) とし, 試験期間は取込14日間及び排泄3日間とし, サンプルングはそれぞれに4回及び2回実施した。

得られた2, 4, 7, 14, 15, 17日のメダカサンプル (頭と内臓を除く, $n=5$) および試験水(14日目, $n=3$)のANT濃度を蛍光検出器付きHPLC (Shimadzu LC-10) にて測定し, BCFを算出した。次に, OECD TG 305に従い排泄期の体内濃度から排泄速度定数を計算, さらに吸収速度定数を推定した。これらのパラメーターを基にStella Architect 1.7 (Isee systems) を用いて1-コンパートメント modelのシミュレーションを行い, ANT+MP区におけるMPを介したANTの取込量 (ベクター効果) を推定した。

3.2.4. MPと抗うつ剤DZPを複合曝露したメダカの行動

メダカに 2 μm PS-MP (10^7 particles/L) および抗うつ剤 DZP (0.03 mg/L) を単独もしくは複合で2日間曝露した。曝露後, 得られた画像からメダカの群行動としてshoaling behavior (透明な別の水槽に入れたメダカ群に対して, 近寄る行動の時間) を各処理区12個体について調べた。その様子を図2-4に示す。

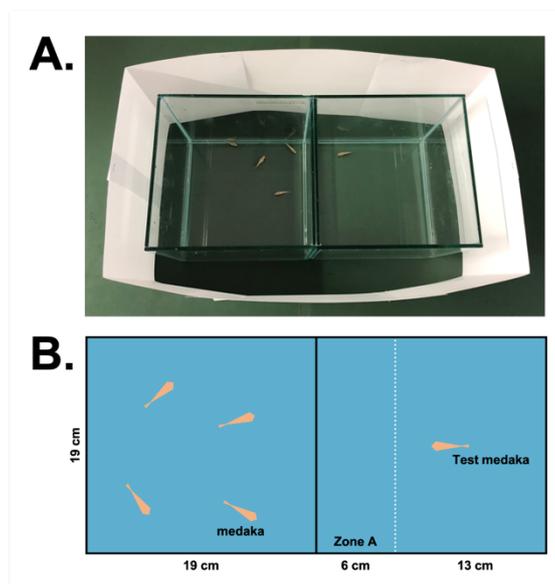


図2-4. MPとジアゼパムを複合曝露したメダカの行動解析。A: 全体写真, B: 模式図

3.3.1 メダカにおけるMPの体内動態モデル

200 μm PE 曝露実験の結果 (Liu et al 2021) ³⁾より得られたMPの体内動態パラメーターについて, 可視化モデルソフト Stella Architect 2.0 (isee systems) を用いて1-コンパートメントモデルを作製した。さらに現在推定される環境濃度のMP(0.04 mg/L) および将来予想されるMP濃度 (1 mg/L) を用いて, 体内濃度を予想した。

4. 結果及び考察

4.1.1 アルテミアにおけるMPの体内動態とその影響

曝露開始0,96,144時間目における曝露水中の実際のMP濃度を求めた。曝露開始0時間~144時間目における曝露水中の実際のMP濃度は2 μm PS-MP, 6 μm PS-MPにおいてそれぞれ 2.5×10^7 particles/L, 2.7×10^7 particles/Lであった。蛍光顕微鏡による観察の結果, すべての曝露区においてアルテミアの消化管にMPが取り込まれていることが確認された。曝露終了後, MP粒子数は急激に減少し, すべての曝露区において曝露開始145時間~150時間目 (曝露中止後6時間目) にはMPが排泄されていることを確認した。実

験に用いたアルテミアの体長の差異の補正を目的とし、アルテミア消化管を円筒と仮定し、体内濃度を計算した(図2-5).

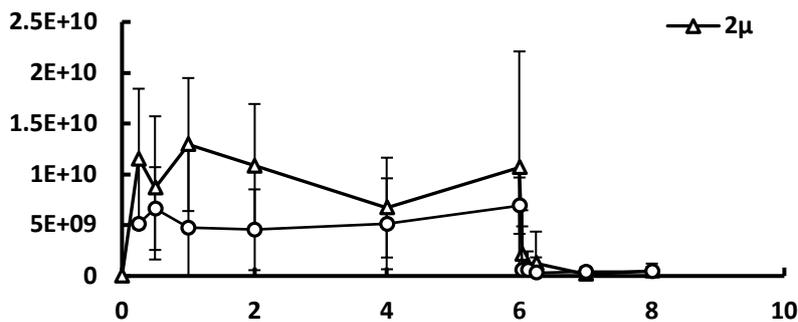


図2-5. アルテミア推定消化管体積あたりのMP数(particle/L)

アルテミアにおけるPS-MPの生物濃縮係数BCFは、曝露開始24時間~144時間目における2 μm PS-MP, 6 μm PS-MPの平均体内濃度より 4.2×10^2 , 1.9×10^2 であった。取り込み速度定数、および排泄速度定数、生物学的半減期、平均滞留時間を検討したが、排泄が極めて早く正確な値を得られなかった。Dawsonら⁴⁾は、ナンキョクオキアミを用いたMP暴露実験から得られたデータから計算したBCFは約35 L/kgであった。本結果よりMPsはアルテミアで急速に取り込まれ、オキアミより1桁高く200~400倍に濃縮されるが、急速に体外に排泄されることが明らかになった。

4.1.2. チグリオパスに対する曝露排泄実験

曝露開始0,72,144,216,288時間目における曝露水中の実際のMP濃度を求めた。また、曝露開始0時間~144時間目における曝露水中の実際のMP濃度は2 μm PS-MP, 6 μm PS2においてそれぞれ 1.2×10^6 particles/L, 8.8×10^5 particles/Lであった。加えて、曝露中止から0時間~144時間目における飼育水中のMP濃度は2 μm PS-MP, 6 μm PS2においてそれぞれ 1.2×10^5 particles/L, 9.9×10^4 particles/Lであった。蛍光顕微鏡によるチグリオパスの観察の結果、すべての曝露区においてチグリオパスの消化管にMPが取り込まれていることが確認された。曝露終了後、MP粒子数は急激に減少し、すべての曝露区において曝露開始145時間~150時間目(曝露中止後6時間目)にはMPが排泄されていることを確認した。実験に用いたチグリオパスの体長の差異の補正を目的とし、チグリオパスの体を円筒と仮定し、消化管内の粒子数を推定消化管体積で割った結果を下に示す(図2-6)。

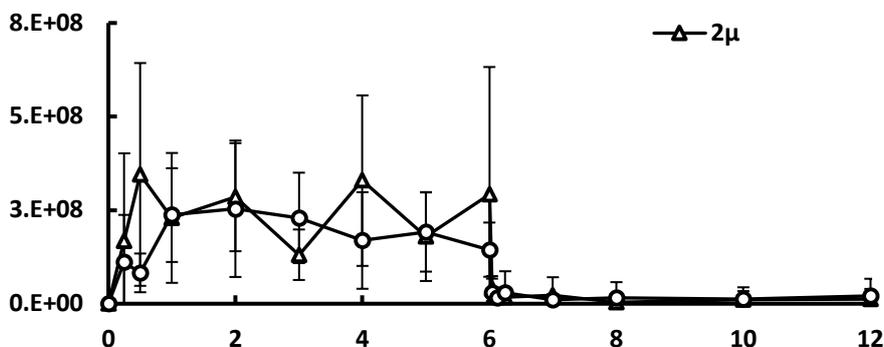


図2-6. チグリオパスの消化管内のMP濃度 (particle/L)

曝露水中のMP濃度を設定MPと同じ値と仮定した場合の生物濃縮係数(BCF)は、曝露開始24時間~144時間目の平均値からそれぞれ 2.0×10^2 , 2.3×10^2 であった。アルテミアと同様に取り込み速度定数、および排泄速度定数、生物学的半減期、平均滞留時間を検討したが、排泄が早く正確な値を得られなかつ

た。

4.1.2 メダカにおけるMPの体内動態とその影響

メダカへMPを投与し、その濃縮を解析した。曝露前および曝露後のメダカの平均体重はすべての曝露区で有意な差はみられなかった。一方、蛍光顕微鏡によるメダカの観察の結果、すべての曝露区においてメダカの消化管にMPが取り込まれていた。曝露開始1日目でMPの体内濃度は急激に上昇し、その後14日曝露期間変化しなかった。曝露終了後、MP粒子数は急激に減少し、20 μm PS-MP, 20 μm PE-MP, 200 μm PE-MP曝露区において曝露開始21日～24日目にはMPがほぼ排泄された (図2-7)。しかし2 μm PS-MPは排泄期終了時でも残存していた。この原因として、2 μm PS-MPが腸管組織内へ貫入した可能性が考えられた。実験で用いた20- 200 μm MPは最大100倍程度濃縮されるが、その吸収と排泄は急速であり、平均1日程度しか体内に滞留しないと考えられた (Assass, 2020¹⁾として発表済み)。

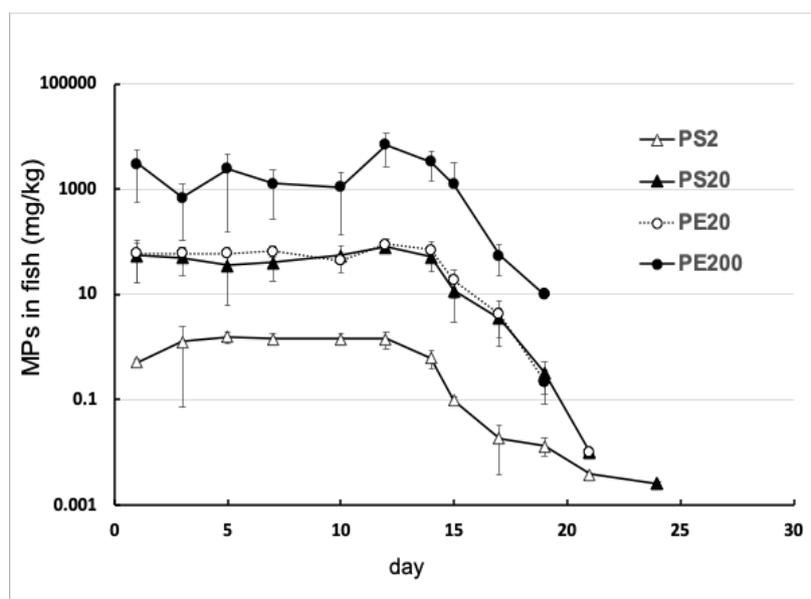


図2-7. 粒径 2, 20 μm PS-MP, 20 μm PE-MPおよび200 μm PE-MPに曝露したメダカにおけるMPの体内濃度変化 (Liu et al., 2020)

曝露14日目のMPの水中濃度と魚体中濃度を基にBCFを計算した結果、200- μm PE-MP, 20- μm PE-MP, 20- μm PS-MP, and 2- μm PS-MP で 74.4, 25.7, 16.8および 139.9と推定された。その他の薬物動学的パラメータをTable 4.1.2.1に示す。ポリマーのタイプにかかわらず20- μm PE-MP と20- μm PS-MPはほぼ同じであった。MPのサイズでその体内動態は異なると考えられた。マミチヨグにMP(>250 μm)を与えた実験でもMPは急速に取り込まれ、また1日以内に95%のMPが排泄されたと報告されている⁵⁾。

表2-1. メダカに投与したMPの薬物動学的パラメーター

Parameter (unit)	200- μm PE	20- μm PE	20- μm PS	2- μm PS
BCF (L/kg)	74.4	25.7	16.8	139.9
k_u (L/kg/day)	83.7	26.7	15.8	106.1
k_e (/day)	1.13	1.04	0.94	0.76
$T_{1/2}$ (/day)	0.62	0.67	0.74	0.91
MRT (/day)	0.90	1.00	1.12	1.33

4.1.3 食物連鎖（アルテミアからメダカ）におけるMPの生物濃縮(biomagnification)

1カ月齢アルテミアにMPを曝露した結果、すべてのアルテミアの消化管にMPが取り込まれていることが確認された(図2-8)。曝露開始24時間目における消化管内のMPの平均濃度は、 3.4×10^{10} particles/Lであった。本アルテミアをメダカに餌として投与した結果、すべての曝露区においてメダカの消化管にMPが取り込まれていることが確認された(図2-9)。曝露開始24時間~96時間目における消化管内のMPの平均粒子数は、 1.8×10^3 個であった。曝露終了後MP粒子数は減少し、すべての曝露区において曝露開始96時間~144時間目(曝露中止後48時間目)にはMPが排泄されていることを確認した(図2-10.)。メダカの体重を0.1 gと仮定し推定消化管体積で割った結果、メダカのMPの平均濃度は 1.8×10^7 particles/Lであった。

1カ月齢アルテミアと6カ月齢メダカのMPの平均濃度を基にBMFを算出した。その結果BMFは 5.4×10^{-4} であった。メダカの体重の1%のアルテミアを与えたと仮定して再計算したBMFは0.11であった。この結果から、MPはメダカに対して餌からの経口摂取による生物濃縮(biomagnification)を受けないことが明らかになった。本結果は、4.1, 4.2で得られたMPのアルテミアおよびメダカにおける吸収排泄速度が速い結果をよく説明している。Biomagnificationが起こる可能性は低いとされている⁶⁾。

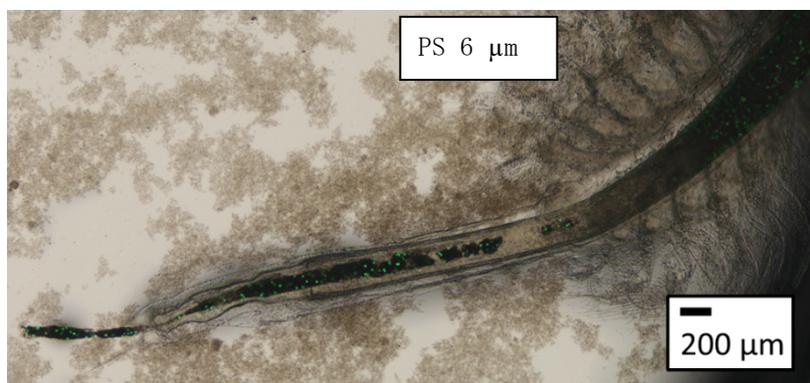


図2-8. MPを曝露した1カ月齢アルテミアの消化管内のMP

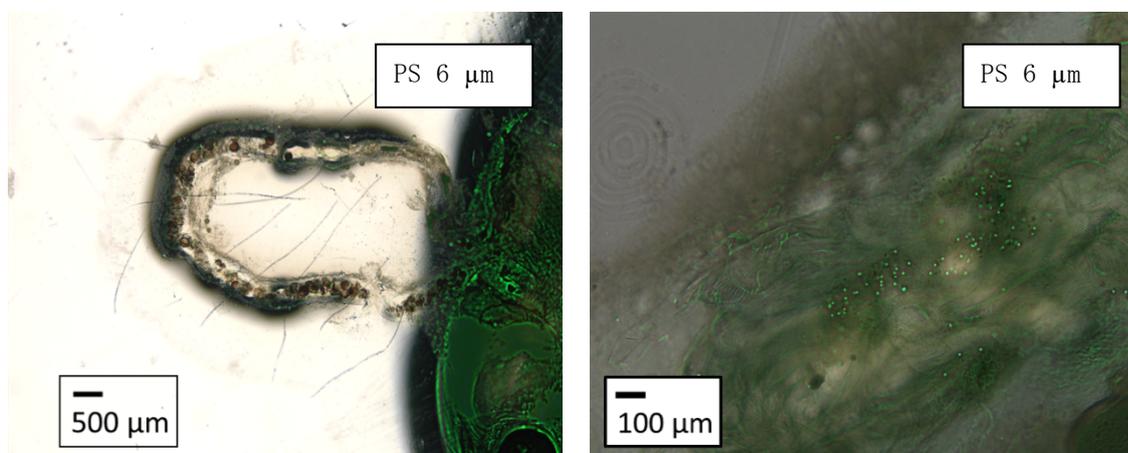


図2-9. MP曝露アルテミアを投与した6カ月齢メダカの消化管内のMP

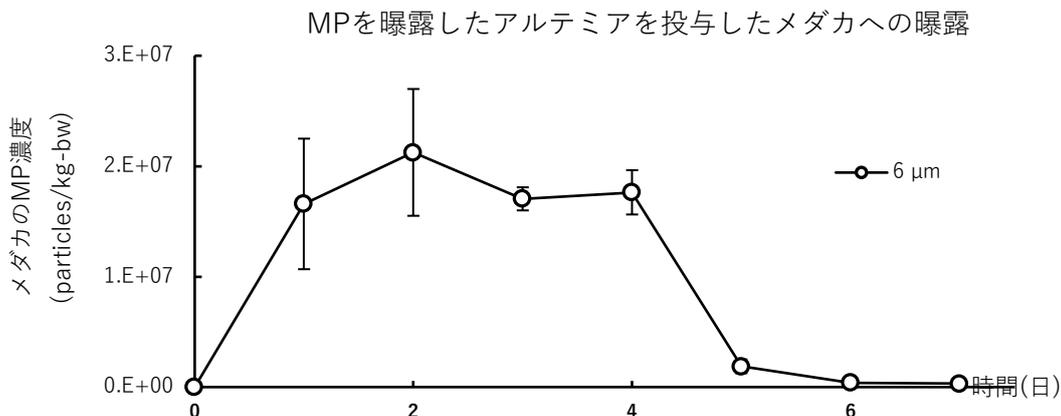


図2-10. MP蓄積アルテミアを摂餌したメダカの消化管内のMP濃度

4.2. MP単独もしくはMPと化学物質の複合影響

MP単独もしくは有害化学物質を吸着したマイクロプラスチックを投与して、化学物質の体内移行を評価するとともに、生物影響を調べた。

4.2.1 アルテミアの遺伝子発現に及ぼすMPの影響

6 μm PS-MPを6日間曝露したアルテミアにおける遺伝子の発現変動を調べた。MDSプロットを図2-11に、またheat mapを図2-12に示す。有意に発現が上昇した遺伝子としてRas関連、glutathione peroxidase、Ribonuclease III等599個があった。また発現が減少した遺伝子P450他522個であった（FDR<0.05, 2倍以上有意に変動した遺伝子）。本実験でMPを曝露したアルテミアでは生存に影響を受けなかった。動物プランクトンの生存には影響は少ないというレビューの報告がある⁷⁾。しかし活性酸素消去系の遺伝子が有意に変動したとある⁸⁾。正確な遺伝子の同定はde novo mappingではできておらず、アルテミアのゲノム情報の公開を待ちたい。

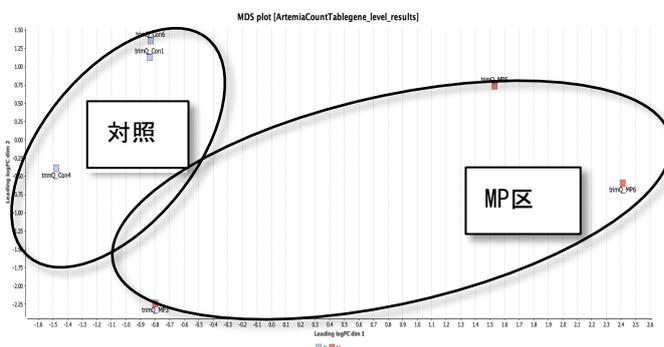


図2-11. 6 μm MPを6日間曝露したアルテミアにおける遺伝子群のMDSプロット

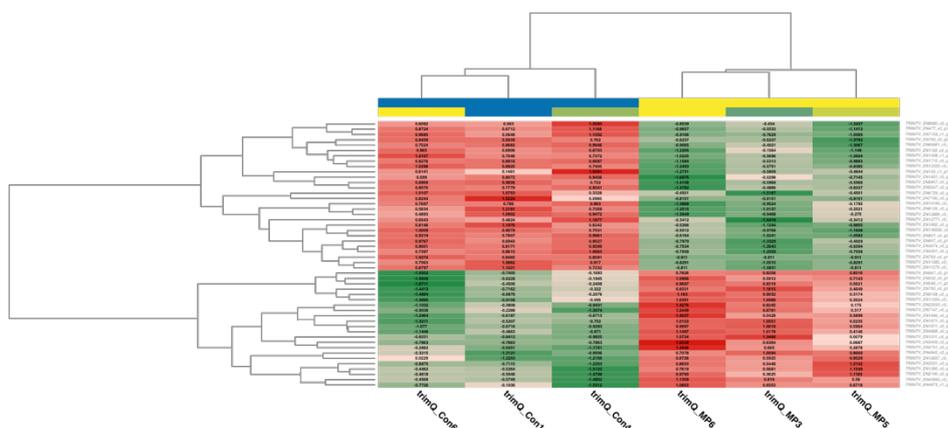


図2-12. 6 μ m MPを6日間曝露したアルテミアにおいて変動した遺伝子群のヒートマップ

4.2.2 メダカの再生産と遺伝子発現におよぼすMPの影響

メダカを用いてPS-MP (2 μ m, 10⁷particles/L)を3週間曝露した結果, その産卵とその胚の生存には全く影響を与えなかった(図2-13). しかし消化管内では細胞接着に関与するカドヘリン等幾つかの遺伝子の発現が有意に上昇していた(図2-14). (Assass, 2020として発表済み)¹⁾

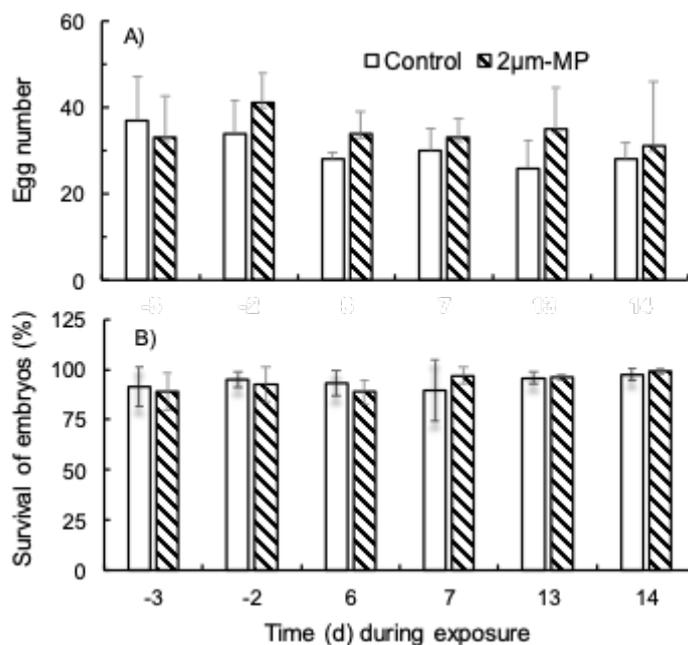


図2-13. 2 μ m PS-MPを2週間曝露したメダカ (*O. latipes*) 産卵ペアにおける産卵数(A)とその胚の生存率(B).

