

マイクロプラスチックのFT-IRスペクトルに対する ディープラーニングを用いた特徴抽出の試み

成瀬 憲政 木村 由紀子 市川 智宏

マイクロプラスチックの同定を行う際にノイズやベースラインの変動が大きいFT-IRスペクトルに対して、ディープラーニングモデルの一つであるU-Netを用いて特徴抽出スペクトルの生成を試みた。その結果、試料の化学構造に由来するピークを選択的に含むスペクトルを生成することができた。また、機械学習による判別手法を用いてスペクトルによるプラスチック種の自動判別を試みた結果、元スペクトルよりも生成スペクトルの方が良好に判別することができた。

キーワード マイクロプラスチック, FT-IR, 機械学習, ディープラーニング, U-Net

1 はじめに

近年、マイクロプラスチックによる海洋汚染が大きな環境問題の一つとして取り上げられている。有機物であるプラスチックは有機汚染物質を吸着しやすいほか、プラスチックが含む多種の添加剤には有害性が指摘されるものも含まれている¹⁾。微細なプラスチックが河川や海洋などの水環境中に放出されることにより、それらを摂取した水生生物等への影響が懸念されている。そのような背景を踏まえ、愛知県でも県内の水環境におけるマイクロプラスチックの実態把握に関する基礎的な調査研究を取り進めている²⁾。

プラスチックの構造解析には一般的にフーリエ変換赤外分光光度計 (FT-IR) やラマン分光法等の分光分析法、光電子分光法、二次イオン質量分析法、小角X線散乱法、熱分解ガスクロマトグラフィ質量分析法、固体核磁気共鳴等の様々な手法が用いられるが、マイクロプラスチックの同定においては、FT-IRの全反射吸収法 (ATR法) が広く用いられている³⁾。当所においても当該手法を用いてマイクロプラスチック調査を行っている²⁾。

得られたIRスペクトルからプラスチックの種類を同定するにあたっては、まずライブラリ検索を行い、スコアの高い候補物質の中からいずれのスペクトルに該当するのかを調べる必要がある。ノイズやバックグラウンドの影響が小さく、該当するプラスチックが有する特徴的なピークが顕著に得られている場合はきわめてスコアが高くなるため容易に判別することができる。しかし、マイクロプラスチックは試料が微小であることに加え環境中で酸化等による劣化がIRスペクトルに影響するため、必ずしも良好なスペクトルが得られるとは限らない。その例として、当所のマイクロプラスチック調査で

得られたポリプロピレン (PP) のスペクトルのうち良好なものとはノイズが多いものを図1に示す。両方ともCH₂やCH₃のC-H伸縮振動及び変角振動といった特徴的なピークが得られているものの、スペクトル2ではCH₂及びCH₃の変角振動のピーク強度が微弱で妨害ピークと同程度となっている。このようなスペクトルではスコアが高くない。このために同定を行うには対象物質の構造やそれに由来して得られるスペクトルの特徴及びFT-IRにて発生しうる妨害因子を正しく理解していることが必要である。しかし、その知識を有する分析者だけで数百個から数千個にも及ぶマイクロプラスチックの同定を行うには、時間的及び労力的に困難を伴うのが実情である。

IRスペクトルや電気信号、時系列データのような一次元データに対してノイズ除去や特徴量抽出を行う方法としては、移動平均法やSavitzky-Golay法等の平滑化処理、差スペクトル法によるバックグラウンドの除去、主

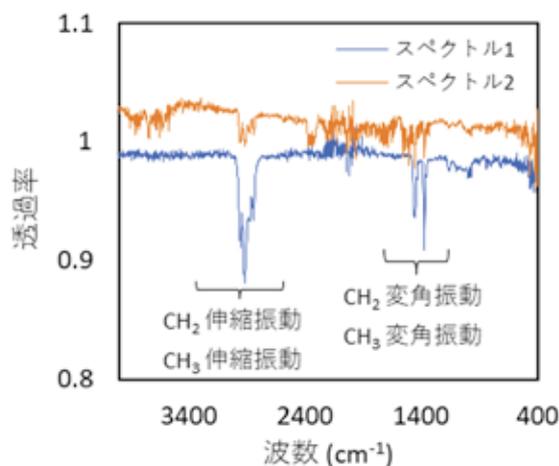


図1 マイクロプラスチックのIRスペクトル

成分分析や部分最小二乗法及び非負値行列分解等の多変量解析を用いた特徴抽出などの技術が用いられてきた⁴⁾⁵⁾。さらに、近年は機械学習技術の発達に伴いディープラーニングを適用する試みが増えている。MurphyらやBrandtら及びBuarukらはディープラーニングモデルを用いてノイズの多いスペクトルやバックグラウンドの影響が大きいスペクトルから試料の特徴を表すスペクトルを生成することを試みている⁶⁾⁷⁾⁸⁾。

