

2025年度 JPECフォーラム

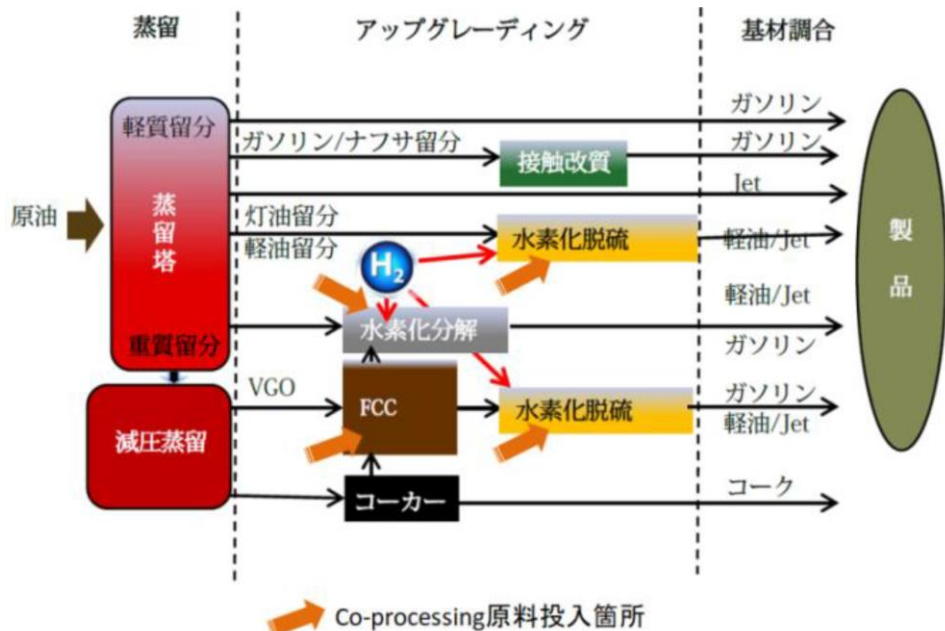
バイオオイルと重質油の混合接触分解における 生成物組成を予測する機械学習モデルの構築

2025年5月13日

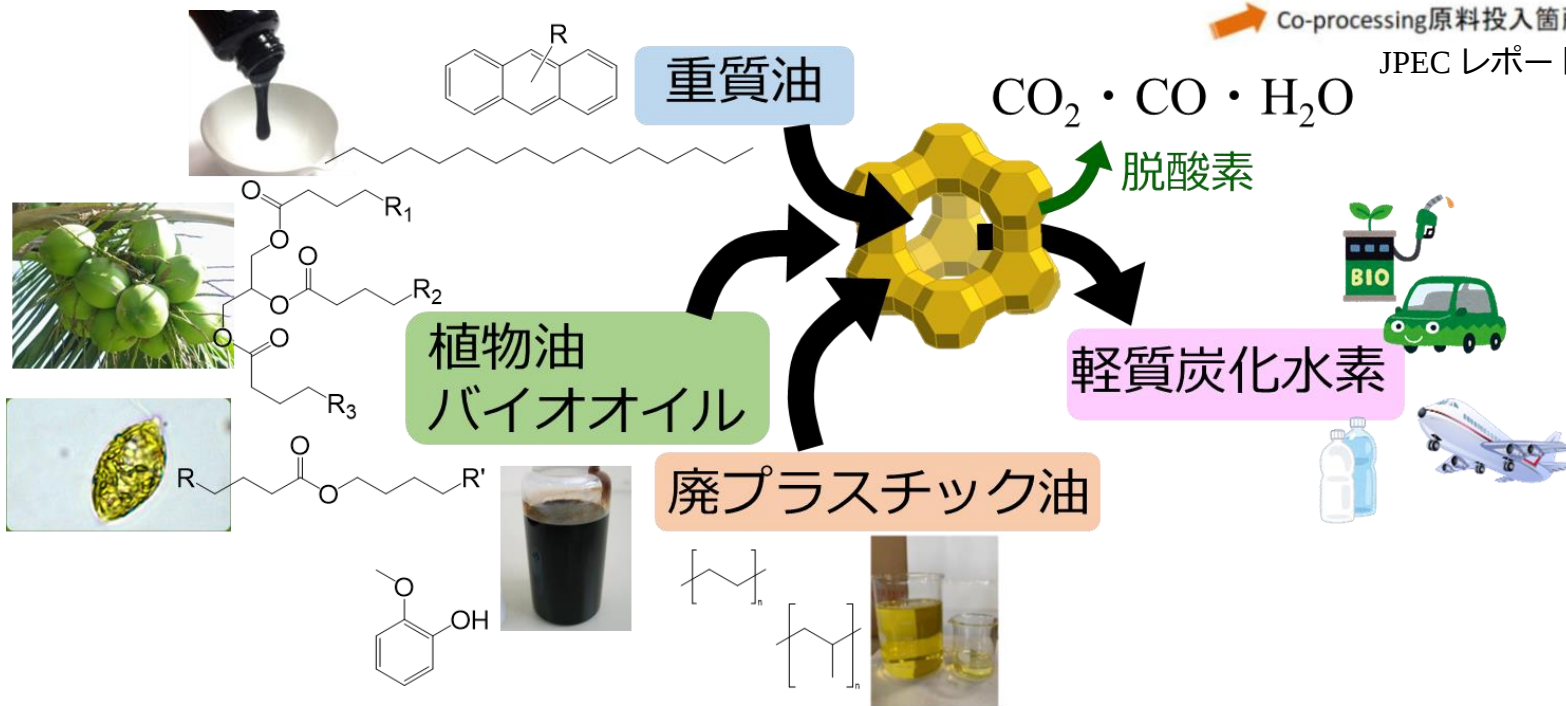
信州大学
嶋田 五百里

流動接触分解（FCC）プロセス

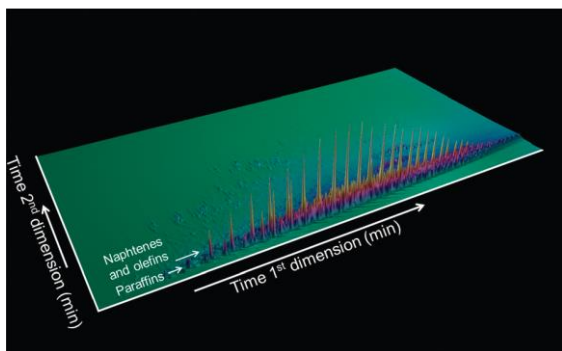
従来の役割である重質油の分解に加え、再生可能資源やリサイクル資源の共処理（co-processing）での利用も期待されている



