

超高速熱分析による熱物性検証と機械学習による高熱伝導高分子の設計

東工大物質理工¹・統数研²・物材研³・ロストック大学⁴ 総研大⁵ ○森川淳子^{1,3}・ウステファン^{2,5}・柿本雅明³・桑島功³・徐一斌³・ヤンビン⁴・シックシック⁴・吉田亮^{2,3,5}

<緒言>

マテリアルズ・インフォマティクスにより設計・合成される新規高分子では、より高い機能発現が想定されるため、分析・物性測定方法の新規開発も必須となる。本研究では、*iqspr* と転移学習を組み合わせた最新の機械学習(ML)の手法を用いて新規に分子設計された高熱伝導高分子について、可視化超高速熱分析の手法を開発することで、従来、高温では熱分解が生じるため観測不能とされてきた高温のガラス転移温度、融点を測定し、より高精度な高熱伝導高分子の設計と実証を行った。

<分子設計と合成>

ベイズ統計に基づく機械学習(ML)の手法を高分子に適用する場合、高次構造の多様性に起因して、物性データベースの構築が十分でない場合が多い。高熱伝導高分子を ML により設計するにあたり、*i-qspr* による逆問題予測(Fig.1)¹⁾に加えて、転移学習の手法²⁾を適用することにより、熱伝導の予測を試みた。このプロセスで、比較的データ量の多いガラス転移温度(Tg)、融点(Tm)を学習用データとして用いたが、その結果デザインされた分子構造を合成し物性を測定する際に、高温の Tg、Tm の測定が不可能な場合が生じた。これは従来の熱分析手法では、熱分解のため高温の相変化の観測は難しかったことによる。

<可視化超高速熱分析法>

一方、ナノフィルム上に作成した温度センサーを用いた超高速熱分析法により、10,000 K/s 以上の高高速熱分析が定量的に可能となっている。本研究では、高速顕微赤外線カメラとの同時測定手法の開発を行い³⁾、センサーおよび試料表面の温度分布を高速で可視化した。センサー観察例を Fig.2 に示す。

<芳香族ポリアミドの超高速熱分析>

ML により新規に予測した高分子のうち、3種類の芳香族ポリアミドについて、30,000 K/s による高速熱分析をおこなった。結果を Fig.3 に示す。芳香族ポリヒドラジドは、494℃に融点を示し、高速冷却により、ガラス転移を 226℃に示すとともに、次の昇温過程で、冷結晶化を示した。さらに、高速温度走査を繰り返すと、徐々に結晶性を示さずアモルファス状態となった。

<熱伝導性の予測と実証>

合成した高分子の熱伝導性は、予測とよい一致を示し、さらに結晶性を示したことから、加工条件により、さらなる熱伝導性の向上が確認された。⁴⁾

<参考文献>

- 1) S. Wu, Y. Kondo, M. Kakimoto, B. Yang, H. Yamada, I. Kuwajima, G. Lambard, K. Hongo, Y. Xu, J. Shiomi, C. Schick, J. Morikawa, and R. Yoshida, Machine-learning-assisted discovery of polymers with high thermal conductivity using a molecular design algorithm, *npj Comp. Mat.* **5**, 66 (2019).
- 2) H. Yamada, C. Liu, S. Wu, Y. Koyama, S. Ju, J. Shiomi, J. Morikawa, R. Yoshida, Predicting Materials Properties with Little Data Using Shotgun Transfer Learning, *ACS Cent. Sci.* **5**, 1717-1730 (2019).
- 3) A. Minakov, J. Morikawa, E. Zhuravlev, M. Ryu, A.W. van Herwaarden, C. Schick, *J. Appl. Phys.* **125**, 054501 (2019).
- 4) 森川淳子/吉田亮/近藤弓紀子/柿本雅明/徐一斌/桑島功/ステファンウ 特願 2018-230667.

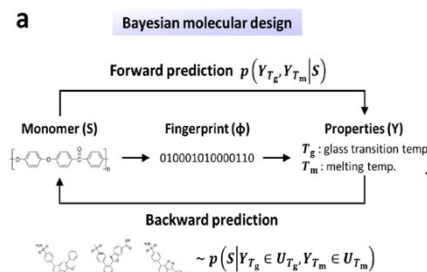


Fig. 1 Forward and backward predictions of Bayesian molecular design in Machine-learning assisted design of new polymers

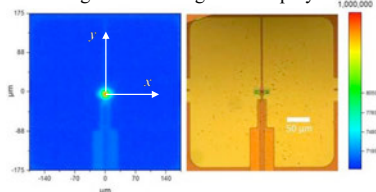


Fig. 2 Infrared (left) and visible (right) sensor image of XFN-39472.

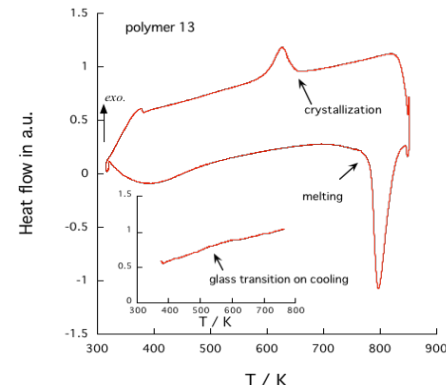


Fig. 3 Fast scan DSC curves of machine-learning – assisted design aromatic polyhydrazide measured at a heating and cooling rate of 30,000K/s in nitrogen.

Machine-learning-assisted molecular design of high thermal conductivity polymers confirmed by ultra fast thermal analysis

Junko Morikawa¹, Stephen Wu² (¹ Tokyo Institute of Technology, Meguro-ku, Tokyo 152-8550, Japan, ² The Institute of Statistical Mathematics, Research Organization of Information and Systems, Tachikawa, Tokyo 190-8562, Japan, ³ National Institute for Materials Science, Tsukuba, Ibaraki 305-0047, Japan, ⁴ University of Rostock, Inst. of Physics and Competence Centre CALOR, Rostock, Germany, ⁵ The Graduate University for Advanced Studies, Tachikawa, Tokyo 190-8562, Japan) ¹Tel: +81-3-5734-2497, E-mail: morikawa.j.aa@m.titech.ac.jp, ²E-mail: yoshidar@ism.ac.jp.