

2025年度 JPECフォーラム

石油系残油留分の
高沸点成分外挿に関する研究開発

2025年5月13日

静岡大学 工学部 化学バイオ工学科

講師 村上裕哉

murakami.yuhya@cii.shizuoka.ac.jp

発表の概要

目的: 高沸点成分の構造推定・濃度推算

● 研究背景 石油中の高沸点成分予測の重要性

検討1 石油中の存在の有無を判定するモデルの作成

→ JACDコア数を70から863(最大環数14)に拡張

検討2 高沸点領域内の成分存在確率・濃度の予測

→ 外挿範囲(800℃以上)の成分の濃度推算を実現

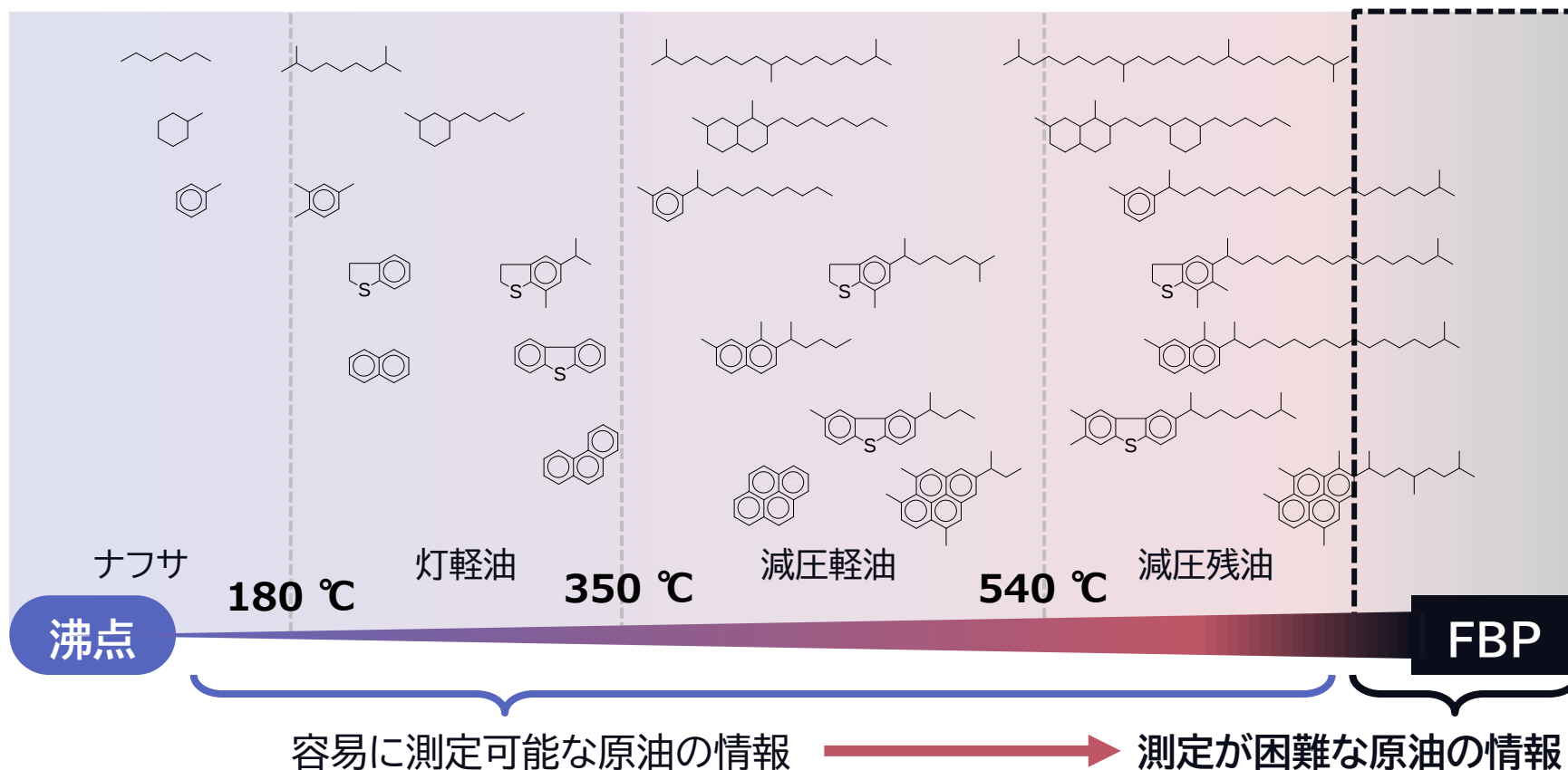
検討3 測定不可能領域の存在成分の構造推定・濃度推算

→ 高沸点(850℃以上)成分の構造・含有確率・濃度を推算

総括

研究背景

最終目的 リアルタイム＆正確な原油の性状推定でCDU装置の最適運転を実現



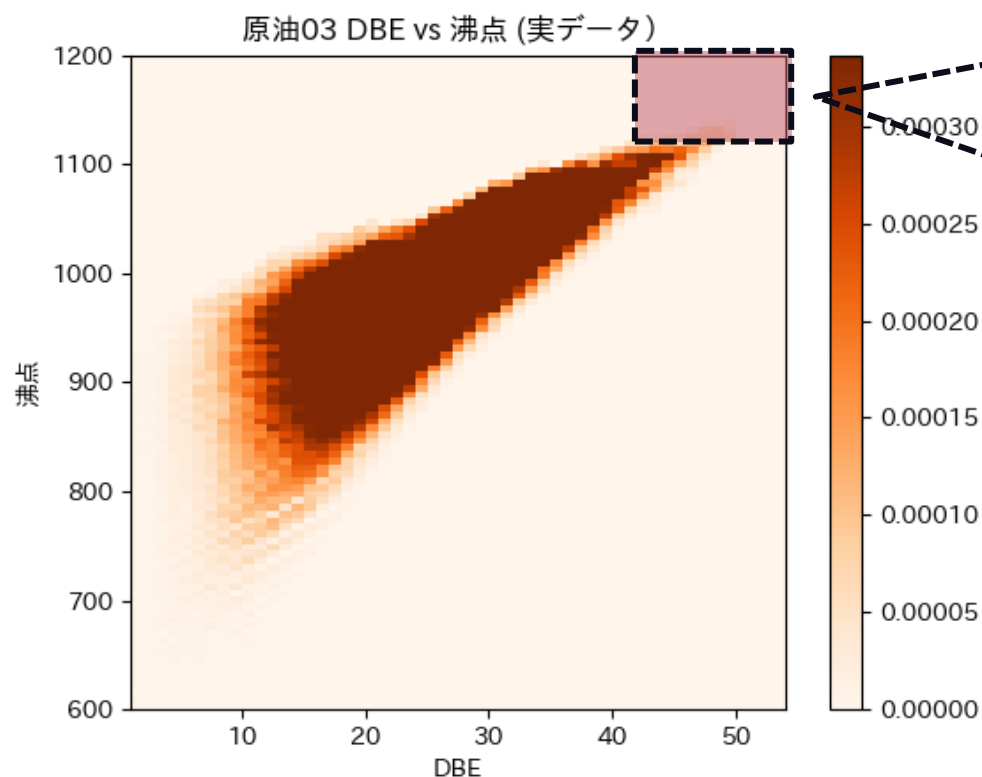
2024年度の目標

測定困難な成分情報を入手する機械学習手法の検討

研究背景

DBEと沸点の濃度分布

原油中の測定成分(成分数約22万)



