

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 8 日現在

機関番号：32686

研究種目：新学術領域研究(研究領域提案型)

研究期間：2017～2021

課題番号：17H06468

研究課題名(和文)複雑ネットワーク解析に基づく物質・材料探索

研究課題名(英文)Material search based on complex network analysis

研究代表者

大西 立顕(Ohnishi, Takaaki)

立教大学・人工知能科学研究科・教授

研究者番号：10376387

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 40,100,000円

研究成果の概要(和文)：ネットワーク科学の手法でエラストマーの構造の不均一性を定量的に評価することで弾性特性を解析した。空間的な位置とトポロジーから算出される指標によって応力が統一的に記述できることを明らかにした。これにより、複雑な構造であっても各架橋点が応力に与える影響を定量化することができる。エラストマーを重み付きネットワークで表現し、一軸伸長下での構造変化を解析した結果、架橋点の弾性への寄与の仕方が架橋反応濃度によって異なることを明らかにした。シミュレーションで作成した高分子ブロック共重合体のマイクロ相分離の準安定構造を解析し、最大連結成分やマルチフラクタル指標が自由エネルギーと強い相関があることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

複雑ネットワーク科学を応用してエラストマーの架橋点の空間上の位置とネットワーク上の位置の両方を考慮した新たな中心性指標を開発したことで、応力の統一的記述が可能になり、架橋点の応力への寄与や応力が集中する分子鎖の推定を実現した。マイクロ相分離の複雑な構造をマルチフラクタルで特徴づける手法を開発し、特異性指数や一般化次元などのマルチフラクタル指標が力学物性や自由エネルギーに関係していることを見出した。マイクロ相分離の構造情報のみから応力特性や自由エネルギーをある程度予測することが可能となり、計算コストの高いブロックコポリマーのシミュレーションにおけるパラメータ探索の効率化につながった。

研究成果の概要(英文)：We quantitatively evaluated the structural heterogeneity of elastomers based on complex network to describe the elastic properties. It was determined that a unified parameter with topological and spatial information universally describes some parameters related to the stresses. This approach enables us to uncover the role of individual crosslinking points for the stresses, even in complicated structures. By analyzing the weighted network structure of elastomers, we found that how the centrality of each node changes during elongation was significantly affected by the concentration under which crosslinking reaction was carried out. We attempted to quantify the shape of various metastable morphologies of microphase separation in block copolymers that can be observed in a computer simulation. We showed that the size of the largest connected component and the indicators relating to the multifractal analysis were strongly correlated with the free energy of the metastable structures.

研究分野：ビッグデータ解析

キーワード：高分子ブロック共重合体 相分離構造 エラストマー 中心性 架橋 マルチフラクタル 複雑ネットワーク 化合物空間

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

複雑ネットワーク科学の分野において、社会・経済・生命などに実在する複雑なネットワークが持つ非自明なトポロジカル構造の理解が進みつつある。データ科学の分野では、現実世界で観測される大量データに基づいて現象を理解する研究が進展している。本研究では、物性・機能の機能において本質的なのは物質・材料が持つ複雑な階層ネットワーク構造であるという視点に立ち、ネットワーク解析の手法を応用・発展させて物質・材料系に適用する。複雑ネットワーク科学とデータ科学の手法に基づいて物質・材料の構造と機能の相関を解明する。

2. 研究の目的

(1) 弾性をもった高分子であるエラストマーは分子スケールではネットワーク構造を有し、そのトポロジカルな性質が物性に影響を与えていると考えられる。しかし、既存のモデルでは分岐数と架橋密度のみで応力が決まるとされており、ポリマー鎖の繋がりや影響を加味してゴム弾性を記述することはできていない。本研究では、複雑ネットワーク科学の手法を用いてネットワークポリマーの構造物性を解析する。

(2) 高分子ブロック共重合体は、モノマー間の相互作用の大きさや平均体積分率によってラメラやジャイロイドなど様々な形状のマイクロ相分離構造をとる。ほぼ同じような条件で生成したとしても初期値のゆらぎに依存して異なる不均一な形状をもった準安定構造が得られる。これらの構造の違いが物性に影響を与えていると考えられるが、マイクロ相分離の複雑な構造を単純な方法で定量化するのは困難なため、どのような構造の特徴がどのように物性に寄与しているかについては分かっていない。本研究では、これらの準安定構造の差異を捉えるための構造の定量化手法を開発する。

