

公益財団法人矢崎科学技術振興記念財団
理事長 殿

研究助成期間終了にあたり、下記の通り成果を報告します。

2025年 5月 29日

氏名 石田 崇人

所属 名古屋大学大学院 工学研究科 物質科学専攻

職位 助教

1. 申請研究の題目

ケミカルリサイクルを加速する高分子の新規熱分解シミュレーション手法の開発

2. 研究の目的

現在、世界的に循環型経済への転換が急速に進んでおり、高分子材料の再資源化は重要な課題となっている。たとえば欧州では、使用済み自動車由来の樹脂材料リサイクルを義務づける ELV 指令のようなラディカルな制度が導入されており、高分子材料の循環利用はもはや技術的挑戦にとどまらず、**経済的・制度的な要請**でもある。このような状況下、日本国内においても持続可能な社会の実現に向けて、樹脂材料を中心とする資源循環システムの自律化・強靱化が求められている。

とりわけ、自動車利用も多く、現在廃棄プラスチック全体の 70%以上を占める炭化水素系高分子—ポリエチレン (PE)、ポリプロピレン (PP)、ポリスチレン (PS)—は、包装分野を中心に広く利用されており、これらの高効率な資源循環を実現することが循環型社会への鍵を握っている。現在よく用いられている廃材を回収し再成形するマテリアルリサイクルでは、物性劣化による再利用限界が指摘されてきている。一方で、分子レベルで化学原料へと還元可能なケミカルリサイクル技術は、その限界を克服しうる重要なアプローチと見られている。

本研究は、こうしたケミカルリサイクル技術の高度化を支援することを目的とし、**ラジカルを伴う高分子熱分解反応の物理化学的理解と、その最適化に資するマルチスケール計算基盤の構築**に取り組んだものである (図 1)。熱分解反応は「ラジカル連鎖による分

実分解温度域での熱分解シミュレーションを実現する

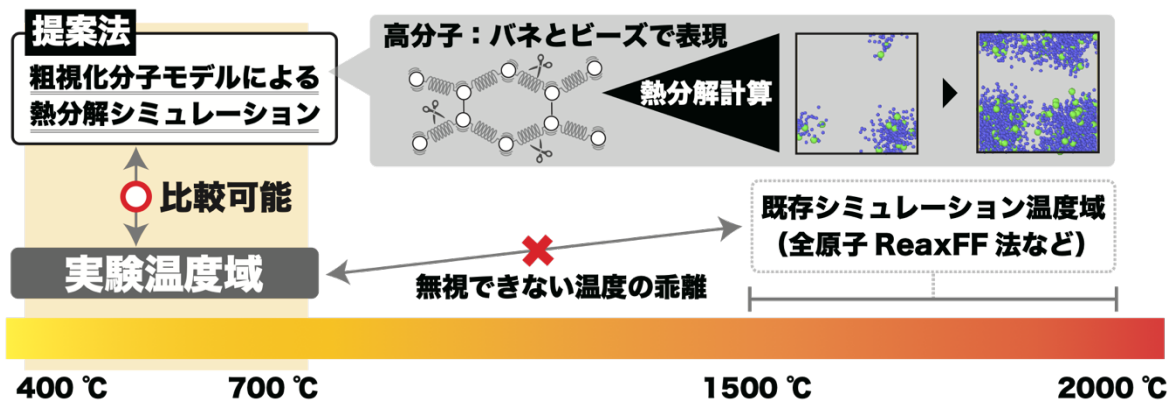


図 1 本研究の概要・挑戦

解」と「生成ガス分子の脱離」が重畳した複雑な反応過程であり、その詳細理解には時間・空間スケールを跨ぐモデリングが必要だった。本研究では、粗視化分子動力学に基づく手法を拡張し、反応を含む長時間スケールの分子ダイナミクスを現実的な計算資源で再現可能なマルチスケールモデルを構築した (図 1)。

3. 研究の内容

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°C 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。

