

データ駆動型高分子設計：液晶性ポリイミド

ウ ステファン データ科学研究系 准教授

背景

液晶配向機能を有する光応答性ポリイミドは、ディスプレイデバイスに多く使用されている。一方、一般的なポリイミドは熱伝導率が低く、発熱密度の大きい小型電子機器への応用には適していない。最近の研究では、面内熱伝導率が2W/(mK)を超える高い熱伝導率を有する液晶ポリイミドフィルムの作製に成功したことが報告された^[1]。本研究では、マテリアルズインフォマティクスと呼ばれるデータ駆動型の材料探索法を高分子材料系へ活用し、所望の熱物性を持つ液晶ポリイミドの探索を行った。得られた候補分子は、世界初の機械学習を用いて設計された液晶ポリマーであることが実証実験により確認された。

手法

本研究は専門知識と機械学習の融合に基づく設計手法を構築した(図1)。本手法は三つの手順がある：

- (1) 専門家が設計したポリイミド骨格テンプレートと、ZINCデータベース^[2]から網羅的に抽出した購入可能な分子を組み合わせ、大規模なポリイミド仮想ライブラリーを構築した。
- (2) 高分子物性データベースPoLyInfo^[3]のデータを用いて、高分子の液晶性と熱伝導性を予測する機械学習モデルを構築し、有望な液晶性ポリイミドの候補をスクリーニングした。
- (3) 予測された候補を合成し、我々の設計手法の有効性を実証した。

