

令和 5 年 6 月 9 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05345

研究課題名（和文）インフォマティクスを活用したロバスト嗅覚センサシステムの構築

研究課題名（英文）Development of a Robust Olfactory Sensor System Based on Informatics

研究代表者

今村 岳（Imamura, Gaku）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・独立研究者

研究者番号：60715754

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、温度や湿度等の外乱の影響を受けないロバストな嗅覚センサシステムを構築することを目的としている。本研究では、ニオイを検知するためのセンサプラットフォームとして膜型表面応力センサ（Membrane-type Surface stress Sensor, MSS）を用いた測定系を組み、ハード・ソフトの両面からのアプローチによりロバストな嗅覚センサシステムの構築を行った。研究期間中、インフォマティクスを活用することにより測定法・解析法の最適化を行い、さらに外乱の影響を排除できる新規測定法の開発を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

センサはSociety 5.0を実現するための必須の技術である。特に嗅覚センサは、気相中の化学的な情報を検知する技術として様々な応用が期待されているが、その技術的な難易度の高さからこれまで有効な社会実装には至っていない。その原因となっている重要な課題の一つが、外乱の影響により精度が低下することである。本研究により嗅覚センサのロバスト性を向上させられたことは、実用的な嗅覚センサを実現するために必須の技術であり、これにより社会実装の加速が期待される。

研究成果の概要（英文）：The objective of this research is to construct a robust olfactory sensor system that is not affected by disturbances such as temperature and humidity. In this study, a measurement system using a membrane-type surface stress sensor (MSS) as a sensor platform for odor detection was constructed, and a robust olfactory sensor system was built through both hardware and software approaches. During the research period, we optimized the measurement and analysis methods by utilizing informatics, and further developed a new measurement method that can eliminate the influence of disturbance.

研究分野：センサ

キーワード：嗅覚センサ ガスセンサ 計測インフォマティクス

1. 研究開始当初の背景

嗅覚は、人間の五感の中で唯一実用的なセンサとして実現していない感覚である。近年急速に発達しているモノのインターネット (IoT) では、フィジカル空間 (現実空間) で情報収集を行うセンサの需要が非常に高まっていることから、ニオイを検知・識別する嗅覚センサが IoT センサとして実現することで様々な分野での応用が期待されている。センサを用いたニオイの識別は、特性の異なる複数のガスセンサにニオイを送り、各センサで得られるシグナルを解析することで行われる。このニオイ測定では通常、ニオイに特有のシグナルの特徴を得るために、流量を厳密に制御する必要があった。しかし、従来のこの測定法では、流量を制御するためのポンプが必要になるため、測定機の大型化、測定の煩雑化、異なる流量制御で得られた測定データ間の比較が不可能、等の問題があり、嗅覚センサの実用化が阻害されてきた。この問題に対し申請者は、センサのシグナル解析に制御工学の概念を導入し、伝達関数比 (Transfer Function Ratio, TFR) に基づく新規ガス識別法を開発した。これは、流量制御が一切不要となる画期的なシグナル解析法である。この TFR に基づく解析法と、超小型のガスセンサである膜型表面応力センサ (Membrane-type Surface stress Sensor, MSS) を組み合わせることで、試料にセンサチップをかざすだけの「かざすだけ測定」によるニオイ識別に成功した。(G. Imamura et al., Sci. Rep. 9, 9768 (2019), 特許出願 2 件)

この かざすだけ測定の実現により測定の簡易化が実現できたが、実用的な嗅覚センサ実現のためには測定環境の影響を受けない“ロバスト”なセンシングの実現が課題として残っている。センサの応答特性は測定環境の影響を受けることから、従来型の嗅覚センサにおいても、測定環境は識別精度を低下させる最も大きな要因の一つであった。実用化に向けては「あるニオイを識別するには、どのような環境下で、どのようなセンサを用いるのが効果的か」を定量的に評価することが必要となるが、かざすだけ測定により誰でも簡単に測定が可能となったことから、定量評価を行うために必要な様々な条件下 (ニオイ・測定環境・センサ) での測定データ取得が可能になった。しかし一方で、膨大な組み合わせが考えられるニオイ測定データをもとに、測定環境の影響を排除したニオイ識別モデルを構築し、測定の最適化を行う手法は確立されていないのが現状である。これは、測定時の外乱が含まれる膨大な測定データをもとに「外乱の影響を排除して必要な情報を抽出するにはどうすればよいか」「どうすれば測定の精度を向上させる指針が得られるのか」という、従来の解析手法では扱いきれない膨大な測定データを扱う計測技術全般における課題であり、センサが鍵となる超スマート社会実現のために解決すべき重要な事項である。

