
**МАТЕМАТИЧЕСКИЕ МЕТОДЫ
И МОДЕЛИРОВАНИЕ В ПРИБОРОСТРОЕНИИ**

УДК 681.586.67

© Т. В. Осипова, А. М. Баранов, И. И. Иванов, 2025

**РАЗРАБОТКА ПРОГРАММНО-АЛГОРИТМИЧЕСКОГО МЕТОДА
ОБРАБОТКИ ХАРАКТЕРИСТИК ТЕРМОКАТАЛИТИЧЕСКИХ
СЕНСОРОВ ДЛЯ ИДЕНТИФИКАЦИИ ГОРЮЧИХ ГАЗОВ
В ВОЗДУХЕ И МНОГОКОМПОНЕНТНЫХ СМЕСЯХ**

Разработан программно-алгоритмический метод обработки температурных характеристик термокаталитического сенсора для распознавания типа и определения концентрации горючих газов в многокомпонентных смесях и проведена оценка его применимости. Представлена схема программно-алгоритмического метода, проведены экспериментальные исследования однокомпонентных, двухкомпонентных и многокомпонентных смесей, состоящих из углеводородов и водорода. Результаты показали, что метод позволяет распознавать тип горючего газа и определять концентрацию с точностью до 90%.

Ключевые слова: термокаталитический сенсор, селективность, многокомпонентные смеси, метод главных компонент, определение концентрации, водород, обработка данных

EDN: YWZFN0

ВВЕДЕНИЕ

В мире растет число промышленных предприятий, на которых производят или используют горючие газы или легко воспламеняющиеся жидкости (ЛВЖ). Утечка подобных веществ может привести к опасным последствиям. Необходимым инструментом контроля утечек и измерения концентрации горючих газов в воздухе являются сенсоры (полупроводниковые, термокаталитические, оптические и др.) [1–3]. В диапазоне до взрывоопасных концентраций для мониторинга горючих газов наиболее широко применяются термокаталитические сенсоры, которые имеют малое время отклика, необходимую точность измерений и низкую стоимость.

Во многих случаях в воздушной среде может присутствовать несколько типов газа, имеющих разное значение нижнего концентрационного порога распространения пламени (НКПР), что делает невозможным определение НКПР смеси без определения состава многокомпонентной смеси. Распознавание газов в смесях является одной из самых сложных задач в газовом анализе [4]. Это связано с тем, что большинство газовых сенсоров, в том числе и термокаталитические сенсоры, обладают низкой селективностью к горючим газам. Это ограничивает области их практического использования.

Поэтому повышение селективности термокаталитических сенсоров в задачах контроля воздушной среды и своевременного предотвращения воз-

никновения взрывоопасных концентраций горючих газов, ЛВЖ и их многокомпонентных смесей являются одной из важных и актуальных задач.

Среди горючих газов особое место занимает водород. Это связано с тем, что он является одним из самых взрывоопасных газов, он чрезвычайно летуч и имеет самый большой диапазон взрывоопасных концентраций (от 4 до 75% об.) [5]. Важно отметить, что водород рассматривается в качестве перспективного вида топлива (или компонента топлива, в частности в смесях с углеводородами) [6], поэтому разработка эффективных сенсоров водорода и методик его мониторинга в воздухе является актуальной задачей.

Селективность термокаталитических сенсоров к горючим газам можно повысить за счет совершенствования самого сенсора (например, за счет использования фильтров или подбора катализаторов), применения продвинутых методик проведения измерений, увеличивающих объем данных от сенсоров, и разработки математических методов и подходов к обработке получаемых от сенсора данных. Наиболее перспективным является подход, объединяющий продвинутые методики проведения измерений и математической обработки данных.

Благодаря быстрому повышению вычислительных мощностей цифровой электроники, а также увеличению роли искусственного интеллекта в технологическом прогрессе возрастает важность применения методов математической обработки данных и машинного обучения, а также анализа

РАЗРАБОТКА ПРОГРАММНО-АЛГОРИТМИЧЕСКОГО МЕТОДА

данных большого размера. Применение таких методов позволит ускорить процесс определения типа и концентрации анализируемого газа в воздушной смеси, исключит человеческий фактор при принятии решения, а также повысит селективность измерений. Новой тенденцией в развитии на сегодняшний день является интеграция методов машинной обработки данных и искусственного интеллекта в газовый анализ [7]. Эти технологии расширяют возможности прогнозирования и помогают выявлять закономерности в обширных наборах данных, связанных с поведением газа.

При использовании методов машинной обработки необходим увеличенный объем данных от изучаемого объекта. С одной стороны, увеличение объема данных возможно, например, за счет увеличения числа сенсоров и создания матриц из сенсоров, т.е. за счет технического усложнения устройств газового анализа [8, 9]. С другой стороны, расширенный объем данных, который можно получить от термокаталитических сенсоров в процессе проведения измерений, сейчас не используется при анализе воздуха на присутствие в нем горючих газов и паров ЛВЖ. В частности, в традиционных методах измерения проводятся либо при одном значении рабочей температуры, либо при нескольких значениях температур [10]. Важно отметить, что увеличить объем данных от термокаталитического сенсора можно за счет измерения его отклика в широком диапазоне температур [11]. Подобные измерения позволяют разработать новые методы проведения измерений смесей горючих газов [12], в том числе и включающие машинное обучение для распознавания горючих газов и паров легко воспламеняемых жидкостей [13]. Методики температурного сканирования широко распространены для металлооксидных газовых сенсоров [1]. Однако подход к обработке температурных зависимостей отклика термокаталитических сенсоров в многокомпонентных смесях до сих пор не описан в научной литературе.

Целью работы является разработка программно-алгоритмического метода распознавания типа и определения концентрации горючих газов в многокомпонентных смесях на основе обработки температурных зависимостей отклика термокаталитического сенсора с последующей математической обработкой экспериментальных зависимостей и применением алгоритмов классификации получаемых данных для принятия решений.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

В качестве термокаталитических сенсоров были взяты серийно выпускаемые компанией ООО "НТЦ ИГД" сенсоры ДТК-4 [14]. Задача работы состояла в разработке метода, позволяющего при

помощи термокаталитического сенсора определять тип и концентрацию горючих газов за счет модификации процедуры проведения измерений и применения продвинутых математических алгоритмов для анализа полученных данных. При этом технология производства и конструкция сенсора оставались неизменными.

Таким образом, ставилась цель расширения области применения серийных сенсоров на задачи селективного измерения горючих газов в многокомпонентных смесях и в частности определения водорода в составе многокомпонентных углеводородных смесей в воздухе в диапазоне дозврывоопасных концентраций. Более подробно технология изготовления сенсоров описана в работе [15].

В качестве измерительной схемы использовалась мостовая схема (рис. 1), где рабочий и сравнительный чувствительные элементы стояли на одном плече, а резисторы (R_1 , R_2) номиналом 10 кОм — на втором [16].

Схема измерительной установки подробно описана в работе [15]. Измерительная установка позволяет подавать напряжение питания в диапазоне от 0 до 3.3 В с шагом 0.05 В и регистрировать отклик от нескольких термокаталитических сенсоров одновременно. Результатом измерений являются зависимости отклика сенсора от температуры (S-образные характеристики), содержащие информацию об особенностях каталитического горения горючих газов.

В работе исследовалась выборка из 6 горючих газов и паров ЛВЖ. Выбор газов был обусловлен следующими причинами: метан, пропан, бутан и этилен широко используются в быту и в промышленности, гексан относится к ЛВЖ, водород взрывоопасен, а также является перспективным топливом при развитии водородной энергетики. Исходные газы представляли собой поверочные газовые смеси (ПГС) с известной концентрацией:

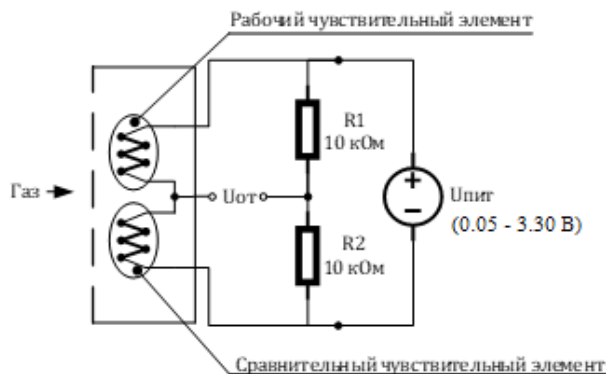


Рис. 1. Измерительная мостовая схема для режима температурного сканирования.

водород (0.96, 2.06% об.), метан (0.47, 2.50, 1.00% об.), пропан (1.01% об.), бутан (0.67% об.), гексан (0.47% об.) и этилен (1.07% об.).

Предлагаемый метод основан на совместном использовании нескольких методов: калибровка на основе всей S-образной зависимости, метод скользящего окна, метод главных компонент (МГК) и применение классификатора. Обработка исходных данных реализована средствами языка python 3.11 с использованием библиотек numpy v1.20.3, pandas 1.2.4, sklearn 0.0. С помощью МГК был проведен анализ полученных экспериментальных зависимостей (образцов газа).

Объясняющими признаками в данном случае являются 66 значений откликов при разных напряжениях питания.

РАЗРАБОТКА ПРОГРАММНО-АЛГОРИТМИЧЕСКОГО МЕТОДА

Традиционный метод измерений состоит в измерении напряжения отклика в области насыщения (рис. 2, а). Измерения концентрации проводятся по одной точке из этой области. Термокаталитический сенсор должен калиброваться на каждый

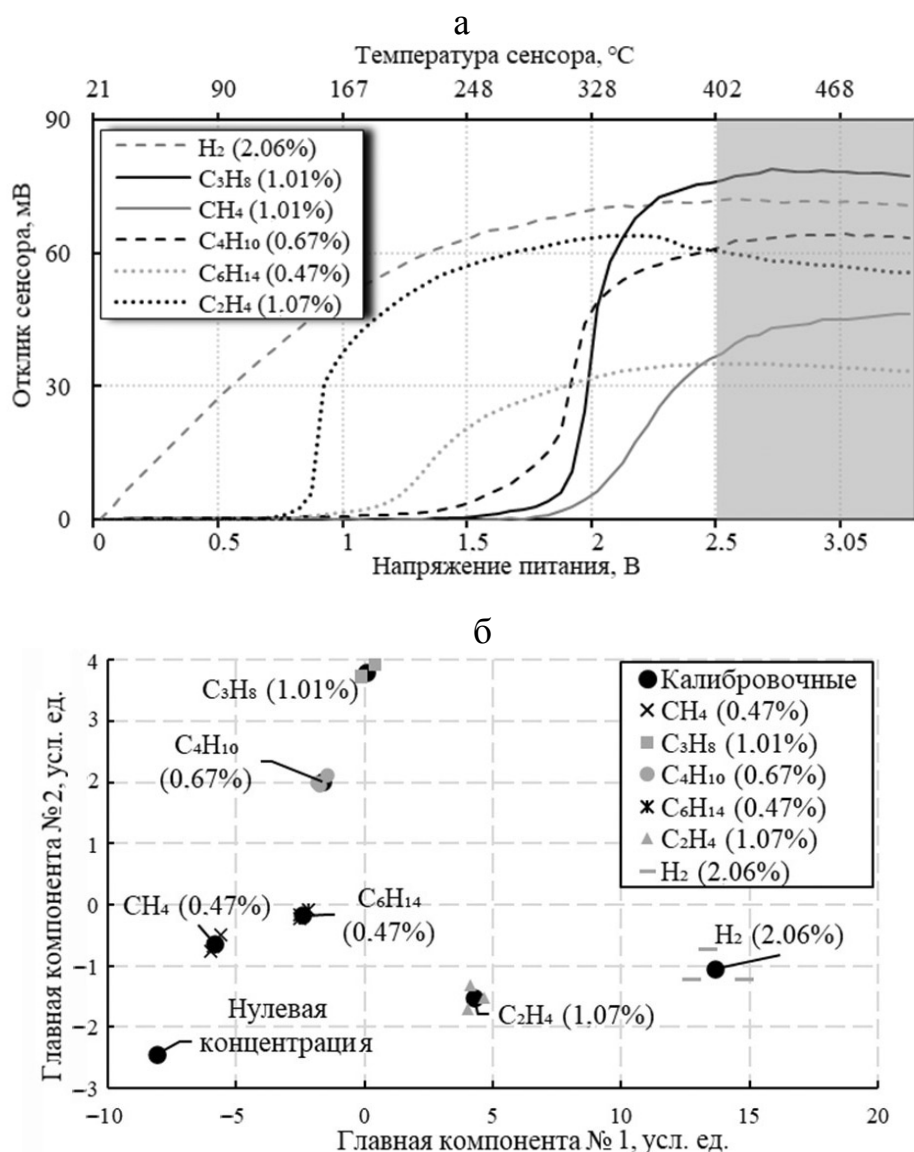


Рис. 2. (а) — Зависимости отклика сенсора от приложенного напряжения в среде различных ПГС; (б) — результат обработки S-образных характеристик методом главных компонент.