JPEC レポート, No.201004 (2020)

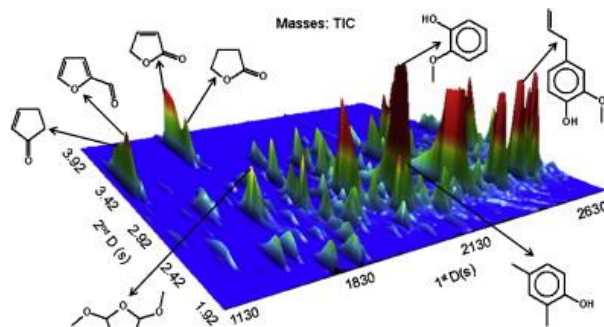


重質油



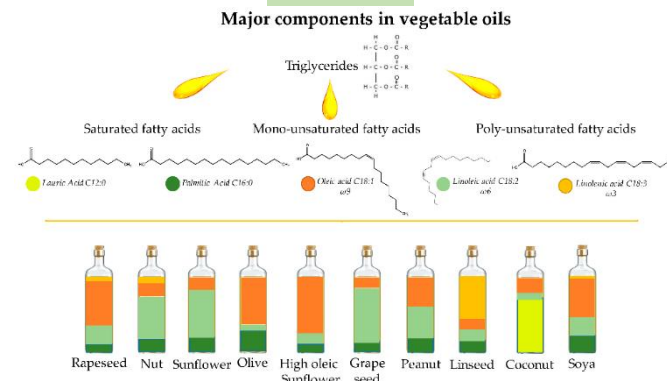
Vogt and Weckhuysen,
Chem. Soc. Rev., **44**, 7342-7370 (2015).

液化バイオマス (バイオオイル)



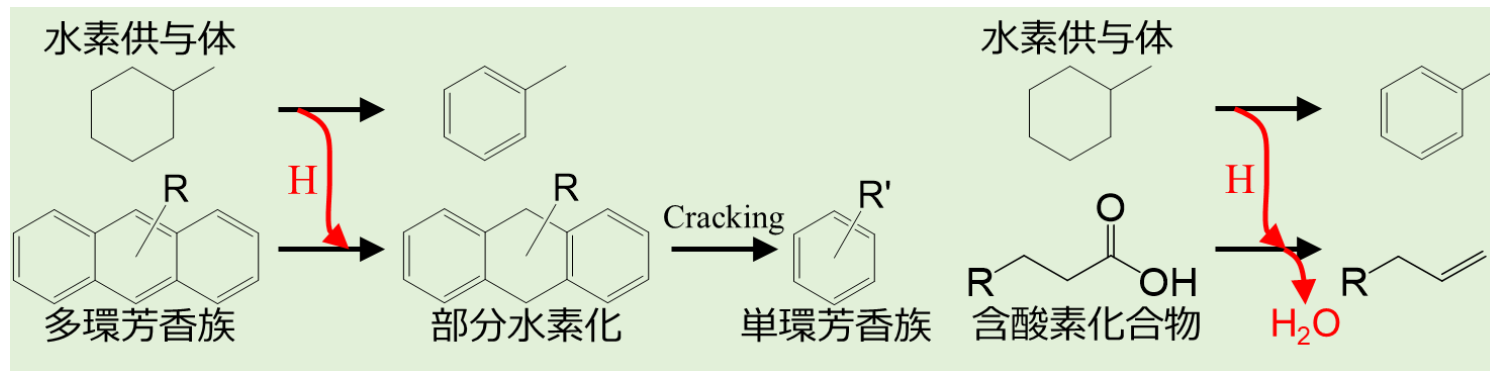
Tessarolo et al., *J. Chromatogr. A*, 1279, 68-75 (2013).

油脂



Yara-Varon et al., *Molecules*, 22(9), 1474-75 (2017).

成分間での相互作用（特に水素の授受反応）が生成物に強く影響



Shimada et al., *Fuel Process. Technol.*, 232, 107267 (2022).

Shimada et al., *J. Jpn. Petrol. Inst.*, **63**(1), 10-19 (2020).

極めて複雑な反応システムの中で

- どんな生成物ができるか？
- 重要な反応因子は何か？



機械学習の利用

反応条件

- 反応温度
- 接触時間
- 原料組成

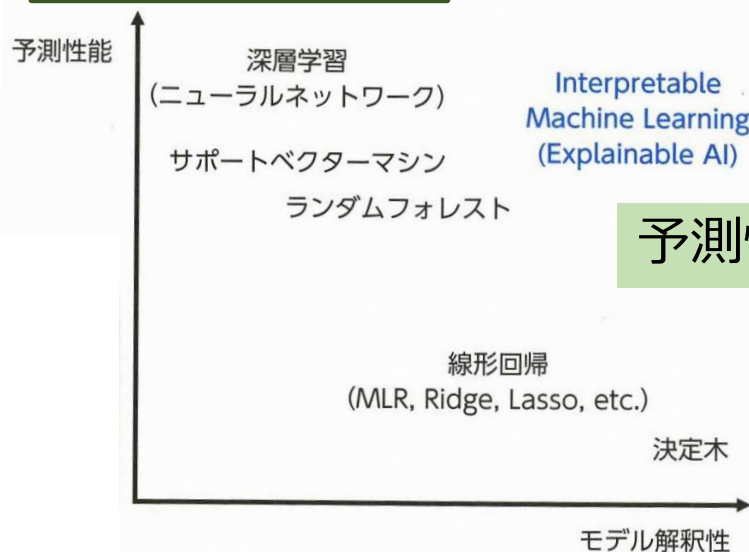
機械学習

生成物組成

- 単環芳香族
- 重質成分
- $\text{H}_2\text{O}/\text{CO}_2/\text{CO}$ など

生成物組成の予測
重要な反応因子の抽出

機械学習の課題



予測性能 $\Leftrightarrow$ 解釈可能性

トレードオフ

× ブラックボックスモデルでは
重要な反応因子を抽出できない

機械学習と物理の融合

Physics-informed machine learning

G. E. Karniadakis *et al.*, *Nat. Rev. Phys.*, **3**(6), 422–440 (2021).

S. Wang *et al.*, *Nat. Commun.*, **12**(1), 5288 (2021).

本研究のアプローチ

物理化学（反応速度論・反応工学）との融合により、
解釈可能性の高い機械学習モデル（線形回帰）の予測精度を向上させる

(岩崎悠真, マテリアルズ・インフォマティクス材料開発のための機械学習超入門)

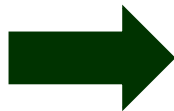
(一般的な) 特徴量エンジニアリング

基本特徴量

反応温度 T

接触時間 τ

原料濃度 X_i



T^2 $T \cdot \tau$ $T \cdot X_i$...

