

藤森科学技術振興財団 研究実施概要報告書

(西暦) 2025 年 5 月 21 日

公益財団法人藤森科学技術振興財団
理事長 藤森 明彦 殿

藤森科学技術振興財団の助成金による研究が終了しましたので、下記のとおり報告をいたします。

所属機関 名古屋大学

職 名 助教

氏 名 石田崇人



【提出書類】

(1) 研究実施概要報告書（本紙）

添付書類（A4 版 3 枚以内）：研究状況を示す写真等の資料

(2) 収支報告書

添付書類：助成金を充当した経費の領収書

領収書を添付しない場合：支払一覧表と支払部門担当者確認署名

⑤

(1) テーマ

※スペースが足りない場合は、

枠を追加いただいて構いません。

樹脂材料のケミカルリサイクルを志向した新規高分子分解シミュレーション手法の開発

(2) 本研究の期間

(西暦) 2024 年 4 月 ～ 2025 年 3 月

(3) 本研究の目的

現在、世界に深刻な影響を与えている気候変動、資源枯渇、環境汚染に歯止めをかける上で炭素資源循環の達成は喫緊の課題である。昨今ではプラスチックの廃棄物に由来する環境負荷が広く社会に知られており、身近で便利な樹脂材料がもたらすメリットを未来社会においても享受し続けるためには、プラスチックの完全リサイクルを可能な限り早く達成しなければならない。本研究では、炭素資源循環の実現に不可欠なケミカルリサイクルにおける高分子の熱分解現象に焦点を当て、実分解温度と対応する温度域で熱分解シミュレーションを行える世界初の分子シミュレーションを構築することを目的とした。

(4) 本研究の概要

高効率なケミカルリサイクルを実現する熱分解条件の探索・多角的実証のために計算科学的手法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る（図 1）。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て、新規の高分子熱分解シミュレーション技法を構築した。

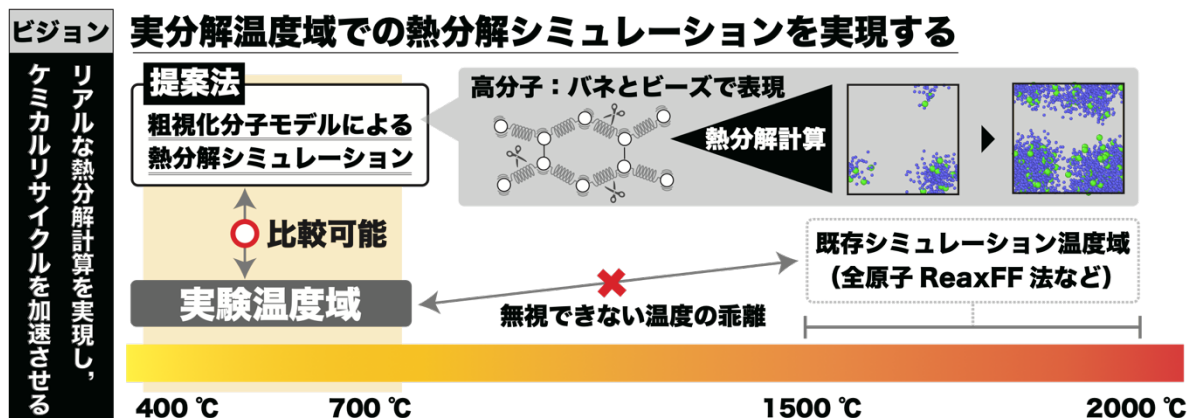


図 1 本研究の概念図

(5) 本研究の内容及び成果

本研究では、前述の通り長時間ダイナミクスの計算に実績がある標準 Kremer-Grest モデルに熱分解反応が引き起こす分子鎖切断の素過程を導入することで、実分解温度と対応したリアルな高分子熱分解シミュレーションを実現する。ここでは前記の対象温度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て計算モデルを構築する。粗視化分子動力学は原子 1 つ 1 つを取り扱う古典分子動力学とは異なり、複数の原子団を代表する 1 つのビーズで表現することで飛躍的な計算効率化を見込める方法である。本研究で提案する粗視化分子動力学に基づく熱分解シミュレーションの端緒となる計算コードを完成させた。

