

# サロゲートモデルによる化学反応パラメータの同定

水原慎一<sup>i</sup>, 小泉拓<sup>ii</sup>, 中村幸太郎<sup>iii</sup>, 山出吉伸<sup>iv</sup>, 永野勝尋<sup>v</sup>

## Estimation of Chemical Reaction Parameters Using Surrogate Models

Shinichi MIZUHARA, Hiroshi KOIZUMI, Kotaro NAKAMURA,  
Yoshinobu YAMADE, Katsuhiko NAGANO

化学反応プロセスの最適な運用に向けては、実験を再現するシミュレーションが不可欠であり、そのためには反応速度定数などの化学反応パラメータを効率的に同定する必要がある。本研究では、反応器内のCO<sub>2</sub>メタネーション反応を対象として、観測された反応器内の温度分布を再現するような化学反応パラメータを同定する逆問題を考える。同反応の一次元数値シミュレーションで得た模擬データを用い、Neural Network (NN) で学習したサロゲートモデルによるグリッドサーチでパラメータ同定を行い、同定精度や学習データ数の影響を評価した。また、繰り返し実験データを観測する状況において、未知パラメータの予測不確実性を考慮したガウス過程回帰モデルによる手法を考案することで、観測データ数を抑えつつ高精度なパラメータ同定が可能であることを示した。

(キーワード): 機械学習, パラメータ同定, サロゲートモデル, ガウス過程回帰, NN, 化学反応

### 1 はじめに

CO<sub>2</sub>の転換反応や触媒を用いた有機合成, 吸着分離プロセスなどの化学反応プロセスでは、触媒性能や反応温度といった運用条件の最適化が不可欠である。しかし、これらの条件を網羅的に実験で探索することは、材料・設備・時間・人的資源といった物理的・金銭的成本から極めて困難である。そのため、物理的な実験の代替手段としてシミュレーションが活用されている。

一方で、実験を再現するようなシミュレーションを行うためには、反応速度定数などの内部パラメータを、実験データに基づき適切に設定する必要がある。観測データから未知パラメータを同定するこの種の問題は「逆問題」と呼ばれ、パラメータ空間を探索するためのシミュレーションの反復実行が必要となる。この反復実行が多大な計算コストを要し、新

なボトルネックとなっている。

このような計算コストの課題に対して、シミュレーションの高速化を目的としたサロゲートモデル(代理モデル)の研究も近年活発に行われている<sup>1,2)</sup>。NNやガウス過程回帰を基にしたアプローチは、複雑な非線形関係も表現できる点や一度構築すれば高速に予測が可能となる点など多くの利点がある。そのため、計算コストの高いシミュレーションの代替手段として、様々な分野での活用が期待されている。

本稿では、サロゲートモデルを活用したパラメータ同定手法を検討する。対象としては、近年CO<sub>2</sub>の有効活用策として注目されているCO<sub>2</sub>メタネーション反応<sup>3)</sup>を取り上げる。空間一次元の温度分布を予測するモデルを構築し、目標温度分布を再現する最適な反応速度定数の同定を目指す。まず、Linらの反応器条件<sup>4)</sup>でシミュレーションを実施し、模擬的な観測データを取得する。次に、このデータを用いて温度分

<sup>i</sup> 情報通信研究部 センサ・メディア情報技術チーム シニアコンサルタント

<sup>ii</sup> 情報通信研究部 センサ・メディア情報技術チーム 課長

<sup>iii</sup> サイエンスソリューション部 社会インフラチーム シニアコンサルタント 博士(工学)

<sup>iv</sup> サイエンスソリューション部 社会インフラチーム 次長 博士(工学)

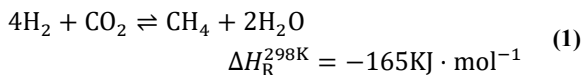
<sup>v</sup> サイエンスソリューション部 社会インフラチーム 上席シニアコンサルタント

布を予測するサロゲートモデルを構築し、パラメータ同定における精度を評価する。

サロゲートモデルは、NN とガウス過程回帰の二つを適用し比較検討する。特にガウス過程回帰の適用においては、データが少ない状況から始め、繰り返し実験データを観測する状況を想定する。その際、未知パラメータに対する予測の不確実性を考慮して新たに考案した手法を紹介する。最後に、さらなる精度向上策として、パラメータ同定手法に支配方程式を組み込む方法の可能性に言及し、今後への展望を示す。

## 2 CO<sub>2</sub>メタネーション反応のシミュレーション

図1に示すLinらの反応器<sup>4)</sup>を対象として、CO<sub>2</sub>メタネーション反応の1次元シミュレーションを実施した。各種パラメータを変更しながらシミュレーションを多数回行うことで、後述するパラメータ同定のためのデータを作成した。メタネーション反応式とその反応速度式をそれぞれ式(1)、(2)に示す。



$$R_{\text{meth}} = k_f \frac{K_{\text{CO}_2} p_{\text{CO}_2} p_{\text{H}_2}^{0.5}}{(1 + K_{\text{CO}_2} p_{\text{CO}_2})^2} - k_r \frac{K_{\text{H}_2\text{O}} p_{\text{CH}_4}^2 p_{\text{H}_2\text{O}}}{(1 + K_{\text{H}_2\text{O}} p_{\text{H}_2\text{O}})^2} \quad (2)$$

$$k_j = k_{j,0} e^{-\frac{E_{a,j}}{RT}}, \quad j = f, r \quad (3)$$

$$K_i = K_{i,0} e^{-\frac{\Delta H_i}{RT}}, \quad i = \text{H}_2, \text{CO}_2 \quad (4)$$

ここで、 $k_f, k_r$  はそれぞれ順反応と逆反応の反応速度定数であり、活性化エネルギー  $E_{a,j}$  を用いて式(3) (アレニウスの式) で表される。 $R$  は気体定数、 $T$  は反応器内の温度である。 $K_i, p_i$  はそれぞれ化学種  $i$  の吸着平衡定数と分圧であり、 $K_i$  は式(4)に示