горючий газ. Предварительно измеряется отклик в воздухе. Далее сенсор калибруют при известных концентрациях газов, и строится калибровочная зависимость, которая в диапазоне до НКПР является линейной. Далее, измеряя напряжение отклика сенсора, по калибровочной зависимости находят концентрацию. Результатом измерения является одно значение. Очевидно, что такой способ нельзя использовать, когда тип газа в воздухе неизвестен, а также для многокомпонентных смесей горючих газов.

Из рис. 2, а, видно, что формы зависимостей отклика для разных горючих газов различаются между собой. Поэтому зависимость отклика сенсора в широком диапазоне температур является специфической для каждого газа и для каждой концентрации. Было выдвинуто предположение, что, проводя математическую обработку экспериментальных зависимостей отклика, можно распознать тип газа.

Зависимость отклика сенсора от температуры содержит большое число экспериментальных значений. Большие данные часто обладают свойствами, которые мы можем использовать в обработке, например, корреляция между значениями в данных высокой размерности. Снижение размерности использует структуру исходных данных и их корреляцию и позволяет нам работать с более компактным представлением, в идеале без потери информации о происходящих процессах, содержащейся в исходной зависимости (в большинстве случаев неявно).

Существуют методы уменьшения размерности [17]. В данной работе был использован метод главных компонент [18], который позволяет перейти к новому координатному пространству главных компонент. После обработки МГК S-образных зависимостей были получены две главные компоненты. Методика обработки S-образных зависимостей горючих газов описана нами в работе [19]. Для каждой выбранной компоненты рассчитывается объясненная дисперсия (1), которая показывает, какой вклад в общую дисперсию вносит каждая полученная компонента.

$$S = \frac{\sum_1^d \lambda_i}{\sum_1^m \lambda_i}, \quad (1)$$

где S — объясненная дисперсия выбранного числа компонент; λ_i — дисперсия исходных данных вдоль i -й главной компоненты; d — выбранное число главных компонент; m — общее количество главных компонент.

На рис. 2, б, представлен результат обработки S-образных характеристик при помощи МГК для трех термокаталитических сенсоров, а также их

усредненные значения (обозначены черными точками). Видно, что после обработки МГК S-образные зависимости отклика преобразуются в точки с разными значениями главных компонент. Области локализации распределены слева направо, т.е. вдоль первой главной компоненты, что связано с увеличением максимального значения отклика сенсора на разные газы. Также из графика видно, что наибольший разброс между точками у водорода, что связано с разбросом значений исходного массива данных между тремя сенсорами (примерно ± 10 мВ). Так как области локализации не пересекаются, то возможно однозначное распознавание разных типов горючих газов и, как будет показано ниже, определять их концентрацию.

После обработки S-образных зависимостей было установлено, что на первую главную компоненту приходится 87.3%, на вторую — 8.4%. Рассчитанные главные компоненты объясняли до 96% исходных данных.

Таким образом, можно заключить, что предложенный подход к обработке экспериментальных S-образных характеристик термокаталитических сенсоров позволяет распознавать горючие газы, превращая тем самым неселективный к горючим газам сенсор в селективный.

На рис. 3 представлена схема предлагаемого программно-алгоритмического метода.

Предложенный программно-алгоритмический подход к распознаванию типа и определению концентрации горючих газов в воздухе включает в себя следующие основные этапы:

- измерение S-образных зависимостей отклика термокаталитического сенсора с известной концентрацией газов и построение калибровочной плоскости главных компонент (рис. 2, а);
- измерение S-образных зависимостей отклика термокаталитического сенсора с неизвестной концентрацией газов и обработка полученных зависимостей МГК;
- оценку достоверности полученных результатов алгоритмами классификации с машинным обучением и принятие решения.

Важно отметить, что изменение методики измерения и регистрации отклика мостовой схемы (переход от измерения при постоянном значении рабочего напряжения к измерениям в диапазоне 0–3.3 В), а также переход от стационарного к периодическому режиму проведения измерений привели к необходимости изменения принципа калибровки термокаталитических сенсоров.

На калибровочном этапе, в первую очередь, определяется состав горючих газов, который будет анализироваться на объекте мониторинга и по которым проводятся измерения S-образных характеристик и калибровка сенсора.

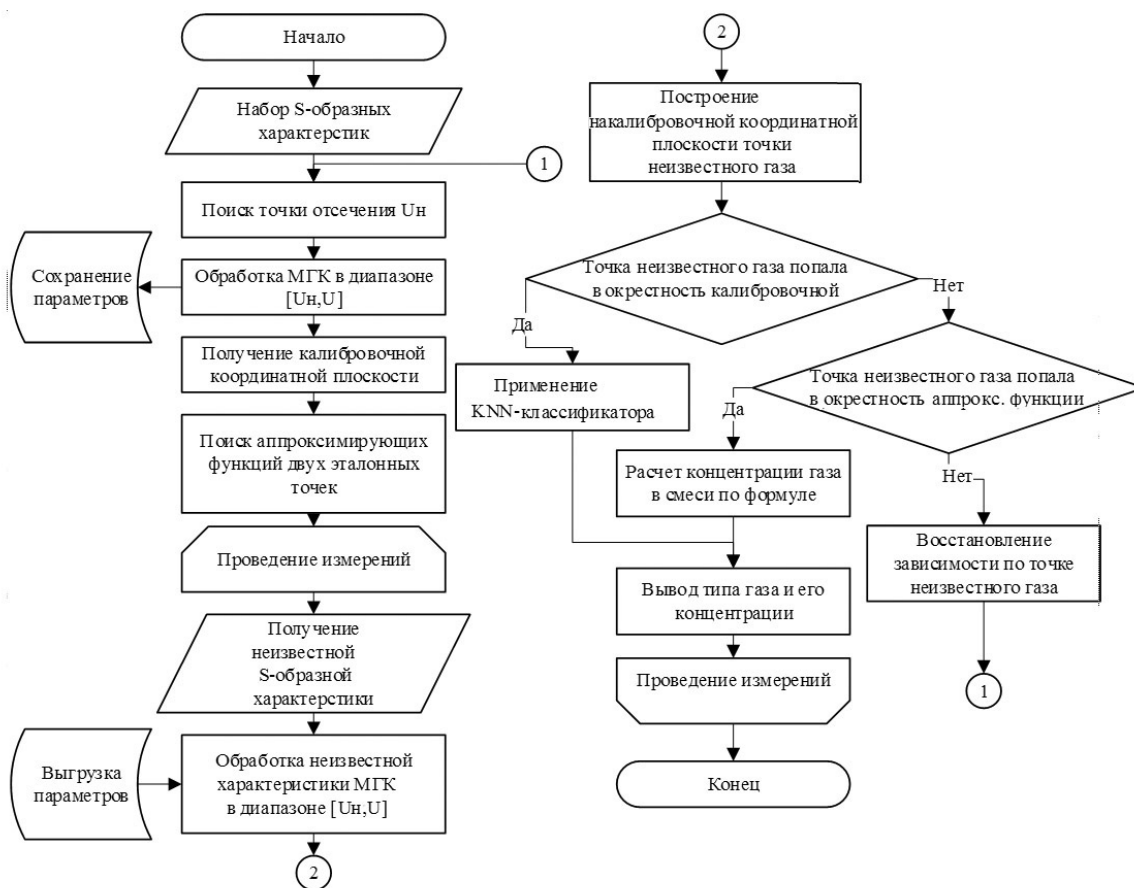


Рис. 3. Схема программно-алгоритмического метода обработки S-образных характеристик термокаталитических сенсоров.

В результате получают калибровочные точки на плоскости главных компонент. Важно отметить, что, в отличие от традиционного метода, в разработанном методе калибровка проводится не по одному значению отклика, а по всей измеренной температурной зависимости. При этом сохраняются параметры, такие как весовые характеристики, среднее и среднеквадратическое отклонение, и рассчитывается аппроксимирующая функция.

Из рис. 2, а, следует, что каталитическое горение различных газов начинается при разных нагревающих напряжениях, т.е. при разной температуре. Очевидно, что это требует введения дополнительного критерия отбора исходных данных, который исключил бы из обработки значения напряжения, при которых еще нет горения, а получаемые значения являются шумом измерительной системы. Критерием отсеивания этих значений считается минимальное значение напряжения питания сенсора, при котором отклик сенсора резко воз-

растает, т.е. начинается стадия горения горючего газа на поверхности сенсора. Эту точку возможно определить на основе метода скользящего окна, который является методом трансформации данных, позволяющим сформировать из элементов некоторой зависимости новую зависимость [20].

На измерительном этапе проводят измерения S-образных характеристик в среде тех же газов, что и участвовали при калибровке, но с неизвестной концентрацией. Получаемые экспериментальные зависимости обрабатывают методом главных компонент, учитывая ранее полученные параметры. Полученные результаты откладываются на калибровочной плоскости главных компонент.

Принятие решения зависит от трех условий:

- если точка неизвестного горючего газа попала в окрестность калибровочной точки, то применяется классификатор и точке присваивается тип газа и его концентрация;

РАЗРАБОТКА ПРОГРАММНО-АЛГОРИТМИЧЕСКОГО МЕТОДА

– если точка неизвестного горючего газа попала в окрестность аппроксимирующей функции двух калибровочных точек, то концентрация рассчитывается по выведенной формуле;

– если точка неизвестного горючего газа не классифицировалась, то проводится восстановление ее характеристики и анализ типа газа.

Если тип газа и его концентрация распознаны, то проводится переобучение сенсора, добавив к исходному набору характеристик новую.

Далее исследованы возможности разработанного программно-алгоритмического метода по определению концентрации газов в одно-, двух- и многокомпонентных смесях.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Определение концентрации горючих газов на плоскости главных компонент

Для построения концентрационных зависимостей на плоскости главных компонент были промоделированы S-образные характеристики для двух концентраций водорода 0.75 и 0.25% об. и метана 0.3 и 0.25% об.

Как было показано ранее, изменение концентрации горючих газов приводит к пропорциональному изменению S-образной характеристики [15]. Поэтому для данных расчетов экспериментальные S-образные зависимости были получены путем деления концентрации в ПГС на соответствующий делитель, чтобы получить зависимости для концентраций водорода и метана, указанные выше.

Полученные таким образом S-образные характеристики были обработаны при помощи разработанного программно-алгоритмического метода. Результаты обработки представлены на рис. 4.

Видно, что зависимости имеют линейный характер и не пересекаются относительно друг друга. Таким образом, возможно вывести аппроксимирующую функцию, с помощью которой можно рассчитывать значение неизвестной концентрации на плоскости главных компонент. Фактически полученные линейные зависимости являются калибровочными зависимостями.

