(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2011 年 12 月 1 日(01.12.2011)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2011/148639 A1

(51) 国際特許分類:
G06F 19/00 (2011.01) *G06F 17/50* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2011/002927

(22) 国際出願日: 2011 年 5 月 25 日(25.05.2011)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2010-119880 2010 年 5 月 25 日(25.05.2010) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社ブリヂストン(**BRIDGESTONE CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1048340 東京都中央区京橋１丁目１０番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 坂井　嘉克 (**SAKAI, Yoshikatsu**) [JP/JP]; 〒1878531 東京都小平市小川東町３－１－１　株式会社ブリヂストン　技術センター内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 杉村　憲司 (**SUGIMURA, Kenji**); 〒1000013 東京都千代田区霞が関三丁目２番１号霞が関コモンゲート西館３６階 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

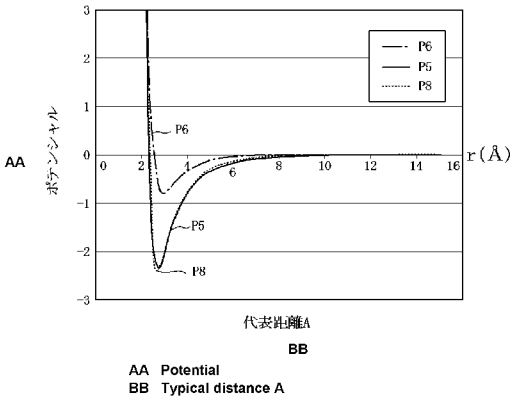
添付公開書類:
— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

(54) **Title**: METHOD FOR SIMULATING INTERMOLECULAR FORCE

(54) 発明の名称 : 分子間力のシミュレーション手法

[図5]

FIG. 5



AA Potential
BB Typical distance A

(57) **Abstract**: Provided is a method for calculating intermolecular interaction with which the calculation precision is high and the calculation convergence speed is fast, even in relation to a model system in which a potential that is a combination of an electrostatic interaction potential and a nonbonding interaction potential is created and an electric charge such as a hydrogen bond is primarily used. The method comprises: a step for selecting two molecules from among multiple molecules present within the system as model molecules; a step for finding the electric charge of the model molecules and applying said electric charge to molecules; a step for calculating a nonbonding interaction potential(A); a step for calculating a nonbonding interaction potential (B); and a step for comparing the nonbonding interaction potential (A) and the nonbonding interaction potential (B) in the absence of Coulomb force and calculating a Lennard-Jones potential correction parameter (C).

(57) 要約: 静電相互作用ポテンシャルと非結合作用ポテンシャルを組み合わせたポテンシャルを作成し、水素結合のような電荷が主として作用するモデル系に関しても計算精度が高く、かつ、計算の収束速度が速い分子間相互作用計算手法を提供することを目的とする。 解決手段としては、系内に存在する複数の分子のうちから２分子をモデル分子とする工程と、前記モデル分子の電荷を求めて分子に付与する工程と、非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）を算出する工程と、非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）を算出する工程と、前記非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）と前記非クーロン力作用下での非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）を比較してＬｅｎｎａｒｄ－Ｊｏｎｅｓポテンシャル補正項（Ｃ）を算出する工程と、を有することを特徴とする。

WO 2011/148639 A1

明　細　書

発明の名称 ： 分子間力のシミュレーション手法

技術分野

[0001] 本発明は、計算機を用いて分子シミュレーション（分子動力学法によるシミュレーション）を行うことで分子間の相互作用を求める計算手法に関し、特に、静電相互作用ポテンシャルと非結合作用ポテンシャルを組み合わせたポテンシャルを作成し高分子の分子運動シミュレーションなどに適応可能で、新規材料の評価などに好適な計算手法であって、水素結合のような電荷が主として作用するモデル系に関しても計算精度が高くかつ計算の収束速度が速い分子間相互作用計算手法に関するものである。

背景技術

[0002] 従来からゴムや樹脂等の高分子ポリマーにカーボンブラックやシリカ等のフィラーを配合すると補強効果があることが知られており、高分子ポリマーにフィラーを配合したゴム材料等の高分子材料が、例えば、自動車用タイヤ等の高分子材料製品に適用されている。前記高分子材料は、高分子を含む材料であれば特に限定されないが、好ましくは天然ゴム、合成ゴム、合成樹脂等を含む有機高分子材料が好適である。このようなフィラー充填ゴム等の高分子材料では、分子動力学法（特許文献１参照）や第一計算原理（特許文献２参照）に基づくシミュレーション方法等が行われている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２００５－２０８９３０号公報

特許文献2：特開２００６－０６４６５８号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 特許文献１にはフィラー分子のモデルを構築し、モデル間距離から相互作用を測定する方法が開示されている。但し、分子モデルであることから、内

在する個々の原子に関する相互作用は「まるめ」られており、詳細には測定できないという問題がある。

また、特許文献２にはカーボン分子を基準として、それらと周囲の分子との吸着エネルギーを算出する方法が開示されている。但し、周囲分子もモデル化されており、周囲分子のうち真に吸着に関与する原子とその他の周囲原子との相互作用については詳細に測定できないという問題がある。

また、これら特許文献１～２の計算対象は、フィラー同士間やカーボンモデルと高分子を仮想分解した低分子モデル化合物間に限られ、例えばユナイテッドアトムモデムでの原子レベルの詳細な電荷構造や粗視化モデルでの高分子全体にわたる電荷構造や系に存在する分子の分子運動状態を反映した計算ができないため、水素結合のような電荷が主として作用するモデル系の静電相互作用ポテンシャルの影響を計算精度が高くかつ計算の収束速度が速く考慮できないモデル計算系である。

[0005] 一方、近年の材料技術、解析技術、計算技術の進歩により、極性基含有高分子などの新しい材料と充填剤表面の相互作用や充填剤表面自体の詳細についても、従来は計算が困難であり寄与も小さいとみなされていたが、水素結合のような電荷が主として作用するモデルについて、数原子程度の小規模計算モデル系ながら数値計算が試みられ、電荷の寄与も無視しえない大きさがあることが分かってきた（図１ａのＰ２、図１ｂのＰ４参照）。ここで、静電相互作用ポテンシャルとしてはクーロンの法則が、非結合作用ポテンシャルとしてはＬｅｎａｒｄ－Ｊｏｎｅｓ（ＬＪ）ポテンシャルが広く用いられている。

しかし、クーロンの法則とＬＪポテンシャルを単純に組み合わせ又は両方を作用させたポテンシャルによる計算方法では、電荷を考慮して分子動力学を用いる場合、もともと大きい計算量がさらに数十倍以上となって計算負荷が膨大となる。このため、水素結合のような電荷が主として作用するモデルでは、高分子などの大規模計算が困難であるという問題がある。

[0006] クーロンの法則をＬＪポテンシャルで近似することも考えられるが、両者

の性質が大きく相違するため、単純に近似できる形ではないという問題がある。なぜなら、静電相互作用は粒子間の電荷の組み合わせにより、正と負の値をもつ（図１のｂＰ４、図１ａのＰ２参照）が、ＬＪポテンシャル（図１ａのＰ１、図１ｂのＰ３参照）では正と負の両方を１つの式で表現することはできないからである。さらに、静電相互作用は距離ｒの２乗に反比例するのに対し、ＬＪポテンシャルはｒの１２乗に反比例する斥力とｒの６乗に反比例する引力で表わされるため、そもそも容易に近似できる形ではない（図１参照）という問題がある。

さらに、計算の高速化に関しては、ＬＪポテンシャルでは、影響を無視できる範囲をしきい値（カットオフ距離）として計算範囲を狭め計算の高速化が実施できるのに対し、クーロンの法則では、遠距離まで影響があるためしきい値を小さく設定できず計算の高速化が困難であるという問題がある（図１ａＰ２、図１ｂのＰ４参照）。高速化のためには、並列計算化などの対応方法もあるが、計算コストが飛躍的に増大するという問題がある。

このように、大規模計算に対する要望は大きいものの、確立した計算手法はいまだ得られていないのが現状である。

[0007] そこで、本発明の目的は、上記従来技術の問題を解決し、計算機を用いて水素結合のような電荷が主として作用するモデル系に適用しても計算精度が高く、かつ、計算の収束速度が速い非結合相互作用ポテンシャルの計算手法を提供することにある。さらに他の目的は、該非結合相互作用ポテンシャルを用いることで高分子の分子運動シミュレーションなどに適応可能で、新規材料の評価などに好適な分子間相互作用計算手法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者は、上記課題を解決すべく、クーロン力作用下の計算モデル系の数値計算を鋭意検討し、非結合相互作用ポテンシャルの計算手法を見出し、本発明を完成させるに至った。