すように、吸着によるエンタルピー変化  $\Delta H_i$  を用いて表される。反応条件を表1に示す。

表1 反応条件

流速	0.525 m/s	
温度	473.15 K	
体積割合	H <sub>2</sub>	0.8
	CO <sub>2</sub>	0.2
反応速度定数	$k_{f,0}$	$1.23 \cdot 10^3 \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1} \text{g-cat}^{-1} \text{MPa}^{-0.5}$
	$k_{r,0}$	$3.89 \cdot 10^8 \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1} \text{g-cat}^{-1} \text{MPa}^{-2}$
平衡係数	$k_{\text{CO}_2,0}$	$2.50 \cdot 10^{-5} \text{ MPa}^{-1}$
	$k_{\text{H}_2\text{O},0}$	$5.51 \cdot 10^7 \text{ MPa}^{-1}$
活性化エネルギー	$E_{a,f}$	$22.77 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$
	$E_{a,r}$	$114.40 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$
吸着によるエンタルピー変化	$\Delta H_{\text{CO}_2}$	$-32.33 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$
	$\Delta H_{\text{H}_2\text{O}}$	$77.61 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$

$$k_{f,0} = 6.36 \cdot 10^2 (= k_{f,0}^{\text{base}}), k_{r,0} = 1.95 \cdot 10^8 (=$$

$k_{r,0}^{\text{base}}$ )としたときの1次元シミュレーションの実行結果を図2に示す。縦軸の温度分布は管中心軸  $z$  上の値である。Linら<sup>4)</sup>の文献値が赤線で、本シミュレーションの値が緑で示されている。本シミュレーションの結果は、Linらの文献値と比較して良好に一致しており、ピーク位置、ピーク値に大きな差は見られなかった。

その後、 $\tilde{k}_{f,0} := k_{f,0}/k_{f,0}^{\text{base}}, \tilde{k}_{r,0} := k_{r,0}/k_{r,0}^{\text{base}}$  をそれぞれ0.1から2.0まで0.1刻みで変化させ、計400通りの温度分布  $T(z)$  のデータセットを作成した。なお、各データセット内の  $z$  座標は、0mから1.5mまで0.01mの刻みで取られており、計151点からなる。

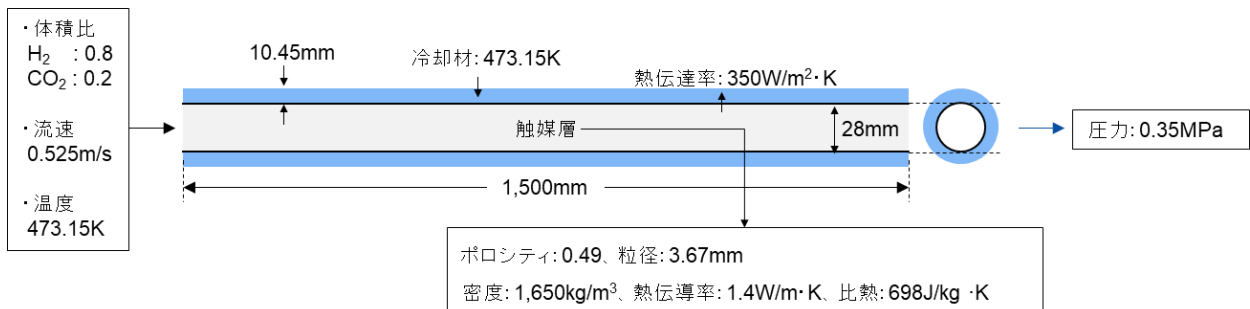


図1 反応器内のCO<sub>2</sub>メタネーション反応の模式図

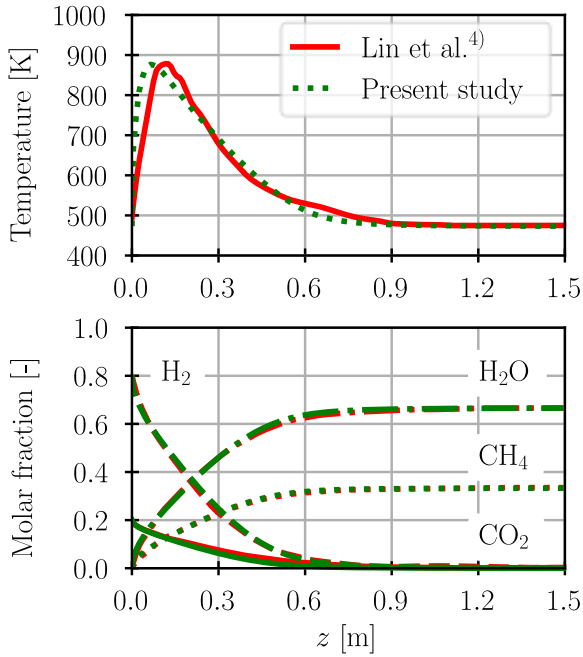


図2 シミュレーション結果と文献値との比較

### 3 NNによるパラメータ同定

2章で作成したシミュレーションデータセットのうち、 $\widetilde{k_{f,0}} = 1$  かつ  $\widetilde{k_{r,0}} = 1$  の条件下で得られた温度分布データをターゲットとし、このときの  $\widetilde{k_{f,0}}$ ,  $\widetilde{k_{r,0}}$  を未知パラメータとみなして同定を行う。

#### 3.1 NNを用いたサロゲートモデル

NNを用いたサロゲートモデルを  $S_{NN}$  とする。 $S_{NN}$  は図3に示すように  $k_{f,0}, k_{r,0}, z$  を入力とし、前処理  $g$ , NN 計算  $f$ , 後処理  $h^{-1}$  を経て  $T$  を出力する。前処理  $g$  は、入力変数  $(k_{f,0}, k_{r,0}, z) =: (x_1, x_2, x_3)$  の次元毎に、式(5), (6)の平均と分散を用いて式(7)のように正規化を行う。同様に後処理  $h^{-1}$  は、出力変数  $T$  に対して正規化の逆変換 (式(7)に対応) を行うものである。

$$\mu_i = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N x_{i,j} \tag{5}$$

$$\sigma_i^2 = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N (x_{i,j} - \mu_i)^2 \tag{6}$$

