

## 温度・湿度変化に対する酸化スズ系ガスセンサ応答のモデル化

正員 広林茂樹 (金沢大学)  
 学生会員 坂森智 (金沢大学)  
 非会員 木村春彦 (金沢大学)  
 正員 大藪多可志 (金沢経済大学)

A modeling of tin-oxide gas sensor responses for temperature and humidity changes.

Shigeki Hirobayashi, Member, Satoshi Sakamori, Student Member, Haruhiko Kimura, Non-member (Kanazawa University), Takashi Oyabu, Member (Kanazawa College of Economics)

Output responses of an tin-oxide gas sensor depends on indoor temperature/humidity, but not on the reacted gas concentrations. The modeling of a gas sensor characteristics curve between gas concentrations and voltage was attempted with respect to a temperature/humidity change, to remove the influence of indoor environment from sensor responses. A characteristics curve was derived as an inverse proportion function and approximated by undecided variables with a plane approximation of temperature/humidity coefficients. The results of this study in a home indicate that each temperature/humidity coefficient is approximate to linear equation in error ranges of 5% and approximate functions of a characteristics curve are in a mean error range of about 1% for a reserved region.

キーワード：ガスセンサ, センサ特性, 空気汚染, 線形近似, 最小二乗法

## 1. はじめに

酸化スズ系ガスセンサに代表される酸化物半導体は、還元性ガスの吸着や触媒表面の酸化反応などにより、電気伝導度が増加する。また、再現性や安定性に対し優れており、一般家庭におけるガス漏れ警報器や空気汚染度の調査など室内モニタリングシステムに広く用いられている<sup>(1)~(4)</sup>。しかし、一般にガスの選択性を有しておらず、その特性は室内の固有の環境変化に依存する。その主な要因は、測定媒質の温度や湿度にある。高温高湿の夏季にはセンサ定常出力値が上昇し、低温低湿の冬季には下降する傾向にある。大藪等はマルチセンサによって各センサ出力比NDV値を算出し、相対的に温度と湿度間の影響を軽減しようとした<sup>(5)</sup>。指標定常値が改善され、環境変動認知には有効であるが、比を取ることで絶対的なガス濃度係数も除算され、濃度検出の本質的な解決には至っていないように思われる。そこで、本論文では、室内空間の温度・湿度変化に着目し、温度・湿度係数を含めたガス濃度特性の一般化を試みた。センサ出力特性を近似的に導出し、未定係数を温度・湿度係数からなる関数と仮定した。恒温恒湿器で測定実験を行い、温度・湿度係数からなる関数を線形近似(平面近似)によってモデル化した。すなわち、一般に変

動係数は非線形(曲面)で表わされるが、人の住空間下における温度・湿度変動範囲は局所的で領域を限定すれば線形近似できると考えた。

本論文では、まず電気伝導度に対し半導体反応過程から近似式を導出した。次に近似の可能性を示すため、温度・湿度空間上に測定点を重ね統計的な評価実験を行った。また、最後に一般家庭における実測実験によって本近似モデルの有効性を示し、定量的に補正曲線の有効範囲を検討する。

## 2. 温度・湿度に対するセンサ応答の変化

本実験ではセンサにフィガロ技研TGS800を用いた。TGS800はガス漏れ警報器に広く用いられている可燃性ガスセンサ種である。本センサは一酸化炭素(CO)やプロパン(C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>)、メタン(CH<sub>4</sub>)等に高い感度特性を有する。

図1は、反応媒質に一酸化炭素(CO)を用いたときの温度・湿度変化に対するガスセンサ特性の一例である。温度は20℃から35℃、湿度は35%から80%の各反応範囲を示した。最大約1V、出力電圧に対し約40%以上の変化が生ずることが確認できる。したがって、絶対的なガス濃度をセンサ出力電圧のみから求めることはできな

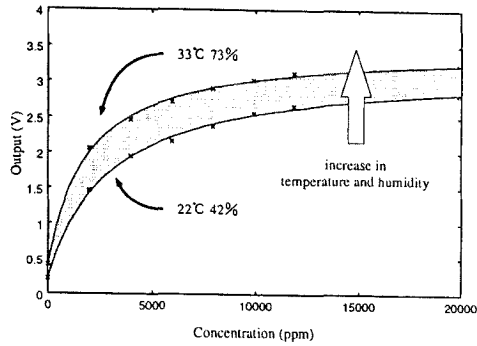


図1 温度・湿度によるガスセンサ応答の変化  
Fig. 1. The change of gas sensor responses for temperature and humidity.

