# Schrödinger User Group Meeting – Materials Science Japan 2024

## Abstract

# 分子動力学計算・密度汎関数計算と機械学習による電解液分子設計

パナソニックインダストリー株式会社　技術本部 プロセスデバイス革新センター
エグゼクティブエンジニア　松澤　伸行

半導体素子の高速化に伴う計算機の演算速度の高速化、及び、近年のクラウド計算環境の拡大は、所与の時間内にその特性を計算できる候補分子の数を劇的に増大させることにより、計算機化学による材料設計に大きな変化をもたらしている。加えて、マテリアルズインフォマティックス(MI)分野における最近の技術の進展も、材料特性を予測する速度を大きく加速させており、今や、MI により、ある材料の特性をミリ秒のオーダで予測できるようになってきている。更に、人工知能(AI)関連技術の進歩に伴い、材料の逆問題設計を行う様々な手法が提案されてきている。
今回の報告では、そういった近年進展した材料設計手法を、キャパシタやリチウムイオン電池等の電気化学素子に使用されうる電解液分子の設計に適用することを試みたので、その内容を紹介する。こういった素子での課題の一つは低温での動作特性であり、これを改善する為には、より低粘度な分子材料を用いることが望ましい。今回は、そういったより低粘度な分子材料の探索を、1 万種の分子に関する大規模分子動力学計算による粘度の予測と、この粘度についての計算結果を教師 data とした機械学習モデル、及び、強化学習による分子構造の生成手法である REINVENT 法を組み合わせて実施した。加えて、探索された分子群から、低粘度と予測された分子 1 種について、実際に合成を行い、その特性を評価したので、その結果もあわせて報告する。

# Advancing Materials Science with Schrödinger: Latest Innovations, Future Roadmap, and Emerging Applications for Organic Electronics and Beyond

Mathew D. Halls
Senior Vice President, Materials Science, Schrödinger

The development of advanced materials is crucial for driving technological progress. Schrödinger's digital chemistry platform accelerates this process through atomic-scale modeling, enabling rapid selection, discovery, and optimization of materials solutions. Recent advancements in physics-based simulations and machine learning enhance the precision, efficiency, and accessibility of digital materials research. In recent years, Schrödinger's key areas of development have included reactivity and kinetics, complex workflow automation, predictive machine learning, and complex formulation modeling impacting a variety of industries ranging from organic electronics to consumer packaged goods. This presentation will highlight recent new capabilities, major development areas, and the Schrödinger vision for the future of digital chemistry for materials innovation, with a focus on advances for organic electronics.

# Accelerating Cosmetics Design through Formulations Modeling at the Molecular Level

Jeffrey M. Sanders
Product Manager and Scientific Lead of Consumer Goods, Schrödinger

The journey to develop and reformulate products to become more sustainable presents many challenges. Research and development in these areas often demand substantial time, resources, and new raw materials. To accelerate this process, predictive modeling offers the potential to identify promising ingredients, formulations, and even new packaging materials that meet the required standards. Virtual testing of cosmetic and personal care ingredients and formulations using computational methods can provide a mechanistic understanding at the molecular level. This allows for a better understanding of how individual ingredients behave, the morphology and stability of formulations, and their interaction with the target biological surface. Additionally, interactions between products and packaging materials, which are key drivers of shelf-life, can also be explored. Case studies in these areas will highlight the utility of computational chemistry methods in understanding products in development, in their packaging, and in action.

# Local formal charge を用いた
# 新規チタン酸窒化物の探索

シニア サイエンティスト　青木　祐太

再生可能なエネルギー源を用いた水素生産技術は, 水素エネルギー利用を持続可能なものとする上で必要不可欠である. これを実現するひとつのアプローチが, 太陽光を利用した水の光触媒分解である. $TiO_2$ を光触媒とした水分解反応の発見以来, 数多くの物質が光触媒材料として提案されてきたが, $TiO_2$ は構成元素の豊富さや化学的安定性の観点から, 依然として光触媒材料として大きなアドバンテージを有している.

$TiO_2$ を水分解用の光触媒材料として用いる場合, 大きな課題となるのはそのバンドギャップの大きさである. $TiO_2$ のバンドギャップはおよそ 3.0 eV 程度であり, 波長 400nm 以下の紫外光しか活用できない. 太陽光のエネルギーを有効活用するには可視光の活用が不可欠である. $TiO_2$ に可視光応答性を付与するためには N ドーピングをはじめとした化学ドーピングが有効であることが示されているが, これによって与えられる可視光応答性は, $TiO_2$ が有している紫外光に対する応答性と比べて弱いものにとどまっている.

今回の発表ではそれに代わるアプローチとして, 新たな化合物としてのチタン酸窒化物を探索する方法を提案する. ここでは前駆物質として, 組成式 $Ti_nO_{2n-1}$ ($n \geq 2$)で与えられる既存のチタン酸化物系を考える. Ti の最も安定な酸化状態が $Ti^{4+}$であることを念頭に置くと, この組成式中の 2n-1 個の O 原子のうち, 2 個を N 原子に置き換えることで, 安定なチタン酸窒化物化合物 $Ti_nN_2O_{2n-3}$ ($n \geq 2$) を構成できると期待できる. この元素置換の可能なパターンを全て列挙するのは大変な作業であるが, Materials Science Suite (MSS) にはこれを自動で行う機能が搭載されている.

