

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	深層学習を用いた香気物質の印象予測モデルの研究
Title(English)	
著者(和文)	野崎 裕二
Author(English)	Yuji Nozaki
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10707号, 授与年月日:2017年12月31日, 学位の種別:課程博士, 審査員:中本 高道,渡邊 澄夫,長谷川 修,長谷川 晶一,高村 大也
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10707号, Conferred date:2017/12/31, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Type(English)	Doctoral Thesis

博士論文

深層学習を用いた香気物質の
印象予測モデルの研究

野崎 裕二

東京工業大学 大学院総合理工学研究科
知能システム科学専攻

2017年12月

目次

1.	序論.....	3
1.1.	はじめに.....	3
1.2.	ヒトによる匂いの認識のメカニズム.....	4
1.2.1.	生体における匂い認識の仕組み.....	4
1.2.2.	嗅覚受容体の働き.....	6
1.3.	分析器(GC/MS)による匂い物質のデータ化.....	7
1.4.	分子の性質と匂いの性質.....	9
1.4.1.	嗅覚受容体の選択性とリガンド構造の関係.....	9
1.4.2.	マススペクトルとの関係.....	10
1.5.	生理学的手法による匂いの測定.....	11
1.6.	官能検査による匂いの評価.....	12
1.6.1.	分析型官能検査.....	12
1.6.2.	嗜好型官能検査.....	14
1.7.	機械学習を用いた予測モデルの研究動向.....	16
1.7.1.	線形予測モデル.....	16
1.7.2.	非線形予測モデル.....	18
1.7.3.	次元削減(特徴抽出).....	19
1.7.4.	クラスタリング.....	24
1.8.	匂い印象予測方法の研究動向.....	25
1.8.1.	嗅覚受容体モデル (Olfactory Receptor Neuron Model; ORN モデル).....	25
1.8.2.	分子の特徴からの匂いの予測に関する先行研究.....	26
1.8.3.	他の予測モデルと提案モデルの特徴比較.....	36
1.9.	本研究の目的と意義.....	37
2.	深層学習を用いた匂い印象予測モデル.....	39
2.1.	「匂い印象予測モデル」の概要.....	39
2.1.1.	ニューラルネットワークについて.....	39
2.1.2.	確率的勾配降下法.....	42
2.1.3.	誤差逆伝播法.....	42
2.1.4.	慣性項と正則化.....	43
2.1.5.	データの正規化と重みの初期値.....	44
2.1.6.	深層ニューラルネットワーク.....	44
2.1.7.	深層オートエンコーダ.....	45
2.1.8.	本研究における匂い印象予測のモデル化のアプローチ.....	45
2.2.	研究で使用するマススペクトルデータについて.....	45
2.3.	研究で使用する官能検査データについて.....	46
2.3.1.	Dravnieks.....	46
2.3.1.1.	記述子間の相関係数.....	48
2.3.1.2.	主成分分析.....	51
2.3.2.	Sigma-Aldrich.....	52
2.3.2.1.	記述子の選定.....	54
2.4.	まとめ.....	55
3.	連続値で表現される匂い印象の予測.....	56
3.1.	概要.....	56
3.2.	モデルのコンセプトと構成.....	56
3.3.	実験条件.....	59

3.3.1.	使用したサンプル	59
3.3.2.	比較するモデルと評価方法	61
3.4.	ハイパーパラメータの探索	64
3.5.	次元圧縮数の決定と主成分分析との比較	66
3.6.	実験結果	70
3.7.	考察	73
3.8.	まとめ	75
4.	離散値で表現される匂い印象の予測	76
4.1.	概要	76
4.2.	モデルのコンセプトと構成	76
4.2.1.	事前実験	76
4.2.2.	匂い記述子のクラスタリング	78
4.2.3.	モデルの構成	85
4.3.	実験条件	86
4.3.1.	使用したサンプル	86
4.3.2.	比較するモデルと評価方法	86
4.4.	ハイパーパラメータの探索	86
4.5.	モデルの性能の評価	88
4.6.	考察	90
4.7.	まとめ	90
5.	ニューラルネットワークの距離関数の検討	91
5.1.	匂いの印象予測における板倉斎藤距離の優位性	91
5.2.	誤差関数としての板倉斎藤距離	93
5.3.	単純パーセプトロンを用いた実験	95
5.3.1.	実験条件	95
5.3.2.	実験結果	95
5.4.	板倉斎藤距離の深層オートエンコーダへの応用	98
5.4.1.	実験条件	98
5.4.2.	実験結果	99
5.5.	考察	101
5.6.	まとめ	101
6.	板倉斎藤距離を用いたニューラルネットワークによる匂い印象の予測モデルの検討	102
6.1.	概要	102
6.2.	モデルのコンセプトと構成	102
6.3.	実験条件	103
6.3.1.	使用したデータ	103
6.3.2.	比較するモデルと評価方法	106
6.4.	ハイパーパラメータの探索	106
6.5.	実験結果	108
6.5.1.	2つのオートエンコーダによるマスペクトルの次元圧縮	108
6.5.2.	7層ニューラルネットワークを用いた匂い印象予測モデルの性能比較	109
6.1.	考察	112
6.2.	まとめと今後の課題	119
7.	結論	120
8.	謝辞	122
9.	参考文献	123

第一章

1. 序論

1.1. はじめに

人は視覚、聴覚、触覚、嗅覚、味覚の五感を通して外界の情報を受け取る。五感を通して得られた情報により周囲の状況を分析して反応するのは他の生物も同様である。五感のうち、嗅覚と味覚は化学物質の知覚と認識を担う。動物にとって、嗅覚は餌や獲物の匂いをまたは生殖の相手を遠隔から捉えるための、生命の維持や種の存続に関わる重要な役割を持つ。我々の社会における匂いの性質や品質は、食べ物や飲み物、化粧品、工業製品、室内空気の品質管理や空気・水質の汚染において非常に重要となる感覚的な特性である。

匂いは嗅覚を用いた化学的刺激を受容した結果として生じるものである。匂いの根源は空气中（または水中）に存在する分子であり、この分子が受容され脳において情報処理された結果が我々が認識する「匂い」である。1991年のBuckとAxelによる匂い受容体の発見の報告以降、嗅覚における匂い受容の生物学的な理解は目覚ましい進歩を遂げてきたが、分子の持つ膨大なパラメータ、例えば分子量や官能基などが我々の認識にどのように結びついているかは理解されていない。分子の構造が変化した時、それが人間の知覚にどのように影響するのだろうか？人の嗅覚受容と分子の関係を見つけるための研究は今日も世界中で行われている。

化学物質に対する匂いの認識や嗜好は先天的なものと後天的(あるいは文化的)に獲得されたものが混在する。実験室で育ったマウスが天敵であるキツネの匂いに対して忌避反応を示すことは先天的な反応の有名な例であるし、嗅覚心理学の研究者として著名なハーツ博士が一般には好まれないスカンクの匂いを好むのは後天的に獲得される嗜好を示す例である。このように、同じ分子から生じる匂いであってもその受け取り方は人間によって異なる。後天的に培われる匂いの嗜好は個人によって異なるものであるが、例えばバラや蜜柑などの匂いは一般的には「良い匂い」という共通認識を持たれていると考えて問題ない。

匂いの印象を個体間で共有するにはどうすれば良いだろうか。匂いを共有するための手段として最もよく用いられるのは言語によるコミュニケーションである。しかし、匂いを言語で表現することを考えた時、自分の感じた匂いを正確に表現するためにはどのような言葉を用いれば良いだろうか？この質問に対する解は我々は現時点で持ち得ていないものの、我々の間では不十分ながらも言語表現によって匂いの情報をコミュニケーションする方法は確かに用いられている。本研究が分子の物理化学的な特徴と生じる匂いの関係を解明する一助になることを願う。

1.2. ヒトによる匂いの認識のメカニズム

1991年のBuckとAxelによる匂い受容体の発見により、匂い物質(分子)の受容機構の解明は飛躍的に進歩した。両氏は2004年にその発見によってノーベル生理学・医学賞を受賞した。ここでは匂い物質の受容機構に関する生物学的な側面について解説する。

1.2.1. 生体における匂い認識の仕組み

人間は呼吸とともに空気中に漂う匂い物質を感知する。鼻孔より吸入された匂いは、嗅上皮(Olfactory Epithelium)に備わった嗅細胞(Olfactory Receptor Neuron; ORN)を化学的に刺激する。嗅細胞の樹状突起(Dendrite)の先端部からは嗅繊毛(Cilia)が生えており、この嗅繊毛の膜内には嗅覚受容体(Olfactory Receptor)が発現している。従って1つの嗅細胞は1種類の嗅覚受容体を持つ。特定の種類の嗅覚受容体が発現した嗅細胞はすべて、対応する1つの糸球体(Glomerulus)に繋がっている。人間の嗅覚受容体の種類は400種類程度と言われ、それぞれの嗅覚受容体が匂い物質に対して選択的に反応することで匂い物質に対応して1つの反応パターンを作り出す[1][2]。また、一部の動物にはフェロモンの情報処理を行うための鋤鼻器官(Vomerinal Organ)と呼ばれる副嗅球(Accessory Olfactory Bulb)系が備わっているが、人においてはこの副嗅球系は退化していることが知られている[3]。発生した電気信号のパターンは嗅細胞の軸索を通過して嗅球へと伝達される。嗅球は脊椎動物に備わる脳の組織のひとつであり、嗅神経からの入力を受けて、初期の嗅覚情報処理を担う部分である。嗅上皮における匂い物質の受容から嗅球に至るまでの様子を図1-1に示す。

嗅覚情報は嗅球から伸びた軸索を介して最終的には海馬、前梨状皮質、扁桃体、眼窩前頭皮質へと到達し脳における高度な情報処理の結果として匂いとして認識される[4]。この様子を図1-2に示す。海馬や扁桃体は匂いから引き起こされる感情や記憶に関係しており、眼窩前頭皮質は匂いの認知に関与していると考えられている。実際には嗅球以降の嗅覚神経経路は少なくとも2つの経路が存在することが明らかになっている。これは高木らの研究グループによって行われたアカゲザルに関する研究の中で報告された[5]。1つの経路は視床を経由せず、視床下部の外側部を経由して眼窩前頭皮質の外側後部に投射する経路であり、もう1つの経路は視床の背内側核を経由して眼窩前頭皮質の中央後部に投射する経路である(図1-3)。前者の経路を通しては「匂いの知覚・識別」が行われており、後者の経路においてはより統合的な匂い情報の処理が行われていると考えられている。

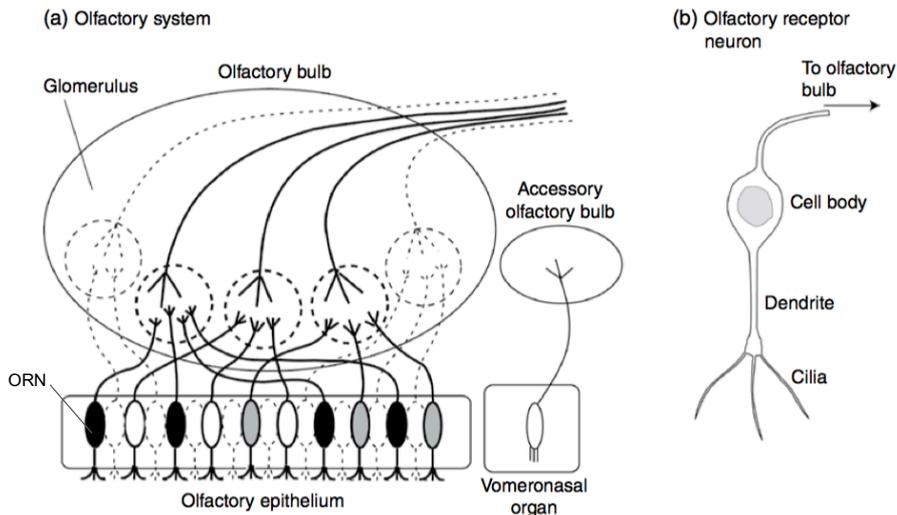


図 1-1 哺乳類の嗅覚系 [2]より

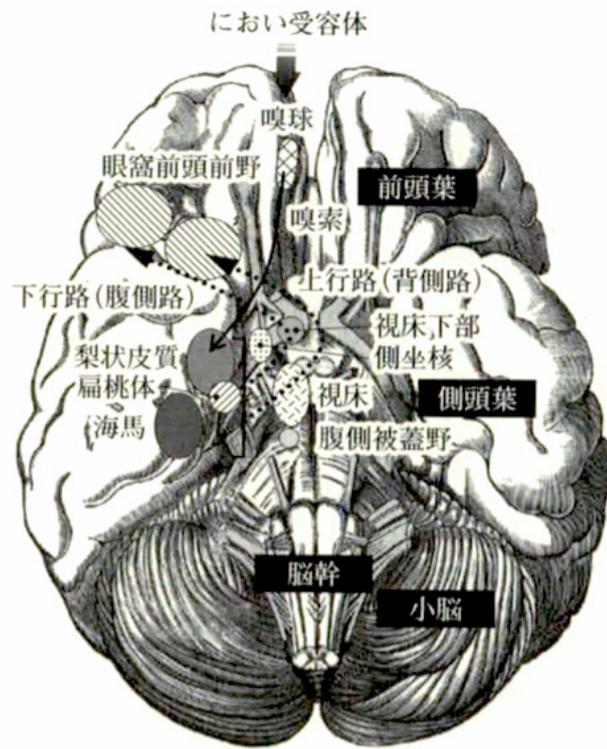


図 1-2 大脳における嗅覚情報の処理の様子 [4]より

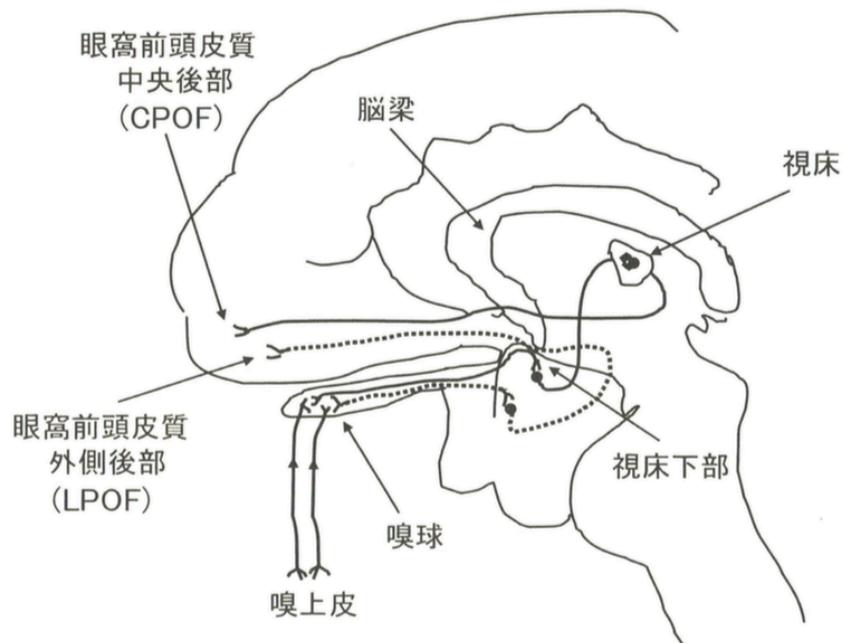


図 1-3 アカゲザルの2つの嗅覚神経経路と嗅覚中枢 [3], [5]より

1.2.2. 嗅覚受容体の働き

Buck と Axel による匂い受容体の分子モデルを図 1-4 に示す。匂い受容体は細胞外に H₂N 末端、細胞内に COOH 末端がある 7 回膜貫通型 G 蛋白質共役型の受容体である。動物にはおよそアミノ酸配列の異なる 1000 種類の受容体があると考えられている。人間についていえば、受容蛋白質に関係する遺伝子の数は 400 種類程度であると言われる。これらはヒトゲノム研究の進展において遺伝子の全配列が解明されることに関連して明らかとなった。匂い物質が人に受容される時、この約 400 種類の受容体の反応パターンの組み合わせによって、その匂いが何であるかを認識しているとわかっている [6]。

個人の間で匂いの嗜好が異なる理由には後天的文化的要因もあるものの、先天的な遺伝子的要因があることも示唆されており、この嗅覚受容体遺伝子が個人の間で差異が原因であることも報告されている。2007 年には Keller らにより、ある匂い分子に特異的に反応する嗅覚受容体の遺伝子型の微妙な違いが、匂いの印象の知覚(Pleasant - Unpleasant)の個人差となって現れることが報告された [7]。図 1-5 は 3 つの異なる遺伝子のバリエーションの OR7D4 を有する被験者のグループ(RT/RT, WM/WM, RT/WM の 3 グループ)の間で Androstenone 及び Androstadienone の匂い印象に差が生じることを示している。

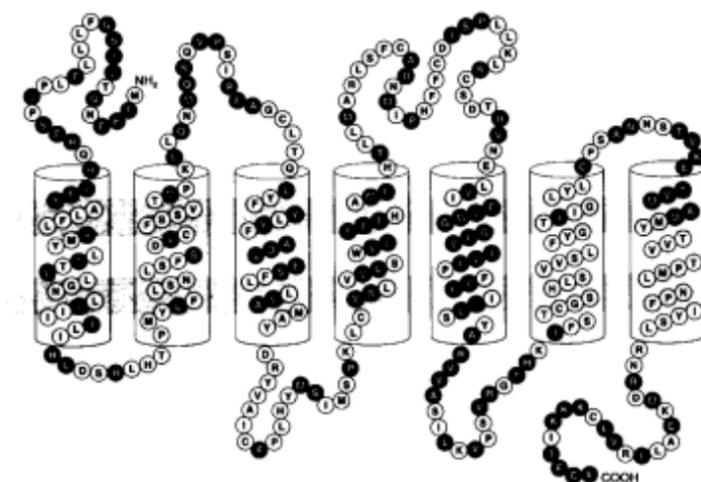


図 1-4 7 回膜貫通型の匂い受容体 [1]より

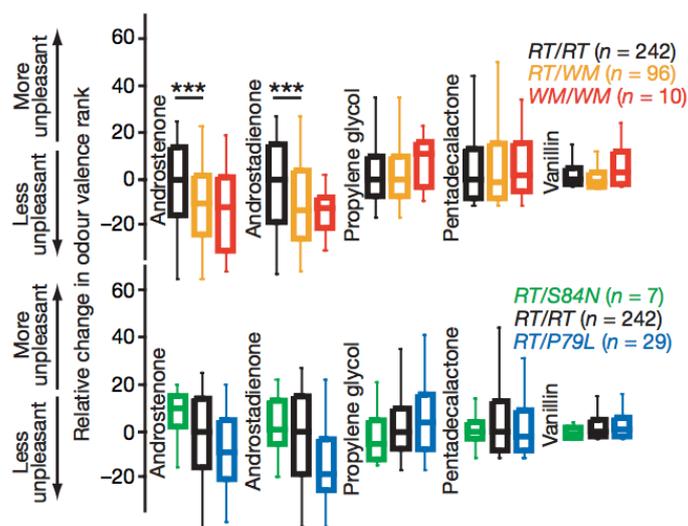


図 1-5 OR7D4 の差異から生まれる匂い印象の差 [7]

1.3. 分析器(GC/MS)による匂い物質のデータ化

人が感じる匂いの印象の元は空気中に含まれる化学混合物である。この混合物を構成する化学物質の混合比や濃度を測定するためには化学センサや分析機器が用いられる。化学センサとしては水晶振動子に高分子素材で構成される吸着膜を塗布し、質量負荷効果に伴う水晶振動子発信周波数の変化を利用する水晶振動子(Quartz Crystal Microbalance; QCM)センサ[8]や、その他にも金属酸化物半導体センサ、電界効果トランジスタ、弾性表面波デバイスや実際の生体細胞を用いたものなど、数多くの化学センサが存在する[9]。

ガスクロマトグラフィー質量分析法(Gas chromatography-mass spectrometry; GCMS)はクロマトグラフ法により被測定対象のガスを成分ごとに分離した後に質量分析器によってマススペクトルを測定する手法である[10]。ガスクロマトグラフィー装置を図 1-6 に示す。また GCMS 法では、得られるマススペクトルがどの成分に因るものなのかを知ることができる一方で成分の分離に多くの時間が必要なために分析時間が長くなる欠点を持つ。

コーネル大の Acree らはガスクロマトグラフィー・オルファクトメトリー法を開発した(図 1-7,[11][12])。同手法はガスクロマトグラフィのカラムから排出される空気を嗅ぐことで、特定の分子と匂いと関連づけるために用いられる。また、Acree らは多数の化学物質から構成される匂いサンプルに含まれるそれぞれの化学物質について、相対的な匂いの強さを数値的に表す方法を考案した。サンプル中の化学物質の濃度を、物質単独での匂いを認識できる嗅覚閾値で割って得た指数を用いる。この指数が 1 に近い分子が人間が検出できる下限の分子であり、この指数が高くなるにつれて全体の匂いに対する寄与が大きくなり、1 よりも小さければ人は匂いとしては検出できないものとなる。

質量分析器(Mass Spectrometry)のみによる試料の測定は短い時間で測定できるため、多変量解析と組み合わせることで試料の分析・選別を行うことができる。質量分析器による測定では微量の試料の分子はイオン化され、電場・磁場により質量電荷比(m/z)毎に分離する。それぞれの m/z のフラグメントイオンは装置検出部に備わった電子倍增管により電流信号に変換され、イオン量に比例した強度信号となって記録される。例としてトランス-2-ヘキセナール(分子量 98.14)のマススペクトルを図 1-8 に示す。現在では電子イオン化に際しては 70eV が用いられるのが一般的である。試料の m/z の構成比(マススペクトル)は同一のイオン化条件のもとで固有のパターンとなる。マススペクトルには開裂したフラグメントに起因するフラグメントピークが含まれ、これは官能基などの匂いの性質に影響を与える分子の部分的な構造の情報が含まれる[13], [14]。



図 1-6 中本研究室の GCMS 装置 (Agilent Technology 社 7890B)



図 1-7 ガスクロマトグラフィー-オルファクトメトリー(GL Science)

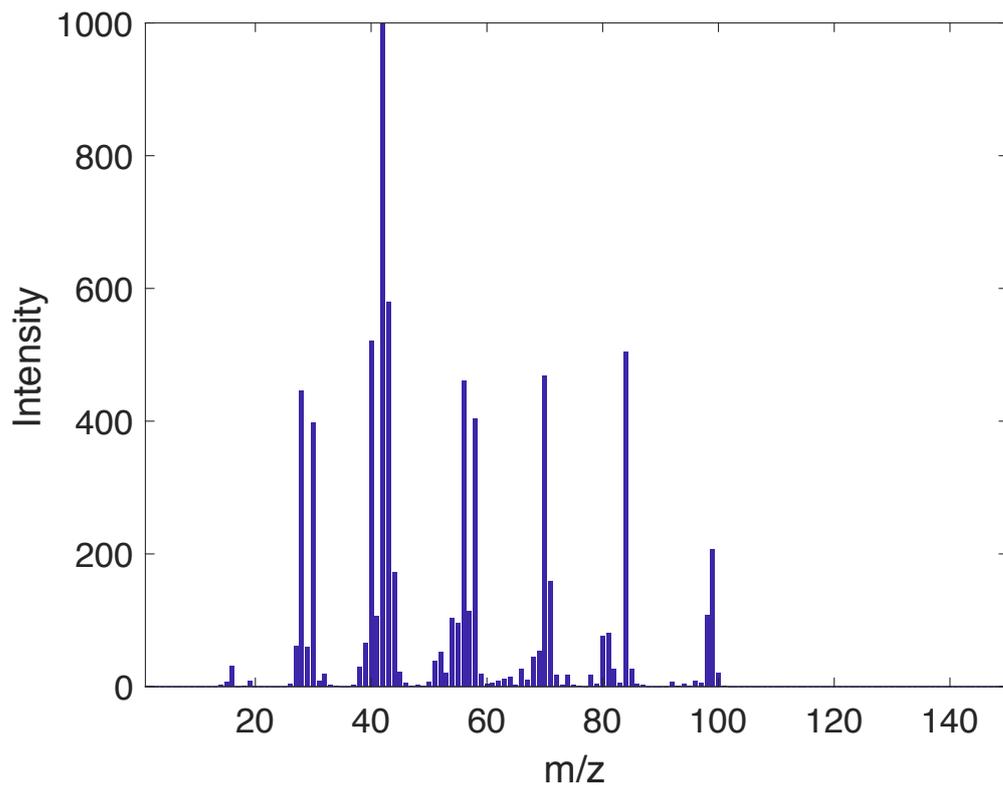


図 1-8 トランス-2-ヘキセナールのマススペクトル (NIST Chemistry WebBook[15]より)

1.4. 分子の性質と匂いの性質

切開した動物の嗅球に微小電極を挿入し、そこから電気信号を取り出すことにより、匂い刺激に対応した反応を取り出すことが出来ることは Back や Axel らの発見よりもはるか以前よりわかっていた[15]。当時では嗅覚系のある特定の部分が、ある特定の匂い刺激に対して特異的に反応することが期待されており、Amoore らはこうした神経科学的なアプローチにより「匂いの特性を実際に支配するのは分子のどのような性質か」という問題を解き明かそうとした[16]。仮説では匂いの分子は形状と電荷により選択されていることが唱えられた。Amoore の仮説は現在では不十分であるとされているが、両氏の発表した嗅覚受容体による匂い分子の受容原理と近いものである。現在では受容体の機能解析も進んでおり、分子形状や電荷などは嗅覚受容体の受容選択性に大きく関わることがわかっている。

1.4.1. 嗅覚受容体の選択性とリガンド構造の関係

哺乳類の嗅覚受容体は G 蛋白質共役型受容体に属する 7 回膜貫通型の蛋白質であり、膜貫通領域で疎水的相互作用により分子の形や大きさを認識する[13], [14], [17]。

これまでの研究により、ヒトの嗅覚受容体のうち十数種類の受容体のリガンドが決定され、その結果、個々の嗅覚受容体は構造の類似した複数の匂い分子を異なる親和性で認識することが明らかになった[18]。たとえばヒトの嗅覚受容体 hOR17-4 は構造に類似性のある匂い分子に反応する(図 1-10)。一方で個々の匂い分子は複数の嗅覚受容体に異なる親和性で認識される。すなわち、匂い分子が活性化する受容体の組み合わせは、それぞれ匂い分子ごとに異なる。人間が感じる事ができるすべての匂い分子に、それぞれ特有の受容体活性化パターンがあり、匂いの質は反応した嗅覚受容体の種類と反応強度の両方の情報により決定される(図 1-9)。

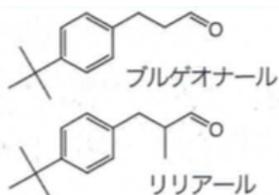


図 1-9 hOR17-4 に反応するリガンド例 [19]より抜粋

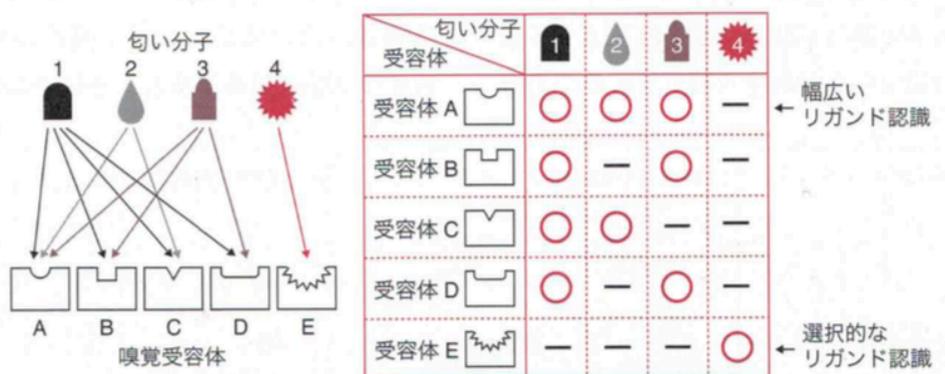


図 1-10 匂い認識と嗅覚受容体の活性化コードの対応 [19]より

同じ分子であっても、その分子を認識する嗅覚受容体の閾値がそれぞれで異なるので、匂い分子の濃度を変化させることで活性化される受容体の種類も変化する。濃度の変化によって受容体の反応する数が増えるために濃度による匂いの質が生み出させる。また、ある受容体を活性化する匂い分子が、別の受容体の応答を阻害するアンタゴニストとして作用することも報告されている[20]。この匂い分子同士の競合的なアンタゴニズムは、異なる香りを混ぜ合わせると全く新しい香りが生まれるという現象を説明する。

一般的な受容体は構造の類似した複数の匂い分子を認識するのに対し、限られた数の匂い分子を選択的に認識する受容体や、様々な構造・官能基を持つ分子を広く認識する受容体の存在も示唆されており[21][22]、わかっている範囲でも受容体の特異性は受容体毎に異なっている。

1.4.2. マススペクトルとの関係

マススペクトルは匂い物質の指紋に例えられこともある[4]。マススペクトルは同一の条件で行われれば匂い分子ごとにユニークとなる。マススペクトルには分子構造から定まる同位体分布に基づく同位体ピークや分子の持つ官能基に由来するフラグメントピークなど、匂いの性質に影響を与える分子の構造情報が含まれる。これらの分子構造を表すデータは受容体の活性パターンを導くのに有用である。実際には受容体は匂い分子に対してそれぞれ異なる閾値を持つため、匂い印象を真に正確に予測するにはマススペクトルに加えて濃度や温度・湿度などの周囲環境の情報を組み合わせることが望ましい。

人が匂いを知覚する際、その匂い物質は一般に混合物である。この時マススペクトルは成分であるそれぞれの分子のピークの足し合わせとなっている。従って混合物のマススペクトルに現れるピークはそれぞれ、分離した成分の分子に基づくピークであるが、匂いの”強さ”（すなわち人間に与える印象の程度である）を知りたいなら、ピークの大きさ自体はあてにはならない。マススペクトルに現れるピーク自体はたとえ大きくても無臭分子に基づくものであれば匂いは感じられない。一方で小さなピークであっても強烈な匂いを感じさせる臭気分子も存在する。特に分子量(m/z)の大きなピークの元となる匂い分子は、人間の嗅覚閾値が低い分子である場合が多く、こうしたものは例え小さなピークであっても匂いの認識に与える影響は大きい[23], [24]。

嗅覚受容体のアンタゴニストの存在により、匂いを足し合わせた時には、匂いの印象は全く異なるものとなることもある。マススペクトルは匂いの元である分子の構成示す情報の一つであるものの、マススペクトルと人の感じる匂いの印象との結びつきは単純ではなく、強い非線形な結びつきであると言える。

1.5. 生理学的手法による匂いの測定

「匂いの印象」は心理的な情報であるため、物理化学的に測定することは出来ない。しかし、人が匂いを認識している際には、その「匂いの印象」に対応する脳の活動パターンが脳内に現れているはずである。非侵襲な脳活動の計測方法は X 線 CT 技術の登場により著しい発展を遂げた。この技術を基にした脳の非侵襲計測の方法には、脳波の計測 (Electroencephalogram: EEG) や磁気共鳴撮影法 (Magnetic Resonance Imaging: MRI)、脳磁図 (Magnetoencephalography: MEG)、近赤外分光法 (Near Infrared Spectroscopy: NIRS) などが挙げられる。

現在では fMRI 法 (functional Magnetic Resonance Imaging) を用いて、視覚野の fMRI データから被験者が見ている対象によって脳の活動状況が変化することがわかっている。fMRI では脳活動が活発な部分はそうでない部分に比べてより多くの血液を消費していることから脳の動きや機能を調べる目的で用いられる。2009 年には前頭眼窩野の活性化状態から、人間が触覚を通して感じる「快と不快」を予測する研究が発表された [25]。匂いに対する fMRI の研究では、匂い刺激によって活性化される脳の部位を脳血流の増加と対応させて計測する。過去に行われた実験から匂い刺激に対する応答が前頭眼窩野の部位から観測されること、側頭葉を欠除した患者には嗅覚の著しい低下が認められることなどが分かっている [26][27]。

また匂い刺激により脳のどの領域が活性化するかは経験や記憶も関係していることがわかっている。フランスの Royet らの研究グループは、経験を積んだ調香師のグループが匂いの識別を行う場合と、調香師学校の訓練中の生徒のグループが匂いの識別を行う場合とでは、脳の活性化部位が異なることを、fMRI を用いた脳イメージングの解析結果とともに報告した [28]。図 1-11 はそれぞれの被験者グループの脳部位の fMRI 画像である。経験を積んだ調香師達は記憶を司る海馬付近が活性化していること、経験の浅い生徒達は意識に関わる前頭葉付近が活性化していることがわかる。こうした手法は今日でも匂いが脳の中で如何に処理されているかを解明する目的で広く行われている。

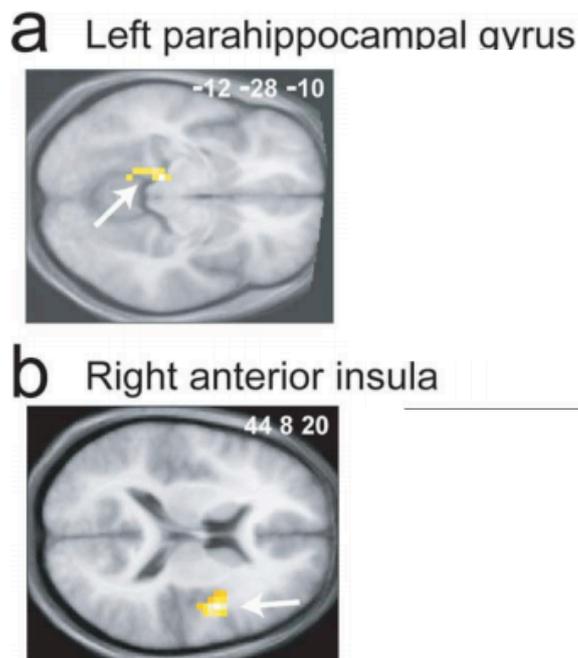


図 1-11 経験を積んだ調香師と訓練中の生徒の脳の活性化部位の違いを示す fMRI 画像 [28]
(a) 経験を積んだ調香師の海馬傍回の脳画像 (b) 訓練中の生徒の右前方島皮質

1.6. 官能検査による匂いの評価

人間の感覚器官を使って行う検査を官能検査(Sensory Evaluation, Sensory Test, Organoleptic Research)と呼ぶ。官能検査は場合によって官能検査、官能評価、官能測定などと呼ばれる。官能検査自体は古来より、おそらく人類の発生と共に生じたものであるはずだが、これが統計的方法を持って用いられるようになったのは1930年代頃からであると言われている[29]。

官能検査の行われる主な領域には機械部品のサビや傷、塗装の色やツヤ、エンジンやモータの音の不快感や布地の肌触り、刃物の切れ味、ワインや香料製品の匂いに到るまで幅広い。匂いの官能試験では検査者が対象から得られた嗅覚感覚を主観的に評価する。匂いに関する官能検査の手法には大きく嗜好型と分析型の2種類に分けられる[30]。

試験の結果は個人の主観的判断であるため、客観性を持たせるためには再験可能性を確保しなければならない。再験可能性を確保するための条件の一つは検査条件の明示である。これには(1)パネル(検査者群)の人数、訓練の程度、人種、年齢及び性別、(2)試料の生成法や温度、濃度、(3)容器の形状、容量、色彩、材質、(4)検査環境の温度、湿度、形状、換気の有無や照明の程度、(5)詳細な手順、(6)判断の尺度や検査で使用された質問票、(7)解析法などが最低限必要である。最終的には検査条件を揃えて行った複数人に対する試験結果の平均値などが用いられるが、官能検査においてはパネルは特に注意深く選ばれる必要がある[31]。精度の高い検査を行うには信頼性の高いパネルを用意しなければならない。Venstromらは性別差や年齢、喫煙の有無と嗅覚機能の関係性を調べるために、18種類の低級脂肪酸をサンプルに用いて97人のパネルに対して官能検査を行なった[32]。結果、性別の違いや喫煙の有無は嗅覚感度に影響を与えないが、嗅覚の感度には影響があり、およそ22歳をとることで嗅覚感度は半減することを報告した。匂いの閾値の判定には後述する三点識別法が用いられることが多い。また用意されたパネルは長時間の試験を、実験中に基準が変わることのないように安定していなければならない。

検査条件を統一すること、精度と安定性を揃えたパネルを揃えることが困難であることから、大規模な官能検査を行うことは容易ではない。また、化学物質に対する匂いの認識は先天的と後天的に獲得されたものが混在し、正確な表現のためにはどれだけの次元が必要なのかは分かっていない。官能試験に用いられる記述子も試験毎に異なる。

以下では官能検査入門[30]及び統計的官能検査法[31]より主要な官能検査手法を紹介する。

1.6.1. 分析型官能検査

分析型官能検査は検査者である人間の感覚を測定機として対象の特性の測定や被検査対象間の差の検出を行う官能検査である。ある標準となる匂いを持つ試料を用意し、被検査対象となる匂いとを嗅いで比べることで異常の有無や品質の検査などを行う。分析型官能検査は人間の感覚器官を使って品物の特性を知ろうとする官能検査である。分析型には二点識別法、1:2点法、一点識別法、三点識別法などがある。

・二点識別法

二点識別法(Paired difference test)はAとBの2種類の試料を比較し、感覚によって両者の間に順位をつける方法である。試料AとBの間には客観的な順位が存在している必要があり、検査者の感覚に基づいて判断した順位が客観的順位に一致するときには正答、そうでないときは誤答となる。検定は片側検定となる。二点識別法は検査者が2つの試料を識別する能力を持つかどうか、または2つの資料の間の差異が人間によって識別できる程度に大きいかどうかを調べる場合に用いられる。二点識別法を用いた例とし

て、「10%の蔗糖液と 11%の蔗糖液のどちらが甘いか」ということを検査者に指摘させる試験があげられる。識別能力を持つ人であっても間違える可能性があり、また識別能力を持たない人でも間違える可能性がある。2つの試料に差がないという帰無仮説の元、仮説を検定する。

- ・ 1:2 点法

1:2 点法(duo-trio test)では検査者に試料 A 与えられ、それが試料 A であることを教えられる(明試料)。次に A と B を内容がわからないように記号をつけて与えられる(盲試料)。検査者は 2 個の盲試料のうち、どちらが A であるかを指摘する。1:2 点法は二点識別法と同じ目的で使われるが、A と B の間の性質の差が不明である場合にも適用できるため、一般には出荷検査などの目的で使用される。この時 A は標準品、B は検査資料となる。1:2 点法の変形として、A と B を 1 個ずつ明試料として与える 2:2 点法がある。

- ・ 一点識別法

一点識別法(Single Sample difference test)試料 A と B が識別可能であるかどうかを調べるとき、m 個の A と n 個の B を用意し、ランダムな順番で 1 個ずつ検査者に提示し、それが各々 A であるか否かを判断させる方法である。ここの試料の判断の独立性を保つため、A の数及び B の数についての情報は一切検査者に与えられず、「すべての試料が A であるかもしれないし、提示される試料の中に A が一つも存在しない可能性もある」ことを事前に告げられることが一般的である。この方法による識別の有意性検定の例として「国産ブランドと外国産ブランドが匂いによって識別できるか否か」を調べるために、複数人の専門家からなるパネルに対して行う試験があげられる。

- ・ 三点識別法

三点識別法(Triangle difference test)も分析型官能検査の手法の一つである。試料 A と B を AAB のように 3 個を 1 組にして提示し、偶数試料(1 組中に 2 つ存在する試料)と奇数試料のうち、検査者に奇数試料を選ばせる方法である。三点識別法は A と B の間の差が不明である場合にも適用できる。

三点識別法により匂いの有無を調べる場合、まず見た目の変わらない 3 つの容器を用意し、そのうちの 2 つに無臭の空気を入れる。残りの一つに被検査対象である気体を入れて、被験者はこの容器から匂いを嗅ぎ、匂いのある空気を指摘させる。この時、被験者が偶然被検査対象の気体を指摘する期待値は 1/3 であるが、このテストを繰り返すことで帰無仮説(3 つ試料の間に差はない)を検定する。

- ・ 定数測定法

定数とは精神物理的定数のことであり、刺激閾(absolute threshold, stimulus limen)、弁別閾(difference threshold, differential limen)、刺激頂(terminal threshold)、主観的等価値・等価刺激(point of subjective equality)、等価差異値(equal interval)、定比值(equal ratio)の 6 種がある。刺激閾は感覚が生じると生じないの境目の刺激の強度である。弁別閾は感覚上の変化を引き起こすのに必要な最小の刺激の変化量である。刺激頂は 2 通りの意味を持つ。刺激がそれ以上上昇すると、もはや感覚を生じなくなるような最下限の刺激値、または刺激がそれ以上上昇しても感覚はそれ以上進まないような刺激値である。主観的等価値は二つの標準刺激 A と B の距離 AB と主観的に等しい距離を示す BC または CD において、C または C、D の刺激値のことである。比較値とは、一つの標準刺激に対して、主観的のその n 倍または 1/n 倍に当たる刺激値という意味と、2 つまたはそれ以上の標準刺激が示す主観的比例関係と等しい比例

関係を持つ刺激値という 2 つの意味を持つ。定数測定法ではこれら定数を用いて官能検査の指標とする。

1.6.2. 嗜好型官能検査

嗜好型官能検査ではその名の示す通り、製品に付ける匂いの強さはどの程度が好ましいかなど人間の特性を測定する。嗜好型官能検査は品物を使って人間の特性を知ろうとする官能検査である。嗜好型の官能検査について、以下にいくつかの例を挙げる

・二点嗜好法

二点嗜好法(Paired preference test)は A と B の 2 つの試料を用いて、好ましい又は良い方を検査者によって指摘させる官能検査である。A と B のどちらが好ましいとされても意味があるため両側検定による検定を行う。好ましい方の指摘だけでなく好ましきの程度を判断させるような実験を行うこともできる。

二点識別法を用いた例として「試料 A と B のどちらがより良い匂いであるか」を複数人の検査者に選ばせる試験があげられる。もしも A と B に差がない場合は半数の人間が一方を選ぶことが期待されるが、偶然により半数以上の人を選ばれる場合もある。A と B の好まれ方には差がないという帰無仮説の元、仮説を検定する。

・一点嗜好法

一点嗜好法(Single sample preference test)はある品物に対する消費者の思考の調査のために、試薬を一つだけ提示し、それを「良い・悪い」または「好き・嫌い」などの 2 件法で判断させる検査法である。一点嗜好法は、例えばある被検査対象試料 Z の比較対象 Y と Z に対する相対的な評価を知るために用いられる。この場合は 300 人の検査者を 100 人ずつの 3 群に分けた上で試料 X、Y、Z をそれぞれの群に与え、「好きか嫌いかな」を判断させることで相対比較する。

・三点嗜好法

三点嗜好法(Triangle preference test)は試料 A と B を用意し、AAB などの様に 3 個を 1 組にして提示し、奇数試料を指摘させた後に、指摘された資料と残りの偶数試料を比較してどちらが好きか（または良いか）を判断させる方法である。

・格付け法

格付け法は「優・良・可・不可」などのカテゴリー尺度を使い、試料を階級に分ける検査方法である。このカテゴリー尺度は数字を用いる数値尺度、線分上の位置で示すグラフ尺度なども含まれる。例えば「優・良・可・不可」は数値尺度に変換して「4・3・2・1」としても実用上大きな問題を生じない。数値の与え方の恣意性を排除するためには正規化順位法やフィッシャーの評点法[33]などが提案されている。

・採点法

採点法(Scoring method)では 0～3、1～5、-3～+3 などの数値尺度を使って試料の特性に対して評点を与える方法である。用いられる尺度には数値間の心理的感覚が等しくなる様にしなければならない。またこれが判断できる様訓練されたパネルを用いなければならない。

本研究で用いる Dravnieks の官能検査は採点法において 0～5 の 6 段階の数値尺度を用いたものである。

・SD 法

Semantic Differential (SD)法は米国の Osgood が開発した嗜好型の官能検査法であり、試料の持つ主観的なイメージを知りたい時にしばしば用いられる手法である。SD 法では、反対の意味を持つ形容詞を尺度の両端に置いた多くの評定尺度群を用いる。例えば、「良い－悪い」や「明るい－暗い」、「甘い－苦い」などが用いられる。一般にはこの尺度は複数段階を持つ直線である。「良い－悪い」の例えを5段階で表せば、“非常に良い”、“良い”、“どちらとも言えない”、“悪い”、“非常に悪い”のようになる。直線上にチェックされた値を基に形容詞対の平均値を求め、全形容詞対に同様の処理を行うことで刺激対象の印象がどのようにとらえられているのかを判断する。SD 法は、様々な刺激概念を対象とすることができるのが大きな特徴で、様々な研究領域で用いられている。SD 法は採点法の拡張であると考えることができる[34]。

1.7. 機械学習を用いた予測モデルの研究動向

20世紀の後半にかけて、機械学習(Machine learning)は人工知能(Artificial intelligence, AI)の一分野として発展した。人の手によって大量のデータを分析してルールを導き出し、モデルを構築する作業を行う代わりに、機械学習はデータから必要な情報を引き出す。機械学習はメールの検索エンジンやスパムフィルタ、音声認識や文字認識などのソフトウェアにも用いられ、私たちの日常生活においても大きな役割を果たしている。ここでは統計的機械学習を用いた予測手法の動向を紹介する。

機械学習は大きく、教師あり機械学習(Supervised learning)、教師なし機械学習(Unsupervised learning)、強化学習(Reinforcement learning)の3つの分野に分けられるが、ここでは教師あり機械学習と教師なし機械学習の2つについて取り上げる。教師あり学習ではモデルをトレーニングする際の正解が事前に分かっている。教師あり機械学習の目標は、ラベル付けされた訓練データ(またはトレーニングデータ)からモデルを学習し、未知のデータを予測することである。メールのスパムフィルタなどのような離散値のクラスラベルを使う教師あり学習は分類(Classification)と呼ばれる。連続値の出力信号を扱うモデルは回帰(Regression)と呼ばれる。教師なし学習ではラベル付けされていないデータや、構造が不明なデータを扱う。教師なし学習では結果変数や誤差関数(または報酬関数)が明確でない場合にも、データの構造を調べることにより意味のある情報を取り出すことを目的にする。

1.7.1. 線形予測モデル

教師あり学習の手法である線形予測モデルは大きく分類と回帰のために用いられる。分類は過去の観測に基づき、新しい観測値のクラスラベルを予測することが目的となる。クラスラベルは2値もしくは2値以上である。スパムフィルタは二値分類の典型的な例であり、0 = スпамメールでない、1 = スпамメールであるという2つのクラスを区別する。2値以上のクラスを用いる分類例には手書き文字認識があげられる。

回帰分析(Regression analysis)は連続な目的変数を予測する教師あり機械学習の手法である。回帰分析では複数の説明変数(または予測変数)から連続値の目的変数(応答変数)を予測できるように変数間の関係を学習する。回帰分析でしばしば用いられる線形回帰では、説明変数を x 、目的変数を y として平均二乗誤差などの指標を用いて、回帰直線をサンプル点との誤差が最も少なくなるように当てはまる。データから学習した直線と切片の傾きを用いて新しいデータの目的変数を予測するが、変数間の関係が非線形な関数で表されるような場合は正しくモデル化することができない。

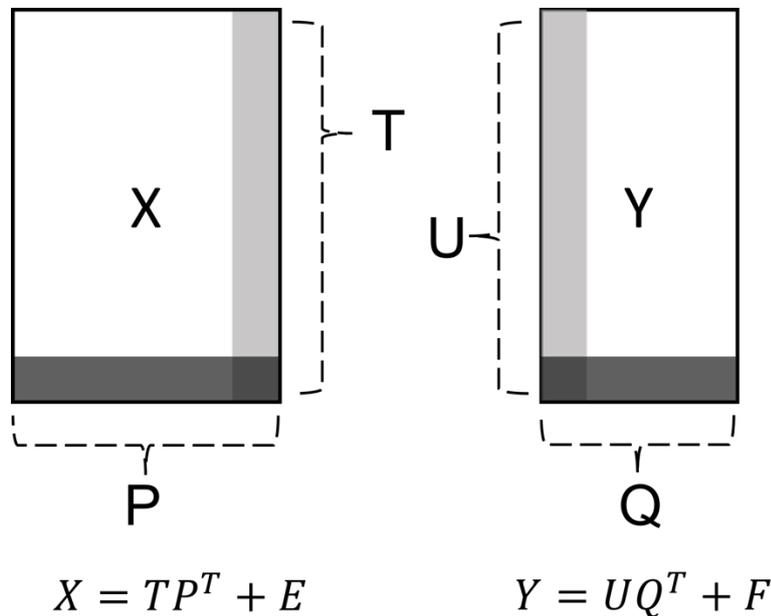
・単純パーセプトロン

パーセプトロンは1957年にRosenblatt[35]によって考案された最も初期の人工ニューラルモデルで、ロジスティック回帰とも呼ばれる。パーセプトロンはニューロンとシナプスからなり、この基本的なアイデアは人間の脳機能のモデル化に基づいている。パーセプトロンは線形分離可能なものしか学習できず、非線形問題を解けない問題を持つが、のちに紹介する多層パーセプトロン(ニューラルネットワーク)やボルツマンマシンなど、後の大規模ニューラルネットワークの基礎技術となっている。

・部分的最小二乗回帰

部分的最小二乗回帰(Partial least squares regression; PLS)は、スウェーデンの Wold によって発表された線形回帰分析の手法の一つで[36]、説明変数間の多重共線性や、説明変数の数がサンプルよりも多い場合でも計算できるという利点を持つ。後に紹介する主成分分析(Principal Component Analysis; PCA)では主成分の分散が最大になるように主成分を計算するが、PLS では主成分と目的変数の間の共分散が最大になるように主成分を取り出す。PLS は2つの行列 (X および Y) 間の基本的関係を探するために用いられる。PLS によるモデル化の概要を図 1-12 に示す。

PLS が匂いの研究に利用された例として、Yang ら[37]や Borjesson[38]らから E ノーズ(Electric nose)による匂い物質の分類の研究が報告された。E ノーズには一般に複数の化学センサをアレイとしたものを用るが、アレイを構成するセンサ素子同士が共線性を持つため PLS は重回帰分析よりも優れた結果となり得ることが知られている。本日は PLS は計量化学(ケモメトリクス)のほか、バイオインフォマティクス、感覚計量学、神経科学、人類学でも使われている。



