

《小特集》

におい感覚量評価を行うセンシングシステム

中 本 高 道*・桜 庭 祐 一*
井 手 純 一**・森 泉 豊 栄*

ABSTRACT Odor sensing system is required in many fields such as food, drink, cosmetics and environmental testing etc. since there has been no objective evaluation method instead of traditional human sensory test. In the present study, sensing system, by which human sensory test can be replaced, was studied for predicting odor sensory quantities. It is composed of vapor supply system using auto-sampling stage, sensors, electronic portion and neural network. Neural network can be used for mapping sensor data space onto sensory quantity space after training. The experiment was performed so that odor similarities could be extracted from the data of a quartz-resonator sensor array by FLVQ (Fuzzy Learning Vector Quantization, a neural network model proposed by the authors). It was found that the odor similarities among various kinds of flavors such as bergamot and petitgrain etc. could be estimated using that system.

1. はじめに

現在、においをセンシングするシステムの研究が活発に行われている。においの検査は通常、人間による官能検査により行われているが、日々の体調、気分依存するために客観的な評価法の開発が望まれている。においの計測は、食品、飲料、化粧品、環境計測等多くの分野で必要とされており、広い分野に渡って重要なテーマとなっている。

ガス分析法としてはガスクロマトグラフ法（以下GC法と略す）がよく知られており¹⁾、においの分析にも使われている。GC法はにおいを構成する分子種の定量分析として優れているが、前処理の時間も含めて測定時間がかかる、試料を高温にさらす必要がある、人間の官能検査の結果と必ずしも対応しないなどの問題点がある。そこで、センサを用いたにおい計測法が注目されている。

センサを用いる場合、単一センサで特定のにおいに対する十分な選択性が得られない。生体嗅覚では、嗅細胞の特異性が低く複数の嗅細胞の出力パターンが嗅覚神経系でパターン認識され、においの識別が行われていると言われており²⁾、生体嗅覚の仕組みを真似る

ことによりにおいに対する識別能力の向上を実現できる。センサとしては、半導体ガスセンサ³⁾、水晶振動子ガスセンサ⁴⁾、SAW (Surface Acoustic Wave) センサ⁵⁾、電気化学センサ⁶⁾、導電性ポリマ⁷⁾と多変量解析を組み合わせて主に有機ガスの識別を行う方法が提案されている。

筆者のグループは、複数水晶振動子ガスセンサの出力パターンをANN (Artificial Neural Network) でパターン認識することにより洋酒、香料等のにおいの種類の識別を行うことができることを報告した^{8)~10)}。筆者らの開発したシステムにより微妙なにおいの違いを識別することが可能である。そこで、におい識別の次の課題として、におい間の類似性、におい感覚量を測定するシステムの研究を行った。本稿では、この課題について、筆者らの行った一連の研究を述べる。

2. 官能検査

最初に、においの検査に一般に用いられている官能検査について説明する。官能に頼る検査は、人間の鼻による判断であるため、心理的作用が影響することがあり、信頼性のあるデータが得られにくい。従って、信頼性のあるデータをとるためには統計的処理が不可欠である。官能検査は、視覚、聴覚、触覚、味覚等広い範囲で用いられるが、ここでは嗅覚に限定して述べる。

まず、におい刺激を人間に提示する方法であるが、簡便な方法としてはにおい紙に香水等をつけてそのに

Sensing System for evaluating odor sensory quantity. By Takamichi Nakamoto, Yuuichi Sakuraba and Toyosaka Moriizumi (Faculty of Engineering, Tokyo Institute of Technology) and Jun-ichi Ide (T. Hasegawa Co., Ltd.).

