

УДК 621.378:551.508

В. И. Козинцев, Г. Иден, М. Л. Белов,
О. А. Смирнова, В. А. Городничев,
Л. Н. Еременко, Ю. В. Федотов

ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОНЦЕНТРАЦИЙ ГАЗОВ В СЛОЖНЫХ МНОГОКОМПОНЕНТНЫХ СМЕСЯХ МЕТОДОМ БАЙЕСОВСКИХ ОЦЕНОК

Методом байесовских оценок решения системы уравнений лазерного газоанализа определена концентрация газов сложных многокомпонентных смесей. Показано, что такой метод позволяет определять концентрации газов, когда компоненты газовой смеси имеют гладкий спектр поглощения без ярко выраженных пиков поглощения или концентрации компонентов смеси отличаются на несколько порядков, тогда как методы регуляризации Тихонова и поиска квазирешений дают погрешности в сотни и тысячи процентов.

E-mail: nukrlm@bmstu.ru

Ключевые слова: многокомпонентные смеси, лазерный газоанализ, байесовские оценки.

Наиболее перспективными для оперативного дистанционного и локального газоанализа являются лазерные методы [1], из которых наиболее универсальными и широко используемыми являются абсорбционный и оптико-акустический.

Если качественный состав газовой смеси известен, то концентрации компонентов смеси измеряются с использованием перестраиваемого по длине волны источника лазерного излучения путем регистрации поглощения излучения анализируемой газовой смесью для определенного набора спектральных каналов измерения. Важным условием применимости такого метода является аддитивность коэффициентов поглощения (в используемых спектральных каналах измерения) отдельных компонентов анализируемой газовой смеси.

Для определенности будем считать, что анализируемая газовая смесь содержит K газовых компонентов и измерения проводятся на M длинах волн, а ширина линий генерации лазера много меньше ширины линий поглощения анализируемых газов. Тогда задача нахождения концентраций газов по результатам многоспектральных лазерных измерений, например локальных лазерных (оптико-акустических или абсорбционных) или лидарных измерений, сводится к решению системы линейных алгебраических уравнений лазерного газоанализа [2, 3].

В матричной форме система уравнений лазерного газоанализа имеет вид

$$\mathbf{W} \cdot \vec{x} = \vec{k}_a + \mathbf{K} \cdot \vec{n} = \vec{y}, \quad (1)$$

где \mathbf{W} — матрица системы (1) размера $M \times M$; \vec{x} — M -мерный искомый вектор (K компонентов этого вектора соответствуют концентрациям газов); \vec{k}_a — M -мерный вектор коэффициентов неселективного поглощения; \mathbf{K} — матрица коэффициентов поглощения компонентов газовой смеси размером $M \times K$; \vec{n} — K -мерный вектор концентраций газов; \vec{y} — M -мерный вектор измеряемых сигналов (показателей поглощения исследуемой смеси).

Коэффициенты неселективного поглощения очень слабо зависят от длины волны. При этом условии выражение (1) преобразуется к следующему матричному уравнению [3]:

$$\Delta \mathbf{K} \cdot \vec{n} = \Delta \vec{y}, \quad (2)$$

где $\Delta \vec{y}$ — K -мерный вектор с разностями сигналов $\Delta y_i = \Delta y(\lambda_i) = y(\lambda_{2i-1}) - y(\lambda_{2i})$; $\Delta \mathbf{K}$ — матрица размера $K \times K$ с разностями коэффициентов поглощения $\Delta K_{ji} = \Delta K_j(\lambda_i) = K_j(\lambda_{2i-1}) - K_j(\lambda_{2i})$.

В идеальных условиях (в случае отсутствия шума измерения) точные значения концентраций компонентов газовой смеси (или газовых загрязнителей атмосферного воздуха) можно найти непосредственно из решения системы линейных алгебраических уравнений лазерного газоанализа (2). Однако при регистрации результатов реальных измерений правая часть уравнения (2) всегда известна со случайной ошибкой, обусловленной погрешностями измерения, шумами аппаратуры и т.п.

Таким образом, в уравнении (2) вместо $\Delta \vec{y}$ имеем

$$\Delta \vec{y} = \Delta \vec{y} + \vec{\xi}, \quad (3)$$

где $\vec{\xi}$ — K -мерный вектор шума (погрешностей измерения $\Delta \vec{y}$).