X : 独立変数行列 ($n \times m$)

Y : 従属変数行列 ($n \times p$)

T : X の要因 (factor) 行列 ($n \times l$)

U : Y の要因 (factor) 行列 ($n \times l$)

P : X の要因負荷量 (factor loading) 行列 ($m \times l$)

Q : Y の要因負荷量 (factor loading) 行列 ($p \times l$)

E, F : 誤差項 (error term)

PLS 法において X および Y の分解は要因行列 T と U との間の共分散を最大化するように行われる。

図 1-12 PLS 法の概要

1.7.2. 非線形予測モデル

非線形予測モデルでは複数の説明変数と連続な目的変数との間の非線形な関係を表す方程式を作り、新しい観測値を予測する。線形予測モデルとの違いはモデルが取り得る関数の形式であり、説明変数と目的変数の間の関係を線形関数でモデル化できない際に用いられる。非線形関数には対数や指数、シグモイド関数など様々な関数を利用できるため、線形回帰よりも幅広いモデル表現力を持つ一方で、データに適合する関数形式を決定するのは簡単ではなく、多くの作業と時間が必要になる。非線形モデルにはサポートベクターマシン、(Support vector machine; SVM)、自己組織化マップ(Self organizing map; SOM)、ニューラルネットワーク(Neural network)などが知られ、これらは本日広く用いられる機械学習のアプリケーションにおいて広く利用されている強力なアルゴリズムである。以下に図書[39]-[42]を参考に、主要なアルゴリズムの原理と近年の応用についてまとめる。

・多層パーセプトロン

ニューラルネットワークは前述のパーセプトロンを発展させたアルゴリズムである。パーセプトロンは非線形領域を分離できないが、これに活性化関数と複数層化というアイデアを取り入れることで非線形の回帰・分類問題に適用できるように拡張された。隠れ層を複数層もつニューラルネットワークは深層ニューラルネットワークと呼ばれ[43]、2000年代初期から本日まで、強力な機械学習の主流な手法として画像認識や音声認識をはじめとした多くの回帰・分類のタスクに用いられている。

匂いの分野においては後に紹介する自己組織化マップを用いた例が報告されている。本研究におけるニューラルネットワークの詳細な実装については2章に譲る。

・サポートベクターマシン

1963年にVapnik及びChervonenkisらにより発表されたSVMは線形分類問題にしか適用できないものであったが、1992年にカーネル関数を利用することで非線形分類問題へも対応するカーネルサポートベクターマシン(Kernel SVM)が開発され、多くの機械学習のアプリケーションで採用されている。

SVMではあるクラスに属するサンプルとそれ以外のクラスに属するサンプルの超平面の決定境界を、訓練サンプルと超平面との距離が最も大きくなるように最適化する。この超平面に最も近いサンプルをサポートベクトルと呼ぶ。カーネル関数を利用するカーネルSVMでは射影関数を用いて高次元空間へ射影し、線形分離を可能にする。例えば2次元空間で分離不可能なデータセットは3次元の新しい特徴空間に変換され、クラス分離される。サポートベクターマシンはe-noseと呼ばれるセンサアレイを用いた匂いの分類問題にしばしば用いられるが、匂い印象の分析への応用の報告は殆ど見られない。

・自己組織化マップ

自己組織化マップは非線形データを扱うニューラルネットワークの一種である。潜在変数空間内に格子(マップ)状に配置された有限個のノードを用意し、それぞれのノードには1つの重みベクトルが対応している。学習ではトレーニングサンプルと各ノードの重みベクトルの類似度を計算し、最もよく一致したノードを1つ見つける。この最もよく一致したノードとその近傍の重みベクトルが入力ベクトルと近くなるように更新することで、最終的には似た性質のノードが近い位置関係を持つようなマップが作られる。中本研究室における先行研究ではSOMを用いた2種類のミント香料を混ぜ合わせた時の匂いの印象を予測する手法について報告している[44]。

1.7.3. 次元削減(特徴抽出)

次元削減(Dimensionality reduction)は一般には教師なし学習の手法である。高次元のデータを、必要な情報を残した上で扱いやすい低次元のデータに変換する。機械学習のアルゴリズムを実行するのに必要な記憶域や計算時間を節約するため、またはデータからノイズを取り除くためにも用いられる。

次元削減はデータの可視化のためにも用いられ、線形な次元削減の代表的な手法には主成分分析(Principal Component Analysis; PCA)がある。線形な次元削減ではデータが持つ重要な非線形構造を捉えられないため、こうしたデータに対しては非線形な次元削減が用いられる。非線形な次元削減にはカーネル主成分分析(Kernel principal component analysis; Kernel PCA)や後に紹介するオートエンコーダ(Autoencoder)などがある。

・主成分分析

主成分分析は最も広く用いられる教師なし線形次元削減の手法である。後で紹介するように、匂いの分野の研究においても PCA は広く利用されてきた。PCA は高次元データにおいて分散が最大となる新しい軸(方向)を見つけ出し、元の次元よりも低い次元で構成される新たな部分空間へ射影する。この分散が最大となるように定められた新しい軸を主成分(Principal component)と呼ぶ。最も多くの分散を説明する軸は第一主成分(1st principal component)と呼ばれ、以下第 n 主成分と続く。これらの主成分は互いに直交するように選ばれる。PCA は元のデータのスケールに影響を受けるため、特徴量が異なる尺度で測定されている場合は PCA を行う前に特徴量を標準化する必要がある。PCA はデータの可視化のためにも用いられる。高次元なデータを 3次元以下に圧縮することで、サンプルの低次元での分布を可視化することができる。

・多次元尺度構成法

多次元尺度構成法(Multidimensional scaling; MDS)は先に紹介した PCA と同様に、2次元上で高次元なデータを可視化する目的で用いられる線形手法である。多次元尺度構成法では 2個のサンプル間の距離をなるべく保存するように距離行列の固有ベクトルを求めることで低次元射影を行う。MDS を拡張した非計量多次元尺度構成法(Non-metric MDS)では類似度行列などで定義される種類のデータに対して用いることができるため、PCA よりも多くの種類のデータを取り扱うことができる。

・非負値行列因子分解

非負値行列因子分解(Non-negative matrix factorization; NMF)は行列を 2つの非負値行列に分解するアルゴリズムである。1999年に Lee らによって発表された論文で紹介された論文[45]により広く知られるようになった。乗法的更新アルゴリズムは実装が容易であることから、この更新アルゴリズムを用いた NMF は顔認識や自然言語処理の分野を始めとして広く用いられるようになった。NMF では近似対象の行列 V を 2つの非負値行列 W 及び H によって近似し、この行列 W の各列は元のデータに含まれる特徴を表すことが知られており、各値はその特徴がどれだけ適合しているのかを表す。後に紹介するように、この MNF は匂いの分野において「人間の匂いの認識を構成する基底とは如何なるものか」を調べるための研究にも用いられている[46]。

・オートエンコーダ

オートエンコーダは教師なし学習のニューラルネットワークの一種である。オートエンコーダはデータセットの中から低次元の特徴量を取り出すために用いられる非線形な次元圧縮手法である。複数の隠れ層を持つオートエンコーダは、対象となるデータセットが非線形な構造を持つ際には主成分分析よりも良い結果をもたらすことが報告されている[47]。オートエンコーダは砂時計型ニューラルネットワークとも呼ばれ、一般には奇数個の隠れ層を持つ対象構造のニューラルネットワークである。ネットワークは中央に進むにつれてニューロンの数が少くなるため、ネットワークの出力が入力と同じになるようにパラメータを更新することで、中央の層から入力の高次元のデータを取り出すことができる。複数の隠れ層を持つオートエンコーダの効率的な学習方法がトロント大の Hinton らの発表[48][49][50]により広く認知され、近年では生成モデルの学習のためにも用いられるようになった。図 1-13 は Hinton らが実験で用いた深層オートエンコーダの学習プロセスの一例を示す。オートエンコーダの詳細な動作原理及び本研究における実装については 2 章に譲る。

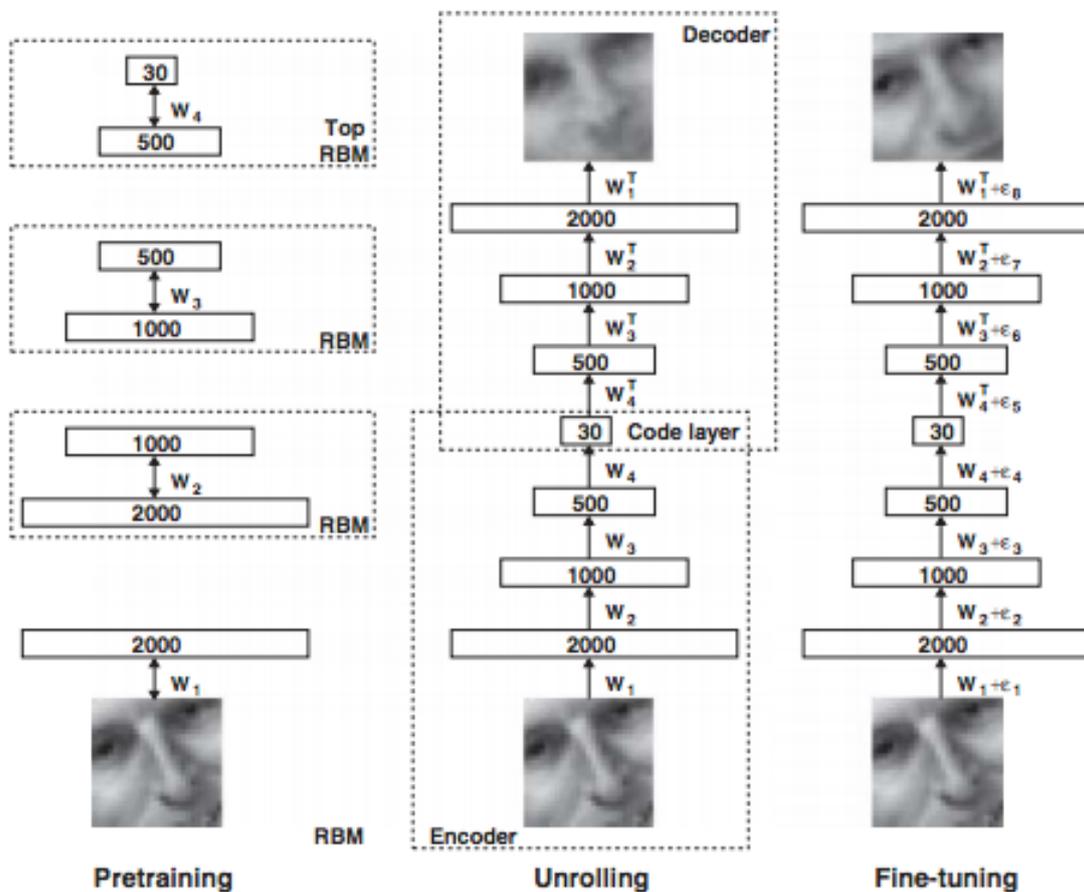


図 1-13 深層オートエンコーダを用いた人の顔の次元圧縮 [48]

オートエンコーダ(ここでは *Restricted Boltzmann Machine; RBM*)の各層はそれぞれ分けられてトレーニングされ(左)、学習済みの *RBM* を結合し(中央)最後に微調整を行う(右)

- ・オートエンコーダの研究動向

Hinton らの報告以降、多くの研究が報告されている。下記に近年報告されたオートエンコーダの特に重要と思われる技術を紹介する。

- ・ Denoising autoencoder

深層デノイジングオートエンコーダ(Stacked denoising autoencoder; SDAE)はノイズを加えることにより歪みを与えたものを入力として用いて、これを歪みのない信号に復元できるように訓練する[51]。このSDAEのアイデアは、入力の高次の表現が入力の崩れに対してロバストで安定でしていることを仮定している。SDAEを訓練する上では、予備的な確率写像（元の入力 \mathbf{X} から歪められた入力 $\tilde{\mathbf{X}}$ への変換）を実行することが必要である。これはデータを崩し、 $\tilde{\mathbf{X}}$ を入力に用いるためである。

訓練においてネットワークの誤差は $\tilde{\mathbf{X}}$ と $\tilde{\mathbf{X}}'$ ($\tilde{\mathbf{X}}$ から復元された $\tilde{\mathbf{X}}'$ と歪められた入力 $\tilde{\mathbf{X}}$)に対してではなく、 \mathbf{x} と $\tilde{\mathbf{X}}'$ に対して計算する。PascalらによりSDAEにより得られる表現を用いることでSVMによる分類の精度を向上させられることが報告された。

図 1-14及び図 1-15はMNIST(Modified National Institute of Standards and Technology database, [52])のデータセットを用い手書き文字の識別実験における3種類の5層オートエンコーダの分類性能を比較している。図 1-14は事前学習なしのオートエンコーダ、及び事前学習(後述:2.1.6)を用いたオートエンコーダ、及びSDAEの各層のニューロン数を変化させた時のそれぞれの誤識別率を示しており、事前学習を用いない5層オートエンコーダを成功的に訓練することが困難であること、事前学習を用いたオートエンコーダの分類性能が中間層のニューロンの数に対して大きく変化しないこと、またSDAEにおいては層数が多くなるほどに誤識別率が減少することを示している。また図 1-15はSDAEに用いられる入力の歪められている程度と誤識別の関係を示し、入力信号に20-25%程度の歪みを与えた時が最も誤識別率が減少することを報告している。

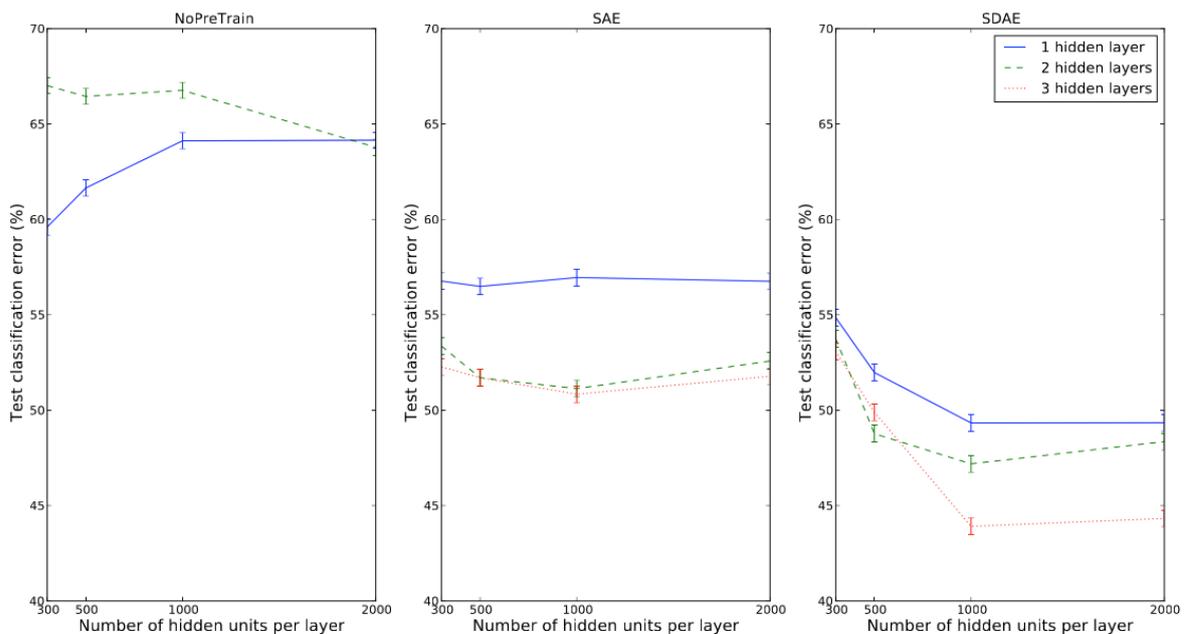


図 1-14 3種類のオートエンコーダの隠れ層のニューロン数の変化に対する誤識別率の推移 [51]

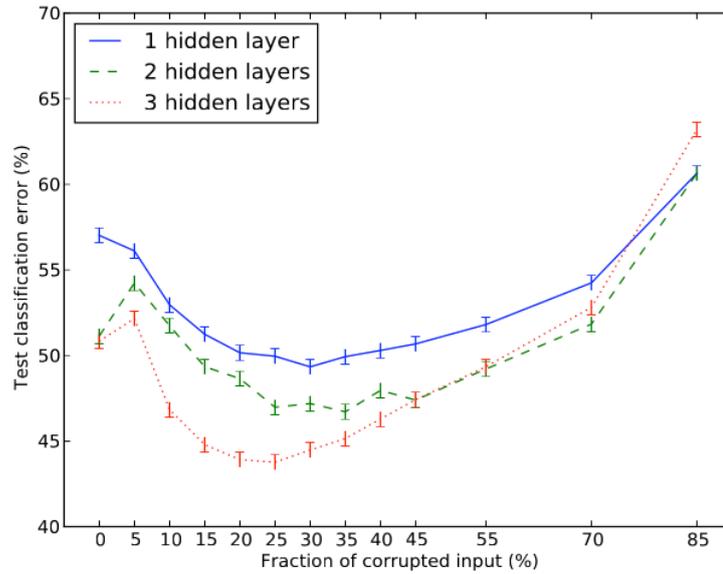


図 1-15 SDAE に与えられる入力の変形の割合と誤識別率の推移 [51]

・ Sparse autoencoder

訓練において、隠れ層におけるユニット数を入力よりも大きくとり隠れユニットに疎性を与えることで、オートエンコーダは入力から有意義な構造を取り出すことができる可能性が示されている。スパースオートエンコーダは隠れ層において余分な自由度を持つ過完備な特徴量表現を獲得することを目的としている。

スパースオートエンコーダで用いられる正則化のテクニックでは、隠れ層には入力層よりも大きな数のユニットを用いて、かつ学習においてはなるべく少数のユニットだけが0ではない出力値をとるように制約を加える。この正則化のために、誤差関数に LASSO の正則化項を加えることが一般的である(後述:2.1.4)。こうした制約により中間層の少ない数のユニットを用いることで各サンプルを表現することが可能になり、中間層のユニット数を増やすことによりモデルの表現力を高めることができる。

Tronto 大の Makhzani らは線形活性化関数を用いた k -Sparse autoencoder を提案した[53]。 k -Sparse autoencoder では中間層では上位 k 個の活性化のユニットのみを保持するように制約されており、MNIST の手書き文字データを用いた実験において上述の SDAE、及びドロップアウト法を用いた制約付きボルツマンマシンを超える性能を示すことが報告された(表 1-1)。

表 1-1 k -Sparse Autoencoder と他手法の誤差率の比較 [53]

	Error Rate
Raw Pixels	7.20%
RBM	1.81%
Dropout Autoencoder (50% hidden)	1.80%
Denoising Autoencoder (20% input dropout)	1.95%
Dropout + Denoising Autoencoder (20% input and 50% hidden)	1.60%
k -Sparse Autoencoder, $k = 40$	1.54%
k -Sparse Autoencoder, $k = 25$	1.35%
k -Sparse Autoencoder, $k = 10$	2.10%

・ Variational autoencoder

Auto-Encoding Variational Bayesian(AEVB, variational autoencoder: VA)は有向確率モデルの学習のために用いられるオートエンコーダで、潜在表現の学習のために変分ベイズ法を用いる[54]。また、AEVBの訓練は確率的勾配変分ベイズ法(Stochastic Gradient Variational Bayes: SGVB)と呼ばれる方法で行われる。SGVB法では有向グラフモデルから生成されるデータを用いて、エンコーダはこれを生成する事後確率分布を近似するように訓練される。モデルの学習を開始させる際、事前確率分布には平均0、分散1の等方位多次元ガウスモデルを用いる。

SGVB法を用いたAEVBはモンテカルロEM法(Monte Carlo Expectation-Maximization; MCEM)及びWake-sleepアルゴリズム[55]と比較され、MNISTの手書き文字のデータセットに対する計算機実験において、明らかな周辺確率対数尤度の改善が示された(図 1-16)。

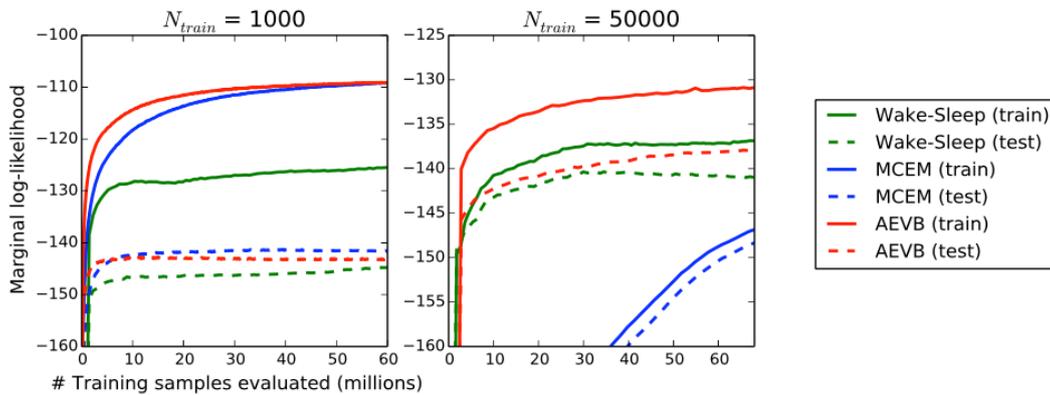


図 1-16 MNIST データセットにおける 3 手法の周辺確率対数尤度の比較 [54]

・ Contractive autoencoder

Contractive autoencoder はオートエンコーダの誤差関数にフロベニウス正則化を導入することで、モデルが入力変数の小さな変動に対してロバストな関数を学習することを可能にする。用いられる正則化項は与えられた入力に対するユニットの活性のヤコビ行列のフロベニウスノルムに対応し、モデルの入力ベクトル \mathbf{x} とオートエンコーダの出力ベクトル \mathbf{x}' の間で定義される誤差 $L(\mathbf{x}, \mathbf{x}')$ 、ヤコビ行列を $J(\mathbf{x})$ として、Contractive autoencoder の誤差関数は以下の式で与えられる。

$$L(\mathbf{x}, \mathbf{x}') + \lambda \sum \|J(\mathbf{x})\|^2 \tag{1-1}$$

Rifai らの提案した同手法[56]は制限付きボルツマンマシンを用いたディープビリーフネットワーク(DBN)と比較し、Tronto face dataset(TFD)及び MNIST のデータセットに対する計算機実験において対数尤度の改善を報告した(表 1-2)。

表 1-2 CAE と DBN の対数尤度の比較 [56]

	DBN-2	CAE-2
TFD	1908.80 ± 65.94	2110.09 ± 49.15
MNIST	137.89 ± 2.11	121.17 ± 1.59

1.7.4. クラスタリング

クラスタリング(Clustering)は大量の情報を意味のあるグループ(クラスタ)として構造化する探索的データ解析の手法である。クラスタリングは教師なし学習の分類手法であり、グループの所属関係が事前に明らかになっている必要はない。クラスタリングの手法はデンドログラムなどの階層的手法 (hierarchical method) と、k-means 法などの非階層的手法 (non-hierarchical method) に分けられる。同じクラスタに分けられたデータ同士は類似性を共有する一方で、他のクラスタ内のデータとは相違を持つようになる。

主成分分析などと組み合わせて用いられることも多く、この場合はいくつかの主成分を特徴量の類似性に基づいてグループに分割する。

- 最短距離法

最短距離法は実装の容易な、階層的クラスタリングにおけるクラスタ間の距離を決定する方法の一つである。後に紹介する k-means クラスタリングと異なり、予めデータ数を決める必要がない。最短距離法では最も似ている組み合わせから順番にまとまりにしていく方法で、クラスタ間の距離を用いて階層的な樹形図(デンドログラム)として表すことができる。

一方で階層的クラスタリングの短所として、サンプルが多い場合に計算量が多くなることや、系統図が巨大になり結果の分析をしにくくなることがあるため、多くのデータを分析する場合には非階層的クラスタリングが用いられる。またデータの次元数が増えるとき、次元の呪い(Curse of dimensionality)と呼ばれるデータの次元性高次元性に起因する問題が顕著に現れることも知られている[57]。これはデータが高次元になると、球面集中現象(Concentration on the sphere)により類似性の高い近傍点を探すことが困難になる問題である[58]。こうした問題への対応としてデータの事前処置として次元圧縮がしばしば用いられる。

- k-means クラスタリング

k-means クラスタリング(k-means clustering)は非階層型クラスタリングのアルゴリズムで、実装が簡単なことから広く用いられている[59]。k-means では最初、k 個(任意に選んだ数字)のクラスタベクトルをランダムに配置する。それぞれのサンプルは自身に最も近いクラスタに割り当てられる。次に、それぞれのクラスタの重心を割り振られたサンプルから計算し、計算結果に合わせて自身のクラスタベクトルを更新する。この作業を収束するまで繰り返す事で特徴量の似たデータ同士のクラスタ分類を行う。

1.8. 匂い印象予測方法の研究動向

本節では、(1)機械学習のアプローチから分子の物理化学的なパラメータを利用して匂い印象を予測する試み、及び(2)分子の物理化学的なパラメータを用いて特定の匂いを再現する試みの二つの視点より先行研究を紹介する。本節では数々の先進的な方法が深層学習の分野で開発されているが、嗅覚の分野ではそれほど多くの研究は報告されていない。

1.8.1. 嗅覚受容体モデル (Olfactory Receptor Neuron Model; ORN モデル)

ORN モデルは、匂いの強度と質が生体の情報伝達経路である嗅上皮と糸球体において、どのように変換されているのかを研究する目的で Rospars らによって提唱されたモデルである[60]。現在までに提案されている ORN モデルはカエルを用いた実験結果より得られた嗅上皮モデルと糸球体モデルからなり、嗅上皮モデルは生体に含まれるであろう各 ORN の密度を計算する数理モデルである。また糸球体モデルは ORN の軸索の投影と隠れた相互作用をモデル化している。匂いの強度と質はこの2ステージからなる匂いの処理システムに与えられ、ORN モデルの出力は情報理論により評価される。

このモデルにおいて匂いの強度は、それぞれの ORN の発火の頻度に影響すると考えられている。しかし、同じ種類の ORN であっても発火の頻度がそれぞれ異なることも知られているため、これを各 ORN の数を用いた別のコードに変換する必要がある。嗅上皮モデルはこうして匂い物質の強度(濃度)毎に異なる活性化コードを生成するモデルである。しかし、嗅上皮全体に存在する ORN 群に与えられる匂い物質の分布の形状が判明していないため、一様分布を用いて簡略化されている。また嗅上皮全体における各 ORN の分布にも便宜的に対数ガウス分布を仮定しているなど、課題も存在する。

図 1-17 は与えられる匂い物質の濃度の変化に伴うニューロンの発火頻度を示す。それぞれのニューロンに発火のばらつきを与えることで広い範囲で入力-出力の関係を表現することができるようになる(図 1-7 右)。この嗅上皮モデルと糸球体モデルでは図 1-18 のように、数種類の ORN について、それぞれの発火頻度と特定の ORN を発現したニューロン全体のヒストグラムを組み合わせた結果の相互情報量を用いて実際の生物のモデルとの比較を行うことができる。

Galvez らは計算機実験の結果を通して ORN モデルを用いることで匂い強度と匂いの種類が特定可能であることを報告した[61]。しかしながら、この方法にはそれぞれの ORN のモデル化のために生体に対する膨大な実験データが必要であることと、モデルパラメータの最適化のための、相互情報量最大となる点を探す効率的な方法が確立されていないなどの課題が存在する。

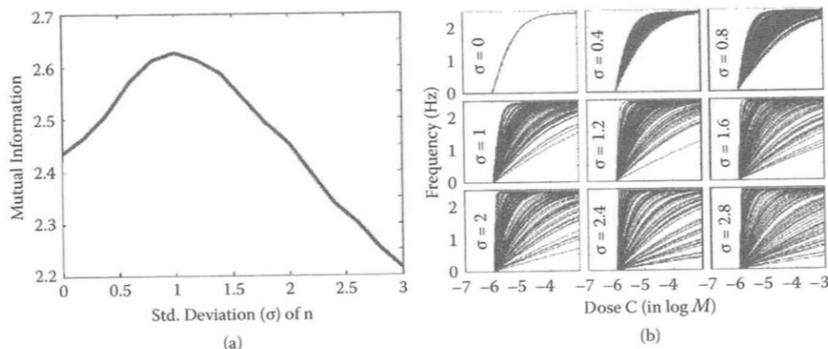


図 1-17 対数ガウス分布の標準偏差の変化に対する相互情報量の変化
 $\sigma=1$ が最適なパラメータ(相互情報量最大となる点)とわかる

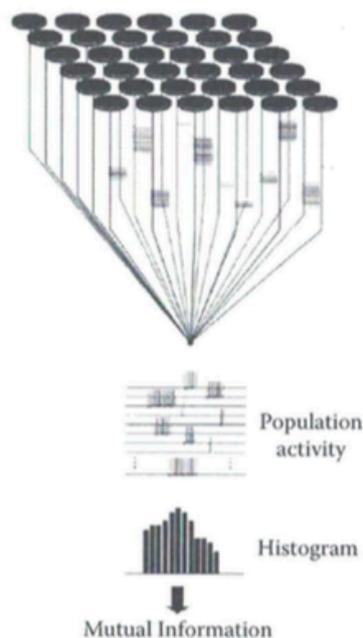


図 1-18 嗅上皮モデルを用いた相互情報量の計算モデル

1.8.2. 分子の特徴からの匂いの予測に関する先行研究

・ Predicting Odor Pleasantness from Odorant Structure: Pleasantness as a Reflection of the Physical World[62]

イスラエル及び米国の研究者で構成された Sobel らの研究チームは、匂い物質の物理化学的パラメータと匂いの性質の関係を説明するために PCA と回帰分析を利用した。Sobel らは分子モデリングソフトウェアである Dragon を使用し、匂い物質の 1513 種類の物理化学的パラメータを回帰予測に用いて、これらのパラメータと Dravnieks の官能検査との関係性にモデル化により未知の物質の匂いの印象の予測を試みた。146 種類の記述子及び 1503 種類の物理化学パラメータは PCA によって次元圧縮され(図 1-19)、それぞれの主成分と「Pleasantness」や「Edibility」といった大きな粒度の記述子に対する相関が調べられた。その結果、変換された物理化学パラメータの第一主成分が匂いの「Pleasantness - Unpleasantness」と正の相関を持つことを報告した(図 1-20)。この第一主成分に関わる主要な物理化学パラメータは分子量であった。

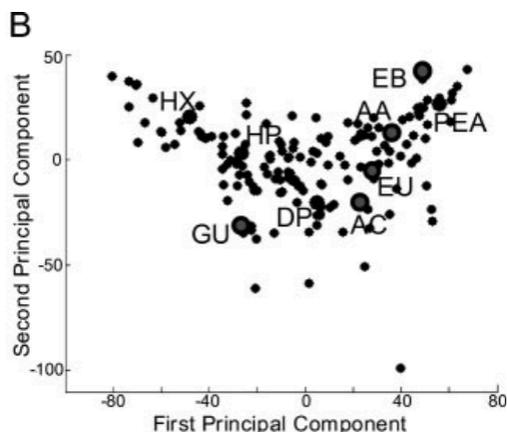


図 1-19 Dravnieks の官能検査の PCA 分析の結果, [62]

[*acetophenone (AC)*, *amyl acetate (AA)*, *diphenyl oxide (DP)*, *ethyl butyrate (EB)*, *eugenol (EU)*, *guaiacol (GU)*, *heptanal (HP)*, *hexanoic acid (HX)*, and *phenyl ethanol (PEA)*]

Pleasantness Edibility

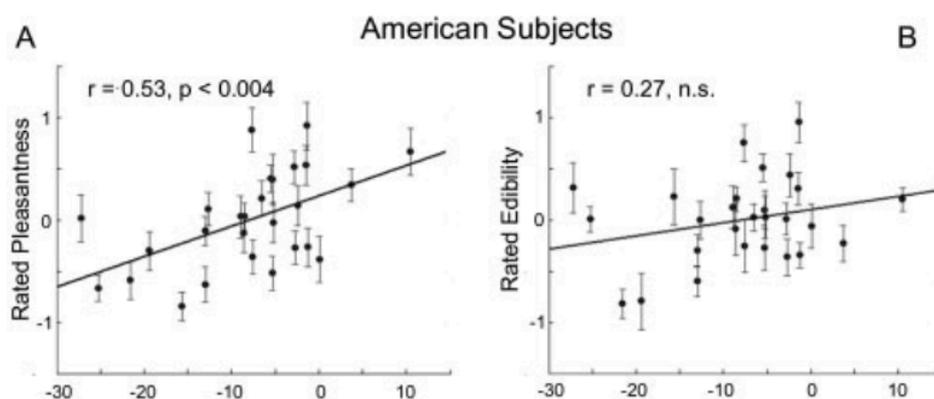


図 1-20 未知の物質に対する匂い印象予測の結果 [62]
x 軸は未知の物質の物理化学パラメータから PCA で変換された第一主成分、
y 軸は被験者 23 人に対する官能検査から得た Pleasantness、Edibility のスコア。

・ Categorical Dimensions of Human Odor Descriptor Space Revealed by Non-Negative Matrix Factorization[46]

米国 Castro らの研究チームでは、匂い知覚の基底表現(ベクトル)を探するために、非負値行列因子分解(Non-negative Matrix Factorization; NMF)に基づく線形な次元圧縮を Dravnieks のデータに適用した。PCA では基底ベクトルは与えられたデータの中で分散を最大にするものが選ばれるが、NMF ではこれに非負の制約がかかる。この制約は文書解析やセマンティックなデータに用いられる際に有用であることが報告されている。研究で使用された官能検査では負値を取り得ないため、NMF は PCA よりも本問題に適した手法であると考えられた。

同研究では NMF を用いた次元削減により Dravnieks の官能検査で使用された 146 種の記述子の検証セットに対する復元誤差が十分小さくなるカットオフ点として 10 次元にまで圧縮された(図 1-21)。10 次元の匂い基底ベクトルに特に寄与したベクトルは図 1-22 の通りである。また、同研究グループによれば、Dravnieks の官能検査で使用された 144 の匂い物質をこれらの 10 次元の匂い基底ベクトルを元に分類した際には分子形状や分子の官能基がよく似た者同士が伴って現れることを報告している。図 1-23 にその様子を示す。同研究結果は人の持つ匂いの感覚が離散的なクラスタによって説明できる可能性、及び官能検査の結果の分析の結果得られたクラスタには分子形状が影響している可能性を報告した。

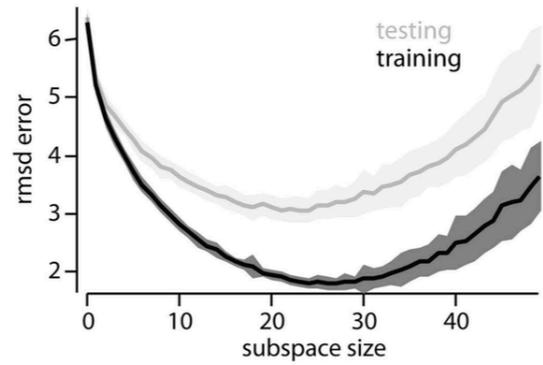
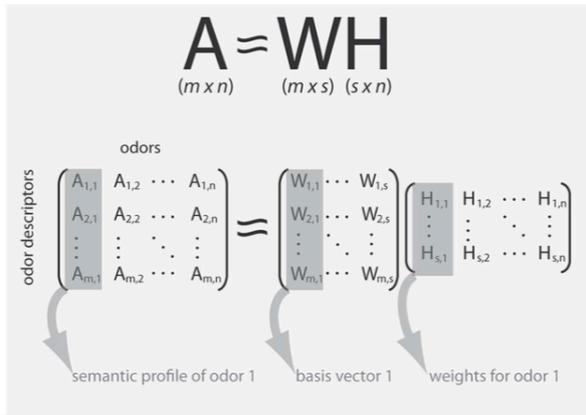


図 1-21 NMF による Dravnieks の官能検査の行列分解 (左)、
W の次元数の変化に対する誤差の変化 (右) [46]

W1	W2	W3	W4	W5	W6	W7	W8	W9	W10
FRAGRANT	WOODY, RESINOUS	FRUITY, OTHER THAN CITRUS	SICKENING	CHEMICAL	MINTY, PEPPERMINT	SWEET	POPCORN	SICKENING	LEMON
FLORAL	MUSTY, EARTHY, MOLDY	SWEET	PUTRID, FOUL, DECAYED	ETHERISH, ANAESTHETIC	COOL, COOLING	VANILLA	BURNT, SMOKY	GARLIC, ONION	FRUITY, CITRUS
PERFUMERY	CEDARWOOD	FRAGRANT	RANCID	MEDICINAL	AROMATIC	FRAGRANT	PEANUT BUTTER	HEAVY	FRAGRANT
SWEET	HERBAL, GREEN, CUT GRASS	AROMATIC	SWEATY	DISINFECTANT, CARBOLIC	ANISE (LICORICE)	AROMATIC	NUTTY (WALNUT ETC)	BURNT, SMOKY	ORANGE
ROSE	FRAGRANT	LIGHT	SOUR, VINEGAR	SHARP, PUNGENT, ACID	FRAGRANT	CHOCOLATE	OILY, FATTY	SULFIDIC	LIGHT
AROMATIC	AROMATIC	PINEAPPLE	SHARP, PUNGENT, ACID	GASOLINE, SOLVENT	MEDICINAL	MALTY	ALMOND	SHARP, PUNGENT, ACID	SWEET
LIGHT	LIGHT	CHERRY (BERRY)	FECAL (LIKE MANURE)	PAINT	SPICY	ALMOND	HEAVY	HOUSEHOLD GAS	COOL, COOLING
COLOGNE	HEAVY	STRAWBERRY	SOUR MILK	CLEANING FLUID	SWEET	CARAMEL	WARM	PUTRID, FOUL, DECAYED	AROMATIC
HERBAL, GREEN, CUT GRASS	SPICY	PERFUMERY	MUSTY, EARTHY, MOLDY	ALCOHOLIC	EUCALIPTUS	LIGHT	MUSTY, EARTHY, MOLDY	SEWER	HERBAL, GREEN, CUT GRASS
VIOLETS	BURNT, SMOKY	BANANA	HEAVY	TURPENTINE (PINE OIL)	CAMPHOR	WARM	WOODY, RESINOUS	BURNT RUBBER	SHARP, PUNGENT, ACID

図 1-22 NMF で得られた 10 次元の基底に寄与する記述子 [46]

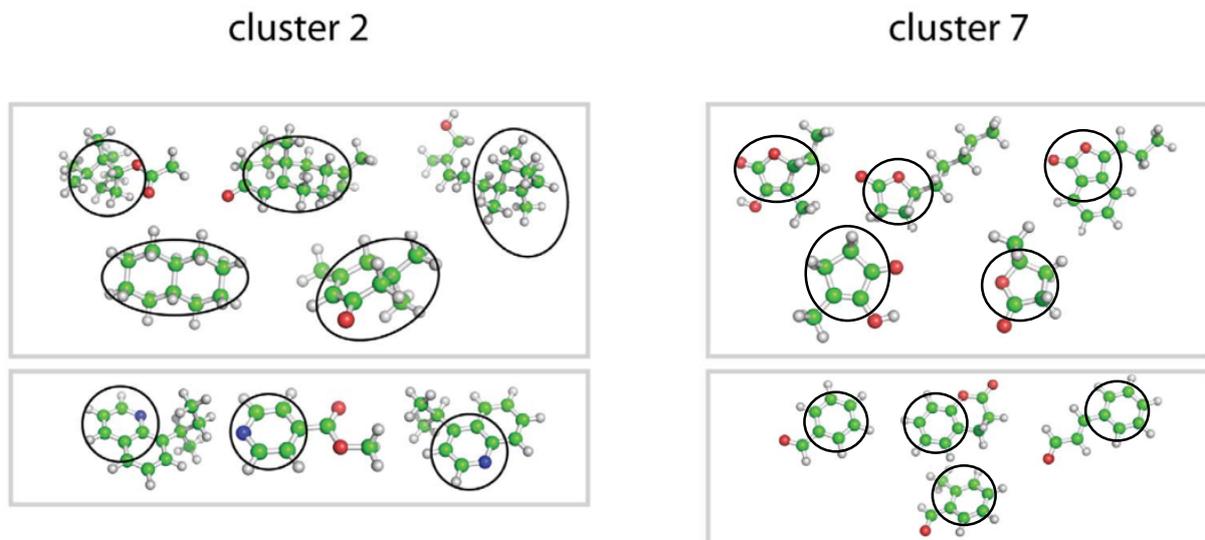


図 1-23 10 次元の基底上で得られた各クラスターに含まれる分子構造の特徴 [46]
それぞれのクラスターには構造の似た分子が含まれている(図中丸部)

・ Detection and evaluation of fragrances by human reactions using a chemical sensor based on adsorbate detection[63]

NTT の研究者である Yokoyama らは、人間がある匂い物質の匂いに対してどのような印象を持つのかを、化学センサの反応から予測することを試みた。8人の女性からなるパネルが用意され、37種類の匂い物質は55種類の記述子について0-7のスケールによって評価された(図 1-24)。Yokoyama らは8つの QCM センサにそれぞれ異なる感応膜を用いてセンサアレイを構築し、この37種類の匂い物質に対するセンサアレイの反応パターンをPCAにより次元圧縮した。こうして得られた第一から第四までの主成分を用いて、官能検査で得られたスコアの回帰予測を行ない、“Pleasantness”及び“Freshness”のスコア(共に官能検査で用いられた記述子である)を相関係数0.6以上の正確さで予測可能であったことを報告した(図 1-25)。また同研究で報告されたセンサアレイの反応のPCA解析の結果は、試験に使用した37種類の匂い物質が、AromaticやSaturated aliphatic aldehydeなどの幾つかのグループに分離できることを報告している(図 1-26)。

notes	fragrances
anise	(1) anisic aldehyde, (2) anethol
aldehydic	(3) heptanal, (4) octanal, (5) nonanal (6) undecanal, (7) dodecanal, (8) 2-methylundecanal
balsam	(9) cinnamyl acetate, (10) methyl cinnamate (11) isoamyl salicylate, (12) isobutyl salicylate
citrus	(13) citral, (14) citronellal, (15) citronellyl acetate
spicy	(16) cinnamic aldehyde, (17) eugenol, (18) methyleugenol
leafy	(19) phenylpropyl alcohol
fresh	(20) nerol
floral	(21) linalool, (22) terpineol (23) (phenylethyl)dimethylcarbinol (PEDC), (24) PEDC acetate
fruity	(25) isoamyl acetate
jasmine	(26) benzyl acetate, (27) benzyl formate, (28) benzyl propionate
lavender	(29) terpinyl acetate
orange	(30) linalyl acetate
rose	(31) geranyl acetate, (32) citronellol, (33) geraniol
(petals)	(34) phenylethyl alcohol, (35) phenylethyl acetate
(fruity)	(36) geranyl formate, (37) geranyl butyrate

1. like medicine	20. grassy	38. sultry
2. fruity	21. sour	39. vital
3. metallic	22. minty	40. unhealthy
4. fatty	23. delicate	41. dislike
5. sweet	24. sporty	42. clingy
6. spicy	25. mild	43. irritating
7. fragrant	26. youthful	44. clear
8. sexy	27. elegant	45. dark
9. fresh	28. restful	46. cheerful
10. feminine	29. muddy	47. pleasant
11. powerful	30. bright	48. soft
12. heavy	31. gloomy	49. white image
13. warm	32. tough	50. brown image
14. calm	33. dispirited	51. purple image
15. refreshing	34. frank	52. green image
16. healthy	35. light	53. pink image
17. floral	36. cold	54. black image
18. leafy	37. rough	55. gray image
19. earthy		

図 1-24 実験で使用された37種類の匂い物質(左)、
実験中の官能検査で使用された記述子55種(右) [63]

variable	pleasantness	freshness (elegance)
PE	-2.28	-0.08
PPO	-0.82	-0.97
PCL	2.12	-0.54
PBA	1.86	0.06
PES	-2.81	-2.46
PR	-2.07	-2.51
PC	-2.39	0.37
PS	3.87	0.93
const	-1.88	1.27
r^a	0.77 ($p < 0.001$)	0.68 ($p < 0.02$)

^a r = correlation coefficient.