対象サンプル:

中東原油 API26の

AR留分(360℃~FBP)

推定範囲

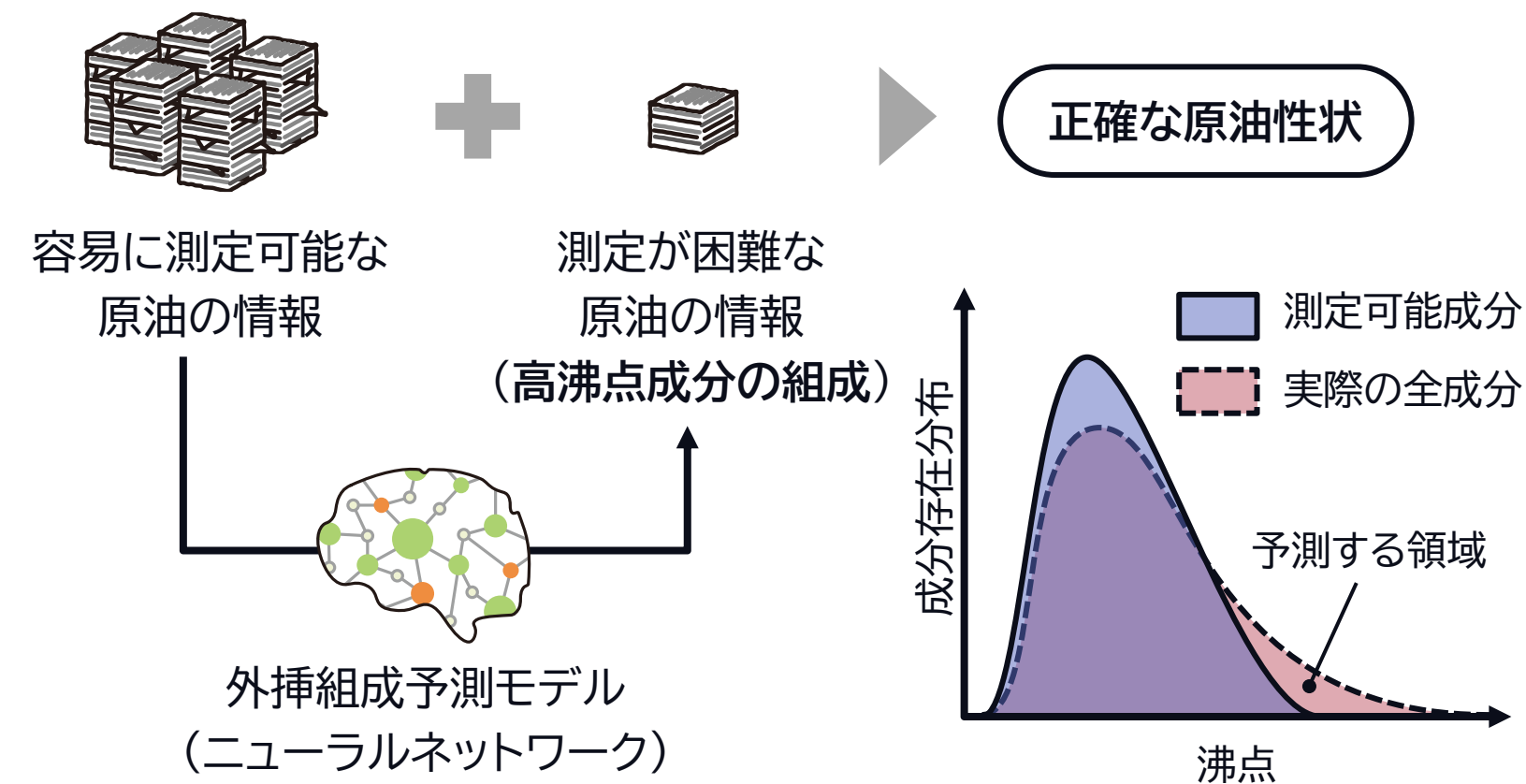
DBE40以上

沸点1100K以上を推定

2024年度の目標

測定困難な成分情報を入手する機械学習手法の検討

研究背景



研究目的

低沸点成分の組成情報(測定可)から高沸点成分の組成情報(測定不可)を
外挿予測する機械学習モデルの開発

発表の概要

目的: 高沸点成分の構造推定・濃度推算

研究背景 石油中の高沸点成分予測の重要性

検討1 石油中の存在の有無を判定するモデルの作成

→ JACDコア数を70から863(最大環数14)に拡張

検討2 高沸点領域内の成分存在確率・濃度の予測

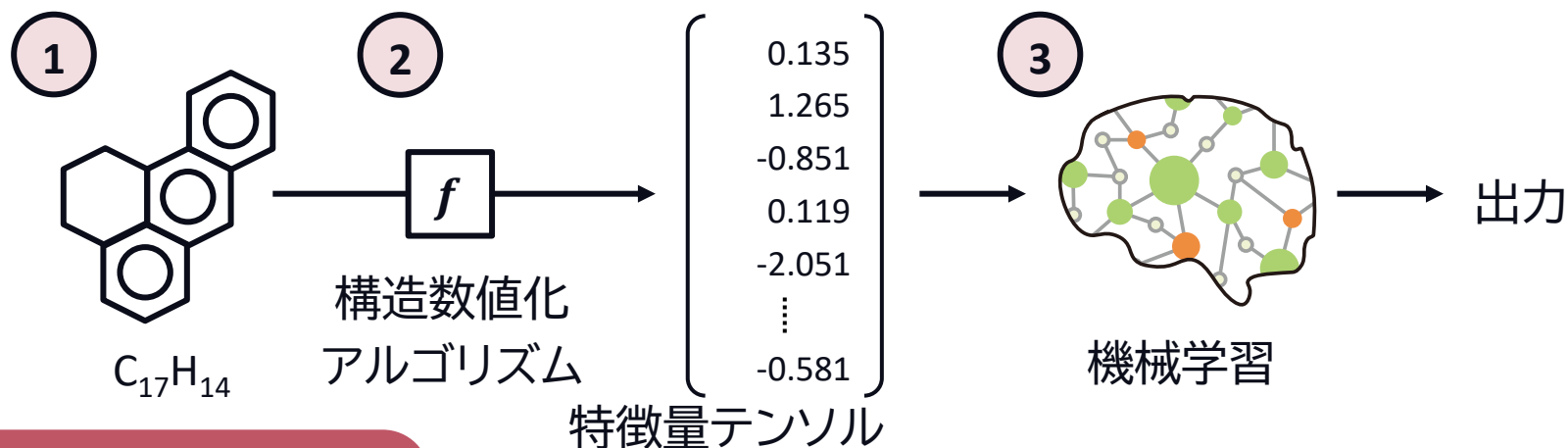
→ 外挿範囲(800℃以上)の成分の濃度推算を実現

検討3 測定不可能領域の存在成分の構造推定・濃度推算

→ 高沸点(850℃以上)成分の構造・含有確率・濃度を推算

総括

分子構造の表現方法 | 課題



各ステップでの課題

① FT-ICR MS*での測定

* Fourier transform ion cyclotron resonance mass spectrometry

フーリエ変換イオンサイクロトロン共鳴質量分析計

一部構造異性体の区別が困難

② 巨大分子(炭素数50以上)の数値化

既存の手法(フィンガープリント)の大部分が低分子を対象に開発

③ 外挿範囲の情報の予測

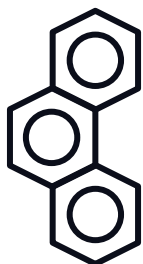
未知の範囲の分子構造を予測する手法の開発



分子構造の表現方法 | JACD*

*Juxtaposed Attributes for Chemical-Structure Descriptorの略 JPECが開発した化学構造式

主要骨格の化学式毎にIDの割り当て



$C_{14}H_{10}$



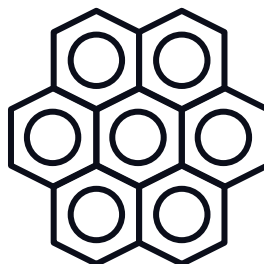
Core 005



$C_{16}H_{10}$



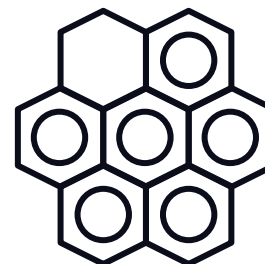
Core 007



$C_{24}H_{12}$



