

小角中性子散乱法による超臨界水を用いた 高分子材料のケミカルリサイクルの最適化条件の解明

Study on chemical recycling of polymer materials using supercritical water
by small-angle neutron scattering

竹中 幹人¹⁾ 中西 洋平¹⁾ 元川 竜平²⁾ 熊田 高之²⁾ 杉田 剛²⁾ 上田 祐生²⁾

Mikihito TAKENAKA Yohei NAKANISHI Ryuhei MOTOKAWA Takayuki KUMADA Tsuyoshi SUGITA Yuki UEDA

山本 勝宏³⁾ 柴田 基樹¹⁾ 宮崎 司¹⁾

Katsuhiro YAMAMOTO Motoki SHIBATA Tsukasa MIYAZAKI

¹⁾京大 ²⁾原子力機構 ³⁾名工大

(概要)

本研究では、中性子を用いたコントラスト変調小角中性子散乱 (CV-SANS) 法を用いて、シリカ充填剤において添加するシランカップリング剤がどのように階層構造に影響を与えるかを調べた。**d-hex/h-hex** 中で溶媒膨潤させた SBR 試料の CV-SANS プロファイルから、シリカ粒子自己相関、ポリマー自己相関およびシリカ-ポリマー相互相関に由来するそれぞれの部分散乱関数 $S_{ss}(q)$ $S_{pp}(q)$ および $S_{ps}(q)$ を導出した。 $S_{ss}(q)$ を表現でき、シランカップリング剤によってシリカ粒子の凝集構造が変化することがわかった。

キーワード：階層構造、ゴム充填系、小角中性子散乱

1. 目的

プラスチックは、海洋生態系における残存性や水生生物への有害な影響により、重大な環境問題となっている。特に、マイクロプラスチックと呼ばれる 5 mm 未満のプラスチック粒子は、海洋生物の生理機能を攪乱することが知られており、持続可能な開発目標 14 など、世界的な環境対策の主要な対象となっている。そのため、プラスチック廃棄物の分解に有効な手法の開発はきわめて重要である。近年、臨界点近傍および超臨界水 (臨界圧力 $P_c = 22.1$ MPa、臨界温度 $\Theta_c = 374$ °C) は、高分子材料の分解に有望な媒体として注目を集めている。これは、高いイオン生成能による加水分解促進や、有機溶媒に類似した低誘電率といった、独自の溶媒特性によるものである。本研究では、PS 粒子の亜臨界水中における膨潤挙動を定量的に評価し、先行研究の成果を拡張した。具体的には、SANS 実験による膨潤度の圧力依存性データをもとに、フローリー-ハギンズ理論を適用し、相互作用パラメーター (χ) を絶対温度 (T) の関数として決定することを目的とした。

2. 方法

高圧 (最大 50 MPa) および高温 (最大 500 °C) に対応するセルシステム¹⁾に PS 粒子の D₂O 分散液を入れ臨界点近傍の SANS 測定を行った。SANS 実験は、茨城県那珂郡東海村の研究用原子炉 JRR-3 に設置されたビームライン SANS-J [3,4] を用いて行った。入射中性子ビームの波長は $\lambda = 0.65$ nm、直径は 8 mm とした。

3. 結果及び考察

圧力 $P = 25$ MPa における分散液 CV-SANS プロファイルの温度依存性を図 1 に示す。図 1 に示すように、プロファイルは、球の散乱関数に特徴的なフリンジを示す。フリンジが昇温と共にフリンジは小角側に移動し、やがて明瞭ではなくなり、膨潤と分解が起こっていることが明らかになった。この膨潤挙動より PS/超臨界水の相図を明らかにするこ

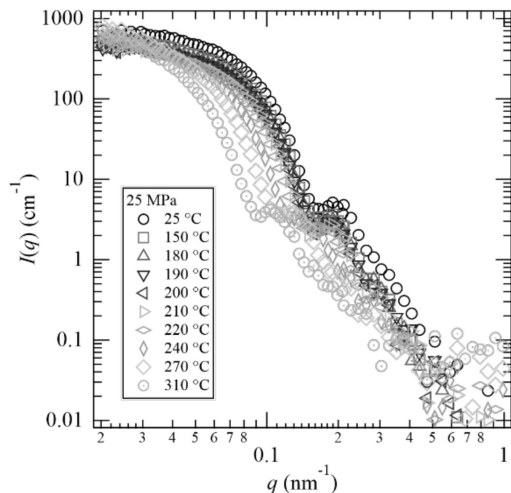


Figure SANS profiles of PS particles dispersed in D₂O with temperature varied at 25 MPa.

とができた。

4. 引用(参照)文献等

1. J. Abe, H. Arima-Osonoi, H. Iwase, S. Takata, K. Ohuchi, S. Kasai, T. Miyazaki, T. Morita, M. Shibayama, A high-temperature high-pressure small-angle neutron scattering cell for studying hydrothermal reactions in supercritical water, J. Appl. Crystallogr. 57 (2024) 306–313. <https://doi.org/10.1107/S1600576724000700>.