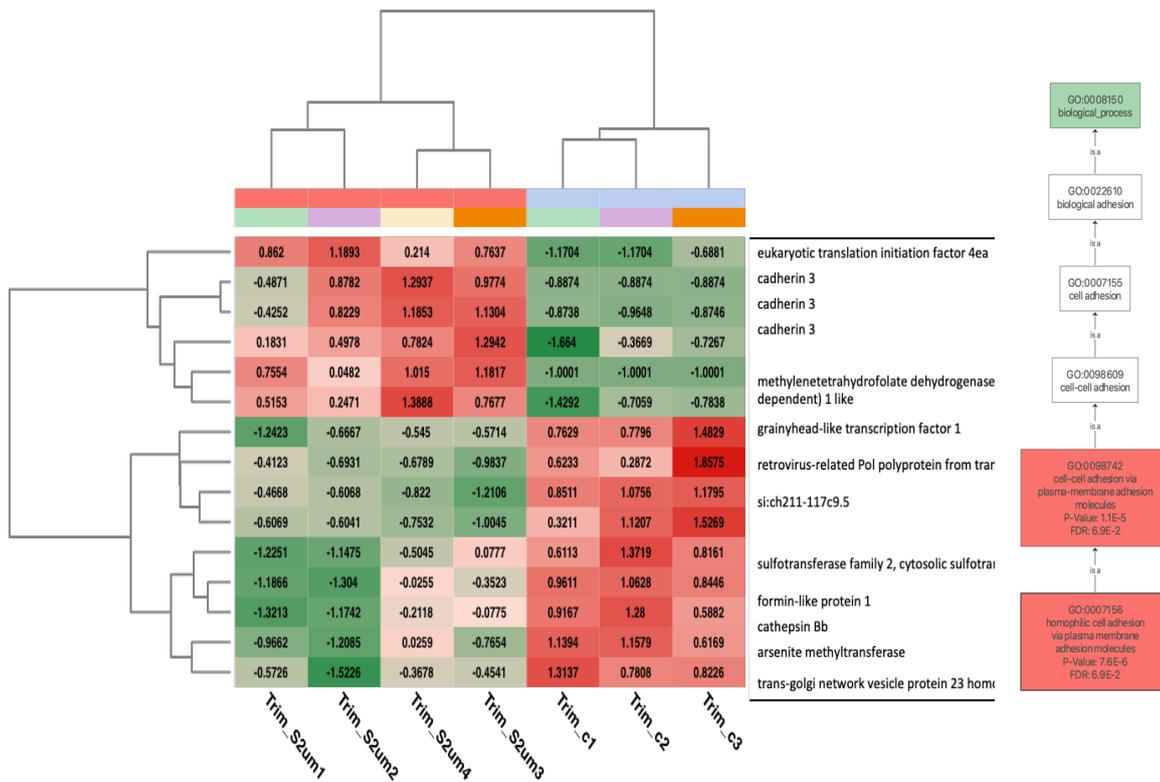


図2-14. 2 μ MP-MPを2週間曝露したメダカ消化管内で顕著に変動した遺伝子群のヒートマップおよび Gene Ontology 解析(0.05 < FDR)

本実験ではメダカにMPを2週間暴露してもその産卵に影響を与えなかった。MPを曝露した Coral-Reef fishの稚魚⁹⁾で生存に影響がないことを報告している。しかし海産メダカ (*O. melastigma*) に発生初期から150日間曝露するとPS-MPはメダカの再生産に影響を与えると報告されている¹⁰⁾。

4.2.3 アントラセンとMPを複合曝露したメダカの体内濃度

MPによる化学物質の取込仲介 (ベクター) 効果を検討した。メダカにアントラセン (ANT, 0.1 mg/L) 及びMP (PE-MP, 53-63 μ m, 1×10^6 particles/L) を単独もしくは共存下で7日間曝露後、3日間排泄させた。ANT区およびANT+MP区の魚体内ANT濃度は曝露7日目で差がなかった (図2-15)。得られた結果より吸収、排泄係数を求め、さらに共曝露区において水相からANTのメダカ体内への蓄積への寄与を見積もった結果、ANT+MP区で魚体ANTの約7割が水経路で取り込まれ、残り3割がMP経路だと推定された。ANTの一部はMP経路で取り込まれておりMPのベクター効果が推定された (図2-16)。同様に、幾つかの研究でMPは疎水性物質のベクターとなることが室内実験で証明されている¹¹⁻¹³⁾。しかしそれらは定量的に評価できておらず、筆者らの研究はベクター効果を定量的に試算した初めての研究である (Qiu et al., 2020)²⁾。

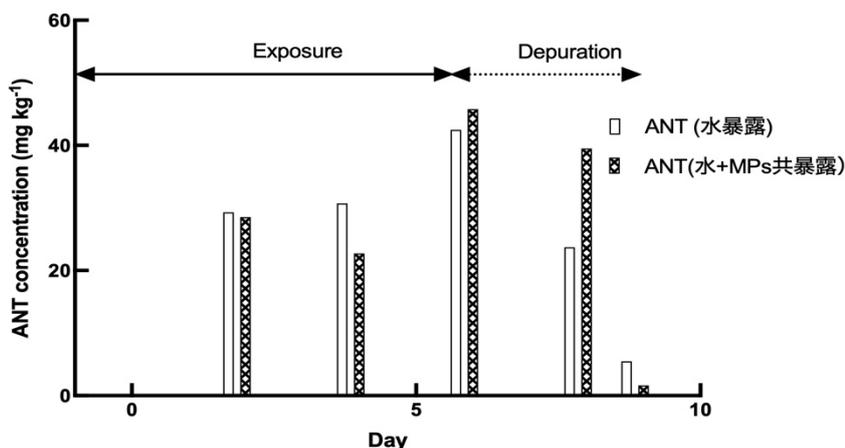


図2-15. アントラセン及びMPを単独もしくは共存で7日間露後、3日間排泄させたメダカにおける平均体内濃度の変化²⁾

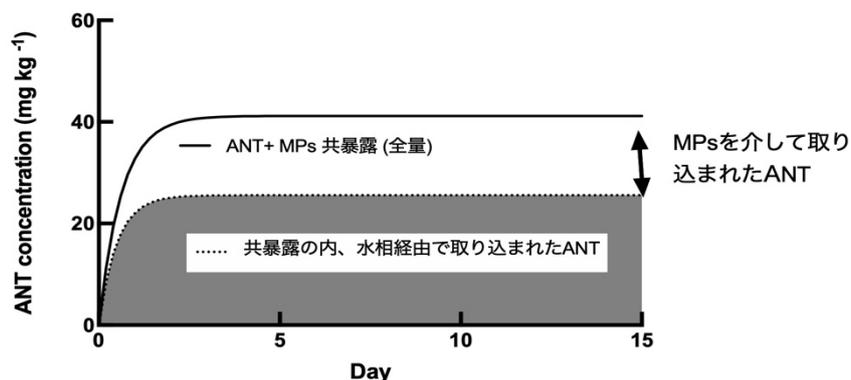


図2-16. アントラセン (ANT, 0.1 mg/L) 及びPE-MP (53-63 μm , 1×10^6 particles/L μm) を複合曝露したメダカにおける体内濃度のシミュレーション²⁾

4.2.3 MPと抗うつ剤DZPを複合曝露したメダカの行動

実験の結果、DZP+MP複合曝露区のメダカではshoalingの時間が 5.42 ± 2.5 min/10 min ($P < 0.01$, 対照区 8.67 ± 1.35 min/10 min) と有意に短くなった(図2-17)。DZPがMPに吸着して体内への取り込みを促進(ベクター効果)することによって複合曝露区でDZP体内濃度が上昇しその影響が強くなったためと考察された。DZP等医薬品がMPに吸着して影響を及ぼす可能性が議論されている¹⁴⁾。

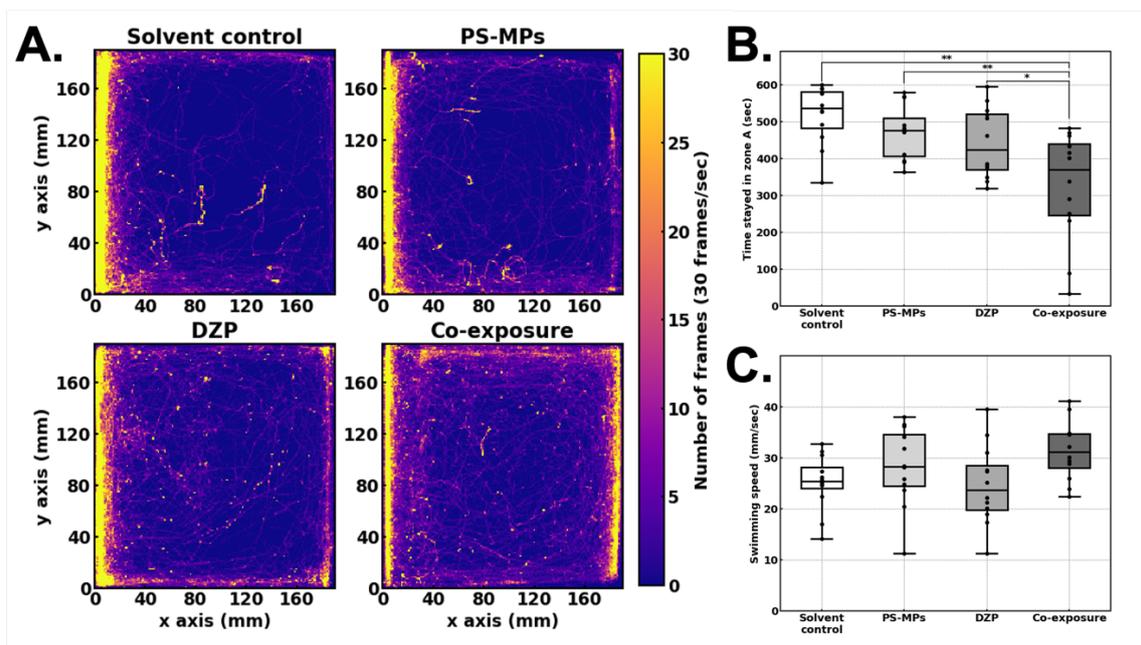
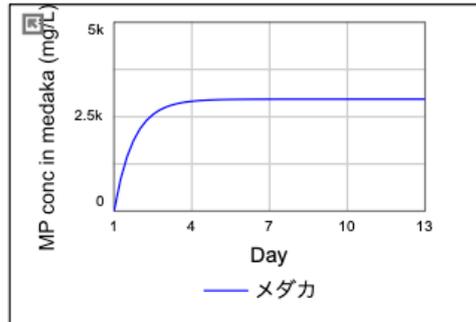
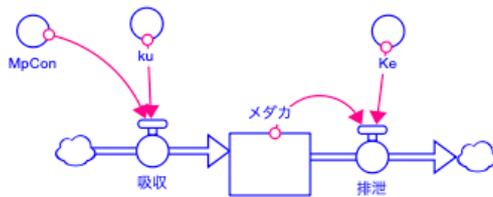


図2-17.ジアゼパムおよび/または PS-MP に曝露されたメダカの Shoaling behavior 試験の結果
 A. メダカの遊泳ポジションのヒートマップ、黄色はメダカが 1 秒以上 (30 フレーム以上) 留まった位置, B. メダカがゾーンA内に滞在した期間の箱ひげ図, C. メダカの遊泳速度 (mm /秒) の箱ひげ図 ボックス内の黒点は、各メダカのデータ, PS-MP; 10^7 particles/L PS-MP 曝露, DZP; 0.03 mg/L ジアゼパム曝露, Co-exposure; 0.03 mg/L ジアゼパムと 10^7 particles/L PS-MP の複合曝露, **, $P < 0.01$, *, $P < 0.05$

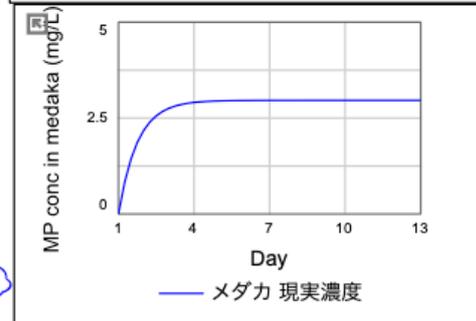
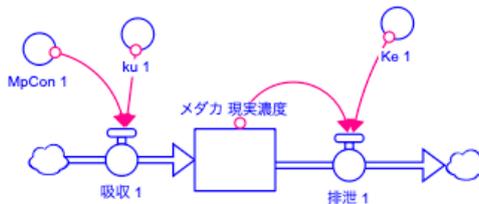
4.3.2. メダカにおけるMPの体内動態モデル

Stella Architect 2.0 (isee systems)を用いて200 μm PE 曝露実験の結果 (Liu et al 2020) を基に1-コンパートメントモデルを作製した結果、実験で得られた値を再現していた。よって、現在推定される環境濃度のMP(0.04 mg/L)で体内濃度を予想した結果、3 mg/L程度と考えられた (図2-18)。現在魚類からMPが数個/個体 程度で検出されており、近い値と考えられた。さらに50年後に予想されるMP濃度 (1 mg/L) を用いて体内濃度を計算した結果、60 mg/Lを越える体内濃度が予想され、魚類への影響が懸念された。今後MP—化学物質ベクターモデルと統合することで、環境中のMP濃度変化が体内化学物質の蓄積に及ぼす影響の評価が期待される¹⁵⁾。

シナリオ 実験の結果(Liu et al 2020)
MP曝露濃度: 1×10^4 p/L = 40 mg/L



現実濃度を0.04 mg/L (現実濃度として仮定)
MP曝露濃度: 1×10 p/L = 0.04 mg/L
ku: 83.7/d, ke: 1.13/d (Liu et al 2020)



シナリオ2 1 mg/L (50年後の予想濃度として仮定)
MP濃度: 2.5×10^2 p/L = 1 mg/L (Isobe et al 2019)
ku: 83.7/d, ke: 1.13/d (Liu et al 2020)

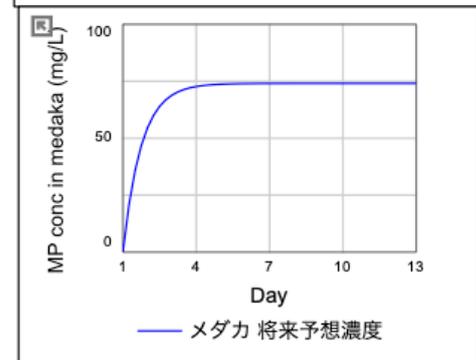
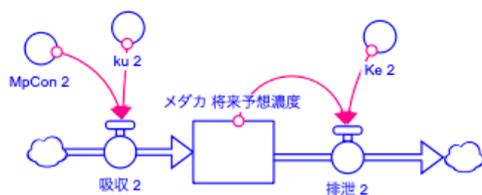


図2-18. 200 μ m PE-MPを曝露したメダカ1-compartment モデルを用いた環境濃度の変化に伴う体内濃度の予測

5. 研究目標の達成状況

MPの体内動態

モデル生物として魚からメダカ，節足動物からアルテミアを選び，サイズの異なるポリスチレンマイクロビーズを水および餌から曝露して，マイクロプラスチックの取込み，消失から体内動態を評価した．さらに食物連鎖（アルテミアからメダカ）におけるMPの生物濃縮について検討した．その結果，メダカではMPの体内動態速度を明らかにし，国際誌に論文2報を発表し目的を十分に到達した．

MP単独もしくはMPと化学物質の複合影響

アルテミアやメダカを用いてMP単独もしくは化学物質とMPを複合投与して，生物影響を調べ，化学物質の体内移行を評価した．MP自体の急性毒性が観察されなかった．よってその影響を遺伝子発現や行動影響で評価した．その結果，国際誌に論文1報を発表し残りを取りまとめ中である．特にMPに吸着したアントラセンのベクター効果を定量化できたのは世界初だと考える．よって目的を十分に到達した．

MPの体内動態モデル

得られた結果より、体内動態モデルを組み立て、実環境濃度を考慮したマイクロプラスチックの生体影響評価を行った。その結果、メダカ-MP体内動態モデルを確立した。今後モデルを拡張しMPのサイズや種類、生物種に対応したモデルの構築が期待される。検証ができ次第論文として発表する予定である。今後MP—化学物質ベクターモデルと統合することで、環境中のMP濃度変化が体内化学物質の蓄積に及ぼす影響の評価が期待される。

6. 引用文献

- 1) Assas, M., Qiu, X., Chen, K., Ogawa, H., Xu, H., Shimasaki, Y., Oshima, Y., 2020. Bioaccumulation and reproductive effects of fluorescent microplastics in medaka fish. *Mar. Pollut. Bull.* 158, 111446.
- 2) Liu, Y., Qiu, X., Xu, X., Takai, Y., Ogawa, H., Shimasaki, Y., Oshima, Y., 2021. Uptake and depuration kinetics of microplastics with different polymer types and particle sizes in Japanese medaka (*Oryzias latipes*). *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 212, 112007.
- 3) Qiu, X., Saovany, S., Takai, Y., Akasaka, A., Inoue, Y., Yakata, N., Liu, Y., Waseda, M., Shimasaki, Y., Oshima, Y., 2020. Quantifying the vector effects of polyethylene microplastics on the accumulation of anthracene to Japanese medaka (*Oryzias latipes*). *Aquat. Toxicol.* 228, 105643.
- 4) Dawson, A., Huston, W., Kawaguchi, S., King, C., Cropp, R., Wild, S., Eisenmann, P., Townsend, K., Bengtson Nash, S., 2018. Uptake and Depuration Kinetics Influence Microplastic Bioaccumulation and Toxicity in Antarctic Krill (*Euphausia superba*). *Environ. Sci. Technol.* 52, 3195–3201.
- 5) Ohkubo, N., Ito, M., Hano, T., Kono, K., Mochida, K., 2020. Estimation of the uptake and gut retention of microplastics in juvenile marine fish: Mummichogs (*Fundulus heteroclitus*) and red seabreams (*Pagrus major*). *Mar. Pollut. Bull.* 160, 111630.
- 6) Miller, M.E., Hamann, M., Kroon, F.J., 2020. Bioaccumulation and biomagnification of microplastics in marine organisms: A review and meta-analysis of current data. *PLoS One* 15, e0240792.
- 7) Yu, S.-P.Y., Cole, M.C., Chan, B.K.K., 2020. Effects of microplastic on zooplankton survival and sublethal responses. *Oceanogr. Mar. Biol. Annu. Rev.*
- 8) Suman, T.Y., Jia, P.-P., Li, W.-G., Junaid, M., Xin, G.-Y., Wang, Y., Pei, D.-S., 2020. Acute and chronic effects of polystyrene microplastics on brine shrimp: First evidence highlighting the molecular mechanism through transcriptome analysis. *J. Hazard. Mater.* 400, 123220.
- 9) Jacob, H., Gilson, A., Lanctôt, C., Besson, M., Metian, M., Lecchini, D., 2019. No Effect of Polystyrene Microplastics on Foraging Activity and Survival in a Post-larvae Coral-Reef Fish, *Acanthurus triostegus*. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* 102, 457–461.
- 10) Wang, J., Zheng, M., Lu, L., Li, X., Zhang, Z., Ru, S., 2021. Adaptation of life-history traits and trade-offs in marine medaka (*Oryzias melastigma*) after whole life-cycle exposure to polystyrene microplastics. *J. Hazard. Mater.* 414, 125537.
- 11) Chua, E.M., Shimeta, J., Nuggeoda, D., Morrison, P.D., Clarke, B.O., 2014. Assimilation of polybrominated diphenyl ethers from microplastics by the marine amphipod, *Allorchesttes compressa*. *Environ. Sci. Technol.* 48, 8127–8134.
- 12) Bakir, A., O'Connor, I.A., Rowland, S.J., Hendriks, A.J., Thompson, R.C., 2016. Relative importance of microplastics as a pathway for the transfer of hydrophobic organic chemicals to marine life. *Environ. Pollut.* 219, 56–65.
- 13) Batel, A., Linti, F., Scherer, M., Erdinger, L., Braunbeck, T., 2016. Transfer of benzo[a]pyrene from microplastics to *Artemia nauplii* and further to zebrafish via a trophic food web experiment: CYP1A induction and visual tracking of persistent organic pollutants. *Environ. Toxicol. Chem.* 35, 1656–1666.

