

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「実験と理論・計算・データ科学を融合し
た材料開発の革新」
研究課題「データ駆動型分子設計を基点とする超
複合材料の開発」

研究終了報告書

研究期間 2019年10月～2025年03月

研究代表者：内藤 昌信
(物質・材料研究機構 高分子・バイオ
材料研究センター 分野長)

§1 研究実施の概要

(1)実施概要

本プロジェクトは、以下の材料開発、情報科学、機械工学をそれぞれ専門とする3グループによって構成された研究チームで臨んだ。

超複合材料開発グループ(NIMS:内藤)

研究題目:データ駆動型分子設計を基点とする超複合材料の開発

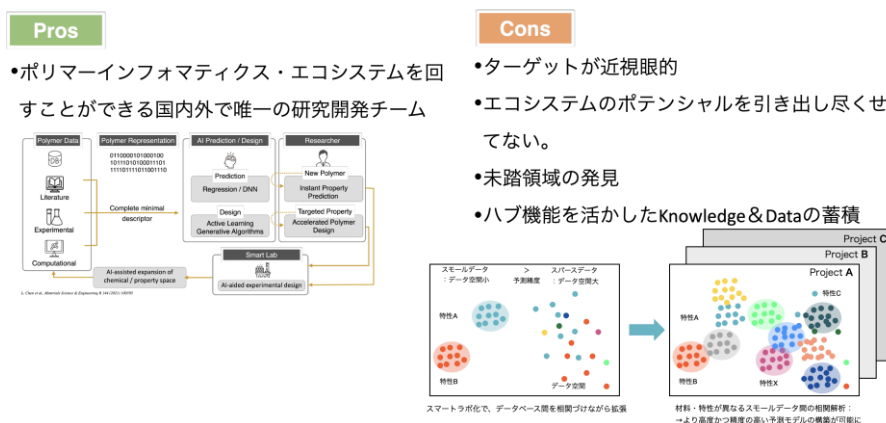
分子デザイングループ(NIMS:袖山)

研究題目:研究題目:機械学習による分子設計・反応予測モデルの開発

材料特性評価グループ(東工大:佐藤)

研究題目:材料特性評価の自動データ収集システムの構築

本 CREST プロジェクト中において、ポリマースマートラボを活用しながら、ポリマーインフォマティクスを実施できる研究チームを作り上げることができた。その成果としては、動的共有結合と静的な共有結合を制御することによる傾斜材料(Small 2020)や、光制御によるリサイクル接着剤(Adv. Funct. Mater., 2023)などを代表とし、41 報の論文と 35 件の特許出願(国内・海外含む)としてアウトプットすることができた(図 1)。また、動的共有結合やデータ駆動に関するテーマで国際学会での keynote 講演依頼なども受けるようになり、国内外での認知度も上がってきたと手応えを感じている。



一方で、最先端のスマートラボシステムを活用し、データ駆動型研究を推進するためには材料研究のターゲットの視野を広げる必要があると痛感した。そのため、中間評価後には、これまでチーム内で経験のない材料に精通した研究者と積極的に共同研究を行うことで、データ駆動型研究による成果の最大化を目指した。具体的には、二酸化炭素分離能を有する微小なナノゲル(九州大学 星野友教授)、耐熱・透明ポリオレフィンの重合触媒開発(都立大 野村琴広教授)、機能性セルロース材料開発(金沢大 高橋憲司教授・統数研 吉田亮教授)との共同研究を新たに開始している。本 CREST で開発したポリマースマートラボのシステムをプラットフォームとして、新たな材料開発に挑戦していくことで、さまざまな知見が蓄積されるとともに、さまざまな機能を有する高分子材料の網羅的な実験データを蓄積することが可能となる。そのデータを活用することで、従来にない未踏領域の材料開発につながると考えている。データ駆動型研究による超複合材料開発のアプローチを死蔵させることなく、オープンプラットフォーム化し、蓄積したデータを活用して、新たな材料開発に繋げるエコシステムの構築を引き続き目指していく。

(2) 顕著な成果

＜優れた基礎研究としての成果＞

1. RQMS(Reference Free Quantitative Mass Spectroscopy)を用いたポリマーシーケンサーの開発

概要：合成高分子の機能発現は短い部分配列に起因するところが多いとされるが、配列分布を定量評価する手法がなかったため、配列—機能相関解析を行うことができなかった。本研究では熱分解 MS を用いて、配列分布を定量評価可能なポリマーシーケンサーを開発した。そのコアアルゴリズムは標品なしで MS を定量解析可能とする、Reference-free quantitative MS (RQMS) であり、これを用いた高分子の劣化解析評価への応用展開も試みた(図2)。

