

課題番号：1RF-2102

体系的番号：JPMEERF20211R02

海洋プラスチックの劣化・微細化試験法の作成と、 含有化学物質による影響を含めた実態の解明

革新型研究開発（若手枠）、令和3年度~令和5年度

重点課題

主：⑥ グローバルな課題の解決に貢献する研究・技術開発(「海洋プラスチックごみ問題への対応」)

副：⑪ ライフサイクル全体での徹底的な資源循環に関する研究・技術開発
行政ニーズ

(1-3) 海洋環境における複合的要因を加味したプラスチック劣化メカニズムの
解明と劣化試験方法の開発

【研究代表者】

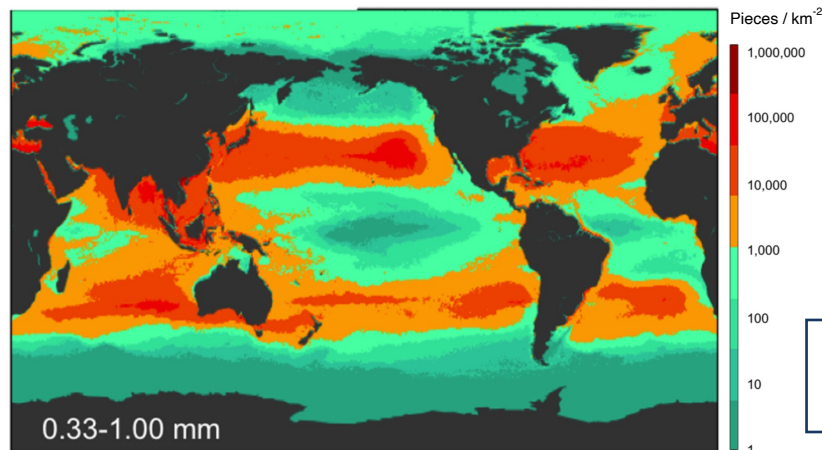
国立環境研究所 資源循環領域 田中 厚資

【研究分担者】

国立環境研究所 資源循環領域 高橋 勇介

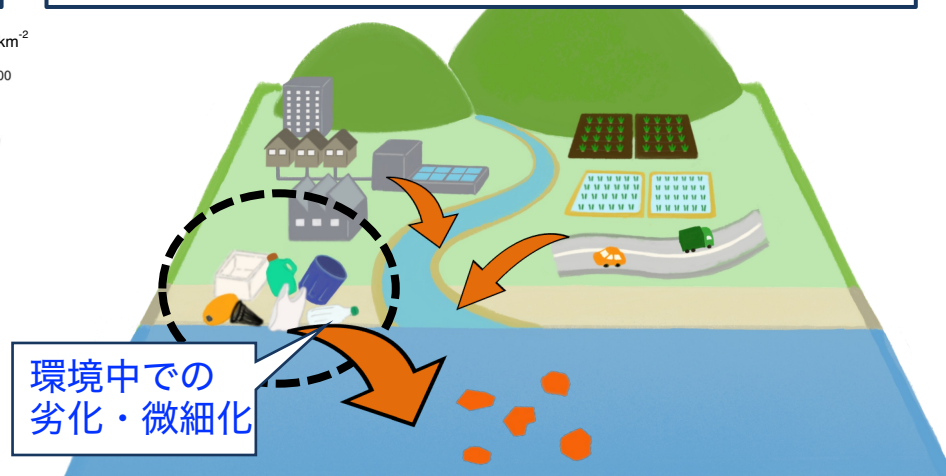
1. 背景

マイクロプラスチックによる海洋汚染



Eriksen et al. (2014) PLoS ONE 9(12): e111913.