そこで本報では、マイクロプラスチックのFT-IRスペクトルからディープラーニングモデルにて特徴スペクトルを生成できるか試みた。さらに、生成したスペクトルでマイクロプラスチックを同定できるか確認するため、機械学習の判別分析法を用いて生成スペクトルからプラスチックの種類を自動で同定できるかどうか確認した。

2 試料及びスペクトル

2.1 試料

2023年7月及び12月に逢妻川、新川、矢作川、豊川において採取した試料を用いた。試料の採取及び前処理は環境省「河川・湖沼マイクロプラスチック調査ガイドライン（令和6年3月）」³⁾に基づき行った。

2.2 スペクトル

採取した試料をFT-IR (IRAffinity-1S、島津製作所製)のATR法により分析した。プリズムにはダイヤモンドを用い、波数範囲は 400cm^{-1} から 4000cm^{-1} 、分解能は 2cm^{-1} とした。個々のスペクトルについて得られたピーク及びラ

イブラリ検索で得られたスコアを元に同定した。同定できたスペクトルのうち、特に数が多いポリエチレン

(PE) 142本、ポリプロピレン (PP) 221本、ポリスチレン (PS) 17本、ポリエチレンテレフタレート (PET) 263本、セルロース84本の判別できたスペクトル計727本を解析に用いた。セルロースはプラスチックではないが、実試料からは10%程度の割合で得られており判別の必要性があることから今回の解析に含めた。

なお、解析に用いるデータはATR補正やベースライン補正、 H_2O 補正や CO_2 補正の各種補正を行う前のデータを用いた。また、解析の効率を上げるため、個々のスペクトルについてその最大値及び最小値にてスケールングを行った。

3 解析方法

3.1 ディープラーニングモデル

ディープラーニング等の機械学習において、入力データから何らかの出力データを得るプロセスのことをモデルと呼ぶ。ディープラーニングの構造はデータを受け取る入力層、入力層から得られたデータに数値処理を施す中間層、処理されたデータを出力する出力層と呼ばれる3種の層を基本とし、入力データや出力データの形や目的に応じて層を多数積み重ねることで全体のモデルを構築する。層の処理として代表的なものを挙げると、入力データの特徴を抽出する畳み込み層、抽出したデータを非線形データに変換する活性化層、入力データのサイズを圧縮するプーリング層などがある。モデルの基本的な構造や各層で行われている具体的な計算など、ディ

