

初心者向けテキスト

# 多変量統計的プロセス管理

## Multivariate Statistical Process Control

京都大学大学院工学研究科化学工学専攻  
プロセスシステム工学研究室  
加納 学

2004年1月 第1版作成

2005年6月 第2版作成

Copyright ©2004-2005 by Manabu Kano. All rights reserved.

### [ 注意事項 ]

自由に利用していただいて結構ですが、著作権は一切放棄していません。また、本資料の間違いなどによって生じた不利益などに対して、著者は一切責任を負いません。勿論、間違いの指摘やアドバイスは歓迎します。

# 目次

|          |                        |          |
|----------|------------------------|----------|
| <b>1</b> | <b>はじめに</b>            | <b>3</b> |
| <b>2</b> | <b>多変量統計的プロセス管理の基礎</b> | <b>3</b> |
| 2.1      | 主成分分析                  | 4        |
| 2.2      | 主成分分析に基づく方法            | 5        |
| 2.3      | 寄与プロットによる異常原因の特定       | 6        |
| <b>3</b> | <b>多変量統計的プロセス管理の発展</b> | <b>7</b> |
| 3.1      | 品質変数の取り扱い              | 7        |
| 3.2      | 動特性の取り扱い               | 7        |
| 3.3      | バッチプロセスの管理             | 8        |
| 3.4      | 様々な運転条件への対処            | 8        |
| 3.5      | 独立成分分析の利用              | 8        |
| <b>4</b> | <b>おわりに</b>            | <b>9</b> |

## 1 はじめに

生産プロセスは、指定された仕様を満たす製品を安定して生産できるように維持管理されなければならない。仕様は製品品質に対して定められるため、品質が仕様を満たしているかどうかは、品質測定値を監視することによって確認できる。ところが、品質監視によって、仕様を満たさない製品を見付けることはできても、仕様を満たさない製品が生産されるのを防ぐことはできない。製品品質は生産プロセスの運転の結果であるから、プロセスの運転状態が品質を決める要因となっているはずである。したがって、仕様を満たさない製品が生産されてしまうことを未然に防ぎ、生産性を向上させるためには、品質のみならず、運転状態を監視する必要がある。統計的手法を利用して運転状態の監視を効率的に実施するための方法が、統計的工程管理あるいは統計のプロセス管理 (Statistical Process Control; SPC) である。

運転状態は温度や圧力などのプロセス変数によって特徴づけられるため、各測定変数に管理限界を設定し、その管理限界内に測定値があるかどうかで、プロセスが正常に運転されているかどうかを判断すれば良い。この目的で利用されるのが、W.A. Schewhart によって考案された管理図である。品質や運転状態のバラツキには、偶然原因によるものと見逃してはならない異常原因によるものがある。管理図は、統計的な検定を利用して、バラツキが偶然原因と異常原因のどちらによるものかを判断する。例えば、広く利用されている  $3\sigma$  法は、管理したい変数または統計量の平均を  $\mu$ 、標準偏差を  $\sigma$  とするとき、管理限界を  $\mu \pm 3\sigma$  と設定する方法である。もし変数が正規分布に従うのであれば、正常時に測定値がこの管理限界を超える確率は 0.27% 程度であり、正常時にはあまり起こらない状況と言えよう。したがって、測定値が管理限界を超えれば、それは異常原因によるものだと判断し、原因の特定と対策を実施することになる。

管理効果の高い変数は、品質に大きな影響を与え、かつ測定が容易な変数であるが、できるだけ早い段階で異常を検出し、その原因を特定するためには、多くの変数を同時に管理するのが有効である。このため、統計のプロセス管理として、すべての測定変数に対して管理限界を設定することが多い。このように多くの変数を同時に管理する場合、一変数を管理するための方法である一変量統計のプロセス管理 (Univariate SPC; USPC) を、そのまま利用して良いのだろうか。ある変数の測定値が正常時に管理限界を超える確率は 0.27% 程度だとしても、管理する変数が 100 個もあれば、運転員はアラームの洪水に溺れ、本当に異常が発生したときに適切に対応できないのではないだろうか。さらに、変数を個別に管理する場合、変数間の相関関係は無視されてしまう。例えば、Fig. 1(a) のように 2 変数が正の相関を持つとき、USPC の管理限界は相関関係に関係なく矩形となるため、印の異常値を検出することができない。ところが、破線で示した楕円のような管理限界を設定することができれば、変数間の相関関係を捉えたプロセス管理を実現でき、印の異常値も検出できる。このように変数間の相関関係を考慮して高度な管理を実現するための方法が、多変量統計のプロセス管理 (Multivariate SPC; MSPC) であり、主成分分析 (Principal Component Analysis; PCA) などの多変量解析が利用される。