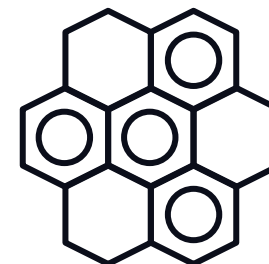
Core 016



$C_{24}H_{14}$



Core 051



$C_{24}H_{18}$



Core 055

側鎖や非炭素・非水素原子の追加表現

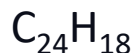
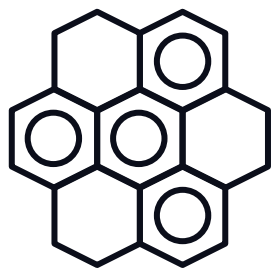
Core 005 + Core 016 + Side 015 + S 03 + ... >> JACD AAAABBBBCCCC...

Core 051 + Core 055 + Side 006 + N 02 + ... >> JACD XXXXYYYYZZZZ...

JACDにより石油に含まれる数十万成分の数値化に成功

→ 現状では分子構造の外挿(拡張)はできない

分子構造の表現方法 | 拡張JACD



コア構造に人為的なIDではなく構造に基づいた数値を割り当てたい
→ 1つの構造異性体を代表として分子構造に基づく表現に変換

部分構造を数値化することで拡張性のある表現に取得



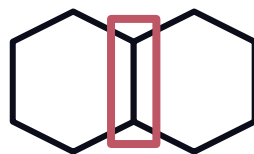
不飽和環
UR



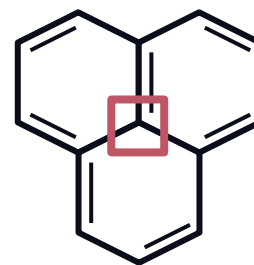
飽和環
SR



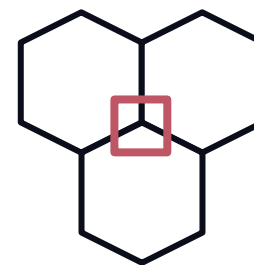
不飽和結合
UB



飽和結合※1
SB



不飽和中心
UC



飽和中心※2
SC

構造表現→化学式
の変換が容易

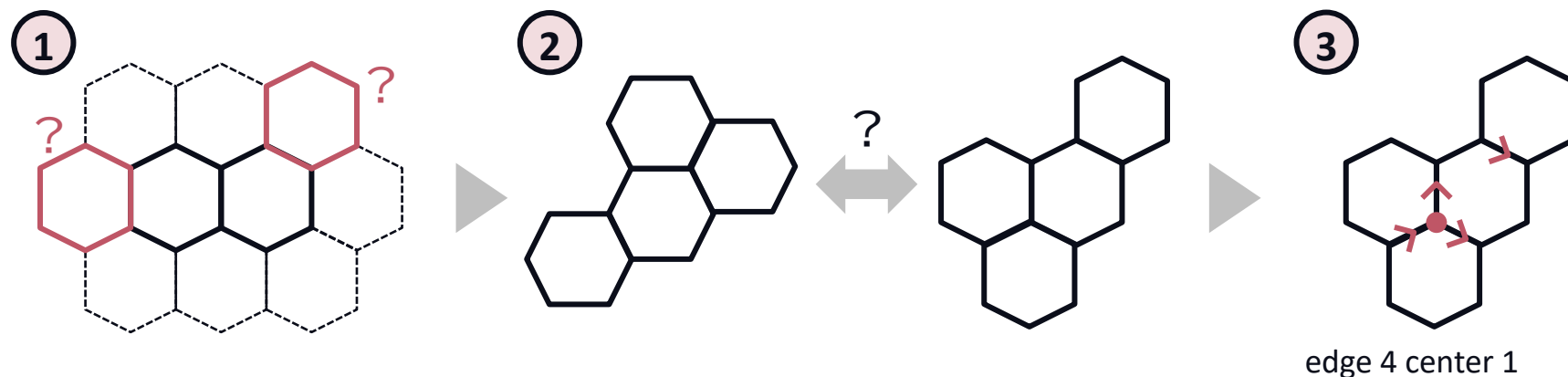
$$\text{炭素原子数} = 6 \times (\text{UR} + \text{SR}) - 2 \times (\text{UB} + \text{SB}) + \text{UC} + \text{SC}$$

$$\text{水素原子数} = 6 \times \text{UR} + 12 \times \text{SR} - 4 \times \text{UB} - 6 \times \text{SB} + 3 \times \text{UC} + 4 \times \text{SC}$$