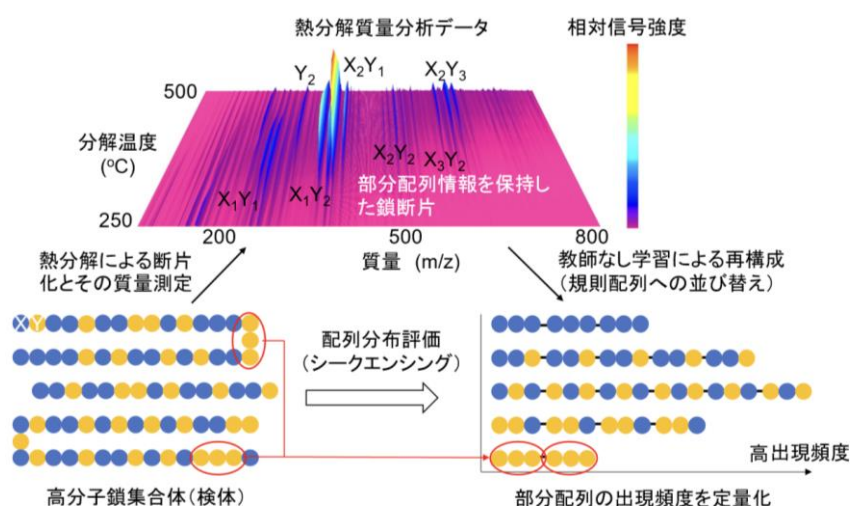


図 2. 質量分析データを AI 解析することで、高分子のモノマー配列を決定する手法を開発
(2023 Chemical Science HOT Article Collection に選出)

- ・ **ベンチマーク**: 高分子材料のモノマー配列は、性能に直結する重要な構造因子だが、解析が極めて困難であった。NMR など従来の分析手法では解析が非常に困難、もしくは限定的であったが、本手法によって、汎用性の高い高分子配列解読手法が確立した。
- ・ **アウトカムおよびインパクト**: 質量分析の AI 解析により、高分子材料における配列—物性相関解析や、配列制御重合法の開発が可能になり、高分子材料全般の性能向上に貢献。プラスチックによる環境汚染問題の解決や、サーキュラーエコノミーに資する高分子材料の開発に展開した。

2. 光で制御可能な再生接着剤の開発

概要：接着と剥離を何度でも繰り返すことができ、かつ、必要な時には基材と接着剤を元の状態にリセットできる、再生可能な接着剤を開発した(図3)。

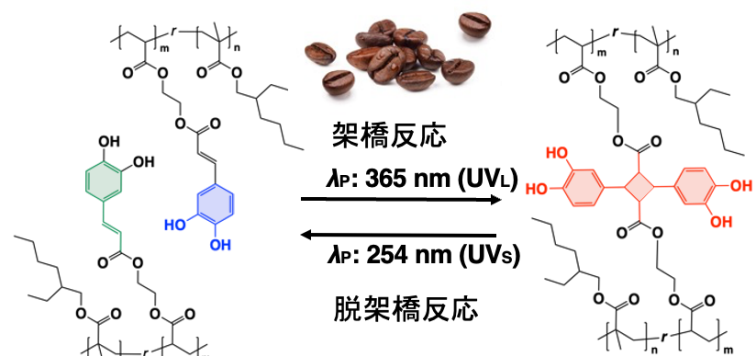


図3.カフェ酸の光二量化反応を利用した可逆性接着剤

- ・ **ベンチマーク:**従来の光制御型リサイクル接着剤は接着強度に乏しく、実用化には不向きであった。本成果では、高分子鎖のネットワーク構造を制御することで、凝集力のコントロールに成功しており、実用化に耐えうる接着強度とリサイクル性を達成した(図4)。
- ・ **アウトカムおよびインパクト:**マテリアル循環を指向したものづくりに貢献する接着剤として、電子機器や輸送機器、医療機器、インフラ補修など様々な用途に展開が期待される。特に遠隔操作による水中接着は実用化の観点からも注目されている。社会実装に向け、綜研化学株式会社に実施許諾を行い、現在、技術移転を行っている。

