MAGICIAN 養成講座

MAterials Genome/Informatics and Chemo-Informatics Activate Networks

第 6c 回 ニューラルネットワーク法のネットワーク構造と学習アルゴリズム

2018.11.23　横浜国大非常勤講師　山本博志

ニューラルネットワーク法のネットワーク構造を自由に設計してみよう。結果を定量的に扱いたい場合には、NN は 3 層型のニューラルネットワークを用いる事が多い。 1 層目は入力層、2 層目は中間層、3 層目は出力層と呼ぶ。しかし、3 層型で扱わなければならないという決まりはない。最近流行りのディープ・ラーニングでは、この中間層の数が非常にたくさんになっている。筆者は部分 4 層化 NN なども検討してきた。また、学習のアルゴリズムは、多くの場合誤差逆伝播法が使われる。これは、ニューラルネットワークの荷重行列を、教師データと計算値の誤差が一番小さくなるように動かしていく。この誤差逆伝播法は、非常に強力で複雑な化学の現象にも追随できたので、20 年前のブームに繋がりもしたが、逆に廃れる原因にもなった。しかし、ネットワーク構造も学習アルゴリズムも、教科書に書いてある通りにしなければならないわけでは無い。数学的な根拠は置いておいて、化学に合わせたモデルを作成してみよう。

準備

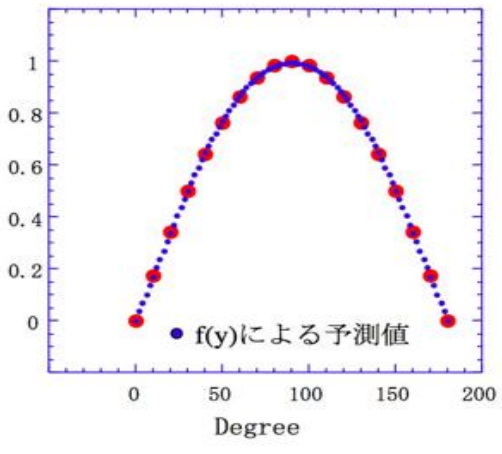
第 6a 回のニューラルネットワーク法の基礎で説明したように、非線形である Sin 曲線をニューラルネットワークに学習させる際には、ある関数を仮定して、その関数の係数を求める。

f(y)=A1* / [1+exp(-(B1*X1+B2*1))＋
　　A2* / [1+exp(-(B3*X1+B4*1))＋
　　A3* / [1+exp(-(B5*X1+B6*1))

という曲線を仮定して、誤差が最小になる A1-A3, B1-B6 の組を見つければ良い。

A1= -2.14　B1= -1.84　B2= 0.30
A2= -1.01　B3= 0.04　 B4= 0.31
A3= 2.11　 B5= -1.87　B6= 1.57

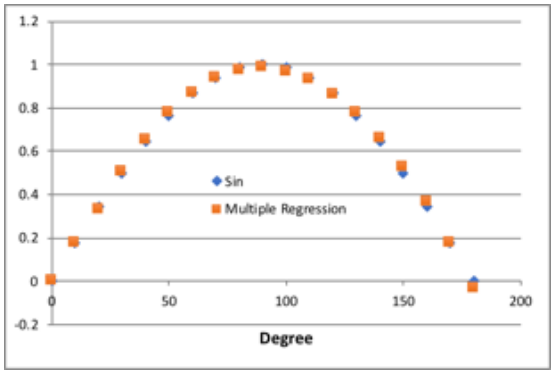
のように置くと、下図に示すように良好に Sin カーブを再現する。



ここで、大事なのは、「曲線としてどんな曲線を仮定するは各人の自由である」という点である。

第 6a 回でも述べたように、次の関数でも良好に Sin 曲線を再現できる。

f(y)=A1*(1/X1)+A2*log(X1)+A3*(X^2)+A4*(sqrt(X1))
+Const.