図 1-25 2種類の記述子(Pleasantness, freshness)に対しての
センサ応答と人間の官能試験結果の相関 [63]

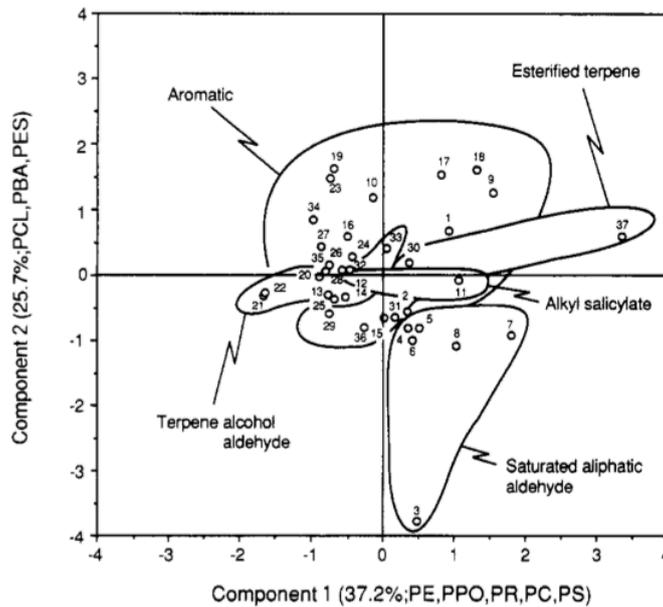


図 1-26 センサ応答の PCA 解析をもとに作られるクラスターの様子 [63]

・ Artificial odor-recognition system using neural network for estimating sensory quantities of blended fragrance[64]

当研究室における先行研究にはファジィ学習ベクトル量子化法(Fuzzy Learning Vector Quantization, FLVQ)を用いて匂いの識別及び匂いの印象予測するという試みがあった。FLVQ は LVQ の動作をファジィ理論によって表したもので、入力には曖昧なファジィ量を扱うことができるものである。手法の詳細な説明は参考文献に譲る[65]。FLVQ では入力にファジィ数が許されるため、測定誤差などによる曖昧さを直接扱うことができる利点を持つ。

研究では 8 種類の香料を混ぜ合わせた時の匂いの変化を予測するために FLVQ を用いたモデルが使用された。8 種類の香料は 10% ずつ比を変えながら混ぜ合わされ、その混合物の匂いの印象は 120 人の訓練を受けていない人間からなるパネルにより SD 法で評価された。この FLVQ を用いたモデルは、混合比と共に非線形に変化する香料の組み合わせに対し、人間に与える印象のうち「Comfortable」及び「sweet」を予測することが可能であった(図 1-27)。

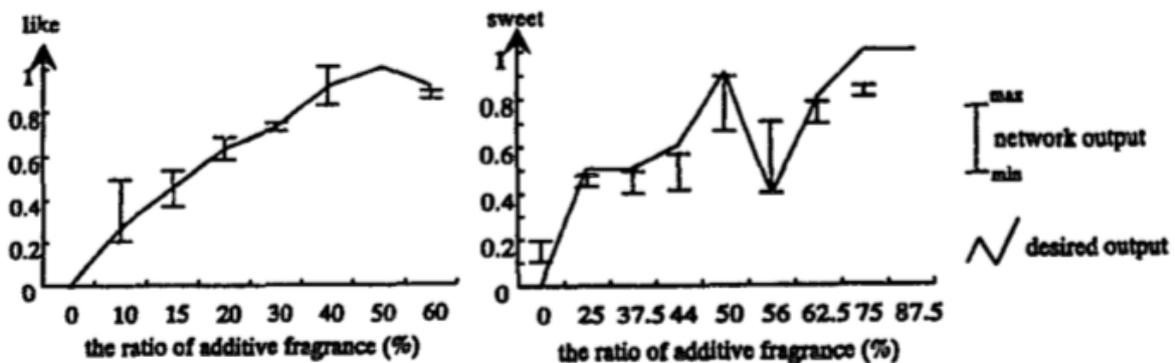


図 1-27 FLVQ モデルによる Like 及び Sweet に対する匂い印象値の予測 [64]

・ Record of Mint Flavor Using Mass Spectrometry [44]

官能検査の予測値を、匂い物質のマスペクトルから予測するニューラルネットワークについての研究は 2005 年に当研究室で行われた。実験では 4 種類のスペアミントと 1 種類のペパーミントの試料が用意され、マスペクトルを入力にとる SOM により 2 種類のミントを混ぜ合わせた時の匂いの印象の予測が試された。

ミントのマスペクトルは線形手法(Canonical discrimination analysis)により 10 の変数に圧縮され、自己組織化はマスペクトル変数から未知の匂い物質の匂い印象を予測するように訓練された。匂い印象のデータを集めるために、6 人の官能検査の専門家が用意され、2 種類のミントの混合によって作られた匂いは、専門家らによって 5 種類の記述子について 0 から 5 の 6 段階で評価された。

自己組織化マップによる匂い印象の予測精度はマスペクトルの線形重ね合わせを基にした匂い印象の予測よりもより良い精度であった。図 1-28 は実際の官能検査データと自己組織化マップから出力された匂い印象の予測値の関係を示している。匂い物質のプロパティと人間が物質から受け取る匂い印象の関係を表現するのにニューラルネットワークなどの非線形手法が有効であることが確認された。

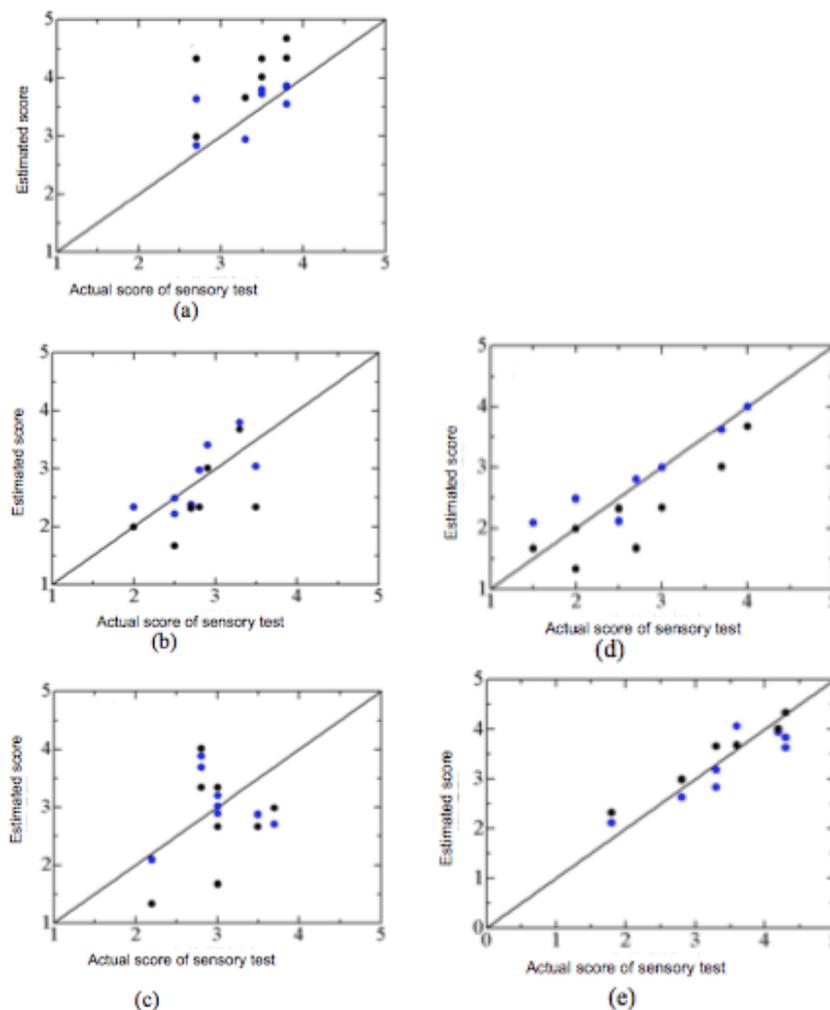


図 1-28 ミント香料を混ぜ合わせて作られる匂いの印象の、人間による評価(黒点)と SOM の出力(青点) (a)Green note, (b)Sweetness, (c)Fresh herb, (d)Dryness, (e)Refreshment [44]

・ Odor Clustering Based on Molecular Parameter for Odor Sensing [66]

生物は嗅覚受容体の活性化のパターンを利用して多数の匂いの認識及び区別を行っている。匂い物質がその分子的な特徴によりクラスタ分けされていることを考えれば、その特徴となるパラメータを用いることで生物の嗅覚を模した匂いのクラスタリングを行うことができるはずである。林らはラットの嗅球マップ（特定の匂い物質を与えた際に、ラットの嗅球がどのように活性化したかを示す2次元画像）をPCAなどの線形手法により分析し、人工的な匂い地図の生成を試みた。

実験に使用されたラットの嗅球マップは197x357ピクセルからなる321種類の匂い物質に対する刺激として得られたものである。これを予測するための変数として、各匂い物質の76種類の分子パラメータが分子モデリングのためのソフトウェアであるMOPACとGAMESSを用いて用意された。

実験では第一から第六までの主成分が使用された。これらの主成分への寄与が特に大きい嗅球部分は図1-29に示すとおりである。嗅球マップは9つのエリアに分けられ、この9つのエリアと特に関係を示した9種類の要因は図1-30の通りである。林らの研究グループは分子パラメータから予測された人工の嗅球マップと実際のラットの嗅球マップは多次元尺度尺度構成法(Multi Dimensional Scaling, MDS)により作られた2次元表現において極めて近い位置関係となることを報告し(図1-30)、分子のサイズや分子の酸解離定数、エステル構造や疎水性領域などのパラメータにより嗅球の反応が予測できることを示した(図1-31)。

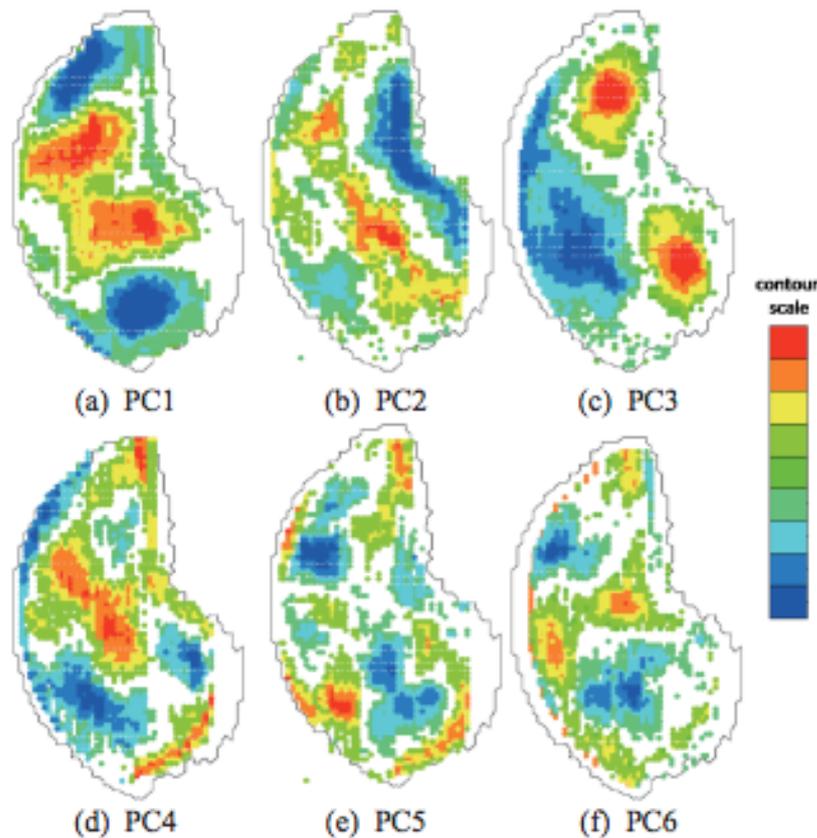


図 1-29 321 種の匂い物質から分析したラットの嗅球の第1～第6主成分 [66]

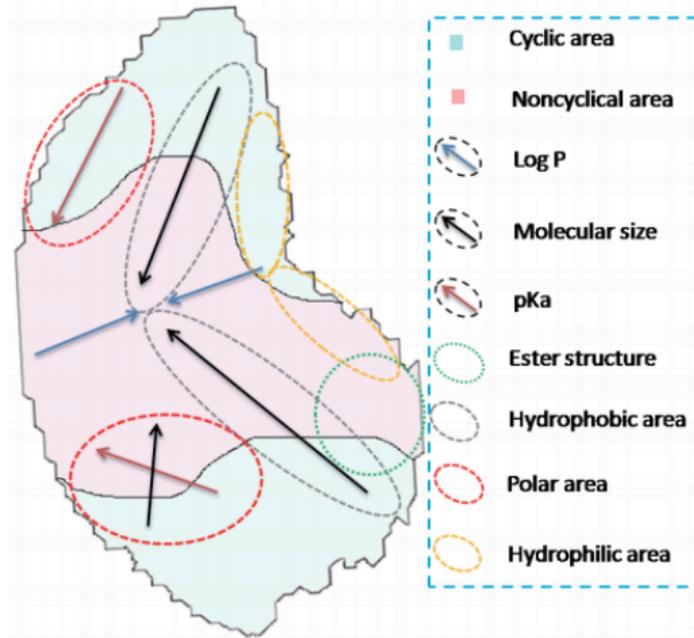


図 1-30 ラットの嗅球の各部位と分子パラメータの相関 [66]

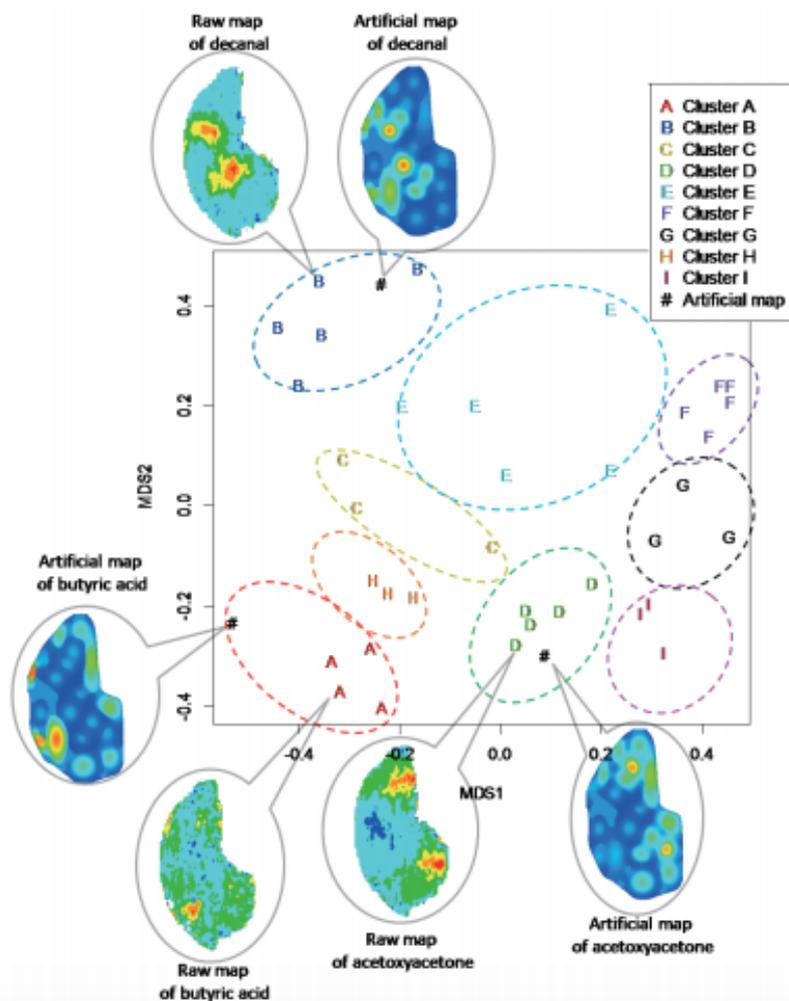


図 1-31 MDS：分子パラメータから予測した人工嗅球マップと実際の嗅球の反応 [66]

・ Odor Clustering Based on Molecular Parameter-Feature Extraction and Imaging
Analysis of Olfactory Bulb Odor Maps [67]

受容する分子の特徴に基づいて引き起こされる嗅球の反応パターン(匂い地図)は匂いの質の基本的な情報を示している。この匂い地図と匂い物質の分子構造パラメータの関係性を探るための研究として、林らは Pearson Correlation Coefficient maps(PCC-maps)を用いた手法、及び t-distributed Stochastic neighbor embedding (t-SNE)法による 2次元空間上に両者関係を投影する手法、また匂い地図と分子パラメータの特徴量から官能基グループを特定するための、ニューラルネットを用いた手法を提案した。研究では OdorMapDB より取得した 178 種類の匂い物質に対する嗅球の活性画像(178 x 357 pixle)を用いて、BioChem3D から抽出した分子パラメータを用いて両者の関係を数理モデル化された。分子パラメータには沸点や大きさ、質量などの 46 種類のパラメータが用いられた。

PCC-maps では匂い地図行列と分子パラメータ行列から計算した相関係数を要素とする行列を作成する。PCC-maps により作成した相関係数行列は階層的クラスタリングにより分析され、分子パラメータに応じて嗅球の反応が7つのクラスタに分けられること、またそれぞれのクラスタにはよく似た嗅球の反応パターンが所属することを報告した(図 1-32)。

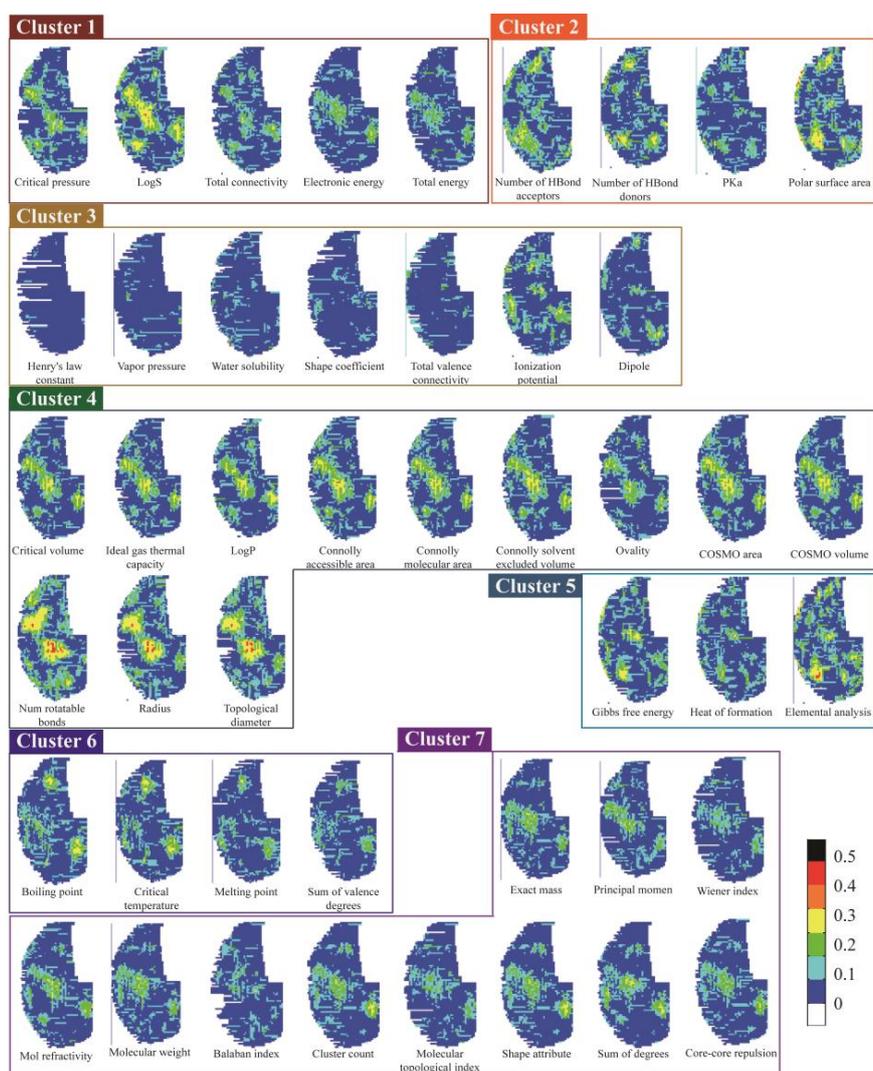


図 1-32 PCC-maps を元で作成した各クラスタに含まれる匂い地図, [67]

匂い地図データセット及び分子パラメータデータセットのそれぞれに PCA を適用し、それぞれ 80 主成分及び 23 主成分を用いて、匂い物質を 2 次元空間上で表現するための t-SNE を用いた手法を紹介した。図 1-33 は同手法により作成された、匂い物質を 2 次元空間上にマッピングしたものである。(a)図は匂い地図の情報から作成した t-SNE マップであり、(b)は分子情報より作成したマップである。両図において、楕円で囲まれる部分は 14 の官能基グループを示している。同図よりそれぞれのマップで同じ官能基グループに含まれる物質が近傍に現れることがわかる。また(a)における官能基グループ内での分布について、aliphatic esters と alcohols のグループについては炭素鎖の長さが、また carboxylic acids についてはそこから枝分かれする部分の長さが重要な要素であるということを報告した。また(b)と比較すると、(a)においては複数の箇所に現れた aliphatic esters、alcohols、carboxylic acids などの官能基グループに含まれる匂い物質が、(b)においては全て近傍同士に現れるなどの連続性が存在することを報告した。

また同論文では匂い地図と分子パラメータの特徴量を入力として用いることで、匂い物質の官能基グループを特定するための、ニューラルネットを用いた手法が提案されており、93.02%の精度で官能基グループを予測することが可能であることを報告している。本研究では分子パラメータでなくマススペクトルを用いるが、林らの研究も分子の構造情報を用いた匂いの印象の可能性を支持する結果を示している。

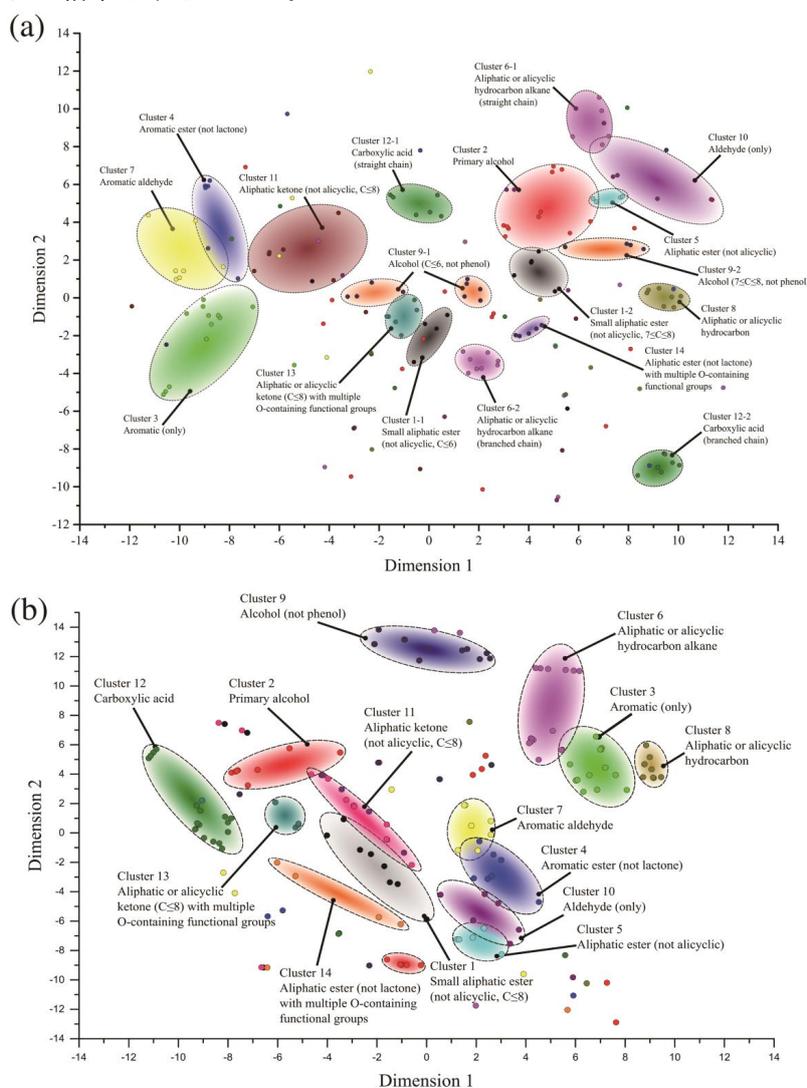


図 1-33 匂い物質の 2 次元空間上での分布(t-SNE 法), [67]

(a)匂い地図から作成した 2 次元マップ (b)分子パラメータから作成した 2 次元マップ

1.8.3. 他の予測モデルと提案モデルの特徴比較

本節で紹介した先行研究の手法、入力変数、予測変数と得られた結果を表 1-3 にまとめる。本研究に特に目的に近い研究としては[62]及び[63]が挙げられる。目的変数の次元(匂い印象の記述子の数)は最大でも 53 にとどまること、またモデルには PCA 及び回帰予測を用いた線形手法が主であることがわかる。

表 1-3 先行研究におけるモデル手法の比較

研究グループ/ 発表年	説明変数		目的変数		モデル手法
	変数名	次元数	変数名	次元数	
Yokoyama /1993, [63]	37 種類の匂い物質に対するセンサアレイ(8つの QCM)応答の PCA 主成分	4	匂い分子から人間が感じるであろう印象の予測値 (Pleasantness、Freshness 他 5 3 種類の記述子)	55	PCA 線形回帰
Nakamoto /1996, [64]	8 種類の匂い物質の混合比	1	匂い分子から人間が感じるであろう印象の予測値 (Comfortable, Sweet などの 1 1 種類の記述子)	11	FLVQ
Nakamoto /2005, [44]	ミント香料の混合物のマスペクトル	240	匂い分子から人間が感じるであろう印象の予測値 (Green, Sweetness, fresh, dryness, refreshment の 5 種類の記述子)	5	SOM
Sobel /2007, [62]	1565 種の匂い物質から得た分子パラメータ 1513 種の PCA 主成分	5	匂い分子から人間が感じるであろう印象の予測値 (Pleasantness 及び Edibility)	2	PCA 線形回帰
Castro /2013, [46]	Dravnieks の官能試験データ、146 記述子、分子 144 種類	146	匂い認識を表現する基底ベクトル	10	NMF
Hayashi /2014, [66]	197x357 ピクセルからなるラットの嗅球マップと対応する 321 種の匂い物質のパラメータの PCA 分析より得られた、特に影響があると判断された 9 種類の分子パラメータ	9	入力として与えられた分子に対するラットの嗅球の応答予測	9	PCA
Hayashi /2017, [67]	178x357 ピクセルからなるラットの嗅球マップ、及び対応する 178 種類の匂い物質の 46 種類の分子パラメータの主成分	80 + 23	2次元空間上での匂い物質の分布、及び所属する官能基グループの予測	14	PCA t-SNE ANN

1.9. 本研究の目的と意義

ここまで述べたように、匂いの性質や品質は我々の社会において、工業製品、室内空気の品質管理や空気・水質の汚染を知るために重要な感覚特性である。特に食べ物や化粧品などの工業製品の分野においては、開発する製品が所望の匂いを持つように香料の調整(調香)が多数の専門家の試行錯誤により日々行われているが、このプロセスは未だにほとんどの部分で自動化がされていないため、匂いの印象の予測・測定の実自動化によりもたらされる恩恵は大きい。こうした背景のもと、本研究では匂い物質の物理化学的な特性から物質の匂いの印象を予測する数理モデルの検討を行う。

モデルの入力(説明変数)にはマススペクトルの他にも分子構造パラメータや嗅球の活性化情報などの利用が考えられる。Talete社のDragonなどのソフトウェアは数万種類の分子について最大で5000種類以上の分子構造パラメータを利用可能であるが、多くの場合で匂いは純粋な単一分子物質でなく混合物として提示されること、また分子構造パラメータは混合物の表現が容易ではないことから混合物としての入力に対して汎用的に使用できるモデルの構築は困難である。また嗅球の活性状態を入力として用いる場合には現在はカエルやラットの嗅球マップを利用可能であるものの、これらの生物のORNと人間の持つORNの積集合を取り出すことは容易ではなく、また応答の記録データが小規模の匂い物質までに限られるため、本研究ではマススペクトルを入力に採用した。マススペクトルは十数万に及ぶ匂い物質のデータが利用可能であり、同条件での測定の前で分子に対して一意に定まる。マススペクトルの同位体ピークやフラグメントピークは分子構造の有用な情報を含むため、予測子として用いるのに適した入力になり得る。またマススペクトルはその足し合わせで混合物を表現できることから、他のパラメータを用いる場合よりも、簡単に混合物の匂い印象を予測することが可能である。

本研究ではマススペクトルと官能検査データ(人が匂い物質から得る印象)の関係をモデル化する手法に深層ニューラルネットワークを用いる。モデル化手法の候補としては1.8.で紹介したように線形手法であるPLS法やニューラルネットワークを用いた非線形手法であるSOMやFLVQ、ORNモデルなどが考えられる。PLSはモデル化の前提に説明変数と目的変数との関係が線形と仮定していること、またパラメータ数が少なくモデルの表現力に乏しいなどの欠点が挙げられる。ORNモデルは教師信号から入力を自動的に学習させるための安定的な方法が無いことに加え、各ORNの教師データとなる実験データの数が最大で数百程度と限られ、研究の拡張性に乏しいなどのデメリットがある。深層ニューラルネットワークはSOMやFLVQに比べ多くのパラメータを扱うことが可能であり、人体の脳で行われる匂いの認識に関わる複雑な非線形な情報処理を表現できる手法として最も適したものと判断した。深層学習は近年活発に研究されており、音声認識や画像認識、自然言語の処理では多くの研究成果が報告されているが、匂いの分野においては本日まで殆ど報告されていない。

本研究では、複数の隠れ層からなり、複雑な非線形写像を表現可能な深層ニューラルネットワークの効率的な方法の報告に動機付けられ、分子パラメータの一つであるマススペクトルを入力とし、その分子に対応する匂いの印象を非線形な深層モデルを用いて予測する数理モデルについて検討し、実験結果とともに報告する。

本章以降の本論文の構成を図 1-34 に示す。

第二章では本研究で用いたニューラルネットワークの訓練に用いた基本的な技術と研究で使
用したデータセットについて報告する。

第三章では物質の匂い印象を複数の記述子と各記述子への当てはまりの度合いを連続値で表
した官能検査のデータを用いて、匂い印象を連続値で予測する回帰モデルを提案する。また計
算機実験の結果を報告する。

第四章では物質の匂い印象を記述子への当てはまりの有無で表した官能検査のデータを用い
て、匂い印象を分類するモデルを提案する。また計算機実験の結果を報告する。

第五章ではオートエンコーダに用いる距離関数として板倉斎藤距離を検討する。各距離関数
を用いた単純パーセプトロン及びオートエンコーダについての実験結果を報告する。

第六章では第三章で提案した9層のニューラルネットワークと第五章で提案した板倉斎藤距
離を採用したオートエンコーダを組み合わせ、小さなピークの近似性能の改善が匂い印象の予
測精度に及ぼす影響を確認する。

最後に第七章では本研究を通しての結論及び今後の課題と展望について報告する。

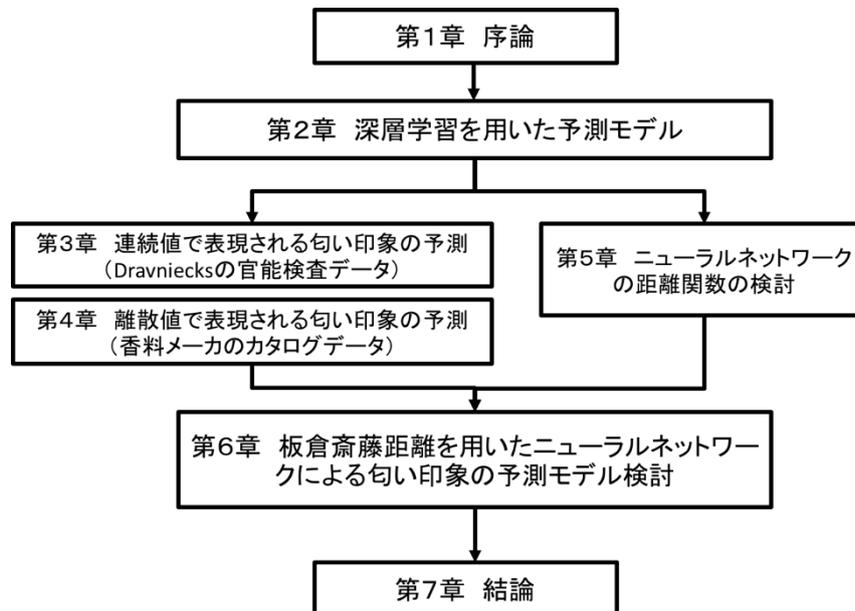


図 1-34 論文の構成

第二章

2. 深層学習を用いた匂い印象予測モデル

2.1. 「匂い印象予測モデル」の概要

ある特定の匂い物質の分子パラメータ（説明変数）が与えられた時、その物質の匂いの印象を表現する変数（目的変数）を予測することを、本研究における「匂い印象の予測」とする。本研究で提案する匂い印象予測モデルでは回帰及び分類モデルの両方を取り扱う。

第三章では採択法(1.6.2)により得られた官能検査結果を回帰予測する。回帰予測モデルはある連続値の説明変数(要因)が与えられた時、目的変数の値を予測する。

四章では記述子が当てはまるかどうかを予測する分類を扱う。分類モデルでは、ある連続値または離散値の説明変数が与えられた際に、あるクラスに属するかどうかを予測する。

先に紹介した通り、本研究では上記の回帰と分類の2つのモデルについて、複雑な非線形性を表現可能な深層ニューラルネットワークを用いる。本章では研究で使用したニューラルネットワークの基本的な実装と、使用したデータについて解説する。なお実装にあたっては東京工業大学大学院知能システム科学専攻における講義『情報学習理論(2014年及び2015年)』、C.M.ビショップによる著書[39]、杉山による著書[68]及び麻生らによる著書[69]などを参考にした。

2.1.1. ニューラルネットワークについて

ニューラルネットワークは1957年にRosenblattによって考案されたパーセプトロンを発展させたアルゴリズムである[35],[70]。パーセプトロンを図2-1に示す。パーセプトロンは生体脳における情報処理を数学的に表現する試みから生まれた回帰・分類手法であり、複数の説明変数が与えられた時に1つの目的変数を出力する。図2-1において、出力 y は入力線の和

$$y = f\left(\sum_{i=1}^N w_i x_i\right) \quad (2-1)$$

で表される。ここで x_i は入力層の i 番目のニューロンの値、 w_i は i 番目のニューロンから出力層への結合の強さ(重み)を表す。 $f(\cdot)$ は分類問題ではステップ関数などの非線形活性化関数であり、回帰では恒等写像が用いられる。パーセプトロンは単体では非線形領域を分離できない問題を持つが、後にニューラルネットワークと呼ばれるモデルの登場で非線形問題へ拡張された。

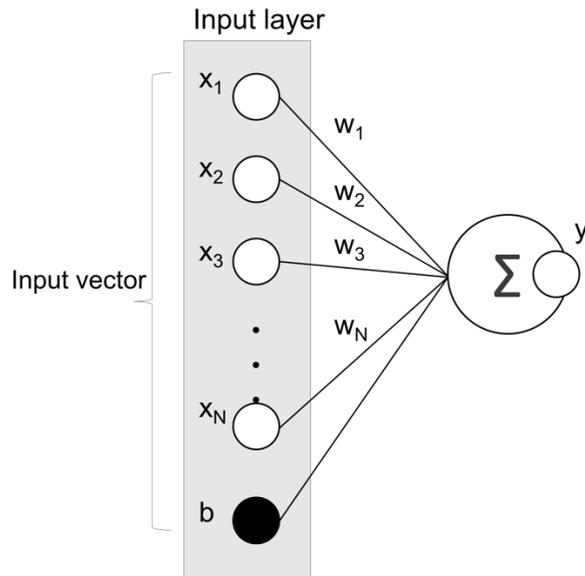


図 2-1 パーセプトロン

ニューラルネットワークでは非線形な活性化関数を持つ隠れ層を複数用いる。ニューラルネットワークでは固定された数の基底関数を用いられ、様々なパラメータを訓練によって適応的に変更することで回帰やクラス分類の問題に適用される。本研究ではフィードフォワードと呼ばれるニューラルネットワークを用いる。ニューラルネットワークは現在では画像認識や音声認識をはじめとした多くの回帰・分類のタスクに用いられている。

図 2-2 は 2 つの説明変数から 2 つの目的変数を予測するニューラルネットワークを示す。図中の一番左の列を入力層、一番右の列を出力層、中央の列を中間層(隠れ層)と呼ぶ。フィードフォワードの名前が示すとおり、入力された情報は左(入力)から右(出力)へと処理されていく。

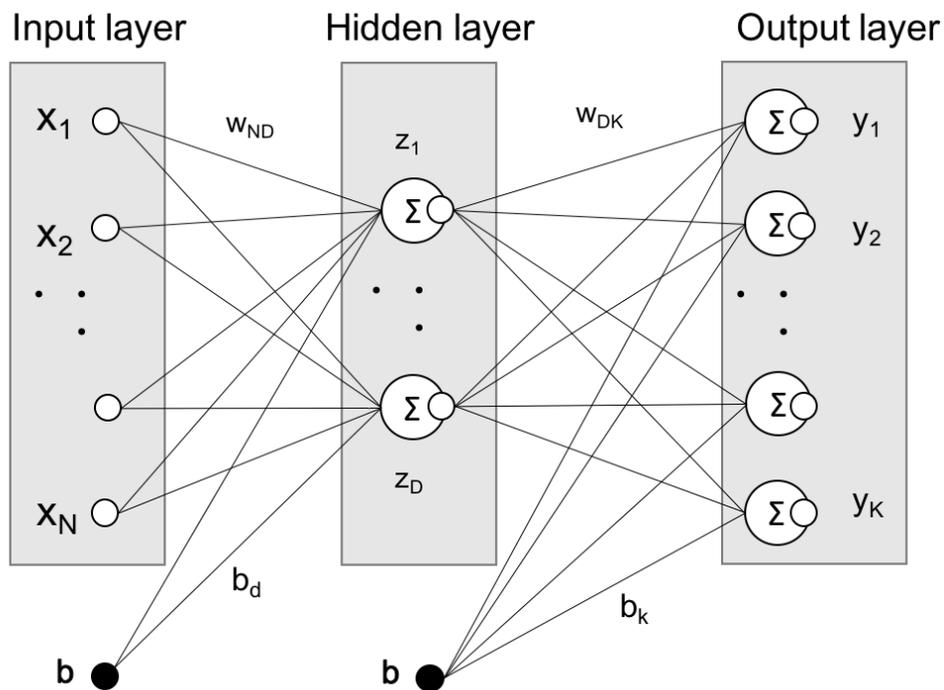


図 2-2 ニューラルネットワーク

中間層のニューロンには活性化関数がいわれている。活性化関数は入力層の信号の総和を出力信号の値に変換する。活性化関数にはシグモイド関数やステップ関数、ヒンジ関数(ReLU, Rectified Linear Unit)などの非線形関数がいられる。この非線形関数を多層に用いることにより、ニューラルネットワークは強い非線形性を持つ関数を表現できる。本研究ではシグモイド関数をニューラルネットワークの活性化関数に用いる。シグモイド関数は式 2-2 で表される。シグモイド関数は微分を簡単に計算することができるため(式 2-3)ニューラルネットワークでは広くいられる。シグモイド関数は図 2-3 に図示されるように、出力は入力に応じて連続的に変化する関数である。

$$\sigma(x) = \frac{1}{1 + \exp(-x)} \quad (2-2)$$

$$\sigma'(x) = (1 - \sigma(x))\sigma(x) \quad (2-3)$$

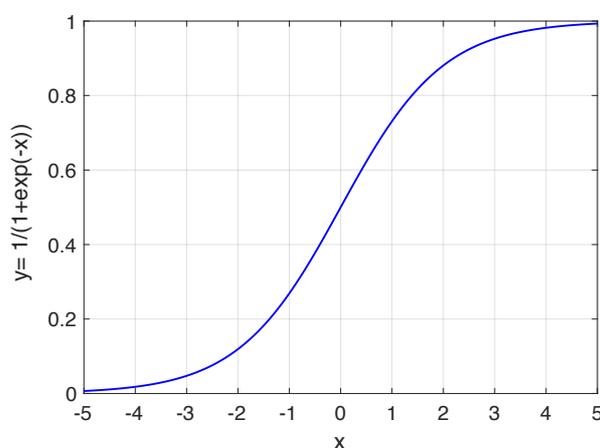


図 2-3 標準シグモイド関数

ある層の j 番目のニューロンと次の層の i 番目のニューロンを繋ぐ重みを w_{ji} と表す。図 2-2 中の入力層と中間層にある \mathbf{b} はバイアスと呼ばれるパラメータで、ニューロンの発火のしやすさをコントロールする。

中間層の出力は、重みつき入力の線形和をシグモイド関数により変換した値となる。中間層の n 番目のニューロンの活性 a_n を

$$a_n = \sum_{i=1}^N w_{ni}x_i + b_n \quad (2-4)$$

とする。中間層のニューロンの出力はこれがシグモイド関数 $\sigma(\cdot)$ で変換されたものである。従って n 番目の中間層のニューロンの出力 z_n は

$$z_n = \sigma(a_n) \quad (2-5)$$

である。中間層から出力層への信号の伝搬も同様にして計算される。ニューラルネットワークの重みが \mathbf{w} 、バイアスが \mathbf{b} であるとき、入力ベクトル \mathbf{x} が与えられた際のネットワークの出力ベクトルを $y(\mathbf{x}, \mathbf{w}, \mathbf{b})$ と表せば、3層ニューラルネットワークの出力層の k 番目のニューロンの出力 $y_k(\mathbf{x}, \mathbf{w}, \mathbf{b})$ は前層の出力 z_n を用いて、

$$y_k(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b}) = \sigma \left(\sum_{n=1}^D w_{kn} z_n + b_k \right) \quad (2-6)$$

で表される。ここで z_d は w_{kn} を通して接続があるニューロンの活性である。ニューラルネットワークは重み及びバイアスを変化させることで複雑な非線形な関数を表現することが可能である。次節にて本研究に使用した訓練方法を説明する。

2.1.2. 確率的勾配降下法

ニューラルネットワークは学習により複雑な関数を表現することができることは古くから証明されており、1987年には船橋らにより、十分な数のニューロンを中間層を持つニューラルネットワークは理論的には任意の関数が近似可能であることが報告された[71]。

使用する重み係数を一次元のベクトルにまとめた重みベクトル \mathbf{w} を誤差関数を減少させる方向に重みを少しずつ変位させることでパラメータ空間における十分に良い極小点を見つけることを考える。すなわち τ を学習ステップ数として、

$$\mathbf{w}^{(\tau)} = \mathbf{w}^{(\tau-1)} - \eta \frac{\partial E(\mathbf{w}^{(\tau)})}{\partial \mathbf{w}} \quad (2-7)$$

となるように変化させる。ここで k 次元の重みベクトルに対する勾配ベクトルは

$$\frac{\partial E}{\partial \mathbf{w}} = \left[\frac{\partial E}{\partial w_1} \quad \frac{\partial E}{\partial w_2} \quad \dots \quad \frac{\partial E}{\partial w_k} \right]^T \quad (2-8)$$

で定義する。ここで η は正の実数であり学習パラメータと呼ぶ。新しい重みベクトルにも同様の計算を行い、これを十分に良い極小点を見つけるまで繰り返す。全ての訓練データの集合を一度に使うテクニックは最急降下法(Steepest descent)として知られるが[72]、ここではより効率の良いアルゴリズムである確率的勾配降下法(Stochastic gradient descent)を用いる[73]。確率的勾配降下法では重みベクトルの更新は1つのデータ点毎に行う。本研究ではデータは非復元抽出されて用いられた。

2.1.3. 誤差逆伝播法

誤差逆伝播法(Backpropagation)は1986年にRumelhartらによって発表された[74]、重みとバイアスを最適化するための効率的な学習手法の一つである。

まず、ある信号が与えられた時のニューラルネットワークに期待する出力(教師信号)と実際の出力の誤差を誤差関数によって評価することを考える。誤差関数はニューラルネットワークの性能の「悪さ(または良さ)」を示す指標であり、この指標が小さくなることでネットワークの出力が教師信号に近づくように設定する。誤差関数は一般には二乗和誤差や交差エントロピーが用いられる。

誤差関数に対する重みとバイアスの勾配(偏微分)を計算し、誤差関数が減少する方向に僅かに動かす操作を繰り返すことでフィードフォワードニューラルネットワークを学習させることができる。出力に対する勾配は偏微分の連鎖法則を用いて以下の式により計算できる。 n 番目のデータに対する誤差を E_n とすると、

$$\frac{\partial E_n}{\partial w_{ji}} = \frac{\partial E_n}{\partial a_j} \frac{\partial a_j}{\partial w_{ji}} \quad (2-9)$$

となる。これを式2-9及び式2-10を用いて、式2-11に書き直す

$$z_i = \partial a_j / \partial w_{ji} \quad (2-10)$$

$$\delta_j = \partial E_n / \partial a_j \quad (2-11)$$

$$\frac{\partial E_n}{\partial w_{ji}} = \delta_j z_i \quad (2-12)$$

隠れ層のニューロンの誤差 δ の評価には偏微分の連鎖法則を用いて式 2-13 で計算できる。

$$\delta_j = \sum_k \frac{\partial E_n}{\partial a_k} \frac{\partial a_k}{\partial a_j} \quad (2-13)$$

ある重みを持つ出力ユニットの δ_j の値と重みの入力側のユニットの z_i の積により必要な勾配を得ることができる。従って勾配の評価にはネットワークの各中間層のユニットと出力ユニットの誤差 δ を計算し、式 2-12 及び式 2-13 を適用すればよい。ニューロンの出力 $y_k(\mathbf{x}_n, \mathbf{w})$ に対する教師信号を t_{nk} とし、誤差関数に二乗誤差(式 2-14)を用いれば、入力 \mathbf{x}_n の重みに対する勾配は式 2-15 となる。

$$E_{MSE}(\mathbf{w}) = \frac{1}{2} \sum_k (y_k(\mathbf{x}_n, \mathbf{w}) - t_{nk})^2 \quad (2-14)$$

$$\frac{\partial E_{MSE}(\mathbf{w})}{\partial w_{ji}} = (y_k(\mathbf{x}_n, \mathbf{w}) - t_{nk}) x_{ni} \quad (2-15)$$

同様に交差エントロピー(式 2-16)を用いる場合、入力 \mathbf{x}_n の重みに対する勾配は式 2-17 となる。

$$E_{CE}(\mathbf{w}) = \sum_k t_{nk} \ln y_k(\mathbf{x}_n, \mathbf{w}) + (1 - t_{nk}) \ln(1 - y_k(\mathbf{x}_n, \mathbf{w})) \quad (2-16)$$

$$\frac{\partial E_{CE}(\mathbf{w})}{\partial w_{ji}} = y_k(\mathbf{x}_n, \mathbf{w}) - t_{nk} \quad (2-17)$$

本研究の六章ではこの他、板倉斎藤距離(Itakura-Saito Divergence)を利用するが、その時の誤差の計算は六章で説明する。

2.1.4. 慣性項と正則化

確率的勾配降下法は問題によっては学習が効率的に行えないなどの問題を持つことが知られており、慣性項(Momentum)はこの確率的勾配降下法の欠点を改善するための手法である[75]。学習を加速させる手法には他にも AdaGrad, また慣性項と AdaGrad を組み合わせた Adam などがある。Adam は 2015 年に提案された手法であるが、Momentum よりも効率的にパラメータ空間を探索できる可能性が知られている[76]。

学習項を含めた更新式は式 2-18 のようになる。

$$\mathbf{w}^{(\tau)} = \mathbf{w}^{(\tau)} - \eta \frac{\partial E(\mathbf{w}^{(\tau)})}{\partial \mathbf{w}^{(\tau)}} - \alpha(\mathbf{w}^{(\tau-1)}) \quad (2-18)$$

ここで、 α は正の実数で、慣性項の大きさを制御するハイパーパラメータである。慣性項は物理学の速度の概念に対応し、物体が勾配の方向から力を受けて、速度が加速するような物理法則を表している。式 2-18 の右辺第三項は[75]で提案される慣性項と一部異なる。

正則化(Regularization)はモデルの過学習(Overfitting)を防ぐための手法である。過学習は主に誤差関数の局所解に陥った状態をさし[77]、モデルのパラメータが多いほど、または訓練データが少ないほど過学習は起きやすくなる。減衰(Weight Decay)と呼ばれる方法では、モデルの誤差関数に正則化項を加える事によって学習時の重みの自由度を制約することで過学習を防ぐ。正則化項には L1 ノルム $\|\mathbf{w}\|$ (Lasso, 式 2-19)[78], と L2 ノルム $\|\mathbf{w}\|^2$ (Ridge, 式 2-20)[79] である。それぞれの正則化項を用いれば、誤差関数は次のように表される。

$$E(\mathbf{w}) = \frac{1}{N} \sum E_n(\mathbf{w}) + \lambda \sum \|\mathbf{w}\| \quad (2-19)$$

$$E(\mathbf{w}) = \frac{1}{N} \sum E_n(\mathbf{w}) + \frac{\lambda}{2} \sum \|\mathbf{w}\|^2 \quad (2-20)$$

ここで λ は正則化ハイパーパラメータと呼ばれる正の実数である。重み減衰以外の正則化の方法には重み上限[80]やドロップアウト[81]などが知られる。

2.1.5. データの正規化と重みの初期値

データの正規化(Normalization of data)は訓練を効率よく実行するために施されるデータの前処理の手法である。全てのサンプルに線形変換を施し、各特徴量の平均や分散を揃えることを目的とする。事前にデータの特性(分布)が判明している場合には多くの手法が提案されている。特に正規分布などに基づくことがわかっている場合には平均を 0、分散を 1 に揃える前処理が一般的であるが、本研究においてはデータの分布に仮定を持つことが難しかったため、データセット中の最大値で除算することによりデータの値を [0,1] の範囲に収まるように変換した。

ニューラルネットワークに十分な表現力を持たせるためには重みの初期値に適切なランダムな値を与える必要がある。同一の重みを用いると出力の重複するニューロンが生まれてしまい、ニューラルネットワークの表現を制限してしまうためである。三章及び四章においては重みの初期値には平均 0、分散 1 のガウス分布から取り出した乱数に係数 0.1 をかけたものを、五章及び六章においては重みの初期値には Xavier の初期値で知られるガウス分布を用いた[82]。これは前層のニューロン数を n として、 $1/\sqrt{n}$ の標準偏差を持つガウス分布である。

2.1.6. 深層ニューラルネットワーク

深層ニューラルネットワークは、複数の隠れ層を持つニューラルネットワークである。誤差逆伝播法の開発により、複数層のニューラルネットワークを学習させることは可能になったが、層の数が増えるにつれて、誤差逆伝播法では良い結果が得られなくなることがわかっていった。パラメータが増大することにより局所解へトラップされること、また多くの複数層を同時に学習させようとする、勾配消失問題と呼ばれる問題により学習が思うように進まなくなることなどが原因であった。これらの問題は 2000 年代前半に Hinton らによって提案された効率的な深層ネットワークの学習方法により解決しつつある。これはディープビリーフネットワーク(Deep belief network, DBN)と呼ばれるグラフィカルモデルを複数の単層の制約付きボルツマンマシン(Restricted Boltzmann machine, RBM)に分解し、それぞれの RBM を教師なし学習させて得た初期値を用いて再度複数層化させることで過適合することなく、汎化性能を持つ深層ネットワークを構築する手法である。ニューラルネットワークを深層化させる際には RBM の代わりにオートエンコーダが用いられる。

2.1.7. 深層オートエンコーダ

深層オートエンコーダは複数の隠れ層を持つオートエンコーダであり、深層ニューラルネットワークの事前学習のために用いられる。1990年には船橋らにより3層のニューラルネットワークによる情報圧縮の性能は主成分分析を超えないことが理論的に証明された[83]。非線形な次元圧縮のための3層の隠れ層を用いたオートエンコーダにより主成分分析の結果を超えることがCottrellらによって示されており[84]、本研究でも基本的には3層の隠れ層を持つオートエンコーダを用いる。研究で用いたオートエンコーダを図2-4に示す。このオートエンコーダの学習方法や重みベクトルの初期値選択等は2.1.2から2.1.5に示したとおりである。

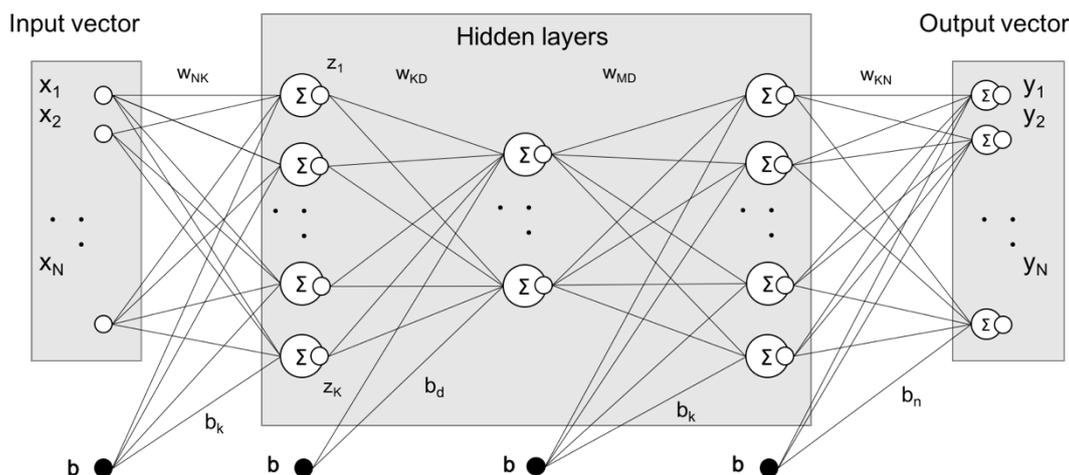


図 2-4 深層オートエンコーダ

2.1.8. 本研究における匂い印象予測のモデル化のアプローチ

一章で紹介したように、匂い物質を受容から匂いの認識に至るまでには人の脳による複雑な情報処理が行われている。本研究ではここまで紹介した各種のテクニックを元に、この情報処理の流れをモデル化する深層ニューラルネットワークを構築する。三章では深層ニューラルネットワークを用いて匂いの印象を連続値で予測する回帰モデルを、四章では分類モデルを提案する。深層ニューラルネットワークモデルの構成や学習方法の詳細は各章に譲る。

2.2. 研究で使用するマスペクトルデータについて

マスペクトルは分子の情報を表す物理化学量の一つで、イオン化させた被測定分子のフラグメントの分子量と強度の関係を示す。マスペクトルは測定条件が同じであれば分子毎に一意に定まる。マスペクトルのデータは官能検査と異なり、条件を合わせた実験を安定的に行うことができるため、大規模なデータセットを作成することができる。

本研究においては米国 National Institute of Standards and Technology (NIST)がインターネット上で公開する NIST Chemistry WebBook[85]より入手したマスペクトルデータを用いる。NIST 公開するこのデータベースにおいて、サンプルのマスペクトルは EI 法(70eV)の条件のもとに測定されている。NIST Chemistry WebBook では 15 万種類以上の化学物質について、マスペクトルに加えて以下のデータが提供されている。

- (1) Formula
- (2) Molecular weight
- (3) IUPAC Standard InChI
- (4) IUPAC Standard InChIKey
- (5) CAS Registry Number
- (6) Chemical structure (2D and 3D)
- (7) Other names
- (8) Gas phase thermochemistry data
- (9) Phase change data
- (10) Reaction thermochemistry data
- (11) Henry's Law data
- (12) Gas phase ion energetics data
- (13) Ion clustering data
- (14) Mass spectrum (electron ionization)
- (15) Constants of diatomic molecules
- (16) Fluid Properties
- (17) UV/Visible spectrum
- (18) Vibrational and/or electronic energy levels
- (19) Gas Chromatography

