

超高速にトライボロジー現象を解明できる AI 分子シミュレータ および潤滑剤のバーチャルスクリーニング技術

Ultra-accelerated AI atomistic level simulator enabling elucidation of tribological phenomena and virtual screening for lubricants

ENEOS (正) *小野寺 拓 ENEOS (正) 設楽 裕治 ENEOS (正) 柴田 潤一 ENEOS (正) 緒方 墨
Tasuku Onodera, Yuji Shitara, Junichi Shibata, Rui Ogata

ENEOS Corporation

1. はじめに

従来、見えないトライボロジー現象の解明に対し、第一原理計算や古典分子動力学(MD)法などに代表される分子シミュレーション手法が用いられてきた。分子シミュレーションは、これまでよく分かっていなかった、もしくは想像の域にしかなかった現象を「見える化」し、摩擦・摩耗・潤滑等のメカニズム解明に大きな貢献をしてきた¹⁻³⁾。

しかし、第一原理計算は計算負荷が膨大で非平衡構造を求めるには長時間を要する点、古典MD法には材料物性を再現できる力場パラメータが必要である点や化学反応を明に扱えない点など、機械・材料・化学等が複雑に絡むトライボロジーの課題に取り組む上で大きな障害となっていた。特に、材料探索・提案を目的とするマテリアルズ・インフォマティクス(MI)の検討を進める上で次のような課題があった。例えば、MI検討の中で機械学習モデルを構築する場合である。モデル構築には教師データが必要になる。教師データとして実験値を使うこともあるが、分子シミュレーションを用いてバーチャル空間で大量にデータをつくり出す方法もある。ところが、精密な第一原理計算でデータを取得しようとした場合、1つ1つの計算に膨大な時間を要することがMIの大きな課題として顕在化していた。また、古典MDで教師データを生成する場合には、材料系に見合った力場パラメータの作成・検証が必要であり、本計算までの準備に時間を要する。トライボロジ一分野に限らず、産業界に散在する様々な材料系の技術課題に対し分子シミュレーションやMIを適用するにあたり、高速で汎用性に優れた手法が求められていた。

このような課題を解決するため、深層学習に基づくAI分子シミュレータ「MATLANTIS™」⁴⁻⁵⁾が開発された。本シミュレータは、10⁷個オーダーの第一原理計算結果をグラフニューラルネットワークに学習させた機械学習力場⁴⁾に基づいており、次の3つの特徴がある⁵⁾。

- ・汎用性：未知の材料を含む任意の元素の組合せに対応。72個の元素をサポート(2024年2月現在)。
- ・高速：第一原理計算の一種である密度汎関数法では数時間～数ヶ月かった計算が、たったの数秒で完了。
- ・使いやすさ：学習済モデルを用いるため、ユーザによる教師データの準備や学習のプロセスが不要。

本発表では、MATLANTISのこれらの特徴を活かして得た現象解明の成果およびMIによる潤滑油選定の成果を改めて報告し、AIを活用したトライボロジー研究の将来展望を述べる。

2. 現象解明：複雑なトライボロジー現象へのアプローチ

2.1 樹脂表面における添加剤の吸着と摩擦特性との関係

近年、軽量・低騒音などの利点を活かして、しゅう動部品への樹脂材料の適用が進んでいる。しかし、機械強度や耐熱性が十分でないことから、使用条件によっては摩耗・疲労・溶融などの課題を生じる場合がある。潤滑剤を用いることでしゅう動特性の改善が試みられているが、

例えば樹脂に対する添加剤の作用機構は十分に解明されていない。添加剤の機能発現は、第一に材料表面に対する吸着によって起きる。そこでMATLANTISを用いて、樹脂表面に対する添加剤の吸着特性を検討した⁶⁾。従来、吸着をシミュレートする際には表面の吸着サイトや吸着する分子の配向などを適切に(研究者の化学的センスに基づいて)設定する必要があった。MATLANTISの高速性を活かせば、表面と吸着させる分子の構造を与えるだけで、吸着サイトや分子の向きを自動的かつ高速に網羅探索できる。Figure 1(a)は、シミュレーションで得た吸着エネルギーを横軸に、実験で得た摩擦係数の低減率を縦軸にプロットしたグラフである。吸着エネルギーは負に大きいほど強い吸着

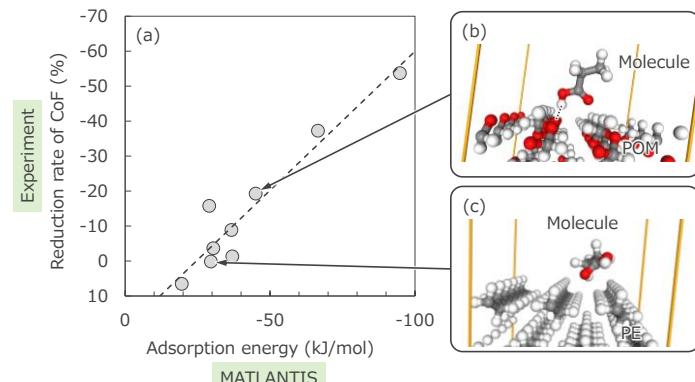


Fig. 1(a) Relationship between adsorption energy and reduction rate of CoF. Adsorption structure for model molecule of oleic acid on (b) POM and (c) PE surfaces.

