

市販食塩における微小プラスチック混入の実態把握と ヒトへの暴露評価および対策提案

中田 晴彦, 原野 真衣

熊本大学大学院先端科学研究部(理)化学コース

概要 近年、飲料や食品中にマイクロプラスチックの含有に関する報告が増えており、欧州産食塩では1 kgあたり3万個以上のプラスチック片が検出された。しかし、日本の食塩を調べた例は少なく不明な点が多く残されている。そこで本研究は、国内の市販食塩を対象にマイクロプラスチックの混入実態の把握とヒトへの暴露量の推定を試みた。また、室内ダスト中のマイクロプラスチック濃度を調べてヒト暴露量を試算し、食塩で得られた値との比較解析を行った。

食塩試料($n=26$)は国内の量販店と食塩専門店から購入した。食塩の原料となる海水は、国産品が兵庫県・瀬戸内海・長崎県・沖縄県で、外国産はオーストラリア・イタリア・メキシコでそれぞれ採取されていた。分析法は、食塩を超純水に溶解して100 μm メッシュのナイロン製シートでろ過を行った。シート上の微小片を顕微鏡で観察し、それをピンセットで採取してフーリエ変換赤外分光光度計(FT-IR)または顕微FT-IRで成分同定を行った。また、マイクロプラスチックに含有する化学物質を調べるため、試料を有機溶媒で抽出後、ガスクロマトグラフ質量分析装置(GC-MS)で定性を行った。加えて、室内ダストについても採取・分析を行った。

実験の結果、複数の食塩から粒子状の固体が検出され、これらは硫酸カルシウムやケイ酸塩など鉱物成分であることがわかった。また、国産の食塩1種類から長さ0.124 mmの青色粒子が確認され、その材質はウレタンである可能性が示された。国内の食塩中マイクロプラスチックの平均濃度は0.38個/kgであり、日本人が1年間に食塩から摂取するマイクロプラスチックの平均個数は1.4個と試算された。これらの値は諸外国と比べて明らかに低く、日本の市販食塩におけるマイクロプラスチック汚染は軽微であると考えられた。一方、室内ダスト中のマイクロプラスチック濃度は極めて高く(302,000個/kg)、ヒトの年間暴露量は2,007個(大人)~4,927個(子供)と推算された。室内ダスト中のマイクロプラスチックから有害性が懸念される可塑剤等が検出されたため、今後詳細なリスク評価を行う必要がある。

以上の結果より、国内の市販食塩におけるプラスチック汚染とヒトへの暴露リスクは室内ダストのそれに比べて小規模であり、直ちに対策が必要な状況に至っていないと考えられた。

1. 研究目的

最近、飲用水やビールなど市販製品に微小プラスチック片の混入を示す事例が報告され^{1,3)}、これをヒトが摂取する可能性とその健康影響に社会的関心が高まっている。とくに、食塩を調べた研究では世界中の38か国から入手した市販品を分析した結果が公表されている²⁾。一例を挙げると、クロアチア産の食塩から長さ15~4,628 μm のプラスチック片が31,680個/kgの濃度で検出されたとの報告がある⁴⁾。また、マレーシアのスーパーで購入した食塩のう

ち、粒径149 μm 以上のプラスチック片が複数確認され、オーストラリア産の食塩1 kg中にはポリプロピレン等のマイクロプラスチックが含まれていた³⁾。さらに、日本産の食塩にも人工顔料の微小片の含有が認められ³⁾、人間は食塩を介してこれらの人工物を摂取している様子が窺えた。

一般に、プラスチック製品にはその用途に応じて様々な化学物質が含まれている。この中には、紫外線吸収剤や臭素系難燃剤等の国内外で製造・使用が制限されている物質も含まれる。このため、ヒトはマイクロプラスチック

を摂取すると同時に有害な化学物質をその体内に取り込むが、これまで国内の市販食塩を対象に詳細な調査を行った例はない。

そこで本研究は、国内の市販食塩を対象にマイクロプラスチックの存在を調べ、その混入実態とヒトへの暴露量を明らかにすることを目的とした。また、本研究では食品以外でヒトがマイクロプラスチックを摂取する対象として「室内ダスト」に着目した。室内ダストに含まれるマイクロプラスチックの濃度と成分の把握とヒトへの暴露量を推定し、食塩で得られた値と比較解析して暴露リスクの評価を行った。

