

超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト(超超PJ)  
最終成果報告会

# 複合系の反応設計(添加剤設計)の 研究開発

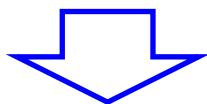
2022年1月19日(水)

出光興産株式会社  
靱津 典夫

## 外的なストレス要因に対するロバストな材料・組成設計

- ニーズの多様化に対応し、素材を改良  
溶媒キャストによる有機薄膜形成  
機能性有機膜の力学的剥離  
有機溶媒、樹脂材料の耐酸化劣化設計 …

添加剤による特性向上(試行錯誤, “勘と経験”)



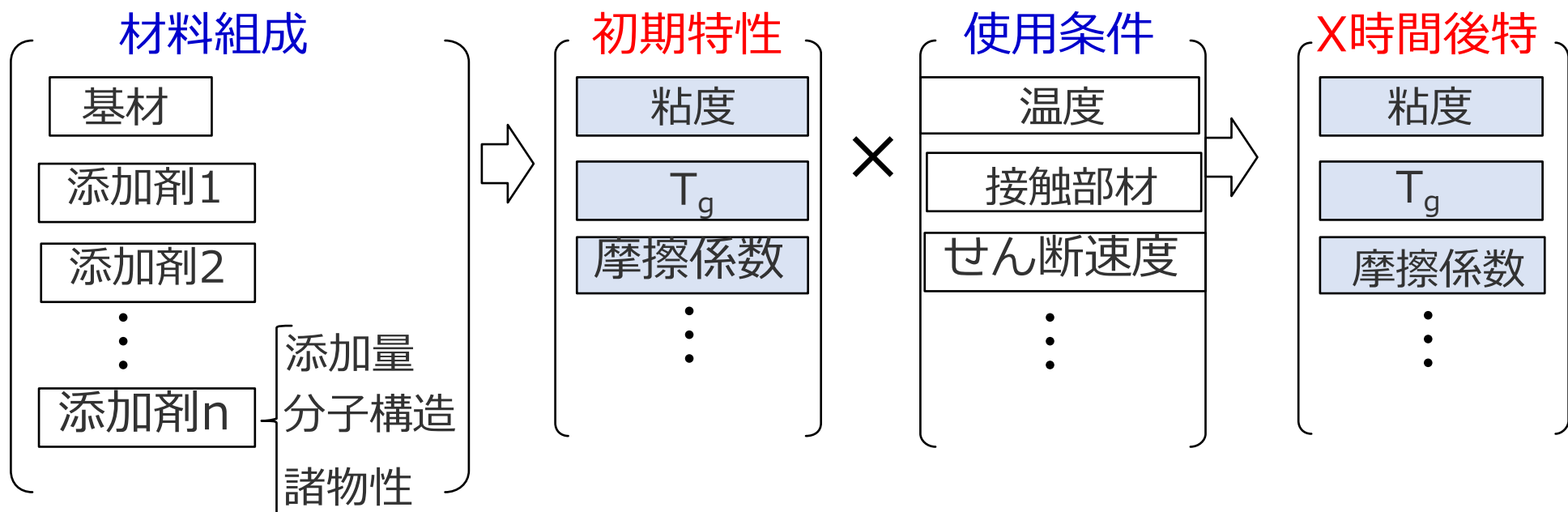
耐久性を損なわせる**ストレス要因** (温度, 力学的要因, 薬品、…)  
に対して, **材料内部で何が起こるか**を予測し**最適処方**を施す

シミュレーション

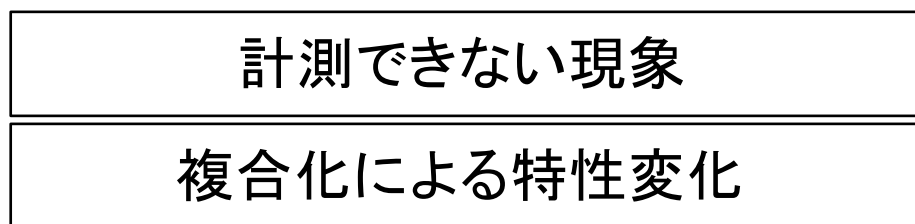
高度な計測手法

} **現象理解, ビッグデータ創出**

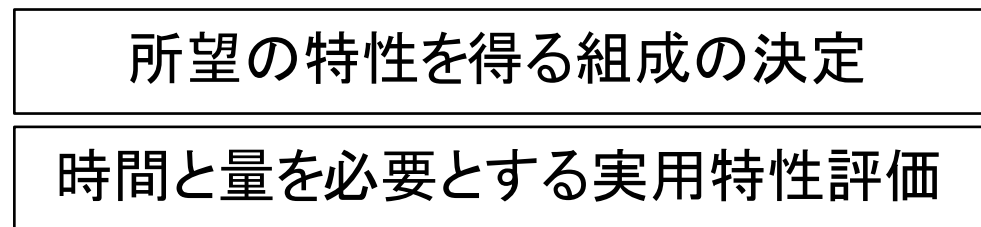
# テーマの目標



<課題を解きづらくする要因>



<開発期間を長くする課題>



使用条件を加味したシミュレーションによりメカニズムを解明し  
機械学習も組み合わせながら特性を予測できる状態とする  
従来の試行錯誤プロセスを削減することで開発期間を1/20にする

