

研究ノート

ニューラルネットワークを用いた呼気センサの 高精度成分濃度予測 －予測精度の隠れ層数依存性－

岩田一樹¹、阿部宏之²、庭野道夫¹

¹東北福祉大学、²宮城県産業技術総合センター

要旨

本研究では小型呼気センサの実現を目指し、10個の反応特性が異なる酸化チタンナノチューブ薄膜ガスセンサを用いて、その応答から多成分混合ガス（一酸化炭素、ヘリウム、酸素、窒素）内の一酸化炭素と酸素の濃度予測を、機械学習アルゴリズムの一つであるニューラルネットワークを用いて行い、隠れ層数の最適数を検討した。学習の結果、一酸化炭素濃度に対して0.001%p、酸素濃度に対して0.01%pの精度で予測可能なニューラルネットワークモデルを得た。また、その予測精度は5層以上ではほぼ変わらないことが見出されたことから、隠れ層数が5層程度のニューラルネットワークが最適であると考えられる。

キーワード：ニューラルネットワーク、呼気センサ、ガスセンサ、多成分予測

1. 緒言

ニューラルネットワークは機械学習のアルゴリズム（手法）の一つであり、機械学習とは人工知能研究分野の一つで、人が自然に行っている「学習」をコンピュータ上で再現することを目標としている。ニューラルネットワークについては第2節で述べる。機械学習はそのアルゴリズム自身の目覚ましい進歩・洗練化、および、近年の人工知能への期待感と相俟って大きな注目を集めている¹⁾。例えば、現在、多くのスマートフォンに搭載されている音声認識や画像認識、翻訳機能には機械学習の研究結果が応用されており、未だ完璧とは言えないが、その精度は非常に高いものとなっているのは周知である。また、内閣府が掲げる科学技術政策「Society 5.0」においては、ロボット技術や情報技術と並んで、中心的な役割に位置づけられている情報分析、データ分析に人工知能や機械学習の応用が期待されている²⁾。この流れは、医療や介護福祉の分野にも広がっており、東京大学とIBM社が開発した診断支援システム「Watson」は医師が気づかなかった白血病を見出したことで医療分野における機械学習の有効性を示した³⁾。また、最近では、診断等の医療分野のみでなく、介護福祉分野への応用も検討されている^{4),5)}。これらの具体的な例からは、機械学習が対象とすることの中に人の「わかる」という能力と関連性が高いことが見て取れる。すなわち、音声認識は聴覚、画像認識は視覚と関連性が高いということである。したがって、機械学習が対象とする一領域において、五感をコンピュータで再現しているといえる。

一方、われわれが五感を働かせるのは身の回りのものに興味をひかれるときや危険を察した時であり、それらからの情報獲得によって、その対象についての不確かさを減少させ、明確化したい欲求からである⁶⁾。したがって、高精度で信頼性の高いセンサやシステム開発が必要とされているのは五感の代替となるセンシングを行い、精度の高い正確な情報を獲得することに需要があるからといえる。

本研究が対象とする呼気センサは五感でいえば嗅覚に対応し、匂いの情報を取得するセンサである。嗅

覚、すなわち、匂いを嗅ぎ分ける能力が生きていく上で重要であることは人間のみでなく全ての動物、魚類、昆虫、線虫、植物に至るまでほとんどの生物が嗅覚に相当する機能を有していることから明らかである⁷⁾。具体的な臭気を与える情報の例として、日本臨床歯周病学会は口臭と様々な疾病に関連があることを示しており (Table 1)⁸⁾、人の健康を取り上げただけでも、それがいかに多くの情報を包含しているかわかる。

Table 1 口臭の原因と臭い⁸⁾

原因	臭い
呼吸器系 (肺癌、肺腫瘍)	タンパク質の壊疽臭
消化器系 (胃癌、食道気管)	
耳鼻咽喉系 (扁桃炎、咽頭膿瘍、咽頭癌)	
咽頭、気管支、肺のカンジタ感染	甘いにおい
糖尿病	アセトン臭
肝硬変、肝臓癌	アンモニア臭
トリメチルアミン尿症	魚臭

Table 2 呼気成分と臨床的意義¹¹⁾⁻¹³⁾

分類	呼気成分	臨床的意義
還元性	水素	消化吸収機能、腸内細菌の異常
	メタン	腸内嫌気性菌の異常
	一酸化炭素	慢性気管支炎、酸化ストレス (糖尿病)
	エタノール	飲酒、明日コールド依存症、楽酔度測定
	アセトアルデヒド	肺がん、飲酒代謝物、アルコール中毒、代謝指標
	アセトン	インスリン欠乏症 (糖尿)、肥満、ダイエット
	イソブレン	コレステロール合成中間体
弱還元性	一酸化窒素	ぜんそく、喫煙、気道感染
アミン系	アンモニア	肝炎、ピロリ菌検査、肝性脳症の簡易スクリーニング

嗅覚のメカニズムは匂いの由来となるガス分子が鼻腔内の嗅粘膜にある粘液に溶解込むことで、電気的な信号が発せられ、その信号が脳に到達することで感覚が生じるためと考えられている⁹⁾。したがって、嗅覚の再現には匂いの由来となるガス分子を高感度で検知・測定可能で信頼性の高いガスセンサが必要となるため、高性能なガスセンサの需要は極めて高い。また、上記の通り生物が生きていくために嗅覚が重要な役割を果たしていることも相俟って、ガスセンサの応用分野は非常に広い。例えば、窒息や爆発の危険性を有する作業現場におけるガス検出・モニタリングは必要不可欠となっている。また、2020年から世界的に流行している新型コロナウイルス感染症であるが、その対策の一つに室内の換気が有効とされており、その換気が十分に行われているかどうかを確認するためのモニタリングに二酸化炭素濃度が利用されている。なお、厚生労働省は良好な換気状態の基準を二酸化炭素濃度1,000ppm以下と定めている¹⁰⁾。

さらに、ガスセンサは本研究で対象とする呼気センサとして、医療健康や介護福祉分野での需要も高い。具体的には、疾病の早期診断のための呼気検査用途として医療健康分野での可能性が示唆され、呼気診断方法とともに数多くの研究が進められている¹¹⁾⁻¹³⁾。Table 2は種々の疾病とそれに関連する呼気のガス成分をまとめている。Table 2から、いかに呼気が健康状態や疾病について有益な情報を提供するか見て取れる。このように健康について重要な情報が取得可能な呼気だが、呼気には数種類の異なるガス分子が包含されることから、その検査用センサに搭載されるガスセンサは複数の異種ガスから、特定のガスを高

感度に、かつ、短時間で検出できることが求められている。

この要求に対して、我々のグループではボトムアッププロセスである局所陽極酸化技術とトップダウンプロセスであるフォトリソグラフィ技術とを組み合わせたハイブリッドプロセスを開発し¹⁴⁾ ナノスケールのチューブが互いに密着した状態で配列制御した酸化チタンナノチューブ薄膜をガラスやシリコンなどの固体基板上に形成することを成功させた¹⁵⁾。この技術をガスセンサへ適用することで、酸化チタンナノチューブ薄膜を検出対象ガスの感ガス部とする超小型（ミクロンサイズ）・広測定範囲（1 ppm～10%）・高感度（最高感度1 ppm）の水素ガスセンサを実現した¹⁶⁾。しかしながら、呼気検査装置だけではなく、医療健康分野の製品に適用するには、混合ガスである呼気中における特定ガスの検出（ガス選択性）、ガス検出までの時間（応答時間）、並びに、ガス検出後にセンサ出力が検出前まで戻る時間（回復時間）が長いという課題があった。これらの課題に対して、我々は、さらに、原子層堆積（Atomic Layer Deposition；ALD）法を用いてセンシング部である酸化チタンナノチューブ薄膜の表面及び内部に触媒となる白金微粒子を担持し、感度向上、応答時間短縮を実現した^{17) - 20)}。

