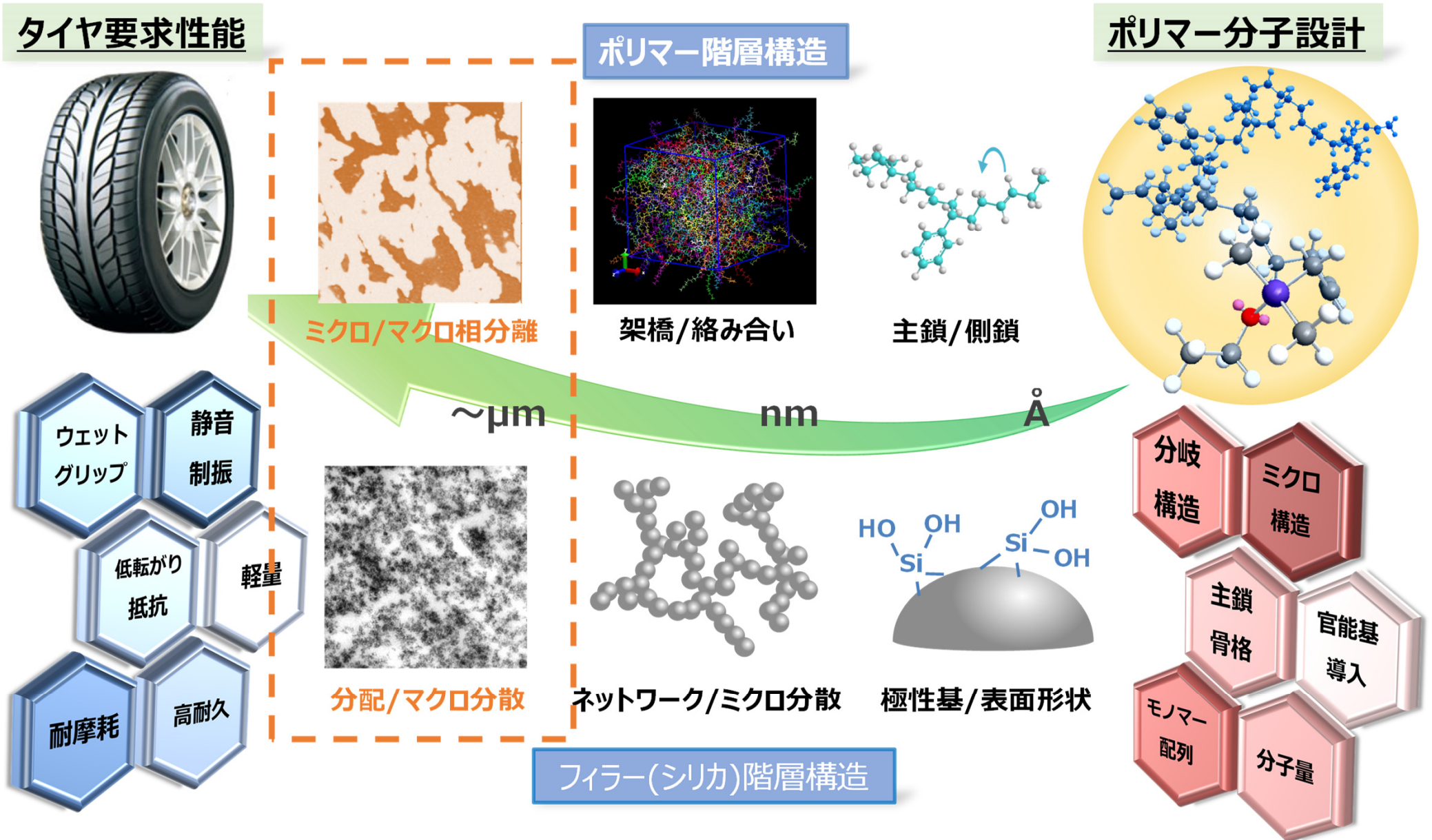


超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト(超超PJ)
最終成果報告会

「機能性合成ゴム材料の研究開発」

2022年1月19日(水)

JSR株式会社
富永 哲雄

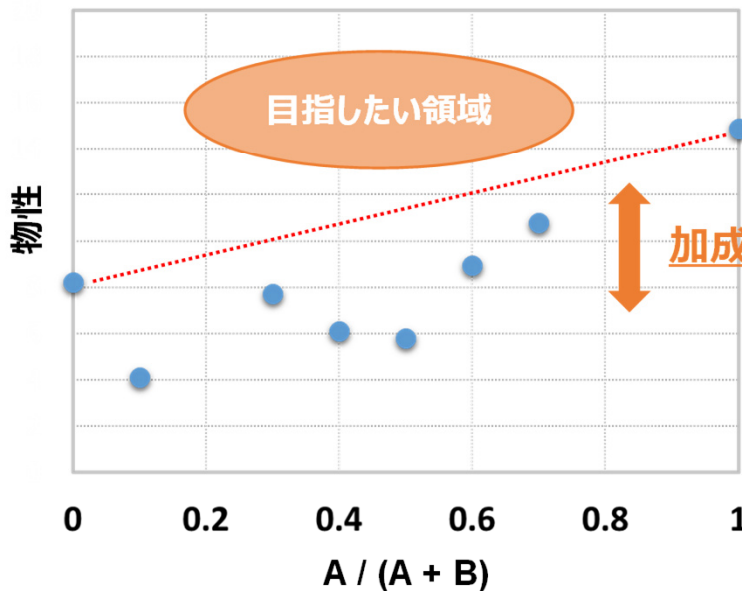


タイヤの要求性能を満たすためにポリマー/フィラーそれぞれの階層構造制御が必要不可欠

非相容ゴムブレンドの物性



SBR/IR/シリカブレンドゴム



予想される原因

- ・ポリマーのミクロ/マクロ相分離
- ・フィラーの分配/分散
- ・架橋速度差
- ・
- ・

物性に影響する構造因子の獲得

⇒ 加成型とのギャップ改善 + α に繋がると期待

先行研究 (フィラー分配)

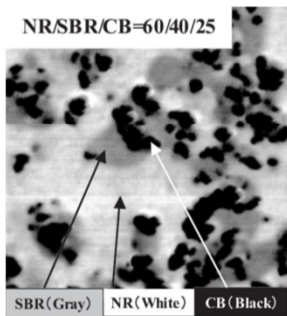


Fig. 2 SPM photograph of NR/SBR blend composites.

