

ニューラルネットワークの定量分析への適用

渡部 徹・岸田 悟・石原顕永・山内康弘・徳高平蔵

鳥取大学工学部電気電子工学科 電話 680-0945 鳥取県鳥取市湖山町南 4-101

(1997 年 8 月 13 日受付; 1997 年 9 月 1 日掲載決定)

Application of Neural Networks to Quantitative Chemical Analysis

Toru WATANABE, Satoru KISHIDA, Kennei ISHIHARA, Yasuhiro YAMAUCHI and Heizo TOKUTAKA

Department of Electrical and Electronic Engineering, Tottori University
4-101 Minami, Koyama-cho, Tottori, Tottori 680-0945

(Received August 13, 1997; Accepted September 1, 1997)

We applied neural networks to quantitative chemical analysis. The input data corresponding to the spectra of X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) and Auger electron spectroscopy (AES) were prepared by the sum of two or three peaks with a Gaussian distribution. The neural networks with Kohonen's self-organized feature map and with a back propagation algorithm were used. From the results, we found that it was possible to analyze the patterns without determining the number of peaks, the shapes and so on. Therefore, neural networks are thought to be useful in analyzing XPS and AES data quantitatively.

1. 序 論

X線光電子分光法(XPS)やオージェ電子分光法(AES)によって観測されたスペクトルは、通常、多くのピークからなっている。これらのスペクトルから材料の化学分析を行うには、バックグラウンド除去などの多くのデータ処理が必要となる。特に、定量分析をするには、スペクトルに含まれているピークのエネルギー位置、高さや半値幅とピークの数などを決定しなければならない。しかし、多くの観測データには実験誤差や雑音が含まれており、定量分析にも限界がある。一般に、XPSやAESスペクトルの解析は容易でなく、ファクターアナリシス法などの多変量解析法により厳密なデータ解析が現在までに行われてきた^{1, 2)}。

一方、ニューラルネットワークの自己組織化マップ(SOM)^{3~8)}やバックプロパゲーション(BP)^{9~14)}を用いた階層型ネットワークは様々な分野で応用されている。既に、BP法を用いた3層階層型ニューラルネットワークはXPSデータの組成分析に適用されている¹⁵⁾。しかし、ネットワークの最適化などが十分ではなく、表面分析データの解析に積極的に適用するには至らなかった。

我々は、これらの不備な点を改善するとともにニューラルネットワークが定量的な解析に十分に使用できる性能を有することを具体的に計算結果を用いて明らかにする。

本論文では、これらの分析データを解析するためにニューラルネットワークを適用し、その有効性を明らかにする。具体的には、XPSやAESスペクトルに相当する入力データを作成し、それらを学習やテスト用の入力パターンとして使用した。入力パターンとして使用したデータは、ガウス分布を持つ2あるいは3つのピークからなる合成パターンである。これらは真の値が既知なので、定量分析におけるニューラルネットワークの性能を評価することができる。

2. ニューラルネットワーク

2.1 自己組織化特徴マップ^{3, 4)}

Fig. 1は、SOMを用いた2層階層型ニューラルネットワーク(以下、SOM-NNと略す)を示している。第1層は入力層で、第2層は出力層である。SOMは入力データ空間 R^n からノードの2次元配列上のマップ化を定義し、パラメータとしての参照ベクトル $m_i = [\mu_{i1}, \mu_{i2}, \dots]$

$\mu_{in}^T \in R^n$ はすべてのノード i と結びつけられる。最も簡単な場合では $x = [\xi_1, \xi_2, \dots, \xi_n] \in R^n$ は可変のスカラー重み μ_{ij} を介してすべてのニューロンと結合している。ここで、 i は入力層のユニットで、 j は出力層のユニットを示している。一般にそれらの重みは異なったニュー

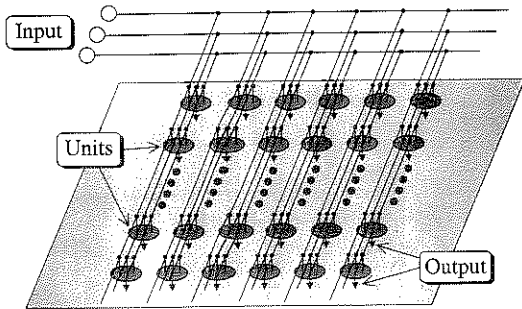


Fig. 1 Structure of SOM (Self-Organizing feature Maps)-NN (Neural Network). The units in 2-dimensional map (output layer) are combined with the units in input layer.