В этих условиях попытки непосредственно обратить уравнение (2) приводят к тому, что найденный обратный оператор может быть неустойчив, т.е. малые вариации данных измерений могут приводить к большим вариациям искомым величин. Такая ситуация характерна для многокомпонентных смесей (с числом компонентов обычно более пяти, шести). Выход из этого положения заключается в использовании (при определении концентраций газовых компонентов по данным многоспектрального измерений) специальных алгоритмов обработки, основанных на методах решения некорректных математических задач [4, 5].

В настоящее время для определения концентраций газов в многокомпонентных смесях по данным многоспектрального измерений

обычно используют метод поиска квази решений или метод регуляризации Тихонова [2, 3, 6]. Однако существующие методы многокомпонентного газоанализа практически не позволяют определить концентрацию газового компонента смеси, имеющего для выбранных спектральных каналов измерения достаточно гладкий спектр поглощения без ярко выраженных максимумов. Кроме того, существующие методы дают очень большие погрешности (многие десятки и даже сотни и тысячи процентов), когда концентрации компонентов газовой смеси различаются на несколько порядков (что может быть во многих практических задачах).

Рассмотрим перспективный для задач газоанализа (и свободный от указанных недостатков) метод, основанный на построении байесовской оценки решения системы уравнений лазерного газоанализа.

Построение байесовской оценки K -мерного вектора концентраций газов \vec{n} для уравнения лазерного газоанализа (2) многокомпонентной газовой смеси будем проводить при следующих предположениях:

1. Вектор шума измерения $\vec{\xi}$ подчиняется нормальному распределению, некоррелирован с измеряемым сигналом (вектором $\Delta\vec{y}$ матричного уравнения (2) лазерного газоанализа) и имеет нулевое среднее значение и корреляционную матрицу V_{ξ} .

2. Априорное распределение искомого вектора концентраций газов \vec{n} также является нормальным с некоторым средним значением \vec{n}_0 и корреляционной матрицей N_0 .

3. Корреляционные матрицы V_{ξ} и N_0 обратимы (существуют матрицы V_{ξ}^{-1} и N_0^{-1}).

Оценку решения уравнения (2) будем определять из условия максимума апостериорной плотности вероятности $p(\vec{n} | \Delta\vec{y})$.

При сделанных предположениях показано [4], что апостериорное распределение $p(\vec{n} | \Delta\vec{y})$ является нормальным и байесовская оценка \vec{n}_B вектора \vec{n} совпадает с оценкой, определяемой из максимума апостериорной плотности вероятности.

Тогда для задачи лазерного газоанализа (при использовании матричного уравнения (2)) байесовская оценка \vec{n}_B вектора концентраций газов \vec{n} определяется следующим уравнением:

$$(N_0^{-1} + \Delta K^T V_{\xi}^{-1} \Delta K) \vec{n}_B = \Delta K^T V_{\xi}^{-1} \Delta\vec{y} + N_0^{-1} \vec{n}_0, \quad (4)$$

где $\Delta\vec{y}$ — вектор данных измерений (K -мерный вектор с разностями приведенных измеренных лазерных сигналов).

Здесь верхний индекс “ T ” означает транспонирование матрицы, верхний индекс “ -1 ” — обратную матрицу.

Матрица системы уравнений (4) размера $K \times K$ положительно определена и для любого вектора $\Delta\vec{y}$ существует единственная байесовская оценка \vec{n}_B [4].

Отметим, что предположения о нормальности распределения векторов шума измерения $\vec{\xi}$ и концентраций газов \vec{n} не являются необходимыми и при не выполнении их оценка, минимизирующая среднеквадратическую ошибку, также определяется из уравнения (4) [4].

Байесовская оценка является несмещенной, эффективной и устойчивой (при уменьшении дисперсии шумов сходится к точному решению уравнения (2) лазерного газоанализа).