※1 飽和環と不飽和環の結合を含む

※2 少なくとも飽和環1つに囲まれた中心炭素

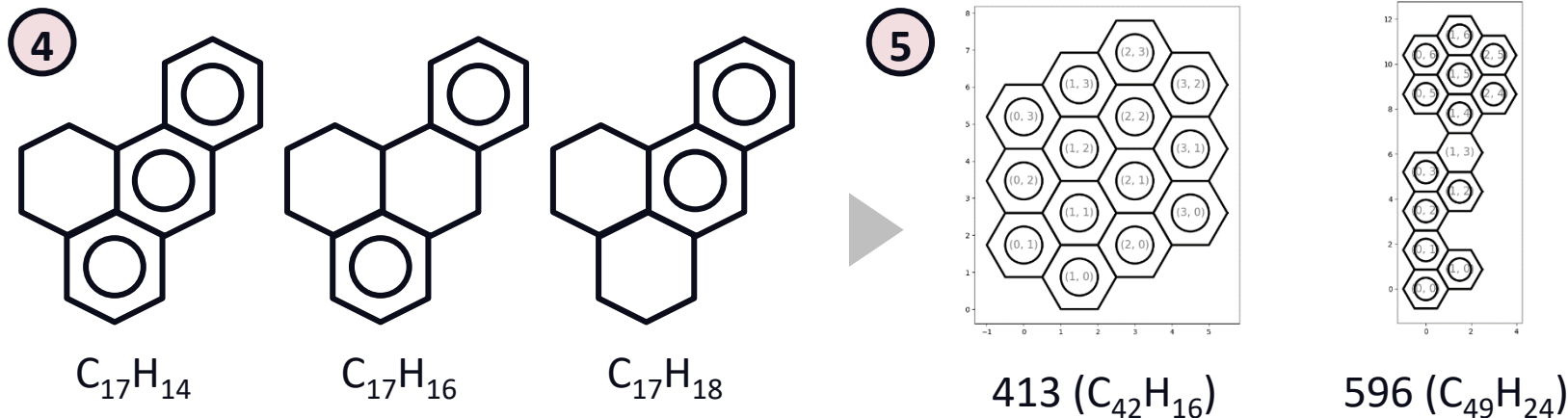
分子構造の表現方法 | 拡張JACD



- ① 連結した飽和多環構造を網羅的に自動生成
- ② グラフ同型判定の考え方を利用して重複する構造を削除
- ③ 部分構造表現に変換し重複しない構造のみを抽出
- ④ 生成した構造に関して飽和環を芳香環に1ずつ変換し分子式を計算
- ⑤ 分子式の重複・化学的に不安定な構造を削除しJACDを付与

環数が少ない構造から網羅的にJACDを生成するアルゴリズムが完成

分子構造の表現方法 | 拡張JACD

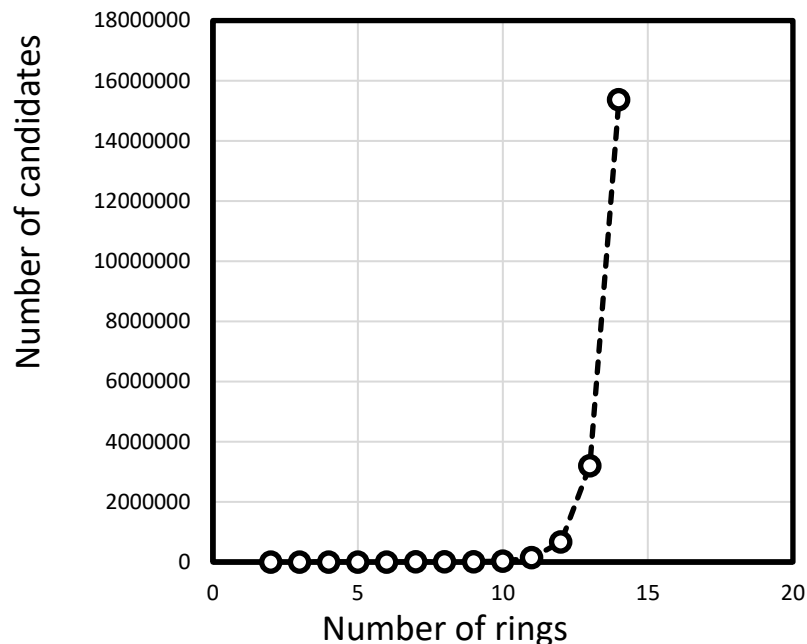


- ① 連結した飽和多環構造を網羅的に自動生成
- ② グラフ同型判定の考え方を利用して重複する構造を削除
- ③ 部分構造表現に変換し重複しない構造のみを抽出
- ④ 生成した構造に関して飽和環を芳香環に1ずつ変換し分子式を計算
- ⑤ 分子式の重複・化学的に不安定な構造を削除しJACDを付与

