

В.А. Руднєв, О.П. Бойченко, П.В. Карножицький, Н.А. Циганок

НЕЙРОННІ МЕРЕЖІ ДЛЯ КЛАСИФІКАЦІЇ БЕНЗИНІВ ЗА ДІЕЛЕКТРОМЕТРИЧНИМИ ДАНИМИ

Харківський НДІ судових експертиз ім. М.С. Бокаріуса
Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна
Національний технічний університет „ХПІ”

Дніпропетровський науково-дослідний інститут судових експертиз

У роботі показано можливість застосування методу штучних нейронних мереж для класифікації товарних автомобільних бензинів, легких газоконденсатних фракцій та бензинів позазаводського способу виробництва, що містять аміни в якості високооктанової добавки, за даними діелектрометрії та газової хроматографії. Використання нейронних мереж дозволило безпомилково віднести товарні автомобільні бензини, легкі газоконденсатні фракції та бензини, що були виготовлені у позазаводських умовах і містили у своєму складі аміни, до відповідної групи. Класифікація бензинів за діелектрометричними даними з використанням штучних нейронних мереж може застосовуватись при «скринінзі» великої партії бензинів, коли необхідно швидко вирішити необхідність проведення подальших досліджень.

Вступ

Вирішення питань віднесення зразків до певної групи має особливе значення при дослідженні нафтопродуктів бензинового ряду через високу актуальність проблеми боротьби з розкраданням і фальсифікацією бензинів [1]. Особливості вітчизняного добування та перероблення нафтопродуктів дозволяють виділити ті паливні матеріали, що заслуговують прискіпливої уваги — товарні автомобільні бензини та легкі газоконденсатні фракції, що є основною вітчизняною сировиною при виробництві товарних бензинів.

Окреме місце посідають бензини, що виготовлені у позазаводських умовах (фальсифікати). На сьогодні відомо багато випадків додавання до легких газоконденсатних фракцій або товарних бензинів присадок, що містять аміни, з метою підвищення октанового числа та подальшого збуту таких фальсифікатів під виглядом високооктанових автомобільних бензинів. Найчастіше до таких добавок відносяться суміші на основі *N*-метиланіліну, додавання якого до низькооктанових бензинів у рекомендованих кількостях [2] дозволяє значно підвищувати октанове число. У складі бензинів, що надходять на дослідження по справах незаконного виробництва бензинів та їх збуту, нерідко присутній *N*-метиланілін у концентраціях, вищих за літературні рекомендації.

Варто відмітити, що *N*-метиланілін та деякі інші аміни можуть міститися у складі бензинів відповідно до технічних умов на відповідну продукцію. Отже використовувати наявність амінів у складі бензину як ознаку фальсифікації потрібно з

обережністю та лише в умовах, коли ситуаційні обставини обґрунтовують сумніви у справжності бензину.

Швидке та надійне визначення приналежності бензину до групи товарних бензинів, легких газоконденсатних фракцій або бензинів, що містять аміни, має велике значення при проведенні оперативно-пошукових заходів, пов'язаних із встановленням джерела походження нафтопродуктів. Такі заходи найчастіше проводяться при відсутності таких відомостей, як технічна або супровідна документація стосовно бензинів. Визначення приналежності невідомого бензинового зразку до товарних бензинів дозволяє з більшою вірогідністю проводити дії відносно розкрадання нафтопродуктів. При визначенні приналежності зразка до легкої газоконденсатної фракції або аміновмісних бензинів переважають дії, які пов'язані з версією про незаконне виготовлення нафтопродуктів.

Дослідження таких видів нафтопродуктів, як товарні автомобільні бензини, легкі газоконденсатні фракції та аміновмісні бензини, можливо проводити з поєднанням як інструментальних методів аналізу, так і сучасних засобів оброблення отриманої інформації.