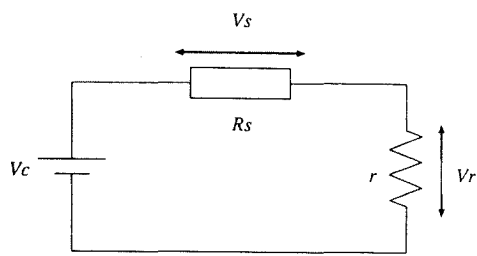


図2 センサ回路  
Fig. 2. The circuit of sensor system.

い。すなわち、図1からもわかるようにガスセンサ特性曲線を一意に定めることは難しい。同種のガスセンサは素子間で感度のバラツキがあるものの、品質変化以上に反応媒質の温度・湿度に大きく依存することがわかる。

センサ特性曲線は一般に温度の上昇に伴い上方に移動し、湿度の上昇に対しても上方に移動する。ガスセンサから室内環境の汚染度を得る場合、正確なガス濃度を求めることが必要である。本論文ではこれらセンサ出力の主な変動要因であるガス濃度、温度、湿度を変動係数と捉え、環境変化に対し特性曲線のモデル化をはかる。

### 3. センサ特性曲線のモデル化

図1に示したガスセンサ特性の連続曲線は、多項式近似できる。例えば、テイラー展開の4次程度の近似によって曲線を近似することはよく行われている。しかし、これは局所的な近似で、関数全体を近似するが難しいことや未知係数の数が多くなるなどの問題もよく知られている。一方で、低濃度域、高濃度域をそれぞれ別の関数でわけける手法も提案されている<sup>(6)(7)</sup>。本論文では、全濃度域に対し特性曲線を1つの数式でモデル化するため近似的に反比例関数を用いた。

図2は還元性ガスセンサ (TGS800, フィガロ技研) に代表されるセンサシステム回路図である。Vc (V) 電源電圧 (5V), Rs (Ω) はセンサ抵抗, r (Ω) は出力電

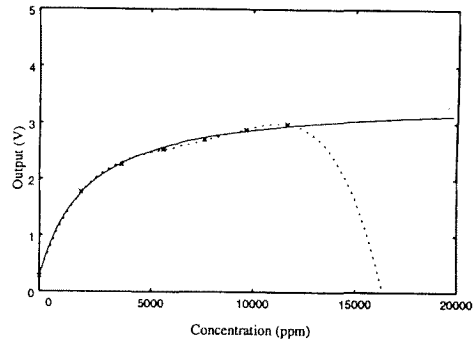


図3 測定点と近似曲線  
Fig. 3. Measured points and approximate curves.

圧間抵抗 (6kΩ) である。出力電圧はキルヒホッフの法則より

$$V_r = \frac{V_c r}{R_s + r} \dots \dots \dots (1)$$

で表わされる。センサ抵抗間に流れる電流は媒質濃度 C (ppm) に対し、指数関数的に上昇する<sup>(8)</sup>。これを1次近似によってモデル化すると、Rs は濃度に対し反比例し、反比例関数の一般系

$$R_s = \frac{a_0}{C - a_1} + a_2 \dots \dots \dots (2)$$

で表わされる (ak は係数、ただし a2 はオフセット係数)。 (1), (2) より、出力電圧 Vr と C の関係式を求めると、

$$V_r = \frac{-\frac{V_c r a_0}{(a_2 + r)^2}}{C - a_1 + \frac{a_0}{a_2 + r}} + \frac{V_c r}{a_2 + r} = \frac{\alpha_0}{C - \alpha_1} + \alpha_2 \quad (3)$$