Анализируя полученный результат, было установлено, что концентрация прямо пропорциональна расстоянию между значениями главных компонент. Таким образом, для искомого концентрации можно получить следующую формулу:

$$n = n_{\text{ПГС}} \left(1 - \frac{D_{\text{H}}}{D} \right), \quad (2)$$

где $n_{\text{ПГС}}$ — концентрация ПГС искомого горючего газа, % об.;

$$D = \sqrt{(x_2 - x_1)^2 + (y_2 - y_1)^2},$$

$$D_{\text{H}} = \sqrt{D_{\text{H1}}^2 - h^2};$$

x, y — соответствующие значения главных компонент;

D_{H1} — расстояние между координатой неизвестного горючего газа и ПГС.

(См. рис. 5).

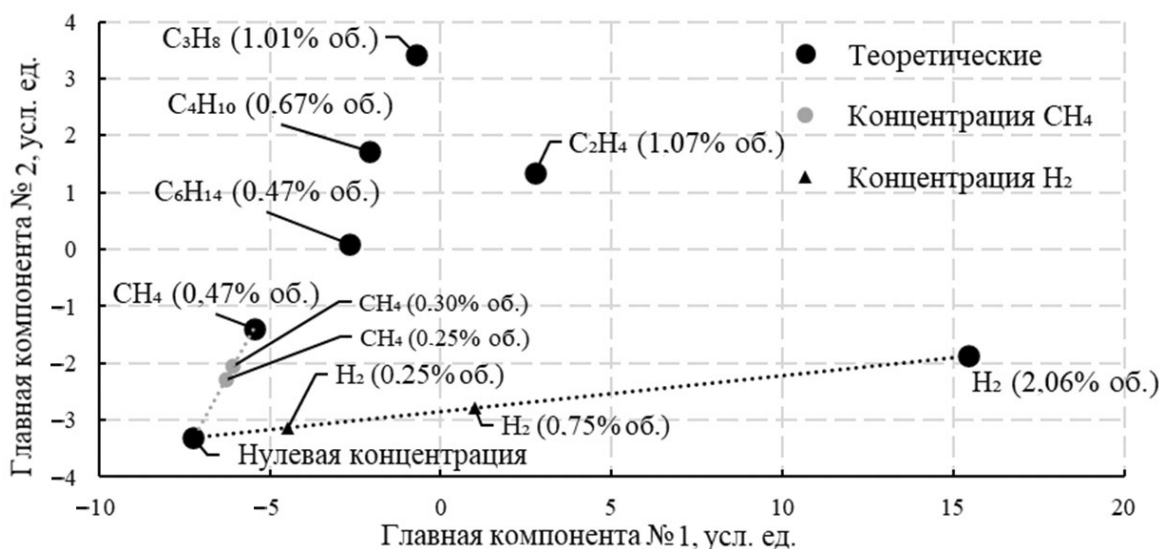


Рис. 4. Результат обработки теоретических концентрационных зависимостей для метана и водорода на плоскости главных компонент.

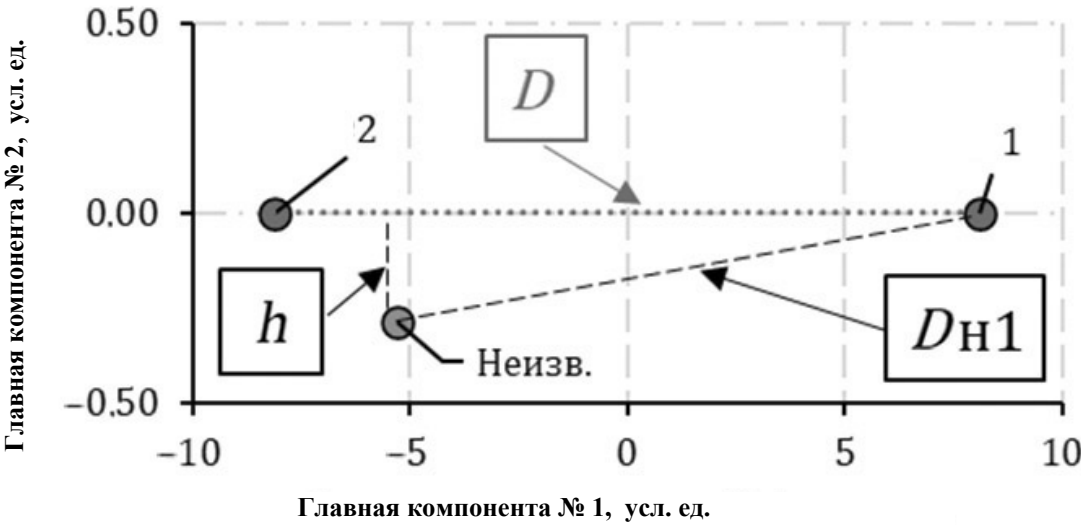


Рис. 5. Расчет концентрации горючего газа по формуле (2) на плоскости главных компонент. Значения 1 и 2 — нулевая концентрация и исходная ПГС горючего газа или исходные ПГС двух горючих газов в двухкомпонентной смеси

Табл. 1. Измеренные концентрации при напряжении 0.5 В и 1.0 В компонентов смесей

№ смеси	Поток компонентов газовой смеси		Измеренная концентрация H ₂ при 0.5 В	Измеренная концентрация H ₂ при 1.0 В
	водород (H ₂) 0.96% об.	пропан (C ₃ H ₈) 1.01% об.		
	процентное соотношение		% об.	% об.
1	0	100	0	0
2	20	80	0.24	0.25
3	43	57	0.43	0.44
4	50	50	0.50	0.51
5	65	35	0.66	0.67
6	80	20	0.73	0.75
7	100	0	0.96	0.96

Определение концентрации горючих газов в двухкомпонентной смеси

Определение концентрации компонентов в водород-углеводородной смеси

Экспериментальное исследование возможности определения концентрации водорода в многокомпонентных смесях [21, 22] традиционным методом уже проводилось ранее. Данная задача не является тривиальной, поскольку горение водорода на катализаторе термокаталитического сенсора начинается практически при комнатных температурах [23].

В соответствие предложенному в работе методу были измерены зависимости отклика термокаталитических сенсоров от приложенного нагревающего напряжения. Для повышения точности результатов измерениях участвовало 8 термокаталитических сенсоров. В качестве исходного углеводорода была взята ПГС пропана. Изменения соотношения концентраций между пропаном и водородом в водород-углеводородной смеси обеспечивалось за счет регулировки потока ротаметрами (табл. 1).

Полученные усредненные по 8 сенсорам S-образные характеристики представлены на рис. 6.

РАЗРАБОТКА ПРОГРАММНО-АЛГОРИТМИЧЕСКОГО МЕТОДА

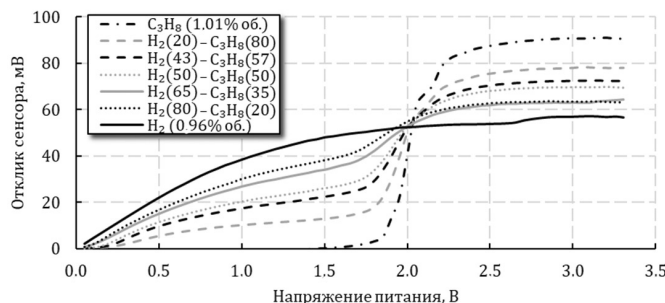


Рис. 6. S-образные характеристики для двухкомпонентных смесей (пропан-водород).

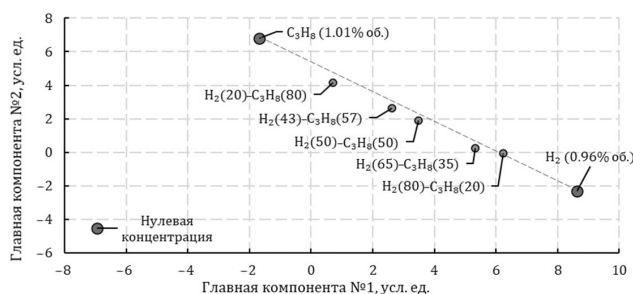


Рис. 7. Результат обработки для водорода, пропана и их смесей на плоскости главных компонент.

Анализируя полученные зависимости, можно сделать вывод о том, что в диапазоне напряжения питания от 0.05 В до 1.7 В сенсор имеет отклик, который вызван процессом горения исключительно водорода. Поэтому при этих значениях напряжения можно измерять концентрацию водорода в смеси. Следует отметить, что зависимости для многокомпонентных смесей имеют меньший отклик в сравнении с откликом для чистого водорода. Это связано с тем, что для приготовления смеси были использованы разбавленные горючие газы, в результате чего концентрации исходных компонентов снижались. Измеренные концентрации при напряжениях 0.5 и 1.0 В компонентов смесей сведены в табл. 1.

Полученные характеристики были обработаны разработанным методом, результат которого представлен на рис. 7. Видно, что значения главных

компонент имеют линейную зависимость и расположены в порядке убывания концентрации водорода. Это формирует собственную шкалу распределения концентрации. Можно предположить, что концентрация прямо пропорциональна расстоянию между значениями главных компонент для пропана и водорода. Поэтому для расчетов концентраций пропана и водорода можно воспользоваться формулой (2).

Полученные значения концентрации водорода, а также экспериментально измеренные традиционным методом значения при напряжениях 0.5 и 1.0 В, объединены в единую диаграмму, которая представлена на рис. 8.

Относительная погрешность рассчитанных предложенным методом значений составляет не более 5% от традиционного метода.

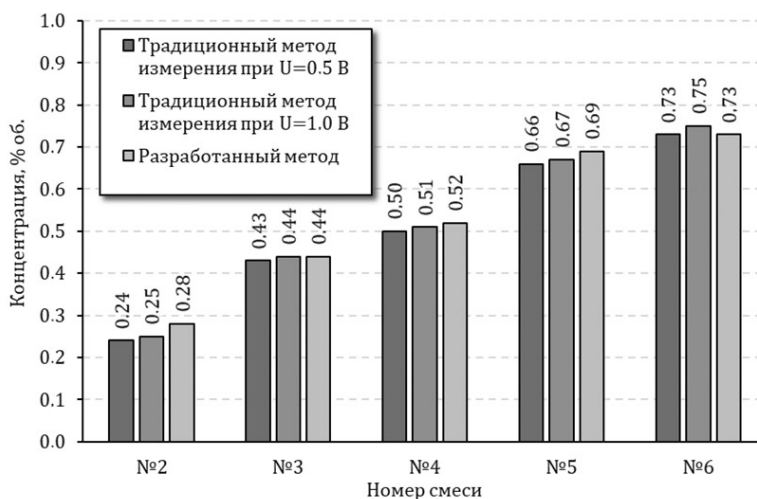


Рис. 8. Диаграмма распределения измеренных и рассчитанных значений концентрации водорода для каждой смеси.

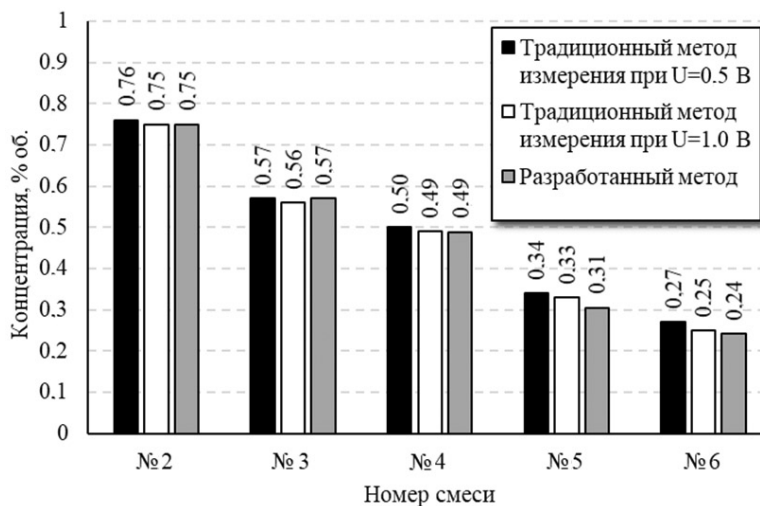


Рис. 9. Диаграмма распределения измеренных и рассчитанных значений концентрации пропана для каждой смеси.