我々の開発したガスセンサは金属酸化物を感ガス部とした半導体式のガスセンサであり、感ガス部のサイズや形状、さらにはそこに担持する貴金属触媒微粒子の種類や量によってガスに対する反応特性を制御することができる長所がある。その一方、半導体式ガスセンサの検出原理が表面に吸着した酸素による還元性ガス（水素や一酸化炭素など）の酸化に伴う電気抵抗の変化であるため、応答の大小の差はあるが、ほぼすべての還元性ガスに対して応答を示す^{21) 22)}。すなわち、1個のガスセンサでは複数種類の還元性ガスが混ざった混合ガスに対して、個々の還元性ガスの濃度を選択的に検出することができない。加えて、呼気には酸素が含まれるため、酸化性と還元性のガスが混合する。そのため、センサ表面における酸化還元反応が複雑となる困難さもある。しかし、近年、特性の異なるセンサを複数個使用して同時に測定した混合ガスに対する応答から得たデータに機械学習を適用することで、反応に関して分類を行い、さらに、回帰分析を行うことで混合ガス中の個々のガスの種類や濃度を高感度・高精度に予測する研究成果が報告されている^{23) - 29)}。我々のガスセンサにおいても、同様に、特性の異なる複数個のガスセンサを同一基板上に配置し、それらのガスセンサから得られる混合ガスに対する電流出力を元にニューラルネットワークなどの機械学習を適用することで混合ガス中の個々のガス濃度を予測することが可能と考えられる。

後に述べるように、機械学習を行う際には2つのパラメータが存在する。一つは機械学習アルゴリズム毎に異なるデータからの「学習」を元に最適化されるパラメータである。もう一つは分析者が決めるパラメータで、これはハイパーパラメータと呼ばれる¹⁾。機械学習は人工知能の一分野なので、これを脳に例えたと、前者は学習によって変化する脳神経に相当し、後者は学習とは関係なく決まっている脳の大きさや形に相当する。そして、当然のことながら、ハイパーパラメータは予測精度に影響を与える。本稿では、我々の開発した酸化チタンナノチューブ薄膜ガスセンサから得られる混合比率の異なる多成分ガス（一酸化炭素、酸素、窒素、ヘリウム）に対する応答を用いて、それに機械学習であるニューラルネットワークを適用することで、還元性の一酸化炭素と酸化性の酸素について、それらの濃度を同時に予測する。そして、ニューラルネットワークのハイパーパラメータの一つである隠れ層（隠れ層については次節で述べる）の数を変えて濃度予測を行った際の濃度予測精度の変化を報告し、濃度予測に最適な隠れ層について検討する。

上記した通り、我々のガスセンサは感ガス部のサイズや形状と担持する貴金属触媒微粒子の種類や量によって反応特性を制御することができることから、同一基板上に異なる反応特性を有するセンサを配置したアレイ化ガスセンサの生産が可能である。これまで報告されている機械学習を用いたガス濃度予測においては異なる市販のガスセンサを組み合わせているのに対して^{23) - 29)}、本稿においては反応特性の異なる酸化チタンナノチューブ薄膜センサのみから濃度予測している点に違いがあり、応答特性の違いを別セン

サとして扱って機械学習を適用した例は皆無である。我々のセンサは同一基板上に製作可能であることからアレイ化が可能である。それにより、より小型で、かつ、複数気体の濃度予測可能なガスセンサの実現が期待できる。Table 1やTable 2から示されるように臭気や呼気には我々の健康状態を教えてくれる様々な情報が含まれており、将来、ガスセンサの十分な小型化が実現し、例えば、モバイルフォンに組み込むことが可能となれば、いつでも自身の健康状態をモニタリング可能となるだけでなく、IoTとの組み合わせによって、様々な健康福祉サービスの創出が可能となると考えられる。そして、我々は、それらが健康寿命の延命や介護保険料の低減に寄与することで、より良く、持続可能な福祉社会の実現に貢献すると確信している。

以下、第2節では機械学習とニューラルネットワークについて、第3節では濃度予測に用いるデータ取得の方法について、第4節ではニューラルネットワークによる成分濃度予測方法について、第5節では結果と考察、そして、第6節においてまとめを述べる。

2. 機械学習とニューラルネットワーク

本節では機械学習とニューラルネットワークの概要について述べる。

2-1. 機械学習

機械学習とは「学習」、つまり、何らかの目的を達成するための知識や行動をデータから機械（コンピュータ）に獲得させる手法である。機械学習は教師あり学習と教師なし学習の2つに大別される（この分け方以外に、上記の2つに強化学習を加えて3つ、さらに、半教師あり学習を加えて4つに分けることもある¹⁾）。機械学習において、教師あり学習、教師なし学習問わず、ほとんどのアルゴリズム（手法）は、脳に相当し、データから最適化されるパラメータを有した関数（これをモデルと呼ぶ）を有する。そして、「学習」とはコンピュータに読み込ませたデータ（これを訓練データと呼ぶ）からモデルのパラメータを最適化することを指す。なお、本稿で用いるニューラルネットワークは前者の教師あり学習に属する。

教師あり学習とは目的変数と説明変数の両方を訓練データに含む場合を指す。ここで目的変数とは予測される値のことを指し、後に述べるように、本稿においては一酸化炭素濃度と酸素濃度が該当する。また、説明変数は目的変数を予測するために使われる値のことを指し、本稿においてはガスセンサからの応答出力が該当する。そして、パラメータを最適化することで、説明変数から目的変数を予測可能なモデルを獲得するのが教師あり学習である。具体的には、モデルに説明変数を入力し、出力される値が訓練データの目的変数に近づくようにモデルのパラメータを調整する。この手法は、メールの内容（説明変数）からスパムメールか否かのクラス（目的変数）に分類する場合や、株の売買情報（説明変数）から株価（目的変数）の数値を予測する場合に用いられる。なお、スパムメールか否かのようにクラスに分けるタイプの予測を分類、株価の数値を予測するタイプを回帰と呼ぶ。また、説明変数は特徴量、予測変数、独立変数などと呼ばれることもあり、目的変数は正解データ、応答変数、ターゲット変数、従属変数などと呼ばれることもある。

2-2. ニューラルネットワーク

ニューラルネットワークは、コンピュータ上において高度な生物の情報処理を実現することを目指し、生物の神経回路網を模倣した人工神経回路のことを指し、1940年代からその研究が開始された^{30) 32)}。本稿で、機械学習のアルゴリズムとしてニューラルネットワークを採用した理由は、教師あり学習において、それが分類、回帰の両方で使用可能であり、かつ、以下で述べる出力層のノード数を変えることで、複数の目的変数に対する予測を同時に行うことが可能であるためである。