[0009] 本発明の非結合相互作用ポテンシャルの計算手法は、計算機を用いて分子動力学法によるシミュレーションを行うことで非結合相互作用ポテンシャル

を求める計算手法において、系内に存在する複数の分子のうちから２分子を選択しそれらをモデル分子とする工程と、

前記モデル分子の電荷を求めて、求まった電荷をそれぞれの分子に付与する工程と、前記モデル分子を系内で３次元的に動かすことで非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）を算出する工程と、静電相互作用を０として、前記モデル分子を系内で３次元的に動かすことで非クーロン力作用下の非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）を算出する工程と、算出された前記非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）と前記非クーロン力作用下での非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）とを比較演算することで、Ｌｅｎｎａｒｄ－Ｊｏｎｅｓポテンシャル（Ｃ）を算出する工程と、を有することを特徴とする。

[0010] 本発明の分子間相互作用計算手法は、前記Ｌｅｎｎａｒｄ－Ｊｏｎｅｓポテンシャルの補正項（Ｃ）を基に、系内に存在する分子に適用する工程を有する。

また、前記モデル分子は高分子からなる計算単位をいずれか１つを含むことが好ましい。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、計算機を用いて水素結合のような電荷が主として作用するモデル系に適用しても計算精度が高く、かつ、計算の収束速度が速い非結合相互作用ポテンシャルの計算手法を提供することが可能となる。さらに、本発明の他の態様によれば、該非結合相互作用ポテンシャルを適用することで高分子の分子運動シミュレーションなどに適応可能で、新規材料の評価などに好適な分子間相互作用計算手法を提供することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]モデル分子Ａ１－Ａ２を構成する原子間の非結合相互作用ポテンシャル（Ｐ１、Ｐ３）及び静電相互作用ポテンシャル（Ｐ２、Ｐ４）を示す概要図である。

[図2]モデル分子Ａ１－Ａ２の構造を示す概要図である。

[図3]モデル分子間の非結合相互作用ポテンシャル（Ｐ５：Ａ、Ｐ６：Ｂ）及

び静電相互作用ポテンシャル（Ｐ７）を示す概要図である。

[図4]モデル分子Ｃ１－Ｃ２の構造を示す概要図である。

[図5]モデル分子間の非結合相互作用ポテンシャル（Ｐ５：Ａ、Ｐ８：Ｃ）を示す比較図である。

[図6]一般的な粒子間の非結合ポテンシャル(ＬＪ型)を示す説明図である。

[図7]本発明の計算手法の一実施態様となる非結合相互作用ポテンシャル及び分子間相互作用計算システムの構成を示す図である。

[図8]非結合相互作用ポテンシャル及び分子間相互作用計算システムを構成するコンピュータの電気系要部構成の説明図である。

[図9]本発明の計算手法の一実施態様を示すフローチャートである。

[図10]従来技術の一実施態様を示すフローチャートである。

発明を実施するための形態

[0013] 以下に、図を参照しながら、本発明の計算手法を詳細に説明する。図７は、本発明の計算手法の一実施態様となる非結合相互作用ポテンシャル及び分子間相互作用計算システムの構成を示す図であり、図８は、図７に示す非結合相互作用ポテンシャル及び分子間相互作用計算システムを構成するコンピュータの電気系要部構成の説明図である。

[0014] 図７に示す非結合相互作用ポテンシャル及び分子間相互作用計算システム１は、コンピュータ２から構成されている。コンピュータ２は、予め記憶された処理プログラムに従って非結合相互作用ポテンシャル及び分子間相互作用計算の演算等をするコンピュータ本体３と、解析を行う際の各種条件を入力するためのキーボード等の入力装置４と、コンピュータ本体３の演算結果等を表示するディスプレイ５とから構成されている。また、コンピュータ本体３には、記録媒体７が挿抜等可能な記録媒体駆動ユニット６（以下、駆動ユニット６という）を具えている。

[0015] また、コンピュータ２は、図８に示す通り、装置全体の動作を司るＣＰＵ（中央処理装置）３ａと、コンピュータ２を制御する制御プログラムを含む各種プログラムや各種パラメーター等が予め記憶されたＲＯＭ３ｂと、各種

データを一時的に記憶するＲＡＭ３ｃと、各種データや各処理プログラムを記憶するＨＤＤ（ハードディスクドライブ）３ｄと、入力装置４への操作を検出する操作入力検出部３ｅと、ディスプレイ５への各種情報の表示を制御するディスプレイドライバ３ｆと、駆動ユニット６に装着された記録媒体７とのデータの入出力を行う記録媒体Ｉ／Ｆ部３ｇとを具えている。

[0016] ＣＰＵ３ａ、ＲＯＭ３ｂ、ＲＡＭ３ｃ、ＨＤＤ３ｄ、操作入力検出部３ｅ、ディスプレイドライバ３ｆ及び記録媒体Ｉ／Ｆ部３ｇは、システムバスＢＵＳ３ｈを介して相互に接続されている。従って、ＣＰＵ３ａは、ＲＯＭ３ｂ、ＲＡＭ３ｃ、ＨＤＤ３ｄへのアクセス、ディスプレイドライバ３ｆを介したディスプレイ５への各種情報の表示、記録媒体Ｉ／Ｆ部３ｇを介しての駆動ユニット６に装着された記録媒体７へのアクセスを各々行うことができる。また、ＣＰＵ３ａは、入力装置４に対するキー操作を常時把握できる。

[0017] なお、各種処理プログラム及びデータ等は、駆動ユニット６を用いて記録媒体７に対して読み書き可能である。従って、各種処理プログラム及びデータ等を予め記録媒体７に記録しておき、駆動ユニット６を介して記録媒体７に記録された各処理プログラムを実行してもよい。また、記録媒体７に記録された各処理プログラムをＨＤＤ３ｄへ格納（インストール）して実行するようにしてもよい。さらに、シミュレーション装置１に接続された図示しない外部のサーバ装置とのデータやプログラム等をやりとりして実行するようにしてもよい。

また、入力装置４としては、キーボード、マウス、タッチパネル等がある。記録媒体７としては、記録テープ、フロッピー（登録商標）ディスク、ＣＤ－ＲＯＭやＤＶＤ等の光ディスクや、ＭＤ、ＭＯ等の光磁気ディスクがあり、これらを用いるときには、上記駆動ユニット６に代えてまたはさらに対応する読み書き装置を用いればよい。

[0018] ここで、図７に示す非結合相互作用ポテンシャル及び分子間相互作用計算システム１の構成は一例であり、公知の構成を必要に応じて適宜変更することができる。

[0019] 高分子のシミュレーションには、分子動力学が広く用いられているが計算量が大きいため、時間・空間スケールが制限される。特に電荷を考慮した場合は、計算負荷が膨大になる。このため、水素結合のような電荷が主として作用するモデルでは、大規模計算が困難である。

本発明では、電荷による計算負荷を低減させるためのポテンシャルエネルギー作成法を確立した。広く使用されているポテンシャルに電荷によるポテンシャルを補正することで、全エネルギーを電荷有りと同等に保つ。これにより、電荷によるエネルギーを考慮しつつも、電荷を考慮しない場合と同等の計算負荷とすることが可能となり、計算速度が格段に向上する。

[0020] ここで、分子動力学（Molecular Dynamics:ＭＤ）計算とは、コンピュータ装置を用いたシミュレーションの一種であり、解析の対象となる高分子材料の分子構造に基づいて多数の原子又は分子等の集合体からなる粒子を配置したモデルを設定し、配置した全ての粒子が古典力学に従うものとしてニュートンの運動方程式を適用し、各時刻における全ての粒子の動きを追跡する手法である。該分子動力学計算によれば、粒子の微視的な運動をできる限り正確に追跡することができ、実験結果などに頼らずに、物質の性質や運動を明らかにすることができる。また、追跡時間等を調節することにより、粒子の初期配置に依存しない正確なシミュレーション結果を得ることができる。

[0021] 分子動力学法に基づくシミュレーションとしては、粒子間に働く力として、Ｌｅｎｎａｒｄ－Ｊｏｎｅｓ（ＬＪ）ポテンシャルに基づくものが一般的に用いられている。