Аналогично, полученная концентрация пропана для тех же смесей, рассчитанная по формуле (2), представлена на рис. 9.

Относительная погрешность рассчитанных предложенным методом значений составляет не более 10% от традиционного метода.

Определение концентрации компонентов в углеводородных смесях

Хотя водород и углеводороды трудно распознать и определить в смесях, это задача относительно проста для термокаталитического анализа за счет выбора оптимальной температуры измерения [15]. Значительно более сложной задачей является идентификация двух близких по своим свойствам углеводородов в случае, когда они одновременно присутствуют в воздушной среде. Поэтому в работе была исследована возможность определения предложенным методом концентраций ме-

тана и пропана в их смесях. В качестве исходных газов использовались ПГС метана с концентрацией 1% об. и ПГС пропана с концентрацией 1.01% об. Изменение концентрации пропана и метана в смесях регулировалось за счет измерения потоков ПГС. В измерениях принимали участие 3 термокаталитических сенсора.

Усредненные экспериментальные S-образные характеристики приведены на рис. 10, а. Из него видно, что отклик сенсора возрастает, по мере того как увеличивается концентрация пропана в смеси.

Результаты обработки измеренных характеристик предложенным методом приведены на рис. 10, б. Видно, что имеет место линейная концентрационная зависимость, на основе которой по формуле (2) можно определить концентрацию метана и пропана в смеси.

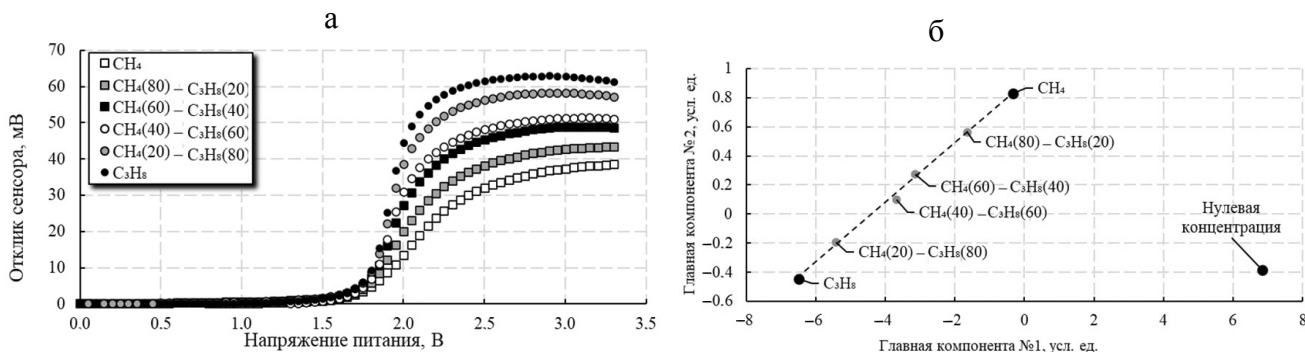


Рис. 10. Усредненные экспериментальные S-образные характеристики смесей углеводородов (а) и результаты их обработки, отложенные на плоскости главных компонент (б).

РАЗРАБОТКА ПРОГРАММНО-АЛГОРИТМИЧЕСКОГО МЕТОДА

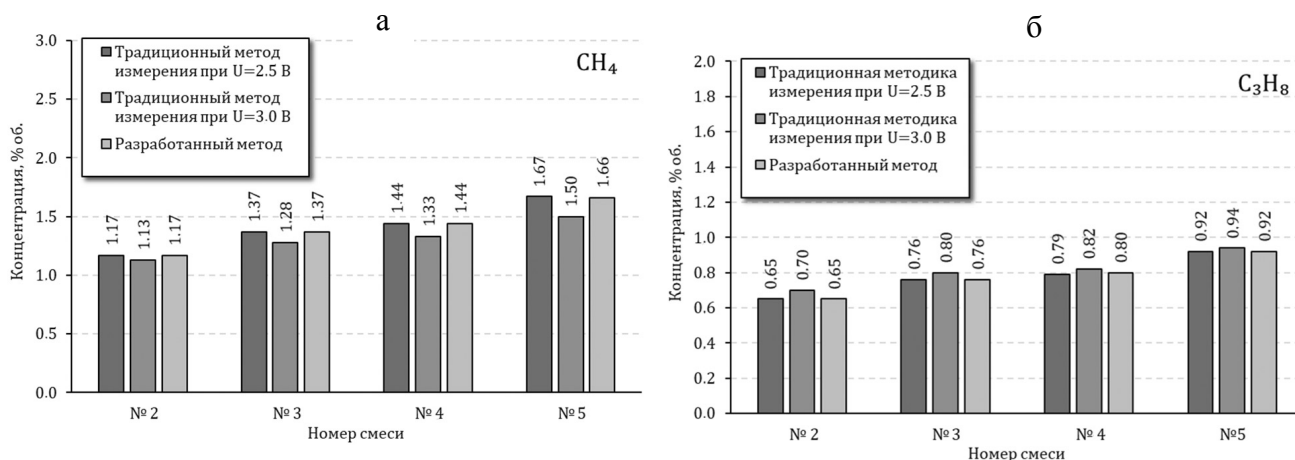


Рис. 11. Диаграмма распределения измеренных и рассчитанных значений концентрации для каждой смеси. а — концентрация метана, б — концентрация пропана

Таким образом, наблюдается, что в рамках одного сенсора значения главных компонент зависят линейно и образуют свою шкалу распределения концентрации.

Стоит отметить, что расположение точек на координатной плоскости главных компонент зависит от исходного набора горючих газов. МГК оперирует средним и среднеквадратическим отклонениями исходных данных, корреляционной матрицей, результаты расчета чего зависят от исходных данных.

Полученные результаты расчета концентрации горючего газа в соответствии с предложенной формулой представлены на рис. 11. Здесь же указаны значения концентраций, полученные традиционным методом в диапазоне напряжений насыщения S-образных характеристик (при 2.5 и 3.0 В).

Относительная погрешность значений, рассчитанных предложенным методом. От традиционного метода составляет не более 10%.

Определение концентрации компонентов в многокомпонентных смесях

В данном исследовании мы ограничились определением концентрации водорода в смеси с пропаном и метаном. На рис. 12, а, представлены S-образные характеристики для ПГС водорода, пропана и метана, а также характеристика для трехкомпонентной смеси в пропорции газов H_2 (32)– C_3H_8 (32)– CH_4 (36). Результат обработки характеристик представлен на рис. 12, б.

Как видно из рисунка, на плоскости главных компонент исходная точка для трехкомпонентной смеси расположена внутри "треугольника", состоящего из точек исходных углеводородов. Концентрацию водорода возможно найти через проекцию полученной точки смеси на одну из сторон "треугольника". Относительная погрешность определения расчетной концентрации водорода от традиционно полученной при напряжении 1 В не более 10 %.

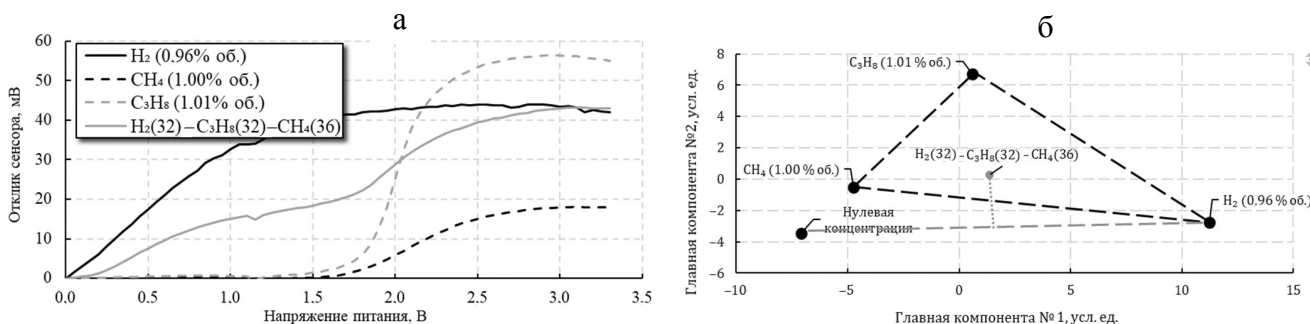


Рис. 12. Экспериментальные S-образные характеристики для ПГС водорода, пропана, метана и их смеси (а) и результаты обработки, отложенные на плоскости главных компонент (б).

Таким образом, разработанный метод позволяет распознавать водород и рассчитывать его концентрацию, однако с точки зрения определения концентрации метана и пропана требуются дополнительные исследования и дальнейшие доработки.

Оценка эффективности применения классификаторов при идентификации газов и газовых смесей

В качестве примера в работе сделана оценка точности при распознавании концентрации водорода в многокомпонентной смеси горючих газов. Для данного исследования были сформированы несколько наборов данных, состоящих из зависимостей для водорода, пропана и метана, а также для смесей, состоящих из них. На основе полученных экспериментальных зависимостей были сформированы значения отклика сенсора на двухкомпонентные смеси, состоящие попарно из водорода, пропана и метана в пропорции 20%, 50% и 80% (рис. 13).

На рис. 14 представлен результат обработки S-образных характеристик предложенным методом. Видно, что значения главных компонент образовали линейную зависимость и расположены в порядке возрастания концентрации водорода в сме-

си, также образуя шкалу распределения отдельно для каждой двухкомпонентной смеси. Было проведено по 6 измерений для 9 смесей, общее число измерений составило 54.

В табл. 2 представлена матрица ошибок классификатора ближайших соседей. Как видно из табл. 2, практически все экспериментальные образцы горючих газов спрогнозированы верно. Это значит, что спрогнозированный тип газа совпадает с фактическим типом газа. Эти результаты выделены серым цветом (диагональ в табл. 2). В то же время один результат для ПГС CH_4 и четыре (3+1) для двухкомпонентной смеси ПГС $\text{H}_2(20) - \text{CH}_4(80)$ спрогнозированы неверно. В целом доля верно предсказанных типов газов и смесей относительно общего числа образцов составила более 90%. Вычисления проведены по формуле (3).

