

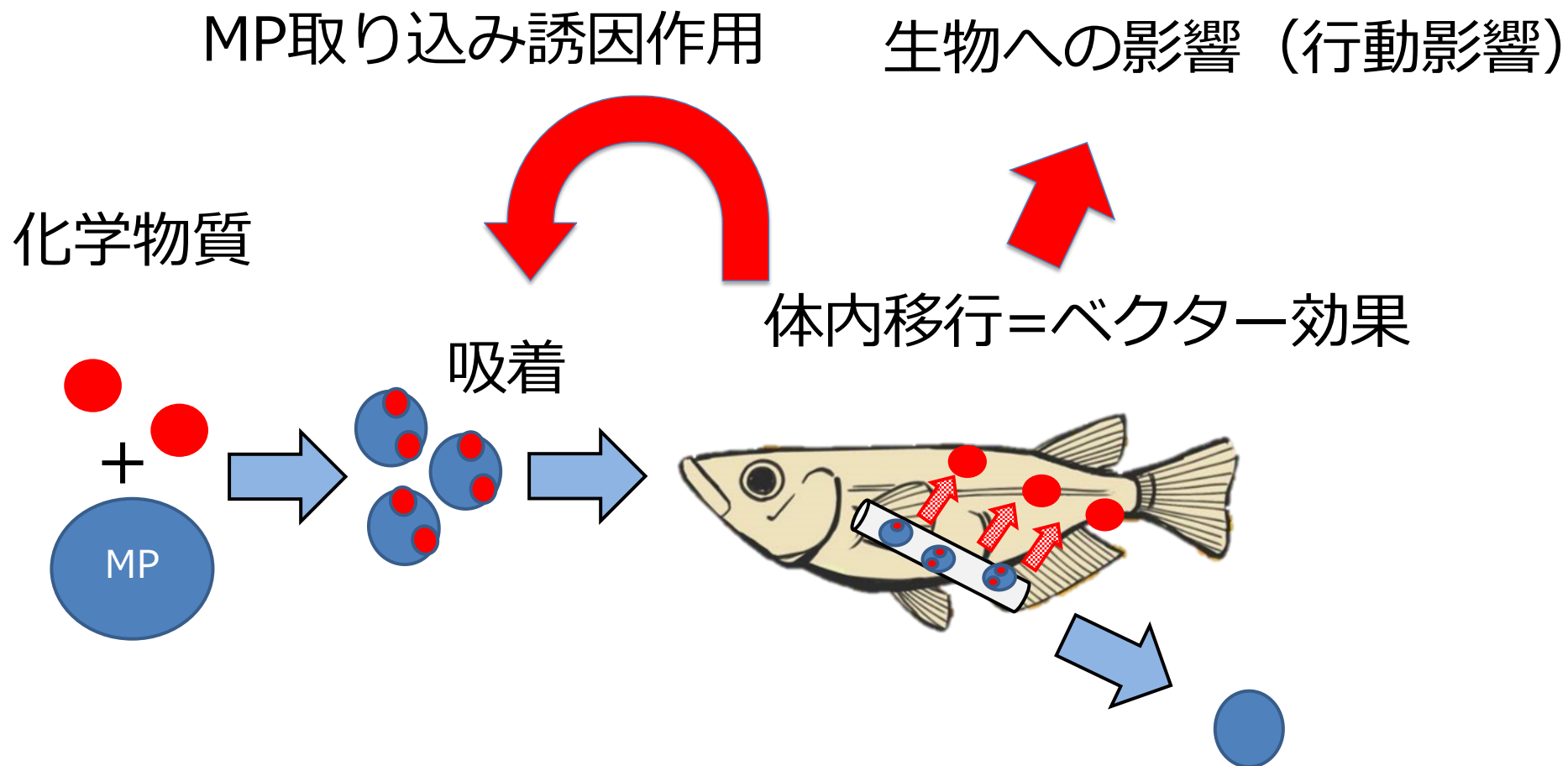
マイクロプラスチックのベクター効果推定モデル構築 とそれを用いた実環境中での影響予測

九州大学農学研究院

大嶋 雄治

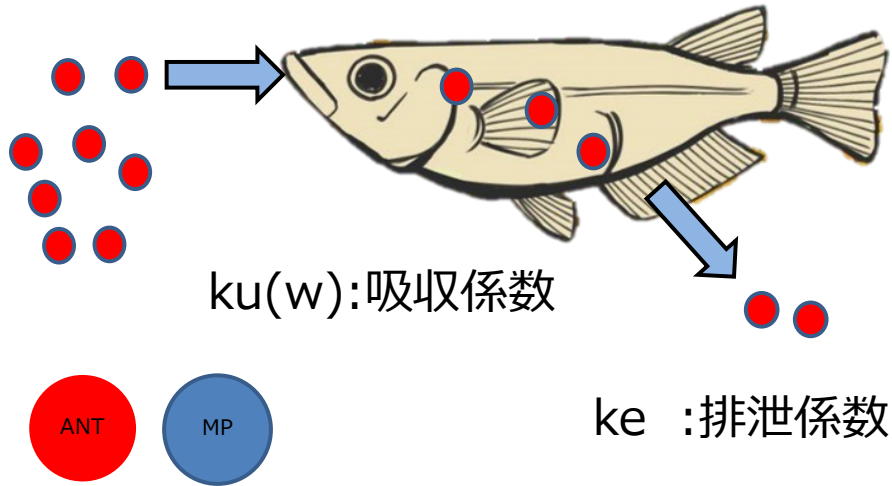


MPによる化学物質蓄積へのベクター効果



ベクター効果推定実験 (アントラセン-水 or アントラセン-水+MP 共曝露 の比較)

I) アントラセン(ANT)-水曝露

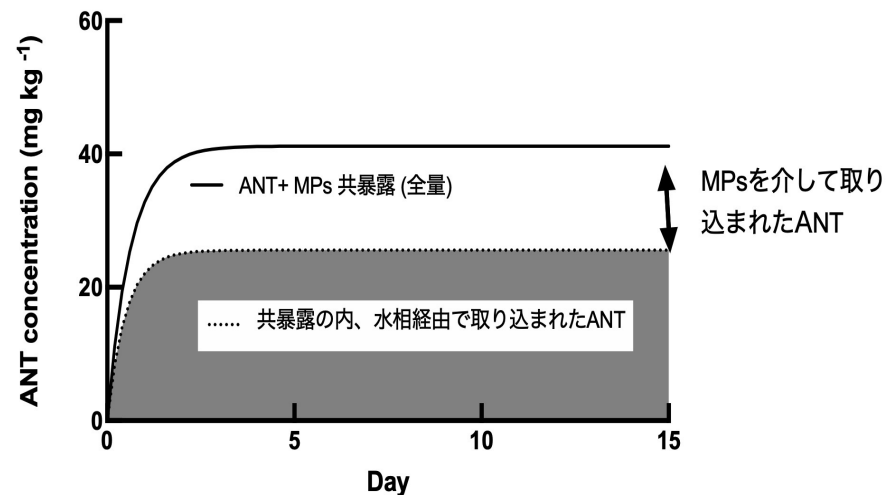
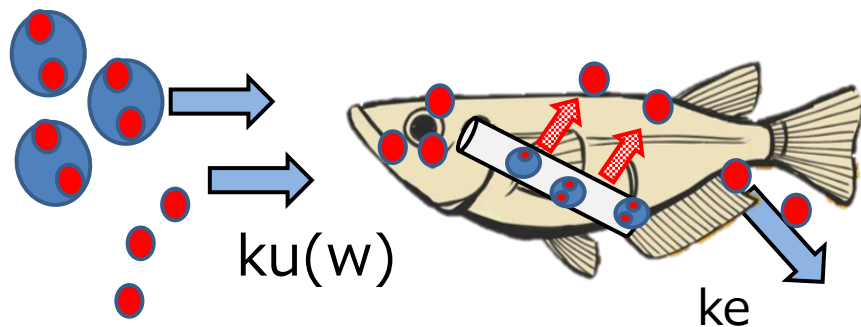


1) ANT単独曝露区において $ke, ku(w)$ を求めコンパートメントモデルを作る

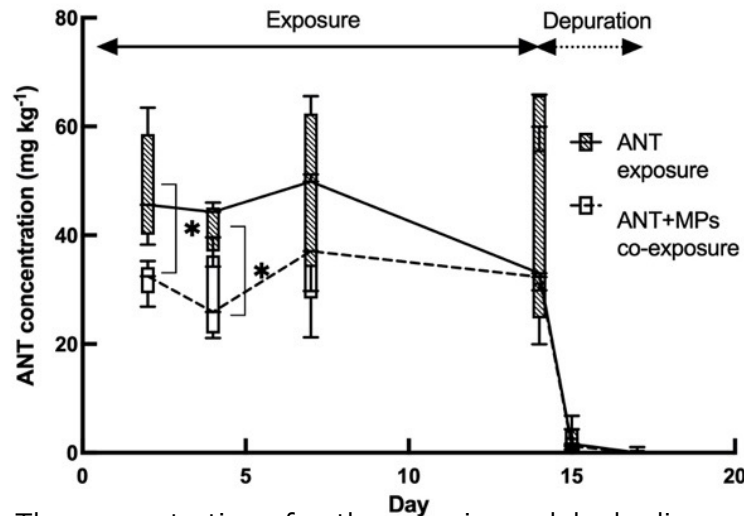
2) 共曝露区の魚体内ANT濃度において

- ・水中ANT濃度から水経由ANTの割合をコンパートメントモデルで推定
- ・全体内濃度との水経由ANTとの差からMP経由ANTを予測 (ベクター効果)

