

フジシール財団 研究助成事業
成果報告書

公益財団法人フジシール財団
理事長 岡 崎 裕 夫 殿

報告日 2025 年 5 月 29 日

研究課題	ケミカルリサイクルを加速する高分子分解のマルチスケール計算基盤構築	助成金額
		100 万円
助成名	特別長期研究助成・研究助成・若手研究助成	
ふりがな	いしだ たかと	研究助成申請年度
研究者氏名	石田 崇人	2024 年度
所属機関	国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学	研究期間
		2024 年 4 月から 2025 年 3 月
役 職	助教	

下記の通り、研究成果を報告いたします。

記

1. 研究成果の概要

本研究では、プラスチック廃棄物全体の 70%以上を占め、特に**パッケージ利用が多い**炭化水素系高分子-**ポリエチレン** (PE), **ポリプロピレン** (PP), **ポリスチレン** (PS) -の**熱分解**を対象とした。熱分解法は化学的分解反応の中でもロバストかつ経済的であることから、**ケミカルリサイクルの化学分解プロセス**として広く用いられている。熱分解は「ラジカルを伴う分解反応」と「生成したガス分子の脱離」が重畳した複雑な現象である。各種現象を切り分けて理解し、その学理を深めるために**当該分野の計算科学的アプローチの発展が望まれている**。ただし、従来の全原子モデルによる熱分解シミュレーションでは、計算効率の問題から 1500℃を超える非常に高温環境に相当する条件での検討に留まっており、実験で検討される樹脂材料の主たる分解温度域の 400 ~ 700 ℃との間で無視できない対象温度の乖離があった (図 1)。本研究では、本研究課題では、そのギャップを埋めるべく、長時間ダイナミクスを現実的な計算資源で計算可能な粗視化分子動力学の枠組みを拡張し、**高分子熱分解のマルチスケール計算基盤構築を構築し、ケミカルリサイクルの化学分解プロセスの最適化を通じて将来のパッケージ分野の資源循環を支援する基盤学理の整備に挑戦した**。

実分解温度域での熱分解シミュレーションを実現する

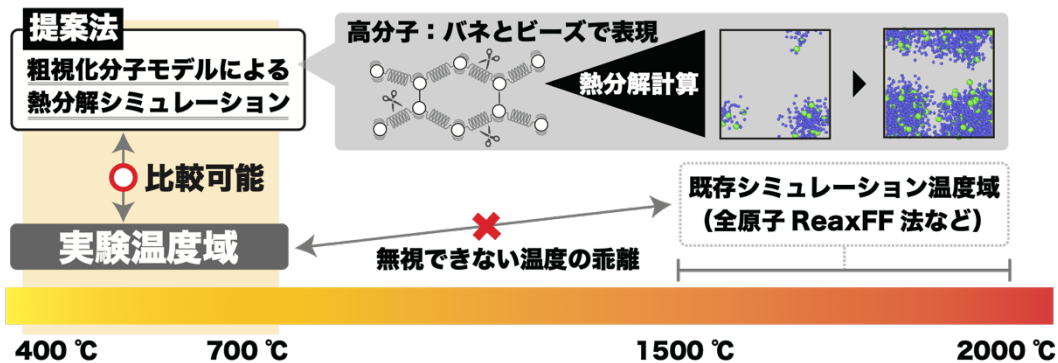


図 1 本研究の概要・挑戦

期間内の研究進展について順を追って記載する。まず、申請後も下準備を進めており助成開始時点にはすでに**高分子の熱分解を対象としたメソスケールシミュレーションの計算コードを完成**させることができていた（図2左）。図2左下に示すのは、粒子数256000のメソスケール系（空間スケールで数十nm程度）における熱分解計算の様子である。この計算では、PSを600℃環境下で熱分解する条件を想定し、Pires da Mata Costaら（J. Anal. Appl. Pyrolysis, 2022）によって報告された反応速度論モデルを粗視化計算に組み込んだ。