網羅的にJACDを生成し 863 のコア構造(最大環数14)へ拡張

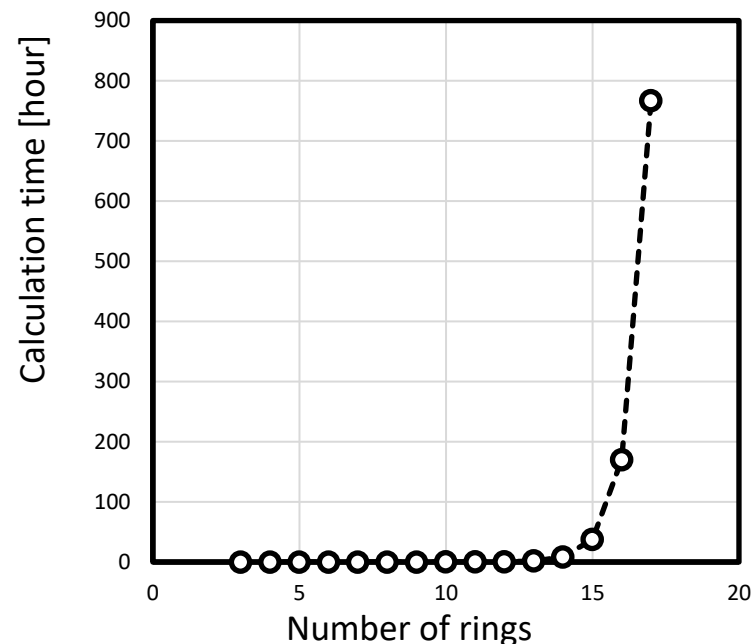
分子構造の表現方法 | 更なる拡張への展望

環数とJACD付与候補の化合物数



14環構造で候補が1500万分子以上

環数とJACD付与にかかる計算時間



15環構造以上へのJACD付与は
現状のアルゴリズムで1日以上

これ以上の多環構造へのJACD付与には新たな(確率的)手法が必須

発表の概要

目的: 高沸点成分の構造推定・濃度推算

研究背景 石油中の高沸点成分予測の重要性

検討1 石油中の存在の有無を判定するモデルの作成

→ JACDコア数を70から863(最大環数14)に拡張