2. 研究方法

国内の量販店等から20種類以上の食塩を購入した (Table 1)。食塩の原料となる海水は、国産品が瀬戸内海や沖縄県等で、外国産はオーストラリアなどからそれぞれ

供給されていた。また、国外で生産・輸入された食塩を、日本の海水で溶解・濃縮したものも分析に供した。日本はメキシコとオーストラリアから主に食塩を輸入しており⁵⁾。本実験に供した外国産食塩の産地も主にこの二か国であった。

食塩の製造に重要な海水の濃縮法として、逆浸透膜を利用したものや、天日干しのものもあった (Table 1)。食塩の価格は1グラムあたり0.10円～10円であり、製品間で2桁の違いが見られた。

マイクロプラスチックの分析法は、約100 gの食塩を1 Lの超純水に溶解し、その後セルロース製のろ紙または100 μmメッシュのナイロン製シートでろ過した。ろ紙またはシートを乾燥後、上部に残された微小片をピンセットで個別にピックアップし、フーリエ変換赤外分光光度計 (FT-IR) で成分を同定した。

Table 1. Information on salt samples analyzed in this study

Sample ID	Collection site of seawater	Procedure of seawater concentration
1	Hyogo	Ion Membrane & Tategama (Vertical kettle)
2	Hyogo	Ion Membrane & Tategama (Vertical kettle)
3	Seto-Inland Sea	Ion Membrane & Tategama (Vertical kettle)
4	Fukuoka	NA (not available)
5	Nagasaki	Ion Membrane & Tategama (Vertical kettle)
6	Nagasaki	Ion Membrane & Tategama (Vertical kettle)
7	Okayama	Ion Membrane & Tategama (Vertical kettle)
8	Okinawa	Reverse osmosis (RO) membrane
9	Okinawa	Reverse osmosis (RO) membrane
10	Okinawa	Reverse osmosis (RO) membrane
11	Okinawa	Reverse osmosis (RO) membrane
12	Okinawa	Sunlight
13	Okinawa	Sunlight
14	Okinawa	Sunlight
15	Okinawa	Sunlight
16	Okinawa	Removal of water
17	Okinawa	Hiragama (Flat kettle)
18	Okinawa & Australia	Hiragama (Flat kettle)
19	Okinawa & Mexco	Hiragama (Flat kettle)
20	Mexico or Australia and Japan	Tategama (Vertical kettle)
21	Australia	Sunlight
22	Italy	Sunlight
23	Mexico	Sunlight
24	Mexico	Sunlight
25	Mexico	Tategama (Vertical kettle)
26	Mexico	Tategama (Vertical kettle)

また、マイクロプラスチックに含まれる化学物質を調べるため、当該粒子を有機溶媒(ジクロロメタン)で超音波抽出した。得られた溶液をガスクロマトグラフ質量分析装置にインジェクションし、検出された各ピークを標準物質やライブラリ情報のマススペクトルから化学物質を同定した。

室内ダストについては、掃除機で採集した試料を分析に供した。目視で毛髪等の大型ゴミを取り除いた後、試料約 25 g を 1,000, 250, 63, 20 μm の各粒径のふるいで分画し、50% 水酸化カリウム水溶液で処理して有機物を分解した。これを濾紙上に回収して乾燥した後、食塩と同様に FT-IR と顕微 FT-IR を用いてプラスチックの成分同定を行った。また、1 mm 以上のプラスチック粒子については GC-MS で含有化学物質の同定を行った。

ヒトへのマイクロプラスチックの暴露リスクは、食塩と室内ダストからヒトが一日あたりに摂取する量をそれぞれ試算して評価を行った。また、本研究に供した大部分の試料から人工と天然由来の繊維成分が検出された。しかし、これらはブランク試料にも確認されたため、実験中に混入したと判断し、その存在は本研究の考察から除外した。

3. 研究結果および考察

3.1 食塩中の天然由来物質の同定

分析の結果、複数の食塩試料から粒子状の固体が検出された。このうち、外国産の食塩 100 g から長さ 1 mm 以上の粒子が 14 個確認され、類似の結果は別の外国産の食塩でも観察された。これらを FT-IR で解析してデータベースと比較したところ、硫酸カルシウムの可能性が高いことがわかった。一般に、硫酸カルシウムは水和物や無水和物として天然に広く存在している。これらの試料は海水を天日乾燥して製造しており、その過程で硫酸カルシウムが析出して粒子となり今回検出されたと考えられた。また、本検体から白色で縦長の平面的な固体も確認された。これを FT-IR で調べたところ、ケイ酸塩である可能性が示された。ケイ酸塩は岩石が変性・風化して生成され、砂の主成分として知られている。