- 14) Atugoda, T., Vithanage, M., Wijesekara, H., Bolan, N., Sarmah, A.K., Bank, M.S., You, S., Ok, Y.S., 2021. Interactions between microplastics, pharmaceuticals and personal care products: Implications for vector transport. *Environ. Int.* 149, 106367.
- 15) Isobe, A., Iwasaki, S., Uchida, K., Tokai, T., 2019. Abundance of non-conservative microplastics in the upper ocean from 1957 to 2066. *Nat. Commun.* 10, 417.

II-3 海洋プラスチック（マクロからマイクロまで）の海洋生態系への影響評価

国立大学法人 北海道大学

北方生物圏フィールド科学センター

大学院水産科学研究院

大学院獣医学研究院

仲岡 雅裕

綿貫 豊

石塚 真由美

<研究協力者>

田中 厚資・長谷川 貴章・太田 百音（平成30年度）・関岡 寛知（令和元年度～2年度）

[要旨]

本サブテーマでは、海洋プラスチックおよびプラスチック中の有害化学物質が海洋生物と海洋生態系に与える影響について、底生無脊椎動物、底生魚類および海鳥を対象に、フィールドでの観測と室内・野外実験、および毒性試験、遺伝子発現解析により解明することを目的とする。

底生無脊椎動物と魚類を対象にした研究では、野外由来の残留性有機汚染物質（POPs）を吸着させたマイクロプラスチックを二枚貝キタノムラサキガイに暴露させる実験を行った結果、マイクロプラスチックの摂食を通じて二枚貝の生殖腺にPOPsが移行・蓄積することが証明された。また、餌生物として小型甲殻類であるイサザアミおよび捕食者として底生魚類シモフリカジカを利用した実験により、シモフリカジカはマイクロプラスチックを水中から直接摂取するより多くの量を餌生物であるアミを通じて取り込むこと、アミによる細分化を通じてシモフリカジカに取り込まれるマイクロプラスチックも小型化することが判明した。さらに、添加剤を含有したマイクロプラスチックを用いた実験では、シモフリカジカはイサザアミ由来のマイクロプラスチックを取り込むことにより、筋肉や肝臓により多くの添加剤を摂取・蓄積することがわかり、マイクロプラスチックが有害化学物質のベクターとして食物連鎖を通じて高次消費者に影響を与えることを明らかにした。

海鳥であるオオミズナギドリ雛にプラスチックを投与する実験を行った結果、添加剤入りのプラスチック投与で腎臓と肝臓が軽くなるケースがあったものの、雛の成長や給餌量、血液ホルモン、死亡率にも大きな負の影響はないことが明らかになった。また、複数の海鳥種でプラスチックの取り込み量を比較解析したところ、我が国の海域の海鳥も他海域の海鳥の同等程度にプラスチックを取り込んでおり、これまで観察例がなかったオオミズナギドリでもプラスチックの摂食が初めて明らかになった。

野外でプラスチックを投与したオオミズナギドリ雛においては、血中の酸化ストレスと抗酸化力にプラスチック投与の効果は見られなかった。一方、添加剤を含むプラスチックを投与した雛においては、ほとんどの曝露群の組織でプラスチック添加剤が対照群よりも高く検出され、プラスチック添加剤の組織移行が証明された。次世代シーケンサーを用いて海鳥の各臓器の遺伝子発現量の変化を解析したところ、一部の臓器で曝露群と対照群で異なる遺伝子発現パターンが見られ、特に甲状腺ホルモン系や胆汁酸合成系への影響が強く示唆された。また、添加剤の含むプラスチックにより、脂質代謝遺伝子の発現量も変化することも示唆された。しかし、甲状腺ホルモンや性ステロイドホルモン、胆汁酸など、生理活性物質の濃度には有意な影響は見られなかった。以上より、添加剤入りのプラスチックの海鳥への曝露の影響は遺伝子レベルでの変化にとどまり、生理機能など恒常性への顕著な影響は認められないことが明らかとなった。

本研究の結果、マイクロプラスチックおよび添加剤やPOPsの多様な海洋生物に対する移行・蓄積様式が明らかになった。特に、食物網を通じた高次消費者へのマイクロプラスチックおよび添加剤の移行、および添加剤入りプラスチックを摂食した海鳥における甲状腺ホルモン系や胆汁酸合成系の遺伝子発現様式の変化は、世界的にも新たな知見として注目されるものであり、海洋生物におけるプラスチック汚染のリスクの全容解明に対して重要な貢献を行った。

1. 研究開発目的

本研究では、フィールドでの観測と室内・野外実験によりプラスチックによる海洋生物の汚染、プラスチック中の有害化学物質の含有実態を明らかにし、海洋プラスチックごみ/マイクロプラスチックの生体影響を評価する。特に、底生無脊椎動物、底生魚類および海鳥を対象に、餌経由での化学物質曝露との比較や、各種プラスチック等の添加剤や吸着性化学物質に着目し、プラスチックとそれが媒介する化学物質曝露と食物連鎖を通じた生態系への侵入とその影響を明らかにする。

2. 研究目標

海洋プラスチックごみおよびそれに含まれる有害化学物質が海洋生物・生態系に与える影響について、小型甲殻類・底生魚類の食物連鎖を通じたマイクロプラスチック摂食と生物濃縮の相対的重要性と相乗効果、および海鳥のマクロプラスチック摂食による有害物質蓄積・濃縮が遺伝子発現機構に与える効果に着目して評価する。

3. 研究開発内容

3-1. 低次消費者におけるマイクロプラスチックおよび含有化学物質の影響評価

まず、二枚貝キタノムラサキイガイを利用して、野外由来の残留性有機汚染物質（POPs、PCBやPAHなど）を吸着させたマイクロプラスチックを摂食させる実験を行い、キタノムラサキイガイへのマイクロプラスチックを介したPOPs吸着の時間的変動について解析した。処理区はControl(CTL)、新品(Virgin)のポリエチレン(PE)ビーズ低密度(0.05mg/ind. : VL)、新品のPEビーズ高密度(5mg/ ind. : VH)、POPs吸着PEビーズ低密度(0.05mg/ ind. : PL)、POPs吸着PEビーズ高密度(5mg/ ind. : PH) の5つに設定した。PEビーズを3時間曝露後、イガイを洗い、別の容器に移動させバイアルとろうとの上にセットして飼育し、毎日バイアルに捕集された糞を捨て、3日に1回換水を行った。この曝露方法と飼育方法を採用することでPEビーズから海水へのPOPs溶出を最小限にした。曝露開始から6日目と15日目(全処理区)、暴露終了後の浄化期間の18日目と24日目(CTL区、PH区のみ)にキタノムラサキイガイを採集し、生殖腺を凍結乾燥させ分析に供した。乾燥した試料をすりつぶしてからASE抽出を行い、抽出液を2段階のシリカゲルカラムクロマトグラフィーとゲル浸透クロマトグラフィーで精製、分画し、PCBsと低臭素PBDEsはGC-ITMSで、高臭素PBDEsはGC-ECDで、PAHsはGC-MSで同定・定量を行った。本研究項目はサブテーマ3(1)と共同で行った。

次に、マイクロプラスチックが食物網を通じて高次消費者に取り込まれるプロセスを解明するため、小型甲殻類であるイサザアミ属のアミ（以下、アミ）と底生魚類シモフリカジカ（以下、カジカ）を利用した飼育実験を行い、アミによるマイクロプラスチックの取り込み、およびカジカに対する水中由来、アミの摂食を通じたマイクロプラスチックの移行の相対的重要性について調べた。アミが水中から取り込むマイクロプラスチック量については、低濃度（200 μ g/L）および高濃度（2000 μ g/L）で24時間暴露し、胃腸内の量を計数した。次いで、上記と同じ2つのマイクロプラスチック濃度でカジカを飼育し、マイクロプラスチックを取り込んだアミをカジカに摂食させた場合と摂食させなかった場合で、24時間後のシモフリカジカの胃腸内のマイクロプラスチック量を比較した。また、マイクロプラスチックの粒径を実験前および実験後に計測し、アミおよびカジカによるマイクロプラスチックの断片化率を算出した。実験方法の詳細についてはHasegawa & Nakaoka (2021)¹を参照されたい。

続いて、プラスチックに含まれる添加剤がマイクロプラスチックの摂取を通じてアミとカジカに取り込まれる量について上記と同じ実験系を用いて検証した。5種の異なる添加剤（BDE209、DBDPE、UV327、UV234、BP12）を1 mg/gの濃度で含む平均粒径30 μ mのPE製マイクロプラスチックを用いた。アミについては、添加剤入りMPを濃度500 μ g/Lで10日間暴露させた実験区（MP区）、事前に添加剤を暴露させてその後取り除いた海水で10日間飼育した実験区（溶出海水区）、および野外で採集した直後のアミ（野外対照区）について、凍結乾燥させた後、それぞれの体内における添加剤蓄積量を測定した。カジカについては、マイクロプラスチックのない水槽で飼育した個体に添加剤入りマイクロプラスチックを毎日9個体ずつ摂食させる実験区（アミ区）、および添加剤入りマイクロプラスチックを上記

濃度で含む水槽中で飼育したカジカにマイクロプラスチックを摂食していないアミを同じ個体数摂食させる実験区（水中区）を設けていずれも10日間飼育した。この2区、および野外で採集した直後のカジカ（野外対照区）について凍結保存後筋肉および肝臓を取り出し、両組織中の添加剤蓄積量を測定した。本研究項目はサブテーマ3(1)と共同で行った。飼育実験および化学分析の詳細についてはHasegawa et al. (2021)²を参照されたい。

3-2. 海鳥におけるプラスチック摂食の状況とその効果

海洋プラスチックの摂食は、海鳥の直接の死因となるだけでなく³、プラスチックが胃中に存在することで胃の体積が減少したり、満腹だと感じて摂餌活動を止めたりすることで摂餌量が減り、ボディコンディションが悪くなるという目につきづらいメカニズムも考えられる⁴。本サブ課題ではオオミズナギドリ雛を対象に、1) プラスチックの飲み込みが海鳥の成長や肥満度にどう影響するかについて実験的に明らかにした。また、2) 日本周辺の汚染度が進んでいると予測される海域とそうでない海域とで海鳥のプラスチック取り込みの量を明らかにした。

3.2.1. プラスチック摂取が海鳥へ与える影響の評価

本研究では自然状態で親に育てられている育雛期前半のオオミズナギドリ (*Calonectris leucomelas*) の孵化後 2 週間で降雛にプラスチックを投与する実験を行った。給餌量はコントロールされていないが、ある程度のサンプル数で実験することで、投与の効果は検出できる。また、雛へのプラスチック投与が親からの給餌量にどう影響するかも評価できる。調査は新潟県粟島のエビスガ鼻(北緯 38 度 27 分, 東経 139 度 14 分)で行った。2017 年にはプラスチックからの有機汚染物質の体内移行も同時に検証するため、人為的に 4 種類の紫外線安定剤と 1 種類の難燃剤を添加したレジンペレットを⁵、2019 年、2020 年では投与量による違いを見るため、バージンペレットを様々な量投与した。これまでの野外個体での報告をレビューしたところ、平均で体重の 0.25% 以上の重量のプラスチックが見つかる研究では体重などに影響が出ていたので⁵、この値をはさむように 2017 年は 0.4 g (体重の 0.044-0.13%)、2019 年は 1.5 g (0.17-0.5%)、2020 年は 2 g (0.22-0.67%)、3 g (0.33-1.0%)、4 g (0.44-1.33%) を投与した (表 1)。体サイズ成長、ホルモン濃度、酸化ストレスを測定するとともに、2017 年と 2019 年には実験後安楽死させて臓器重量を測定した。ホルモン濃度測定は北海道大学獣医学研究が実施した。酸化ストレス測定は名古屋大学に依頼した。外部計測値などへの日齢、プラスチックの投与量、計測日間隔、日齢*プラスチックの投与量の交互作用の効果は、個体 ID を変量効果とした一般線形混合モデル (以下 LMM) の作成とモデル選択によって判断した。この実験は、環境省捕獲許可 H29 第 39 号、平成 31 年 24 号、令和 2 年第 19 号の許可を受けるとともに、北海道大学実験動物倫理委員会承認 17-0095 による承認のもと実施された。

3.2.2. 海鳥のマイクロプラスチック摂食量

我が国の海鳥におけるプラスチック摂食の実態把握にむけて、比較的大型のプラスチックをよく呑み込んでいることが知られているアホドリ類の2種、先のプラスチック取り込みの影響評価実験に使用したオオミズナギドリについて調べた。オオミズナギドリについては、プラスチック汚染度が異なると予想された太平洋と日本海の2か所で繁殖する個体群の雛を対象とした。

表 3-1. 新潟県粟島におけるオオミズナギドリ雛におけるプラスチック投与実験の詳細

年	投与量	数	消失数	最終数	処置	測定項目
2017	Control	15	5	10	安楽死・解剖・臓器重量	成長・添加剤移行他
2017	0.4g	15	4	11	安楽死・解剖・臓器重量	成長・添加剤移行他
2019	Control	15	9	6	安楽死・解剖・臓器重量	成長・血中酸化ストレス・羽ホルモン

2019	1.5g	15	7	8	安楽死・解剖・臓器重量	成長・血中酸化ストレス・羽ホルモン
2020	Control	10	1	9	巣立ち	成長・血中・羽ホルモン
2020	2g	10	1	9	巣立ち	成長・血中・羽ホルモン
2020	3g	10	0	10	巣立ち	成長・血中・羽ホルモン
2020	4g	10	0	10	巣立ち	成長・血中・羽ホルモン

3-3. 海鳥を対象にした有害物質の解毒システム機構、および遺伝子発現機構の解明

新潟県粟島で野生個体のオオミズナギドリ雛に対して、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤3種（UV-326, UV-327, UV-328）、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤1種（BP-12）の計5種の添加剤、およびPOPsである臭素化難燃剤1種（ポリ臭化ジフェニルエーテル、BDE-209）を含むプラスチックの曝露を行い、16日後あるいは32日後に解剖と採材を行った。この曝露実験は実際の自然条件に即するため、親が餌を与える環境で行った。採取した組織について、各プラスチック添加剤の化学分析を行い、添加剤の組織移行を調べた。また、血液生化学分析、各組織重量、病理組織学的検査より、一般的な毒性影響について明らかにした。さらに、次世代シーケンズによって遺伝子発現量の網羅的解析を行い、変動が検出された遺伝子について定量的PCRによってより詳細な比較を行った。さらに、変動がみられた遺伝子に関連する生理活性物質の血液濃度等の分析も行い、幅広く毒性影響を評価した。

4. 結果及び考察

4-1. 低次消費者におけるマイクロプラスチックおよび含有化学物質の影響評価

4.1.1. キタノムラサキイガイに対するマイクロプラスチックを介したPOPs吸着

野外由来のPOPsを吸着させたマイクロプラスチックを暴露したキタノムラサキイガイにおける、生殖腺中のPCB(CB153)とPAH(BaP)濃度を処理区ごとに示した(図3-1)。CB153については曝露期間であるday6では蓄積は確認されなかったが、day15と浄化期間であるday18ではPH区のみ有意に濃度が増加した(*: $p < 0.05$, by Tukey-Kramer test, ##: $p < 0.01$, by t-test)ことから、PEビーズ摂食によって生殖腺に移行・蓄積することが証明された。また、day24時点で消化管中のPEビーズはほぼ排泄されているにもかかわらずCB153の濃度の減少は見られなかった。BaPではPH区のみday15、18、24で生殖腺に高濃度で検出された個体があった。個体間のばらつきが大きくCTL区との有意差は認められなかったものの、PAHsにおいてもPEビーズ摂食によって組織へ移行・蓄積することが示唆された。

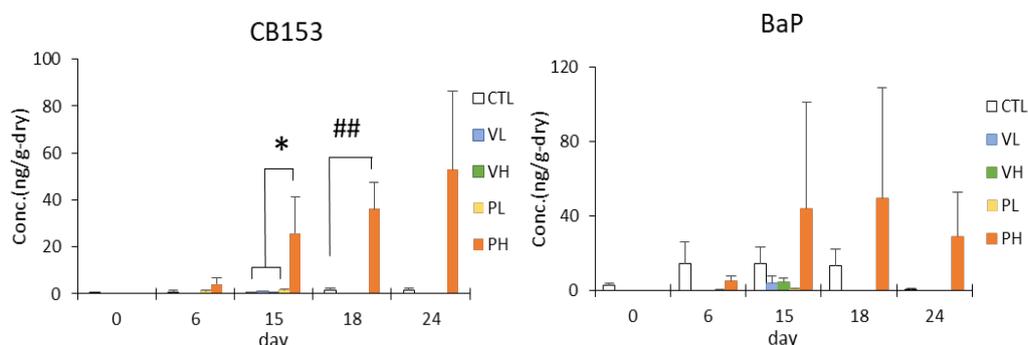


図3-1. 生殖腺中のPCB(CB153)およびPAH(BaP)濃度(ng/g-dry) *: $p < 0.05$, by Tukey-Kramer test, ##: $p < 0.01$, by t-test CTL: Control, VL: Virgin Low, VH: Virgin High, PL: POPs Low, PH: POPs High

PH区における、day6とday15の蓄積が確認された汚染物質についてPEビーズから生殖腺へのPCBsとPAHsの移行率 f を求めた。PCBsの移行率は0-57%、PAHsの移行率は、0-20%となった。PCBsよりPAHsの方が体内で代謝を受けやすいため、移行率が小さくなっていると考えられる。次に移行率 f とオクタノール-水分配係数($\log K_{ow}$)の関係を示した(図3-2)。PCBsについては $\log K_{ow}$ が増加すると移行率 f は減少し、PAHsは $\log K_{ow}$ が6を超えると移行率 f が減少することが分かった。これはPEビーズがより疎水

性の高い汚染物質を保持しやすいことから、疎水性の高い汚染物質はPEビーズから生物組織へ移行しにくいと解釈される。PBDEsは移行率が10%と仮定しても生殖腺中の予想PBDEs量が操作ブランク値を下回ることから、本研究では蓄積が確認されなかったものと考えられる。

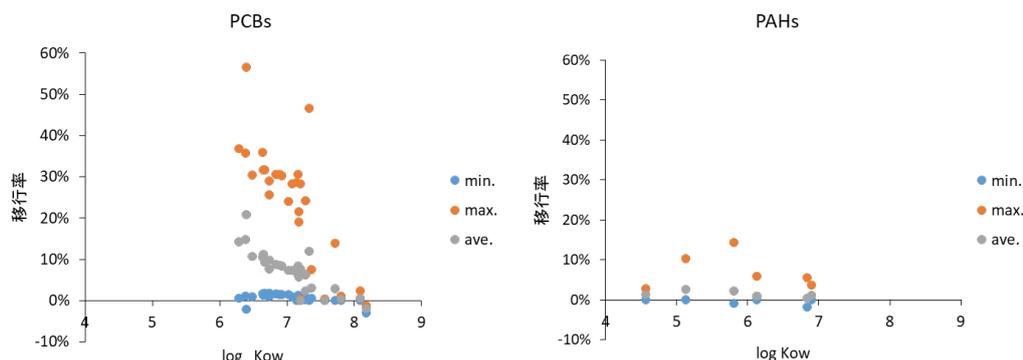


図3-2. PEビーズからイガイへのPCBsおよびPAHs移行率とオクタノール-水分配係数(logKow)の関係

4.1.2. 食物網を通じたマイクロプラスチックの高次消費者への移行

アミを低濃度および高濃度のマイクロプラスチックに暴露した結果、摂食を通じて消化管に取り込むことが判明した (図3-3a, b)。マイクロプラスチックの取り込み量は異なる濃度区間で有意に異なり、高濃度で2.5倍高いことが判明した (図3-3c)。