Устойчивость полученного методом байесовской оценки решения достигается сужением класса возможных решений, которое основывается на вводимой (в решение) априорной информации об искомом решении — задается априорное нормальное распределение искомого решения (вектора концентраций газовых компонентов атмосферного воздуха или газовой смеси) и его первые два момента (среднее значение и корреляционная матрица). Такая априорная информация может быть вполне доступна во многих задачах, например, при рутинном газоанализе.

Для проверки работоспособности метода байесовских оценок в задаче многокомпонентного газоанализа сложных смесей проводилось математическое моделирование.

Для определения концентраций газов в многокомпонентных смесях математическое моделирование проводилось по замкнутой схеме:

а) по заданным значениям концентраций газов n_j в смеси и их коэффициентов поглощения рассчитывались приведенные измеряемые сигналы — правые части системы уравнений (2);

б) рассчитанные значения приведенных измеряемых сигналов искажались случайными числами для имитации шума измерения. Шум в каждом спектральном канале измерения моделировался случайным процессом с нормальным законом распределения, нулевым средним значением и заданной дисперсией;

в) полученные случайные значения сигналов (“данные измерений” в математическом эксперименте) применялись для определения концентраций газов \tilde{n}_j по “данным измерений” методом байесовской оценки решения, стандартным методом решения матричного уравнения (2) с использованием обратной матрицы системы, методами регуляризации Тихонова и поиска квазирешений;

г) найденные значения концентраций газов \tilde{n}_j сравнивались с исходными (заданными) значениями концентраций газов n_j и вычислялась погрешность определения концентраций газов:

$$\delta_j = \frac{|n_j - \tilde{n}_j|}{n_j}.$$

При математическом моделировании корреляционные матрицы V_ξ и N_0 задавались в виде диагональных матриц [4] с элементами по диагонали, равными дисперсиям шума измерения в спектральных каналах

(для матрицы V_{ξ}) и дисперсиям случайных изменений концентраций газовых компонентов смеси (для матрицы N_0).

Математическое моделирование определения концентраций газов проводилось для одиночных измерений, серий из 10 и 100 измерений. Определялись концентрации газов и погрешности δ_j для одиночных измерений и для всей серии из 10 или 100 измерений.

Примеры результатов математического моделирования показаны на рис. 1–5. Здесь приведены результаты определения концентраций газовых компонентов в шестикомпонентной смеси этилен–хлоропрен–гидразин–аммиак–метанол–этилакрилат для относительного среднеквадратического значения шума измерения 5% (шум измерения одинаков во всех спектральных каналах). В смеси присутствует хлоропрен, не имеющий ярко выраженных пиков поглощения в используемых спектральных каналах измерения. Математическое моделирование проводилось для двух случаев: концентрации компонентов смеси примерно одного порядка; концентрации двух компонентов смеси (хлоропрена и гидразина) примерно на 2 порядка меньше концентрации других газов смеси.

При построении байесовской оценки концентраций газов для всех компонентов смеси относительные среднеквадратические значения возможных изменений концентраций задавались равными 90%, а средние значения концентраций — большими или меньшими действительных значений на 0...90%.

На рис. 1 и 2 приведены средние по серии из 100 измерений погрешности δ (в процентах) определения концентраций газовых компонентов в случае, когда концентрации компонентов смеси этилен–хлоропрен–гидразин–аммиак–метанол–этилакрилат примерно одного

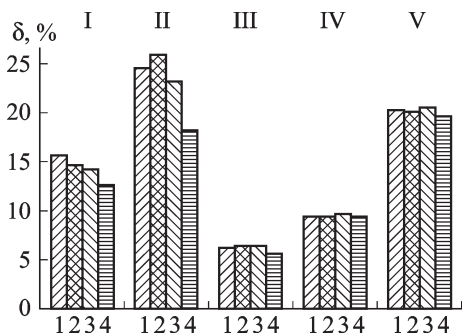


Рис. 1. Погрешности определения концентраций этилена, гидразина, аммиака, метанола и этилакрилата в случае, когда концентрации компонентов смеси примерно одного порядка

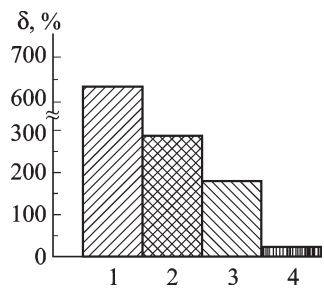


Рис. 2. Погрешности определения концентрации хлоропрена в случае, когда концентрации компонентов смеси примерно одного порядка

порядка: 10^{-4} ; $2 \cdot 10^{-4}$; $6 \cdot 10^{-4}$; $4 \cdot 10^{-4}$; $5 \cdot 10^{-4}$; $3 \cdot 10^{-4}$. При использовании метода байесовских оценок средние значения концентрации газов задавались на 45 % меньше или больше их действительных значений.