検討2 高沸点領域内の成分存在確率・濃度の予測

→ 外挿範囲(800℃以上)の成分の濃度推算を実現

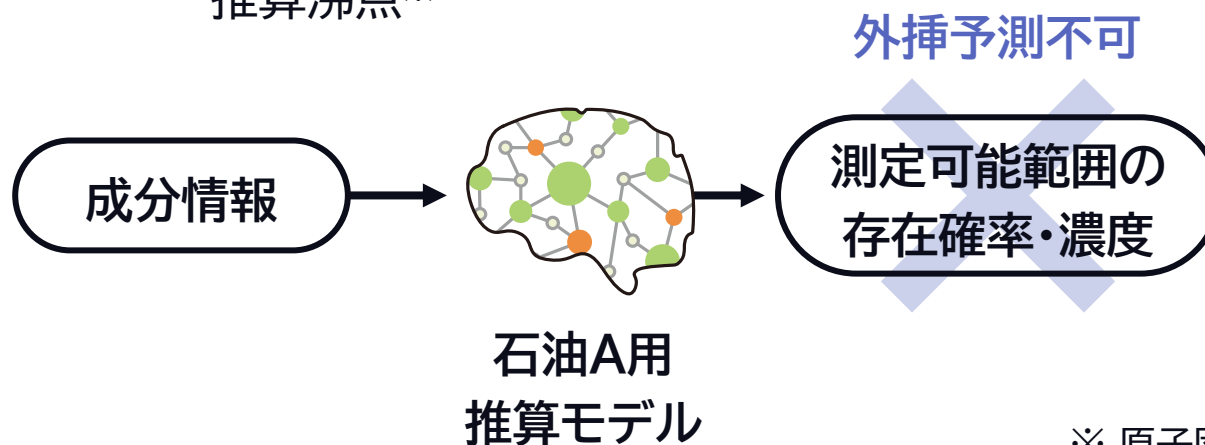
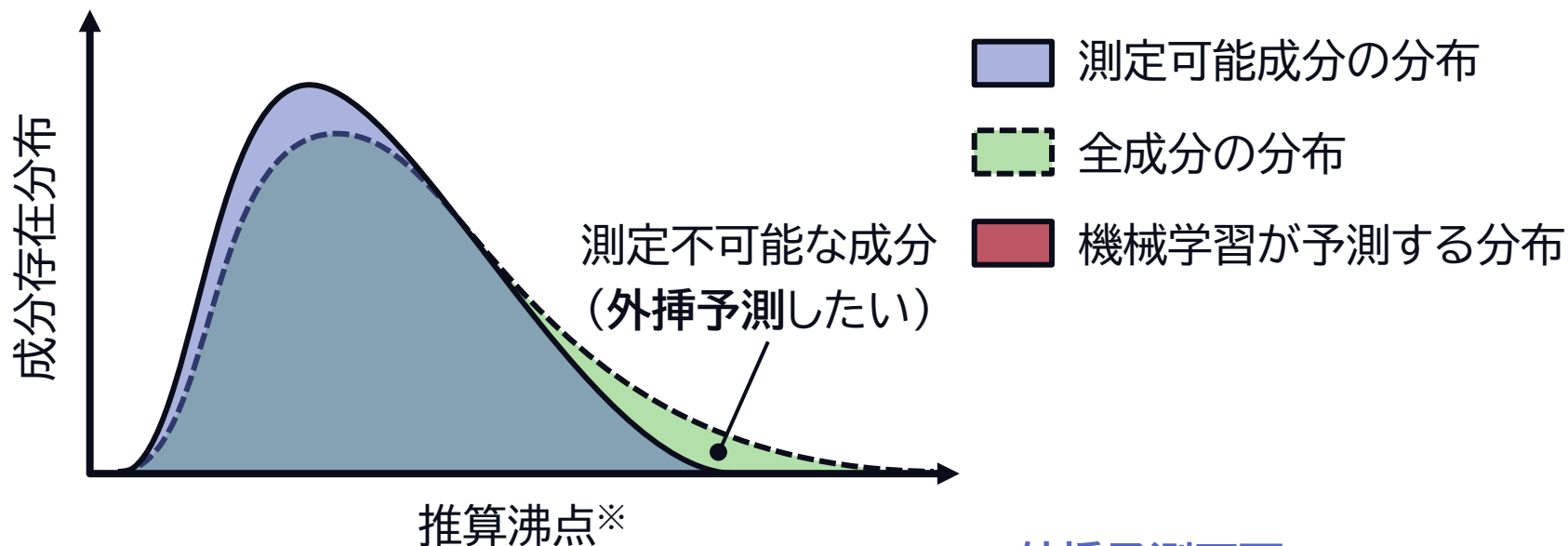
検討3 測定不可能領域の存在成分の構造推定・濃度推算

→ 高沸点(850℃以上)成分の構造・含有確率・濃度を推算

総括

モデルへの温度外挿性の付与

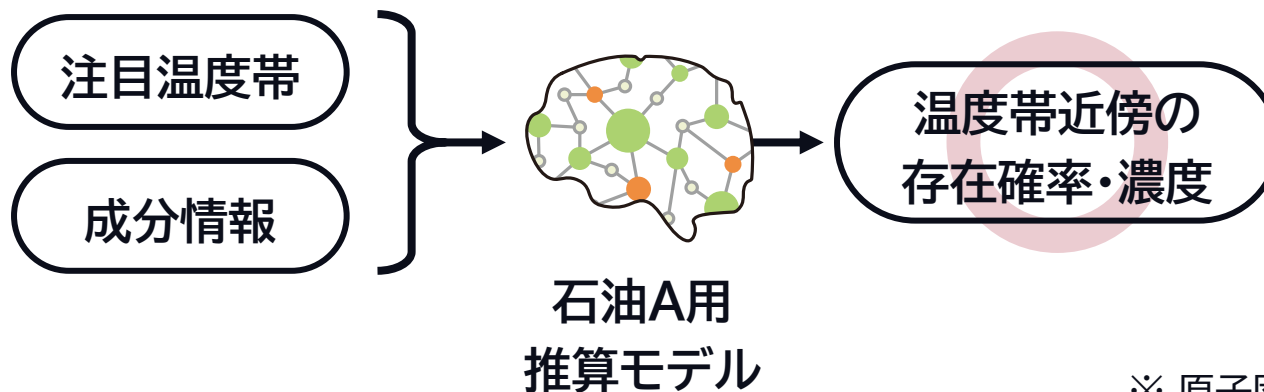
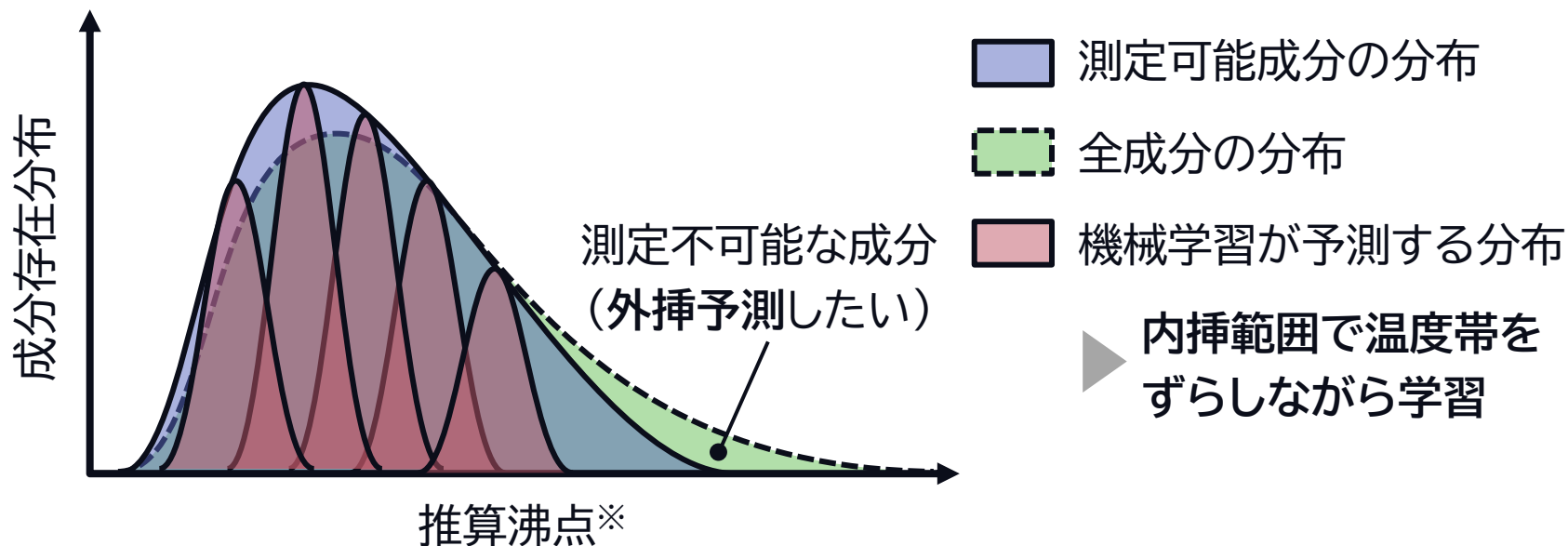
石油Aの推算沸点の分布のイメージ