*東京工業大学工学部

**長谷川香料㈱

おいを嗅ぐ方法、グラスに入れた試料のにおいをそのまま嗅いで評価する方法がある。また、吸着の少ない補集袋の中ににおいを詰め人間が嗅ぐ、におい袋法もある¹¹⁾。

これらの方法は、操作が簡単なために多用されているが、厳密な評価を行うためには実験条件を統一する必要がある。考慮すべき実験条件としては、濃度、温度、湿度、流量、嗅ぎ方などがある。これらの条件を制御して官能検査を行う装置として、オルファクトメータがある¹²⁾。

におい刺激を人間に与えた後は、人間から感覚量の情報を引き出すことが必要になる。その検査の方法は大別すると嗜好型と分析型官能検査に分けられる。前者は人間の嗜好特性を知るために用いられ、後者は人間の感覚器を測定器の代わりに用いて、試料の特性を測定したり試料間の差を検出する官能検査をいう¹³⁾。嗜好型官能検査の代表的なものとして図1に示すSD (Semantic Differential) 法がある¹⁴⁾。SD法は言葉の意味を測定するために考案されたもので、刺激に対する反応を多次的に表現するために、上品-下品、弱い-強い等の反対語を両端においた5~7段階の評定尺度を10~30個程度用い、それらの尺度をもとに評定する。ただし、あらかじめ反対語を作りにくい場合には、単独の評定尺度を用いる場合もある。評定尺度の項目、スケールは、あらかじめ少数の被験者に対して予備テストを行い、その結果を元に項目、尺度を選定して多数被験者のテストを行う。そして、得られた多次元情報を因子分析¹⁵⁾等を行って、刺激間の基本的な構造を調べる。

次に分析型官能検査について述べる。その中には、2点識別法、2点同定法、3点識別法、ふりわけ識別法等多数存在するが、ここではふりわけ識別法につい

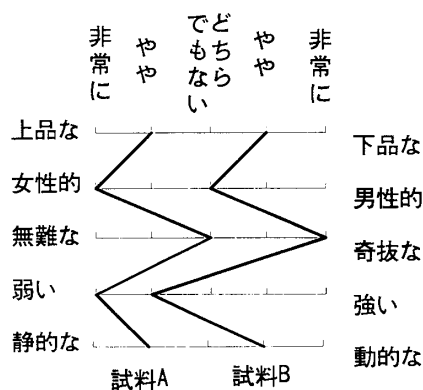


図1 SD法の例

て説明する。それは、 m 個の試料 A と n 個の試料 B をランダムな並べ方で提示し、これらの試料群が m 個の A と n 個の B から構成されていることを被験者に教えた上で A 群と B 群に振り分ける方法である。においの研究者として有名なアムースは嗅覚いき値の測定の際、図2のように、 $m=2$, $n=3$ としてこの方法を用いた¹⁶⁾。

このような官能検査により、においの検査、評価が行われている。しかし、1回の検査では結果のバラツキが多いため複数回の実験が必要である。個人差が存在するので多数の人間のデータを統計処理し客観的データを得る必要がある等の問題がある。さらに、人間は多くのにおいを短時間で嗅ぎ分けるのは難しく、すぐ疲労してしまう。これらの問題を解決するために、センシングシステムが有用であり、開発が待たれている。次節ではそのシステムについて述べる。

3. においセンシングシステム

3.1 原理

においセンシングシステムの原理を図3に示す。特性の異なる複数センサの出力パターンを ANN に入力する。におい間の類似性及びにおい感覚量の測定を行う場合には、それに対応した官能検査の結果を教師信号として、センサ空間とにおい感覚量の空間の写像関係を学習させる。