計算

妥当性確認

検証

比較検証

計測

## ①-2. 分子、イオン、界面原子ダイナミクスに関する

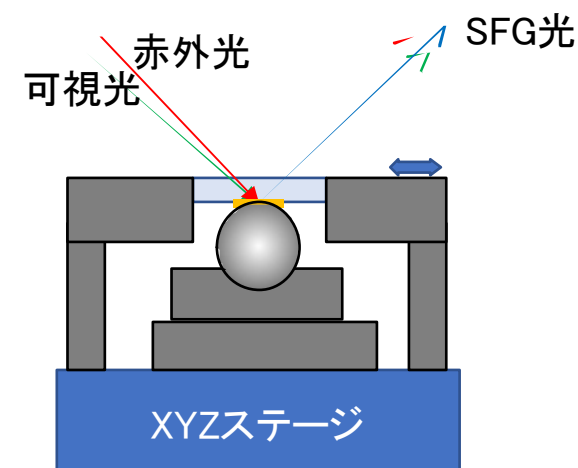
### マルチスケール計算シミュレータ

- 酸化反応シミュレータの開発
- 界面反応シミュレータの開発
- 高次構造シミュレータの開発
  
- シミュレータによる物性予測
- 機械学習・AIによる物性予測
- オープンデータベース利用によるデータ拡充

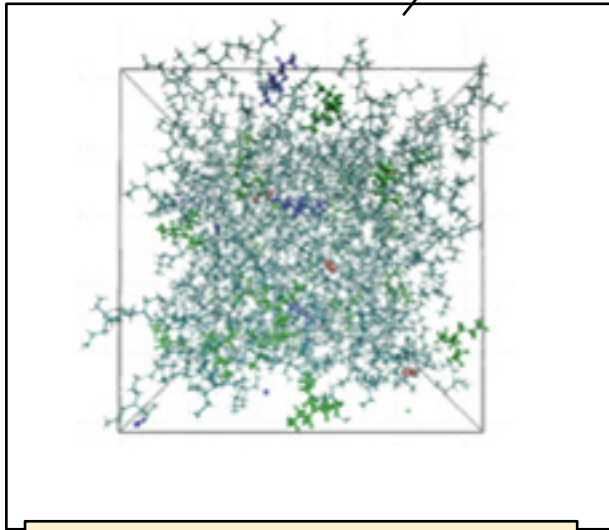
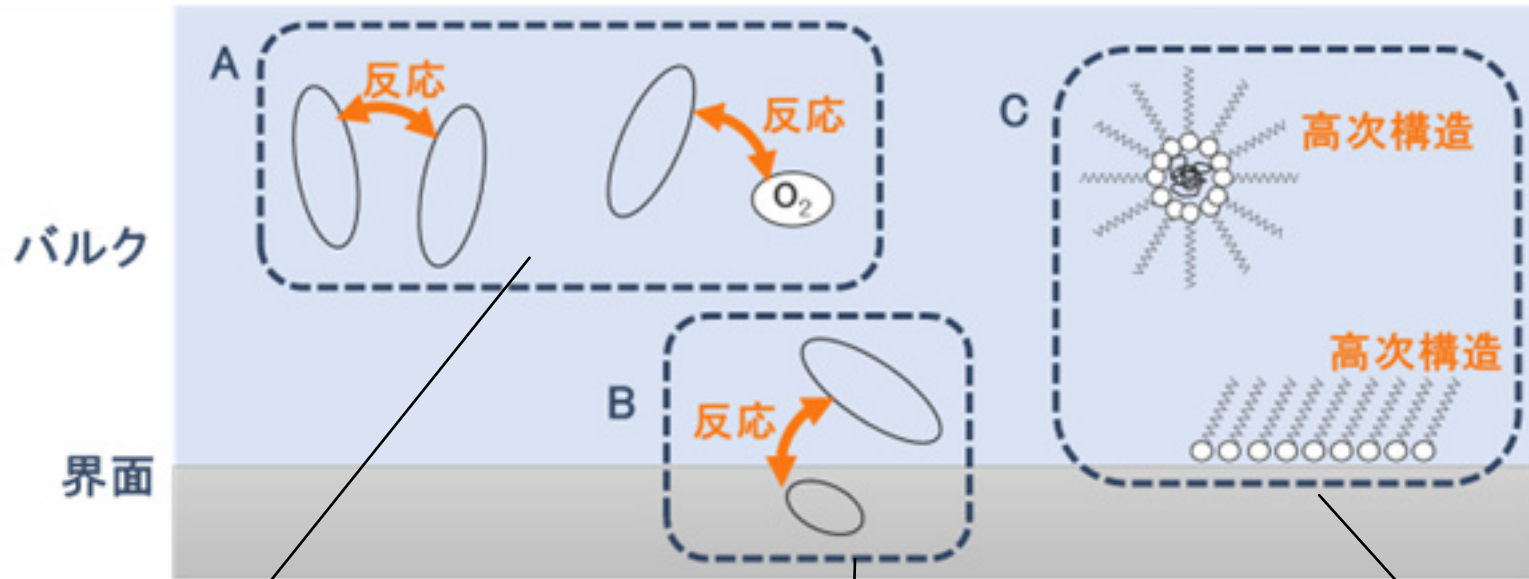
## ⑩表面・界面の構造計測とナノ領域の多物性同時評価