のようにセンサ出力も濃度 C に対し反比例関数の一般系になる。図3は式 (3) の最小二乗法を用いて出力特性を反比例関数で近似した例である (付録1)。×印は測定点、破線は多項式の4次近似、実線は式 (3) で近似した曲線である。式 (3) の近似曲線は低濃度域から高濃度域にかけて、全体的に測定点からの誤差もほとんどなく曲線も滑らかに近似できていることがわかる。すなわち 0 ~ 2 万 (ppm) 程度までならば式 (3) でセンサ特性曲線を近似できる。特に、濃度軸に対し +0, +∞ 方向にそれぞれに収束性を有しており、式 (3) での一般化が可能であることがわかる。したがって、式 (3) の未定係数 αk を温度、湿度の関数として導出すれば、温度、湿度に対し動的なセンサ応答のモデル化が実現できる。本研究では人の住環境下における環境変化を対象とし、図1に示す局所的な温度・湿度変化範囲であれば線形近似 (平面近似) :

$$\hat{\alpha}_k(t, h) = A_k t + B_k h + C_k \dots \dots \dots (4)$$

できると仮定した (Ak, Bk, Ck は係数)。t (°C) は温度、h (%) は湿度である。

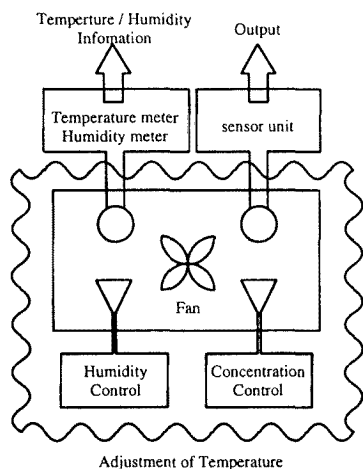


図4 測定環境

Fig. 4. The environment of measurement.

表1 近似式の係数

Table 1. Coefficients of approximate equation.

	A	B	C
$\alpha_0$	120.15024	41.86646	-12541.594
$\alpha_1$	42.484521	14.58807	-4220.6362
$\alpha_2$	$1.183255 \times 10^{-2}$	$3.482531 \times 10^{-3}$	2.864613

4. 特性曲線の近似

本論文では図4に示す恒温恒湿器で温度・湿度を調整し、それぞれの環境下におけるガスセンサの濃度特性を測定した。恒温恒湿器内部は約5 l、温湿度計は(株)東京硝子器械 FCTH-1360 を用いた。10 cc 毎(計6回)に反応ガスをシリンジで注入し、容器内ガス濃度を变化させた。測定点は図5に示すように、温度は20℃から35℃、湿度は40%から80%の領域ではほぼ一様に約30個選出した。次に各点で濃度特性を式(3)の最小二乗法(付録1)によって求め、係数 $\alpha_k$ を温度・湿度空間に分布させた。この空間上で各係数 $\alpha_k$ が、線、もしくは面上に層を形成するように分布していれば係数に対し温度・湿度の関数として一般化が期待できる。

図6に各温度・湿度環境下において最小二乗法を用いて近似した未定係数 $\alpha_k$ をそれぞれ図示した。水平面は温度 $t$ 、湿度 $h$ 各軸、高さは係数の値の大きさを示す。×印が各測定点(約30点)、実線平面は式(4)の最小二乗法によって導出した近似平面である(付録2)。局所的に測定点と近似平面の距離が離れている点があるものの、推定平面を中心としほぼ層を成すように分布していることがわかる。なお、センサ自体は約2%程度の誤差で再現性を有した。表1に近似平面の各係数を示す。

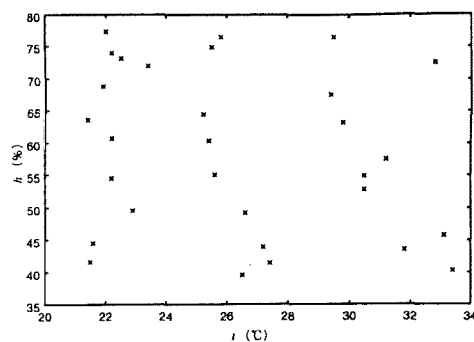


図5 測定点の分布

Fig. 5. The distribution of measurement points.