さらに、国産の食塩 1 試料から長さ 1~2 mm の固体が確認された。これらは、生物の一部のような形をしており、FT-IR で成分解析したところ、動物性油脂のスペクトルと高い一致を示した。これらについても、海水の濃縮時またはその後の製造工程で混入した異物と考えられた。

天然由来の異物が検出された上述の食塩は、海水の濃縮法にいずれも天日が採用されていた。一方、天日で海水を濃縮した製品の中には、異物が全く確認されないものも多くあった。また、海水を逆浸透膜で濃縮した食塩から鉱物由来の粒子は検出されていない。こうした試料間の違いが何に起因するのか明確ではないが、この種の異物混入を避けるには食塩の原料となる海水をメッシュサイズ 0.2 mm 程度のシートでろ過することが効果的と考えられた。

3.2 食塩試料中のマイクロプラスチックの同定

分析の結果、国産の食塩から長さ 0.124 mm の青色の微粒子が確認された。当該試料を顕微 FT-IR で観察し、そのスペクトルをデータベースと比較したところ、材質はウレタンである可能性が高いことがわかった。日本の市販食塩からマイクロプラスチックが検出されたのは本報告が最初と思われ、日本人は食塩からこの種の異物を摂取している様子が示された。本試料はメキシコの海水を立釜で濃縮しており、製造工程でプラスチック片が混入した可能性が考えられた。

また、国産と外国産のブレンド食塩と、鉱物等の混入が認められたイタリア産の食塩から、薄いオレンジ色の粒子が見つかった。成分同定を試みたところ、「キューブラ」である可能性が示された。キューブラは、綿花の種子から採取する短繊維のセルロースから出来ており、「再生セルロース」に分類される。主な用途は衣類原料のレーヨンに類似していることから、食塩の製造に関わった人の衣類から混入した可能性が考えられた。また、別の食塩試料から検出された固体は、「FANKOR LANWAX」との高い一致を示したが、当該物質の化学構造を把握するには至らなかった。FT-IR のライブラリ検索はこのような例が他にもあり、測定対象が微小になるほど高精度な成分同定が困難になる傾向が見られた。

国内で市販されている 20 種類以上の食塩を調べたところ、マイクロプラスチックが検出されたのは 1 種のみであった。この検体の供試量は 100 g であったため、マイクロプラスチック濃度は 10 個/kg となる。このため、検出されなかった他の 25 試料を含む日本の食塩中マイクロプラスチックの平均濃度は 0.38 個/kg と算出された。総務省の家計調査⁹⁾では、日本人の一日あたり食塩消費量は 10 g (年間で 3,650 g) との報告がある。このため、日本人が 1 年間に食

塩から摂取するマイクロプラスチックの平均個数は1.4個と試算された。

過去に報告された食塩中のマイクロプラスチック濃度と、本研究で得られた値と比較した(**Table 2**)。これまでの報告で最もマイクロプラスチック濃度が高かったのはクロアチア産で、27,000~31,680個/kgのポリエチレンまたはポリプロピレン等が検出されている⁴⁾。また、大西洋産の食塩は、アイルランド南方のケルト海産と米国産が最も高く、ともに300個/kgであった^{1,7)}。一方、フランスや南アフリカの検体では全くマイクロプラスチックが検出されない例も報告されている。

インド洋の食塩からは最大で600個/kgのマイクロプラスチックが検出され、ポリエチレンやポリエチレンテレフタレートといった検出頻度の高い材質に加え、ポリ塩化ビニル(PVC)製が含まれていた^{7,9)}。日本国内へ主要な輸入先であるオーストラリア産の食塩中の濃度は0~9個/kgであった³⁾。

アジアの食塩では、台湾・中国・タイの濃度が比較的高く、台湾産が1,300個/kg、中国産は718個/kg、タイ産は600個/kgであった^{7,10)}。一方、オーストラリアやニュージーランドでは低値または検出されなかった⁷⁾。日本産の食塩の調査は過去に一例あるが、人工顔料のフタロシアニン粒子の含有は認められたものの、マイクロプラスチックは確認されていない³⁾。