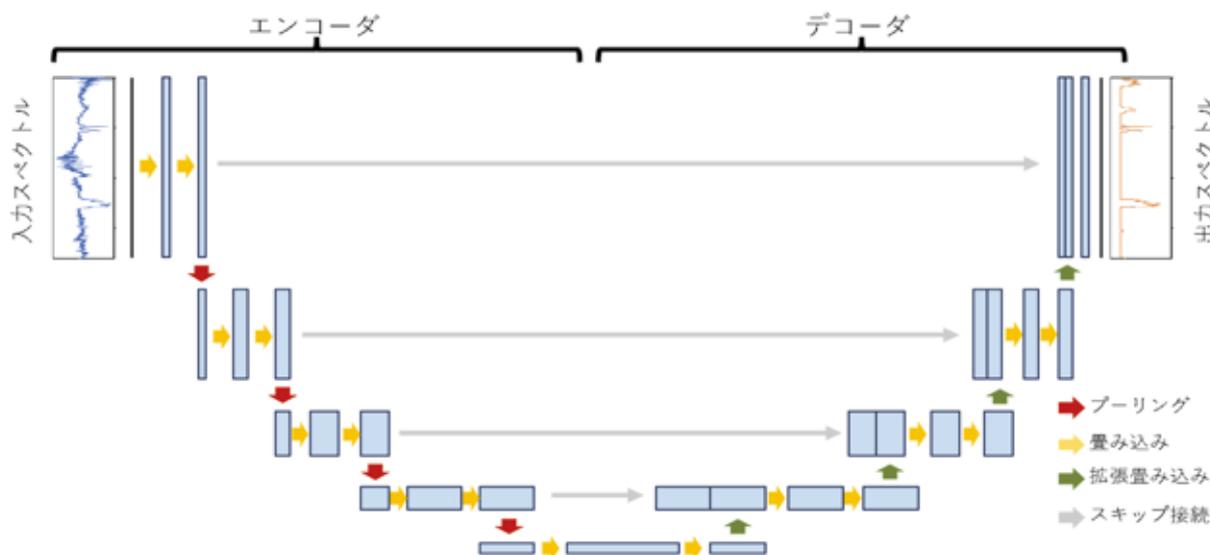


図 2 U-Net モデルのネットワーク構造

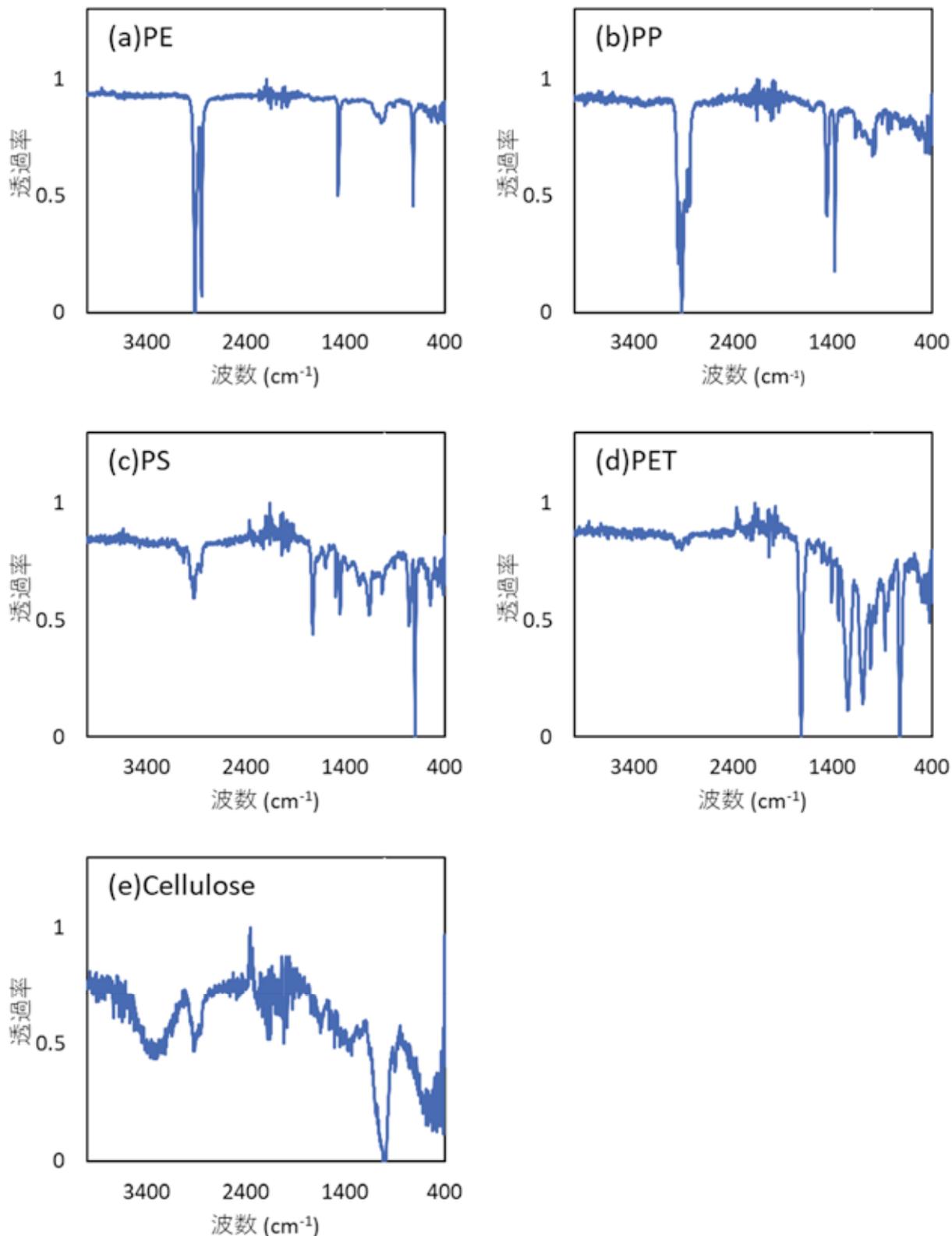


図3 正解スペクトル

ーブラーニングの詳細については文献等を参照されたい⁹⁾¹⁰⁾.

