

日本全域の食塩中マイクロプラスチック濃度と ヒト暴露量の推定およびリスク評価

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 マイクロプラスチック(MP)による海洋汚染とその対策が喫緊の環境課題となっている。MPは海水中に含まれており、それを原料とする欧州産食塩から最大で1 kgあたり3万個以上のMPが検出されている。過去の研究で、日本の市販食塩には平均で0.38個/kgのMPが認められたが($n=28$)、その多くは西日本産であり採集地に偏りがあった。そこで本研究は、食塩の産地を東日本に拡げて試料の採集と分析を行い、日本全域の食塩中MPの濃度分布を明らかにすることを目的とした。また、食塩から摂取するMPのヒト暴露量を試算し、室内ダスト・呼吸・魚貝類の値と比較解析した。

2018～2020年、北海道から沖縄県に至る15都道府県産の食塩と、国内外の海水を濃縮・ブレンドした食塩試料入手して分析に供した($n=48$)。各試料は超純水に溶解したのち、100 mmメッシュのナイロン製フィルターでろ過をした。フィルター上部に残された微小片をピックアップし、フーリエ変換赤外分光光度計(FT-IR)でポリマーの成分を同定した。また、ヒトへのMPの暴露量は、2018年度の調査で得られた室内ダストの実測値と文献値を参考に推定した。

実験の結果、6種類の食塩から6個のMPが検出された。材質はポリエチレン・ポリウレタン・ポリプロピレンであり、その起源は原料である海水、または食塩の製造過程で混入した可能性が伺えた。日本の市販食塩中MPの平均濃度は1.3個/kg、日本人が1年間に食塩から摂取するMPの平均個数は4.7個と試算され、いずれも世界の他地域に比べて低いことがわかった。また、室内ダスト・呼吸・魚貝類から摂取するMP量に比べて、食塩由来の量は3～6桁も低く、国内の食塩におけるMP汚染とその暴露リスクは軽微であることがわかった。

1. 研究目的

マイクロプラスチック(MP)による環境汚染と生物影響に科学的・社会的関心が高まっている。国連のSDGs目標14「海の豊かさを守ろう」では、海洋プラスチック汚染の防止や生態系保護に関する対策が盛り込まれている。また、MPのヒト暴露に関する調査研究も行われており、人間は日常的にMPを経口および経気摂取しているとの報告がある¹⁾。魚貝類を食べることで、日本人は年間最大で130,466個ものMPを取り込んでいるという試算もある²⁾。

食塩中のMPに関する調査研究も世界中で行われている。38か国で入手した市販食塩を分析したところ、クロアチア産の食塩から長さ15～4,628 μm のMPが31,680個/kgの高濃度で検出された³⁾。マレーシアのスーパーで購

入した食塩は、粒径149 μm 以上のMP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製のMPが含まれていた⁴⁾。最近では、アフリカ産の食塩から初めてMPの残留が報告された⁵⁾。

一方、日本の食塩中MPに関する調査報告はこれまでに1例⁴⁾しかない。このため、筆者は2018年度ソルト・サイエンス研究財団の助成を受けて、「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」という題目で調査を行った。その結果、国内で市販されている26種の食塩の大部分からMPは検出されず、平均濃度は0.38個/kgであった⁶⁾。しかし、分析に供した食塩の多くは沖縄県を中心に西日本で製造されたものであり、産地に偏りが見られた。日本全体の食塩中MP

濃度に関する理解を深めるには、産地を拡げてより広域に調査する必要がある。また、食塩を介した MP の人間への暴露評価を行うことも重要である。

そこで本研究は、主に東日本で生産された食塩を対象に MP の有無を調べ、その混入実態の把握を目的とした。また、2018 年度の調査で得られた西日本産食塩の分析結果と統合し、日本全域の食塩中 MP 濃度とヒトへの暴露量を試算した

2. 研究方法

2018～2020 年に日本国内で入手した 48 種類の市販食塩を分析に供した。このうち、2020 年度の調査ではネット販売で入手した北海道・秋田県・宮城県・新潟県・石川県・千葉県・東京都・愛知県・福井県・京都府産の食塩 17 試料をそれぞれ分析した。2018 年度は兵庫県・岡山県・福岡県・長崎県・沖縄県および国内外の海水を濃縮・ブレンドした食塩 26 種類を分析した。試料の詳細を Fig. 1 (赤字が 2020 年度、黒字が 2018 年の採集地)と Table 1 (Sample ID 1～22 が 2020 年度、23～48 が 2018 年度の試料)にそれぞれ示す