T^3 $T^2 \cdot \tau$ $T \cdot X_i^2$...

T/τ T/X_i ...

$\sqrt{T}$ $\sqrt{\tau}$ $\sqrt{X_i}$...

予測精度が上がる一方で
解釈可能性は下がることも

物理化学に基づく特徴量エンジニアリング

基本特徴量

反応温度 T

接触時間 τ

原料濃度 X_i

濃度交差項 $X_i \cdot X_j$

反応速度項

1次反応 $\exp(-E_a/RT) \cdot X_i$

2次反応 $\exp(-E_a/RT) \cdot X_i \cdot X_j$

濃度変化項 (微分反応器モデル)

1次反応 $\exp(-E_a/RT) \cdot X_i \cdot \tau$

2次反応 $\exp(-E_a/RT) \cdot X_i \cdot X_j \cdot \tau$

濃度変化項 (積分反応器モデル)

1次反応 $X_i \cdot \exp(-k\tau)$ ($k = A \exp(-E_a/RT)$)

2次反応 $X_i^2 / (X_i + (k\tau)^{-1})$

$X_i \cdot X_j (1 - \exp((X_j - X_i)k\tau) / (X_i - X_j \exp((X_j - X_i)k\tau)))$

逐次反応項

X_i / X_j

$\exp(-E_a/RT) \cdot X_i / X_j$

$\exp(-E_a/RT) \cdot X_i / X_j \cdot \tau$

LASSO

線形回帰モデルにおける縮小推定的一种

影響の小さいパラメータの係数をゼロにする傾向があり、特徴量選択が可能

$$\hat{y} = \sum_{m=0}^M w_m \phi_m = \mathbf{w}^T \boldsymbol{\phi} \quad \boldsymbol{\phi} = \begin{pmatrix} T \\ t \\ X_1 \\ \vdots \end{pmatrix}$$

$$\tilde{E}(\mathbf{w}) = \frac{1}{2} \sum_{n=1}^{N_{\text{train}}} (y_{\text{train},n} - \mathbf{w}^T \boldsymbol{\phi}_{\text{train},n})^2 + \frac{\alpha}{2} \sum_{m=1}^M |w_m|$$