本報では画像から特徴的な部分を抽出するセグメンテーションに用いられるU-Net¹¹⁾と呼ばれるモデルを用

いた。本報で構築したU-Netのモデル構造を原図¹¹⁾から一部改変し図2に示す。図の水色の矩形は各層から出力したデータの次元を表しており、高さがスペクトルの長さ、幅がデータのチャンネル数を表す。モデルの前半部

はエンコーダと呼ばれ、入力データの畳み込み計算とプーリングによる圧縮を繰り返しながらスペクトルのサイズを小さくしていく。モデルの後半部はデコーダと呼ばれ、エンコーダで圧縮したデータを拡張畳み込みと呼ばれる処理でサイズを大きくしていき入力データと同じサイズの出力データを得る。また、U-Netの特徴として、データを直列に処理してだけでなく、エンコーダの途中で出力されたデータをデコーダの途中の層に直接送るスキップ接続と呼ばれる処理も行っている。本報では入力データに $400\text{cm}^{-1}\sim 4000\text{cm}^{-1}$ の波数からなるスペクトルデータを用いており、出力もまた同じ波数のスペクトルデータを得るようモデルを設計した。

モデルの作成及び学習にはpython (バージョン3.10.12) 及びFaceBook, Inc等が開発しているディープラーニング用ライブラリPyTorch(バージョン2.4.1)を用いた。

3.2 入力データと正解データの作成

本報では、ノイズの存在する元のスペクトルからその成分が示す特徴を顕著に表すスペクトルを生成することを目的としている。よって、生成されるスペクトルは、純物質のスペクトルそのものとなることが理想である。そこで、入力データは生のスペクトルデータとし、正解データは取得したスペクトルの中でスコアが高いものとした。それぞれの項目における正解スペクトルを図3に示す。概ねそれぞれの物質の特徴がよく表れている。ただし、セルロースは実試料のデータから良好なスペクトルが得られるものがなかったため、他に比べノイズが強い。本報ではこのデータを採用したが、今後は正解データに相応しいスペクトルを別途取得してモデル作成することが必要と考えられる。

ディープラーニングの妥当性を検証する上で、入力データと正解データのそれぞれをモデル訓練用の訓練データとモデル検証用のテストデータとに分割する必要がある。本報ではデータ分割をscikit-learnのtrain_test_split関数を用いて各プラスチック毎に訓練データとテストデータが6:4になるよう分割した。

3.3 モデルの学習

ディープラーニングの中間層では入力データに対して主に行列演算を行うが、その演算におけるパラメータを調整するのがモデルの学習である。学習の過程では、まず訓練データの入力データからモデルを用いて出力データを得て、得られる出力データと正解データの差を損失関数と呼ばれる関数により数値化する。そこで得ら

れた数値はロスと呼ばれ、モデルの妥当性を示す指標となる。本報での損失関数は、出力データと正解データの差の平方和を取り平均化する平均二乗誤差 (Mean Squared Error) を用いた。

学習の過程では全ての訓練データを用いてロスを算出した後、ロスが十分小さくなるようパラメータを調整する。さらに調整後のモデルを用いて再び訓練からロスを算出、調整を繰り返す。それによりモデルの出力データは徐々に正解データに近づいていく。その調整を行う回数をエポックと呼び、学習の妥当性はエポック数に対する訓練データとテストデータそれぞれのロスの変化を見ながら判断する。一般には少ないエポックのうちにはエポックが進むごとに両方のロスは減少していくが、エポックがある程度進むと訓練データのロスは減り続けるのに対してテストデータのロスは減少が止まるか、あるいは増加していくようになる。これは学習が訓練データだけに適応してしまい、その他のデータに対する性能が低下する過学習という状態になっていることを示している。したがって、学習は訓練データとテストデータのそれぞれのロスが最小になる段階で止める必要がある。