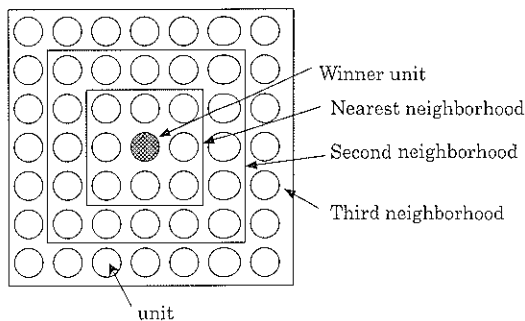


Fig. 2 Example of neighboring region. ● represents winner unit.

ロンに対してはすべて異なった値を持っている。入力 $x \in R^n$ が確率データベクトルなら、SOM は高次元入力データベクトル x の確率密度関数 $p(x)$ の2次元表示上への“非線形射影”である。ベクトル x は、ある測度においてすべての m_i と比較される。普通、ユークリッド距離（内積を使用する場合もあるが）を最小にするノードを最整合ノード m_c と定義する。また、ノード c の周りの配列点の近傍集合を N_c とする。

学習中または非線形射影が形成される過程では、ある幾何学的距離内にある複数のノードは同じ入力 x から何かを学習するように活性化される。このことは、隣接したニューロンの重みベクトル上に局所的な緩和や平滑効果を生み出すことを示している。連続して学習することで大局的な順序付けをし、出力層においてマップを形成していく。この学習過程を次式で表す。

$$m_i(t+1) = m_i(t) + h_{ci}(t) [x(t) - m_i(t)] \quad (1)$$

ここで $t=0, 1, 2, 3, \dots$ は整数すなわち離散時間座標である。 $h_{ci}(t)$ は近傍関数と呼ばれ、格子点上に定義される平滑カーネルとして振る舞う。収束するためには $t \rightarrow \infty$ のとき $h_{ci}(t) \rightarrow 0$ であることが必要である。本研究では、近傍関数としてノード c の周りの配列点を参照に方法を用い、 $h_{ci}(t)$ は次式で表される。

$$h_{ci}(t) = \alpha(t), \text{ if } x \in N_c$$

$$\because 0 < \alpha(t) < 1$$

$$h_{ci}(t) = 0, \text{ if } x \notin N_c \quad (2)$$

ただし、 $\alpha(t)$ はスカラー値“学習係数”であり、時間に対して単調減少関数である。本研究で使った近傍領域を Fig. 2 に示しているが、学習回数の増加とともに近傍領域を減少させていく。

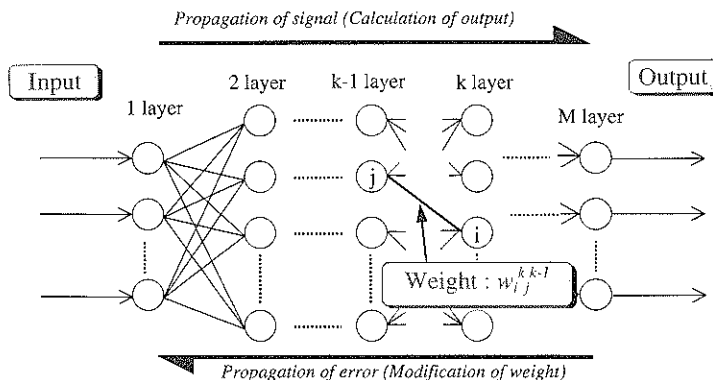


Fig. 3 Structure of BP (Back Propagation)-NN (Neural Network). 1-layer and M-layer represent input and output layers, respectively. The rest layers are hidden layers, and one hidden layer was used in this work.

2.2 バックプロパゲーション (BP) 法を用いた3層階層型ニューラルネットワーク

Fig. 3 は, BP 法を用いた階層型ニューラルネットワーク (以下, BP-NN と略す) を示している。入力信号は入力層→中間層→出力層と伝播し, 教師信号と出力の誤差は出力層→中間層→入力層と信号とは逆に伝播する。