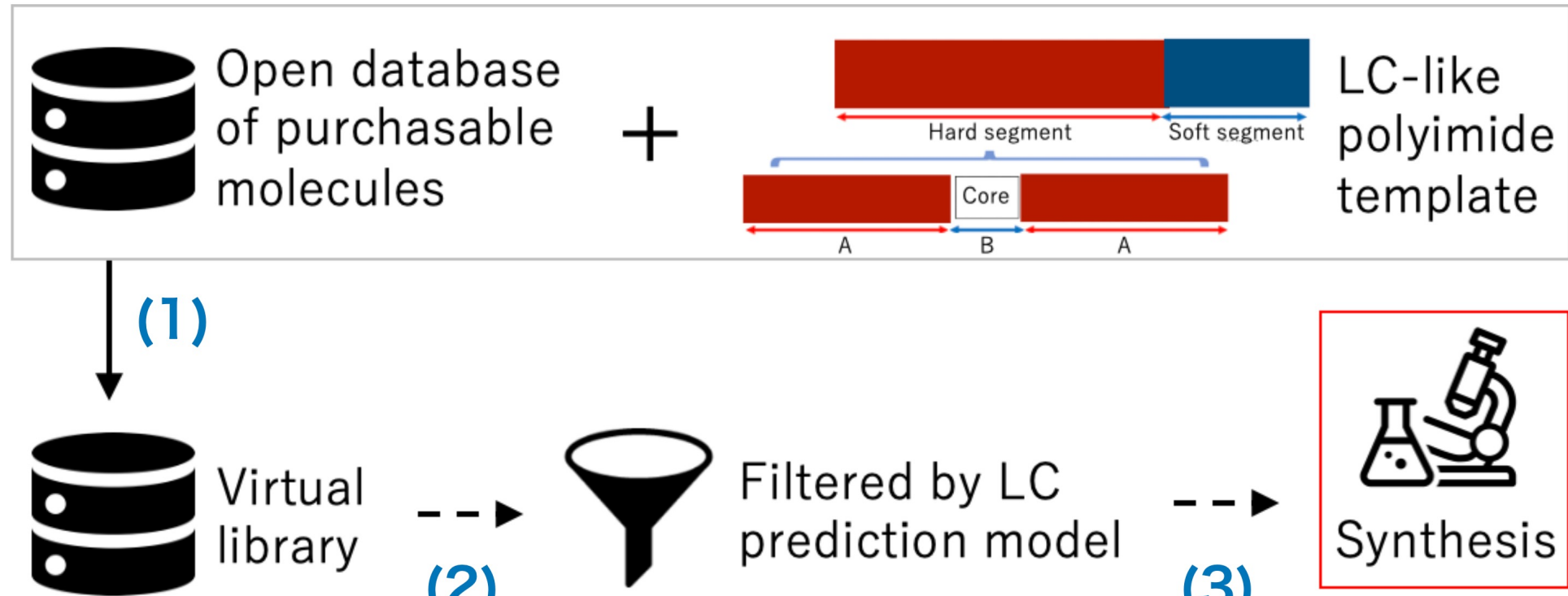


図1. 設計手法の概念図

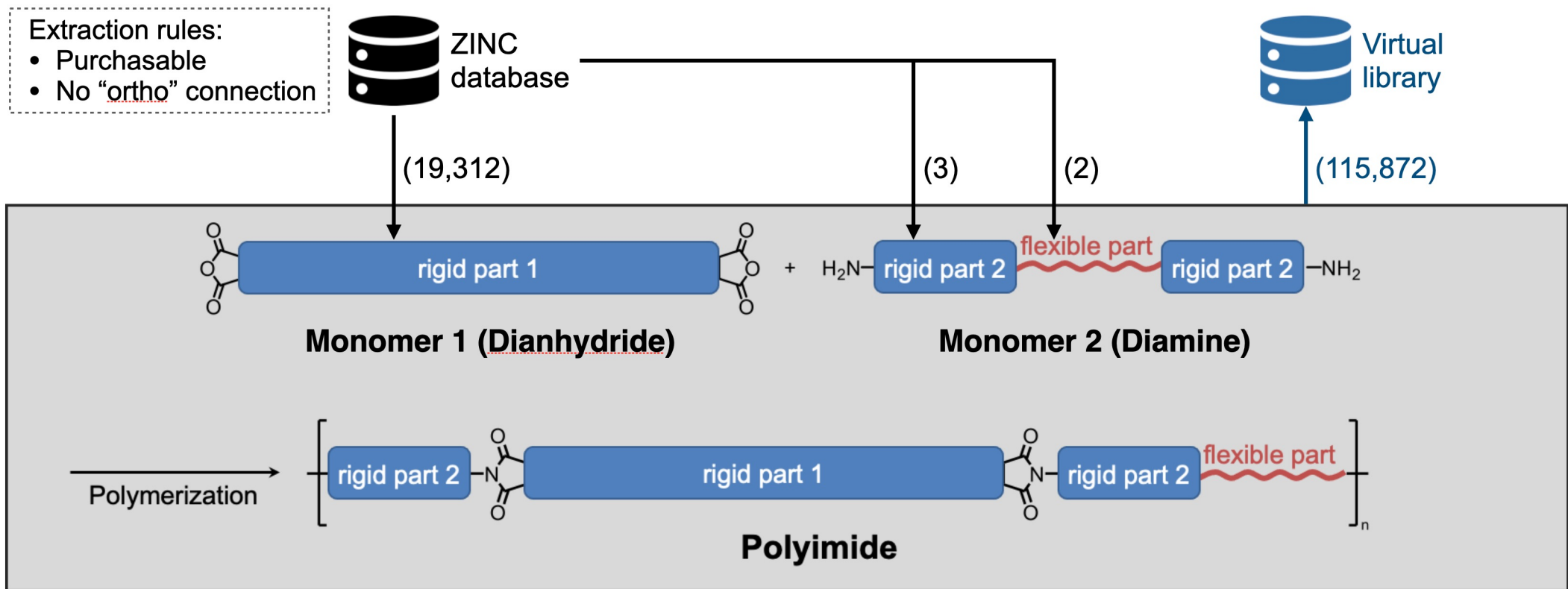


図2. 仮想ライブラリーの作り方

1. 仮想ライブラリーの構築(図2)

まずは、高分子科学者の経験に基づき、ポリイミドの骨格を構築するための新しいテンプレートを設計した。次に、テンプレートの構成要素と一致する分子を、ZINCと呼ばれる大規模なオープンデータベースから網羅的に検索し、抽出した。高分子合成の効率を上げるため、本研究ではZINCデータベースから購入可能な分子のみを対象とした。その結果、合計10万件以上の仮想ライブラリーを形成した。このような膨大な仮想ライブラリーから実際に合成する候補を絞るために機械学習の力を借りた。

2. 機械学習モデルの作成(図3)