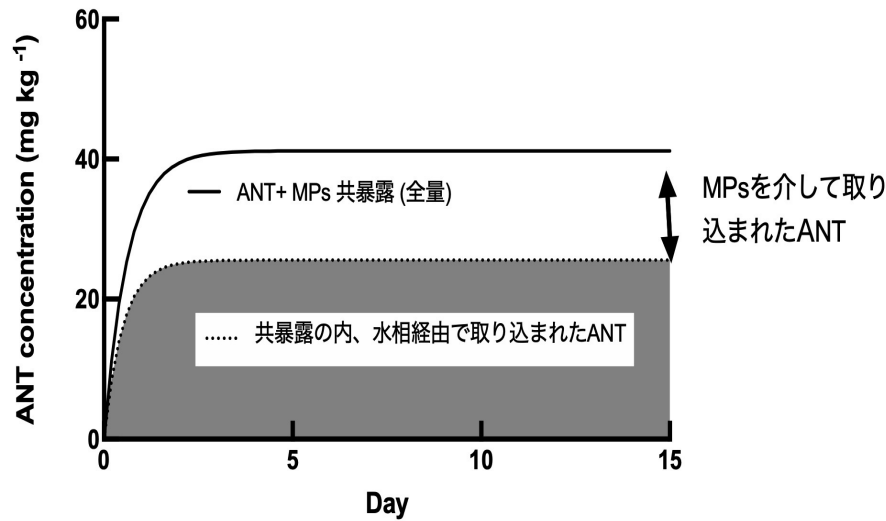
II) アントラセン-水+MP共曝露



先行研究) ANT (0.1 mg/L)と58 μm 粒状PE (100 mg/L) を同時曝露したメダカにおける体内ANT濃度



The concentration of anthracene in medaka bodies exposed to 0.1 mg L⁻¹ for 14-day exposure and 3-day depuration in ANT exposure and ANT+MP co-exposure groups (n = 5)



Quantifying the vector effects of polyethylene microplastics on the accumulation of anthracene to Japanese medaka (*Oryzias latipes*)

Xuchun Qiu^{a,b}, Souvannasing Saovany^b, Yuki Takai^b, Aimi Akasaka^c, Yoshiyuki Inoue^c, Naoaki Yakata^c, Yangqing Liu^b, Mami Waseda^b, Yohei Shimasaki^b, Yuji Oshima^{b,d,*}

Table 1

Pharmacokinetic parameters of anthracene (ANT) in Japanese medaka (*Oryzias latipes*) in the ANT exposure and ANT-MPs co-exposure groups.

Parameters	ANT exposure	ANT-MPs co-exposure
ANT in water (on day 14; mg/L)	0.037	0.074 (containing MPs)
ANT in medaka (on day 14; mg/kg)	42.8	41.1
Bioconcentration factor (BCF; L/kg)	1170	556 (containing MPs)
Uptake rate constant (k_u , L/kg/day)	2432	1078
Depuration rate constant (k_e , /day)	2.08	1.94

PE-MPはアントラセンに対しベクター効果を持つ

ベクター効果に影響を及ぼす予想因子

- MP濃度
- 粒径・形状
- 化学物質の種類
- 劣化度

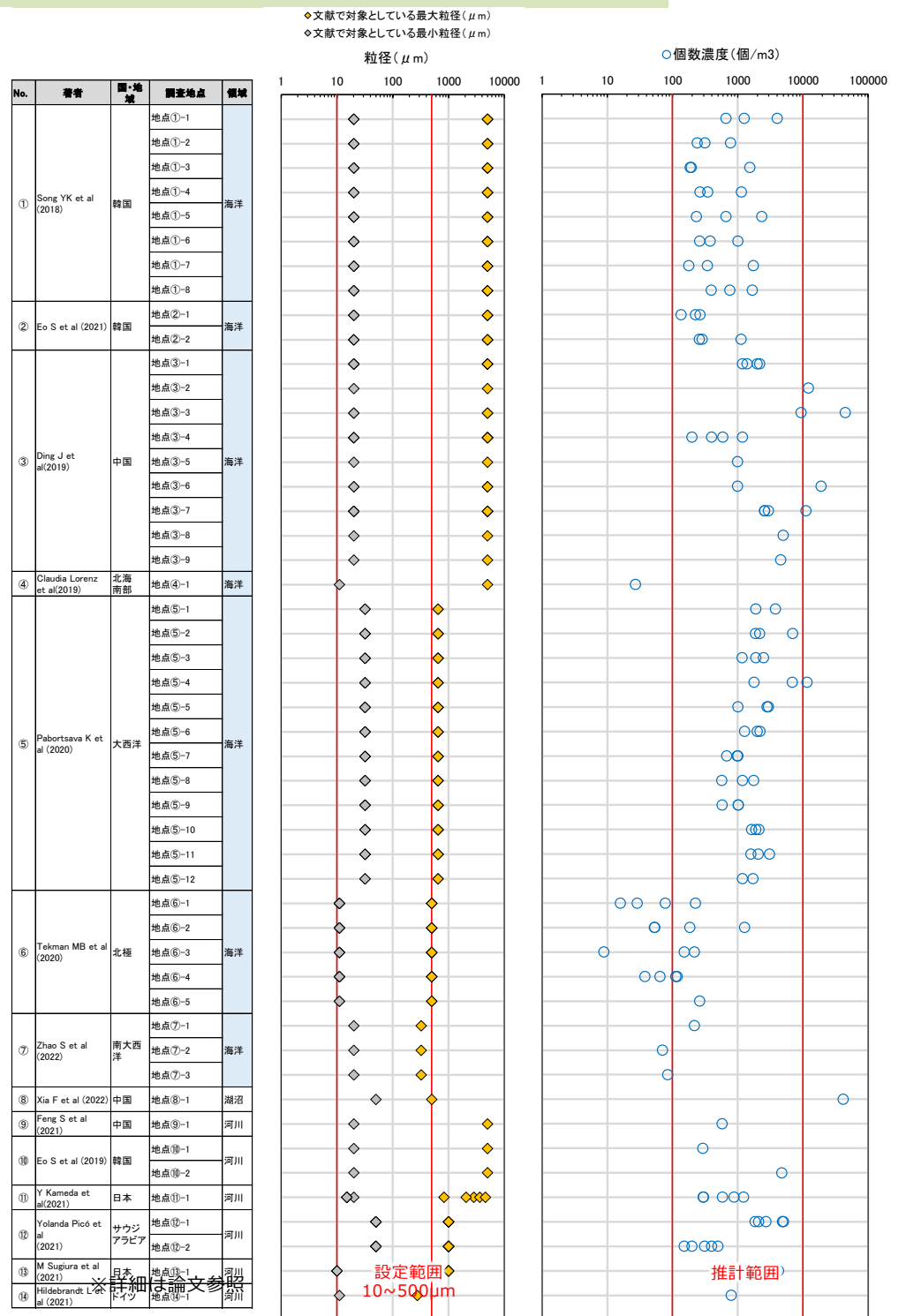


実験に使用したモデルPE粒子
(高結晶度、低分子PE)