→最小化する $\mathbf{w}$ を探索

$\hat{y}$: 目的生成物の生成量の予測値

$\mathbf{w}$: パラメーター

M : 特徴量の数

$\boldsymbol{\phi}$: 特徴量

N_{train} : 訓練データ数

α : ハイパーパラメーター

Physics-based FE (feature engineering) model

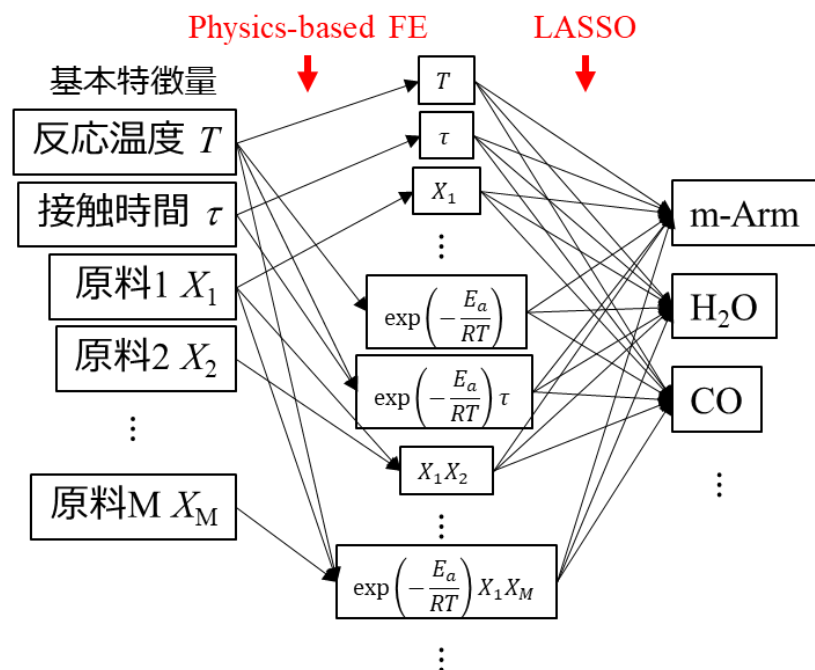
物理化学に基づく特徴量エンジニアリング

全ての成分間の反応を表す記述子を作成



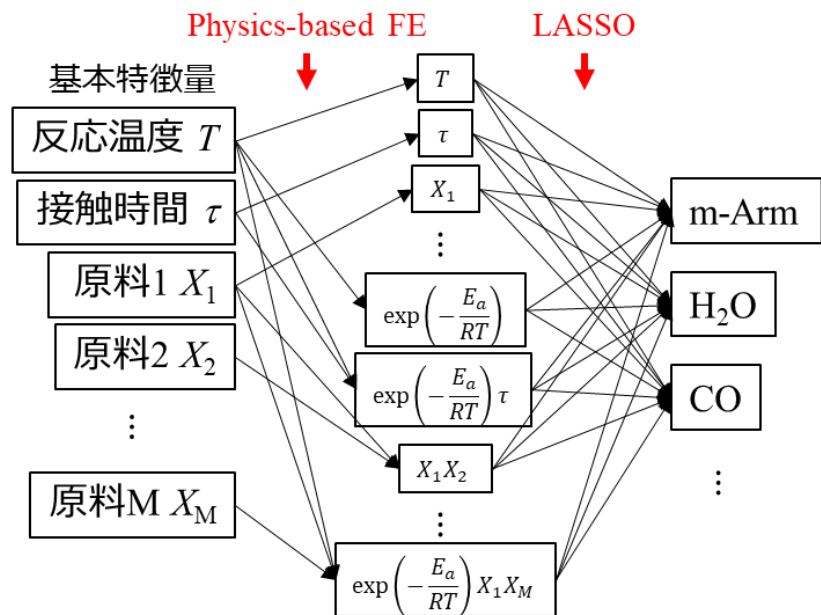
LASSO回帰による特徴量選択

データに基づき重要な記述子を選択



未知成分の反応予測

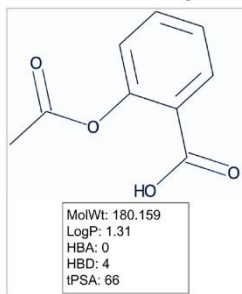
7



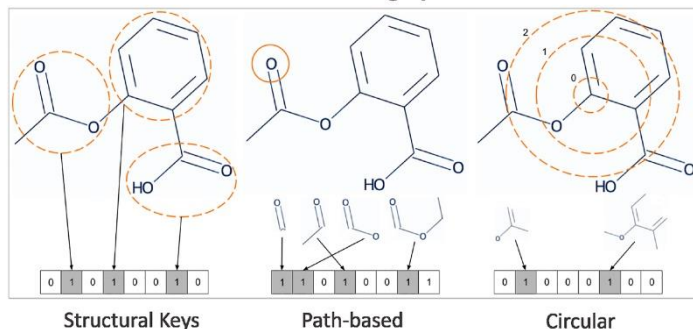
× 未知原料成分の予測が不可能

分子の部分構造の類似性に着目
分子フィンガープリント

Molecular Descriptors



Molecular Fingerprints



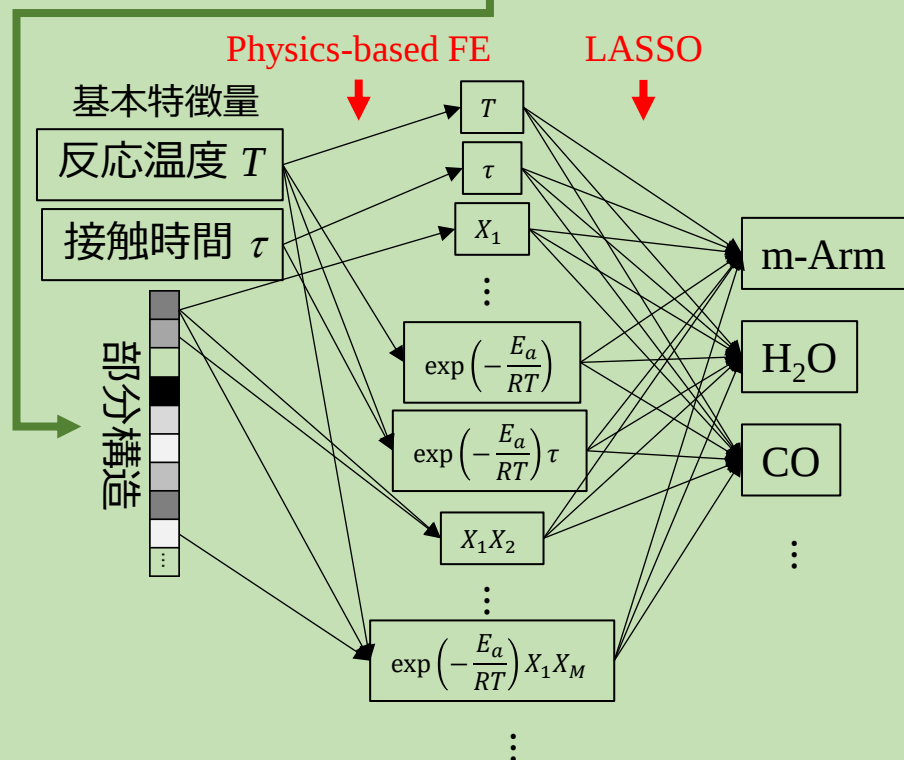
Baptista et al., *J. Integr. Bioinform.*, **19**, 36017668 (2022)

分子フィンガープリント
(MACCS fingerprint)

原料1	1	0	0	1	0	0	0	0	1	...
原料2	0	1	0	1	1	0	0	1	0	...
⋮										
原料M	1	1	0	1	0	0	0	1	0	...

重み付け足し合わせ

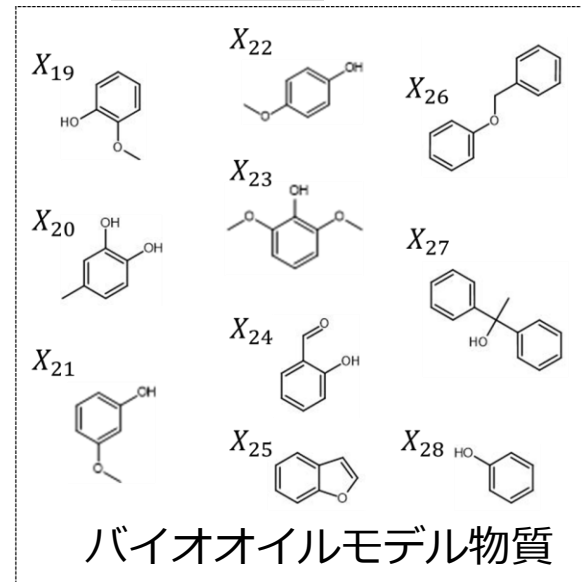
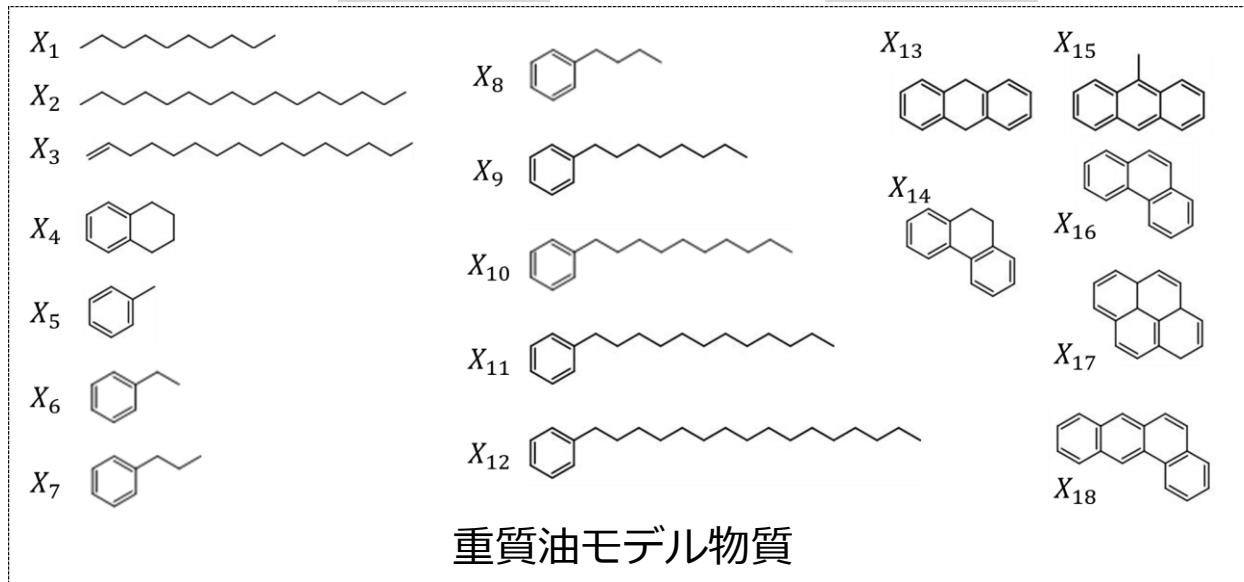
原料フィンガープリント