A1:-0.0295014488567471
A2:-1.39531945518547
A3:-0.000099576191739178
A4:0.464330591108506
Const. : 0.113247988857779

この係数は収束計算を行わなくても、重回帰法で簡単に求まる。

ニューラルネットワーク法で、

f(y)=1* / [1+exp(-y)]

というシグモイド関数を用いている理由は、生物の刺激-応答曲線に似ているからとかいう、とってつけたような説明があるが、実はそれには余り意味がないと筆者は思っている。単にシグモイド関数の微分が

f(y)'=(1-f(y))*f(y)

と元の f(y)で表す事ができる為、誤差逆伝播法(EBP: Error Back Propagation)で機械学習させる際に都合が良い(どちらに、どれだけ動かせば誤差がどれだけ小さくなるか理解しやすい）からだと思う。

化学の物性値はもともと誤差を含んでいたり曖昧であったりする事が多い。例えば、ある物質の水への溶解度は、水 100g に対する溶解度(g)で表すことが多い。その際に、よく水に溶ける化合物は、100g(溶質)/100g(水)以上は測定せず、logS=2.0 としてしまう事がある。様々なデータ値で、logS >2.0、引火点 >110℃、屈折率 <1.2 などの表記は書籍では当たり前に存在した。ところが、デジタルのデータベースは、フィールド値の属性は事前に決めて置く必要がある。”>2.0”はテキスト属性であり、数値属性ではない為、DB に入力できなくなる。そのうちに、不等号は消えてしまって数値だけが一人歩きを始める例が散見される。また、測定限界の問題もある。昔であれば水への溶解度は、1mg 以下が測定限界であったであろう。しかし、今日の測定装置ではもう 3 桁低くても測定できたりする。全ての化合物について最新のデータが揃えば良いが、logS が, -4 ぐらいのものと-7 ぐらいのものが、測定方法の新旧によって混在してしまう可能性がある。そうした誤差や曖昧さを含んだ値を誤差逆伝播法で機械学習させると、必要以上に中間層のニューロンを増やさないと収束しない。その結果として予測性能が非常に劣るニューラルネットワーク・システムができあがるなどの問題が生じる。それを回避する一つのやり方は、フィードフォワードの学習法を使うことだ。誤差を微分係数によって逆伝播させる必要がないので、シグモイド関数を使う必要もない。係数の決定には第 7 回で説明した遺伝的アルゴリズムを使う。
そうしたやり方で、ネットワーク構造も学習アルゴリズムも自由に設計できることを今回の講座で示そう。

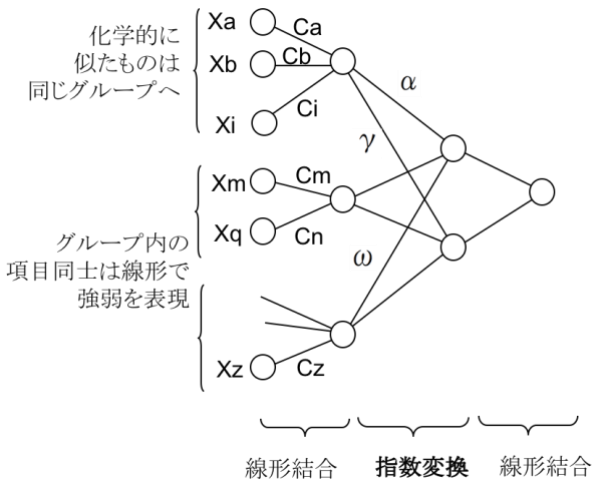
新規アーキテクチャーNN 法

非線形動作関数が自由で良いなら、どのような関数が良いだろうか？ Log, 三角関数、べき乗など様々な非線形関数があるが、筆者の選んだのは Power 関数だ。
化学工学の領域ではよく使われる。例えばスタントン数という無次元数は次式で表す事ができる。

$$St = 0.023 Re^{-0.2} Pr^{-2/3} (\mu/\mu_w)^{0.14}$$

このような指数の係数を求めるには、両辺の log をとって重回帰を計算すれば良い。さらに複雑になった時には、遺伝的アルゴリズム(GA)を用いて係数を求める。例えばイオン液体の物性値を求めるニューラルネットワークを考えてみよう。イオン液体の物性値は、アニオンの種類とカチオンの種類で決まる。アニオンの種類はあまり多くないがカチオンの種類は非常に多い。カチオンの構成としては、主骨格（イミダゾールなど）に対して側鎖の長さや種類を色々変えたものが開発されている。この様々なイオン液体を特徴付ける識別子として、半経験的分子軌道計算法、MOPAC、PM3 の計算結果なども用いる。計算は X-Ability 社製の Winmostar を用いた。