- ・NR/SBR/CB系のSPM観察例
- ・CBが分配比2でSBR相に偏在

シリカブレンドゴムの観察報告例無し

[出典] 國澤ら日本複合材料学会誌, 2009, 35, 157

先行研究 (構造物性相関)

- ・NR/ENRブレンド加硫物について、ブレンド比率による相構造変化が物性に影響を与えることを確認 (西ら 日本ゴム協会誌 2004, 77, 3)

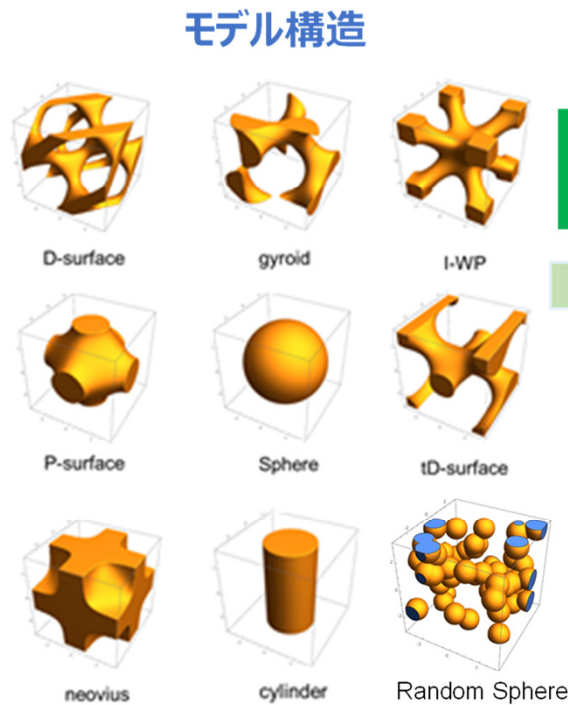
フィラー含有ブレンドゴムの報告例無し
また、構造因子まで議論が深掘りされた例も無し

テーマの目標と超超PJにおける開発の方向性

超々PJにおける目標

物性に影響する構造因子の解明により獲得した材料設計指針により、
材料開発期間を1/20に短縮する

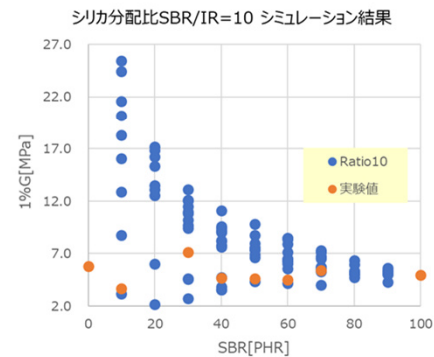
開発の方向性



データセット構築

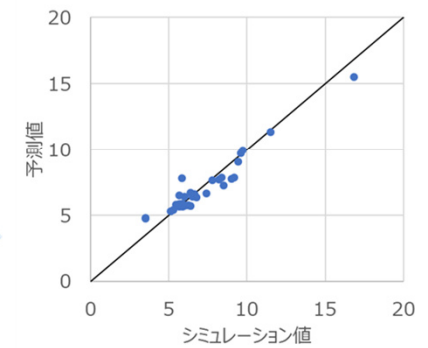
データセット

物性シミュレーションデータの確保

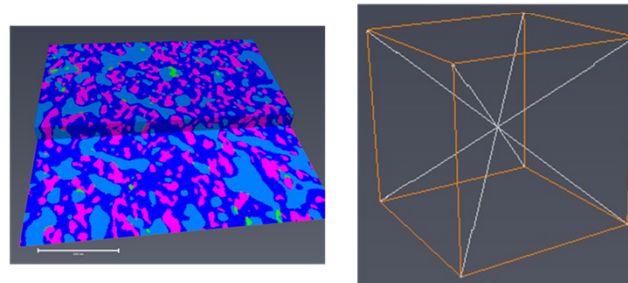


機械学習

機械学習モデル



構造パラメータの抽出

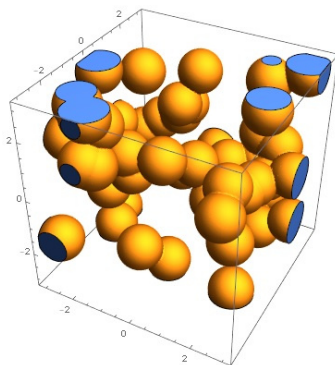


物性予測に寄与する
構造パラメータの抽出

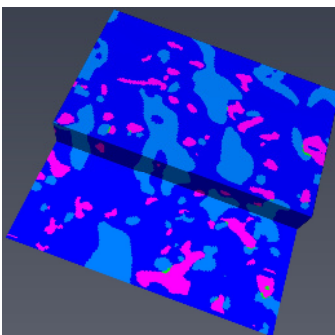
材料設計指針の獲得

計算

比較
検証



計測



プロセス

③機能性高分子材料のマルチスケール計算

- 拡張OCTA開発 (PJ内連携)
⇒ 拡張GOURMET, Image Loader, AI連携
- フィラー充填ゴムブレンドのFEMシミュレーション用モデル開発
⇒ モデルの検証, 実験値との比較
- FEMシミュレーション, 構造パラメータ抽出, 機械学習
⇒ 弾性率, 一軸伸長, 粘弾性の順方向予測
- データセットの構造バリエーション拡大手法の獲得
⇒ ベイズ最適化及び差分進化法を用いた逆解析
- 材料設計指針の獲得
⇒ 構造物性相関図の作成