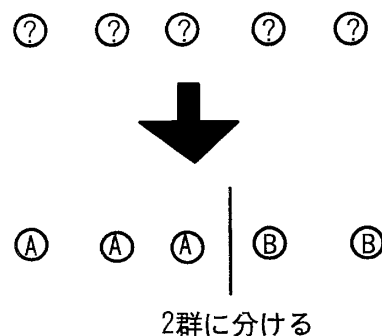


図2 振り分け識別法

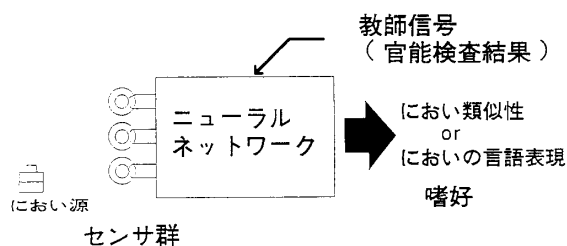


図3 においセンシングシステム原理図

筆者らは、センサとしては主に水晶振動子ガスセンサを用いた。その構造を図4に示す。水晶振動子ガスセンサは、水晶振動子の電極上におい吸着する感応膜を塗布したものである^{17),18)}。振動子は発振回路に接続され、その発振周波数を計測する。におい分子が感応膜に吸着すると、質量負荷効果により発振周波数が減少し、脱着すると元に戻る。この周波数変化をセンサ出力とする。においの種類を変えると、応答の大きさが変わる。また、感応膜を変えると各においに対する応答のしかたが変化する。従って、1つのセンサでは十分な識別能力が得られないが、複数センサの出力パターンを解析することにより、においに対する識別能力を向上させることができる。

振動子は温度安定なAT-CUTとし、基本共振周波数は約10 MHzのものを用了。感応膜としては、生体細胞膜の構成要素である脂質膜、GC法の固定相材料、セルロース系の材料の中から、対象臭に合わせて最適な膜の組み合わせを選んで使用している²⁰⁾。

ANNとしては、BP (Back Propagation) 法²¹⁾を学習則とするMLP (MultiLayer Perceptron)、および筆者らの提案したFLVQ (Fuzzy Learning Vector Quantization) を用いた。ただし、後述の実験結果はFLVQによるものである。入力パターンと教師信号をネットワークに同時に提示し、学習を行わせる。これを繰り返す行くと出力層ニューロンの出力に教師信号が近づき両者が等しくなる。その後、新たに測定したセンサアレイ出力パターンをネットワークに入力すれば、においの識別や類似性計測が可能となる。教師信号は識別の場合は0もしくは1の離散値であるが、におい感覚量計測の場合にはアナログ値となる。

同様のことを回帰分析等¹⁹⁾を利用して行うことも考えられる。しかし、一般にセンサ空間と感覚空間の関係は非線形であるために、筆者らの実験において回帰分析では十分な結果は得られなかった。そこで、本研究ではANNを使用する。

3.2 測定系

においセンシングシステムは、においを供給するフ

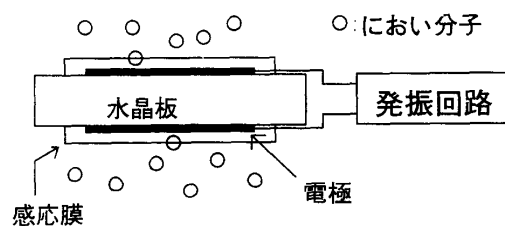


図4 水晶振動子ガスセンサの構造図

ロー系、センサ群を収納するセンサセル及び測定のための電子回路より構成されている。以前は、多数のサンプルを電磁弁で切り換えてセンサセルに供給する方式をとっていたが⁹⁾、最近はおートサンプリングステージを利用した多検体測定システムを使用している²²⁾。

システム構成図を図5に示す。サンプルは、アルミジールバイアル瓶の中に入れてセットする。バイアル瓶上部にはセプタムというゴム栓があり、シリンジ針2本を突き刺し、乾燥空気を瓶内に入れてにおい蒸気をセンサセルに送る。乾燥空気の流量はマスフローコントローラで制御され、電磁弁により乾燥空気とサンプルのいずれかが選択されてセンサセルに送り込まれる。シリンジ針及び電磁弁はXYZステージ(三協精機, Sankyo SKIRAM SR5383)に搭載され、シリンジ針が移動してバイアル瓶のセプタムを突き刺す。これを洗浄瓶と試料瓶をくり返し測定する。XYZステージはパーソナルコンピュータにより制御されているので、多数の試料について自動測定が可能である。

センサセル内には、異なる膜を塗布した8個の水晶振動子ガスセンサが設置され、それぞれが発振回路に接続される。発振周波数変化は多チャンネル周波数カウンタにより同時並列に測定され、パーソナルコンピュータにデータが送られる。ANNによる解析にはワークステーションを用いる。