ＬＪポテンシャルＵ（ｒ）は、式１で表される。

$$U(r)=4\varepsilon\left[(\sigma_0/r)^{12}-(\sigma_0/r)^{6}\right] \qquad \text{式１}$$

式１で、ｒは粒子間の距離である。σ_0は基準長である。εは粒子間力を反映した係数である。-6乗の引力項は二つの原子の間の分散力、すなわち双極子 - 双極子間の相互作用によるものであり、-12乗の斥力項は電子雲の重なりによって反発力、すなわちパウリの排他律によるものである。

[0022] 図１Ｐ１、Ｐ３、図３Ｐ６及び図６に示すように、ｒがσ_0以下では、Ｕ（

ｒ）は０以上の非常に大きな値となり、ｒ＞σ_0では、Ｕ（ｒ）は０以下の値となる。ｒ＝$2^{1/6}\sigma_0$でＵ（ｒ）は極小値$-\varepsilon$をとる。粒子間に働く力は、ポテンシャルの微分で表わされるため、ＬＪポテンシャルＵ（ｒ）の下では、ｒ≦$2^{1/6}\sigma_0$の状態では粒子間に大きな斥力が発生し、ｒ＞$2^{1/6}\sigma_0$の状態では粒子間に引力が発生する。即ち、ＬＪポテンシャルＵ（ｒ）のパラメーターσ_0は、隣接する粒子の半径の和に相当し、同種類の粒子間では粒子の直径に相当すると解釈できる。

また、引力、斥力を調整するには、これらのポテンシャルを計算する上限距離（カットオフ距離）を変更する方法が一般的に行われている。斥力のみとする場合には、$2^{1/6}\sigma_0$＝１．１２２σ_0を上限距離（カットオフ距離）とし、引力を考慮する場合には、一般に上限距離（カットオフ距離）を２．５σ_0とするものである。

[0023] 分子動力学法に基づくシミュレーションとしては、荷電粒子間に働く力として、静電相互作用ポテンシャルとしてクーロンの法則に基づくものが一般的に用いられている。

クーロン力F_c（ｒ）は、式２で表される。

$$F_c(r) = (1/4\pi\varepsilon_0)\ [Q_1 \cdot Q_2 / r^2] \qquad \text{式２}$$

式２で、ｒは粒子間の距離である。ε_0は真空の誘電率、Q_1、Q_2は各粒子の有する電荷である。図１ａＰ２、ｂＰ４に示すように、$Q_1 \cdot Q_2$は異種の電荷間では負の値となって引力を表わし、同種の電荷同士で正の値となって斥力を表わす。静電相互作用が距離ｒの２乗に反比例するため、ＬＪポテンシャル（Ｐ１、Ｐ３）と比べて、そのカットオフ距離２．５σ_0においてもＬＪポテンシャルよりも数桁大きい力が作用し、ＬＪポテンシャルより遠くまで力が及ぶことから、計算時にＬＪポテンシャルと整合したカットオフ距離を設けることが難しい。

[0024] 大規模計算する系の計算単位の大きさとしては、原子１つ１つについて計算する方法、粗視化を行って計算する方法がある。粗視化とは、多数の原子からなる系を計算する方法の１つであり、複数の原子又は分子等の集合体を

計算単位とする計算方法である。粗視化によって、計算単位数が大幅に減少し、多数の原子からなる系を通常の汎用計算機で扱うことが可能となる。ただし、粗視化が荒すぎると、分子構造の特徴が失われ、すり抜け等の問題を生ずるため、適正な粗視化レベルの選択を要する。たとえば、水素結合のような電荷が主として作用するモデルでは、炭素原子と水素原子を１つの集合体として取り扱うユナイテッドアトムモデルが水素結合の影響を詳細に検討するのに有用である。ユナイテッドアトムモデルを適用することで、特許文献１～２では得られない水素結合などにおける電荷による静電相互作用を原子レベルまで詳細に検討できる。分子間の相互作用を確認する系において、モノマー単位（複数の原子が共存する最も単純な単位）を作成して、粗視化したそれぞれの粒子に電荷とＬＪポテンシャルを設定して計算を行うことが好適である。また、ゴム材料などの高分子材料では、複数の原子からなるイソプレン等のゴム分子が鎖状に多数重合した高分子であり、高分子を構成する分子が互いに絡み合っており、高分子が多数集合して系をなしている。膨大な量の原子の挙動を逐一計算機で扱うことは現実的ではない。そこで、計算機で扱える粗さの計算単位であり、かつ、計算目的である高分子系としての特性が把握できるきめ細かさの計算単位での粗視化が計算に用いられる。

[0025] 複数の原子又は分子等をまとめた粗視化ユニットが多数集合した系としてシミュレーション対象の系を表し、粗視化ユニット間の相互作用を計算することによってシミュレーションを実行する粗視化分子動力学が利用されており、大規模な系を長時間にわたってシミュレーションできる。例えば、イソプレンが重合したゴム分子の場合、所定数のイソプレンが鎖状に重合したポリイソプレンを粗視化ユニットとし、この粗視化ユニットを複数鎖状に結合させてゴム分子を表し、多数のゴム分子を集合させてゴム材料を表すことができる。数個のモノマーユニットからなる集合体を１粒子（１粗視化ユニット）とする場合、粒子数はおよそ1/10～1/100となり、粒子数の二乗に比例する粒子間相互作用の計算時間は$1/10^2$～$1/10^4$、質量も$1/10^2$～$1/10^3$と短時間化でき、質量の平方根に反比例するタイムステップは10-30倍と高速化でき、結

合サイズも5-10倍、空間スケールも5-10倍に拡大できる。

[0026] フィラー充填ゴム系において、特にフィラーにシリカを用いたものにおいては、変性ポリマーなどが用いられ、これらをモデル化する必要がある。ここで、変性ポリマーとは、ポリマーの一部、好適にはその末端部がフィラーと化学結合する若しくは親和性が高い性質を有する材料成分をいう。例えば、末端にカーボンブラックと化学結合する若しくは親和性が高いアミン官能基を有する変性ポリマー、末端にシリカと化学結合する若しくは親和性が高いアルコキシ官能基やシラノール官能基を有する変性ポリマー、アミン官能基とアルコキシ官能基やシラノール官能基を同時に有する変性ポリマーが挙げられる。

[0027] 次に、非結合相互作用ポテンシャル及び分子間相互作用計算システム１が実行する計算手法の内容を説明する。図９は、非結合相互作用ポテンシャル及び分子間相互作用計算システム１が行う分子間相互作用計算処理の手順を示す一実施態様におけるフローチャートであり、図１０は従来の分子間相互作用計算システムが行う計算処理の一実施態様における手順を示すフローチャートである。ＣＰＵ３ａは、必要に応じてＲＡＭ３ｃにロードした各処理プログラムに従って、以下の処理を実行する。

[0028] ［工程１：モデル分子の選択］

系内に存在する複数の分子のうちから２分子を選択しそれらをモデル分子とする。分子間の相互作用を確認する系において、計算単位としてモノマー単位（複数の原子が共存する最も単純な単位）を作成する。計算負荷を低減しつつ電荷の作用を反映した基準となるポテンシャル（Ａ）を高速で計算するためである。入力装置４または記録媒体７等からコンピュータ２へモノマー単位データが送信され、開始信号を受けて、ＣＰＵ３ａ等で演算処理等が行われる。

[0029] ここで、モデル分子が、高分子からなる計算単位を少なくとも１つを含むことが好ましい。かかる高分子のモデル分子は複数の類似配列を持つため、モデル化が容易で高速で計算しやすいからである。このため、高分子の評価

、特に新規材料評価に有用である。但し、低分子との相互作用にも応用は可能である。

また、モデル分子が、モデル分子の全体を１つとして記述すると電荷に偏りがなく電荷量ゼロであり、モデル分子を局所的に記述すると電荷の偏りがあり、該電荷の偏りに異方性があるモデル分子を含むことがさらに好ましい。モデル分子間距離がσ_0以下だと電子雲の重なりによる反発力が支配的で静電相互作用は無視しえる。モデル分子間距離がσ_0～２σ_0程度のモデル分子の直径程度である場合、モデル分子内で分極した正電荷と負電荷の距離差によるクーロン力の違いが有意となり静電相互作用が顕著に現れ、さらにモデル分子間距離が２．５σ_0程度のカットオフ距離を越えるとモデル分子内で分極した正電荷と負電荷の距離差によるクーロン力の違いがわずかになりモデル分子全体が一体としてゼロ電荷とみなせる。ポテンシャル関数の形がＬＪポテンシャルに近づくことがわかる。