ニューラルネットワークは模式的に Fig. 1 のように表されることが多い。Fig. 1 において丸で表現しているものはノード（またはユニット）と呼ばれ、ニューラルネットワークを構成する最小の要素であり、その上にバイアス（ $b^{(x)}$ ）と呼ばれるデータから学習されるパラメータを有する。また、線で表現されているものはリンク（またはエッジ、アーク）と呼ばれ、全てのリンクは重み（ $\omega^{(x)}$ ）と呼ばれるパラメータを有する。そして、一番左のノードの列を入力層と呼び説明変数はこの層のノードに入力される、また、一番右の列は出力層と呼ばれ、この層から予測結果が出力される。そして、それら以外のノードの列は全て隠れ層と呼ばれる（中間層と呼ばれることもある）。模式図において、隠れ層は1層だが、2層、3層とすることも可能で、複数層の隠れ層を有するニューラルネットワークは、特に、ディープニューラルネットワーク（深層ニューラルネットワーク）と呼ばれることもあるが、この入力層、隠れ層、出力層の連なりがニューラルネットワークにおけるモデルである。

ニューラルネットワークにおいて予測は左から右に計算され、各ノードはそれに連なるノードの値と重みの積にバイアスを加えた値を受け取る。具体例として、Fig. 1 において入力層から隠れ層の各ノードが受け取る値は上から、

$$\begin{aligned} u_1^{(2)} &= \omega_{11}^{(1)} x_1 + \omega_{12}^{(1)} x_2 + b_1^{(2)} \\ u_2^{(2)} &= \omega_{21}^{(1)} x_1 + \omega_{22}^{(1)} x_2 + b_2^{(2)} \\ u_3^{(2)} &= \omega_{31}^{(1)} x_1 + \omega_{32}^{(1)} x_2 + b_3^{(2)} \end{aligned} \quad (1)$$

となる。そして、それらのノードは $z_j = f(u_j^{(2)})$ を次に連なるノードに出力する。ここで、 $f(\)$ は活性化関数であり、シグモイド関数などを用いるが、本稿ではランプ関数（ReLU）を用いる。その上で、さらに出力層は隠れ層から、

$$\begin{aligned} u_1^{(3)} &= \omega_{11}^{(2)} z_1 + \omega_{12}^{(2)} z_2 + \omega_{13}^{(2)} z_3 + b_1^{(3)} \\ u_2^{(3)} &= \omega_{21}^{(2)} z_1 + \omega_{22}^{(2)} z_2 + \omega_{23}^{(2)} z_3 + b_2^{(3)} \end{aligned} \quad (2)$$

の値を受け取る。出力層は隠れ層と同様にこの値を活性化関数に代入し $y_j = g(u_j^{(3)})$ を出力し、それがニューラルネットワークの予測結果となる。関数 $g(\)$ は分類の場合はソフトマックス関数、回帰の場合は $u_j^{(3)}$ をそのまま出力する恒等関数を用いる（すなわち、 $y_j = u_j^{(3)}$ のが一般的である。以上がニューラルネットワークにおける予測の処理であり、この処理を順伝播と呼ぶ。

「学習」は全ての重みとバイアスの値を調整して、この予測値 y_j と入力された説明変数に対応する目的変数 t_j の差が0となるように最適化することに相当する。具体的には、loss（損失）を次式の2乗誤差などで定義し、

$$\text{loss} = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^m (t_{i,j} - y_{i,j})^2 \quad (3)$$

この loss が最小となるようにパラメータを調整する。ここで、 N は訓練データ数（説明変数と目的変数のセットの数）で、 m は一度に予測する目的変数の数である（Fig. 1 の場合には $m = 2$ である）。式 (1) と (2) から $y_{i,j}$ は説明変数の関数であり、具体的な説明変数値を与えると定数となる。また、目的変数は定数である。そのため、式 (3) は複数のパラメータである重みとバイアスの関数である。そのため、loss が最小となることは、

$$\begin{aligned}\frac{\partial \text{loss}}{\partial \omega_{ij}^{(l)}} &= 0 \\ \frac{\partial \text{loss}}{\partial b_i^{(l)}} &= 0\end{aligned}\quad (4)$$

を満たすように重みとバイアスを調整することに帰着する。 $\frac{\partial \text{loss}}{\partial \omega_{ij}^{(l)}}$ 、および、 $\frac{\partial \text{loss}}{\partial b_i^{(l)}}$ は loss の値から逆伝播法で求めることが可能なので³³⁾、最も単純には確率的勾配降下法により次式でパラメータを更新する。

$$\begin{aligned}\omega_{ij}^{(l)} &\leftarrow \omega_{ij}^{(l)} - \eta \frac{\partial \text{loss}}{\partial \omega_{ij}^{(l)}} \\ b_i^{(l)} &\leftarrow b_i^{(l)} - \eta \frac{\partial \text{loss}}{\partial b_i^{(l)}}\end{aligned}\quad (5)$$

ここで、 η は学習率と呼ばれ、学習の速度を決めるものである。なお、本稿においては式 (5) に改良を加えた手法である Adaptive moment estimation (Adam) を用いてパラメータの最適化を行う³⁴⁾。以上がニューラルネットワークとそのパラメータの最適化方法の概要であり、重みとバイアスは、説明変数による予測、予測値と目的変数の比較、loss の算出、パラメータの更新を繰り返して最適化される。

一方で、隠れ層の数や各層に含まれるノード数には任意性があり、これら学習過程で変更を受けない変数はハイパーパラメータと呼ばれ、分析者が決定しなければならない。一般的に、最適化するパラメータ数が増えると、モデルは複雑になり、訓練データにより適合 (loss を小さく) することが知られている。例えば、2つしかパラメータを有さない $y=ax+b$ は直線しか表現できないが、3つのパラメータを有する $y=ax^2+bx+c$ はより複雑な曲線を表現可能であるのと同様である。しかし、一方で、「オッカムの剃刀」の名で知られるように¹⁾、不必要にパラメータを増やすと訓練データのみには適合し、それに含まれていないデータに対する予測精度が低下することが知られている。このように訓練データのみには最適化され、それに含まれないモデルにとって未知データに適合できないことを過学習と呼ぶ。普通、我々が求めるのは訓練データに対してのみ正確な予測をするモデルではなく、訓練データにより学習し、それに含まれていない未知のデータに対しても正確な予測が可能な汎用的なモデルである。そのため、過学習を防ぎながら予測精度を上げるためにハイパーパラメータの調整は重要であり、また同時に、機械学習全般において過学習の有無を確認し、モデルの汎用性の検討を行うことは極めて重要である。そのために、第4節で説明するように、第3節の方法で取得した説明変数と目的変数の組を学習用と評価用に分割し、学習用データで学習を行い、評価用データでテストする。つまり、評価用データは学習に用いず、モデルにとっては未知データとし、過学習の有無と汎用性の確認に用いることになる。

また、ディープニューラルネットワークが登場したことが物語るように、ニューラルネットワークにおいて予測精度には、一つの層に含まれるノード数よりも、隠れ層数の方が影響する³⁵⁾。本稿において、予測精度の隠れ層数依存性を調べるのはこのためで、それにより予測精度が高く、汎用性の高いモデルの獲得を目指している。