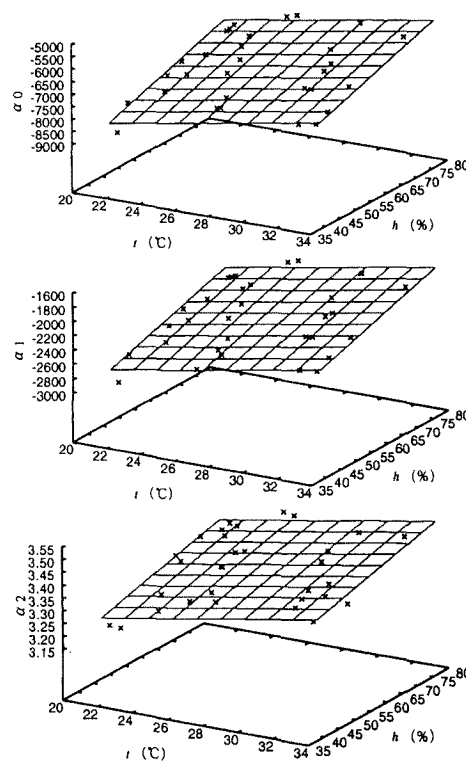


図6 未定係数と近似平面

Fig. 6. The distribution of undecided coefficient and approximate plane.

5. モデル化による係数評価

図6、表1で求めた係数と誤差について定量的に検討する。図7は正規化した推定係数と測定係数の誤差

$$E_k = \frac{\hat{\alpha}_k(t, h) - \alpha_k}{\hat{\alpha}_k(t, h)} \dots \dots \dots (5)$$

の分布図である。ただし、 $\alpha_k(n)$ は測定点である。推定値に対し15%以内の誤差で分布していることが確認できる。図8は式(5)のヒストグラムである。中心線の度数

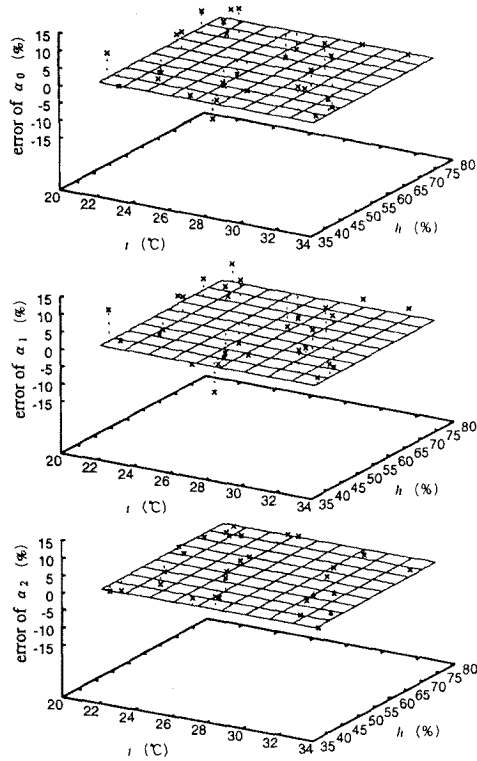


図7 未定係数と近似平面の誤差

Fig. 7. The error undecided coefficients and approximate plane.

が近似平面近傍2%以内に存在する測定点総数であり、中心線から離れるにしたがって近似平面遠方に存在する測定点の度数になる。中心線の度数が最も高く、誤差分布がほぼ平均0%のガウス分布(正規分布)に仕上がっていることがわかる。標準偏差は5%以内であり、少ない誤差で推定平面が近似できることがわかる。

前述したように、一般にこれら温度・湿度の変数に対し、式(4)に示す関数ですべての温度・湿度変動領域を網羅していない。しかし、温度・湿度領域を限定することによって、それら関数を線形近似することが可能である。事実、図6では式(3)の近似関数にあらわれる未定係数の分布はほぼ平面上に分布しており、式(4)に示される線形方程式で近似が可能であることがわかる。

### 6. 実測実験による評価

本実験で用いた近似式を評価するため一般家庭における実測実験を行った。図4に示した温度・湿度調整機能を停止した恒温恒湿度器を室内に配置し、室内定常空気を測定容器内に満たした状態で、濃度測定を行った。図9に一般家庭で測定したガスセンサ特性と本モデルで近似した特性曲線を示す。×印と破線が測定点と測定曲線、実線が近似曲線である。図9(a)は温度33℃湿度73%、(b)は温度22℃湿度42%の特性曲線例である。共に、モデ