Доля верно спрогнозированных типов горючего газа рассчитывается по формуле:

$$\text{Доля} = \frac{\text{ВР}}{\text{Все образцы}}. \quad (3)$$

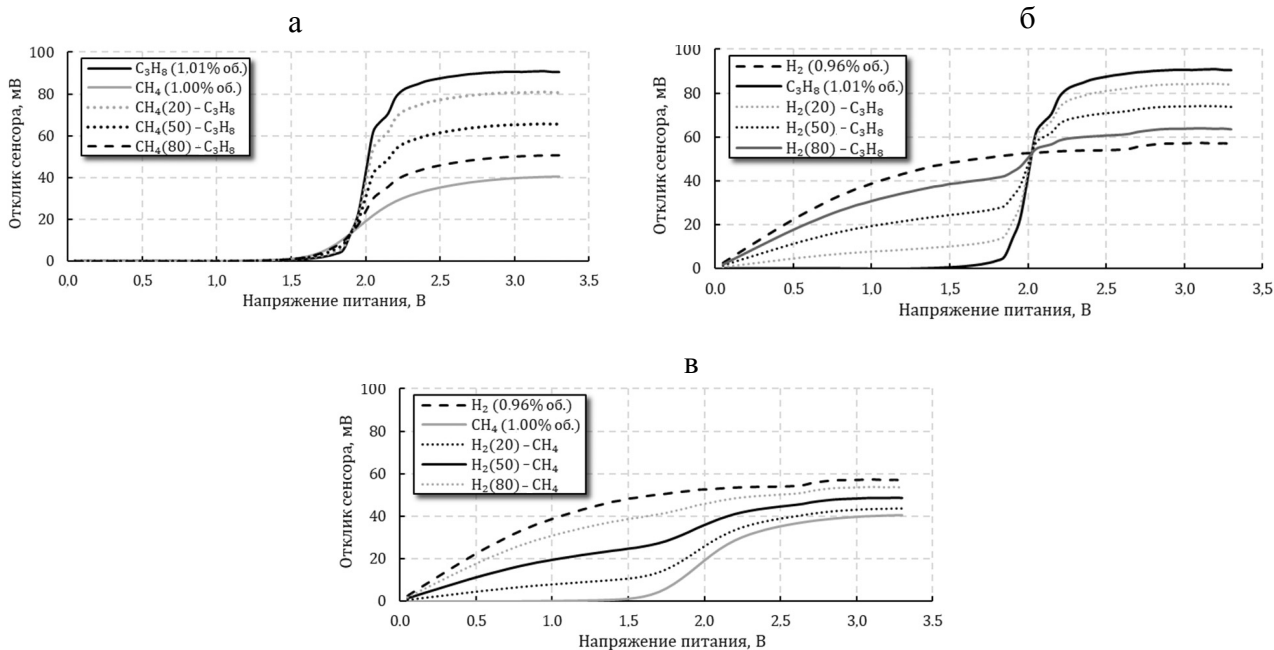


Рис. 13. Экспериментальные S-образные характеристики для двухкомпонентных смесей горючих газов. а — смесь метана и пропана, б — смесь водорода и пропана, в — смесь водорода и метана

РАЗРАБОТКА ПРОГРАММНО-АЛГОРИТМИЧЕСКОГО МЕТОДА

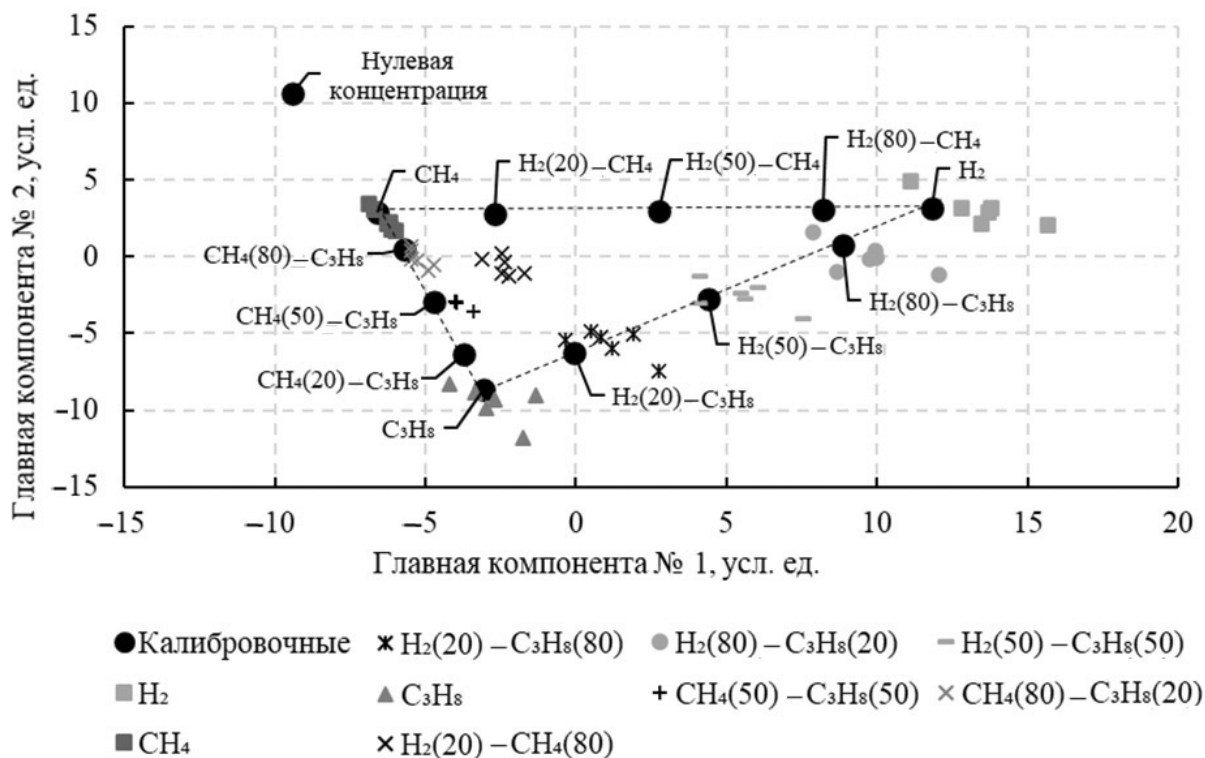


Рис. 14. Результаты обработки S-образных характеристик двухкомпонентных смесей, представленные на плоскости главных компонент.

Табл. 2. Матрица ошибок после применения классификатора

Общее число образцов 54		Спрогнозированный тип горючего газа								
		C_3H_8	CH_4	$CH_4(50) - C_3H_8(50)$	$CH_4(80) - C_3H_8(20)$	H_2	$H_2(20) - C_3H_8(80)$	$H_2(20) - CH_4(80)$	$H_2(50) - C_3H_8(50)$	$H_2(80) - C_3H_8(20)$
Фактический тип горючего газа	C_3H_8	6	0	0	0	0	0	0	0	0
	CH_4	0	5	0	1	0	0	0	0	0
	$CH_4(50) - C_3H_8(50)$	0	0	6	0	0	0	0	0	0
	$CH_4(80) - C_3H_8(20)$	0	0	0	6	0	0	0	0	0
	H_2	0	0	0	0	6	0	0	0	0
	$H_2(20) - C_3H_8(80)$	0	0	0	0	0	6	0	0	0
	$H_2(20) - CH_4(80)$	0	0	3	1	0	0	2	0	0
	$H_2(50) - C_3H_8(50)$	0	0	0	0	0	0	0	6	0
	$H_2(80) - C_3H_8(20)$	0	0	0	0	0	0	0	0	6

Средняя точность и полнота классификатора были рассчитаны по формулам (4) и (5) составили 94% и 91% соответственно.

Точность классификатора можно рассчитать по следующей известной формуле:

$$\text{Точность} = \frac{BP}{(BP + HP)}. \quad (4)$$

Полноту классификатора можно рассчитать по известной формуле:

$$\text{Чувствительность} = \frac{BP}{(BP + BN)}, \quad (5)$$

где BP — верно распознанный тип, HP — неверно распознанный тип, BN — верно нераспознанный тип.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработан метод определения типа и концентрации горючих газов в воздухе, основанный на измерении зависимостей отклика термokatалитического сенсора от температуры, обработке полученных экспериментальных характеристик на базе МГК с применением алгоритмов классификации. Показано, что разработанный метод позволяет выполнять экспресс-анализ дозрывоопасных концентраций смесей горючих газов и паров ЛВЖ в воздухе, в том числе и водорода. Важно отметить, что калибровка сенсора, в отличие от традиционных методов измерения, осуществляется по всей S-образной характеристике.

Проведены измерения S-образных характеристик термokatалитического сенсора в среде горючих газов: водорода (H_2), газообразных углеводородов (CH_4 , C_3H_8 , C_2H_4 , C_4H_{10}) и паров ЛВЖ (C_6H_{14}), а также в их смесях в диапазоне дозрывоопасных концентраций. В качестве исходных газов использовались поверочные газовые смеси, которые предназначены для метрологической поверки, калибровки и аттестации методик выполнения измерений.

Показано, что при обработке экспериментальных значений S-образных характеристик сенсора с помощью МГК полученные значения образовали собственные области локализации для каждого газа, что позволяет распознать тип горючего газа в воздухе, т.е. преодолеть основной недостаток термokatалитических сенсоров — отсутствие селективности при идентификации горючих газов, в том числе и в многокомпонентных смесях. При этом главные компоненты объясняют до 96% признаков, что говорит о небольшой потере информации.

Показано, что на плоскости главных компонент концентрационные зависимости отклика имеют линейный характер, они пропорциональны долям компонентов в смеси, что позволяет получить линейное уравнение для определения концентрации компонентов.

Показано, что применение классификатора для определения типа газа на основе данных, полученных с термokatалитических сенсоров в мультисенсорной системе, позволяет с точностью до 90% распознать тип газа или двухкомпонентную смесь.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Баранов А.М., Осипова Т.В. Современные тенденции в развитии сенсоров дозрывоопасных концентраций горючих газов и паров горючих жидкостей (краткий обзор) // Научное приборостроение. 2021. Т. 31, № 4. С. 3–29. URL: <http://iairas.ru/mag/2021/abst4.php#abst1>
2. Лагутин А. С., Васильев А.А. Твердотельные газовые сенсоры // Журнал аналитической химии, 2022, Т. 77, № 2. С. 100–116. DOI: 10.31857/S0044450222020098
3. Singh D., Dahiya M., Kumar R., Nanda C. Sensors and systems for air quality assessment monitoring and management: A review // Journal of environmental management. 2021. Vol. 289. Id. 112510. DOI: 10.1016/j.jenvman.2021.112510
4. Chen Y., Chen Z., Zhang T., et al. A two-stage gas mixture concentration detection method for electronic nose // Sensors and Actuators A: Physical. 2024. Vol. 377. Id. 115768. DOI: 10.1016/j.sna.2024.115768
5. Василяк Л.М., Ветчинин С.П., Печеркин В.Я., Яненко Ю.Б. Термоконтдуктометрический метод детектирования водорода в многокомпонентных газовых смесях // Прикладная физика. 2019. № 2. С. 60–66. URL: <https://applphys.orion-ir.ru/appl-19/19-2/PF-19-2-60.pdf>
6. Таймаров М.А., Ильин В.К., Чикляев Е.Г., Сунгатуллин Р.Г. Особенности применения метановодородной фракции в качестве топлива для котлов ТЭС // Известия высших учебных заведений. ПРОБЛЕМЫ ЭНЕРГЕТИКИ. 2019. Т. 21, № 3. С. 109–116. DOI: 10.30724/1998-9903-2019-21-3-109-116
7. Attallah O., Morsi I. An electronic nose for identifying multiple combustible/harmful gases and their concentration levels via artificial intelligence // Measurement. 2022. Vol. 199. Id. 111458. DOI: 10.1016/j.measurement.2022.111458
8. Мусатов В.Ю., Вавилов В.И., Петров Д.Ю., Степанов М.Ф., Сысоев В.В. О возможности использования датчиков газа и мультисенсорных газочувствительных систем в интеллектуальных мобильных роботах // Вестник СГТУ. 2020. № 4 (87). С. 47–65. URL: <https://elibrary.ru/item.asp?id=44688703>
9. Lvova L., Kirsanov D. Multisensor Systems for Analysis of Liquids and Gases: Trends and Developments // Frontiers in Chemistry. 2018. Vol. 6. DOI: 10.3389/fchem.2018.00591