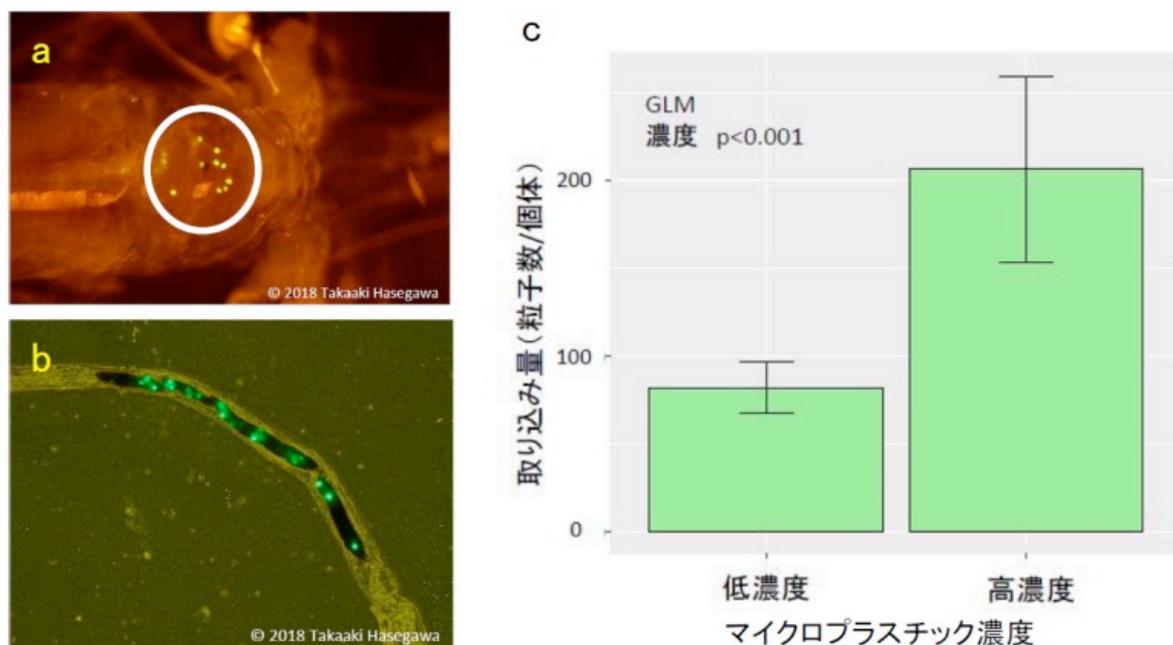


図3-3. アミに取り込まれたマイクロプラスチック (a, b)。生体の胃 (aの丸の中)、解剖して取り出した消化管 (b) の中に蛍光マイクロプラスチック粒子が認められる。cはアミによるマイクロプラスチック摂取量。低濃度 (200 μ g/L) および高濃度 (2000 μ g/L) で24時間暴露したときの平均取り込み量と標準偏差を表す。

シモフリカジカはマイクロプラスチックを含んだイサザアミ類の摂食により、水中から直接摂取するよりも粒子数で8~11倍、重量で3~5倍のマイクロプラスチックを取り込んでいた (図3-4)。粒子数では、処理区間 (水中区とアミ区) の間に有意な差が検出されたが、マイクロプラスチック濃度間、お

よび処理区とマイクロプラスチック濃度の相互作用は有意ではなかった。重量においては、処理区間とマイクロプラスチック濃度間で有意な差が検出されたが、両者の相互作用は有意ではなかった。

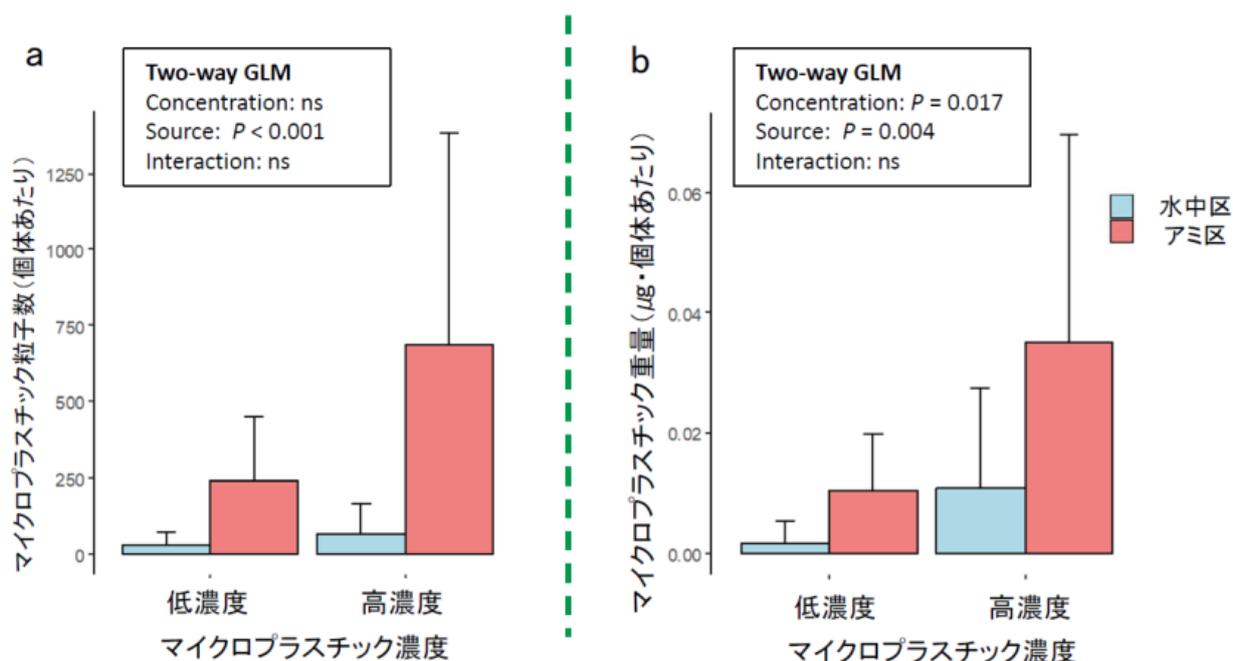


図3-4. 水中由来と餌生物（アミ）摂食由来でのカジカ胃内のマイクロプラスチック粒子の数(a)と質量(b)の変異。低濃度（ $200\mu\text{g/L}$ ）および高濃度（ $2000\mu\text{g/L}$ ）で24時間暴露したときに平均取り込み量と標準偏差を表す。

実験区間でマイクロプラスチックの粒径を比較したところ、アミおよびアミを摂食したカジカの消化管から取り出したマイクロプラスチックの平均粒径（それぞれ $6.4\mu\text{m}$ と $6.6\mu\text{m}$ ）は実験利用前および水中からマイクロプラスチックを摂取したカジカにおける平均粒径（それぞれ $33\mu\text{m}$ と $32\mu\text{m}$ ）よりも小さかった。断片化率で比較した場合、前2者の断片化率は70%を超え、50%未満だった後2者よりも有意に高かった（図3-5）。

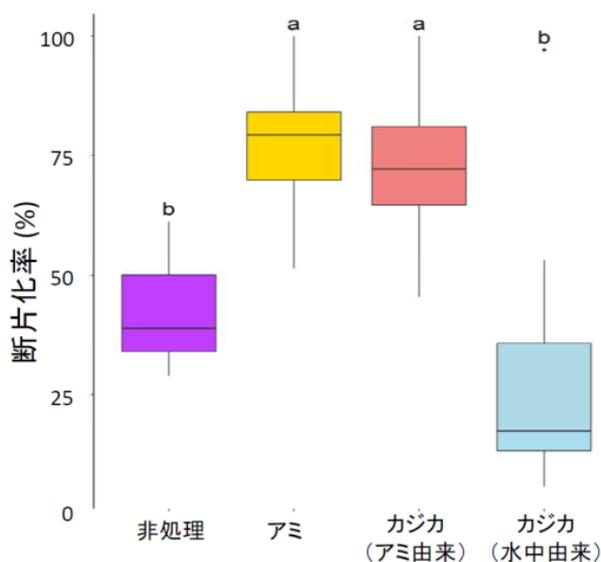


図3-5 実験で利用したマイクロプラスチックの断片化率。「非処理」は摂食実験に用いなかったマイクロプラスチックビーズを示す。カジカについてはアミを摂食させたもの（アミ区）と水中から直摂取し

たもの（水中区）の結果を分けて示す。結果はボックスプロットで示す。事後検定（Tukey's HSD）で有意な差があった群は異なるアルファベット（a, b）で示している。

以上より、カジカのマイクロプラスチック摂取においては、水中からの直接経路よりも、餌生物を介した間接経路の方がより重要であることが明らかになった。また、マイクロプラスチックは細粒化されると体内組織に移行して悪影響を与えることが指摘されている。このように、食物網を通じたマイクロプラスチックの生物間の輸送は、水中からの直接取り込みよりも複合的な影響を海洋生物に与えることが予測されるため、今後より多くの研究例を集積することが重要であると考えられる。

4.1.3. 食物網を通じたマイクロプラスチック添加剤の高次消費者への移行

アミの体内に蓄積した添加剤の濃度は処理区間で有意に異なっていた(図3-6)。添加剤入りのマイクロプラスチックを摂取したアミは4~2420倍の濃度の添加剤を野外対照群よりも取り込んでいた。添加剤が溶出した海水で飼育したアミは、野外対照群より多少添加剤濃度が高かったが、BP-12を除き添加剤入りのマイクロプラスチックを摂取したアミのそれよりも著しく低かった。BP-12では両者の間に有意な変異はなかった。

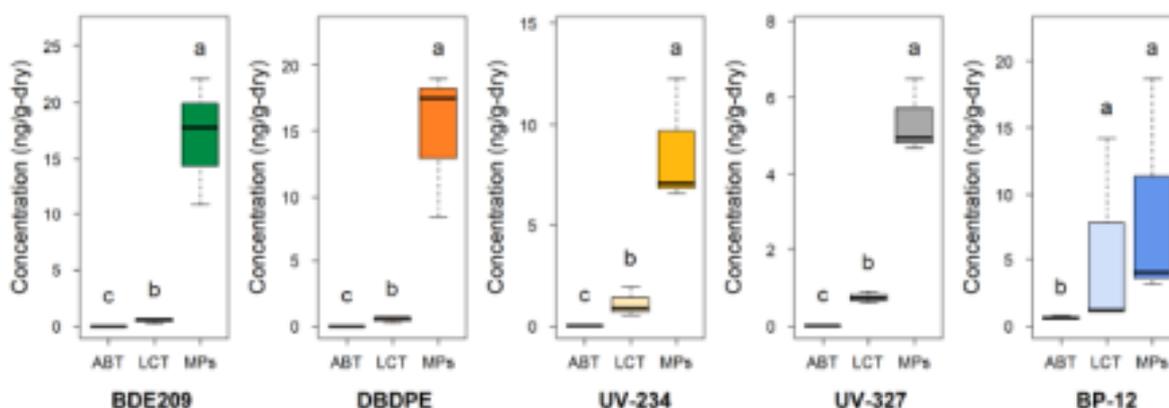


図3-6 アミの体内における5種の添加剤の濃度をボックスプロットで示す。ABTは野外から採集して直ちに保存した野外対照区、LCTは添加剤が溶出した海水で飼育したアミ、MPsは添加剤入りマイクロプラスチックを摂取させた実験群を示す。事後検定（Tukey's HSD）で有意な差があった群は異なるアルファベット（a, b, c）で示している。

カジカの体内に蓄積した添加剤の濃度も処理区間で有意な違いがあったが、変異のパターンは添加剤の種類およびカジカの組織間で異なっていた（図3-7）。臭素系難燃剤（BDE209, DBDPE）の筋肉での蓄積濃度は、アミ区が水中区と野外対照区より有意に高くなっていたが、肝臓では水中区との間に有意差はなく、DBDPEについては野外対照区とも有意差が検出できなかった。一方、紫外線吸収剤については、筋肉におけるUV-234の濃度を除き、アミ区と水中区の濃度は野外対照区より有意に高かったが、アミ区と水中区の比較では、肝臓中のUV-327を除き、有意な濃度の差は検出できなかった。

本研究は、マイクロプラスチックが、海洋生態系における高次消費者への有害化学物質の濃縮の新たな「経路」となる点を世界で初めて実証した。マイクロプラスチックに含まれる添加剤が餌生物によるマイクロプラスチックの摂取を通じて高次消費者に移行することは、海洋プラスチック汚染が従来考えられていたよりも多様で複合的な影響を海洋生態系に与えることを示唆している。今後の他の捕食者・被食者系および他海域での研究事例の集積とそれに基づく実態解明と対策の立案が急がれる。

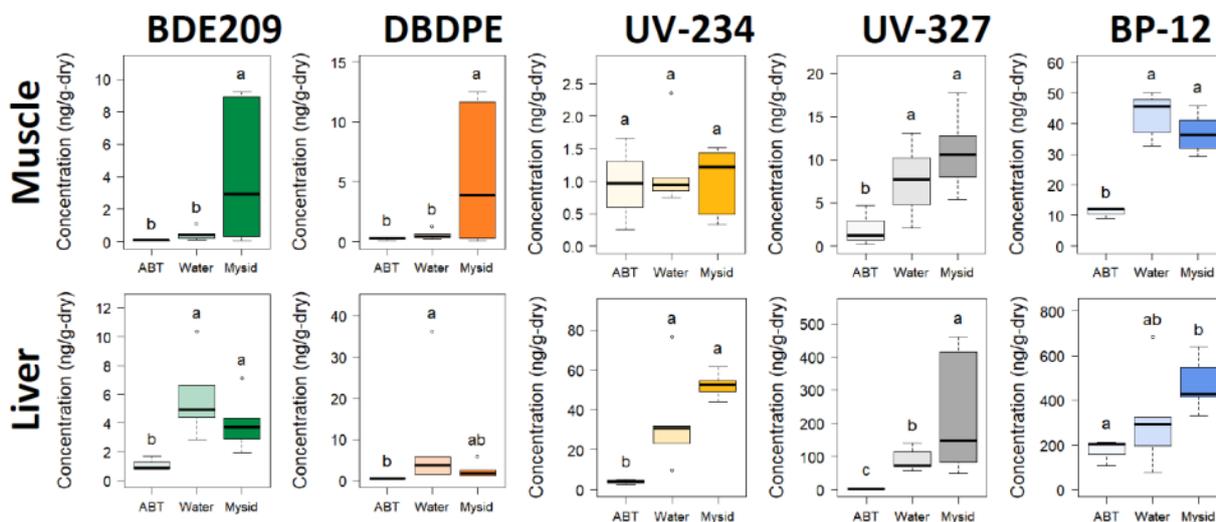


図3-7 カジカの筋肉（上段）および肝臓（下段）における5種の添加剤の濃度をボックスプロットで示す。ABTは野外から採集して直ちに保存した野外対照区、LCTは添加剤が溶出した海水で飼育したカジカ、MPsは添加剤入りマイクロプラスチックに暴露したアミを捕食させた実験群を示す。事後検定（Tukey's HSD）で有意な差があった群は異なるアルファベット（a, b）で示している。

4-2. 海鳥におけるマクロプラスチック摂食の状況とその効果

4.2.1. プラスチック摂取が海鳥へ与える影響の評価

雛の消失率は2019年に高い傾向があったが、コントロール群と投与群の間で差はなかった（表3-1）。2017年の実験では、投与したプラスチックは胃の中にほとんど残っており、プラスチックは外見上投与前後で変化は見られなかった。1個体ではプラスチックが残っておらず解析から除いた。2019年の実験では、安楽死時に胃内容物を吐き戻すことが頻繁にあり、できる限り回収したが野外であったため、完全に回収できたかは明らかではなかった。2個体の雛はほとんど全てのプラスチックが吐き戻しと胃の中から見つかったが、他の雛では半分以上のプラスチックを回収できなかった。両年において、胃の中から投与したプラスチック以外の多くは繊維状のプラスチックが微量（0.001 g 以下）発見された。親由来のプラスチックは無視できる量であり、投与したプラスチックは胃中に残っていたと仮定して分析を進めた。

体重と翼長はほぼ全期間増加傾向にあり、頭長は50日齢ほどで頭打ちになり、尾長は40日齢頃から計測可能となりその後ほぼ一定の速度で成長した（図3-8）。外部形態の成長では、2020年の2g投与群でプラスチック投与後の期間に日齢とプラスチック投与量の交互作用項が有意な変数として選択された以外は、他の全ての年、計測期間、計測部位では、プラスチックの投与量、日齢とプラスチックの投与量の交互作用項はMAMの説明変数に選択されず、プラスチック投与による影響は認められなかった。また、2020年実験で推定給餌量に対してプラスチックの投与量は有意な説明変数として選択されなかった。

2017年安楽死させた個体の腎臓重量を説明する有意な変数としてプラスチックの投与量が選択された（表3-2）、プラスチック投与群の腎臓は軽かった（図3-9）。その他の臓器ではプラスチックの投与量の効果は認められなかった（表3-2）。2017年、2019年の解剖時に明らかな消化管の潰瘍やブロックなど認められなかった。

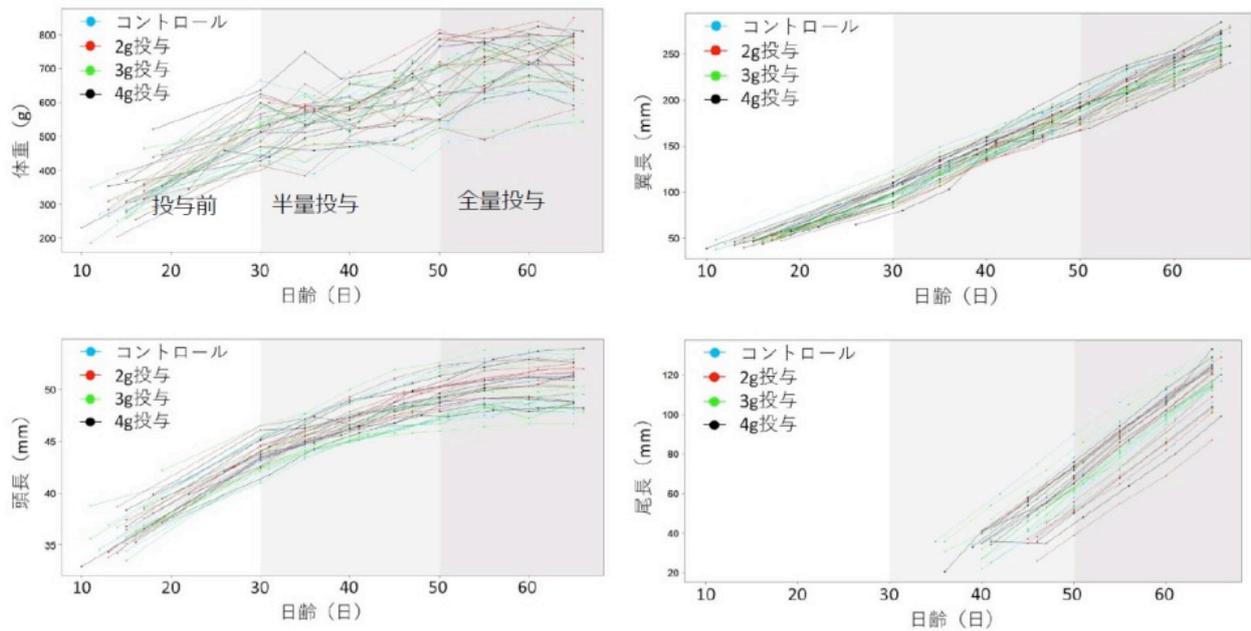


図3-8 2020年の3つのプラスチックペレット投与群とコントロールにおける体の各部位の成長

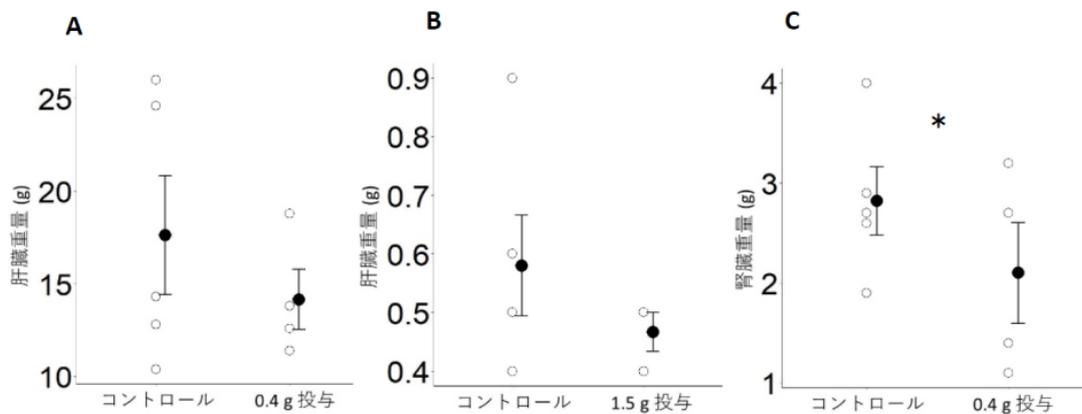


図3-9.オオミズナギドリ雛の臓器重量に対するプラスチック投与の影響。A: 2017年の投与後2週間群、B: 2017年の投与後1か月群、C: 2019年の投与後52日群。*は有意差があったものを示す。