今回用いた NN のアーキテクチャーを模式図で表すと以下のようになる。



$$P = C0 + \Sigma[(Ca*Xa+Cb*Xb\cdots Ci*Xi+1)^{\alpha}$$
$$\cdots$$
$$*(Cm*Xm+\cdots +Cq*Xq+1)^{\gamma}$$
$$\cdots$$
$$*(\cdots +Cz*Xz+1)^{\omega}]$$

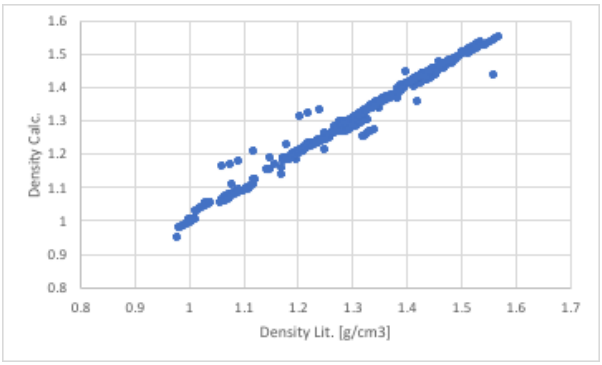
で物性値が表現できるとして、各係数を、GA を用いて求める。ここで重要なのは、化学的に似たものは同じグループに入れる事だ。通常のニューラルネットワーク法では、入力された値は、中間層ニューロンで強弱の差はあっても全て結合している。再構築学習法を取り入れて影響の少ない結合荷重をゼロにしても、冗長性は残る。
この新しいアーキテクチャーでは、グループ内は線型結合であり、グループ間は指数変換したのちに掛け算で表現される。化学者が化学の知識を総動員してグループを設計するのが大事なポイントになる。

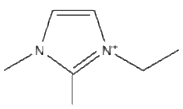
例えば密度の推算式を構築してみよう。新しいアーキテクチャーでは、次のように求まる。

0.1772+1.2537*(
POWER((Temp.*-0.0008656+1),0.563)*
POWER((TFSI*0.905+Br*0.413+Cl*-0.0887+PF6*0.6445+BF4*0.176+CF3SO3*0.441+1),0.418)*
POWER((Am4*-0.290+PRL*0.468+PZ*-0.490+IMD*-0.368+PRZ*-0.351+1),-0.0463)*
POWER((R1*-0.0191+R2*-0.00337+R3*-0.0195+R4*-0.00123+1),1.395))　Scheme(1)

グループとしては、温度項、アニオン項、カチオン項、側鎖の長さの４グループとする。カチオン項の指数は-0.0463 と非常に小さいので、密度にはほとんど影響を与えない。（Am4: 4級アミン、PRL: Pyrol, PZ: Pyridine, IMD: Imidazole, PRZ: Pyrazole）

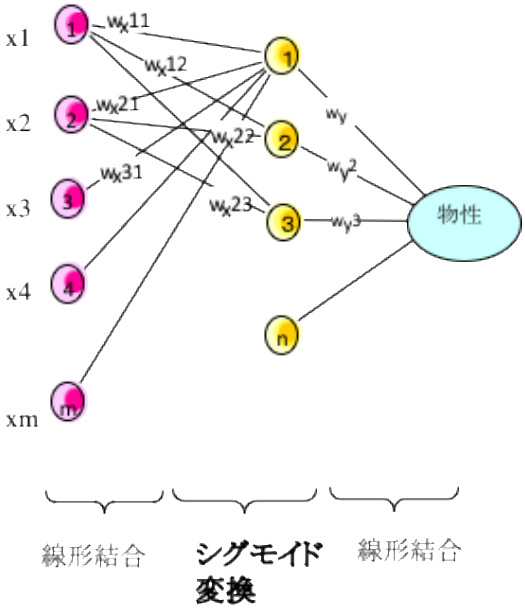
R１からＲ４は窒素につくアルキル基の炭素長さを入力する。TFSI は$(CF_3SO_2)_2N^-$ という構造のアニオンである。Scheme(1)によって計算された密度を実験値に対してプロットすると下図のようになる。図中、ほとんどのデータポイントは綺麗に直線の上に乗るが、７点ほど並行に上にずれたデータポイントが存在する。その化合物がどのような構造かを確認すると、３置換のイミダゾール化合物である事がわかる。このような結果が得られる事がフィード・フォワード型のニューラルネットワーク法を使う事の大きなメリットだ。カチオンのグループの中に 3IMD を定義する必要がある事がわかる。