(3) 結晶性高分子は分子鎖が折りたたまれた階層的な結晶構造を有するが各階層の結晶構造、生成条件、物性との関係は明らかになっていない。結晶性高分子のX線散乱回折データでは機械学習を適用できる体系的なデータが少なく、情報科学の手法を用いた特徴量解析はほとんど行われてこなかった。本研究では、結晶性高分子の体系的なデータを入手して機械学習を用いた解析を行う。

3. 研究の方法

(1) 分子動力学シミュレーションを用いて様々な濃度で架橋高分子を調製し、計算機上で架橋高分子のネットワークを生成して一軸伸長を行い、力学物性を調べる。架橋高分子の架橋点をノード、高分子鎖をリンクとしてネットワークを表現し、ネットワーク指標を用いて分析する。エラストマーを重み付きネットワークにより表現し、伸長にともなうネットワーク構造の変化の特徴を複雑ネットワーク科学の観点から解析する。架橋高分子の物性は高分子鎖の繋がりや大きさに依存すると考えられる。ネットワークから仮想的にリンクをある確率でランダムに除去していった際のネットワーク構造全体の変化をシミュレーションし、最大連結成分の大きさを観測することでパーコレーションの考え方を応用してネットワークポリマーの脆弱性・頑強性を定量的に解析する。架橋高分子のエントロピー弾性における力学物性は架橋点間の距離にも依存していると考えられるが、ネットワーク指標は基本的にネットワーク構造のみから算出されるため、分子の実空間上の位置や分子間距離の情報を考慮できない。そこで、人工的な方法で架橋させた

ネットワークポリマーを生成することで、架橋点間距離とネットワーク指標の両方がネットワークポリマーの力学物性にどのような影響を与えているかも調べる。まず、架橋点をランダムな位置に配置し、架橋点同士をランダムにつなげることで人工的なネットワーク構造を有するネットワークポリマーを作成する。そして、距離の条件を入れてリンクの張り替えを行うことで人工的なネットワークを構築して解析を行う。

(2) 粗視化分子動力学シミュレーションで作成した高分子ブロック共重合体のマイクロ相分離構造を解析する。相関次元積分やマルチフラクタル解析などの情報科学的手法を用いて、生成された分子鎖の位置座標、セグメント種の濃度分布などのデータを解析する。視覚的にも定量化しやすい結晶構造だけでなく、相分離で形成される複雑なネットワーク構造を定量化する手法を開発する。そして、ネットワーク構造伸長時の構造・弾性挙動からマクロな力学物性をシミュレーションにより観測し、構造と物性の相関関係を調べる。

(3) ポリ乳酸を様々な条件によって成形し結晶格子、ラメラ結晶に対応する構造を広角X線回折と小角X線散乱で測定した体系的なデータを入手する。物性（生分解性と降伏応力）を目的変数とし、生成条件や各階層の結晶構造を示すX線散乱回折データを説明変数とするランダムフォレスト回帰を用いて関係性を調べる。

4. 研究成果

(1) ネットワーク指標を用いた分析の結果から、架橋濃度が増大するほどモジュラリティが減少し、ずり弾性率が増大すること、弾性率の架橋濃度依存性から架橋高分子の力学物性はネットワーク構造に依存すること、モジュラリティの弾性率依存性から均一なネットワークほど弾性率が上昇することが分かった。さらに、同じ架橋濃度でもネットワークの近接中心性の高い架橋点ほど応力に寄与することを明らかにした。パーコレーションを用いてネットワークポリマーの脆弱性・頑強性を定量的に評価した結果、低濃度で架橋するほど臨界確率が小さくなる傾向があり早い段階でのネットワークの消失が見られること、ポリマーのアーム数が増えるほど臨界確率が大きくなることを明らかにした。応力-歪曲線の架橋濃度依存性の結果との比較により、臨界確率が高いほど高い応力を示すことも分かった。ネットワーク上のパーコレーション解析と伸長破壊による物質・材料の脆弱性・頑強性の関係性が示された。重み付きネットワーク表現を用いてエラストマーの力学物性を解析した結果、ネットワークの中心にいる架橋点ほど、かつ、初期の架橋点間距離が大きい架橋点ほど応力に対して寄与すること、距離を考慮した新たな近接中心性の指標を導入することで架橋点間距離と架橋点のゆらぎの両方を統一的に記述できることを明らかにした。これにより、伸びきり鎖による応力集中の記述も可能になった。さらに、伸長下での重み付きネットワーク構造の変化を解析した結果、架橋点のゴム弾性への寄与の仕方が架橋反応濃度によって異なることも明らかにした（図1）。

