

パーセプトロン型ニューラルネットワークと
多次元 C^k 級補間法を用いた樹脂被覆肥料の
溶出誘導時間および80%溶出時間の推定
分子の構造活性相関解析のための
ニューラルネットワークシミュレータ:
Neco(NEural network simulator for structure-activity
COrrrelation of molecules)の開発(5)

福田 朋子^{a,b}, 田島 澄恵^c, 斎藤 久登^d, 長嶋 雲兵^{e*}, 細矢 治夫^c, 青山 智夫^f

^a 日本女子大学家政学部生活芸術学科, 〒112-8681 文京区目白台 2-8-1

^b (株)ベストシステムズ, 〒305-0035 つくば市松代 4 丁目 15-2-1-204

^c お茶の水女子大学人間文化研究科, 〒112-8610 文京区大塚 2-1-1

^d 三菱化学黒崎事業所技術開発センター, 〒806-0004 北九州市八幡西区黒崎

^e 産業技術融合領域研究所, 〒305-8562 つくば市東 1-1-4

^f 宮崎大学工学部, 〒889-2192 宮崎市学園木花台西 1-1

*e-mail: umpei@nair.go.jp

(Received: September 19, 2000; Accepted for publication: December 6, 2000; Published on Web: January 31, 2001)

被覆肥料の溶出誘導時間と80%溶出時間の見積もり時間を短縮するために、皮膜の近赤外反射スペクトルの高速フーリエ変換による $1/f$ 揺らぎ解析をもとに、パーセプトロン型ニューラルネットワークおよび多次元 C^k 級補間法を用いて溶出誘導時間および80%溶出時間を見積もった。その結果、パーセプトロンニューラルネットワークを用いると約10%程度の誤差で溶出誘導時間および80%溶出時間を見積もることができることがわかった。実測値と計算値の相関は回帰直線の傾きが0.9であり切片も小さい。相関係数も0.7程度で、実用上問題のない精度で予測が可能であることが判った。

他方 C^k 級補間法は、ニューラルネットワークに比べ若干推定精度が悪く、実測値と計算値の相関も悪くなるが、実用的な誤差範囲に入っていることが判った。

これらの方法は、近赤外反射スペクトルの測定からフーリエ変換、溶出誘導時間および80%溶出時間の計算時間まで実時間にして10分程度の時間しか必要とし

ないので、樹脂被覆肥料の溶出誘導時間と 80% 溶出時間の見積もり時間を大幅に短縮できる可能性があることがわかった。

キーワード : Polymer-Coated Manure, Elution Induce Time, 80% Elution Time, Property Estimation, Neural Network, Multi-dimensional C^k Interpolation Scheme, $1/f$ Fluctuation

1 はじめに

被覆肥料は、農業労働負担の軽減のために導入され、近年の農業従事者の減少及び高齢化を反映して、広く利用され始めている。特に稲作における重要な肥料である尿素粒の表面をポリオレフィン系樹脂で被覆することにより、肥料の溶出誘導時間と溶出速度を各種の品種及び地域特性に合わせて、様々な溶出パターンが創製されている。

樹脂被覆肥料の肥料成分溶出誘導時間と溶出速度は、直接的な実験的手法である水中での溶出パターンを測定して見積もられてきた。そのため、例えば最もニーズの高い 100 日タイプ (100 日で成分の 80% が溶出する) では、100 日以上の評価が必要であり、水温を上げ溶出速度を加速しても日数を数分の 1 にしか短縮することができない。このことは品質管理上の経済的且つ時間的負担を大きくしている。そのため、樹脂被覆肥料の溶出誘導時間と溶出速度の見積もり時間短縮の意義は極めて大きい。

そこで本研究では、樹脂被覆肥料の溶出誘導時間と溶出速度は被覆された樹脂の状態に強く関係すると考え、またさらに、樹脂の状態の違いは、被覆樹脂の近赤外反射スペクトルに現れる揺らぎに反映しているものと考えた。ただし、樹脂被覆肥料の近赤外反射スペクトルの揺らぎと溶出誘導時間と溶出速度の関係は非線形であることは窺えるものの、その具体的な関係は明らかではない。そこで、説明変数の組と目的変数間の非線形関係の自動生成機能を持つパーセプトロン型ニューラルネットワークに、樹脂被覆肥料の近赤外反射スペクトルの揺らぎと溶出誘導時間と溶出速度の関係を学習させ、それをを用いて近赤外反射スペクトルの揺らぎの情報から溶出誘導時間および溶出速度を見積もることを試みた。用いたニューラルネットワークは現在我々が開発している分子の構造活性相関解析のためのニューラルネットワークシミュレータ: Neco (NEural network simulator for structure-activity COrrrelation of molecules) [1-5] であり、学習法にバックプロパゲーション法、再構築学習法を持つことが特徴である。

さらに、最近コンピュータグラフィックスの分野で広く使われている多次元 C^k 級補間法による補間法 [6] の予測精度も比較した。多次元 C^k 級補間法は、パーセプトロン型ニューラルネットワークとは異なる非線形関数による補間法であるが、パーセプトロンに比べて学習速度が速いことがすでに知られている。多次元 C^k 級補間法も Neco に実装した。