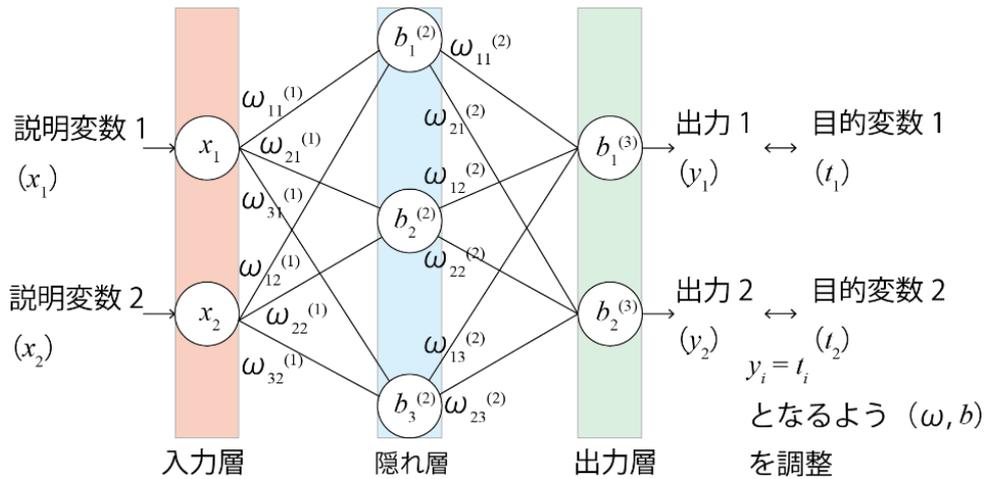


Fig. 1 ニューラルネットワークの模式図。

3. データ取得方法

データは我々が以前に報告している手法で行った²⁰⁾。抵抗値の取得はアジレント社製半導体パラメータアナライザ (4156C) を用いて 1 mV の電圧を印加しながら、混合ガスを曝露した際のガスセンサの出力電流値の変化から測定した。具体的には、密閉容器内を油回転ポンプで 10Pa 程度に真空引きしながら、基板を 300°C に加熱し、30 分後に真空引きを停止してから密閉容器内に空気を流し、電流値が安定した時間から電流値の記録を開始した。そして、一定の時間が経過した後に、空気から検出対象ガスに切り替えた。さらに一定の時間が経過した後に、検出対象ガスを流す前の出力電流値に戻すための回復ガスとして空気を流した。その際、各ガスの流量は 50ml/min とした。具体的には、測定開始後、経過時間 100 秒及び 300 秒で空気から検出対象ガスへ切り替える。そして、経過時間 200 秒及び 400 秒で検出対象ガスから空気に切り替え、経過時間 600 秒まで測定を継続した。

一つのセンサにおける抵抗値 (R_0/R_G) と抵抗変化の微分値 ($\frac{d}{dt} \left(\frac{R_0}{R_G} \right)$) の典型的な応答の様子を Fig. 2 に示す。ここで、 R_0 は空気を曝露した際の抵抗値、 R_G は検出用ガスを曝露した際の抵抗値である。なお、検出対象ガスは市販の 4 種混合ガス (一酸化炭素 : 0.30%, 酸素 : 20.30%, ヘリウム : 10.20%, 窒素 : 69.20%) に空気 (酸素 : 20.95%, 窒素 : 78.08%, その他 : 0.97%) を混合して作成した。

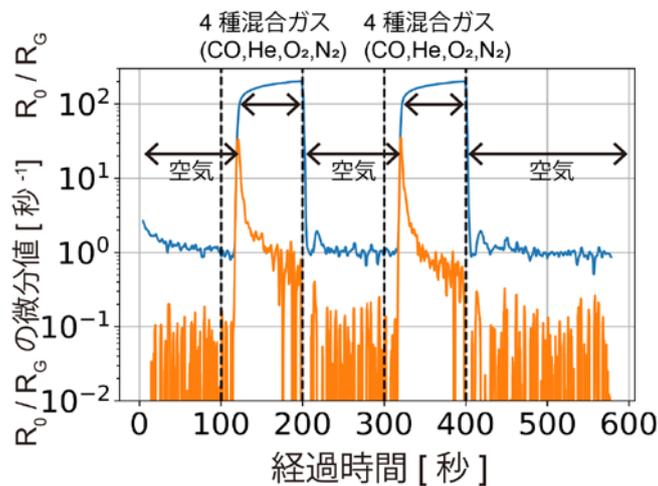


Fig. 2 検出用混合ガスを曝露後の抵抗値と抵抗の微分値変化。曝露した混合ガス濃度は一酸化炭素 : 0.30%, 酸素 : 20.30%, ヘリウム : 10.20%, 窒素 : 69.20% である。縦軸はログスケールである。

また、我々は以前の報告において、検出用ガスの濃度は飽和した R_0/R_G の値のみでなく、暴露してからの $\frac{d}{dt}\left(\frac{R_0}{R_G}\right)$ の最大値に反映されることを示した²⁰⁾。そのため、本稿において、予測に用いる説明変数は $\frac{d}{dt}\left(\frac{R_0}{R_G}\right)$ の最大値を採用する。何故なら、 $\frac{d}{dt}\left(\frac{R_0}{R_G}\right)$ の最大値を説明変数として用いることで、飽和した R_0/R_G を用いるよりも短時間（数秒間）での説明変数の取得を実現し、それにより短時間での濃度予測が可能となるからである。

4. ニューラルネットワークによる成分濃度予測方法

第1節の緒言で述べた通り、我々のガスセンサは感ガス部のサイズや形状と担持する貴金属触媒微粒子の種類や量によって反応特性を制御することが可能である。Fig. 3は我々の作成した10種類のセンサ（センサ1～10）において、検出用混合ガスを暴露した際の応答を、横軸に検出ガス中の一酸化炭素濃度、縦軸に $\frac{d}{dt}\left(\frac{R_0}{R_G}\right)$ の最大値として対数プロットしたものである。なお、呼気検査装置においては一酸化炭素濃度を測定するため、それを想定して、横軸は一酸化炭素濃度としている。Fig. 3から、全てのセンサにおいて一酸化炭素濃度の増加とともに $\frac{d}{dt}\left(\frac{R_0}{R_G}\right)$ の最大値が増加し、検出ガスの違いにセンサが応答しているのが見て取れる。その一方で、一酸化炭素濃度への応答特性はセンサ毎に異なり、比較的直線に近いものや（センサ7、および、センサ8）、二次関数的なもの（センサ1、および、センサ2）など多様である。したがって、我々はこの多様性を異なるセンサとして捉え、10個の説明変数としてニューラルネットワークへの入力に用いる。

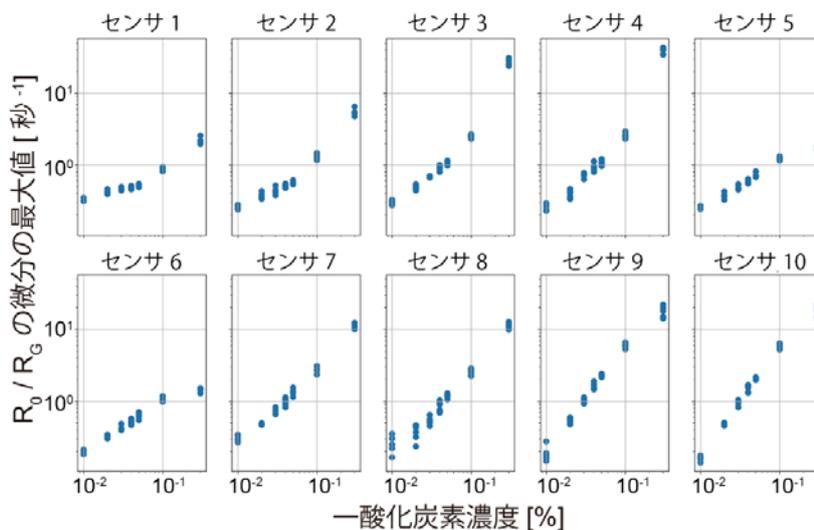


Fig. 3 10種類の酸化チタンナノチューブ薄膜ガスセンサにおける $\frac{d}{dt}\left(\frac{R_0}{R_G}\right)$ 最大値の検出ガス内の一酸化炭素濃度に対する変化。

