

添加剤の効果を引き出す基油構造の *in silico* スクリーニング

In silico screening of base oil molecular structures for maximizing lubricant additive effects

ENEOS (正) *小野寺 拓 ENEOS (正) 山岸純也 ENEOS (正) 柴田潤一 ENEOS (正) 置塙直史

Tasuku Onodera, Junya Yamagishi, Junichi Shibata, Tadashi Oshio

ENEOS Corporation

1. 緒 言

地球温暖化の抑制がグローバル課題となっている昨今、自動車や家電などの製品性能に加え、それらの製造プロセスもが省エネルギー化や高効率化のターゲットとなっている。そのため、機器の摺動部や材料加工における摩擦損失や摩耗を抑制する材料のニーズは、必然的に高まりを見せている。

これまで、著者らは革新的な材料の開発を志向し、材料の構造・物性・性能の設計や探索に資する汎用原子レベルシミュレータ「Matlantis™」を開発してきた^{1,2)}。本シミュレータは、独自に開発したニューラルネットワークポテンシャル（NNP）²⁾に基づき、精度・速度・汎用性の高さを特徴とする。NNPは、精密な密度汎関数理論（DFT）で得たエネルギー状態と原子間に作用する力を教師データとし、機械学習によって構築された原子間ポテンシャルである。従って、DFT等の第一原理計算と同等の精度を保証しつつ、 10^4 倍以上の高速化および72元素の任意の組合せに対するシミュレーションが可能である³⁾。これらの特徴は、従来法が抱える課題（化学反応への対応、高い計算負荷、系に応じたパラメータチューニングなど）を払拭し、あらゆる材料系への適用を可能とした。具体例として、金属を含め構成元素が複数種あるZnDTP極圧添加剤の化学反応解析にも適用されはじめている⁴⁾。

著者らは、トライボロジー分野におけるMatlantis™の最初の活用先としてアルミニウムの塑性加工向け潤滑油を選んだ。基油中の油性剤に対する吸着ダイナミクスの解明を通じ、基油組成が油性剤の効果に与える影響を明らかにしてきた^{1,5)}。一方、加工性能の向上や工具の延命を図るために、潤滑油を構成する基油および添加剤の最適化が必要である。本報では、分子シミュレーションによる現象解明のフェーズから、マテリアルズ・インフォマティクス（MI）による潤滑油設計のフェーズへと移行した。具体的には、解明したメカニズムに基づき、加工対象物の表面に対する油性剤の吸着を促進できる基油構造を探査した。

2. 方 法

著者らの報告^{1,5)}によれば、油性剤の吸着時間は、加工対象物の表面に対し基油が形成する油膜の疎密に依存する。具体的には、密な油膜をつくるノルマルパラフィン（直鎖構造）の場合には吸着時間が長く、疎な油膜をつくるイソパラフィン（分岐構造）の場合には吸着時間が短い。これは、基油としてイソパラフィンを用いた場合、油性剤が素早く吸着し、加工時に低摩擦効果が発現されやすいことを意味する。従って、油膜が疎になる基油を選ぶことによって、摩擦プロセス中の油性剤吸着を早期化し、低摩擦化等の効果を余すことなく獲得できると予想された。そこで、一万種を超える膨大な炭化水素について、その粗密を特微量としたMI手法を構築し、最適化合物を探査した。

開発したMIのフローチャートをFig. 1に示す。①まず、オープンデータベース等を活用し、登録のある炭化水素の中から、アルカンやシクロアルカンなど複数の分子構造を取得した。分子構造はSMILES等の文字列表記である。②それぞれの分子について長さ、分岐数、サイズなどの特微量を計算した。③油膜の疎密に関する特微量を抽出するため、それぞれの分子について液体構造を作成した。具体的には、SMILESから分子の三次元構造を生成し、シミュレーションセル中に複数の分子をランダム配置した。その後、超高速計算が可能なMatlantis™による分子動力学（MD）シミュレーションを用いて、高圧場で複数分子が凝集した液体バルク構造を得た。その動径分布関数（RDF）の時間平均をモデル式でフィッティングし、油膜の粗密度合いに直結する複数個の特微量元素を抽出した。