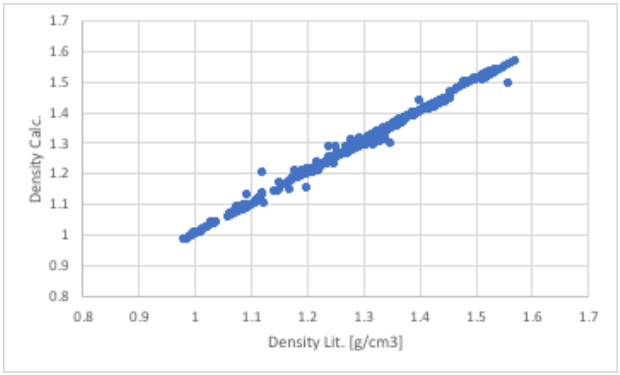




３置換イミダゾール

同じデータを用いて再構築ニューラルネットワーク法で予測式を構築してみる。





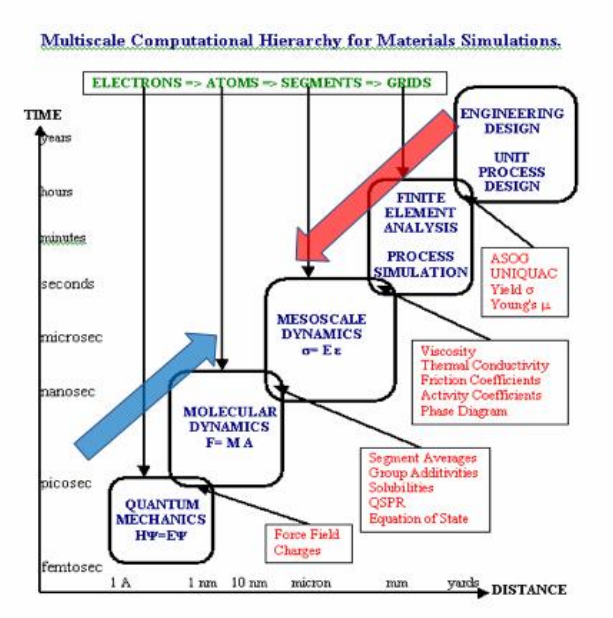
誤差逆伝播型のニューラルネットワーク法を用いると、**教師データが正しいとして**、教師データと NN の計算値の差分が小さくなるように結合荷重行列を調整する。そこで、３級イミダゾールを定義し直さなくても良好に収束してしまう。論文とかに記載するのであれば、相関係数が高い後者のモデルを採用したほうが見栄えは良くなる。しかし、後者のモデルでは予測性能は劣る事になる。

化学の領域では、こうした識別子が十分ではない場合がある事、教師データと言えども、誤差やエラーを含んでいることもある事から、フィード・フォワード型の NN 法と比較検証するのは大事な点になる。

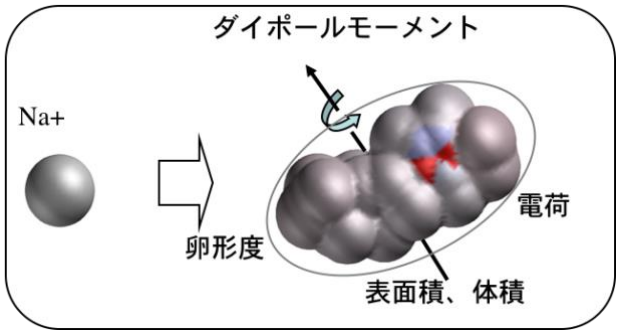
識別子の抽象化

　このような方法で、３置換のイミダゾールを識別子として加えるという方法をとっていくと、カチオンの種類がどんどん増えていく。それにしても、実測値が出るまで新しいカチオンでは、予測不可能になるという問題が残る。その時役に立つのが、第１回でも使った次の図だ。分子軌道法や分子動力学法は演繹法で原子を足したら分子、分子を足したら物質と左下から右上に青い矢印の方向で考えて