Розвиток методів хемометрики, який нерозривно пов'язаний з вдосконаленням обчислювальної техніки, привів до розширення галузей застосування досить складних математичних методів і появи великої кількості робіт з використання хемометричних методів. Ці методи успішно використовуються для ідентифікації та класифікації палив, у тому числі бензинів, за даними різних фізи-

ко-хімічних методів. Серед таких методів переважають хроматографічні (газова та рідинна хроматографія) та спектроскопічні (інфрачервона спектроскопія). Аналіз літературних джерел свідчить, що найбільш часто використовують такі хемометричні методи як: кластерний аналіз, метод головних компонент та штучні нейронні мережі [3–11]. Відомі результати класифікації за даними хроматографічного аналізу та ІЧ-спектроскопії для бензинів і дизельних палив характеризуються похибкою при класифікації близько 10%.

Необхідно, однак, відмітити високу вартість приладів для здійснення хроматографічних і спектроскопічних досліджень, а також невелику мобільність останніх і значну тривалість хроматографічного аналізу. Ці недоліки особливо виявляються при необхідності вирішення криміналістичних завдань в «польових» умовах у рамках здійснення оперативно-пошукових заходів, пов'язаних з крадіжками та фальсифікацією бензинів, а також при вхідному контролі нафтопродуктів.

Одним з альтернативних методів, який було запропоновано для аналізу нафтопродуктів, є метод діелектрометрії [12]. У літературі [13] наведено відомості про кореляцію октанового числа бензинів з відносною діелектричною проникністю. Опубліковано спосіб визначення октанових чисел автомобільних бензинів з використанням діелектричної проникності бензину та його густини [14]. Нещодавно з'явилась робота, де описано застосування методу діелектричної спектроскопії для встановлення октанового числа бензинів [15]. Досить успішно цей метод застосовується також для класифікації інших видів нафтопродуктів, зокрема моторних масел [16]. Наші попередні дослідження [17] показали наявність зв'язку між діелектричною проникністю автомобільних бензинів і легких газоконденсатних фракцій з їх компонентним складом.

При використанні діелектрометричного методу для оцінювання октанового числа існують певні ускладнення, пов'язані, в основному, з широким компонентним складом бензинів. Автори роботи [18] вказують на неможливість використання діелектричної проникності бензину для розрахунку його октанового числа для широкої низки виробників. Це логічно обґрунтовується тим, що у складі бензинів можуть міститись компоненти з близькими діелектричними властивостями, однак суттєво різними октановими числами. Нещодавно нами було встановлено можливість задовільної класифікації бензинів і легких газоконденсатних фракцій за діелектрометричними даними та іншими фізико-хімічними властивостями із застосуванням кластерного аналізу [19].

Враховуючи вказані переваги та недоліки методу діелектрометрії при дослідженні нафтопродуктів, уявляється доцільним удосконалення методики діелектрометричного дослідження та встановлення найбільш інформативних засобів обробки

отриманих даних. Це необхідно для отримання задовільних результатів класифікації товарних бензинів, легких газоконденсатних фракцій та аміновмісних бензинів.

Встановлення ефективності запропонованого методу виконували за порівнянням результатів класифікації за діелектрометричними даними і результатів класифікації за даними компонентного складу зразків методом газової хроматографії.

Експериментальна частина

Методи дослідження

У роботі використовували методи діелектрометрії для визначення діелектричної проникності, газорідинної хроматографії для визначення компонентного складу, ареометрії для визначення густини зразків і фракційного аналізу для визначення об'ємних часток вузьких фракцій, відібраних за температурами кипіння.

Показник діелектричної проникності вимірювали за резонансним методом, сутність якого полягає у визначенні ємності вимірювальної комірки з двома електродами, між якими знаходиться досліджувана рідина, та наступним розрахунком діелектричної проникності [12]. Вимірювання виконувалось на приладі типу Е4-4. Розрахунок діелектричної проникності виконувався за формулою:

$$\varepsilon = \frac{c_1 - c_{\Pi}}{c_0 - c_{\Pi}}, \quad (1)$$

де ε — показник діелектричної проникності; c_0 — ємність (пФ) вимірювальної комірки, що заповнена повітрям; c_1 — ємність вимірювальної комірки, яка заповнена досліджуваною рідиною; c_{Π} — паразитна ємність комірки [20].