РАЗРАБОТКА ПРОГРАММНО-АЛГОРИТМИЧЕСКОГО МЕТОДА

10. *Somov A., Baranov A., Spirjakin D., Passerone R.* Circuit design and power consumption analysis of wireless gas sensor nodes: one-sensor versus two-sensor approach // *IEEE Sensors Journal*. 2014. Vol. 14, no. 6. P. 2056–2063. DOI: 10.1109/JSEN.2014.2309001
11. *Brauns E., Morsbach E., Kunz S., Baeumer M., Lang W.* Temperature modulation of a catalytic gas sensor // *Sensors*. 2014. Vol. 14, no. 11. DOI: 10.3390/s141120372
12. *Ivanov I.I., Baranov A.M., Spirjakin D.N., Akbari S., Mironov S.M., Karami H., Gharehpetian G.B.* Expanding catalytic sensor capabilities to combustible gas mixtures monitoring // *Measurement*. 2022. Vol. 194. Id. 111103. DOI: 10.1016/j.measurement.2022.111103
13. *Spirjakin D., Baranov A., Akbari S., Phong C.T., Tuan N.N.* Novel method of temperature modulation for enhancing catalytic gas sensor selectivity // 2021 IEEE Sensors Applications Symposium (SAS). 2021. P. 1–5. DOI: 10.1109/SAS51076.2021.9530079
14. Производство термokatалитических сенсоров горючих газов. [Электронный ресурс] URL: <https://karpov-sensor.com/> (дата обращения 29.10.2024).
15. *Иванов И.И., Баранов А.М., Талипов В.А., Миронов С.М., Колесник И.В., Напольский К.С.* Разработка эффективных сенсоров обнаружения дозврывоопасных концентраций H_2 // *Научное приборостроение*. 2021. Т. 31, № 3. С. 25–36. URL: <http://iairas.ru/mag/2021/abst3.php#abst4>
16. *Иванов И.И., Баранов А.М., Лямин А.Н., Миронов С.М.* Исследование чувствительности и селективности термokatалитического сенсора водорода // *Научное приборостроение*. 2022. Т. 32, № 2. С. 42–54. URL: <http://iairas.ru/mag/2022/abst2.php#abst4>
17. *Малич В.О., Нестеров С.А.* Методы снижения размерности для задач анализа данных // *SAEC*. 2023. № 3. URL: <https://cyberleninka.ru/article/n/metody-snizheniya-razmernosti-dlya-zadach-analiza-dannyh> (дата обращения: 19.12.2024).
18. *Баймуратов И.Р.* Методы автоматизации машинного обучения. СПб.: Университет ИТМО, 2020. 40 с.
19. *Осипова Т.В., Иванов И.И., Баранов А.М.* Разработка методики обнаружения газовых смесей при помощи метода главных компонент // *Международная научно-практическая конференция "Форум молодых исследователей"*, Пенза. 2021. С. 33–38. URL: <https://naukaip.ru/wp-content/uploads/2021/09/%D0%9C%D0%9A-1183.pdf>
20. Метод скользящего окна. [Электронный ресурс] URL: <https://wcademy.ru/sliding-window-method/> (дата обращения 29.10.2024).
21. *Осипова Т.В., Баранов А.М., Иванов И.И.* Метод главных компонент как способ определения концентрации водорода в многокомпонентных смесях // *Научное приборостроение*. 2023. Т. 33, № 2. С. 24–34. URL: <http://iairas.ru/mag/2023/abst2.php#abst3>
22. *Osipova T., Baranov A., Ivanov I.* Processing Data from Catalytic Sensors for Recognition of Hydrogen in Mixtures of Combustible Gases // 12th Mediterranean conference on embedded computing (MECO-2023), Budva, Montenegro. 2023. P. 406–410. DOI: 10.1109/MECO58584.2023.10155082
23. *Талипов В.А., Баранов А.М., Иванов И.И., Янян Ц.* Исследование активности термokatалитических сенсоров водорода при отрицательных температурах окружающей среды // *Научное приборостроение*. 2023. Т. 33, № 1. С. 30–42. URL: <http://iairas.ru/mag/2023/abst1.php#abst3>

Московский авиационный институт (национальный исследовательский университет), Москва, Россия

Контакты: *Осипова Татьяна Владиславовна*,
t.osipova.95@mail.ru

Материал поступил в редакцию 21.11.2024

DEVELOPMENT OF A SOFTWARE-ALGORITHMIC METHOD FOR PROCESSING THE THERMOCATALYTIC SENSORS CHARACTERISTICS FOR THE IDENTIFICATION OF FLAMMABLE GASES IN AIR AND MULTICOMPONENT MIXTURES

T. V. Osipova, A. M. Baranov, I. I. Ivanov

Moscow Aviation Institute (National Research University), Moscow, Russia

Software-algorithmic method for processing the temperature characteristics of a catalytic sensor for recognizing the type and determining the concentration of flammable gases in multicomponent mixtures has been developed and its applicability has been evaluated. The scheme of the software-algorithmic method is presented, experimental studies of single-component, two-component and multicomponent mixtures consisting of hydrocarbons and hydrogen are carried out. The results showed that the method makes it possible to recognize the type of combustible gas and determine the concentration with an accuracy of up to 90%.

Keywords: catalytic sensor, selectivity, multicomponent mixtures, principal component analysis, determining concentration, hydrogen, data processing

REFERENCES

- Baranov A.M., Osipova T.V. [Recent trends in the development of sensors for pre-explosive concentrations of flammable gases and vapors of flammable liquids (review)]. *Nauchnoe Priborostroenie* [Scientific Instrumentation], 2021, vol. 31, no. 4, pp. 3–29. DOI: 10.18358/np-31-4-i329 (In Russ.).
- Lagutin A.S., Vasil'ev A.A. [Solid-state gas sensors]. *Zhurnal analiticheskoi khimii* [Journal of Analytical Chemistry], 2022, vol. 77, no. 2, pp. 100–116. DOI: 10.31857/S0044450222020098 (In Russ.).
- Singh D., Dahiya M., Kumar R., Nanda C. Sensors and systems for air quality assessment monitoring and management: A review. *Journal of environmental management*, 2021, vol. 289, Id. 112510. DOI: 10.1016/j.jenvman.2021.112510
- Chen Y., Chen Z., Zhang T., et al. A two-stage gas mixture concentration detection method for electronic nose. *Sensors and Actuators A: Physical*, 2024, vol. 377, Id. 115768. DOI: 10.1016/j.sna.2024.115768
- Vasilyak L.M., Vetchinin S.P., Pecherkin V.Ya., Yanenko Yu.B. [Thermoconductometric method of hydrogen detection in multicomponent gas mixtures]. *Prikladnaya fizika* [Applied physics], 2019, no. 2, pp. 60–66. URL: <https://applphys.orion-ir.ru/appl-19/19-2/PF-19-2-60.pdf> (In Russ.).
- Taymarov M.A., Ilyin V.K., Chiklyaev E.G., Sungatulin R.G. [Features of application of the methane-hydrogen fraction as fuel for thermal power plant boiler]. *Izvestiya vysshikh uchebnykh zavedenii. PROBLEMY ENERGETIKI* [Power engineering: research, equipment, technology], 2019, vol. 21, no. 3, pp. 109–116. DOI: 10.30724/1998-9903-2019-21-3-109-116 (In Russ.).
- Attallah O., Morsi I. An electronic nose for identifying multiple combustible/harmful gases and their concentration levels via artificial intelligence. *Measurement*, 2022, vol. 199, Id. 111458. DOI: 10.1016/j.measurement.2022.111458
- Musatov V.Yu., Vavilov V.I., Petrov D.Yu., Stepanov M.F., Sysoev V.V. [A possibility of using gas sensors and multisensor systems with gas sensitive sensors for intelligent mobile robots]. *Vestnik SGTU* [SSTU Bulletin], 2020, no. 4 (87), pp. 47–65. URL: <https://elibrary.ru/item.asp?id=44688703> (In Russ.).
- Lvova L., Kirsanov D. Multisensor Systems for Analysis of Liquids and Gases: Trends and Developments. *Frontiers in Chemistry*, 2018, vol. 6. DOI: 10.3389/fchem.2018.00591
- Somov A., Baranov A., Spirjakin D., Passerone R. Circuit design and power consumption analysis of wireless gas sensor nodes: one-sensor versus two-sensor approach. *IEEE Sensors Journal*, 2014, vol. 14, no. 6, pp. 2056–2063. DOI: 10.1109/JSEN.2014.2309001
- Brauns E., Morsbach E., Kunz S., Baeumer M., Lang W. Temperature modulation of a catalytic gas sensor. *Sensors*, 2014, vol. 14, no. 11, pp. 20372–20381. DOI: 10.3390/s141120372
- Ivanov I.I., Baranov A.M., Spirjakin D.N., Akbari S., Mironov S.M., Karami H., Gharehpetian G.B. Expanding catalytic sensor capabilities to combustible gas mixtures monitoring. *Measurement*, 2022, vol. 194, Id. 111103. DOI: 10.1016/j.measurement.2022.111103
- Spirjakin D., Baranov A., Akbari S., Phong C.T., Tuan N.N. Novel method of temperature modulation for enhancing catalytic gas sensor selectivity. *2021 IEEE Sensors Applications Symposium (SAS)*, 2021, pp. 1–5. DOI: 10.1109/SAS51076.2021.9530079
- Karpov. *Proizvodstvo termokataliticheskikh sensorov goruyuchikh gazov* [Production of thermocatalytic sensors for combustible gases]. URL: <https://karpov-sensor.com/> (accessed 29.10.2024). (In Russ.).
- Ivanov I.I., Baranov A.M., Talipov V.A., Mironov S.M., Kolesnik I.V., Napolskii K.S. [Development of effective

РАЗРАБОТКА ПРОГРАММНО-АЛГОРИТМИЧЕСКОГО МЕТОДА

- sensors for detecting pre-explosive H_2 concentrations]. *Nauchnoe Priborostroenie* [Scientific Instrumentation], 2021, vol. 31, no. 3, pp. 25–36. DOI: 10.18358/np-31-3-i2536 (In Russ.).
16. Ivanov I.I., Baranov A.M., Lyamin A.N., Mironov S.M. [Investigation of the sensitivity and selectivity of a thermocatalytic sensor of hydrogen]. *Nauchnoe Priborostroenie* [Scientific Instrumentation], 2022, vol. 32, no. 2, pp. 42–54. DOI: 10.18358/np-32-2-i4254 (In Russ.).
 17. Malich V.O., Nesterov S.A. [Dimensional reduction methods for data analysis]. *SAEC*, 2023, no. 3, pp. 437–443. URL: <https://cyberleninka.ru/article/n/metody-snizheniya-razmernosti-dlya-zadach-analiza-dannyh> (accessed 19.12.2024). (In Russ.).
 18. Baimuratov I.R. *Metody avtomatizatsii mashinnogo obucheniya* [Methods for automating machine learning]. Saint Petersburg: ITMO Publ., 2020. 40 p. (In Russ.).
 19. Osipova T.V., Ivanov I.I., Baranov A.M. [Development of a methodology for gas mixture detection using the principal component method]. *Mezhdunarodnaya nauchno-prakticheskaya konferentsiya "Forum molodykh issledovatelei"* [Proc. Int. Conf. "Young Researchers Forum"]. Penza, 2021, pp. 33–38. (In Russ.). URL: <https://naukaip.ru/wp-content/uploads/2021/09/%D0%9C%D0%9A-1183.pdf>
 20. Wcademy. *Metod skol'zyashchego okna* [Sliding window method]. URL: <https://wcademy.ru/sliding-window-method/> (accessed 29.10.2024). (In Russ.).
 21. Osipova T.V., Baranov A.M., Ivanov I.I. [The principal component analysis as a method for determining the hydrogen concentration in multicomponent mixtures]. *Nauchnoe Priborostroenie* [Scientific Instrumentation], 2023, vol. 33, no. 2, pp. 24–34. (In Russ.). URL: <http://iairas.ru/mag/2023/abst2.php#abst3>
 22. Osipova T., Baranov A., Ivanov I. Processing Data from Catalytic Sensors for Recognition of Hydrogen in Mixtures of Combustible Gases. *12th Mediterranean conference on embedded computing (MECO-2023)*. Budva, Montenegro, 2023, pp. 406–410. DOI: 10.1109/MECO58584.2023.10155082
 23. Talipov V.A., Baranov A.M., Ivanov I.I., Yangyang Ju. [Study of the activity of thermocatalytic hydrogen sensors at negative ambient temperatures]. *Nauchnoe Priborostroenie* [Scientific Instrumentation], 2023, vol. 33, no. 1, pp. 30–42. URL: <http://iairas.ru/mag/2023/abst1.php#abst3> (In Russ.).