マスペクトルにおいて、匂いの印象に特に関係が深いのは一部の m/z ピークであると考えられている。例えば $50m/z$ 以下のピークには無臭分子(O_2 , N_2 , CO_2)や溶媒由来のピークが多く含まれていることから雑音になりうること、また人は空気中にある匂い分子しか感じることができないため、大気圧の下での揮発性が低い $300m/z$ 以上のピークについても匂いの印象にはほとんど寄与しないと考えられる。よって本研究では、匂い印象の予測のためのデータとして、マスペクトルに含まれる $51m/z$ から $262m/z$ までのピークを用いた。

2.3. 研究で使用する官能検査データについて

一章で紹介した通り、官能検査には多くの種類が存在する。データの正しい取り扱いのためには、官能検査の検査条件を正しく理解する必要がある。ここでは本研究で用いた官能検査のデータについて解説する。

2.3.1. Dravnieks

本研究で Dravnieks の官能検査と呼ぶものは、米国の複数の研究機関(IIT Research Institute, Institute of Olfactory Science, International Flavors and Fragrances, Procter and Gamble)の主導により行われた ASTM Odor Profiling Project の結果、A.Dravnieks により [86]で報告された結果を指す。

同プロジェクトは香料に用いられるようなポジティブな印象を与える匂い物質から悪臭の元となるネガティブな匂いの特性を持つ匂い物質まで、幅広い対象の匂いの特性をより客観的なデータとして残すことを目標としてデザインされた。この官能検査におけるパネルは、120-140人からなる、十分に訓練を受け、用意された記述子を使いこなすことができる検査者によって構成されている。

試料の匂いの性質を評価するために 146 の記述子が用意された。検査において被験者に与えられる回答用紙ではこの記述子の真下に記述子への当てはまりを 0 から 5 の 6 段階で評価するための数直線が与えられており、検査者はこれを用いて匂いの性質を評価する。ここで、0 はその記述子が全く当てはまらないこと、5 は非常によく当てはまることを意味する。

検査の最終的な結果として Percentage of applicability が匂いの性質を表現するための指標として用いられるが、この指標を計算するために、後述する 2 つの統計値 (Percentage of usage, Percentage of the maximum possible score) が計算された。同検査により得られる指標は厳密には離散値であるが、実用上は連続値として取り扱って問題ないように、Percentage of applicability が計算された。Percentage of applicability は、この Percentage of usage と Percentage of the maximum possible score の幾何平均で表される。以降の本研究においては匂い印象のスコアとして Percentage of applicability を用いる

(1) Percentage of usage :

ある匂い物質の官能検査に参加した検査者のうち、何%の人間が「ある特定の記述子とその物質の評価」に用いたかを示す。例えば 5 人の検査者が試験に参加し、そのうちの 4 人が "Heavy" の記述子を用いた時、Percentage of usage は 80% となる。

(2) Percentage of the maximum possible score :

ある匂い物質の官能検査に参加した検査者全員が最大の当てはまり度を示す回答をした場合の値を Maximum total score として考え、実際に検査者群から得られたスコアを Maximum total score との比として示す。例えば 5 人の検査者が試験に参加し、それぞれの報告するスコアが (3, 4, 2, 2, 0) である場合について考える。最大のスコアは 5 人全員が 5 と回答した場合、即ち $(5+5+5+5+5)=25$ であり、検査により得られたスコアは $(3+4+2+2+0)=11$ である。この時、Percentage of the maximum possible score は $(11/25)=0.44$ である。

検査では 160 種類の匂い物質が用意された。そのうちの 144 種類は単一分子物質であり、残りの 16 種類は混合物である。全ての匂い物質は、匂いの弱い溶媒で知られる Dipropylene Glycol に溶かされ、バルサ材のチップに浸されて検査者に提示される。この 144 種類の単一分子物質のうち、6 種類の物質については 2 種類の濃度 (高濃度・低濃度) で検査された。

検査に使用された記述子は 146 種類であった。この記述子群が選択された経緯について解説する。まず、ASTM Sensory Evaluation Committee は一般に官能検査に使われる可能性のある記述子を凡そ 800 選択した。この後、検査に協力した 7 つの研究機関から合計 100 人程度の識者が集い、この 800 の記述子を 3 つのグループ、useful, useless, between に分けた。この時、800 個中の 160 個の記述子が useful のグループに入っていた。この後、さらに識者の間で話し合いが行われ、最終的には 146 種類の記述子が選択された。検査のパネルの性別や年齢などについては以下にまとめる通りである。

女性	61%
男性	39%
喫煙者	21%
20 歳以下	4%
20 歳から 29 歳	42%
30 歳から 39 歳	25%
40 歳から 49 歳	12%
50 歳から 59 歳	10%
60 歳以上	7%

Dravnieks のデータには、それぞれの分子について、以下の情報が含まれている。

1. CAS registry number
2. Formula
3. Molecular Weight
4. Concentration (ML/LITER)
5. Number of evaluators
6. Number who detected odor
7. Percent who detected odor

2.3.1.1. 記述子間の相関係数

Dravnieks により報告されたデータの内、単一分子物質に注目すればその数は 144 種類である。これらの物質の匂いの性質が 146 種類の記述子を用いて評価されているため、行列で表せば 144 行 146 列の行列となる。本研究のために同資料を裁断、スキャナにより電子データとした上でテキスト読み込みにより実験用の関係データベース(csv)を作成した。作成されたデータベースの正誤の確認は実験担当者の目視により行った。

またそれぞれの記述子間の共線性の調査のために各記述子の相関係数を計算した際、2 組みの記述子のペア(CARAWAY と CHEESY、及び APPLE と SOUPY)について相関係数が 1 となっていることが分かった。一般によく似た記述子として考えられている ROSE と VIOLET の組み合わせでも相関係数は 0.88 程度であるため、これらの記述子のペアについてはどちらか一方が誤りであると考えられた。長谷川香料株式会社井手純一氏からのアドバイスを受け、データセットから CHEESY 及び APPLE の記述子を排除した。CARAWAY は天然精油で Limonene や Carvone が多く含まれる匂い物質の印象を示す記述子でありデータベース中では CARAWAY の値が比較的高い Carvone 酸類の官能検査結果と一致していること、また SOUPY と相関係数の高かった記述子には MEETY や ONION などがあったことを排除の理由とした。以下にそれぞれの記述子間の相関係数を示す。多くの記述子 (FRAGRANT-AROMATIC、ROSE-VIOLET、MEDICINAL-CHEMICAL や LIGHT-COOL など)の間で 0.9 を超える高い相関があることが確認された。実験に使用した 144 種類の記述子を表 2-1 に示す。

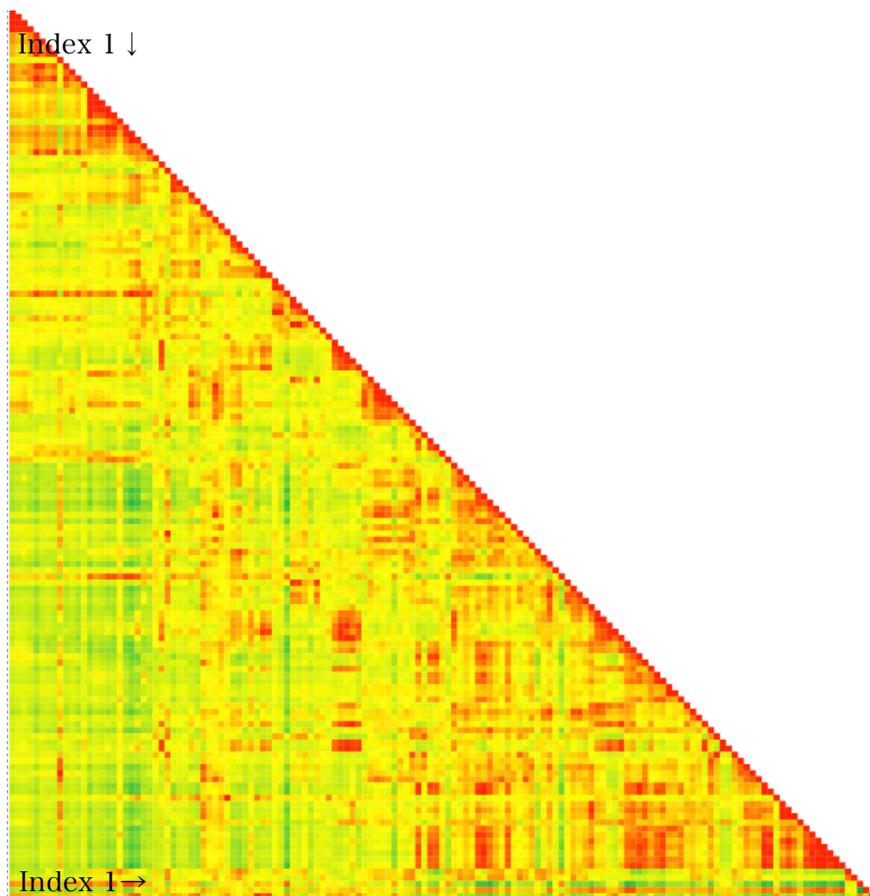


図 2-5 記述子間の相関係数

全てのペアについての記述子間の相関係数を示す
赤になるほど相関係数が1に近く、緑になるほど0に近い

表 2-1 使用した記述子

Index	Descriptor	index	Descriptor
1	FRUITY, CITRUS	73	SOAPY
2	LEMON	74	LEATHER
3	GRAPEFRUIT	75	CARDBOARD
4	ORANGE	76	ROPE
5	FRUITY, OTHER THAN CITRUS	77	WET PAPER
6	PINEAPPLE	78	WET WOOL, WET DOG
7	GRAPE JUICE	79	DIRTY LINEN
8	STRAWBERRY	80	STALE
9	PEAR	81	MUSTY, EARTHY, MOLDY
10	CANTALOUPE, HONEY DEW MELON	82	RAW POTATO
11	PEACH (FRUIT)	83	MOUSE
12	BANANA	84	MUSHROOM
13	FLORAL	85	PEANUT BUTTER
14	ROSE	86	BEANY
15	VIOLETS	87	EGGY (FRESH EGGS)
16	LAVENDER	88	BARK, BIRCH BARK
17	COLOGNE	89	CORK
18	MUSK	90	BURNT, SMOKY
19	PERFUMERY	91	FRESH TOBACCO SMOKE
20	FRAGRANT	92	INCENSE
21	AROMATIC	93	COFFEE

22	HONEY	94	STALE TOBACCO SMOKE
23	CHERRY (BERRY)	95	BURNT PAPER
24	ALMOND	96	BURNT MILK
25	NAIL POLISH REMOVER	97	BURNT RUBBER
26	NUTTY (WALNUT ETC)	98	TAR
27	SPICY	99	CREOSOTE
28	CLOVE	100	DISINFECTANT, CARBOLIC
29	CINNAMON	101	MEDICINAL
30	LAUREL LEAVES	102	CHEMICAL
31	TEA LEAVE S	103	BITTER
32	SEASONING (FOR MEAT)	104	SHARP, PUNGENT, ACID-
33	BLACK PEPPER	105	SOUR, VINEGAR
34	GREEN PEPPER	106	SAUERKRAUT
35	DILL	107	AMMONIA
36	CARAWAY	108	URINE
37	OAK WOOD, COGNAC	109	CAT URINE
38	WOODY, RESINOUS	110	FISHY
39	CEDARWOOD	111	KIPPERY (SMOKED FISH)
40	MOTHBALLS	112	SEMINAL, SPERM-LIKE
41	MINTY, PEPPERMINT	113	NEW RUBBER •
42	CAMPHOR	114	SOOTY
43	EUCALIPTUS	115	BURNT CANDLE
44	CHOCOLATE	116	KEROSENE
45	VANILLA	117	OILY, FATTY
46	SWEET	118	BUTTERY, FRESH BUTTER
47	MAPLE SYRUP	119	PAINT
48	CARAMEL	120	VARNISH
49	MALTY	121	POPCORN
50	RAISINS	122	FRIED CHICKEN
51	MOLASSES	123	MEATY (COOKED, GOOD)
52	COCONUT	124	SOUPY
53	ANISE (LICORICE)	125	COOKED VEGETABLES
54	ALCOHOLIC	126	RANCID
55	ETHERISH, ANAESTHETIC	127	SWEATY
56	CLEANING FLUID-	128	HOUSEHOLD GAS
57	GASOLINE, SOLVENT	129	SULFIDIC
58	TURPENTINE (PINE OIL)	130	GARLIC, ONION
59	GERANIUM LEAVES	131	METALLIC
60	CELERY	132	BLOOD, RAW MEAT
61	FRESH GREEN VEGETABLES	133	ANIMAL
62	CRUSHED WEEDS	134	SEWER
63	CRUSHED GRASS	135	PUTRID. FOUL, DECAYED
64	HERBAL, GREEN, CUT GRASS	136	FECAL (LIKE MANURE)
65	RAW CUCUMBER	137	CADAVEROUS (DEAD ANIMAL)
66	HAY	138	SICKENING
67	GRAINY (AS GRAIN)	139	DRY, POWDERY
68	YEASTY	140	CHALKY
69	BAKERY (FRESH BREAD)	141	LIGHT
70	SOUR MILK	142	HEAVY
71	FERMENTED (ROTTEN) FRUIT	143	COOL, COOLING
72	BEERY	144	WARM

2.3.1.2. 主成分分析

次にデータセットの分散について分析した。大きな分散を持つ記述子は多くのデータを説明するのに使用された記述子であり、人が匂い物質の印象を評価する際に重視している記述子である。反対に、小さな分散を持つ記述子は匂いの印象を描写する際に重要でない記述子であると言える。

第一主成分軸は大きな分散の記述子の因子負荷量が多くなるはずである。過去の研究によれば主成分分析の第一主成分軸は「良い・悪い」を示す軸であることが示唆されている[87]。本研究の事前準備としてこの仮説を検証する。図 2-6 は最大値が1になるように正規化されたデータセットにおける、各記述子毎の分散を示す。特に分散の多い記述子は、20番の FRAGRANT、46番の SWEET、138の SICKENINGであった。FRAGRANT及びSWEETは「良い香り」を連想させる記述子であり、SICKENINGは「悪い香り」を連想させる代表的な記述子であることから過去の研究内容に矛盾しない。また主成分分析の結果でもこれらの記述子は第1～第3主成分について、有意に高い因子負荷量であることを確認した(図 2-7)。

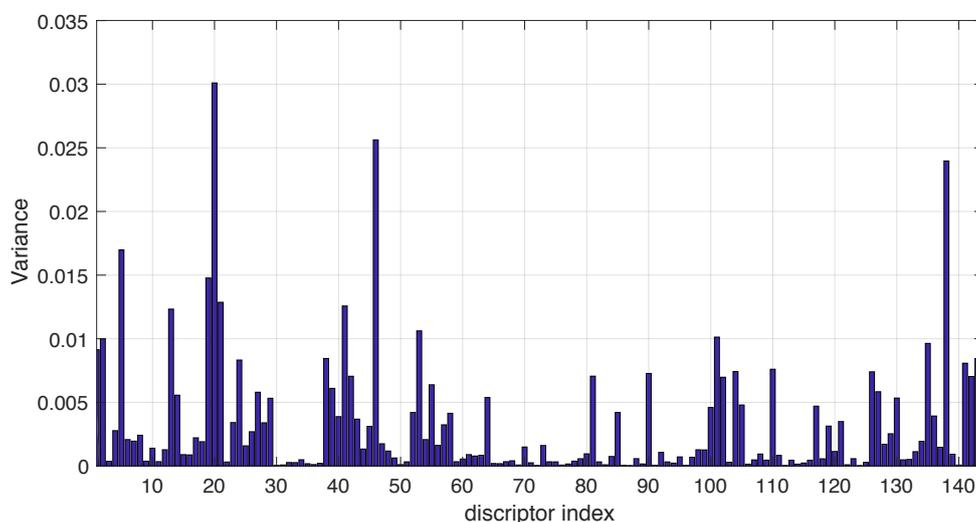


図 2-6 記述子ごとの分散

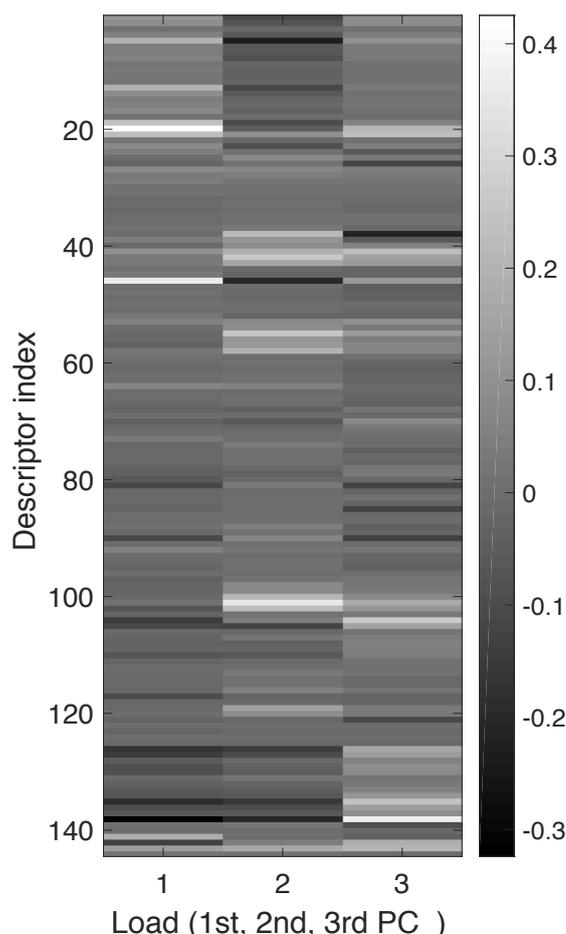


図 2-7 各記述子の主成分 1-3 までに対応する因子負荷量

2.3.2. Sigma-Aldrich

本研究では先に紹介した Dravnieks の官能検査の他、Sigma-Aldrich 社より発行されているカタログ(Ingredients Catalog: Flavors and Fragrances)も利用した。Sigma-Aldrich 社は米国セントルイスに本社を置く国際企業で、1975 年に Sigma Chemical Company 及び Aldrich Chemical Company の合併により誕生した化学薬品の販売メーカーである。同カタログにおいては 1200 種類以上の単分子の匂い物質が掲載されており、それぞれの物質の匂いの性質が記述子の有無により表現されている。図 2-8 は使用したカタログ[88]から抜粋したイメージである。カタログに含まれる匂い物質の情報は以下の通りである。

1. Product name
2. Synonym
3. Formula weight
4. Catalog number
5. CAS registry number
6. Meets National Organic Program (NOP) and/or European Union standards (EU)
7. Certified as Halal
8. Cross reference entry
9. Certified as Kosher
10. New product listing
11. Flavor and Extract Manufacturers Association of the United States number
12. Organoleptic properties

13. Application note
14. Flavis number
15. Meets specifications in the Food Chemicals Codex(FCC)
16. Chemical Formula
17. Reference to Perfume and Flavor Chemicals
18. Reference to “Fenaroli’s Handbook of Flavor Ingredients”
19. Food Grade certified

ABL, see Lauric acid Page 81

Acetal
Acetaldehyde diethyl acetal; 1,1-Diethoxyethane
[105-57-7] FEMA 2002 Flavis 6.001
CH3CH(OC2H5)2 C4H10O2 FW 118.17
Halal
Organoleptic: green; honey; floral; tart
Arc. 6; Ferri.
density 0.831 g/mL, 25 °C

▶ **natural**
Kosher

W200220-SAMPLE-K
W200220-100G-K 100 g
W200220-1KG-K 1 kg
W200220-4KG-K 4 kg
W200220-5KG-K 5 kg

▶ **≥98%, FG**

W200204-SAMPLE
W200204-1KG 1 kg
W200204-4KG 4 kg
W200204-8KG 8 kg
W200204-20KG 20 kg

Acetaldehyde
Ethanal
[75-07-0] FEMA 2003 Flavis 5.001 CH3CHO
C2H4O FW 44.05
Arc. 3; Ferri.
density 0.785 g/mL, 25 °C

▶ **≥99%, FCC**
from synthetic
available only in EU
W200316

Acetaldehyde solution
[75-07-0] FEMA 2003 Flavis 5.001 CH3CHO
C2H4O FW 44.05
Organoleptic: wine-like

▶ **35 wt. % in H₂O**
W200379-1KG 1 kg

▶ **40 wt. % in isopropanol**
density 0.8 g/mL, 20 °C
W200387-1KG 1 kg

▶ **natural, 50 wt. % ethanol**
density 0.882 g/mL, 25 °C
W200344-SAMPLE
W200344-2KG 2 kg
W200344-16.5KG 16.5 kg

▶ **50 wt. % in ethanol**
Kosher
density 0.882 g/mL, 25 °C
W200328-SAMPLE-K
W200328-12KG-K 12 kg
W200328-16.5KG-K 16.5 kg
W200328-30KG-K 30 kg

Acetaldehyde diethyl acetal, see Acetal Page 8

Acetanisole
4-Acetylanisole; 4'-Methoxyacetophenone
[100-06-1] CH3OC6H4COCH3 C9H10O2 FW 150.17
Arc. 13; Ferri.

▶ **≥98%, FCC, FG**
FEMA 2005 Flavis 7.038
Halal
Kosher
Organoleptic: butter; caramel; fruity; nutty; sweet; vanilla
W200506-SAMPLE-K
W200506-1KG-K 1 kg
W200506-5KG-K 5 kg
W200506-25KG-K 25 kg

Acetate C-9, see Nonyl acetate Page 110

Acetic acid
Glacial acetic acid
[64-19-7] FEMA 2006 Flavis 8.002 CH3CO2H
C2H4O2 FW 60.05
Halal
Kosher
Organoleptic: sour
density 1.049 g/mL, 25 °C

▶ **natural, ≥99.5%, FG**
W200603-SAMPLE-K
W200603-1KG-K 1 kg
W200603-5KG-K 5 kg
W200603-10KG-K 10 kg
W200603-25KG-K 25 kg

図 2-8 Flavors and Fragrances,[88]より
図中赤丸は記述子の記載される箇所を示す

カタログの PDF は MATLAB を用いたテキスト処理により、それぞれの CAS 番号と記述子への対応をデータベース化した(図 2-9)。

CAS Number	acidic	alcohol	alliaceous	almond	anise	antiseptic	apple	apricot	bacon	baked	balsam
50215	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
50691	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
50704	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
50817	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
51672	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
52904	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
56406	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
56417	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
56815	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
56848	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
56859	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
56860	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0
56871	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
57067	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
57103	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
57114	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
57556	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
58082	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
59518	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
60015	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
60128	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
60184	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
60333	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
61905	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

図 2-9 カタログから作成したデータベース

データベースからランダムに 50 個のサンプルを抽出し、カタログと見比べることによりデータベースの正当性の検証を行った。

2.3.2.1. 記述子の選定

カタログより作成したデータベースでは 1267 種類の匂い物質について、使用されているユニークな記述子は 150 種類であった。各記述子とデータ中での出現回数の対応を以下に示す。

表 2-2 Aldrich 社カタログで使用されている全記述子と出現回数

#	Descriptor	times	#	Descriptor	times
1	acidic	3	76	iris	1
2	alcohol	13	77	jam	4
3	alliaceous	3	78	jasmine	19
4	almond	37	79	lard	1
5	anise	27	80	lavender	5
6	antiseptic	1	81	leafy	2
7	apple	79	82	leather	3
8	apricot	34	83	lemon	22
9	bacon	1	84	lilac	5
10	baked	1	85	lily	3
11	balsam	35	86	lime	8
12	balsamic	4	87	mango	2
13	banana	43	88	maple	6
14	beef	5	89	meaty	68
15	beer	2	90	medicinal	25
16	berry	53	91	melon	22
17	bitter	1	92	mild	1
18	blossom	4	93	milk	1
19	blueberry	2	94	minty	42
20	brandy	1	95	mossy	4
21	bread	1	96	mushroom	5
22	burnt	6	97	musty	35
23	butter	41	98	nutty	49
24	butterscotch	1	99	odorless	32
25	cabbage	2	100	oily	47
26	camphoraceous	16	101	onion	3
27	cantaloupe	1	102	orange	26
28	caramel	40	103	orangeblossom	1
29	caraway	1	104	orchid	2
30	carnation	5	105	paper	1
31	carrot	1	106	peach	15
32	cedar	1	107	peanut	5
33	celery	3	108	pear	15
34	cheese	45	109	pepper	10
35	cheesy	2	110	peppermint	1
36	cherry	32	111	phenolic	3
37	chocolate	46	112	pine	3
38	cinnamon	14	113	pineapple	37
39	citrus	42	114	plastic	3
40	civet	1	115	plum	14
41	clean	2	116	potato	6
42	clove	11	117	pungent	4
43	clover	1	118	quince	1
44	coconut	31	119	rancid	2
45	coffee	43	120	raspberry	8

46	coriander	1	121	rich	4
47	coumarin	2	122	roasted	6
48	cranberry	2	123	rose	47
49	creamy	46	124	rum	2
50	cucumber	4	125	sage	2
51	dairy	1	126	seedy	1
52	earthy	46	127	smoky	14
53	ethereal	60	128	soapy	9
54	faint	37	129	sour	11
55	fatty	72	130	spearmint	1
56	fennel	2	131	spicy	71
57	fishy	22	132	strawberry	12
58	fleshy	1	133	sulfurous	61
59	floral	78	134	sweet	164
60	fresh	2	135	tallow	1
61	fruity	137	136	tart	1
62	gardenia	4	137	tobacco	4
63	garlic	1	138	tomato	3
64	geranium	7	139	tropical	3
65	ginger	1	140	turpentine	1
66	grape	32	141	vanilla	27
67	grapefruit	8	142	vegetable	34
68	grassy	2	143	vinegar	1
69	green	204	144	violet	8
70	hawthorne	5	145	walnut	5
71	hazelnut	11	146	warm	5
72	herbaceous	70	147	waxy	37
73	honey	33	148	whiskey	5
74	horseradish	5	149	wine-like	41
75	hyacinth	10	150	woody	88

このうち極端に使用回数の少ないもの(4回以下)のものは実験では使用しない。結果的に使用した記述子は 139 種類となった。最終的に本研究で用いたサンプルの一覧を付録に掲載する。

2.4. まとめ

第二章では本研究で用いるニューラルネットワークの実装するための重みの更新式、導入した慣性項と正則化ならびにデータの正規化と重みの初期化方法について説明した。以降の章において、特に断りのない限りは本章で紹介した手法を用いる。ニューラルネットワークの実装及び各種グラフの描写には MATLAB を利用した。また実装にあたっては MATLAB で提供される Neural Network Toolbox 等は利用しない。

また本章では以降で使用するマスペクトルのデータならびに官能検査データについて説明した。本章で述べなかった一部データの詳細 (Sigma-Aldrich のカタログデータに含まれる全サンプル等) は付録にまとめる。

第三章

3. 連続値で表現される匂い印象の予測

3.1. 概要

第二章で紹介した Dravnieks の官能検査結果のデータを使用して、連続値で表される官能検査の結果をマススペクトルから回帰予測するモデルを考える。ある分子のマススペクトル(51-262m/z の 212 次元)が与えられた時、その分子の 144 の記述子のスコアを回帰予測するニューラルネットワークを構築する。

3.2. モデルのコンセプトと構成

入力と出力の非線形な関係をモデル化する深層ニューラルネットワークを設計する。まず、2つの深層オートエンコーダによりマススペクトルと官能検査データそれぞれを次元圧縮する。深層オートエンコーダによる学習は次の通り行う。本モデルにおけるオートエンコーダによるマススペクトルの次元圧縮の様子を図 3-1 に示す。

- (1) 取り出したい特徴ベクトルの次元数 D_M を定める
- (2) 次元数 D_M よりも大きな次元数 K_M を定める
- (3) 3層オートエンコーダ(次元数: $212 - K_M - 212$)を用いて学習を行い、マススペクトルを次元数 K_M に次元圧縮する(図 3-1 左)。この時の入力層—隠れ層、及び隠れ層—出力層間の重みベクトルをそれぞれ W_1 及び W'_1 とする。
- (4) 3層オートエンコーダ(次元数: $K_M - D_M - K_M$)を用いて学習を行い、マススペクトルの低次元表現ベクトル(次元数 K_M)をさらに低い次元数 D_M の低次元表現(以後マススペクトル特徴ベクトルと呼ぶ)に次元圧縮する(図 3-1 中央)。この時の入力層—隠れ層、及び隠れ層—出力層間の重みベクトルをそれぞれ W_2 及び W'_2 とする。
- (5) (3) 及び (4) で得られた W_1 、 W'_1 、 W_2 及び W'_2 を用いて5層のオートエンコーダ(次元数: $212 - K_M - D_M - K_M - 212$)を作成し、学習により微調整を行う(図 3-1 右)。微調整後に得られる各層間の重みベクトルを入力から出力と向かう順に、それぞれ、 $W_1 + \Delta W_1$ 、 $W_2 + \Delta W_2$ 及び $W'_2 + \Delta W'_2$ 、 $W'_1 + \Delta W'_1$ とする。

同様の手順で官能検査データを次元圧縮するオートエンコーダの学習を行う。その様子を図 3-2 に示す。以後、このオートエンコーダの中央の隠れ層で得られる次元数 K_S のベクトルを官能検査データ特徴ベクトルと呼ぶ。

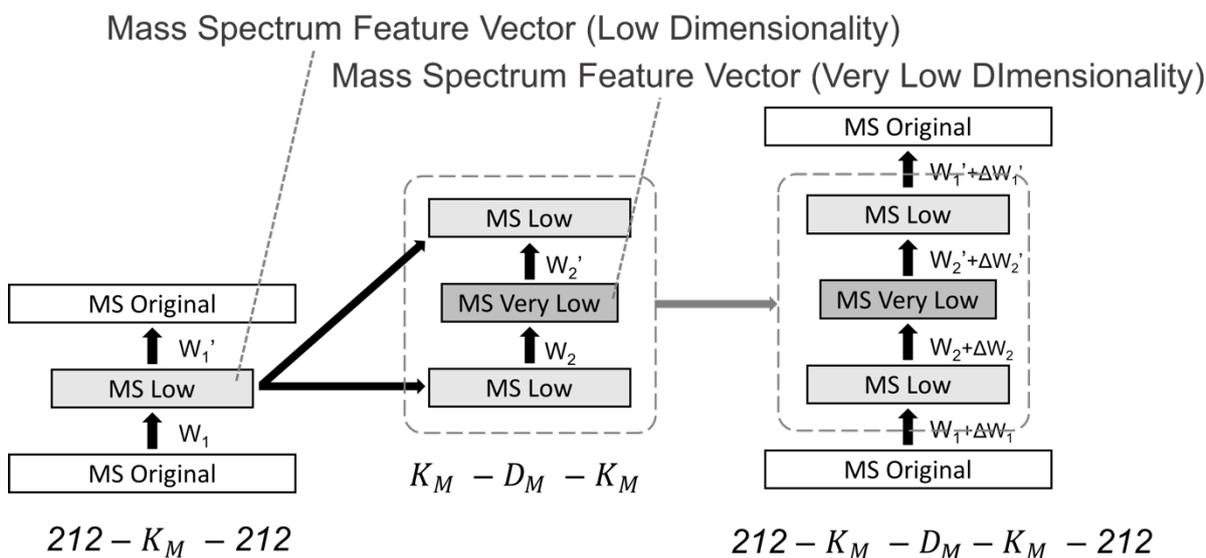


図 3-1 深層オートエンコーダによるマススペクトルの次元圧縮
モデル下に記載される数字及び記号は入力から出力に向かった各層のニューロン数を示す

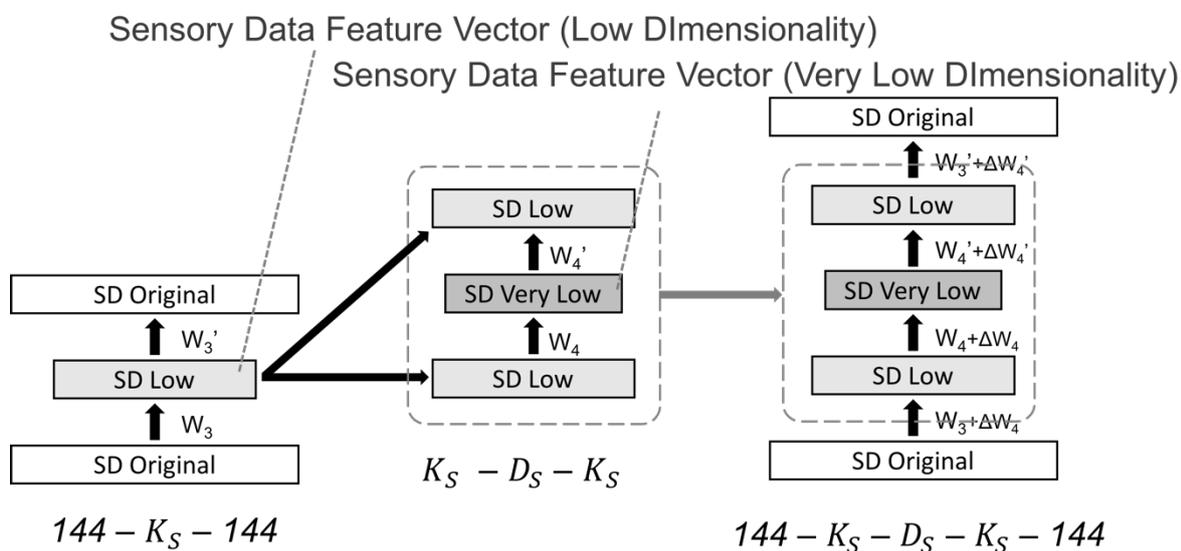


図 3-2 深層オートエンコーダによる官能検査データの次元圧縮
モデル下に記載される数字及び記号は入力から出力に向かった各層のニューロン数を示す

次に、異なる2つの特徴量を変換するニューラルネットワークを訓練する。ある匂い分子のマススペクトル特徴ベクトル X を入力、その分子に対応する官能検査特徴ベクトル X' を教示信号として、マススペクトル特徴ベクトルから官能検査データ特徴ベクトルに写像するニューラルネットワークを訓練する(図 3-3 中央)。

最後に、マススペクトルのオリジナルデータをマススペクトル特徴ベクトルに次元圧縮する $W_1 + \Delta W_1$ から $W_2 + \Delta W_2$ 、マススペクトル特徴ベクトルを官能検査特徴ベクトルに写像する W_5 から W_8 、官能検査特徴ベクトルをオリジナルの次元数の官能検査特徴ベクトルに復元する $W'_1 + \Delta W'_1$ から $W'_1 + \Delta W'_1$ までの層を全て連結させて9層のニューラルネットワークを構築する(図 3-3 右)。最後に数回の学習により微調整を行う。微調整後に得られる9層ニューラルネットワークの各層間の重みベクトルを入力から出力へと向かう順に、それぞれ、 $W_1 + \Delta W_1 + dW_1$ 、 $W_2 + \Delta W_2 + dW_2$ 、 $W_5 + dW_5$ 、 $W_6 + dW_6$ 、 $W_7 + dW_7$ 、 $W_8 + dW_8$ 、 $W'_1 + \Delta W'_1 + dW'_1$ とする。以降では9層ニューラルネットワークの7つの隠れ層におけるニューロンの数を K_M 、 D_M 、 K_{p1} 、 K_{p2} 、 K_{p3} 、 D_S 及び K_S とする

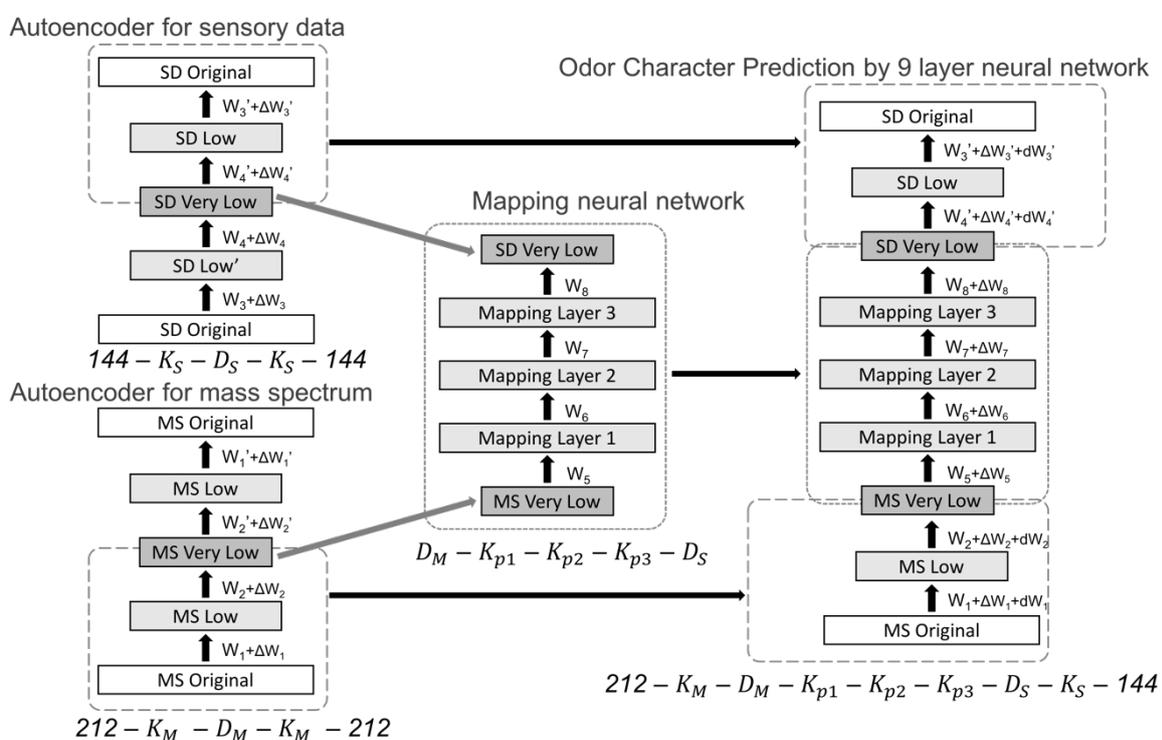


図 3-3 9層ニューラルネットワークによる匂い印象予測モデル
モデル下に記載される数字及び記号は入力から出力に向かった各層のニューロン数を示す

この9層ニューラルネットワークは最初の3層でマススペクトルを小さな次元に圧縮し、次の3層を用いてマススペクトルの特徴ベクトルを官能検査の特徴ベクトルに変換する。最後の3層を用いて官能検査の特徴ベクトルをオリジナルの次元数を持つ官能検査の特徴ベクトルに復元することで、匂い印象の回帰予測を行う。

3.3. 実験条件

3.3.1. 使用したサンプル

Dravnieks の官能検査結果データで報告される 144 種類の単一分子物質と、NIST のデータベースで利用可能なマススペクトルの積集合を取る。三章における実験では以下表 3-1 にあげる 121 種類の匂い物質を使用した。

表 3-1 三章における実験で使用した匂い物質の一覧

Index	CAS Number	Name of Odorant Chemical
1	698102	Abhexone
2	98862	Acetophenone
3	1122629	Acetyl Pyridine: ortho-Acetyl Pyridine
4	141139	Adoxal
5	77838	Aldehyde C-16-So-Called
6	104610	Aldehyde C-18-So-Called
7	123682	AUyl Caproate
8	123922	Amyl Acetate: iso-Amyl Acetate
9	540181	Amyl Butyrate
10	122407	Amyl Cinnamic Aldehyde Diethyl
11	102192	Amyl Phenyl Acetate
12	2173560	Amyl Valerate
13	104461	Anethole
14	100663	Anisole
15	100527	Benzaldehyde
16	119846	Benzo Dihydro Pyrone
17	5655618	Bornyl Acetate: iso-Bornyl Acetate
18	107926	Butanoic Acid
19	71363	Butanol: 1-Butanol
20	544401	Butyl Sulfide
21	65442311	Butyl Quinoline: iso-Butyl Quinoline
22	76222	Camphor: dl-Camphor
23	99490	Carvone: 1-Carvone
24	87445	Caryophyllene-beta and gamma Isomers
25	33704619	Cashmeran
26	17369594	Celeriax
27	89689	Chlorothymol
28	104552	Cinnamic Aldehyde
29	141275	Citral
30	91645	Coumarin
31	108394	Cresol: m-Cresol
32	106445	Cresol: p-Cresol
33	140396	Cresyl Acetate: p-Cresyl Acetate
34	103935	Cresyl Butyrate: p-Cresyl-iso-Butyrate
35	104938	Cresyl Methyl Ether: p-Cresyl
36	122032	Cuminic Aldehyde
37	1335666	Cyclocitral: iso-Cyclocitral
38	765877	Cyclohexanedione: 1,2-Cyclohexanedione
39	108930	Cyclohexanol
40	80717	Cyclotene
41	25152845	Decadienal: 2,4-trans-trans-Decadienal
42	91178	Decahydro Naphthalene
43	111922	Dibutyl Amine
44	352932	Diethyl Sulfide
45	10094345	Dimethyl Benzyl Carbonyl Butyrate
46	103059	Dimethyl Phenyl Ethyl Carbinol

47	5910894	Dimethyl Pyrazine: 2,3-Dimethyl Pyrazine
48	123320	Dimethyl Pyrazine: 2,5-Dimethyl Pyrazine
49	625843	Dimethyl Pyrrole: 2,5-Dimethyl Pyrrole
50	3658808	Dimethyl Trisulfide
51	4747073	Diola
52	101848	Diphenyl Oxide
53	105544	Ethyl Butyrate
54	105373	Ethyl Propionate
55	13925003	Ethyl Pyrazine: 2-Ethyl Pyrazine
56	470826	Eucalyptol
57	97530	Eugenol
58	6413101	Fructose
59	98011	Furfural
60	98022	Furfuryl Mercaptan
61	111717	Heptanal
62	111706	Heptanol: 1-Heptanol
63	66251	Hexanal
64	142621	Hexanoic Acid
65	111273	Hexanol: 1-Hexanol
66	623370	Hexanol: 3-Hexanol
67	6728263	Hexenal: trans-2-Hexenal
68	111262	Hexyl Amine
69	90879	Hydratropic Aldehyde Dimethyl Acetal
70	107755	Hydroxy Citronellal
71	120729	Indole
72	14901076	Ionone: beta-Ionone
73	79696	Ironone: alpha-Ironone
74	138863	Limonene: d-Limonene
75	106729	Melonol
76	2216515	Menthol: 1-Menthol
77	93049	Methoxy-Naphthalene: 2-Methoxy Naphthalene
78	134203	Methyl Anthranilate
79	462953	Methyl Acetaldehyde Dimethyl Acetal
80	2371428	Methyl-iso-Borneol: 2-Methyl-iso-Borneol
81	491350	Methyl Quinoline: para-Methyl Quinoline
82	2459098	Methyl iso-Nicotinate
83	119368	Methyl Salicylate
84	2432511	Methyl Thiobutyrate
85	1222055	Musk Galaxolide
86	1506021	Musk Tonalid
87	37677148	Myracaldehyde
88	143135	Nonyl Acetate
89	4674504	Nootkatone
90	111875	Octanol: 1-Octanol
91	3391864	Octenol: 1-Octen-3-OL
92	109524	Pentanoic Acid
93	591800	Pentenoic Acid: 4-Pentenoic Acid
94	103822	Phenyl Acetic Acid
95	536743	Phenyl Acetylene
96	60128	Phenyl Ethanol
97	78591	Phorone: iso-Phorone
98	80568	Pinene: alpha-Pinene
99	105668	Propyl Butyrate
100	135795	Propyl Quinoline: iso-Propyl Quinoline
101	111477	Propyl Sulfide
102	110861	Pyridine
103	94597	Safrole
104	115719	Santalol

105	83341	Skatole
106	10482561	Terpineol, mostly alpha-Terpineol
107	110010	Tetrahydro Thiophene
108	91612	Tetraquinone
109	123933	Thioglycolic Acid
110	110021	Thiophene
111	89838	Thymol
112	529204	Tolualdehyde: ortho-Tolualdehyde
113	108883	Toluene
114	75503	Trimethyl Amine
115	104676	Undecalactone: gamma-Unadecalactone
116	112389	Undecylenic Acid
117	590863	Valeraldehyde: iso-Valeraldehyde
118	503742	Valeric Acid: iso-Valeric Acid
119	108292	Valerolactone: gamma-Valerolactone
120	121335	Vanillin
121	122485	Zingerone

3.3.2. 比較するモデルと評価方法

実験では本章で提案する9層ニューラルネットワークによる匂い印象予測モデルを以下の3つの手法と比較する。モデルの汎化性能を比較するため、表3-1にあげる121種類のサンプルに対して6分割クロスバリデーションを行う。尚サンプル数を6で除算した際に剰余が生まれるため、分割したセットに含まれるサンプル数はそれぞれ[20 20 20 20 20 21]となる。本章における実験では、全てのニューラルネットワークの誤差関数は自乗和誤差(式2-14)とした。

(1) PLSによる回帰予測モデル

1.7.1で紹介したPLSを用いた線形回帰予測モデルを用いる。潜在変数(latent variable)の数は事前実験において最も良い性能を示した45とする(図3-4)。

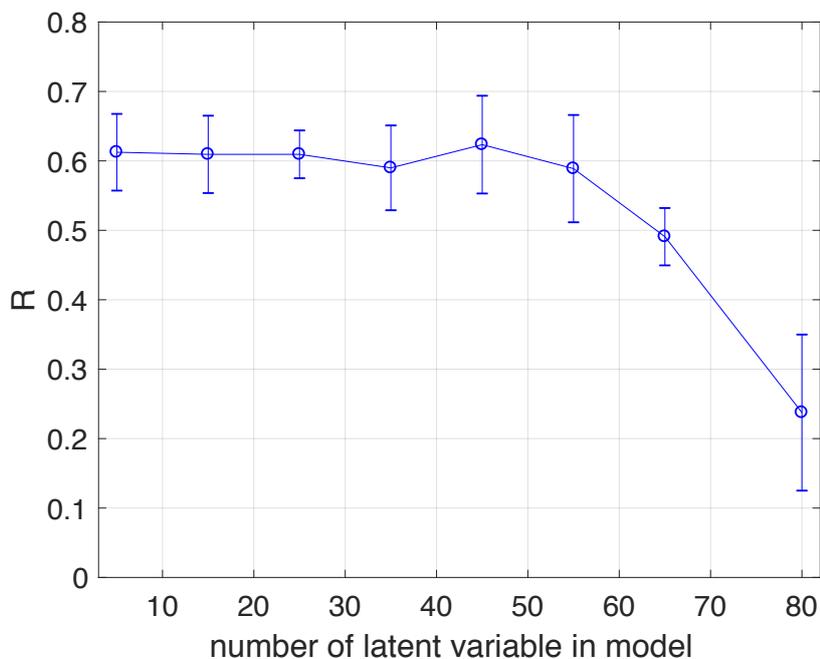


図 3-4 潜在変数の数に対するモデル出力-教師信号間の相関係数の平均値
誤差棒は5回の試験における標準偏差を示す

(2) オートエンコーダを使用しない5層ニューラルネットワーク

2.1.1 で紹介した3つの隠れ層を持つ5層ニューラルネットワークを用いる。活性化関数はシグモイド関数とし、オートエンコーダは用いない。誤差逆伝播法でネットワークを訓練する。各層におけるニューロンの数は事前実験において最も良い性能を示した[212 – 80 – 70 – 55 – 144]とした。モデルのハイパーパラメータの探索範囲及び実験における各ハイパーパラメータは表 3-2 及び表 3-3 に従う。

5 Layer neural network

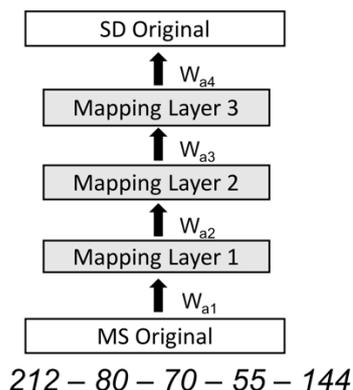


図 3-5 5層ニューラルネットワーク

表 3-2 5層ニューラルネットワークのハイパーパラメータの探索範囲

パラメータ	範囲	刻み
Number of neurons in Mapping Layer1	20 – 100	5
Number of neurons in Mapping Layer2	20 – 100	5
Number of neurons in Mapping Layer3	20 – 100	5
η_M	0.05 – 0.5 $\times 0.99^t$	0.05
α_M	0.01 – 0.1	0.01
λ_M	$10^{-7} - 10^{-2}$ L2-Norm	$\times 20$

表 3-3 5層ニューラルネットワークのハイパーパラメータ

パラメータ	値
η_M	0.3×0.99^t
α_M	0.15
λ_M	$3 \times 10^{-7}, L2$
# epochs in training	400,000

- (3) オートエンコーダによる事前学習を利用した5層ニューラルネットワーク
- 上記の5層のニューラルネットワークを用いるが、訓練する際の重みベクトルの初期値を与えるために2つの3層オートエンコーダを用いる(図 3-6)。オートエンコーダの隠れ層におけるニューロンの数は、マススペクトルの次元圧縮に用いたオートエンコーダで20、官能検査データの次元圧縮に用いるオートエンコーダでは15とした。これらの値は事前実験の結果から定めた。5層ニューラルネットワークの各層におけるニューロンの数は[212 - 20 - 40 - 15 - 144]とした。

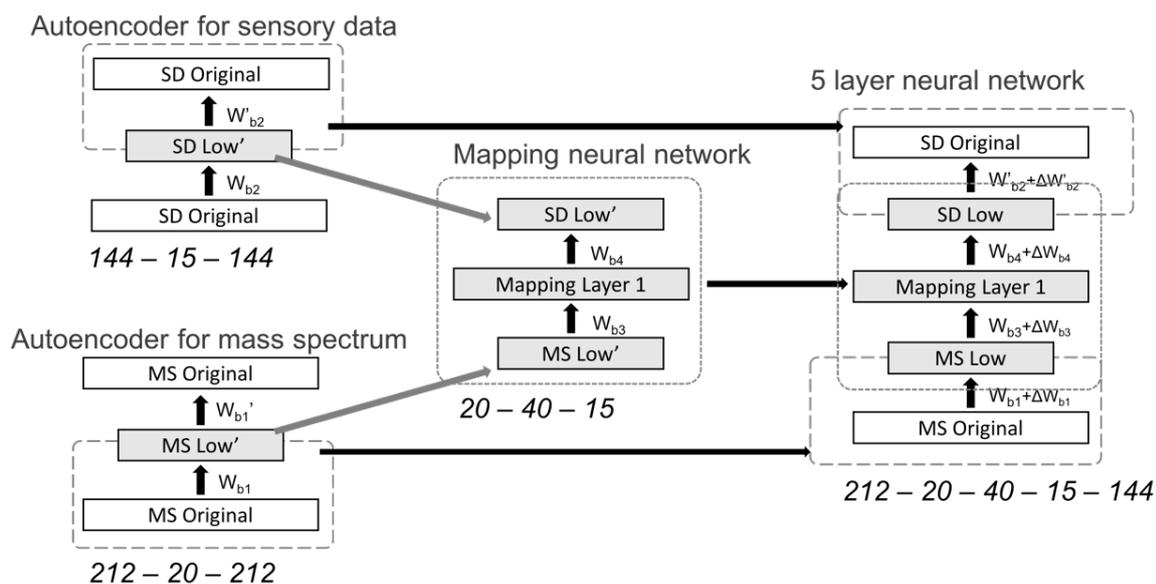


図 3-6 オートエンコーダを使用した5層ニューラルネットワーク

表 3-4 オートエンコーダを使用した5層ニューラルネットワークのハイパーパラメータの探索範囲

パラメータ	範囲	刻み
η_M	0.05 - 0.5 $\times 0.99^t$	0.05
α_M	0.01 - 0.1	0.01
λ_M	$10^{-7} - 10^{-2}$ L2-Norm	$\times 20$