MSPC で利用される多変量解析の多くは、ケモメトリクスと呼ばれる分野で利用されている手法である。ケモメトリクス (Chemometrics) とは、化学 (Chemistry) と計量学 (Metrics) を組み合わせた造語で、統計的手法を利用して化学システム・プロセスの測定データと状態を結び付ける科学である。元々、ケモメトリクスは分析化学の一分野であり、分光分析におけるスペクトルデータ解析などに適した統計的手法が開発された。その後、統計的手法の適用範囲が拡大し、特に化学プロセスデータを対象とする場合にプロセスケモメトリクスと呼ばれるようになった [1]。

本稿では、プロセスケモメトリクスを用いた多変量統計のプロセス管理の基本的な考え方を解説するとともに、その新しい展開を紹介する。

## 2 多変量統計のプロセス管理の基礎

本節では、MSPC の基本となる PCA を利用する方法について、異常検出から異常原因の特定までを解説する。

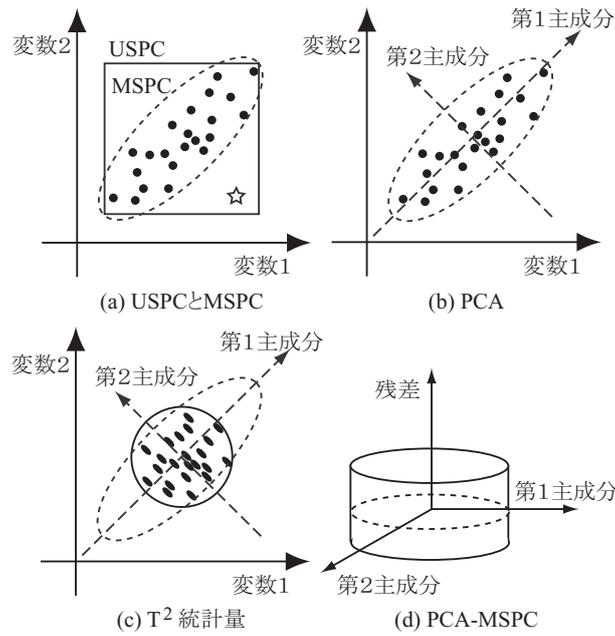


Fig. 1 主成分分析に基づく多変量統計的プロセス管理

## 2.1 主成分分析

PCA は、データの特徴抽出及び次元圧縮を目的とする多変量解析である。変数間の相関関係を捉えるために、変数の線形結合によって、主成分と呼ばれる新たな合成変数を創り出す。PCA では、Fig. 1(b) のように、データを最も良く表現できる方向に第 1 主成分を設定し、その第 1 主成分と直交する空間の中で、第 1 主成分では表現できないデータの変動を最も良く表現できる方向に第 2 主成分を設定するという手順で、主成分を次々と設定していく。ここで、データを最も良く表現する方向というのは、主成分得点の分散が最大となる方向という意味である。主成分得点とは、主成分軸上の座標、すなわち主成分が張る空間（直線）へデータを射影した値である。一般に、PCA とは、複数の要因を総合的に取り扱い、主成分を用いて総合的指標を表現する手法だと言われる。例えば、変数 1 が体重、変数 2 が身長である場合、第 1 主成分は体の大きさを表す総合的指標、第 2 主成分はスタイル（痩せ具合）を表す総合的指標であると解釈できる。しかし現実には、主成分に物理的意味を与えることが困難な場合が多く、プロセス管理に PCA を利用する場合には、主成分の意味を考えることは希である。

数式で表現すると、PCA は以下ようになる。まず、データ行列を  $X \in \mathbb{R}^{N \times P}$  とする。ここで、 $P$  は変数の数、 $N$  はサンプル数であり、各変数は標準化されているとする。データ行列  $X$  の特異値分解を

$$\begin{aligned} X &= USV^T \\ &= \begin{bmatrix} U_R & U_0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} S_R & 0 \\ 0 & S_0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} V_R & V_0 \end{bmatrix}^T \end{aligned} \quad (1)$$