活用技術：拡張OCTA

⑪有機無機コンポジット材料の3次元構造評価

- SBR/IR/シリカ系ゴムの相分離構造とフィラー分散状態の同時計測
⇒ 3DTEM-EDXによるモデル試料観察
- SBR/IRブレンド比及びシリカ充填量を変量したデータの収集、解析
⇒ 同上

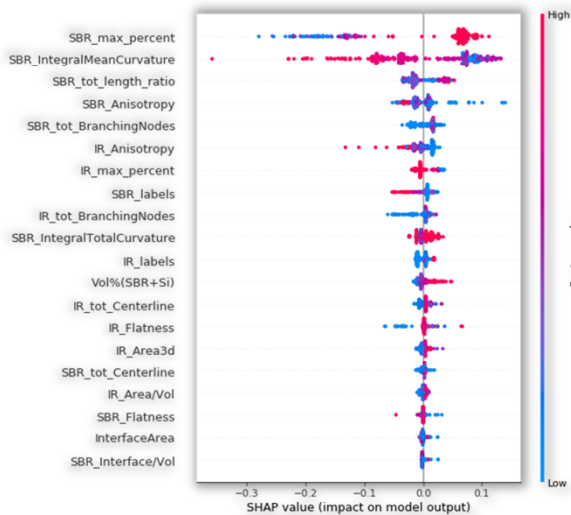
活用技術：電子分光型電子顕微鏡

△ PJ終了後自社にて実施予定

目標に対して

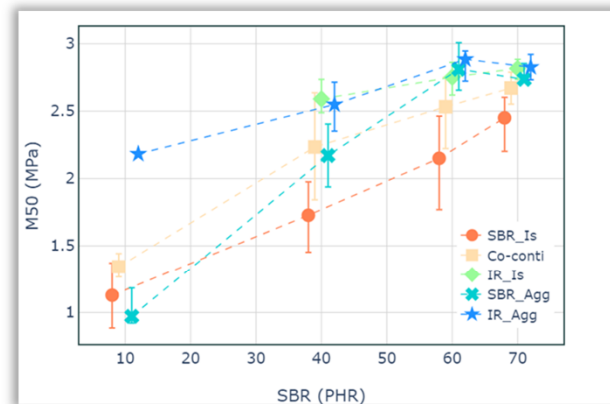
物性に影響する構造因子の解明 + 材料設計指針が必要

SHAP解析



機械学習による物性に相関する
構造因子の抽出

構造物性相関図



モルフォロジーへの落とし込み



材料開発期間を
1/12~1/19
に短縮見込み

※プロセス含まず

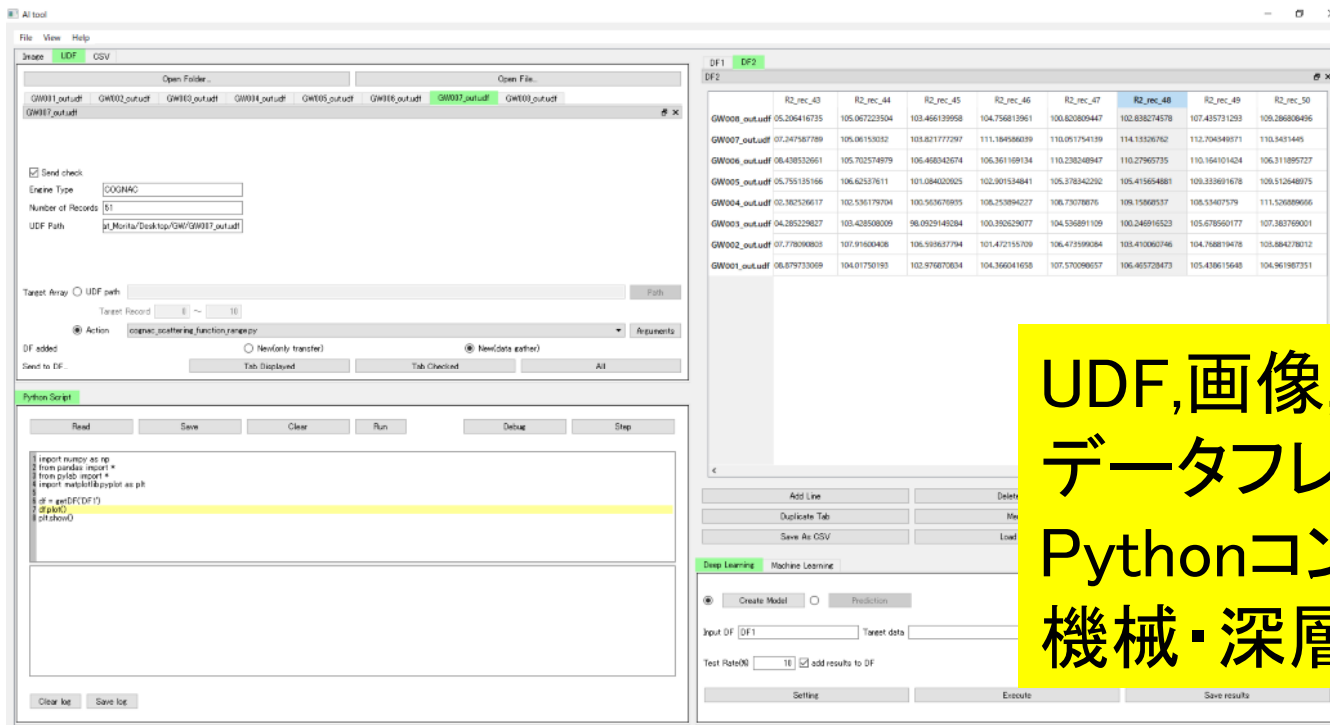
成果物

- シミュレータ ... 「拡張OCTA」をPJ内連携で開発・公開
- DPF登録 ... 構造パラメータと物性シミュレーションのデータセット
 - ① 微小変形シミュレーションのデータセット (データ数: **772**)
 - ② 大変形シミュレーションのデータセット (データ数: **855**)

- 学会発表
9件 (日本ゴム協会、高分子学会等)
- 論文
2報 (投稿中)