いく。帰納法はこのカチオンの性能はこう、あのカチオンの性能はこう、側鎖を外してと、右上から左下に考えていく。そして、新しいカチオンの性能を予測したくなった時には、足りないパラメータは他の手法を借用しようと考える。マテリアルズ インフォマティクス(MI)のインフォマティクスとは情報学のことだ。情報ソースは何を使ってもよい。実験値、分析値、理論値など様々な情報を組み合わせて答えを探す。



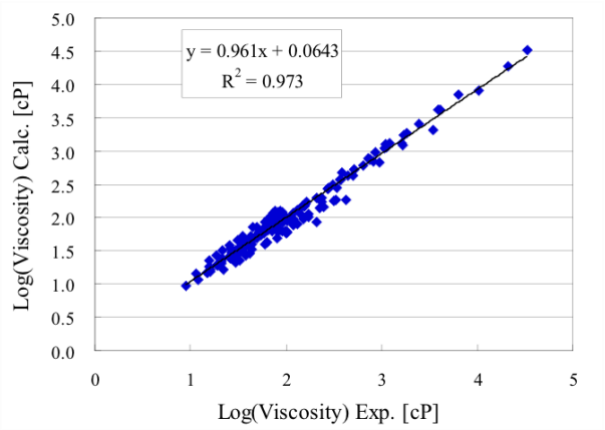
よく使うのが、分子軌道法の計算結果だ。電荷, HOMO, LUMO, ダイポール・モーメントなどは簡単に得られる。



また、Winmostar などのソフトを使えば、分子表面積、分子体積、卵形度なども計算できる。NaCl のような塩は融点が何千度にもなる。それに対してイオン液体の多くは室温で液体になる。その違いを見ながら、カチオンの種類を識別子に使うのではなく、もっと抽象化したカチオンを表す指標を考える。

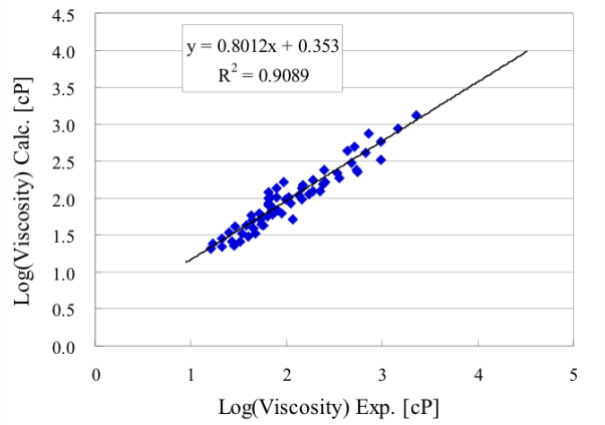
この例では、イオン液体の粘度を推算する式を、カチオンの部分を MO 計算結果などと置き換えて作ってみよう。

Log(Vis)=0.112+1.022*(
POWER((温度*0.00344+1),-3.649) *
POWER((ダイポールモーメント*1.130+1),0.131)*
POWER((LUMO 効果) *
POWER((分子表面積*0.841+1),0.138)*
POWER((Ovality*0.837+1),-1.044)*
POWER((窒素電荷効果)*
POWER(アニオン効果)　scheme(2)



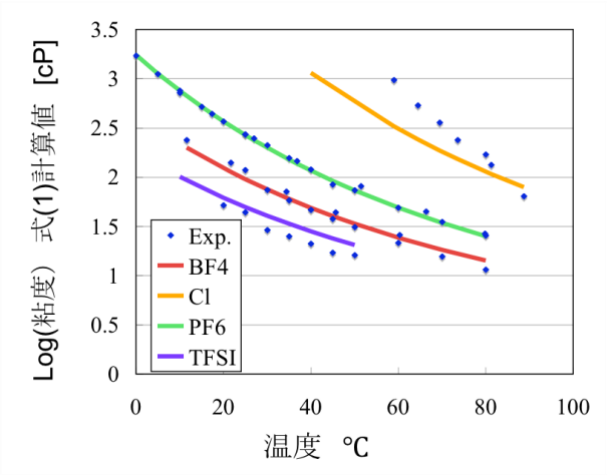
カチオンの種類の代わりに、ダイポールモーメント、LUMO, 分子表面積、卵形度、窒素電荷を使うことによって上図の結果が得られた。