状態にあることを意味する。一例として、図中(b)はポリオキシメチレン (polyoxymethylene, POM) および(c)ポリエチレン (polyethylene, PE) の表面に対する、オレイン酸を想定したモデル分子の吸着構造である。ここでモデル分子とは、オレイン酸の炭化水素鎖を短くした構造の分子である。極性が大きな POM 上ではカルボキシル基が発端となって強く吸着したのに対し、極性が小さな PE 上では分散力などに基づく弱い吸着状態となった。さらに(a)より、吸着エネルギーと摩擦係数の低減率とは正の相関関係にあり、吸着エネルギーが負に大きいほど低摩擦状態となることが理解できる。従って、本結果は MATLANTIS で吸着エネルギーを計算するだけで、樹脂表面で有効に機能する添加剤を迅速に選定できる可能性をも示している。

2.2 次世代冷媒の表面吸着・反応メカニズムの解明

家庭用ルームエアコンなど空調機器の圧縮機の動部には、冷凍機油と冷媒が共存している。そのため、冷凍機油だけでなく冷媒もしゅう動特性に関与する。しゅう動特性の改善や新たに設計する際には、潤滑に与える冷媒の影響やメカニズムの把握が必要である。地球温暖化係数の低い次世代冷媒として着目されるハイドロフルオロオレフィン (hydrofluoroolefin, HFO) 冷媒を対象に、吸着・反応メカニズムを解析した⁷⁾。2.1 節で述べた配置の効率的探索法とモンテカルロ法を駆使し、複数分子が関与する最もあり得る(エネルギー的に最安定な)吸着構造を得た。具体的に、Fig. 2(a)は HFO の一種である 2,3,3,3-テトラフルオロオロプロパン (R1234yf) 分子が複数吸着した鉄表面である。多くの分子において、分子中の C=C 二重結合が鉄原子と直接結合をつくる様子が観察された。これを初期構造として、MATLANTIS による MD シミュレーションを行った結果、Fig. 2(b)に示す通り R1234yf 分子中のフッ素原子が逐次的に解離し、鉄表面の一部がフッ化される現象が明らかになった。実際、しゅう動面の高度化学分析においてもフッ化鉄が確認されており、実験とシミュレーションとは一致した。従来の第一原理計算では、複数分子の時間ダイナミクスはおろか複数分子の吸着構造さえも計算することは困難であり、MATLANTIS を用いることで R1234yf 分子の吸着から分解反応に至る一連のメカニズムを解明することができた。

2.3 添加剤の油中拡散・吸着ダイナミクス

実際には 2.1 節の添加剤や 2.2 節の冷媒は基油中に存在し、これらは基油分子と相互作用しながら、やがてしゅう動面に到達・吸着する。MATLANTIS を用いれば、例えば金属材料と油相との界面の力場パラメータの有無を全く気にすることなく、油相から金属表面への添加剤の拡散・吸着ダイナミクスを検討できる。Figure 3 は、分岐構造を有するイソパラフィン油における 1-ドデcanoール添加剤の挙動を検討した結果である⁸⁻⁹⁾。モデルの上側と下側にはアルミニウムが配置してある。1-ドデcanoールは油中を拡散し、やがて分子中の水酸基を起点にアルミニウム表面へと吸着した。一方、油の分子を直鎖構造のパラフィンに変更しても同様の現象が観察されたが、1-ドデcanoールがアルミニウム表面に達する時間が全く異なった。具体的に、1-ドデcanoール添加剤の吸着時間は、イソパラフィン油中に比してパラフィン油中で約 10 倍も長かった。詳細な解析を行った結果、添加剤の吸着時間はアルミニウム表面に形成される油膜の疎密によって決定されることがわかった。つまり、疎な油膜を形成するイソパラフィン油中では油膜によって添加剤の運動が妨害されにくく素早く吸着するのに対し、密な油膜を形成するパラフィン油中では油膜が恰もバリア層として機能するため添加剤の吸着が妨害される。基油の分子構造によって添加剤の効きが変わる現象は、金属材料向けの塑性加工油において知られていた。MATLANTIS を用いることで、長年よくわかつていなかった加工油の作用メカニズムを明らかにした。