トピックス1 拡張OCTA開発

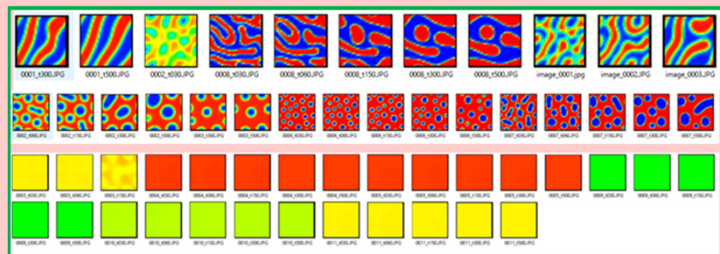
「拡張OCTA」: 拡張Gourmet, Image Loader, AI連携機能



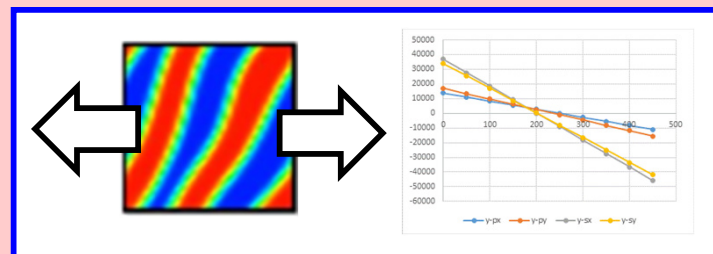
UDF,画像,CSVの読込・可視化
データフレーム表示・GUI加工
Pythonコンソールアクセス
機械・深層学習条件マネージャ

AIモデルケース: ポリマーの相構造の分類・弾性率予測

相構造の計算データセット



弾性率の計算データセット



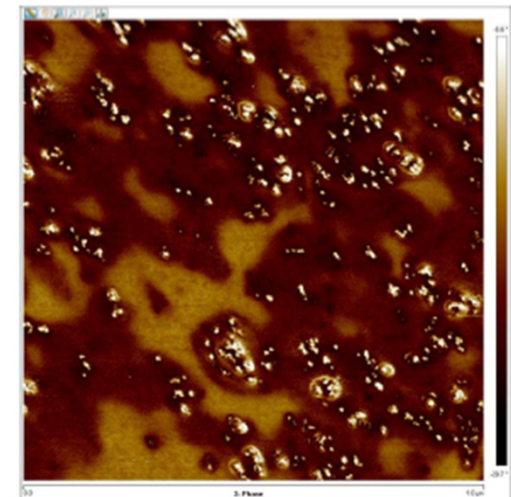
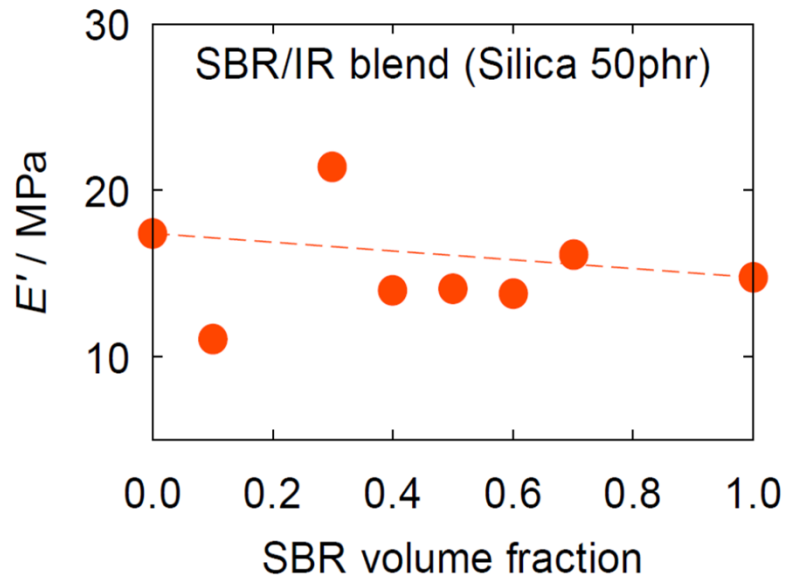
トピックス2 FEMシミュレーション用モデル開発