このような方法を用いることで樹脂被覆肥料の溶出誘導時間と溶出速度の見積もり時間の大幅な短縮の可能性があることがわかったので報告する。

2 方法

すでに我々は、近赤外反射スペクトルの高速フーリエ変換による $1/f$ 揺らぎ解析 [7, 8] をもとに様々な樹脂の非接触高速分類を可能とする方法を発表している [9, 10]。近赤外反射スペクトル

の測定方法は、それらと同じである。サンプルとしては、実験的に溶出誘導時間と80%溶出時間が測定されている12のサンプルを用いた。12のサンプルの近赤外反射スペクトルを Figures 1, 2 に示す。これをみると資料により相対的強度が異なっていることがわかり、樹脂被膜の構造がサンプルにより異なっていることを伺うことができる。また、Table 1 に、12のサンプルの溶出誘導時間と80%溶出時間の実験値を示した。当然のことながらスペクトルをみただけでは、その特徴をとらえることは難しい。また、さらにそれらと溶出誘導時間と80%溶出時間の関係を見いだすのは、至難の業である。

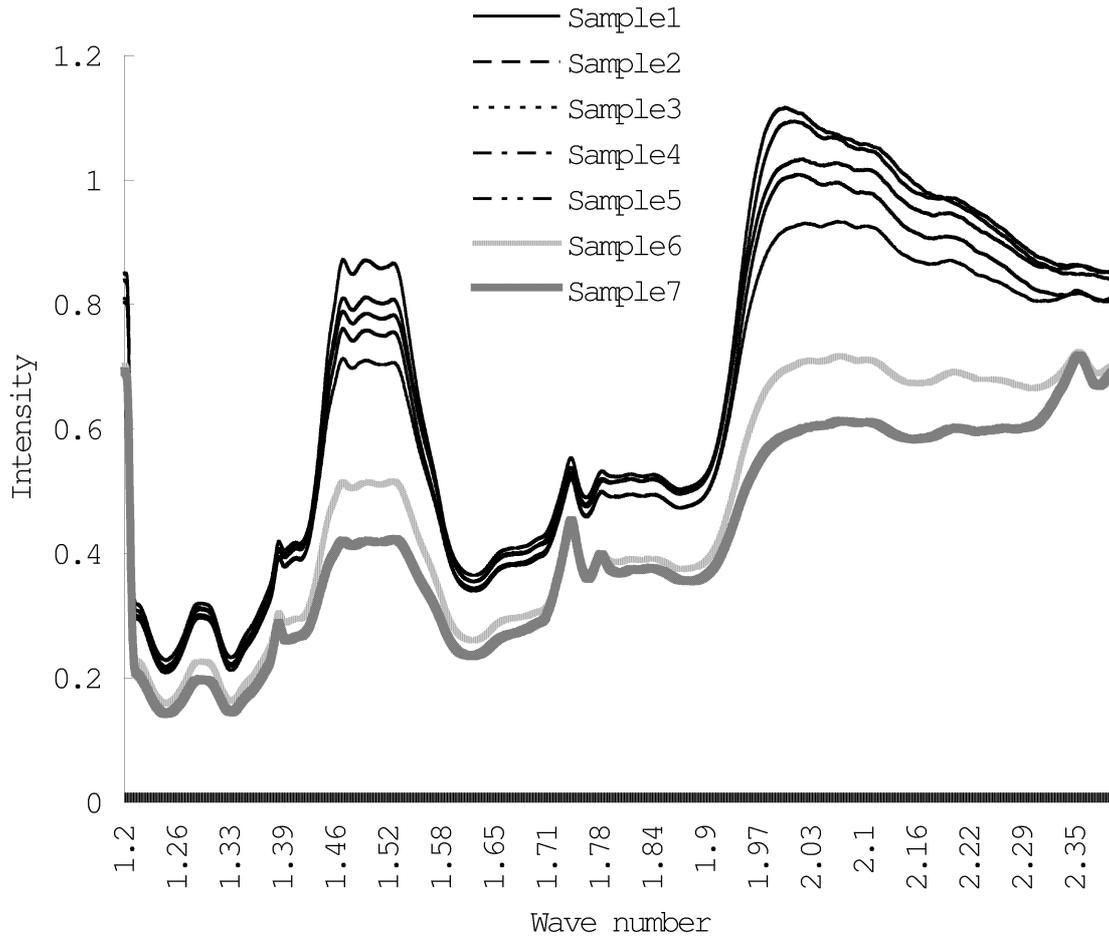


Figure 1. Near infrared reflection spectrum of samples 1-7.