式を構築するのに使わなかったデータを用いて予測性能を検証すると下図のようになる。



Scheme(2)が得られると、各項目の効果を取り出して検証する事ができる。例えばアニオンを変化させたときの粘度の温度依存性は scheme(2)から、下図のように求まる。

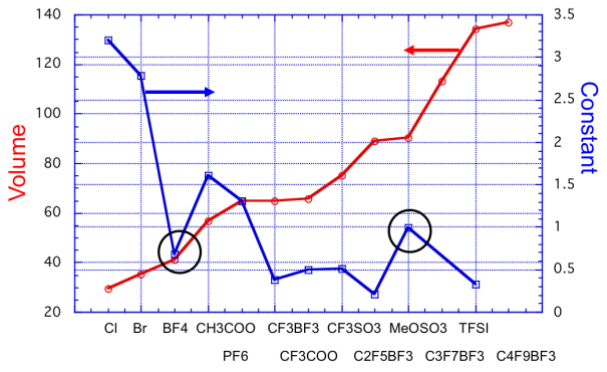
このように、POWER((温度*0.00344+1),-3.649)と POWER(アニオン効果)を切り出してくれれば簡単に検証できる。通常のニューラルネットワークでは、ネットワークの中身はブラックボックスになってしまうので、このような検証を行うのは楽ではない。



この新しいアーキテクチャーのニューラルネットワークでは、グループ内の各項目の係数は線形結合で表してある。例えば、アニオンの効果は下式になる。

POWER((TFSI*0.321+Br*2.787+Cl*3.196+PF6*1.302+BF4*0.681+CF3SO3*0.513+CF3COO*0.497+CH3COO*1.602+CF3BF3*0.374+C2F5BF3*0.206+MeOSO3*0.990+1),0.6840723)

この係数が小さいものは粘度が低くなることは明らかであろう。Cl や Br のような単原子では粘度は大きくなってしまい、TFSI などでは粘度が低下する。その原因を明らかにするために、ここで得られた係数とアニオンの体積をプロットしてみた。

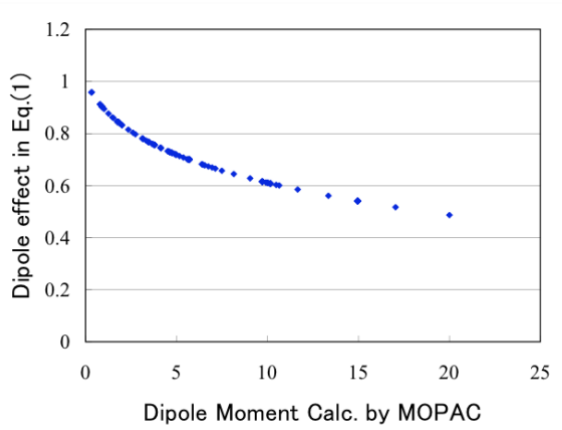


上図に示すように、基本的にはアニオンが大きくなるにつれ、係数は小さくなる事がわかる。例外は BF4 と MeOSO3 である。体積だけでは不十分な理由の一つはダイポールモーメントの効果であろう。

アニオンではなくカチオンの部分についてではあるが、この効果は次式で表される。

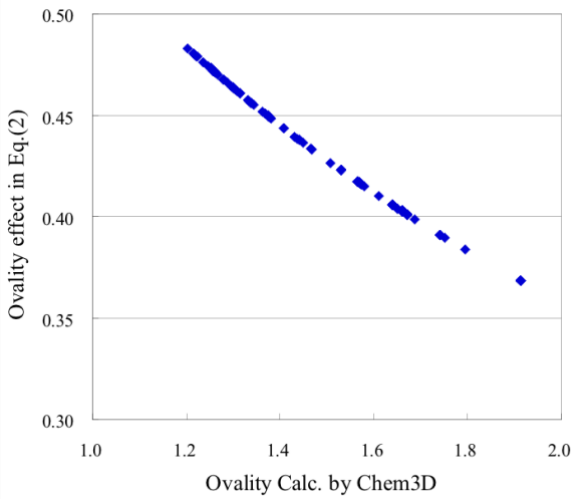
POWER((ダイポールモーメント*1.130+1),0.131)

MOPAC で計算されたダイポールモーメントに対して、このダイポールモーメントの効果を評価すると下図のようになる。つまり同じ分子の大きさであっても、分子の中心から電荷の位置がずれてダイポールモーメントが大きくなると、粘度は下がる事がわかる。