しかし, このようにして生成される新構造について詳細に調べるにあたっては, $Ti_nO_{2n-1}$ から $Ti_nN_2O_{2n-3}$ への置換に伴って生成される大量の構造候補から安定な構造のみを効率的にスクリーニングすることが必要となる. このスクリーニングのために local formal charge という概念を考案し, それを対象となる Ti 原子周囲の局所構造から算出する方法を提示する. この方法を用いると, 第一原理計算を行うことなく個々の Ti 原子ごとの formal charge を算出することができるため, $Ti_nN_2O_{2n-3}$ において実現される Ti の理想的な酸化数+4 (構造全体で平均した酸化状態)と, 個々の Ti 原子の局所的な formal charge との乖離を調べることができ, これを用いて安定構造をスクリーニングすることができる.

この local formal charge を用いたスクリーニングによって得られた構造と, そのスクリーニングから外れた構造のエネルギーを第一原理計算によって調べたところ, 実際に安定な構造が local formal charge によってスクリーニングできていることが確かめられた. また, このようにして得られた $Ti_nN_2O_{2n-3}$ の安定構造について, MSS 搭載の Quantum ESPRESSO パッケージでエネルギー的安定性およびバンド構造を計算した. 結果として, $Ti_nN_2O_{2n-3}$ のバンドギャップは $TiO_2$ と比べて大幅に縮小しており, 可視光を用いた水分解光触媒として適したバンド構造を有することが確認できた.

Schrödinger

# Combined Physics-Based and Machine Learning Approaches in the Design of Complex Materials

Anand Chandrasekaran
Product Manager Materials Science Informatics, Schrödinger

The simulation of materials properties using physics-based approaches, such as density functional theory (DFT) and molecular dynamics (MD), has long been successful in providing insights into structure-property relationships and subsequently aiding in the design of novel materials. More recently, machine learning (ML) has been used extensively in conjunction with physics-based modeling techniques to greatly accelerate materials innovation. The accuracy and generalizability of physics-based modeling improves the performance of ML models and enables them to be used effectively even in small-data regimes. Conversely, the speed and flexibility of ML help bridge the time- and spatial- scale limitations of physics-based models, creating a synergistic approach that optimizes both predictive accuracy and computational efficiency. In this talk, we demonstrate the application of this combined approach in designing materials and formulations across diverse applications, from battery electrolytes and fuel mixtures to thermoplastics and OLED devices. For instance, we demonstrate how DFT descriptors greatly improve the accuracy of ML models for optoelectronic molecules and battery electrolytes while descriptors from MD simulations can lead to better models for viscosity of organic molecules. We use Schrodinger's automated Formulation ML solution, which takes into account both chemistry and composition, to train ML models for solubility of APIs in binary solvents and for the prediction of motor octane number of hydrocarbons. Additionally, we highlight advances in our machine learning force field technology (QRNN) and its application in modeling the bulk properties of inorganic cathode coating materials.

# ニューラルネットワークポテンシャル表面上の強化学習による遷移状態探索 III

シニア サイエンティスト　大塚　勇起

本研究では、強化学習を使用して反応物から生成物への最小エネルギー経路を探索する方法を提案します。今回の方法では、反応物の構造を徐々に変化させて生成物が得られるシミュレーションを繰り返し、最小エネルギー経路を通るように学習をさせます。最小エネルギー経路での最も高いエネルギーを持つ構造は、遷移状態(TS)構造になるはずです。シミュレーションに必要な大量の分子構造のエネルギーは、ニューラルネットワークを使用して高速に計算しました。ニューラルネットワークは、サンプリングされた構造と、それらの構造での DFT エネルギーから構築しています。(DFT 計算には、Jaguar プログラムを使用しました。) 実際の計算では、構造変化はグリッド上で行っており、グリッドの間隔内でしか TS 構造は得られません。しかしながら、これらの構造は TS 計算の良い初期構造として利用することが可能です。TS 計算の結果、正しい TS 構造が得られない場合は、新しい構造と DFT エネルギーを学習データに追加し、ニューラルネットワークのアップデートを行い、再び強化学習での最小エネルギー経路の探索を行います。簡単な HCN の異性化反応への応用では、グリッド範囲内で正確な TS 構造を得ることができ、その構造からの TS 計算によって、正しい TS 構造が得られました。発表では、詳細なアルゴリズムの説明と、15 個までの原子からなる 60 の系の TS 計算のベンチマークへの応用例を紹介します。

# Automated Identification of Chemical Reaction Products with Nanoreactor

Pavel A. Dub
Product Manager Catalysis and Reactivity, Schrödinger

Predicting the outcomes of chemical reactions is considered the Holy Grail of computational chemistry. To advance this capability, various computational methods for automated reaction space exploration are continually being developed. These methods generally fall into three main categories: graph enumeration of products and reaction coordinates, reaction template methods, and accelerated ab initio molecular dynamics. Each of these strategies faces specific challenges: graph-based methods suffer from combinatorial explosion, reaction template methods lack generalization, and accelerated ab initio molecular dynamics are hindered by steep numerical scaling.