На рис. 1 приведены погрешности δ для пяти газовых компонентов. Здесь I — этилен, II — гидразин, III — аммиак, IV — метанол, V — этилакрилат; 1 — погрешности, полученные при использовании прямого решения уравнения лазерного газоанализа (2); 2, 3 — погрешности концентраций газов, полученные при использовании метода квази-решений и метода регуляризации Тихонова (параметр регуляризации определялся методом невязки); 4 — погрешности байесовских оценок концентраций газов, найденных по уравнению (4). Из рис. 1 видно, что для пяти газов смеси из шести погрешности всех методов имеют приемлемые значения, хотя для отдельных компонентов смеси они могут существенно отличаться друг от друга.

На рис. 2 приведены погрешности δ определения концентрации хлоропрена. Здесь обозначения столбцов те же, что и на рис. 1. Видно, что методы прямого решения, поиска квазирешений и регуляризации Тихонова не позволяют определить концентрацию хлоропрена. Метод байесовской оценки позволяет определять концентрацию хлоропрена с приемлемой точностью.

На рис. 3–5 приведены средние по серии из 10 измерений погрешности δ определения концентраций газовых компонентов той же смеси газов этилен–хлоропрен–гидразин–аммиак–метанол–этилакрилат в случае, когда концентрации двух компонентов смеси (хлоропрена и гидразина) примерно на 2 порядка меньше концентрации других газов смеси: $5 \cdot 10^{-4}$; $9 \cdot 10^{-7}$; $4 \cdot 10^{-6}$; $1 \cdot 10^{-4}$; $2 \cdot 10^{-4}$; $3 \cdot 10^{-4}$. Средние значения концентрации газов (см. рис. 3, 4) задавались на 45 % меньше или больше их действительных значений.

На рис. 3 приведены погрешности δ определения концентраций четырех газовых компонентов. Здесь I — этилен, II — аммиак, III — метанол, IV — этилакрилат. Обозначения столбцов на рис. 3 те же, что и на рис. 1. Из рис. 3 видно, что для четырех газов смеси из шести погрешности всех методов имеют приемлемые значения, хотя для отдельных компонентов смеси они могут существенно отличаться друг от друга. Отметим, что в большинстве случаев и для одиночных измерений в серии погрешности всех методов для этих четырех компонентов имеют приемлемые значения.

На рис. 4 приведены погрешности δ определения концентраций хлоропрена и гидразина. Обозначения столбцов на рис. 4 те же, что и на рис. 3. Хорошо видно, что концентрации хлоропрена и гидразина позволяет с приемлемой точностью определить только метод байесовской оценки. Погрешности определения концентраций хлоропрена и

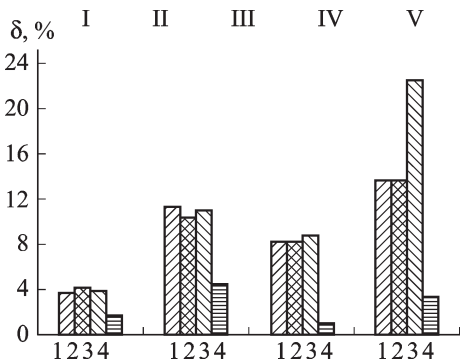


Рис. 3. Погрешности определения концентраций этилена, аммиака, метанола и этилакрилата, когда концентрации хлоропрена и гидразина на 2 порядка меньше концентрации других газов смеси