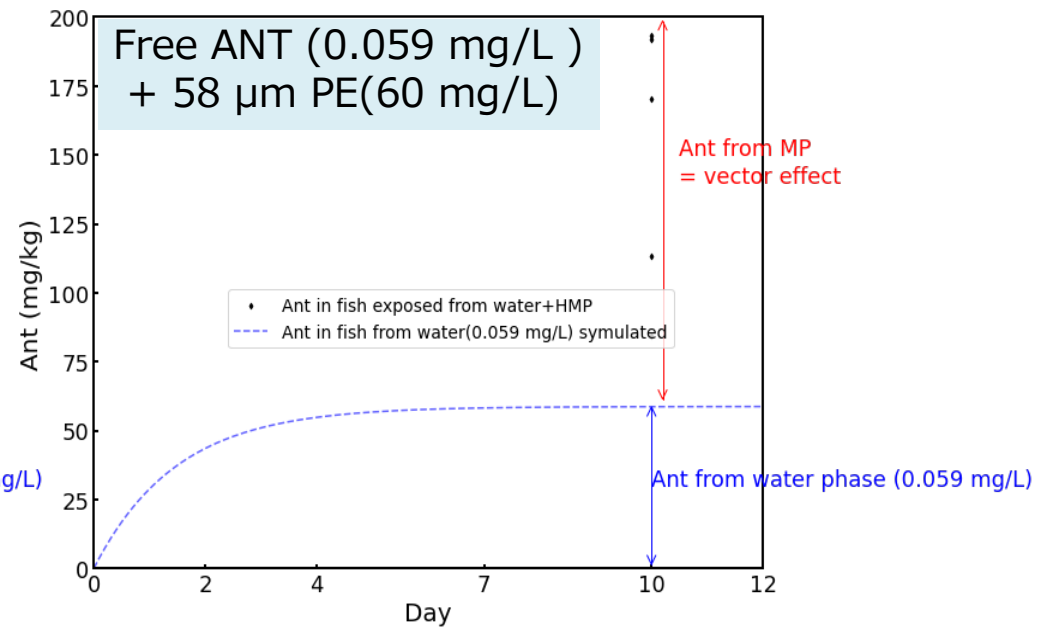
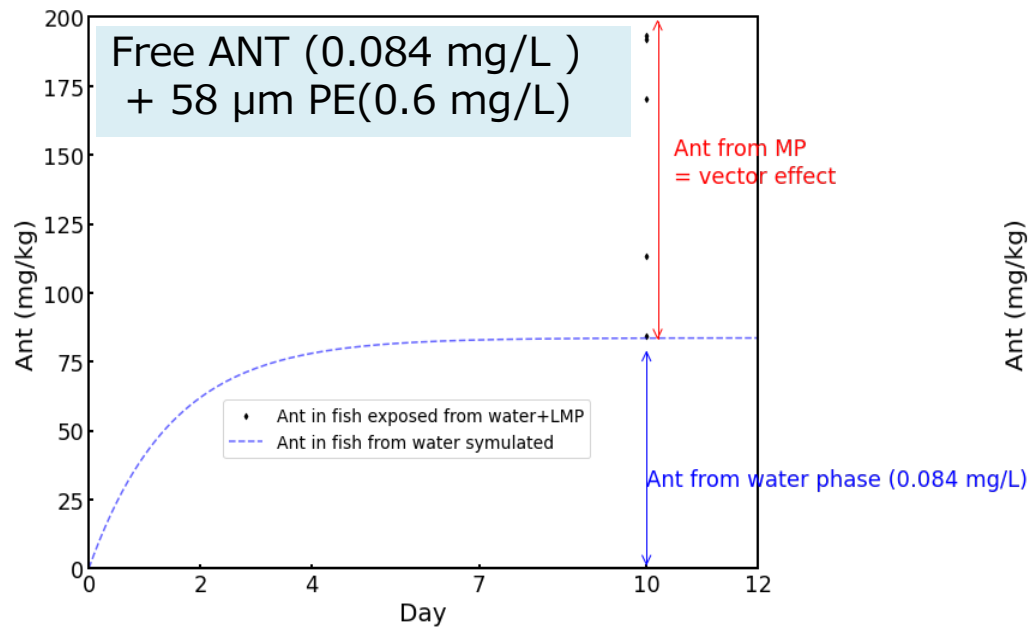
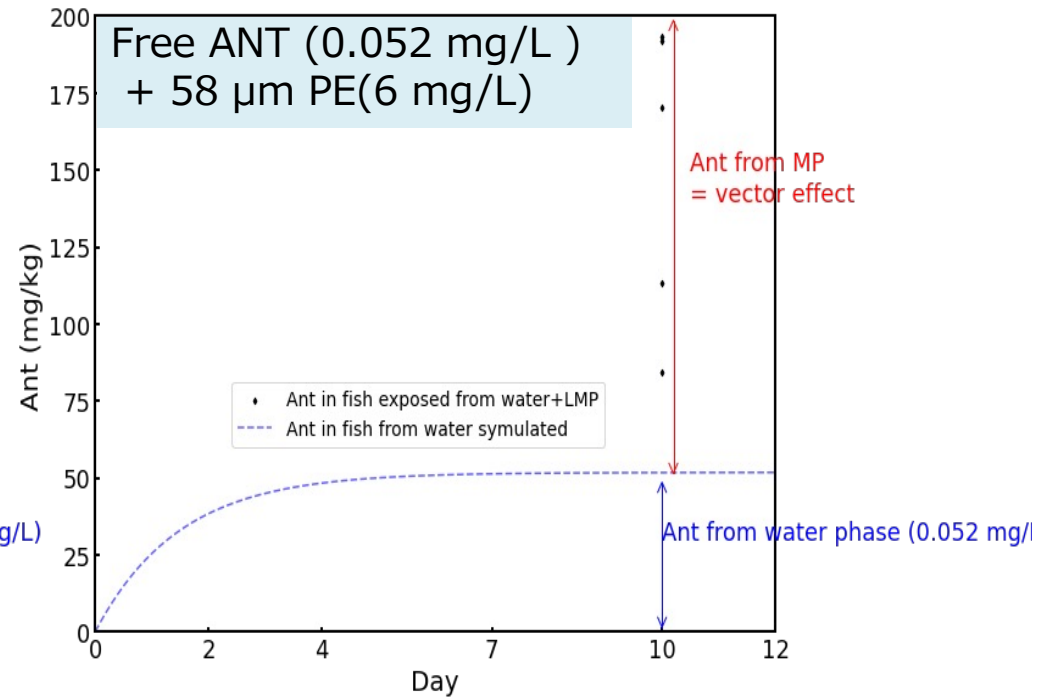
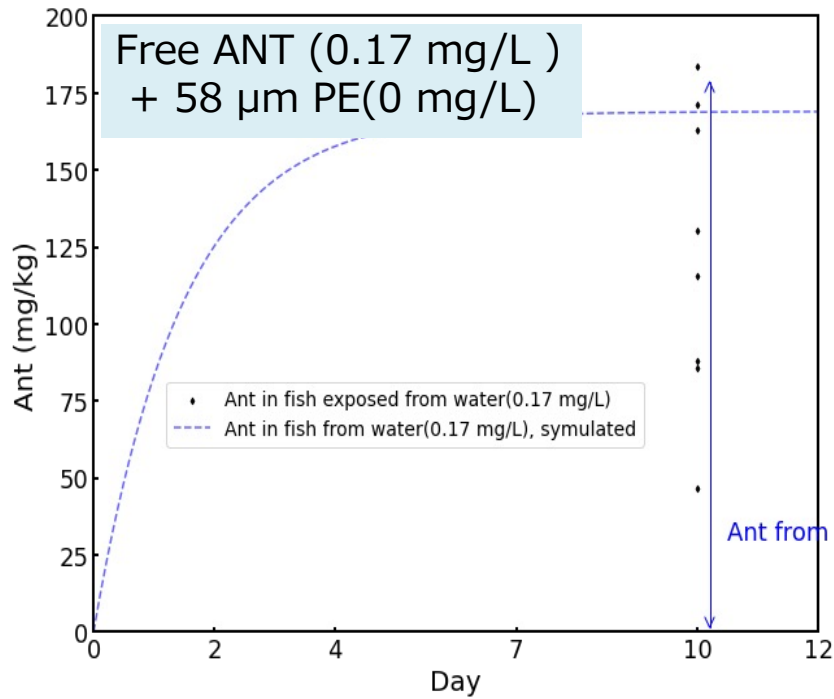
MPの実測濃度

- 文献が対象としている、粒径（最大、最小）と個数濃度を右に示す。粒径に関しては、現時点（2023年3月現在）で報告されている範囲では、10 μ m付近が測定下限値であると考えられる。
- 個数濃度に関しては、地域や海洋/湖沼/河川によって偏りはあるものの、およそ100~10,000個/m³の範囲で検出されており、従来の330 μ m以上を対象としている環境省の調査結果（1~4個/m³）と比較して2~4桁程度高い濃度で検出されている。
- Cozar et al.(2014)の推計式に従って算出された粒径10~500 μ mのMPsの環境中濃度は、個数濃度ベースで100~10,000個/m³オーダーであり、この範囲に実測値がおよそ収まる結果となった。既存文献の実測値と推計結果に矛盾がないことを確認。

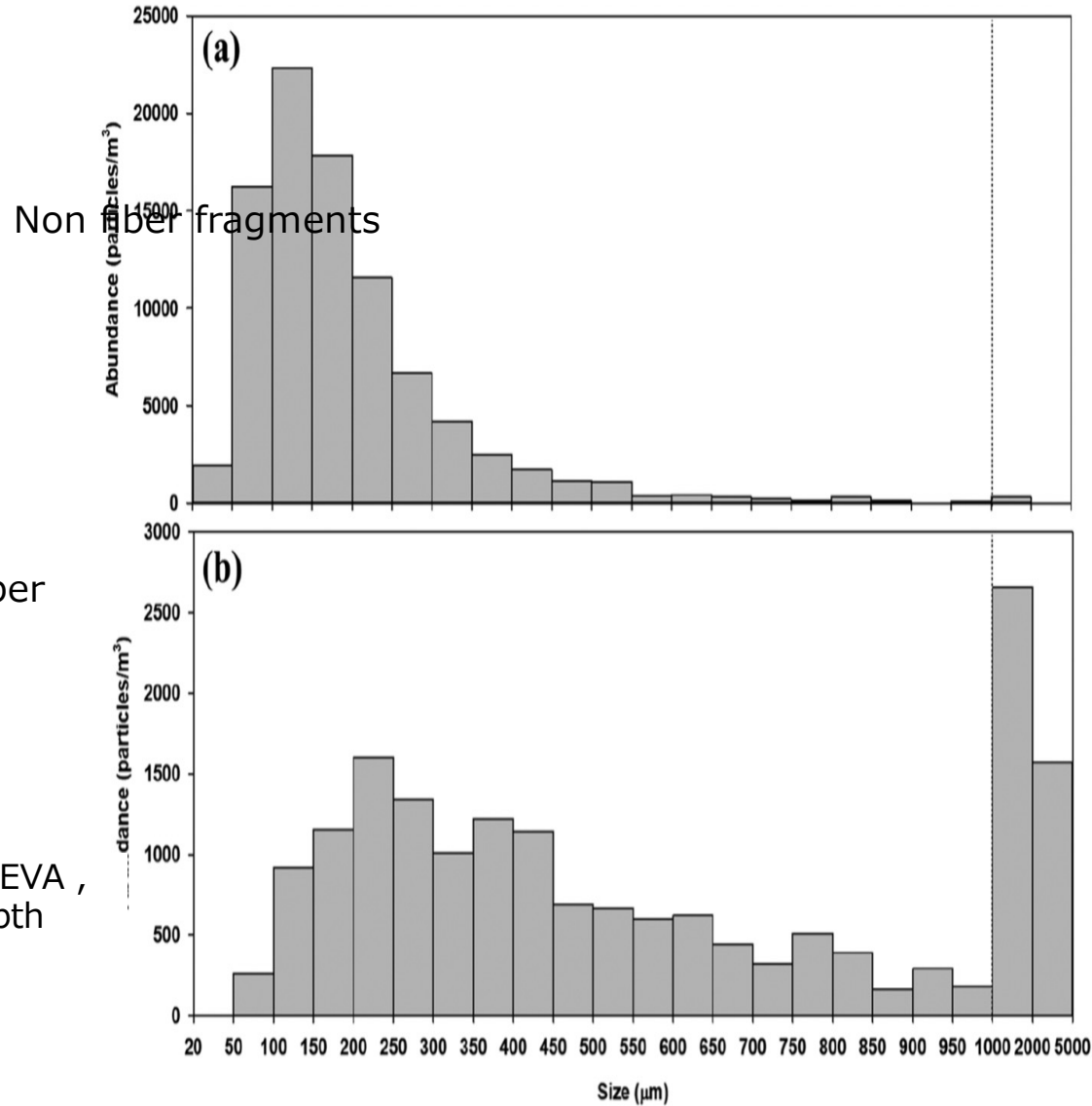
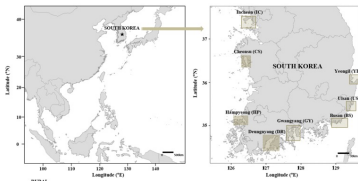
令和4年度環境省事業（継続中）