なお、バイアル瓶は恒温槽内に設置され、23°Cの一定温度に保つ。また、センサセル内のセンサの温度は、恒温槽の水を循環させて一定に保たれている。

4. おいに対する応答パターン測定

前節の測定系を用いて、各種精油のにおい応答パターンを得た。センサとしては表1に示す8種類の感応膜を塗布した振動子を用いた。主に脂質膜を用いており、6~7は異なる種類の脂質を混合した膜である。

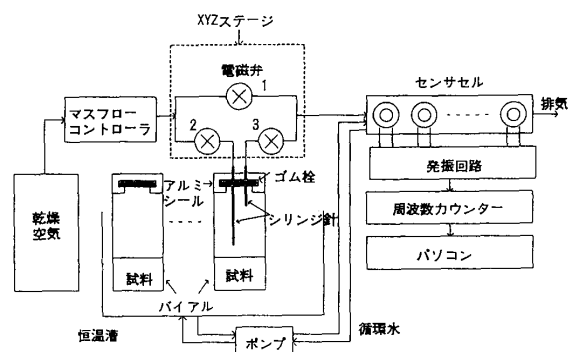


図5 自動ステージを用いた多検体測定システム

表1 20種類の精油測定に用いた感応膜

No.	感応膜	分類
1	Diolelyl phosphatidyl serin	脂質
2	Sphingomyelin	脂質
3	Diolelyl phosphatidyl choline	脂質
4	Lecithin	脂質
5	Perfluorinated bilayer	脂質
6	Sphingomyelin 33% Cholesterol 67%	脂質
7	Sphingomyelin 50% Lecithin 50%	脂質
8	Ethylcellulose	セルロース

乾燥空気の流量は 90 ml/min で、30 秒間においセンサセルに導入し、導入前後の周波数差を測定し、センサ出力を応答パターンを次式に従い規格化した。

$$X_i = \frac{x_i}{\sum_{i=1}^8 x_i} \quad (1)$$

ただし、 x_i , X_i は、それぞれ規格化前後における各センサ出力を示す。

20種類の精油に関して各4回、センサアレイ応答パターンを測定した。これらの精油の中には、シトラス調、フローラル調、ミント調、スパイス調等のおいが含まれている。測定した8次元の応答パターンを主成分分析²³⁾により2次元に圧縮して得た散布図を図6に示す。各軸についている数字はその軸の寄与率である。これらの試料はほぼ分離され、識別可能なパターン分離が得られていることがわかる。

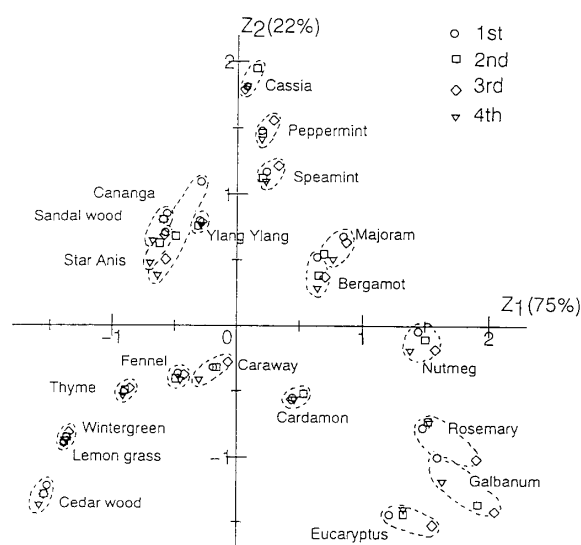


図6 20種類の精油に対する応答パターンの主成分分析結果

5. におい類似性の計測

5.1 FLVQ によるにおいの類似性表現

FLVQ は、Kohonen の提案した LVQ (Learning Vector Quantization)²⁴⁾を内部表現としてファジイ数を持つように拡張したものである。当初のものはカテゴリ判別用のもので0/1の離散値を出力するのみであったが²⁵⁾、これをアナログ値を出力しにおい類似性を表現できるように拡張した。