表 3-5 オートエンコーダを使用した5層ニューラルネットワークのハイパーパラメータ

パラメータ	値
η_M	0.3×0.99^t
α_M	0.15
λ_M	$3 \times 10^{-7}, L2$
# epochs in MS autoencoder training	200,000
# epochs in SD autoencoder training	200,000
# epochs in Mapping network training	100,000
# epochs in Fine tuning	300

予測性能の評価指標にはニューラルネットワークの出力ベクトル $\mathbf{f}(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b})$ と教師信号 \mathbf{y} の相関係数(式 3-1)及び残差平方和(式 3-2)を用いる。 $\mathbf{f}(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b})$ と \mathbf{y} の共分散を $Cov(\mathbf{f}(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b}), \mathbf{y})$ 、標準偏差を $\sigma_{f(x)}$ 及び σ_y として、

$$R(\mathbf{f}(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b}), \mathbf{y}) = \frac{Cov(\mathbf{f}(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b}), \mathbf{y})}{\sigma_{f(x)}\sigma_y} \quad (3-1)$$

$$E_{MSE} = \sum_{n=1}^N (\mathbf{y} - \mathbf{f}(\mathbf{x}_n; \mathbf{w}, \mathbf{b}))^2 \quad (3-2)$$

N は訓練データ中に含まれるサンプル数を示す。

3.4. ハイパーパラメータの探索

三章で紹介するモデルの主要なハイパーパラメータとしては各層のニューロンの数、重みベクトルの更新時の学習係数及び慣性項ハイパーパラメータ、正則化ハイパーパラメータが挙げられる。これらのハイパーパラメータはモデルの性能に深く影響するため、十分に良い値を選ばなければならない。

本研究では以下の手順によりハイパーパラメータの値を決定する。

- (1) マススペクトルの次元圧縮に用いるオートエンコーダのハイパーパラメータ、 K_M 、 D_M 、 η_M 、 α_M 、 λ_M の組み合わせの検討
- (2) 官能検査データの次元圧縮に用いるオートエンコーダのハイパーパラメータ、 K_S 、 D_S 、 η_S 、 α_S 、 λ_S の組み合わせ
- (3) 特徴ベクトルを写像するためのニューラルネットワークのハイパーパラメータ、 K_{p1} 、 K_{p2} 、 K_{p3} 、 η_p 、 α_p 、 λ_p の組み合わせ

マススペクトルの次元圧縮に用いたオートエンコーダについて、以下表 3-6 の条件でハイパーパラメータの値の探索を行った。

表 3-6 マススペクトルの次元圧縮に用いたオートエンコーダのハイパーパラメータの組み合わせ

パラメータ	範囲	刻み
K_M	5 - 100	5
D_M	5 - 50	5
η_M	0.05 - 0.5 $\times 0.99^t$	0.05
α_M	0.01 - 0.1	0.01
λ_M	$10^{-7} - 10^{-2}$ L2-Norm	$\times 20$

官能検査データの次元圧縮に用いたオートエンコーダについては以下表 3-7 の条件で、特徴ベクトルを写像するためのニューラルネットワークについては以下表 3-8 の条件で最適なハイパーパラメータの値の探索を行った。

表 3-7 官能検査データの次元圧縮に用いたオートエンコーダのハイパーパラメータの組み合わせ

パラメータ	範囲	刻み
K_S	5 - 100	5
D_S	5 - 50	5
η_S	0.05 - 0.5 $\times 0.99^t$	0.05
α_S	0.05 - 0.5	0.01
λ_S	$10^{-7} - 10^{-2}$ L2-Norm	$\times 20$

表 3-8 特徴ベクトル写像ニューラルネットワークのハイパーパラメータの組み合わせ

パラメータ	範囲	刻み
K_{p1}	30 - 60	5
K_{p2}	30 - 60	5
K_{p3}	30 - 60	0.05
η_p	0.05 - 0.5 $\times 0.99^t$	0.05
α_p	0.05 - 0.5	0.01
λ_p	$10^{-7} - 10^{-2}$ L2-Norm	$\times 20$

実験で使用する 9 層ニューラルネットワークのハイパーパラメータは以下に示される通りである。後に示すハイパーパラメータの探索の結果、各層に含まれるニューロンの数はモデルの予測誤差に大きな影響を与えることはなく、学習係数 α 及び慣性項係数 η は学習の収束速度に影響するが、モデルの予測誤差に大きな影響を与えることはなかった。また正則化項係数 λ はモデルの汎化誤差を減少させる効果が確認された。

表 3-9 9層ニューラルネットワークのハイパーパラメータ

パラメータ	値
K_M	85
D_M	45
K_{p1}	50
K_{p2}	55
K_{p3}	50
D_S	30
K_S	65
η_M	0.5×0.99^t
η_S	0.4×0.99^t
η_p	0.4×0.99^t
α_M	0.3
α_S	0.3
α_p	0.25
λ_M	$3 \times 10^{-7}, L2$
λ_S	$2 \times 10^{-7}, L2$
λ_p	$4 \times 10^{-7}, L2$
# epochs in MS autoencoder training	500,000
# epochs in SD autoencoder training	400,000
# epochs in Mapping network training	300,000
# epochs in fine tuning	500

3.5. 次元圧縮数の決定と主成分分析との比較

マススペクトル特徴ベクトル及び官能検査データ特徴ベクトルの最適な次元数を決定するための事前実験を行う。マススペクトル特徴ベクトルの次元数の決定においては、まず D_M を固定した状態で K_M を変化させ、最も少ない復元誤差となるオートエンコーダの各層のニューロン数を探る。官能検査データ特徴ベクトルについても同様に実験を行い、 D_S 及び K_S を決定する。実験の結果を図 3-7 に示す。実験結果より、 $K_M=85$ 、 $D_M=45$ 、 $K_S=65$ 、 $D_S=30$ と決定した。

また予備実験としてオートエンコーダによる次元圧縮の復元誤差を共分散行列を用いた主成分分析と比較した。6分割クロスバリデーションにおけるオートエンコーダの復元誤差と主成分分析による復元誤差を図 3-8 に示す。主成分分析によって得られた各主成分の累積寄与率を図 3-9 に示す。

実験結果よりオートエンコーダによる次元圧縮は主成分分析による次元圧縮よりも有意に少ない復元誤差となることを確認した。

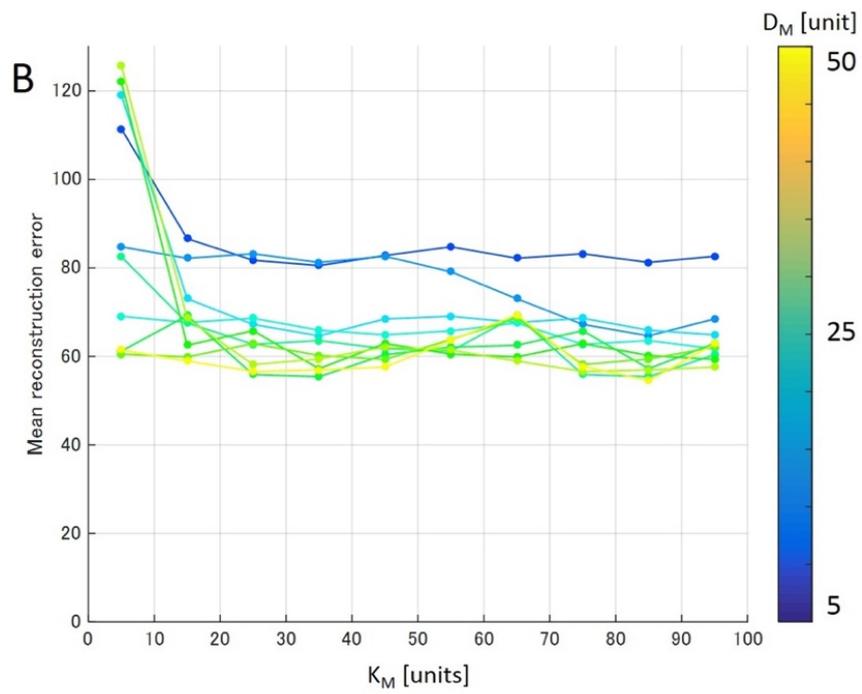
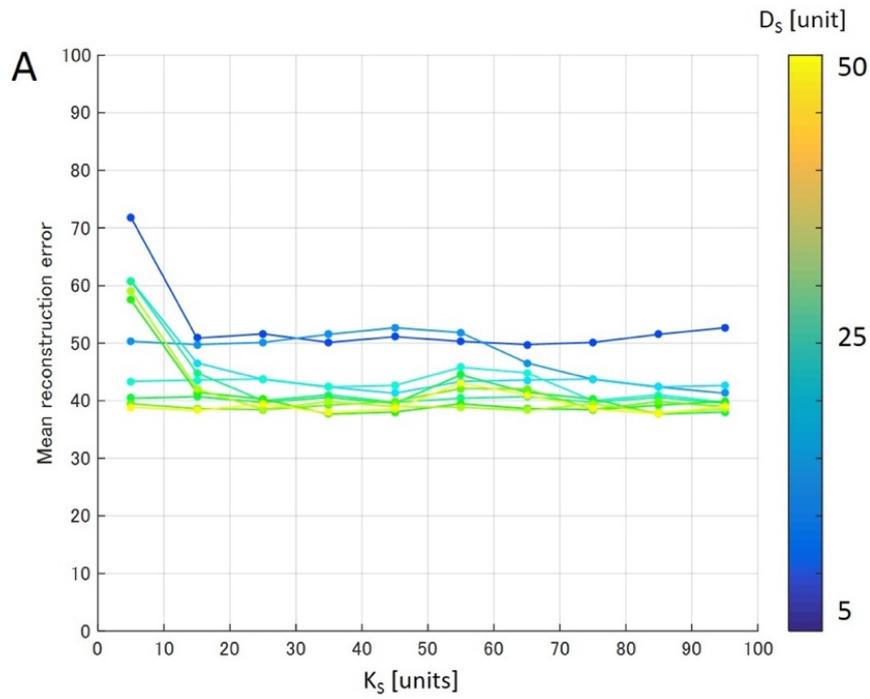


図 3-7 隠れ層におけるニューロン数の決定のための事前実験結果
 (A) K_S 及び D_S と誤差の関係、(B) K_M 及び D_M と誤差の関係
 ([89]より、Copyright PLoS One 2016, 許諾済)

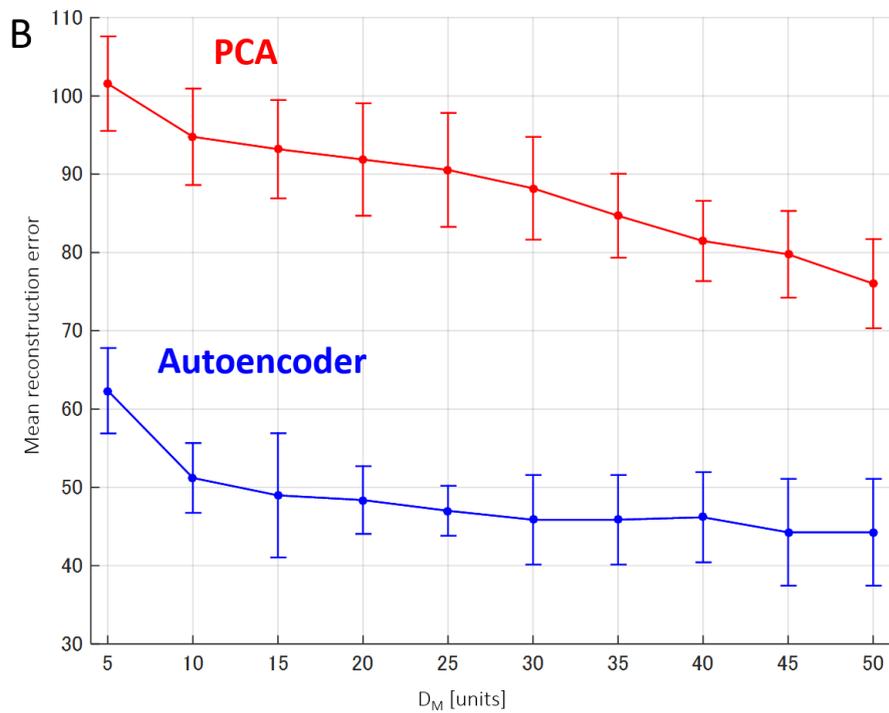
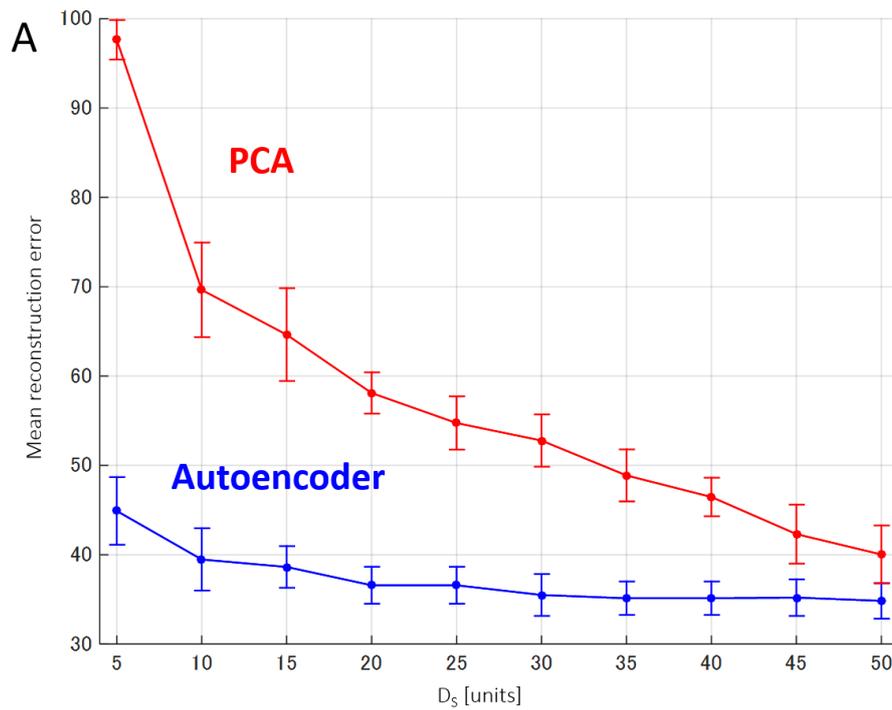


図 3-8 2手法の次元圧縮の性能の比較
 (A)官能検査データ空間 (B)マススペクトル空間
 ([89]より、Copyright PLoS One 2016, 許諾済)

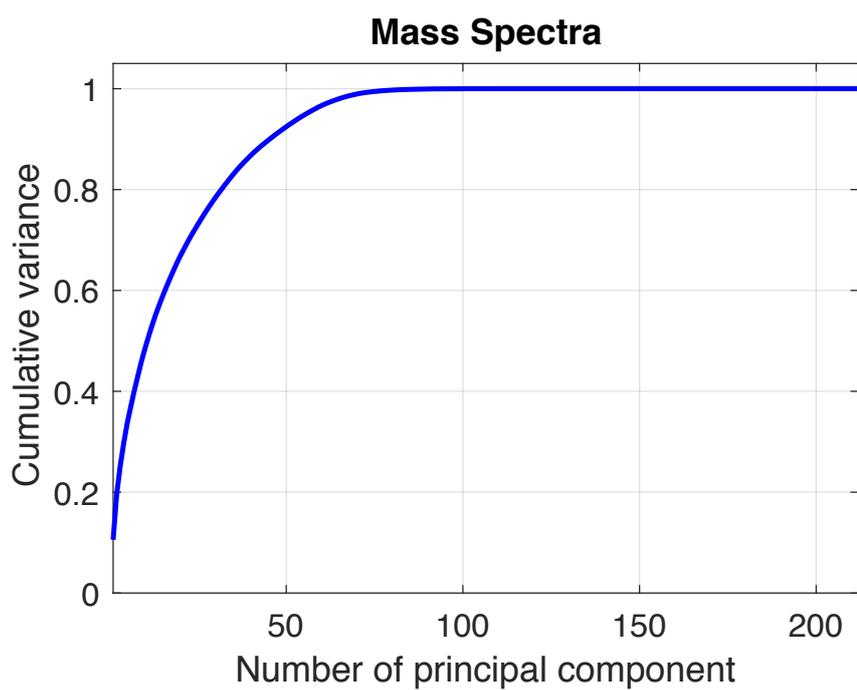
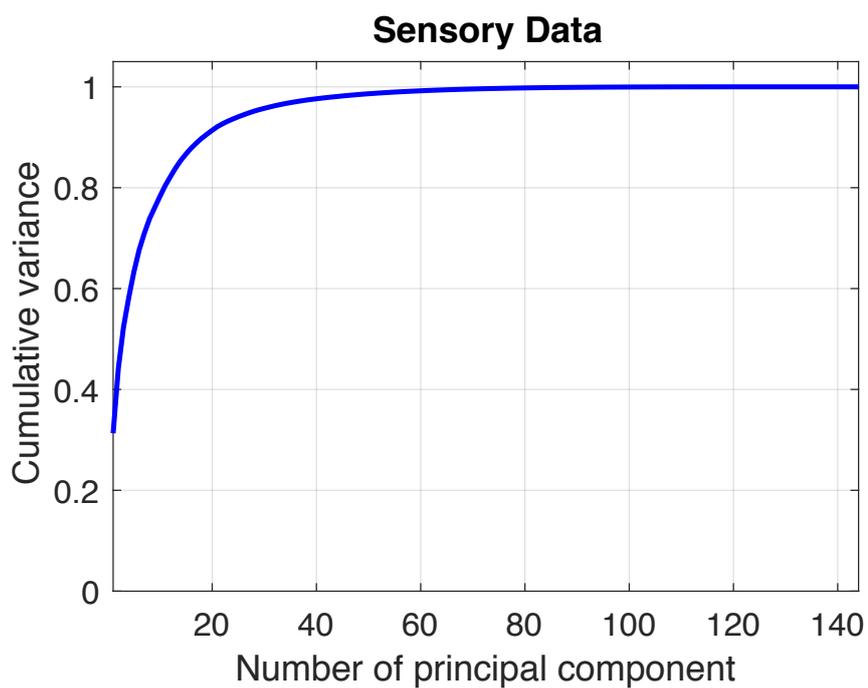


図 3-9 各主成分の累積寄与率

3.6. 実験結果

訓練した4種類のモデルの出力と教師信号の関係を図3-10に示す。図ではオリジナルデータの真値を横軸、モデルによる予測値を縦軸としている。各図中には検証セットに含まれる21サンプルの144の記述子について、3,024点がプロットされている。

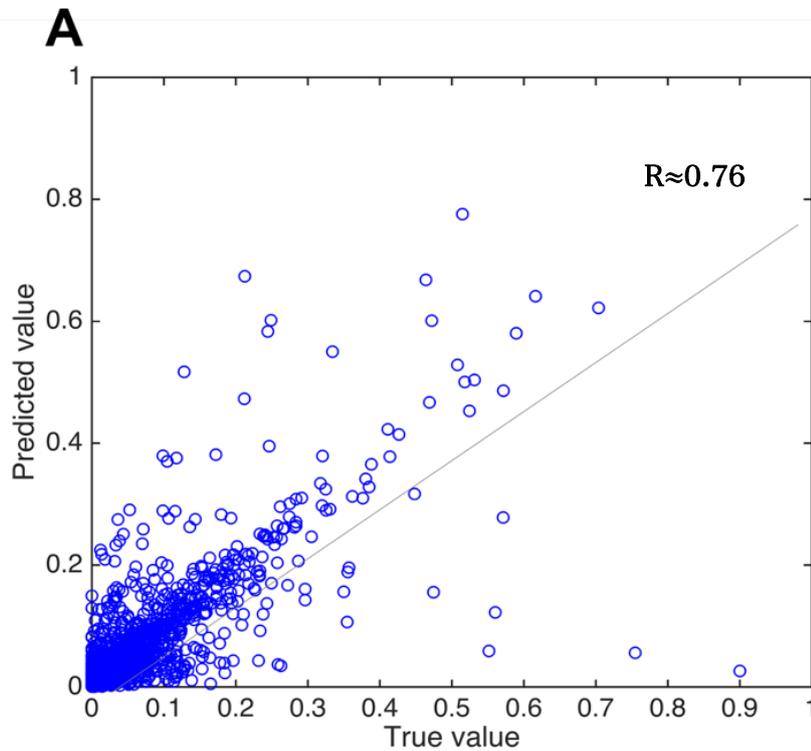


図 3-10 検証セットにおける各予測モデルの出力と教師信号間の相関の比較

- (A) 9層ニューラルネットワーク (B) PLS (C) 5層ニューラルネットワーク
 - (D) オートエンコーダを用いた5層ニューラルネットワーク
- ([89]より、Copyright PLoS One 2016, 許諾済)

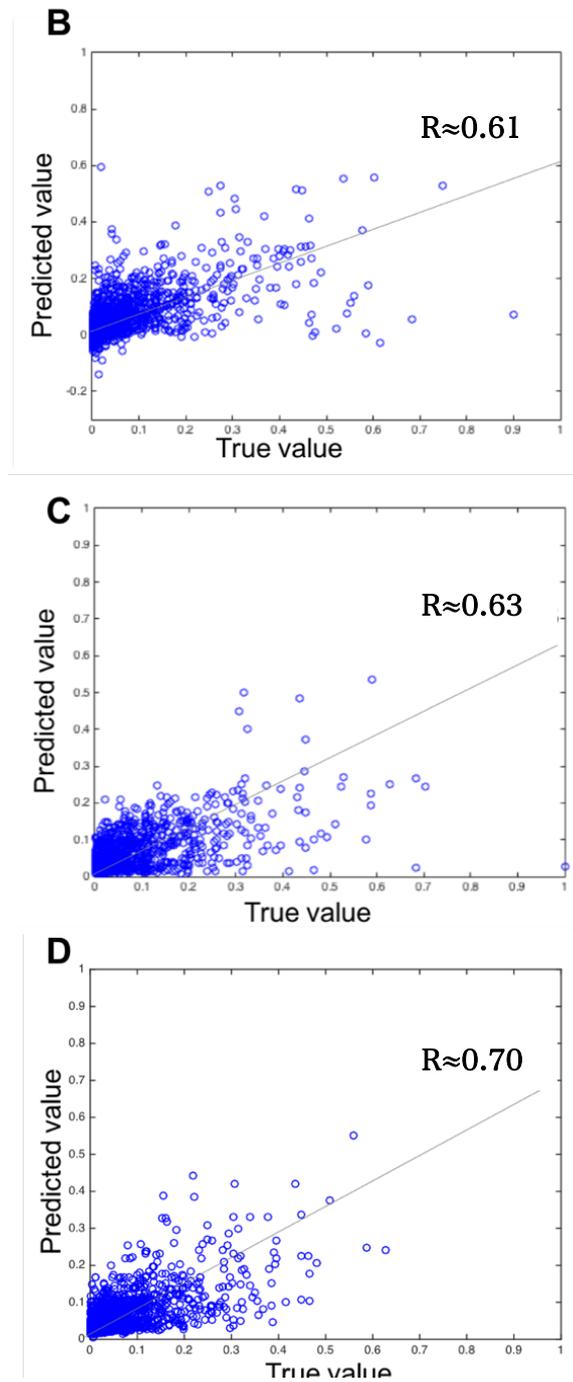


図 3-10 検証セットにおける各予測モデルの出力と教師信号間の相関の比較

- (A) 9層ニューラルネットワーク (B) PLS (C) 5層ニューラルネットワーク
 (D) オートエンコーダを用いた5層ニューラルネットワーク

それぞれのモデルの予測性能(出力-真信号の相関係数)の中央値は表 3-10 に示す。また 30 回の実験結果の残差平方和の箱ひげ図を図 3-11 に、その諸統計量を表 3-11 に示す。本章で提案する 9 層ニューラルネットワークによる予測モデルは比較した 3 つの手法に比べ有意に低い残差平方和であった。

表 3-10 各モデルの出力-真信号の相関係数

モデル	相関係数の中央値
A: 9 層ニューラルネットワーク	0.76
B: PLS	0.61
C: 5 層ニューラルネットワーク	0.63
D: オートエンコーダを用いた 5 層ニューラルネットワーク	0.70

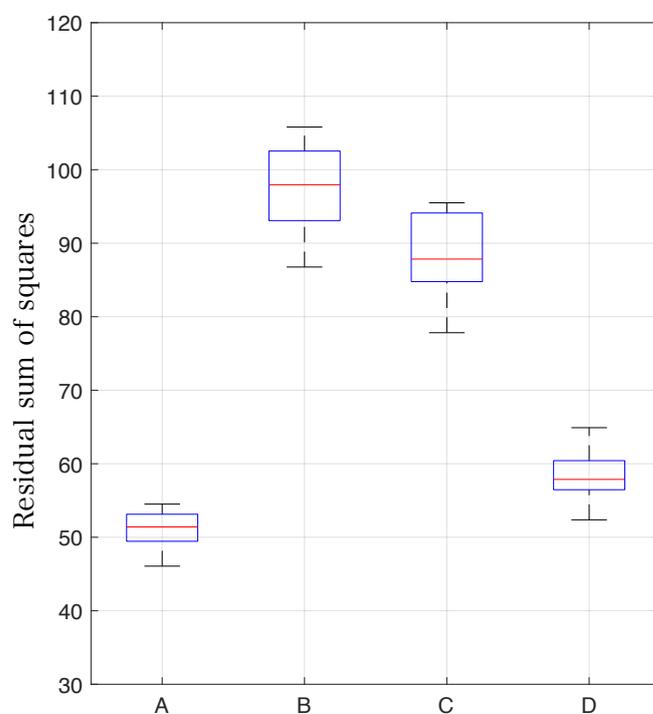


図 3-11 各モデルの残差の箱ひげ図による比較

各箱の 5 本の横線は下から順に最小値、第 1 四分位点、中央値、第 3 四分位点、最大値を示す。

(A) 9 層ニューラルネットワーク (B) PLS (C) 5 層ニューラルネットワーク

(D) オートエンコーダを用いた 5 層ニューラルネットワーク

表 3-11 各モデルの残差の諸統計量

統計量	A	B	C	D
検証セットにおける残差平方和の平均値 (mean residual sum of squares)	51.18	97.71	88.22	58.11
標準偏差(standard deviation)	2.56	6.31	6.06	3.45
モデル A と対応無 t 検定を行なった際の p 値	—	2.5e-14	7.1e-13	7.4e-05

3.7. 考察

第三章では Dravnieks の官能検査データに代表される採点法の官能検査結果を9層のニューラルネットワークにより回帰予測するモデルを提案した。計算機実験の結果、提案モデルは線形手法である PLS や広く用いられるニューラルネットワークに比べ、出力と教師信号間の相関係数及び残差自乗和の比較において有意に高い性能を示した(図 3-10、図 3-11)。

以下では本モデルの性能の改善のためのアイデアを得るために提案した9層ニューラルネットワークの結果について簡単な分析及び考察を行った。図 3-12 は提案したモデルの30回の実験を通して計測した121種類のサンプル毎の平均誤差を示す。

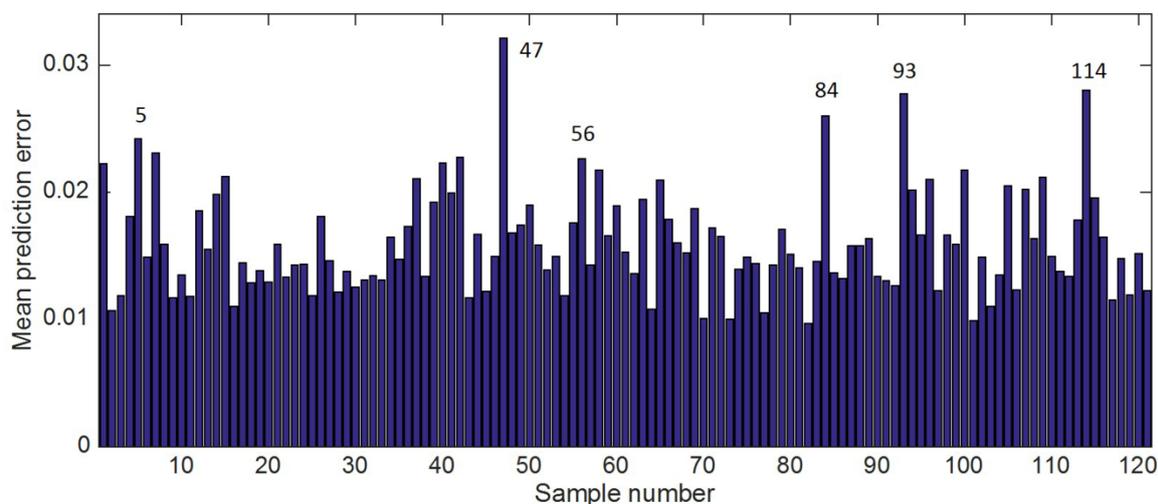


図 3-12 サンプル毎の平均誤差

本モデルにおいて特に大きな誤差となった以下の6種類のサンプル(表 3-12)について、予測が精度よく行われなかった理由を調査するために官能検査データ空間における各サンプルの分布を調査したところ、これらのサンプルは官能検査データにおいて分布中央から離れているサンプルであった(図 3-13)。これらはマススペクトルデータにおいては外れ値とはなっておらず(図 3-14)、学習をするためのサンプルが官能検査のデータセットに多く含まれていないことが誤差が大きくなった原因であると考えられる。これらのサンプルの予測誤差を減らすにはより大きな官能検査データセットが必要であると考えられる。

表 3-12 復元誤差の大きかった6サンプル

5	Aldehyde C-16-So-Called
47	Dimethyl Pyrazine: 2,3-Dimethyl Pyrazine
56	Eucalyptol
84	Methyl Thiobutyrate
93	Pentenoic Acid: 4-Pentenoic Acid
114	Trimethyl Amine

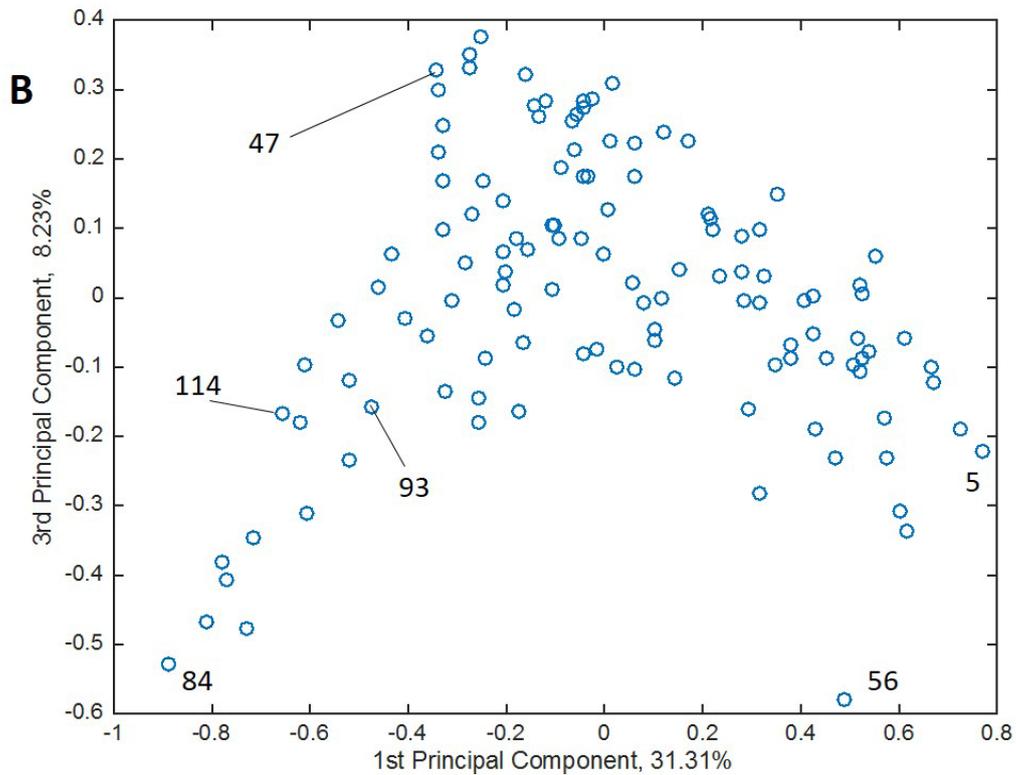
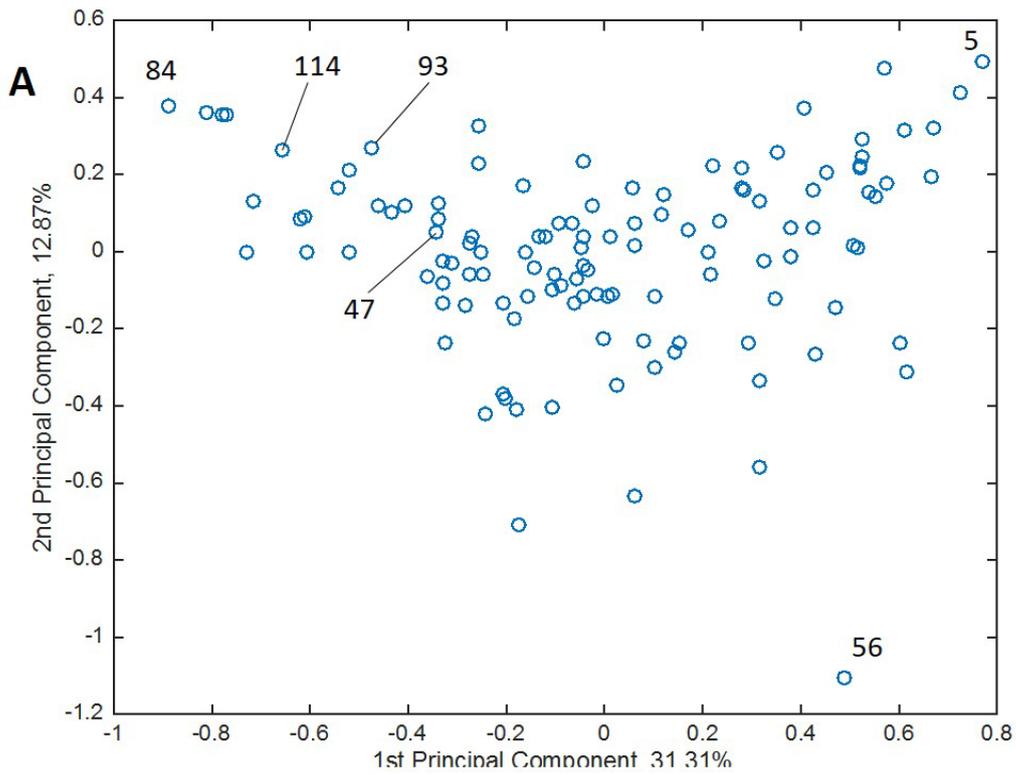


図 3-13 Dravieks の官能試験データの主成分分析結果における特定サンプルの分布,
A=第一及び第二主成分の主成分スコアに基づくプロット、*B*=同第二及び第三主成分
 ([89]より、Copyright PLoS One 2016, 許諾済)

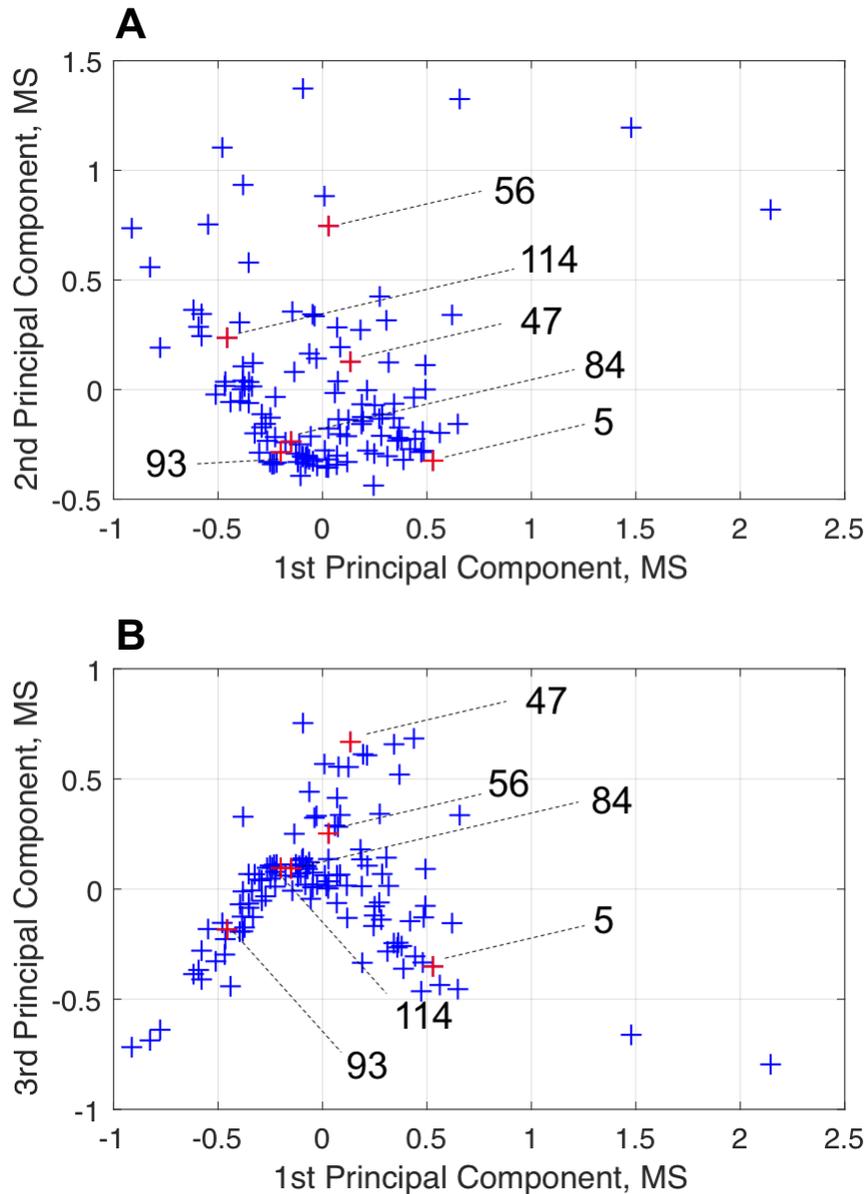


図 3-14 マススペクトルデータの主成分分析結果における特定サンプルの分布
 A=第一及び第二主成分の主成分スコアに基づくプロット、B=同第二及び第三主成分

3.8. まとめ

第三章では Dravnieks の官能検査データに代表される採点法の官能検査結果を9層のニューラルネットワークにより回帰予測するモデルを提案した。提案モデルは人体の脳において行われている匂い認識に関わる複雑で非線形な変数間の関係性を表現できるように設計された、7つの隠れ層を持つニューラルネットワークである。

計算機実験の結果、提案モデルは線形手法である PLS や広く用いられるニューラルネットワークに比べ、出力と教師信号間の相関係数及び残差自乗和の比較において有意に高い性能を示した。また同モデルはより大きな官能検査データを利用することで予測誤差を減少できる可能性を持つことを 3.7 での検証により示した。

第四章

4. 離散値で表現される匂い印象の予測

4.1. 概要

第二章で紹介した Sigma-Aldrich 社のカタログデータを使用して、0 または 1 の 2 値で表される匂い印象をマススペクトルから分類する予測モデルを考える。ある分子のマススペクトルが与えられた時、その分子の 139 種類の記述子への当てはまり(所属)の有無を分類予測するニューラルネットワークを考える。

4.2. モデルのコンセプトと構成

入力と出力の非線形な関係をモデル化する深層ニューラルネットワークを設計する。本章で使用するカタログデータは記述子の当てはまりが 0 または 1 で表されるが、出力層のニューロンの出力は 0 から 1 の間の連続値であるため、閾値を設けてこれを 0 または 1 に変換する。この閾値は訓練データに対する ROC(Receiver operating characteristic)を確認して選択する。

4.2.1. 事前実験

同データを分類するためのモデルとして第三章で提案した 9 層ニューラルネットワークモデルを 2.3.2 のデータセットに適用した。同データセットの 5 分割クロスバリデーションによりモデルの汎化性能を確かめる。実験におけるモデルのハイパーパラメータは以下に従う。実験の結果を表 4-2 に示す。

表 4-1 9層ニューラルネットワークのハイパーパラメータ

パラメータ	値
K_M	85
D_M	45
K_{p1}	50
K_{p2}	40
K_{p3}	30
D_S	40
K_S	60
η_M	0.5×0.99^t
η_S	0.4×0.99^t
η_p	0.5×0.99^t
α_M	0.3
α_S	0.3
α_p	0.25
λ_M	$2 \times 10^{-7}, L2$
λ_S	$1 \times 10^{-7}, L2$
λ_p	$2 \times 10^{-7}, L2$
# epochs in MS autoencoder training	1,000,000
# epochs in SD autoencoder training	800,000
# epochs in Mapping network training	600,000
# epochs in fine tuning	1,500

表 4-2 9層ニューラルネットワークによるカタログデータの記述子予測の結果

		教師信号	
		1	0
モデル出力	1	0.08	0.92
	0	0.04	0.96

上記の通り、9層ニューラルネットワークモデルによる予測では、教師信号が1(ある匂い物質の匂いの特性として、その記述子が当てはまる場合)であるときにモデルが1を出力した、すなわち正解と一致する確率は僅か8%であった。尚本章で使用した官能検査のデータセットにおいてデータ数は999サンプル×139記述子で138,861であり、教師信号のデータセットにおいて”0”と”1”の比は136795 : 2166でありデータセットに”1”が占める割合は約1.6%である。

この望ましい結果は得られなかった理由の一つとして、カタログデータにおいては本来あるべき記述子間の相関が失われていることが挙げられる。例えば「Balsam」と「Balsamic」は良く似た印象を表す記述してあることは容易に想像できるが、同カタログデータにおけるそれぞれの記述子の相関係数は0.01以下である。本章で使用するカタログデータと、三章で使用したDravnieksの官能検査データの両方について、比較的似ている印象を示す3つの記述子「Rose」「Violet」「Lavender」のそれぞれの間の相関係数を計算すると表4-3及び表4-4のようになった。この結果は、カタログデータは印象の良く似た記述子であっても、より当ては

まりの強い記述子のみが相互排他的に選ばれるように取りまとめられていることを示している。この結果より、学習においては「Rose」の記述子にある程度当てはまりのある匂い物質であっても0の出力が与えられるため、ニューラルネットワークの学習を困難にしている可能性を考慮することができる。

同問題への対処のため、本章で提案するモデルでは類似した記述子を内包するより大きな粒度のクラスタを用いて匂いの分類するアプローチを利用する。匂いの印象を[Pleasant - Unpleasant]などの大きな粒度での判別を試みた先行研究には1.8.3で紹介したものがある。

表 4-3 カタログデータにおける ROSE, VILOET, LABENDER 間の相関係数

	ROSE	VIOLET	LAVENDER
ROSE	1	0.02	0.08
VIOLET	0.02	1	0.00
LAVENDER	0.08	0.00	1

表 4-4 Dravnieks の官能検査データにおける ROSE, VILOET, LABENDER 間の相関係数

	ROSE	VIOLET	LAVENDER
ROSE	1	0.95	0.79
VIOLET	0.95	1	0.84
LAVENDER	0.79	0.84	1

4.2.2. 匂い記述子のクラスタリング

匂い印象を表現する記述子の分類の伝統的な手法にはアロマホイールまたはフレグランスホイールが挙げられる[87][90]。これらは食品や農産物、化粧品や香水などの匂いの分類に用いられるツールであり、長年の経験を持つ複数人の評価者らによって作られている。しかし一般的なアロマホイールやフレグランスホイールで用いられる記述子の数は高々数十ほどに止まり、今回のカタログデータで用いられる記述子はアロマホイールやフレグランスホイールにまとめられる記述子よりもはるかに多いため、異なるアプローチによる分類手法が求められる。

本章では Word2vec による単語の類似性を用いた記述子のクラスタリング手法を提案する。Word2vec は Mikolov らによって提案された言語モデリング手法である[91], [92]。Word2vec は大きなサイズのテキストコーパスを用いて訓練される3層ニューラルネットワーク(図 4-1)であり、単語のベクトル表現を得るために用いられる。コーパスに用いられた単語はそれぞれ対応するベクトルとして言語ベクトル空間に割り振られる。共通の文脈で用いられる単語同士は単語ベクトル空間上で近しい距離となるように、すなわちある単語を共起する確率の高い単語ベクトル表現を獲得するように訓練される。また、所属や反義語といった言語間の関係も同じくベクトルとして表される。単語間の類似性は Word2vec により得られる単語ベクトル同士のコサイン距離として計算することが可能であり、この距離を元にした樹状図などの手法によりクラスタリングを行うことができる。図 4-2 に示す PCA 散布図により2次元の特徴量空間に写像した国名・都市名の単語ベクトルであり、同図は同じ性質(国または都市)の単語が特徴空間上で近い位置関係となることを示している。

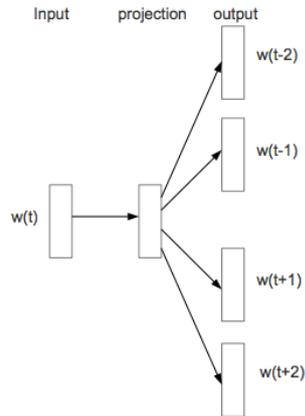


図 4-1 Word2vec で用いる Skip-gram モデル [92]より
モデルに与えられる単語(入力)である $w(t)$ から周辺単語 $w(t-2)$ から $w(t+2)$ を予測する

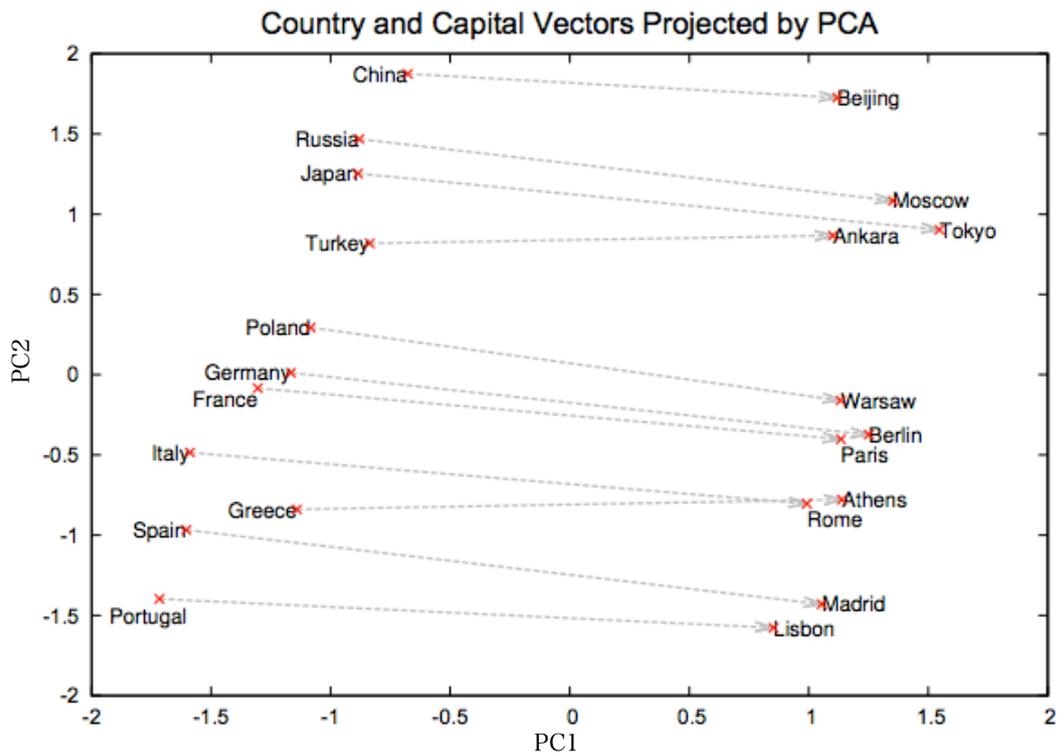


図 4-2 単語のベクトル表現を PCA によって 2次元に写像したもの [92]より
国は国同士、都市は都市同士で同じ文脈で出現する確率が高いため第一主成分で互いに近い位置同士となる。
また各国とその首都も同じ文脈で出現する確率が高く第二主成分で近い位置関係を取る。

本章の実験においてはテキストコーパスには 2016 年 5 月 23 日時点の Wikipedia 英語版の全文テキスト(enwiki-201509001)を利用した。同コーパスのサイズは 12.4GByte である。使用した skip-gram モデルのハイパーパラメータを表 4-5 に示す。これらのハイパーパラメータは過去の実装例[93]を参考にした。

表 4-5 Skip-gram モデルのハイパーパラメータ

ハイパーパラメータ	値
ベクトルサイズ (隠れ層における次元数)	400
周辺単語数 (出力層における単語数)	10
学習対象とする単語のコーパス中での最小出現回数	5