1) ANT (0.2 mg/L)と58 μm PE(0, 0.6, 6, 60 mg/L) を同時曝露したメダカにおける体内ANT濃度



MPはサイズ、質、形状、表面特性、劣化度等が異なる



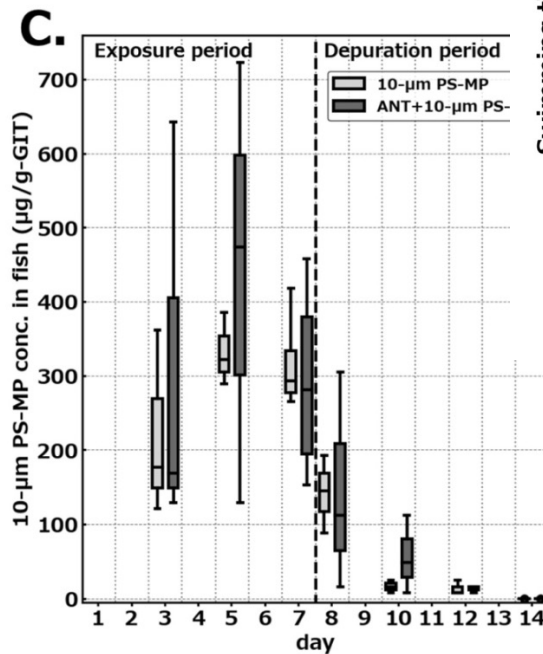
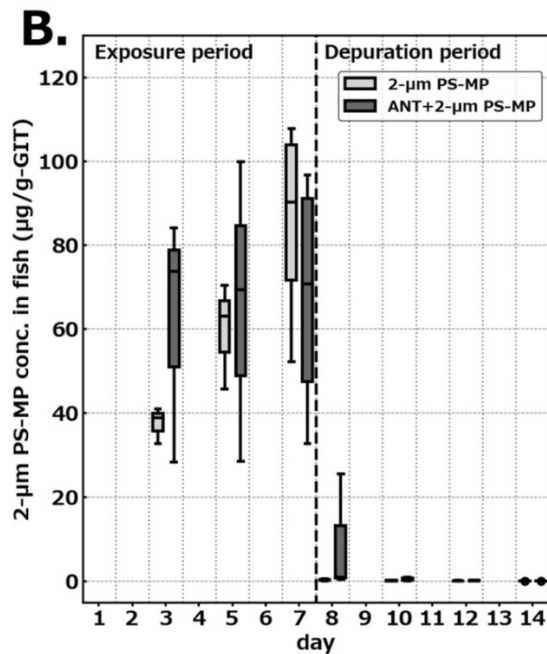
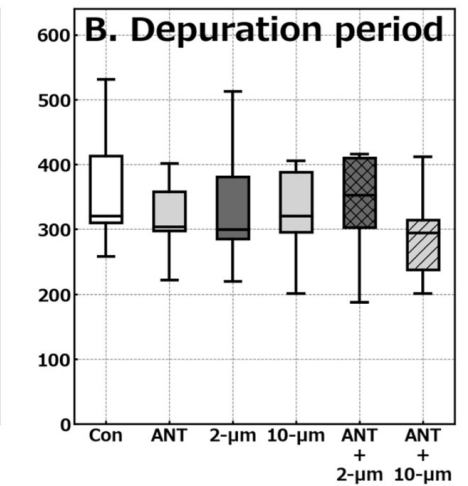
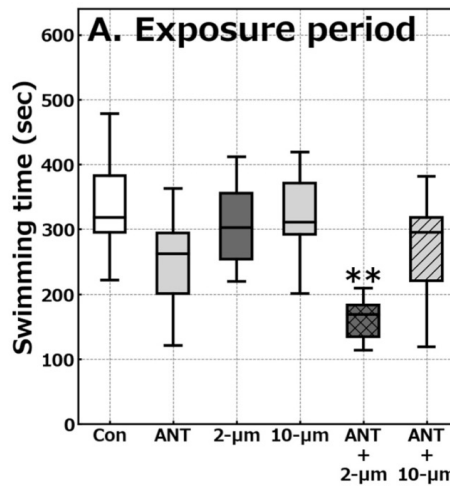
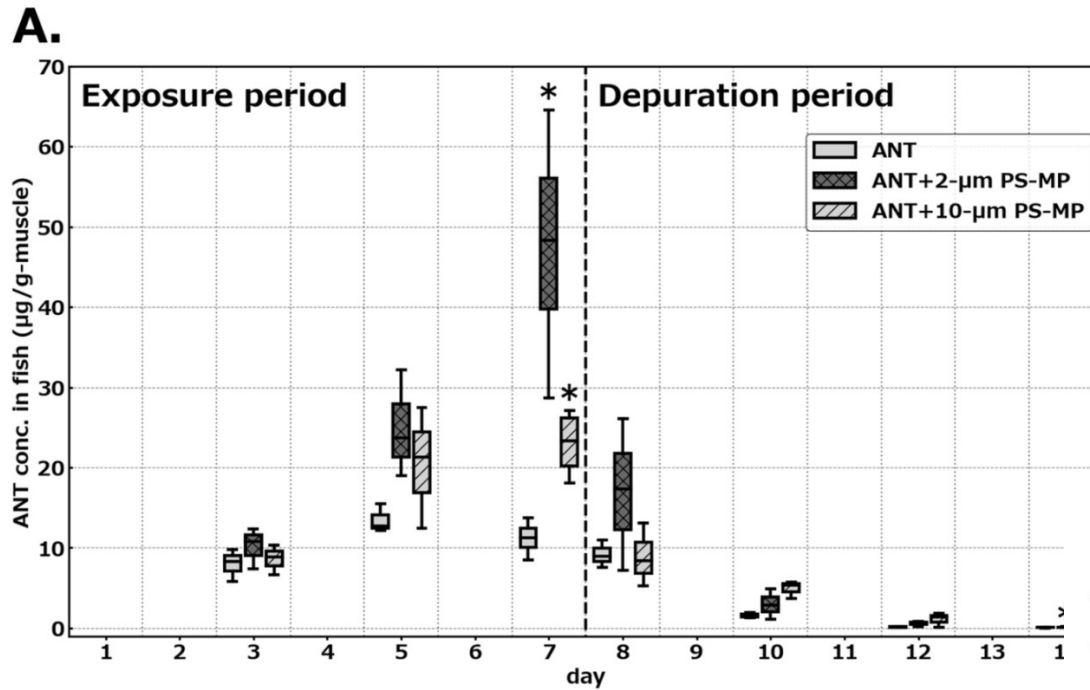
PP, 41±17%; PE, 21±15%; EVA, 19±20% in all sampling depth

- MP平均7.3 mg/m³検出、2060年には1000 mg/m³を越える海域 (Isobe, 2019, 2020)が出現
- 調査のほとんどは目開き300 μmのニューストーンネットで採取、それ以下のMPは不明
- Songら(2018) 研究 韓国沿岸で20 μmのフィルターろ過してMPを計測 (→)
 20 μm以上MPが存在、組成もPP, 41%; PE, 21%; EVA, 19% (20 μm以下はわからない)