2. 研究の目的

本研究では、かざすだけ測定によるニオイ測定とインフォマティクスを融合させることで、大規模ニオイ測定データベース (DB) の構築、およびその DB を活用した測定系の最適化指針の策定を行う。本研究では、既に作製している小型測定機を用いて、様々な環境下での大規模ニオイ測定 DB の構築を行う。この DB の活用によりインフォマティクスを適応することで、測定環境の影響を排除した高精度なニオイ識別を実現するための測定系の最適化指針を得る。具体的には、環境からくる最も大きな外乱である温湿度影響の排除を目的とした測定系の最適化を行う。すなわち、あるニオイの識別において高い識別精度が維持できる温湿度条件を明らかにするとともに、さらなる高精度化が可能となる感応膜 (MSS においてガスを検知する部位) を選定する指針を得る。

3. 研究の方法

本研究では、嗅覚センサシステムへのインフォマティクス応用として 温湿度の影響の排除・定量評価、および 感応膜最適化を行う。測定するサンプルとしては、単一ガスとして有機溶媒、実ニオイサンプルとして食品試料を主に用いた。一方で、産学官連携の共同研究体制「MSS フォーラム」のメンバーに協力を仰ぎ、産業分野で需要のある様々なニオイの測定を行った。MSS の感応膜としては、これまでの研究で開発・検証して実績のある高分子材料、無機ナノ材料、超分子材料、炭素系材料を用いた。

(1) 温湿度の影響の排除・定量評価

ガスセンサの応答特性は温湿度の影響を強く受けることから、実用的な嗅覚センサの実現において温湿度の影響を評価することは極めて重要である。本研究では、この温湿度の影響を定量的に評価する。具体的には、本研究では 4 チャンネル MSS チップを用いて、様々な温湿度下でニオイの測定を行い、温湿度の影響が排除可能であることを実験的に示す。一方で、温湿度の幅が広がるにつれてニオイの識別精度も低下することが予想される。この影響を定量的に評価するため、学習に用いる測定データの温湿度領域を段階的に変化させて機械学習モデルを立て、温湿度範囲と識別精度の関係を評価した。

(2) 感応膜最適化

あるニオイを識別するためのセンサの最適化(どのような特性のセンサを搭載するか)は、感度、外乱の影響への耐性、センサ応答のバリエーションなどの観点が多岐にわたるため、画一的な最適化の指針を得ることが難しい。申請者はこれまでに、ターゲットとなる試料に対する MSS の強度の分散をもとに感応膜を最適化し、識別精度を向上させることに成功している。(G. Imamura et al., Sci. Rep. 2019) 本研究では、あるニオイを検知するために最適な感応膜材料の設計をセンサ応答特性を元に行い、さらにその検出原理の解明を試みる。

4. 研究成果

(1) かざすだけ測定の最適化

かざすだけ測定に基づくニオイ識別システムを実現するためには、ハードウェア、測定プロトコル、データ解析を含む包括的な測定システムの開発が必要である。本研究では、MSS を搭載した手のひらサイズの無線式ニオイ測定デバイスを開発し、測定プロトコルや特徴量の選択がニオイ識別に与える影響について検討した。本デバイスを用いて、液体の蒸気をニオイサンプルとして、異なるプロトコルでかざすだけ測定を行った。これらのプロトコルで得られた測定データから、伝達関数比 (TFR) のデータセットを作成し、クラスタリングと機械学習による分類で分析した。その結果、1Hz 以下の低周波数域の TFR は、MSS の検出機構のダイナミクスを反映するため、蒸気識別に顕著に寄与することが明らかとなり、正確な分類のための最適な測定プロトコルを示すことに成功した。(G. Imamura and G. Yoshikawa, Sensors 20, 6190 (2020))