ネットワークを構成するニューロンモデルを図7に示す。各ニューロンは内部に参照ベクトルを有し、入力ベクトル、参照ベクトルの次元はセンサ数と等しく共に n 次元である。各ベクトル要素はファジイ数で、そのメンバシップ関数は3角形もしくは台形である。また、図中横軸はネットワーク入力空間の座標軸であり、各センサ出力に対応する。各ニューロン内の演算は、

$$\mu_j = \max_{u_j} x(u_j) \wedge m(u_j) \quad (2)$$

$$\mu = \min_j \mu_j \quad (3)$$

と表される。ここで、 $x(u_j)$, $m(u_j)$ は、入力ベクトル及び参照ベクトルの j 番目の要素のメンバシップ関数である。各ニューロン内で、各ベクトル要素の積集合メンバシップ値の最大値 μ_j を求め、 n 個の要素の中で最小の μ_j を入力ベクトルと参照ベクトルの類似度 μ として出力する。

次にネットワーク全体の構成図を図8に示す。1つのカテゴリは複数のニューロンより構成され、それらの参照ベクトルに対する最大値を、入力ベクトルがそのカテゴリに属する割合（カテゴリ類似度）として出力する。従って、ネットワーク出力の数はカテゴリ数と同じだけ存在する。

それから、学習は参照ベクトルの位置の移動、あい

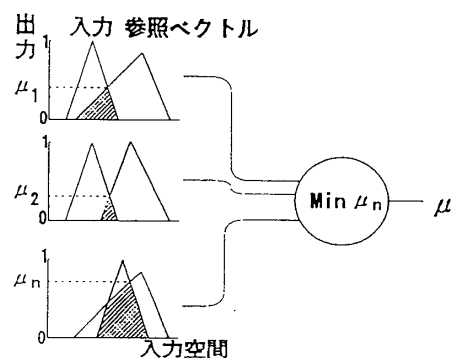


図7 FLVQ のニューロンモデル

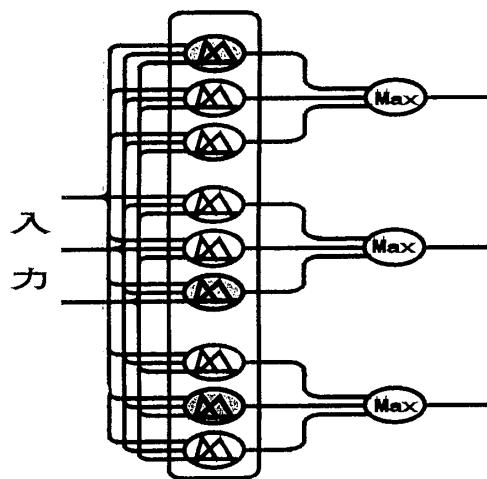


図8 FLVQのネットワークモデル

まいさの変更, メンバシップ関数の高さの変更の3段階を経て行う²⁶⁾。この中で, 参照ベクトルの位置は常に入力ベクトルの方向に近づけるように, 自己組織化マップと同様の方法で更新し, 幅と高さは教師信号に近づけるように更新する。学習途中でメンバシップ関数の高さが1を越える場合があるが, この場合は高さを1に制限した台形関数を用いる。このネットワークを用いて, においの類似性推定を行った。

表2 官能検査に用いた形容語

自然な	躍動的	幻想的
深みのある	ソフトな	暖かい
あまい	明るい	軽い
にがい	ロマンティック	印象的な
個性的	刺激的	洗練した
さわやかな	繊細	やさしい
女性的	情熱的	快い
男性的	若々しい	