本研究で得られた日本の市販食塩中マイクロプラスチック濃度(平均値:0.38個/kg)は、世界各地の過去の報告例と比較して低い。また、1年間に食塩を介して摂取するマイクロプラスチックの個数は、クロアチアは1,460~36,135個、中国は219~1,310個、イタリアは9.1~107個、米国は85~547個、韓国は182~547個と試算されている²⁾。日本産食塩の値は1.4個/年であり、上記の国と比べて明らかに低く、国産食塩のマイクロプラスチック汚染とヒトへの暴露は軽微と考えられた。

では、食塩以外でマイクロプラスチックのヒトへの暴露経路はないのだろうか。その点を検証するため、室内ダスト中のマイクロプラスチックを分析してヒトへの暴露量を推定し、食塩分析で得られた結果と比較解析した結果を以下に紹介する。

Table 2. Microplastic concentrations in commercial sea salts collected from different countries

Location	Origin	Number of samples	MP (particles/kg)	Type of MPs	References
Atlantic Ocean	Brazil	1	200	PET, PP	7
	France	6	0-2	PE, PET, PP	3
		1	0	NA (Not Available)	7
	Celtic Sea	2	300	Fibres and particles	1
	Portugal	3	0-10	PET, PP	3
	North Sea	1	67	Fibres and particles	1
	Senegal	1	250	PE, PET, PP	7
	South Africa	1	1-3	PET	3
	Spain	4	50-150	PE, PET, PP	8
		3	95-140	PET, PE, PP	8
	United Kingdom	1	120	PP, PE, PVC	7
	USA	1	300	PE	7
Atlantic Ocean	1	180	Fibres and particles	1	
Black Sea	Turkey	5	84	PE, PET, PP, PU, PA-6, PVC	11
	Bulgaria	1	10	Nylon, PE, PP, PVC	7
Indic Ocean	Australia	2	0-9	PE, PET	3
	India	8	56-103	PA, PE, PES, PET, PS	9
		3	50-600	Nylon, PE, PET, PP, PVC	7
	Malaysia	1	0-1	PP	3
South Africa	1	1-3	PET	3	
Mediterranean Sea	Croatia	5	27,000-31,680	PE, PP	4
		1	800	Nylon, PE, PET, PP	4
	France	6	0-2	PE, PET, PP	3
	Italy	6	22-594	PE, PP	4
		2	5-50	Nylon, PE, PET, PP	7
	Sicilian Sea	1	220	Fibres and particles	1
	Spain	7	80-280	PE, PET, PP	8
2		60-65	PE, PET, PP	8	
Mediterranean Sea	2	266	Fibres and particles	1	
Pacific Ocean	Australia	2	0-9	PE, PET	3
		1	80	Acrylic, Nylon, PE, PET, PP, PS,	7
	China	5	550-681	CP, CL, PAN, PB, PE, PES, PET, PP, POM, PMA, poly(vinyl acetate:ethylene) 3:1	10
		3	120-718	Nylon, EVA, PE, PET, PP, PU, PVC	7
	Chinese Taipei	4	0-1300	Acrylic, Nylon, PE, PET, PP, PVC, PW	7
	Indonesia	1	100	PE, PET, PP	7
	Japan	1	0	Not available	3
	Korea	3	100-300	Acrylic, Nylon, PE, PET, PP	7
	Mexico	1	173	Fibres and particles	1
	New Zealand	1	0-1	PE	3
	Thailand	2	80-600	PE, PET, PP, PVC	7
	USA	1	47	Fibres and particles	1
		1	300	PE	7
	Vietnam	2	100-200	Acrylic, PE, PP, PW	7
Pacific Ocean	1	806	Fibres and particles	1	
	Japan	26	0.38	Stylene	This study

CL - cellulose, CP - cellophane, EVA - ethylene vinyl acetate, PA - polyamide, PA-6 - polyamide-6, PAK - polyalkene, PAN - polyacrylonitrile, PB - poly(1-butene), PE - polyethylene, PE-PP - PE and PP copolymer, PES - polyester, PET - polyethylene terephthalate, PMA - poly methyl acrylate, POM - polymerized, oxidized material, PP - polypropylene, PE - Polystyrene, PR - phenoxy resin, PU - polyurethane, PVC - poly(vinyl chloride), PW - paraffin wax.