[0030] さらに驚くべきことに、発明者は静電相互作用ポテンシャルをＬＪポテンシャルにより補正項を設けることで近似できることを見出した。モデル分子（図２）を構成する単一の電荷を帯びた原子間の静電相互作用ポテンシャル（図１Ｐ２及びＰ４）はＬＪポテンシャルによってまったく近似し得ない。ところが、分極して正負の両電荷を有するモデル分子間で計算することにより、概算的にＬＪポテンシャルに近い関数形にできる（図３Ｐ５）ことを見出した。その上、静電相互作用が顕著に現出されやすいモデル分子中の粒子数個に関してだけ相互作用パラメーターを調整する（図４）ことによってＬＪポテンシャル補正項（Ｃ、図５Ｐ８）による高精度の近似ができることを新たに見出した。従来の技術では、系全体の相互作用パラメーターを一体に調整することが一般常識とされているため、静電相互作用が顕著に現出されやすいモデル分子中の粒子数個に関してだけ相互作用パラメーターを調整することは、容易に想到しえない技術である。さらに、驚くべきことに、該相互作用パラメーターの調整により計算精度という質的な面だけでなく、さらにカットオフ距離の設定が可能になり計算速度という量的な面にも顕著な効

果が得られることは、当業者に予想しえない意外なものであり、容易には着想しえないものである。

また、前記電荷の偏りに異方性があるモデル分子が静電相互作用によって回転モーメントを生じて反転運動できることが特に好ましい。同種の電荷同士が近接したモデル分子が回転することで容易に高速に安定したエネルギー状態に遷移できるため、現実の系に即した精度の高い計算結果を高速で得られるためである。

[0031] ［工程２：モデル分子への電荷付与］

上記モデル分子の電荷を求めて、求まった電荷をそれぞれの分子に付与する。例えば、分子軌道法等の電荷数値計算法を用いて電荷を求めて付与することが好ましい。ここで、分子軌道法とは量子力学を用いる方法で、目的分子についてシュレディンガーの波動方程式を解くことによって構造や物性などを明らかにするものである。具体的には、コンピュータ２へ送信されたモノマー単位データを分子軌道法ソフト（ＣＮＤＯ、ＩＮＤＯ、ＭＩＮＤＯ、ＰＭ３、Ｇａｕｓｓｉａｎなど）によりＣＰＵ３ａ等で演算処理等を行って、モノマー単位の各粒子（原子、原子団、粗視化単位）に電荷を設定する。ＣＰＵ３ａ等が行った計算結果である電荷に関する数値データをＲＡＭ３ｃから記録媒体７等へ記録することで計算を終了する。

ここで、付与する電荷が、モデル分子の全体を１つとして記述すると電荷に偏りがなく電荷量ゼロであり、モデル分子を局所的に記述すると電荷の偏りがあり、該電荷の偏りに異方性があるモデル分子を含むことが好ましい。計算精度の高いＬＪポテンシャル補正項（Ｃ）による計算が可能となり、カットオフ距離の設定等による計算速度の高速化が可能となるからである。また、前記電荷の偏りに異方性があるモデル分子が静電相互作用によって回転モーメントを生じて反転運動できることが特に好ましい。容易に高速に安定したエネルギー状態に遷移できるため、現実の系に即した精度の高い計算結果を高速で得られるためである。

[0032] ［工程３：モデル分子間の非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）の算出］

上記モデル分子を系内で３次元的に動かすことで非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）を算出する。具体的には、コンピュータ２へ送信されたモノマー単位の位置及び運動に関するデータと工程２で得た電荷に関するデータをＬＪポテンシャル及び静電相互作用計算ソフトによりＣＰＵ３ａ等で演算処理等を行って、モデル分子間の非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）を算出し、ＣＰＵ３ａ等が行った計算結果をＲＡＭ３ｃから記録媒体７等へ記録することで計算を終了する。

[0033] ［工程４：モデル分子間の非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）の算出］

静電相互作用を０として、前記モデル分子を系内で３次元的に動かすことで非クーロン力作用下の非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）を算出する。ここで、「静電相互作用を０として」とは、工程２の電荷付与のデータを用いないで電荷０のデータを用いることをいう。具体的には、コンピュータ２へ送信された電荷データが０であるモノマー単位の位置及び運動に関するデータをＬＪポテンシャル計算ソフトによりＣＰＵ３ａ等で演算処理等を行って、モデル分子間の非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）を算出し、ＣＰＵ３ａ等が行った計算結果をＲＡＭ３ｃから記録媒体７等へ記録することで計算を終了する。

[0034] ［工程５：モデル分子間の非結合相互作用ポテンシャル補正項（Ｃ）の算出］

非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）と前記非クーロン力作用下での非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）を比較してＬＪポテンシャル補正項（Ｃ）を算出する。なお、ＬＪポテンシャル補正項（Ｃ）を算出することは、同時に補正されたＬＪポテンシャル（Ｃ）を算出することを意味する。

ここで、「比較して」とは、パラメータフィッティング計算等によって比較計算を行うことをいう。例えば単純なモデル系においては簡単な引き算などの算術計算によって比較して対応することが可能である。必要な計算精度を確保した上で、算術計算による比較計算で対応可能なように単純化したモデル系を用いることが計算結果を解析する観点及び計算速度を速める観点か

ら好ましい。

具体的には、記録媒体７等からコンピュータ２へ送信された非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）と前記非クーロン力作用下での非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）に関するデータを基に計算ソフトによりＣＰＵ３ａ等で演算処理等を行って、補正項と同時にモデル分子間の補正された非結合相互作用ＬＪポテンシャル（Ｃ）を算出し、ＣＰＵ３ａ等が行った計算結果をＲＡＭ３ｃから記録媒体７等へ記録することで計算を終了する。

[0035] ［工程６：系内の分子への非結合相互作用ＬＪポテンシャル補正項（Ｃ）の適用］

工程５で求めたクーロン力補正ＬＪ型の非結合相互作用ＬＪポテンシャル補正項（Ｃ）を系内に存在する分子に適用する。初期配置を行い、分子動力学計算を行う。系全体が持つエネルギーの収束（時系列的な変化が設置値より少ないと判断される時）をもって計算が収束したと判断し、ＣＰＵ３ａ等が行った計算結果である系内に存在する多数の分子に関する数値データをＲＡＭ３ｃから記録媒体７等へ記録することで計算を終了する。単位時間（設定した時間）で系全体のエネルギーの変化量が初期の例えば１／１０００（設置した値）になった時を計算収束時と判断する。さらに、生成させた計算結果を用いて、新規材料評価を行うことができる。

実施例

[0036] 以下に、実施例を挙げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明は下記の実施例に何ら限定されるものではない。

[0037] （実施例１）

計算機として、Ｉｎｔｅｌ社製ＣＰＵ　Ｘｅｒｏｎ３．０ＧＨｚを使用したワークステーションを用いた。数値計算ソフトとしては、ＯＣＴＡプロジェクトによるｃｏｇｎａｃ６．１を用いた。

静電相互作用を確認する系として、モデル分子Ａ１－Ａ２としてＳｉＯモノマーとピリジンモノマーそれぞれ１単位を選択した（工程１：図２参照）。分子軌道法ソフト（Ｇａｕｓｓｉａｎ）で計算して各粒子（ＳｉＯモノマ

ー：Ｓｉ、Ｏ、Ｈ原子、ピリジンモノマー：ＣＨ原子団、Ｎ原子）に電荷を設定した（工程２）。ＳｉＯモノマーの位置を固定し、ピリジンモノマーを移動させ、両者の間に働くクーロン力作用下の非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）を算出した（工程３：図３Ｐ５参照）。ここで、ＬＪポテンシャルの基準長σ_0を表１上段に、ＬＪポテンシャルのパラメーターεを表１下段に示す。また、上限距離（カットオフ距離）＝５．０σ_0に設定した。クーロンポテンシャルの計算に用いる電荷は表２に示す異方性のある値を用いた。また、ポテンシャル（Ａ）の算出に要した計算時間を表４に示す。ここで、表４はモノマー同士１４０，０００ステップに要した計算時間を項別に秒単位で示したものである。