この10個のセンサにおける $\frac{d}{dt}\left(\frac{R_0}{R_G}\right)$ の最大値の対数を説明変数としてニューラルネットワークの入力層に代入し、次いで、隠れ層を経て、出力層から予測濃度を出力する。なお、緒言で述べた通り半導体式ガスセンサの検出原理から、酸化還元反応に寄与する分子ガスのみ検出が可能であるから、濃度予測するガスは酸化還元への寄与が大きいと想定される酸素と一酸化炭素の二種類に設定した。また、 $\frac{d}{dt}\left(\frac{R_0}{R_G}\right)$ の最大値の対数を説明変数とするのは、ニューラルネットワークへの入力は0～1.0程度の値が適切であるのに対し、我々の酸化チタンナノチューブ薄膜ガスセンサの感度が高すぎるため、 $\frac{d}{dt}\left(\frac{R_0}{R_G}\right)$ の最大値をそのまま用いると1.0を大きく上回ってしまうからである。Fig. 4に濃度予測に用いたニューラルネットワーク構造の内2つを示す。(a)は1層の隠れ層を有するニューラルネットワークで、(b)は5層の隠れ層

を有するニューラルネットワークである。第2節で述べた隠れ層の数を変えるというのは、Fig. 4の様に入力層と出力層の間の層の数を変えることであり、本稿では隠れ層の数が1、3、5、7のニューラルネットワークを構築し検討した。なお、各層のノード数は128で固定している。また、出力層の2つのノードは一酸化炭素濃度と酸素濃度に対応する。予測値と目的変数で与えられる式(4)のlossは、

$$\text{loss} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \sum_{j \in \{\text{CO}, \text{O}_2\}} (y_{i,j} - t_{i,j})^2 \quad (6)$$

となる。ここで、 N はバッチサイズで、一回の学習に用いるデータ数を意味し、本稿では64である³⁵⁾。

ニューラルネットワークの構築および学習はGoogle社が公開しているディープラーニング用フレームワークTensorflowを用い³⁶⁾、パラメータの更新にはAdamを第一モーメント:0.9、第二モーメント:0.999、 $\epsilon:10^{-7}$ で用いた。また、学習の回数は10,000epochsとし、学習結果を安定させるために学習率を0から10,000epochsの間に0.0001から0.0に減少させる学習率減少法を採用した。ここで、1epochとは訓練データの中で学習用のデータを全て1回使ったことに相当し、1つのデータ(説明変数と目的変数の組)について、10,000回使用していることを意味する。

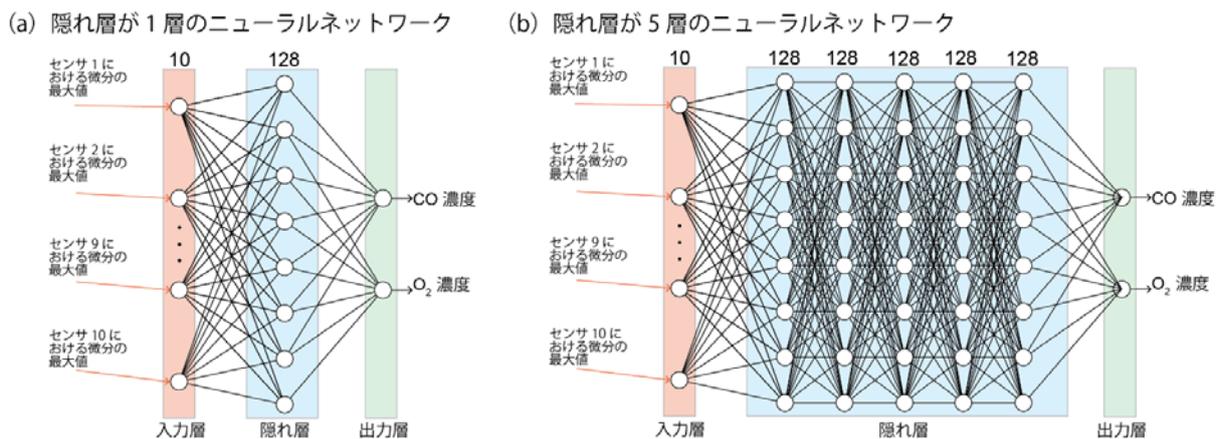


Fig. 4 本稿で用いたニューラルネットワーク構造。

また、第2節で説明した通り、機械学習を分析や予測に用いる場合は過学習と汎用性に注意を払う必要がある。そのため、濃度予測学習用に用意した混合比の異なる7種類の検出用混合ガス(Table 3)に対して、3つの学習用データと評価用データの組合せを作成し、学習・評価した。Table 3において、○がその組合せの学習用データで※が評価データを意味している。例えば、組合せAであれば、混合ガスA、混合ガスB、混合ガスC、混合ガスE、混合ガスGの説明変数と目的変数で学習を行い、混合ガスDと混合ガスFをモデルにとって未知のガスとして説明変数と目的変数を用いて汎用性を確認している。なお、学習データ数と評価データ数は、組合せAと組合せBにおいて128と64、組合せCにおいて96と96である。

Table 3 本研究で用意した検出用混合ガスの濃度

	一酸化炭素	ヘリウム	酸素	窒素	組合せ A	組合せ B	組合せ C
A	0.30%	10.00%	20.00%	69.70%	○	○	○
B	0.10%	3.40%	20.73%	75.12%	○	○	○
C	0.05%	1.70%	20.84%	76.60%	○	※	○
D	0.04%	1.36%	20.86%	76.90%	※	○	※
E	0.03%	1.02%	20.88%	77.20%	○	※	※
F	0.02%	0.68%	20.90%	77.49%	※	○	※
G	0.01%	0.34%	20.93%	77.79%	○	○	○

5. 結果と考察

Fig. 5 から 7 は横軸を学習回数 (epoch)、縦軸を評価データに対する loss とした学習曲線である。Fig. 5 は組合せ A (評価は)、Fig. 6 は組合せ B、Fig. 7 は組合せ C での結果であり、(a) (b) (c) (d) は隠れ層の数が 1、3、5、7 層における学習過程を意味する。なお、隠れ層が 3、5、7 層においては見やすくするために、縦軸を 100 倍、もしくは、10 倍したものを同時にプロットしている。過学習の有無はまず、この学習曲線から確認することができる。何故なら、過学習があった場合、上述のようにモデルは学習データへのみに過度に適合してしまうため、学習データに含まれないデータに対する予測精度は悪化する。そのため、過学習がある場合、評価データに対する loss は学習回数が増加とともに増加していく。しかし、何れにおいても、学習回数の増加とともに評価データの loss も減少して、0 に向かっており、学習曲線からは過学習が生じている様子は見て取れない。したがって、学習曲線の振る舞いからは、本稿で用いたニューラルネットワークモデルにおいて、過学習は生じていないと考えられる。