3.3 室内ダスト中のマイクロプラスチックの同定

掃除機で採集した室内ダストを1,000, 250, 63, 20 μmの各粒径のふるいで分画した。その結果、1,000 μmのふるいでは緑・朱・白等に着色した粒子が確認され、粒径が小さくなるほど着色試料の割合が減少して63 μm以下ではほぼ単色の灰色を呈した。

分析の結果、室内ダストからマイクロプラスチックが検出された。粒径250~1,000 μmのマイクロプラスチック濃度は302,000個/kgと極めて高く、顕微FT-IRで成分解析したところ、ポリ塩化ビニル、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン等が同定された。また、粒径250 μm以下の試料からもポリ塩化ビニルやポリスチレン製のマイクロプラスチックを確認したが、含有量が極めて多く顕微鏡での測定が困難であったため定量には至らなかった。以上の結果は、人間が一日の大半を過ごす室内環境においてマイクロプラスチックは大量かつ普遍的に存在していることを示している。

室内ダスト中のマイクロプラスチック濃度を報告した例は他にないため、筆者らが行った野外で採取した道路粉塵および底質の濃度値との比較を試みた。熊本県内の国道3号線で採取した道路粉塵中マイクロプラスチック濃度の中央値は60個/kgであった¹²⁾。また、熊本市内の淡水湖の底質からマイクロプラスチック濃度(中央値)は1,000個/kg¹³⁾であった。本研究で得られた室内ダスト中のマイクロプラスチック濃度(30,200個/kg)は、道路粉塵や底質の値に比べて3~4桁も高いことがわかった。また、技術的課題のため、今回は定量に至らなかった粒径250 μm以下のダスト中にも高濃度のマイクロプラスチックは含まれていることから、ヒトは室内ダストから相当量の暴露を受けている可能性が示された。

そこで、250~1,000 μmの粒径試料のマイクロプラスチック濃度を基に、室内ダストからヒト(子供と大人)への暴露量(個/kg 体重/day)を以下の式^{14,15)}を用いて算出した。

$$EHE = C \times DIR \times IEF / BW$$

EHE: ヒトへの推定暴露量(個/kg/day)

C: 室内ダスト中のMP濃度(個/g)

DIR: 1日あたりのダスト吸入量

(0.05 g/day(子供), 0.02 g/day(大人))

IEF: 1日あたりの室内滞在時間の割合(0.88)

BW: 体重(9.0 kg [子供], 50 kg [大人])

計算の結果、手や物に付着した室内ダストからヒトの体内に取り込まれるマイクロプラスチック量は、1~2歳の子供で1.5個/kg 体重/day, 大人(12歳以上)で0.11 個/kg 体重/dayとなり、年間暴露量に換算すると子供は4,927個、大人は2,007個であった。この値は1年間に食塩から摂取されるマイクロプラスチックの個数(1.4個)の13~354倍に相当する。また、本試算には未定量ながら高濃度のマイクロプラスチックの含有が予想される粒径250 μm以下の室内ダストからの暴露量は含まれていない。以上の結果は、食塩から摂取するマイクロプラスチック量は室内ダストのそれに比べて極めて少量であることを示している。

次に、室内ダスト中の粒径1,000 μm以上で検出頻度の高かったポリ塩化ビニル製のマイクロプラスチックをジクロロメタンで抽出し、GC-MSのスペクトルを基に成分解析を行った。その結果、抗酸化剤のbutylated hydroxytoluene (BHT)と、bis(2-ethylhexyl)phthalate (DEHP)を含む複数の可塑剤が大部分の試料から検出され、これらが塩ビ製品に多用されている様子が窺えた。

欧州委員会(EU)では「化学物質の登録・評価・認可および制限」を定めた法律(REACH [Registration, Evaluation, Authorization and Restriction of Chemicals] 規制)において有害性が懸念される DEHP を含む 4 種のフタル酸エステル類のプラスチック製品への使用を 2020 年 6 月までに規制する方針を示した¹⁶⁾。過去の報告で室内ダスト中には高濃度のフタル酸エステルが検出されていることから¹⁷⁾、今後はマイクロプラスチックを経由したこれらの暴露リスクを詳細に評価する必要がある。