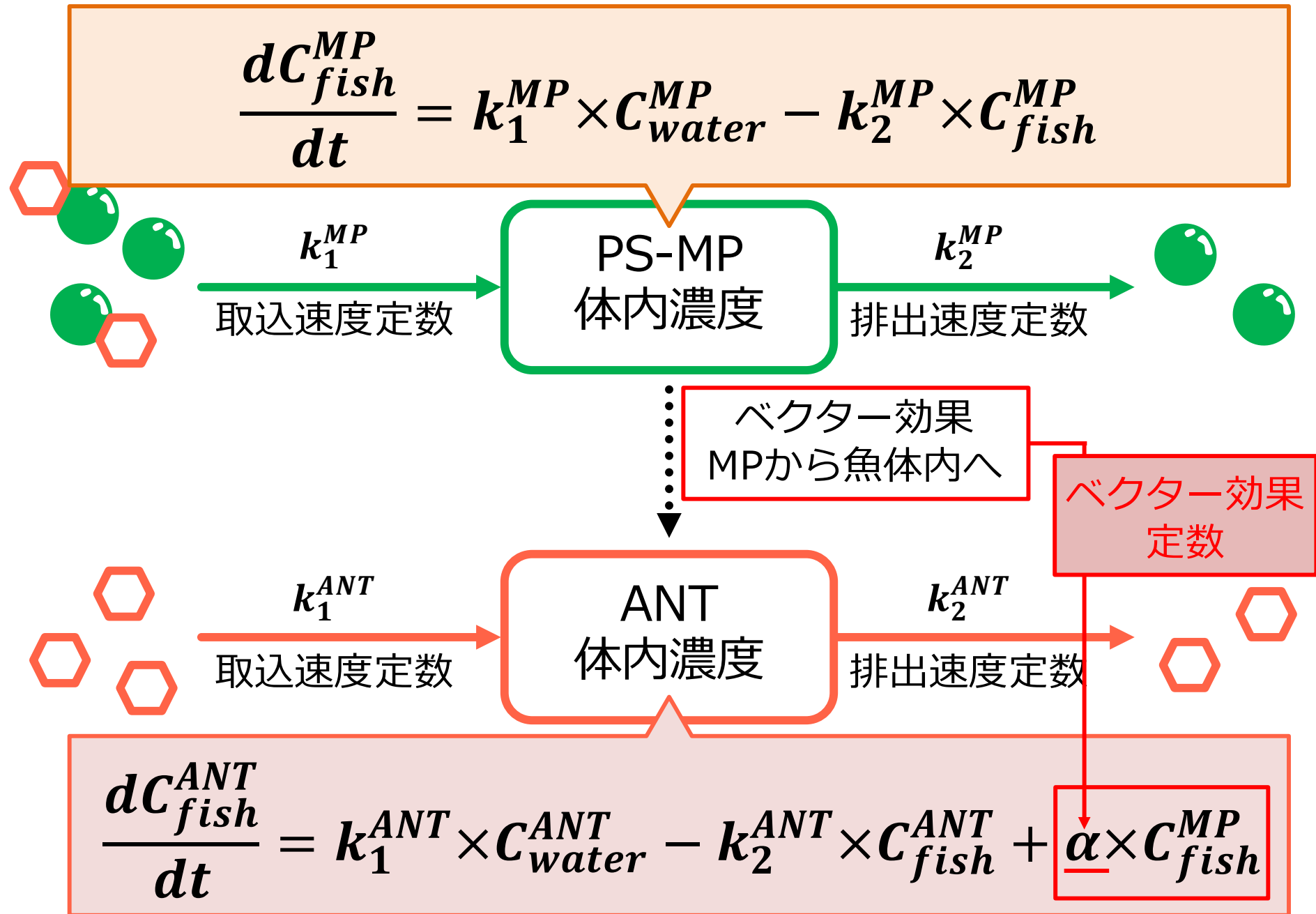
ANTと2, 10- μm PS-MP (0.1 mg/L)を共曝露したジャワメダカ体内濃度

Size effect of polystyrene microplastics on the accumulation of anthracene for Java medaka (*Oryzias javanicus*)

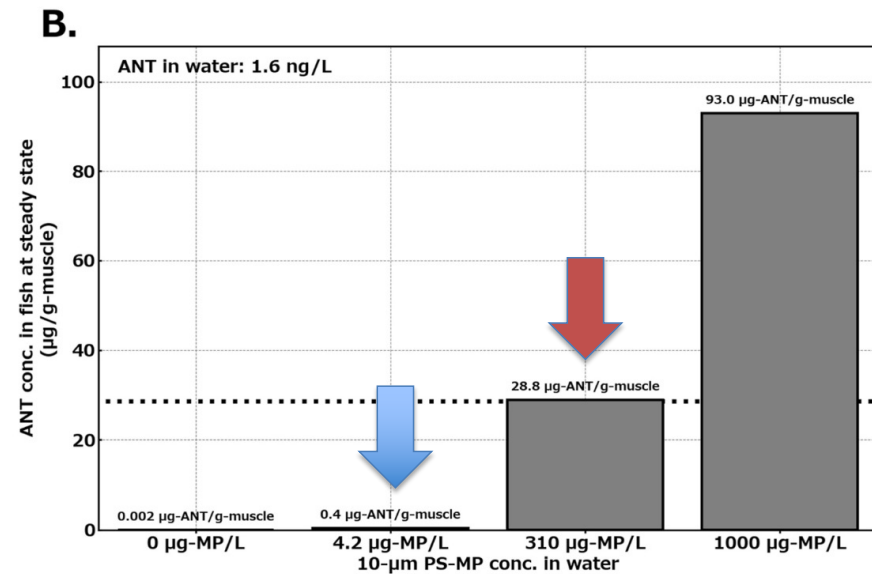
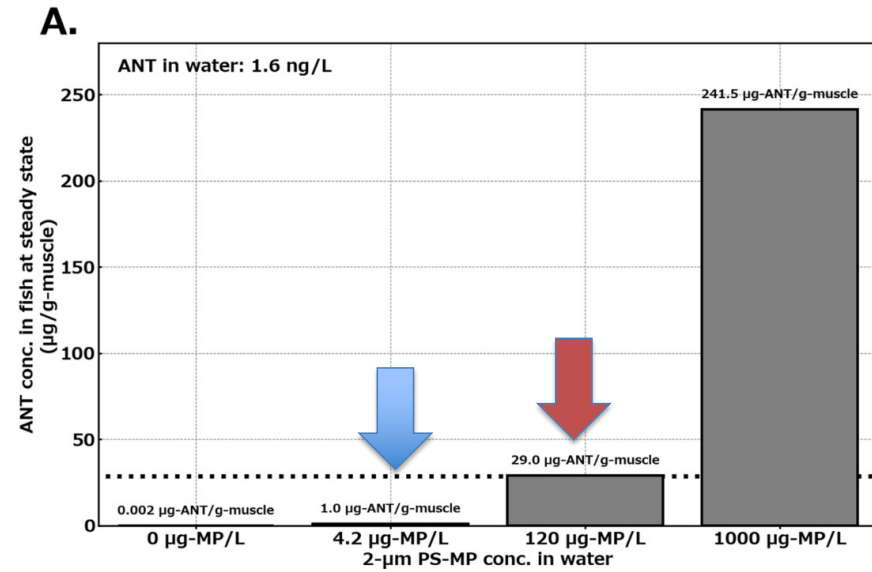
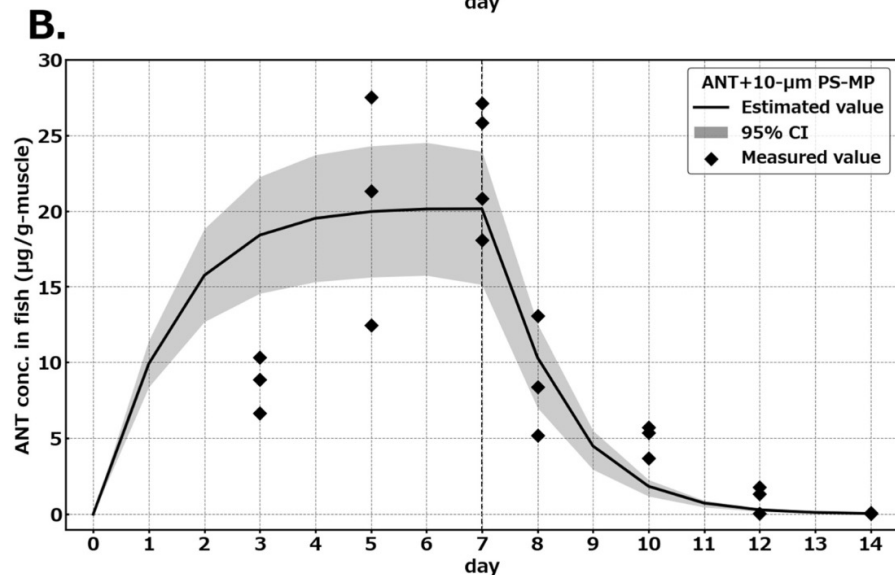
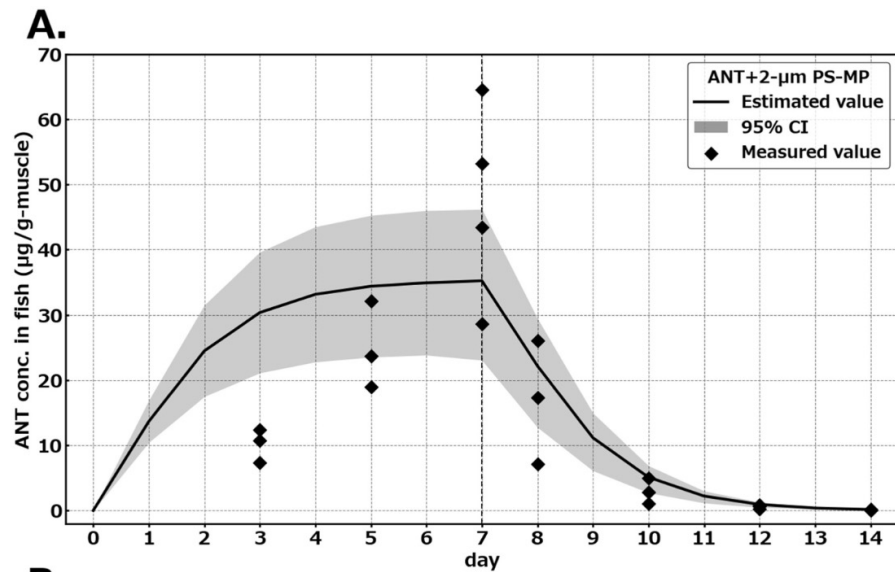
Yuki Takai^a, Akiyo Tominaga^a, Yukiya Uchida^a, Masato Honda^b, Xuchun Qiu^c, Yohei Shimasaki^a, Yuji Oshima^{a,d,*}