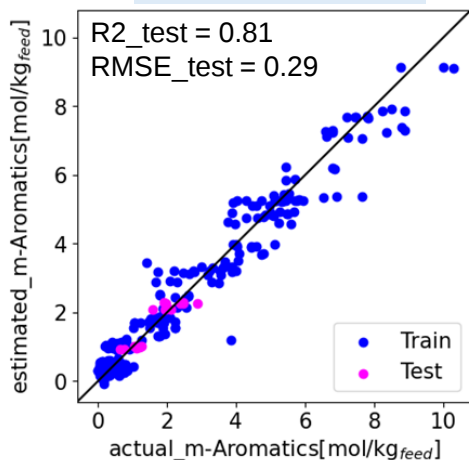
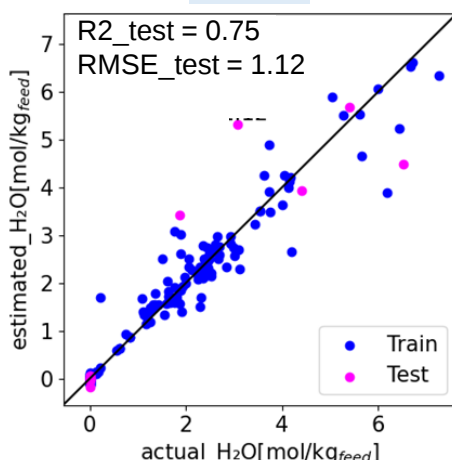
従来の検討

8

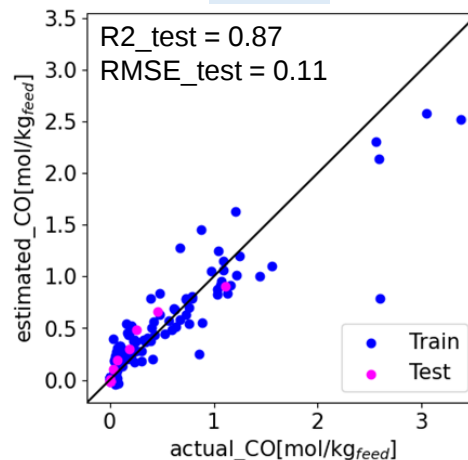
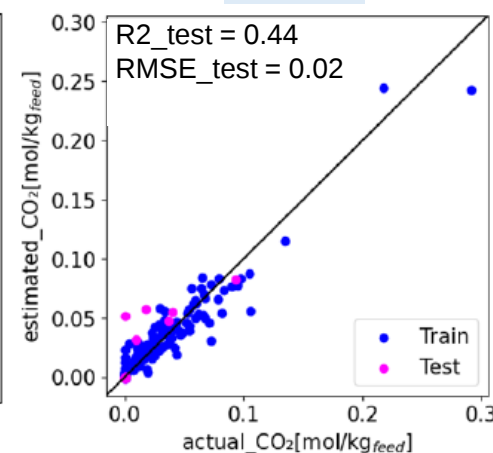
257点の実験データ