食塩の製法は海水を直接平釜または立釜で加熱濃縮する方法に加え、逆浸透膜(RO 膜)でろ過した塩水を使用した例も見られた(Table 1)。また、2018 年度に実施した調査結果の再現性を確認するため、前回と同じ沖縄県産食塩 ($n=5$, Table 1 の ID 番号 18～22)を入手して分析に供した。

マイクロプラスチックの分析法は、各試料 100 g を 1 L の超純水に溶解したのち、100 μm メッシュのナイロン製フィルターでろ過をした。

フィルターを乾燥後、上部に残された微小片を顕微鏡で観察しながら精密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)でプラスチックの成分同定を行った。なお、実験時に食塩と並行して行ったブランク試料から、ポリエステル製の繊維が 1 本検出された。分析に供した食塩からも同種の繊維が認められ、その濃度は 1.1 ± 1.1 本であった。このため、本研究ではポリエステル製繊維を除外して考察を行った。また、ヒトへの MP の暴露量は、2018 年度の調査で得られた室内ダストの実測値と文献値を参考に推定し、食塩のそれと比較解析した

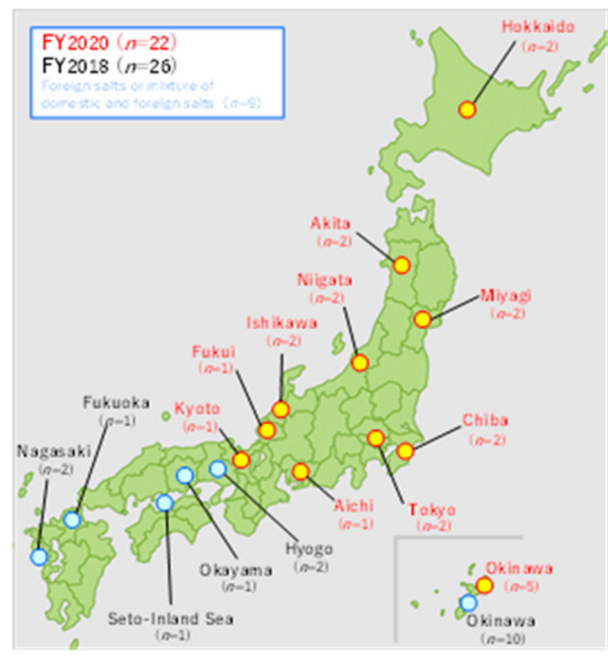


Fig. 1 Production sites of commercial salts obtained in Japan for microplastic analysis during 2018-2020

3. 研究結果および考察

3-1 東日本産を含む全国の食塩中 MP について

2020 年に採取・分析に供した 17 種類の食塩のうち、5 種類から計 5 個の MP が検出された。北海道産食塩に含まれていた MP は、透明のポリエチレン製であり、長さは 0.321 mm であった(Fig. 2)。ポリエチレン製の MP は宮城県産の食塩からも検出された。また、秋田県と石川県産食塩にはポリウレタン製、愛知県産にはポリプロピレン製の MP がそれぞれ確認された。

2018 年の調査で MP が検出されたのは、メキシコの海水を濃縮して国内で加工した食塩 1 種類のみで、国内の海水で製造した食塩 ($n=17$, Table 1 の Sample ID 23～39)からは検出されなかった。一方、5 個の MP が見つかった今回の食塩は、いずれも国内の海水から製造されている。このことは、海水中の MP 濃度が東西で異なる可能性を示しているが、それを検証可能なデータは報告されていない。また、食塩の製造過程で MP が混入したことも考えられる。

2018 年の調査で食塩中から検出された MP ($n=1$)はウレタン製であった⁹⁾。2020 年に見つかった 5 個の MP 中、2 個はウレタン製である。MP の検出例が少なく不明な点も多いが、食塩の製造過程でウレタンの小片が混入する可能性を検証する必要があると思われる。