(2) 多様で複雑なマイクロ相分離構造に対してマルチフラクタル解析を行い一般化次元と特異性の強さを算出した。また、様々な体積分率の閾値により定義した分離ドメインの連結成分サイズを反映させた指標を考案した。解析の結果、これらの指標が自由エネルギーと相関することを発見し（図2）、さらに一般化次元と特異性の強さは力学物性にも関係することが分かった。マイクロ相分離の構造情報のみから応力特性や自由エネルギーをある程度予測することが可能となり、計算コストの高いブロック共重合体のシミュレーションにおいてパラメータ探索の効率化にもつながった。高分子化学でみられる複雑な構造をマルチフラクタル幾何学を用いて解析したことではじめて得られた知見であり、構造の特徴を捉え物性を予測する指標の開発につながり、他の物

質材料系への適用も期待できる。また、マイクロ相分離の構造データから応力ひずみ挙動を3次元畳み込みニューラルネットワークで予測する課題において、先行研究より高性能な手法も開発した。

(3) ランダムフォレストを用いてそれぞれの物性に対する結晶構造や成形条件の影響を解析した結果、トレードオフの関係にある生分解性と降伏応力にはそれぞれ異なる階層の結晶構造が影響を与えていることが示唆された(図3)。成形条件のみの解析では結晶化温度が最も重要な説明変数であったが、成形条件やX線散乱回折データ等さまざまな特徴量を同時に説明変数としてランダムフォレスト回帰を行うことにより、結晶化温度よりも物性に関与する結晶構造を抽出することができた。この結果は、複雑な結晶性高分子の物性予測にランダムフォレストを用いることで、重要な成形条件や結晶構造を探索することが可能であることを示しており、情報科学の手法を現実の結晶性高分子の実験データに適用することの有効性を提示することができた。