次に、Fig. 8 は一酸化炭素濃度について、評価データに対して予測された結果を横軸に隠れ層の層数、縦軸を予測値の平均値 (上方図) と絶対平均値誤差 (MAE) (下方図) にプロットしたものである。上方図のエラーバーは予測値の標準偏差を意味している。それぞれ、(a) は組合せ A、(b) は組合せ B、(c) は組合せ C の結果である。なお、上方図の破線は評価データの目的変数 (正解値) を示している。したがって、(a) 組合せ A において 0.04% と 0.02%、(b) 組合せ B において 0.03% と 0.05%、(c) 組合せ C において 0.02%、0.03%、および、0.04% である。MAE の最小値は、組合せ A においては正解値 0.02% に対して 5 層の時に 0.0009%p、正解値 0.04% に対して 5 層の時に 0.0017%p、組合せ B においては正解値 0.03% に対して 5 層の時に 0.0009%p、正解値 0.05% に対して 7 層の時に 0.0018%p、組合せ C においては正解値 0.02% に対して 7 層の時に 0.0014%p、正解値 0.03% に対して 7 層の時に 0.0010%p、正解値 0.04% に対して 5 層の時に 0.0019%p である。一般的に求められる一酸化炭素濃度の予測精度が 0.001% であることから^{11) -13)}、これらの結果は、我々のモデルが 10 個のガスセンサから得られた応答を説明変数として高精度に一酸化炭素濃度の予測を実現していることを意味しており、我々が 10 個の応答性の異なるセンサを別種のセンサとみなしたことが適切であることを示唆している。また、組合せ A の正解値 0.04% を除いて層数が 5 まで MAE は減少し、層数が 5 と 7 では大きな違いは見られず、それにおいては隠れ層が 5 層のニューラルネットワークの方が高い予測精度を有する。上述したようにモデルはパラメータが少ないほど高い汎用性が期待できることから、適切な隠れ層の数は 5 層であることが一酸化炭素濃度の予測結果から考えられる。

Fig. 9 は酸素濃度予測について Fig. 8 と同様のプロットを行ったものである。MAE の最小値は組合せ A においては正解値 20.90% に対して 5 層の時に 0.0073%p、正解値 20.86% に対して 7 層の時に 0.0209%p、組合せ B においては正解値 20.88% に対して 5 層の時に 0.0062%p、正解値 20.84% に対して 5 層の時に 0.0220%p、組合せ C においては正解値 20.90% に対して 7 層の時に 0.0051%p、正解値 20.88% に対して 7 層の時に 0.0083%p、正解値 20.86% に対して 7 層の時に 0.0095%p である。酸素濃度の予測においても一酸化

濃度の予測と同様に予測の精度は5層までの改善は大きいですが、5層と7層の間での違いは大きくない。したがって、酸素濃度の予測においても隠れ層は5層が適切だと考えられる。

以上の結果から、呼気センサの濃度予測モデルとしてニューラルネットワークを用いる場合、隠れ層の数は5が適切と結論付けられる。

一方、一酸化炭素の予測における MAE と酸素濃度における MAE を比較すると、全体的に一酸化炭素よりも酸素における予測の方が MAE の値が大きい。このことは一酸化炭素濃度よりも酸素濃度の予測の方が困難であることを意味している。その一因は、酸素濃度については20%に対して少数点以下2位でしか変化しておらず、その変化を捉えるのが困難であることが推察される。ただ、本稿の結果のみでは酸素濃度が予測困難な理由が濃度変化の小ささにあるのか、それ以外の理由があるのかは結論付けられない(例えば、ニューラルネットワークが酸素濃度予測をする上で何らかのディスアドバンテージを有している可能性もある)。また、実用的な呼気センサを考えると呼気に含まれる酸素の濃度は16%程度であるため、大気中の20.93%と比較すると4.0%程度の変化が想定される。そのため、今後、希釈する混合気体の濃度を変えて、さらに混合比の異なる検査用ガスを用意しての検討が必要になる。