### -和周波分光とナノプローブ分光

- 加圧せん断下での和周波分光



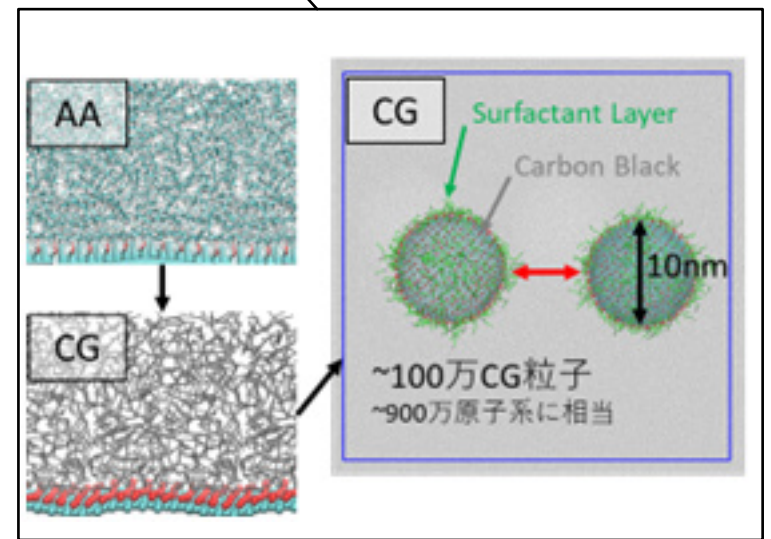
# 添加剤の作用メカニズム解明



酸化反応  
シミュレータ



界面反応  
シミュレータ



高次構造  
シミュレータ

# シミュレータ開発の攻め所と目標

シミュレータ	開発技術	攻め所/目標
酸化反応 シミュレータ	量子化学計算 + モンテカルロ -分子動力学	材料中の化合物の反応を頻度因子を含め見積もる <b>名古屋大・長岡教授</b>
界面反応 シミュレータ	第一原理-分子 動力学ハイブリッ ド	「加圧・せん断状態にある界面」での反応を理論的に解析。系の温度や圧力等も考慮した反応評価 <b>名古屋工業大・尾形教授</b>
高次構造 シミュレータ	粗視化分子動力学	無機粒子－有機溶剤－界面活性剤の三相系で、ミセル形成や分散の機構を分子論的に把握 <b>名古屋大・篠田准教授</b>