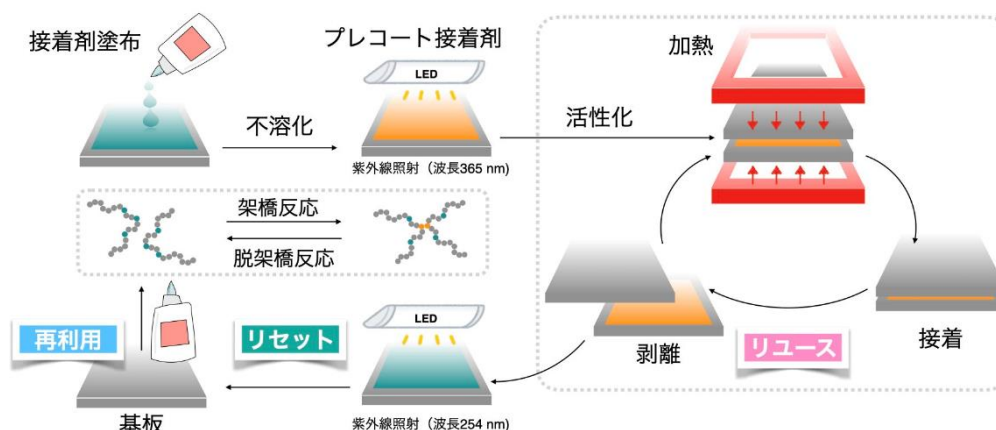
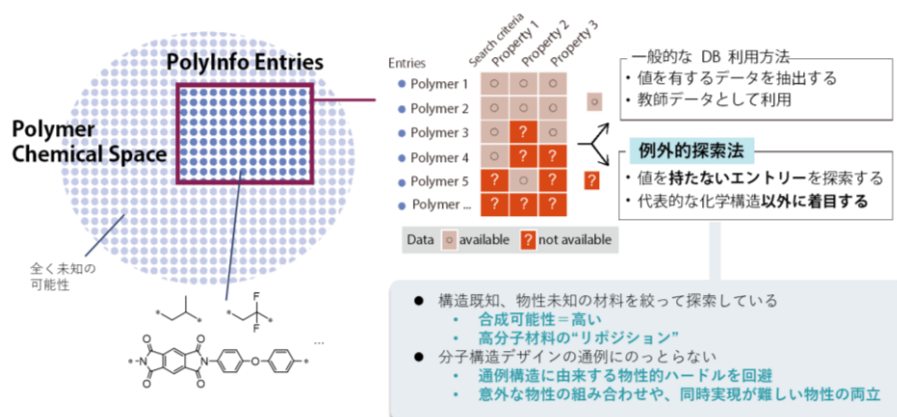


図4 何度でもリユースでき、役目が終わったらリセット・再利用可能なリサイクル接着剤 (JST/NIMS からプレスリリース 2023/6/14)

3. PolyInfo 高分子データベースを活用した透明耐熱性材料の探索

概要: データベースの活用はデータ駆動型研究の要であるが、ポリマー分野の研究においては実際の材料物性確認まで至る材料開発例は限られている。データベースを利用し、既知ポリマーについての未知の材料物性を探索する“例外的探索”を行うことで、開発速度に優れたデータ駆動型ポリマー材料探索・開発手法を提案した(図5、6)



- 図 5. 例外的探索のコンセプト (第 72 回高分子学会年次大会にてハイライト発表に選出)
- ベンチマーク: ポリマー材料探索には NIMS の開発する世界最大級のポリマー材料データベースである PoLyInfo を材料探索に直接用いた初めての事例である。
 - アウトカムおよびインパクト: 人の知識による探索が難しい、相反する物性である「耐熱性と透明性」を有するポリマー開発を示すことで本開発手法の有用性を明らかにし、ポリマー材料分野でのデータ駆動開発の加速に成功した。また、本成果はデータベース利用・解析・機械学習手法を担う袖山グループと、化学・合成を担う内藤グループが連携することで実現した CREST 研究成果である。第 72 回高分子学会年次大会にてハイライト発表に選出された。

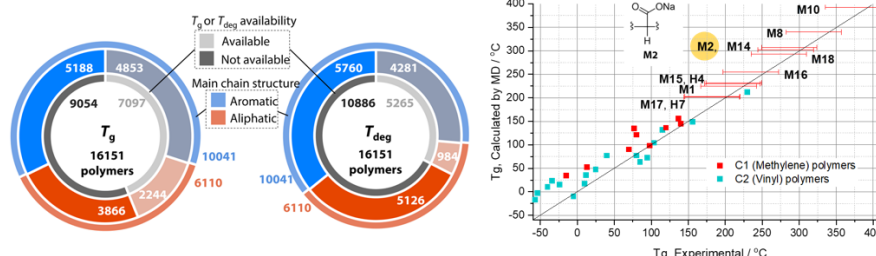


図 6. データベースからの候補絞り込みと分子動力学計算を用いたスクリーニングによる候補ポリマーの決定

< 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果 >

1. Reference-free quantitative MS (RQMS) の開発

概要: 多くの高分子材料は共重合体であり、その機能は配列に大きく影響される。RQMS を用いたポリマーシーケンサーは配列—機能相関解析を可能とするため、高分子材料全体の機能を底上げする可能性を有している。また、RQMS は高分子の劣化解析評価にも応用可能で、高分子材料の劣化診断は材料循環社会実現のためのキーテクノロジーになり得る。また、老朽化が進む社会インフラストラクチャーの突然の崩壊を防ぐためにも、劣化診断は重要である。