最大の高分子物性データベースであるPoLyInfoのデータを用いて液晶性を有するか否かの2値分類を行う機械学習モデルを学習し、液晶性ポリイミドの有望候補を仮想ライブラリーからスクリーニングするために使用した。データベースから、液晶状態を持つポリマー831種、液晶状態を持たないポリマー3,477種が同定されていた。このデータセットを用いて、分類用全結合型ニューラルネットワークを学習させ、仮想ライブラリーのポリイミドが液晶状態を持つ確率を予測した。候補物質の熱伝導率は、分子動力学シミュレーションのデータを用いて学習させた別の機械学習モデルによって予測した。このモデルの訓練データは、RadonPyというオープンソースのPythonパッケージの下で自動プロセスにより得られた約1,000点の高分子の熱伝導率計算値である^[4]。回帰用全結合型ニューラルネットワークを学習させ、ポリイミド仮想ライブラリーのアモルファス状態における熱伝導率を予測した。

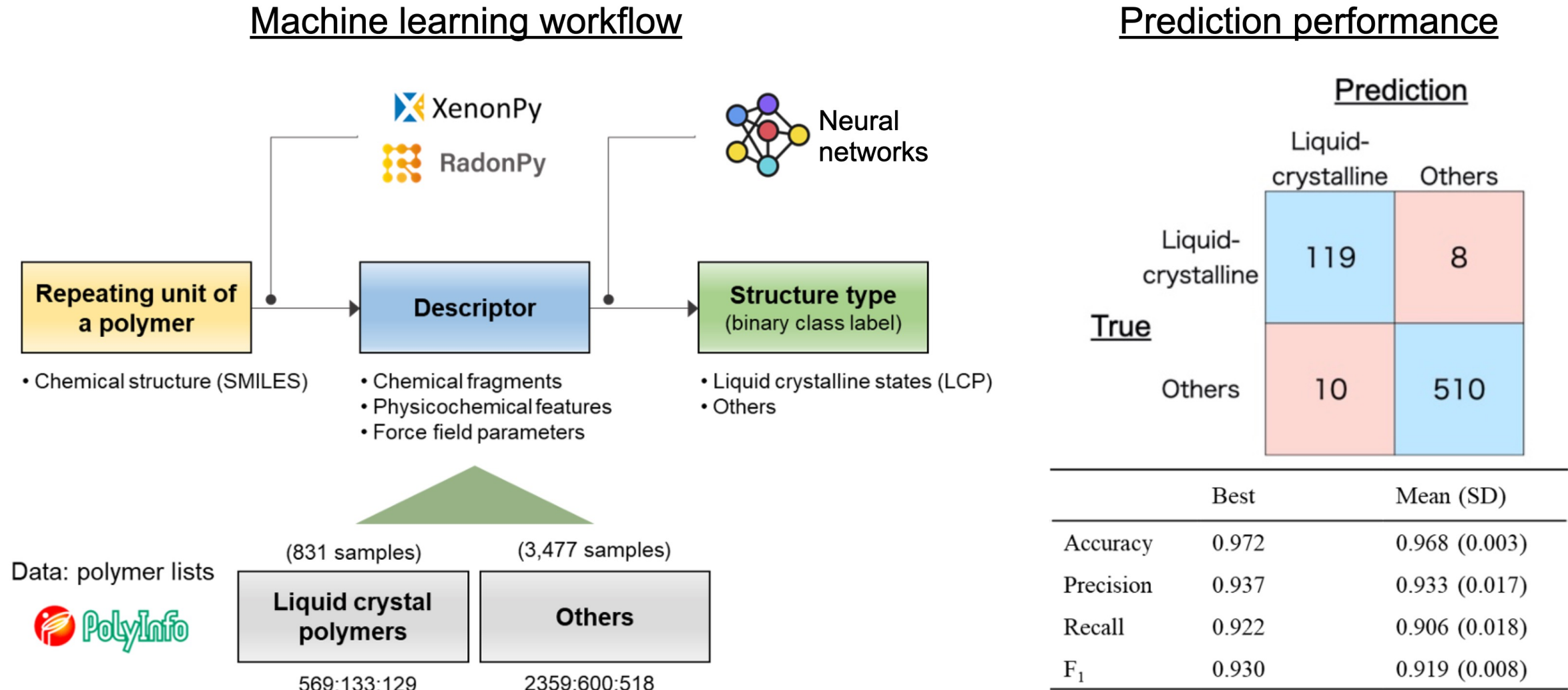


図3. 液晶性判別モデルの作り方と精度

3. 新しい液晶性ポリイミドの発見(図4)