表3-2. GLMによるオオミズナギドリ雛の臓器重量への日齢 (AGE)、体重 (MASS)、プラスチック投与 (DOSE)の影響の解析結果。有意な説明変数のみが含まれたMinimal Adequate Modelを示す。黒字は正の効果、赤字は負の効果を示す

実施年	投与日数	臓器	選択された説明変数
2017	15-16	肝臓	MASS
2017	15-16	腎臓	DOSE
2017	15-16	胸筋	MASS
2017	15-16	肝臓	MASS
2017	29-33	腎臓	AGE+DOSE
2017	29-33	胸筋	NULL
2019	52	肝臓	MASS
2019	52	胸筋	AGE+MASS

4.2.2. 海鳥のマイクロプラスチック摂食量

北太平洋西部の本州沖にて2014年から2018年に混獲されたコアホウドリとクロアシアホウドリ122個体の胃を調べた。プラスチックを持っていた個体の割合はコアホウドリ（91%）の方がクロアシアホウドリ（46%）より高く、また各胃のプラスチック重量もコアホウドリの方がクロアシアホウドリより数倍重かった。この傾向はハワイ諸島周辺の研究⁶⁻⁸と同程度であり、南半球のアホウドリ類（0%～39%）より高いことが確認された。一部の個体についてさらにプラスチック重量・最大長・形状・色を分析したところ、個々のプラスチック重量・最大長ともコアホウドリ（平均0.02～0.16g、0.7～47.7mm）の方がクロアシアホウドリ（平均0.01～0.09g、4.0～9.2mm）より大きかった。コアホウドリは硬質プラスチック、クロアシアホウドリはひも状プラスチックを多く取り込んでおり、ハワイ諸島周辺の結果と同じだったが、スタイロフォームの出現率は20～22.1%とハワイでの値（6.7%）より高かった。両種とも白/透明、橙/茶のプラスチックを飲み込んでいる傾向があった。

国内の海域による違いに関する情報を得るため、日本海の粟島と太平洋の御蔵島において、これまではプラスチック摂食の報告がないオオミズナギドリの子雛あるいは巣立ち雛の胃内容を分析した。その結果、いずれの島においても摂取されていたプラスチックの多くは繊維状でその重量は<0.001gとごく少なかった。親は胃中にいれてもちかえった餌を吐き戻して雛に与え、雛はプラスチックなど未消化物を吐き戻るか排泄することがないので、育雛期間中に親から受け取ったプラスチックを胃の中に滞留させている。そのため、おもに育雛期の親の採食海域のプラスチック汚染を反映していると考えられる。同属のオオミズナギドリでも、取り込み量は少なく繊維が多いことが報告されている⁹。表面採食をまっぴらおこない、ほとんど潜水せず、おもに浮魚を食べるというこの属の特性との関係が注目される。出現個体数割合は粟島では5割から9割、御蔵島では8割から9割程度といずれにおいても高かった。

4.2.3. 結論

4g（体重の1%）までのオオミズナギドリ雛へのレジンペレット投与は、体サイズ成長においても、給餌量、血液のホルモンに対しても明瞭な影響はなかった。また死亡率にも影響していないようだった。添加剤入り 0.4g 投与では腎臓と肝臓が軽くなった。したがって、野外で普通観察される程度の体重の1%以下の摂取量では胃容積低下による栄養状態への大きな負の影響はないだろうと考えられる。本研究を含め、再度これまでの研究を確認したところ、多数の野生個体をつかってプラスチック取り込みが体重や肥満度に影響したとする研究では、取り込まれたプラスチックの最大量は体重の2%を超えており、その影響がなかったとする研究ではプラスチックの最大量は体重の0.25%以下だった（図3-10）。今後プラスチック汚染が進み、体重の2%を超えるほどの大量の取り込み量となった場合何らかの影響が懸念される。一方、添加剤によるなんらかの腎臓、肝臓機能への影響はさらに検討する必要があることを本研究は示している。我が国においても他の海域の海鳥と同等程度にプラスチックを飲み込んでおり、これまでほとんどプラスチックを飲み込んでいないとされてきたオオミズナギドリでは日本海、太平洋いずれにおいても高い割合でプラスチックを飲み込んでいることが初めて明らかとなった。野外でプラスチック摂取が原因で死亡した個体は発見されづらいことを考えると、わが国でも海鳥のプラスチック取り込みは進んでおり、大型であったり鋭かったりする1つのプラスチックを飲み込むことによる死亡に加え、汚染物質とりこみによる腎機能の変化などによる死亡が懸念される。

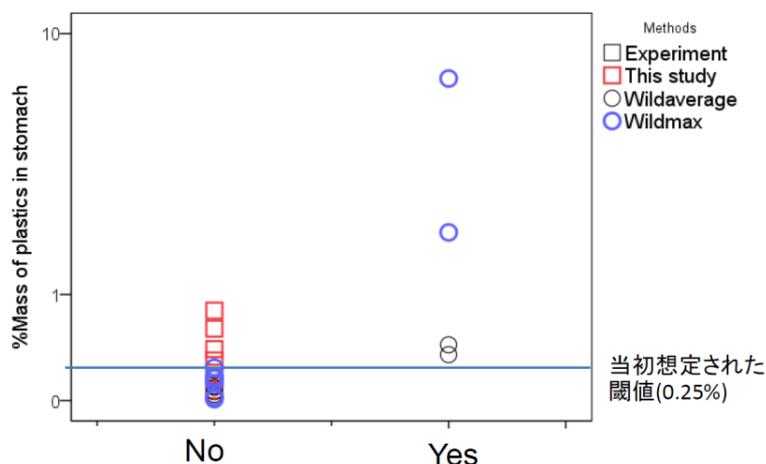


図3-10 オオミズナギドリ雛における胃中のプラスチック重量の体重比と体重・ボデーコンデション・成長への影響

4-3. 海鳥を対象にした有害物質の解毒システム機構、および遺伝子発現機構の解明

4.3.1. プラスチック投与群における遺伝子および生理機能への影響

添加剤を用いない20019年度のプラスチックの投与実験では血中の酸化ストレスと抗酸化力にプラスチック投与の効果は見られず、羽ではアンドロステジオンとプロジェステロンが検出され、プラスチック投与の効果はなかった。2020年実験では、コルチコステロン、17OH-プロジェステロン、11-デオキシコルチコステロン、プロジェステロンが検出され、これら以外のホルモンは検出限界以下であった。1回目の採血と2回目の採血の両方でコルチコステロン濃度と17OH-プロジェステロン濃度において有意な影響を与えた説明変数はなかった。

4.3.2. プラスチック+添加剤投与群におけるプラスチック添加剤の臓器移行

肝臓、脂肪組織、尾腺オイル、腎臓、大脳について化学分析を行い、対照群と曝露群の組織内のプラスチック添加剤濃度を比較した。対照群組織ではほとんど添加剤が検出されなかったが、曝露群では、32日目の肝臓、16日目の尾腺オイル、32日目の腎臓、16日目と32日目の大脳のBP-12を除くすべての試料で定量下限以上のプラスチック添加剤が検出された。検出された添加剤の濃度は、対照群に比べて曝露群で高く、特に肝臓と脂肪組織では、すべての添加剤の濃度が曝露群で有意に高かった。16日目から32日目にかけて、肝臓ではプラスチック添加剤の濃度が半減した。脂肪組織では、BP-12の濃度のみが低下し、他の4つのプラスチック添加剤の濃度には変化が見られなかった。尾腺オイルでは、UV-327を除いてプラスチック添加剤濃度が減少した。腎臓と大脳のプラスチック添加剤濃度はBP-12を除いて減少した。

曝露試料から検出されたプラスチック添加剤の組成は、組織ごとに異なっていた。肝臓ではBDE-209の割合が高く、検出されたプラスチック添加剤の約80%を占めていた。検出された残りの20%は、ほとんどがベンゾトリアゾール系の紫外線安定剤で、BP-12はほとんど含まれていなかった。腎臓では、検出されたプラスチック添加剤のうちBDE-209が約40~50%、ベンゾトリアゾール系紫外線安定剤が約50%を占めた。脂肪組織では、BDE-209の割合は10%未満であり、検出されたプラスチック添加剤のうちベンゾトリアゾール系紫外線安定剤が約80%を占め、残りの10%はBP-12であった。大脳では、検出された添加剤のうちBDE-209が約10~20%で、残りの大部分はベンゾトリアゾール系紫外線安定剤であった。

以上より、ほとんどの曝露群組織でプラスチック添加剤が対照群よりも高く検出され、プラスチック添加剤の組織移行が証明された。

4.3.3. プラスチック+添加剤投与群における一般的毒性試験および薬物代謝酵素群

血液生化学検査、臓器重量、病理組織学検査などの一般毒性の検査では、プラスチック添加剤曝露による有意な影響は認められなかった。肝臓におけるarylhydrocarbon receptor(AhR)、cytochrome P450(CYP)1A5、CYP1B1の発現量は、対照群と被曝群で有意な差はなかった。AhRの発現量は、16日目(53日齢)よりも32日目(69日齢)の方が有意に高かった。

4.3.4. プラスチック+添加剤投与群における遺伝子および生理機能への影響

次世代シーケンサーを用いて、肝臓、下垂体、甲状腺、脾臓、副腎の遺伝子発現量の変化を網羅的に解析した。解析遺伝子数は390,012であった。7つのデータベースすべてにアノテーションされている遺伝子は28,232個であり、少なくとも1つのデータベースにアノテーションされている遺伝子は298,697個で、それぞれ全ユニジェンスの7.24%、76.58%であった。

各臓器において検出されたDEG(有意に発現量が変動している遺伝子)の数は、肝臓で96個(up: 40、down: 56)、甲状腺で34個(up: 19、down: 15)、下垂体で446個(up: 309、down: 137)、脾臓で80個(up: 35、down: 45)、副腎で63個(up: 29、down: 34)であった。クラスター解析では、下垂体を除き、対照群と曝露群の間で発現パターンに違いは見られなかった。KEGGパスウェイマップのエンリッチメント解析では、肝臓ではperoxisome proliferator-activated receptor (PPAR)シグナル伝達経路と一次胆汁酸生合成、甲状腺と下垂体では甲状腺ホルモン合成、脾臓と副腎では抗原提示関連遺伝子に、各々、対照群と曝露群で発現の異なる遺伝子が存在した(図3-11)。

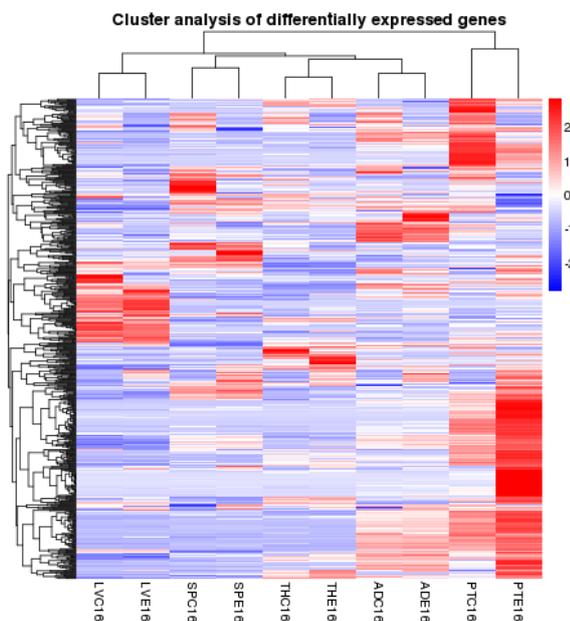


図3-11. RNA-seq法により、対照群と添加剤入りプラスチックのmRNA遺伝子発現の差を示す。Fragments Per Kilobase of exon per Million mapped reads (FPKM) クラスター分析の全体的な結果で、 $\log_{10}(\text{FPKM}+1)$ の値を用いてクラスター化されている。赤は発現量の多い遺伝子を、青は発現量の少ない遺伝子を示す。赤から青までの色の範囲は、 $\log_{10}(\text{FPKM}+1)$ 値が大きいものから小さいものまでを表す。LV, 肝臓; SP, 脾臓; TH, 甲状腺; AD, 副腎; PT, 下垂体。C、コントロール、E、曝露。

毒性学的影響として示唆される遺伝子発現変化では、肝臓や甲状腺の甲状腺ホルモン系に関連する遺伝子に発現量変動が認められ、曝露による影響が示唆された(図3-12)。甲状腺刺激ホルモン受容体の発現量は、曝露群では16日目に対照群よりも有意に低かった。肝臓DIO1(1型脱ヨード酵素)の発現量は、対照群と被曝群の間で有意な差はなかったが、16日目(53日齢)よりも32日目(69日齢)の方が有意に高かった。対照群の肝臓DIO2(2型脱ヨード酵素)発現量が32日目(69日齢)に有意に高かったのとは異なり、曝露群の肝臓DIO2発現量は16日目と32日目で差がなく、32日目には対照群よりも曝露群の方が肝臓DIO2発現量が有意に低かった。肝臓のDIO3(3型脱ヨード酵素)の発現量は、両群間で有意な差はなかった。甲状腺DIO1、DIO2、DIO3の発現量には群間で有意な差はなかったが、甲状腺DIO2およびDIO3の分散は、曝露群で突出して高い発現量を示す個体があったため、16日目には対照群と曝露群で有意に異なっていた。下垂体のDIO2の発現量は、対照群と曝露群で有意な差はなかった。プラスチック曝露により、甲状腺ホルモン系関連遺伝子の発現レベルが変化することから、血漿中甲状腺ホルモン濃度および肝臓中甲状腺ホルモン濃度を測定した。しかし、血漿中・肝臓中の甲状腺ホルモン濃度には対照群と曝露群の間で差はみられなかった。血漿、肝臓ともに、甲状腺ホルモン濃度およびT3/T4比は、対照群と曝露群の間に有意な差はなか

った。血漿中のrT3およびT3濃度、肝臓中のT3濃度は、16日目（53日齢）よりも32日目（69日齢）の方が有意に高かった。一方で、肝臓のDIO1発現量、DIO2発現量と肝臓のT3濃度との間には正の相関があり、肝臓のDIO3発現量と肝臓のT3濃度との間には負の相関があった。

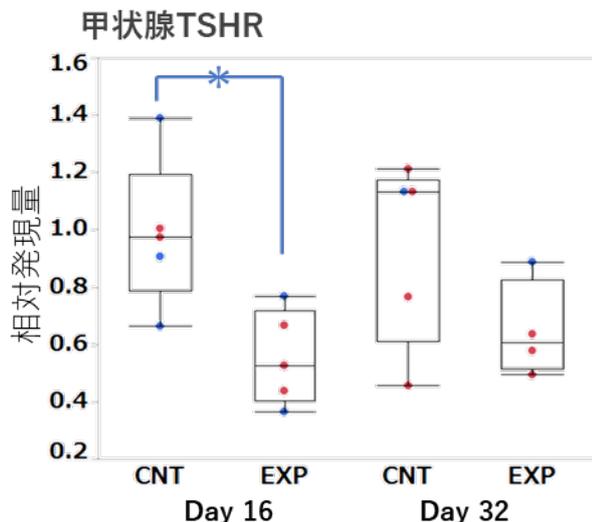


図3-12.甲状腺に発現する甲状腺刺激ホルモン受容体の発現量を示す。16日目、32日目の甲状腺について、TSHRのmRNA量を定量的PCRによって解析した。CNT、コントロール、EXP、曝露。*は、対照群と曝露群間において統計解析で有意な差を示した ($p < 0.05$)。

また、肝臓の胆汁酸合成系遺伝子にも発現量変動がみられ、影響が示唆された。CYP7A1およびCYP7B1の発現量は、16日目に曝露群が対照群よりも有意に低下していた（図3-13）。また、CYP8B1およびCYP39A1の発現量は、対照群と曝露群の間に有意な差はなかった。32日目のCYP7A1、16日目のCYP7B1および32日目のCYP8B1の分散は、対照群と被曝群の間で有意に異なっていた。また、CYP39A1の発現量は、16日目（53日齢）よりも32日目（69日齢）の方が有意に高かった。肝臓中胆汁酸濃度は、有意差はみられないものの、対照群と曝露群で分散が有意に異なっており、曝露による影響が示唆された。

脂質代謝系遺伝子では発現量に有意差はみられなかったが、対照群と曝露群で分散が有意に異なる遺伝子があり、脂質代謝系への影響の可能性も考えられた。PPAR α の発現量は、16日目（53日齢）よりも32日目（69日齢）の方が有意に高かった。ステアロイル-CoA不飽和化酵素1（SCD1）の発現量は、対照群では個体間のばらつきが大きかったが、曝露群では発現量の多い個体はなく、ばらつきは有意に小さかった。

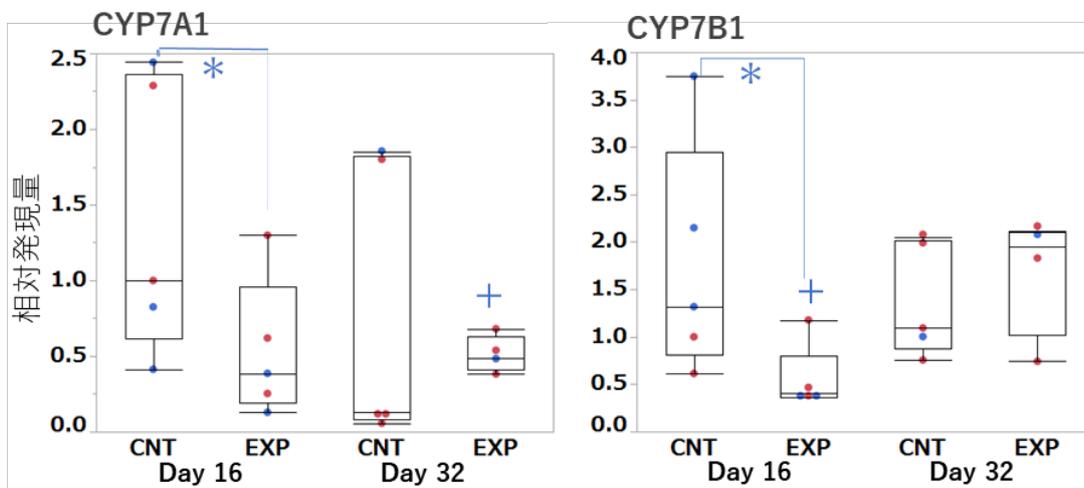


図3-13.肝臓に発現するCYP7A1およびCYP7B1のmRNA発現量を示す。16日目、32日目の甲状腺について、各CYP分子種のmRNA量を定量的PCRによって解析した。CNT、コントロール、EXP、曝露。*は、対照群と曝露群間において統計解析で有意な差を示した ($p < 0.05$)。

4.3.5. 結論

本研究では、海鳥に対するプラスチックのみの曝露の影響、およびプラスチックから組織への添加剤の移行・蓄積を実証し、添加剤移行による毒性影響を明らかにするため、添加剤を含まないプラスチック、もしくは添加剤を含むプラスチックを海鳥に投与した。その結果、添加剤を含むプラスチックを摂取することで、組織内に添加剤が蓄積され、鳥類に遺伝子発現レベルでは影響を及ぼすことが明らかになった。特に、甲状腺ホルモン系や胆汁酸合成系への影響が強く示唆された。また、添加剤の含むプラスチックにより、脂質代謝遺伝子の発現量が増加することも示唆された。一方、今回の研究では甲状腺ホルモンや性ステロイドホルモン、胆汁酸など、生理活性物質の濃度に有意な影響はなかった。