フィラー充填ゴムブレンド：
相分離モルフォロジーと
フィラー分配を考慮した
FEMシミュレーション

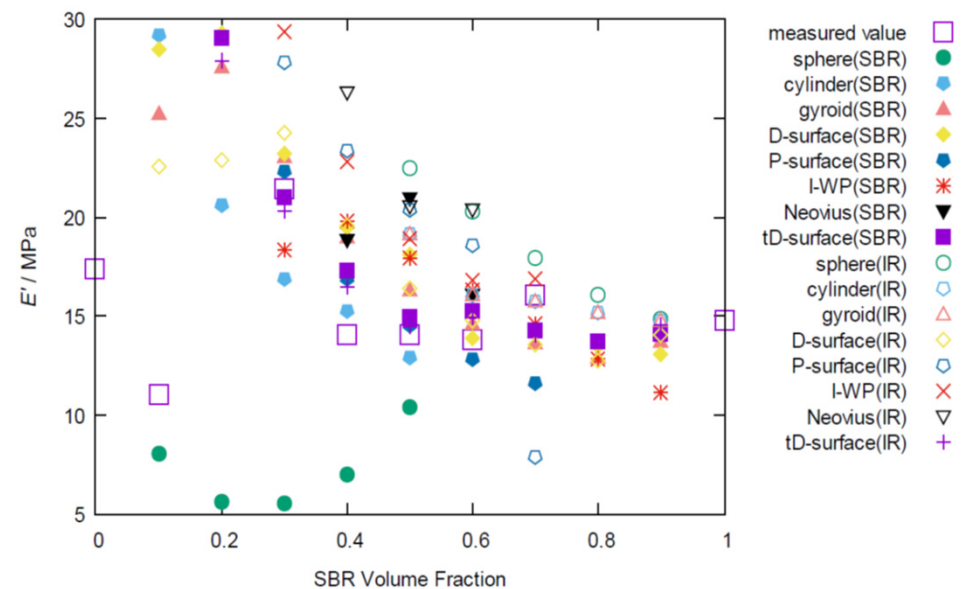
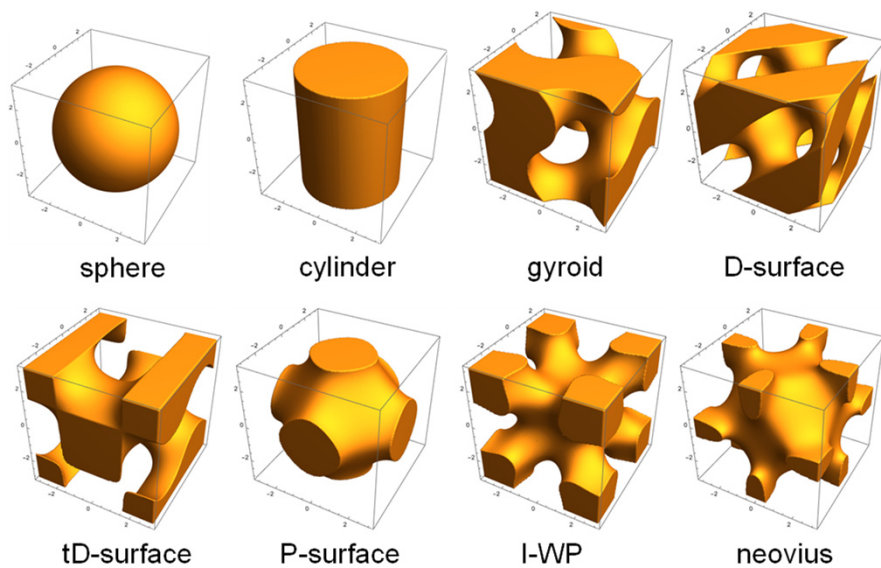
SBR/IR/Silica



SBR(Silica)/IR(Silica)



SBR/IR/Silica試料のAFM像
(産総研計測グループ)



トピックス3 3D TEM-EDXによるシリカ分配比の同定

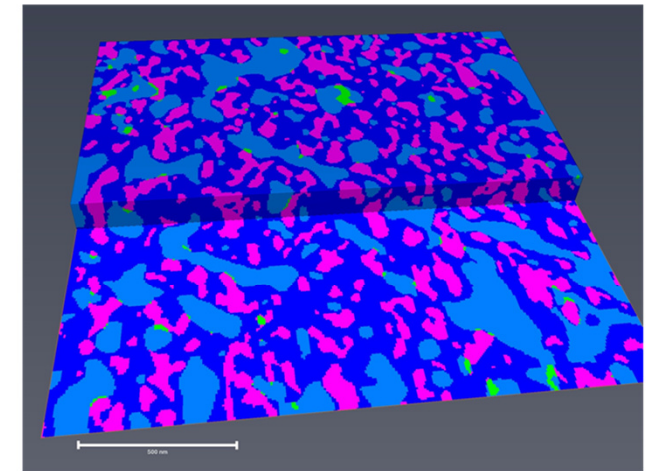
3DTEM-EDX

SBR/IR/シリカ非相容ゴムコンパウンドについて

- ①染色(OsO_4)によるSBR/IRコントラスト
- ②エネルギー分散型X線分光(EDX)によるシリカマッピング

を走査電子顕微鏡(STEM)により同時計測し3次元復元

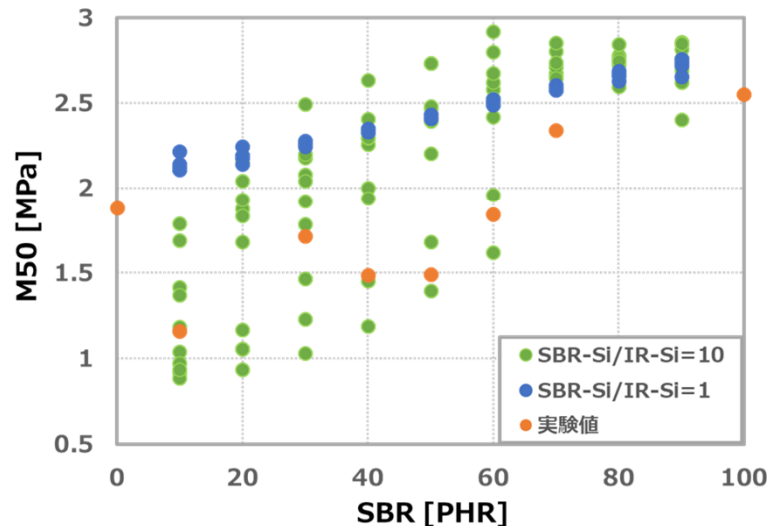
シリカ分配比SBR/IR=10であることを確認した



L. Lyu, S.Horiuchi et al., *J. Appl. Polym. Sci.* **2021**, 138, 51443

一軸伸長シミュレーション

規則構造を用いた大変形シミュレーション結果



シリカ分配比を考慮したパラメータ設定により
構造間の物性差異が発生

実験値の挙動を

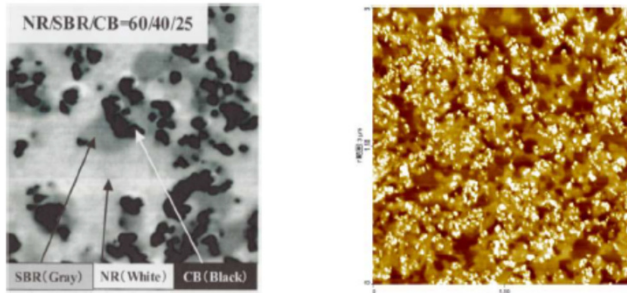
シリカ分配+相分離構造

により説明が可能となった

※PHR：ゴムや樹脂100gに対する他の材料の配合量を表す。
(Per Hundred RubberもしくはPer Hundred Resinの略)