Contacts: Osipova Tat'yana Vladislavovna,
t.osipova.95@mail.ru

Article received by the editorial office on 21.11.2024

INTRODUCTION

The number of industrial enterprises producing or using flammable gases or highly flammable liquids (HFL) is growing in the world. Leakage of such substances may lead to dangerous consequences. Sensors (semiconductor, thermocatalytic, optical, etc.) are a necessary tool for monitoring leaks and measuring the concentration of flammable gases in the air [1–3]. In the range of pre-explosive concentrations, thermocatalytic sensors are most widely used for monitoring flammable gases, as these sensors have a short response time, the required measurement accuracy, and low cost.

In many cases, several types of gas with different lower flammability limit (LFL) may be present in the air, which makes it impossible to determine the LFL of a mixture without determining the composition of the multicomponent mixture. Recognition of gases in mixtures is one of the most difficult tasks in gas analysis [4]. This is due to the fact that most gas sensors, including thermocatalytic sensors, have low selectivity to flammable gases. This limits the areas of their practical use.

Therefore, increasing the selectivity of thermocatalytic sensors in the tasks of monitoring the air environment and timely prevention of the occurrence of explosive concentrations of flammable gases, HFL and their multicomponent mixtures is one of the important and urgent tasks.

Hydrogen occupies a special place among flammable gases. This is due to the fact that it is one of the most explosive gases, it is extremely volatile and has the widest range of explosive concentrations (from 4% vol. to 75% vol.) [5]. It is important to note that hydrogen is considered a promising type of fuel (or fuel component, in particular in mixtures with hydrocarbons) [6], therefore, the development of effective hydrogen sensors and methods for its monitoring in the air is a pressing task.

The selectivity of thermocatalytic sensors to combustible gases can be increased by improving the sensor itself (for example, by using filters or selecting catalysts), using advanced measurement techniques that enlarge the volume of data from sensors, and developing mathematical methods and approaches to processing the data received from the sensor. The most promising approach is one that combines advanced measurement techniques and mathematical data processing.

Due to the rapid increase in the computing power of digital electronics, as well as the increasing role of artificial intelligence in technological progress, the importance of using methods of mathematical data processing and machine learning, as well as analyzing large-scale data, is increasing. The use of such methods will speed up the process of determining the

type and concentration of the analyzed gas in the air mixture, eliminate the human factor in decision-making, and also increase the selectivity of measurements. A new trend in the development of today is the integration of methods of machine data processing and artificial intelligence in gas analysis [7]. These technologies expand the possibilities of forecasting and help to identify patterns in extensive data sets related to the behavior of gas,

When using machine processing methods, an increased volume of data is required from the object under study. On the one hand, an increase in the volume of data is possible, for example, by enlarging the number of sensors and creating matrices of sensors, i.e., by technically complicating gas analysis devices [8, 9]. On the other hand, the expanded volume of data that can be obtained from thermocatalytic sensors during measurements is not currently used in air analysis for the presence of flammable gases and HFL. In particular, in traditional methods, measurements are carried out either at the same value of the operating temperature or at several temperature values [10]. It is important to note that the volume of data from a thermocatalytic sensor can be increased by measuring its response over a wide temperature range [11]. Such measurements make it possible to develop new methods for measuring flammable gas mixtures [12], including those using machine learning to recognize flammable gases and vapors of flammable liquids [13]. Temperature scanning methods are widely used for metal oxide gas sensors [1]. However, the approach to processing the temperature dependences of the response of thermocatalytic sensors in multicomponent mixtures has not yet been described in the scientific literature.

The aim of the work is to develop a software and algorithmic method for recognizing the type and determining the concentration of combustible gases in multicomponent mixtures based on processing the temperature dependences of the response of a thermocatalytic sensor with subsequent mathematical processing of the experimental dependences and the use of algorithms for classifying the obtained data for decision-making.

EXPERIMENTAL TECHNIQUE

The ДТК-4 sensors [14] were produced by the company NTC IGD LLC and used as thermocatalytic units. The objective of the work was to develop a method that would allow one to recognize the type and concentration of flammable gases using a thermocatalytic sensor due to modifying the measurement procedure and applying advanced mathematical algorithms to analyze the obtained data. The manufacturing technology and design of the sensor remained unchanged.

Thus, the goal was to expand the scope of application of commercial sensors to the tasks of selective measurement of flammable gases in multicomponent mixtures and, in particular, the determination of hydrogen in the composition of multicomponent hydrocarbon mixtures in the air in the range of pre-explosive concentrations. The sensor manufacturing technology is described in more detail in [15].

A bridge circuit (Fig. 1) was used as a measuring scheme, where the working and comparative sensitive elements were located on one arm, and resistors (R1, R2) with a nominal value of 10 kΩ were on the second [16].

Fig. 1. Measuring bridge circuit for temperature scanning mode

The circuit of the measuring setup is described in detail in [15]. The measuring setup allows supply voltage to be applied in the range from 0 to 3.3 V with a step of 0.05 V and to record the response from several thermocatalytic sensors simultaneously. The measurement results are the dependences of the sensor response on temperature (S-shaped characteristics), containing information on the features of catalytic combustion of combustible gases.

The work examined a set of 6 HFL gases and vapors. The choice of gases was due to the following reasons: methane, propane, butane, and ethylene are widely used in everyday life and in industry; hexane is a flammable liquid; hydrogen is explosive and is also a promising fuel in the development of hydrogen energy. The source gases were test gas mixtures (TGM) with a known concentration: hydrogen (0.96, 2.06% vol.), methane (0.47, 2.50, 1.00% vol.), propane (1.01% vol.), butane (0.67% vol.), hexane (0.47% vol.) and ethylene (1.07% vol.).

The proposed method is based on the combined use of several methods: calibration based on the entire S-shaped dependence, the sliding window method, principal component analysis (PCA) and the use of a classifier. The initial data were processed using Python 3.11 and NumPy v1.20.3, pandas 1.2.4, sklearn 0.0 libraries. The PCA was used to analyze the obtained experimental dependences (gas samples). In this case, the explanatory features are 66 response values at various supply voltages.

DEVELOPMENT OF A SOFTWARE-ALGORITHMIC METHOD

The traditional measurement method consists of measuring the response voltage in the saturation region (Fig. 2, a). Concentration measurements are carried out at the same point of this region. The catalytic

thermo-sensor must be calibrated for each combustible gas. The response in air is preliminarily measured. Next, the sensor is calibrated at known gas concentrations, and a calibration dependence is constructed, being linear in the range up to LFL. Next, measuring the sensor response voltage, we found the concentration using the calibration dependence. The measurement result is a single value. Obviously, this method is inappropriate when the type of gas in the air is unknown, as well as for multi-component mixtures of flammable gases.

From Fig. 2, a, it is evident that the response curve shapes for combustible gases differ. The sensor response curve over a wide temperature range is specific for each gas and each concentration. Therefore, it was suggested that it is possible to identify the gas type by mathematically processing the experimental response curves.

Fig. 2. (a) — Dependences of the sensor response on the applied voltage in the environment of different TGM; (б) — the result of processing S-shaped characteristics using the principal component analysis

The sensor response curve on temperature contains a large number of experimental values. Big data often has properties that we can use in processing, such as correlation between values in high-dimensional data. Dimensionality reduction uses the structure of the original data and its correlation and allows us to work with a more compact representation, ideally without losing information about the processes occurring, contained in the original dependence (implicitly in most cases).

There are methods for reducing dimensionality [17]. In this work, the principal component analysis [18] was used, which allows one to move to a new coordinate space of principal components.

After PCA application to the S-shaped dependences, two principal components were obtained. The method for processing S-shaped dependences of combustible gases we described in [19]. For each selected component, the explained variance (1) is calculated, which shows what contribution each obtained component makes to the total variance.

$$S = \frac{\sum_{i=1}^d \lambda_i}{\sum_{i=1}^m \lambda_i}, \quad (1)$$

where S is the explained variance of the selected number of components; λ_i is the variance of the original data along the i -th principal component; d is the selected number of principal components; m is the total number of principal components.

Fig. 2, 6, shows the result of processing the S-shaped characteristics using the PCA for three thermocatalytic sensors, as well as their averaged values (indicated by black dots). It is evident that after PCA processing, the S-shaped response dependences are transformed into points with different values of the principal components. The localization regions are distributed from left to right, i.e., along the first principal component, which is associated with an increase in the maximum value of the sensor response to different gases. It is also evident from the graph that hydrogen has the largest spread between points, which is associated with a spread in the values of the original data array between the three sensors (approximately ± 10 mV). Since the localization regions do not intersect, it is possible to unambiguously recognize different types of combustible gases and, as will be shown below, determine their concentration.

After processing the S-shaped dependences, it was found that the first principal component accounts for 87.3%, and the second for 8.4%. The calculated principal components explained up to 96% of the original data.

Thus, it can be concluded that the proposed approach to processing the experimental S-shaped characteristics of catalytic thermo-sensors allows for the recognition of flammable gases, thereby transforming a sensor that is non-selective to flammable gases into a selective one.

Fig. 3 shows a diagram of the proposed software and algorithmic method.

Fig. 3. Scheme of software-algorithmic method of processing S-shaped characteristics of thermocatalytic sensors

The proposed software and algorithmic approach to recognizing the type and determining the concentration of flammable gases in the air includes the following main stages:

- measuring the S-shaped dependences of the response of a catalytic thermo-sensor to a known gas concentration and plotting a calibration plane of the principal components (Fig. 2, a);
- measuring the S-shaped dependences of the response of a catalytic thermo-sensor to an unknown gas concentration and PCA processing the obtained dependences;
- assessment of the reliability of the results obtained by machine learning-based classification algorithms and decision making.

It is important to note that the change in the measurement and recording technique of the bridge circuit response (the transition from measurement at a constant value of the operating voltage to measurements

in the range of 0–3.3 V), as well as the transition from a stationary to a periodic measurement mode, led to the need to change the calibration principle of thermocatalytic sensors.

At the calibration stage, first of all, the composition of combustible gases is selected to be analyzed at the monitoring facility; the gases are then subjected to measurements of S-shaped characteristics and sensor calibration.

As a result, calibration points are obtained on the plane of the principal components. It is important to note that, unlike the traditional method, in the developed method, calibration is performed not by one response value but by the entire measured temperature dependence. In this case, parameters such as weight characteristics, average, and standard deviation are saved, and an approximating function is calculated.

From Fig. 2, a, it follows that catalytic combustion of different gases begins at different heating voltages, i.e., at different temperatures. Obviously, this requires the introduction of an additional criterion for selecting the initial data, which would exclude the voltage values at which there is no combustion yet from processing, and the obtained values are the noise of the measuring system. The criterion for cutting off these values is the minimum value of the sensor supply voltage, at which the sensor response increases sharply, i.e., the stage of combustion of the combustible gas on the sensor surface begins. This point can be determined using the sliding window method, which is a data transformation method that allows a new dependence to be formed from the elements of a certain dependence [20].

At the measurement stage, measurements of S-shaped characteristics are carried out in the environment of the same gases that were used in the calibration, but with an unknown concentration. The resulting experimental dependences are processed using the principal component analysis, taking into account the previously obtained parameters. The results obtained are plotted on the principal component calibration plane.

The decision depends on three conditions:

- if the point of an unknown combustible gas falls within the vicinity of the calibration point, then a classifier is applied, and the point is assigned the gas type and its concentration;
- if the point of an unknown combustible gas falls within the vicinity of the approximating function of two calibration points, then the concentration is calculated using the derived formula;
- if the point of an unknown combustible gas was not classified, then its characteristics are restored, and the gas type is analyzed.