したがって、添加剤入りのプラスチックに曝露されることで、その影響は遺伝子レベルでの変化にとどまり、生理機能など恒常性への顕著な影響は認められないことが明らかとなった。

5. 研究目標の達成状況

食物網を通じた高次消費者への移行、水中由来とプラスチック由来の相対的重要性を評価した点。さらに添加剤がマイクロプラスチック経由で魚類に移行することを示した世界初の研究であり、研究分野全体に与えるインパクトも非常に高い。また、海鳥の研究については、プラスチックに含まれる添加剤の組織移行と蓄積が証明され、甲状腺ホルモン系や胆汁酸合成系への影響が示唆された。本研究は野生海鳥を用いて添加剤含有プラスチック摂食の影響を明らかにしようとした貴重な研究であり、本研究の結果はプラスチックのリスク解明に貢献する重要な情報を提供する。

以上より、研究目標に掲げたサブテーマの目標に対して順調に研究を行い、十分な成果を得ることができた。

6. 引用文献

- 1 Hasegawa and Nakaoka (2021) *Environmental Pollution* 273: 116468
- 2 Hasegawa et al. (2021) *BioRxiv* (preprint) Doi: 10.1101/2021.03.09.434685
- 3 Roman et al. (2020) *Conservation Letters*, e12785 DOI: 10.1111/conl.12785
- 4 Connors & Smith (1982) *Marine Pollution Bulletin* 13:18-20
- 5 Tanaka et al. (2020) *Current Biology* 30: 723–728
- 6 Auman et al. (1997) In: G Robinson, R Gales (eds), *Albatross Biology and Conservation*, Chipping Norton: Surrey Beatty & Sons: 239–244
- 7 Gray et al. (2012) *Marine Pollution bulletin* 64(10): 2190-2192
- 8 Rapp et al. (2017) *Marine Pollution Bulletin* 123(1-2): 269-278
- 9 Rodoriges et al. (2012) *Marine Pollution Bulletin* 64:2219-2223

Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細

(1) 誌上発表

<査読付き論文>

【サブテーマ1】

- 1) T. Ohgaki, H. Takada, R. Yoshida, K. Mizukawa, B.G. Yeo, M. Alidoust, N. Hirai, R. Yamashita, T. Tokumaru, I. Watanabe, S. Onwona-Agyeman, P. Gardiner, M. Eriksen, J.F. Kelly, C.J. Rodríguez-Sierra, L. Colasse, J. Baztan, F.P. Barretto, G.I. Mendes, D. Abessa, M.P. Zakaria, C.S. Kwan, M. Saha, P.G. Ryan, S. Weerts, J. Ofosu-Anim, E.B. Sabi, L.G. Akita, H. Tait, C. Eriksson, H. Burton: *Environmental Monitoring and Contaminants Research*, 2 in press (2021) International Pellet Watch : Global monitoring of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in plastic resin pellets.
- 2) M. Alidoust, G.B. Yeo, K. Mizukawa, H. Takada: *Marine Pollution Bulletin*, 165 112052 (2021) Monitoring of polycyclic aromatic hydrocarbons, hopanes, and polychlorinated biphenyls in the Persian Gulf in plastic resin pellets. (IF:4.05)
- 3) 大塚佳臣、高田秀重、二瓶泰雄、亀田豊、西川可穂子 : 水環境学会誌, 44, 35-42 (2021) マイクロプラスチック汚染研究の現状と課題
- 4) K. Tanaka, Y. Watanuki, H. Takada, M. Ishizuka, R. Yamashita, M. Kazama, N. Hiki, F. Kashiwada, K. Mizukawa, H. Mizukawa, D. Hyrenbach, M. Hester, Y. Ikenaka, S.M.M. Nakayama: *Current Biology*, 30 (4) 723-728.e3 (2020) In Vivo Accumulation of Plastic-Derived Chemicals into Seabird Tissues. (IF:9.60)
- 5) K. Tanaka, H. Takada, Y. Ikenaka, S.M.M. Nakayama, M. Ishizuka: *Marine Pollution Bulletin*, 150 110732 (2020) Occurrence and concentrations of chemical additives in plastic fragments on a beach on the island of Kauai, Hawaii. (IF:4.05)
- 6) B.G. Yeo, H. Takada, R. Yamashita, Y. Okazaki, K. Uchida, T. Tokai, K. Tanaka, N. Trenholm: *Marine Pollution Bulletin*, 110806 (2019) PCBs and PBDEs in microplastic particles and zooplankton in open water in the Pacific Ocean and around the coast of Japan. (IF:4.05)
- 7) K. Tanaka, J.A. van Franeker, T. Deguchi, H. Takada: *Marine Pollution Bulletin*, 145 36-41 (2019) Piece-by-piece analysis of additives and manufacturing byproducts in plastics ingested by seabirds: Implication for risk of exposure to seabirds. (IF:4.05)

【サブテーマ2】

- 1) M. Assas, X. Qiu, K. Chen, H. Ogawa, H. Xu, Y. Shimasaki, Y. Oshima: *Marine Pollution Bulletin*, 158 111446 (2020) Bioaccumulation and reproductive effects of fluorescent microplastics in medaka fish. (IF:4.05)
- 2) 1) Y. Liu, X. Qiu, X. Xu, Y. Takai, H. Ogawa, Y. Shimasaki, Y. Oshima: *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 212 112007 (2021) Uptake and depuration kinetics of microplastics with different polymer types and particle sizes in Japanese medaka (*Oryzias latipes*).
- 3) 1) X. Qiu, S. Saovany, Y. Takai, A. Akasaka, Y. Inoue, N. Yakata, Y. Liu, M. Waseda, Y. Shimasaki, Y. Oshima: *Aquatic Toxicology*, 228 105643 (2020) Quantifying the vector effects of polyethylene microplastics on the accumulation of anthracene to Japanese medaka (*Oryzias latipes*).

【サブテーマ3】

- 1) K. Tanaka, H. Takada, Y. Ikenaka, S. Nakayama, M. Ishizuka: *Mar. Pollut. Bull.*, (IF: 4.0) Volume 150, 110732 (2020) Occurrence and concentrations of chemical additives in plastic fragments on a beach on the island of Kauai, Hawaii
- 2) K. Tanaka, Y. Watanuki, H. Takada, M. Ishizuka, R. Yamashita, M. Kazama, N. Hiki, F. Kashiwada, K. Mizukawa, H. Mizukawa, D. Hyrenbach, M. Hester, Y. Ikenaka, S. Nakayama: *Curr. Biol.*, (IF: 9.6) Volume 30, Issue 4, 723 - 728.e3 (2020) *In Vivo* Accumulation of Plastic-Derived Chemicals into Seabird Tissues
- 3) Yu, S-P., Nakaoka, M. and Chan, B.K.K. (2021) The gut retention time of microplastics in nauplius larvae of barnacles from different climatic zones and marine habitats. *Environmental Pollution* 268: 115865. Doi: 10.1016/j.envpol.2020.115865 (IF: 6.8)
- 4) Hasegawa, T. and Nakaoka, M. (2021) Trophic transfer of microplastics from mysids to fish greatly

exceeds direct ingestion from the water column. Environmental Pollution 273: 116468. Doi: 10.1016/j.envpol.2021.116468 (IF: 6.8)

<その他誌上発表（査読なし）>

【サブテーマ1】

- 1) 高田秀重：公衆衛生, 85 (5) 332-337 (2021) マイクロプラスチック問題と分散型持続可能な社会の実現.
- 2) 高田秀重: 環境情報科学48 (3) 12-16 (2019) 化学物質汚染と物質循環の視点からみたプラスチック問題 (特集 プラスチック資源循環の現状と戦略) -- (プラスチックによる海洋汚染).

【サブテーマ2】

- 1) 大嶋雄治, 2020, 生物によるマイクロプラスチックの細粒化とその体内動態. 環境技術, 49, 1-5.
- 2) 大嶋雄治, 島崎洋平, 2020, メダカにおけるマイクロプラスチックの動態とその影響. マテリアルライフ, 32, 1-5.

【サブテーマ3】

- 1) Hasegawa T., Mizukawa K., Geok Y.B., Sekioka T., Takada H., Nakaoka M. (2021) Trophic transfer of microplastics enhances tissue accumulation of chemical additives in fish. BioRxiv (preprint) Doi: 10.1101/2021.03.09.434685

(2) 口頭発表（学会等）

【サブテーマ1】

- 1) 高田秀重、Yeo Bee Geok、紅露美咲、杉浦雅也、高田尚彦、水川薫子：第23回日本水環境学会シンポジウム（オンライン）（2020）都市内湾における微細プラスチックの動態：雨天時の輸送、堆積、生物への取込
- 2) 高田秀重：第69回高分子学会（オンライン）（2020）マイクロプラスチック汚染の現状と化学的特徴.
- 3) 紅露美咲、高田秀重、Ruchaya Boonyatumanond、Charita Kwan：第55回日本水環境学会年会（オンライン）（2021）柱状堆積物を用いたアジア諸国のマイクロプラスチック汚染史の解析
- 4) Hideshige Takada, An International Workshop to Formulate Next Steps in Understanding the Fate, Distribution, Impacts, and Technology Development Necessary to Push the Science (October 15-18, 2019, Woods Hole Oceanographic Institution, Woods Hole, MA 02543) (2019) Hazardous chemicals in marine plastics and their threat to marine organisms
- 5) 水川 薫子, 櫻井 滯, 太田 百音, 仲岡 雅裕, 高田 秀重：第28回環境化学討論会（2019）マイクロプラスチックを介した残留性有機汚染物質(POPs)の二枚貝への曝露実験
- 6) H. Takada : 8th regional 3R forum in Asia and the Pacific, Indore, India, Apr. 11, 2018 “Prevention of marine littering : Learning from Japan”.
- 7) H. Takada : The second International Symposium on Marine Microplastic Pollution and Control, Shanghai, China, Apr. 24, 2018 “Occurrence of wide-range of additives in marine plastics and their exposure to marine organisms”.
- 8) 高田秀重、山下麗、比企永子、柏田文美佳、田中厚資、綿貫 豊：第60回日本環境化学会講演会、機械振興会館ホール、日本、2018年12月6日「海鳥のプラスチック由来化学汚染の世界的広がり」
- 9) 高田秀重、山下麗、福永航平、高田尚彦、杉浦雅也：第60回日本環境化学会講演会、機械振興会館ホール、日本、2018年12月6日「下水、生物、堆積物中の微細マイクロプラスチック

の分布」

- 10) H. Takada : Joint Workshop between the Ministry of Environment and Water and Agriculture of Saudi Arabia and JICA, Riyadh, Saudi Arabia, Apr. 23, 2019 “Microplastic and its impacts on marine organisms and human health”.
- 11) 田中厚資：第60回日本環境化学会講演会、機械振興会館ホール、日本、2018年12月6日「摂食プラスチックから海鳥への化学物質の移行の検証」
- 12) 田中厚資：第2回日本環境化学会北海道東北地区部会、福島市東部勤労者研修センター、日本、2018年12月10日「摂食プラスチックから海鳥への化学物質の移行」
- 13) K. Tanaka, Y. Watanuki, H. Takada, Y. Ikenaka, S.M.M. Nakayama, R. Yamashita, M. Ishizuka : Pacific Seabird Group 46th Annual Meeting (2019), Lihue, Kauai, Hawaii, USA, Feb. 27-Mar. 8, 2019 “Experimental evidence of accumulation of plastic-derived chemicals into seabirds’ tissue”
- 14) 田中厚資：海鳥研究集会、東大大気海洋研究所、日本、2019年3月23日「プラスチック摂食による海鳥への添加由来化学物質の曝露と影響」

【サブテーマ2】

- 1) 鳥山秀, 大嶋雄治, 島崎洋平. 令和2年度日本水産学会九州支部大会(2021). マイクロプラスチックの動物プランクトンからメダカへの生物濃縮.
- 2) Lee SeokHyun, Masato Honda, Kouki Mukai, Tomohiro Hirasawa, Takashi Hatakeyama, Yukinari Tsuruda, Yohei Shimasaki, Yuji Oshima. 令和2年度日本水産学会九州支部大会 (2021). Detection of microplastics in Wharf roach collected from coastal of Japan.
- 3) 高井優生, 富永晃世, 早稲田真未, 内田祐紀哉, 本田匡人, 島崎洋平, 大嶋雄治. 令和2年度日本環境毒性学会オンライン発表会 (2021). マイクロプラスチックとアントラセンの複合曝露が海産メダカへ与える影響.
- 4) 鳥山秀・榎眞太郎・島崎洋平・大嶋雄治. 令和2年度日本環境毒性学会オンライン発表会 (2021). マイクロプラスチックの動物プランクトンを介したメダカへの生物濃縮.
- 5) Lee SeokHyun, Masato Honda, Koki Mukai, Tomohiro Hirasawa, Takashi Hatakeyama, Tsuruda Yukinari, Yohei Shimasaki, Yuji Oshima. 令和2年度日本環境毒性学会オンライン発表会 (2021). Intake of expanded polystyrene and generation of microplastic in wharf roach.
- 6) 大嶋雄治 C-4: メダカにおけるマイクロプラスチックの体内動態と生物濃縮および化学物質に対するベクター効果. 令和2年度海洋プラスチックごみ学術シンポジウム (2021) 環境省オンライン開催.

【サブテーマ3】

- 1) 仲岡雅裕、太田百音、長谷川貴章、櫻井滯、水川薫子、高田秀重：第60回日本環境化学会講演会、機械振興会館ホール、日本、2018年12月6日「マイクロプラスチックが海洋ベントスに与える影響」
- 2) 綿貫豊、ナヤセナ、田中厚資、山下麗、風間麻未、依田憲、高田秀重：第60回日本環境化学会講演会、機械振興会館ホール、日本、2018年12月6日「海鳥によるプラスチック摂取：現状と潜在的影響」
- 3) Y. Watanuki : Pacific Seabird Group 46th Annual Meeting (2019), Lihue, Kauai, Hawaii, USA, Feb. 28, 2019 “Plastic ingestion in seabirds and its chemical effects” (シンポジウム座長)
- 4) 石塚真由美：第60回日本環境化学会講演会、機械振興会館ホール、日本、2018年12月6日「化学汚染の毒性影響の検知」
- 5) 田中厚資：第60回日本環境化学会講演会、機械振興会館ホール、日本、2018年12月6日「摂食プラスチックから海鳥への化学物質の移行の検証」
- 6) 田中厚資：第2回日本環境化学会北海道東北地区部会、福島市東部勤労者研修センター、日本、2018年12月10日「摂食プラスチックから海鳥への化学物質の移行」
- 7) K. Tanaka, Y. Watanuki, H. Takada, Y. Ikenaka, S.M.M. Nakayama, R. Yamashita, M. Ishizuka : Pacific Seabird Group 46th Annual Meeting (2019), Lihue, Kauai, Hawaii, USA, Feb. 27-Mar. 8, 2019 “Experimental evidence of accumulation of plastic-derived chemicals into seabirds’ tissue”
- 8) 田中厚資：海鳥研究集会、東大大気海洋研究所、日本、2019年3月23日「プラスチック摂食

による海鳥への添加由来化学物質の曝露と影響」

- 9) 水川薫子、櫻井滯、太田百音、仲岡雅裕、高田秀重、第28回環境化学討論会（国内）
（2019）マイクロプラスチックを介した残留性有機汚染物質(POPs)の二枚貝への曝露実験
- 10) 仲岡雅裕、2019年日本ベントス学会・日本プランクトン学会合同大会自由集会1「海洋生物研究と海洋ごみ問題—特にマイクロプラスチック研究にどう取り組んでいくか」
（2019）マイクロプラスチックが海洋ベントスに与える影響
- 11) 仲岡雅裕・太田百音、2019年日本ベントス学会・日本プランクトン学会合同大会
（2019）マイクロプラスチックのベントスへの影響は地球温暖化と共に深刻になるか？～キタノムラサキガイによる検証～
- 12) 田中厚資、綿貫豊、高田秀重、石塚真由美、山下麗、水川薫子、水川葉月、池中良徳、中山翔太、第3回環境化学会 北海道東北地区部会（国内）（2019）摂食プラスチックから海鳥への添加由来化学物質の移行
- 13) Watanuki Y, Sena N, Tanaka K, Yamashita R, Kazama M, Yoda K, Takada H, PICES Annual Meeting, Victoria (2019) Ingestion of plastics by seabirds and its potential effects.

（3）「国民との科学・技術対話」の実施

【サブテーマ1】

- 1) 葉山キッズschool・自然体験教室・マイクロプラスチックの採取と講演（主催：NPO法人オーシャンファミリー海洋自然体験センター、2018年4月19日）
- 2) 平成30年度日本水環境学会東北支部(仙台)講演会（2018年5月26日）
- 3) 小平市講演会(主催：東京都消費者生活センター、2018年6月2日)
- 4) お台場の砂浜でマイクロプラスチック採取体験&学習会（主催：生活協同組合パルシステム、2018年6月9日）
- 5) 市民向け公開講演会(主催：国立市、2018年6月23日)
- 6) 市民向け環境講座講演(福井市公民館にて2018年、6月30日)
- 7) 廃棄物資源循環学会・リサイクルシステム部会講演会(2018年7月5日)
- 8) きれいな水といのちを守る・東日本連絡会講演会(主催：日本消費者連盟・東京都消費生活総合センター、2018年7月7日)
- 9) 杉並区民講演会(主催：すぎなみ環境ネットワーク、2018年9月1日)
- 10) 公開講演会（主催：日本弁護士連合会、2018年9月6日）
- 11) 府中かんきょう塾2018講演(主催：府中市、2018年9月15日)
- 12) 公開市民講座講演（主催：仙台市合いコープみやぎ、2018年9月28日）
- 13) 公開市民講座講演（主催：つくば市安全食品を考える市民団体、2018年9月29日）
- 14) 横浜北生活クラブ講演会（主催：横浜北生活クラブ、2018年10月20日）
- 15) 浦安市民大学講演会(2018年10月23日)
- 16) 平成30年度横浜環境行動賞「ヨコハマ3R夢」推進者表彰式講演(主催：横浜市、2018年10月30日)
- 17) バイオマス講演会(主催：バイオプラスチック協会、2018年11月1日)
- 18) 紙パルプシンポジウム講演会（2018年11月8日）
- 19) 市民向け公開講演会(主催：調布市生活者ネットワーク、2018年11月10日)
- 20) 講演会(主催：清涼飲料協会、2018年11月12日)
- 21) 市民向け公開講演会(主催：尼崎市、2018年11月18日)
- 22) 高校生向け講演会(主催：つばさ総合高等学校、2018年11月23日)
- 23) 東京農工大学イノベーション機構講演会(2018年11月24日)
- 24) 廃棄物コンサルタント向け講演会(主催：日本廃棄物コンサルタント協会、2018年11月27日)
- 25) トークイベント（調布フェアトレードコーヒーショップ）(主催：調布市、2018年12月2日)
- 26) 市民向け公開講演会(主催：名古屋市、2018年12月8日)