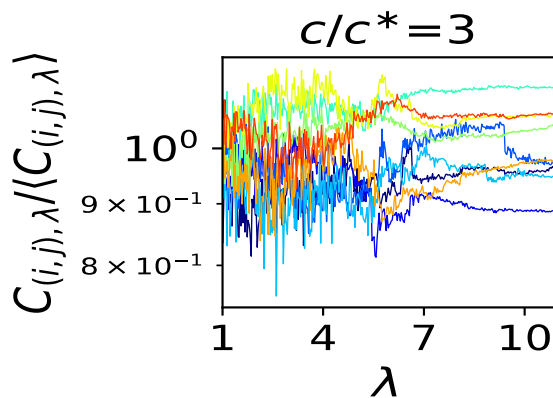


図1. 一軸伸長下(伸長比)での各頂点の修正中心性指標の変化。

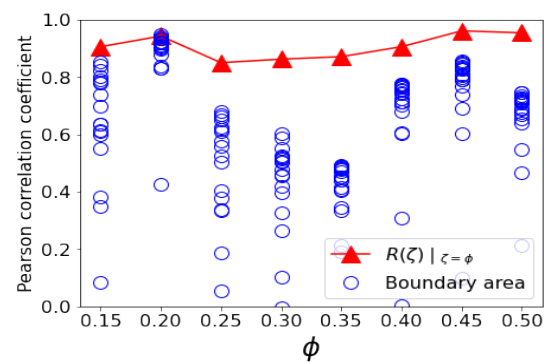


図2. 体積分率別にみた指標と自由エネルギーの相関。

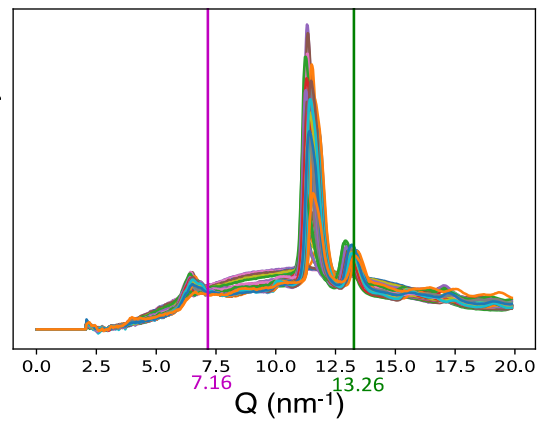
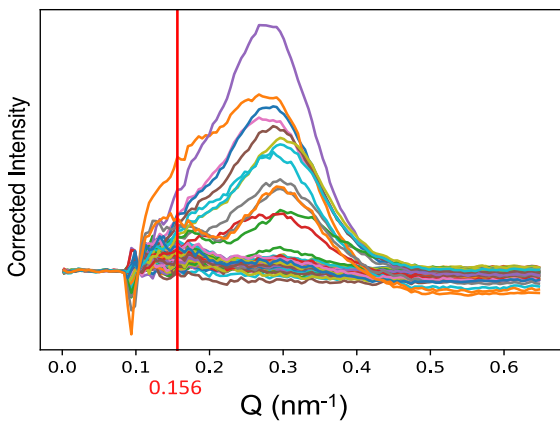


図3. 各階層の結晶構造を示すX線散乱回折データ(SAXS, WAXD)。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 9件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 7件）