なおバッチサイズは64、学習率は0.005に設定した。

3.4 スペクトルの自動判別

あるデータに基づいて識別や判別を行う手法は多く存在する。以前から用いられている線形判別分析の他、多変量解析や機械学習の発展に伴い多くの手法が開発されてきた。手法によって計算コストや学習に必要なデータ数が異なり、どの手法が最適かはデータによって異なる。本報ではスペクトルの自動判別法として、サポートベクターマシン(SVM)、k近傍法(k-NN)、ランダムフォレスト(RF)、勾配ブースティング決定木(GBDT)等の代表的な非線形判別モデルを用いた。なお、いずれの手法についても判別モデルの構造を決定するハイパーパラメータを設定する必要がある。例えば多数の木構造の集合で構築されるRFでは、木構造の本数やその最大深さをどれだけに設定するかにより判別性能に大きく影響する。そのため、優れた性能のモデルを得るためには、データに合わせた最適なハイパーパラメータを設定する必要がある。その方法としては総当たり式に条件を探索するグリッドサーチ、条件をランダムに定めて探索するランダムサーチ、ベイズ最適化がある¹²⁾。本報ではその中でも最も有効である手法ベイズ最適化を用いてハイパーパラメータを決定した。

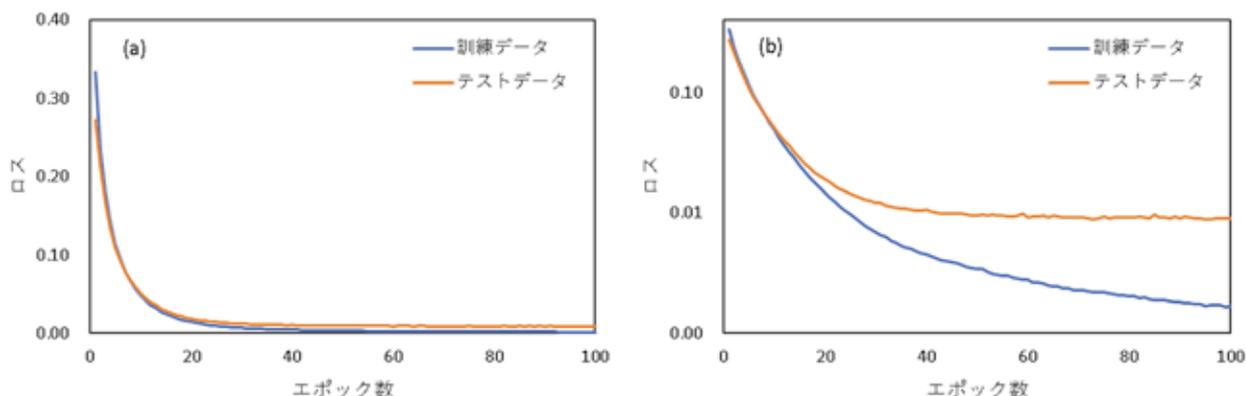


図 4 学習曲線

4 結果

4.1 学習の結果

学習は100エポックまで行った。訓練データ及びテストデータのロスとエポック数との関係を表す学習曲線を図4に示す。図4(a)と図4(b)は同じデータのグラフであり、(b)は縦軸を対数にしたものである。訓練データのロスはエポックの増加と共に減少し続けるが、テストデータのロスは40エポック程度で減少が止まり、以降はほぼ一定になっている。40エポック以降ではテストデータのロスが収束しているため、モデルは40エポックまで学習させたものを用いた。

4.2 元スペクトルと生成スペクトルの比較

PE, PP, PS, PET, セルロースについてテストデータの元スペクトルとモデルから出力した生成スペクトルを図5に示す。なお、図の可視性を高めるため、元スペクトルをシフトさせている。

PEについては CH_2 の伸縮振動(2914cm^{-1} , 2854cm^{-1})及び変角振動(1466cm^{-1} , 720cm^{-1})のピークが明確に抽出されている。一方で、元のスペクトルに見られない 1100cm^{-1} 近傍のピークが現れている。これはポリエチレンの正解データとして用いたスペクトルに存在するピークであり、PEではなくPE表面に付着した異物やPEが含む添加剤等に由来すると考えられる。正解データにこのピークが存在するため、U-Netでの処理過程で元スペクトルには存在しないピークを作り出してしまったと推測される。

PPについても CH_2 及び CH_3 の伸縮振動(2950cm^{-1} , 2914cm^{-1} , 2870cm^{-1} , 2854cm^{-1})と変角振動(1458cm^{-1} , 1376cm^{-1})が抽出されており、PPの特徴を概ね捉えられている。なお、 1040cm^{-1} 近傍のブロードなピークは SiO_2 等の付着物などに由来することが考えられる。