マイクロプラスチックの発生源



国際的な動向

◆大阪ブルー・オーシャン・ビジョン (G20, 2019)

包括的なライフサイクルアプローチを通じて、**2050年までに追加的な汚染をゼロにまで削減することを目指す。**

◆ナポリ環境相会合 (G20, 2021)

海洋プラごみ削減の**国際条約**に向けて議論していくことを合意

国内における対策

◆プラスチック資源循環戦略(2019)

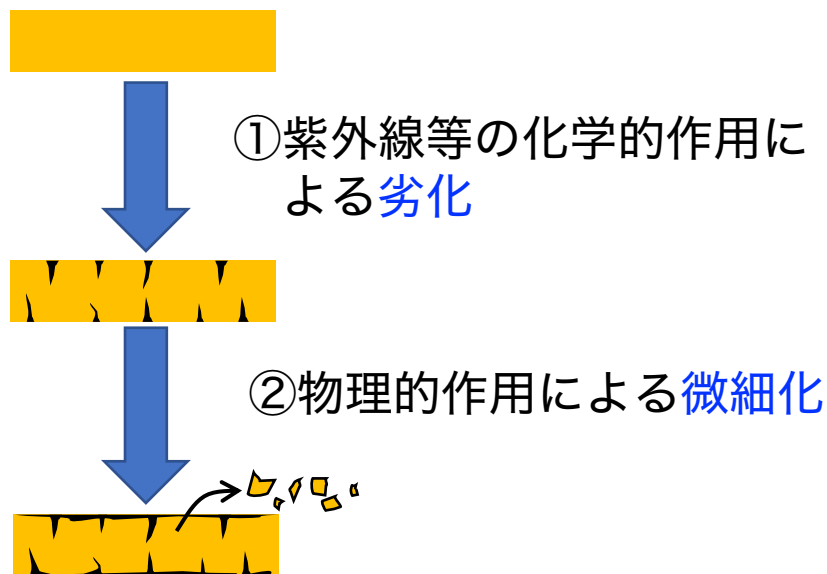
◆プラスチック資源循環促進法(2022)

◆海洋プラスチックごみ対策アクションプラン

◆海岸漂着物処理推進法改正

1. 背景_環境中でのプラスチックの劣化・微細化

課題1: 微細化を評価するための促進劣化手法がない。



課題2: 添加剤による劣化抑制効果の影響が考慮されていない。

・環境中プラでの検出例

添加剤	海洋プラでの検出頻度
酸化防止剤	ラジカル捕捉 (フェノール系等) 100% ⁽¹⁾
	過酸化物分解 (リン系等) 47% ⁽²⁾
紫外線吸収剤	ベンゾトリアゾール系 20% ⁽³⁾
	ベンゾフェノン系 14% ⁽³⁾
多機能安定剤	ヒンダードアミン系 光安定剤 (HALS) -

(1) Rani et al., (2017) Sci. Total Environ., 579 745-754, (2) Tanaka et al., (2019) Mar. Pollut. Bull., 145, 36-41, (3) Tanaka et al., (2020) Mar. Pollut. Bull., 150, 110732

研究開発目的:

現実的な試験期間で微細化までを調べる促進劣化手法を作成し、さらに海洋プラスチックの劣化・微細化について、添加剤による影響を含めた評価手法を提案すること

3. 研究目標及び研究計画

◆ 全体目標

海洋環境におけるプラスチックの劣化・微細化の速度を評価する試験方法を作成し、劣化を抑制する添加化学物質による影響を含めた劣化・微細化の動態について明らかにするための基礎的な知見を得る。

(サブテーマ1)

海洋環境条件での微細化速度を短期間で見積もる、促進劣化試験手法の作成



(サブテーマ2)

含有化学物質による影響を含めた、劣化・微細化動態の評価

◆ 最近の類似研究と比較したときの本研究の優位点

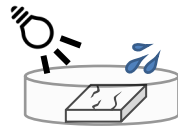
- ・プラスチック試料の種類の多様性、網羅性（合計18試料）
- ・実際の環境条件での劣化評価の充実（全国10地点）
- ・添加剤の影響を含めた評価