基本の特徴量**反応温度** 450~550℃**接触時間** 0.16~7.50 g/g**原料組成** $X_i (i = 1 \sim 29)$ 

単環芳香族

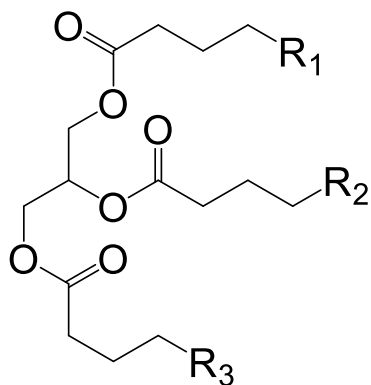
H₂O

CO

CO₂

実際のバイオマス原料の反応予測に拡張

- 植物油（トリグリセリド）の接触分解反応



ココナッツ油



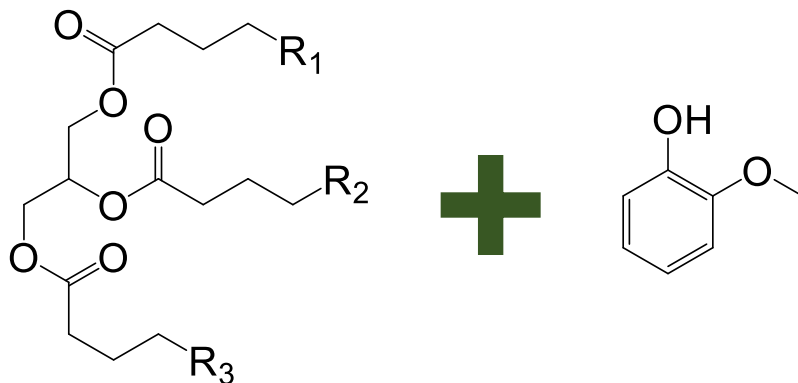
（飽和脂肪酸TG）

ヒマワリ油



（不飽和脂肪酸TG）

- 植物油とバイオオイルモデル物質（グアイアコール）の混合接触分解反応



触媒

残油流動接触分解（RFCC）プロセス用平衡触媒
（主活性点：USY型ゼオライト）



反応試験

固定床流通式反応器

雰囲気: N_2

温度: $450 - 550\text{ }^{\circ}\text{C}$

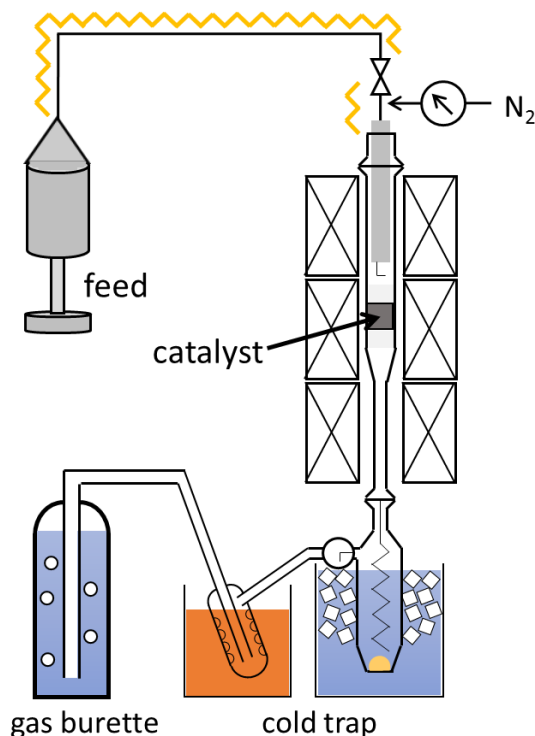
WHSV: $6 - 71\text{ h}^{-1}$

Cat/oil = $0.6 - 7.5\text{ g/g}$

生成物分析

GC-TCD/GC-FID/GC-MS

カールフィッシャー水分計



植物油（トリグリセリド: TG）の接触分解反応

11

ココナッツ油

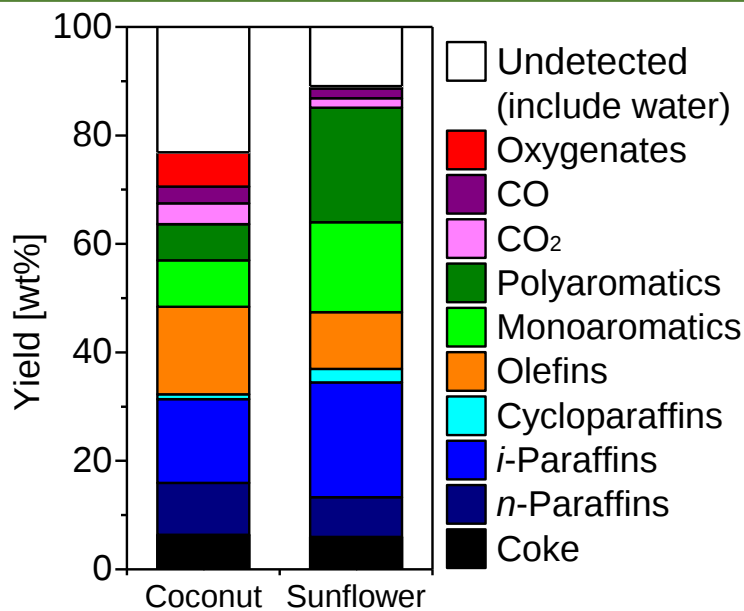


(飽和脂肪酸TG)

ヒマワリ油



(不飽和脂肪酸TG)



(470 °C WHSV=16 h⁻¹)

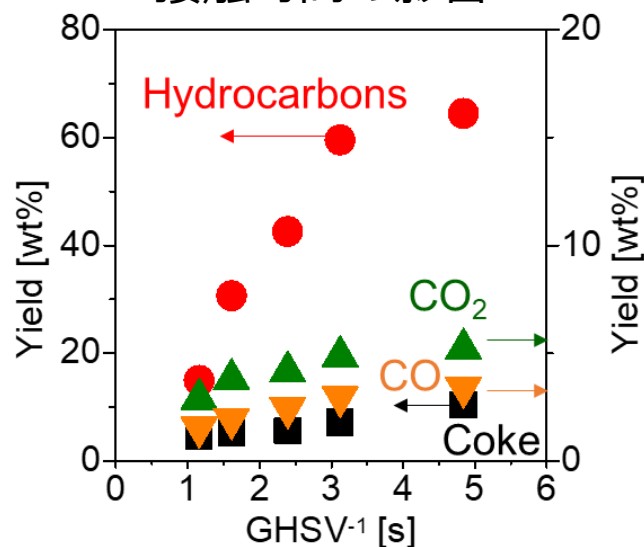
Oxygen-based yield [O%]

	Coconut	Sunflower
Oxygenates	4.8	< 0.6
CO ₂	19.5	13.4
CO	12.4	10.5
H ₂ O*	63.4	75.5

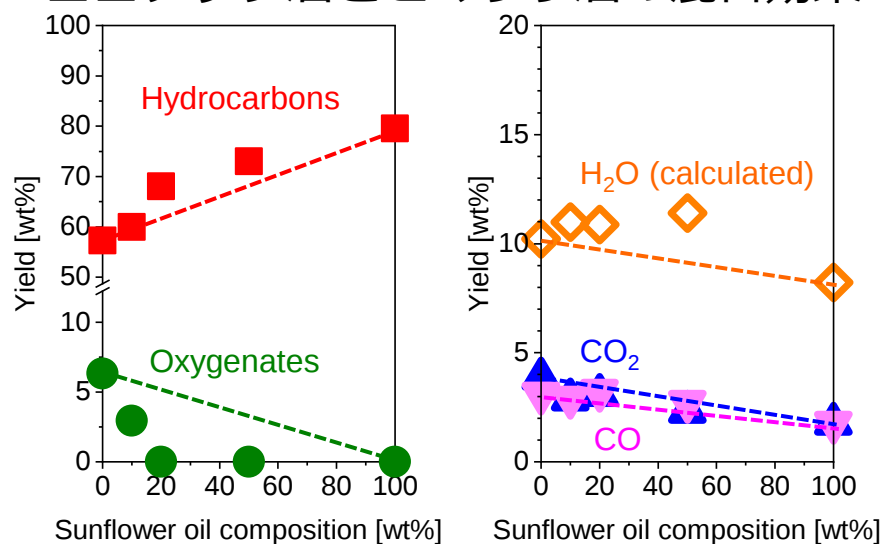
*Calculated from oxygen balance

Shimada *et al.*, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **56**, 75-86 (2017).

