

## 化学センサ測定における線形応答理論に基づいた新規解析法

## — 嗅覚センサ実現に向けて

## New Data Analysis Method for Chemical Sensing Toward Artificial Olfaction

今村岳\*1,2  
Gaku Imamura吉川元起\*1  
Genki Yoshikawa鷲尾隆\*3  
Takashi Washio\*1 物質・材料研究機構 国際ナノアーキテクニクス研究拠点  
International Center for Materials Nanoarchitectonics, National Institute for Materials Science\*2 物質・材料研究機構 若手国際研究センター  
International Center for Young Scientists, National Institute for Materials Science\*3 大阪大学 産業科学研究所  
The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University

Sensors play an important role in emerging applications that utilize data-scientific technologies such as artificial intelligence (AI), Internet of Things (IoT), and big data analysis. To realize advanced chemical sensor applications, we have developed a new data analysis method for gas identification. Gas species can be identified by the relationship that connects sample input and sensor output (i.e. gas injection sequences and sensing signals, respectively). We have successfully demonstrated the identification of five gas species according to the relationship. This analysis method achieves gas identification based on a universal index that does not depend on gas injection sequence. In combination with machine learning, this analysis method will contribute to realizing a practical artificial olfactory system—a chemical sensor system that identifies smells which are composed of a complicated mixture of volatile chemical compounds.

## 1. はじめに

人工知能やモノのインターネット (IoT) などの発達により、近年様々な新規技術が開発されているが、センサはそのハードウェア側の基盤となる最も重要な技術の一つである。中でも化学センサは環境や医療分野などへの広範な応用が期待されているが、気体試料の的確な識別は依然として困難であり、新たな解析法の開発が望まれている。

化学センサを用いて試料の特性 (化学種、温度等) に基づいた識別を行う手法は、用いる化学センサの原理に応じて様々なものが存在する。特定の化学物質に対して特異的に出力が変化するセンサ (例えば pH メーター) の場合には、その物質の有無や濃度に基づいて試料の識別が可能であるが、広い選択性を有する化学センサの場合には、得られるセンサ出力から識別に有用な情報を抽出する必要がある。例えばガスセンサを用いて気体試料の分析を行う際には、試料をガスセンサに供給することで得られるシグナルから特徴を抽出することで気体の種類を識別することができる。これは、ガスとセンサの相互作用がガスの種類により異なることから、ガス種ごとに異なる形状のシグナルが得られるためである。しかし、抽出される特徴量は、試料ガスをセンサ素子に導入する際の流量制御に依存することから、このガスの流量制御をそろえなければセンサシグナルからガス種を識別することができない。したがって、どのようなガスの流量制御であっても試料の識別が可能となる、より普遍的な指標に基づくデータ解析法が求められている。

そこで本研究では、線形応答理論の概念をシグナル解析に導入し、センサシグナルそのものに注目するのではなく、入力 (試料の導入) と出力 (センサの応答) をつなぐ「伝達関数」に注目することで試料を識別する新規解析法を開発した。この伝達関数は試料とセンサ素子の組み合わせに固有のものであることから、どのような入力であっても伝達関数を基に試料を識別することが可能となる。この新規解析法により、ポンプやマスフローコントローラ (MFC) による厳密な流量制御が不要となるため、測定システムの大幅な簡素化が実現される。