(2) 感応膜材料の開発

グラフェンは、その高い比表面積と膨大な化学修飾の可能性から、ガスセンシングにおいて重要な材料として注目されている。グラフェンをガスセンサとして最大限に活用するためには、導電性に依存しないセンシング方法が有効である。本研究では、MSS をセンシングのプラットフォームとし、感応膜として酸化グラフェン (GO) を利用した。MSS は、ガスの吸着によって生じる表面応力を検出するため、導電性の低い化学修飾グラフェンをガスセンシング材料として利用することが可能である。本研究では、5 種類のガスに対する反応を測定することにより、GO がコーティングされた MSS のガスセンサとしての応答を評価した。その結果、水蒸気に対する高い選択性を明らかにし、還元型酸化グラフェン (rGO) やグラファイト粉末 (Gr) でコーティングした MSS のセンシング性能と比較することで、GO を感応膜とした MSS のガスセンシング機構を調べ、感度と選択性の要因を推論した。(G. Imamura, K. Minami, K. Shiba, K. Mistry, K.P. Musselman, M. Yavuz, G. Yoshikawa, K. Saiki and S. Obata, Chemosensors 8, 82 (2020))

(3) 温湿度の影響評価

恒温・恒湿装置を用いて、温度・湿度を様々に変えた際のセンサの応答を評価し、ポリマー材料を中心にセンサ感応膜としての応答特性の評価を行った。一例を図 1 に示す。このように、材料ごとに耐温度・湿度特性は異なることを定量的に評価し、それらの特性をデータベースとしてまとめることを行った。また、感応膜の持つ特性および MSS の動作原理に基づき各感応膜の温湿度特性の傾向について考察を行った。

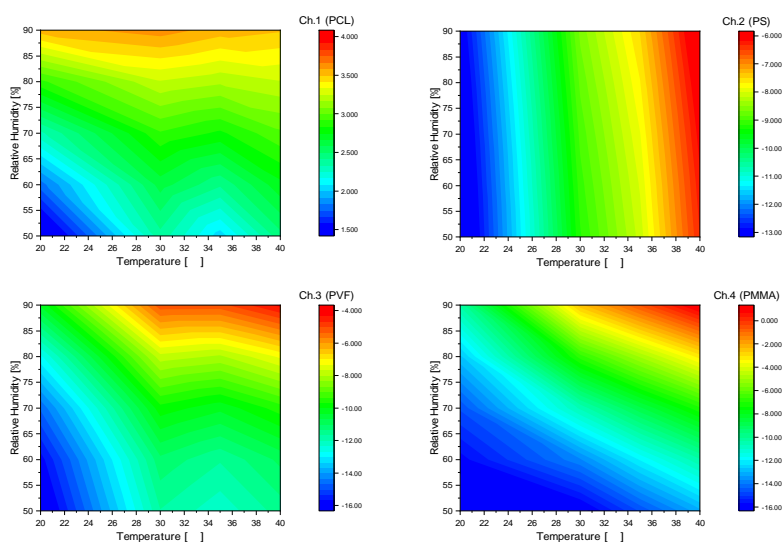


図 1 感応膜 4 種類のセンサ応答評価。

(4) 新規測定法の開発

データベースをもとにニオイの識別精度を上げることを試みたが、湿度を始めとする夾雑ガスの影響をソフトウェア的に完全に除外することは難しく、ハードウェア的に除外できる測定法の開発を行った。複雑なガス種の混合物であるニオイを識別するためには、対象となるニオイに由来するセンサ応答を抽出する必要がある。しかし、ガスセンサの応答は、対象臭気分子よりもはるかに高濃度の夾雑ガスの影響を受けるため、検知が困難であることが多い。嗅覚センサの実用化には、主要な夾雑ガスからニオイ由来の微小なセンサ応答を抽出することが必要である。本研究では、2つの対象臭いを交互にガスセンサに注入することで、ニオイの違いを強調できる新規測定手法 Repetitive Direct Comparison (rDC) 法を提案した。MSS を用いたセンサシステムを用いて、2つの異なる風味を持つチョコレートで rDC 法の実現可能性を検証した。チョコレートのニオイを rDC 法で測定し、計測値の S/N (Signal to Noise Ratio) を評価した。また、MSS の受容体材料と対象臭気の特定の組み合わせにおいて、S/N を向上させられることが示された。(G. Imamura, K. Minami and G. Yoshikawa, Biosensors 13, 368 (2023))