3. 研究目標及び研究計画 研究概要_サブテーマ1

◆劣化試験

…紫外線による劣化

(1-1)促進劣化試験



(1-2&3)環境条件(非促進)劣化試験



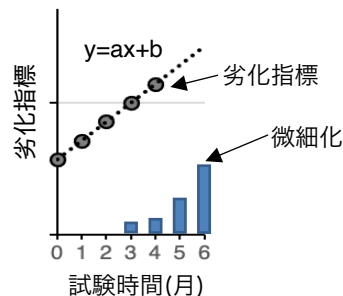
劣化指標の評価 … 表面構造、FT-IR、結晶化度、分子量分布等

◆微細化試験

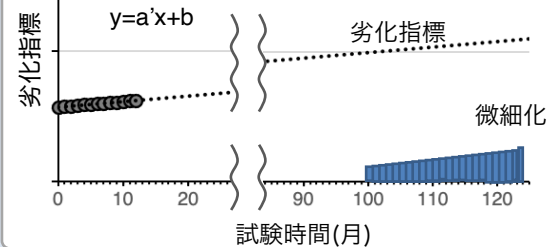
微細化の評価 …物理的作用（海岸、波打ち際、水中を模擬）により生成した粒子を測定

◆劣化指標の選定、 加速係数の導出

促進



環境条件(非促進)



非促進条件に対する促進条件での加速係数を求める。

環境条件（非促進）での微細化速度を、数ヶ月間の促進劣化試験によって見積もる手法を作成する。

3. 研究目標及び研究計画 研究概要_サブテーマ2

(2-1) 実際の海洋プラスチックにおける、劣化指標と含有化学物質の分析

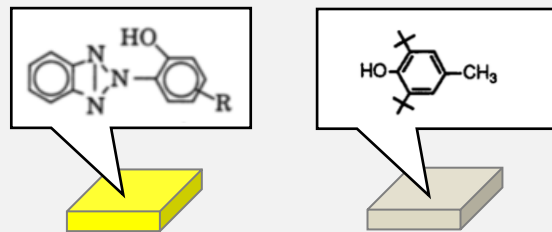


◆含有化学物質のノンターゲット網羅分析

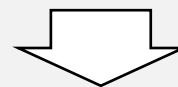
…劣化を抑制する添加剤の含有状況の把握

◆劣化指標の分析 …劣化程度の評価

(2-2) 劣化を抑制する添加剤が劣化・微細化に及ぼす影響の評価



海洋プラから検出された、劣化抑制添加剤を含有するプラスチックを作製



◆劣化・微細化試験

サブテーマ1で作成した手法により、海洋での劣化・微細化速度を調べる。

海洋プラスチックの添加剤の含有状況、劣化状況に基づいて、それらの劣化・微細化速度の見積もりが可能となる。

3. 研究目標及び研究計画

サブテーマ1

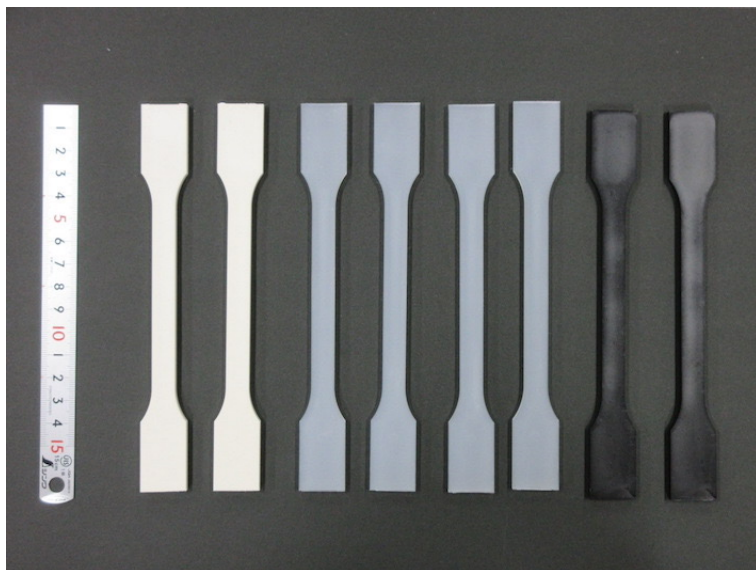
	令和3年度	令和4年度	令和5年度
研究計画	(1-1)促進劣化条件での劣化・微細化試験、指標分析		
	(1-2)海洋環境条件での劣化・微細化試験、劣化指標分析		
		(1-3)屋外環境下での劣化・微細化試験 (つくばで1地点)	