また、卵形度（球に近づくほど 1 に近くなる）の効果は次式で表される。

POWER((Ovality*0.837+1),-1.044)



球からずれるにつれ急に粘度が下がる事がわかる。NaCl では、アニオン、カチオンの両方が完全球形となるので融点が非常に高くなるのであろう。

このような推算式が得られると、任意の温度での密度と粘度の計算値が得られる。すると任意の温度での動粘度(粘度／密度)が得られるので、潤滑油の分野で重要な粘度指数を簡単に計算で出す事ができる。100℃と 40℃で粘度差が小さいイオン液体は側鎖の長さが短いなどの特徴が計算するだけで得る事ができる。

以上のように、ここで設計した新しいアーキテクチャーの NN は、フィードフォワード法を用いているので、教師データのエラーや誤差に強い。また、ニューロン同士の結合が制限されているので、情報の流れが明瞭にわかるという特徴を持っている。

雑感

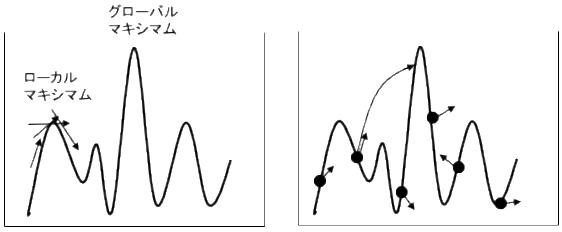
このアーキテクチャーを持つニューラルネットワーク法は、2005 年頃に開発したものだ。非線形関数として指数関数とガウス関数などを選べたり、多項式を 1 つ以上足し合わせる、グループ間を掛け算ではなく足し算で表現できるなどの機能を搭載した Java のアプリケーションである。（マシンを問わずに動作させる事ができる。）

実際問題としてイオン液体の物性値を収録してみると同じ構成でも物性値が大きく異なる例にでくわす。

カチオン	アニオン	融点	粘度	温度	備考
EMI	Br	74			
EMI	Br	52			
EMI	TFSI	−15	28	25	
EMI	TFSI	−13.6	58	25	
EMI	TFSI	−16			
EMI	TFSI	−3	30	25	
BMI	PF6	6.5	272.1	25	
BMI	PF6	−61			少数点が欠落？？
BMI	PF6	6.4	250	25	
BMI	BF4	−71	118.3	25	
BMI	BF4	−81	180	25	
BMI	BF4	−71	100	25	
MBMI	Cl	102			
MBMI	Cl	88			

全く同じ構成なら、こうしたデータは収束しないので見つけるのは楽である。しかし、微妙に測定温度異なっていたりするとデータのクレンジングは非常に難しくなる。
フィードフォワード型の学習法は有効である。

問題は、学習時間であった。遺伝的アルゴリズム法はあるところまでの収束は速い。しかし、そこを過ぎると突然変異と交叉操作だけでは中々十分には収束しない。ある多峰性の山があった時に、収束速度を早めるために集中的に遺伝子を投入する。しかし、そこが実はローカル・マキシマムであって、グローバル・マキシマムでなかったらどうなるか？　など、色々な問題があるが、数学の問題ではなく楽しく考える事ができ、簡単に実装できる。



例えば、働きアリは常に 10%のアリは働かないで遊んでいる。その 10%のアリを取り除いてしまうと、また 10%のアリは働かないで遊び始める。標高が高そうな部分が見つかったら９割の遺伝子はそこに投入するけど、１割は他の探索空間を遊ばせる、アリ型学習法とかを自由に設計して試せば良い。
それにしてもコンピュータのスピードはこの 15 年間で飛躍的に早くなった。今回再計算を試してみて心底そう思った。そうなってくると、今まで計算が遅くなるので、外していた機能を復活させようかと思う。

通常の研究では、化学者に求められているのは、識別子を考える事ぐらいであろう。機械学習のアルゴリズムやツール作成までは求められていない。しかし、化学の原理原則を理解している「化学者ならではの、学習アルゴリズムを考える」のは化学者にしかできない。ある現象を詳しく見てきた者であれば、頭の中にある程度のスキームが出来上がっているはずだ。それをブラックボックスの NN に譲り渡す必要はない。少しだけプログラムの書き方を学ぶだけだ。