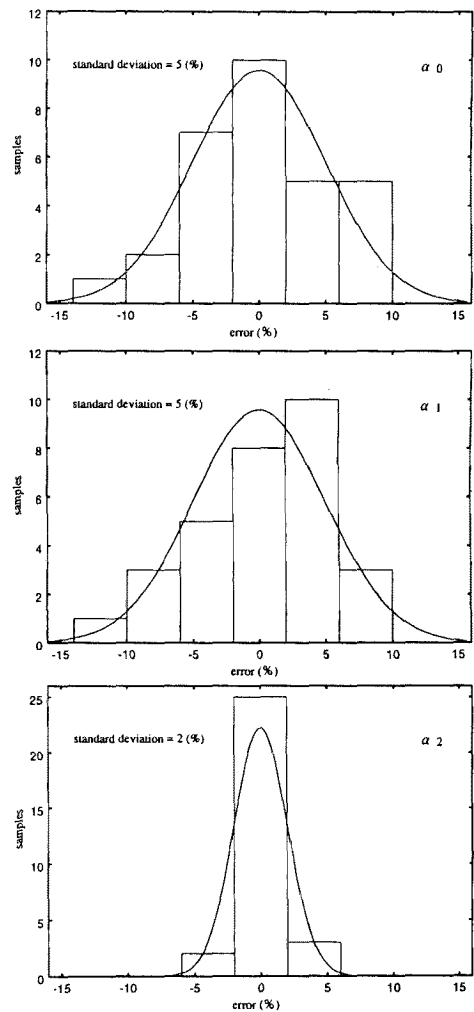


図8 誤差のヒストグラム

Fig. 8. The histogram of error.

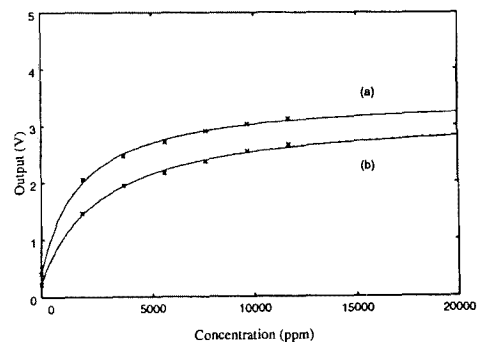


図9 測定曲線と推定曲線

Fig. 9. The measurement curve and the estimated.

ル化のため使用した測定実験室と異なる室内で測定したため、室内芳香剤や室内固有の汚染ガス等の影響で、若干の誤差が見られるものの、特性曲線がほぼ一致している。したがって、設定したモデル化領域（温度20～35℃、湿度35～80%）内では、近似曲線がほとんど室内変化の影響を受けず、温度、湿度情報から測定電圧を補正し、ほぼ正確に濃度を推定できることがわかる。

### 7. ま と め

本論文では、温度・湿度情報からガスセンサ応答に補正を行い正確な濃度を推定するため、温度・湿度変化に対してガスセンサの濃度特性をモデル化した。電圧-濃度特性を反比例関数で近似し、関数中の温度・湿度係数に対し最小二乗法を用いて線形近似をおこなった。その結果、温度・湿度各係数の誤差分布において、標準偏差が約5%以内で、近似できることがわかった。また、一般家庭における実測実験では、一例として反応媒質に一酸化炭素を用いて本モデルの有効性を示し、異なる室内環境下でも近似によって求められた係数が適用できることがわかった。本手法によって測定環境の温度・湿度情報を得ることが可能であれば、センサ出力電圧から、より高い精度でガス濃度が求められる。

### 謝 辞

本研究に際し、実験試料等ご提供頂いた(株)フィガロ技研 松浦吉展氏にお礼申し上げます。

(平成9年9月25日受付, 同9年12月18日再受付)

### 文 献

- (1) 大藪多可志, 木村春彦, "プロダクションシステムを用いた家庭災害の同定," 電気学会論文誌, Vol. 30, No. 9, pp. 431-436 (1994)
- (2) 大藪多可志, 木村春彦, "プロダクションシステムを用いた相対的室内空気汚染の測定," 電気学会論文誌, Vol. 117-E, No. 5, pp. 243-249 (1997)
- (3) 福山博文, "室内空気質," 空調調和衛生工学, Vol. 66, No. 10 pp. 741-748(1992)
- (4) T. Seiyama, "Chemical Sensor-Current State and Future Outlook," Chemical Sensor Technology, Vol.1, pp.1-13, Kodansha Ltd and Elsevier (1988)
- (5) 大藪多可志, 広林茂樹, 木村春彦, "複数の酸化スズ系ガスセンサによる独居老人世帯モニタリング," 電気学会論文誌, Vol. 117-E, No. 6, pp. 314-320 (1997)
- (6) 山香英三, "ハイテクノロジー・センサ", 共立出版, pp. 182-183, (1986)
- (7) 山中高夫, 石田寛, 中本高道, 森泉豊栄, "カルマンフィルタを用いたセンサ応答処理による匂い源探知システムの高速度化", ECS-96-1, pp.1-6, (1996)
- (8) 例えば, 長嶋秀世, "数値計算法", 積書店, p151-153 (1986)