PSについては芳香環のCH伸縮振動(3028cm^{-1}), CH_2 の伸縮振動(2914cm^{-1} , 2854cm^{-1})及び変角振動(1466cm^{-1} , 720cm^{-1}), 芳香環のCH変角振動(750cm^{-1} , 696cm^{-1})等のピークが抽出できている。ただし、生成スペクトルでは芳香環の元スペクトルよりCH伸縮振動が弱くなっている。このピークに関しては元スペクトルの方が良好と考えられる。このようなスペクトルが生成された理由としては、正解データのポリスチレンスペクトルの当該ピークが小さいことからそれが反映されたためと考えられる。

PETについてはエステルC=O二重結合の伸縮振動(1716cm^{-1}), C=O結合の伸縮振動(1240cm^{-1} , 1090cm^{-1}), 芳香環のCH変角振動(724cm^{-1})等の特徴的なピークが得られている。ここで取り上げた元スペクトルはかなりノイズが大きいが、PETの特徴ピークを概ね捉えられている。

セルロースではOHの伸縮振動(3300cm^{-1})に由来するブロードなピーク, C=O伸縮振動(1052cm^{-1} , 1020cm^{-1})等のピークが出力できている。

いずれの試料についても、作成したU-Netモデルにより試料のスペクトルからその種別に対応した特徴スペクトルを生成できることがわかった。しかし、生成の過程で元のスペクトルに存在しないピークが生じている他、特徴を示すピークが弱くなるとこともあり、全てが理想通りの結果になっているわけではない。今回作成したモデルでは、元データを正解データに対して過剰に合わせこんでいると考えられ、モデルの構造や学習についてはまだ改善の余地が大いに存在する。また、実際の試料には今回用いた5種の物質だけでなくナイロン樹脂等の他の種類の樹脂や無機物など他の物質も含まれる。実試料にはディープラーニングのモデル作成に使用できる数の数がなかったため、本報ではそれらの解析を見送ったが、実用に耐えうるモデルを作成するためにはより