Schrödinger's Nanoreactor introduces a novel approach for the automated digital identification of chemical (small molecules) reaction products. The approach is based on automated potential energy surface sampling through GFN2-xTB metadynamics, landscape refinement and density functional theory-based sorting. By analyzing products based on their quantum energies and applying chemical intuition, a user can infer potential reaction products and intermediates.

Additionally in this presentation, we will present preliminary results demonstrating the use of the Nanoreactor machinery for the direct prediction of the most kinetically probable products of elementary chemical reactions. Sequentially, this new feature of Nanoreactor could enable the direct identification of a minimum energy reaction channel or an ensemble of low-energy reaction pathways for a complex multi-stage reaction. This advancement paves the way for a conceptually new, ultrafast strategy for the direct prediction of chemical reactions.

# 高速分子動力学計算と量子力学計算の組み合わせによるGHz以上の高周波数における誘電率と誘電正接の予測

シニア ディレクター　森里　嗣生

最近は第 5 世代移動通信システム（5G）向けの樹脂材料の開発が盛んに行われていますが、そこで重要になる特性として GHz 以上の高周波数帯での誘電特性が挙げられます。GHz 以上の高周波数の電場の中では誘電特性は基板回路内の電気信号の伝送損失や、材料中の発熱に与える影響が大きくなるため特に重要です。

弊社ではこれまで Jaguar による量子計算と Desmond による古典分子動力学計算を組み合わせて低分子やポリマーに対して誘電率や誘電正接などの誘電特性を計算するワークフローとして Amorphous Dielectric Properties Workflow の開発を行って参りましたが、このワークフローの中で行っている近似が GHz 以上の高周波数帯での誘電特性にどのような影響を与えるのかについては、さらに調査を進めていく必要があります。

そこで本研究では、Amorphous Dielectric Properties Workflow の解析方法における問題点を見出し、その改善を行いました。そして、いくつかのポリマーについて GHz 以上の周波数での誘電率と誘電正接の計算を行い、適用した改善方法による影響について調査いたしましたので、その結果をご紹介いたします。

# Polymers and Formulations in Schrödinger Materials Science Suite: From electronics to pharmaceuticals, new properties bring new applications

Andrea Browning
Director - Polymers and Soft Matter, Schrödinger

For materials in applications such as batteries, electronic packaging, and pharmaceutical formulations, a series of properties must be optimized in order to make a successful product. The computational solutions available in the Schrödinger Materials Science Suite have been used across these applications to develop new materials through computational screening of target properties. With the latest releases in 2024, new property workflows are available to extend the design considerations for new materials; such as thermal conductivity and the electrode film formation producing a solid electrolyte interphase (SEI) layer. The optimization of constituent proportions in an active formulation is further enhanced with the inclusion of automatic particle identification in the Coarse Grained Force Field Builder, allowing for the creation of suggested particles for use in the automatic parameterization workflow. This presentation will describe these new solution workflows and show how they are enabling improved design for polymers and complex formulations.

# リチウムイオン電池における負極ー電解質界面の解析

シニア サイエンティスト　井本　裕文

リチウムイオン電池（Lithium Ion Battery: LIB）は 1990 年代前半の商用化以降、電子機器を中心に広く使用され、既に電気自動車用電池としても市販されています。従来の液系電解質を用いる LIB では、負極―電解質の界面に Solid Electrolyte Interphase (SEI)が形成されます。SEI は電解液の分解を防ぎ、サイクル特性を高めることなどが知られていますが、SEI 形成反応は直接観察することが困難であるため、その形成メカニズムを理解するためにコンピューター・シミュレーションによる解析が望まれています。

一方、液系電解質には安全性や低エネルギー密度などの欠点があり、近年では不燃性固体電解質と Li 負極を利用した全固体電池が注目されています。ところが全固体電池には、（１）Li 負極からの電子移動による固体電解質の還元劣化、（２）Li 負極からの Li デンドライト成長といった問題点もあります。そこで、固体電解質の還元劣化と Li デンドライト成長を防ぐために、Li 負極上に BN などの保護膜（人工 SEI）を形成することが試みられており、この場合も負極―電解質界面の制御が重要です。

本セミナーでは、液系電解質と固体電解質の両方について、負極―電解質界面の SEI および保護膜について、(a) 構造、(b) 電子状態、(c) Li が電解質から負極へ移動する障壁を解析した事例をご紹介いたします。計算には、Materials Science Suite（MSS）に含まれる Quantum ESPRESSO（QE）を利用いたします。Li 移動障壁の計算では、QE の一機能である Nudged Elastic Band 法（NEB 法）を利用いたします。MSS の NEB 法では、弊社にて実装を改良したスキームによる並列化効率の高い計算が可能です。