ツイン1-コンパートメントモデル



2) ANTと10- μm PS-MP を共曝露したジャワメダカの体内濃度の予想

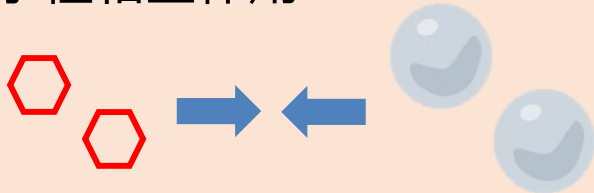


実環境でANTに対するMPのベクター効果は起こりにくく、高いANT濃度 (28 $\mu\text{g/L}$) とMP濃度 (10 μm , 0.12 mg/L) で遊泳阻害が起こると予想される (Takai et al. 2022)

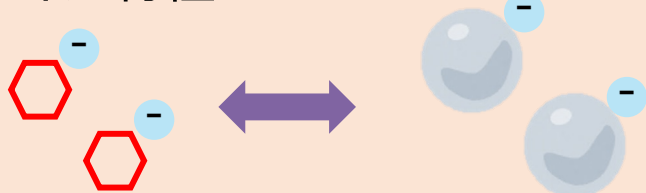
MPにおいて化学物質の吸着に及ぼす因子

化学物質の特性

- ・疎水性相互作用

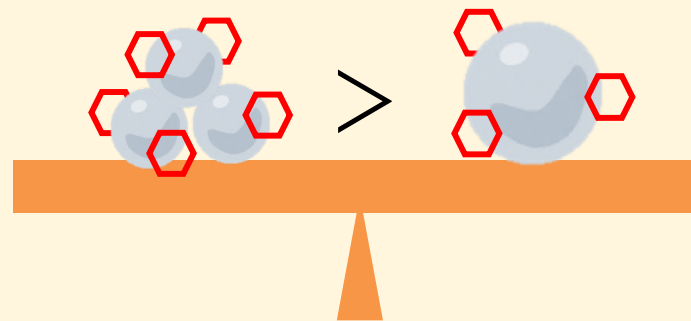


- ・イオン特性



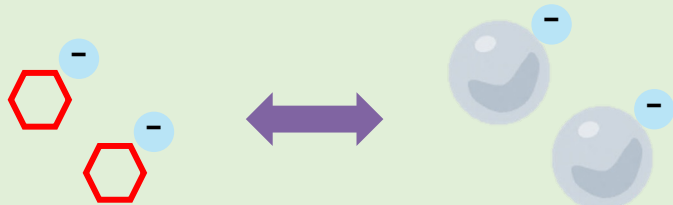
MPの特性

- ・比表面積

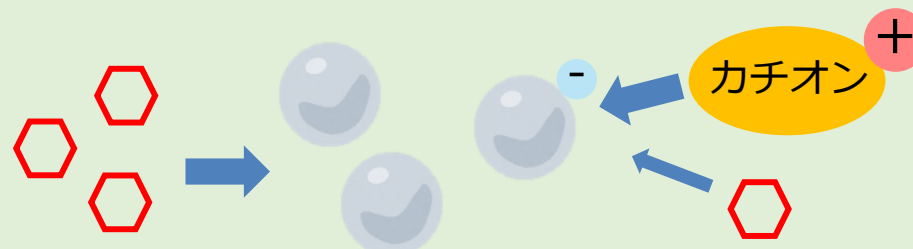


水質の要因

- ・アルカリ性条件下



- ・イオン強度



化学物質とMPの吸着には
化学物質の特性、MPの特性、水質の要因が関わっている

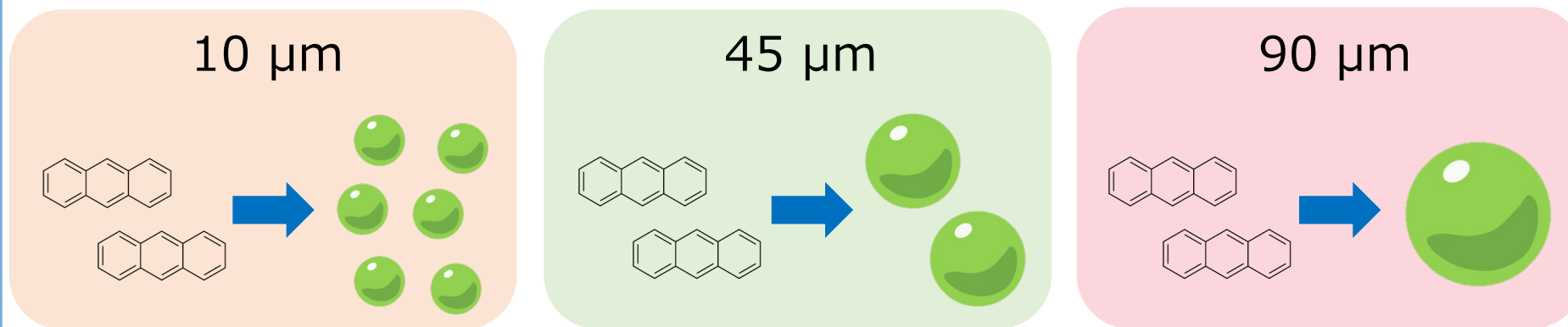
Fu et al. (2021)