入力層-中間層において, このネットワークは以下のような計算を行う。入力層ユニットからの出力 I_i と重み W_{ji} の積和にしきい値 θ_j を加え, それを応答関数に通して出力 O_j を出力する。ここで i と j はそれぞれ入力層と中間層のユニットを表している。同様に, 中間層ユニット j と出力層ユニット k についても計算する。これらの関係と, 教師信号 T_k と出力層ユニット出力 O_k の誤差自乗和 E_p を次式で表す。

$$O_j = f\left(\sum_i W_{ji} I_i + \theta_j\right) \quad (3)$$

$$f(x) = \frac{1}{1 + \exp\left(-\frac{2x}{u_0}\right)} \quad (4)$$

$$E_p = \sum_k \frac{(T_k - O_k)^2}{2} \quad (5)$$

BP 法では, (5) 式の誤差自乗和 E_p を最小にするように入力層-中間層および中間層-出力層の重みを修正する。重みの修正の方法は次式の最急降下法を用いる。

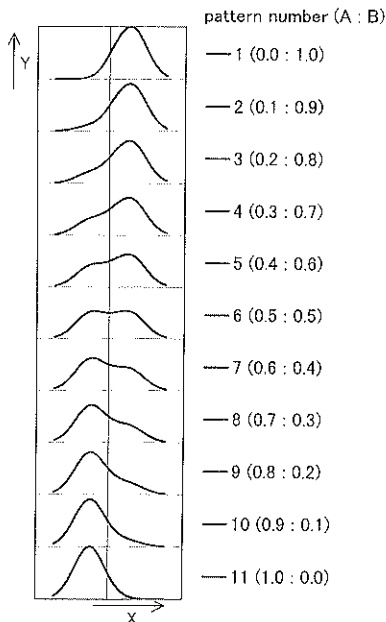


Fig. 4 Patterns used in a 2-peak problem for learning and test.

ただし, α , β は定数である。

$$\frac{\delta E_p}{\delta W_{ki}} = -\alpha (T_{kp} - O_{kp}) \quad (6)$$

$$\Delta W_{ki} = -\beta \left(\frac{\delta E_p}{\delta W_{ki}} \right) \quad (7)$$

3. 実験方法

3.1 SOM-NN

SOM-NN における典型的な実験条件を以下に示す。

入力層ユニット数: 80

出力層ユニット数: 20×20 , 21×41 ユニット (2次元 SOM)

学習係数: 1,000 回のとき 0.05, 10,000 回のとき 0.02

近傍半径: 3~10

3.2 BP-NN

実験には, 入力層, 出力層, 1つの中間層からなる3層階層型ニューラルネットワークを用いた。BP-NN における典型的な実験条件を以下に示す。

入力層ユニット数: 80

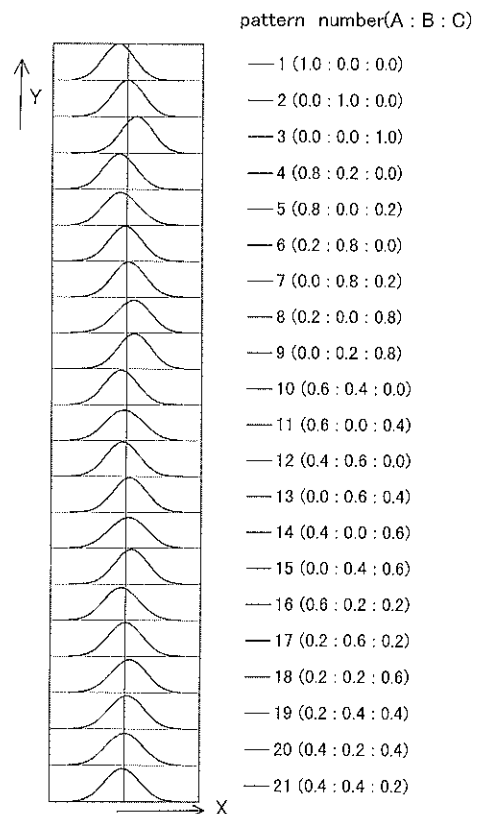


Fig. 5 Patterns used in a 3-peak problem for learning and test.

中間層ユニット数：2, 4, 6

出力層ユニット数：2, 3

学習係数：0.5

更新方法：モーメント法（慣性係数は0.5）、一括修正法

3.3 学習およびテストパターン

ガウス分布を持つ2つのピークA, Bからなる入力パターンでネットワークを学習した後、テストパターンに対してピークA, Bの強度を求めるのが2ピーク問題である。また、ガウス分布を持つ3つのピークA, B, Cからなる入力パターンでネットワークが学習した後、テストパターンに対してピークA, B, Cの強度を求めるのが3ピーク問題である。

Fig. 4は、2ピーク問題に使用した学習およびテストパターンを示している。図には、2つのピークA, Bからなるパターン1~11と、それらのパターンにおけるピークA, Bの強度も記入した。