### 付 録

#### 1. ガスセンサ近似特性曲線の導出

ガスセンサ特性曲線のモデル化で用いた最小二乗法を示す。コスト関数(評価関数)を

$$E(\alpha_0, \alpha_1, \alpha_2) = \sum_{k=0}^{N-1} \left\{ V_k - \left( \frac{\alpha_0}{C_k - \alpha_1} + \alpha_2 \right) \right\}^2 \quad (\text{付1})$$

で表す。 $V_k$ と $C_k$ は測定した出力電圧と濃度、 $N$ は測定総数、 $\alpha_0, \alpha_1, \alpha_2$ は未定係数である。上式を最小にする未定係数 $\alpha_0, \alpha_1, \alpha_2$ はそれぞれ

$$\frac{\partial E(\alpha_0, \alpha_1, \alpha_2)}{\partial \alpha_m} = 0 \quad \dots\dots\dots (\text{付2})$$

を満足する( $m = 0, 1, 2$ )。この3つの条件式は3変数の非線形方程式であるから、解を得るためにはニュートン法を用いて解くことができる<sup>(8)</sup>。本論文では式(付2)の条件式より

$$\alpha_0 \leftarrow \alpha_0 - \frac{1}{J} \begin{vmatrix} \frac{\partial E}{\partial \alpha_0} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_1} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_2} \\ \frac{\partial E}{\partial \alpha_1} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_1^2} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_1 \partial \alpha_2} \\ \frac{\partial E}{\partial \alpha_2} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_1 \partial \alpha_2} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_2^2} \end{vmatrix} \quad \dots\dots (\text{付3})$$

$$\alpha_1 \leftarrow \alpha_1 - \frac{1}{J} \begin{vmatrix} \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0^2} & \frac{\partial E}{\partial \alpha_0} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_2} \\ \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_1} & \frac{\partial E}{\partial \alpha_1} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_1 \partial \alpha_2} \\ \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_2} & \frac{\partial E}{\partial \alpha_2} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_2^2} \end{vmatrix} \quad \dots\dots (\text{付4})$$

$$\alpha_2 \leftarrow \alpha_2 - \frac{1}{J} \begin{vmatrix} \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0^2} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_1} & \frac{\partial E}{\partial \alpha_0} \\ \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_1} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_1^2} & \frac{\partial E}{\partial \alpha_1} \\ \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_2} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_1 \partial \alpha_2} & \frac{\partial E}{\partial \alpha_2} \end{vmatrix} \quad \dots\dots (\text{付5})$$

ただし,

$$J = \begin{vmatrix} \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0^2} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_1} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_2} \\ \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_1} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_1^2} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_1 \partial \alpha_2} \\ \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_2} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_1 \partial \alpha_2} & \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_2^2} \end{vmatrix} \quad \dots\dots\dots (\text{付6})$$

の漸化式を収束させることにより、未定係数 $\alpha_0, \alpha_1, \alpha_2$ を求めた。また、行列の各要素は

$$\frac{\partial E}{\partial \alpha_0} = \sum_{k=0}^{N-1} \frac{-2}{C_k - \alpha_1} \left( V_k - \frac{\alpha_0}{C_k - \alpha_1} - \alpha_2 \right) \quad \dots\dots\dots (\text{付7})$$

$$\frac{\partial E}{\partial \alpha_1} = \sum_{k=0}^{N-1} \frac{-2\alpha_0}{(C_k - \alpha_1)^2} \left( V_k - \frac{\alpha_0}{C_k - \alpha_1} - \alpha_2 \right) \quad \dots\dots\dots (\text{付8})$$

$$\frac{\partial E}{\partial \alpha_2} = \sum_{k=0}^{N-1} -2 \left( V_k - \frac{\alpha_0}{C_k - \alpha_1} - \alpha_2 \right) \quad (\text{付9})$$