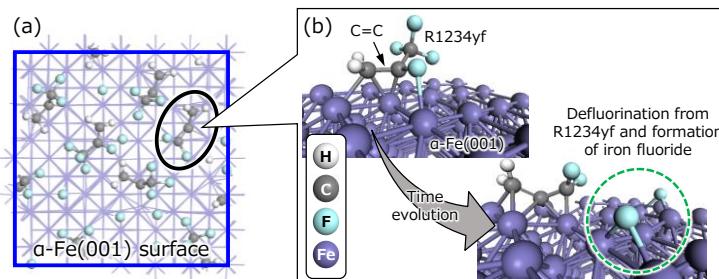


Fig. 2(a) The bird's eye view of MD-final structure for R1234yf molecule-adsorbed α -Fe(001) surface. Snapshots for one of R1234yf molecules adsorbed on α -Fe(001) surface at the simulation time of (a) 0, (b) 14, (c) 60 and (d) 100 ps. Reproduced with permission from [7]. Copyright (2023) Japanese Society of Tribologists.

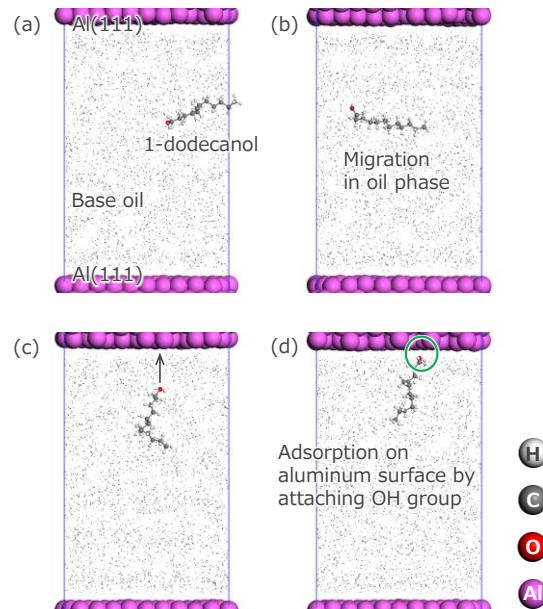


Fig. 3 Dynamic behavior of 1-dodecanoil in isoparaffin oil phase at the simulation time of (a) 0.00, 0.08, 0.19, and 0.21 ns. Reproduced with permission from [9]. Copyright (2022) Japanese Society of Tribologists.

3. 材料選定：MIによる金属加工油向け基油のバーチャルスクリーニング

2.3節で解明したメカニズムに基づけば、加工油の基油として疎な油膜を形成する化合物をうまく選ぶことで添加剤をスムーズに吸着させ、低摩擦等の効果を引き出すことができる。このアイディアは加工油向け基油の選定指針になり得る。そこで様々な化合物の油膜構造を高速かつ大量に生成し、それを機械学習モデルに学ばせ、油膜が疎な構造の基油をバーチャルスクリーニングするMIの検討へとMATLANTISの活用範囲を拡大させた¹⁰⁻¹¹⁾。

Figure 4は構築したMIのフローチャートである。①オープンデータベースを活用し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。②それぞれの分子について長さ、分岐数、サイズなどの特徴量を計算した。③油膜の疎密に関する特徴量を抽出するため、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、MATLANTISを用いて高圧場での液体バルク構造を得た。動径分布関数（radial distribution function, RDF）の時間平均をモデル式でフィッティングし、油膜の粗密構造に対応する特徴量を抽出した。以上の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）とが対応する教師データを得た。これを機械学習モデルに学ばせることで、未経験化合物の油膜の疎密を予測できるようになった。

構築した機械学習モデルを用いて、26,159化合物がつくる油膜の疎密を予測した結果がFig. 5である。グラフの縦軸・横軸ともにRDFから計算された油膜の疎密を表す特徴量である。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ともに、数値が大きいほど油膜が疎な構造になることを意味する。2.3節で着目したイソパラフィンを基準とすれば、グラフ中に図示した領域が探索範囲となり、一万個以上の化合物を含む。そこで、実際の入手性を考慮してさらなる絞り込みを行った。その結果が白色で示した点であり、約20個の化合物を実験研究者に提案した。これらの化合物を加工油の基油として用いることで添加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。現在、MIによる基油設計法のコンセプト実証に向か、モデル実験による検証フェーズに入った。