サブテーマ2

	令和3年度	令和4年度	令和5年度
研究計画	化学物質分析の準備・分析検討		
		(2-1) 海洋採取プラスチック試料の指標分析、化学物質の網羅分析	
			(2-2)添加剤含有プラスチックでの劣化・微細化試験 (試験期間:1年程度)

4. 研究開発内容, 5. 結果及び考察

◆試験片作製



JIS K 7139 タイプA1 (全長170 mm、幅20 mm、厚さ4 mm*) に準じた試験片形状へ成形した。

*フィルムのみ厚さ0.2mm

表1. 作製した18種の試験片

ポリプロピレン (PP)

ホモPP

ホモPP (耐候)

ホモPP (フィルム用)

ブロックPP

ブロックPP (耐候)

再生ポリプロピレン 白

再生ポリプロピレン 黒

ポリエチレン (PE)

低密度ポリエチレン

低密度ポリエチレン (フィルム用)

高密度ポリエチレン

高密度ポリエチレン (耐候)

高密度ポリエチレン (フィルム用)

ポリスチレン (PS)

汎用ポリスチレン (GPPS)

耐衝撃性ポリスチレン (HIPS)

ポリ塩化ビニル (PVC)

軟質ポリ塩化ビニル

硬質ポリ塩化ビニル

ポリエチレンテレフタレート (PET)

ポリエチレンテレフタレート (ペットボトル用)

その他

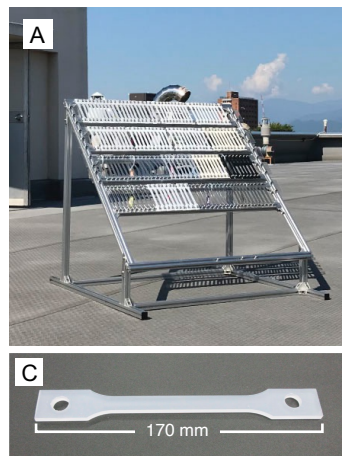
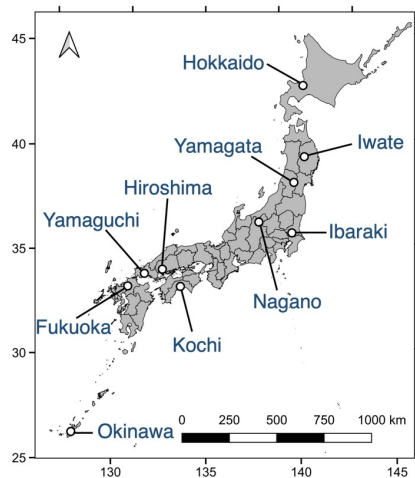
生分解性プラスチック