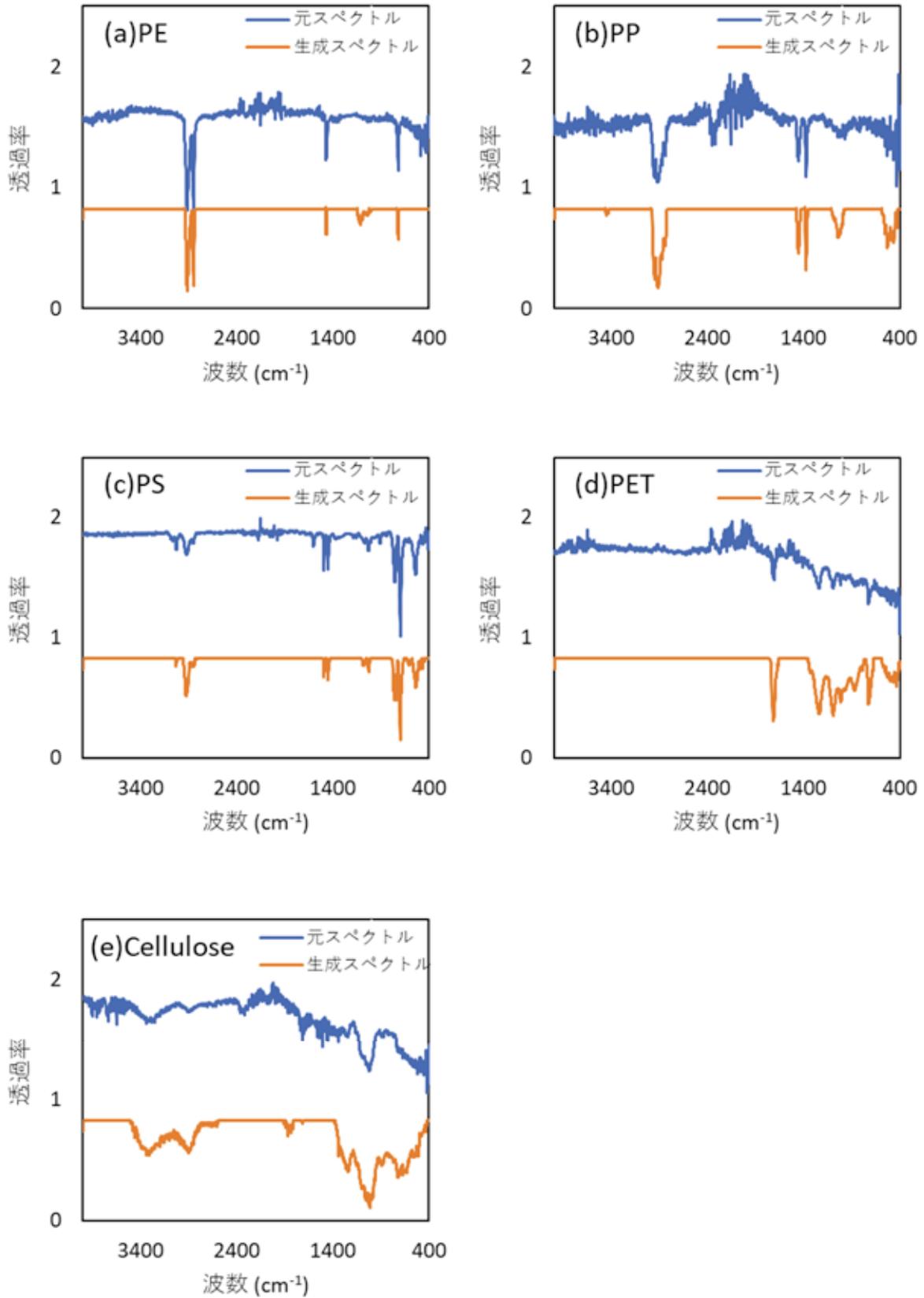


図5 元スペクトルと生成スペクトルの比較

多くの種類の試料を用いてモデルを作成する必要があると考えている。

その対応としては、正解データに実際のプラスチックから得られたスペクトルではなく、フィルム等から得ら

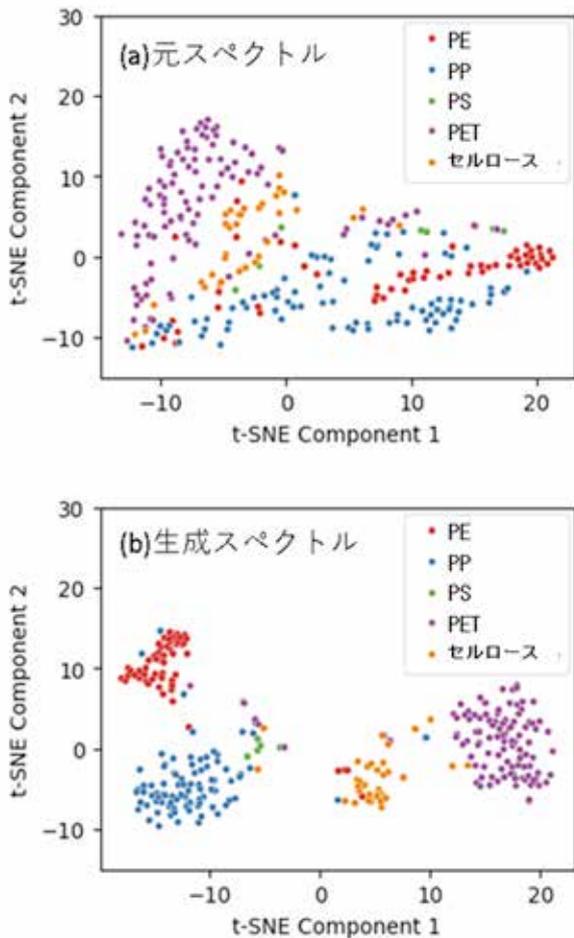


図6 t-SNEによる次元圧縮後の成分分布

れる良好なスペクトルを用いる、正解データに含まれる不要なピークをスペクトル処理により除外する等、正解データの質を高めること、実際のマイクロプラスチックを模擬した試料を作成してスペクトルを収集することにより訓練用の元データ数を増やすことが考えられる。

4.3 生成スペクトルによる自動判別の検証

元スペクトルと生成スペクトルとで判別性能がどの程度変化したかを可視化するため、元スペクトルと生成スペクトルそれぞれに対して、非線形次元圧縮法であるt分布型確率的近傍埋め込み法(t-SNE)¹³⁾による2次元への次元圧縮を行った。圧縮後の成分分布を図6に示す。元スペクトルに対して生成スペクトルでは顕著に分類ごとで分布がまとまっており、かつ分類間の距離が元スペクトルに対して大きくなっている。

また、元スペクトルと生成スペクトルそれぞれを用いた自動判別モデルを作成し、その性能をマクロF1値にて評価した結果を表1に示す。いずれの手法でも生成スペクトルのF値が高くなっていることから、生成スペクト

表1 各判別モデルのマクロF1値

判別モデル	元 スペクトル	生成 スペクトル
k近傍法	0.796	0.848
サポート ベクターマシン	0.864	0.874
ランダム フォレスト	0.831	0.890
勾配ブースティング 決定木	0.852	0.893