4. おわりに

以上、MATLANTISを用いた吸着・反応現象のシミュレーション事例に加えて、基油の構造データを大量生成することによるバーチャルスクリーニングの事例を述べた。見えないトライボロジー現象の見える化やメカニズム解明といった従来の分子シミュレーションの使い方から、データドリブンな検討のツールへと発展させ、企業の研究開発現場において極めて有益となる具体的な材料の提案にまで至った。これまで計算コストが最大の関心事となっていた膨大な化合物群に対する網羅的なトライボロジー材料の探索が、超高速計算を可能とするMATLANTISを用いることによりはじめて実現された。サイバー空間で行われるMIの主目的である迅速かつ正確な材料提案が、誰でも手の届く一般的な存在になり得ることを意味している。今後、これまでトライボロジストが着目してこなかった範囲にある材料にも、MATLANTISが暗闇に輝く一筋の光を当て、具体的な材料に至る道標をつくり、革新的な新材料の発見につながることを期待している。さらには、近年の技術進展が著しい大規模言語モデルとMATLANTISとを協調させることにより、誰でも簡単にトライボロジー現象の解明や材料探索ができる世界をつくっていく。

文献

- Y. Ootani, J. Xu, K. Adachi, M. Kubo, First-Principles Molecular Dynamics Study of Silicon-Based Ceramics: Different Tribocatalytic Reaction Mechanisms during the Running-in Period of Silicon Nitride and Silicon Carbide, *J. Phys. Chem. C*, 124 (2020) 20079-20089.
- K. Nishikawa, H. Akiyama, K. Yagishita, H. Washizu, Molecular Dynamics Analysis of Adsorption Process of Anti-coppercorrosion Additives to the Copper Surface, *J. Tribology*, 21 (2019) 63-81.
- T. Onodera, H. Takahashi, S. Nomura, First-principles Molecular Dynamics Investigation of Ceria/Silica Sliding Interface Toward Functional Materials Design for Chemical Mechanical Polishing Process, *Appl. Surf. Sci.*, 530 (2020) 147259.

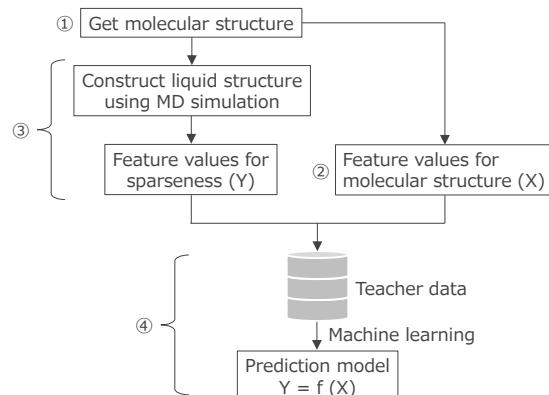


Fig. 4 Flowchart for making prediction model of oil film sparseness. Reproduced with permission from [10]. Copyright (2023) Japanese Society of Tribologists.

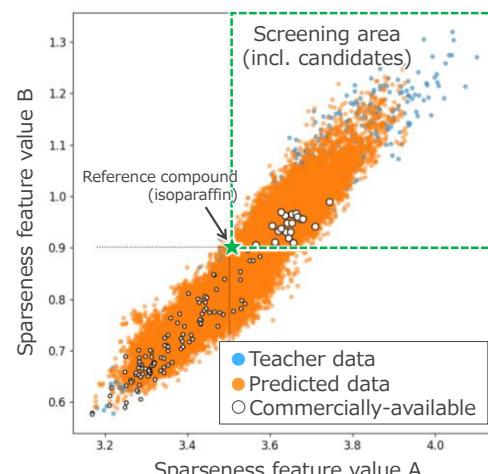


Fig. 5 Sparseness prediction for 26,159 compounds. Reproduced with permission from [10]. Copyright (2023) Japanese Society of Tribologists.

- 4) 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.
- 5) MatlantisTM (<https://matlantis.com/>), software as a service style material discovery tool.
- 6) R. Ogata, Y. Tanaka, A. Nagoya, T. Onodera, Structures of Lubricant Additives and Their Adsorption Characteristics That Improve the Frictional Properties of Polymers, ITC Fukuoka, 29-I-11 (2023).
- 7) 設楽・小野寺・森: しゅう動特性に及ぼすHFO冷媒の影響(第2報)—各種冷媒の鉄新生面への吸着特性と分子シミュレーション解析—, トライボロジスト, 68 (2023) 280-291.
- 8) T. Hiraoka, T. Onodera, J. Shibata, T. Oshio, T. Wakabayashi, J. Yamagishi, R. Miura, Influence of Molecule Structures Composing Base Oils on Adsorption Characteristics of Oiliness Additives in Metal Forming Fluids, ITC2023 Fukuoka, 29-D-06 (2023).
- 9) 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.
- 10) 小野寺・山岸・柴田・置塩: 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, トライボロジー会議2023春・東京, 予稿集, B28 (2023).
- 11) T. Onodera, J. Yamagishi, J. Shibata, T. Oshio, Designing Metal Forming Fluids by the Fast and Universal Atomistic Level Simulator “MATLANTIS”, ITC2023 Fukuoka, 27-PO-29 (2023).