学習およびテストに用いたパターンにおいて入力データは決められた等間隔の x の値に対する y の値であり、入力のデータ数はSOM-NNとBP-NNの両方の実験において80個である。パターンを入力し、ピークA, Bの強度をピーク分離などの処理を一切しないで求めることになる。

Fig. 5に3ピーク問題に使用した学習およびテストパターンを示している。3つのピークA, B, Cからなるパターン1~21と、それらのパターンにおけるピークA, B, Cの強度も記入した。

4. 実験結果と検討

4.1 SOM-NN

Fig. 6は、2ピーク問題に対するSOM-NNの結果を示している。ここでは、強化マップという参照ベクトルを最初に配置してマップを作成する手法を用いた^{3, 4, 8)}。図の左上から右下に向かってピークAの強度（成分）が増加し、ピークBの強度が減少するパターンが並んでいる。パターン1から11がSOMマップ上に順序良く並んでいることがわかる。図中の数字やドットは対応する入力パターンが存在していることを示しており、グレースケールにおいて白い部分はお互いに入力パターンが近い（類似している）ことを、黒い部分は遠い（異なっている）ことを示している。したがって、右上と左下の黒い部分は入力データとはまったく関係ないことを示している。パターン1から11までを学習に用い、これらに対応するマップ上の点は直線上に並ぶが、直線上には学習していない入力パターンを持つドットも各々の学習パターンの間に1個存在していることがわかる。

Fig. 7は、学習パターン5, 6とそれらの間のドットに相当する入力パターンを示している。図に示されるように、学習パターンとして用いていないにもかかわらず、マップ上のドットは学習パターン5, 6の中間のパターンを形成する。これは、学習していない未知のパターンを入力すると、それに対応するマップ上のドットが形成され、その位置によってピークA, Bの強度が推定できることを示している。つまり、XPSやAESに相当するパターンの定量化がSOM-NNでは可能であり、しかもマップ上のドットから入力パターンを再現することもで

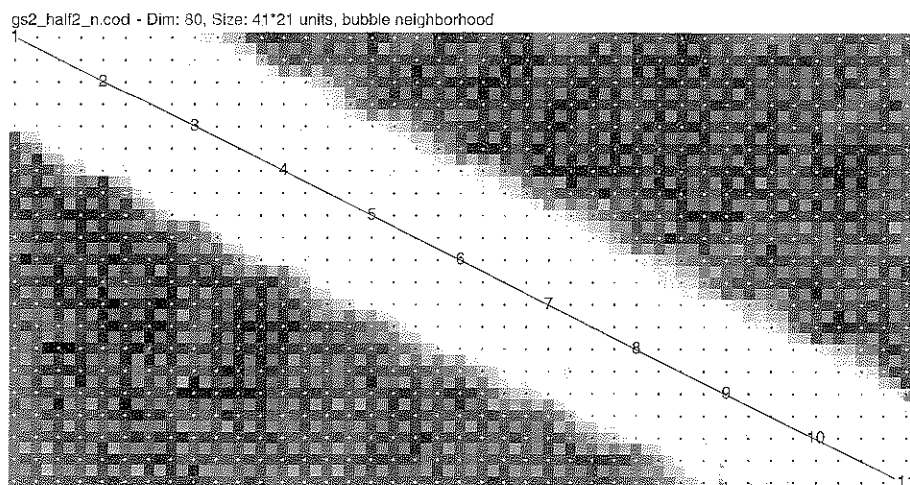


Fig. 6 Result of SOM-NN in a 2-peak problem. The patterns of 1-11 shown in Fig. 4 are learning data. The result was obtained by reinforcement learning.⁸⁾

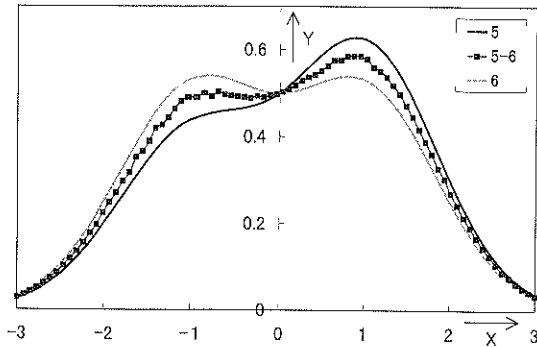


Fig. 7 Pattern corresponding to the dot between 5 and 6 in Fig. 6, where the patterns of 5 and 6 are also shown.

