

令和 5 年 6 月 11 日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K12372

研究課題名（和文）陸域と沿岸域におけるマイクロプラスチック発生源の高精度解析

研究課題名（英文）High accuracy analysis of microplastic sources in the terrestrial and coastal environments

研究代表者

中田 晴彦（Nakata, Haruhiko）

熊本大学・大学院先端科学研究部（理）・准教授

研究者番号：60311875

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、道路塵埃中マイクロプラスチック（MP）に含まれる添加剤をトレーサーとして、その発生源を高精度に判定可能な手法を開発した。100種類以上の市販プラ製品、道路塵埃、雨水、河川底質中をそれぞれ採取・分析し、各組成を比較した結果、道路塵埃中MPは赤色のPMMA製が多く、フタル酸ジシクロヘキシルやフタル酸ジ-n-オクチル等が検出された。これらは赤色の路面塗料からも検出されており、塵埃中PMMA製MPが塗料由来である可能性が示された。また、MP中有機添加物は点字ブロックや反射板のそれと類似していた。本研究は、プラ製品中の有機・無機系添加物がMP発生源のトレーサーとして有用であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

MPの環境負荷を減らすには、発生源を高精度に把握することが重要であるが、市販プラ製品は種類が多く、5 mm以下に微小化した「破片」の元の姿を予測する手がかりは無いに等しい。環境試料の微量分析が専門の研究代表者は、微小化したMPでも含有添加剤を測定可能な技術を有しており、それを活かそうと考えた。また、プラ製品は用途に応じて添加剤の種類が異なる点にも着目し、添加剤をトレーサーにしたマイクロプラスチックの起源推定手法の開発を試み、一定の成功を収めた。添加剤には有害性が懸念されるものも多く、本研究は「毒を持って毒を制する」形で展開した点に、独創性の高さや学術的意義が含まれているといえよう。

研究成果の概要（英文）：In this study, we established the high-accuracy determination method of microplastic (MP) source based on specific additive profiles in MPs in road dusts as chemical tracers. More than 100 plastic products, road dust, stormwater, and river sediments were analyzed for polymer types and organic/ inorganic additives, and their composition were statistically compared.

As results, more than 150 organic and inorganic elements were identified in plastic products. PMMA, PVC, and EVA were dominant polymers in MPs in road dusts. The red-colored MPs in road dusts contained several phthalates, and similar profile were identified in red paint on the road. This implies that PMMA MPs in road dust are originated from road paint. Also, the organic additive profiles in MPs in road dusts were statistically similar to those in braille block, reflector, and road marking. This study strongly suggests that plastic additives are suitable chemical tracers of MP sources in road dust.

研究分野：環境化学

キーワード：マイクロプラスチック 道路塵埃 プラスチック添加剤 発生源解析

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

プラスチックごみ(プラごみ)による汚染とその負荷削減に社会的関心が高まっている。とくに、プラごみが環境中で劣化・細粒化して生じるマイクロプラスチック (MP) の生態系への悪影響が懸念されている。MP 発生源の約 8 割は陸域にあるとされ、例えば道路塵埃に高濃度の MP が含まれ、雨水等で公共水域に流出することが報告されている。MP の環境負荷を削減するには、その発生源(劣化前のプラスチック製品(プラ製品))を特定することが重要な意味をもつ。なぜなら、MP の起源が分かればピンポイントかつ効果的な対策を取ることができるためである。しかし、MP は元のプラ製品と比べて微小で性状も変化しており、外見からその起源を知る手がかりを得ることは難しい。

2. 研究の目的

MP の起源を知るための手がかりとして、本研究ではプラ製品に添加された化学物質に着目した。一般に、屋外使用される 100 種以上のプラ製品をホームセンター等で入手して、それらの材質と有機系・無機系添加剤の種類を同定する。さらに、道路塵埃・路面排水・河川底質など環境試料中の MP の材質と添加剤を同定し、プラ製品のそれと比較して MP の発生源を高精度に解析する手法開発と環境負荷量の推定を本研究の目的とした。