4. 研究開発内容, 5. 結果及び考察

◆(1-1)促進劣化条件での劣化・微細化試験



◆(1-2&3)屋外環境下での劣化・微細化試験

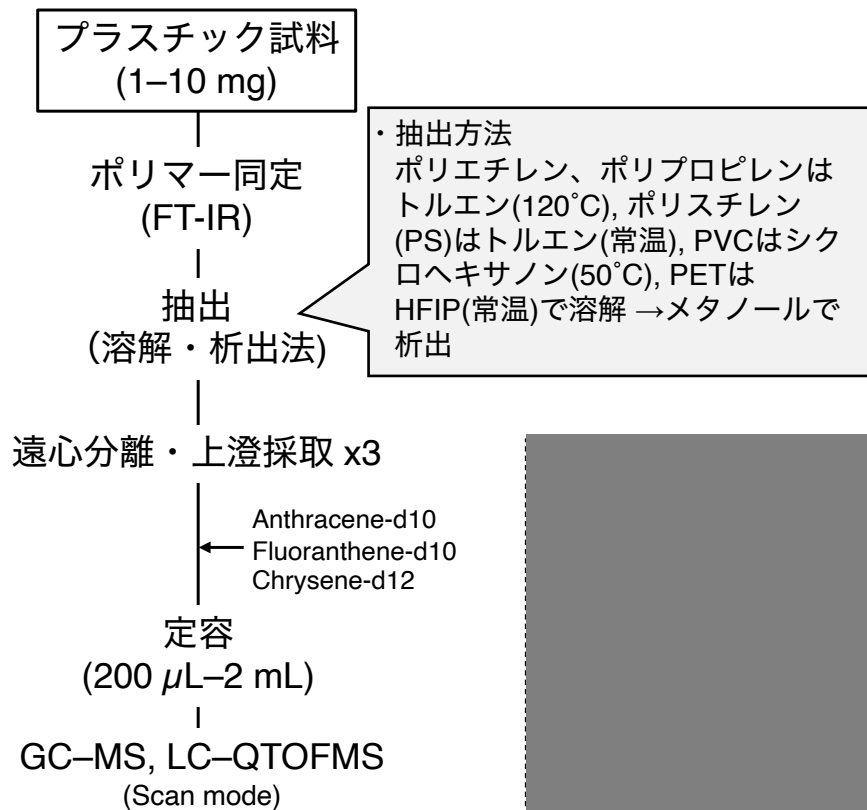


全国10ヶ所の地方環境研究所への屋外曝露試験装置の設置を完了し、試験を開始した。

4. 研究開発内容, 5. 結果及び考察

4. 研究開発内容, 5. 結果及び考察

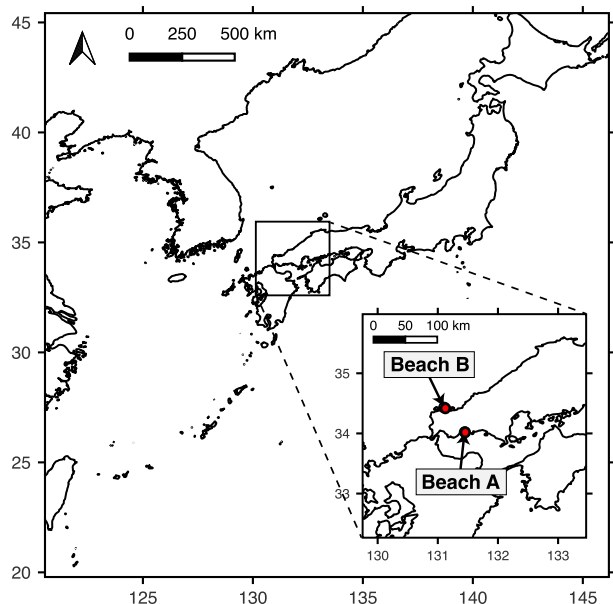
◆前処理方法検討



主要な添加剤15種について
添加回収率：73-140%
再現性：RSD<15%

4. 研究開発内容, 5. 結果及び考察

◆海洋プラスチックのノンターゲット網羅分析



山口県の海岸2地点でプラスチック試料を採取。

- ・ 海岸A (瀬戸内海側): 農業、生活由来ごみが主要
- ・ 海岸B (日本海側): 漁業由来ごみが主要

分析試料 (Total: 261 試料)

・ 海岸A

マクロ $n = 76$

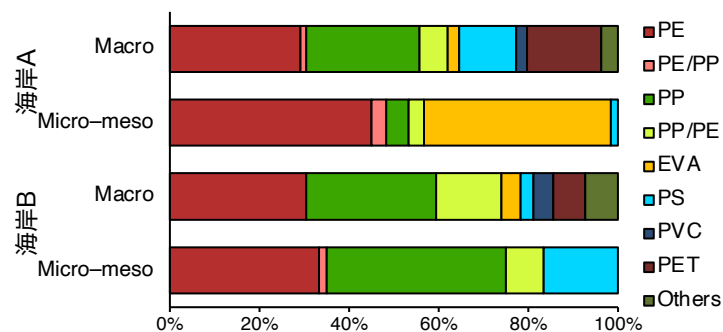
マイクロ-メソ $n = 60$

・ 海岸B

マクロ $n = 65$

マイクロ-メソ $n = 60$

ポリマー組成



PE, PP,あるいはこれらのコポリマーが主要 (50~73%)

4. 研究開発内容, 5. 結果及び考察

ノンターゲット網羅分析の結果、52種の添加剤が検出

このうち劣化を抑制する添加剤としては、

- ・酸化防止剤が9種（フェノール系6種、リン系1種、硫黄系1種、その他1種）
- ・紫外線吸収剤が6種（ベンゾトリアゾール系3種、ベンゾフェノン系2種、ベンゾエート系1種）
- ・ヒンダードアミン系光安定剤 (HALS) が2種

表2. 山口県の海岸A、Bで採取したプラスチックにおけるポリマーごとの添加剤検出頻度.