## 名古屋大・長岡教授開発

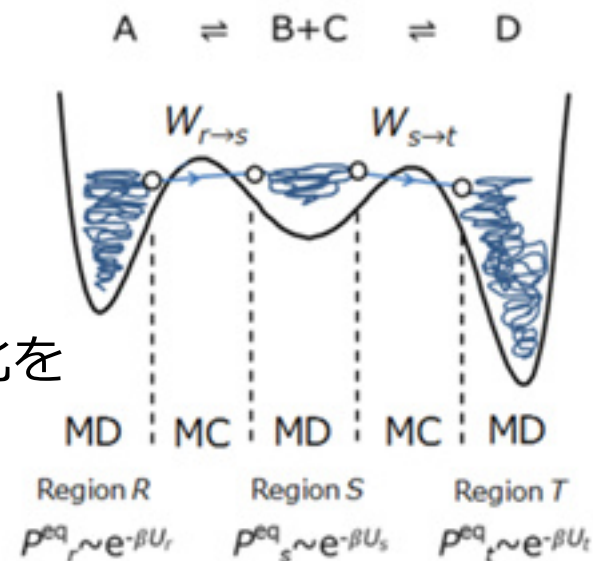
Red Moon (RM) 法の適用

モンテカルロ (MC) 法

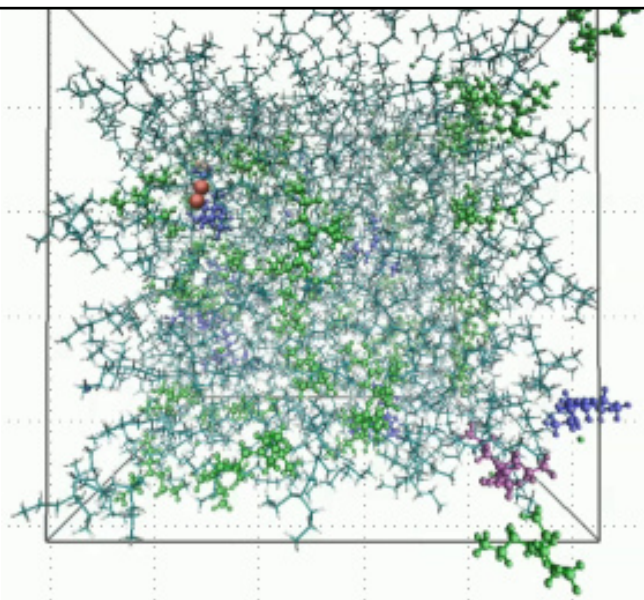
分子動力学 (MD) 法

### RMサイクル

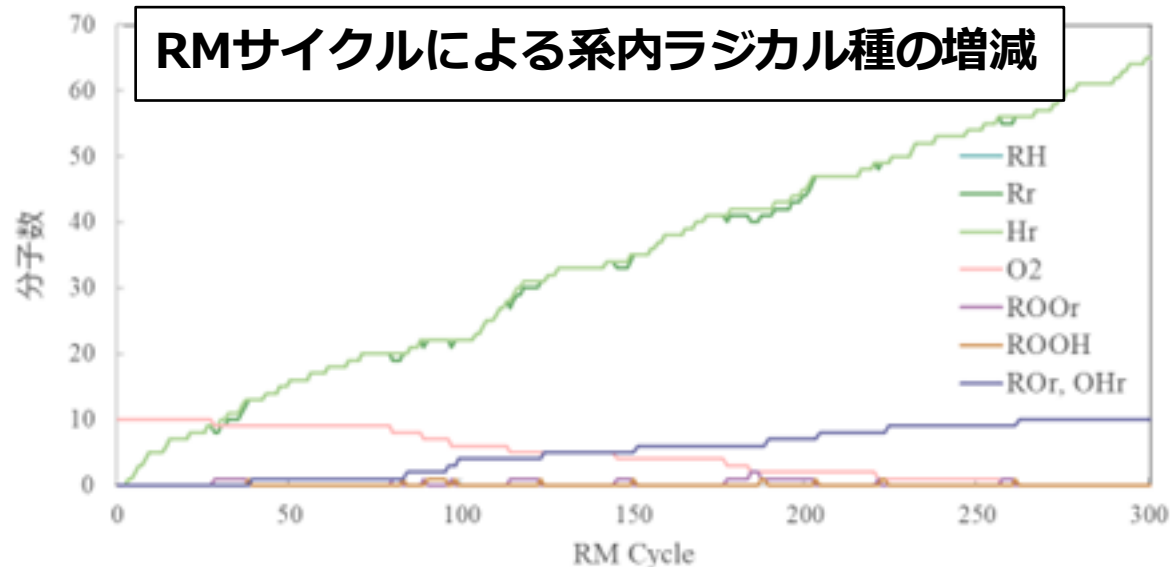
化学反応による状態変化をシミュレーション



### C10分子酸化過程のスナップショット



### RMサイクルによる系内ラジカル種の増減



逐次反応によるラジカル量増減のシミュレーションを実現

➡ 酸化劣化進行度の分子レベルでの可視化⇒酸化防止過程の定量化へ



名古屋工業大・尾形教授開発

加圧・せん断下での界面反応

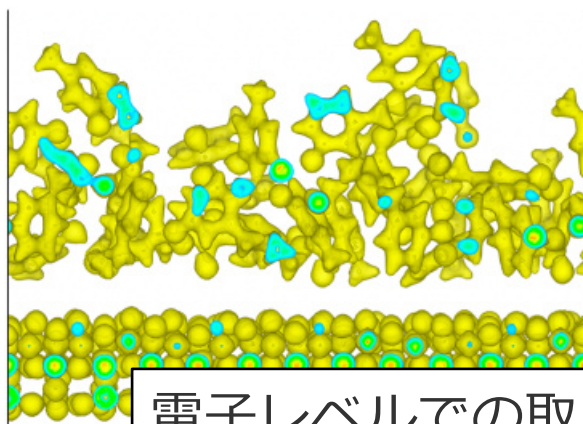
系全体⇒大規模

加圧やせん断による分子拡散・構造への影響

界面近傍⇒複雑な反応過程

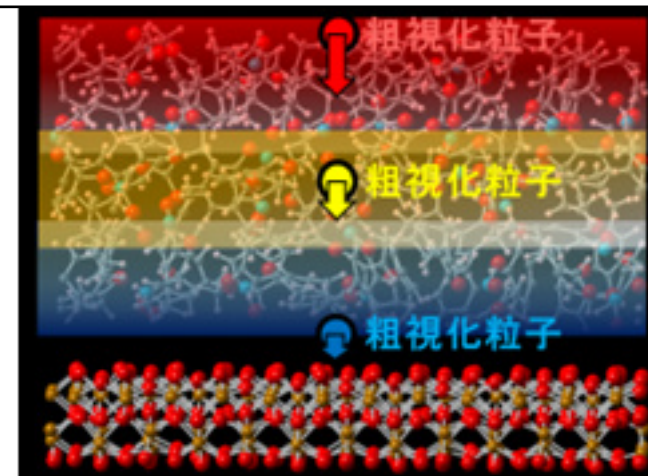
加圧やせん断による反応機構への影響

同時に達成する  
シミュレータを開発

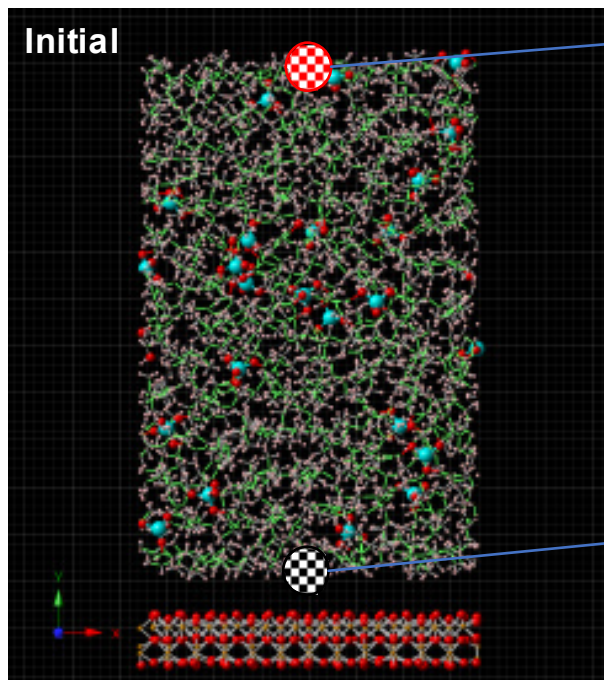