1. 著者名 川口裕靖, 伊藤真利子, 山中貞人, 青柳岳司, 大西立顕	4. 巻 19
2. 論文標題 ミクロ相分離構造の最大連結成分と自由エネルギー	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Computer Chemistry, Japan	6. 最初と最後の頁 136 ~ 138
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2477/jccj.2021-0001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 高橋数冴, 天本義史, 菊武裕晃, 伊藤真利子, 高原淳, 大西立顕	4. 巻 20
2. 論文標題 ランダムフォレストを用いた結晶性高分子のX線散乱回折データの解析	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Computer Chemistry, Japan	6. 最初と最後の頁 103 ~ 105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2477/jccj.2021-0042	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 川口裕靖, 伊藤真利子, 青柳岳司, 大西立顕	4. 巻 20
2. 論文標題 3次元畳み込みニューラルネットワークの転移学習を用いたブロック共重合体の応力ひずみ曲線予測	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Computer Chemistry, Japan	6. 最初と最後の頁 100 ~ 102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2477/jccj.2021-0037	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 伊藤真利子, 天本義史, 大西立顕	4. 巻 20
2. 論文標題 エラストマーの一軸伸長における重み付きネットワーク構造の変化	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Computer Chemistry, Japan	6. 最初と最後の頁 89 ~ 91
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2477/jccj.2021-0040	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Mariko I. Ito, Sadato Yamanaka, Takeshi Aoyagi, Takaaki Ohnishi	4. 巻 -
2. 論文標題 Quantification of microphase separated structures from the viewpoint of multifractal	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Proceedings of the 2020 International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications (NOLTA2020)	6. 最初と最後の頁 480-483
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Mototake, S. Yamanaka, T. Aoyagi, T. Ohnishi, K. Fukumizu	4. 巻 -
2. 論文標題 Topological Data Analysis of Microdomain Patterns of Block Copolymer	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Proceedings of the 2020 International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications (NOLTA2020)	6. 最初と最後の頁 517-520
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 天本義史, 菊武裕晃, 大西立顕	4. 巻 70
2. 論文標題 高分子の高次構造特徴量－物性相関としてのサイバーポリマー	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 高分子	6. 最初と最後の頁 133-134
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Mariko I. Ito, Takaaki Ohnishi	4. 巻 -
2. 論文標題 Weighted Network Analysis for Computer-Aided Drug Discovery	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 In: Czarnowski I., Howlett R., Jain L. (eds) Intelligent Decision Technologies. IDT 2020. Smart Innovation, Systems and Technologies	6. 最初と最後の頁 27~36
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/978-981-15-5925-9_3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yoshifumi Amamoto, Ken Kojio, Atsushi Takahara, Yuichi Masubuchi, Takaaki Ohnishi	4. 巻 1
2. 論文標題 Complex Network Representation of the Structure-Mechanical Property Relationships in Elastomers with Heterogeneous Connectivity	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Patterns	6. 最初と最後の頁 100135 ~ 100135
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.patter.2020.100135	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ito Mariko I., Yamanaka Sadato, Aoyagi Takeshi, Ohnishi Takaaki	4. 巻 18
2. 論文標題 Multifractal Analysis of Microphase Separated Structure in Block Copolymers	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Computer Chemistry, Japan	6. 最初と最後の頁 214 ~ 216
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2477/jccj.2019-0043	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 伊藤真利子, 大西立顕	4. 巻 2019
2. 論文標題 化合物空間の重み付きネットワーク解析	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ケモインフォマティクス討論会予稿集	6. 最初と最後の頁 1P10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計20件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 伊藤真利子, 天本義史, 大西立顕
2. 発表標題 エラストマーの一軸伸長における架橋点間距離の変化のネットワーク構造依存性
3. 学会等名 日本コンピュータ化学会2021春季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Mariko Ito, Yoshifumi Amamoto, Takaaki Ohnishi
2. 発表標題 Change of network structure of elastomers under elongation
3. 学会等名 Conference on Complex Systems 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Mariko Ito
2. 発表標題 Relationship between multifractal and physical properties of microphase separated structure in block copolymers
3. 学会等名 International Conference on Discrete Geometric Analysis for Materials Design (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋数冴, 天本義史, 菊武裕晃, 伊藤真利子, 高原淳, 大西立顕
2. 発表標題 X線散乱・回折データの機械学習による結晶性高分子の物性に関わる階層構造の解析
3. 学会等名 NANOSPEC2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 川口裕靖, 伊藤真利子, 山中真人, 青柳岳司, 大西立顕
2. 発表標題 ブロック共重合体の自由エネルギーに関わるミクロ相分離構造の定量化
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊藤真利子, 山中貞人, 青柳岳司, 大西立顕
2. 発表標題 マルチフラクタル解析によるミクロ相分離構造の特徴づけ
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Mariko Ito, Takaaki Ohnishi
2. 発表標題 Minimum spanning tree of biologically relevant chemical space
3. 学会等名 NetSci-X 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Mariko Ito, Takaaki Ohnishi
2. 発表標題 Structural feature extraction on chemical space by clustering and network analysis
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Mariko Ito, Takaaki Ohnishi
2. 発表標題 Investigation on a more appropriate network representation of chemical subspaces
3. 学会等名 15th German Conference on Cheminformatics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takaaki Ohnishi, Mariko Ito
2. 発表標題 Dimension Reduction of Molecular Fingerprints
3. 学会等名 Conference on Complex Systems 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大西立顕
2. 発表標題 複雑ネットワークとデータサイエンスを活用した高分子計算機科学の可能性
3. 学会等名 高分子計算機科学研究会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤真利子, 山中貞人, 青柳岳司, 大西立顕
2. 発表標題 ブロック共重合体のマイクロ相分離構造に対するマルチフラクタル解析
3. 学会等名 日本コンピュータ化学会2019年秋季年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大西立顕, 伊藤真利子
2. 発表標題 化合物の生物活性予測に最適なフィンガープリント表現
3. 学会等名 日本コンピュータ化学会2019年秋季年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 天本義史, 大西立顕
2. 発表標題 ネットワーク解析による架橋高分子の構造物性相関
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大西立顕, 福島真太郎
2. 発表標題 化学反応データベースを用いた逆合成経路探索のための化合物のグラフ表現
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大西立顕
2. 発表標題 領域知識創出のためのビッグデータ活用
3. 学会等名 第8回計算社会科学とその周辺セミナー (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤真利子, 大西立顕
2. 発表標題 化合物空間の幾何学的特徴を使ったクラスタリング
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大西立顕
2. 発表標題 化合物フィンガープリントの次元削減
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Mariko Ito, Takaaki Ohnishi
2. 発表標題 The topological features of fingerprint space and its application to the efficient retrosynthetic analysis
3. 学会等名 Conference on Complex Systems 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Chikara Mizokami, Takaaki Ohnishi
2. 発表標題 Three State Model for Temporal Network Change Detection
3. 学会等名 NetSci-X 2018: International School and Conference on Network Science (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	高橋 数牙 (Takahashi Kazuki) (00909385)	東京大学・医科学研究所・助教 (12601)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	久野 遼平 (Hisano Ryohei) (60725018)	東京大学・大学院情報理工学系研究科・講師 (12601)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	伊藤 真利子 (Ito Mariko)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関