4. 今後の課題

本研究は、国内で市販されている 26 種類の食塩を対象にマイクロプラスチックによる汚染状況の把握を試みた。実験の結果、マイクロプラスチックが検出された食塩はわずか 1 種類であり、過去に報告された外国産の食塩中マイクロプラスチック濃度に比べて低値を示した。国内の市販食塩はこの種の汚染は軽微である様子が窺えたが、その結論に至る前に幾つか明らかにすべき課題もある。

例えば、今回分析に供した食塩は国内で市販されている食塩のごく一部に過ぎない。プラスチック汚染の全体像を把握するには、産地に偏りが無いことに留意しながら供

試する検体数を増やす必要がある。

また、本研究で採用したマイクロプラスチックの分析法は、実験中に微小な繊維がブランク試料から検出されることが多かった。発生源の一つに衣類が考えられコンタミ対策も講じたが、結果的に繊維を分析対象から除外することになった。今後は、実験者の衣類をコットン由来のものに徹底することや、実験時に特殊なクリーンベンチを利用してコンタミを極力減らすなどの対策が求められる。

さらに、食塩から唯一検出された長さ 0.124 mm のウレタン製マイクロプラスチックに含有する化学物質の測定が出来なかった。理由として、当該粒子が極めて小さく正確に秤量できなかったことや、分析に用いた四重極型 GC-MS では、測定物質の選択性や感度に限界があったことが挙げられる。こうした問題を解決するには、高分解能 GC-MS や飛行時間型質量分析計 (TOFMS) を導入して検出器の高性能化を図る必要がある。また、本研究で使用した GC-MS は揮発性と半揮発性化学物質の測定を前提としており、水溶性の高い物質は分析対象に含まれていない。プラスチック製品には多種多様な化学物質が含まれているため、今後は水溶性物質や重金属類の分析も含めた包括的な含有物質の把握に努める必要がある。

最後に、筆者が分析対象として食塩に着目した理由の一つに、マイクロプラスチックのヒトへの暴露経路の解明が挙げられる。このため、本研究では食塩に加えて室内ダストを分析し、マイクロプラスチックの暴露量を把握して両者を比較解析する研究を展開した。しかし、マイクロプラスチックは水やアルコール等の飲料および普段の食事から摂取していることも予想される。今後は様々な食品試料を分析することで、マイクロプラスチックのヒト暴露量の高精度化と精緻なリスク評価を行うことは重要課題の一つといえよう。

5. 文献

- 1) Kosuth, M., Mason, S. A., Wattenberg, E. Anthropogenic contamination of tap water, beer, and sea salt, *PLOS ONE*, 1-18. (<https://doi.org/10.1371/journal.pone.0194970>).
- 2) Peixoto, D., Pinheiro, C., Ammorim, J., Oliva-Teles, L., Guilhermino, L., Vieira, MN. Microplastic pollution in commercial salt for human consumption: A review. *Estuary, Coastal and Shelf Science*, **219**, 161-168 (2019).
- 3) Karami, A., Golieskardi, A., Choo, C. K., Larat, V., Galloway, T., Salamatinia, B. The presence of microplastics in commercial salts from different countries, *Scientific Report*, 1-9 (DOI: 10.1038/srep46173)
- 4) Renzi, M., Blašković, A. Litter & microplastics features in table salts from marine origin: Italian versus Croatian brands, *Mar. Pollut. Bull.*, 135, 62-28 (2018).
- 5) 公益財団法人塩事業センター HP (<https://www.shiojigyo.com/siohyakka/number/sufficiency.html>).
- 6) 総務省 HP (https://www.e-stat.go.jp/stat-search/files?page=1&query=%E9%A3%9F%E5%A1%A9&layout=dataset&toukei=00450171&tstat=000001041744&cycle=7&year=20150&month=0&tclass1=000001098375&stat_infid=000031556174).
- 7) Kim, J., S., Lee, Kim, S., Kim, H. Ecotoxicology and human environmental health global pattern of microplastics (MPs) in commercial food-grade salts: Sea salt as an indicator of seawater MP pollution, *Environ. Sci. Technol.*, 52, 12819-12828 (2018).
- 8) Iñiguez, M. E., Conesa, J. A., Fullana, A. Microplastics in Spanish table salt, *Scientific Report*, 7, 8620 (2017).
- 9) Seth, C. K., Shriwastav, A. Contamination of Indian sea salts with microplastics and a potential prevention strategy, *Environ. Sci. Pollut. Res.* 25, 30122-30131 (2018).
- 10) Yang, D., Shi, H., Li, L., Li, J., Jabeen, K., Kolandhasamy, P. Microplastic pollution in table salts from China, *Environ. Sci. Technol.*, 49 13622-13627 (2015).
- 11) Gundogdu, S. Contamination of table salts from Turkey with microplastics, *Food Addit. Contam. Part A*, 35, 1006-1014, (2018).
- 12) 北原健一, 中田晴彦 陸域におけるマイクロプラスチックの発生源検証, 第52回日本水環境学会年会要旨, 5 (2019).