接触時間の影響



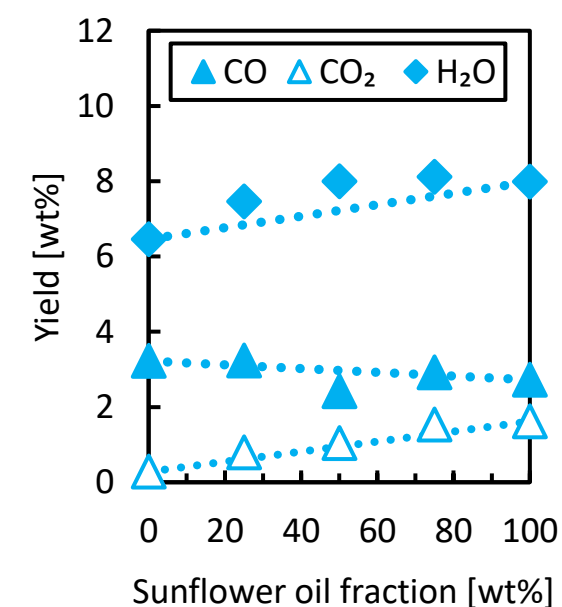
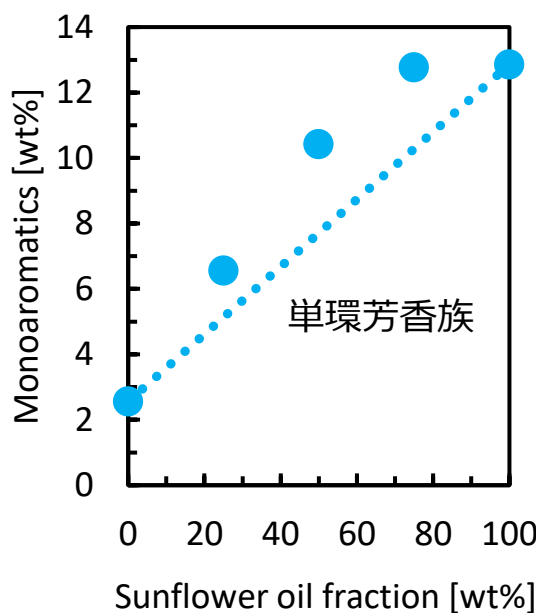
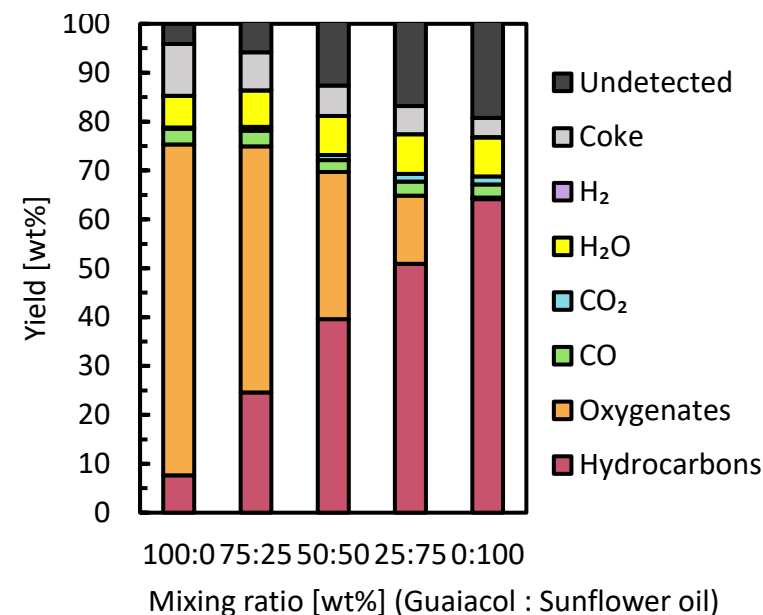
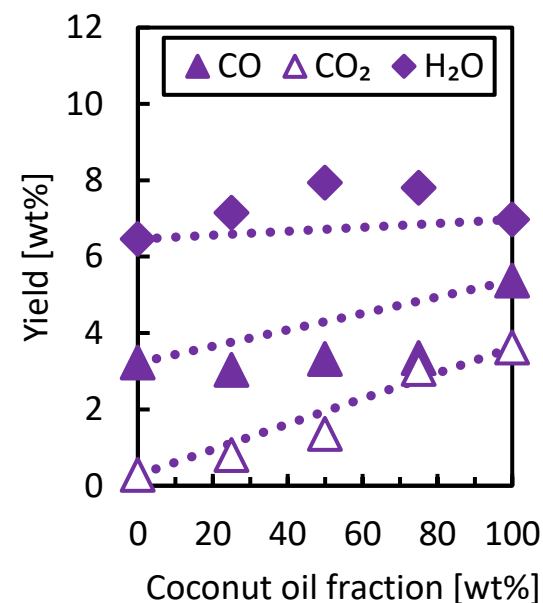
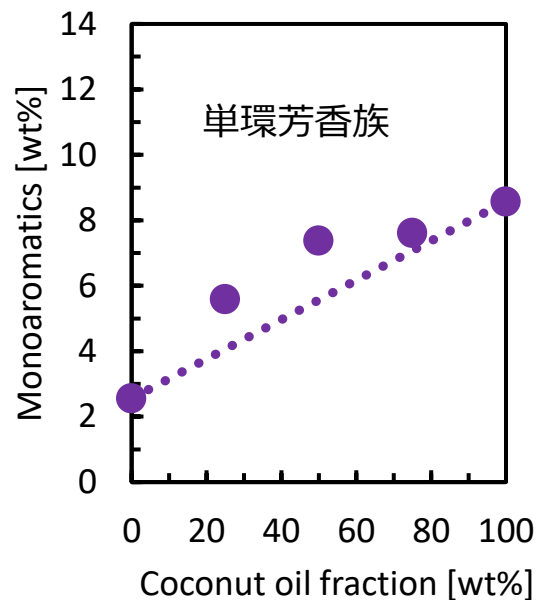
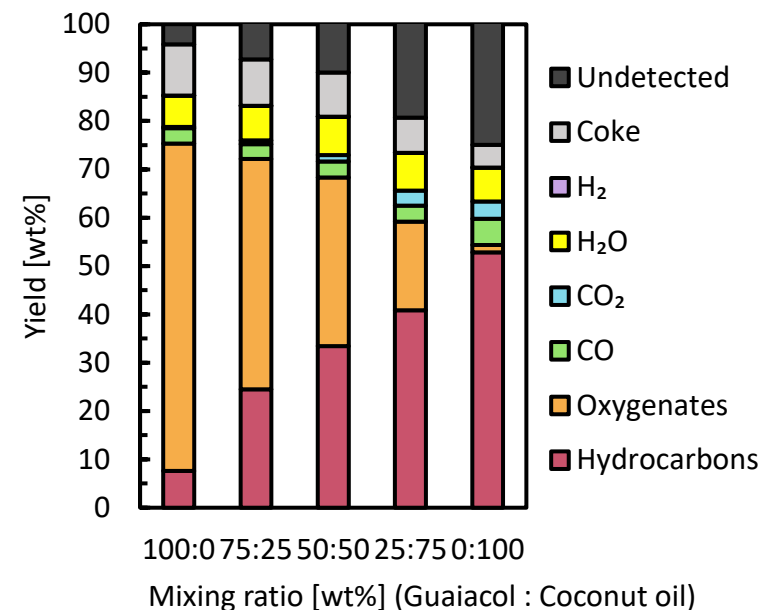
ココナッツ油とヒマワリ油の混合効果



Shimada *et al.*, *J. Chem. Eng. Jpn.*, **51**, 778-785 (2018).