きる。

Fig. 8 は、2 ピーク問題に対する SOM-NN の結果を示している。ここでは、Fig. 6 の場合よりも学習パターン数を減少させ、学習パターン間に多くのドットが存在するようにマップを作成した。図に示されるように、学習パターン 5, 7 間に 3 つのドット (数字①, ②, ③) が形成された。

Fig. 9 は、学習パターン 5, 7 と Fig. 10 のドット①, ②, ③に相当する入力パターンを示している。学習パターンに対して②はほぼパターン 5, 7 の中間であるが、①や③に対応するパターンはそれぞれパターン 5, 7 に近い。このことは、SOM-NN による定量化では、学習データの間まではほぼ正しく類推できることを示して

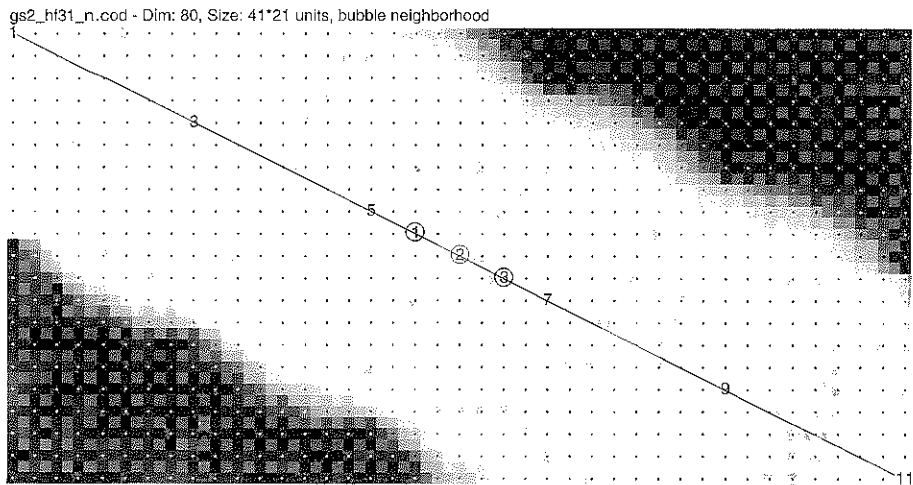


Fig. 8 Result of SOM-NN in a 2-peak problem. The patterns of 1, 3, 7, 9 and 11 shown in Fig. 4 are learning data. The result was obtained by reinforcement learning.

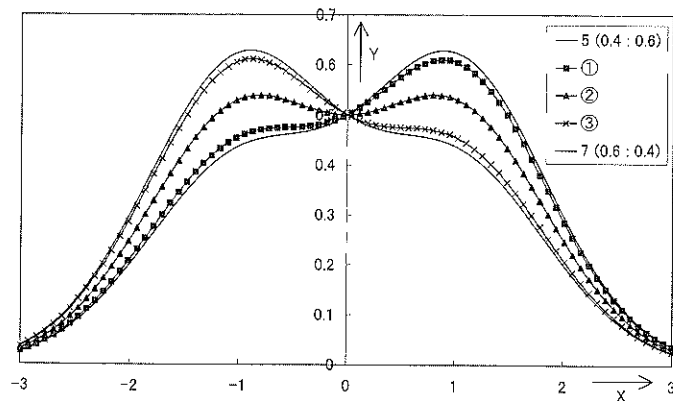


Fig. 9 Patterns corresponding to the dots of ①, ② and ③ between the patterns of 5 and 6 in Fig. 8, where the pattern of 5 and 7 are also shown.