## 2. 伝達関数

化学センサに対して試料を導入すると、化学センサの動作原理に応じてシグナルが得られる。今この試料の導入を入力とし、

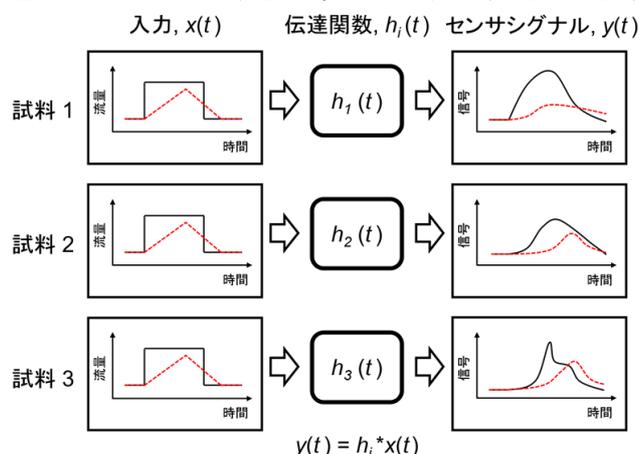


図 1: 入力、伝達関数、センサシグナル関係図。

得られるシグナルを出力とする。このとき、入力と出力の関係を結ぶものを「伝達関数」と定義する。一般的には、化学センサを用いて試料を分析する際、シグナルを解析することによって試料を分析するが、試料の特性(化学種、温度等)により入力と出力の関係が変化することから、両者をつなぐ伝達関数に注目することで試料の分析が可能となる。

この伝達関数による解析の例として、入力と出力との関係が線形である系について考える。まず図 1 のように、試料  $i$  ( $i = 1 \sim 3$ ) のセンサ素子への流入量  $x(t)$  を入力とし、その結果得られるセンサシグナル  $y(t)$  を出力とする。ここで  $t$  は時刻である。今、 $x(t)$  と  $y(t)$  は線形性を有すると仮定していることから、両者は時間伝達関数  $h_i(t)$  を用いて

$$y(t) = \int_0^t h_i(\tau)x(t - \tau) d\tau = h_i(\tau) * x(t - \tau) \quad (1)$$

と畳み込みで表すことができる。この  $x(t)$  と  $y(t)$  を関係づける  $h_i(t)$  は線形の系である限り試料  $i$  の流入量  $x(t)$  には依存しない。一方、 $h_i(t)$  は試料  $i$  の特性により異なるため、 $h_i(t)$  を求めることによって試料の識別が可能となる。また、式(1)を周波数領域で表現すると、周波数を  $f$  として、流入量  $X(f)$  およびセンサシグナル  $Y(f)$  は、周波数伝達関数  $H_i(f)$  を用いて

$$Y(f) = H_i(f)X(f) \quad (2)$$

と記述することができる。この周波数伝達関数  $H_i(f)$  も試料  $i$  の特性により異なるため、測定により  $H_i(f)$  を求めることで試料の識別が可能となる。

### 3. 実験

図 2 に本研究で用いた実験系を示す。2 つのマスフローコントローラ(MFC)を用いて、溶媒のヘッドスペースガスを希釈しながらセンサ素子に導入した。本研究では、MFC1 の流量  $V_{1,in}(t)$  を  $0 \sim 100$  sccm の範囲で 1 秒ごと(1 Hz)にランダムに変化させた。一方 MFC2 の流量  $V_{2,in}(t)$  は  $V_{2,in}(t) = 100 - V_{1,in}(t)$  [sccm] とし、MFC1 と MFC2 の流量の和が常に 100 sccm となるようにした。測定時間は一測定につき 20 秒とし、サンプリング周波数 20 Hz で測定した。試料として水(H<sub>2</sub>O)、エタノール(EtOH)、ベンゼン(Benzene)、酢酸エチル(AcOEt)、ヘキサン(Hexane)の 5 種類の溶媒を用い、各溶媒につき 6 回の測定を行った。センサとしては、ガス感応膜としてポリメタクリル酸メチル(PMMA)が被覆された膜型表面応力センサ(Membrane-type Surface stress Sensor, MSS)を用いた。[Yoshikawa 2011]