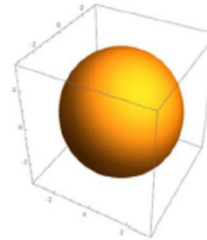
トピックス4 構造パラメータ抽出と機械学習

フィラー分配比



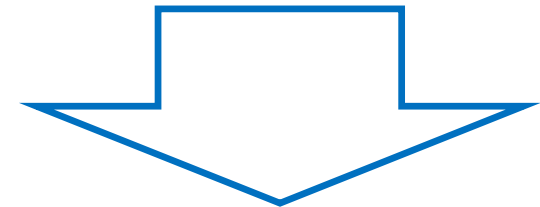
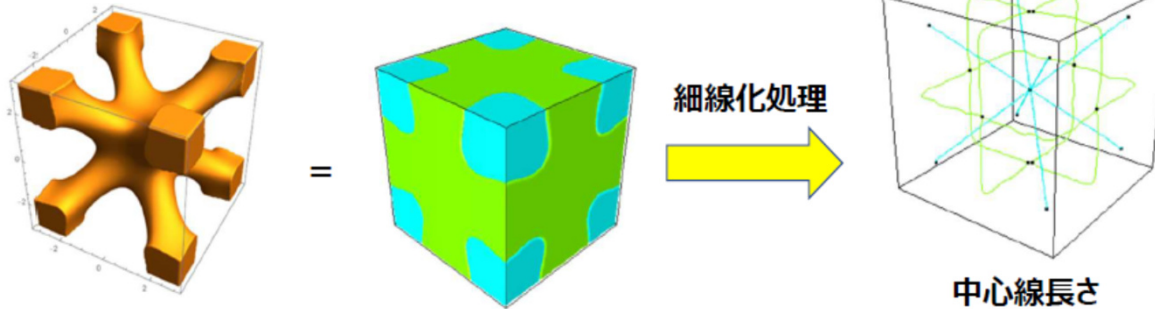
[出典] 國澤ら 日本複合材料学会誌, 35, 157 (2009).

接触面積

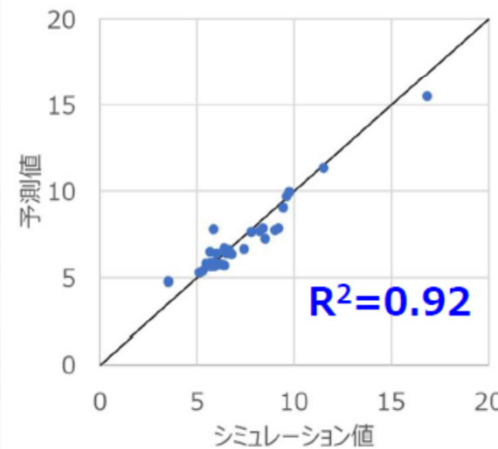


説明変数として
フィラー分配比
接触面積
中心線長さ
などの構造パラメータ
を抽出

細線化による中心線長さ

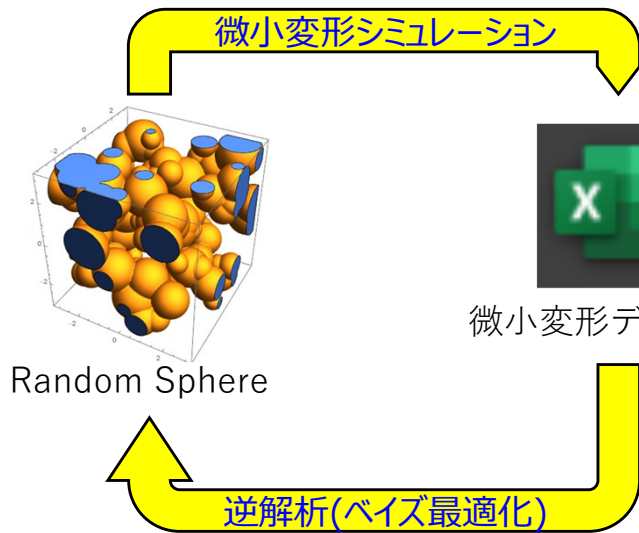


No.	説明変数	項目
0	SBR_PHR	ブレンドゴム100PHR中に含まれるSBR量。
1	IR_PHR	ブレンドゴム100PHR中に含まれるIR量。
2	SI_PHR	ブレンドゴム100PHR中に含まれるSi量。
3	Si_in_SBR_PHR	SBR100PHR中に含まれるSi量。
4	Si_in_IR_PHR	IR100PHR中に含まれるSi量。
5	Vol%_SBR+Si	SBR+Si相の体積分率。
6	Vol%_IR+Si	IR+Si相の体積分率。
7	TL_SBR+Si / V_total	SBR+Si相の最大長を全体積で割ったもの。(単位構造が異なるシミュレーション結果と比較するために導入)
8	TL_IR+Si / V_total	IR+Si相の最大長を全体積で割ったもの。(単位構造が異なるシミュレーション結果と比較するために導入)
9	TL/V_SBR+Si	SBR+Si相の最大長/体積
10	TL/V_IR+Si	IR+Si相の最大長/体積
11	TL_ratio_SBR+Si	SBR+Si相、IR+Si相の最大長の和に対するSBR+Si相の割合
12	TL_ratio_IR+Si	SBR+Si相、IR+Si相の最大長の和に対するIR+Si相の割合
13	TL/V_ratio_SBR+Si	SBR+Si相、IR+Si相の最大長/体積の和に対するSBR+Si相の割合
14	TL/V_ratio_IR+Si	SBR+Si相、IR+Si相の最大長/体積の和に対するIR+Si相の割合
15	IA/total_vol	界面積を全体積で割ったもの。(単位構造が異なるシミュレーション結果と比較するために導入)
16	IA/V_SBR+Si	界面積/SBR+Si相の体積
17	IA/V_IR+Si	界面積/IR+Si相の体積
18	IA/V_ratio_SBR+Si	SBR+Si相、IR+Si相の界面積/体積の和に対するSBR+Si相の割合
19	IA/V_ratio_IR+Si	SBR+Si相、IR+Si相の界面積/体積の和に対するIR+Si相の割合