と書くことにする。 $U$  と  $V$  は直交行列であり、対角行列  $S$  の対角要素には、特異値  $s_r$  が降順に並んでいる。採用する主成分の数を  $R$  とすると、第  $r$  主成分は負荷量行列 (Loading Matrix)  $V_R$  の第  $r$  列  $v_r$  で与えられ、第  $r$  主成分得点  $t_r$  は

$$t_r = Xv_r = s_r u_r. \quad (2)$$

で計算される。なお、 $u_r$  は  $U_R$  の第  $r$  列である。第  $R$  主成分得点までをまとめて表現すると、

$$T_R = XV_R = U_R S_R. \quad (3)$$

となる．主成分得点の共分散行列が

$$\Sigma_T \equiv \frac{1}{N-1} T_R^T T_R = \frac{1}{N-1} S_R^2 \quad (4)$$

のように対角行列となることから，主成分得点は互いに無相関であることがわかる．

主成分を導入することによって，データを表現するための空間を  $P$  次元から  $R$  次元へ圧縮することができる．次元圧縮後の  $R$  次元空間の基底が主成分であり，主成分得点が座標である．次元圧縮後のデータを元の  $P$  次元空間上の座標で表現すると，

$$\hat{X} = T_R V_R^T = X V_R V_R^T \quad (5)$$

となる． $\hat{X}$  は再構築データであり，

$$E = X - \hat{X} = X(I - V_R V_R^T) \quad (6)$$

が次元圧縮によって失われる情報，すなわち残差である．この残差は予測誤差とも呼ばれる．

## 2.2 主成分分析に基づく方法

PCA を利用することによって，Fig. 1(b) のような管理限界を設定できる．しかし，このままでは管理限界を超えたかどうかの判断を簡単に行うことができない．そこで，Hotelling's  $T^2$  統計量

$$T^2 = \sum_{r=1}^R \frac{t_r^2}{\sigma_{t_r}^2} \quad (7)$$

を用いる．ここで， $\sigma_{t_r}$  は第  $r$  主成分得点  $t_r$  の標準偏差であり， $T^2$  統計量は原点からの距離に対応している．この  $T^2$  統計量を利用することによって，Fig. 1(c) のように，管理限界を楕円から真円に変形することができるため，正常と異常を区別するのに適した上限値を  $T^2$  統計量に対して設定すれば良い．

PCA と Hotelling's  $T^2$  統計量を利用する SPC は，Jackson[2] によって提案された．ただし，提案法では PCA による次元圧縮は行われておらず， $T^2$  統計量の利用が主要なテーマであった．その後 20 年を経て，PCA による次元圧縮を実施した上で，主成分で張られる部分空間とその直交補空間を独立に管理する方法が登場した [3, 4]．この新しい管理方法の概念を Fig. 1(d) に示す．主成分で張られる部分空間については， $T^2$  統計量による管理が有効である．一方，その直交補空間については，残差から計算される  $Q$  統計量

$$Q = \sum_{p=1}^P (x_p - \hat{x}_p)^2 \quad (8)$$

を用いて管理する． $Q$  統計量は二乗予測誤差 (Squared Prediction Error; SPE) とも呼ばれ，データのうち，PCA モデルによっては表現できない部分を表す． $T^2$  統計量と  $Q$  統計量を同時に監視し，いずれか一方でも管理限界を超えた場合に異常と判定するのが，主成分分析に基づく多変量統計的プロセス管理 (PCA-MSPC) である．

なぜ，主成分で張られる部分空間とその直交補空間を独立に管理する必要があるのだろうか．最初に提案された通り，Hotelling's  $T^2$  統計量だけを利用すれば十分ではないのだろうか．この問いに答えるには，PCA で次元圧縮する意味を考える必要がある．変数間の相関関係を捉え，データを最も良く表現するように，主成分は選択される．捉えるべき相関関係は，物理・化学の法則によって定められる測定変数間の因果関係や相関関係である．ところが，主成分数を増やしていくと，次第に重要でない相関関係がモデル化されるようになり，遂にはモデル化する意味のない測定ノイズばかりが残差として残るようになる．測定ノイズばかりの残差をモデル化したり，重要な相関関係と測定ノイズによる見せ掛けの関係を同列に扱うのは問題であろう．したがって，主成分で張られる部分空間とその直交補空間を独立に管理する．ただし，