Table 1 Commercial salt samples analyzed in FY2020 and FY2018

Sample ID	Collection site of seawater	Procedure of seawater concentration
FY2020		
1	Hokkaido	Hiragama (Flat kettle)
2	Hokkaido	Hiragama (Flat kettle)
3	Akita	Hiragama (Flat kettle)
4	Akita & Nagasaki	RO, Hiragama (Flat kettle)
5	Miyagi	Hiragama (Flat kettle)
6	Miyagi	Hiragama (Flat kettle)
7	Niigata	Hiragama (Flat kettle)
8	Niigata	Hiragama (Flat kettle)
9	Ishikawa	Sunlight, Hiragama (Flat kettle)
10	Ishikawa	Sunlight, Hiragama (Flat kettle)
11	Chiba	Hiragama (Flat kettle)
12	Chiba	Sunlight, Hiragama (Flat kettle)
13	Tokyo	Sunlight, Hiragama (Flat kettle)
14	Tokyo	Sunlight, Hiragama (Flat kettle)
15	Aichi	Kettle
16	Fukui	Sunlight, Hiragama (Flat kettle)
17	Kyoto	RO, Hiragama (Flat kettle)
18	Okinawa	RO, Hiragama (Flat kettle)
19	Okinawa	Not available
20	Okinawa	Sunlight, Hiragama (Flat kettle)
21	Okinawa	RO, Tatagana (Vertical kettle)
22	Okinawa	Tatagana (Vertical kettle)
FY2018		
23	Hyogo	RO, Tatagana (Vertical kettle)
24	Hyogo	RO, Tatagana (Vertical kettle)
25	Seto-Inland Sea	RO, Tatagana (Vertical kettle)
26	Fukuoka	NA (not available)
27	Nagasaki	RO, Tatagana (Vertical kettle)
28	Nagasaki	RO, Tatagana (Vertical kettle)
29	Okayama	RO, Tatagana (Vertical kettle)
30	Okinawa	RO
31	Okinawa	RO
32	Okinawa	RO
33	Okinawa	RO
34	Okinawa	Sunlight
35	Okinawa	Sunlight
36	Okinawa	Sunlight
37	Okinawa	Sunlight
38	Okinawa	Removal of water
39	Okinawa	Hiragama (Flat kettle)
40	Okinawa & Australia	Hiragama (Flat kettle)
41	Okinawa & Mexico	Hiragama (Flat kettle)
42	Mexico or Australia and Japan	Tatagana (Vertical kettle)
43	Australia	Sunlight
44	Italy	Sunlight
45	Mexico	Sunlight
46	Mexico	Sunlight
47	Mexico	Tatagana (Vertical kettle)
48	Mexico	Tatagana (Vertical kettle)

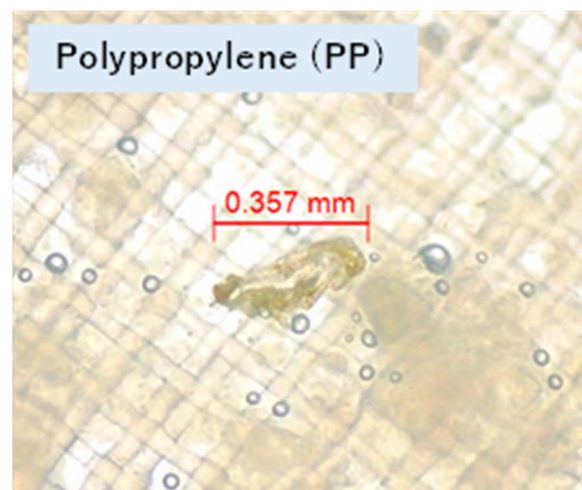
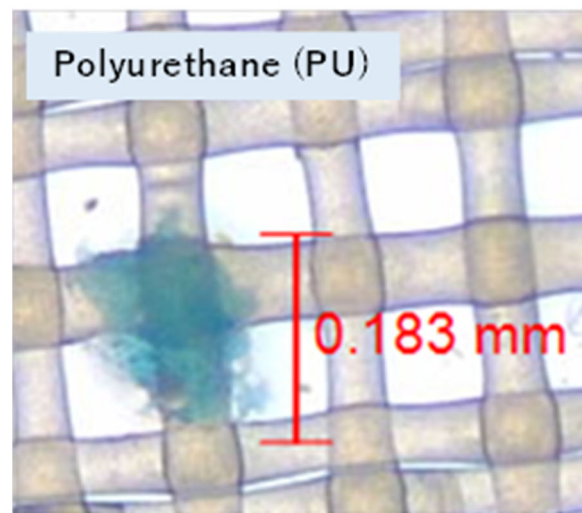
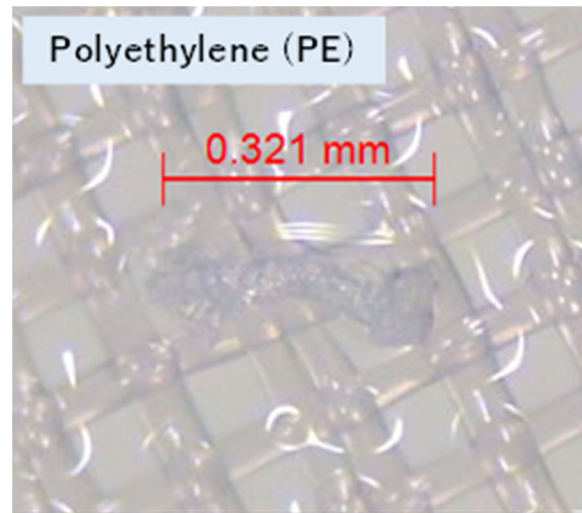