機械学習モデルによる予測から、10万件以上のポリイミド仮想ライブラリーの約10%が液晶状態を持つ可能性が高いことがわかった。これらの候補を、高分子の構造に基づき、約100個のタイプにクラスタリングした。高い熱伝導性を有すると予測される候補を異なるクラスターから選択し、最終的な合成を試みるための多様なポリイミドリストを作った。その結果、約10種類のポリイミド構造の合成に成功した。合成された候補物質の約半数は、実験中に自己組織化構造を示した。これらのポリイミドの詳細な熱的・機械的特性は、現在、合成されたポリイミドの熱的・機械的特性の測定を進めている。

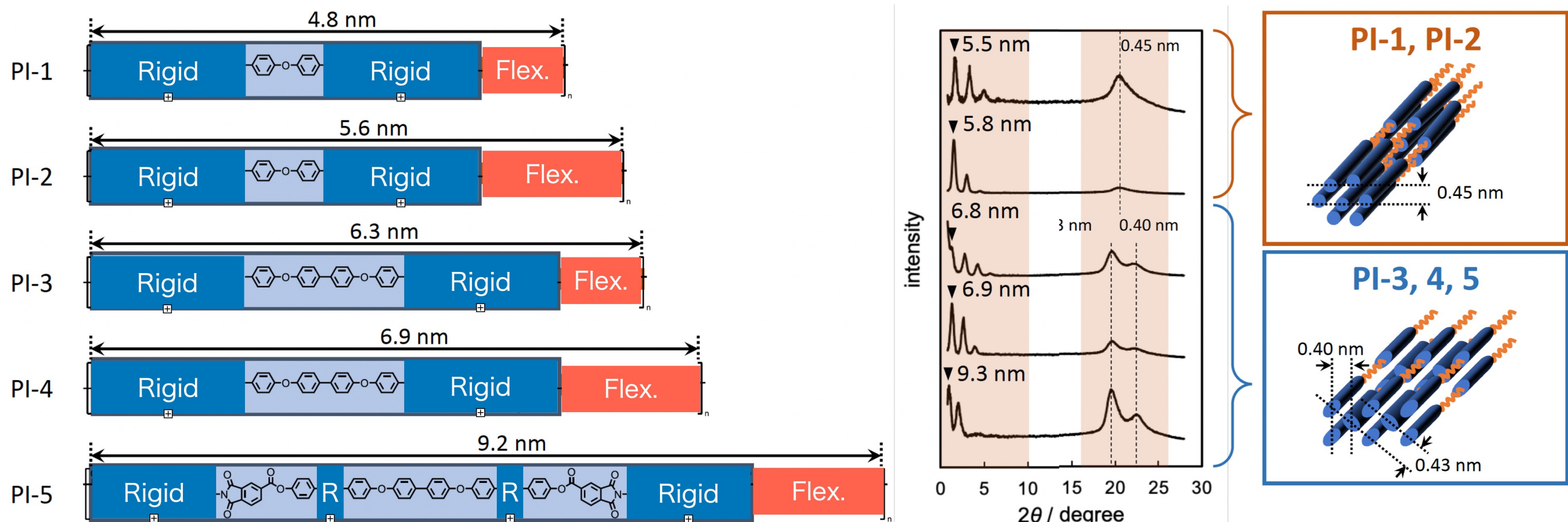


図4. 発見したポリイミドの液晶性を確認

REFERENCES

- [1] K.Ruan, Y.Guo, J.Gu, "Liquid Crystalline Polyimide Films with High Intrinsic Thermal Conductivities and Robust Toughness", Macromolecules, 54(2021), 4834-4944.
- [2] S.Otsuka, I.Kuwajima, J.Hosoya, Y.Xu, M.Yamazaki, "PoLyinfo: polymer database for polymeric materials design", Proc. 2011 Int. Conf. on Emerg. Intell. Data Web Technol., Tirana, Albania (2011), 22-29.
- [3] J.J.Irwin, K.G.Tang, J.Young, C.Dandarchuluun, B.R.Wong, M.Khurelbaatar, Y.S.Moroz, J.Mayfield, R.A.Sayle, "ZINC20—A Free Ultralarge-Scale Chemical Database for Ligand Discovery", J. Chem. Inf. Model, 60(2020), 6065-6073.
- [4] Y.Hayashi, J.Shiomi, J.Morikawa, R.Yoshida, "RadonPy: Automated Physical Property Calculation using All-atom Classical Molecular Dynamics Simulations for Polymer Informatics", npj Computational Materials, 8(2022),222.