- 13) 恵良要一, 北原健一, 渡邊地洋, 中田晴彦 江津湖におけるマイクロプラスチック汚染の現状把握と発生源推定および影響評価, 第27回環境化学討論会要旨 100-101 (2018).
- 14) Johnson-Restrepo, B. and Kannan, K. An assessment of sources and pathways of human exposure to polybrominated diphenyl ethers in the United States, *Chemosphere*, **76**, 542-548 (2009).
- 15) 米国環境保護庁 (USEPA) HP (<https://cfpub.epa.gov/ncea/risk/recordisplay.cfm?deid=337521>).
- 16) 欧州共同体 (European Union) HP (<https://eur-lex.europa.eu/legal-content/EN/TXT/?qid=1545148565516&uri=CELEX:32018R2005>).
- 17) Guo, Y. and Kannan, K. Comparative assessment of human exposure to phthalate esters from house dust in China and the United States *Environ. Sci. Technol.*, **45**, 3788-3794 (2011).

6. 謝 辞

本研究は、公益財団法人ソルト・サイエンス研究財団平成 30 年度研究助成の支援を受けて行いました。ここに記して謝意を表します。

Investigation on Microplastic Pollution in Commercial Salts and Evaluation for Their Exposure Risk in Human

Haruhiko NAKATA, Mai HARANO

Faculty of Advanced Science and Technology, Kumamoto University

Summary

In recent years, there have been an increasing number of reports for the occurrence of microplastics in beverages and foods, and more than 30,000 microplastics were detected in 1 kg of commercial salt obtained from European country. However, little information is available on the microplastic pollution in salt samples in Japan. In this study, we tried to understand the present status of microplastic contamination and estimate the amount of exposure to humans from commercial salt. In addition, the concentration of microplastics in indoor dust was examined to estimate the human exposure, and a comparative analysis was performed with the value obtained with commercial salts.

Salt samples ($n=26$) were obtained from domestic supermarket and specific salt stores in Japan. Salt samples were dissolved in ultrapure water and filtered through a nylon sheet of 100 μm mesh. The small pieces on the sheet were observed with a microscope and collected with tweezers, and the component was identified by a Fourier transform infrared spectrophotometer (FT-IR) or a microscopic FT-IR. In addition, the microplastics were extracted with an organic solvent and then chemicals containing in the samples were qualitatively analyzed with a gas chromatograph mass spectrometer (GC-MS). Further, we collected an indoor dust and analyzed microplastics.

As the results, particulate solids were detected in a wide variety of salt samples. The FT-IR analysis suggested that these were natural components, such as calcium sulfate (CaSO_4) and silicate. A blue particle with a length of 0.124 mm were confirmed from a domestic salt, and microscope FT-IR suggested the material as urethane. The average concentration of microplastics in Japanese salts was 0.38 pieces/kg, and the average number of microplastics consumed by Japanese from salt was estimated to be 1.4 piece/year. These values were apparently lower than those of other countries, suggesting that microplastic contamination in Japanese salt was considered to be minor. On the other hand, the concentration of microplastic in indoor dust was extremely high, 302,000 pieces/kg, and the annual exposure to humans was estimated to be 4,927 for children and 2,007 for adult. Several harmful compounds, especially for phthalates, were identified in microplastics of polyvinyl chloride in indoor dust. Investigation on risk assessment of human exposure to microplastic is an important issue to understand their potential risks. Overall, it is considered that the risk of microplastic contamination and human exposure in Japanese salts is minor and smaller than that of indoor dust.