$$x_i \leftarrow \frac{x_i - \mu_i}{\sigma_i} \tag{7}$$

使用したNNのハイパーパラメータを表2にまとめる。その他、最適化時のオプティマイザーにはAdam, 活性化関数にはSwish関数を用いた。

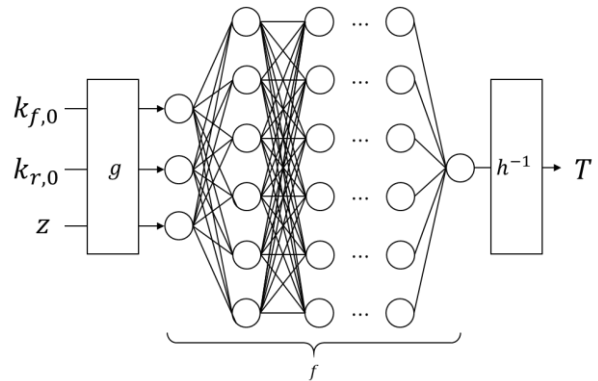


図3 NNによるサロゲートモデル  $S_{NN}$  の模式図

表2 NNのハイパーパラメータ

ハイパーパラメータ	値
隠れ層の次元	6
隠れ層の数	4
学習率	$10^{-3}$
バッチサイズ	$2^6$
エポック数	500

#### 3.2 サロゲートモデル学習結果

ターゲットデータを除いた399個のデータセットから、ランダムに320個、256個、192個、128個、64個を抽出して学習データとし、残りをテストデータとした。学習データが320個の場合の学習曲線を図4に、すべての  $k_{f,0}, k_{r,0}, z$  に対する温度の真値と予測値の相関を図5に示す。学習データ、テストデータともに相関係数は0.99以上であって、概ね予測値=真値の直線上に分布しており、良好な予測精度が得られた。例として、 $k_{f,0}, k_{r,0}$  をある値に固定し、学習後のサロゲートモデルで  $z$  方向の分布を予測した結果を図6に示す。

#### 3.3 パラメータの同定結果

本節では、ターゲットとなる温度分布から  $k_{f,0}, k_{r,0}$  の値をグリッドサーチ (探索空間内で全探索) により同定する。まず、学習データ数が320個の場合について考える。各  $k_{f,0}, k_{r,0}$  に対し、サロゲートモデルによる  $z$  方向の予測値とターゲットの温度分布との平均二乗誤差 (MSE) を算出し、MSEが最小となるパラメータを同定値とした。各  $k_{f,0}, k_{r,0}$  におけるMSEをプロットした図を図7に示す。図7

には、ターゲットが星印、同定値が×印で示されている。図7のMSEの分布が正しいか確認するため、シミュレーションで生成した400個のデータとターゲットとのMSEを算出し図8に示す。図7と図8では同様の傾向が確認でき、サロゲートモデルが温度分布を学習できていることが確認できる。

同様の手法で学習データ数を変化させてパラメータ同定を行った。その結果を表3に、ターゲットとの差を図9に示す。

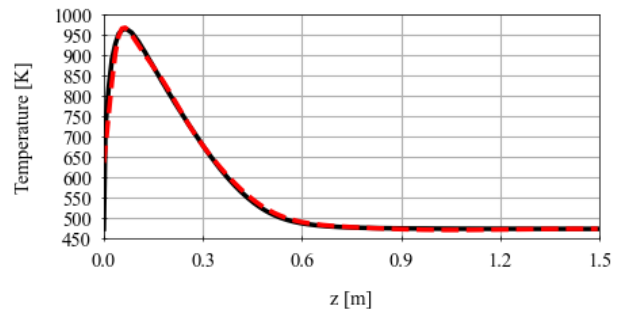


図6 サロゲートモデルの予測結果例  
(黒実線：モデルの予測値，赤点線：テストデータ)

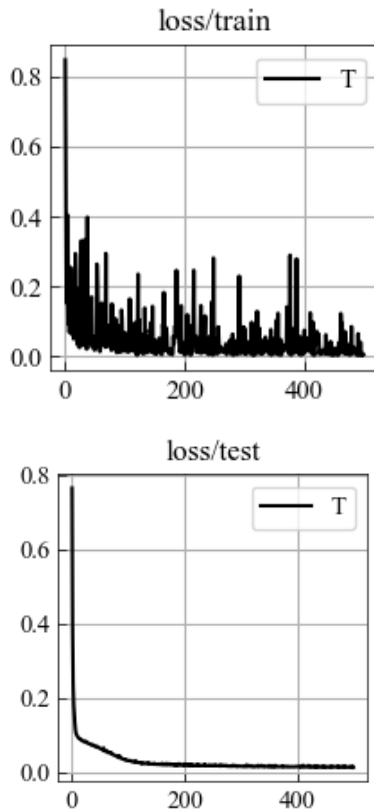


図4 サロゲートモデルの学習曲線  
(上：学習データ，下：テストデータ)

$T, \text{corr\_train} = 0.9942, \text{corr\_test} = 0.9939$

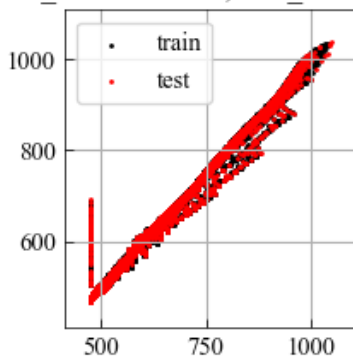


図5 温度の真値と予測値の相関  
(横軸：温度の真値，縦軸：温度の予測値)

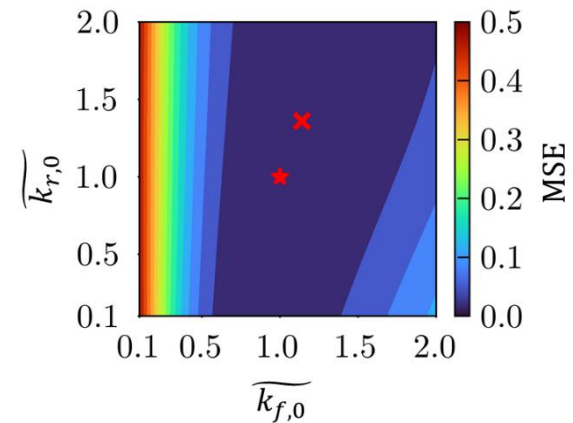


図7 サロゲートモデルの予測とターゲットとのMSE  
(赤色の星印：ターゲット，赤色×印：同定値)

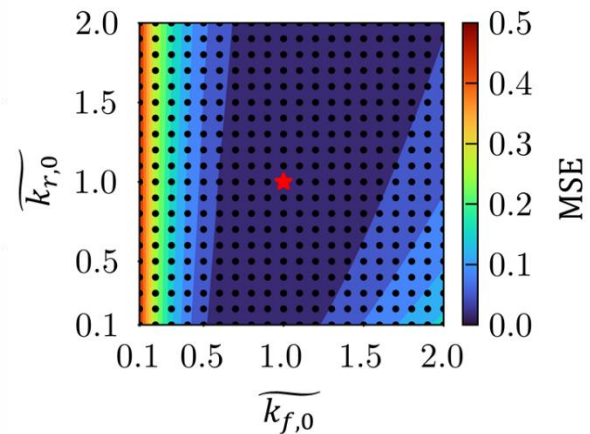


図8 シミュレーション値とターゲットとのMSE  
(赤色の星印：ターゲット，黒点：シミュレーションデータ点)