電子レベルでの取り扱いが必要な領域  
= 界面近傍と、古典的取り扱い領域  
= バルクとに切り分け

仮想的な粒子を導入し  
分子系のマクロな運動・変形を制御

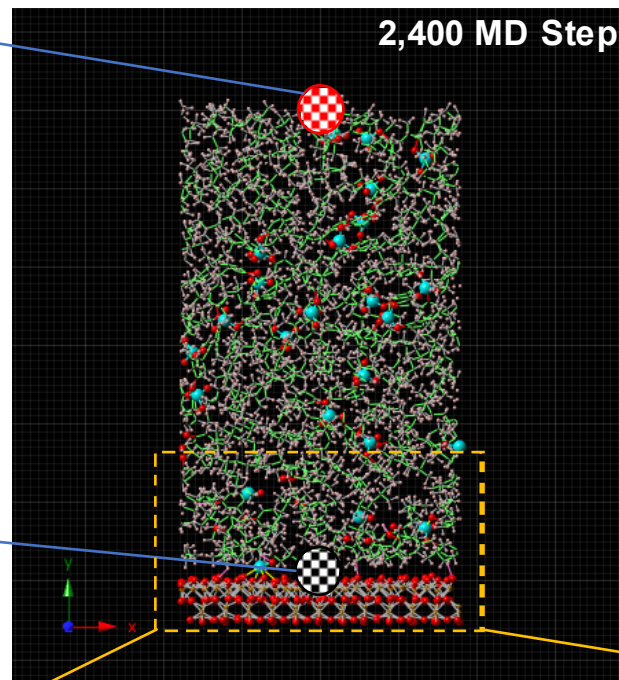


界面原子ダイナミクス・反応シミュレータ HybridQMCLTとして公開



CGP2

CGP1



## All ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ +DMH+TCP)

# of atoms = 4,836 atoms

DMH: 126 mole. (1 mole. = 26 atoms)

TCP: 24 mole. (1 mole. = 47 atoms)

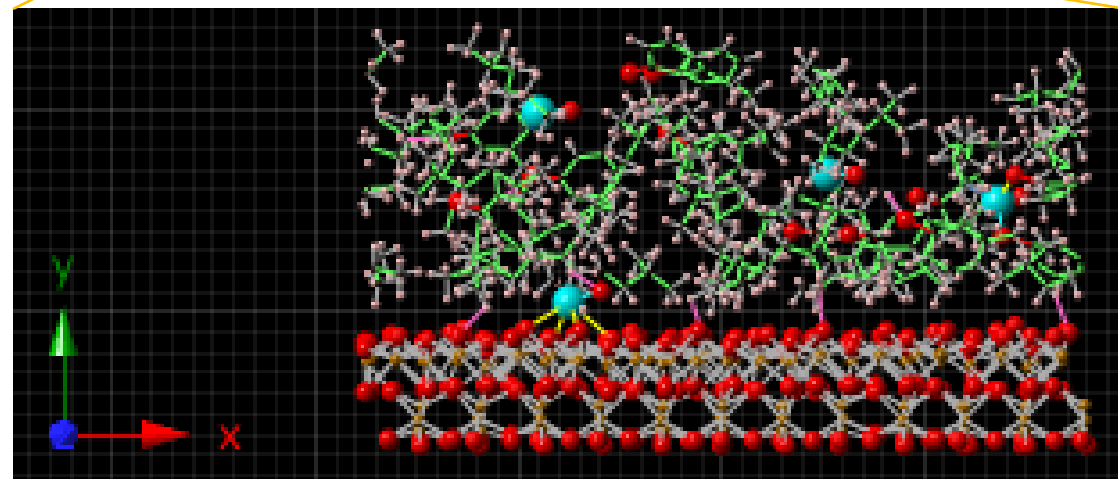
$\text{Fe}_2\text{O}_3$ : 432 atoms

## QM region # of atoms = 1,140 atoms

DMH: 20 mole.

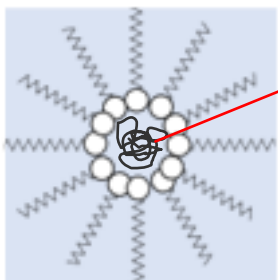
TCP: 4 mole.