研究目的

粒径の異なるMPを用い化学物質の吸着を調べ
ベクター効果に及ぼす粒径の影響について調べる

概要

アントラセン及び粒径の異なるPS-MPを使用した吸着試験

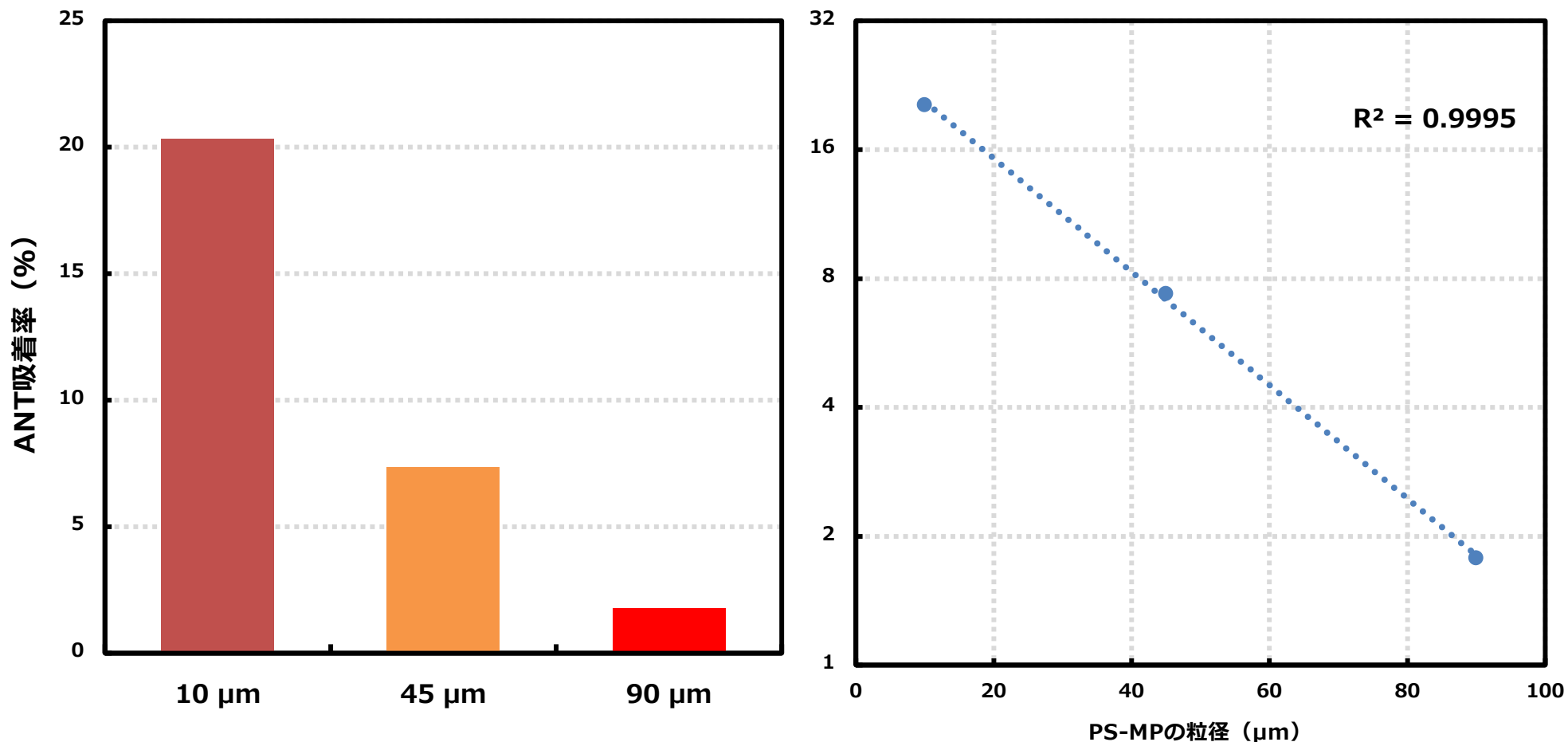


各PS-MPに吸着したアントラセン量を測定



MPの粒径による吸着量の変化を調べる

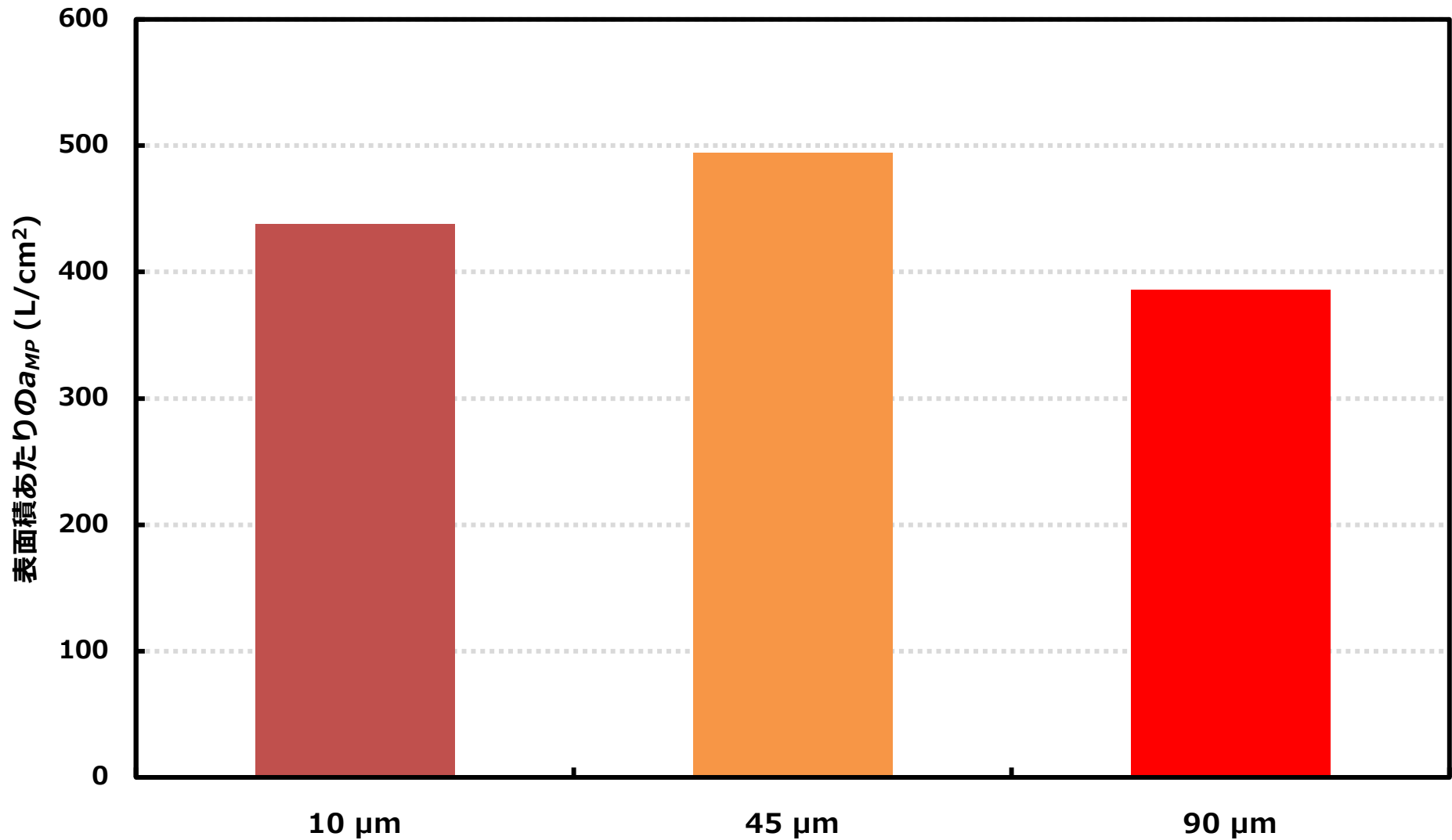
3) 10, 45, 90 μm PS-MPにおけるANTの吸着



各PS-MPに対する7日目におけるANT吸着率

粒径の小さいMPほどアントラセン吸着率が高く
粒径の大きいMPほどアントラセン吸着率が低い

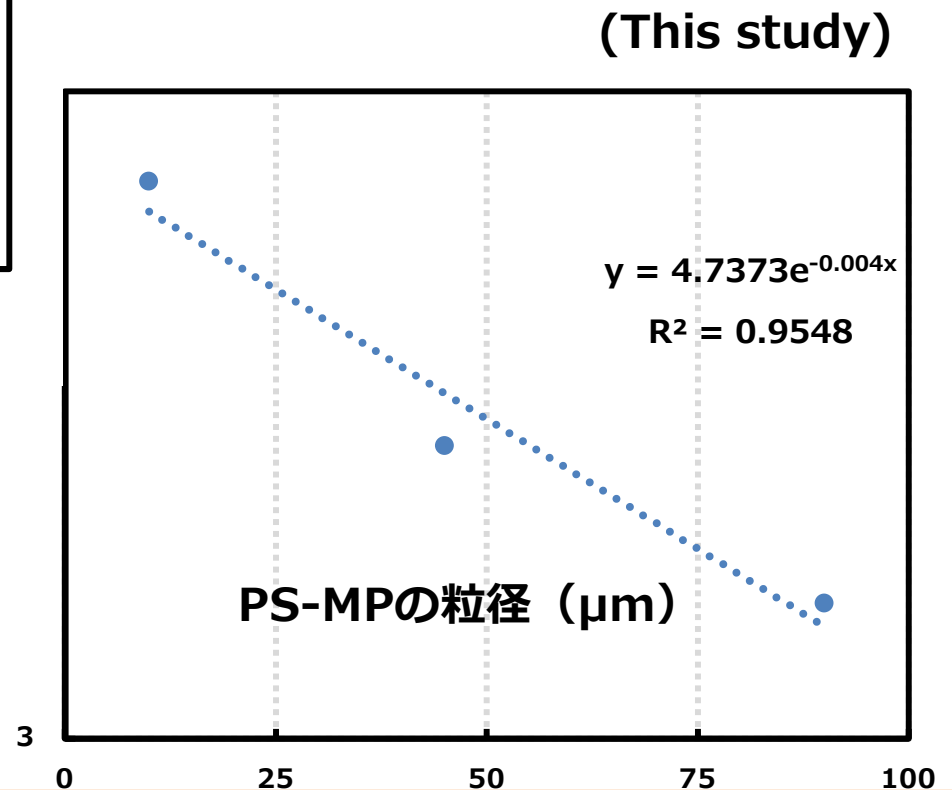
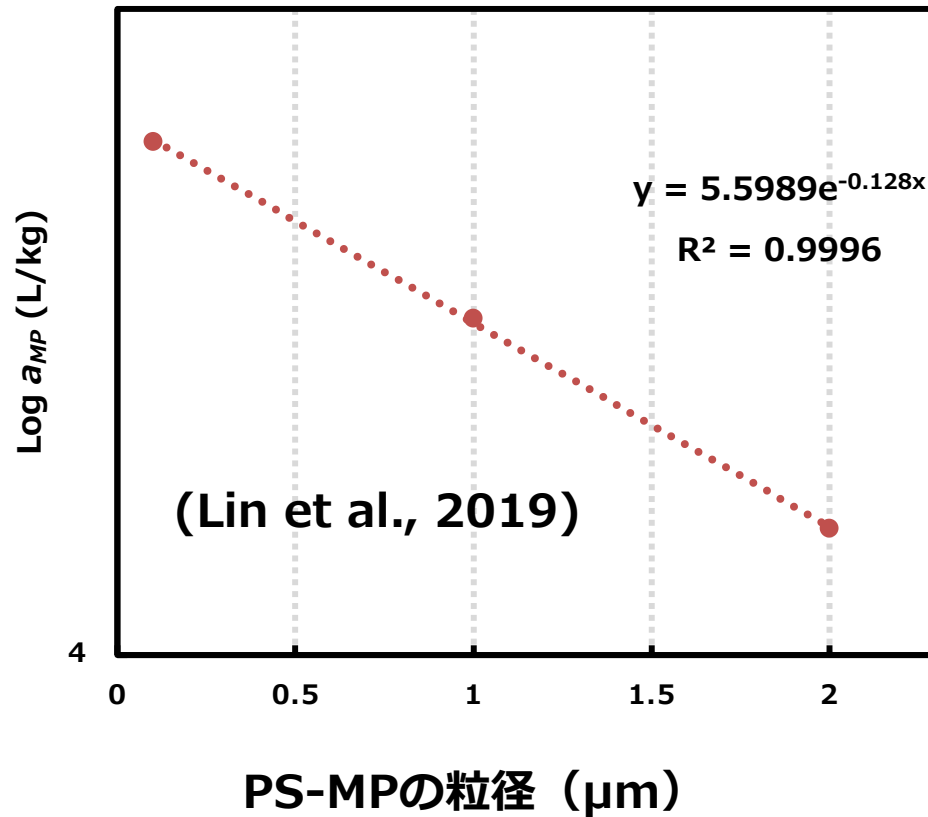
表面積あたりの吸着(10, 45, 90 μm PS-MPにおけるANTの吸着)