次に、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。

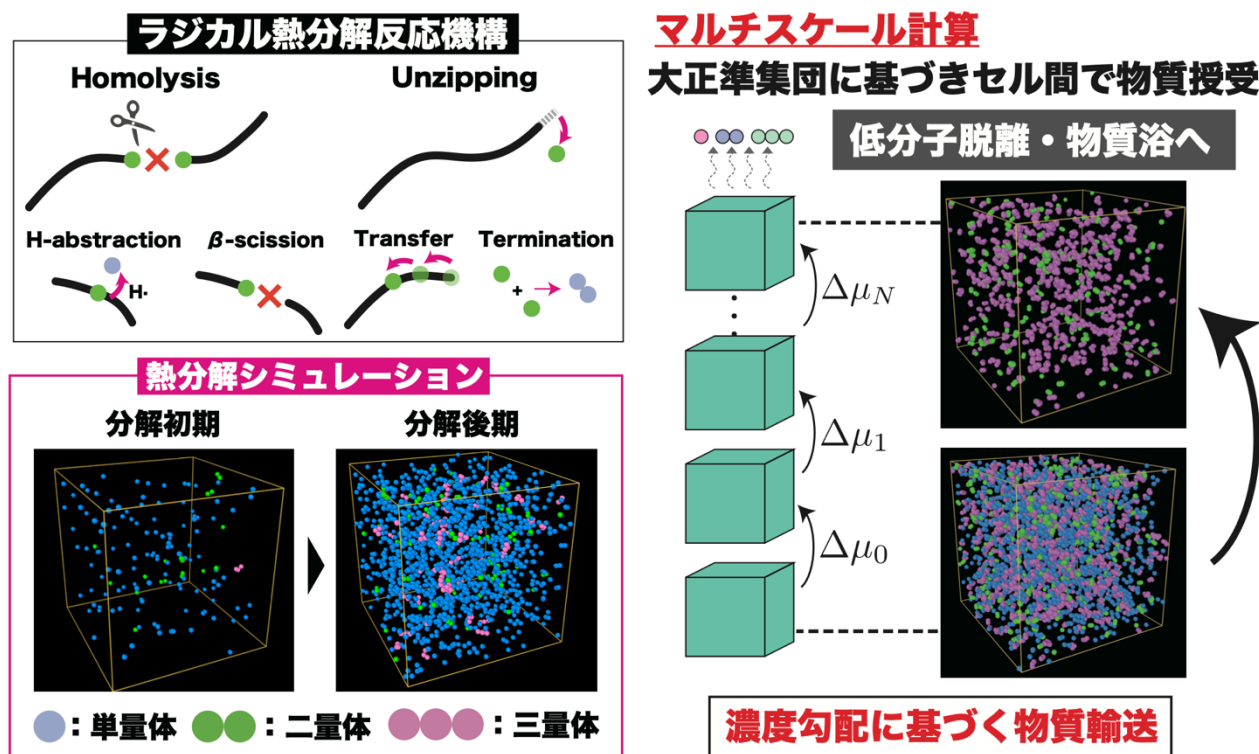


図 2 考慮した熱分解機構・シミュレーション状況・マルチスケール展開

そして、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。そこで助成金用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。

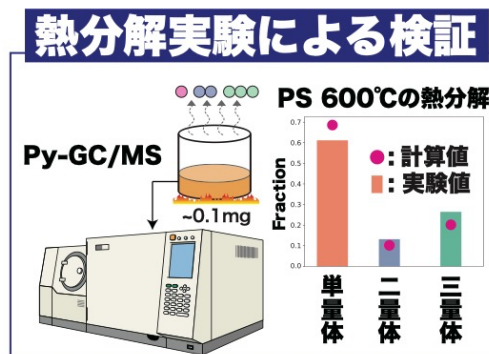


図 3 熱分解 GC/MS 測定とシミュレーション結果の比較

4. 研究の成果と結論、今後の課題

結論として、本研究におけ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フレームワークの構築」は、十分に達成された。さらに、熱分解 GC/MS 装置の導入により、計算機シミュレーションと実験との対応づけにも着手し、熱分解実験データとシミュレーション結果の照合まで進めることができた。これにより、**当初の想定を上回る研究の進展**が得られたといえる。

本研究テーマ全体を対象とした包括的な論文は現在執筆中であるが、その構成要素となる高分子熱分解に関する粗視化分子動力学シミュレーション (業績[1-3]) および関連する実験的検証 (業績[4,5]) については、すでに複数の査読付き国際論文として成果を公表している。さらに、本研究の成果は国際シンポジウムでの招待講演 (業績[6,7]) や国際会議における受賞 (業績[10,11]) としても高く評価され、加えて国内の化学産業界が結集する新化学技術推進協会より新化学技術研究奨励賞 (業績[12]) を受賞するなど、学術界および産業界の双方から注目を集める成果となっている。

5. 成果の価値

5-1. 学術的価値

本研究の学術的価値は、ミクロな反応化学を起点として、それをスケールアップし、マクロな現象までシームレスに記述可能なマルチスケール計算基盤を確立した点にある。実際、我が国では、高分子の合成や分解といった分子レベルの反応化学的研究はこれまで非常に活発に行われてきた。一方で、そうした優れた基礎研究の成果が、高分子資源の大規模な循環・再利用に十分に活かされているとは言い難く、欧州などの諸外国に比してその進展は遅れているのが現状である。その背景には、ミクロスケールの反応メカニズムと、マクロスケールの反応工学・プロセス設計との間に未だ大きなギャップが存在し、両者をつなぐ「スケールアップ」に関する**理論基盤が未整備**であるという課題があった。