そこで、Tables 1, 2 に示したデータをパーセプトロン型ニューラルネットに学習させて溶出誘導時間と溶出速度と $1/f$ 揺らぎ解析で得られる回帰直線の傾きと切片の自動抽出を行った。実際には Tables 1, 2 に示した12のサンプルのうち一つを除いたデータの組を学習したパーセプトロン型ニューラルネットを用いて、除いた1つのサンプルのデータを予測すること、すなわち leave-one-out テストによりその妥当性を検討した。

データは、傾き、切片、溶出誘導時間、80%溶出時間と促進パラメータの5つである。溶出誘導時間の推定の場合の入力データは、傾き、切片、80%溶出時間、および促進パラメータの4つのパラメータとし、80%溶出時間の推定の場合は、傾き、切片、溶出誘導時間、および促進パラメータの4つのパラメータを入力データとした。

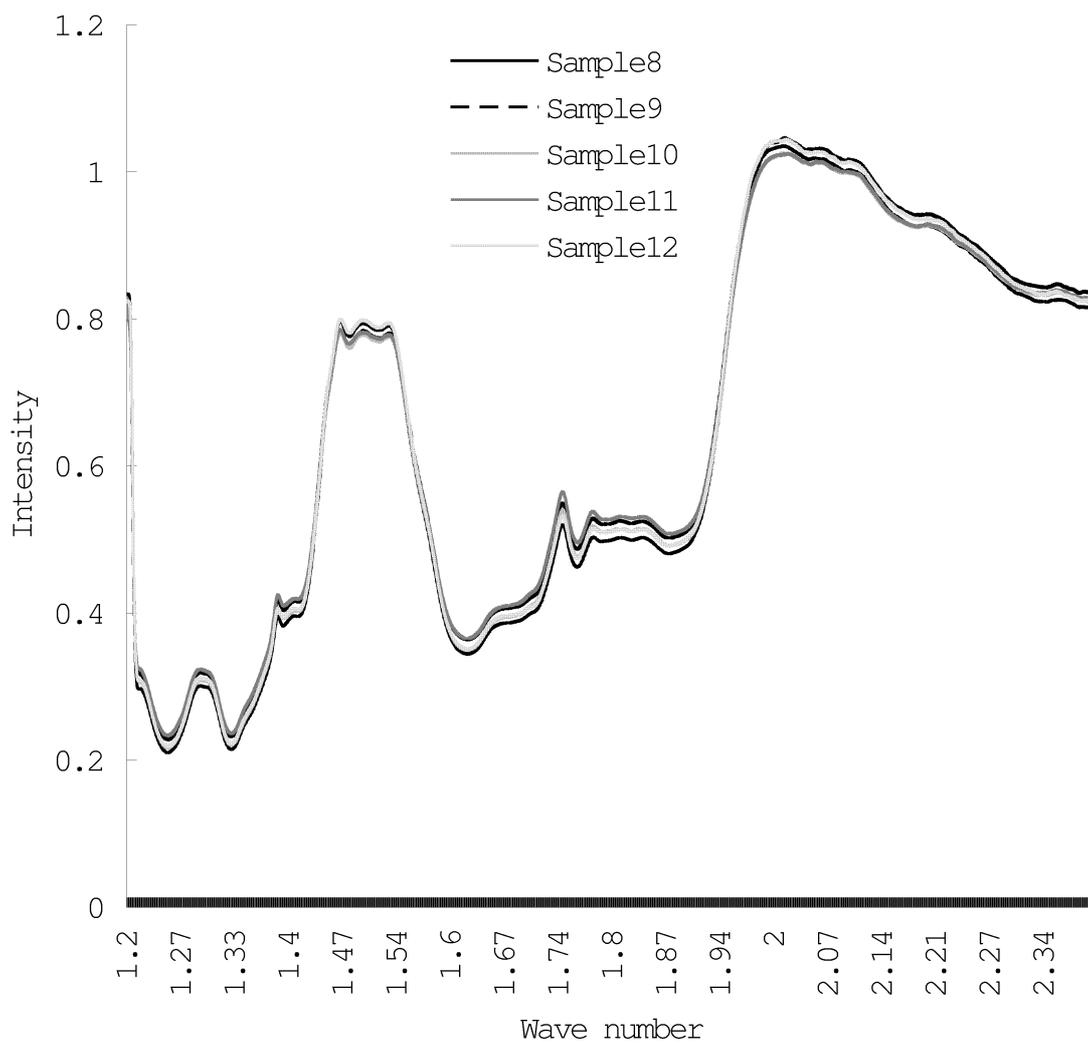


Figure 2. Near infrared refraction spectrum of samples 8-12.

Table 1. Elution induce time and 80%elution time (day) of 12 polymer-coated manure samples

Sample NO.	Ind. Time(day)	80% eltn (day)
1	27.	180.
2	28.	200.
3	12.	41.
4	47.	101.
5	68.	139.
6	70.	165.
7	55.	110.
8	40.	102.
9	58.	137.
10	62.	152.
11	63.	150.
12	93.	210.