Паразитну ємність розраховували за наступною формулою:

$$c_{\Pi} = \frac{c_0 \varepsilon_{\kappa} - c_{\kappa}}{\varepsilon_{\kappa} - 1}, \quad (2)$$

де c_0 — ємність (пФ) вимірювальної комірки, що заповнена повітрям; c_{κ} — ємність вимірювальної комірки, яка заповнена калібрувальною рідиною; ε_{κ} — значення діелектричної проникності калібрувальної рідини [20].

У якості калібрувальної рідини використовували бензол. Вибір калібрувальної рідини обумовлено достатньо високою температурою кипіння бензолу, а також високою чистотою комерційного реактиву виробництва Merck (Дармиштадт, Німеччина). При стандартних умовах (яким відповідала температура вимірювань) діелектрична проникність бензолу складає 2,273 [21]. Калібрування комірки за бензолом та вимірювання c_0 повторювали перед кожною серією вимірювань. Об'єм проби, що використовували для здійснення одного вимірювання, складав 25 мл.

Для встановлення компонентного складу дос-

ліджуваних нафтопродуктів використовували метод газорідинної хроматографії. Хроматографування виконували на хроматографі «Кристалл-2000М» (ЗАТ СКБ «Хроматэк», Російська Федерація). Хроматографування здійснювали за наступних умов: ручне введення проби мікрошприцем (об'єм проби – 1 мкл); газ-носіє – азот; детектор – полум'яно-іонізаційний; колонка – Quadrex 007-1 50 м×0,25 мм (Quadrex corporation, USA) з нерухою фазою – полідиметилсилоксан; температура детектори – 210°C; температура випарника – 180°C; швидкість газу-носія – 20 мл/хв. Температуру програмували за наступною схемою: початкова температура колонки 3°C; тривалість ізотермічної частини на початку хроматографування 20 хв; швидкість нагрівання – 2°C/хв; кінцева температура колонки 200°C. Тривалість одного аналізу складала 110 хв. Встановлення режимів хроматографування, розрахунок площ та ідентифікацію піків виконували за допомогою програми «Хроматэк-Аналітик 2.5» (ЗАТ СКБ «Хроматэк», Російська Федерація), розрахунок масових часток компонентів виконували за допомогою програми «Gasoline» (ЗАТ СКБ «Хроматэк», Російська Федерація).

Визначення густини здійснювали відповідно до ГОСТ 3900-85 [22]. Сутність методу полягає у зануренні ареометра у досліджуваний нафтопродукт, зніманні показань за шкалою ареометра при температурі визначення та перерахунок результатів на густину при температурі 20°C.

Визначення фракційного складу виконували відповідно до ГОСТ 2177-99 [23]. Сутність методу полягає в нагріванні зразка бензину з наступним його конденсацією у холодильнику з водяним охолодженням і збором отриманого конденсату у мірному циліндрі. Відмічають об'єм відгону та відповідну йому температуру пари бензину у колбі для перегонки, яку вимірюють ртутним термометром.

Об'єкти дослідження

Для досліджень було обрано марки товарних автомобільних бензинів, що найбільш розповсюд-

жені на території України – А-76(80), А-92, А-95, А-98 [24] (попередньо було підтверджено їх відповідність за ДСТУ 4063-2001), легких газоконденсатних фракцій родовищу східного регіону України: Шебелінського, Личківського, Сахалінського, Крестищенського, Східно-Новоселівського, Ульяновського та Юліївського; а також бензинів з колекції, що знаходиться в Харківському НДІ судових експертиз, які було виготовлено у кустарних умовах (фальсифікати) шляхом додавання до легких газоконденсатних фракцій N-метиланіліну.