3. 研究の方法

ロードコーンや反射板、レジ袋など陸域で MP 発生源になり得る市販プラ製品 ($n=158$) を入手した。当該試料を FT-IR、GC-MS および蛍光 X 線分析装置 (XRF) を用いて材質と含有化学物質(有機系添加剤、無機元素)をそれぞれ同定した。さらに、熊本市内で道路塵埃 ($n=23$) を採取し、SUS 製のふるいを用いて分画後、長径 1.00~4.75 mm の MP を対象に材質と有機・無機系添加剤を分析した。得られたデータを基に主成分分析を行い、MP の発生源解析を試みた。また、熊本市内の小規模河川周辺の道路塵埃 ($n=6$) と路面排水 ($n=5$) および河川底質 ($n=9$) を採取・分析し、MP の水環境中への流出経路を調査した。

4. 研究成果

プラ製品を分析した結果、材質はポリエチレン (PE) が最も多く ($n=44$)、次いでポリメタクリル酸メチル (PMMA; $n=35$)、ポリ塩化ビニル (PVC; $n=23$)、ポリプロピレン (PP; $n=16$)、エチレン-酢酸ビニル共重合体 (EVA; $n=10$)、ポリエチレンテレフタレート (PET; $n=8$)、ポリカーボネート (PC; $n=7$)、その他 ($n=15$) の順であった。GC-MS で同定された有機系添加剤は 169 種に及び、可塑剤の Bis(2-ethylhexyl) phthalate (DEHP; CAS#: 117-81-7)、酸化防止剤

の Butylated hydroxytoluene (BHT; CAS#: 128-37-0)、滑剤の Palmitic acid (CAS#: 57-10-3) 等が高頻度に検出された。無機元素については、PET 製のロードコーン付属反射テープ、PMMA 製の点字ブロック、PVC 製パイプからそれぞれ Ba, Pb, Sn がパーセントオーダーの高濃度で検出された。

次に道路塵埃中の MP を分析したところ、材質が PMMA や PVC、EVA 製のものが多かった。このため、PMMA 製のプラ製品および MP 中の有機系添加剤の成分組成を基に主成分分析を行ったところ、プラ製品 (●) は反射板や路面塗装など使用用途に応じて 5 つにグループ化され、MP (●) はそのいずれかに含まれることが分かった (図 1 左)。これは、道路

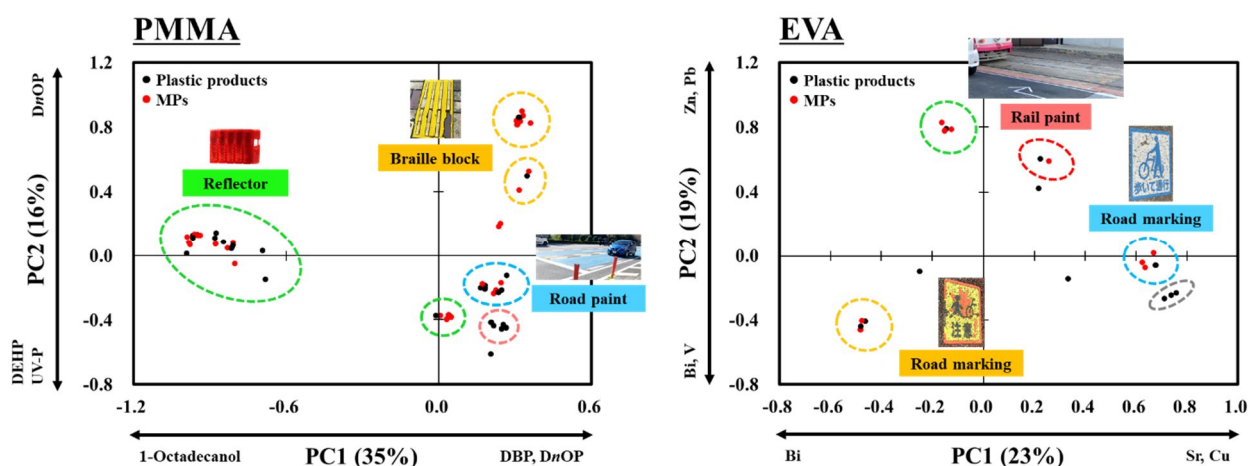


図 1 プラ製品および道路塵埃中 MP に含有する有機・無機系添加剤組成に基づく主成分分析結果

塵埃中 MP は元々反射板や路面塗装、点字ブロックであったことを示唆しており、プラ製品中の有機添加剤情報が由来不明の MP の起源解析に有用であると考えられた。同様の解析を PVC 製のプラ製品と MP に試みたところ、路面標示や波板等のプラ製品と同じ添加剤組成を示す MP があり、当該製品が道路塵埃中 MP 発生源である可能性が示された。