Table 2. Slope and Cross sections of 1/f fluctuation analysis on 12 polymer-coated manure samples

Sample No.	Slope	Cross Section
1	-2.51096	-1.65557
2	-2.19985	-2.09506
3	-2.92691	-0.94487
4	-2.96842	-0.92185
5	-2.92435	-0.97957
6	-2.75236	-1.24469
7	-2.84342	-1.08294
8	-3.09626	-0.80936
9	-2.94326	-0.96791
10	-3.11999	-0.68728
11	-2.96057	-0.88428
12	-2.85455	-1.04914

パーセプトロン型のニューラルネットのネットワーク構造は、入力データ数に対応する入力層ニューロン数4、中間層ニューロン数8、出力層ニューロン数1とした。学習誤差のしきい値は、0.0008である。

ニューラルネットワークによる推定は、非線形の多次元フィッティングとそれによる補間である。そこで、線形の多次元フィッティングと比較するために、現在コンピュータグラフィックスなどで広く用いられている佐藤と二宮らの不規則分布2変数データに対する C^k 級補間法 [6] をn次元に拡張し、その性能をあわせて評価することとした。

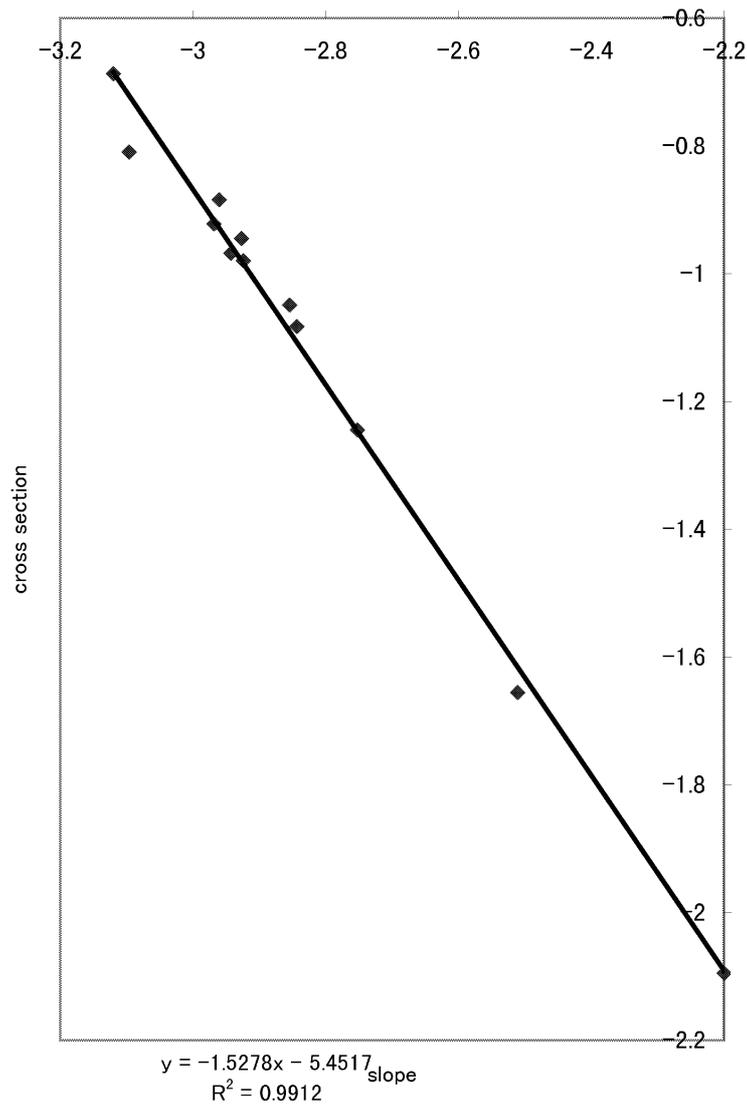


Figure 3. Plot of Slope and Cross section of fluctuation analysis (See Table 2 for details.)

3 計算結果

3.1 1/f 揺らぎ解析

Figures 1, 2 に示されたスペクトルの 1/f 揺らぎ解析によって得られた回帰直線の傾きと切片を Table 2 に示す。Figure 3 には、傾きと切片の関係を示した。Figure 3 をみるとそれぞれの傾きと切片にはある種の相関が見られる。この相関の本質的な意味は現在解析中であるが、樹脂被覆肥料の近赤外反射スペクトルの 1/f 揺らぎが何らかの規則性を持つことを示唆している。

3.2 パーセプトロン型ニューラルネットを用いた溶出誘導時間および 80% 溶出時間の推定

Table 3 にニューラルネットを用いて推定された結果を、実測値並びに相対誤差 (%) とともに示した。溶出誘導時間の短いサンプル 1, 2, 3 を除けば、溶出誘導時間は約 10% 程度のエラーで推定が可能であることがわかる。Table 2 から分かるように、サンプル 1, 2, 3 は、説明変数の定義域から離れているものである。80% 溶出時間は、全体的に 20% 程度の誤差内で予測ができている。溶出誘導時間と 80% 溶出時間の計算値と実測値の相関を Figures 4, 5 に示した。

図中灰色の直線は $y=x$ の線である。黒線は回帰直線であり、それらは、それぞれ以下の通りである。

溶出誘導時間 (Figure 4) : $y_{obs.} = 0.9223x_{calc.} + 3.557$ ($R^2 = 0.6862$),

80% 溶出時間 (Figure 5) : $y_{obs.} = 0.9639x_{calc.} + 6.294$ ($R^2 = 0.8617$)