本研究において実験で得られたデータとシミュレーション結果を照合しながら、モデルパラメータを適切に調整していくことは熱分解現象の定量的な予測において不可欠である。そのためには、**実験で扱う空間スケールに匹敵する領域を計算機シミュレーションでも取り扱う必要がある**。これに対応するため、本研究では複数のメソスケールシミュレーションセルを連結した大規模系を構築し、**名古屋大学のスーパーコンピュータ不老を用いた超並列計算によってスケールアップ**を図った。各シミュレーションセルは独立して計算を進める一方で、セル間では分解により生成された低分子種のみを交換する。このとき、各セル内で化学ポテンシャルを計算し、グランドカノニカルアンサンブルに基づいて低分子種の受け渡しを実行するアルゴリズムを実装した。これにより、当初目的としていた**実分解温度に対応する高分子熱分解のマルチスケールシミュレーション技術を確立**することができた。

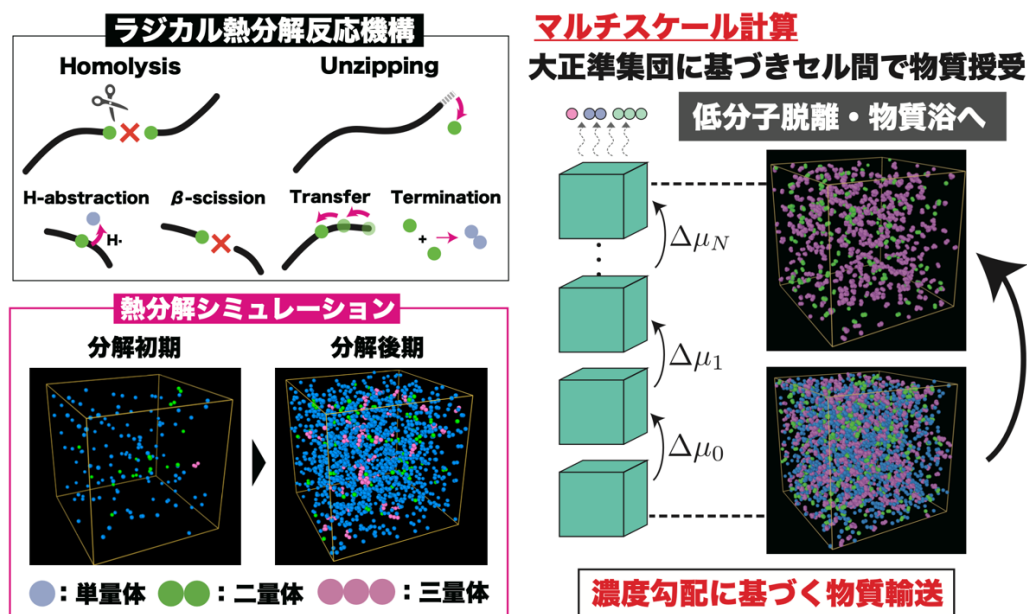


図2 考慮した熱分解機構・シミュレーション状況・マルチスケール展開

ここまでの研究進展を踏まえ、計算の有効性を実証するためには、熱分解実験の実データを迅速に収集する必要性が高まった。そこで助成金使途を変更させていただき、**熱分解生成物のキャラクタリゼーションにおいて有効な熱分解ガスクロマトグラフィー質量分析計（GC/MS）の導入に研究費を充てた**。実際に、前述のPS熱分解実験を行い、その結果を図3に示すようにシミュレーション結果と比較した。現段階では計算パラメータの最適化は実施していない。それにも関わらず、生成物の分布傾向など定性的な一致が見られる有望な結果が得られている。今後、反応速度パラメータの微調整を試行錯誤的に行うことで、さらなる精度向上が見込まれる。当初の目標であった**実際の分解温度および空間スケールに対応したマルチスケールシミュレーションの構築**を達成でき、さらに**実験データとの照合まで着手できた点**は、当初の想定を上回る成果である。本研究テーマの全体像を扱う論文は現在準備中であるが、構成要素である熱分解の粗視化シミュレーション（業績[1, 2]）および関連実験（業績[3]）に関しては、すでに複数の論文として公表されている。