[0038] 次に、電荷を０に設定して（静電相互作用をなくす）、再度ＳｉＯモノマーの位置を固定し、ピリジンモノマーを移動させ、両者の間に働く非クーロン力作用下の非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）を算出した（工程４：図３Ｐ６参照）。計算モデルＣ１－Ｃ２として、複数の粒子（ここでは、ＳｉＯモノマー：Ｓｉ、Ｏ、Ｈ各１原子、ピリジンモノマー：ＣＨ原子団×２、Ｎ原子の６粒子：図４参照）のパラメーターを補正して、クーロン力を補正したＬＪポテンシャル補正項（Ｃ）を算出した（工程５：図５Ｐ８参照）。複数の粒子のパラメーターを逐次設定することで得られたＬＪポテンシャル補正項（Ｃ）とポテンシャル（Ａ）を比較して計算した。補正したＬＪポテンシャル（Ｃ）のパラメーターを表３に示す。算出に要した計算時間を表４に、計算結果を図５に示す。

[0039] 表１にＬＪポテンシャル（Ａ）のパラメータを示す。各原子間におけるＬＪポテンシャル（Ａ）の基準長σ_0を表１上段に、ＬＪポテンシャル（Ａ）のパラメーターεを表１下段に示す。

[0040]

[表1]

	H	O	Si	C	N
H	2.84642 0.0152	2.93970 0.03814	3.32520 0.068644	3.15971 0.03802	3.05449 0.0343
O		3.41865 0.172241	- -	3.25307 0.0854	3.14786 0.086085
Si			3.80414 0.31	3.63856 0.1717	3.53335 0.1549
C				3.47200 0.0851	3.36778 0.085795
N					3.26256 0.0774

[0041] 表２に電荷の設定値を示す。ここで各原子に付与した番号は図４（ｂ）に示す。

[0042] [表2]

番号	原子	電荷
1	Si	15.3787
2	O	-12.7716
3	H	-2.9033
4	H	-2.36609
5	H	-2.90337
6	H	5.56648
7	N	-7.48975
8	C	1.11138
9	C	1.11095
10	C	-2.26112
11	C	-2.6156
12	C	-1.73224
13	H	2.32038
14	H	2.32063
15	H	2.25928
16	H	2.25941
17	H	2.36263

[0043] 表３に補正したＬＪポテンシャル（Ｃ）のパラメーターを表３に示す。各原子間におけるＬＪポテンシャル（Ｃ）の基準長σ_0は表１上段に示したＬＪ

ポテンシャル（Ａ）と共通である。図４（ａ）で丸印を付けた原子間、つまり、表３に示した番号の原子間の組み合わせに限りＬＪポテンシャル（Ｃ）のパラメーターεを表１下段に示した値から表３に示した値に変更して計算した。ここで各原子に付与した番号は図４（ｂ）に示す。

[0044] [表3]

		N	C	C
原子	番号	7	8	9
Si	1	4.780543	4.780543	4.780543
O	2	0.06085	1.310235	1.198336
H	6	0.456688	0.85664	1.153349

[0045] 表４に実施例１に示した補正したＬＪポテンシャル（Ｃ）の算出に要した計算時間と、従来技術であるポテンシャル（Ａ）の算出に要した計算時間を表４に示す。表４において、モノマー同士について１４０，０００ステップ計算するのに要した計算時間を項別に秒単位で示したものである。

[0046] [表4]

	ポテンシャル(A)	実施例1
LJポテンシャル項	1	1
ボンド項	0	0
アングル項	2	2
トーション項	5	6
電荷項	44	0
その他	4	3
合計	56	12

[0047] （計算精度の評価）

計算の精度はモノマー同士の単純な系におけるポテンシャル（Ａ）と（Ｃ）の計算結果の一致度合いによって評価した。

[0048] （計算速度の評価）

所定ステップ数の計算に要する計算時間により計算速度を評価した。

[0049] モデル分子に対する実施例１である補正したＬＪポテンシャル（Ｃ）と従来技術であるポテンシャル（Ａ）の計算速度を比べると、実施例１の計算速度は合計時間で４．７倍速いことがわかる。ＬＪポテンシャル項と電荷項の合計計算時間を比較すると、実施例１の計算速度は従来技術より４５倍高速になっており、ここが両者の速度差の主要因であることがわかる。補正したＬＪポテンシャル（Ｃ）において、電荷の効果を含めたＬＪポテンシャル項の計算に要する時間が、従来技術におけるＬＪポテンシャルのみの計算時間と同程度で計算されるためである。一方、従来技術であるポテンシャル（Ａ）では電荷項の計算にさらに多くの時間を費やさねばならないため、計算速度が著しく遅くなる。

[0050] なお、実施例１に示した計算要素が１分子同士のモデル分子では計算速度の量的な対比ができたが、分子数を２０倍にした系や高分子モデルを想定した系では、設定時間内に従来技術であるポテンシャル（Ａ）は計算収束せず、計算速度を量的に比較することができなかった。実施例である補正したＬＪポテンシャル（Ｃ）においては、通常のＬＪポテンシャル計算に要する計算時間例えば８時間で十分に計算が収束した。

分子の構成要素数が１分子同士のモデル分子と比べて４０００倍（ポリマーを２０分子の場合）であることから、３０倍程度計算速度が高速化していたと推定される。これは、計算要素数が大きい系において特に電荷項の計算にてしきい値（カットオフ距離）を設定できたため、計算対象がしきい値内の構成要素のみに限定でき、計算量を圧倒的に縮減できたからであり、計算規模が大きくなるほどしきい値の有無で計算量の差が指数的に増大するため、計算速度の差は指数的に大きくなり、実施例では計算可能、従来技術では計算不能という結果の質的な差異に繋がったものと考察される。

符号の説明

[0051] １ システム

２ コンピュータ

３ コンピュータ本体

４　　入力装置（キーボード）

５　　ディスプレイ

６　　記録媒体駆動ユニット

７　　記録媒体

Ｐ１　Ｎ－Ｏ原子間の非結合相互作用（ＬＪ）ポテンシャル曲線

Ｐ２　Ｎ－Ｏ原子間の静電相互作用（クーロン）ポテンシャル曲線

Ｐ３　Ｎ－Ｓｉ原子間の非結合相互作用（ＬＪ）ポテンシャル曲線

Ｐ４　Ｎ－Ｓｉ原子間の静電相互作用（クーロン）ポテンシャル曲線

Ｐ５　モデル分子Ａ１－Ａ２間の非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）曲線

Ｐ６　モデル分子Ａ１－Ａ２間の非結合相互作用（ＬＪ）ポテンシャル（Ｂ）曲線

Ｐ７　モデル分子Ａ１－Ａ２間の静電相互作用（クーロン）ポテンシャル曲線

Ｐ８　モデル分子Ｃ１－Ｃ２間のＬＪポテンシャル補正項（Ｃ）曲線

請求の範囲

[請求項1] 計算機を用いて分子動力学法によるシミュレーションを行うことで非結合相互作用ポテンシャルを求める計算手法において、

系内に存在する複数の分子のうちから２分子を選択しそれらをモデル分子とする工程と、

前記モデル分子の電荷を求めて、求まった電荷をそれぞれの分子に付与する工程と、

前記モデル分子を系内で３次元的に動かすことで非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）を算出する工程と、

静電相互作用を０として、前記モデル分子を系内で３次元的に動かすことで非クーロン力作用下の非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）を算出する工程と、

算出された前記非結合相互作用ポテンシャル（Ａ）と前記非クーロン力作用下での非結合相互作用ポテンシャル（Ｂ）とを比較演算することで、Ｌｅｎｎａｒｄ－Ｊｏｎｅｓポテンシャル（Ｃ）を算出する工程と、