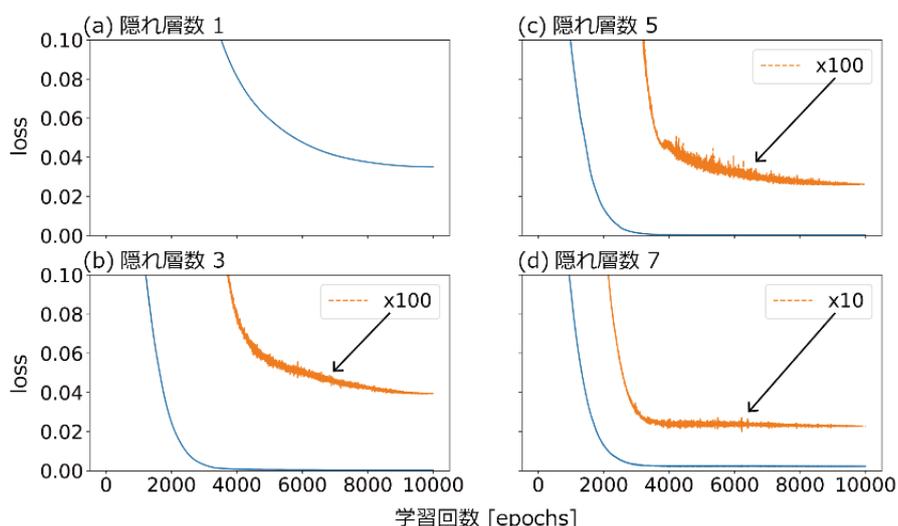


Fig. 5 組合せ A における評価データに対する学習曲線。

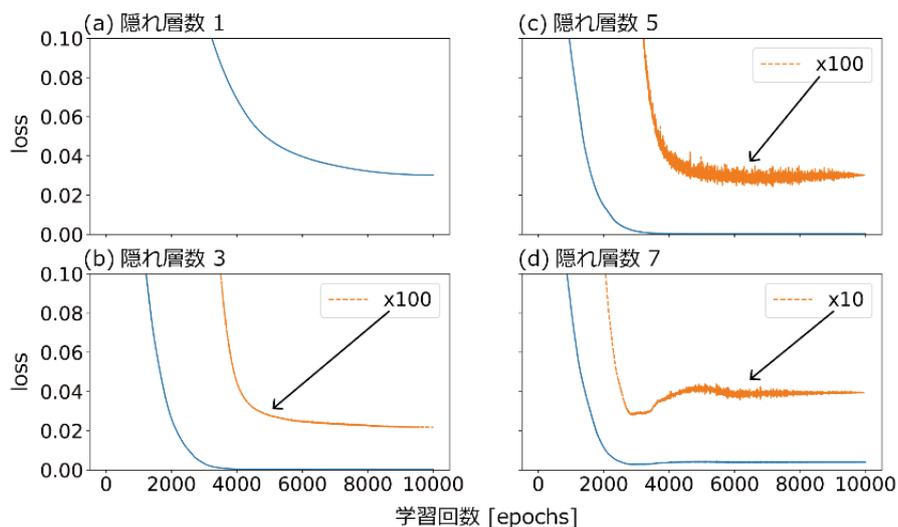


Fig. 6 組合せ B における評価データに対する学習曲線。

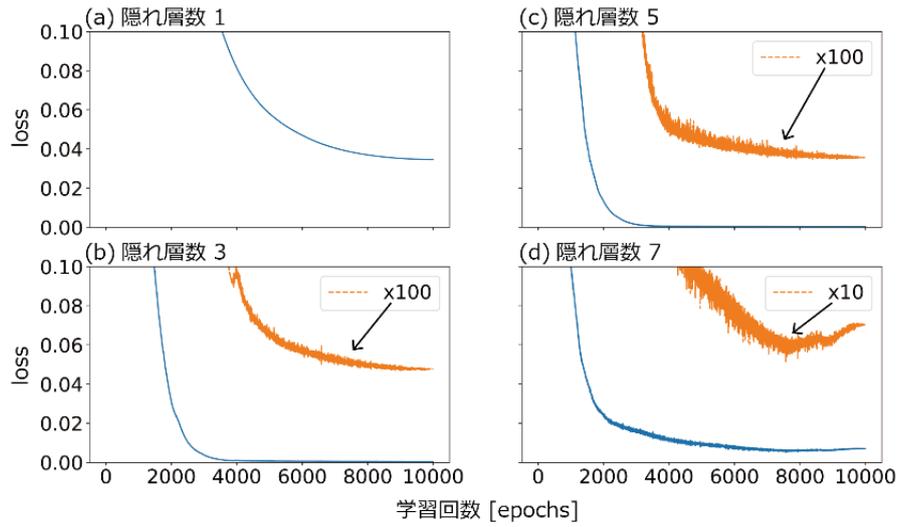


Fig. 7 組合せ C における評価データに対する学習曲線。

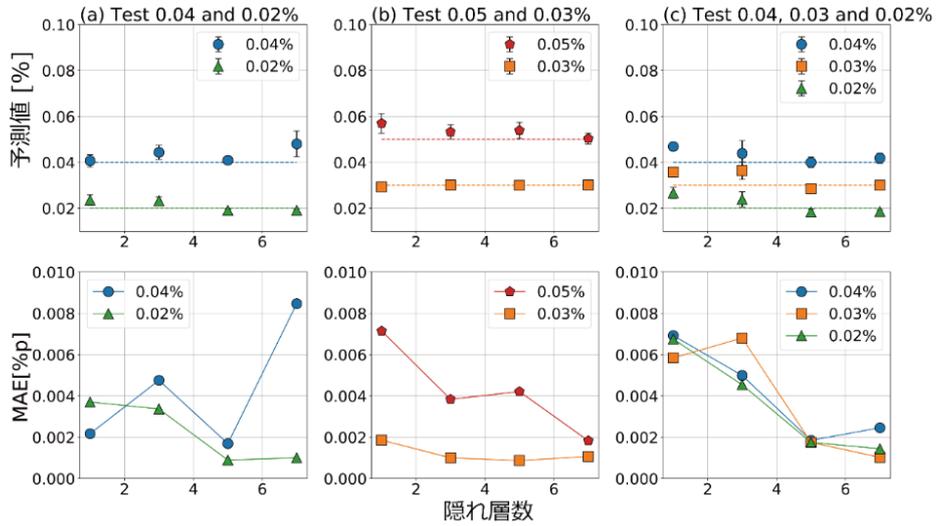


Fig. 8 評価データの一酸化炭素に対する予測結果。

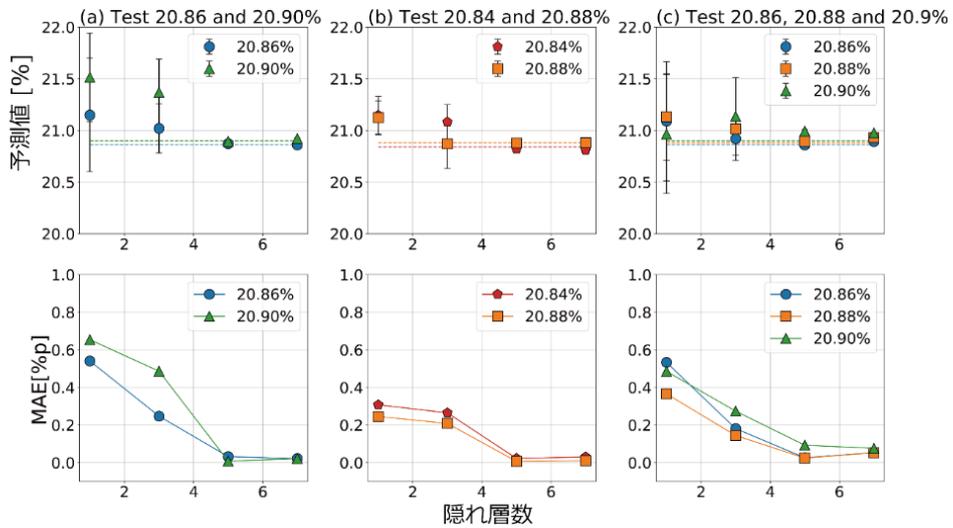


Fig. 9 評価データの酸素に対する予測結果。

6. まとめ

本稿では、我々が開発してきた酸化チタンナノチューブ薄膜ガスセンサを用いた呼気センサの実現を目指し、反応特性の異なるガスセンサを別センサとみなして説明変数を取得し、機械学習アルゴリズムの一つであるニューラルネットワークを用いた回帰による多成分気体のガス濃度予測を行い、モデルのハイパーパラメータである隠れ層の最適化を行った。その結果、反応特性の違いをセンサの違いとみなせることが示唆され、また、予測精度 (MAE) からは5層が最適な隠れ層数であることを見出した。

一方、本稿で準備した混合気体 (7種類) においては、一酸化炭素濃度に比べて酸素濃度の予測精度が低かった。その理由については未解明であるため、今後の課題として、さらに多様な成分比の混合ガスを準備して研究を行っていく。また、一般的に、訓練データの増加は機械学習の予測精度の向上に寄与するため、混合ガス種の追加は酸素濃度予測に関する課題の解決だけでなく、一酸化炭素濃度の予測精度の向上にも貢献することが期待される。

緒言でも述べた通り、我々が開発してきたガスセンサは特性を制御しアレイ化が可能である極めて大きな長所を有し、それにより、これまでになく小型の呼気センサの実現が期待できる。コロナ禍の中、呼気センサやガスセンサの必要性は今後も増加の一途を辿ると考えられる。

また、Table 1 や Table 2 に示されているようにガス情報から得られる健康情報は多岐にわたる。そのことを踏まえ、今後、それらの情報を取得可能な小型化された呼気センサを開発し、それらと IoT を組み合わせることで、日々の健康状態のモニタリングが可能となる。そして、その情報を継続的に取得・蓄積することで呼気成分と健康状態のビッグデータが得られ、それらを人工知能により解析・分析することで、疾病の早期発見のみでなく、健康状態の変化や体調の変化が予測可能となり、生活支援や健康促進などの分野において新しいサービスの構築が可能になると期待される。

謝辞

本研究における実験は東北大学電気通信研究所附属ナノ・スピン実験施設及び東北大学マイクロシステム融合研究開発センターで行われました。また、本研究は国立研究開発法人科学技術振興機構 (JST) 研究成果展開事業 研究成果最適展開支援プログラム (A-STEP) 機能検証フェーズの助成を受けて行われました。

この場をお借りして感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 機械学習については様々な教科書が存在するが、例えば、
C. M. ビショップ, 『パターン認識と機械学習 上・下』, シュプリンガー・ジャパン株式会社, 2007.
Kevin P. Murphy, "Machine Learning: A Probabilistic Perspective", The MIT Press, 2012.
E. Bernard, "Introduction to Machine Learning", Wolfram Media, 2021.
- 2) Society 5.0, https://www8.cao.go.jp/cstp/society5_0/
- 3) 佐々木永市、内野美佳, 「キーワードから見える世界: 医療 東京大学医科学研究所 これからのがん治療には AI とパソコンが欠かせない」, 海外投資 25周年記念特集, pp.12-15, 2017.
- 4) 本村陽一, 村田知佐恵, 大塚裕子, 大森隆司, 山田徹志, 『保育施設への AI 導入プロジェクトの課題と展望』, 2019年人工知能学会全国大会 (第33回).
- 5) 坂根裕, 「コーチング AI 人工知能を活用したケアの学び」, 福祉介護テクノプラス 11 (9), 14-17, 2018.
- 6) 山崎弘郎, 『センシングの基礎』 (シリーズ現代工学入門), 岩波書店, 2005.