- 27) 講演会(主催：大和証券、2018年12月13日)
- 28) 市民向け公開講演会(主催：西東京市消費生活展実行委員会、2018年12月15日)
- 29) 講演会(主催：東洋大学、2018年12月15日)
- 30) 大学生向け講演会(主催：亜細亜大学、2018年12月17日)
- 31) 講演会(主催：慶應大学、2018年12月18日)
- 32) 講演会(主催：時代を刷新する会、2018年12月20日)
- 33) 講演会（主催：有害化学物質ネットワーク、2018年12月22日）
- 34) 学術会議リスク分科会講演会(2018年12月25日)
- 35) 機関投資家セミナー講演（主催：みずほ証券、2018年12月25日）
- 36) 市民公開講演会（横浜市象の鼻テラス2 019年1月28日）
- 37) 講演会(主催：日本化学繊維協会、2019年1月31日)
- 38) 市民公開講演会（主催：新宿区消費者団体、2019年2月21日）
- 39) 市民公開かんきょう講演会(主催：逗子市、2019年3月3日)
- 40) 市民公開講演会(主催：日野市リサイクルショップ回轉市場、2019年3月10日)
- 41) 講演会(主催：毎日新聞社、2019年3月12日)
- 42) 市民公開講演会(主催：小金井市、2019年3月16日)
- 43) 第6回包装近未来シンポジウム講演会（主催：（社）日本包装技術協会、2019年3月14日）
- 44) 講演会(主催：日本建設業連合会（日建連）、2019年3月14日)
- 45) 講演会(主催：小金井市、2019年3月16日)
- 46) 機関投資家セミナー講演（主催：岡三証券、2019年3月22日）
- 47) 市民公開講演会・パネル討論（主催：東京新聞、2019年3月23日）
- 47) 食と環境のカレッジ講演会(主催：NPO法人大人の学校〈埼玉〉、2019年3月24日)
- 48) 市民公開講演会(主催：横浜市緑区、2019年4月13日)
- 49) アースディトークイベント講演(主催：アースディ東京、2019年4月20日)
- 50) 公開講演会(主催：神奈川県保険医協会、2019年4月21日)
- 51) 市民向け講演会(主催：2019 アースデー調布実行委員会、2019年5月11日)
- 52) 大学生向け講演会（主催：東京経済大学、2019年5月18日）
- 53) 講演会（主催：環境監査研究会、2019年5月19日）
- 54) 講演会(主催：第92回日本産業衛生学会運営事務局、2019年5月25日)
- 55) 市民向け講演会(主催：ちょうふ環境市民会議・西部公民館高齢者学級チャレンジクラブ未来、2019年5月30日)
- 56) 講演会（主催：3R全国ネットワーク、2019年6月1日）
- 57) 講演会（主催：NHK、2019年6月1日）
- 58) 市民版環境白書「グリーン・ウォッチ」発行シンポジウム講演(主催：グリーン連合、2019年6月2日)
- 59) 講演会（主催：サーモユーズフォーラム、2019年6月7日）
- 60) 市民向け講演会(主催：川越市、2019年6月22日)
- 61) 講演会(主催：東都生協、2019年6月29日)
- 62) えひめ環境大学講座(主催：愛媛県・愛媛大学、2019年7月6日)
- 63) 小学生・中学生向け講演会（主催：千葉県一宮市、2019年7月11日）
- 64) 講演会(主催：市川房枝記念会、2019年7月13日)
- 65) 市民向け講演会(主催：羽村市消費生活センター運営委員会、2019年7月20日)
- 66) 高校生向け講演会(主催：都立農業高等学校、2019年7月22日)
- 67) 市民向け講演会（主催：静岡市、2019年8月3日）
- 68) 講演会（主催：(公財)埼玉県生態系保護協会、2019年8月31日）
- 69) 講演会(主催：稲城市市民部環境課、2019年9月1日)

- 70) JASIS×JEC マイクロプラセミナー講演（主催：日本分析機器工業会／日本環境化学会、2019年9月6日）
- 71) 高校生向け講演会（主催：千葉県立船橋高等学校、2019年9月27日）
- 72) 講演会(主催：福井県民生活協同組合、2019年9月28日)
- 73) 公開市民講座講演（主催：府中市ごみ減量推進課、2019年10月26日）
- 74) 大学生向け環境シンポジウム講演（主催：東京経済大学、2019年10月26日）
- 75) 講演会(主催：東京保険医協会、2019年11月1日)
- 76) 三鷹エコマルシェ講演会（主催：NPO法人みたか市民協同発電、2019年11月10日）
- 77) 研修講演（主催：独立行政法人国際協力機構（JAICA）、2019年11月18日）
- 78) 講演会(主催：公益財団法人 東京都環境公社、2019年11月20日)
- 79) 講演会(主催:立憲民主党、2019年12月4日)
- 80) 研修講演(主催：独立行政法人国際協力機構（JAICA）、2019年12月5日)
- 81) 高校生向け講演会（主催：都立小山台高等学校、2019年12月7日）
- 82) 講演会(主催：山形県環境保全協議会、2019年12月12日)
- 83) 講演会（主催：NPO法人・有害化学物質削減ネットワーク、2019年12月14日）
- 84) 講演会（主催：（一社）大日本水産会・国産水産物流通促進センター、2019年12月18日）
- 85) 講演会（主催：板橋エコみらいプロジェクト、2019年12月21日）
- 86) 講演会(主催：東京第二弁護士会、2019年12月23日)
- 87) 講演会（主催：グローバルコンタクト、2020年1月10日）
- 88) 講演会（主催：環境ジャーナリストの会・立教大学ESD研究所共催、2020年1月17日）
- 89) 映画完成講演会(主催：NPO アジア太平洋資料センター(PARC)、2020年1月28日)
- 90) シンポジウム基調講演（主催：日本野鳥の会、2020年2月23日）
- 91) 高校生向け講演会(主催：作新学院、2020年2月26日)
- 92) 市民向け講演会（主催：小金井市公民館、2020年10月3日、「プラスチックごみ」）
- 93) 講演会（主催：記者クラブ、2020年10月13日）
- 94) 講演会（オンライン）（主催：福井県民生活協同組合、2020年10月17日、「海洋汚染とプラスチック、プラスチックのごみの行方」）
- 95) 区民向け講演会（主催：横浜市都筑区、2020年10月24日、「SDGs環境フェア、マイクロプラスチックについて」）
- 96) 講演会（主催：スペースたんぼぼ、たんぼぼ舎、2020年10月30日）
- 97) 映画上映トークショー(主催：ユナイテッドピープル、2020年11月15日、「映画『プラスチックの海』についてコメント」)
- 98) 講演会（オンライン）（主催：日本弁護士連合会、2020年11月21日、「プラスチックを『燃やす』日本、減らす『欧州』」）
- 99) 区民向け講演会（主催：板橋区立リサイクルプラザ、2020年11月28日、「使い捨てプラスチックと海のプラスチック汚染」）
- 100) 講演会（オンライン）（主催：グリーンピース・ジャパン、2020年12月14日、「マイクロプラスチック汚染研究の最前線」）
- 101) 講演会（オンライン）（主催：RGAラインシュアランスカンパニー(再保険)、2020年12月15日）
- 102) 講演会（オンライン）(主催：立命館中学校・高等学校 グローバル教育推進部、2020年12月17日、「プラスチックごみ問題を考える」)
- 103) 講演会（主催：練馬区、2021年1月23日、「地球が危ない！マイクロプラスチックごみ～レジ袋有料化に見る環境破壊対策」）
- 104) 中高生向け講演会（主催：明星中学・高等学校、2021年2月24日、「マイクロプラスチックについて知る」）

- 105) 講演会(オンライン) (主催：3R全国ネット、2021年2月27日)
- 106) 講演会(オンライン) (主催：神奈川県消費者団体(生協)、2021年3月4日、「持続可能な社会と脱プラスチック」)
- 107) オンラインセミナー (主催：JICA、2021年3月5日「海洋廃棄物対策研修」における講師)
- 108) 講演会(対面中継⇒オンライン) (主催：東京都病院協会、2021年3月7日)
- 109) 講演会(オンライン) (主催：香川県、2021年3月13日、「海洋プラスチック汚染とプラごみ削減」)
- 110) 講演会 (主催：森林木材学会、日本木材学会、国土緑化推進機構、NPOオの木、2021年3月21日、「プラスチック依存社会からの脱却へ向けて」)
- 111) 講演会(オンライン) (主催：サンクトペテルブルク領事館、2021年3月24日、「日露地域交流環境会議『きれいな海』海洋プラスチックごみによる汚染の問題」)

【サブテーマ2】

なし

【サブテーマ3】

- 1) 北海道大学北方生物圏フィールド科学センター厚岸臨海実験所、ワールドクリーンアップデイイベント (2019年9月21日開催、参加者7名) にて成果紹介
- 2) 厚岸町海事記念館こどもクラブ (2020年10月10日、参加者13名) にて海岸のマイクロプラスチック観察会を開催
- 3) 長谷川貴章、オンライン、九州大学ウェビナー100「研究の最前線から学ぶマイクロプラスチック汚染の現状とこれからの環境科学」 (2021年3月12日開催)、発表題目「Trophic transfer of microplastics from mysids to fish greatly exceeds direct ingestion from the water column」
- 4) 綿貫豊 2020発表題目「海鳥から見た海洋プラスチック」マリンラーニングプロジェクト・オンライン公開講義 変貌する世界の中で海の魅力や課題を考える—海と日本PROJECT

(4) マスコミ等への公表・報道等>

【サブテーマ1】

【テレビ・ラジオ】

- 1) NHKニュースウオッチ9 (2018年5月24日) 「マイクロプラスチックの汚染 日本の海に警鐘鳴らす研究者も」
- 2) NHK BS-1 国際報道(2018年6月14日) 「マイクロプラスチック汚染」
- 3) J-WAVE 「JAM THE WORLD」 (2018年6月21日) 「マイクロプラスチックとは何か？」
- 4) TBSラジオ「荻上チキ・Session-22」 (2018年6月21日) マイクロプラスチック問題についてゲスト出演しコメント
- 5) テレビ東京 「ゆうがたサテライト」 (2018年6月26日) 「マイクロプラスチック汚染」
- 6) J-WAVE 「Morning Radio」 (2018年7月2日) 「マイクロプラスチック問題にインサイト」についてゲスト出演し解説およびコメント
- 7) NHKラジオ第一「マイあさラジオ」 「マイクロプラスチックと日本の取り組み」について
- 8) フジテレビ「めざましテレビ」 (2018年7月11日) 「マイクロプラスチック汚染」
- 9) 日本テレビ「news every.」 (2018年7月12日) マイクロプラスチック研究などについて紹介
- 10) JFN「OH HAPPY MORNING」 (2018年7月24日) プラスチック製ストローを廃止する計画について7分程解説
- 11) BSジャパン「NIKKEI プラス10」 (2018年7月25日) 「マイクロプラスチック汚染の現状と課題」について15分ほど解説

- 12) TOKYO FM「BLUE OCEAN」(2018年7月25日)「プラスチック海洋汚染(身近なストローを通して)」解説
- 13) TBSサンデーモーニング(2018年7月29日)「海洋プラスチック憲章について」コメント
- 14) J-WAVE JAM THE WORLD(2018年8月20日～8月23日、3日間)「海洋プラスチック憲章やプラスチックストローなど」についてコメント
- 15) NHK総合「首都圏ネットワーク」(2018年8月21日)プラスチック製のストロー廃止の動きについてストローが生態系に与えている影響や今後必要な対策についてコメント
- 16) 日本テレビ「news every.」(2018年8月28日)東京湾で見つかったムール貝などの事例を元にマイクロプラスチックが生態系に与えている影響や必要な対策について解説及び研究室の紹介
- 17) テレビ朝日「モーニングショー」(2018年8月29日)廃プラスチック・マイクロプラスチックの問題についてゲスト出演し約30分解説およびコメント
- 18) BS11「報道ライブインサイドOUT」(2018年8月30日)「海を殺す”プラスチック汚染問題」についてゲスト出演し解説およびコメント
- 19) TOKYO FM「TIMELINE」(2018年8月30日)マイクロプラスチック汚染についてゲスト出演し解説およびコメント
- 20) NHK WORLD NEWSROOM TOKYO(2018年9月10日)マイクロプラスチック汚染と対策についてゲスト出演し解説およびコメント
- 21) NHKニュース「おはよう日本」(2018年10月22日)レジ袋の有料化についてコメント
- 22) NHK「あさイチ」(2018年12月12日)「ゴミの悩み&疑問 スッキリ解決します!」コーナーで取材協力
- 23) テレビ東京「ガイアの夜明け」(2019年1月15日)「"あなたのゴミ"その行方～迫る!プラスチック危機～」テーマで研究室内で解説およびコメント
- 24) NHK BS1(2019年4月14日)「“脱プラスチック”への挑戦～持続可能な地球をめざして～」
- 25) ハフポスト日本版ネット番組「ハフトーク(NewsX)」(2019年5月16日)「日本はプラスチック廃棄物の処理を海外に押し付けている 私たちが今できることについて」
- 26) BS日テレ「深層NEWS」(2019年6月20日)「待ったなし!世界の大問題 プラスチックごみ どう減らす?」
- 27) BS11「報道ライブ インサイドOUT」(2019年7月15日)「海の日に問う 日本の不都合な真実 海洋ごみ問題」
- 28) 文化放送「田村淳のNews CLUB」(2019年8月3日)「G20でも話題になったプラスチック問題について解説」
- 29) テレビ朝日「ビートたけしのTVタックル」(2019年8月18日)「日本の水際最前線SP」
- 30) テレビ朝日「東京サイト」(2019年11月25日)「プラスチックゴミ問題の現状やマイクロプラスチックについての研究内容等が紹介」
- 31) テレビ朝日「東京サイト」(2019年11月29日)「大学全体としてプラスチック削減を目指す東京農工大学の取り組みの紹介」
- 32) TBSテレビ「JNN NEWS」(2020年1月10日)「大気中のマイクロプラスチック」関連して、マイクロプラスチックの健康被害」について解説
- 33) FMヨコハマ「E-ne! ～good for you～」(2020年5月18日～5月21日、「“守ろう!私たちの綺麗な海”“守ろう!私たちの綺麗な海”キャンペーンの一つとして、神奈川県海岸の現状、そして海洋汚染について紹介」)
- 34) TOKYO FM「サステナ*デイズ」(2020年6月4日、「プラスチックごみ問題についてゲスト出演で解説」)
- 35) TOKYO FM「サステナ*デイズ」(2020年7月2日、「プラスチックごみ問題についてゲスト出演で解説」)

- 36) BS深層NEWS(日本テレビ) (2020年6月26日、「プラスチックごみ問題の現状と今後の課題についてゲスト出演で解説」)
- 37) TOKYOFM「サステナ*デイズ」(2020年7月2日、「プラスチック・フリーの中にさがすSDGsのテーマについてゲスト出演で解説」)
- 38) NHK Eテレ「高校講座・家庭総合」(2020年10月8日、「テーマ：第22回環境のためにできることについてゲスト出演し解説」)
- 39) TBSラジオ「アシタノカレッジ」(2020年11月11日、「海洋プラスチックの課題・海洋で起きているプラスチックゴミを知る！のテーマでゲスト出演し解説」)
- 40) NHK (2021年2月28日、「NHKスペシャル 2030未来への分岐点(3)・プラスチック汚染の脅威 大量消費社会の限界について取材協力および解説」)
- 41) NHK (2021年2月28日、「NHKBS1スペシャル 2030未来への分岐点(3)・プラスチック汚染の脅威 大量消費社会の限界について取材協力および解説」)

【新聞・雑誌等】

- 1) 読売新聞(夕刊) (2018年5月26日、「プラごみ削減戦略・レジ袋・食品トレー使用抑制」)
- 2) 朝日小学生新聞(2018年6月3日、1頁、「プラスチックごみを減らそう 海に流れこみ世界で規制」)
- 3) ナショナルジオグラフィックweb版(2018年6月4日～6月9日、「第1回 忍び寄るマイクロプラスチック汚染の真実」「第2回 2050年には海のプラスチックの量が魚を超える!?!」「第3回 皇居の桜田濠でもマイクロプラスチック汚染」「第4回 マイクロプラスチックの健康への影響は?」「第5回 日本でもレジ袋の規制に踏み出すべき時」「第6回 1億種以上の化学物質と人類の未来について」)
- 4) 東京新聞(夕刊) (2018年6月18日、「プラスチック粒子・日本の貝にも」)
- 5) 毎日新聞(夕刊) (2018年6月21日、8頁、「微小プラ 貝にも大量蓄積・東京湾や沖縄・座間味島」)
- 6) 日本経済新聞(夕刊) (2018年7月2日、2頁、「プラスチックEU規制案・海洋ごみ、日本の汚染深刻」)
- 7) 朝日新聞(夕刊) (2018年7月31日、7頁、「極小の脅威 傷つく海」)
- 8) 北海道新聞(2018年8月1日、7頁、「有害化学物質の運び屋に 製造抑制と回収の両輪で」)
- 9) しんぶん 赤旗(2018年8月3日～8月5日、14頁、「海洋プラスチックどうする?上 G7憲章期限・数値盛り込む」「中 大量廃棄 対策遅い日本」「下 経済効率優先の変換を」)
- 10) 毎日小学生新聞 (2018年8月22日、4頁、「海を襲うプラスチックごみ」)
- 11) 毎日新聞(夕刊) (2018年8月25日、9頁、「プラスチックごみ海洋汚染・対策遅れ目立つ日本・欧州劣らぬ再利用」)
- 19) 地球のこども(日本環境教育フォーラムニュースター) (2018.9.10号、「マイクロプラスチック汚染と使い捨てプラスチックの削減」)
- 20) 世界(岩波書店) (2018.9号、224-234頁(231頁)、プラスチック社会からの転換・中国の廃プラ輸入禁止と海洋憲章が日本に突きつけるもの)
- 21) グローバルネット(2018.Sept.号、10-13頁、「海に漂うプラスチックが起こす問題」)
- 22) 毎日新聞(2018年9月27日、10頁「プラスチックは警告する」)
- 23) クレヨンハウス「いいね」(2018.10月号増刊号、「すぐにはじめてください。さよならプラスチック生活(ライフ)」)
- 24) ELCO RADARエルコレダー (10月Vol.76号、1-7頁、巻頭インタビュー「海を漂うマイクロプラスチックが魚より多くなる日」)
- 25) 山陽新聞(2018年10月28日、194頁、「美しい瀬戸内海を守るために」)
- 26) 食べもの通信(2018年11月号、8-11頁、「生命をおびやかすマイクロプラスチック・脱プラス

チックで持続可能な社会を

- 27) 福島民友（2018年11月3日、1-2頁、「静かに海を破壊 日本世界2位の廃棄量」）
- 28) 女性セブン(2018年11月15日、34-35頁、「人体からマイクロプラスチック」)
- 29) 新潟日報（2018年11月27日、24頁、「海鳥の汚染、人間に警鐘」、
26頁、「粟島の海鳥からも有害物質」）
- 30) PRESIDENT WOMAN（2018November号、7頁、Woman New TOPIC
「見えないプラごみが海を汚染。海外では規制の動き広がる」）
- 31) 読売新聞（2018年12月2日、「プラ利用7割は焼却 ・温暖化が進行懸念」）
- 32) 環境新聞（2018年12月5日、「海ごみ対策 焼却依存の政策転換を」）
- 33) 読売KODOMO新聞（2018年12月13日、1-2頁、「プラごみ漂う海」）
- 34) 都市問題（2019年1月1日、巻頭言、「海洋プラスチック汚染とその対策」）
- 35) 日経Kids+（2019年3月号、75-83頁、「親子で知識を深めよう「マイクロプラスチック」の問
題を考える」）
- 36) 赤ちゃんとママ（2019年3月号、43頁、「社会のコトバ マイクロプラスチック「①なぜ問題
に？」2019年4月号、43頁、「社会のコトバ マイクロプラスチック「②その影響、対策
は？」
- 37) くにたち公民館だより（2019年3月5日、プラスチックの行方～家庭から海洋へ～）
- 38) 毎日新聞（2019年3月14日、20頁、「使い捨て消費減らそう 千代田でセミナー」）
- 39) しんぶん赤旗（2019年3月24日、16頁「海洋プラスチック ごみが命を脅かす」）
- 40) 婦人之友（2019年4月号、44-56頁、「座談会・世界が注目 プラごみ汚染どう解決？」）
- 41) 婦人之友(2019年4月号、44-56頁、「座談会 世界が注目 プラごみ汚染どう解決？」）
- 42) 赤ちゃんとママ（2019年4月号、43頁、「マイクロプラスチック その影響、対策は？」）
- 43) 日経新聞（夕刊）（2019年4月13日、7頁、「なぜプラスチックは山や海に残るの？」）
- 44) 読売新聞（2019年5月10日、「プラごみ輸出停止へ」）
- 45) プラスチックフリー生活（NHK出版）（2019年5月発行、286-294頁、日本語版解説寄稿、「プ
ラスチック・フリーで持続可能な社会を」）
- 46) Vaneヴェイン vol.04（2019 May、32-33頁、「海のプラスチック汚染と持続可能性」）
- 47) 週間金曜日（2019年5月24日、40-42頁、「G20で披露されるプラスチック資源循環戦略に早く
も疑問符」）
- 48) Milk & Honey #3 Special Edition(2019年4月27日、114頁、「プラスチックフリーライフが地球を
救う」）
- 49) 建設工業新聞（2019年6月5日、5頁、「海洋プラスチックごみ問題 脱プラに向けた仕組みづ
くり急務 EU加盟国や中国に後れを取る日本」）
- 50) 茨城新聞（2019年6月12日、24頁、「微小プラごみ、貝に蓄積」「体内運ぶ経路に」）
- 51) 上毛新聞（2019年6月12日、3頁、「微小プラ有害物質蓄積 貝の体内で確認」）
- 52) 河北新報（2019年6月12日、3頁、「微小プラの汚染 貝に蓄積 人間含め影響調査を」）
- 53) 信濃毎日新聞 2019年6月12日、1頁、「有害物質 微小プラから貝へ 体内に取り込む経路確
認」）
- 54) 山形新聞（2019年6月12日、23頁、「微小プラ汚染 貝に蓄積 生物への影響懸念」）
- 55) 神奈川新聞（2019年6月12日、18頁、「貝体内に蓄積の有害物質 微小プラごみ経路に」）
- 56) しんぶん赤旗（2019年6月12日、14頁、「プラごみ汚染 沖縄離島生物も」）
- 57) 北海道新聞(夕刊)（2019年6月12日、8頁、「貝、微小プラで汚染 有害物質、体内に蓄積」）
- 58) 週刊朝日（2019年6月28日、118-121頁、「増え続けるマイクロプラスチックの恐怖」）
- 59) 熊本日日新聞（2019年6月12日、「海の微小プラスチックごみ 有害物質 貝に蓄積」）
- 60) 東京新聞（2019年6月23日、1頁・8頁、「マイクロプラスチック 命の海が今はごみ終着点
に」）