表3 NNによるサロゲートモデルの  
パラメータ同定精度

学習データ数	$\widetilde{k}_{f,0}$ の同定値	$\widetilde{k}_{r,0}$ の同定値
320	1.14	1.36
256	1.20	1.45
192	1.32	1.83
128	1.29	1.95
64	1.25	2.04

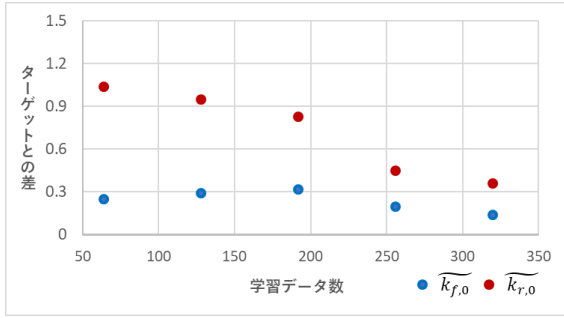


図9 パラメータ同定値とターゲットとの差

表3 および図9 から、 $\widetilde{k}_{f,0}$  は学習データ数によらず一定の同定精度が得られる一方、 $\widetilde{k}_{r,0}$  はターゲットとの差が  $\widetilde{k}_{f,0}$  の場合の2倍以上であり、特に学習データ数が200以下では精度の低下が顕著である。これは、学習データ数が少ない場合にサロゲートモデルの再現性が低下することに加え、図7に示すように、 $\widetilde{k}_{r,0}$  方向のMSEの変動が  $\widetilde{k}_{f,0}$  方向に比べて小さいため、パラメータの同定が難しくなっていると考えられる。このように、NNを用いたサロゲートモデルの同定精度には課題が残ることが明らかとなった。

同定精度の向上に向けて、サロゲートモデルに式(2)などの支配方程式を組み込むことが考えられる。支配方程式の組み込みに向けた試行については5章において簡単に説明する。

#### 4 ガウス過程回帰によるパラメータ同定

3章と同様に、2章で作成したシミュレーションデータセットのうち、 $\widetilde{k}_{f,0} = 1$  かつ  $\widetilde{k}_{r,0} = 1$  の条件下で得られた温度分布データをターゲットとし、このときの  $\widetilde{k}_{f,0}$ ,  $\widetilde{k}_{r,0}$  を未知パラメータとみなして同定を行う。

ただし、3章と異なり、パラメータ同定開始時に与えられるデータ数は少ないものとし、必要に応じてデータを追加観測しながら同定精度を向上させる。その際、可能な限り少ない観測回数でパラメータ同

定が行えることを目指す。

#### 4.1 ガウス過程回帰によるサロゲートモデル

ガウス過程回帰モデルを基としたサロゲートモデルを  $S_{\text{GPR}}$  とし、 $\theta = (k_{f,0}, k_{r,0})$  とする。パラメータ  $\theta_i$ 、位置  $z_j$  における温度  $y_{ij}$  を集めたデータセット  $\mathcal{D} = \{(\theta_i, z_j, y_{ij}) \mid i = 1, \dots, n, j = 1, \dots, N\}$  に対するサロゲートモデル  $S_{\text{GPR}}$  を式(8)に示す。

$$S_{\text{GPR}}(\mathbf{x})|\mathcal{D} \sim \mathcal{N}(m(\mathbf{x}), V(\mathbf{x})), \mathbf{x} := g(\theta, z) \quad (8)$$

ここで  $g$  は、3.1節のNNのサロゲートモデルで使用した正規化するための関数と同様である。また  $m$  と  $V$  は、カーネル関数  $k(\mathbf{x}, \mathbf{x}')$  を用いて、それぞれ式(9), (10)と表される。 $K$  は  $K_{ij} = k(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j)$  を成分とする行列、 $\sigma^2$  は観測ノイズの分散、 $\mathbf{y}$  は  $\mathbf{y}_i := (y_{i1}, \dots, y_{iN})^T$  を縦に並べたベクトルである。

$$m(\mathbf{x}) = \mathbf{k}^T(K + \sigma^2 I)^{-1} \mathbf{y} \quad (9)$$

$$\mathbf{k} = (k(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}), \dots, k(\mathbf{x}_n, \mathbf{x}))^T$$

$$V(\mathbf{x}) = k(\mathbf{x}, \mathbf{x}) - \mathbf{k}^T(K + \sigma^2 I)^{-1} \mathbf{k} \quad (10)$$

#### 4.2 考案手法

本節では、考案手法のアルゴリズムの詳細について述べる。本手法のモチベーションや先行研究との関連については後述(4.4節)する。

考案手法は主に、①パラメータ同定値の初期化または更新、②サロゲートモデル構築、③次の観測点の予想・観測の3つからなる。①から③の一連の流れを繰り返すことで、パラメータを同定する。①では、式(11)を目的関数として、観測済みの中から最良のパラメータを取得する。式(11)は、パラメータ  $\theta$  に対して、 $z$  方向に  $N$  点の温度を予測したときの、ターゲットと予測結果の差異のMSEを表している。

$$\mathcal{L}_1(\theta) = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N (m(\mathbf{x}_j) - y_j)^2 \quad (11)$$

②では4.1節に従いサロゲートモデルを構築する。具体的には、式(9), (10)の平均  $m$ , 分散  $V$  を算出し、モデルのハイパーパラメータを最適化する。③では、式(12)で定義する評価関数を用いる。

$$\mathcal{L}_2(\theta) = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \frac{(m(\mathbf{x}_j) - y_j)^2}{V(\mathbf{x}_j)} \quad (12)$$

式(12)内の  $\frac{(m(x_j)-y_j)^2}{v(x_j)}$  は、座標  $z_j$  におけるモデルの予測とターゲットとの差異をガウス過程回帰の分散  $V(x_j')$  で正規化したものである。これは、後述するベイズ最適化の獲得関数と同様に、モデルの不確かさを考慮した評価指標となっている。この項は、予測とターゲットの差異が小さい場合だけでなく、差異が大きくても分散も大きければ全体として小さくなる。したがって、分散が大きい、すなわちモデルが十分に学習できていない未知のパラメータに対しても小さい値を示すため、それらの領域を探索することができる。