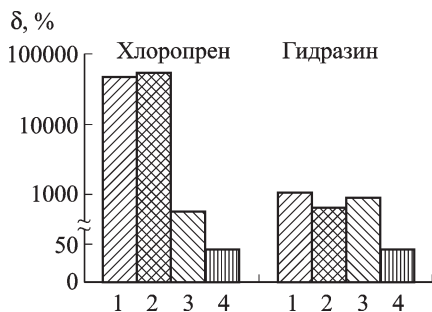
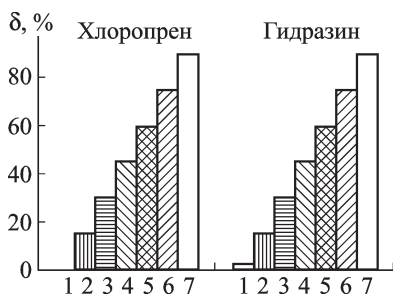


Рис. 4. Погрешности определения концентраций хлоропрена и гидразина в случае, когда их концентрации на 2 порядка меньше концентрации других газов смеси

Рис. 5. Погрешности байесовской оценки определения концентрации хлоропрена и гидразина при разных смещениях между задаваемыми по априорным данным средними значениями концентраций и действительными значениями концентраций



гидразина другими методами могут составлять сотни и даже десятки тысяч процентов.

На рис. 5 показаны погрешности δ байесовской оценки определения концентрации хлоропрена и гидразина при разных смещениях между задаваемыми по априорным данным средними значениями концентраций и действительными значениями концентраций. Столбцы на рис. 5 соответствуют разным значениям смещения, %: 1 — 0; 2 — 15; 3 — 30; 4 — 45; 5 — 60; 6 — 75; 7 — 90. Из рисунка видно, что при небольшом смещении погрешности определения концентрации хлоропрена и гидразина невелики. При увеличении смещения (которого при проведении измерений мы не знаем) погрешности определения концентрации возрастают и порядок этих погрешностей примерно равен смещению. При очень большом смещении (90%), равном заданному относительному среднеквадратическому значению возможных изменений концентраций хлоропрена и гидразина, погрешности также оказываются большими — порядка 90 %.

Выводы. 1. Метод, основанный на байесовской оценке решения, требует знания дополнительной априорной информации о средних значениях и дисперсиях случайных изменений концентраций газовых компонентов смеси.

2. Если для выбранных спектральных каналов измерения компоненты газовой смеси имеют ярко выраженные максимумы спектров поглощения и концентрации компонентов смеси не сильно отличаются друг от друга (имеют примерно один порядок), то метод, основанный на байесовской оценке решения, методы регуляризации Тихонова и поиска квазирешений имеют приемлемые значения погрешностей определения концентраций газов (хотя для отдельных компонентов смеси они могут существенно отличаться друг от друга).

3. В случае сложных многокомпонентных смесей (когда для выбранных спектральных каналов измерения компоненты газовой смеси имеют гладкий спектр поглощения без ярко выраженных пиков поглощения в используемых спектральных каналах измерения или концентрации компонентов смеси отличаются на несколько порядков) метод, основанный на байесовской оценке решения, позволяет с приемлемой точностью определять концентрации газов, тогда как методы регуляризации Тихонова и поиска квазирешений дают погрешности в сотни и тысячи процентов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Межерис Р. Лазерное дистанционное зондирование. – М.: Мир, 1987. – 550 с.
2. Оптико-электронные системы экологического мониторинга природной среды / В.И. Козинцев, В.М. Орлов, М.Л. Белов и др. – М.: Из-во МГТУ им. Н.Э. Баумана, 2002. – 528 с.
3. Белов М. Л., Городничев В. А., Козинцев В. И., Федотов Ю. В. Лазерный оптико-акустический анализ многокомпонентных газовых смесей. – М.: Изд-во МГТУ им. Н.Э. Баумана, 2003. – 352 с.
4. Воскобойников Ю. Э., Преображенский Н. Г., Седелников А. Н. Математическая обработка эксперимента в молекулярной газодинамике. – Новосибирск: Наука, 1984. – 238 с.
5. Тихонов А. Н., Арсенин В. Я. Методы решения некорректных задач. – М.: Наука, 1979. – 288 с.
6. Макушкин Ю. С., Мицель А. А., Хмельницкий Г. С. Лазерная абсорбционная диагностика атмосферных газов // Журнал прикладной спектроскопии. – 1981. – Т. 35. – Вып. 5. – С. 785–790.