Fig. 2 Microplastics identified in commercial salts analyzed in this study

また、MP の分析精度を確認するため、前回調査した沖縄県産の食塩と同じもの ($n=5$, Table 1 の Sample ID 18~22) を新たに入手、測定した。

その結果、5 種の食塩のうち 1 種から 0.364 mm の透明な固体が認められ、材質はアクリルである可能性が示された。しかし、残り 4 種類の食塩に MP は含まれておらず、MP 分析の再現性と精度は 2018 年と 2020 年で大きな違いはないと判断した。

3-2 食塩中 MP 濃度の国際比較

これまでの調査で、国内の市販食塩 48 種類 (Table 1) から計 6 個の MP が検出された。このため、国産食塩の MP 平均濃度は 1.3 個/kg (6 個/4.8 kg) と試算され、この値を過去に報告された海外の食塩中 MP 濃度と比較した (Table 2)。

過去の報告で最も MP 濃度が高かった食塩はクロアチア産で、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¹³⁾。また、大西洋産の食塩は、アイルランドと米国が最も高く、ともに 300 個/kg であった^{7,9)}。一方で、フランスや南アフリカの検体の中には MP が検出されなかった例も報告されている⁴⁾。

インド洋産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、使用量の多いポリエチレンやポリエチレンテレフタレートに加え、ポリ塩化ビニル (PVC) 製が含まれていた^{7,12)}。

アジア産食塩の場合、台湾・中国・タイが比較的高濃度で、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^{7,8)}。一方、オーストラリアやニュージーランドのものは低値または検出されなかった^{4,7)}。日本産食塩の分析例は一つあり、人工顔料のフタロシアン粒子が含まれていたが MP は確認されていない⁴⁾。

本研究で得られた日本の市販食塩中 MP 濃度 (1.3 個/kg) は、世界的に見て概ね低値といえる。また、総務省の家計調査で、日本人の一日あたり食塩摂取量は 10 g (年間 3,650 g) との報告がある¹⁴⁾。このため、日本人が 1 年間に食塩から摂取する MP の個数は 4.7 個と推定された。この値は、クロアチア (1,460~36,135 個)、中国 (219~1,310 個)、イタリア (9.1~107 個)、米国 (85~547 個)、韓国 (182~547 個)³⁾ に比べて明らかに低く、日本の市販食塩の MP 汚染とヒトへの暴露は軽微であると考えられた。

Table 2 Microplastic abundances (items/kg) in commercial salts collected in the world