※ 原子団寄与法で推算

モデルへの温度外挿性の付与

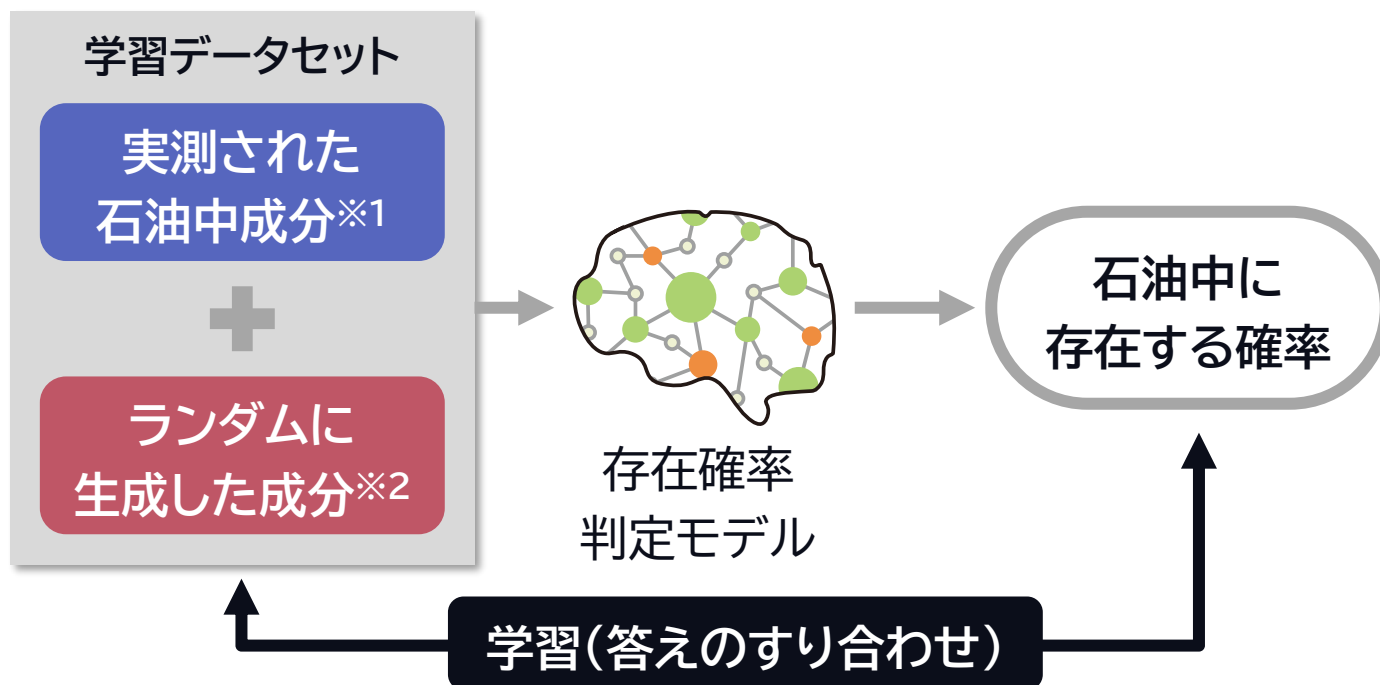
石油Aの推算沸点の分布のイメージ



※ 原子団寄与法で推算

モデル学習の方法

STEP1: 測定範囲内で存在しない物質を混ぜて石油中の存在確率を学習



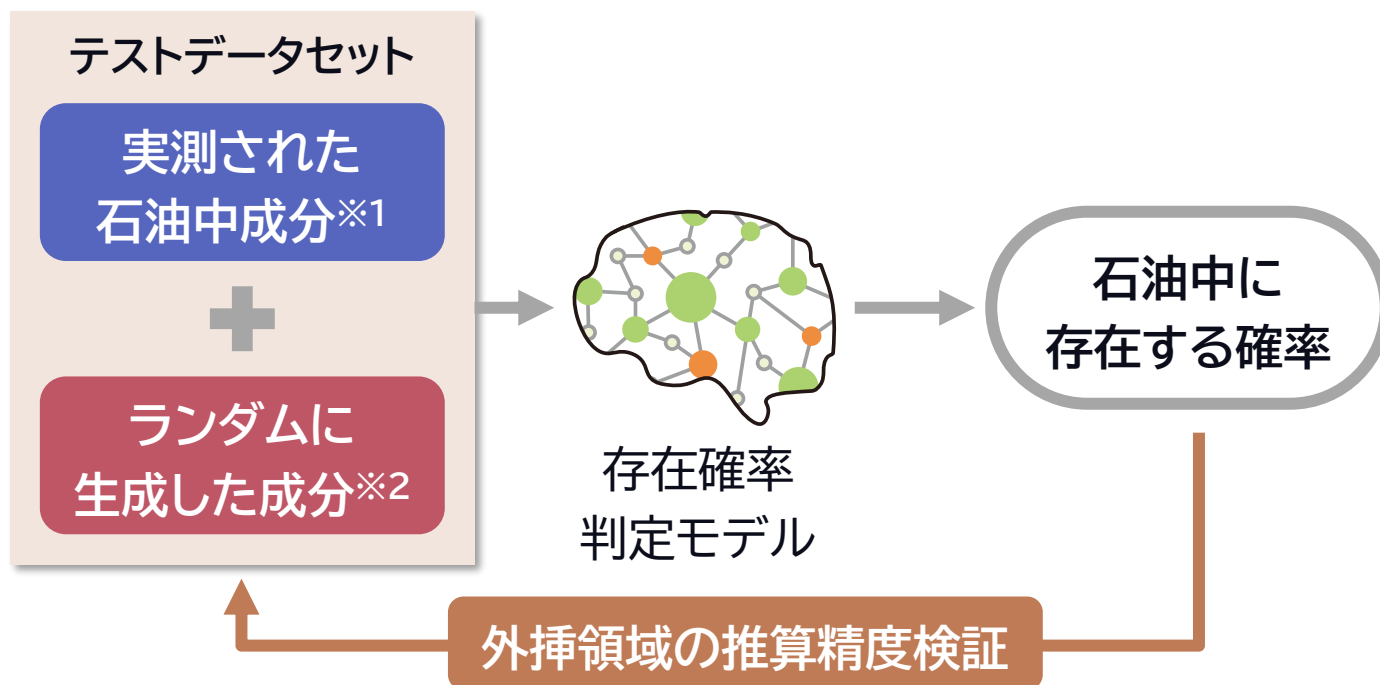
推算沸点800℃以下の成分を利用してモデルを学習

※1 約20万成分

※2 拡張JACDを利用して生成した約5万成分

モデル学習の方法

STEP2: 測定範囲内の低沸点成分で学習したモデルを高沸点成分で検証



推算沸点800℃以上の成分を利用してモデルの外挿性を評価

※1 約1万成分

※2 拡張JACDを利用して生成した約9万成分

外挿範囲存在成分の存在確率予測

外挿範囲データ(沸点800℃以上)の成分の予測精度検証結果

Oil A	存在	非存在
正解	98.84 %	99.88 %
数	15,902	88,848

ほとんどのケースで
正解率も99%以上を達成

非存在成分のうち
「存在」と予測された成分は
測定範囲外の成分の可能性あり

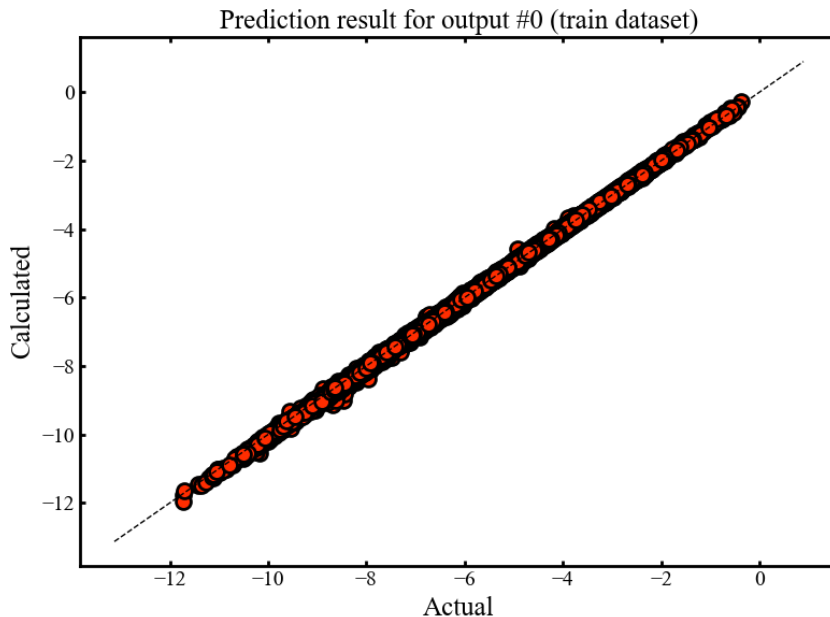
Oil B	存在	非存在
正解	95.55 %	99.90 %
数	4,963	82,959

Oil C	存在	非存在
正解	100.0 %	99.97 %
数	693	89,720

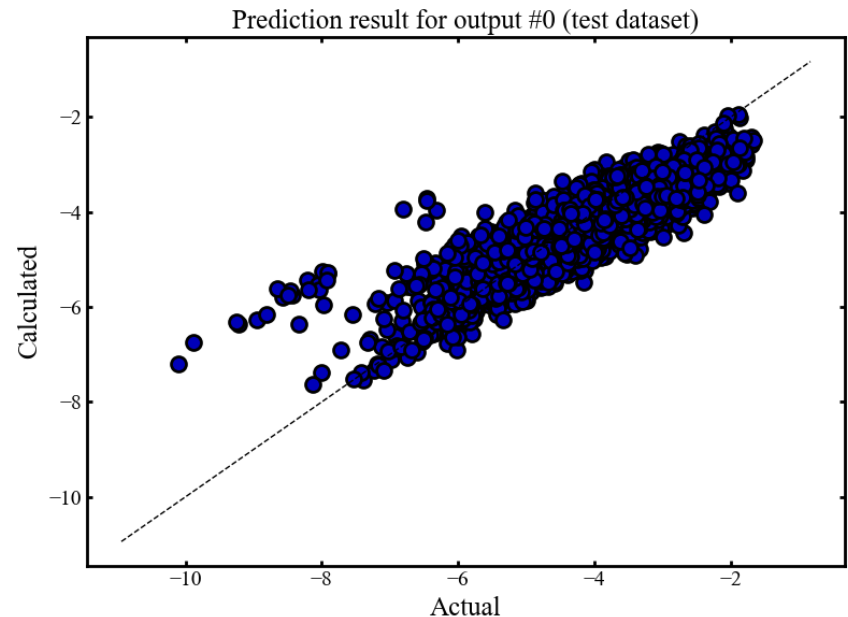
外挿範囲存在成分の存在濃度予測

存在確率と同様の手法で存在モル濃度を予測するモデルを作成
→ Oil Aについて外挿範囲で精度検証

低沸点成分の予測結果(学習データ)



高沸点成分の予測結果(未学習データ)