これらの手続きをまとめ、考案手法のアルゴリズムを Algorithm 1 に示す。ここで、 $t$  は試行回数である。

---

**Algorithm 1** : ガウス過程回帰を用いたパラメータ同定アルゴリズム

---

入力 : データセット  $\mathcal{D}$ , 目標出力  $y_0$

初期化:  $\theta^* = \underset{\theta_i}{\operatorname{argmin}} \mathcal{L}_1(\theta_i)$

for  $t = 1, 2, \dots$  do

Step 1: データセット  $\mathcal{D}$  に対するサロゲート

モデル  $S_{\text{GPR}}$  の構築

Step 2: 評価関数の最小化

$$\hat{\theta} = \underset{\theta}{\operatorname{argmin}} \mathcal{L}_2(\theta)$$

Step 3: パラメータ  $\hat{\theta}$  に対して、 $N$  個の位置  $z_j$  における出力  $y_j$  の観測

Step 4: データセットの更新

$$\mathcal{D} \leftarrow \mathcal{D} \cup \{\hat{\theta}, z_j, y_j\}_{j=1}^N$$

Step 5: パラメータ同定値の更新

$$\theta^* \leftarrow \hat{\theta} \text{ if } \mathcal{L}_1(\hat{\theta}) < \mathcal{L}_1(\theta^*) \text{ else } \theta^*$$

出力:  $\theta^*$

---

### 4.3 パラメータの同定結果

初期状態を  $n = 3$  のデータとして、Algorithm 1 に基づき、パラメータ同定を行った過程を図 10 に示す。なお、パラメータ探索空間は連続空間として扱うことが可能だが、2 章において用意したシミュレーションデータのなすパラメータ探索空間は離散的である。そのため、ここでは、 $\hat{\theta}$  を求めた後、その最近傍のパラメータを取得している。

図 10 は、Algorithm 1 の step 2 における、全探索空間での  $\mathcal{L}_2$  の値を表す。観測済みのデータ点付近で

は  $\mathcal{L}_2$  の値が大きくなっている一方、観測済みのデータ点から離れた領域や探索空間の端において値が小さくなっており、この領域内にある極小点が次の観測候補とされている。新たなデータ点を観測後  $\mathcal{L}_2$  の概形は当該データ点における値が大きくなるよう変化し、再度次の観測候補のデータ点が示されている。また、パラメータ同定の過程で、一度ターゲット点へ近づいた後、探索空間の端へ移動し、再度ターゲット点へ近づく様子が確認できる。次の観測点が最も真値へ近づいた  $t = 7$  におけるサロゲートモデルの温度予測を図 11 に示す。ターゲット温度分布に対し、サロゲートモデルの予測の期待値が一致していることが確認できる。

上記の検証ではターゲット値が探索空間の中央に位置していたが、その他の位置でも同定が可能か追加の検証を行った。 $(\widetilde{k}_{f,0}, \widetilde{k}_{r,0}) = (0.9, 0.5), (0.6, 0.4)$  とターゲット値を変更しパラメータ同定を行った結果が、それぞれ図 12 と図 13 であり、同様にパラメータ同定できていることが確認できる。なお、図 12、図 13 では、上記の  $(\widetilde{k}_{f,0}, \widetilde{k}_{r,0})$  の値を  $(\widetilde{k}_{f,0}, \widetilde{k}_{r,0}) = (1.0, 1.0)$  と再定義し軸の値を変更している。

### 4.4 先行研究との関連性

繰り返しデータを観測しながらパラメータを同定するという逆問題は、典型的にはベイズ最適化手法が有力である。ベイズ最適化では、評価関数をガウス過程回帰でモデル化し、これまでの最適値から改善される見込みを獲得関数とよばれる指標によって評価することで最適化を行う。獲得関数は、ガウス過程回帰により推定された予測の期待値と標準偏差で記述され、代表的なものには、改善確率や期待改善量、信頼性上限などがある。いずれも探索（観測済みデータ点から離れた点を観測）と活用（現状の最適解近くの点を観測）の 2 つの効果を含むとされる。

しかし、ここで扱う問題は、モデルの入力に最適化対象のパラメータ  $\theta = (k_{f,0}, k_{r,0})$  だけでなく空間座標  $z$  も含まれるため、通常通りベイズ最適化の手法を適用することができない。単純には、空間座標ごとのモデルの出力と、ターゲットとの二乗ユークリッド距離でもって複合した目的関数を定義する方法が考えられる。例えば、Uhlenholt と Jensen<sup>5)</sup> は多出力ガウス過程回帰モデルを用いたベイズ最適化手法を提案している。