$\text{Fe}_2\text{O}_3$ : 432 atoms



界面での解離⇒基板への化学吸着を観測

## 有機溶剤中での界面活性剤の挙動にフォーカス



不溶物を分散させる働き

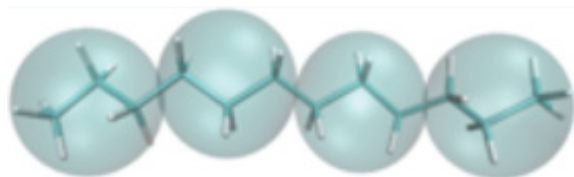
分子論的な理解

粗視化分子動力学シミュレーションを適用

有機溶剤系での例はこれまで無い

名古屋大・篠田准教授開発

有機材料への適用を可能に



SPICA: Surface Property fitting Coarse grained model

<http://www.spica-ff.org>

課題

- 高温高圧まで対応できるシミュレーション技術の創成

## カ場パラメータの拡張

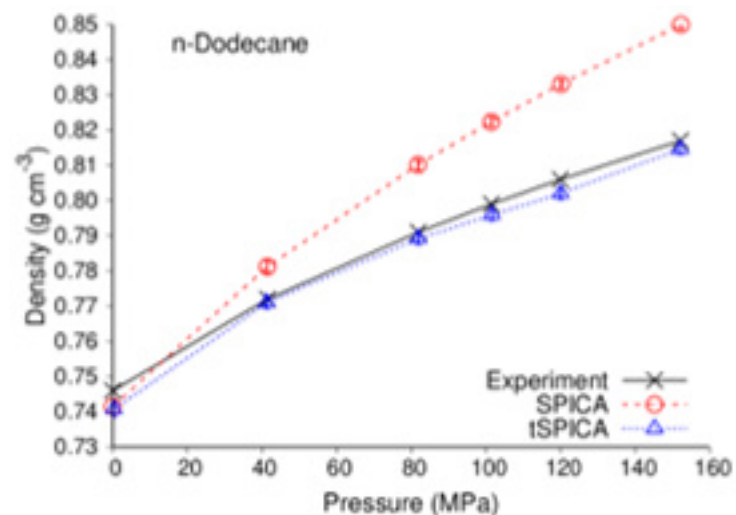
Lennard-Jones型

ポテンシャル:

$$U_{LJ}(r_{ij}) = \frac{3\sqrt{3}}{2} \varepsilon_{ij} \left\{ \left( \frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^4 \right\}$$
$$U_{LJ}(r_{ij}) = \frac{27}{4} \varepsilon_{ij} \left\{ \left( \frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^9 - \left( \frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^6 \right\}$$

高温域まで適用できるよう

$\varepsilon$ をスケール ( $\rightarrow$  tSPICAカ場)