Статья поступила в редакцию 12.05.08

Валентин Иванович Козинцев родился в 1945 г., окончил в 1969 г. МВТУ им. Н.Э. Баумана. Д-р. техн. наук, зам. директора НИИ радиоэлектроники и лазерной техники МГТУ им. Н.Э. Баумана. Автор более 200 научных работ в области лазерной техники.

V.I. Kozintsev (b.1945), graduated from Moscow Higher Technical School n.a. Bauman in 1969. D. Sc. (Eng.), Deputy director of “Radioelectronics and Laser Technology” Research Institute of Moscow State Technical University n.a. Bauman. Author of more than 200 publications in the field of laser technology.

Г. Иден окончил Иллинойский университет в Урбане Шампань, США, в 1973 г. (степень магистра), в 1976 г. (степень доктора наук). Доктор наук, профессор факультета электронной техники Иллинойского университета, директор лаборатории оптической физики и техники. Автор более 300 научных работ в области оптики, фотоники и смежных областей.

G. Eden graduated from the University of Illinois at Urbana-Champaign, USA, in 1973 (MS) and 1976 (PhD), respectively, USA. PhD, Professor, Director of the Laboratory for Optical Physics and Engineering, department of Electrical Engineering, University of Illinois. Author of more than 300 publications in the field of optics and photonics.

Михаил Леонидович Белов родился в 1950 г., окончил в 1973 г. Московский энергетический институт. Д-р. техн. наук, вед. науч. сотрудник НИИ радиоэлектроники и лазерной техники МГТУ им. Н.Э. Баумана. Автор более 200 научных работ в области лазерной локации и атмосферной оптики.

M.L. Belov (b.1950), graduated from Moscow Energy Institute in 1973. D. Sc. (Eng.), head researcher of "Radioelectronics and Laser Technology" Research Institute of Moscow State Technical University n.a. Bauman. Author of more than 200 publications in the field of laser location and optics of atmosphere.

Ольга Алексеевна Смирнова окончила в 1971 г. МВТУ им. Н.Э. Баумана. Канд. техн. наук, доцент кафедры "Радиоэлектронные системы и устройства" МГТУ им. Н.Э. Баумана. Автор более 100 научных работ в области лазерной техники.

O.A. Smirnova graduated from Moscow Higher Technical University n.a. Bauman in 1971. Ph. D. (Eng.), assoc. professor of "Electronic System and Devices" of Moscow State Technical University n.a. Bauman. Author of more than 100 publications in the field of laser technology.

Виктор Александрович Городничев родился в 1952 г., окончил в 1976 г. МГУ им. М.В. Ломоносова. Канд. техн. наук, начальник отдела НИИ радиоэлектроники и лазерной техники МГТУ им. Н.Э. Баумана. Автор более 200 научных работ в области лазерной техники.

V.A. Gorodnichev (b.1952), graduated from Moscow State University n.a. Lomonosov in 1976. Ph. D. (Eng.), head of department of "Radioelectronics and Laser Technology" Research Institute of Moscow State Technical University n.a. Bauman. Author of more than 200 publications in the field of laser technology.

Людмила Николаевна Еременко родилась в 1957 г., окончила в 1980 г. МВТУ им. Н.Э. Баумана. Ассистент кафедры "Лазерные и оптико-электронные системы" МГТУ им. Н.Э. Баумана.

L.N. Eremenko (b.1957) graduated from from Moscow Higher Technical School n.a. Bauman in 1980. Assistant of "Laser and Optoelectronic Systems" department of the Moscow State Technical University n.a. Bauman.

Юрий Викторович Федотов родился в 1974 г., окончил в 1998 г. МГТУ им. Н.Э. Баумана. Канд. техн. наук, научный сотрудник НИИ радиоэлектроники и лазерной техники МГТУ им. Н.Э. Баумана. Автор более 20 научных работ в области лазерной техники.

Yu. V. Fedotov (b.1974), graduated from Moscow Higher Technical University n.a. Bauman in 1998. Ph. D. (Eng.), researcher of "Radioelectronics and Laser Technology" Research Institute of Moscow State Technical University n.a. Bauman. Author of more than 20 publications in the field of laser technology.