ルは元スペクトルよりも判別しやすくなっていると考えられる。ただし、F値がまだ0.9に満たない程度であるが、これは解析に用いたデータが種類ごとに著しい不均衡性を有していることによる。2.2で述べたようにPSのスペクトルは17本と少なく、最も多いPETの15分の1程度しかない。そのうち11本をモデル構築に、6本をモデルの評価に用いているが、その2本が誤判別されているためにPSの判別性能だけが極端に低くなってしまっている。より妥当な解釈をできるモデルを構築するためには、PSのスペクトルを増やす等のデータの不均衡性を是正する必要がある。

5 結 論

マイクロプラスチックのFT-IRスペクトルに対してU-Netモデルによる特徴スペクトルの生成を試みた結果、試料の化学構造に応じたスペクトルを生成することができた。また、生成スペクトルを用いて自動判別が可能かどうかを機械学習により検討したところ、良好に判別できた。しかしながら、生成の過程で本来存在しないピークが現れる等の問題もあり、まだモデルの改善の必要性が存在する。今後は、標準試料のスペクトルを取得してモデル生成に織り込むなどの改善を行っていく予定である。

謝 辞

マイクロプラスチックのFT-IR分析に際し、あいち産業科学技術総合センター尾張繊維技術センター及び産業技術センターの機器を使用させていただいた。ここに感謝の意を表す。

文 献

- 1) 高田秀重 マイクロプラスチック汚染の現状, 国際動向および対策. 廃棄物資源循環学会誌, **29**(4), 261-269(2018)
- 2) 木村由紀子, 市川智宏, 山内幸一, 齋藤祐理香, 臼井敏紀, 成瀬憲政, 坂井田稔, 加藤三奈 逢妻川における河川マイクロプラスチック実態調査, 愛知県環境調査センター所報, **51**, 9-16 (2023)
- 3) 環境省水・大気環境局海洋環境課海洋プラスチック汚染対策室 河川・湖沼マイクロプラスチック調査ガイドライン令和6年3月, <https://www.env.go.jp/content/000231279.pdf> (2025. 2. 5)
- 4) 長谷川健 スペクトル定量分析, 講談社サイエンティフィック, 講談社(2005)
- 5) 田中丈幸, 尾崎幸洋 分光関連機器のメンテナンスと精度要因 VI. スペクトルのデータ処理, 分光研究 **49**(6) 306-321 (2000)
- 6) Cara P. Murphy and John Kerekes 1D Conditional Generative Adversarial Network for Spectrum-to-spectrum Translation of Simulated Chemical Reflectance signatures, *Journal of Spectral Imaging*, **10** (2021)
- 7) Josef Brandt, Karin Mattsson and Martin Hassellöv Deep Learning for Reconstructing Low-Quality FTIR and Raman Spectra- A Case Study in Microplastic Analyses, *Analytical chemistry*, **93**(49), 16360-16368(2021)
- 8) Suphachok Buaruk, Pattara Somnuake, Sarun Gulyanon, Somrudee Deepaisarn, Seksan Laitrakun and Pakorn Opaprasakit Membrane filter removal in FTIR spectra through dictionary learning for exploring explainable environmental microplastic analysis, *Scientific Reports*, **14**(1)20297(2024)
- 9) 岡谷貴之, 齋藤真樹 ディープラーニング, 情報処理学会研究報告, コンピュータビジョンとイメージメディア, (CVIM), 2013. 18, 1-17 (2013)
- 10) 岡谷貴之 画像認識のための深層学習 (〈連載解説〉 Deep Learning (深層学習)[第4回]) 人工知能, **28**(6)962-974(2013)
- 11) Olaf Ronneberger, Philipp Fischer and Thomas Brox U-Net: Convolutional Networks for Biomedical Image Segmentation, *Medical Image Computing and Computer-Assisted Intervention- MICCAI 2015: 18th International Conference, Munich, Germany, October 5-9, 2015, Proceedings, part III*, 234-241(2015)
- 12) 尾崎嘉彦, 野村将寛, 大西正輝 機械学習におけるハイパパラメータ最適化手法: 概要と特徴, 電子情報通信学会論文誌, J103-D. **9**, 615-631 (2020)
- 13) Laurens Van der Maaten and Geoffrey Hinton Visualizing Data using t-SNE, *Journal of Machine Learning Research*, **9**, 2579-2605 (2008)