Word2vec により記述子の類似性がどのように評価されたかを知るために、カタログデータにおける記述子間の相関係数から作成した類似度行列と、Word2vec により得られた記述子の単語ベクトルのコサイン距離から作成した類似度行列に計量的 MDS を適用した(図 4-3 図 4-4)。図 4-3 においてほとんど分離できていなかった記述子が図 4-4 においては広く分離できしており、クラスタリングによる効果が期待できることが期待できる。それぞれの類似度行列を用いて樹状図(ウォード法)によるクラスタリングを行った。尚図 4-3 から図 4-6 までは R 言語で提供される cmdScale ライブラリを用いて作成した。

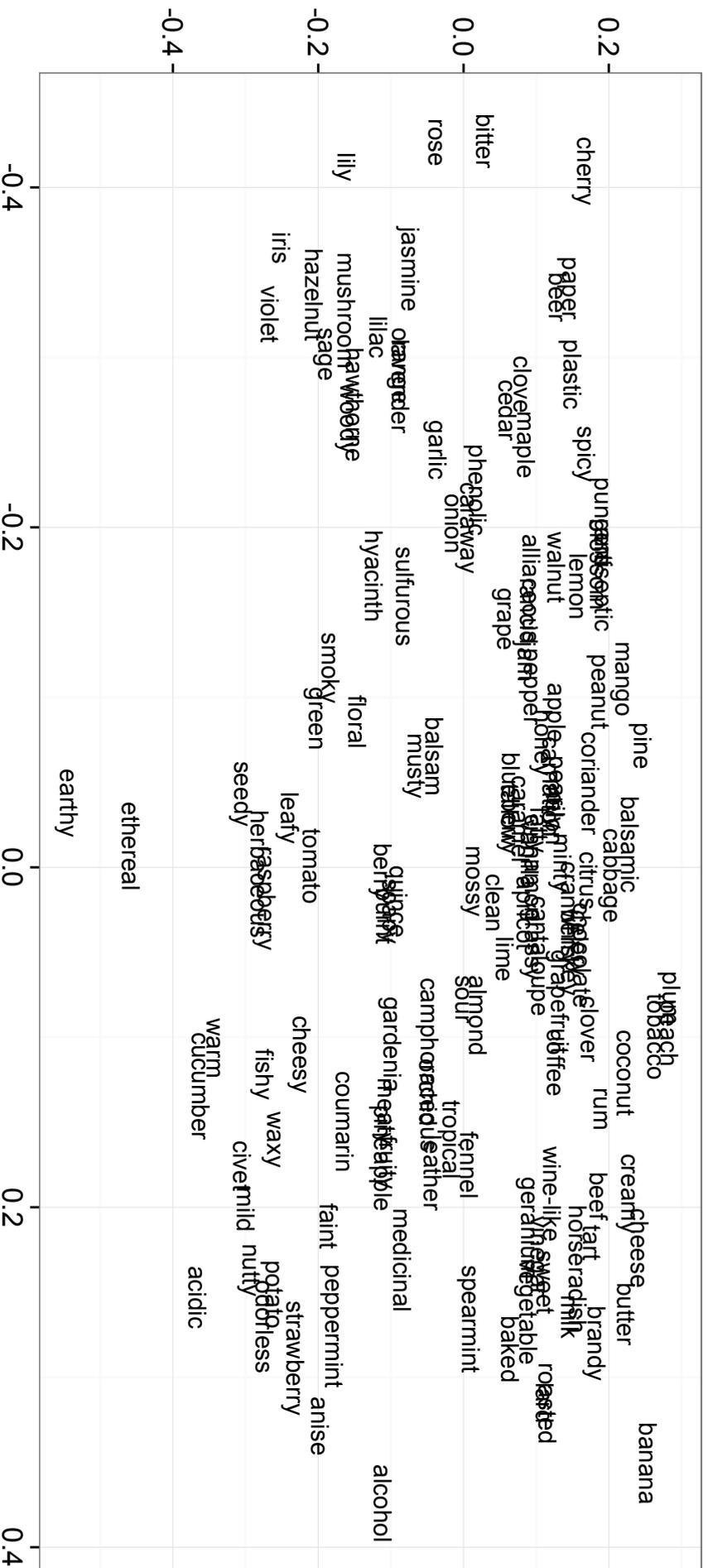


図 4-4 Word2vec モデルから得られた単語ベクトル間のコサイン距離より作成した MDS

Correlation coefficient

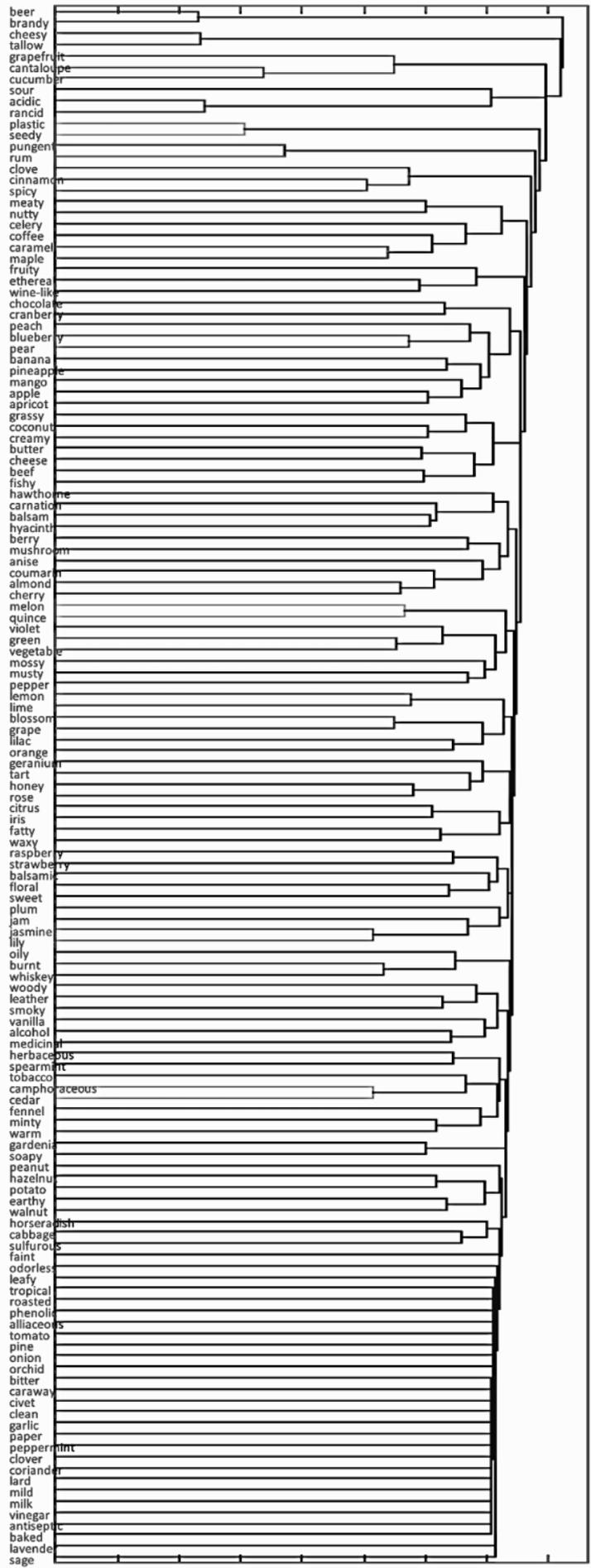


図4-5 カタログデータにおける記述子間の相関係数より作成した樹状図

Cosine similarity

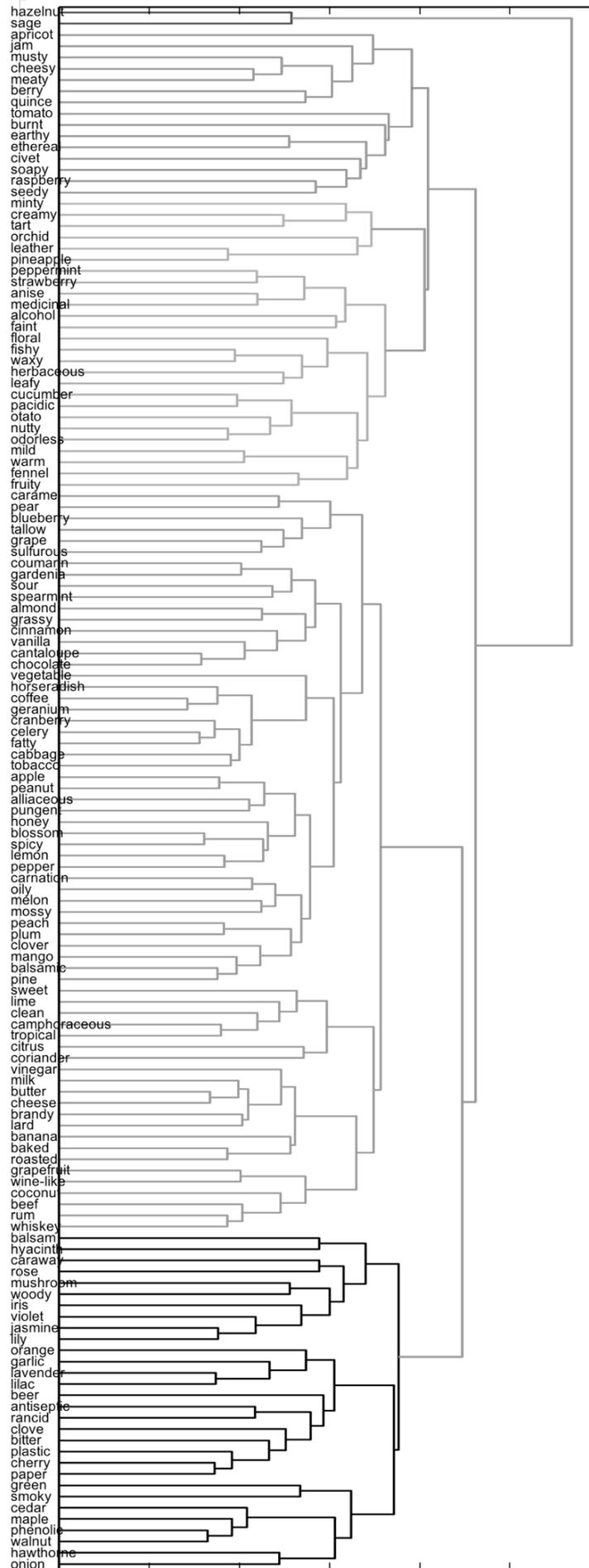


図4-6 Word2vecモデルから得られた単語ベクトル間のコサイン距離より作成した樹状図

4.2.3. モデルの構成

4.2.2 で述べたとおり、各サンプルがオリジナルのカタログデータで当てはまりを持つ記述子はクラスタにまとめられる。あるクラスタに含まれる複数の記述子のうち、いずれかの一つに当てはまる（1である）場合には該当のサンプルはそのクラスタに所属するとする。例えば Word2vec により作られる 6 つ目のクラスタには「rose」「lavender」「iris」などが所属しているため、オリジナルのカタログデータにおいていずれかの記述子を持つサンプルは「6 つ目のクラスタの匂いの印象を持つ」ことになる(図 4-7)。

本章で提案する予測モデルには 6 層のニューラルネットワークである(図 4-8)。予測モデルの入力には三章と同様にマススペクトルを用いる。このマススペクトルの特徴ベクトルを抽出するオートエンコーダも三章で使用したものをを用いる。得られたマススペクトル特徴ベクトル空間とクラスタベクトル空間を 2 つの隠れ層で写像する。

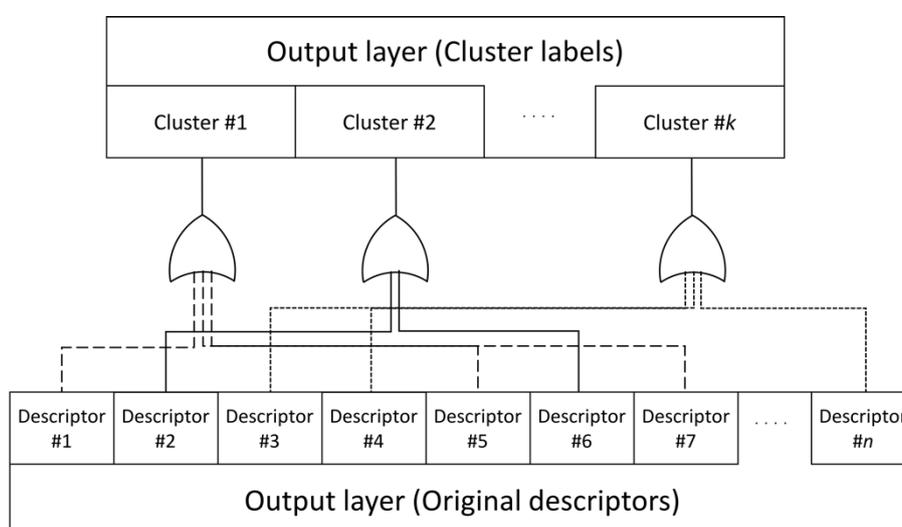


図 4-7 記述子のクラスタリングによる次元圧縮

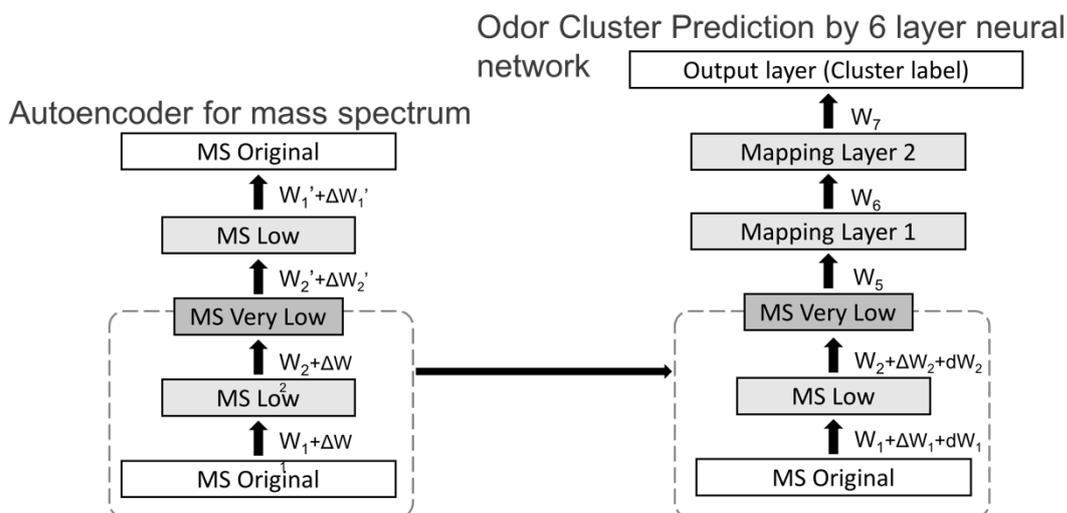


図 4-8 6層ニューラルネットワークによる匂い印象予測

4.3. 実験条件

4.3.1. 使用したサンプル

Aldrichのカタログで紹介される1267種類の単一分子物質と、NISTのデータベースで利用可能なマススペクトルの積集合を取る。四章における実験では999種類の匂い物質を使用した。

4.3.2. 比較するモデルと評価方法

実験では今回提案する6層ニューラルネットワークによる匂い印象予測モデルを以下の手法と比較する。モデルの汎化性能を比較するため、999種類のサンプルに対して5分割クロスバリデーションを行う。尚サンプル数を5で除算した際に剰余が生まれるため、分割したセットに含まれるサンプル数はそれぞれ[200 200 200 200 199]となる。本章における実験では、全てのニューラルネットワークの誤差関数は自乗和誤差(式2-12)とした。

- (1) 相関係数を元にしたクラスタリングを用いた6層ニューラルネットワーク
4.2.2で紹介したカタログデータにおける各記述子間の相関係数を元に作成した6つのクラスタ(図4-6)に分類する6層ニューラルネットワークを用いる。ネットワークの構成は図4-8に示す通りである。

予測性能の評価指標にはステップ関数により0または1に変換した出力 $f(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b})$ と教師信号 \mathbf{y} の一致率を用いる。ステップ関数の域値は訓練データにおけるモデル出力と教師信号のROCが最も高くなるように選択する。

4.4. ハイパーパラメータの探索

本章で提案するモデルの主要なハイパーパラメータにはクラスタ数を含めた各層のニューロンの数、重みベクトルの更新時の学習係数及び慣性項ハイパーパラメータ、正則化ハイパーパラメータが挙げられる。本研究では以下の手順によりハイパーパラメータの値を決定した。

- (4) マススペクトルの次元圧縮に用いるオートエンコーダのハイパーパラメータ、 K_M 、 D_M 、 η_M 、 α_M 、 λ_M の組み合わせの検討
- (5) 特徴ベクトルを写像するためのニューラルネットワークのハイパーパラメータ、 K_{p1} 、 K_{p2} 、 K_s 、 η_p 、 α_p 、 λ_p の組み合わせ

決定した2つのモデルのハイパーパラメータを表4-6及び表4-7に示す。本章の実験では記述子を分類するクラスタの数 K_S については4.5章で考察する。

表 4-6 Word2vec クラスタを利用した 6 層ニューラルネットワークのハイパーパラメータ

パラメータ	値
K_M	85
D_M	45
K_{p1}	50
K_{p2}	20
K_S	—
η_M	$0.5 \times 0.99^\tau$
η_p	$0.3 \times 0.99^\tau$
α_M	$0.3 \times 0.99^\tau$
α_p	$0.1 \times 0.99^\tau$
λ_M	$3 \times 10^{-7}, L2$
λ_p	$2 \times 10^{-7}, L2$
# epochs in MS autoencoder training	1,000,000
# epochs in Mapping network training	500,000
# epochs in fine tuning	1,000

表 4-7 相関係数クラスタを利用した 6 層ニューラルネットワークのハイパーパラメータ

パラメータ	値
K_M	85
D_M	45
K_{p1}	50
K_{p2}	20
K_S	—
η_M	$0.5 \times 0.99^\tau$
η_p	$0.3 \times 0.99^\tau$
α_M	$0.3 \times 0.99^\tau$
α_p	$0.1 \times 0.99^\tau$
λ_M	$3 \times 10^{-7}, L2$
λ_p	$2 \times 10^{-7}, L2$
# epochs in MS autoencoder training	1,000,000
# epochs in Mapping network training	1,000,000
# epochs in fine tuning	1,000

4.5. モデルの性能の評価

記述子クラスタの数 K_S に対する訓練した2種類のモデルの予測能力(True Positive:教師信号が1である時モデルが1を出力した割合, True Negative: 教師信号が0である時モデルが0を出力した割合)を図4-9に示す。図4-9では出力層におけるクラスタ数 K_S を横軸, True Positive または True Negative の値を縦軸としている。本実験の結果より、ハイパーパラメータであるクラスタの数 K_S は分類精度を確保できる点から6とした。クラスタ数 K_S を6とした時の2つのモデルの予測能力を表4-8及び表4-9に示す。

クラスタ数 K_S は予測能力とのトレードオフであるが、提案モデルではクラスタ数を6とした場合に True Positive の予測が71%、 True Negative の予測が92%を超える結果となった。

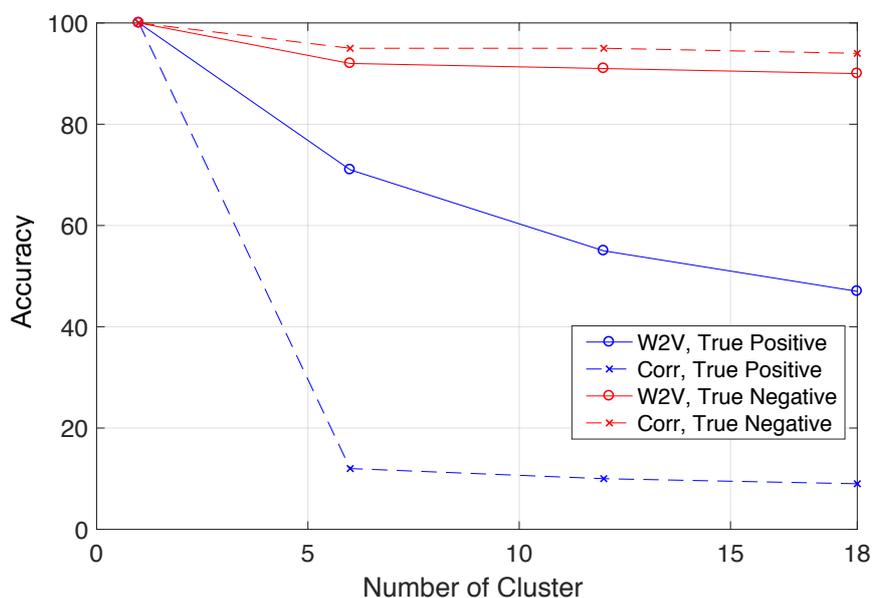


図 4-9 クラスタ数を変化させた際のモデルの予測性能

表 4-8 Word2vec クラスタを利用した6層ニューラルネットワークの予測性能

		教師信号	
		1	0
モデル出力	1	0.71	0.08
	0	0.29	0.92

表 4-9 相関係数クラスタを利用した6層ニューラルネットワークの予測性能

		教師信号	
		1	0
モデル出力	1	0.13	0.04
	0	0.88	0.95

Word2vec を元にして分けられた6つのクラスタに含まれる記述子を観察し、各クラスタには便宜的に表 4-10 の属性(名称)を割り振った

表 4-10 クラスタに含まれる記述子とクラスタの便宜的属性

クラスタ番号	含まれる記述子	与えた便宜的属性
1	hazelnut, sage	—
2	apricot, jam, musty, cheesy, meaty, berry, quince, tomato, burnt, earthy, ethereal, civet, soapy, raspberry, seedy	野菜・草
3	minty, creamy, tart, orchid, leather, pineapple	—
4	peppermint, strawberry, anise, medicinal alcohol, faint, floral, fishy, waxy, herbaceous, leafy, cucumber, pacidic, potato, nutty, odorless, mild, warm, fennel, fruity	果物・青臭さ
5	caramel, pear, blueberry, tallow, grape, sulfurous, coumarin, gardenia, sour, spearmint, almond, grassy, cinnamon, vanilla, cantaloupe, chocolate, vegetable, horseradish, coffee, geranium, cranberry, celery, fatty, cabbage, tobacco, apple, peanut, alliaceous, pungent, honey, blossom, spicy, lemon, pepper, carnation, oily, melon, mossy, peach, plum, clover, mango, balsamic, pine, sweet, lime, clean camphoraceous, tropical, citrus, coriander, vinegar, milk, butter, cheese, brandy, lard, banana, baked, roasted, grapefruit, wine-like, coconut, beef, rum, whiskey	果物・香辛料・動物
6	balsam, hyacinth, caraway, rose, mushroom woody, iris, violet, jasmine, lily, orange, garlic, lavender, lilac, beer, antiseptic, rancid, clove, bitter, plastic, cherry, paper, green, smoky, cedar, maple, phenolic, walnut, hawthorne, onion	花、草

4.6. 考察

本章では Sigma-Aldrich 社のカタログデータを使用して、0 または 1 の 2 値で表される官能検査の結果をマススペクトルから分類する手法として、Word2vec による言語モデリングを取り入れた予測モデルを提案した。

Sigma-Aldrich 社のカタログデータでは匂い物質の印象を表すのに用いられる記述子が、本来近い匂い印象を示す記述子であっても排他的に使用されるために、記述子間の類似性を計算することが困難であった。本章における実験結果は自然言語処理を用いたクラスタリングにより同問題へ対処することができることを示した。分類するクラスタ数は予測性能とのトレードオフであるが、提案モデルではクラスタ数を 6 とした場合に True Positive の予測が 71%、True Negative の予測が 92% を超える結果となった。すなわち、提案したモデルは未知の匂い物質の印象を「花」「草」「果物」「香辛料」「青臭さ」などの粒度で、前述の精度で予測可能であることを示している。

本論文で報告した実験では学習するテキストコーパスに Wikipedia 英語全文を用いたが、このテキスト中には同綴異義語(例えば、sage は「賢明」を指す単語と香味料としての「セージ」を指す単語の同綴異義語である)などの雑音も含まれており、問題に適したコーパスの選択によりさらなる性能の改善につながることを期待できる。

4.7. まとめ

第四章では Sigma-Aldrich 社のカタログデータを使用して、0 または 1 の 2 値で表される官能検査の結果をマススペクトルから分類する手法として、Word2vec による言語モデリングを取り入れた予測モデルを提案した。提案モデルでは 150 の記述子を、類似性を元にした 6 つのクラスタに分けることで、未知の物質の匂い印象を True Positive 71% True Negative 91% の予精度で予測可能である。

第五章

5. ニューラルネットワークの距離関数の検討

5.1. 匂いの印象予測における板倉斎藤距離の優位性

本研究では匂い印象を予測するためのニューラルネットワークの誤差関数として板倉斎藤距離(Itakura-Saito Distance, Itakura-Saito Divergence; IS)を提案する。板倉斎藤距離は、近年ではNMF法と組み合わせて音響パワースペクトルからの雑音除去や音源分離などの研究や、画像データの目鼻などのパーツ分離による顔認証や顔画像合成に用いられている[94], [95]。

文字認識などの機械学習アプリケーションにおいて、値の小さなピクセルは文字の掠れなどのサンプルの重要ではない特徴やノイズを示すが、本研究で取り扱う質量分析器のデータにおいてはノイズは殆ど現れず、こうした小さなピークもサンプルの重要な性質を示すものである。

1.4.2で述べたように、マススペクトルの高 m/z 領域のピークは人の嗅覚閾値が低いため、低 m/z 領域のピークに比べて匂い印象への寄与が大きいと考えられている。マススペクトルは一般に広いダイナミックレンジのデータであり、低 m/z 領域のピークと高 m/z 領域のピークでは大きさが数十～数百倍も異なる。先行研究[23][24]での報告を踏まえ、本研究ではマススペクトルを取り扱う距離尺度として板倉斎藤距離を検討した。教師信号を \mathbf{y} 、モデルの出力 $f(x_n; \mathbf{w})$ とし、ニューラルネットワークで広く用いられる自乗和誤差 E_{MSE} (Mean Squared Error; MSE) と交差エントロピー E_{CE} (Cross Entropy; CE)、板倉斎藤距離 E_{IS} の式を式 5-1 から式 5-3 までに示す。N は \mathbf{y} がベクトルであるときの次元数である。

$$E_{MSE} = \frac{1}{2} \sum_{n=1}^N (y_n - f(x_n; \mathbf{w}))^2 \quad (5-1)$$

$$E_{CE} = \sum_{n=1}^N (y_n \ln f(x_n; \mathbf{w}) + (1 - y_n) \ln(1 - f(x_n; \mathbf{w}))) \quad (5-2)$$

$$E_{IS} = \sum_{n=1}^N \left(\frac{y_n}{f(x_n; \mathbf{w})} - \ln \frac{y_n}{f(x_n; \mathbf{w})} - 1 \right) \quad (5-3)$$

尚、ニューラルネットワークの距離関数として用いる関数は次の2つの性質を満たさなければならない。

- (1) 常に非負であること
- (2) 入力 x に対するニューロンの出力 y が教師信号に近いときにゼロに近づく

板倉斎藤距離は(1)について、 $f(x; \mathbf{w}) = (0,1]$ 及び $y = (0,1]$ の範囲でその条件を満たす。また板倉斎藤距離が最も小さくなるのは $f(x_n; \mathbf{w}) = y$ のときであり、このとき $E_{IS} = 0$ となり、(2)の条件を満たす。板倉斎藤距離は交差エントロピー同様、対称性を持たない擬距離であるが、ニューラルネットワークの訓練のためには上記条件を満たせば実用上問題はない。

また2つの変数 y 及び $f(x)$ の値を(0,1)の間で変化させた時の、それぞれの関数で評価される距離の様子を図5-1に示す。交差エントロピー及び板倉斎藤距離は非対称である。板倉斎藤距離では $f(x_n; \mathbf{w})$ が y を下回る際に大きなペナルティが発生することがわかる。また式5-3に示されるように、板倉斎藤距離では y と $f(x_n; \mathbf{w})$ の比のみで表される関数であり、スケールに非依存である。これらはダイナミックレンジの広いデータにおいて小さなピークを近似する際に適した性質である。

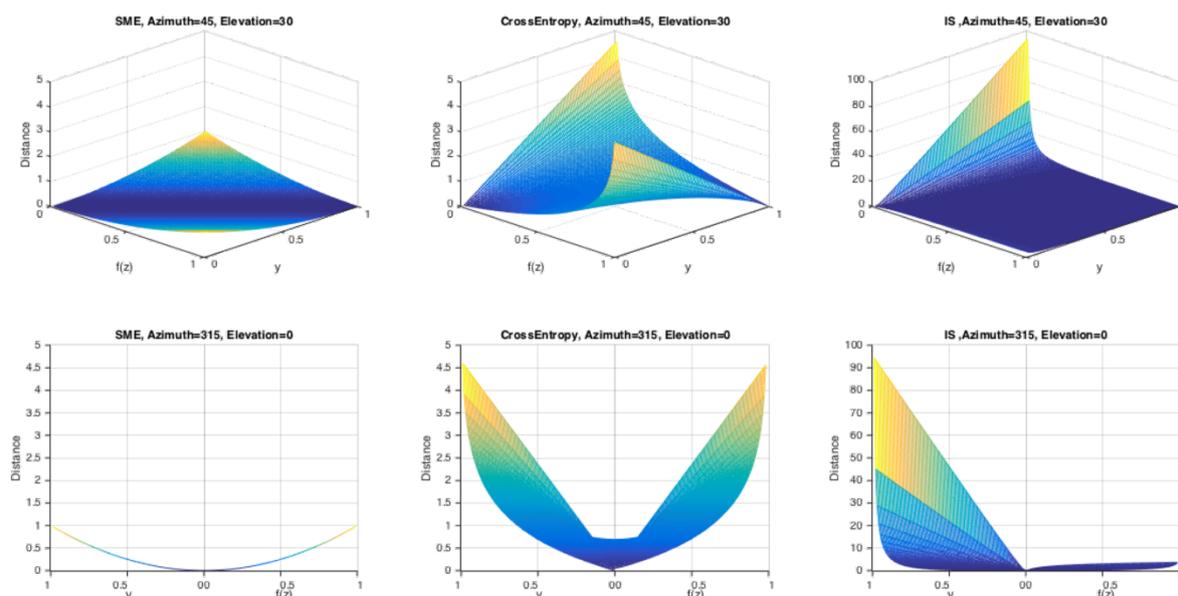


図 5-1 それぞれの距離関数を用いた場合の変数間距離の評価の様子
([96]より、Copyright Elsevier 2017, 許諾済)

5.2. 誤差関数としての板倉斎藤距離

板倉斎藤距離に基づく誤差関数 E_{IS} の勾配は微分の連鎖律を用いて式 2-9 で表される。 N 次元のサンプル x の n 番目の要素を x_n とする。出力層における k 番目のニューロンへの入力 $z_k = \sum_{n=1}^N w_{nk}x_n + b$ であるため、

$$\frac{\partial E_{IS}}{\partial w_{nk}} = \frac{\partial E_{IS}}{\partial f(z_k; \mathbf{w})} \frac{\partial f(z_k; \mathbf{w})}{\partial z_k} \frac{\partial z_k}{\partial w_{nk}} \quad (5-4)$$

ここで $f(z_n; \mathbf{w})$ は重み付け線形和のシグモイド関数の出力である

$$\frac{\partial E_{IS}}{\partial f(z_n; \mathbf{w})} = -\frac{y_n}{f(z_n; \mathbf{w})^2} + \frac{1}{f(z_n; \mathbf{w})} \quad (5-5)$$

とかける。微分は式 2-3 を用いて

$$\frac{\partial f(z_n; \mathbf{w})}{\partial z_k} = f(z_n; \mathbf{w})(1 - f(z_n; \mathbf{w})) \quad (5-6)$$

となる。また

$$\frac{\partial z_k}{\partial w_{nk}} = x_n \quad (5-7)$$

と書き直せる。従ってあるサンプルが入力に与えられた時の勾配ベクトルの第 k 要素は

$$\frac{\partial E_{IS}}{\partial w_{nk}} = \left(1 - \frac{y_n}{f(z_n; \mathbf{w})}\right) (1 - f(z_n; \mathbf{w})) x_n \quad (5-8)$$

となる。勾配 $\frac{\partial E_{IS}}{\partial w}$ のベクトル化は 2-8 に従う。隠れ層に置ける誤差の計算は 2.1.3 に従う。 ℓ 層を持つニューラルネットワークへの拡張においては x_n を第 $(\ell - 1)$ 層における i 番目のニューロンの出力 $z_i^{(\ell-1)}$ とする。このニューロンの誤差を $\delta_i^{(\ell-1)}$ とする。第 ℓ 層における k 番目の入力を $z_k^{(\ell)}$ と表す。式 5-9, 5-12 においては上付き (Superscript) で層番号を示す。

$$\delta_i^{(\ell-1)} = \sum_{k=1}^K \frac{\partial E}{\partial z_k^{(\ell)}} \frac{\partial z_k^{(\ell)}}{\partial z_i^{(\ell-1)}} \quad (5-9)$$

これを書き直して、

$$\delta_i^{(\ell-1)} = \sum_{k=1}^K \delta_k^{(\ell)} \frac{\partial z_k^{(\ell)}}{\partial z_i^{(\ell-1)}} \quad (5-10)$$

を得る。ここで

$$\frac{\partial z_k^{(\ell)}}{\partial z_i^{(\ell-1)}} = w_{ki}^{(\ell-1)} \frac{\partial f(z_i^{(\ell-1)})}{\partial z_i^{(\ell-1)}} \quad (5-11)$$

より、第 $(\ell - 1)$ 層におけるニューロンの誤差は

$$\begin{aligned}\delta_i^{(\ell-1)} &= \sum_{k=1}^K \delta_k^{(\ell)} w_{ki}^{(\ell-1)} \frac{\partial(f(z_i^{(\ell-1)}))}{\partial z_i^{(\ell-1)}} \\ &= \sum_{k=1}^K \delta_k^{(\ell)} w_{ki}^{(\ell-1)} f(z_i^{(\ell-1)})(1 - f(z_i^{(\ell-1)}))\end{aligned}\quad (5-12)$$

と表される。

板倉斎藤距離の重みに対する勾配(式 5-8)を、二章で導いた二乗誤差(式 5-13)及び交差エントロピー(式 5-14)の勾配 $\frac{\partial E_{MSE}}{\partial \mathbf{w}}$ 及び $\frac{\partial E_{CE}}{\partial \mathbf{w}}$ と比較する。

$$\frac{\partial E_{MSE}}{\partial w_{nk}} = (f(z_k; \mathbf{w}) - y_k)f(z_k; \mathbf{w}) \quad (5-13)$$

$$\frac{\partial E_{CE}}{\partial w_{nk}} = f(z_k; \mathbf{w}) - y_k \quad (5-14)$$

式 5-8、式 5-13 及び式 5-14 の比較により、二乗誤差及び交差エントロピー誤差の重みに対する勾配は出力と教師信号の差で計算されるため $f(z_k; \mathbf{w})$ と y が 0 に近づくにつれて 0 に近づく一方、板倉斎藤距離では出力と教師信号の比が用いられるため、 $f(z_k; \mathbf{w})$ と y が 0 に近い場合にも勾配の計算が効率よく行えることが期待できる。

5.3. 単純パーセプトロンを用いた実験

それぞれの誤差関数を用いたニューラルネットワークの微小な教師信号に対する近似能力を単純パーセプトロンを用いて評価する。実験に使用する単純パーセプトロンを図 5-2 に示す。

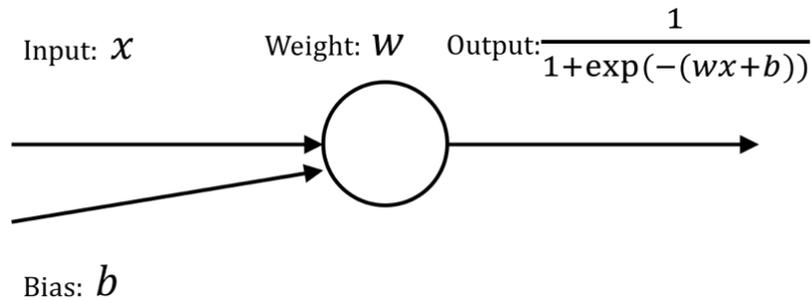


図 5-2 五章の実験で使用するパーセプトロン
([96]より、Copyright Elsevier 2017, 許諾済)

5.3.1. 実験条件

単純パーセプトロンを用いた比較実験における重みの更新式は以下に従う。

$$w^{(t+1)} = w^{(t)} + \Delta w \quad (5-15)$$

$$\Delta w = -\eta \frac{\partial E(w)}{\partial w} \quad (5-16)$$

バイアスの更新は式 5-15 及び式 5-16 の w を b と置き換えて計算する。実験において学習係数 η は 0.15 とした。

本実験ではこの単純パーセプトロンに与える入力 x を 1、の教師信号 y を 0.1、0.01、0.001 及び 0.0001 と変化させていった時の、300 回の重み更新後の出力と収束の速度を評価する。収束の速度は w 及び b の初期値に影響されるため、本実験では、初期値での出力が教師信号に近い場合として $w^{(0)}=b^{(0)}=2.0$ 、そうでない場合として $w^{(0)}=b^{(0)}=0.5$ の 2 種類の初期値を用いた。

5.3.2. 実験結果

教師信号を 0.1、0.01、0.001 及び 0.0001 と変化させていった時の、300 回の重み更新後の出力を図 5-3 に、学習エポック毎の誤差の推移を図 5-4 に示す。図 5-3 より二乗誤差及び交差エントロピー誤差を距離関数とした単純パーセプトロンでは誤差関数の重みに対する勾配の消失により教師信号が 0.01 より小さくなると出力が追従できなくなっている一方で、板倉齋藤距離を用いた単純パーセプトロンでは同問題に対処できていることがわかる。学習の速度は交差エントロピー誤差を用いた単純パーセプトロンが最も速く、板倉齋藤距離を用いた単純パーセプトロンはそれに続いた。

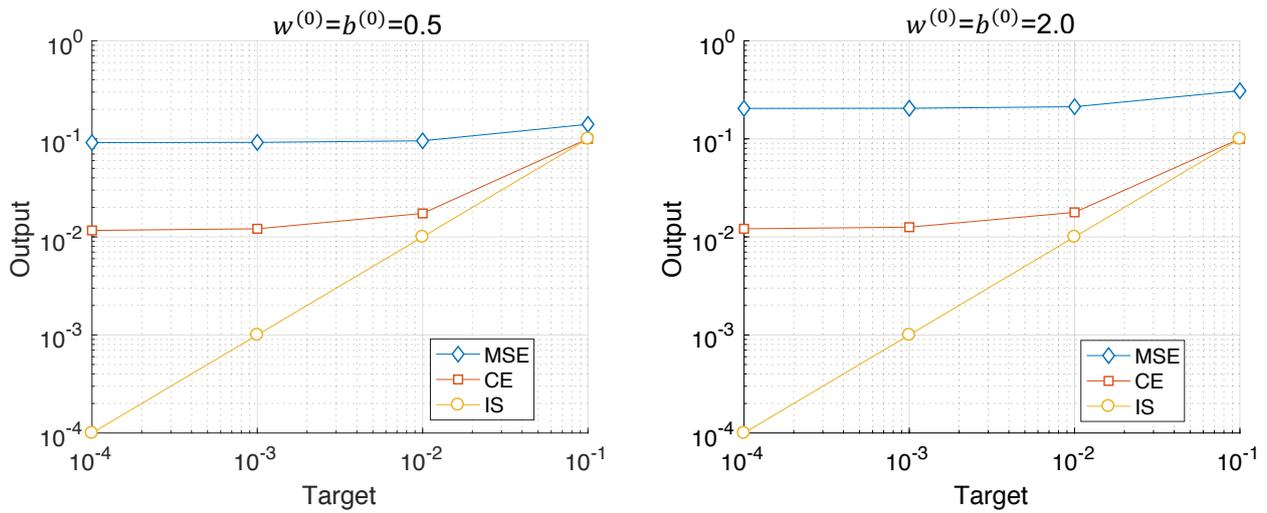


図 5-3 異なる誤差関数を用いた単純パーセプトロンの 300 回の訓練後の出力の比較

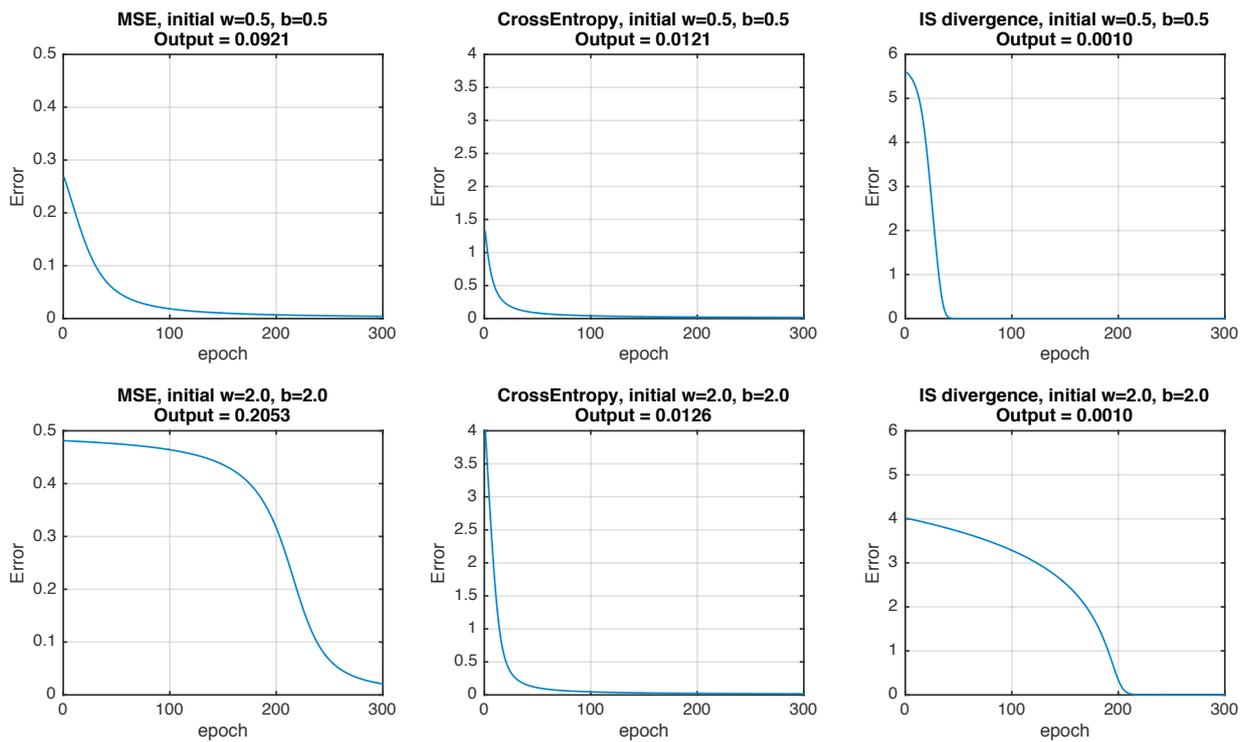


図 5-4 3 種類の単純パーセプトロンの学習エポックに対する誤差の推移
([96]より、Copyright Elsevier 2017, 許諾済)

実験で使用された3種類のパーセプトロンはそれぞれ異なる出力と教師信号の誤差の評価に異なる距離関数を用いているため、モデル間の性能の評価にはスケールに影響されない評価指標として相対誤差(式 5-17)を用いる。n 番目のサンプルに対応する入力ベクトルを x_n 、これに対応するニューラルネットワークの出力層で得られる出力ベクトルを $f(x_n; w)$ として

$$Relative\ Error = \frac{|x_n - f(x_n; w)|}{x_n} [\%] \quad (5-17)$$

教師信号の変化に対する相対誤差を図 5-5、表 5-1 及び表 5-2 に示す。板倉斎藤距離を用いた単純パーセプトロンの教師信号に対する相対誤差は教師信号 y の(0.1,0.0001)の範囲で 0[%]であり、大きなダイナミックレンジのデータセットに対しての誤差関数としての板倉斎藤距離の有効性が示された。

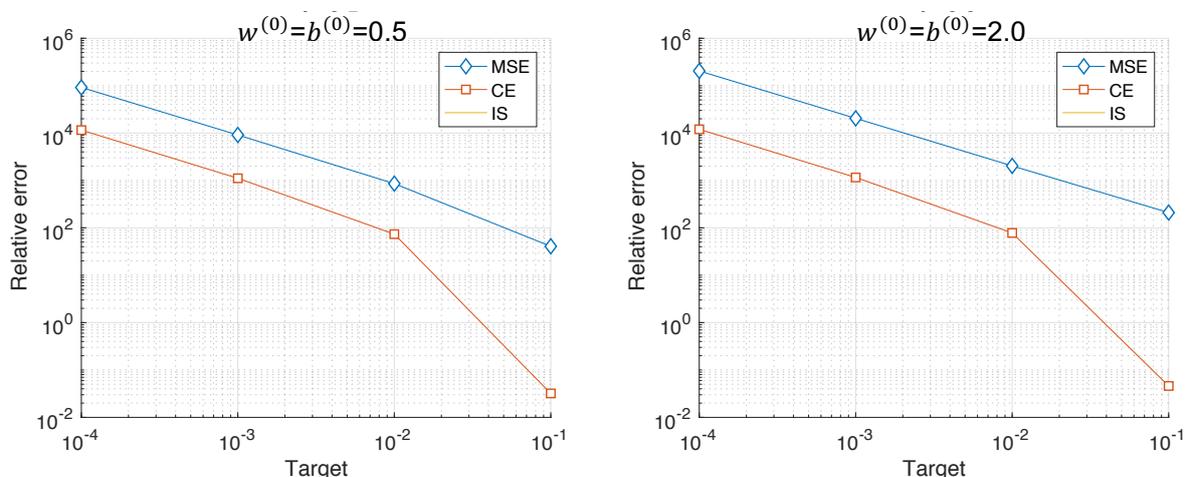


図 5-5 教師信号の変化に対する各パーセプトロンの相対誤差
IS 距離を用いた場合の相対誤差は ≈ 0 であるためグラフには現れない

表 5-1 教師信号の変化に対する各パーセプトロンの相対誤差($w=b=0.5$)

	教師信号(入力)に対する相対誤差 [%]			
	$x = 0.1$	$x = 0.01$	$x = 0.001$	$x = 0.0001$
MSE	40.67	855.43	9105.00	91609.00
CE	0.03	73.58	1110.70	11545.00
IS	0.00	0.00	0.00	0.00

表 5-2 教師信号の変化に対する各パーセプトロンの相対誤差($w=b=2.0$)

	教師信号(入力)に対する相対誤差 [%]			
	$x = 0.1$	$x = 0.01$	$x = 0.001$	$x = 0.0001$
MSE	209.66	2027.44	20427.70	204447
CE	0.05	77.96	1156.50	12002
IS	0.00	0.00	0.00	0.00

5.4. 板倉斎藤距離の深層オートエンコーダへの応用

5.3の実験結果より、誤差関数として板倉斎藤距離を用いた単純パーセプトロンは二乗誤差及び交差エントロピー誤差と比較して大きなダイナミックレンジでの近似性能が優れていることが示された。本章ではこれを深層オートエンコーダへ拡張し、マスペクトルの次元圧縮における性能を検証する。実験に使用する深層オートエンコーダを図 5-6 に示す。

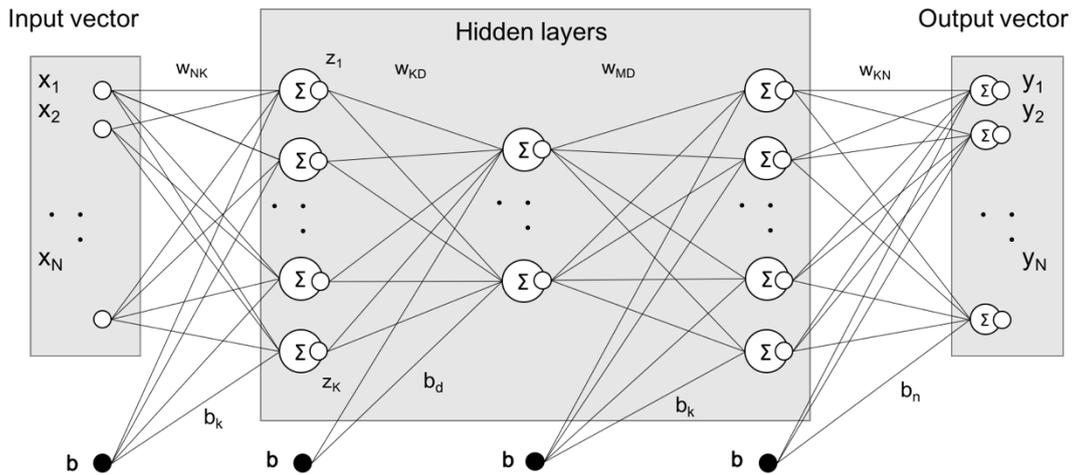


図 5-6 実験で使用するオートエンコーダ(二章より再掲)

5.4.1. 実験条件

本章における実験において重みの更新には式 5-18 を使用する。

$$w_{nm}^{(t)} = w_{nm}^{(t-1)} - \eta \frac{\partial}{\partial w_{nm}^{(t)}} E_n(\mathbf{w}) + \alpha (w_{nm}^{(t)} - w_{nm}^{(t-1)}) \quad (5-18)$$

また誤差関数には式 5-19 に示される正則化項を用いる。

$$E_{\text{regularized}} = E_{\text{IS, MSE, CE}}(\mathbf{W}) + \lambda \sum_{m,n} |w_{nm}|^p \quad (5-19)$$

図 5-6 に示す 5 層オートエンコーダの誤差関数として二乗誤差、交差エントロピー誤差、板倉斎藤距離の 3 種類を用いた時のモデルの次元圧縮の性能を比較する。

実験に使用するサンプルには NIST のデータベースから 5000 種類の単一分子物質のマスペクトルを用意した。そのうちの 2000 個を検証データに用いて検証データに対するモデルの汎化性能を測定する。モデル間の性能の評価指標として出力ベクトル $f(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b})$ と教師信号 \mathbf{y} の相関係数(式 5-20)と平均相対誤差(式 5-21)を用いる。また相対誤差は $\mathbf{y} = \mathbf{0}$ において定義されないため、マスペクトルのデータセット全体にオフセットとして微小な値(0.0001)を足し合わせた。

$$R(\mathbf{f}(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b}), \mathbf{y}) = \frac{\text{Cov}(\mathbf{f}(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b}), \mathbf{y})}{\sigma_{f(\mathbf{x})}\sigma_y} \quad (5-20)$$

$$\text{Mean Relative Error} = \frac{1}{n} \sum \frac{|y_n - f(x_{nk}; \mathbf{w})|}{y_n} [\%] \quad (5-21)$$