本研究は、このギャップを埋めることを目的に、高分子分解と分解生成物の輸送現象に関する学理の体系化に取り組み、ミクロとマクロを統一的に取り扱うためのマルチスケールシミュレーション手法を構築した。さらに、この手法を化学工学的スケールへと接続することにより、**持続可能なケミカルリサイクルプラント設計のための指導原理の提示**へとつなげた点は理論と応用の両面において高い意義を持つ。

加えて、**ラジカル反応化学×高分子物理×反応工学**というこれまで十分に融合されてこなかった領域を横断的に接続し、**新たな学術領域を切り開いた**ことは、本研究の大きな学術的貢献である。

5-2. 社会的価値

本研究によって確立された「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、自動車部材として広く利用されている炭化水素系高分子（PE, PP, PS など）の**熱分解効率を最大化する分解プロセス条件の導出が可能**となる。近年、欧州 ELV 指令に代表されるように、自動車の使用後における部材の回収・再資源化は義務化が進んでおり、とりわけ高分子材料のケミカルリサイクルの高度化は喫緊の課題である。Dogu ら (*Prog. Energy Combust. Sci.*, 2021) による報告では、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、回収可能なリサイクル物質の収率を飛躍的に向上させることが示唆されている。

たとえば、汎用樹脂のひとつであるポリスチレンの場合、**現状のモノマー回収率は最大で約 40%程度にとどまるが、分解条件を最適化することで 60~70%への向上が期待**されている。これに基づく試算では、**全体として年間 1 億トンを超える CO₂排出量の削減が見込まれ、自動車材料に限定しても数千万トン規模の削減**ポテンシャルがある。

本研究では、構築したマルチスケール計算基盤を用い、熱分解条件（温度、投入樹脂量、反応器内の流速など）を系統的に変更した大規模なシミュレーションを実行し、循環に適した生成物（分解モノマーなど）を最大量得られる条件の探索を行うことができる。具体的には、当該計算基盤を「分解条件 → 生成物の種・量」という入出力関係をもつ“環境”としてとらえ、古典的アニーリング法を用いて最適な分解条件の探索を行う手法を実施すればよい。このように本研究成果を用いて、**データ科学と計算科学を融合したアプローチにより、自動車用樹脂のリサイクル効率を飛躍的に高める「テーラーメイドな分解条件設計」が可能**となり、自動車分野における炭素資源循環の実現に資する強力な技術的手段となる。

6. 研究成果

研究論文（原著）

[1] ○**T. Ishida***, K. Haremaki, 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 [下記受賞[10]に係る招待論文]

[3] **T. Ishida***, E. Richaud, H. Hagihara, R. Kitagaki, Estimating Network Lifetime of AUN in Photo-aging by Kinetic modeling and “Degelation” model, *Macromolecular Symposia*, 413, 4, 2300247, 2024 [国際共同研究].

[4] K. Haremaki, T. Kida, Y. Koide, T. Uneyama, Y. Masubuchi, **T. Ishida***, Effects of Stirring Time on Formation of Microplastics Fragmented from Photo-aged Polypropylene, *Polymer Journal*, available at <https://arxiv.org/abs/2503.21373>.

[5] 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>.

国際会議発表

[6] ○**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, Dec. [招待]

[7] **T. Ishida**, Heterogeneity of Oxidative Aging in Polymer Melts and Solid Semi-Crystalline Polymers, Nagoya Rheology Workshop 2024, Nagoya, 2024, Nov. [招待]

[8] **T. Ishida**, Elucidate Intrinsic Origin of Heterogeneous Oxidative Aging using Coarse-Grained Molecular Dynamics Simulation, 11th Conference on Modification, Degradation and Stabilization of Polymers, O2-32, Palermo, Italy, 2024, Sep.

[9] **T. Ishida**, Coarse-Grained Molecular Dynamics Simulations of Oxidative Aging in Amorphous Regions of Semi-crystalline Polymers -Decay of Stress Transmitter Content-, 11th Conference on Modification, Degradation and Stabilization of Polymers (2024/9/1-4), P10, Palermo, Italy, 2024, Sep.

受賞

[10] **T. Ishida**, Rising Stars in Polymer Science 2024, Polymer Journal, 2024

[11] **T. Ishida**, Best presentation award 11th Conference on Modification, Degradation and Stabilization of Polymers, Modest Society, 2024 年.

[12] **石田崇人**, 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.

[13] **石田崇人**, マテリアルライフ学会 研究奨励賞, マテリアルライフ学会, 2024 年.

以上