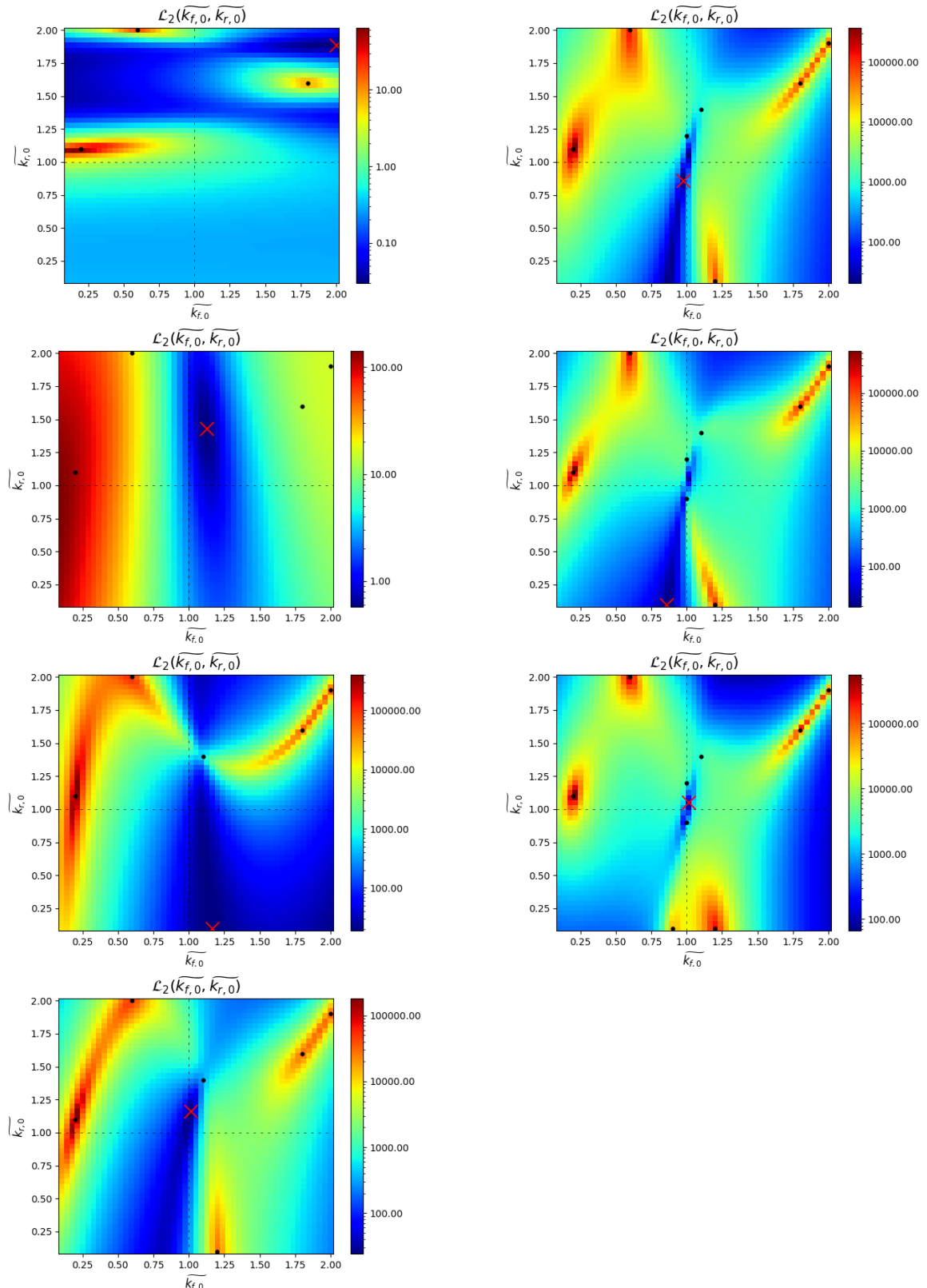


図 10 パラメータ同定の様子 1 (左上から下に向かって  $t = 1, 2, 3, 4$ , 右上から下に向かって  $t = 5, 6, 7$ )  
 (点線の交点: ターゲット点に対応, 黒丸: 観測点, 赤色×印: 次の観測点)

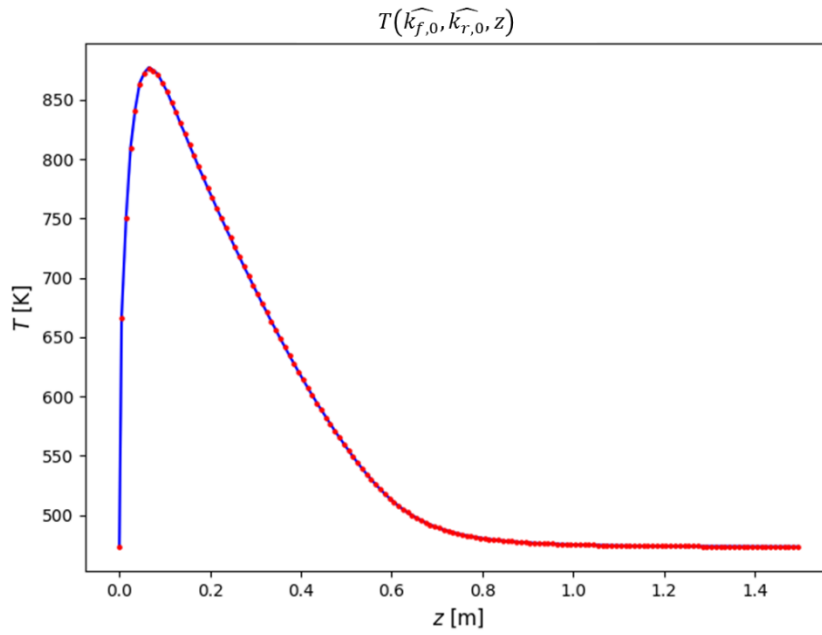


図 11  $t = 7$  での観測候補点におけるサロゲートモデルの予測  
(赤点：ターゲット温度分布，青実線：サロゲートモデルによる予測分布)

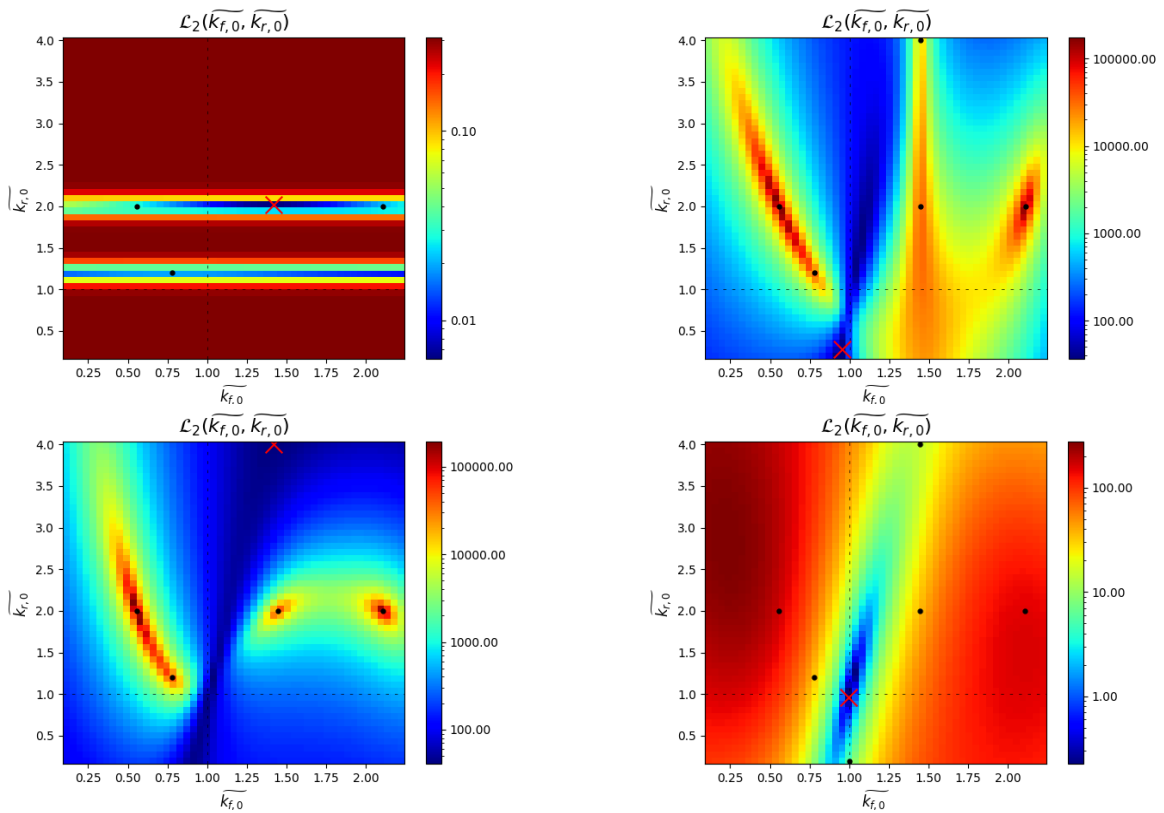


図 12 パラメータ同定の様子 2 (左上から下に向かって  $t = 1, 2$ , 右上から下に向かって  $t = 3, 4$ )  
(点線の交点：ターゲット点に対応，黒丸：観測点，赤色×印：次の観測点)