以上の分子シミュレーションを用いたデータ生成法により、④分子構造（説明変数X）と油膜の疎密（目的変数Y）との関係性を含む教師データが得られた。これを各種方法により機械学習することで、未知もしくは未経験の化合物について、その油膜の疎密へとアプローチできる予測モデルを構築した。

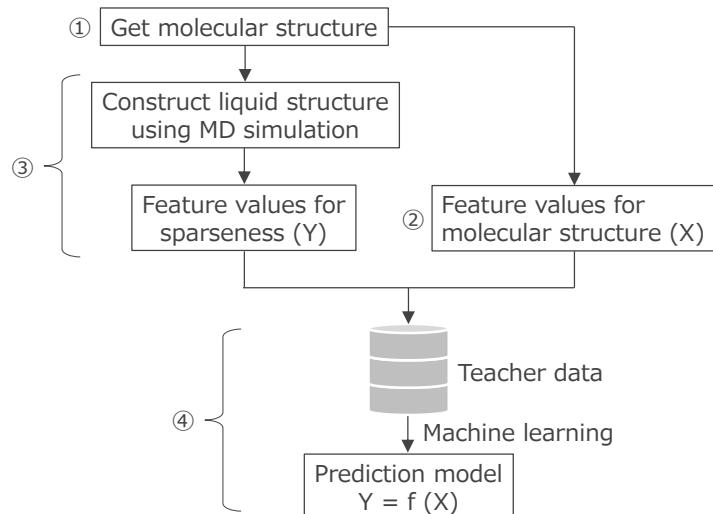


Fig. 1 Flowchart for making prediction model of oil film sparseness.

3. 結果と考察

3.1 モデルの予測精度

Figure 2 には、構築した機械学習モデルの精度について検証した結果を示す。教師データの総数は 1953 個である。全データの内、80%を訓練データ、20%をテストデータとして交差検証した。図の縦軸・横軸ともに RDF から得た同一の疎密度合いを表す特徴量であり、横軸は力場として NNP を用いた MD シミュレーションによる計算値、縦軸は機械学習モデルによる予測値である。対角線上にデータが集合しているほどモデルの精度が高いことを意味する。図より、訓練データとテストデータともに対角線付近に密集していることがわかる。テストデータに対して二乗平均平方根誤差 0.034、決定係数 0.94 の数値を得た。これらのことから、予測精度および汎化性の高い機械学習モデルを構築できた。本モデルを用いることで、未経験の化合物に対する疎密度合いを瞬時に予測することが可能となった。

3.2 油膜の疎密度合い予測と化合物スクリーニング

構築した機械学習モデルを用いて、油膜の疎密を予測した結果が Fig. 3 である。特定範囲の炭素数を有する 26,159 個の炭化水素を対象とした。グラフの縦軸・横軸ともに RDF のグラフから計算された疎密度合いを表す数値であるが、例えばグラフの特定領域における傾きや変曲点など、着目した特徴が異なる。ここでは、横軸を特徴量 A、縦軸を特徴量 B とする。特徴量 A と B とともに、大きいほど油膜が疎な構造になることを意味する。既報⁵⁾で着目したイソパラフィン（疎な油膜を形成し、パラフィンよりも油性剤が早期に吸着する）を基準とすれば、グラフ中に図示した領域が探索範囲となり、依然 10,000 個以上の化合物を含む。さらに詳細な絞り込みには、例えば実際の入手性を考慮する必要がある。入手可能な化合物を絞り込んだ結果が白色の点である。Table 1 には、抽出された化合物のうち特徴量が大きな上位 3 つの化合物について特徴量 A と B の予測値を示す。基準となるイソパラフィンに比べ、これらの化合物は大きな特徴量を有することから、加工対象の表面に対して疎な油膜を形成できる可能性が高い。従って、これらの化合物を塑性加工における潤滑油の基油として用いることによって油性剤の表面吸着を促進し、低摩擦化などの作用を効果的に得ることができる。