熱分解実験による検証

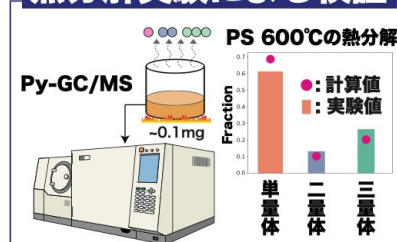


図3 熱分解 GC/MS 測定とシミュレーション結果の比較

2. 研究成果のパッケージ産業への貢献の可能性

本研究により確立された「高分子分解のマルチスケール計算基盤」を活用しデータ科学的手法と連携することで、**パッケージ材料として広く使用されている炭化水素系高分子（PE, PP, PS）の熱分解効率を最大化する分解プロセス条件を炙り出すことが可能**である。

現況を整理すると、Dogu ら (*Prog. Energy Combust. Sci.*, 2021) の報告では、ケミカルリサイクルにおける高分子分解プロセスを計算科学と連携して最適化することで、リサイクル可能物質の収率を飛躍的に向上させることが可能なのだという。たとえば、パッケージ用途で広く使用され、全体の約 20%を占めるポリスチレンを例にとると、現状のモノマー回収率は最大で約 40%にとどまるが、分解条件を適切に最適化すれば 60~70%の収率が見込まれるという。その試算によれば、全体で年間 1 億トン以上の CO₂排出削減が期待され、用途別に見ると**パッケージ分野だけでも年間数千万トン規模の削減可能性がある**。

具体的には、得られた計算基盤を用いて熱分解条件（温度、投入樹脂量、反応器内流速など）を変更した系統的な熱分解シミュレーションを行い、**所望の循環可能物質を最大限生成可能とするプロセス条件の最適化**を行う。ここで、計算基盤を入力（分解条件）と出力（分解物の種類・量）の関係を定義するある種の「環境」とみなし、古典的アニーリング法により、**循環可能物質の生成量が最大となる分解条件を探索**する。こうしたデータ科学と計算科学の連携により、**リサイクル効率向上に資するテーラーメイドな分解条件の設計を可能にするものであり、パッケージ分野における炭素資源循環の実現に向けた極めて強力な手段**となる。

3. 学会発表、学会誌等への論文掲載、産業財産権出願などの実績

論文発表

- [1] **T. Ishida**, K. Haremagi, Y. Koide, T. Uneyama, Y. Masubuchi, Coarse-Grained Molecular Dynamics Simulations for Oxidative Aging of Polymers under Various O₂ Concentration, *Polymer Degradation and Stability*, 239, 111404, 2025.
- [2] **T. Ishida**, Y. Doi, T. Uneyama, Y. Masubuchi, Coarse-grained Molecular Dynamics Simulation of Oxidative Aging of Polymers – Effect of free radical diffusivity –, *Polymer Journal*, 56, 1069-1078, 2024.
- [3] S. Nakamura, H. Sato, **T. Ishida**, H. Hagihara, H. Shinzawa, R. Watanabe, End-group analysis of polycarbonates using evolved gas analysis-time-of-flight mass spectrometry combining principal component analysis and Kendrick mass defect analysis, *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, available at <http://dx.doi.org/10.2139/ssrn.5132099>

招待講演

- [4] T. Ishida, Coarse-Grained Molecular Dynamics Simulation of Polymer Oxidative Aging”, Workshop on Soft Matter Rheology, Wenzhou Institute of University of Chinese Academy of Science, Wenzhou, China, 2024
- [5] T. Ishida, Heterogeneity of Oxidative Aging in Polymer Melts and Solid Semi-Crystalline Polymers, Nagoya Rheology Workshop 2024, Nagoya, 2024

ほか 5 件

受賞

- [6] Rising Stars in Polymer Science 2024, *Polymer Journal*, 2024
- [7] Best presentation award, 11th Conference on Modification, Degradation and Stabilization of Polymers, 2024
- [8] 公益社団法人新化学技術推進協会 新化学技術研究奨励賞 持続可能な開発目標に資する材料設計・プロセス設計のための計算科学・計算工学・データ科学の研究 『高分子の「劣化と分解」に関する統合的計算基盤構築と劣化度に応じた最適な分解条件の探索』2024 年