いくつ主成分を採用すれば良いかは難しい問題であり、主成分数の選択に明確な指針があるわけではない。逆に、プロセス管理に利用する限りにおいては、主成分数が多少異なっても得られる結果に大差はないのだから、神経質になる必要はないとも言える。なお、 $T^2$  統計量だけを利用する方法に比べて、プロセスの本質的な変動を  $T^2$  統計量で、測定ノイズのような本質的でない変動を  $Q$  統計量で監視する方法では、より多くの情報を異常検出結果から引き出すことができる。 $T^2$  統計量だけを監視する場合、その値が管理限界を超えた場合、何か異常が発生したとしか判断しようがない。ところが、 $T^2$  統計量と  $Q$  統計量を併用する場合には、 $Q$  統計量が管理限界内にあれば、変数間の相関関係は崩れておらず、深刻な機器故障などは生じていないと推論される。この場合、 $T^2$  統計量で検出される異常は、変数間の相関関係を崩していないため、これまでになく運転条件を大きく変化させた結果、 $T^2$  統計量が大きくなったのではないかと考えられる。一方、 $Q$  統計量が管理限界を超える場合には、機器故障などの異常が発生したと判断できる。もちろん、このような判断は簡易的なものであり、実際には、より詳細な異常原因の特定作業を実施する。このとき利用されるのが寄与プロットである。

現在、PCA-MSPC は様々な分野で利用されているが、その化学プロセスへの適用について報告されたのは 1990 年代になってからである [5]。シミュレーションデータでの検討ではあったが、従来から標準的に利用されてきた USPC では検出できない異常を検出できるという利点が改めて認識され、性能向上に向けた研究と実用化を促す契機となった。MSPC がすぐには普及しなかった理由としては、計算機の価格や性能が障壁となっていたことと、多変量解析や統計に通じた技術者が多くはなかったことが考えられる。前者はもはや問題ではないかもしれないが、後者については必ずしも問題がなくなったわけではないだろう。

### 2.3 寄与プロットによる異常原因の特定

管理図を利用して異常を検出した場合、続いて、その異常の原因を特定しなければならない。異常診断には、対象プロセスに関する知識と洞察が不可欠であり、多変量解析に頼って運転データから異常原因を特定しようとする試みは簡単には成功しない。しかし、異常診断に役立つ情報を運転データから抽出し、ヒトの判断に役立てることは必要である。例えば、 $T^2$  統計量や  $Q$  統計量を用いてプロセス管理を行う場合、統計量が管理限界を超えたという情報だけでは、プロセスで何が起きているかを知ることはできない。そこで、どのプロセス変数の変化によって、統計量が管理限界を超えたのかを調べる。この目的で利用されるのが寄与プロット (Contribution Plot) である。

$Q$  統計量は各変数の二乗予測誤差の和であるから、第  $p$  変数の  $Q$  統計量への寄与は

$$C_p^{[Q]} = (x_p - \hat{x}_p)^2 \quad (9)$$

で定義される。この寄与が正常時に比べて極端に大きくなっている変数があれば、その変数が異常に関係していると判断できる。一方、 $T^2$  統計量は主成分得点に関する統計量であるため、各変数の  $T^2$  統計量への寄与を定義するのは簡単ではない。これまでに提案されている、第  $p$  変数の  $T^2$  統計量への寄与の定義としては

$$C_p^{[T^2]} = t \Sigma_T^{-1} x_p v_p \quad (10)$$

がある [6]。ここで、 $t$  は主成分得点からなるベクトル、 $v_p$  は負荷量行列の第  $p$  行 (第  $p$  変数に関する係数ベクトル) の転置ベクトルである。寄与はその定義より正数で与えられることが望ましいが、この式で計算される寄与は正負いずれの値も取りうる。しかし、寄与が大きな正の数となる少数の変数のみが重要であるため、寄与が負となる変数があっても実用上は問題ないとされる [7]。