(5) スタートアップ設立

本研究の取り組みにより、ロバストなニオイ測定的基础が固まりつつあり、さらに産学官連携の取り組みを中心にニオイセンサのニーズも明確になってきたことから、今村を代表としたニオイセンサのスタートアップ「株式会社 Qception」を 2022 年 5 月に設立した。(図 2 にロゴマーク掲載) Qception は、本研究課題を含むこれまでの研究の成果物(知的財産権等)を活用し、MSS を用いたニオイセンサの社会実装を目指す。



図 2 株式会社 Qception ロゴマーク。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件／うち国際共著 3件／うちオープンアクセス 10件）

1. 著者名 Miran Waheed, Huang Wenyuan, Long Xizi, Imamura Gaku, Okamoto Akihiro	4. 巻 3
2. 論文標題 Multivariate landscapes constructed by Bayesian estimation over five hundred microbial electrochemical time profiles	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Patterns	6. 最初と最後の頁 100610 ~ 100610
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.patter.2022.100610	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Shiba Kota, Zhuang Chao, Minami Kosuke, Imamura Gaku, Tamura Ryo, Samitsu Sadaki, Idei Takumi, Yoshikawa Genki, Sun Luyi, Weitz David A.	4. 巻 10
2. 論文標題 Visualization of Flow Induced Strain Using Structural Color in Channel Free Polydimethylsiloxane Devices	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Science	6. 最初と最後の頁 2204310 ~ 2204310
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/advs.202204310	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Imamura Gaku, Minami Kosuke, Yoshikawa Genki	4. 巻 13
2. 論文標題 Repetitive Direct Comparison Method for Odor Sensing	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Biosensors	6. 最初と最後の頁 368 ~ 368
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/bios13030368	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Minami Kosuke, Imamura Gaku, Tamura Ryo, Shiba Kota, Yoshikawa Genki	4. 巻 12
2. 論文標題 Recent Advances in Nanomechanical Membrane-Type Surface Stress Sensors towards Artificial Olfaction	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Biosensors	6. 最初と最後の頁 762 ~ 762
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/bios12090762	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Inada Katsushige, Kojima Hiroshi, Cho-Isoda Yukiko, Tamura Ryo, Imamura Gaku, Minami Kosuke, Nemoto Takahiro, Yoshikawa Genki	4. 巻 21
2. 論文標題 Statistical Evaluation of Total Expiratory Breath Samples Collected throughout a Year: Reproducibility and Applicability toward Olfactory Sensor-Based Breath Diagnostics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Sensors	6. 最初と最後の頁 4742 ~ 4742
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/s21144742	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yakabe Taro, Imamura Gaku, Yoshikawa Genki, Miyauchi Naoya, Kitajima Masahiro, Itakura Akiko N.	4. 巻 11
2. 論文標題 2-step reaction kinetics for hydrogen absorption into bulk material via dissociative adsorption on the surface	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 18836
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-98347-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Shiba Kota, Imamura Gaku, Yoshikawa Genki	4. 巻 6
2. 論文標題 Odor-Based Nanomechanical Discrimination of Fuel Oils Using a Single Type of Designed Nanoparticles with Nonlinear Viscoelasticity	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 23389 ~ 23398
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.1c03270	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yakabe Taro, Imamura Gaku, Yoshikawa Genki, Kitajima Masahiro, Itakura Akiko N	4. 巻 4
2. 論文標題 Hydrogen detection using membrane-type surface stress sensor	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics Communications	6. 最初と最後の頁 025005 ~ 025005
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2399-6528/ab7319	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Osica Izabela, Melo Antonio F. A. A., Lima Filipe C. D. A., Shiba Kota, Imamura Gaku, Crespilho Frank N., Betlej Jan, Kurzydowski Krzysztof J., Yoshikawa Genki, Ariga Katsuhiko	4. 巻 3
2. 論文標題 Nanomechanical Recognition and Discrimination of Volatile Molecules by Au Nanocages Deposited on Membrane-Type Surface Stress Sensors	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	6. 最初と最後の頁 4061 ~ 4068
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnm.0c00115	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Imamura Gaku, Yoshikawa Genki	4. 巻 20
2. 論文標題 Development of a Mobile Device for Odor Identification and Optimization of Its Measurement Protocol Based on the Free-Hand Measurement	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Sensors	6. 最初と最後の頁 6190 ~ 6190
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/s20216190	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Imamura Gaku, Minami Kosuke, Shiba Kota, Mistry Kissan, Musselman Kevin, Yavuz Mustafa, Yoshikawa Genki, Saiki Koichiro, Obata Seiji	4. 巻 8
2. 論文標題 Graphene Oxide as a Sensing Material for Gas Detection Based on Nanomechanical Sensors in the Static Mode	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemosensors	6. 最初と最後の頁 82 ~ 82
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/chemosensors8030082	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Mistry Kissan, Ibrahim Khaled H., Novodchuk Inna, Ngo Hyunh Thien, Imamura Gaku, Sanderson Joseph, Yavuz Mustafa, Yoshikawa Genki, Musselman Kevin P.	4. 巻 5
2. 論文標題 Nanomechanical Gas Sensing with Laser Treated 2D Nanomaterials	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Materials Technologies	6. 最初と最後の頁 2000704 ~ 2000704
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/admt.202000704	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 今村岳、吉川元起
2. 発表標題 伝達関数比に基づくガスセンシングナルからの水温の推定
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 今村岳、吉川元起
2. 発表標題 モバイル嗅覚センサ実現に向けたニオイ計測手法の最適化
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 今村 岳, 吉川 元起, 南 皓輔
2. 発表標題 ガスセンサ測定における繰り返し測定によるSN比の向上
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計3件