- 7) 東原和成, 「生物がにおいを識別する仕組み」, 化学と生物, 41 (3), 150-156, 2003.
- 8) 日本臨床歯周病学会, <https://www.jacp.net/periodical/halitosis/>
- 9) 東原和成, 「嗅覚の匂い受容メカニズム」, 日本耳鼻咽喉科学会会報, 118 (8), pp.1072-1075, (2015).
- 10) 厚生労働省, 『冬場における「換気の悪い密閉空間」を改善するための換気について』, <https://www.mhlw.go.jp/content/000698866.pdf>
- 11) 野津哲生, 「電子の鼻が社会を変える 五感センサーの最後のフロンティア」, 『日経エレクトロニクス』, No. 6 pp.60-69, 2015.
- 12) 植田秀雄, 小橋恭一, 「においと疾病－生体ガス測定から何が拓けるか」, におい・かおり環境学会誌, Vol. 36, No. 5 pp.270-274, 2005.
- 13) 阿部宏之, 馬騰, 但木大介, 平野愛弓, 木村康男, 庭野道夫, 「酸化チタンナノチューブ型高感度ガスセンサの開発」, 東北福祉大学 感性福祉研究所年報, Vol. 19, pp.67-77, (2018).
- 14) Y. Kimura, K. Itoh, R. Yamagu Coulomb chi, K. Ishibashi, K. Itaya, and M. Niwano, “M. Room temperature observation of a blockade phenomenon in aluminum nanodots fabricated by an electrochemical process”, App. Phys. Lett., Vol. 90, No. 9 pp. 093119-1-093119-3, 2007.
- 15) K. Ishibashi, R. Yamaguchi, Y. Kimura and M. Niwano, “Fabrication of titanium oxide nanotubes by rapid and homogeneous anodization in perchloric acid/ethanol mixture”, J. Electrochem. Soc., Vol. 155, No. 1 pp. K10-K14, 2008.
- 16) Y. Kimura, S. Kimura, R. Kojima, M. Bitoh, M. Abe and M. Niwano, “Micro-scaled hydrogen gas sensors with patterned anodic titanium oxide nanotube film”, Sensors and Actuators B, Vol. 177, pp.1156-1160, 2013.
- 17) 阿部宏之, 馬騰, 但木大介, 平野愛弓, 庭野道夫, 「微細成形技術を用いた機能性素子の開発－酸化チタンナノチューブ型ガスセンサの開発－」, 宮城県産業技術総合センター研究報告, No. 15, pp.7-12, 2017.
- 18) 阿部宏之, 馬騰, 但木大介, 平野愛弓, 庭野道夫, 「金属酸化物多孔質体を応用したガスセンサの開発」, 宮城県産業技術総合センター研究報告, No. 16, pp.13-16, 2019.
- 19) 阿部宏之, 馬騰, 但木大介, 平野愛弓, 木村康男, 庭野道夫: 「白金微粒子を担持した酸化チタンナノチューブ薄膜を用いた高感度ガスセンサの応答特性」, 第36回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム, 19am3-PS3-51, 2019.
- 20) H. Abe, Y. Kimura, T. Ma, D. Tadaki, A. Hirano-Iwata, and M. Niwano, “Response characteristics of a highly sensitive gas sensor using a titanium oxide nanotube film decorated with platinum nanoparticles”, Sensors and Actuators B, Vol. 321, 128525, 2020.
- 21) 原和裕, 「半導体式ガスセンサおよび接触燃焼式ガスセンサ」, 電気学会論文誌 E (センサ・マイクロマシン部門誌), 135 (8), pp.270-275, 2015.
- 22) 北村雅季, 「酸化物半導体ガスセンサのための材料作製技術：最近の研究動向」, J. Vac. Soc. Jap., 60 (11), pp.415-420, 2017.
- 23) 鷲尾隆, 「機械学習による先端センシングデバイスの実現」, 日本計算機統計学会 第30回大会要旨集, pp.105-108, 2016.
- 24) G. Imamura, K. Shiba and G. Yoshikawa, “Smell identification of spices using nanomechanical membrane-type surface stress sensors”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 55, pp. 1102B3-1-5, 2016.
- 25) W. Khalaf, C. Pace and M. Gaudio, “Gas Detection via Machine Learning”, International Scholarly and Scientific Research & Innovation, Vol. 2, pp.61-65, 2008.

- 26) I. Rodriguez-Lujan, J. Fonollosa, A. Vergara, M. Homer and R. Huerta, "On the calibration of sensor arrays for pattern recognition using the minimal number of experiments", *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, Vol. 130, pp.123, 2014.
- 27) J. R. R. Kumar, R. K. Pandey and B. K. Sarkar, "Pollutant Gases Detection using the Machine learning on Benchmark Research Datasets", *Procedia Computer Science*, Vol. 152, pp.360-366, 2019.
- 28) I. Essiet, Y. Sun and Z. Wang, "Big data analysis for gas sensor using convolutional neural network and ensemble of evolutionary algorithms", *Procedia Manufacturing*, Vol. 35, pp.629-634, 2019.
- 29) J. Thorson, A. Collier-Oxandale and M. Hannigan, "Using A Low-Cost Sensor Array and Machine Learning Techniques to Detect Complex Pollutant Mixtures and Identify Likely Sources", *Sensors*, Vol. 19, pp.3723, 2019.
- 30) W. S. McCulloch and W. Pitts, "A LOGICAL CALCULUS OF THE IDEAS IMMANENT IN NERVOUS ACTIVITY", *Bulletin of Mathematical Biophysics* Vol. 5, No. 4. pp. 115-133, 1943.
- 31) D. Hebb, "Organization of Behavior", Wiley, 1949.
- 32) F. Rosenblatt, "THE PERCEPTRON: A PROBABILISTIC MODEL FOR INFORMATION STORAGE AND ORGANIZATION IN THE BRAIN", *Psychological Review*, Vol. 65, No. 6, pp.386-408, 1958.
- 33) D. E. Rumelhart and J. L. McClelland "Parallel Distributed Processing: Explorations in the Microstructure of Cognition", MIT Press, 1986.
- 34) D. P. Kingma and J. Ba, "Adam: A Method for Stochastic Optimization", conference paper at the 3rd International Conference for Learning Representations, San Diego, 2015.
- 35) 岡谷貴之, 『深層学習 改訂2版』, 講談社, 2022.
- 36) Tensorflow, <https://www.tensorflow.org/>