異常原因を特定する方法としては、寄与プロットを用いる他に、異常検出時の運転データと過去の異常発生時の運転データとの類似度に基づく方法がある [8]。具体的には、過去の異常発生時の運転データを用いて複数の PCA モデルを構築し、 $T^2$  統計量及び  $Q$  統計量を利用して、異常検出時の運転データが過去のいずれの異常発生時の運転データに最も近いかを判断する。類似度を評価する指標は、 $T^2$  統計量及び  $Q$  統計

量の他にも提案されている [9]。なお、このような方法によって原因が特定できるのは、過去に発生した異常のみである。このため、繰り返し発生するような異常に対しては有効であるが、予期せぬ異常の原因を特定することはできない。寄与プロットを利用するにしても、過去の異常発生時の運転データを利用するにしても、利用する手法の限界を認識した上で、そこから得られる情報を参考にしながら、対象プロセスに関する知識を総動員して原因特定に取り組む必要がある。

### 3 多変量統計的プロセス管理の発展

本節では、MSPC の適用対象を拡大し、その性能を向上させるための方法について解説する。

#### 3.1 品質変数の取り扱い

PCA は外的基準を持たない多変量解析である。つまり、独立変数と従属変数、あるいは入力変数と出力変数という分類がなく、PCA ではすべての変数が入力変数として扱われる。ところが、運転条件と製品品質を明確に区別し、運転条件を入力、製品品質を出力とする統計的モデルを用いて、プロセス管理を実施したい場合がある。このような場合、モデル構築には主成分を入力変数とする主成分回帰 (Principal Component Regression; PCR) を用いることもできるが、プロセスケモメトリクスでは部分的最小二乗法 (Partial Least Squares; PLS) を用いることが多い。PLS は Projection to Latent Structures と呼ばれ、入力変数の線形結合で与えられる潜在変数 (Latent Variables) を入力変数とする線形回帰手法である [10]。PLS の優れた特徴は、その潜在変数の選択方法にある。PCR では、入力変数のみに着目して主成分を選択し、主成分を入力変数として線形回帰モデルを構築するため、主成分が出力の推定に役立つ保証がない。一方、PLS では、入力変数間の相関を捉えつつ、かつ出力変数との相関も大きくなるような潜在変数を選択するため、PCR と比較して、より少ない潜在変数で高い推定精度を実現できる。線形回帰モデルの構築方法としては、重回帰分析が最も基本的なものであるが、重回帰分析は多重共線性の問題を回避できないという致命的な欠点を持つ。このため、数多くの入力変数を取り扱う必要がある場合には、PLS あるいは PCR などの方法を利用すべきである。PCA-MSPC と同様、PLS-MSPC もプロセス管理の有効な手法である [5, 11]。

PLS の主要な適用対象はソフトセンサーの構築であり、オンライン測定が困難な変数を推定するために利用される。PLS-MSPC はプロセス管理を目的とした手法であるが、PLS で構築したソフトセンサーと PLS-MSPC を併用することによって、ソフトセンサーやオンライン分析機器の信頼性を評価することもできる [12]。

#### 3.2 動特性の取り扱い

PCA によって変数間の相関関係を考慮したプロセス管理が可能となる。しかし、プロセスの動特性も考慮したプロセス管理を行うためには、もう一工夫必要である。PCA は入力変数間の相関関係を捉える手法であることから、現在の測定値と過去の測定値を一括して扱うことにすれば、遅れを伴う相関関係もモデル化できる [13]。いま、時刻  $t$  における測定データを

$$\mathbf{x}(t) = \begin{bmatrix} x_1(t) & x_2(t) & \dots & x_p(t) \end{bmatrix} \quad (11)$$

と書くことにすると、動特性も考慮した PCA モデルを構築するためには、入力データを次式のように変更すればよい。

$$\mathbf{x}_D(t) = \begin{bmatrix} \mathbf{x}(t) & \mathbf{x}(t-1) & \dots & \mathbf{x}(t-s+1) \end{bmatrix} \quad (12)$$

この単純な手法は Dynamic PCA と呼ばれ、動特性を持つプロセスのモデル化に有効である。この考え方を PLS に利用すれば、プロセス動特性を考慮したソフトセンサーを構築できる [14]。

