

令和 4 年 6 月 29 日現在

機関番号：33302

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04445

研究課題名(和文)部分空間Prony法に基づく信号成分の同定に基づく匂いセンシングの実現

研究課題名(英文)Odor sensing using subspace based Prony's method

研究代表者

竹井 義法 (Takei, Yoshinori)

金沢工業大学・工学部・教授

研究者番号：30350755

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、匂いセンサシステムの実現に向けて、フロー系を模擬したステップ入力に対するガスセンサ応答モデル、すなわち、ガス供給からガスセンサへの導通経路に至る測定系全体の特性を内包するガスセンサ応答波形の伝達特性について、センサ特性の変化やフロー系に起因するオーバーシュートやドリフト成分と、ガス・ガスセンサ素子(材料)の組合せで決定される反応速度定数を、部分空間Prony法によって推定、分離することを検討し、高次の応答モデルとなるガスセンサ応答波形からガス種依存の特徴抽出が可能となることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、匂いセンサシステムの構築に向けたガスセンサの応答解析手法を検討したものである。ガスセンサから得られるステップ応答波形から、その構成成分を推定、分離することは単に応答波形の良い近似が得られるだけでなく、その結果が解釈可能なものでなければならない。本研究では、ガスセンサ表面とガス分子との吸着過程が一次応答となる等の実システムにおいて考慮すべき前提条件を先験情報として用いることで解釈可能なガスセンサ応答モデルのパラメータ推定が可能であることを示した。今後は、ターゲットとなる成分以外に排除すべき成分を同時に含んでいることが想定される呼気診断の実現等への応用を検討する予定である。

研究成果の概要(英文)：In this study, toward the realization of an odor sensor system, we investigated the estimation of the transfer characteristics of a gas sensor response model for step input simulating a flow system which includes the characteristics of the entire measurement system. Using the subspace-based Prony's method, we considered the estimation of the reaction rate parameters determined by the combination of the gas / gas sensor element (material), and the separation of the overshoot and drift components caused by changes in sensor characteristics and the flow system, then it have shown that gas type-dependent features could be extracted from the gas sensor response which can be expressed a high-order response model.

研究分野：システム同定、化学センサシステム

キーワード：ガスセンサ 部分空間法 信号処理

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

種々に匂いやガスを検知可能な匂いセンサの研究開発が行われている。匂い分子を検出し、電気信号へと変換するトランスデューサとしては、半導体素子へのガス吸着による電気伝導度変化を捉える半導体式ガスセンサや、水晶振動子表面に形成した有機薄膜等へのガス分子吸着時の重量変化によって生ずる共振周波数変化を捉える水晶振動子式ガスセンサ等がある。その感度・選択性は同一の検知原理に基づく場合、素子材料の設計でほぼ決定されるが、所望のガス選択性を実現する設計指針は依然として確立できていないとはいえず、一般に、使用環境を限定せずに利用可能な、特定のガスにのみ高感度、高選択性を実現するガスセンサ開発は困難な課題である。既存のセンサを用いながらその選択性を向上させる手法として、選択性は低い特性の異なるガスセンサのアレイ化とその出力の多変量解析によってガス判別する手法が **Krishna Persaud** によって提案されて以降、多数の成果があるものの依然として課題が多い。それは、トランスデューサの性能向上に軸足を置いたセンサ開発か、既存のセンサをそのままに機械学習等の種々の判別手法を導入し、センサ出力に対するポストプロセスによって識別能力を実現しようとするソフトウェアの応用か、いずれかのアプローチに大別されるような一種の乖離があるものと考えられる。そこで、本研究では、センサ素子材料や検知原理の新規開発といったハードではなく、また、センサ出力に対する機械学習等の応用に力点を置いたソフトでもない、ガスセンサ特性をソフトウェアによって所望の特性が得られるように改変する、いわばファームウェアに近い解析手法の提案を考えた。

2. 研究の目的

本研究は、高機能ガス・匂いセンサの開発を目的として、半導体式ガスセンサをターゲットに、これまで申請者が提案している部分空間 **Prony** 法によるガスセンサ応答からの特徴抽出法の改良と逐次部分空間同定法に基づく、その逐次アルゴリズムの開発を行い、多入出力系とみなせるセンサアレイから得られるデータの一括処理が可能な匂い識別を実現するリアルタイムな特徴点抽出、特性ガス成分のみの応答をフィルタリングする信号分解手法の開発を目指す。さらに、モデルパラメータに基づき各信号成分のゲインを推定することで、高精度に被検ガスや混合ガスである匂いの各成分の濃度推定の実現を目的とした。