	マクロプラスチック					マイクロ-メソプラスチック		
	PE (n = 45)	PP (n = 55)	PS (n = 12)	PVC (n = 5)	PET (n = 19)	PE (n = 50)	PP (n = 34)	PS (n = 11)
酸化防止剤 (9種)	34 (76%)	53 (96%)	6 (50%)	3 (60%)	1 (5%)	30 (60%)	29 (85%)	n.d.
フタレート類 (7種)	14 (31%)	28 (51%)	3 (25%)	4 (80%)	n.d.	16 (32%)	14 (41%)	4 (36%)
紫外線吸収剤 (6種)	9 (20%)	6 (11%)	2 (17%)	n.d.	n.d.	3 (6%)	5 (15%)	n.d.
HALS (2種)	1 (2%)	6 (11%)	n.d.	n.d.	n.d.	1 (2%)	1 (3%)	n.d.
難燃剤 (3種)	1 (2%)	n.d.	1 (8%)	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	1 (9%)

酸化防止剤はPP、PEで特に高い頻度で検出された

その他の検出頻度は、紫外線吸収剤で数十%程度、HALSで数%程度

4. 研究開発内容, 5. 結果及び考察

◆マクロプラスチック中添加剤（重量が大きい分類6項目について示す）.

海岸A

ポリエチレン(PE)			
ごみの項目	漂着ごみモニタリング小分類	全体に占める重量割合	検出された添加剤
1	農業用資材(あぜ板)	52%	酸化防止剤, 紫外線吸収剤, HALS
2	シート	16%	検出なし
3	ボトル類	12%	酸化防止剤
4	肥料袋	10%	酸化防止剤
5	ペットボトルふた	3%	酸化防止剤
6	苗木ポット	3%	酸化防止剤
Total		95%	

ポリプロピレン(PP)			
ごみの項目	漂着ごみモニタリング小分類	全体に占める重量割合	検出された添加剤
1	ポリバケツ	54%	酸化防止剤
2	フレグランス容器	13%	酸化防止剤
3	飲用チルドパック	6%	酸化防止剤
4	植木鉢	6%	酸化防止剤, HALS
5	ボトル類	6%	酸化防止剤
6	鉢皿	5%	酸化防止剤
Total		91%	

- PEの農業用資材(あぜ板)において、紫外線吸収剤(ベンゾトリアゾール系)とHALSが検出
- PPの植木鉢からHALSが検出

海岸B

ポリエチレン(PE)			
ごみの項目	漂着ごみモニタリング小分類	全体に占める重量割合	検出された添加剤
1	ブイ	29%	酸化防止剤
2	アナゴ筒	26%	酸化防止剤
3	ポリタンク	17%	検出なし
4	ボトル類	8%	酸化防止剤
5	シート	7%	酸化防止剤
6	タマゴパック	7%	酸化防止剤
Total		94%	

ポリプロピレン(PP)			
ごみの項目	漂着ごみモニタリング小分類	全体に占める重量割合	検出された添加剤
1	ブイ	61%	酸化防止剤, 紫外線吸収剤, HALS
2	オイル缶フタ	11%	酸化防止剤
3	アナゴ筒	8%	酸化防止剤, HALS
4	ロープ	5%	酸化防止剤
5	赤カゴ	4%	酸化防止剤
6	植木鉢	3%	酸化防止剤, HALS
Total		92%	

- PPのブイにおいて、紫外線吸収剤(ベンゾトリアゾール系)とHALSが検出
- PPの植木鉢からHALSが検出

→今後、これらの添加剤を加えた試験片を作製し、(2-2)の試験によって劣化・微細化速度を調べていく。

6(1). 進捗状況_サブテーマ1

評価：計画通り進展している。

理由：機材の調達の遅れのために、(1-1)促進劣化試験の開始が遅れたものの、(1-2&3)の結果との比較による「加速係数の導出」は令和4年度内に完了見込みであり、全体計画における遅れはない。加えて、劣化指標分析手法の開発でも成果が得られた。