動特性を有するプロセスの管理性能をさらに向上させるためには、単に変数間の相関関係を監視するだけでなく、ウェーブレット解析を利用して運転データを複数の周波数成分に分割した後、各周波数領域における変数間の相関関係を監視することもできる [15]。相関関係のモデル化に PCA を利用する方法を特に Multiscale PCA と呼ぶが、ウェーブレット解析は他の MSPC 手法と併用することも可能であり、それによって管理性能を向上させることができる [16]。

### 3.3 バッチプロセスの管理

運転中に状態が時々刻々と変化するバッチプロセスを管理する場合、変数間の相関関係も時間とともに変化するため、単に PCA-MSPC を適用することはできない。連続プロセスを管理する場合の運転データは (測定変数) × (時刻) という 2 次元配列であるが、バッチプロセスを管理する場合の運転データは (測定変数) × (時刻) × (バッチ) という 3 次元配列となる。したがって、3 次元配列をどのようにして 2 次元配列として取り扱うかが問題となる。3 次元配列に対する PCA/PLS は Multiway PCA/PLS と呼ばれる [17]。プロセス管理が目的である場合、3 次元配列は通常 (測定変数 × 時刻) × (バッチ) という 2 次元配列として取り扱われる。この場合、測定変数 × 時刻を入力変数として PCA などを適用するため、1) バッチの途中ではすべての測定データが既知ではない、2) 入力変数の数 (バッチの長さ) が異なる、などの問題を克服しなければならない。一般的には、問題 1 については予測値を利用する、問題 2 については単調に変化する時間以外の変数を基準変数にする、という対策が行われる。統計的バッチプロセス管理の初期の報告としては、セミバッチプロセスへの適用 [18] やバッチ重合反応への適用 [19] がある。また、複数の 3 次元配列の取り扱い方を比較した研究もある [20]。

### 3.4 様々な運転条件への対処

従来の SPC は、プロセスがある状態で運転され続けることを前提としており、その基準状態からのずれに基づいて異常を検出する。ところが現実には、生産量の調整や製品の銘柄切替などによって運転条件が大きく変更されることは珍しくない。また、定常状態最適化機構を備えた多変数制御システムの導入により、目標とする定常状態を頻繁に変更するような運転も広く採用されている。そこで、運転条件の変更と異常を区別できるプロセス管理を実現するために、外部分析 (External Analysis) が提案されている [21]。外部分析では、異常とは区別すべき運転条件の変更を、生産量や各種設定値の変更など監視対象プラントの外部から与えられる変更として捉える。これにより、運転監視に利用可能な変数を、原料流量や温度設定値など運転条件の変更を直接的に表す変数 (外部変数) と、それ以外の変数 (主変数) に分類できる。外部変数の変化は検出すべき異常ではなく、外部変数の影響による主変数の変化も異常として捉えるべきではない。そこで、主変数の測定データを外部変数のデータで表現できる部分と表現できない部分に分解する。このように、監視対象変数の変動を運転条件の変更に伴う部分とそうでない部分とに分解することが外部分析の目的である。外部分析は SPC の前処理という位置付けであるため、各種 SPC と併用できる。外部分析と PCA-MSPC を併用した例として、モノマープラントにおいて閉塞トラブルと生産量変更に伴う運転条件の変化とを区別した実例が報告されている [22]。

### 3.5 独立成分分析の利用

現在までに提案されている MSPC の大部分は PCA を利用している。しかし、PCA-MSPC は主成分得点が正規分布に従うことを前提としているため、現実の運転監視において必ずしも良い性能が発揮できるとは限らない。また、主成分の物理的意味も明確ではなく、プロセス管理に主成分を利用することが最善であるとの確証はない。プロセス管理の目的に立ち返って考えると、数多くの測定変数からプロセスの運転状態を決定している本質的な変数を抽出することができれば、その本質的な変数を監視することによって優