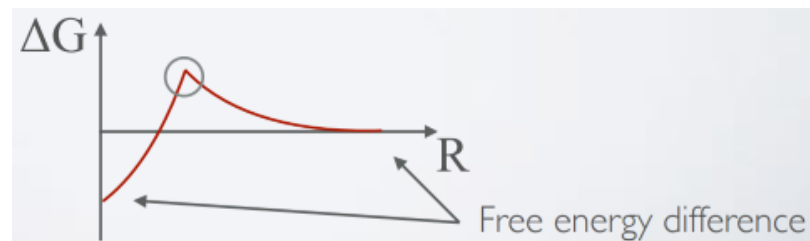
## 分散安定性の定量化

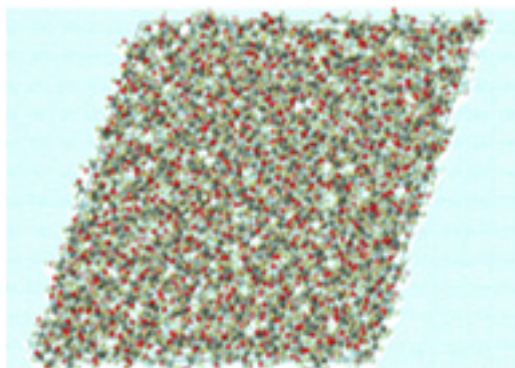
界面活性剤の性能を特徴づける

データとして活用



現在, 全原子MDも併用して  
界面活性剤の分散・凝集機構について  
分子論的理解を進めている

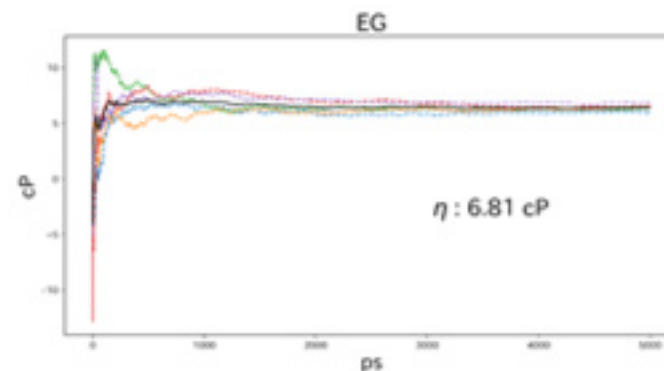




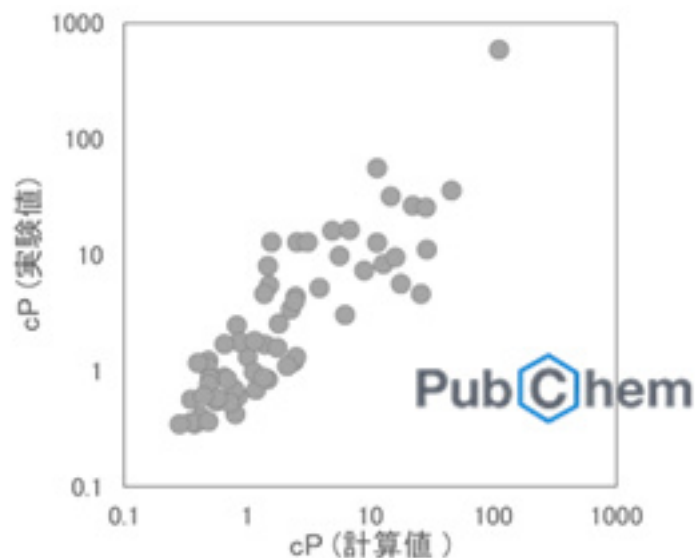
$$\eta = \lim_{\dot{\gamma} \rightarrow 0} \frac{\langle \hat{P}_y^{\text{zz}}(t) \rangle_a}{\dot{\gamma}}$$



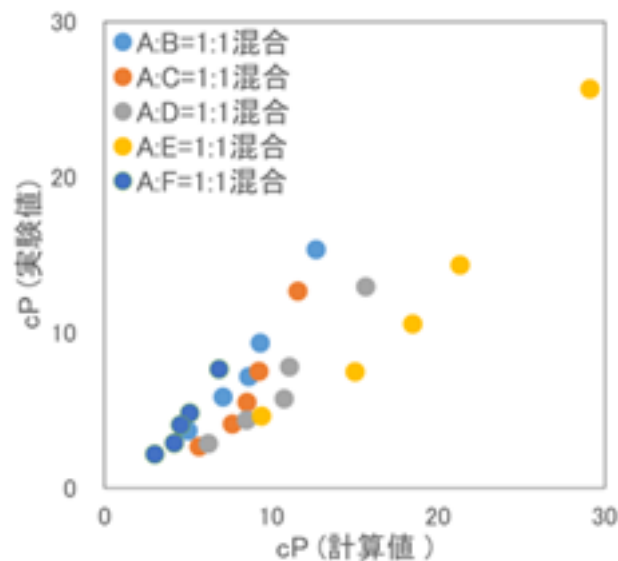
## MDによる粘度推算



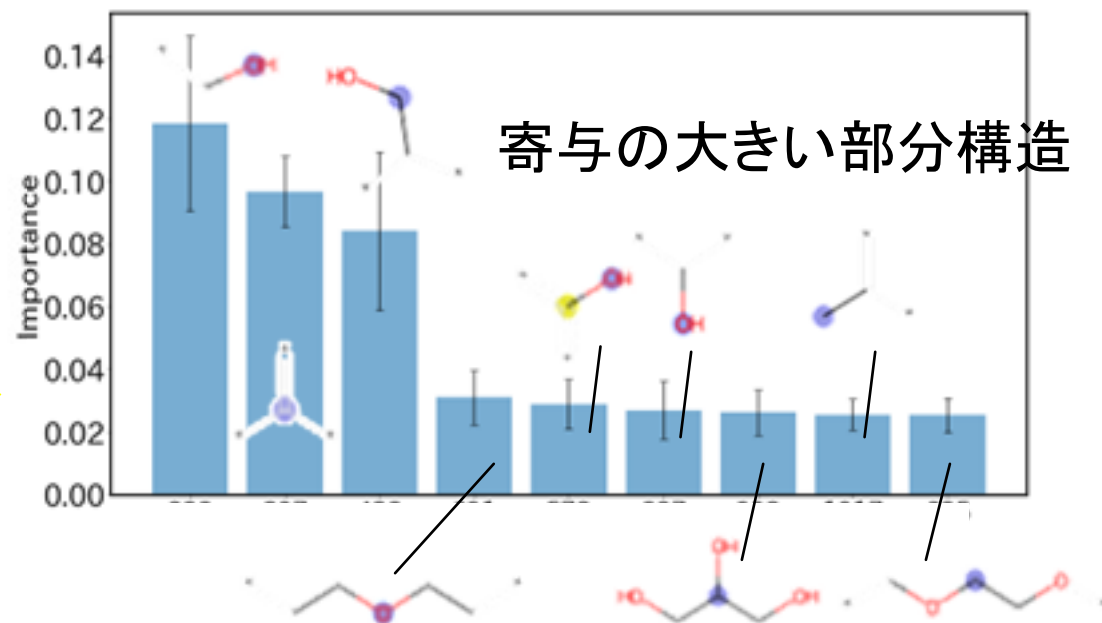
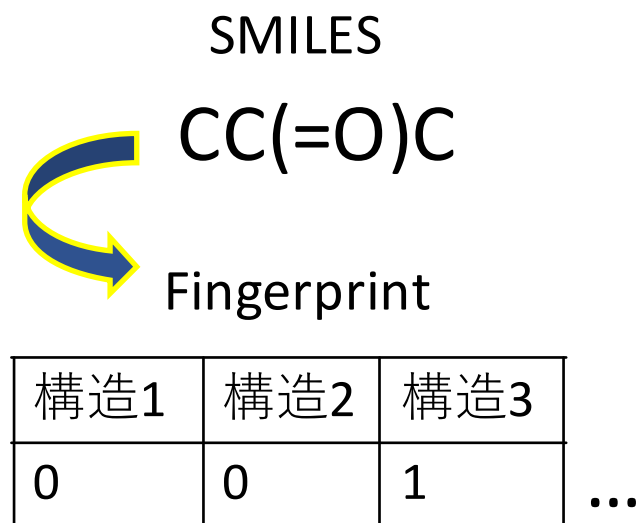
実験値の大小関係と整合  
公開データベースを利用した  
データ拡充の可能性