Table 3. Estimated elution induce time and 80% elution (days) by neural network

Sample No.	Obs.		Calc.		Error(%)*	
	Ind.time	80% eltn	Ind.time	80% eltn	Ind.time	80% eltn
1	27.	180.	56.6	140.6	107.4	22.0
2	28.	200.	9.3	214.6	-66.8	7.3
3	12.	41.	25.2	34.7	110.0	-15.4
4	47.	101.	43.3	116.2	-7.7	15.0
5	68.	139.	62.5	159.2	-8.1	14.5
6	70.	165.	71.6	159.2	2.3	-3.5
7	55.	110.	50.9	129.7	7.5	17.9
8	40.	102.	43.6	99.4	9.0	-2.5
9	58.	137.	63.6	132.6	9.7	-3.2
10	62.	152.	53.6	167.2	-13.5	10.0
11	63.	150.	68.3	142.8	8.4	-4.8
12	93.	210.	80.8	193.2	-13.1	-8.0

* relative error: $(calc.-obs.) \times 100.0 / obs.$

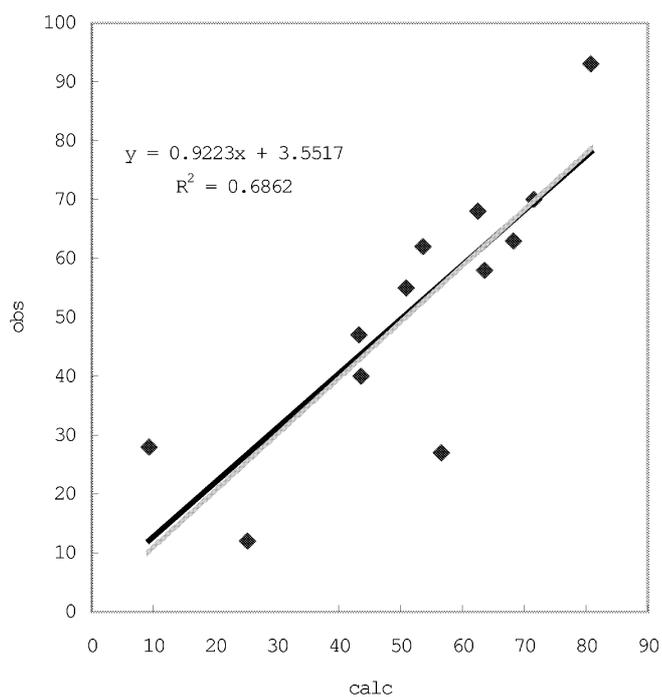


Figure 4. Correlation between observed and calculated elution induced time.(days)

gray line: $y=x$, black line: regression line $y=0.9223x+3.5517$ $R^2 =0.6862$

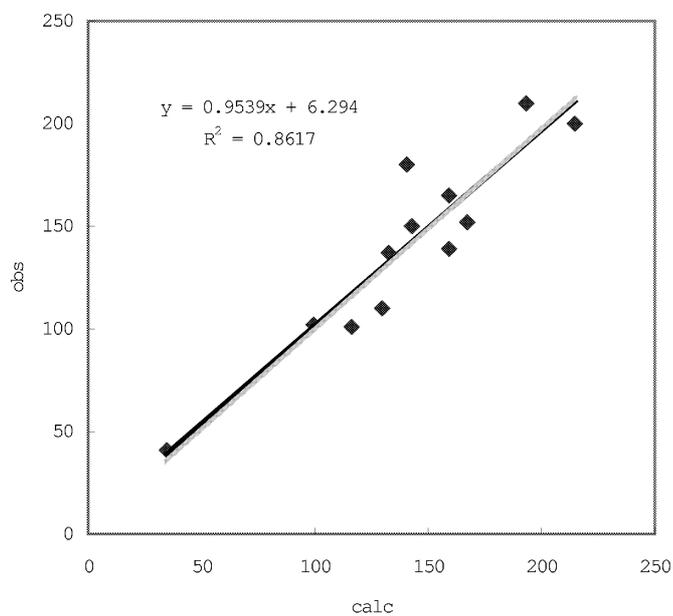


Figure 5. Correlation between observed and calculated 80% elution.(days)

Gray line: $y=x$, black line: regression line $y=0.9539x+6.294$ $R^2 =0.8617$

溶出誘導時間の推定に比べ、80%溶出時間の推定の方が傾きが1に近く R^2 も小さいが、逆に切片は大きい。それぞればらつきは大きいとはいえ、実測値と計算値の回帰直線の傾きは0.9で1.0に近く、切片も一桁である。さらに、溶出誘導時間ならびに80%溶出時間の実験値に含まれる誤差が10%程度であることを考慮すると実用に十分耐えうる精度で推定がなされていることが分かる。