植物油とグアイアコールの混合接触分解反応

12



脂肪酸組成

Fatty acid	Number of carbon atoms	Number of double bonds	Coconuts oil [mol%]	Sunflower oil [mol%]
Caproic acid	6	0	1.3	–
Caprylic acid	8	0	13.0	–
Capric acid	10	0	7.6	–
Lauric acid	12	0	46.9	–
Myristic acid	14	0	15.7	–
Palmitic acid	16	0	7.3	7.9
Stearic acid	18	0	1.9	3.6
Oleic acid	18	1	5.0	32.3
Linoleic acid	18	2	1.4	56.2
Linolenic acid	18	3	–	Trace

SMILES

トリラウリン : CCCCCCCCCCCC(=O)OCC(COC(=O)CCCCCCCCCCCC)OC(=O)CCCCCCCCCCCC

トリオレイン : CCCCCCCC/C=C\C#CCCCCCCC(=O)OCC(COC(=O)CCCCCCC/C=C\C#CCCCCCCC)OC(=O)CCCCCCC/C=C\C#CCCCCCCC



MACCSフィンガープリント

トリラウリン :

0	...	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	...	0
---	-----	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	-----	---

(167bit)

トリオレイン :

0	...	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	1	...	0
---	-----	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	-----	---

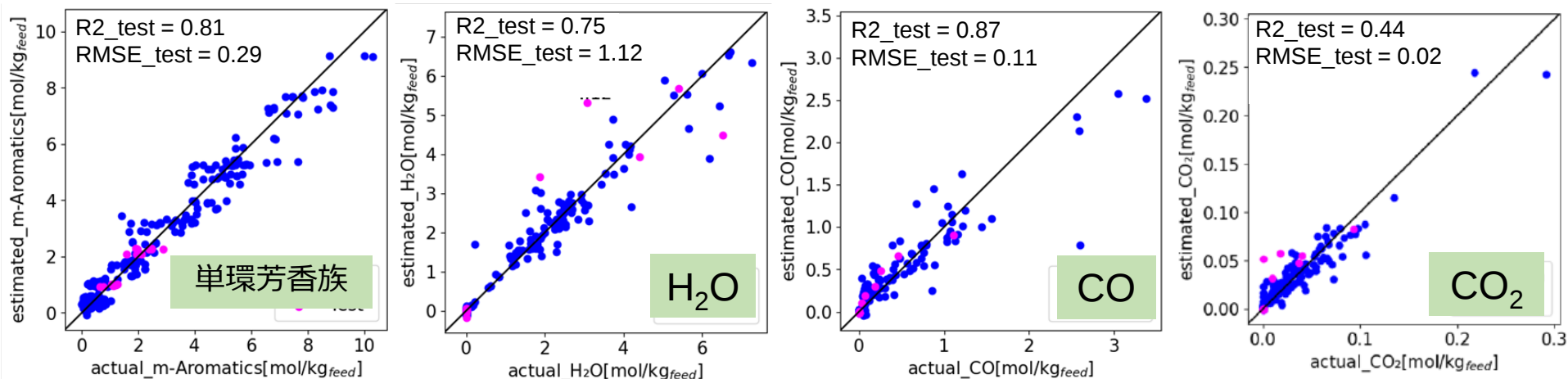


Physics-based FE model (CVによるハイパーパラメータチューニング)

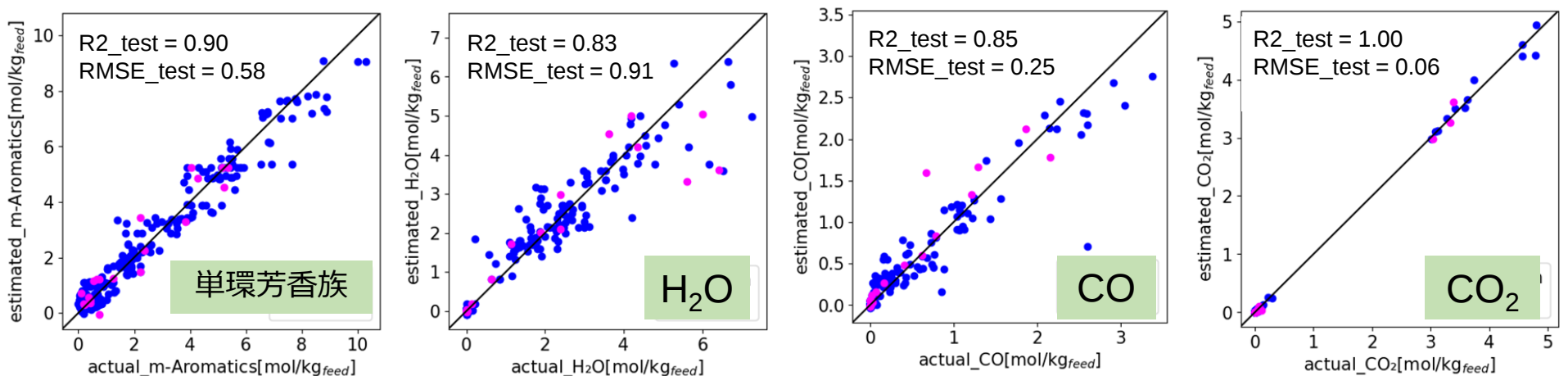
機械学習モデルによる生成物組成予測

14

重質油モデル物質+バイオオイルモデル物質（実験データ257点）



植物油を用いた実験データ15点を追加



植物油を原料に用いたデータを含めて高い精度で予測が可能
植物油由来の高いCO₂収率にも対応

重質油とバイオオイルの混合接触分解に加えて、植物油を原料に用いた接触分解反応を対象として、機械学習を用いた反応生成物組成予測モデルの構築に取り組んだ。

- 飽和脂肪酸TGと不飽和脂肪酸TGでは生成物組成が大きく異なることに加えて、混合効果による協奏効果が発現する
- 植物油とバイオオイルモデル物質の混合接触分解においても、混合効果による単環芳香族増収や H_2O としての脱酸素化促進が起こる
- MACCSフィンガープリントを用いた原料表現、物理化学に基づく特徴量エンジニアリング、LASSO回帰を組み合わせた機械学習モデルによって植物油を原料に含む反応における生成物組成予測が可能になった

謝辞

本研究は経済産業省の補助により
(一財)カーボンニュートラル燃料技術センターが
実施する技術開発事業の一環として
行われたものです。

ここに記し謝意を表します。