If the gas type and its concentration are recognized, then the sensor is retrained by adding a new set of characteristics to the original set.

Next, the capabilities of the developed software and algorithmic method for determining the concentration of gases in one-, two- and multi-component mixtures were investigated.

EXPERIMENTAL RESULTS

Determination of the concentration of combustible gases on the plane of the principal components

To construct concentration dependencies on the plane of the principal components, S-shaped characteristics were modeled for two concentrations of hydrogen 0.75% vol. and 0.25% vol. and methane 0.3% vol. and 0.25% vol.

As shown earlier, a change in the concentration of combustible gases leads to a proportional change in the S-shaped characteristic [15]. Therefore, for these calculations, the experimental S-shaped dependencies were obtained by dividing the TGM concentration in order to obtain the dependences for the hydrogen and methane concentrations indicated above. The S-shaped characteristics obtained in this way were processed using the developed software and algorithmic method. The processing results are shown in Fig. 4.

Fig. 4. The result of processing the theoretical concentration dependences for methane and hydrogen on the plane of the principal components

It is evident that the dependencies are linear and do not intersect relative to each other. Thus, it is possible to derive an approximating function, with the help of which it is possible to calculate the value of the unknown concentration on the plane of the principal components. In fact, the obtained linear dependencies are calibration dependencies.

Analyzing the obtained result, it was established that the concentration is directly proportional to the distance between the values of the principal components. Thus, for the desired concentration, the following formula can be obtained:

$$n = n_{\text{TGC}} \cdot \left(1 - \frac{D_H}{D}\right), \quad (2)$$

where n_{TGC} is the TGM concentration of the sought combustible gas, vol.%;

$$D = \sqrt{(x_2 - x_1)^2 + (y_2 - y_1)^2},$$

$$D_H = \sqrt{D_{H1}^2 - h^2};$$

x, y are the corresponding values of the principal components; D_{H1} is the distance between the

coordinate of the unknown combustible gas and the TGM. (See Fig. 5).

Fig. 5. Calculation of the concentration of combustible gas using formula (2) on the plane of principal components. Values 1 and 2 are the zero concentration and the initial TGM of the combustible gas or the initial TGM of two combustible gases in a two-component mixture

Determination of the concentration of combustible gases in a two-component mixture

Determination of the concentration of components in a hydrogen-hydrocarbon mixture

An experimental study of the possibility of determining the concentration of hydrogen in multi-component mixtures [21, 22] by the traditional method has already been carried out earlier. This task is not trivial, since hydrogen combustion on the catalyst of the thermocatalytic sensor begins practically at room temperatures [23].

In accordance with the method proposed in the work, the dependences of the response of the thermocatalytic sensors on the applied heating voltage were measured. To improve the accuracy of the measurement results, 8 thermocatalytic sensors were used. Propane TGM was taken as the initial hydrocarbon. Changes in the concentration ratio between propane and hydrogen in the hydrogen-hydrocarbon mixture were performed by regulating the flow using rotameters (Tab. 1).

Tab. 1. Measured concentrations of the components of the mixtures at a voltage of 0.5 V and 1.0 V

The obtained S-shaped characteristics averaged over 8 sensors are shown in Fig. 6. Analyzing the obtained dependences, we can conclude that in the supply voltage range from 0.05 V to 1.7 V, the sensor has a response that is caused by the combustion process of exclusively hydrogen. Therefore, at these voltage values, it is possible to measure the hydrogen concentration in the mixture. It should be noted that the dependences for multicomponent mixtures have a smaller response compared to the response for pure hydrogen. This is due to the fact that diluted combustible gases were used to prepare the mixture, as a result of which the concentrations of the original components decreased. The measured concentrations at voltages of 0.5 V and 1.0 V of the mixture components are summarized in Tab. 1.

Fig. 6. S-shaped characteristics for two-component mixtures (propane - hydrogen)

The obtained characteristics were processed by the developed method, the result of which is shown in Fig. 7. It is evident that the values of the main components have a linear dependence and are arranged in order of decreasing hydrogen concentration. This forms its own scale of concentration distribution. It can be assumed that the concentration is directly proportional to the distance between the values of the main components for propane and hydrogen. Therefore, formula (2) can be used to calculate the concentrations of propane and hydrogen.

Fig. 7. The result of processing for hydrogen, propane, and their mixtures on the plane of the main components

The obtained values of hydrogen concentration, as well as the values experimentally measured by the traditional method at voltages of 0.5 V and 1.0 V, are combined into a single diagram, which is presented in Fig. 8.

Fig. 8. Distribution diagram of measured and calculated hydrogen concentration values for each mixture

The relative error of the values calculated by the proposed method is no more than 5% of the traditional method.

Similarly, the obtained concentration of propane for the same mixtures, calculated using formula (2), is shown in Fig. 9.

Fig. 9. Distribution diagram of measured and calculated propane concentration values for each mixture

The relative error of the values calculated by the proposed method is no more than 10% of the traditional method.

Determination of the concentration of components in hydrocarbon mixtures

Although hydrogen and hydrocarbons are difficult to recognize and determine in mixtures, this task is relatively simple for thermocatalytic analysis due to the selection of the optimal measurement temperature

[15]. A much more complex task is the identification of two hydrocarbons with similar properties when they are simultaneously present in the air. Therefore, in the work, the possibility of determining the concentrations of methane and propane in their mixtures by the proposed method was investigated. Methane TGM with a concentration of 1% vol. and propane TGM with a concentration of 1.01% vol. were used as source gases. The change in the concentration of propane and methane in the mixtures was regulated by measuring the TGM flows. Three thermocatalytic sensors were used for the measurements.

The averaged experimental S-shaped characteristics are shown in Fig. 10, a. It is evident from it that the sensor response increases as the concentration of propane in the mixture increases.

The results of processing the measured characteristics by the proposed method are shown in Fig. 10, б. It is evident that there is a linear concentration dependence, on the basis of which the concentration of methane and propane in the mixture can be determined using formula (2).

Fig. 10. Averaged experimental S-shaped characteristics of hydrocarbon mixtures (a) and the results of their processing, plotted on the plane of the principal components (б)

Thus, it is observed that for a single sensor, the values of the principal components depend linearly and form their own concentration distribution scale.

It is worth noting that the location of points on the coordinate plane of the principal components depends on the initial set of combustible gases. The PCA deals with the average and standard deviations of the initial data, a correlation matrix, the calculation results of which depend on the initial data.

The obtained results of calculating the concentration of combustible gas in accordance with the proposed formula are shown in Fig. 11. The concentration values obtained by the traditional method in the saturation voltage range of S-shaped characteristics (at 2.5 and 3.0 V) are also indicated here.

Fig. 11. Distribution diagram of measured and calculated concentration values for each mixture:
a — methane concentration, б — propane concentration

The relative error of the values calculated by the proposed method is no more than 10% of the traditional method.

Determining the concentration of components in multicomponent mixtures

In this study, we limited ourselves to determining the concentration of hydrogen in a mixture with propane and methane. Fig. 12, a, shows the S-shaped characteristics for the hydrogen, propane, and methane TGM, as well as the characteristic for a three-component mixture in the proportion of gases H_2 (32) – C_3H_8 (32) – CH_4 (36). The result of processing the characteristics is shown in Fig. 12, б.

Fig. 12. Experimental S-shaped characteristics for the TGM of hydrogen, propane, methane, and their mixture (a) and the results of processing, plotted on the plane of the main components (б)

As can be seen from the figure on the plane of the main components, the initial point for the three-component mixture is located inside the "triangle" consisting of points of the original hydrocarbons. The hydrogen concentration can be found through the projection of the obtained point of the mixture on one of the sides of the "triangle". The relative error in determining the calculated hydrogen concentration from that traditionally obtained is no more than 10% at a voltage of 1 V.

Thus, the developed method allows recognizing hydrogen and calculating its concentration; however, from the point of view of determining the concentration of methane and propane, additional research and further improvements are required.

Evaluation of the efficiency of using classifiers in identifying gases and gas mixtures

As an example, the work assesses the accuracy of recognizing the concentration of hydrogen in a multicomponent mixture of combustible gases. For this study, several data sets were formed, consisting of dependences for hydrogen, propane, and methane, as well as for mixtures including them. Based on the obtained experimental dependences, the sensor response values for two-component mixtures consisting of hydrogen, propane, and methane in pairs in the proportions of 20%, 50% and 80% were formed (Fig. 13).

Fig. 13. Experimental S-shaped characteristics for two-component mixtures of combustible gases. a — mixture of methane and propane, б — mixture of hydrogen and propane, в — mixture of hydrogen and methane

Fig. 14 shows the result of processing the S-shaped characteristics by the proposed method. It is evident that the values of the main components formed a li-

near dependence and were arranged in order of increasing hydrogen concentration in the mixture, also forming a distribution scale separately for each two-component mixture. Six measurements were carried out for 9 mixtures; the total number of measurements was 54.

Fig. 14. Results of processing S-shaped characteristics of two-component mixtures, presented on the plane of the principal components

Tab. 2 shows the error matrix of the nearest neighbor classifier. As can be seen from Tab. 2, almost all experimental samples of combustible gases were predicted correctly. This means that the predicted gas type coincides with the actual gas type. These results are highlighted in gray (diagonal in Tab. 2). At the same time, one result for CH_4 TGM and four (3+1) for the two-component mixture of $H_2(20) - CH_4(80)$ TGM were predicted incorrectly. In general, the share of correctly predicted gas types and mixtures relative to the total number of samples was more than 90%. Calculations were performed using formula (3).

The share of correctly predicted combustible gas types is calculated using the formula:

$$\text{Share} = \frac{BP}{\text{All samples}}. \quad (3)$$

The average accuracy and completeness of the classifier were calculated using formulas 4 and 5 and were 94% and 91%, respectively.

The accuracy of the classifier can be calculated using the following well-known formula:

$$\text{Accuracy} = \frac{BP}{(BP + HP)}. \quad (4)$$

The completeness of the classifier can be calculated using the well-known formula:

$$\text{Sensitivity} = \frac{BP}{(BP + BH)}, \quad (5)$$

where BP is the correctly recognized type, HP is the incorrectly recognized type, and BH is the correctly unrecognized type.

Tab. 2. Error matrix after applying the classifier

CONCLUSION

A method for determining the type and concentration of flammable gases in the air has been developed, based on measuring the dependences of the response of a thermocatalytic sensor on temperature, processing the obtained experimental characteristics based on the PCA using classification algorithms. It has been shown that the developed method allows for express analysis of pre-explosive concentrations of mixtures of flammable gases and vapors of flammable liquids in the air, including hydrogen. It is important to note that the sensor calibration, unlike traditional measurement methods, is carried out along the entire S-shaped characteristic.

Measurements of S-shaped characteristics of a thermocatalytic sensor in a medium of combustible gases were carried out: hydrogen (H_2), gaseous hydrocarbons (CH_4 , C_3H_8 , C_2H_4 , C_4H_{10}) and flammable liquid vapors (C_6H_{14}), as well as in their mixtures in the range of pre-explosive concentrations. As initial gases, we used verification gas mixtures, which are intended for metrological verification, calibration, and certification of measurement methods.

It was shown that when processing the experimental values of the S-shaped characteristics of the sensor using the MHC, the obtained values formed their own localization areas for each gas, which makes it possible to recognize the type of combustible gas in the air, i.e., to overcome the main disadvantage of thermocatalytic sensors — the lack of selectivity in the identification of combustible gases, including in multicomponent mixtures. The main components explain up to 96% of the features, which indicates a small loss of information.

It is shown that on the plane of the main components, the concentration dependences of the response are linear; they are proportional to the shares of the components in the mixture, which allows us to obtain a linear equation for determining the concentration of the components.

It is shown that the use of a classifier for determining the type of gas based on data obtained from thermocatalytic sensors in a multisensor system allows us to recognize the type of gas or a two-component mixture with an accuracy of up to 90%.