5.2 実験結果

最初, 互いに似たにおいを持つ洋酒の類似性について調べ, 良好な結果を得た^{26), 27)}。次に多数の天然香料間におい類似性を推定することを試みた。洋酒の場合は三点識別法を用いたが, 多様なにおいに関して調べるためには試料間の差がつきにくく, 組み合わせ数が膨大になるため適当でない。そこで, SD法を用い, 25種類の天然香料について表2の23の形容語に対する評価を5段階で被験者(女性8人)に答えてもらった。その結果を因子分析し, 第一因子, 第二因子で構成される空間において各サンプルの距離を求め, これをFLVQの教師信号とし, 各カテゴリー参照ベクトルは25個, 学習回数は200回である。

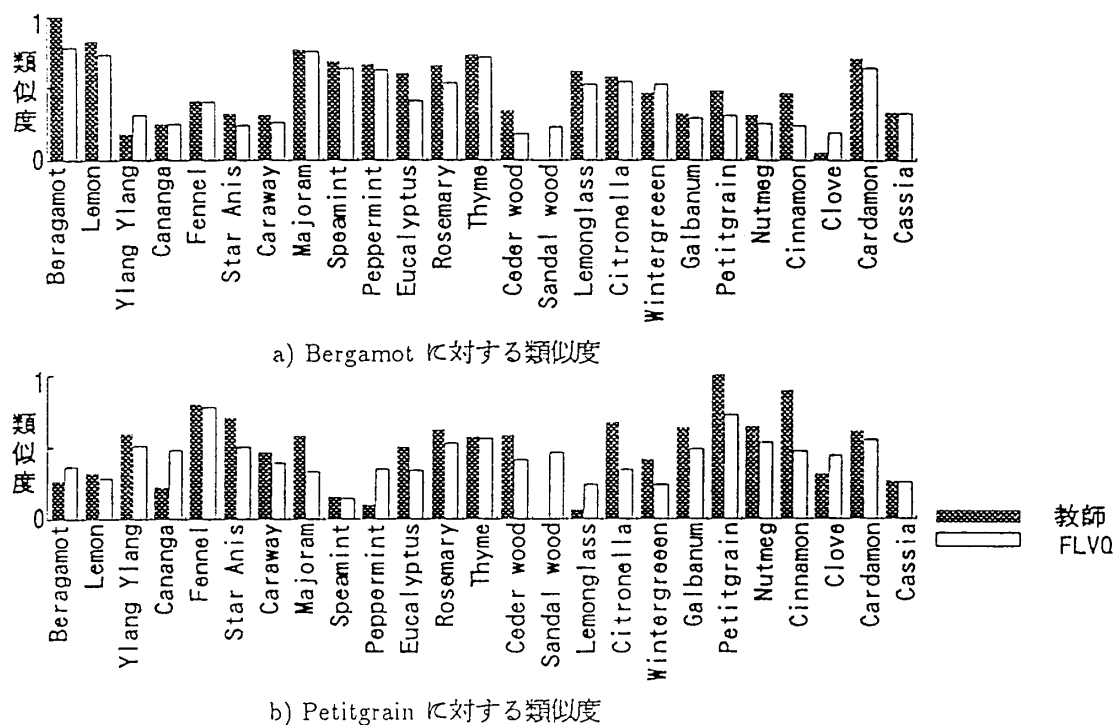


図9 天然香料の類似性測定結果

Bergamot 及び Petitgrain に対する各天然香料の類似度、及びネットワークによる推定結果を図 9 に示す。図 9 のように多様なにおいを扱った場合、教師信号と推定結果はよく一致しているものもあるがまだ十分に一致していないものもあり、推定精度の向上が今後必要である。また、アンケートの項目として好きか嫌いかを 5 段階で回答してもらい、その官能検査データを教師信号として ANN に学習させ、センサ信号から嗜好性への写像が可能かどうかの検討も行っている。これは別の機会に紹介したい。

6. ま と め

においセンシングシステム及びそれを用いた精油のにおい応答パターンの測定、におい類似性の測定について述べた。香料のにおい類似性推定のための感応膜選択、自己組織化マップと FLVQ を組み合わせたネットワークの開発等を通じて推定精度の向上を行う考えである。