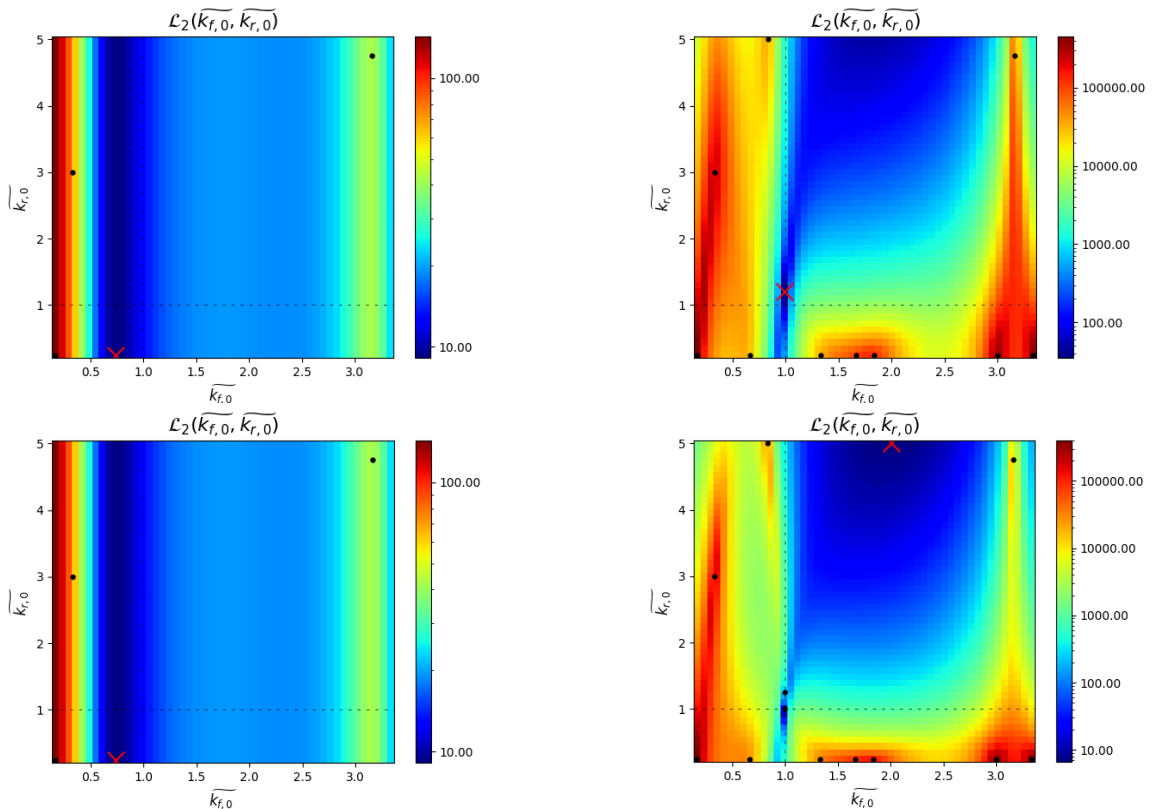


図 13 パラメータ同定の様子 3 (左上から下に向かって  $t = 1, 5$ , 右上から下に向かって  $t = 8, 10$ )  
(点線の交点：ターゲット点に対応，黒丸：観測点，赤色×印：次の観測点)

しかしこの場合、関数の構造などの有力な情報が欠落してしまうことが Huang ら<sup>6)</sup>に指摘されている。そこで Huang ら<sup>6)</sup>は関数主成分分析<sup>7)</sup>(FPCA)を適用することで、モデルの構造を抽出した目的関数を用いるベイズ最適化手法を提案している。また Matsui ら<sup>8)</sup>は Alvarez ら<sup>9)</sup>の多出力ガウス過程回帰モデルを用いつつ、出力間の相関を考慮した獲得関数を用いることで、関数などの構造出力を扱うベイズ最適化手法を提案している。

考案手法は、ベイズ最適化と同様に、スカラー出力のガウス過程回帰モデルを使用している。また、獲得関数の探索と活用に相当する効果は、4.2 節で説明したように、式(12)に含まれている。さらに、式(12)のように空間方向の分散をまとめて扱うことで、先行研究とは異なるスカラー出力を用いたアプローチでありつつも、関数の構造を考慮した最適化手法となっている。

#### 4.5 考察

今回の問題設定において、考案手法を用いることで、パラメータ同定が可能であることを確認した。今

後は、ノイズ下での振る舞いや、より高次元のパラメータ探索空間内でのパラメータ同定、空間座標が固定値でない場合での追加検証と手法の改善が考えられる。また、4.4 節で触れたように、ベイズ最適化における獲得関数と、考案手法における式(12)の関係性を明らかにすることなども考えられる。

#### 5 メタネーション反応への PINN の適用試行

3 章の最後に述べたように、NN による同定精度向上に向けた取り組みとして、PINN (Physics-Informed Neural Network)<sup>10)</sup>の適用が考えられる。PINN では、問題の系が従う支配方程式からのずれを自動微分機能で評価し、損失関数へ追加することで、NN に支配方程式を組み込むことができる。そのため、未知の入力に対しても、系の支配方程式に従った予測をすることが可能である。

ここでは、PINN を用いたパラメータ同定の試行として、CO<sub>2</sub> メタネーション反応をより単純化した式(13)、(14)で表される化学種 2 種からなる可逆反応を考える。

$$\frac{dA(t)}{dt} = -k_1A(t) + k_2B(t) \quad (13)$$

$$\frac{dB(t)}{dt} = k_1A(t) - k_2B(t) \quad (14)$$

ここで  $A(t), B(t)$  は化学種 A と B の各時刻  $t$  におけるモル分率,  $k_1 = 0.5, k_2 = 0.1$  は反応速度定数とする。