3. 研究の方法

半導体式ガスセンサ（実験では市販のフィガロ技研製 TGS2620 及び TGS8100 を用いた）をターゲットに、チャンバー内及び開放空間にて計測した実測データ、及び数値シミュレーションによるガスセンサ応答波形を模擬したステップ応答波形を対象にパラメータ推定アルゴリズムの検討を行った。閉チャンバーを用いた実験では、エタノールとアセトンが被検ガスに、単体、または両者が混在する環境下での応答波形の評価を行った。また、（センサ素子への導通時間を間欠的に行う）パルス駆動方式の MEMS 型半導体式ガスセンサを用いたガス計測系を構築し、チャンバー内での評価及び実空間での計測を行い、ガスセンサの応答評価を行った。

4. 研究成果

半導体式ガスセンサの出力波形がステップ応答となるように、閉チャンバーへ被検ガスをシリンジで導入して得られる実測データを評価した。その結果、濃度依存の振幅強度が得られることはもちろん、各被検ガスに対して異なるステップ応答の時定数が得られた。具体的には構築した測定系において、エタノールはおよそ 8.5s、アセトンは 6.3s 程度であった。バックグラウンドに雑ガス（を想定した異なる被検ガス）が存在する状況においても、導入した被検ガス種に依存した時定数がそのステップ応答から得られ、ガス種・ガスセンサ素子材料の組合せで決定される反応速度定数がガス種混在下においてもガス種判別に有効であることを確認した。MEMS 型の半導体式ガスセンサを用いた実験では、閉チャンバー内、及び移動体を用いた開放空間内でのセンサの動特性やパルス駆動時の導通時間内の出力値を用いたサンプル値応答の特性評価を行った。

これらの評価結果を基に、フロー系等の被検ガス濃度がステップ状となるガスセンサ応答モデルのパラメータ推定、及び応答成分の分離について検討を行った。被検ガス濃度がステップ状に与えられる場合に対するガスセンサ応答波形には、被検ガス導入直後の流量変動に伴う振動的な応答や、半導体式ガスセンサの特性変動、温度系の特性変動によるドリフトが生じることがある。これらは、本来の被検ガス種とセンサ素子材料の組み合わせで決定付けられるセンサ応答の特徴ではないため、多変量解析を適用する場合等のセンサ出力波形からの特徴抽出を妨げる要因となる。以下に測定系に起因する振動成分やドリフト成分の推定、分離について検討した結果について述べる。

ステップ状に濃度変化する被検ガスに対する単一のガスセンサ応答波形は、ガス種とガスセンサ素子材料の組み合わせに依存する反応速度で特徴づけられるステップ応答の重ね合わせと

して表現される。混合ガスを被検ガスとして考えるとき、その各ガス成分に対するセンサ応答が各々ステップ応答として対応付けられることが望ましいが、実際には、単一成分のガスを被検ガスとして用いた場合のセンサ応答であっても、実際には測定系に依存して高次のモデルとなる。例えば、フロー系においてガスセンサへのガス導入時のバルブ開閉による急激な濃度変動がある場合には振動的な応答が生じたり、ガス導入量が一定でない場合やセンサの特性変動によってドリフトが生じたりする応答が得られる場合は、それら測定系に起因する成分は、ガスセンサ応答の伝達特性を考えた場合に共役複素根として振動成分となったり、ガス種依存の反応速度とは異なる大きな時定数を持つ伝達特性として推定されることになる。

我々は、前述のステップ応答モデルの各パラメータ、すなわち定常値と時定数の組合せを推定するために、指数関数和近似モデルによる信号解析を行う Prony 法にパラメータ推定手順に部分空間法を導入した部分空間 Prony 法を提案している。先行研究に従い、ステップ応答波形を 1 段先のデータ間で差分を取るフィルタを適用してインパルス応答へ変換した後に提案手法を適用して指数関数和モデルのパラメータを推定し、得られる推定値からガスセンサ応答を構成する成分の各濃度、時定数を推定する。ここで、実際のガスセンサ応答波形を近似するだけであればそれほど困難な問題ではないが、センサ応答によくフィットするモデルは前述の差分フィルタの段数や部分空間法における補助次数を変化させるとセンサ応答の各成分に対応するパラメータは一意に決定できない。一方、我々が今ガスセンサ応答をモデリングする目的は、その応答を単に近似するのではなく、解釈可能な推定結果を得ることにある。すなわち、どのような成分でその応答が構成されており、被験ガスに関する有益な情報が得られるかが重要である。そこで、単一ガス成分の被験ガスに対する本来のガスセンサ応答が 1 次応答であると仮定すると、その成分は、実測波形において実数の時定数を持ち相応の大きさの定常値（濃度に対応するゲイン）を持つと考えられる。また、混合ガスが導入された場合や多成分でセンサ応答が表現される場合でも、ある成分が他の成分に対するセンサ応答を大きく抑制することで最終的なセンサ応答の振幅強度となることは現実的ではないため、ガスセンサ応答波形を良く近似するパラメータの推定値のうち、支配的な成分の時定数が実数値であること、また各成分はガスセンサ応答波形の振幅強度と比較して小さくなるように選択するという境界条件を設定し、パラメータ推定を行った。