を有することを特徴とする非結合相互作用ポテンシャルの計算手法。

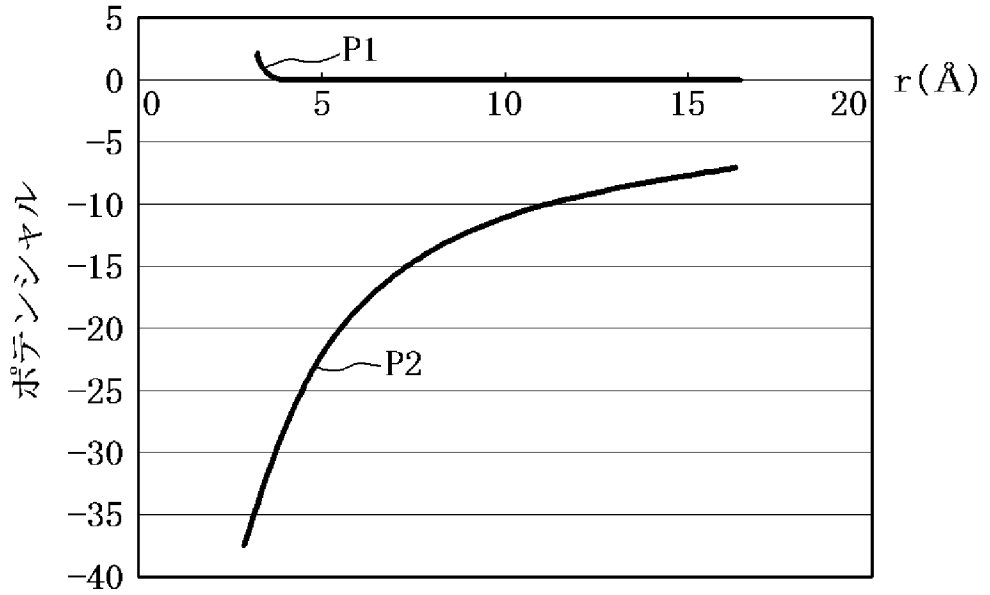
[請求項2] 請求項１に記載の前記Ｌｅｎｎａｒｄ－Ｊｏｎｅｓポテンシャルの補正項（Ｃ）を基に、系内に存在する分子に適用する工程を有することを特徴とする分子間相互作用計算手法。

[請求項3] 前記モデル分子は高分子からなる計算単位をいずれか一つを含むことを特徴とする請求項１又は２に記載の計算手法。

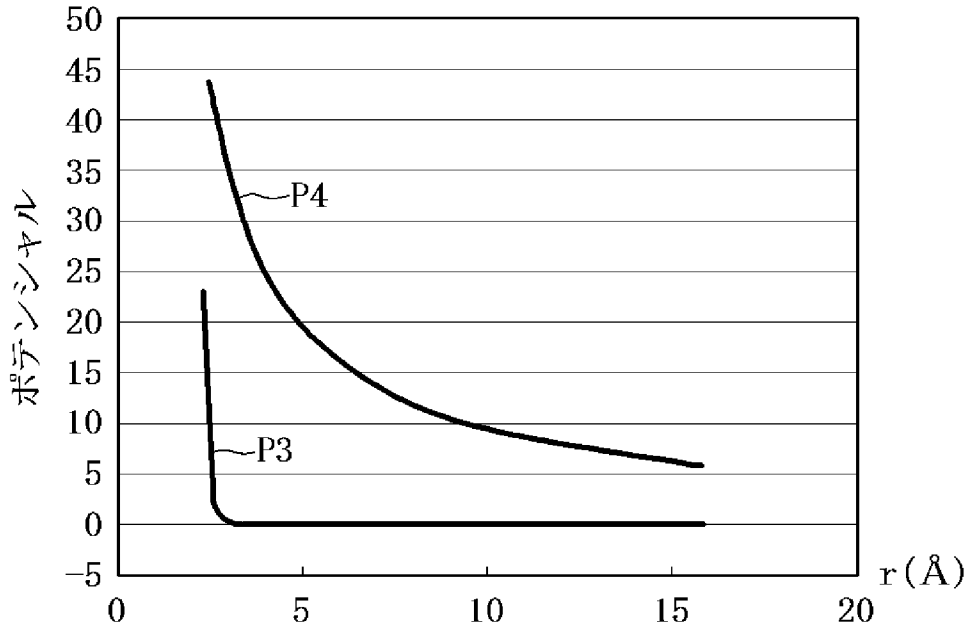
[図1]

FIG. 1

(a)

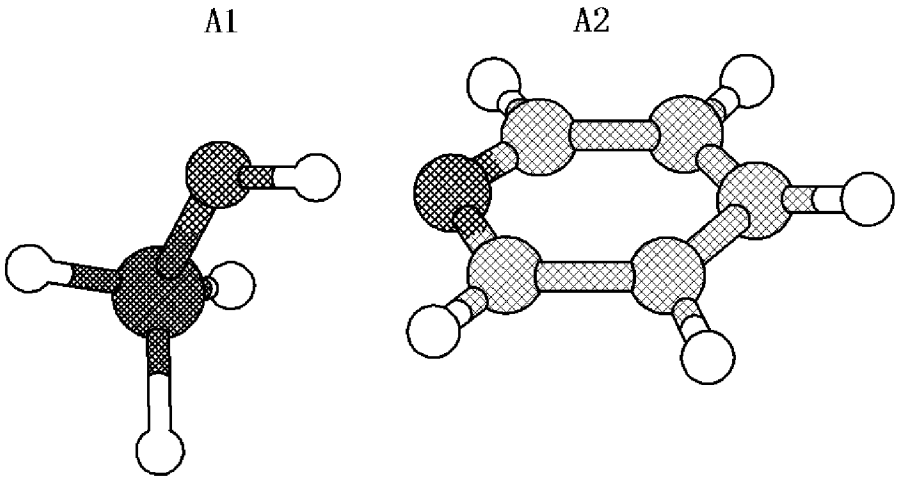

5
0
−5
−10
−15
−20
−25
−30
−35
−40
0
5
10
15
20
r(Å)
ポテンシャル
P1
P2

(b)


50
45
40
35
30
25
20
15
10
5
0
−5
0
5
10
15
20
r(Å)
ポテンシャル
P4
P3

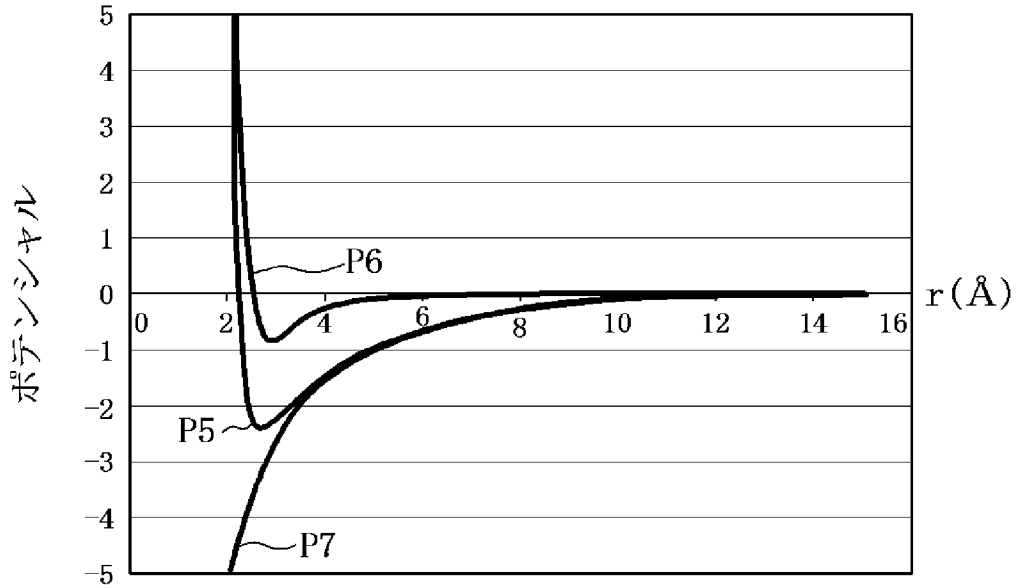
[図2]

FIG. 2



[図3]