一方、EVA 製検体では MP から特徴的な有機系添加剤の組成を得ることは出来なかった。そこで、EVA 製品と塵埃中 EVA 製 MP に含まれる元素を XRF で測定し、その濃度組成を基に主成分分析を行ったところ、路面標示や路面塗料と同じ組成の MP が確認された (図 1 右)。本結果は、有機系添加剤に加えプラ製品中の無機元素も MP の発生源解析に有用であることを示している。

熊本市内中心部の道路塵埃と雨天時の路面排水およびその周辺の河川底質を分析したところ、各試料から赤色の PMMA 製 MP が複数検出された (図 2)。これらには共通して Dicyclohexyl phthalate (CAS#: 84-61-7) や Di-*n*-octyl phthalate (CAS#: 117-84-0) 等の有機系添加剤が含まれており、その組成は路面塗料とほぼ同じであった (図 2)。以上の結果は、道路塵埃における MP の主要な発生源は路面塗料であり、雨天時に公共水域へ流出して河川底質に蓄積したことを示している。

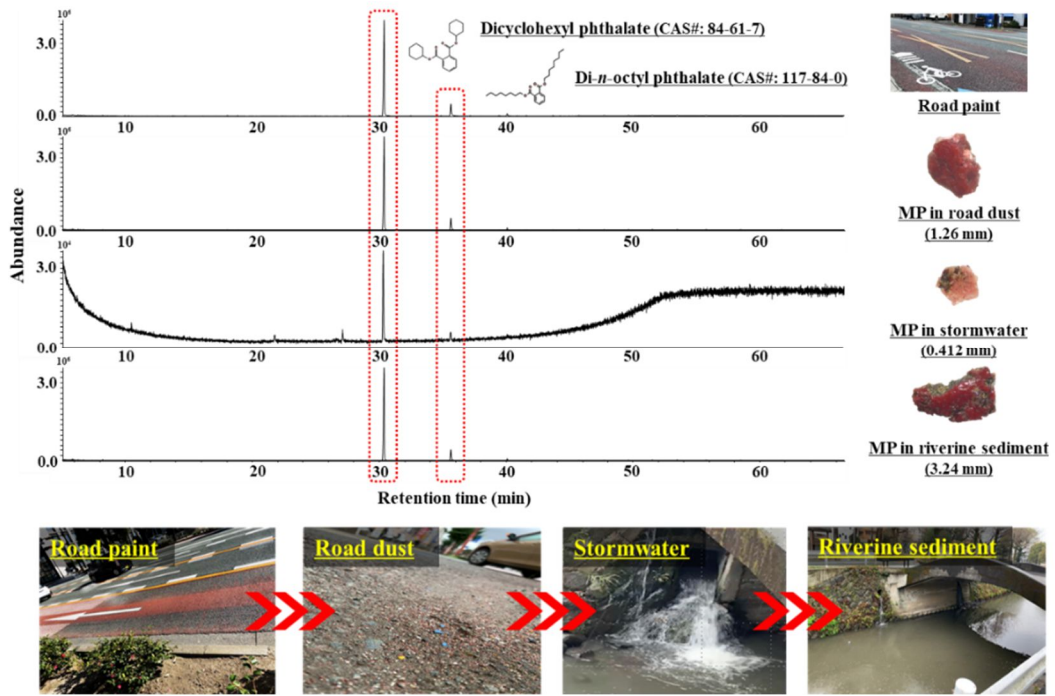


図2 路面塗料と道路塵埃、雨天時流出水、河川底質中のMPに含有する有機系添加剤のGC-MSクロマトグラム

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Tun Thant Zin, Kunisue Tatsuya, Tanabe Shinsuke, Prudente Maricar, Subramanian Annamalai, Sudaryanto Agus, Viet Pham Hung, Nakata Haruhiko	4. 巻 806
2. 論文標題 Microplastics in dumping site soils from six Asian countries as a source of plastic additives	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 150912 ~ 150912
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2021.150912	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Nurlatifah, Nakata Haruhiko	4. 巻 11
2. 論文標題 Monitoring of polymer type and plastic additives in coating film of beer cans from 16 countries	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 22115
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-01723-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Nakajima Ryota, Tsuchiya Masashi, Yabuki Akinori, Masuda Shuhei, Kitahashi Tomo, Nagano Yuriko, Ikuta Tetsuro, Isobe Noriyuki, Nakata Haruhiko, Ritchie Heather, Oguri Kazumasa, Osafune Satoshi, Kawamura Kiichiro, Suzukawa Maki, Yamauchi Takuya, Iijima Koichi, Yoshida Takao, Chiba Sanae, Fujikura Katsunori	4. 巻 166
2. 論文標題 Massive occurrence of benthic plastic debris at the abyssal seafloor beneath the Kuroshio Extension, the North West Pacific	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Marine Pollution Bulletin	6. 最初と最後の頁 112188 ~ 112188
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.marpolbul.2021.112188	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Nurlatifah, Yamauchi Takuya, Nakajima Ryota, Tsuchiya Masashi, Yabuki Akinori, Kitahashi Tomo, Nagano Yuriko, Isobe Noriyuki, Nakata Haruhiko	4. 巻 768
2. 論文標題 Plastic additives in deep-sea debris collected from the western North Pacific and estimation for their environmental loads	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 144537 ~ 144537
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2020.144537	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 ERA Yoichi、NAKATA Haruhiko	4. 巻 43
2. 論文標題 Investigation of Concentration and Potential Sources of Microplastics in Sediments Collected from the Urban Freshwater Bodies, Lake Ezu (Kumamoto) and Ohorikoen Pond (Fukuoka)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Japan Society on Water Environment	6. 最初と最後の頁 107 ~ 112
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2965/jswe.43.107	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kitahara Ken-Ichi、Nakata Haruhiko	4. 巻 736