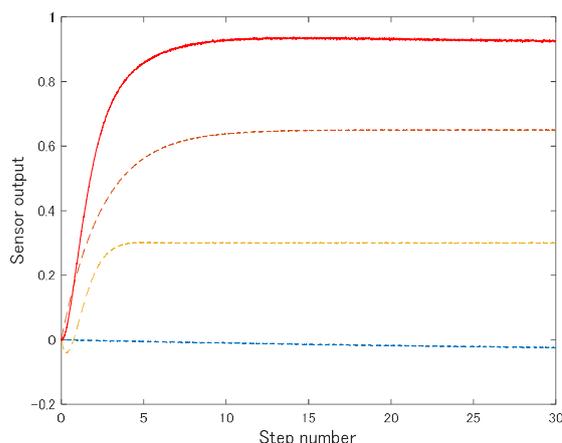


図 1 数値シミュレーションによるガスセンサ出力（実線）とその各構成成分（破線）

数値シミュレーションとして、図 1 に示す、ガス成分に対応する実数の時定数と強度を持つ成分、測定系におけるリークを模擬した負のゲインとガス成分に相当する時定数と比較して相対的に大きな時定数を持つドリフト成分、さらにフロー系において、ガス導入時のバルブ開閉時の負圧による振動を模擬した共役複素根からなる振動成分を重ねた 4 次の応答波形をガスセンサ出力として、その各成分の分離、同定を行った。差分フィルタの段数や補助次数は未知の時定数を持つ成分の同定において予め決定することは望ましくなく、一定の範囲で変化させて、得られる応答モデルと実測データとの適合率 (FIT) で評価し、前述の境界条件を満たすと同時に適合率の高い推定値セットから、望ましい推定値が決定できることを明らかにした。図 2 に示す推定結果は、図 1 の数値例に対して、実数の時定数が最大の定常値を持つ推定結果のうち、最も適合率の高かった推定結果を示したものである。センサ応答波形の近似となるモデル出力が良くフィットしていると同時に、推定値の各成分である赤の破線は、振動成分やドリフト成分を分離、推定できており、ガスセンサから得られる直接観測できる応答波形の近似にとどまらず、その成分を良く推定できていることがわかる。さらに、Hankel 行列となるセンサ出力からなるデータ行列の構造から、新しいデータセットの追加によるデータ行列の更新が可能な積率行列に対して部分空間 Prony 法を適用することで、システム行列の推定に SVD の適用が必要なものの簡易な逐次推定が可能であることを確認している。しかし、未知の成分を含む被検ガスの成分同定に

において、探索的なパラメータ推定が有効であることから、スライディングウィンドウ方式のデータ更新と合わせてパラメータ探索を並列処理するような逐次同定の検討が必要であると考えられる。また、パラメータ探索の過程で得られる推定値セットの一種のプロファイルはガス成分を視覚化する情報となるため、それらを活用した応用についても今後検討を行う予定である。

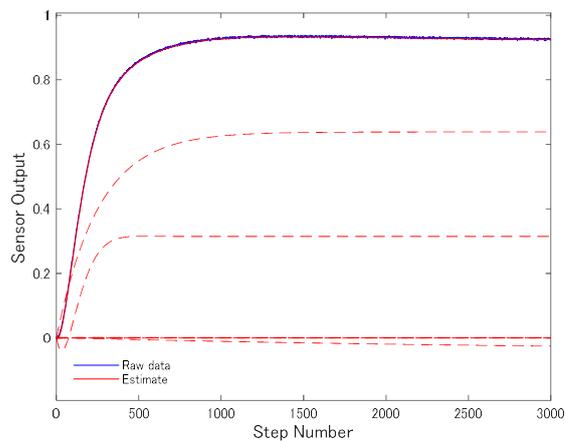


図 2 推定結果（青がセンサ応答波形，赤が同定されたモデルの出力（いずれも実線）。点線はモデルの出力を構成する各成分の実数波形）

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 竹井 義法, 長山 真也, 平澤 一樹, 南戸 秀仁
2. 発表標題 部分空間法に基づく半導体式ガスセンサ応答の振動及びドリフト成分の推定
3. 学会等名 電気学会ケミカルセンサ/バイオ・マイクロシステム合同研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 竹井義法, 長山真也, 平澤一樹, 南戸, 秀仁
2. 発表標題 機械嗅覚への応用を目指した半導体式ガスセンサの過渡応答解析と特徴抽出
3. 学会等名 マイクロマシン・センサシステム/ケミカルセンサ/バイオ・マイクロシステム合同研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yoshinori Takei, Yukitaka Kanazawa, Kazuki Hirasawa and Hidehito Nanto
2. 発表標題 DEVELOPMENT OF 3D GAS SOURCE LOCALIZATION USING MULTI-COPTER WITH GAS SENSOR ARRAY
3. 学会等名 The International Symposium on Olfaction and Electronic Nose (ISOEN) 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------