本研究では、中程度の規模（256000 粒子系、空間スケールで言えば数十 nm 程度）の系に関して計算を実施した。図 2 に熱分解計算のスナップショットを示す。計算には名古屋大学スーパーコンピュータ不老を用い大規模並列計算を実施した。

ここで、ランダム切断の反応レートを $k_r = 5 \times 10^{-6}/\tau$ 、Unzipping 機構の反応レートを $k_{unzip} = 10^{-2}/\tau$ 、1,5-transfer 機構の反応レートを $k_{1,5} = 2.1 \times 10^{-3}/\tau$ 、1,7-transfer 機構の反応レートを $k_{1,7} = 4.4 \times 10^{-3}/\tau$ と設定した場合の熱分解物の内、特に三量体以下に着目した低分子量物の割合を図 3 に示す。実際に申請者が熱分解 GC/MS を用いて、ポリスチレン（Aldrich, $M_w = 192k$ ）試料を 600℃環境で熱分解した際に得られたモノマー/ダイマー/トリマー比を図 3 中に示している。上記の反応レートの設定で、ある程度実験で得られる低分子分解物の割合を表現することができていることがわかり、実験を説明できるメソスケール熱分解シミュレーションを構築できた。

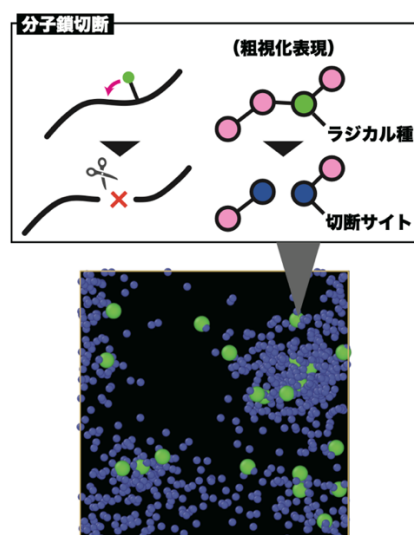


図 2 熱分解過程のスナップショット
(青：分解サイト，緑：ラジカル)

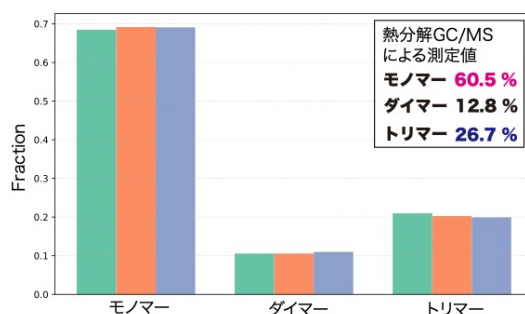


図 3 熱分解計算から得られたモノマー，ダイマー，トリマーの割合。
緑は反応率 1.5%，オレンジは反応率 19.4%，青は反応率 45.4%時点での結果である。

⑤

(6) 本研究の考察

本研究の成果として、メソスケール系での計算では実験による熱分解 GC/MS 測定の結果と整合的な結果を得ることができた。ただし、実験と計算の間で取り扱っている空間スケールは幾分乖離している。低分子分解物の生成挙動は実験と整合させることができたが、実際に脱離するまでの拡散過程で副反応が生じて分解物の割合が変化する可能性は残る。そのため、今後は計算を大規模化し、拡散過程まで追跡できるようシミュレーションのマルチスケール展開を構想している。

(7) 共同研究者（所属機関名、役職、氏名）

該当しない

(8) 本研究の成果の公表先

発表した研究成果は下記のとおりである。

- [1] T. Ishida*, Y. Doi, T. Uneyama, Y. Masubuchi, Polymer Journal, 56, 1069–1078, 2024.
- [2] T. Ishida*, E. Richaud, H. Hagihara, R. Kitagaki, Macromolecular Symposia, 413, 4, 2300247, 2024.
- [3] T. Ishida*, K. Haremaki, Y. Koide, T. Uneyama, Y. Masubuchi, Polymer Degradation and Stability, 239, 111404, 2025.
- [4] K. Haremaki, T. Kida, Y. Koide, T. Uneyama, Y. Masubuchi, T. Ishida*, arXiv:2503.21373, polymer journal 誌にて査読中

[注] この報告書を当財団のホームページ等に掲載します。予めご了承ください。