温度依存性も再現  
混合物系にも適用可能



<https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/>



- 公開データも活用しながらデータ数を補う
- AIによる1次スクリーニング⇒MDによる2次スクリーニングによって実験点数を大幅に削減する

## ◆従来型プロセス



$$\mathcal{T} = K_1 + 0.2(N_{1A} + N_{1B} + \dots + N_{1E})T_1 + 5XN_{1A}N_{1B} \dots N_{1E}(T_2 + T_3)$$

## ◆新プロセス



$$\mathcal{P} = S_1 + S_2 + 0.2(N'_{1A}P_{1A} + N'_{1B}P_{1B} + \dots + N'_{1E}P_{1E})T_1 + 5XN'_{2A}N'_{2B} \dots N'_{2E}P_2(T_2 + T_3) \quad \ast N'_{2\ast} = N'_{1\ast}P_{1\ast}$$

$S_1$  : 設計・合成の確度を高めるためのメカニズム解明

$S_2$  : 候補組成を絞り込むための特性予測

# 開発期間短縮率(5種の添加剤の最適処方の場合)

$$\mathcal{T} = K_1 + 0.2(N_{1A} + N_{1B} + \dots + N_{1E})T_1 + 5XN_{1A}N_{1B} \dots N_{1E}(T_2 + T_3)$$

$K_1$  : 30日 (文献, 特許調査)

$T_1$  : 90日  $T_2$  : 0.05日  $T_3$  : 0.05日

$N_A \sim N_E$  : 各5種  $X$  : 4種

$$\mathcal{T} \doteq 18.3 \text{年}$$

(合成1.2年, 配合&評価17.1年)

$$\bar{\mathcal{P}} = S_1 + S_2 + 0.2(N'_{1A}P_{1A} + N'_{1B}P_{1B} + \dots + N'_{1E}P_{1E})T_1 + 5XN'_{2A}N'_{2B} \dots N'_{2E}P_2(T_2 + T_3)$$

AIの絞り込み率 1/10  
MDの絞り込み率 1/5

シミュレータの絞り込み率  
各種添加剤において 2/5

$S_1$  : 90日  $S_2$  : 20日

その他同上

$$\bar{\mathcal{P}} \doteq 0.73 \text{年}$$

(絞り込み 110日, 合成180日, 配合評価1日)

$$\bar{\mathcal{P}} / \mathcal{T} \doteq \frac{1}{25}$$

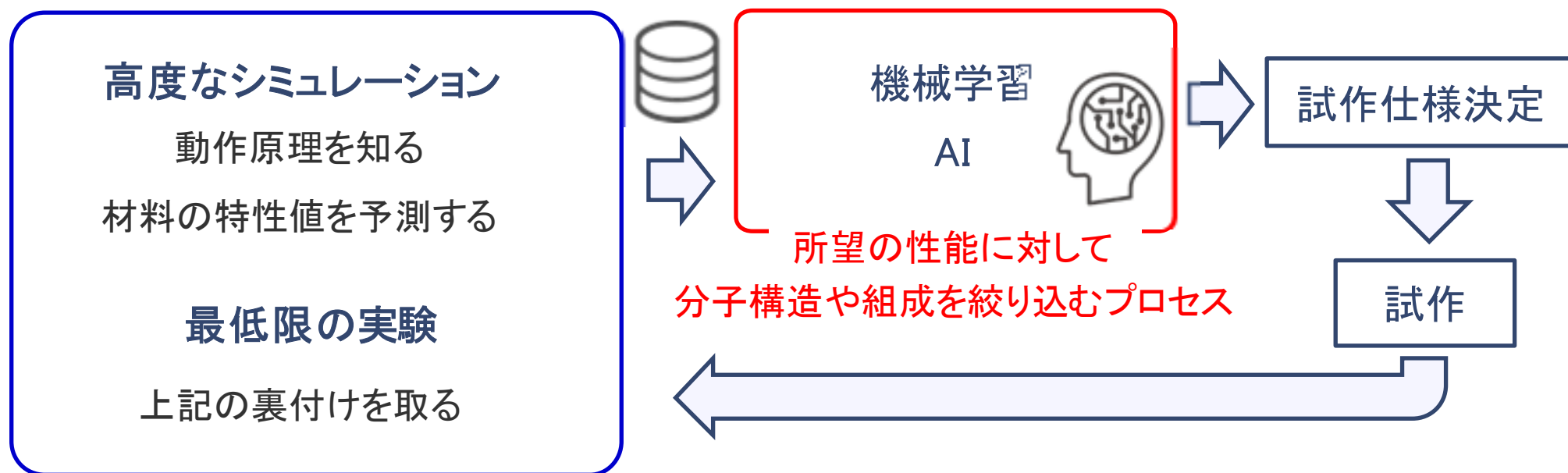


## ◆シミュレーション

富岳などを利用した大規模計算, データ蓄積  
より自社材料に特化した計算条件の設定

## ◆データサイエンス

自動分子設計技術の獲得 逆方向のスクリーニング  
社内データベースの拡充



以上