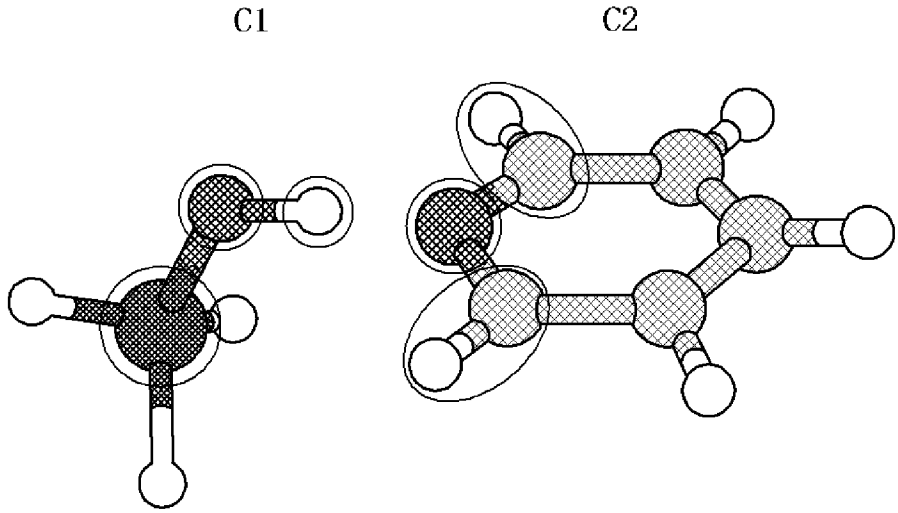
FIG. 3



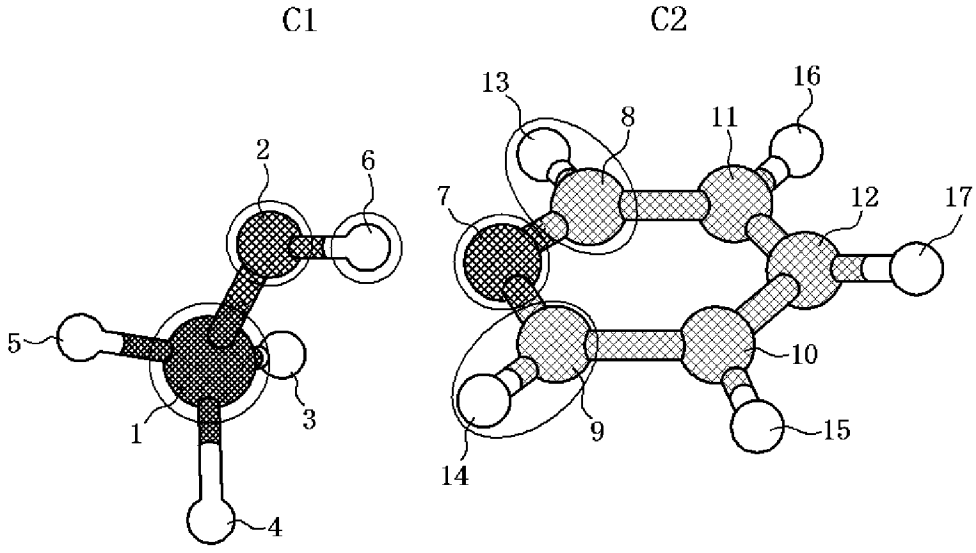
[図4]

FIG. 4

(a)

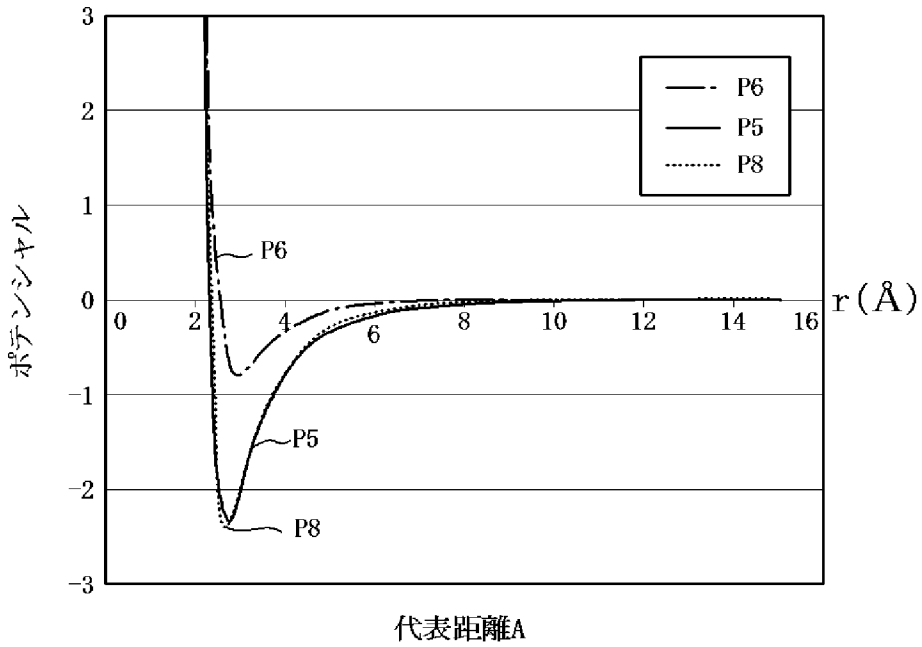


(b)



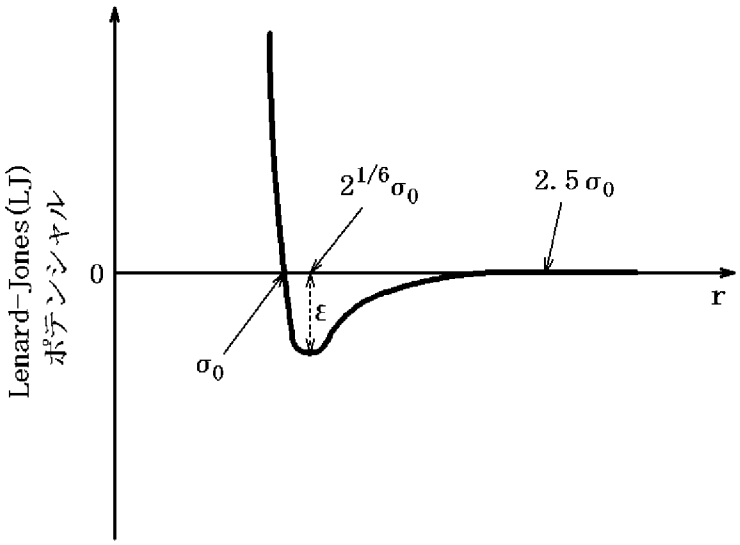
[図5]

FIG. 5



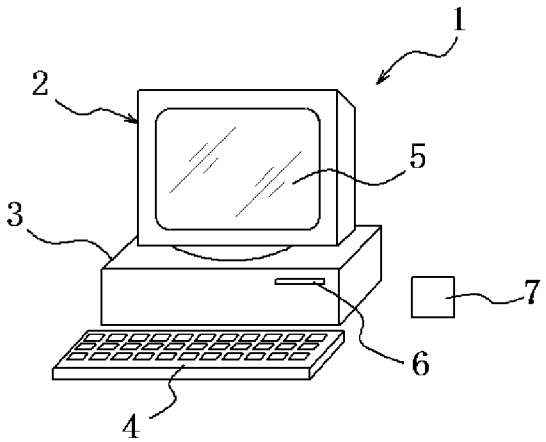
[図6]

FIG. 6



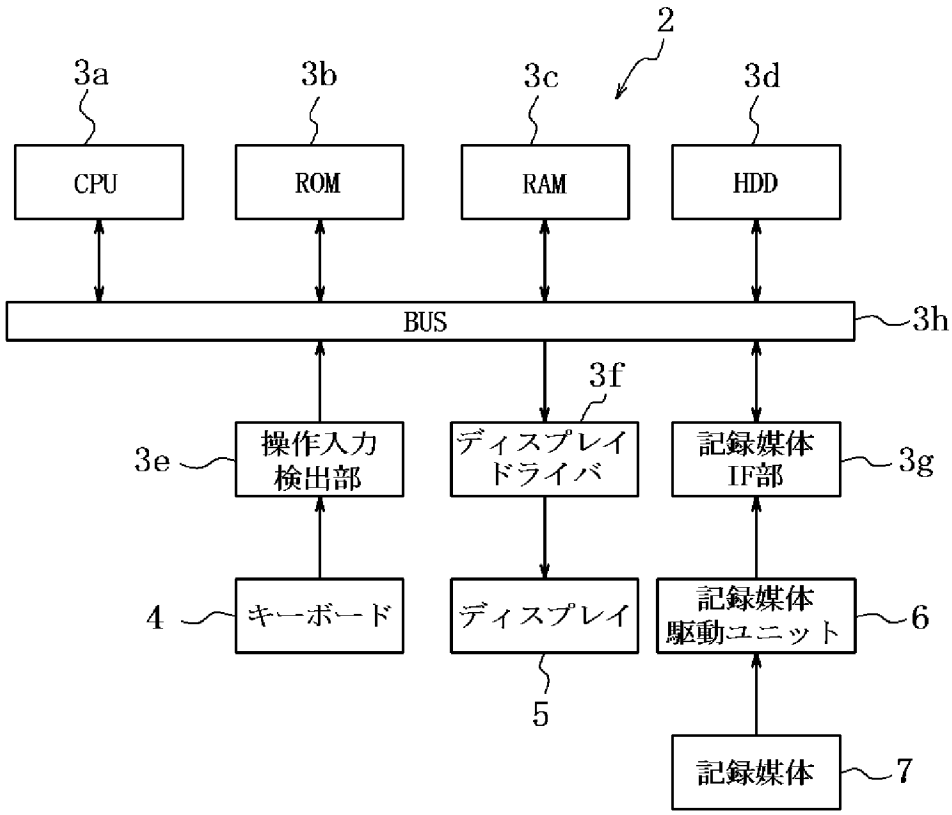
[図7]