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0^2} = \sum_{k=0}^{N-1} \frac{2}{(C_k - \alpha_1)^2} \quad \dots\dots\dots (\text{付10})$$

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_1^2} = \sum_{k=0}^{N-1} \frac{-4\alpha_0}{(C_k - \alpha_1)^3} \left( V_k - \frac{3\alpha_0}{2(C_k - \alpha_1)} - \alpha_2 \right) \quad \dots\dots (\text{付11})$$

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_2^2} = 2 \dots\dots\dots (付12)$$

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_1} = \sum_{k=0}^{N-1} \frac{-2}{(C_k - \alpha_1)^2} \left( V_k - \frac{2\alpha_0}{C_k - \alpha_1} - \alpha_2 \right) \dots\dots (付13)$$

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_0 \partial \alpha_2} = \sum_{k=0}^{N-1} \frac{2}{C_k - \alpha_1} \dots\dots\dots (付14)$$

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \alpha_1 \partial \alpha_2} = \sum_{k=0}^{N-1} \frac{2\alpha_0}{(C_k - \alpha_1)^2} \dots\dots\dots (付15)$$

である。

2. 平面近似の最小 2 乗法

同様に平面近似の評価関数を

$$E(A_m, B_m, C_m) = \sum_{k=0}^{N-1} \{ \alpha_{mk} - (A_m t_k + B_m h_k + C_m) \}^2 \quad (付16)$$

で表わす。\$t\_k\$, \$h\_k\$ は測定温度と測定湿度, \$\alpha\_{mk}\$ は式(付3~付5) 求められる推定係数, \$A, B, C\$ 未定係数である。条件式は式(付2) 同様,

$$\frac{\partial E(A_m, B_m, C_m)}{\partial A_m} = \frac{\partial E(A_m, B_m, C_m)}{\partial B_m} = \frac{\partial E(A_m, B_m, C_m)}{\partial C_m} = 0 \quad (付17)$$

である。したがって、未定係数 \$A\_m, B\_m, C\_m\$ は行列

$$\begin{pmatrix} \sum_{k=0}^{N-1} t_k^2 & \sum_{k=0}^{N-1} t_k h_k & \sum_{k=0}^{N-1} t_k \\ \sum_{k=0}^{N-1} t_k h_k & \sum_{k=0}^{N-1} h_k^2 & \sum_{k=0}^{N-1} h_k \\ \sum_{k=0}^{N-1} t_k & \sum_{k=0}^{N-1} h_k & \sum_{k=0}^{N-1} 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_m \\ B_m \\ C_m \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sum_{k=0}^{N-1} t_k \alpha_k \\ \sum_{k=0}^{N-1} h_k \alpha_k \\ \sum_{k=0}^{N-1} \alpha_k \end{pmatrix} \dots\dots\dots (付18)$$

を解くことで求められる。

広 林 茂 樹 (正員) 1968年9月1日生まれ。94年3月工学院



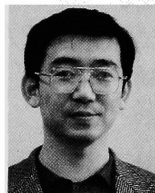
大学工学研究科修士課程修了。95年3月同大学博士課程中退。同年4月金沢大学工学部助手。主として、室内音響、音響振動論、音響信号処理、流体伝播のモデル化の研究に従事。電子情報通信学会、計測自動制御学会、日本音響学会、米国音響学会各会員。

坂 森 智 (学生員) 1975年8月25日生まれ。1998



年4月金沢大学工学部電気情報工学科卒業見込み。ガスセンサを用いた人の活動同定に興味がある。

木 村 春 彦 (非会員) 1974年 東京電気大学工学部応用理化学科



卒業。79年東北大学工学研究科博士(情報工学)課程修了。同年富士通(株)勤務。80年金沢女子短期大学講師。84年金沢大学経済学部助教授を経て、現在、同大学工学部電気情報工学科教授。その間、最適コード変換、プロダクションシステムの高速度の研究に従事(工学博士)。情報処理学会、電子情報通信学会各会員。

大 藪 多可志 (正員) 1973年 工学院大学工学研究科修士課程修了。



75年早稲田大学第二文学部英文科卒業。73年電気音響(株)技術部研究所勤務。80年金沢女子短期大学講師、助教授、教授を経て94年富山国際大学人文学部社会学科教授。98年金沢経済大学経済学部教授。ガスセンサシステムに関する研究に従事(工学博士)。