Location	Origin	Number of samples	MP (items/kg)	Type of MPs	References
Pacific Ocean	Japan	48	1.3	PE, PP, PU, PVC	This study
	Australia	2	0-9	PE, PET	4
		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 31	8
		3	120-718	Nylon, EVA, PE, PET, PP, PU, PVC	7
	Taiwan	4	0-1300	Acrylic, Nylon, PE, PET, PP, PVC, PW	7
	Indonesia	1	100	PE, PET, PP	7
	Japan	1	0		4
	Korea	3	100-300	Acrylic, Nylon, PE, PET, PP	7
	Mexico	1	173	Fibres and particles	9
	New Zealand	1	0-1	PE	4
	Thailand	2	80-600	PE, PET, PP, PVC	7
	USA	1	47	Fibres and particles	9
		1	300	PE	7
	Vietnam	2	100-200	Acrylic, PE, PP, PW	7
Pacific Ocean	1	806	Fibres and particles	9	
Atlantic Ocean	Brazil	1	200	PET, PP	7
		6	0-2	PE, PET, PP	4
	France	1	0	NA (Not Available)	7
		2	300	Fibres and particles	9
	Portugal	3	0-10	PET, PP	4
	North Sea	1	67	Fibres and particles	9
	Senegal	1	250	PE, PET, PP	7
	South Africa	1	1-3	PET	4
	Spain	4	50-150	PE, PET, PP	10
		3	95-140	PET, PE, PP	10
	United Kingdom	1	120	PP, PE, PVC	7
	USA	1	300	PE	7
	Atlantic Ocean	1	180	Fibres and particles	9
Black Sea	Turkey	5	84	PE, PET, PP, PU, PA-6, PVC	11
	Bulgaria	1	10	Nylon, PE, PP, PVC	7
Indian Ocean	Australia	2	0-9	PE, PET	4
	India	8	56-103	PA, PE, PES, PET, PS	12
		3	50-600	Nylon, PE, PET, PP, PVC	7
	Malaysia	1	0-1	PP	4
	South Africa	1	1-3	PET	4
Mediterranean Sea	Croatia	5	27,000-31,680	PE, PP	13
		1	800	Nylon, PE, PET, PP	13
	France	6	0-2	PE, PET, PP	4
	Italy	6	22-594	PE, PP	13
		2	5-50	Nylon, PE, PET, PP	7
	Sicilian Sea	1	220	Fibres and particles	9
	Spain	7	80-280	PE, PET, PP	10
		2	60-65	PE, PET, PP	10
Mediterranean Sea	2	266	Fibres and particles	9	

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 室内ダストを含むマイクロプラスチック人暴露量の推定と経路間比較

掃除機で集められたゴミや埃の中には様々な色の微小片が含まれている。これらの多くはプラスチック片であり、人間は室内ダストから MP を経口摂取していると考えられる。このため、掃除機で採取したダストをふるいで分画して得られた粒径 250~1,000 μm の粒子を分析したところ、MP 濃度は 302,000 個/kg であることがわかった⁶⁾。ポリマーの材質はポリ塩化ビニル、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン等であり、ヒトは室内ダストから相当量の MP を摂取している可能性が示された。

そこで、1 日あたりダスト吸入量や室内滞在時間の割合等^{15,16)}を参考に、室内ダスト経路の MP 暴露量(個/kg 体重/day)を推定したところ、1~2 歳の子供は 1.5 個/kg 体重/day、大人(12 歳以上)は 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 個と試算された。この値は、食塩から摂取する年間の MP 数(4.7 個)の 427~1,048 倍であり、室内ダストは人間の MP 摂取に大きな影響を与える様子が伺えた。

Zhang *et al.* (2020)¹⁾は、ヒトの年間 MP 暴露量を「食塩」「飲料水」「呼吸」の 3 つの経路でそれぞれ試算した。その結果、食塩は $0\sim 7.3\times 10^4$ 個、飲用水は $0\sim 4.7\times 10^3$ 個、呼気が $0\sim 3.0\times 10^7$ 個であり、呼吸による MP 摂取量が他に比べて 3~4 桁も多いことを示した。また、人間は魚貝類から年間 53,864 個の MP を摂取しており、日本人はその倍以上の 130,466 個/年であるとの試算もある²⁾。以上を勘案すると、国内の市販食塩から MP は検出されるものの、その濃度やヒトへの暴露量は低く、食塩中の MP が直ちに健康影響を及ぼす可能性は小さいと考えられる。

4. 今後の課題

本研究は、2018 年度に採択されたソルト・サイエンス財団の研究課題「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」を実施し、そこでの追加課題に取り組み、内容の充実を図ることを目的に行われた。これまで西日本に偏っていた試料採集地を東日本に拡大し、北海道から沖縄県まで計 48 種類の市販食塩中 MP 濃度の知見が得られたことで、日本人の MP 摂取量を精緻に試算することが可能になった。また、食塩由来の MP 摂取量は他の媒体に比べてかなり少なかった

点は、食塩生産者に対する風評被害の抑制に資する知見として活用されよう。

一方で、新たな課題も見えてきた。まず、本研究で採用した MP の分析法では、微小な繊維の混入リスクを完全に排除することができない。実験の際に特殊なクリーンベンチを利用してコンタミネーションを極力減らすなどの対策が必要になる。