・ 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果

従来不可能もしくは非常に困難であった高分子材料の配列解析が可能になったということは、科学技術イノベーションに大きく寄与した成果であると自負している。なお、Chemical Science

に掲載された本成果は、2023 Chemical Science HOT Article Collection に選出された。また、数 100ppm の微量検出が可能になったことで、高分子中の添加剤や分解物の評価が可能となった。とりわけ、化学的劣化を定量的に評価することが可能になったことは大きな成果と考えている。

2. ポリマースマートラボの構築

概要: ポリマースマートラボは、材料開発における自動化技術を最大限に活用した **CREST** で得られた革新的な研究プラットフォームと考えている。このラボは、材料の自動合成と力学物性評価を一貫して行えるだけでなく、従来のハイスループットプロセスに留まらず、力学物性など機能評価までも自動化している。さらに、評価結果をフィードバックとして用いるクローズドループシステムを構築し、最適な材料設計を迅速かつ効率的に行うことができる。

・ データ共有と RDE への収録

ポリマースマートラボで得られたデータは、迅速に **NIMS** が管理運営する **RDE** (リサーチ・データ・エクスプレス) 内のデータベースに収録され、共有可能である。このシステムにより、研究者間でのデータの交換が円滑に行われ、データ駆動型の材料設計をさらに加速させる。データの集積と共有は、単なる材料研究の効率化にとどまらず、新たな知見や発見を導くための基盤となる。

・ 科学技術イノベーションへの寄与

ポリマースマートラボの導入は、材料開発のプロセス全体を変革するものであり、科学技術イノベーションに大きく寄与する。従来の手法では膨大な時間と労力を要した材料設計が、クローズドループと自動化の組み合わせにより短期間で行えるようになる。ポリマースマートラボの威力を最大限発揮するためには、ポリマースマートラボを基点として、さまざまな研究者と共同研究をすることを目指している。これにより、日本の材料科学の底上げとデータ・ノウハウの蓄積、および、新機能材料の開発の促進が可能になると考えている。

3. サーキュラーエコノミーに向けたリサイクル・アップサイクル材料の開発

概要: 本プロジェクトでは、データ駆動による材料開発の出口として、リサイクル材料に注目してきた。**CREST** 実施中にも、特にプラスチックに関するマテリアル循環については、関心が刻々と高まってきたという状況である。本プロジェクトでは、易解体性高強度接着剤による接着接合の分別に取り組んできた。現在、ゼネコンや自動車業界から注目いただき、共同研究やプロジェクトの実施をしているところである。さらに、アップサイクルへの取り組みにおいては、**NBR** ゴムを比較的温和な塩基条件で加熱するだけで分解することを見出し、さらに、分解物を用いて形状記憶材料など機能性材料にアップサイクルできることを見出した。その他にも、**PPS** のケミカルリサイクルなど、従来は分解が難しいと考えられてきたプラスチック材料についても、合成科学の知見を活かすことで、アップサイクルできるように化学変換する方法などについて検討を進めている。

< 代表的な論文 >

1. Yusuke Hibi, Shiho Uesaka, Masanobu Naito. “A data-driven sequencer that unveils latent “codons” in synthetic copolymers”, *Chemical Science*, **14**, 5619-5626 (2023).
(2023 Chemical Science HOT Article Collection に選出)

概要: 熱分解 MS を用いた **RQMS** 開発と、それを応用したポリマーシークエンサー開発について述べた論文。熱分解 MS のスペクトル空間においては、任意配列の共重合体が、規

規則配列高分子の適切な混合比で表現できることに着目した。規則配列高分子は合成・実測できないが、混合物たるランダム共重合体からRQMSを用いてスペクトル推定を行うことで、検体共重合体における規則配列高分子の寄与率を計算し、これにより配列分布を求めることに成功した。

2. Siqian Wang, Wei Hsun Hu, Yasuyuki Nakamura, Nanami Fujisawa, Ane Eline Herlyng, Mitsuhiro Ebara, Masanobu Naito, “Bio-inspired Adhesive with Reset-On Demand, Reuse-Many (RORM) Modes”, *Advanced Functional Materials*, **33**, 2215064 (2023).