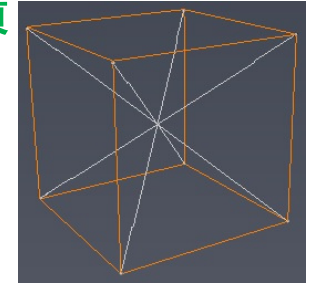


FEMシミュレーション
による物性値（弾
性率、一軸伸長、
粘弾性）を
機械学習で予測

トピックス5 逆解析による構造データ構築

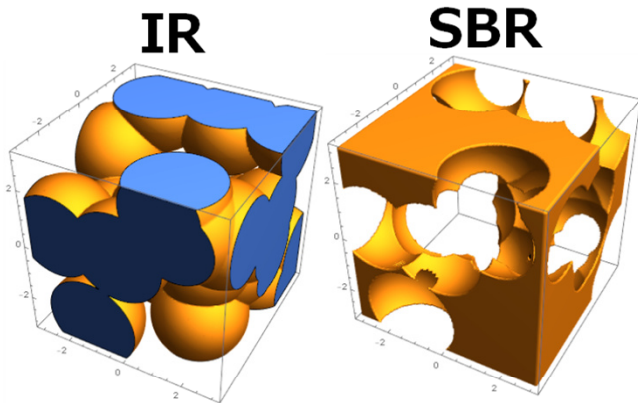


1%変形時の弾性率に重要な構造パラメータは
 ①SBR相の**中心線長比**(IR相に対する比)
 ②SBR相の**体積あたりの表面積**



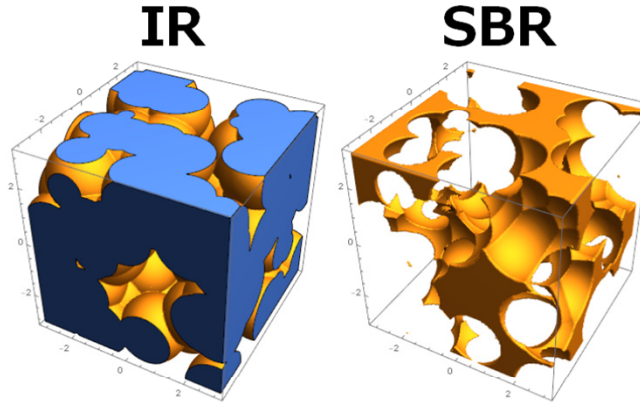
DPF登録済

弾性率20MPa
 SBR中心線100狙い



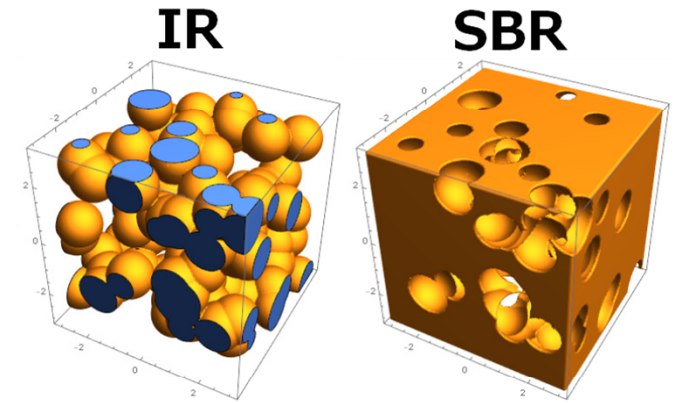
半径1.53×31個
 シリカ61phr
 平均体積比75:25

弾性率20MPa
 SBR中心線140狙い



半径1.07×119個
 シリカ54phr
 平均体積比84:16

弾性率20MPa
 SBR中心線180狙い

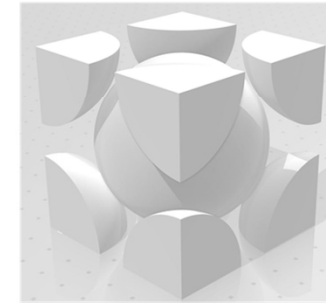
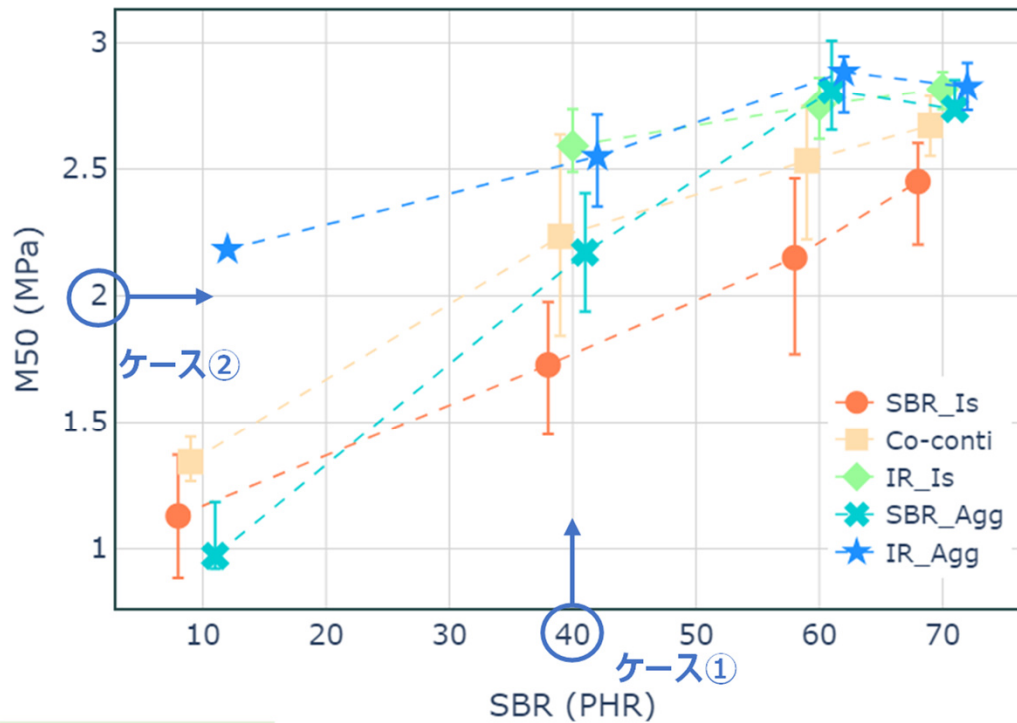