3.3 C^k 級補間法を用いた溶出誘導時間および80%溶出時間の推定

佐藤と二宮らの不規則分布2変数データに対する C^k 級補間法[6]は、不規則に分布したN個の2変数データ (x_i, y_i) , $f_i=f(x_i, y_i)$, $(i=1, N)$ に対し、各データ点を頂点とする三角メッシュの作成と各データ点におけるk階までの偏微分値の算出とを経て、定義域全体にわたって C^k 級となる補間関数を各三角要素ごとに設定し、定義域内の補間を行う。ただし、定義域外の点の補間は、 $(k-1)$ 次多項式を用いた最小自乗法によって補間値を求める。本研究ではこれをn次元に拡張して溶出誘導時間と80%溶出時間の推定を行った。ただし、本研究の場合、3次元の問題で、そのサンプル数が12であるため、 $k=3$ としか取れなかった。

C^k 級補間法を用いた結果をTable 4にまとめた。サンプル番号6を除けば、学習定義域外の点の外挿となっている。定義域内の数値すなわちサンプル番号6, 9, 11の溶出誘導時間、サンプル番号6の80%溶出時間の誤差は高々10%である。サンプル番号3のデータの推定が極端に悪いことを除けば、ニューラルネットによる予測にほぼ同程度の誤差で推定ができています。

Table 4. Estimated elution induce time and 80% elution (days) by C^k class interpolation

Sample No.	Obs.		Calc.		Error(%)*	
	Ind.time	80% eltn	Ind.time	80%eltn	Ind.time	80%eltn
1	27.	180.	48.8 ^a	160.1 ^a	80.7	-11.1
2	28.	200.	41.3 ^a	229.4 ^a	47.4	14.7
3	12.	41.	50.6 ^a	168.5 ^a	321.3	310.9
4	47.	101.	48.8 ^a	93.1 ^a	3.8	-7.8
5	68.	139.	59.1 ^a	164.1 ^a	-13.0	18.1
6	70.	165.	63.1	146.4	-9.8	-11.2
7	55.	110.	52.2 ^a	126.7 ^a	-5.1	15.2
8	40.	102.	34.5 ^a	138.0 ^a	-13.7	35.3
9	58.	137.	64.3	123.6 ^a	10.9	-9.8
10	62.	152.	59.7 ^a	153.1 ^a	-3.7	0.7
11	63.	150.	69.3	122.2 ^a	9.9	-18.5
12	93.	210.	73.6 ^a	187.8 ^a	-20.9	-10.6

* relative error: $(\text{calc.} - \text{obs.}) \times 100.0 / \text{obs.}$ ^a :out of definition area.

Figures 6, 7に観測値と計算値の相関図をしめす。これをみると、 C^k 級の補間法による推定はニューラルネットワークを用いたものより観測値と計算値の相関が悪いことが判る。特にサンプル3が悪い。