また、MP の暴露リスクを評価する上で重要なプラスチック添加剤の種類や濃度に関する知見が得られなかった。この理由は、食塩中の MP はかなり小さく、ジクロロメタン等の有機溶媒では分析装置(ガスクロマトグラフ質量分析装置; GC-MS)の検出下限値を超える添加剤の抽出が困難なためである。この問題を解決するため、MP そのものを瞬時に燃焼させその気体を GC-MS に直接導入する装置(パイロライザー)を新たに導入する予定である。MP 中の添加剤の種類と濃度を明らかになれば、ヒトへの暴露リスクや MP の起源特定に資する重要な知見が得られると思われる。

5. 文献

- 1) Zhang, Q., Xu, E. G., Li, J., Chen, Q., Ma, L., Zeng, E. Y., Shi, H. A review of microplastics in table salt, drinking water, and air: Direct human exposure. *Environ. Sci. Technol.*, 54, 3740-3751 (2020).
- 2) Danopoulos, E., Jenner, L. C., Twiddy, M., Rotchell, J. M., Microplastic contamination of seafood intended for human consumption: A systematic review and meta-analysis. *Environ. Health Perspect.*, 128, 126002 (2020).
- 3) 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).
- 4) 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 (2017).
- 5) Fadare, O. O., Okoffo, E. D., Olasehinde, E. F. Microparticles and microplastics contamination in African table salts. *Mar. Pollut. Bull.*, 164, 112006 (2021).

- 6) 中田晴彦, 原野真衣 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, 公益財団法人ソルト・サイエンス財団ホームページ (https://www.saltscience.or.jp/general_research/2018/201809.pdf)
- 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) 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).
- 9) Kosuth, M., Mason, S. A., Wattenberg, E. Anthropogenic contamination of tap water, beer, and sea salt, *PLOS ONE*, 1-18 (2018).
- 10) Iñiguez, M. E., Conesa, J. A., Fullana, A. Microplastics in Spanish table salt, *Scientific Report*, 7, 8620 (2017).
- 11) Gundogdu, S. Contamination of table salts from Turkey with microplastics, *Food Addit. Contam. Part A*, 35, 1006-1014, (2018).
- 12) Seth, C. K., Shrivastav, A. Contamination of Indian sea salts with microplastics and a potential prevention strategy, *Environ. Sci. Pollut. Res.* 25, 30122-30131 (2018).
- 13) Renzi, M., Blašković, A. Litter & microplastics features in table salts from marine origin: Italian versus Croatian brands, *Mar. Pollut. Bull.*, 135, 62-28 (2018).
- 14) 総務省 HP 食塩摂取量の平均値及び標準偏差 (https://www.e-stat.go.jp/statsearch/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), (2017).
- 15) 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).
- 16) 米国環境保護庁 (USEPA) HP (<https://cfpub.epa.gov/ncea/risk/recordisplay.cfm?deid=337521>)

6. 謝辞

本研究は、2020年度公益財団法人ソルト・サイエンス研究財団研究助成の支援を受けて実施しました。記して謝意を表します。

Microplastics in Commercial Salts Collected from Japan and its Risk Evaluation in Human

Haruhiko Nakata, Mai Harano

Faculty of Advanced Science and Technology, Kumamoto University, Japan

Summary

In recent years, there has been increasing public concerns in microplastic pollution and their impact on marine ecosystem. The huge number of microplastics are detected in seawater, thus microplastics are also identified in commercial salts produced by seawater at the highest concentration of 31,680 pieces/kg in Croatia. The ubiquitous detection of microplastic in table salts have been reported in many countries, but little information is available on the occurrence and abundance in Japanese salts. In this study, 48 commercial salts obtained from 15 prefectures in Japan were analyzed for microplastic to understand the status of pollution and estimate the amount of dairy intake in human. Approximately 100 grams of salts dissolved in 1 L of ultra-pure water was sieved by a 100 mm mesh nylon filter. Solid particle, fragment and fiber on the filter were collected individually and analyzed for polymers using FT-IR. As the results, 6 microplastics were identified in 6 of the 48 commercial salts analyzed. The polymer types were polyethylene, polyurethane, and polypropylene. These microplastics may be either obtained in original seawater or was inserted in salts accidentally during the manufacturing process. The average abundance of microplastics was 1.3 pieces/kg in Japanese commercial salts, which are apparently lower than those in other countries. It was estimated that 4.7 microplastics were ingested by salt annually in Japanese. This value was 3 to 6 orders of magnitude lower than those from indoor dusts, inhalation, and seafood consumption, suggesting less pollution and adverse effects of microplastics in Japanese salts.