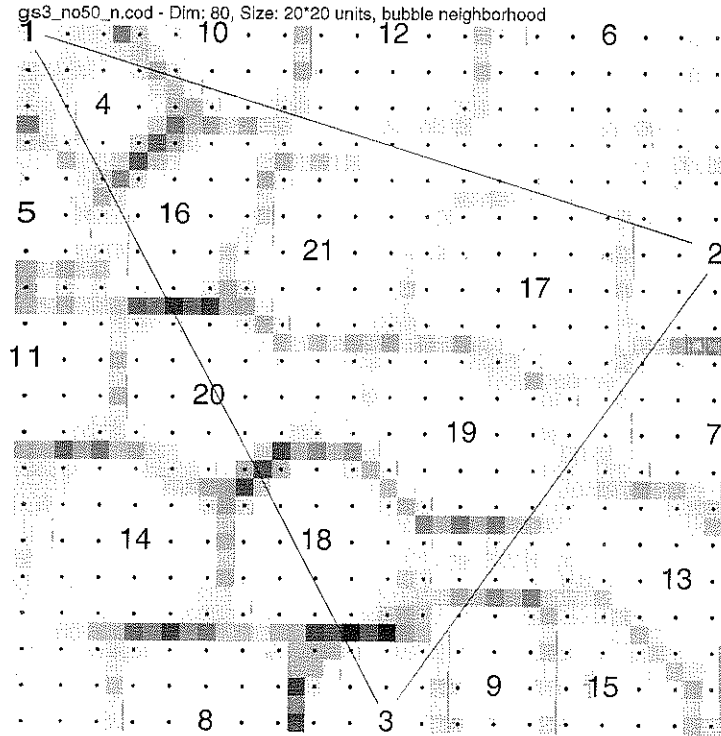


Fig. 10 Result of SOM-NN in a 3-peak problem. The patterns of 1-21 shown in Fig. 5 are learning data.

いる。それ以上の精度に対しては、学習の終了条件などが最適化されると、学習データに対して3分割程度は可能であるかもしれない。

Fig. 10は、3ピーク問題に関するSOM-NNの結果を示している。ここでは、ピークA、B、Cからなる入力パターン1~21を用いて学習した。学習パターン1、2、3はそれぞれピークA、B、Cのみからなる入力パターンである。図に示されるように1、2、3を頂点とする三角形をマップ上に書くことができる。この三角形の内側は、Fig. 5を参考にするとほぼ3つのピークA、B、Cの成分を持つ入力パターンであることがわかる。さらに、周辺では1、2の間はピークA、Bの成分を持つパターンが、1、3の間はピークA、Cの成分を持つパターンが、そして2、3の間はピークB、Cの成分を持つパターンが分布していることがわかる。また、ピークA、B、Cに関係した1、2、3の頂点に近い入力パターンでは各々のピーク強度が支配的であることも示している。このことは、XPSやAESなどの分析データが3つのピーク成分からなる複雑なスペクトルであっても、スペクトルがどんな成分からなっているかわかるばかりではなく、各々のピーク強度の大小関係をおおよそ推定できること

Table 1 Results of BP-NN for input patterns in a 2-peak problem. ○ and ● represent learning and test patterns, respectively.

Intensity of peak A		Intensity of peak B		● test pattern ○ learning pattern
theory	result	theory	result	
0	0.01	1.00	0.99	○
0.10	0.04	0.90	0.96	●
0.20	0.20	0.80	0.80	○
0.30	0.31	0.70	0.69	●
0.40	0.40	0.60	0.60	○
0.50	0.50	0.50	0.50	●
0.60	0.60	0.40	0.40	○
0.70	0.69	0.30	0.31	●
0.80	0.80	0.20	0.20	○
0.90	0.96	0.10	0.04	●
1.00	1.00	0	0	○

を示している。

4.2 BP-NN

Table 1は、2ピーク問題におけるBP-NNの結果を示

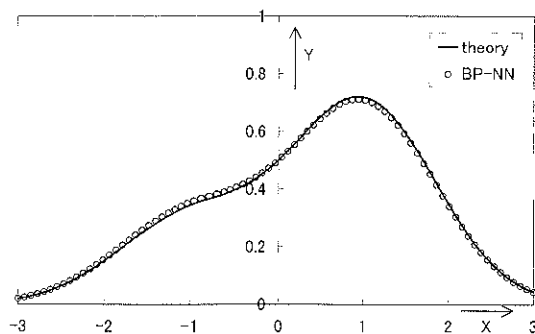


Fig. 11 Patterns of theory and result in a 2-peak problem for the pattern of 4 shown in Fig. 4.

Table 2 Results of BP-NN for input patterns in a 3-peak problem. ○ and ● represent learning and test patterns, respectively.

Intensity of peak A		Intensity of peak B		Intensity of peak C		● test pattern
theory	result	theory	result	theory	result	○ learning pattern
0	0.01	0	0	1.00	0.98	○
0	0.01	0.20	0.01	0.80	0.94	●
0.20	0.20	0	0.02	0.80	0.81	○
0	0.01	0.40	0.20	0.60	0.73	●
0.20	0.20	0.20	0.18	0.60	0.58	○
0.40	0.44	0	0.07	0.60	0.54	●
0	0.01	0.60	0.60	0.40	0.41	○
0.20	0.19	0.40	0.43	0.40	0.37	●
0.40	0.40	0.20	0.20	0.40	0.41	○
0.60	0.58	0	0.02	0.40	0.43	●
0	0.01	0.80	0.79	0.20	0.19	○
0.20	0.19	0.60	0.63	0.20	0.16	●
0.40	0.40	0.40	0.41	0.20	0.20	○
0.60	0.54	0.20	0.10	0.20	0.22	●
0.80	0.80	0	0.00	0.20	0.20	○
0	0.01	1.00	0.89	0	0.04	●
0.20	0.20	0.80	0.80	0	0.02	○
0.40	0.45	0.60	0.69	0	0.01	●
0.60	0.56	0.40	0.40	0	0.01	○
0.80	0.92	0.20	0.03	0	0.01	●
1.00	1.00	0	0	0	0	○