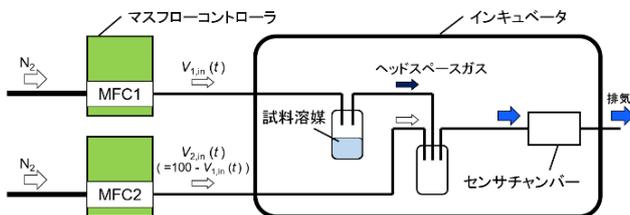


図 2: 実験系概要。

### 4. 伝達関数によるガスの識別

測定データより周波数伝達関数を算出し、これをもとにガス種の識別を行った。5 種類の溶媒につき、各々 6 回の測定から得た合計 30 個の 10 次元複素ベクトル周波数伝達関数に主成分分析(PCA)を行った。結果を図 3(a), (b)に示す。なお図 3(a), (b)は、周波数伝達関数のうちガス種ごとの違いが表れやすい虚数成分のみを用いたものである。図 3(a), (b)より、周波数伝達関数を用いることで 5 種類の溶媒蒸気を識別可能であること

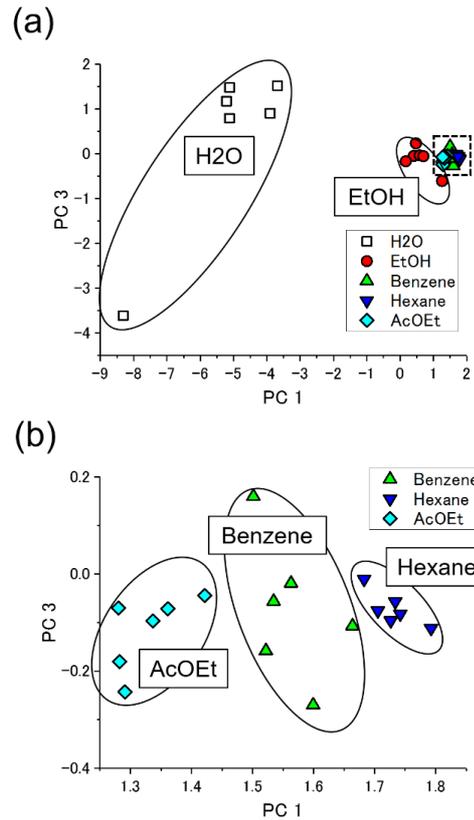


図 3: 主成分分析結果。(b)は(a)の破線部分を拡大したもの。

が確認された。本研究で化学センサとして用いた MSS はナノメカニカルセンサの一種であり、センサ素子表面上に塗布されたガス感応膜が、ガスを吸収して膨張・収縮する際に生じる応力をピエゾ抵抗で検知することでセンサシグナルを得ている[Yoshikawa 2011][Wenzel 2008]。したがってセンサの応答は、ガスと感応膜との相互作用(ガスの吸収・脱離、およびそれに伴う感応膜の膨張・収縮など)によって決まる。同じ MSS を用いて複数のガス測定を行った場合、この相互作用がガス種ごとに異なり周波数伝達関数も異なるため、周波数伝達関数をもとにしたガス種の識別が可能となる。

### 5. まとめ

本研究により、化学センサを用いたガス測定において、入力となるガスの導入と出力となるセンサシグナルの応答との関係から伝達関数を求めることで、ガスの識別が可能となることが示された。これにより、ガスの流量制御に依存しないより普遍的な指標にしたがってガスの識別が可能となることから、厳密な流量制御を必要としない簡素化したシステムでのガス分析が可能となる。この伝達関数の概念と機械学習を組み合わせることで、複雑な組成からなるガスの識別を、よりの確かつ簡便に行う事が可能なシステム(人工嗅覚)の実現が期待される。

### 参考文献

[Yoshikawa 2011] G. Yoshikawa, T. Akiyama, S. Gautsch, P. Vettiger, H. Rohrer: Nanomechanical Membrane-type Surface Stress Sensor, Nano Letters, American Chemical Society, 2011.  
[Wenzel 2008] M. Wenzel, F. Josse, S. Heinrich, E. Yaz, P. Datskos: Sorption-induced static bending of microcantilevers coated with viscoelastic material, Journal of Applied Physics, American Institute of Physics, 2008.