ここで $\text{Cov}(\mathbf{f}(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b}), \mathbf{y})$ は $\mathbf{f}(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b})$ と \mathbf{y} の共分散であり、 n は検証セットに含まれるサンプル数である。また、小さな信号に対する復元性能の評価指標として、上記に加えて対数変換後の出力 $\mathbf{f}(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b})$ と教師信号 \mathbf{y} の相関係数と、ダイナミックレンジの下位 3%未満の信号に対する平均相対誤差を比較する。将来の匂い印象の予測モデルにおいて、どの程度小さなピークを近似する能力が必要であるかは未だ定まらないため、ここではダイナミックレンジの下位 3%未満を用いて小さなピークの復元性能を比較する。データセットは最大値が 1 になるよう正規化されているため、(0.0001-0.03)のピークがダイナミックレンジの下位 3%未満の信号に相当する。本実験においてその割合は 87.5%であった。

5.4.2. 実験結果

実験における各オートエンコーダのハイパーパラメータを表 5-3 に示す。

表 5-3 各距離関数を用いたオートエンコーダのハイパーパラメータ

パラメータ	MSE	CE	IS
η	$0.030 \times 0.915^{(\text{epoch})}$	$0.015 \times 0.915^{(\text{epoch})}$	$0.160 \times 0.85^{(\text{epoch})}$
α	0.003	0.0015	0.0010
λ	0.5×10^{-7}	2.5×10^{-6}	1.0×10^{-5}
p (norm)	1 (L1)	1 (L1)	2 (L2)
# Neurons in hidden layers	100-50-100	100-50-100	100-50-100
Epoch	600	400	600

訓練した 3 種類のモデルの出力 $\mathbf{f}(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b})$ と教師信号 \mathbf{y} の相関係数の散布図を図 5-7 及び図 5-8 に示す。それぞれ上段が線形スケール、下段が対数スケールで図中では教師信号の値(True value)を横軸、モデルの出力(Output)を縦軸としている。図 5-6 には学習セットに含まれる 3000 サンプルの 1-300 までの m/z について、900,000 点から無作為に選んだ 30,000 点が、図 5-8 中には訓練セットに含まれる 2000 サンプルの 1-300 までの m/z について、600,000 点から無作為に選んだ 30,000 点がプロットされている。

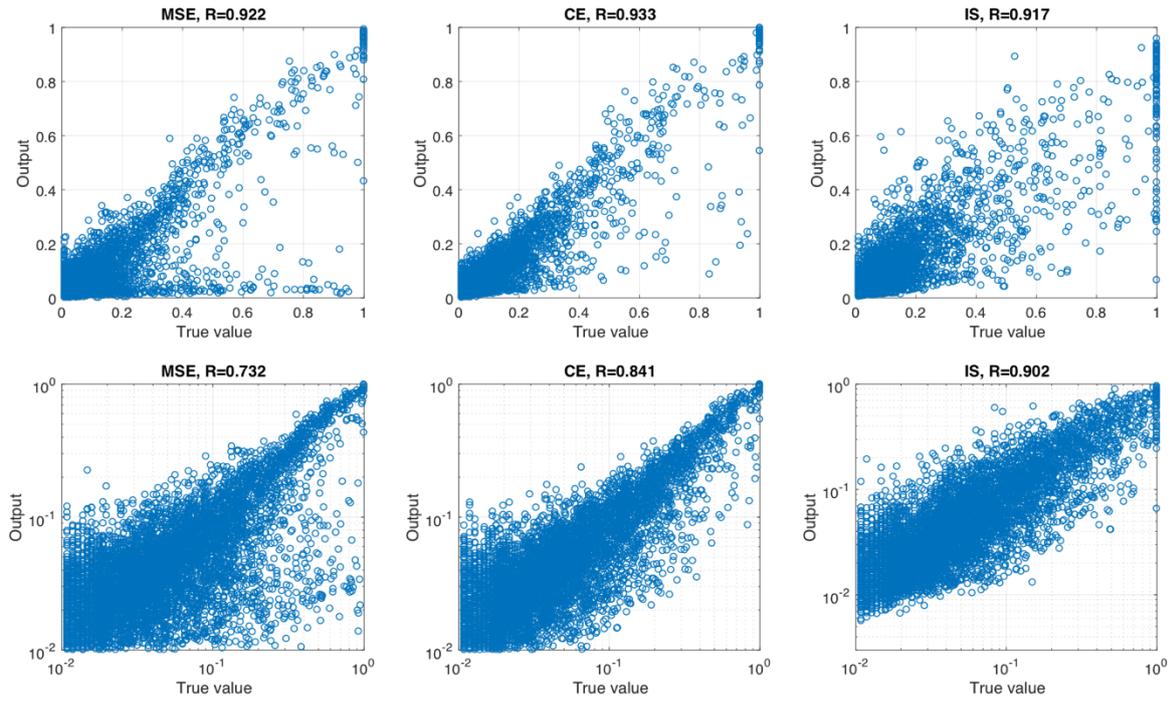


図 5-7 訓練セットに対するモデルの出力と教師信号の相関の比較
 ([96]より、Copyright Elsevier 2017, 許諾済)

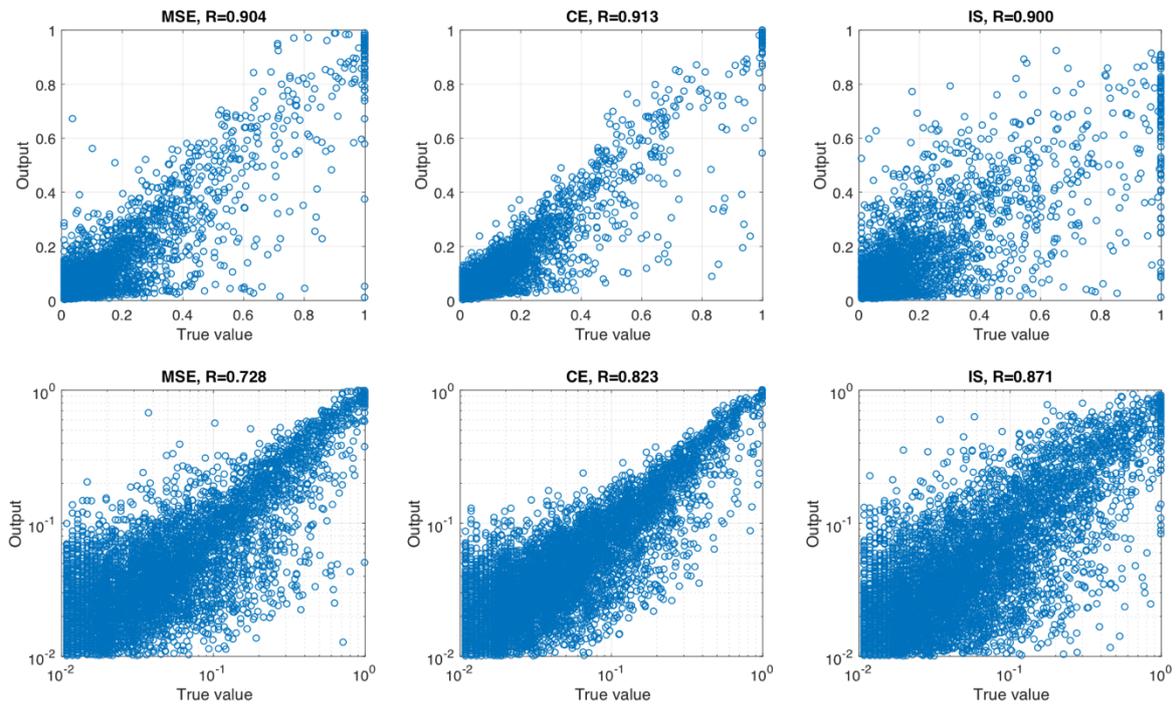


図 5-8 検証セットに対するモデルの出力と教師信号の相関の比較
 ([96]より、Copyright Elsevier 2017, 許諾済)

それぞれのモデルの出力-教師信号間の相関係数を表 5-4 に、また出力-教師信号間の平均相対誤差を表 5-5 に示す。

表 5-4 各モデルの出力-教師信号間の相関係数

距離関数	相関係数, $R(f(x),y)$	相関係数, $R(\log(f(x)),\log(y))$
MSE	0.922	0.732
CE	0.933	0.841
IS	0.912	0.902

表 5-5 各モデルの出力-教師信号間の平均相対誤差

距離関数	平均相対誤差 (3%以上)	平均相対誤差 (3%未満)	平均相対誤差 (全信号)
MSE	34.06	70.32	68.08
CE	31.91	55.12	53.68
IS	36.48	30.73	31.08

5.5. 考察

表 5-4 より、板倉斎藤距離を誤差関数に用いたオートエンコーダは出力-教師信号間の相関係数の比較において他の距離関数を用いたオートエンコーダよりも僅かに低くなったが、対数変換後の出力 $f(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b})$ と教師信号 \mathbf{y} の相関係数は大きく改善されている。また表 5-5 より、ダイナミックレンジの下位 3%未満の信号に対する相対誤差は他の距離関数を用いたオートエンコーダよりも大きく改善されていることが示された。板倉斎藤距離を距離関数として用いたオートエンコーダは、大きなダイナミックレンジを持つデータセットにおいて小信号に対する近似能力が高く、この特性は本研究で取り扱う質量分析器のデータから匂い印象に影響を与えるであろう小さなピークを重視した特徴ベクトルを取り出す際に効果が期待できる。

続く六章では本章にて検討した板倉斎藤距離を用いたオートエンコーダを、三章で報告した深層ニューラルネットワークを用いた匂い印象予測モデルに取り入れ、匂い印象の予測精度の改善効果を評価する。

5.6. まとめ

第五章では誤差関数に二乗和誤差、交差エントロピー誤差及び板倉斎藤距離を用いた単純パーセプトロン及びオートエンコーダを設計し、データセットに含まれる小さなピークに対する近似性能を実験により比較した。板倉斎藤距離を誤差関数に用いたオートエンコーダは出力-教師信号間の相関係数において他の距離関数を用いたオートエンコーダよりも僅かに低くなったが、対数変換後の出力と教師信号の相関係数は大きく改善された。

第六章

6. 板倉斎藤距離を用いたニューラルネットワークによる匂い印象の予測モデルの検討

6.1. 概要

本章では五章で紹介したオートエンコーダと三章で紹介した深層ニューラルネットワークを組み合わせた予測モデルを提案する。マススペクトルの高 m/z 領域にあるピークは嗅覚域値が低いため、この領域のピークは値が小さくとも匂い印象に大きな影響を及ぼすことが考えられる。この仮説に基づけば、板倉斎藤距離を用いたオートエンコーダはマススペクトルに含まれる嗅覚域値の低い小さなピークを反映した特徴ベクトルを用いることができるため、深層ニューラルネットワークによる匂い印象の予測性能を改善することが期待できる。

6.2. モデルのコンセプトと構成

本章で提案する予測モデルの構成を図 6-1 に示す。予測モデルの基本的な構成は 3.2 に倣うが、マススペクトルの次元圧縮に使用するオートエンコーダに採用する距離関数の違いが予測モデルの性能に与える影響を検証することが本章における目的であること、9層ニューラルネットワークはパラメータの数が多く最適化に時間がかかることから、本章では予測モデル全体の層の数を7層とした。

本章においても三章と同様に、2つの深層オートエンコーダによりマススペクトルと官能検査データそれぞれを次元圧縮する。深層オートエンコーダの構成及び学習手順は 3.2 に示す通りである。マススペクトル特徴ベクトルから官能検査データ特徴ベクトルに写像するニューラルネットワークの隠れ層の層数は1層とした(図 6-1 中央)。訓練済みの2つの深層オートエンコーダとニューラルネットワークを連結し、最後に数回の学習により微調整を行う(図 6-1 右)。

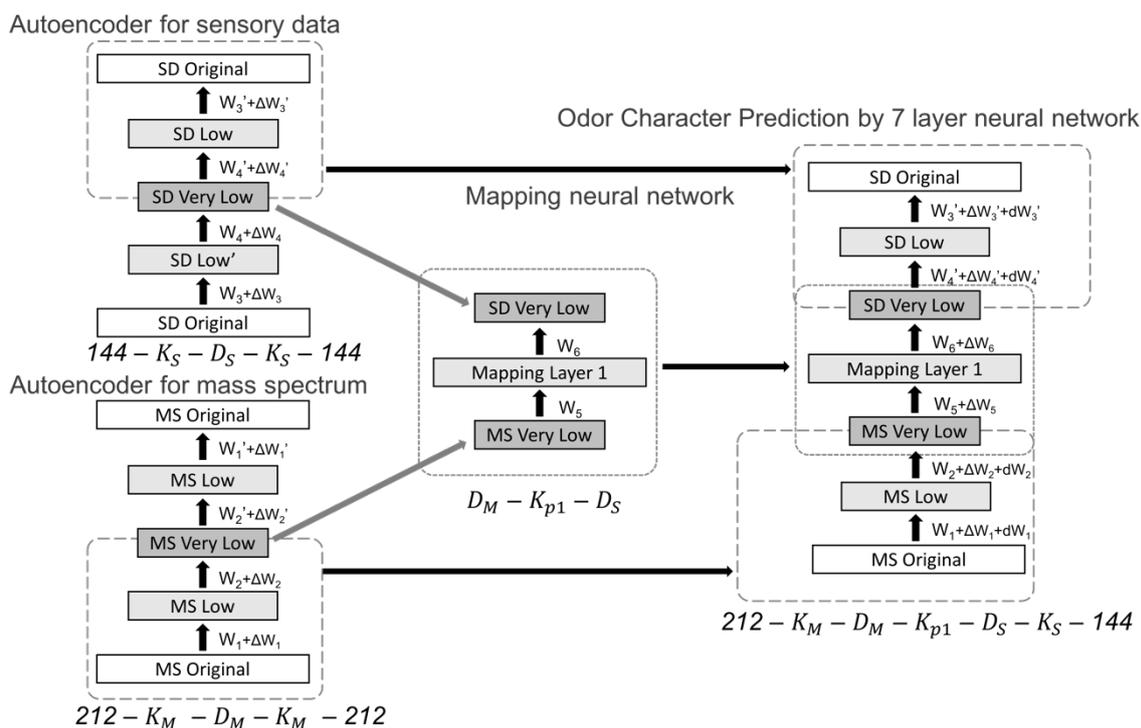


図 6-1 7層ニューラルネットワークによる匂い印象予測モデル

6.3. 実験条件

6.3.1. 使用したデータ

三章における実験と同様、Dravnieks の官能検査結果データで報告される 144 種類の単一分子物質と、NIST のデータベースで利用可能なマススペクトルの積集合である 121 種類の匂い物質を使用した。本実験においてもマススペクトルのデータセット全体にオフセットとして微小な値(0.0001)を足し合わせている。

- ・マススペクトルデータセットに占める小さなピークの割合

本章における実験では官能検査データで用いられた 121 種類の匂い物質のマススペクトルを用いたが、これらのマススペクトルに含まれる小信号の割合が五章で使用したものよりも少ない場合には板倉斎藤距離を用いたオートエンコーダの特性が十分に発揮できないことが懸念される。本章で用いるデータセットと五章で用いたデータセットに含まれるダイナミックレンジ下位 3% のピークの割合を比較する(図 6-2)。2 つのデータセットに含まれる小信号の割合はそれぞれ 76.3% 及び 69.2% であり、官能検査に用いられた匂い物質のマススペクトルのセットに含まれる小信号の割合は五章で用いたデータセットにおける割合よりも高い。

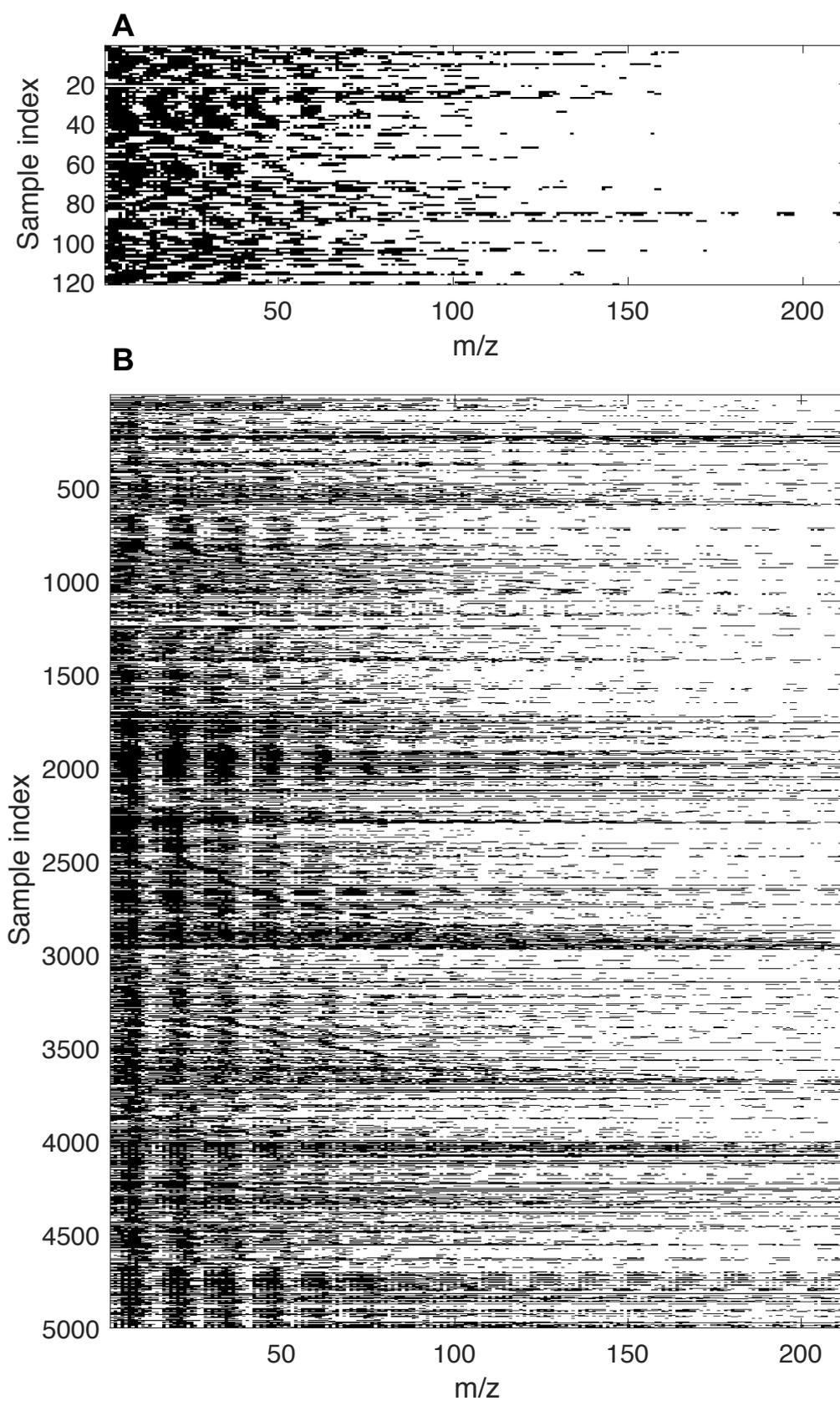


図 6-2 マススペクトルに含まれる小信号の割合
 図中が白点はダイナミックレンジ下位 3%に含まれる小信号、黒点はそれ以上の信号成分を示す
 (A)本章で用いる 121 の匂い物質のマススペクトル (B)五章で用いた 5000 の単一分子物質

・マススペクトルデータセットの各 m/z ピークの分散

本章の実験においてモデルの訓練に使用したサンプル数は 120 種類であり、五章で用いた 3000 種類よりもはるかに少ない。したがってマススペクトルの小さなピークを学習するための十分なサンプル数が訓練セットに含まれていない可能性がある。六章の実験で使用した訓練データ 121 サンプルの m/z 毎の標準偏差及び五章の実験で使用したマススペクトル 5000 サンプルの m/z 毎の標準偏差を図 6-3 に示す。同図より高 m/z 領域の一部のピーク(例えば 230 m/z 付近)においてサンプル間の標準偏差が極めて小さく、こうした領域のピークを特徴ベクトルに反映することが出来ていない可能性が考えられる。

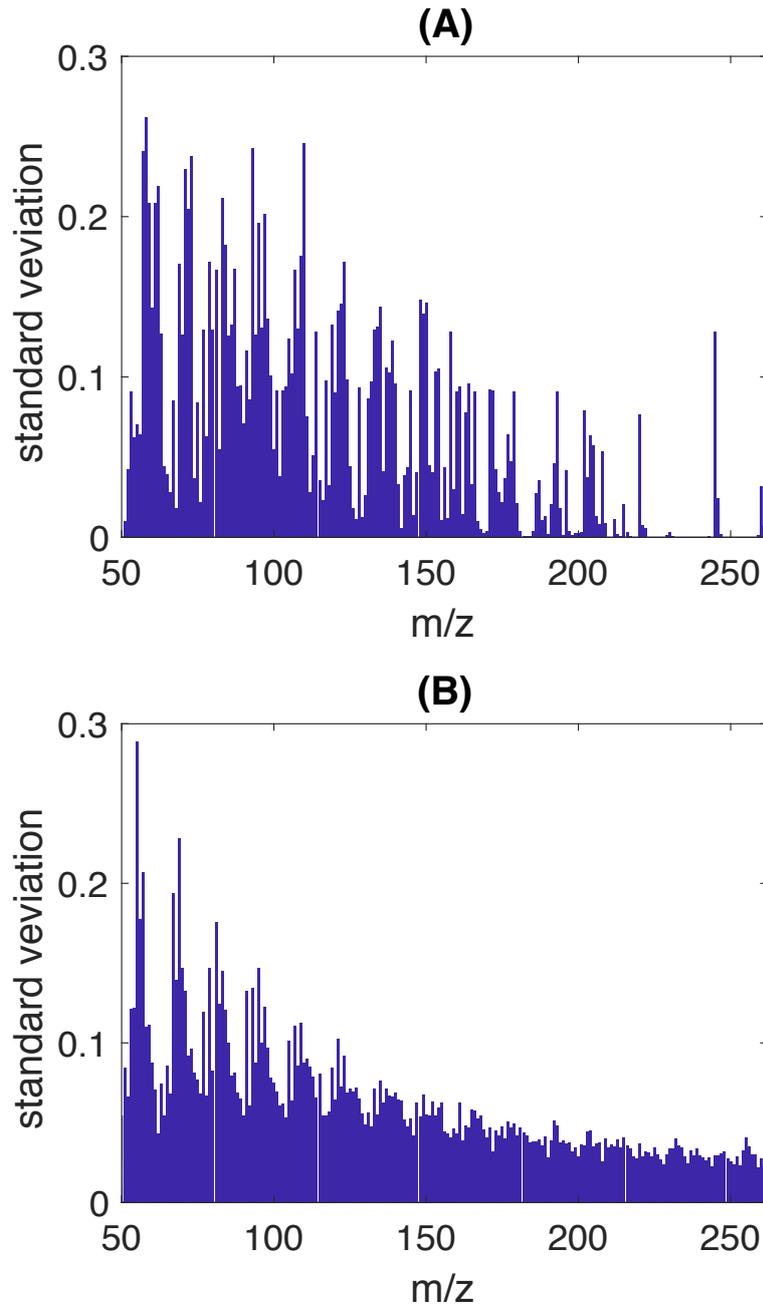


図 6-3 訓練セットに含まれるサンプルの m/z 毎の分散
(A)六章の実験で使用した 121 サンプル(B)五章の実験で使用した 5000 サンプル

6.3.2. 比較するモデルと評価方法

マスペクトルの次元圧縮に用いるオートエンコーダ(図 6-1 左下)の距離関数として(a)板倉斎藤距離(式 5-3) と(b)交差エントロピー誤差(式 5-2)を使用した場合の7層ニューラルネットワーク匂い印象予測モデルを比較する。三章ではマスペクトルの次元圧縮には二乗和誤差を用いたが、五章における実験結果においてより優れた結果を残した交差エントロピー誤差を比較対象に用いる。

マスペクトルを次元圧縮するためのオートエンコーダに異なる距離関数を用いる点及び後の 6.4 で報告する各種ハイパーパラメータを除いては2つの予測モデルは同一の実装である。すなわち、官能試験結果に対して用いるオートエンコーダで及び(図 6-1 左上)特徴量間を写像する多層パーセプトロン(図 6-1 中央)には三章における実験と同様に二乗和誤差を用いる。

表 3-1 にあげた 121 種類のサンプルに対して Leave-one-out 法によりモデルの汎化性能を比較する。重みの更新は式 5-15 及び式 5-18 に基づく。予測性能の評価指標にはモデルの出力ベクトル $f(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b})$ と教師信号 \mathbf{y} の相関係数(式 3-1)を用いる。

6.4. ハイパーパラメータの探索

本章で使用するモデルの主要なハイパーパラメータの選択も 3.4 で説明した手順に従う。実験で使用する2つの7層ニューラルネットワークの各ハイパーパラメータの探索範囲を表 6-1 に、実験で使用したニューラルネットワークのハイパーパラメータを表 6-2 に示す。

表 6-1 7層ニューラルネットワークのハイパーパラメータの組み合わせ

パラメータ	範囲	刻み
K_M	20 - 80	5
D_M	20 - 50	5
K_S	20 - 80	5
D_S	20 - 50	5
η_M	0.05 - 0.5 $\times 0.99^t$	0.05
η_S	0.05 - 0.5 $\times 0.99^t$	0.05
η_p	0.05 - 0.5 $\times 0.99^t$	0.05
α_M	0.01 - 0.1	0.01
α_S	0.05 - 0.5	0.01
α_p	0.05 - 0.5	0.01
λ_M	$10^{-7} - 10^{-2}$ L2-Norm	$\times 20$
λ_S	$10^{-7} - 10^{-2}$ L2-Norm	$\times 20$
λ_p	$10^{-7} - 10^{-2}$ L2-Norm	$\times 20$

表 6-2 7層ニューラルネットワークのハイパーパラメータ

パラメータ	(a)板倉斎藤距離モデル	(b)交差エントロピー誤差モデル
K_M	60	85
D_M	50	45
K_{p1}	30	40
D_S	40	40
K_S	45	45
η_M	0.35×0.99^t	0.25×0.99^t
η_S	0.075×0.99^t	0.075×0.99^t
η_p	0.4×0.99^t	0.3×0.99^t
α_M	0.06	0.04
α_S	0.15	0.15
α_p	0.25	0.25
λ_M	$2.5 \times 10^{-6}, L1$	$2.5 \times 10^{-6}, L1$
λ_S	$3 \times 10^{-6}, L1$	$3 \times 10^{-6}, L1$
λ_p	$4 \times 10^{-7}, L2$	$4 \times 10^{-7}, L2$
# epochs in MS autoencoder training	500,000	500,000
# epochs in SD autoencoder training	400,000	400,000
# epochs in Mapping network training	300,000	300,000
# epochs in fine tuning	500	500

6.5. 実験結果

6.5.1. 2つのオートエンコーダによるマスペクトルの次元圧縮

訓練セットに含まれるサンプル数を変化させた際の、マスペクトルの次元圧縮に用いた2つの距離尺度に従うオートエンコーダの出力—教師信号間の相関係数及び出力教師信号の対数変換後の相関係数を図 6-4 に示す。同図より訓練セットに含まれるサンプル数が 115 を超えたほどから2つのオートエンコーダの相関係数は同程度、また対数変換後の出力と教師信号に対する相関係数は板倉齋藤距離を用いたオートエンコーダがより高い相関係数となることが実験結果より示された。

訓練セットに含まれるサンプル数が最大(120 種類)となる Leave-One-Out 法において、対数変換後の出力と教師信号に対する相関係数は板倉齋藤距離を用いたオートエンコーダが優れた性能を出すようになるが、その数字は五章で見られたほどではないことがわかる(表 5-4 参照)。

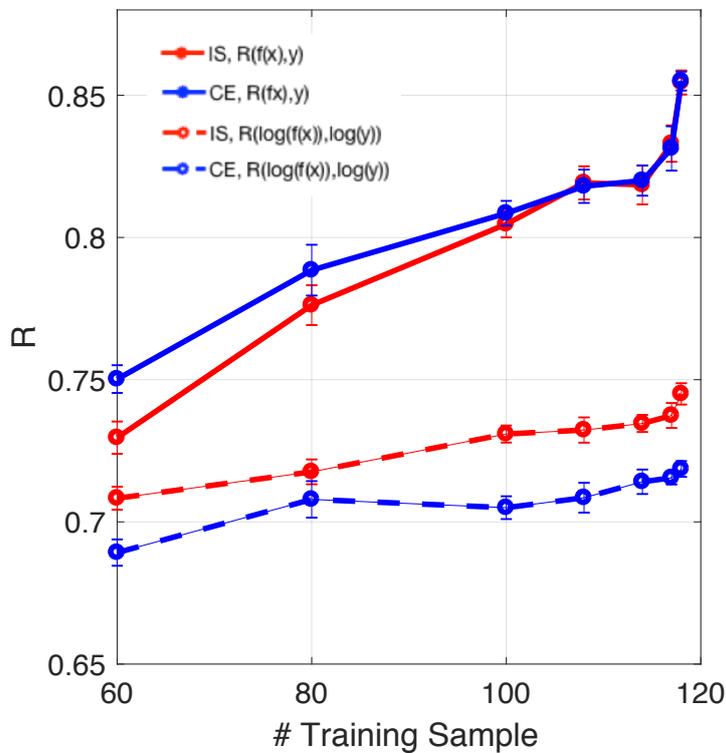


図 6-4 訓練セットに含まれるサンプル数に対する相関係数

また訓練後のマスペクトルの次元圧縮に用いられたオートエンコーダの出力—教師信号間の相対誤差を表 6-3 に示す。板倉齋藤距離を用いたオートエンコーダはダイナミックレンジの下位 3%の信号に対する平均相対誤差は交差エントロピー誤差を用いた場合よりも少ないことがわかる。

表 6-3 2つのオートエンコーダの出力-教師信号間の平均相対誤差

距離関数	平均相対誤差 (3%以上)	平均相対誤差 (3%未満)	平均相対誤差 (全信号)
交差エントロピー誤差	65.50	180.66	176.40
板倉齋藤距離	70.66	163.38	155.03

6.5.2. 7層ニューラルネットワークを用いた匂い印象予測モデルの性能比較

ネットワークの重みベクトル及びバイアスの初期値を変化させて500回の計算機実験を行った。初期値の生成には前層のニューロン数を n として $1/\sqrt{n}$ の標準偏差から生成するXavierの初期値を用いた[82]。500回の実験結果から計算した2つの予測モデルの相関係数の中央値と標準偏差及び有意確率を表6-4に示す。

表 6-4 2つの予測モデルの相関係数の中央値と標準偏差及び有意確率

モデル	相関係数の中央値 (mean)	標準偏差 (standard deviation)	p 値 (対応無し t 検定)
(a): 板倉斎藤距離 (IS)	0.741	0.012	—
(b): 交差エントロピー誤差 (CE)	0.738	0.010	7.6e-04

図 6-5 に 500 回の実験における 2 つの 7 層ニューラルネットワークモデルの出力 $f(\mathbf{x}; \mathbf{w}, \mathbf{b})$ と教師信号 \mathbf{y} の相関係数をヒストグラムで表したものの、また図 6-6 に同結果を箱ひげ図として表したものを示す。同図より、板倉斎藤距離を用いたオートエンコーダを用いることで予測モデルの性能が改善されることがわかる。

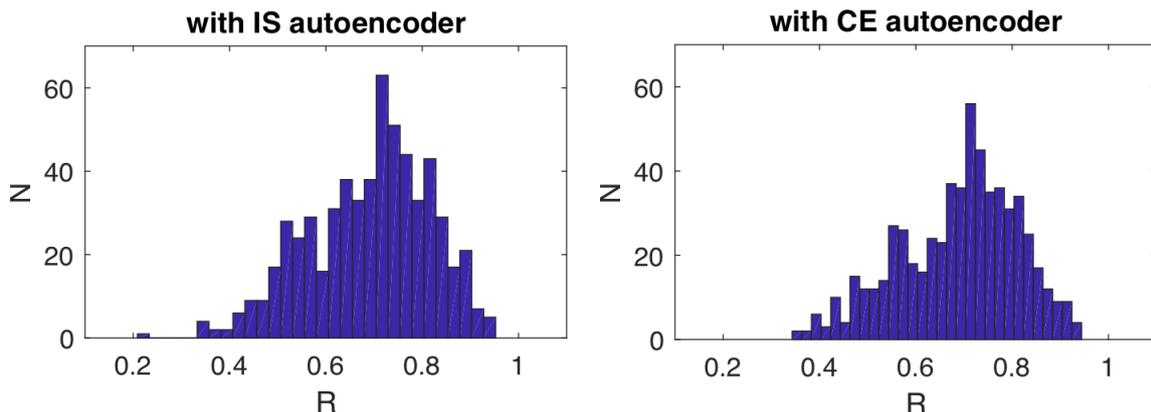


図 6-5 2つの予測モデルの出力-教師信号間の相関係数のヒストグラム
(左)板倉斎藤距離を用いたオートエンコーダによりマスメクトルの次元圧縮を行った7層ニューラルネットワーク(右)交差エントロピー誤差を用いたオートエンコーダを使用した場合

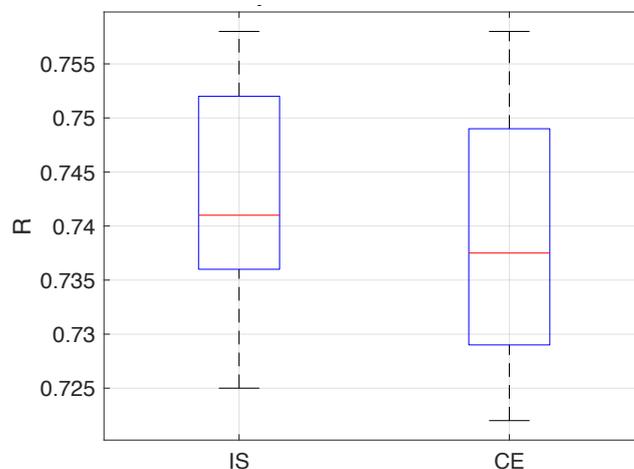


図 6-6 2つの予測モデルの出力-教師信号間の相関係数の箱ひげ図

また(a)のモデルにおいて、初期値を変更した 500 回の繰り返し実験におけるサンプル毎の相関係数の平均値を図 6-7 及び表 6-5 にまとめる。

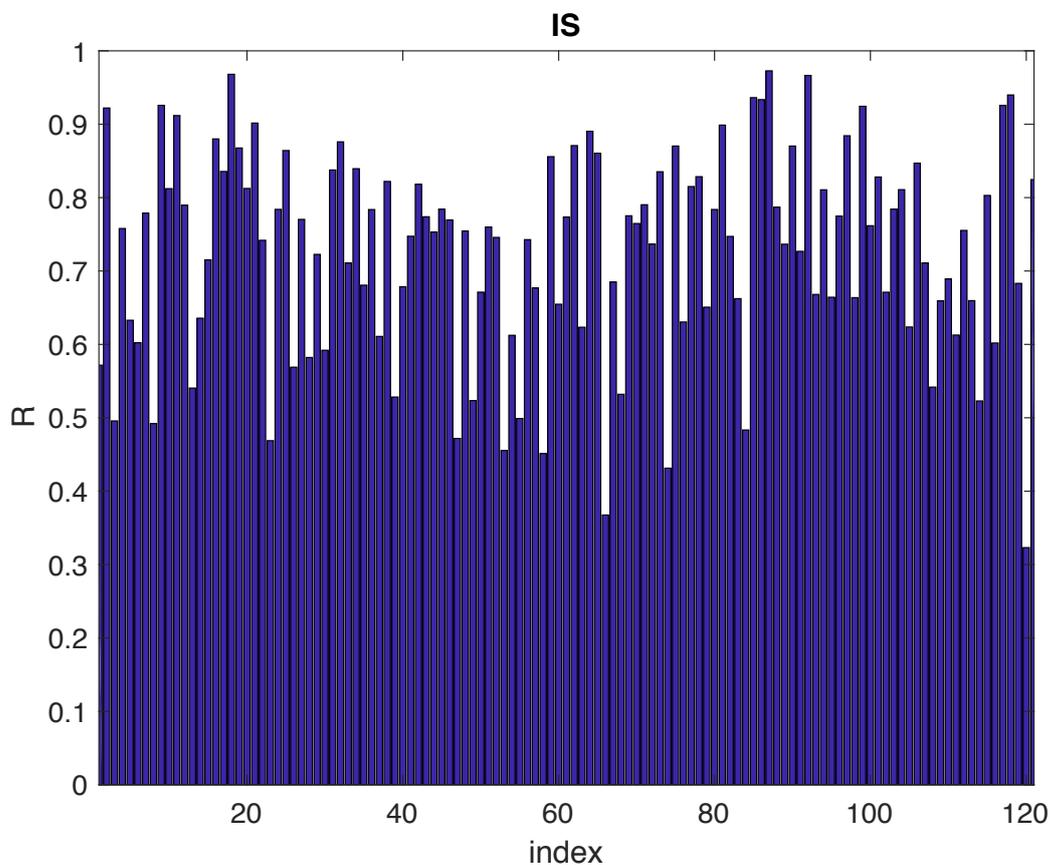


図 6-7 サンプル毎の出力-教師信号間相関係数

表 6-5 サンプル毎の出力-教師信号間相関係数

Sample index	R	Sample index	R	Sample index	R
1	0.572	42	0.818	82	0.747
2	0.922	43	0.774	83	0.662
3	0.496	44	0.753	84	0.483
4	0.758	45	0.784	85	0.936
5	0.633	46	0.770	86	0.934
6	0.602	47	0.472	87	0.973
7	0.779	48	0.755	88	0.787
8	0.492	49	0.523	89	0.737
9	0.926	50	0.671	90	0.870
10	0.812	51	0.760	91	0.727
11	0.912	52	0.746	92	0.966
12	0.790	53	0.455	93	0.668
13	0.540	54	0.612	94	0.811
14	0.636	55	0.499	95	0.664
15	0.715	56	0.743	96	0.775

16	0.880	57	0.677	97	0.884
17	0.836	58	0.451	98	0.664
18	0.968	59	0.856	99	0.924
19	0.868	60	0.655	100	0.762
20	0.813	61	0.774	101	0.828
21	0.902	62	0.871	102	0.671
22	0.742	63	0.623	103	0.784
23	0.469	64	0.890	104	0.811
24	0.784	65	0.860	105	0.624
25	0.864	66	0.368	106	0.847
26	0.569	67	0.685	107	0.711
27	0.770	68	0.532	108	0.542
28	0.582	69	0.775	109	0.659
29	0.723	70	0.765	110	0.689
30	0.592	71	0.790	111	0.613
31	0.838	72	0.737	112	0.755
32	0.876	73	0.835	113	0.660
33	0.711	74	0.431	114	0.523
34	0.839	75	0.870	115	0.803
35	0.681	76	0.631	116	0.602
36	0.784	77	0.815	117	0.926
37	0.611	78	0.829	118	0.940
38	0.822	79	0.651	119	0.683
39	0.528	80	0.784	120	0.323
40	0.679	81	0.899	121	0.825
41	0.747				

6.6. 考察

本章の考察においては、7層ニューラルネットワーク印象予測モデルのマススペクトルの次元圧縮に2種類のオートエンコーダを用いた際の差異について検討する。図6-8は六章の実験で比較した2つの予測モデルにおける各サンプルの予測結果(図6-8上:板倉齋藤距離を採用したモデル、中央:交差エントロピー誤差を採用したモデル)とモデル間の差異(図6-8下:2つのモデルの平均相関係数の差)を示す。同図より板倉齋藤距離を用いることで予測性能が向上したサンプル及び低下したサンプルがあることが確認された。板倉齋藤距離を用いたオートエンコーダでは小さなピークを重視した特徴量に変換しているため、図6-8(下)に示す結果は各サンプルが持つ匂い印象の、小さなピークへの依存度の違いであると言える。

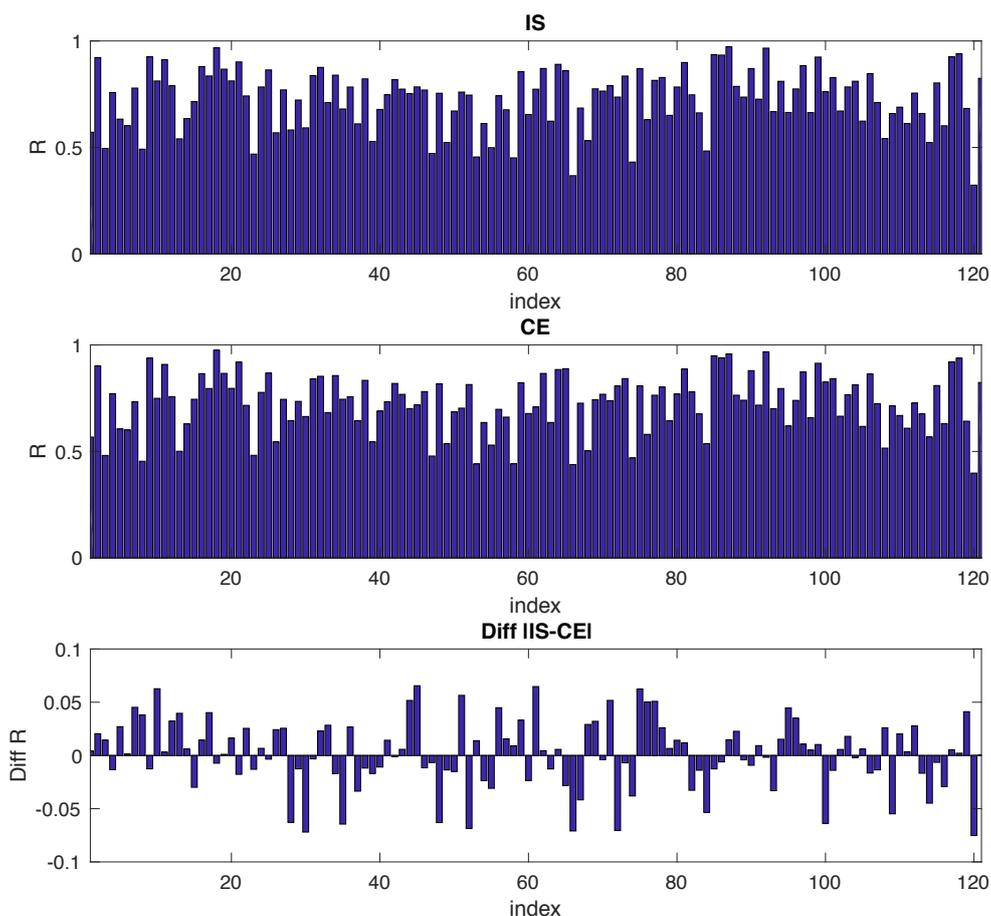


図6-8 2つの予測モデルにおける各サンプルの予測結果(相関係数)とモデル間の差異

板倉齋藤距離に基づくオートエンコーダを印象予測モデルが交差エントロピー誤差を用いたモデルと比較して予測性能が最も大きく向上したサンプルとして、以下表6-6にあげる4つの単一分子物質について更に考察する。これらのサンプルのマススペクトルを図6-8から図6-11に示す。

表6-6 板倉齋藤距離オートエンコーダにより予測性能が向上した4つのサンプル

Index	CAS Number	Name of Odorant Chemical
45	10094345	Dimethyl Benzyl Carbinylyl Butyrate
71	120729	Indole
77	93049	Methoxy-Naphthalene: 2-Methoxy Naphthalene
95	536743	Phenyl Acetylene

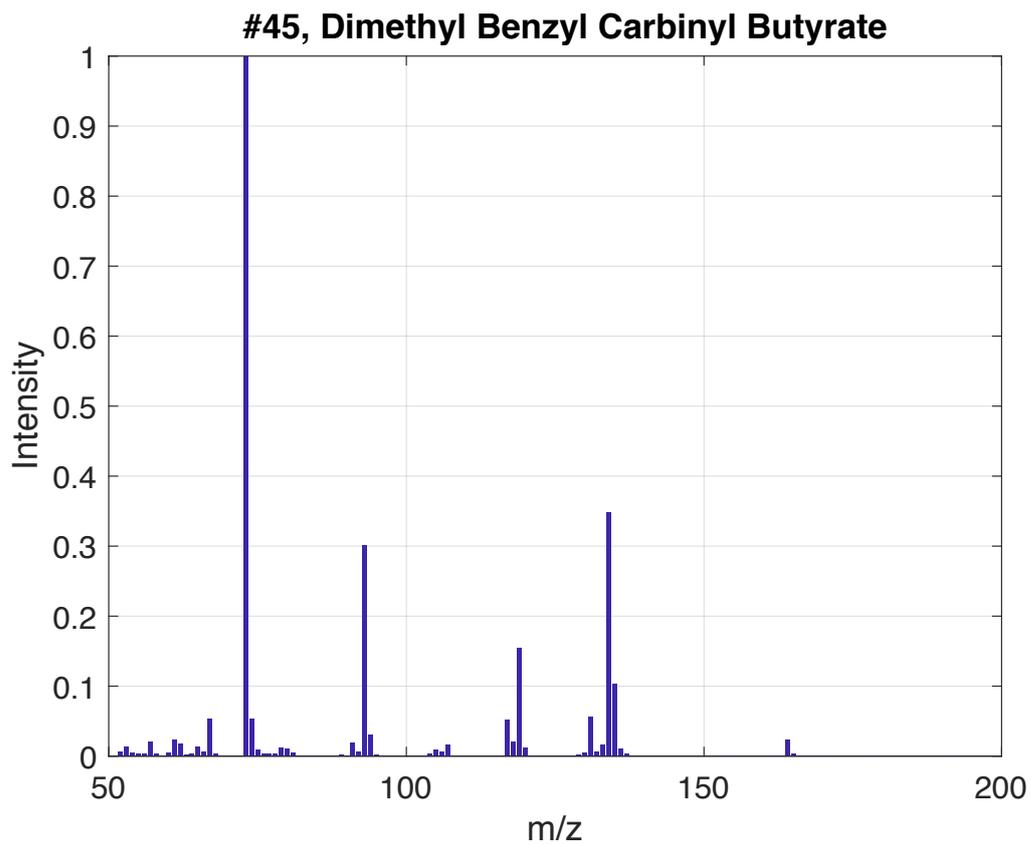


図 6-8 Dimethyl Benzyl Carbonyl Butyrate のマススペクトル

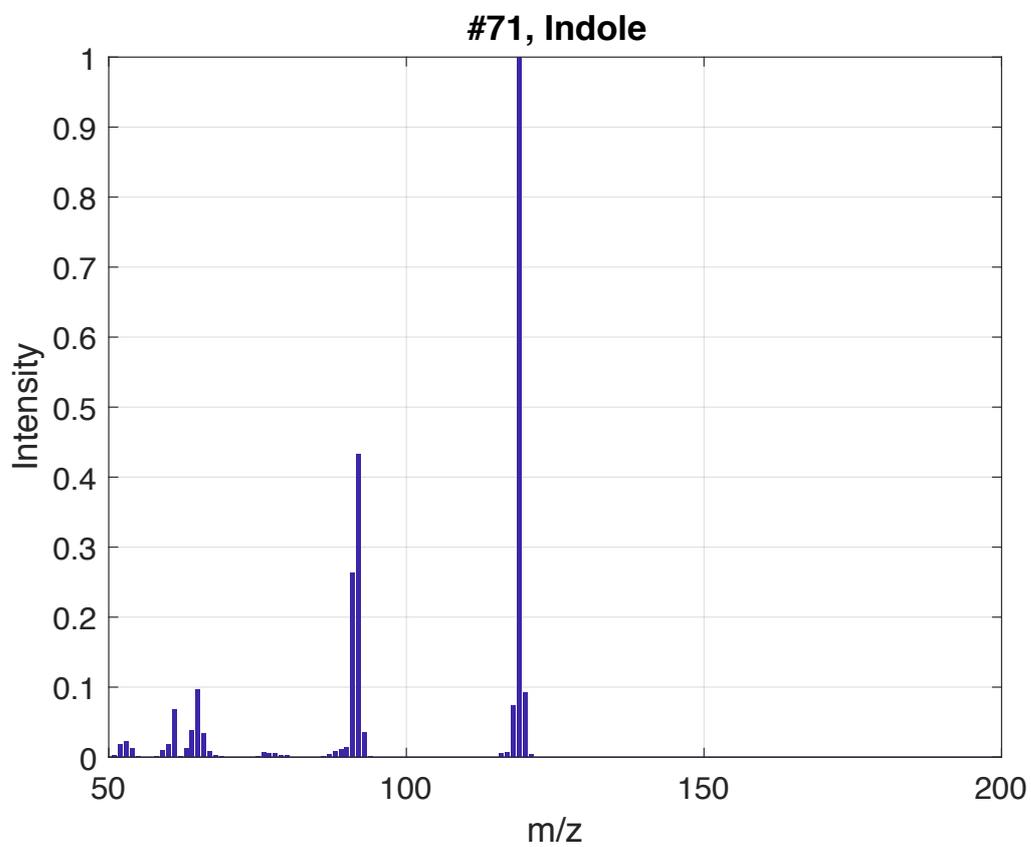


図 6-9 Indole のマススペクトル

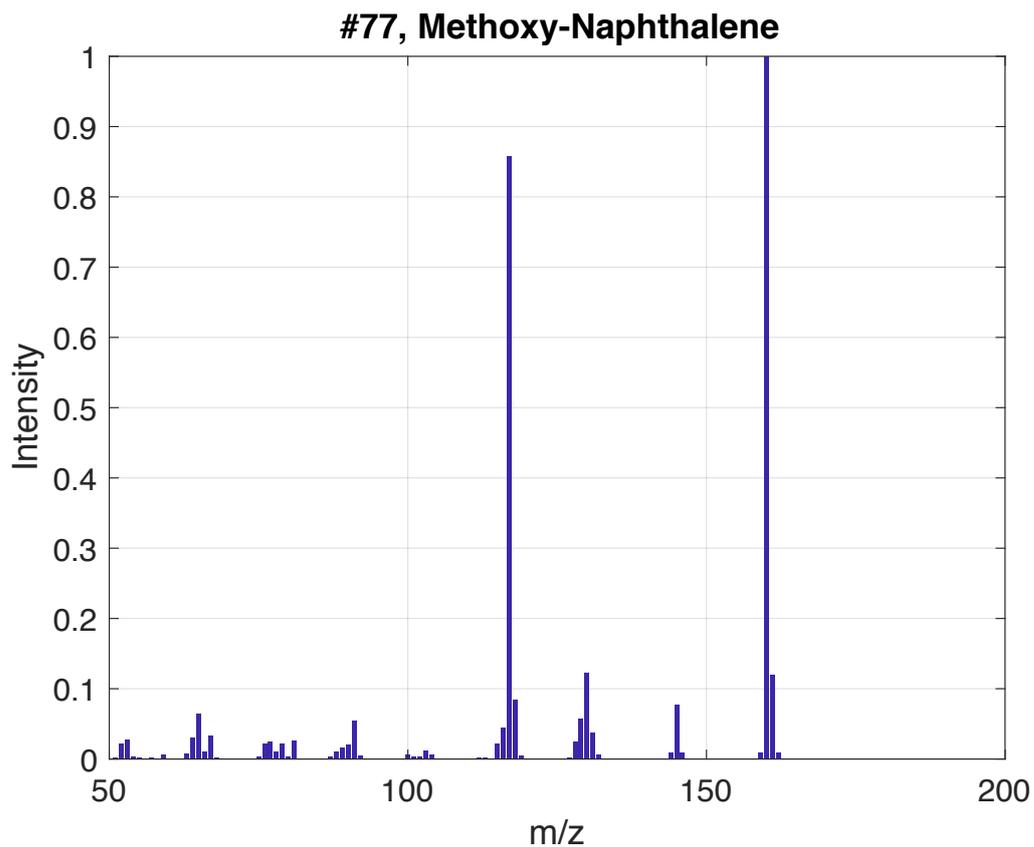


図 6-10 Methoxy-Naphthalene のマススペクトル

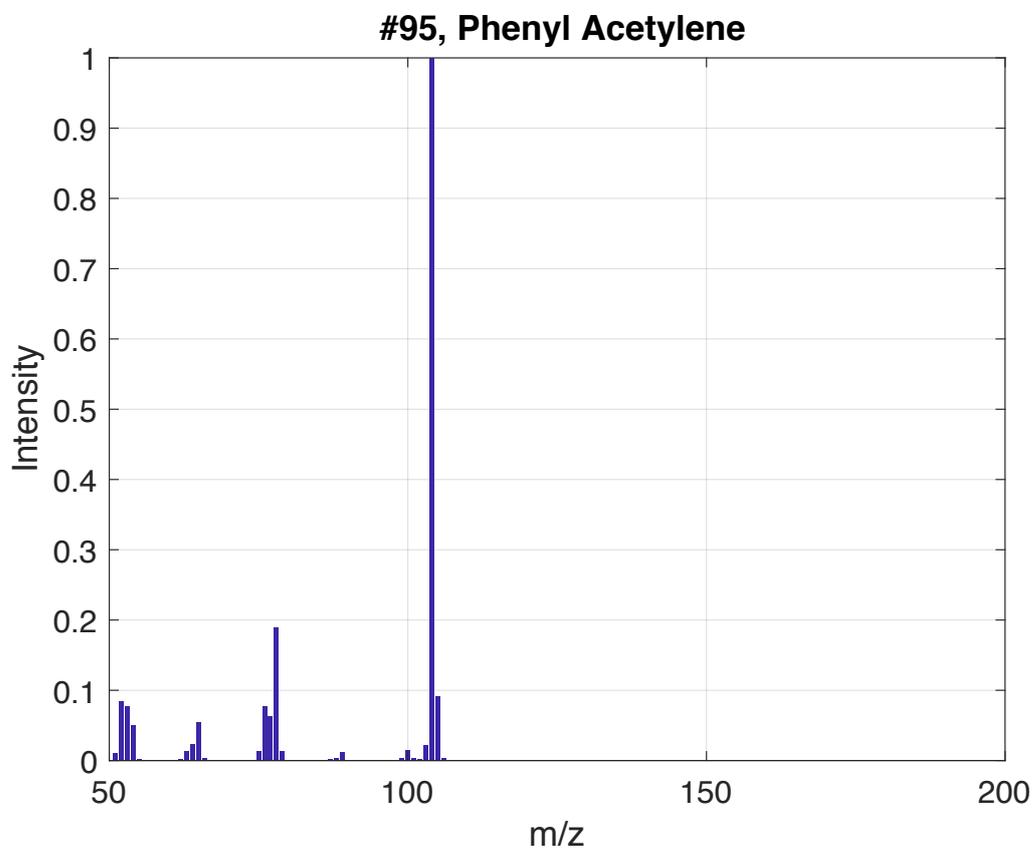


図 6-11 Phenyl Acetylene のマススペクトル

これらの4種類のサンプルに対する2つの印象予測モデルの出力と、実際の官能検査データの差異を主成分分析により第1から第3主成分空間上にプロットすることで確認する。マススペクトル主成分空間における4種類のサンプルの分布は図6-12に示す通りである。同図に示される通り、これらの4つのサンプルはマススペクトル主成分空間では近傍同士である。この現象は図6-3に示した通り、高 m/z 領域のピークはデータセット内での分散が少ないため、主成分スコアへの寄与が小さくなることに由来すると考えることができる。この結果は従来までのPCAを主体とした線形手法に比べ、本研究で提案する手法がより望ましいことを示唆している。