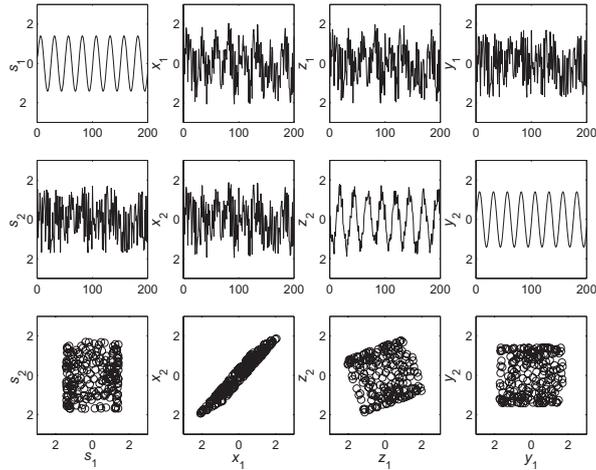


Fig. 2 独立成分分析の例：左から順に，観測されない元変数，観測変数，主成分，独立成分．

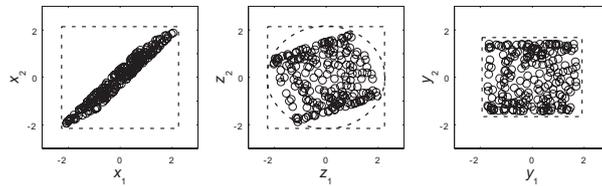


Fig. 3 USPC (左)，PCA-MSPC (中)，ICA-MSPC (右) の比較 (Fig.2 のデータに適用)

れた運転監視性能を実現できるはずである．問題は本質的な変数を抽出する方法であるが，その1つの可能性として独立成分分析 (Independent Component Analysis; ICA) がある [23]．

ICA の時系列データへの適用例を Fig. 2 に示す．観測データの背後に隠れている元データが独立成分として再構築されていることが確認できる．なお，ICA には様々なアルゴリズムがあるが，この例では Fast ICA [24] を利用している．ICA によって統計的に独立な成分が抽出できるため，Fig. 3 に示すように，独立成分を監視することによって，プロセス管理性能を向上させることができる [25]．これが ICA-MSPC の基本的な考え方である．

## 4 おわりに

本稿では，多変量統計的プロセス管理 (MSPC) の基本的な考え方とその展開について簡単に紹介した．しかし，紹介できなかった手法や事例報告も数多い．そこで最後に，参考となる文献をいくつか挙げておきたい．MSPC 全般については，チュートリアル [26] やテキスト [27] が参考になるだろう．なお，統計的品質管理 (Statistical Quality Control; SQC) を扱った和書は多いが，MSPC については書かれていない．多変量解析については，数多くの書籍が刊行されているので，読者の好みに応じて選んでいただければ良いが，PLS について解説している書籍はほとんどない．PLS を含むケモメトリクスについては，書籍 [28] が参考になるだろう．

## 参考文献

- [1] B. M. Wise and N. B. Gallagher: The process chemometrics approach to process monitoring and fault detection; J. Proc. Cont., Vol. 6, pp.329–348 (1996)