- 61) 静岡新聞（2019年8月2日、23頁、「指標 使い捨て削減が肝要だ プラスチックごみ対策」）
- 62) 中國新聞（2019年8月4日、6頁、「プラスチックごみ対策 使い捨て削減 国が先導せよ」）
- 63) 日刊スポーツ（2019年8月10日、26頁、「東京農工大 プラ学内ゼロ活動」）
- 64) 婦人之友（2019年9、52-57頁、「始めようプラスチックフリーライフ 海辺のごみ、拾っていただきます(林和花奈・小4記事内)」）
- 65) 前衛（2019年9月号、126-137頁、「今こそプラスチック削減を 問われる排出企業の責任」）
- 66) 天然生活（2019年10月号、99-100頁、「プラスチックを減らす暮らす 知ってますかマイクロプラスチックのこと」）
- 67) Newton（ニュートン）（2019年10月号、10-11頁、「海を汚染するマイクロプラスチック 2050年の海では、魚よりもプラスチックのほうが多くなる？」）
- 68) 日刊スポーツ（2019年8月29日～8月31日、社会面、①2050年お魚の重さより・海にプカプカ大漁プラスチック ②回収できないマイクロプラスチック ③マイボトル マイバッグを持ち歩こう）
- 69) MEDICAL HERB（2019年Autumn号、Special Interview第6回 「地球環境を考える NATURE OF FUTURE REPORT」）
- 70) 食べもの通信（2019年10月号、8-11頁、「特集マイクロプラスチック汚染 食物連鎖を通して生態系全体に広がるプラスチック汚染」）
- 71) しんぶん赤旗（2019年10月21日、科学面、「プラスチック 海鳥のSOS 食べたものにも添加剤残留」）
- 72) 婦人之友（2019年11月号、76頁、「農工大プラスチック削減5Rキャンパス活動宣言」）
- 73) ゴルフダイジェスト（2019年12月3日、56-59頁、「ゴルファーにもできることがある 目指そう脱プラスチック」）
- 74) Partner（2019年12月号、9頁、「脱”プラスチック”の現在」）
- 75) Newton（ニュートン）（2020年1月号、102-109頁、「プラスチックごみは何が問題なのか？ 有害物質の運び屋であるマイクロプラスチックが世界の海をただよっている」）
- 76) 女性のひろば（日本共産党中央委員会）（2020年1月号、54-58頁、「プラスチック汚染とは何か 私たちの生活から海まで」）
- 77) クーヨン（2020年1月号、48頁、「高田秀重さんと海を渡りカーソン像に会ったエコバッグ」）
- 78) 東京新聞（2020年1月4日、15頁、「特集「環境視点・下」合成繊維のくずが海汚す」）
- 79) 神戸新聞（2020年1月12日、3頁、「ニュース解く説く 教えて！先生 ペットボトル規制が鍵」）
- 80) BUIL CARE(HITACHI)（WINTER 2020、2-7頁、「現実を知り、行動を起こす みんなでつくろう 脱・プラスチック社会」）
- 81) しんぶん赤旗(2020年1月31日、14頁、「プラごみの添加剤 食べた海鳥に移行」）
- 82) 朝日新聞（2020年1月31日、「プラ由来化学物質 海鳥の体内に蓄積 脂肪・肝臓から高濃度検出」）
- 83) 子どもの科学(誠文堂新光社)（2020年3月号、8-13頁、「追跡！ゴミのゆくえ マイクロプラスチックの本当の問題とは」）
- 84) 産経新聞（2020年2月23日、9頁、「海鳥にプラごみ汚染蓄積 農工大、実験で確認」）
- 85) しんぶん赤旗 2020年2月25日～2月26日「国内プラごみ処理問題（上）焼却70%大量CO2・（下）禁輸受け手詰まり」）
- 86) クレヨンハウス絵本監修（2020年4月10日、「プラスチックモンスターをやっつけよう！きみが地球のためにできること」）
- 87) しんぶん赤旗（2020年4月8日、12頁、「海洋マイクロプラスチック 調査・研究と削減加速」）

日本学術会議が提言」)

- 88) 中日新聞 (2020年4月2日、12頁、「微小プラ発生源なの? エコで普及のアクリルたわし」)
- 89) しんぶん赤旗 (2020年4月18日、9頁、「あふれるプラゴミ減らそう 大作戦」)
- 90) 環境新聞 (2020年4月22日、4頁、「自然循環"プラスチック資源の適正環境を目指して 素材の代替化を進め熱回収に依存しない体制確立を"」)
- 91) 環境新聞 (2020年4月29日、6頁、「『プラスチックモンスターをやっつけよう!』子供たちにプラスチック問題を分かりやすく伝える」)
- 92) クーヨン(クレヨンハウス) (2020年5月号、24-27頁、「新刊『プラスチックモンスターをやっつけよう!』をご紹介します!」)
- 93) 日本経済新聞 (2020年5月2日、11頁、「飲食店の料理 廃棄前に救出 日常でできるエコを見直してみた」)
- 94) しんぶん赤旗 (2020年5月10日、4頁、「海洋マイクロプラスチックって?」)
- 95) 毎日が発見 (2020年5月号、96頁-97頁、「世界中の海に漂うマイクロプラスチックが与える影響 レジ袋有料化にはどんな問題があるのでしょうか?」)
- 96) ひさかたチャイルド 絵本 日本語版監修 (2020年5月1日、「プラスチック星にはなりたくない」)
- 97) 熊本日日新聞 (2020年5月17日、17頁、「買わずもらわず プラごみ減」)
- 98) 南日本新聞 (2020年5月18日、11頁、「プラごみ減 自宅で挑戦『便利さより20年後考えて』」)
- 99) 高知新聞 (2020年5月20日、12頁、「家庭でプラごみ減に挑戦 「便利さより未来の環境を」」)
- 100) 伊勢新聞 (2020年5月21日、6頁、「家でプラごみ減らし挑戦 便利より20年後考えて」)
- 101) 長崎新聞 (2020年5月22日、15頁、「プラごみ減 家で挑戦を 20年後の環境考えて」)
- 102) 秋田さきがけ (2020年5月27日、13頁、「家でプラごみ減らし挑戦 便利さより20年後考えて」)
- 103) 信濃毎日新聞 (2020年5月28日、15頁、「プラごみ減らし方考えよう 海などの汚染問題 人間にも影響」)
- 104) 四國新聞 (2020年5月28日、11頁、「家でプラごみ減らし挑戦 便利より20年後考えて」)
- 105) 茨城新聞 (2020年5月30日、19頁、「プラスチックごみ 便利さより20年後配慮」)
- 106) 生活と自治(生活クラブ) (2020年6月号、8-9頁「プラスチック汚染と日本の今」)
- 107) 婦人之友 (2020年7月号、54-61頁、「化学汚染のない循環型社会を」2019年秋、目白の自由学園明日館での全国友の会での講演内容掲載)
- 108) ネイチャー生活倶楽部 (2020年7月1日、活動報告内で専門家としてメッセージ「皆さん、プラスチックの使用を減らしましょう」)
- 109) 読売中高生新聞 (2020年7月3日、3頁、「ごみ問題考えるきっかけに」)
- 110) 福井新聞 (2020年7月2日、7頁、「レジ袋有料化 問題のプラ製品 他にも」)
- 111) 南日本新聞 (2020年7月2日、4頁、「レジ袋有料化 プラ削減の効果疑問」)
- 112) 長崎新聞 (2020年7月2日、3頁、「レジ袋有料化 使い捨てプラ削減 ほんの一步」)
- 113) 京都新聞 (2020年7月2日、5頁、「レジ袋有料化こう考える 使い捨てプラ削減へ一步」)
- 114) 東典日報 (2020年7月2日、7頁、「レジ袋有料化 海汚すプラ製品 他にも」)
- 115) 日本海新聞 (2020年7月3日、4頁、「視標・レジ袋有料化 使い捨てプラ削減の第一歩」)
- 116) 高知新聞 (2020年7月5日、8頁、「レジ袋有料化 プラ削減へほんの第一歩」)
- 117) 山陰中央新法 (2020年7月5日、5頁、「レジ袋有料化 使い捨てプラ削減の第一歩」)
- 118) 福島新聞 (2020年7月5日、6頁、「レジ袋有料化 プラごみ削減の第一歩」)
- 119) 埼玉新聞 (2020年7月6日、2頁、「レジ袋有料化 プラ削減の第一歩に」)

- 120) 中部経済新聞 2020年7月6日、 5頁、「レジ袋有料化 使い捨てプラ削減の第一歩 問題の製品は他にも」)
- 121) 茨城新聞 (2020年7月7日、8頁、「レジ袋有料化 使い捨てプラ削減へ第一歩」)
- 122) 上毛新聞 (2020年7月7日、6頁、「プラ削減の第一歩 レジ袋有料化 問題の製品は他にも」)
- 123) 佐賀新聞 (2020年7月7日、4頁、「レジ袋有料化 使い捨てプラ削減の第一歩」)
- 124) 中国新聞 (2020年7月8日、5頁、「レジ袋有料化 使い捨てプラ 他にも減らそう」)
- 125) 信濃毎日新聞 (2020年7月9日、5頁、「削減すべきはレジ袋だけではない」)
- 126) 北日本新聞 (2020年7月10日、23頁、「レジ袋有料化 プラ削減へほんの一步」)
- 127) 岐阜新聞 (2020年7月12日、4頁、「レジ袋有料化 使い捨てプラ削減へ」)
- 128) 北海道新聞 (2020年7月6日、11頁、「化学繊維 海洋汚染に影響」)
- 129) 週刊新潮 (2020年7月16日、39-40頁、「小泉進次郎エコバッグも虚しい『プラごみ』対策、レジ袋有料化についてコメント」)
- 130) 中日こどもWEEKLYウイークリー (2020年7月18日、1頁、6-7頁、「プラごみ減らせる？レジ袋を有料に『本当に必要？』よく考えて」)
- 131) 日刊スポーツ (2020年7月19日、28頁、「減らそうプラごみ レジ有料化は第1歩」)
- 132) クレヨンハウス「いいね」 (2020年8月号増刊、26-27頁、「米国から届いた感染症対策レポート、免疫力の低下をまねく食品と放送の化学物質ページ監修とコメント『食品パッケージこそ脱プラを！』」)
- 133) HEARTfulはーとふる (NPO:明るい社会づくり運動) (2020年夏号、8-9頁、「レジ有料化は使い捨てプラスチック削減の第一歩」)
- 134) Frau(講談社) (2020年8月号、Boon in Book(中綴じ)、「LESSON BOOK FOR PLASTIC LESS LIFE "プラスチックレス生活"の教科書」監修)
- 135) 中国新聞 (2020年8月31日、10頁、「脱プラ持ち込みOKの店も 法はクリア 衛生面に課題」)
- 136) 讀賣新聞 (2020年9月1日、6頁、「街中でマイボトル無料給水」)
- 137) しんぶん赤旗 (2020年9月3日、3頁、「重症化の背景にはプラスチックを通じた化学物質汚染も」)
- 138) 朝日新聞(夕刊) (2020年9月3日、4頁、「マイクロプラ家事でも出ます 天然素材を選ぶなど見直しや工夫を」)
- 139) The Japan News(The Yomiuri Shinbun) (2020年9月8日、3頁、「Stores, cafes offer free water refills to reduce plastic waste」)
- 140) 文化連情報(日本文化厚生農業組合) (2020年10月号、28-32頁、「マイクロプラスチックと私たちの健康」)
- 141) 食べもの通信 (2020年11月号、16-17頁、「レジ袋有料化は第一歩 プラゴミ削減に本腰を」)
- 142) 本の花束(生活クラブ) (2020年12月3日、4頁、「『プラスチックモンスターをやっつけよう』紹介、プラスチックを減らして健康を守ろう」)
- 143) NIKKEI BUSINESS DAILY日経産業新聞 (2020年12月2日、7頁、「プラごみ、途上国と削減を」)
- 144) 中部経済新聞 (2020年9月7日-10日【連載】、15頁、①「プラごみ汚染に警鐘/使い捨て減らす必要」) ②「"現場百篇"父の影響/卒論研究がネイチャーに」 ③「『隠れモンスター』に懸念/有害物質の"運び屋"」 ④「暮らし見直すチャンス」/少しの工夫で解決」)
- 145) 熊本日日新聞 (2020年9月18日・9月25日・10月2日【連載】、14頁・10頁・13頁、(①「プラごみ海に流出に警鐘」 ②「"現場百篇"父の影響」 ③「海の微小プラ 人間に戻る」)

- 146) 神戸新聞（2020年9月12日・9月19日・9月26日・10月3日【連載】、19頁、17頁、25頁、21頁、（①「海のプラごみいち早く警鐘」②「”現場百”父の影響」③「海に漂う『隠れモンスター』」④「世界の海のペレット追跡」）
- 147) 京都新聞(夕刊)（2020年9月30日、3頁、「プラ海洋汚染 あなたの口に『使い捨て減らすしか』」
- 148) 河北新報（2020年10月17日・10月24日・10月31日・11月7日【連載】、「①海のプラごみに警鐘②「川の水質検査に夢中」③隠れモンスター追う④暮らし見直す好機に」）
- 149) 信濃毎日新聞(夕刊)（2020年10月22日、3頁、「海のプラごみ汚染に警鐘『使い捨て』減らす必要 漂う『隠れモンスター』暮らし見直すチャンス」）
- 150) 中国新聞(セクト)（2020年10月25日・11月8日・11月11日・11月15日【連載】、11頁、①「海のプラごみ世界で調査」②「マイクロプラ 危険性探る」③「卒論研究 英科学誌に載る」④「脱プラ 自らも生活で実践」）
- 151) 日経産業新聞 (NIKKEI BUSINESS DAILY) (2020年12月2日、7頁、「プラごみ、途上国と削減を 日本『排出ゼロ』に不可欠」)
- 152) 週刊金曜日（2020年12月11日、40-41頁、「有害化学物質を世界に広げる海洋プラスチック」）
- 153) 読売新聞（2020年12月17日、12頁、「給水器整備『脱プラ』進む」）
- 154) 映画『プラスチックの海』公式サイト（2020年12月20日、へのレビューコメント
- 155) 岩手日報（2020年12月30日、7頁、「新年からレジ袋提供禁止 京都・亀岡市の条例 プラごみ減へ全国初」）
- 156) 毎日新聞（2021年1月26日、15頁、「健康脅かすプラ製品の添加剤」）
- 157) 和食のだしは海のめぐみ3煮干（偕成社）（2021年2月、36-37頁、「イワシにせまる危機 カタクチイワシの体内にマイクロプラスチックが！」）
- 158) Yahooニュース配信、2021年2月5日、「魚類は餌を通してマイクロプラスチックを大量に取り込んでいた 北大調査で判明」、
<https://news.yahoo.co.jp/articles/f42188451c4c7a23ef7f468244fcf90d62693c3b>
- 159) 世界(岩波書店)（2021年3月号、98-106頁、「プラスチック依存社会からの脱却」）
- 160) シャボン玉友の会だより（2021年1月1日、4-5頁、「地球や大地に化学物質の傷跡を残さない選択、行動と生き方を」）
- 161) 東京新聞（2021年3月24日、26-27頁、「コロナ禍の今 プラごみは 巣ごもりで家庭発は増加」
- 162) 日刊ゲンダイ（2021年3月26日、10頁、「テークアウト全盛の新生活は人類の危機」）
- 163) りそなーれ（りそな総合研究所）（2021年4月号、26-27頁、「プラスチックを減らしていくことが、私たち自身の身を守ることになるんです。」）

【サブテーマ2】

- 1) NHKBS1スペシャルシリーズ“2030 未来への分岐点” 第3回「プラスチック汚染の驚異 大量消費社会の限界（令和3年5月29日、午後9時から放送）

【サブテーマ3】

- 1) 朝日新聞（2020年1月31日、全国版、2頁、「プラ由来化学物質、海鳥の体内に蓄積脂肪・肝臓から高濃度検出」）
- 2) Yahooニュース配信、2021年2月5日、「魚類は餌を通してマイクロプラスチックを大量に取り込んでいた 北大調査で判明」、
<https://news.yahoo.co.jp/articles/f42188451c4c7a23ef7f468244fcf90d62693c3b>
- 3) NHKスペシャル:2030 未来への分岐点 (3)「プラスチック汚染の脅威 大量消費社会の限界」（2021年2月28日、食物連鎖を通じたマイクロプラスチック添加剤の垂直移行の成果について10分ほど紹介）

(5) 本研究費の研究成果による受賞**【サブテーマ1】**

- 1) 2019年8月 日本有機地球化学会 学会賞
「水・堆積物環境における有機汚染物質の動態に関する研究」(高田秀重)
- 2) 産経児童出版文化賞JR賞「プラスチックモンスターをやっつけよう!きみが地球のためにできること」(高田秀重監修、クリハラタカシ絵、クレヨンハウス編集部編)

【サブテーマ2】

なし

【サブテーマ3】

- 1) 修士論文発表会優秀賞、北海道大学大学院環境科学院生物圏科学専攻、2019年2月14日、太田百音
- 2) Best Student Paper Award, Poster presentation、PSG Annual Meeting、Feb 2020, Portland, USA、Sena N, Shoji A, Nishizawa B, Okado J, Yoda K, Watanuki Y: Testing the attraction of two Procellariiform seabirds to dimethyl sulfide
- 3) 修士論文発表会最優秀賞、北海道大学大学院環境科学院生物圏科学専攻、2021年2月17日、長谷川貴章

IV. 英文Abstract

Evaluation of Impacts of Microplastics and Associated Chemicals on Marine Ecosystem

Principal Investigator: Hideshige TAKADA

Institution: Tokyo University of Agriculture and Technology, Fuchu, Tokyo, JAPAN

Tel: 042-367-5825 / Fax: 042-367-5825

E-mail: shige@cc.tuat.ac.jp

Cooperated by: Kyushu University and Hokkaido University

[Abstract]

Key Words: Microplastics, Particle toxicity, Persistent Organic Pollutants (POPs), Additives, Endocrine disrupting chemicals, Fish, Invertebrate, Gene expression, Seabird, Vector effect

The present study investigated the uptake and excretion of microplastics (MPs) by aquatic organisms, their particle toxicity, distribution and characteristics of hazardous chemicals in MPs in marine environments. Also the exposure and transfer of the chemicals from ingested MPs to biota and their effects were studied. Lower to higher trophic organisms were targeted. Major findings are as follows. Medaka fish (*Oryzias latipes*) and *Artemia* were selected as a model of fish and invertebrate, respectively. When medaka fish was exposed to MPs (2, 20, 200 μm), MPs (except 2 μm MP) were rapidly accumulated in and then eliminated from bodies. Its bioconcentration factor was estimated to be less than $\sim 10^3$. Also, no biomagnification was observed in the medaka fish fed with MP-accumulated *Artemia*. From the results of MPs exposure studies, no effect was observed in survival and reproduction of medaka and artemia, while some gene expression levels were changed in the medaka intestine and artemia whole body. Ubiquitous occurrence of hydrophobic chemicals such as polychlorinated biphenyls and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) as well as sporadic occurrence of high concentrations of additives such as brominated flame retardants and benzotriazole UV-stabilizers in neuston and beaches MPs were revealed. Their transfer to biota and the effects were investigated. Medaka was exposed with anthracene and/or MP. As a result, PE-MPs may act as a vector to concentrate and transfer anthracene to medaka upon ingestion, but the presence of these particles may have limited adverse effects on fish under the co-exposure systems of the type used in this study. Mixture exposure of MP and antidepressant drug diazepam might decrease schooling behavior. It was revealed that benthic invertebrates that ingested MPs accumulated chemical compounds such as PCBs and additives associated with MPs, and that they were transferred to benthic fish through the consumption of prey invertebrates that consumed MPs. Another experiment was conducted that fed plastic to chicks of streaked shearwater demonstrated that plastic ingestion has some negative impacts on its organ weight, and that plastic additives were transferred to the tissue of birds. Analysis using a next-generation sequencer revealed different gene expression patterns in the exposed and control groups of the seabird, especially in the thyroid hormone system and bile acid synthesis system.