半径0.71×131個
 シリカ69phr
 平均体積比50:50

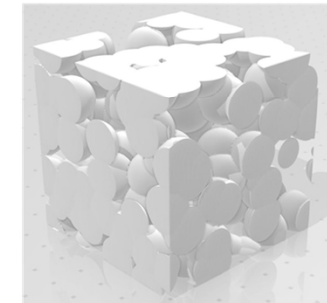
トピックス6 構造物性相関図

構造物性相関図

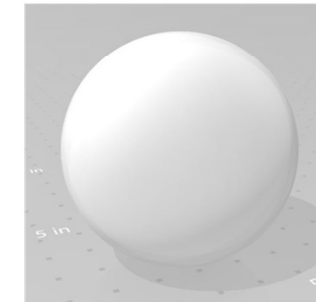
材料設計指針を獲得するため、構造特徴量により大きく5個の構造群に分類し整理した



海島構造 (XX_Is)



共連続構造 (Co-conti)



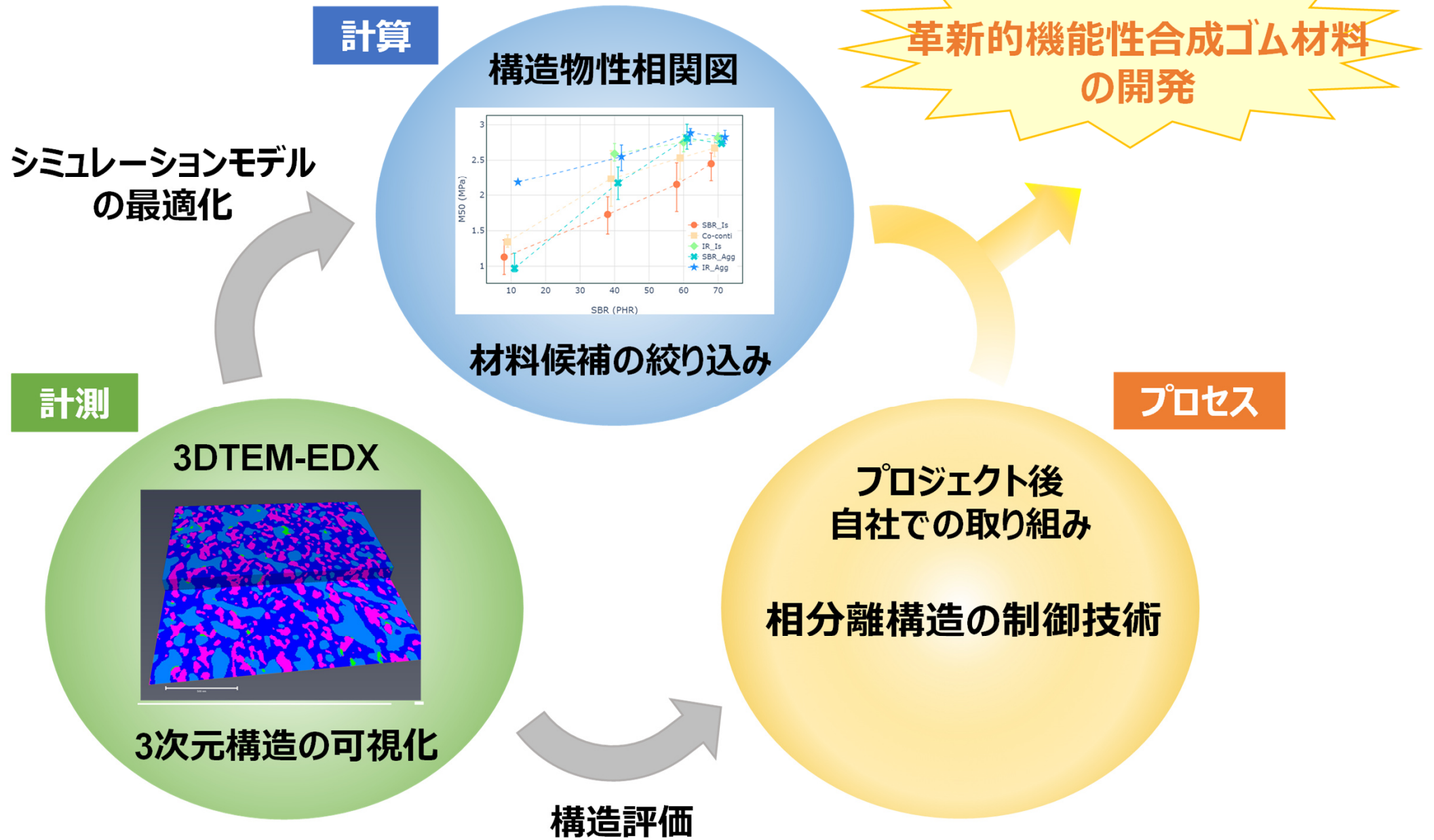
凝集体構造 (XX_Agg)

材料設計指針

ケース① 対象組成が決まっている ... IR相(シリカ貧相)を島とする海島構造を目指す

ケース② 対象物性が決まっている ... 複数の選択肢から他物性含め最も効果的な組成を選択可能

目的に応じた候補の絞り込みが可能 ⇒ 開発期間の大幅な短縮化



〈産総研〉

森田 裕史

堀内 伸

〈JSR株式会社・ADMAT研究員〉

森田 淳

山本 亮太

糸見 健

窪内 翔

足立 拓海

以上