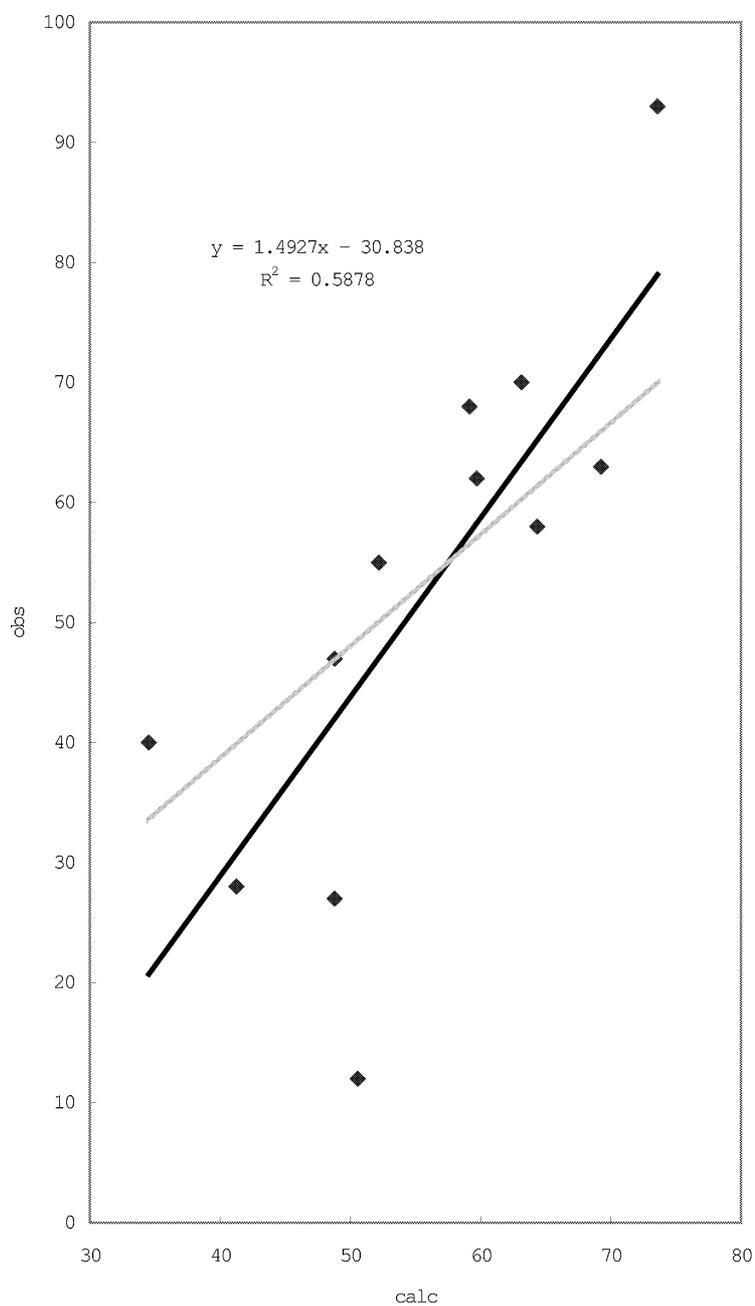


Figure 6. Correlation between observed and calculated elution induced time by C^k class interpolation
 gray line: $y=x$, black line: regression line $y=1.4927x+30.838$, $R^2 =0.5878$

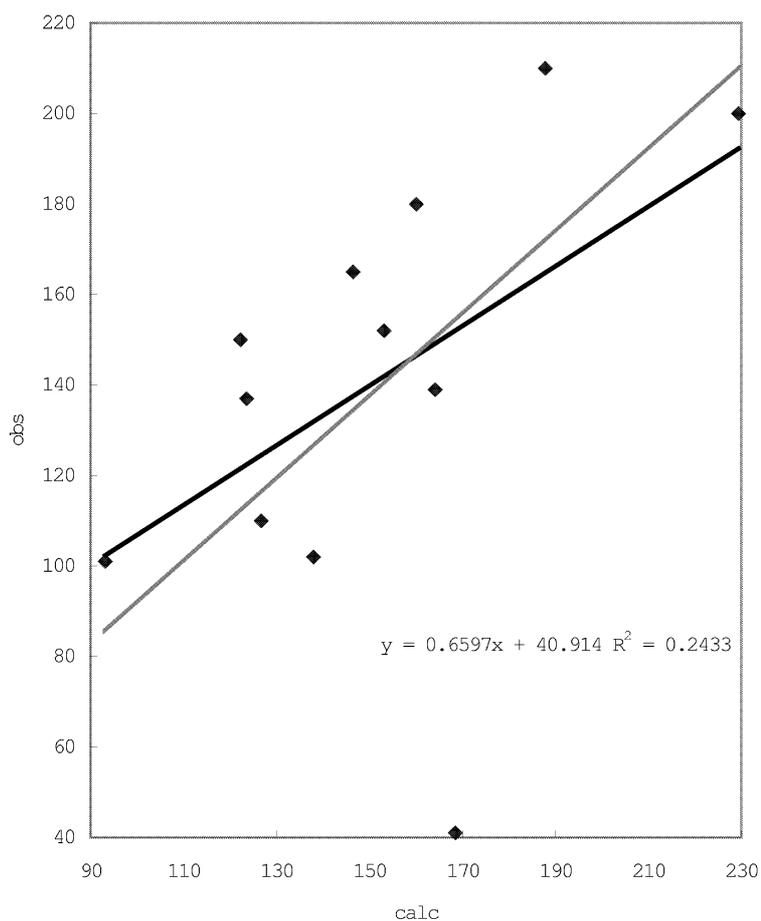


Figure 7. Correlation between observed and calculated 80% elution.(days) by C^k class interpolation
 gray line: $y=x$, black line: regression line $y=0.6597x+40.914$, $R^2 =0.2433$

また、Table 5 に Figures 4–7 に示した回帰直線の傾きと切片および R^2 をまとめた。この相関の回帰直線の傾きが 1 に近く、切片が 0、 R^2 が 1 に近ければ推定精度が高いとすることができる。Table 5 をみるとニューラルネットの方が C^k 級補間法に比べて精度が高いことが判る。

Table 5. Slope, cross section and R^2 of regression lines in Figures 4–7.

Elution induce time				
Method	slope	cross section	R^2	
Neural Net	0.9223	3.5517	0.6862	Figure 4
C^k	1.4927	30.838	0.5878	Figure 6
80% elution time				
Method	slope	cross section	R^2	
Neural Net	0.9539	6.294	0.8617	Figure 5
C^k	0.6597	40.914	0.2433	Figure 7

むしろ、 C^k 級補間法に関しては、本研究では学習データ数が少ないため、 $k=3$ としか取れなかった。そのため補間に利用できる関数系が少なくなり、十分な補間ができなかったものと考えることができる。また、推定点がサンプル 6 を除いて学習点の組によって定義される域外にあり、外挿となってしまった。これも C^k 級補間法での推定精度を下げている一因である。

樹脂被覆肥料の近赤外反射スペクトルの測定とその $1/f$ 解析および推定に必要な処理時間の多くは近赤外反射スペクトル測定のステップであり、それは高々 2,3 分である。また、 $1/f$ 解析および推定に必要なすべての計算時間は 1 分程度である。そのため、本方法を用いることで樹脂被覆肥料の溶出誘導時間と 80% 溶出時間の見積もり時間の大幅な短縮が可能となる。