目標達成の見通し：今後、劣化試験で得られた試料の劣化指標と微細化試験を順次行っていくことで、目標は十分達成可能である。

	令和3年度	令和4年度	令和5年度
研究計画	(1-1)促進劣化条件での劣化・微細化試験、指標分析	加速係数の導出	
	(1-2)海洋環境条件での劣化・微細化試験、劣化指標分析		
	(1-3)屋外環境下での劣化・微細化試験 (つくばで1地点)		
現在の進捗	◆劣化試験に用いるプラスチック試験片の調達 →完了 (1-1)促進劣化試験装置の製作及び劣化・微細化試験 →試験開始した	加速係数の導出	
	(1-2&3)屋外環境下での劣化・微細化試験 (全国で10地点) →試験開始した		
	◆新規劣化指標検討(追加) →劣化プラの微細な内部構造評価手法を検討		

6(1). 進捗状況_サブテーマ2

評価：計画以上の進展がある。

理由：分析手法の開発が順調に進んだため、令和4年度に計画していた(2-1)海洋採取プラスチックの化学分析を前倒しで行い、論文投稿まで完了した。

目標達成の見通し：今後は、劣化指標分析を継続するとともに、添加剤含有プラスチックを製作し、令和4年度後半から(2-2)の試験を開始する。目標は十分達成可能である。

	令和3年度	令和4年度	令和5年度
研究計画	<p>化学物質分析の準備・分析検討</p>	<p>(2-1) 海洋採取プラスチック試料の指標分析、化学物質の網羅分析</p>	<p>(2-2) 添加剤含有プラスチックでの劣化・微細化試験 (試験期間:1年程度)</p>
現在の進捗	<p>◆添加剤の抽出等、分析前処理方法を検討 →完了</p> <p>◆LC-QTOFMSでの分析手法を検討 →完了</p>	<p>◆化学物質網羅分析 →完了(論文査読中)</p>	<p>◆指標分析は継続 (2-2)開始予定</p>

6(2). 環境政策等への貢献

- ◆添加剤の影響までを含めた劣化・微細化の評価手法の作成により、海洋環境におけるプラスチックの劣化・微細化プロセスのタイムスケールについて、精緻な見積もりを可能にする。
 - 海洋プラスチックの挙動の理解が進み、生態系へ与えるリスクの総合的な評価に貢献できる。
 - 環境中プラスチックの微細化が評価可能になることで、マイクロプラスチックの効果的な発生源対策等に貢献できる。

- ◆作製する試験法は、微細化までを評価するための促進試験を提供する。
 - 海洋環境で劣化・微細化しにくい新規素材開発等への貢献が期待できる。これにより、製品寿命の延長、使用後の回収の容易さと資源としての価値の向上、さらに廃棄物発生量を抑制し、資源循環を促進する効果が期待される。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表（学会等）

【サブテーマ1】

- 1) 高橋勇介、田中厚資、梶原文裕、鈴木剛、大迫政浩、倉持秀敏、環境化学物質 3 学会合同大会 (国内、2022) プラスチック劣化時の内部構造変化を分析するための断面微細構造観察手法の検討

【サブテーマ2】

- 1) 田中厚資、高橋勇介、松神秀徳、梶原文裕、倉持秀敏、大迫政浩、鈴木剛、環境化学物質 3 学会合同大会 (国内、2022) 海洋環境中マクロ・マイクロプラスチックに含有される添加由来化学物質の網羅的分析

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

【サブテーマ1】

- 1) 国立環境研究所一般公開（2021年7月17日、参加者約100名）にて成果紹介
- 2) Youtube動画の作成「初心者でもわかる！マイクロプラスチック研究～もっと細かいナノプラはどうやって測るの？」（YouTube国立環境研究所動画チャンネル、2022年1月18日公開）
- 3) 国立環境研究所一般公開（2022年7月16日、参加者約134名）にて成果紹介