表面積あたりの吸着は粒径に関わらずほぼ同程度

重量あたりのANT吸着係数

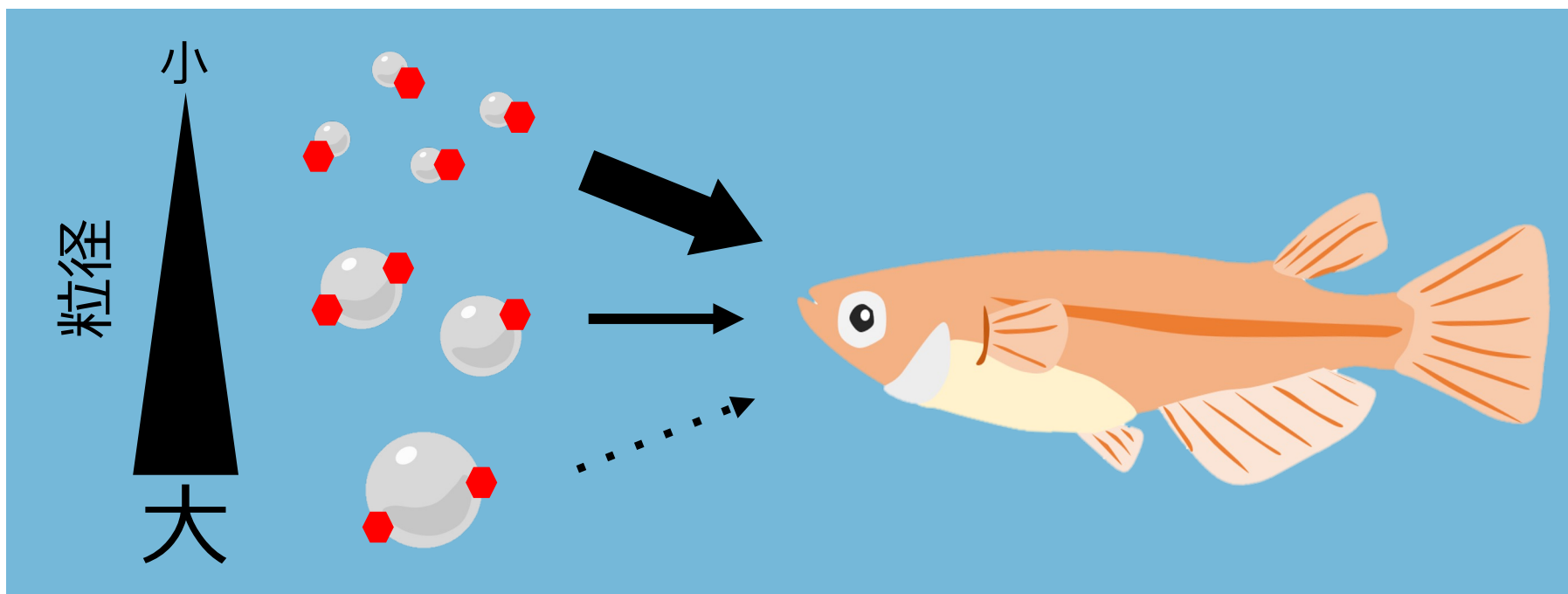
各PS-MPにおける重量あたりの吸着係数 (Log a_{MP})



粒径が小さいMPほどアントラセン吸着量が増加
先行研究(Lin 2019) も粒径が小さいほど吸着係数が大きくなる

結論

- 粒径の小さいMPほどアントラセン吸着量が増加
→ **比表面積が大きい**ため
- 粒径の小さいMPのベクター効果の影響が懸念され
粒径の大きいMP (100 μm 以上) のベクター効果は
ほぼ無視できる



概要 本年度は、淡水、海産メダカにクロロベンゼン (CBs) とアントラセン (ANT) をマイクロプラスチック (MP) に種々の条件で共曝露して、ベクター効果を検討した。その結果、クロロベンゼン類 (logPow 4.19-5.73) ではベクター効果が観察できなかったが、アントラセン (logPow4.45) ではベクター効果が再確認された。よって化学物質のlogPow値が近くともその性質でベクター効果は大きく異なる可能性が示された。

1) 淡水ヒメダカ-ANT+濃度の異なる58- μm PE-MP共曝露実験： ANT (200 $\mu\text{g/L}$)、ANT+低濃度PE-MP (0.6 mg/L) 共曝露区、ANT+中濃度PE-MP (6 mg/L) 共曝露区、ANT+高濃度PE-MP (60 mg/L) 共曝露区を調整し、ヒメダカ (38尾/区) に10日間曝露後、4日間排泄させ、10, 11, 12, 13, 14日目にサンプリングした。得られたメダカ体内ANT体内濃度から、ベクター効果が再確認された。ツインコンパートメントベクターモデルを用いてMP濃度による影響を検証した結果、MP濃度の増加とともにベクター係数は減少した。

2) 実環境中におけるANT-MPベクター効果の予測： 海産ジャワメダカへのアントラセン (ANT)+異なるサイズ (2, 10- μm) のPS-MP曝露の結果から得られたデータを用い、ツインコンパートメントベクターモデルで実環境で想定されるベクター効果を評価した。その結果、実環境でANTに対するMPのベクター効果は起こりにくいと予想された。

3) ANTの吸着に及ぼすPS-MP粒径の影響： ANTに対する粒径10, 45, 90 μm のPS-MPの吸着を調べた結果、粒径が小さいほど比表面積が大きくなり、吸着量が増加するが、粒径が大きくなると逆に吸着量が減少し、ベクター効果が弱まると予想された。

4) 淡水ヒメダカ-CBs+濃度の異なるPE-MP 7日間共曝露実験： CB類 (CBs; TriCB: 10 $\mu\text{g/L}$, TetCB: 10 $\mu\text{g/L}$, PenCB: 10 $\mu\text{g/L}$, HexCB: 8 $\mu\text{g/L}$) 共曝露区、CBs+低濃度破碎PE-MP (0.1 mg/L) 共曝露区、CBs+高濃度破碎PE-MP (1.0 mg/L) 共曝露区を設定し、ヒメダカ (33尾/区) に7日間曝露後、5日間排泄させ、3, 5, 7, 9, 12日目にサンプリングした。その結果、魚体CBs濃度はPE-MP共曝露区で水曝露区と有意な差がなく、ベクター効果は認められなかった。

5) 淡水ヒメダカ-CBs+粒径の異なるPS-MP共曝露実験： CBs (CBs; TriCB: 10 $\mu\text{g/L}$, TetCB: 10 $\mu\text{g/L}$, PenCB: 10 $\mu\text{g/L}$, HexCB: 8 $\mu\text{g/L}$) 曝露区、CBs+10- μm PS-MP(0.1 mg/L)共曝露区、CBs+45- μm PS-MP(0.45 mg/L)共曝露区を設定した。なお、10 と 45- μm MPの表面積が同じなるように濃度を調整した。ヒメダカ (33尾/区) に7日間曝露後、5日間排泄させ、7, 8, 9, 10, 12日目にサンプリングした。その結果、共曝露区でCBs濃度は水曝露区と差がなくむしろ低下しており、ベクター効果は認められなかった。

発表論文

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. 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.
5. 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.
6. マイクロプラスチックを介した化学物質の蓄積における劣化と形状の影響. 大嶋雄治、島崎洋平、高井優生、内田祐紀哉. *日本接着学会誌*, 2022年
7. マイクロプラスチックのメダカ体内動態とそのベクター効果の推定 大嶋雄治、島崎洋平. *科学と工業*, 2022年
8. Takai Y., Tokusumi, H., Sato, M., Inoue D., Chen K., Takamura T., Enoki S., Ueno Y., Kang I. J., Shimasaki Y., Qiu X., Oshima Y., Combined effect of diazepam and polystyrene microplastics on the social behavior of medaka (*Oryzias latipes*), *Chemosphere* 299, 134403.
9. Takai Y., Tokunaga M., Honda M., Qiu X., Shimasaki Y., Kang I.J., Oshima Y., Size effect of polystyrene microplastics on the accumulation of anthracene for Java medaka (*Oryzias javanicus*). *Chemosphere*, 338, 13954 (2023).
10. Takai Y., Tominaga A., Honda M., Qiu X., Shimasaki Y., Kang I.J., Oshima Y., Combined effect of anthracene and polyethylene microplastics on Java medaka (*Oryzias javanicus*). *Ecotoxicology*. (Revised)
11. Takai Y., Honda M., Qiu X., Shimasaki Y., Kang I.J., Oshima Y., Concentration effect of polystyrene microplastics on the accumulation of anthracene for Java medaka (*Oryzias javanicus*). (in preparation)
12. Yui Tamura, Yuki Takai, Lee SeokHyun, Xuchun Qiu, IK Joon Kang, Yohei Simasaki, Chie Shindo, Wataru Suda, Hirokuni Miyamoto, Yuji Oshima. Effect of 2- μ m polystyrene microplastic on the shoaling behavior of medaka (*Oryzias latipes*), level of monamines and modulation of the brain-gut axis.). (in preparation)