参 考 文 献

- 1) 原, 森, 花井編著, クロマトグラフィ分離システム, 丸善, 5, 1981
- 2) 栗原, 味覚および嗅覚の受容機構, 応用物理, **60**, 682, 1991
- 3) A. Ikegami, H. Arita, S. Iwanaga and M. Kaneyasu, Thick film sensors and their integration *Proc. 4th European Hybrid Microelectronics Conf.*, Copenhagen, 211, 1983
- 4) W. P. Carey, K. R. Beebe and B. R. Kowalski, Selection of adsorbates for chemical sensor arrays by pattern recognition *Anal. Chem.*, **58**, 3058, (1986)
- 5) D. S. Ballantine, S. L. Rose, J. W. Grate and H. Wohltjen, Correlation of surface acoustic wave device coating responses with solubility properties and chemical structure using pattern recognition *Anal. Chem.*, **58** 3058, (1986)
- 6) J. R. Stetter, P. C. Jurs and S. L. Rose, Detection of hazardous gases and vapors: pattern recognition analysis of data from an electrochemical sensor array *Anal. Chem.*, **58**, (1986)
- 7) K. C. Persaud and P. Travers, Multielement arrays for sensing volatile chemicals, *Intelligent Instruments and Computers*, Jul./Aug., 147, (1991)
- 8) T. Nakamoto and T. Moriizumi, Odor sensor using quartz-resonator array and neural-network pattern recognition, *Proc. IEEE Ultrason. Symp.*, 613, 1988
- 9) T. Nakamoto, A. Fukuda, T. Moriizumi and Y. Asakura, Improvement of identification capability in an odor-sensing system *Sens. & Actuators B* **3**, 221, (1991)
- 10) T. Nakamoto, A. Fukuda and T. Moriizumi, Perfume and flavour identification by odour-sensing system using quartz-resonator sensor array and neural network pattern recognition *Sens. & Actuators B*, **10**, 85, (1993)
- 11) 園田, においの神秘, 工業調査会, 226, 1981
- 12) 高木, 化学総説, No. 14, 味と匂いの化学, 日本化学会編, 47, (学会出版センター, 1976)
- 13) 増山, 小林, センソリーエバリュエーション, 垣内出版, 8, 1989
- 14) 佐藤, 官能検査入門, 日科技連, 44, 1978
- 15) 柳井, 高根, 多変量解析法, 朝倉書店, 114, 1985
- 16) E. Amoore 著, 原訳, 匂い—その分子構造, 恒星社厚生閣, 15, 1972
- 17) W. H. King, Piezoelectric sorption detector, *Anal. Chem.*, **36**, 1735, (1964)
- 18) 中本, 森泉, 水晶発振子を用いた超微量吸着量測定技術, 触媒, **31**, 249, (1989)
- 19) W. R. Dillon and M. Goldstein, *Multivariate Analysis*, 209
- 20) T. Nakamoto, S. Sasaki, A. Fukuda and T. Moriizumi, Selection method of sensing membranes in odor-sensing system, *Sensors and Materials* **4**, 2, 111, (1992)
- 21) D. E. Rumelhart, G. E. Hinton and R. J. Williams, Learning representation by back-propagating errors, *Nature* **323**, 533, (1986)
- 22) J. Ide, T. Nakamoto and T. Moriizumi, Development of odour-sensing system using an autosampling stage *Sens. & Actuators B*, **13-14**, 351, (1993)
- 23) 杉山, 多変量データ解析入門, 朝倉書店, 13, 1983
- 24) T. Kohonen, *Self-organization and associative memory*, 1988, Springer-verlag, 199
- 25) 櫻庭, 中本, 森泉, ファジィ理論を用いた学習ベクトル量子化法, 信学論, J73-D-II, 1863, (1990)
- 26) Y. Sakuraba, T. Nakamoto and T. Moriizumi, Neural network to express odor sensory quantity, *Proc. II-70, WCNN'93*
- 27) 櫻庭, 中本, 森泉, ニューラルネットワークを用いたにおい感覚量表現, 生体・生理工学シンポジウム論文集, 115, 1992