4 まとめ

樹脂被覆肥料の成分溶出誘導時間と 80% 溶出時間の推定を、被膜樹脂成分の近赤外反射スペクトルの $1/f$ 揺らぎ解析とニューラルネットワークによる非線形不規則データ補間法によって行った。この方法を用いると、溶出誘導時間および 80% 溶出時間の推定に関し、実用に十分耐えうる精度で推定が可能であることが分かった。線形の多次元 C^k 級補間法では、ニューラルネットワークの結果に比べ、推定精度が悪かった。

近赤外反射スペクトルの測定と解析は、実時間でたかだか 10 分以下であるので、樹脂被覆肥料の成分溶出誘導時間と 80% 溶出時間の推定を従来に比べ格段に短い時間で実行できる可能性があることが判った。

今後の課題としては、さらに多量のデータを基礎に学習精度を向上させ、推定精度をより高くする必要がある。また、実際の作業工程のシステム化も今後の課題である。

参考文献

- [1] 井須芳美, 長嶋雲兵, 細矢治夫, 青山智夫, *J. Chem. Software*, **2**, 76 (1994).
- [2] 井須芳美, 長嶋雲兵, 細矢治夫, 大島 茂, 坂本曜子, 青山智夫, *J. Chem. Software*, **3**, 1 (1996).
- [3] Isu, Y., Nagashima, U., Aoyama, T., Hosoya, H., *J. Chem. Info. Comp. Sci.*, **36**, 286 (1996).
- [4] 藤谷康子, 小野寺光永, 井須芳美, 長嶋雲兵, 細矢治夫, 青山智夫, *J. Chem. Software*, **4**, 19 (1998).
- [5] 田島澄恵, 松本高利, 田辺和俊, 長嶋雲兵, 細谷治夫, 青山智夫, *J. Chem. Software*, **6**, 115 (2000).
- [6] 佐藤義雄, 二宮市三, 情報処理学会論文誌, **22**, 581 (1981).
- [7] 武者利光, ゆらぎの世界 - 自然界のゆらぎの不思議 -, 講談社, 東京 (1980).
- [8] 武者利光, ゆらぎの発想 - 1/f ゆらぎの謎に迫る -, NHK 出版, 東京 (1994).
- [9] 小野寺光永, 長嶋雲兵, 加藤澄江, 細矢治夫, 後藤成志, 天野敏男, 田辺和俊, 上坂博亨, *J. Chem. Software*, **5**, 93 (1999).
- [10] 小野寺光永, 長嶋雲兵, 加藤澄江, 細矢治夫, 後藤成志, 天野敏男, 田辺和俊, 上坂博亨, *J. Chem. Software*, **5**, 103 (1999).

Estimation of Elution Induce Time and 80% Elution Time of Polymer-Coated Manure by a Neural Network and C^k Interpolation Scheme

— Development of a Neural Network Simulator for Structure-Activity Correlation of Molecules: Neco (5) —

Tomoko FUKUDA^{a,b}, Sumie TAJIMA^c, Hisato SAITOH^d, Umpei NAGASHIMA^{e*}, Haruo HOSOYA^c and Tomoo AOYAMA^f

^aDepartment of Life Arts, Faculty of Home Economics, Japan Women's University
2-8-1 Mejirodai, Bunkyo-ku, Tokyo 112-8681, Japan

^bBestsystems Co. Ltd., 4-15-2-1-204 Matsushiro, Tsukuba, Ibaraki 305-0035, Japan

^cDepartment of Human Culture and Sciences, Graduate School of Ochanomizu University
2-1-1 Otsuka, Bunkyo-ku, Tokyo 112-8610, Japan

^dMitsubishi Chemical Kurosaki R&D Center
Kurosaki, Yahatanishi-ku, Kitakyusyu, Fukuoka 806-0004, Japan

^eNational Institute for Advanced Interdisciplinary Research
1-1-4 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305-8562, Japan

^fFaculty of Technology, Miyazaki University
Gakuenkhanadai Nishi, Miyazaki 889-2192, Japan

**e-mail: umpei@nair.go.jp*

We present a method to estimate elution induced time and 80% elution time of polymer-coated manure using 1/f fluctuation analysis of near-infrared reflection spectrum and a perceptron type neural network and/or C^k interpolation scheme in order to reduce the evaluation time of elution induce time and 80% elution time. Usually, the evaluation time of elution induce time and elution speed is more than 20 days.

In the case of the neural network, relative error is almost less than 10%. Furthermore, the slopes of regression lines for the correlation between observed and calculated values are almost 0.9. For the C^k interpolation scheme, the error is a little bit larger than those of the neural network but less than 20%. This method is applicable for actual use because more than 10% error is included in the observed values. This method requires almost 10 minutes so that the evaluation cost of elution induce time and elution speed of polymer-coated manure will be significantly improved.

Keywords: Polymer-Coated Manure, Elution Induce Time, 80% Elution Time, Property Estimation, Neural Network, Multi-dimensional C^k Interpolation Scheme, 1/f Fluctuation