FIG. 7



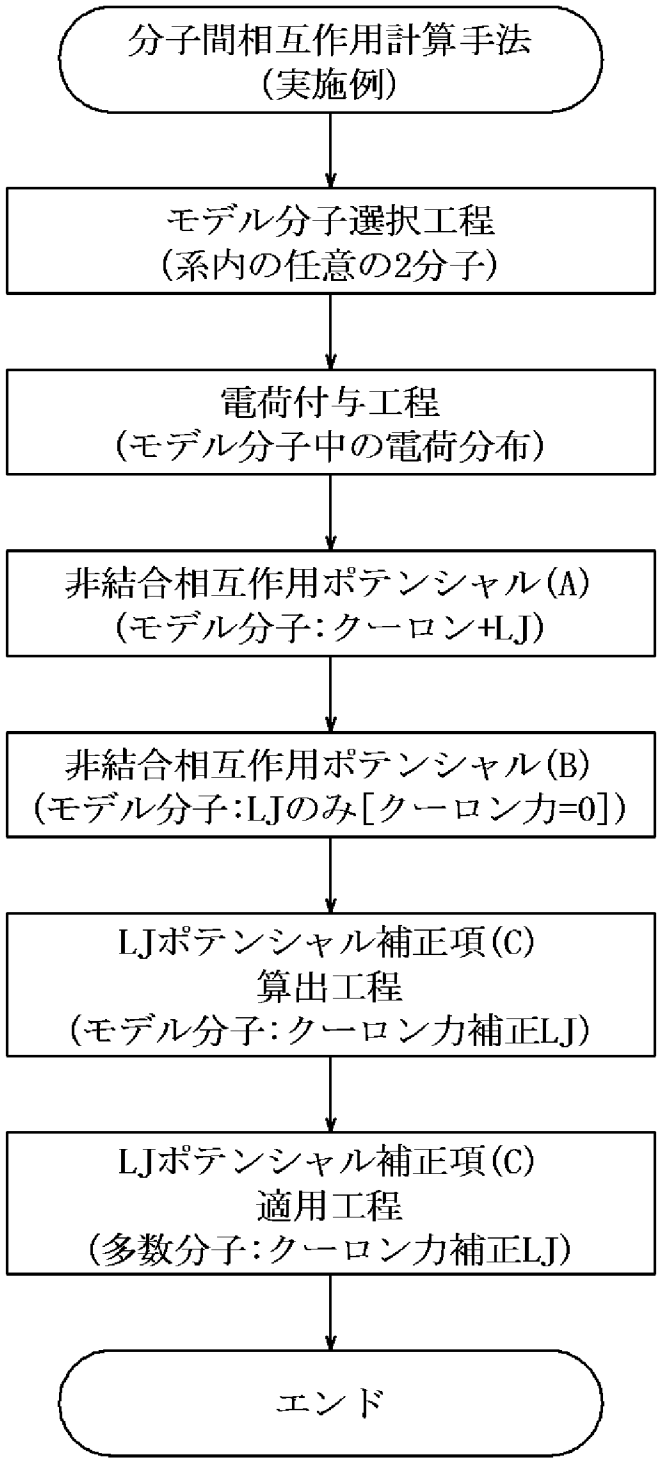
[図8]

FIG. 8


2
3a
3b
3c
3d
CPU
ROM
RAM
HDD
BUS
3h
3f
3e
操作入力
検出部
ディスプレイ
ドライバ
記録媒体
IF部
3g
4
キーボード
ディスプレイ
記録媒体
駆動ユニット
6
5
記録媒体
7

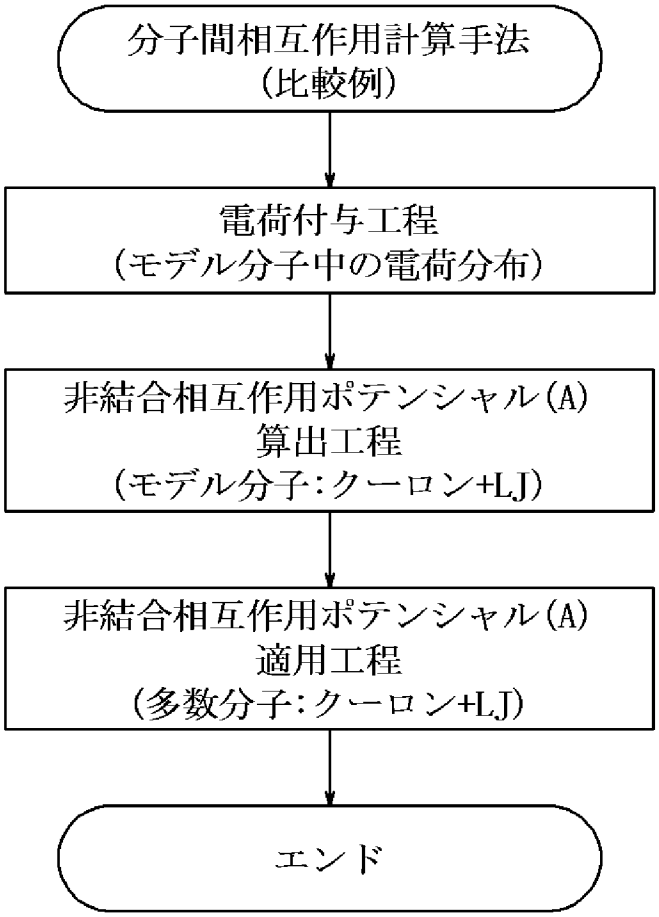
[図9]

FIG. 9


分子間相互作用計算手法
(実施例)
モデル分子選択工程
(系内の任意の2分子)
電荷付与工程
(モデル分子中の電荷分布)
非結合相互作用ポテンシャル(A)
(モデル分子:クーロン+LJ)
非結合相互作用ポテンシャル(B)
(モデル分子:LJのみ[クーロン力=0])
LJポテンシャル補正項(C)
算出工程
(モデル分子:クーロン力補正LJ)
LJポテンシャル補正項(C)
適用工程
(多数分子:クーロン力補正LJ)
エンド

[図10]

FIG. 10


分子間相互作用計算手法
(比較例)
電荷付与工程
(モデル分子中の電荷分布)
非結合相互作用ポテンシャル(A)
算出工程
(モデル分子:クーロン+LJ)
非結合相互作用ポテンシャル(A)
適用工程
(多数分子:クーロン+LJ)
エンド

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2011/002927

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
G06F19/00(2011.01)i, *G06F17/50*(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
G06F19/00, G06F17/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2011
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2011	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2011

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JSTPlus(JDreamII), JST7580(JDreamII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2007-149075 A (Toray Industries, Inc.), 14 June 2007 (14.06.2007), entire text; all drawings (Family: none)	1-3
A	JP 2005-208930 A (Sumitomo Rubber Industries, Ltd.), 04 August 2005 (04.08.2005), entire text; all drawings & US 2005/86034 A1 & EP 1526468 A2	1-3

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
08 June, 2011 (08.06.11)	21 June, 2011 (21.06.11)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 2009)

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１１／００２９２７

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　G06F19/00(2011.01)i, G06F17/50(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　G06F19/00, G06F17/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１１年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１１年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１１年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

JSTPlus(JDreamII), JST7580(JDreamII)

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 2007-149075 A (東レ株式会社) 2007.06.14, 全文, 全図 (ファミリーなし)	１－３
A	JP 2005-208930 A (住友ゴム工業株式会社) 2005.08.04, 全文, 全図 & US 2005/86034 A1 & EP 1526468 A2	１－３

☐　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー

「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献

「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 ０８．０６．２０１１	国際調査報告の発送日 ２１．０６．２０１１
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００－８９１５ 東京都千代田区霞が関三丁目４番３号	特許庁審査官（権限のある職員）　５Ｌ　３７９６ 宮地　匡人 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３５６２