- [2] J. E. Jackson: Quality Control Methods for Several Related Variables; *Technometrics*, Vol. 1, pp.359–377 (1959)
- [3] J. E. Jackson and G. S. Mudholkar: Control Procedures for Residuals Associated with Principal Component Analysis; *Technometrics*, Vol. 21, pp.341–349 (1979)
- [4] J. E. Jackson: Principal Components and Factor Analysis: Part I – Principal Components; *J. of Quality Technology*, Vol. 12, pp.201–213 (1980)
- [5] J. V. Kresta, J. F. MacGregor, and T. E. Marlin: Multivariate Statistical Monitoring of Process Operating Performance; *Can. J. Chem. Eng.*, Vol. 69, pp.35–47 (1991)
- [6] P. Nomikos: Detection and Diagnosis of Abnormal Batch Operations Based on Multi-way Principal Component Analysis; *ISA Trans.*, Vol. 35, pp.259–266 (1996)
- [7] J. A. Westerhuis, S. P. Gurden, and A. K. Smilde: Generalized Contribution Plots in Multivariate Statistical Process Monitoring; *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, Vol. 51, pp.95–114 (2000)
- [8] A. Raich and A. Cinar: Statistical Process Monitoring and Disturbance Diagnosis in Multivariable Continuous Processes; *AIChE J.*, Vol. 42, pp.995–1009 (1996)
- [9] M. Kano, S. Hasebe, I. Hashimoto, and H. Ohno: Statistical Process Monitoring Based on Dissimilarity of Process Data; *AIChE J.*, Vol. 48, pp.1231–1240 (2002)
- [10] W. G. Glen, W. J. Dun III, and D. R. Scott: Principal Component Analysis and Partial Least Squares; *Tetrahedron Computer Methodology*, Vol. 2, pp.349–376 (1989)
- [11] J. F. MacGregor, C. Jaeckle, C. Kiparissides, and M. Koutoudi: Process Monitoring and Diagnosis by Multiblock Methods; *AIChE J.*, Vol. 40, pp.826–838 (1994)
- [12] H. Kamohara, A. Takinami, M. Takeda, M. Kano, S. Hasebe, and I. Hashimoto: Product Quality Estimation and Operating Condition Monitoring for Industrial Ethylene Fractionator; *J. Chem. Eng. Japan* (accepted)
- [13] W. Ku, R. H. Storer, and C. Georgakis: Disturbance Detection and Isolation by Dynamic Principal Component Analysis; *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, Vol. 30, pp.179–196 (1995)
- [14] M. Kano, K. Miyazaki, S. Hasebe, and I. Hashimoto: Inferential Control System of Distillation Compositions Using Dynamic Partial Least Squares Regression; *J. Proc. Cont.*, Vol. 10, pp.157–166 (2000)
- [15] B. R. Bakshi: Multiscale PCA with Application to Multivariate Statistical Process Monitoring. *AIChE J.*, Vol. 44, pp.1596–1610 (1998)
- [16] M. Kano, K. Nagao, H. Ohno, S. Hasebe, I. Hashimoto, R. Strauss, and B. R. Bakshi: Comparison of Multivariate Statistical Process Monitoring Methods with Applications to the Eastman Challenge Problem; *Comput. Chem. Engng*, Vol. 26, pp.161–174 (2002)
- [17] S. Wold, P. Geladi, K. Esbesen, and J. Ohman: Multi-way Principal Components- and PLS-Analysis; *J. Chemometrics*, Vol. 1, pp.41–56 (1987)

- [18] P. Nomikos and J. F. MacGregor: Monitoring Batch Processes Using Multiway Principal Component Analysis; *AIChE J.*, Vol. 40, pp.1361–1375 (1994)
- [19] P. Nomikos and J. F. MacGregor: Multivariate SPC Charts for Monitoring Batch Processes. *Technometrics*, Vol. 37, pp.41–59 (1995)
- [20] B. M. Wise, N. B. Gallagher, S. W. Butler, D. D. White Jr., and G. G. Barna: A comparison of principal component analysis, multiway principal component analysis, trilinear decomposition and parallel factor analysis for fault detection in a semiconductor etch process; *J. Chemometrics*, Vol. 13, pp.379–396 (1999)
- [21] 加納学, 田中章平, 丸田浩, 長谷部伸治, 橋本伊織, 大野弘: 外部分析と独立成分分析を用いた統計のプロセス運転監視; 計測自動制御学会論文集, Vol. 38, pp.958–965 (2002)
- [22] T. Yamamoto, A. Shimameguri, M. Ogawa, M. Kano, and I. Hashimoto: Application of Statistical Process Monitoring with External Analysis to an Industrial Monomer Plant; *IFAC Symposium on Advanced Control of Chemical Processes (ADCHEM)* (2004)
- [23] C. Jutten and J. Herault: Blind Separation of Sources, Part I: An Adaptive Algorithm Based on Neuromimetic Architecture; *Signal Processing*, Vol. 24, pp.1–10 (1991)
- [24] A. Hyvarinen and E. Oja: A Fast Fixed-Point Algorithm for Independent Component Analysis; *Neural Computation*, Vol. 9, pp.1483–1492 (1997)
- [25] M. Kano, S. Tanaka, S. Hasebe, I. Hashimoto, and H. Ohno: Monitoring Independent Components for Fault Detection; *AIChE J.*, Vol. 49, pp.969–976 (2003)
- [26] T. Kourti and J. F. MacGregor: Process Analysis, Monitoring and Diagnosis, Using Multivariate Projection Methods; *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, Vol. 28, pp.3–21 (1995)
- [27] L. H. Chiang, E. L. Russell, and R. D. Braatz: *Fault Detection and Diagnosis in Industrial Systems*; Springer (2001)
- [28] 宮下芳勝, 佐々木慎一: *ケモメトリックス - 化学パターン認識と多変量解析*; 共立出版 (1995)