4. 結 言

以上、油性剤の吸着促進に資する基油選定のための MI 手法を構築した。油膜の疎密という測定困難な尺度に対して超高速計算を可能とする NNP 技術を適用し、大量のデータ生成と性能予測に基づき、候補化合物を網羅探索した。現在、抽出された候補について実際に潤滑油を調整し、加工性能の評価を行っている。発表当日は、疎密度合いの特徴量化の方法、探索効率化的程度などの詳細を報告する予定である。

文 献

- 1) 小野寺: AI 活用によるトライボ分子シミュレーション技術の革新, トライボロジスト, 67 (2022) 821.
- 2) S. Takamoto, C. Shinagawa, D. Motoki, K. Nakago, W. Li, I. Kurata, T. Watanabe, Y. Yayama, H. Iriguchi, Y. Asano, T. Onodera, T. Ishii, T. Kudo, H. Ono, R. Sawada, R. Ishitani, M. Ong, T. Yamaguchi, T. Kataoka, A. Hayashi, N. Charoenphakdee, T. Ibuka: Towards Universal Neural Network Potential for Material Discovery Applicable to Arbitrary Combination of 45 Elements, *Nat. Comm.*, 13 (2022) 2991.
- 3) Matlantis™ (<https://matlantis.com/>), software as a service style material discovery tool.
- 4) 堀尾・名児耶・小野寺・鷺津: Neural Network Potential を用いた極圧添加剤の表面吸着の分子動力学解析, トライボロジーカンファレンス 2022 秋・福井 予稿集, (2022) 508.
- 5) 山岸・小野寺・置塩・眞名井・柴田・八木下: 塑性加工油における油性剤の吸着特性に与える基油組成の影響, トライボロジーカンファレンス 2022 春・東京 予稿集, (2022) 226.

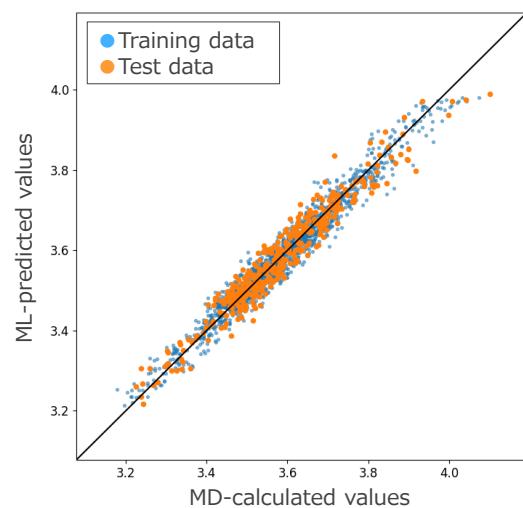


Fig. 2 Validation of sparseness prediction accuracy for the developed machine learning (ML) model.

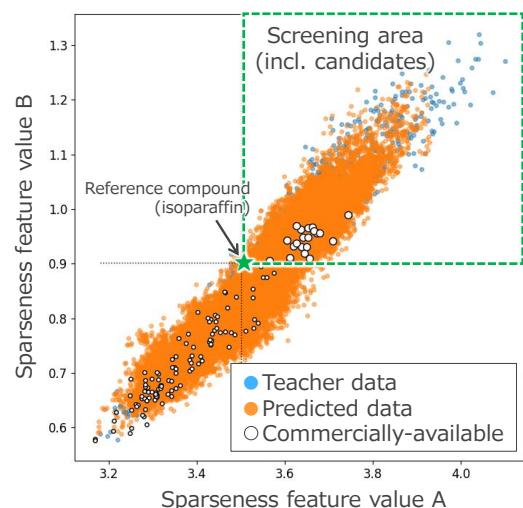


Fig. 3 Sparseness prediction for 26,159 hydrocarbons.

Table 1 Predicted sparseness feature values for several base oil candidates.

Feature values	Candidates for base oil			Reference (isoparaffin)
	(1)	(2)	(3)	
A	3.74	3.70	3.68	3.50
B	0.99	0.94	0.96	0.90