これらのサンプルの官能検査データ、及び2つのモデルの予測出力の官能検査(匂い印象)主成分空間における分布を図6-13に示す。板倉斎藤距離を用いた予測モデルは、交差エントロピー誤差を用いた予測モデルでは誤差の大きかったサンプルの匂い印象主成分をより正確に予測できている。板倉斎藤距離を用いたオートエンコーダでは分散の大きな低 m/z 領域のピークに影響されず、100 m/z 以上の高 m/z 領域のピークを元にサンプルの匂い印象を予測できていることがわかる。

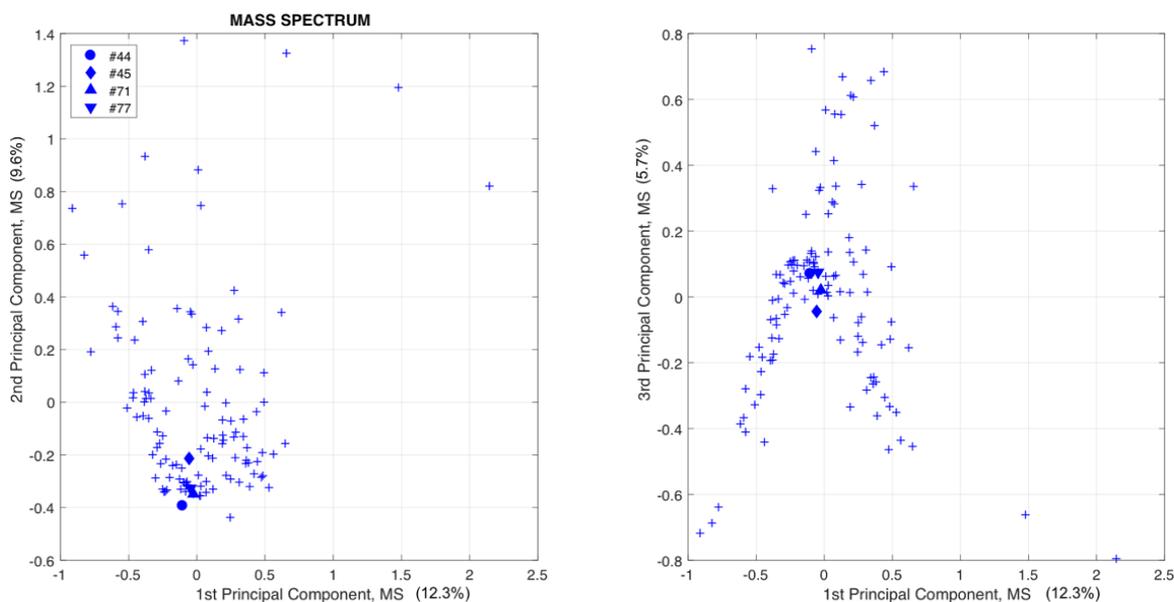


図 6-12 板倉斎藤距離により予測性能が向上したサンプルのマススペクトル主成分空間上での分布 (左)第1及び第2主成分空間上での分布(右)第1及び第3主成分空間上での分布

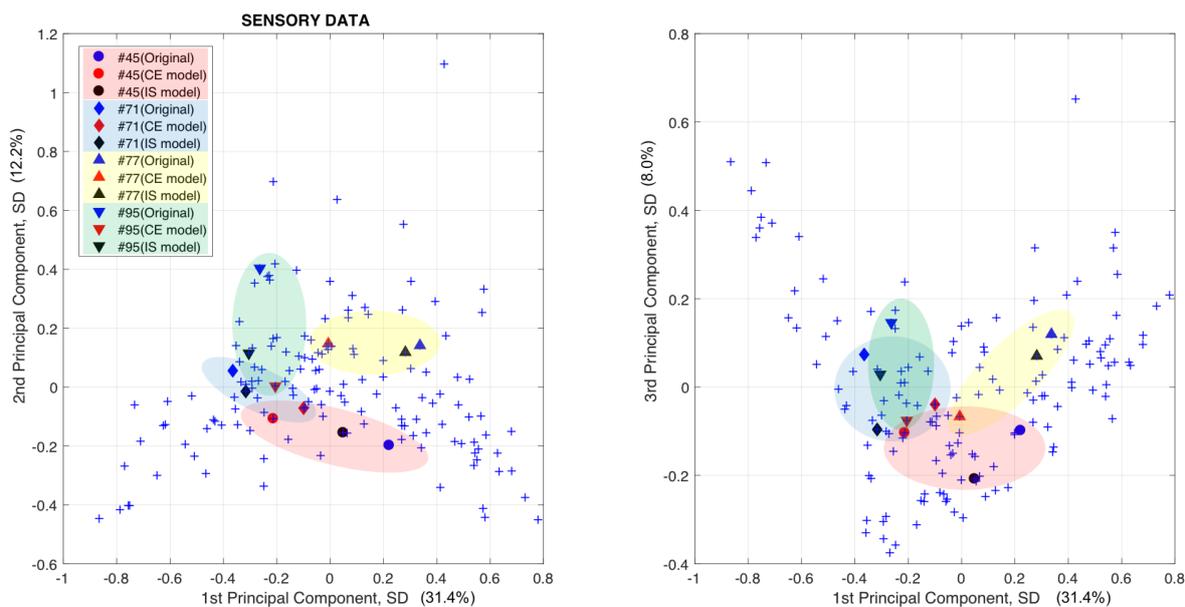


図 6-13 同サンプル群の官能検査(匂い印象)主成分空間上での分布

また交差エントロピー誤差に基づくオートエンコーダを用いた予測モデルが板倉斎藤距離を用いたモデルよりも特に相関係数が高いサンプル4種を以下表 6-7 に、サンプルのマススペクトルを図 6-14 から図 6-17 に挙げる。同図より交差エントロピー誤差で予測精度が改善されたサンプルの特筆すべき特徴として、 m/z が 100~150 の領域において大きなピークを持たず、交差エントロピー誤差による予測モデルが低 m/z ピークを重視していることがわかる、板倉斎藤距離を用いたオートエンコーダによる性能の改善が高 m/z 領域のピークに起因していることを示唆している。

表 6-7 交差エントロピー誤差オートエンコーダにより予測性能が向上した4つのサンプル

Index	CAS Number	Name of Odorant Chemical
3	623300	Hexanol: 3-Hexanol
67	6728263	Hexenal: trans-2-Hexenal
74	138863	Limonene: d-Limonene
114	75503	Trimethyl Amine

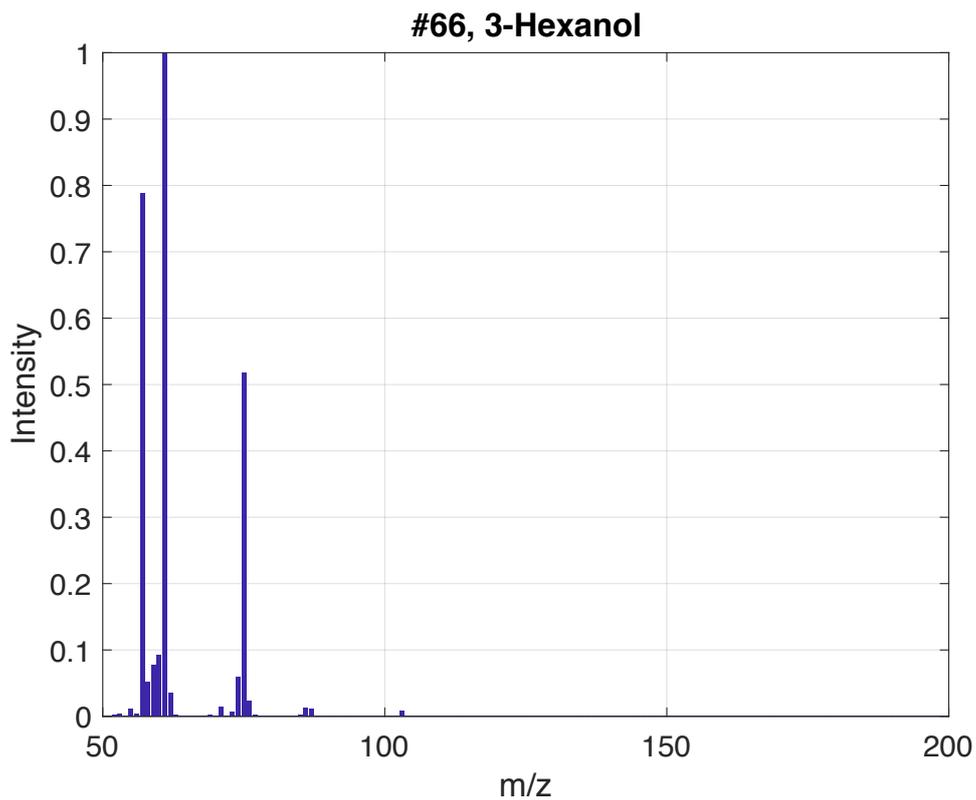


図 6-14 3-Hexanol のマススペクトル

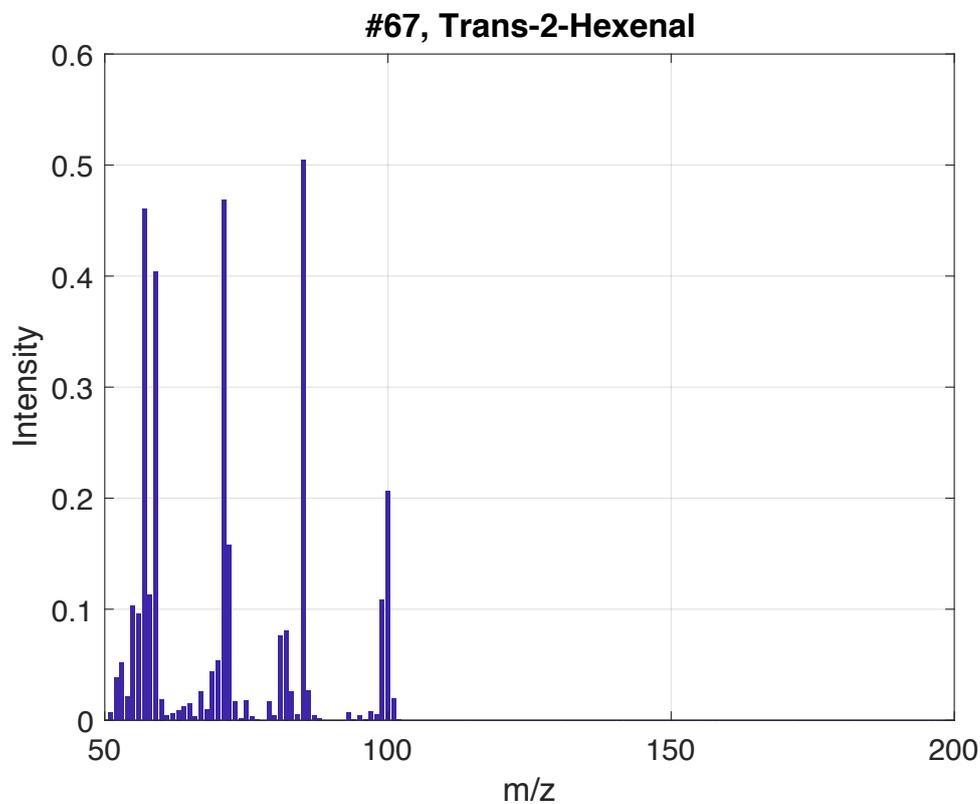


図 6-15 Trans-2-Hexenal のマススペクトル

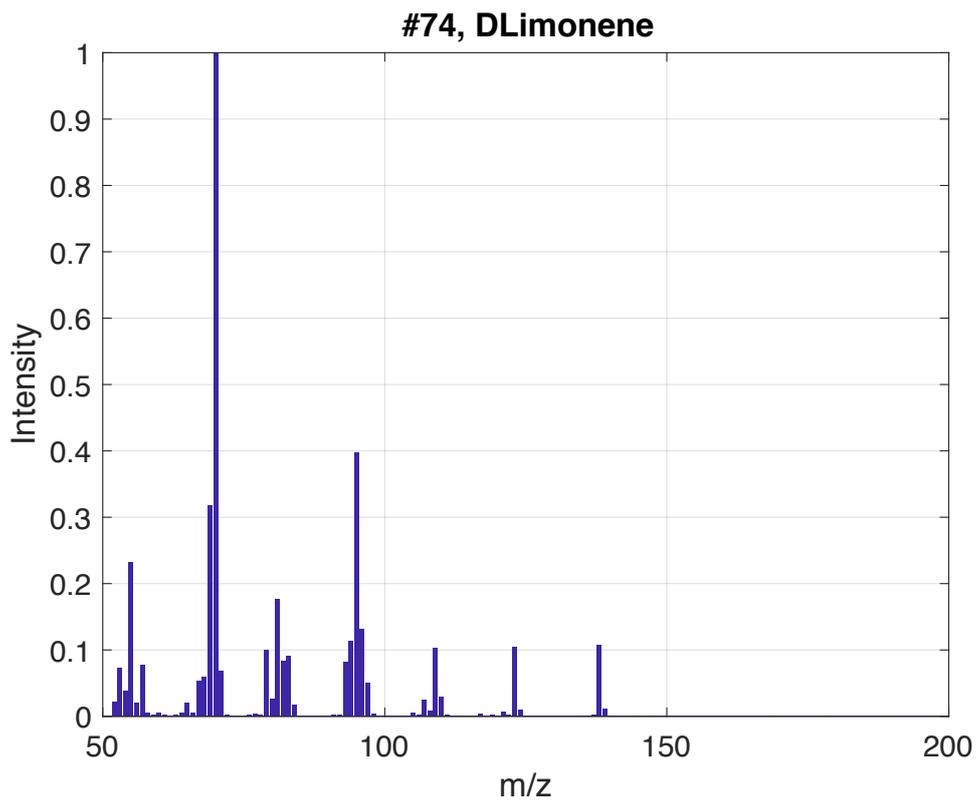


図 6-16 D Limonene のマススペクトル

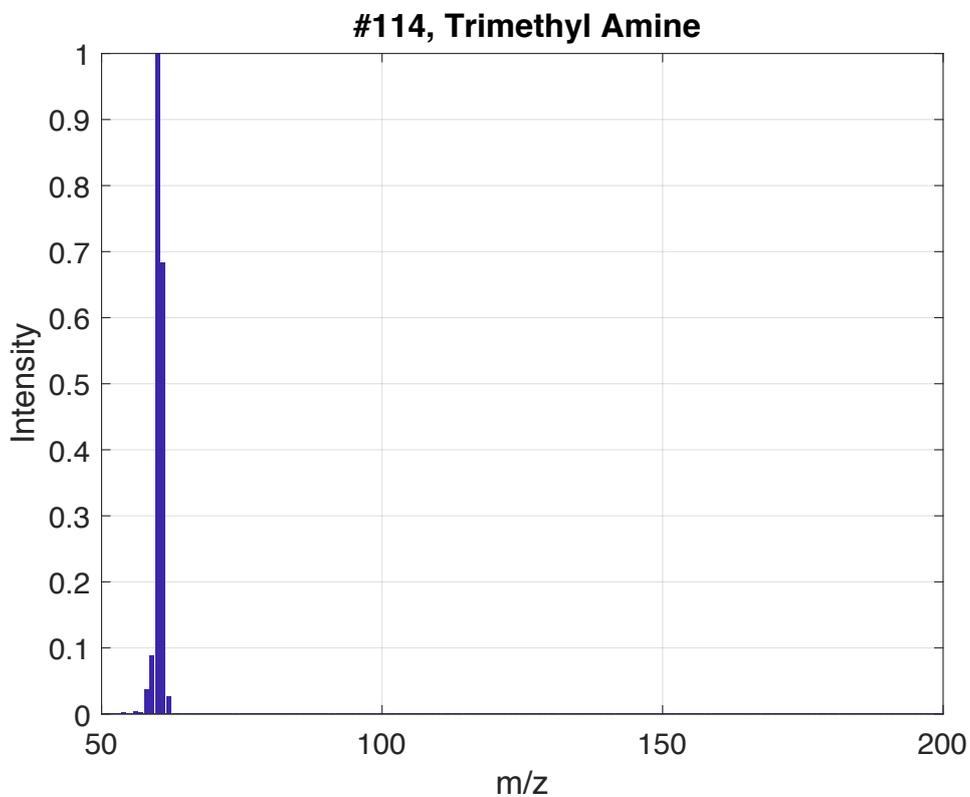


図 6-17 Trimethyl Amine のマススペクトル

6.7. まとめと今後の課題

第六章では五章で紹介した板倉斎藤距離を利用したオートエンコーダと、三章で紹介した2つの深層オートエンコーダを用いた深層ニューラルネットワークを組み合わせた予測モデルを提案した。深層ニューラルネットワークモデルではネットワークの最初の三層を用いてオートエンコーダを用いて入力であるマススペクトルを特徴ベクトルに変換するが、この誤差関数に板倉斎藤距離を用いることで、マススペクトル中の小さなピークを反映した特徴量を取り出すことができる。本章で提案する板倉斎藤距離を用いた7層ニューラルネットワークの出力—教師信号間の相関係数は交差エントロピー誤差を用いたニューラルネットワークと比べて有意に改善された。

板倉斎藤距離を用いたオートエンコーダにより予測性能が改善されたサンプルのマススペクトルには100m/zから150m/zの領域にピークを含む場合が多く見られる(図6-8から図6-11)。板倉斎藤距離を用いた匂い印象予測モデルは、高m/z領域の嗅覚域値の低いピークが匂いの印象に影響を強く与えているという人間の特性を反映している。しかし、実験で用いたサンプル群は高m/z領域に大きなピークを持っているものであることから、小さなピークの匂い印象への寄与の度合いを調べるにはさらなる検証を要する。

またマススペクトルのデータセットは低m/z領域のピークにおいて分散が多く高m/z領域のピークの分散が少ないため、主成分分析でこれらのピークを分離することは容易ではないが、板倉斎藤距離を用いたモデルはマススペクトル主成分空間中で近傍同士となるサンプルの匂い印象を交差エントロピー誤差を用いた場合よりも正確に予測することができた(図6-12及び6-13)。

同モデルは訓練に使用するサンプル数の増加または少ない訓練サンプルでより良い特徴量表現を学習するための手法の採用により予測精度が改善する余地を十分に残している。五章における小さなピークの予測性能を比較した実験(表5-5と表6-3)を比較すると、第六章におけるマススペクトルのオートエンコーダの相対誤差は五章におけるオートエンコーダよりもはるかに大きくなっている。また訓練セットに含まれるサンプル数を変化させた際のオートエンコーダの出力—教師信号間の対数変換後の相関係数は図6-4に示される通りであるが、これも五章における実験ほどの精度改善には繋がっていない。条件の揃えられた官能検査データを大規模に集めることは難しいことを考慮すれば、少ない訓練サンプルでより良い特徴量表現を学習できるような手法の採用を検討する必要があると考えられる。

第七章

7. 結論

生物にとって、嗅覚は生命の維持や種の存続に関わる重要な役割を持つ。我々の社会においては匂いの性質は、食品や工業製品の嗜好や安全性、空気や水の品質に関わる重要な感覚的特性である。

ヒトは嗅覚受容体によって空気中を伝わる匂い物質を捉える。鼻孔より吸入された匂い物質は嗅細胞を刺激し電気信号となり、発生した電気信号のパターンは嗅球へと伝達され、嗅神経を介して情動や記憶・自律神経に関与する大脳辺縁系で処理される。こうしてヒトは知覚した匂いを言語を用いて表現することができる。ある物質の匂いを嗅いだ時の印象は個人の経験や背景によって異なる主観的なものであるが、官能検査では訓練された複数の人間を用いて匂いをより客観的に表現する。哺乳類の嗅覚受容体はG蛋白質共役型受容体に属する7回膜貫通型の蛋白質であり、個々の嗅覚受容体は疎水的相互作用により分子の形や大きさを認識する。ヒトが匂い物質毎に異なる匂いを知覚するのは、嗅上皮に備わる嗅覚受容体が分子の形や大きさに対して選択的に反応するためである。人間が感じるすることができるすべての匂い分子に、それぞれ特有の受容体活性化パターンがあり、匂いの質は反応した嗅覚受容体の種類と反応強度の両方の情報により決定される。

嗅覚受容体の機能解明は進んでいるが、それぞれの嗅覚受容体細胞(ORN)についてこの世の全ての化学物質に対する応答を取得することは不可能に近く、現在では昆虫のORNについても限られた匂い物質に対する応答データしか得られていない。匂い物質の構造的特徴が匂いの性質に影響を与えていると考えられているものの、その構造的特徴から匂いの性質を判断する手法はほとんど報告されていない。本研究の目的は構造的特徴を示すデータであるマススペクトルから、その物質の匂いの印象を予測するモデルの検討にある。

匂い印象をデータ化するには官能検査が用いられる。官能検査は大きく分けて分析型官能検査と嗜好型官能検査の2種類が存在する。嗜好型官能検査は品物を使って人間の特性を知ろうとする官能検査であり、本研究では嗜好型官能検査により集められた2種類のデータを用いた。これらの官能検査は採点法に基づいて行われたものである。

マススペクトルは質量分析器によって得られる分子に特有のパターンであり、これに含まれる同位体ピークやフラグメントピークは分子構造に関する有用な情報を表している。線形重ね合わせにより混合物を表現することができるマススペクトルの性質は、他の分子構造パラメータにはない応用上のメリットとなる。マススペクトルには広いダイナミックレンジのピークが

含まれるが、マススペクトルから匂い物質が人間に与える印象を予測しようと考えた時、ピークの大きさ自体はあてにはならない。マススペクトルに現れるピーク自体はたとえ大きくても無臭分子に基づくものであれば匂いは感じられず、一方で小さなピークであっても強烈な匂いを感じさせる臭気分子も存在するためである。特に分子量(m/z)の大きなピークの元となる匂い分子は、人間の嗅覚閾値が低い分子である場合が多く、こうしたものは例え小さなピークであっても匂いの認識に与える影響は大きい。

本研究では匂い物質のマススペクトルと人間の匂い印象の関係を深層ニューラルネットワークにより予測する手法を提案した。深層学習は多くのパラメータを扱うことが可能であり、人体の脳で行われる匂いの認識に関わる複雑な非線形な情報処理を表現できる手法として先行研究で用いた手法のいずれよりも適したものと判断した。深層学習は近年活発に研究されており、音声認識や画像認識、自然言語の処理では多くの研究成果が報告されているが、匂いの分野においては本日まで殆ど報告されていない。

第三章では Dravnieks の官能検査データに代表される採点法の官能検査結果を9層のニューラルネットワークにより回帰予測するモデルを提案した。提案モデルは2種類のデータを次元圧縮し特徴ベクトルに変換する2つの深層オートエンコーダと特徴ベクトル同士を写像する多層パーセプトロンで構成される。計算機実験の結果、提案モデルは線形手法である PLS や広く用いられるニューラルネットワークに比べ、出力と教師信号間の相関係数及び残差自乗和の比較において有意に高い性能を示した。

第四章では Sigma-Aldrich 社のカタログデータを使用して、0 または 1 の 2 値で表される官能検査の結果をマススペクトルから分類する手法として、Word2vec による言語モデリングを取り入れた予測モデルを提案した。提案モデルでは 150 の記述子を、類似性を元にした 6 つのクラスタに分けることで、未知の物質の匂い印象を True Positive 71% True Negative 91% の予精度で予測可能であった。

第五章ではマススペクトルに含まれる嗅覚閾値の低い高 m/z 領域の小さなピークを近似するための、板倉斎藤距離を誤差関数に用いたオートエンコーダを提案した。提案するオートエンコーダは対数変換後の出力と教師信号の相関係数及び小信号に対する相対誤差を大きく改善することを計算機実験の結果より示した。

第六章では第三章で提案した深層ニューラルネットワークを第五章で提案した板倉斎藤距離を用いたオートエンコーダを組み合わせた7層の深層ニューラルネットワークを提案した。提案した深層ニューラルネットワークは計算機実験において交差エントロピー誤差を用いた場合よりも有意に正確に匂いの印象を予測する(高い相関係数で)ことが可能であり、特に高m/z領域にピークを持つ分子に対する予測結果は交差エントロピー誤差を用いたモデルよりも有意に改善された。

本研究を通して、一部の匂い物質はマススペクトルに含まれる情報のみを用いて極めて正確な匂い印象の予測が可能であることを示した。提案した深層ニューラルネットワークによる予測モデルは過去に行われてきたPCAやPLSなどの線形手法よりも高い相関係数で匂い印象を予測することが可能であった。今後は少ない訓練サンプルでより良い特徴量表現を学習できるような手法を検討するとともに、本研究で用いなかったサンプルの濃度等の情報を用いることでより正確な匂い印象を達成できると考えられる。

8. 謝辞

本研究を進めるにあたり、ご指導を頂いた中本高道教授に感謝致します。
また査読をして頂きました、渡辺澄夫先生、長谷川修先生、長谷川晶一先生ならびに高村大也先生には、本論分の完成にあたり、多くのご助言を賜りましたことに御礼申し上げます。
また長谷川香料の井手純一氏には官能検査データの分析にあたりご助言を賜りましたことにお礼申し上げます。

本論文の一部は、公益財団法人栢森情報科学振興財団の支援を受けています。

最後に、未来産業技術研究所のスタッフの皆様、中本研究室の同期の皆様、研究を手伝ってくれた後輩に心より感謝を申し上げます。ありがとうございました。

9. 参考文献

- [1] L. Buck and R. Axel, "A novel multigene family may encode odorant receptors: a molecular basis for odor recognition," *Cell*, vol. 65, no. 1, pp. 175–187, Apr. 1991.
- [2] N. Takamichi, *Essentials of Machine Olfaction and Taste*, vol. 1. Wiley, 2016.
- [3] 外池光雄, 匂いとヒトの脳—脳内の情報処理—, vol. 17. フレグランスジャーナル, 2011.
- [4] 日下部裕子 and 和田有史, 味わいの認知科学. 勁草書房, 2011.
- [5] 高木貞定 and 渋谷達明, 匂いの科学. 朝倉書店, 1989.
- [6] 外池光雄, におい・香りの情報通信. フレグランスジャーナル, 2007.
- [7] A. Keller, H. Zhuang, Q. Chi, L. B. Vosshall, and H. Matsunami, "Genetic variation in a human odorant receptor alters odour perception," *Nature*, vol. 449, no. 7161, pp. 468–472, Sep. 2007.
- [8] W. H. King, "Piezoelectric Sorption Detector.," *Anal. Chem.*, vol. 36, no. 9, pp. 1735–1739, Aug. 1964.
- [9] J. Jiri, *Principles of Chemical Sensors*. Springer, 2009.
- [10] P. Donald L., L. Gary M., K. George S., and E. Randall G., *Introduction to Organic Laboratory Techniques: A Microscale Approach*. Brooks Cole, 2007.
- [11] J. E. Friedrich and T. E. Acree, "Gas Chromatography/Olfactometry (GC/O) of Dairy Products," *Int. Dairy J.*, vol. 8, no. 3, pp. 235–241, Mar. 1998.
- [12] P. K. C. Ong and T. E. Acree, "Gas Chromatography/Olfactory Analysis of Lychee (Litchi chinesis Sonn.)," *J. Agric. Food Chem.*, vol. 46, no. 6, pp. 2282–2286, Jun. 1998.
- [13] R. C. Araneda, A. D. Kini, and S. Firestein, "The molecular receptive range of an odorant receptor," *Nat. Neurosci.*, vol. 3, no. 12, pp. 1248–1255, Dec. 2000.
- [14] K. Kajiya, K. Inaki, M. Tanaka, T. Haga, H. Kataoka, and K. Touhara, "Molecular Bases of Odor Discrimination: Reconstitution of Olfactory Receptors that Recognize Overlapping Sets of Odorants," *J. Neurosci.*, vol. 21, no. 16, pp. 6018–6025, Aug. 2001.
- [15] E. D. A. Adrian, *The physical background of perception*. Oxford: Clarendon Press, 1947.
- [16] アムーア E, 匂い—その分子構造. 恒星社厚生閣版, 1972.
- [17] X. Zhang and S. Firestein, "The olfactory receptor gene superfamily of the mouse," *Nat. Neurosci.*, vol. 5, no. 2, pp. 124–133, Feb. 2002.
- [18] S. Katada, T. Hirokawa, Y. Oka, M. Suwa, and K. Touhara, "Structural Basis for a Broad But Selective Ligand Spectrum of a Mouse Olfactory Receptor: Mapping the Odorant-Binding Site," *J. Neurosci.*, vol. 25, no. 7, pp. 1806–1815, Feb. 2005.
- [19] 東原和成, 化学受容の科学. 化学同人, 2012.
- [20] Y. Oka, M. Omura, H. Kataoka, and K. Touhara, "Olfactory receptor antagonism between odorants," *EMBO J.*, vol. 23, no. 1, pp. 120–126, Jan. 2004.
- [21] Y. Oka, S. Katada, M. Omura, M. Suwa, Y. Yoshihara, and K. Touhara, "Odorant receptor map in the mouse olfactory bulb: in vivo sensitivity and specificity of receptor-defined glomeruli," *Neuron*, vol. 52, no. 5, pp. 857–869, Dec. 2006.
- [22] X. Grosmaître *et al.*, "SR1, a mouse odorant receptor with an unusually broad response profile," *J. Neurosci. Off. J. Soc. Neurosci.*, vol. 29, no. 46, pp. 14545–14552, Nov. 2009.
- [23] T. Nakamoto and Y. Nihei, "Improvement of Odor Approximation Using Mass Spectrometry," *IEEE Sens. J.*, vol. 13, no. 11, pp. 4305–4311, Nov. 2013.
- [24] T. Nakamoto, M. Ohno, and Y. Nihei, "Odor Approximation Using Mass Spectrometry," *IEEE Sens. J.*, vol. 12, no. 11, pp. 3225–3231, Nov. 2012.

- [25]F. Grabenhorst and E. T. Rolls, “Different representations of relative and absolute subjective value in the human brain,” *NeuroImage*, vol. 48, no. 1, pp. 258–268, Oct. 2009.
- [26]I. Koizuka *et al.*, “Functional imaging of the human olfactory cortex by magnetic resonance imaging,” *ORL J. Oto-Rhino-Laryngol. Its Relat. Spec.*, vol. 56, no. 5, pp. 273–275, Oct. 1994.
- [27]S. Ishiai, M. Sugishita, H. Shimizu, I. Suzuki, and B. Ishijima, “Monorhinal Smell Identification Ability Before and After Temporal Lobectomy,” in *Olfaction and Taste XI*, Springer, Tokyo, 1994, pp. 634–634.
- [28]J. Plailly, C. Delon-Martin, and J.-P. Royet, “Experience induces functional reorganization in brain regions involved in odor imagery in perfumers,” *Hum. Brain Mapp.*, vol. 33, no. 1, pp. 224–234, Jan. 2012.
- [29]三浦新, 官能検査ハンドブック. 日科技連, 1973.
- [30]佐藤信, 官能検査入門. 日科技連, 1978.
- [31]佐藤信, 統計的官能検査法. 日科技連, 1985.
- [32]V. Delpha and A. John E, “Olfactory Threshold, in Relation to Age, Sex or Smoking,” vol. 33, no. 3, pp. 264–65, May 1968.
- [33]C. Michael, *統計学：Rを用いた入門書*. 共立出版, 2008.
- [34]茂市原, “セマンティック・ディファレンシャル法 (sd 法) の可能性と今後の課題,” *人間工学*, vol. 45, no. 5, pp. 263–269, 2009.
- [35]F. Rosenblatt, “The Perceptron: A Probabilistic Model for Information Storage and Organization in The Brain,” *Psychol. Rev.*, pp. 65–386, 1958.
- [36]S. Wold, M. Sjöström, and L. Eriksson, “PLS-regression: a basic tool of chemometrics,” *Chemom. Intell. Lab. Syst.*, vol. 58, no. 2, pp. 109–130, Oct. 2001.
- [37]Y.-M. Yang, P.-Y. Yang, and X.-R. Wang, “Electronic nose based on SAWS array and its odor identification capability,” *Sens. Actuators B Chem.*, vol. 66, no. 1, pp. 167–170, Jul. 2000.
- [38]T. (Swedish F. S. and M. A. Borjesson, T. Eklov, A. Jonsson, H. Sundgren, and J. Schnurer, “Electronic nose for odor classification of grains,” *Cereal Chem. USA*, 1996.
- [39]ビショップ C.M, *パターン認識と機械学習 上*. 丸善出版, 2012.
- [40]ビショップ C.M, *パターン認識と機械学習 下*. 丸善出版, 2012.
- [41]R. Sebastian, *Python 機械学習プログラミング*. Impress, 2016.
- [42]クジラ飛行機, *Python によるスクレイピング&機械学習*. ソシム, 2016.
- [43]G. Hinton, S. Osindero, and Y. Teh, “A Fast Learning Algorithm for Deep Belief Nets,” *Neural Comput.*, vol. 18, no. 7, pp. 1527–1554, Jul. 2006.
- [44]T. Nakamoto, Y. Hirota, and J. Ide, “Record of mint flavor using mass spectrometry,” in *IEEE Sensors, 2005.*, 2005, p. 4 pp.-.
- [45]D. D. Lee and H. S. Seung, “Learning the parts of objects by non-negative matrix factorization,” *Nature*, vol. 401, no. 6755, pp. 788–791, Oct. 1999.
- [46]J. B. Castro, A. Ramanathan, and C. S. Chennubhotla, “Categorical Dimensions of Human Odor Descriptor Space Revealed by Non-Negative Matrix Factorization,” *PLOS ONE*, vol. 8, no. 9, p. e73289, Sep. 2013.
- [47]渡辺澄夫, *データ学習アルゴリズム*. 共立出版, 2001.
- [48]G. E. Hinton, “Learning multiple layers of representation,” *Trends Cogn. Sci.*, vol. 11, no. 10, pp. 428–434, Oct. 2007.
- [49]G. E. Hinton and R. R. Salakhutdinov, “Reducing the Dimensionality of Data with Neural Networks,” *Science*, vol. 313, no. 5786, pp. 504–507, Jul. 2006.
- [50]Y. LeCun, Y. Bengio, and G. Hinton, “Deep learning,” *Nature*, vol. 521, no. 7553, pp. 436–444, May 2015.

- [51]P. Vincent, H. Larochelle, I. Lajoie, Y. Bengio, and P.-A. Manzagol, “Stacked Denoising Autoencoders: Learning Useful Representations in a Deep Network with a Local Denoising Criterion,” *J Mach Learn Res*, vol. 11, pp. 3371–3408, Dec. 2010.
- [52]“MNIST handwritten digit database, Yann LeCun, Corinna Cortes and Chris Burges.” [Online]. Available: <http://yann.lecun.com/exdb/mnist/>. [Accessed: 01-Sep-2017].
- [53]A. Makhzani and B. Frey, “k-Sparse Autoencoders,” *ArXiv13125663 Cs*, Dec. 2013.
- [54]D. P. Kingma and M. Welling, “Auto-Encoding Variational Bayes,” *ArXiv13126114 Cs Stat*, Dec. 2013.
- [55]G. E. Hinton, P. Dayan, B. J. Frey, and R. M. Neal, “The ‘wake-sleep’ algorithm for unsupervised neural networks,” *Science*, vol. 268, no. 5214, pp. 1158–1161, May 1995.
- [56]S. Rifai, Y. Bengio, Y. Dauphin, and P. Vincent, “A Generative Process for Sampling Contractive Auto-Encoders,” *ArXiv12066434 Cs Stat*, Jun. 2012.
- [57]R. E. Bellman, *Dynamic Programming*. Courier Corporation, 2003.
- [58]J. Hopcroft and R. Kannan, *Computer Science Theory for the Information Age*. 2012.
- [59]J. MacQueen, “Some methods for classification and analysis of multivariate observations,” presented at the Proceedings of the Fifth Berkeley Symposium on Mathematical Statistics and Probability, Volume 1: Statistics, 1967.
- [60]J.-P. Rospars, P. Lánský, A. Duchamp, and P. Duchamp-Viret, “Relation between stimulus and response in frog olfactory receptor neurons in vivo,” *Eur. J. Neurosci.*, vol. 18, no. 5, pp. 1135–1154, Sep. 2003.
- [61]K. C. Persaud, S. Marco, and A. Gutiérrez-Gálvez, Eds., *Neuromorphic Olfaction*. Boca Raton (FL): CRC Press/Taylor & Francis, 2013.
- [62]R. M. Khan *et al.*, “Predicting Odor Pleasantness from Odorant Structure: Pleasantness as a Reflection of the Physical World,” *J. Neurosci.*, vol. 27, no. 37, pp. 10015–10023, Sep. 2007.
- [63]K. Yokoyama and F. Ebisawa, “Detection and evaluation of fragrances by human reactions using a chemical sensor based on adsorbate detection,” *Anal. Chem.*, vol. 65, no. 6, pp. 673–677, Mar. 1993.
- [64]Shinichi Hanaki, Takamichi Nakamoto, and Toyosaka Moriizumi, “Artificial odor-recognition system using neural network for estimating sensory quantities of blended fragrance,” *Sens. Actuators Phys.*, vol. 57, no. 1, pp. 65–71, Oct. 1996.
- [65]S. Y. N. T. and M. T., “Selection of odor adsorption films for sensory quantity evaluation and estimation using fuzzy,” pp. 357–363, 1994.
- [66]I. Masahito and H. Kenshi, “Odor Clustering Based on Molecular Parameter for Odor Sensing,” *Sens. Mater.*, vol. 26, no. 3, pp. 171–180, 2014.
- [67]S. Liang, L. Chuanjun, T. Yoichi, and H. Kenshi, “Odor Clustering Based on Molecular Parameter-Feature Extraction and Imaging Analysis of Olfactory Bulb Odor Maps,” *Sens. Actuators B Chem.*, Aug. 2017.
- [68]杉山将, 統計的機械学習—生成モデルに基づくパターン認識. オーム社, 2009.
- [69]麻生英樹, 深層学習 *Deep Learning*. 近代科学社, 2015.
- [70]F. Rosenblatt, *Principles of Neurodynamics*. New York: Spartan Books, 1962.
- [71]甘利俊一 and 外山敬介, 脳科学大辞典. 朝倉書店, 2000.
- [72]C. M. Bishop, *Pattern Recognition and Machine Learning*. Springer, 2006.
- [73]Y. Lecun *et al.*, “Handwritten digit recognition with a back-propagation network,” 1990.
- [74]D. E. Rumelhart, G. E. Hinton, and R. J. Williams, “Learning representations by back-propagating errors,” *Nature*, vol. 323, no. 6088, pp. 533–536, Oct. 1986.
- [75]W. Wiegerinck, A. Komoda, and T. Heskes, “Stochastic dynamics of learning with momentum in neural networks,” *J. Phys. Math. Gen.*, vol. 27, no. 13, p. 4425, 1994.

- [76]D. P. Kingma and J. Ba, “Adam: A Method for Stochastic Optimization,” *ArXiv14126980 Cs*, Dec. 2014.
- [77]岡谷貴之, 深層学習. 講談社, 2015.
- [78]R. Tibshirani, “Regression Shrinkage and Selection via the Lasso,” *J. R. Stat. Soc. Ser. B Methodol.*, vol. 58, no. 1, pp. 267–288, 1996.
- [79]C. K. Chui and X. Li, “Approximation by ridge functions and neural networks with one hidden layer,” *J. Approx. Theory*, vol. 70, no. 2, pp. 131–141, Aug. 1992.
- [80]N. Srebro and A. Shraibman, “Rank, Trace-Norm and Max-Norm,” in *Learning Theory*, 2005, pp. 545–560.
- [81]N. Srivastava, G. Hinton, A. Krizhevsky, I. Sutskever, and R. Salakhutdinov, “Dropout: A Simple Way to Prevent Neural Networks from Overfitting,” *J. Mach. Learn. Res.*, vol. 15, pp. 1929–1958, 2014.
- [82]X. Glorot and Y. Bengio, “Understanding the difficulty of training deep feedforward neural networks,” in *PMLR*, 2010, pp. 249–256.
- [83]船橋賢一, “3層ニューラルネットワークによる恒等写像の近似的実現についての考察,” 電気情報通信学会, vol. 73, no. 1, pp. 139–145, Jan. 1990.
- [84]G. W. Cottrell, P. Munro, and D. Zipser, *Image Compression by Back Propagation: An Example of Extensional Programming*. University of California, San Diego, Institute for Cognitive Science, 1989.
- [85]“NIST Chemistry WebBook.” [Online]. Available: <http://webbook.nist.gov/chemistry/>. [Accessed: 10-Aug-2017].
- [86]A. Dravnieks, “Atlas of odor character profiles,” 1992. .
- [87]内川恵二 and 近江政雄, 味覚・嗅覚. 朝倉書店, 2008.
- [88]Sigma-Aldrich, “Flavors and Fragrances.” [Online]. Available: <http://go.sigmaldrich.com/ff-catalog-download-safcglobal>. [Accessed: 15-Aug-2017].
- [89]Y. Nozaki and T. Nakamoto, “Odor Impression Prediction from Mass Spectra,” *PLOS ONE*, vol. 11, no. 6, p. e0157030, Jun. 2016.
- [90]I. H. Suffet, B. M. Brady, J. H. M. Bartels, G. Burlingame, J. Mallevialle, and T. Yohe, “Development of the Flavor Profile Analysis Method into a Standard Method for Sensory Analysis of Water,” *Water Sci. Technol.*, vol. 20, no. 8–9, pp. 1–9, Aug. 1988.
- [91]T. Mikolov, K. Chen, G. Corrado, and J. Dean, “Efficient Estimation of Word Representations in Vector Space,” *ArXiv13013781 Cs*, Jan. 2013.
- [92]T. Mikolov, I. Sutskever, K. Chen, G. Corrado, and J. Dean, “Distributed Representations of Words and Phrases and their Compositionality,” *ArXiv13104546 Cs Stat*, Oct. 2013.
- [93]“Training Word2Vec Model on English Wikipedia by Gensim – Text Mining Online.” .
- [94]C. Févotte, N. Bertin, and J.-L. Durrieu, “Nonnegative matrix factorization with the Itakura-Saito divergence: with application to music analysis,” *Neural Comput.*, vol. 21, no. 3, pp. 793–830, Mar. 2009.
- [95]亀岡弘和, “非負値行列因子分解とその音響信号処理応用 (応用音響),” 電子情報通信学会技術研究報告 信学技報, vol. 112, no. 347, pp. 53–58, Dec. 2012.
- [96]Y. Nozaki and T. Nakamoto, “Itakura-Saito distance based autoencoder for dimensionality reduction of mass spectra,” *Chemom. Intell. Lab. Syst.*, vol. 167, pp. 63–68, Aug. 2017.

博士課程における発表論文・表彰等

(1) 学術雑誌等（紀要・論文集等も含む）に発表した論文、著書

査読あり

1. Yuji Nozaki, Takamichi Nakamoto, “Itakura-Saito distance based autoencoder for dimensionality reduction of mass spectra”, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 167, 63-68, May, 2017
2. Yuji Nozaki, Takamichi Nakamoto, “Odor impression prediction from mass spectra”, *PLoS ONE*, 11(6): e0157030, Jun, 2016

(2) 学術雑誌等又は商業誌における解説、総説

1. 中本高道, 野崎裕二, “質量分析器データと多次元データ解析を用いた匂い印象の予測・再現”, *アロマリサーチ*, 18 (2017) 182-186.
2. 野崎裕二, 中本高道, “機械学習を用いた匂い印象の予測、生体ガス計測と高感度ガスセンシング”, *CMC 出版*, 134-142.

(3) 国際会議における発表

口頭発表・査読あり

1. Yuji Nozaki, Takamichi Nakamoto, “Evaluation of Improvement Effect of Dimensionality Reduction by Deep Learning Technique for Odor Impression Prediction”, *International Meeting on Chemical Sensors*, A-111, Jeju, Korea, Jul, 2016
2. Yuji Nozaki, Takamichi Nakamoto, “Nonlinear dimensionality reduction of mass spectrometry data for odor sensing”, *IEEE MFI*, DOI: 7295807, California, USA, Oct, 2015

口頭発表・査読なし

1. Naohiko Maruyama, Yuji Nozaki, “Digital Olfaction with Computer Controlled Odor Blender”, *Digital Olfaction Society*, Tokyo, Dec, 2014

ポスター発表・査読なし

1. Yuji Nozaki, Takamichi Nakamoto. “Odor character prediction from mass spectra of chemical utilizing data of sensory evaluation using binary verbal”, *International Symposium on Olfaction and Taste*, p2-072, Yokohama, Jun, 2016.

(4) 国内学会・シンポジウム等における発表

口頭発表・査読なし

1. 野崎裕二, 中本高道, 次元圧縮及び深層学習を利用した匂い印象の予測モデルの研究, 電気学会全国大会, 仙台, 3月, 2016.
2. 野崎裕二, 中本高道. オートエンコーダを用いた匂い官能評価データの次元圧縮, 電気学会E部門総合研究会, 福岡, 7月, 2015.

(5) 受賞歴等

平成 28 年 電気学会優秀論文発表賞 2016