している。これは、Fig. 4に示された1, 3, 5, 7, 9, 11を学習パターンとして入力し、学習した後（学習パターンに対してネットワークの誤差が最小になるようにユニット間の重みが決定された後）、1～11の入力パターン

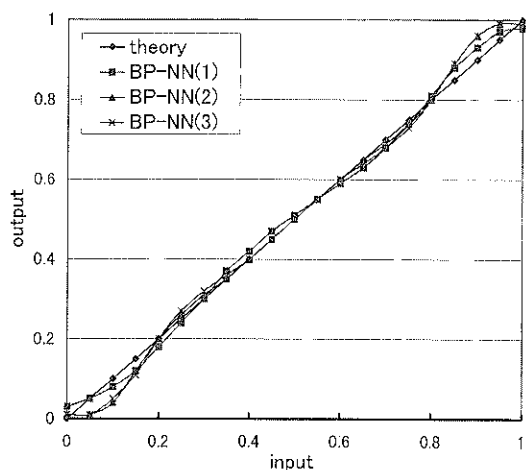


Fig. 12 Intensities of peak A obtained by BP-NN for input patterns. BP-NN of (1), (2) and (3) represent 80 (input units)-2 (hidden units)-2 (output units), 80-4-2 and 80-6-2, respectively. The patterns of 1, 3, 5, 7, 9 and 11 shown in Fig. 4 are learning data.

に対して出力を調べた結果である。理論値でピークAの強度が0.10と0.90のとき、理論値との誤差はいずれも0.06であった。ピークAの強度が0.2から0.8の範囲では理論値との誤差は0.01以下であった。ピークAの両端では誤差が大きいがわかる。また、理論値との誤差に対するピークBの振る舞いもピークAの場合と同じであった。

Fig. 11は、パターン4の理論値とそれに対する出力値を用いて再現した結果である。これらの結果から、分析データの定量化にはBP-NNもまた十分使用できることがわかる。

Table 2は、3ピーク問題におけるBP-NNの結果を示している。3ピーク問題では、学習したパターンに対してほぼ一致しているが、テストパターンに対して2ピーク問題の場合よりも誤差が大きい。ピークA, B, Cの理論値が0, 0.2, 0.8, 0, 0.4, 0.6, 0.8, 0.2, 0のとき、理論値との最大誤差は0.2ぐらいであり、それ以外では理論値との最大誤差が0.1ぐらいである。2ピーク問題よりも理論値との誤差が大きくなるが、学習データの増加などにより誤差を減少させることができると思われる。したがって、BP-NNにおいて3ピーク問題でもある程度の誤差内で3つのピークA, B, Cの強度を推定でき、定量化が可能である。

Fig. 12は、中間層ユニット数が異なるBP-NNの2ピーク問題における結果を示している。BP-NN (1), (2)と(3)の中間層ユニット数は、それぞれ2, 4, 6である。横軸の入力は、ピークAの強度を、縦軸は入力に

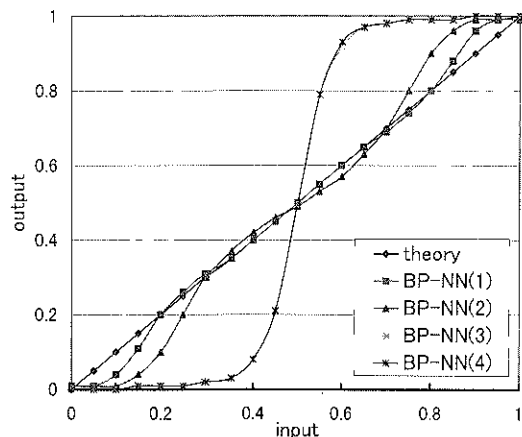


Fig. 13 Intensities of peak A obtained by BP-NN for input patterns. BP-NN of (1), (2), (3) and (4) are 80 (input units)-2 (hidden units)-2 (output units), but were learned by different input patterns. The learning input patterns are 1, 3, 5, 7, 9, 11 in BP-NN (1), 1, 4, 8, 11 in BP-NN (2), 1, 6, 11 in BP-NN (3) and 1, 11 in BP-NN (4).