1. 著者名 竹村 明久、諸井 澄人、長谷川 登志夫	4. 発行年 2022年
2. 出版社 情報機構	5. 総ページ数 531
3. 書名 におい分析評価・対策事例と頻出Q & A集	

1. 著者名 Yutaka Wakayama, Katsuhiko Ariga	4. 発行年 2022年
2. 出版社 Springer	5. 総ページ数 338
3. 書名 System-Materials Nanoarchitectonics	

1. 著者名 今村 岳, 松阪 秀喜, 吉川 元起	4. 発行年 2022年
2. 出版社 フレグランスジャーナル社	5. 総ページ数 6
3. 書名 AROMA RESEARCH No.92	

〔出願〕 計4件

産業財産権の名称 ケトースス罹患判定方法及び装置	発明者 中久保亮, 石田三佳, 吉川元起, 南皓輔, 今村岳, 松阪秀	権利者 物質・材料研究機構、農業・食品産業技術総合
産業財産権の種類、番号 特許、特願2020-122610	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 センサ出力信号の信号対雑音比を向上させる方法及び装置	発明者 今村 岳/吉川 元起/ 南 皓輔/根本 尚大/ 的場 正晃	権利者 国立研究開発法人物質・材料研究機構
産業財産権の種類、番号 特許、2022-074098	出願年 2022年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 タマネギの変質検査方法及びタマネギ病原菌同定方法	発明者 吉川元起/今村岳/南皓輔/達瑞枝/下田武志/今成麻衣/中久保	権利者 国立研究開発法人物質・材料研究機構
産業財産権の種類、番号 特許、2022-099975	出願年 2022年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 センサ出力信号の信号対雑音比を向上させる方法及び装置	発明者 今村 岳/吉川 元起/ 南 皓輔/根本 尚大/ 的場 正晃	権利者 国立研究開発法人物質・材料研究機構
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2023/002001	出願年 2023年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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			
カナダ	University of Waterloo			