(JST/NIMS からプレスリリース 2023/6/14, Journal Cover に採用)

概要: 接着と剥離を何度でも繰り返すことができ、かつ、必要な時には基材と接着剤を元の状態にリセットできる、再生可能な接着剤について報告した。カフェ酸を組み込んだ高分子を基材に塗布したのちに、波長365ナノメートルの紫外線を当てると、架橋反応によって不溶化した塗膜となる。この塗膜は室温で保存している状態では接着性を示さないが、加熱することで接着と剥離を何度でも繰り返すことができる。さらに、使用期間が終わった際には、波長254ナノメートルの紫外線を照射することで、架橋した部分が開裂し、塗布前と同じ状態にリセットされることで、接着剤と基板の両方を回収、再利用できるようになる。また、カフェ酸の化学構造に含まれるカテコール基は、付着生物であるムラサキイガイが分泌する接着成分にも多く含まれており、フッ素樹脂や水中での接着など、一般的な接着剤が苦手とする基材や使用環境においても、強力な接着力とリサイクル性を発揮した。

3. Yasuyuki Nakamura, Alice Gros, Wenhao Zhang, Keitaro Sodeyama and Masanobu Naito, “Exception search in databases for polymers with practically contradictory properties of heat resistance and transparency”, *Polymer Chemistry*, **14**, 3881 (2023).

(第72回高分子学会年次大会にてハイライト発表に選出)

概要: この研究では、データベース PoLyInfo から主に C1 ポリマー構造を持つ 3866 種類のポリマーをフィルタリングし、35 の候補を選出した。ガラス転移温度 (T_g) が高いポリマーを効率的に見つけるため、分子動力学シミュレーションと機械学習を用いた。結果として、高い熱分解温度 (T_{deg}) と透明性を持つポリ(メタルフマレート)ポリマーの合成に成功し、その特性を実験的に確認した(図7)。

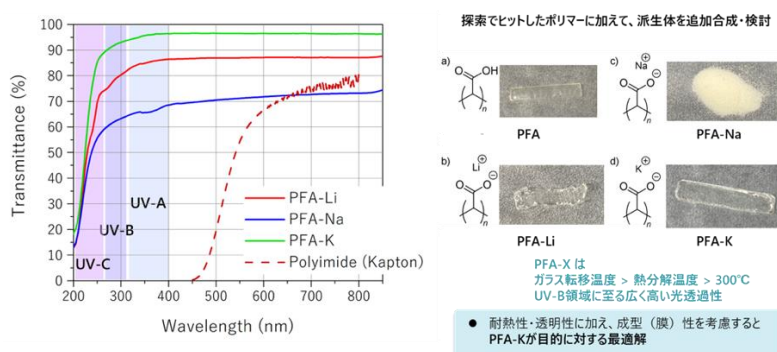


図7 合成実験を経たポリマー耐熱性、透明性の検証

§2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

① 超複合材料開発グループ

研究代表者: 内藤 昌信 (物質・材料研究機構高分子・バイオ材料研究センター 分野長)

研究項目

- ・MI が予測した分子デザインの検証
- ・MI が予測した分子設計に基づくネットワークポリマーの合成と機能・物性検証
- ・超複合材料の力学特性・劣化・破壊予測の検証
- ・実用材料としての用途開発

②分子デザイングループ

主たる共同研究者: 袖山 慶太郎 (物質・材料研究機構マテリアル基盤研究センター 分野長)

研究項目

- ・深層学習による化学反応予測モデルの開発
- ・高分子材料の物性推算モデルの開発とネットワークポリマーの設計
- ・アクティブラーニングによる新規材料データベースの構築
- ・第一原理計算による組み換え架橋反応の定量解析

③材料特性評価グループ

主たる共同研究者: 佐藤千明 (東京科学大学総合研究員 教授)

研究項目

- ・力学評価 (強度・劣化・破壊) の自動計測システムの開発
- ・ロボットを駆使した新規材料評価システムの開発
- ・人間の感覚を数値データ化することによる質の高いデータ蓄積手法の開発

(2)国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について
スマートラボの活用に関連するアカデミアとの共同研究

- ・CO₂ 分離ナノゲルの開発: 九州大学 星野友教授
- ・耐熱透明性ポリオレフィンおよび重合触媒開発: 都立大学 野村琴広教授
- ・機能性セルロースの開発: 金沢大学 高橋憲司教授・統数研 吉田亮教授
- ・理化学研究所最先端研究プラットフォーム連携 (TRIP): 統数研 吉田亮教授 奈良先端科学技術大学院大学 藤井幹也教授