対する出力を示している。さらに、理論値との誤差をわかりやすくするために、理論値も直線で示した。BP-NN (1) は、入力が 0 から 1 の範囲で理論値との最大誤差が 0.04 以下であった。BP-NN (2), (3) の場合では、入力が 0.1 と 0.9 のとき、理論値との最大誤差は 0.07 になるが、それ以外の入力に対して 0.04 以下であった。中間層のユニット数が少ない方が理論値に近く、理論値との誤差が小さくなることがわかる。

次に、BP-NN の学習に用いた入力パターン数の影響を 2 ピーク問題で調べた。これらの結果を Fig. 13 に示している。図には、理論値と BP-NN (1) から (4) の結果を示している。BP-NN (3) と (4) では入力が 0.5 のときだけ理論値に一致しているが、他の入力では理論値との最大誤差が 0.4 程度である。BP-NN (2) では、理論値との最大誤差が 0.1、BP-NN (1) では 0.07 である。これらの結果から、学習パターン数が 0 から 1 の範囲で均等に配置されたときパターン数が増加すれば、理論値との誤差は小さくなることがわかる。ピーク A, B のうちのピーク A の強度の理論値との誤差に対する結果だけを示したが、ピーク B の場合もピーク A とほぼ同じように振る舞う。したがって、学習パターンが分析する領域を均一にしかも細かくカバーすれば、より高い精度で定量化が可能になると思われる。

5. 結 論

XPS や AES などの分析データ（スペクトル）の定量

的な解析、つまり組成分析に SOM-NN と BP-NN の 2 つのニューラルネットワークを適用した。これらの結果から以下のことが明らかになった。

- (1) 分析データの定量的な解析、つまり組成分析にニューラルネットワークは非常に有効である。
- (2) これには、ある程度の誤差が含まれるが、厳密なピーク分離などの解析を行うことなく、分析データから組成などを決定することができる。
- (3) 十分な数と領域に均一に分布した学習データを用いることにより、誤差を減少させ、定量的な精度が向上すると考えられる。
- (4) 3 つのピークからなる複雑な観測データに対しても成分に関係したマップを作成でき、これを用いてスペクトルの主な成分やおおよその成分強度などを決定することができる。
- (5) SOM-NN では、学習に用いていないパターン（AES や XPS スペクトル）を生成できる。

文 献

- 1) 尾関 徹：ぶんせき 4, 252 (1991).
- 2) 藤田大介，吉原一紘：表面科学 13, 286 (1992).
- 3) T. Kohonen: "Self-Organizing Maps" (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1995).
- 4) 徳高平蔵，岸田 悟，藤村喜久郎訳，T. コホネン著：“自己組織化マップ”（シュプリンガー・フェアラーク東京，1996 年）.
- 5) 藤村喜久郎，徳高平蔵，岸田 悟：電学論 115-C, 736 (1995).
- 6) 藤村喜久郎，徳高平蔵，大島靖広，田中慎一，岸田 悟：電学論 116-C, 350 (1996).
- 7) 山根 興，藤村喜久郎，時松秀男，徳高平蔵，岸田 悟：信学技報 NC 93-41, 9 (1993).
- 8) 小林正樹，棚橋克成，藤村喜久郎，徳高平蔵，岸田 悟：信学技報 NC 95-163, 69 (1995).
- 9) D.E. Rumelhart, J.L. McClelland and the PDP Research Group: "Parallel Distributed Processing", 1-2 (The MIT Press, Cambridge, 1986).
- 10) 吉川敏則，河口陽子：信学論 J 75-D-II, 837 (1992).
- 11) 田中啓夫，吉村光夫：信学論 J 75-D-II, 1000 (1992).
- 12) 石川真澄：人工知能学会誌 5, 595 (1990).
- 13) 中川雅人，石原 誠，岸田 悟，徳高平蔵，藤村喜久郎：信学技報 NC 94-36, 23 (1994).
- 14) 中川雅人，岸田 悟，徳高平蔵，藤村喜久郎：信学技報 NC 94-97, 167 (1995).
- 15) 徳高平蔵，藤村喜久郎，岸田 悟，三好佳和，石原 誠，石原永伯：表面科学 15, 168 (1994).