2. 論文標題 Plastic additives as tracers of microplastic sources in Japanese road dusts	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 139694 ~ 139694
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2020.139694	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 中田晴彦 北原健一 恵良要一	4. 巻 49
2. 論文標題 淡水・陸域環境のマイクロプラスチック汚染の実態把握と起源推定	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 環境技術	6. 最初と最後の頁 306-310
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 恵良要一 中田晴彦	4. 巻 43
2. 論文標題 都市淡水域における底泥中マイクロプラスチックの濃度分布と起源推定：江津湖（熊本市）と大濠公園池（福岡市）を例に	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 水環境学会誌	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 山原慎之助, Nurlatifah, 中田晴彦
2. 発表標題 プラスチック添加剤のGC/MSデータベース開発と道路塵埃中マイクロプラスチックの発生源解析への応用
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nurlatifah, Haruhiko Nakata
2. 発表標題 Are beer cans a potential source of microplastic and chemical additives in the marine environment?
3. 学会等名 42th Annual Meeting on Society of Environmental Toxicology and Chemistry, North America (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Junpei Okira, Haruhiko Nakata
2. 発表標題 Temporal trend of microplastic and its additive chemicals in groundwater from Japan: Implication for the potential source.
3. 学会等名 42th Annual Meeting on Society of Environmental Toxicology and Chemistry, North America (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Thant Zin Tun, Tatsuya Kunisue, Shinsuke Tanabe, Haruhiko Nakata
2. 発表標題 High concentrations of phthalate additives in dumping site soils from 6 Asian countries derived from microplastic.
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Nurlatifah, Takuya Yamauchi, Ryota Nakajima, Masashi Tsuchiya, Akinori Yabuki, Tomo Kitahashi, Yuriiko Nagano, Noriyuki Isobe, Haruhiko Nakata
2. 発表標題 Deep-sea macro debris in the Pacific Ocean: Polymer identification and plastic additives analysis.
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Nurlatifah, Haruhiko Nakata
2. 発表標題 Monitoring on polymer type and plastic additives in coating film of beer cans from 16 countries.
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉廣航平, 恵良要一, 中田晴彦
2. 発表標題 草食性魚類の胃内に多くのマイクロプラスチックが見つかる理由とは? ~熊本市・江津湖における調査例~
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 沖田純平, 中田晴彦
2. 発表標題 地下水におけるマイクロプラスチックの存在とその起源および流入経路解析
3. 学会等名 第29回環境化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 原野真衣 中田晴彦
2. 発表標題 室内ダスト中のマイクロプラスチックの発生源とヒト暴露量の推定
3. 学会等名 第28回環境化学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ei Ei Mon, Haruhiko Nakata
2. 発表標題 Occurrence and distribution of microplastics in road dusts collected from Myanmar and Taiwan
3. 学会等名 5th International Forum on Sustainable Future in Asia, 5th NIES International Forum (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>ビール缶が海洋マイクロプラスチックの発生源になる理由 http://www.sci.kumamoto-u.ac.jp/assets/research_kagaku202202.pdf</p>
--

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------