低沸点成分で作成したモデルを高沸点成分の外挿予測に利用可能

発表の概要

目的: 高沸点成分の構造推定・濃度推算

研究背景 石油中の高沸点成分予測の重要性

検討1 石油中の存在の有無を判定するモデルの作成

→ JACDコア数を70から863(最大環数14)に拡張

検討2 高沸点領域内の成分存在確率・濃度の予測

→ 外挿範囲(800℃以上)の成分の濃度推算を実現

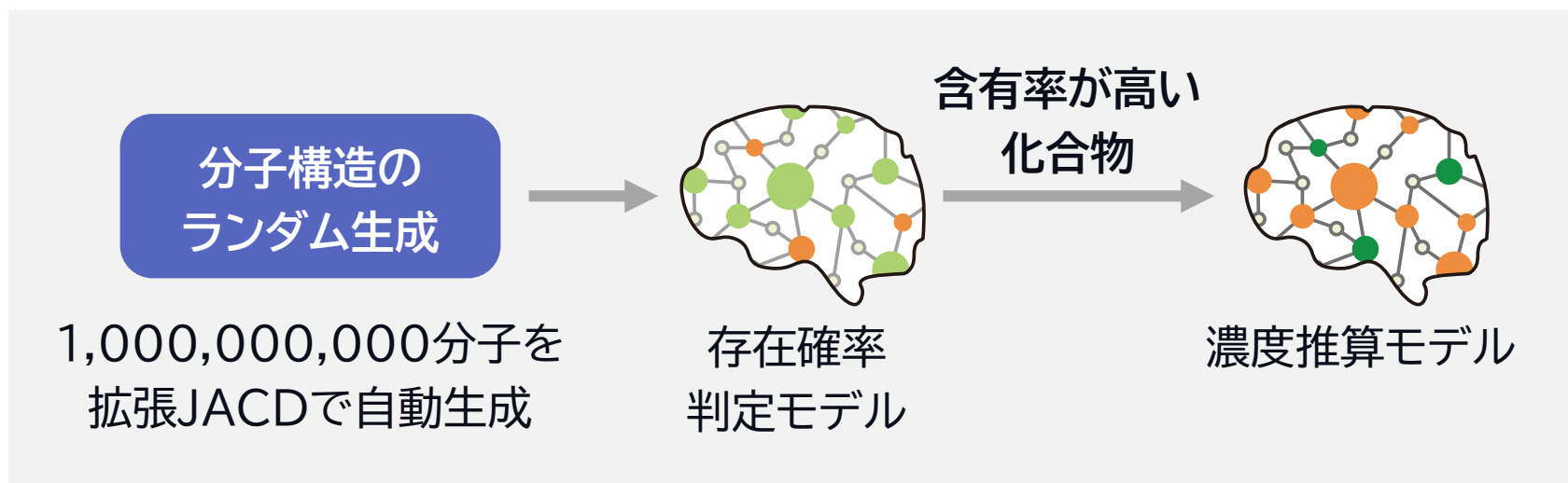
検討3 測定不可能領域の存在成分の構造推定・濃度推算

→ 高沸点(850℃以上)成分の構造・含有確率・濃度を推算

総括

外挿領域に存在する分子構造の予測

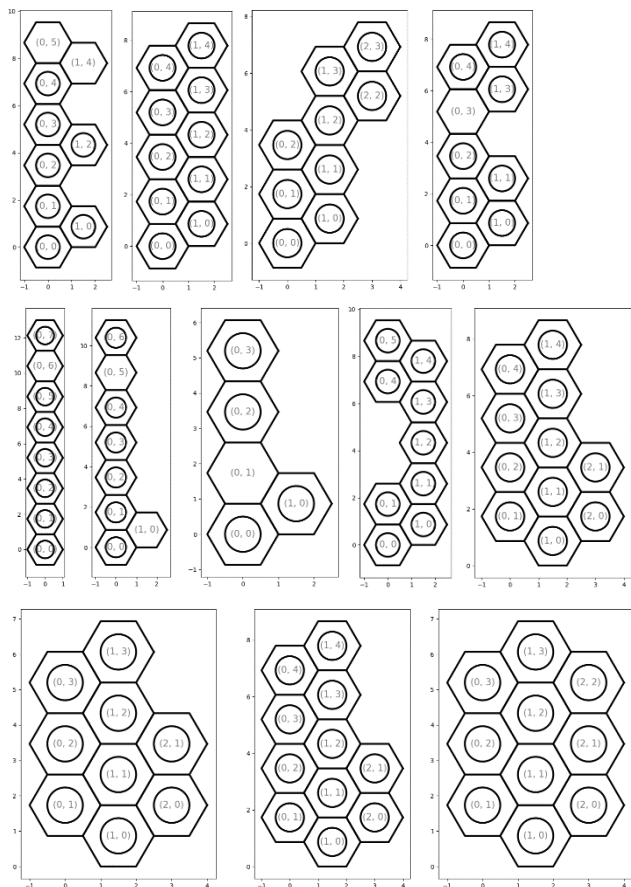
分子構造予測の流れ



- ① 10億の多環化合物を拡張JACDを利用することでランダム生成
- ② 作成した存在確率判定モデルで沸点850℃以上の領域に含まれる分子を特定
- ③ 850℃以上の領域に含まれている分子の濃度を濃度推算モデルで推算

5万 ~ 100万分子に1分子ほど高沸点領域の分子を発見

Oil Aに高濃度で含まれるコア



石油中の測定成分の平均

Cの数	71.0	Cの数	30.8
Hの数	52.3	Hの数	45.9
Sの数	2.81	Sの数	0.09
Oの数	0.00	Oの数	0.02
Nの数	0.06	Nの数	0.68
分子量	995	分子量	440
DBE	45.9	DBE	8.9
推算沸点	853.7 °C	推算沸点	779.0 °C

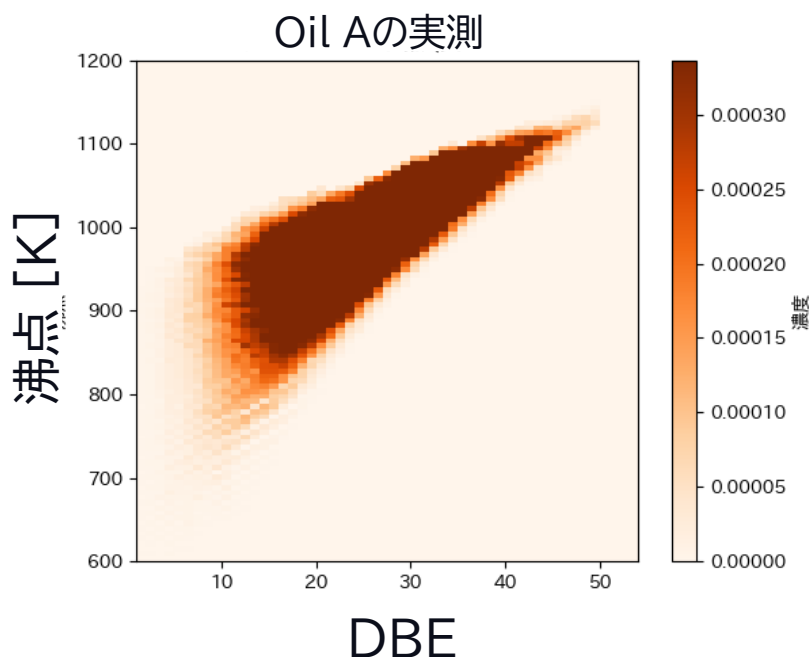
- ✓ 密に縮合した多数の芳香環コアが多い
→ DBEの値が顕著に高い
- ✓ 硫黄の含有量が多い

定性的な妥当性◎

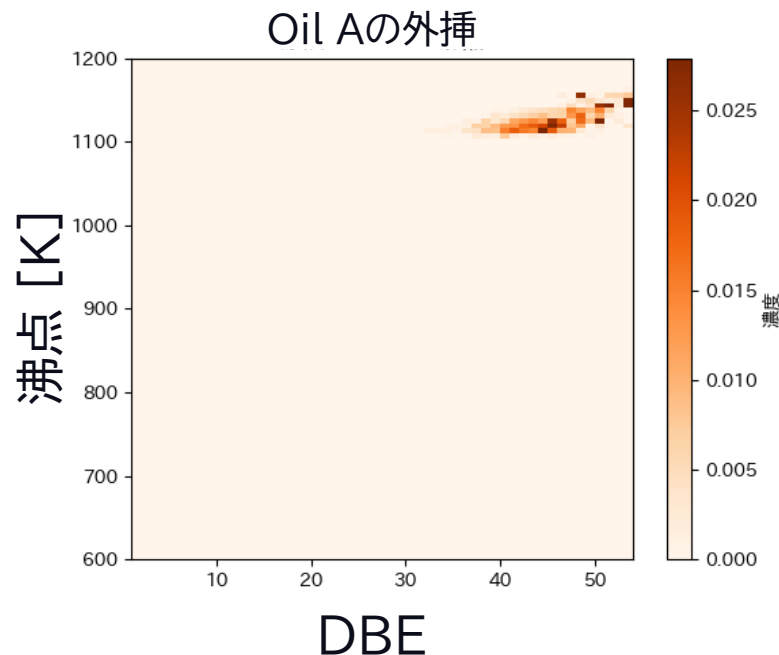
外挿領域に存在する分子構造の予測

DBE vs. 沸点

原油中の測定成分(成分数約22万)



外挿範囲の成分(成分数約2,000)



DBEと沸点のマップからも妥当な領域に成分の補完ができています

総括

目的: 高沸点成分の構造推定・濃度推算

外挿性を有した分子構造の表現の提案

- JACDを拡張しコア数を70から863(最大環数14)に
- 構造パラメータの導入で構造の定量化に成功

石油中の存在確率・濃度を判定するモデルの作成

- 外挿成分の存在確率は約99.0 %以上の精度での判定に成功
- 外挿成分の濃度も高い精度で推算に成功

外挿範囲の分子構造の予測

- 経験的に妥当性の高い分子構造の生成に成功

今後の方針

- ✓ 低沸点領域と高沸点領域の濃度分布の統合
 - 外挿成分の濃度と内挿成分の濃度のすり合わせで全組成を定量化
- ✓ 結果の妥当性の検証
 - 実際の物性測定結果と比較し定量的な整合性の検証

謝辞

本研究は経済産業省・資源エネルギー庁の
補助事業として実施されました。
ここに記して、謝意を表します。