PINN の学習には, 支配方程式のずれを表す損失関数 (loss (PDE)) と, 与えたシミュレーションデータからのずれを表す損失関数 (loss (data)) を用いた。パラメータ  $k_1$  を学習可能パラメータとし, NN の重みの学習と同時に  $k_1$  の値を最適化し同定する。学習後の PINN の  $A(t), B(t)$  の予測を図 14 に, パラメータ  $k_1$  と loss (PDE), loss (data) との関係を図 15 に示す。図 14 からモデルの予測が, 与えたシミュレーションデータと一致していること, 図 15 からパラメータ  $k_1$  を約 0.5 と同定できていることが確認できる。

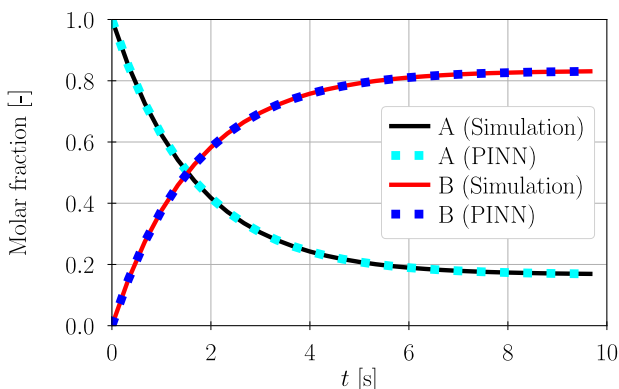


図 14 学習後の PINN の予測

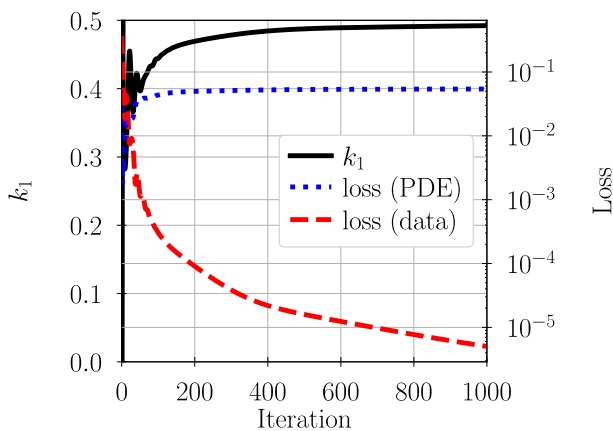


図 15 PINN の学習曲線と, パラメータ同定結果

## 6 おわりに

本稿ではサロゲートモデルを用いた化学反応パラメータの同定方法を紹介した。反応器内での  $\text{CO}_2$  メタネーション反応における反応速度定数を同定する逆問題を考え, NN とガウス過程回帰からなる 2 種類のサロゲートモデルを用いてパラメータ同定を行い, 同定精度を評価した。後者においては, 考案手法を用いて, パラメータ同定が可能であることを確認した。精度向上策として, パラメータ同定に PINN を組み込むことを想定し, 単純化したメタネーション反応に PINN を適用した結果を紹介した。

本稿で扱ったメタネーション反応は単一の総括反応式を対象としたが, 考案したパラメータ同定の枠組みは, より複雑な反応系にも適用可能である。例えば, 複数の素反応が連鎖する多段反応など, 同定すべきパラメータ数が増加し探索空間が広大になった際, 本アプローチによる効率的なデータ点探索は, 観測回数を抑制する上でさらに重要性を増すと考えられる。また, 本アプローチは特定の反応モデルに依存せず, メタネーション反応以外にも, 反応器内の温度や濃度分布といった観測データから未知パラメータを推定する逆問題全般に適用できる汎用性を持つため, 様々な化学プロセスの開発・運用においてシミュレーションと観測データの差異を埋める有用な手段となり得る。

今後の方向性として, 反応器内の  $\text{CO}_2$  メタネーション反応に関する支配方程式を PINN で実装することを考えている。また, PINN とガウス過程回帰モデルを組み合わせた手法<sup>11)</sup>なども提案されているため, 考案手法も含め, PINN とほかの手法との組み合わせについても検討を進める。そして, 観測データから未知のパラメータを同定する手法を確立することで, シミュレーションを用いた効率的なものづくりやプラント運用に貢献していきたい。

## 引用文献

- 1) Cheng, Mengyu, et al.: A review of data-driven surrogate models for design optimization of electric motors, *IEEE Transactions on Transportation Electrification*, (2024).
- 2) Marrel, Amandine, and Bertrand Iooss.: Probabilistic surrogate modeling by Gaussian process: A review on recent insights in estimation and validation, *Reliability Engineering & System Safety*, (2024)

- 110094.
- 3) Faria, Catarina, et al.: Process intensification concepts for CO<sub>2</sub> methanation— A review, *Fuel*, 386 (2025) 134269.
  - 4) Lin, Yixiong, et al.: Inhibition of temperature runaway phenomenon in the Sabatier process using bed dilution structure: LBM - DEM simulation, *AIChE Journal*, 67.10 (2021) e17304.
  - 5) Uhrenholt, Anders Kirk, and Bjørn Sand Jensen.: Efficient Bayesian optimization for target vector estimation, *The 22nd International Conference on Artificial Intelligence and Statistics*. PMLR, (2019).
  - 6) Huang, Chaofan, et al.: Bayesian optimization of functional output in inverse problems, *Optimization and Engineering*, 22 (2021) 2553-2574.
  - 7) Wang, Jane-Ling, Jeng-Min Chiou, and Hans-Georg Müller.: Functional data analysis, *Annual Review of Statistics and its application*, 3.1 (2016) 257-295.
  - 8) Matsui, Kota, et al.: Bayesian active learning for structured output design, *arXiv preprint*, arXiv:1911.03671 (2019).
  - 9) Alvarez, Mauricio A., Lorenzo Rosasco, and Neil D. Lawrence.: Kernels for vector-valued functions: A review, *Foundations and Trends® in Machine Learning*, 4.3 (2012) 195-266.
  - 10) Raissi, Maziar, Paris Perdikaris, and George E. Karniadakis.: Physics-informed neural networks: A deep learning framework for solving forward and inverse problems involving nonlinear partial differential equations, *Journal of Computational physics*, 378 (2019) 686-707.
  - 11) Long, Da, et al.: AutoIP: A united framework to integrate physics into Gaussian processes, *International Conference on Machine Learning*. PMLR, (2022).