Програмне забезпечення

Для обробки експериментальних даних використовували програми Microsoft Excel (2003, Microsoft, <http://office.microsoft.com>) та Statistica 8.0 (Statsoft Inc., <http://www.statsoft.com>).

Результати та обговорення

Хоч і спостерігається збільшення середнього значення діелектричної проникності від бензинів А-76(80) до бензинів А-98 (рис. 1), здійснення диференціації товарних бензинів за маркою при використанні тільки значень діелектричної проникності складає певні труднощі. Цьому сприяють близькі значення діелектричної проникності для різних марок бензинів. Проблемою при диференціації бензинів марки А-76(80) та легких газоконденсатних фракцій також є близькі значення діелектричної проникності. Діелектрична проникність аміновмісних бензинів знаходилась у широкому діапазоні, що охоплює діелектричну проникність і легких фракцій, і товарних бензинів марок А-76(80) та А-92. Необхідно відмітити, що наведені на рис. 1 діапазони значень діелектричної проникності бензинів пов'язані з варіюванням у властивостях бензинів, виготовлених різними заводами, бо діелектрична проникність кожного зразка вимірювана з високою прецизійністю. Раніше нами було встановлено, що проміжна прецизійність вимірювання діелектричної проникності, виражена як відносне стандартне відхилення, складає 0,3–0,5% для значень діелектричної проникності в діапазоні від 1,8 до 4,4 [25].

Таблиця 1

Марки бензинів, легких газоконденсатних фракцій і кількість зразків для дослідження

№ з/п	Назва марки бензину або родовища відбору газового конденсату	Кількість зразків	Умовне позначення на рисунках
1	А-98	5	А-98
2	А-95	9	А-95
3	А-92	8	А-92
4	А-76	10	А-76
5	Сахалінське	9	ЛФ (легкі фракції)
6	Юліївське	8	
7	Східно-Новоселівське	5	
8	Шебелінське	7	
9	Крестищенське	7	
10	Личківське	7	
11	Ульянівське	5	
12	Легкі фракції з додаванням N-метиланіліну	18	фальс.

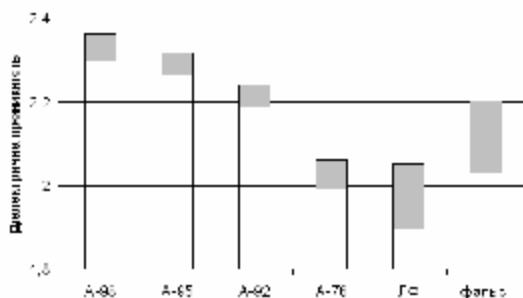


Рис. 1. Розподіл діелектричної проникності товарних бензинів, легких газоконденсатних фракцій та бензинів, що містять у своєму складі *N*-метиланілін¹.

Раніше при здійсненні класифікації нафтопродуктів бензинового ряду нами було запропоновано використовувати не тільки діелектричну проникність вихідного зразка, а й діелектричну проникність вузьких фракцій, відібраних за температурами кипіння. Відбір фракцій виконувався при фракційній перегонці [26,27] наступним чином: 1 фракція — від початку кипіння до 75°C; 2 фракція — від 75 до 120°C; 3 фракція — від 120 до 190°C. Температурні межі відбору фракцій підібрані таким чином, щоб у першій фракції відбувалось концентрування переважно парафінових вуглеводнів, які мають відносно низькі значення діелектричної проникності, та метилтретбутилового етеру, який є добавкою до високооктанових бензинів. У другій фракції більш сконцентровані бензол і толуол, які мають вищі, у порівнянні з парафіновими вуглеводнями, значення діелектричної проникності. Третя фракція характеризується збільшеним вмістом важких ароматичних вуглеводнів.

Вибір запропонованих температур відбору бензинових фракцій також відповідає ДСТУ 4063-2001 [24] — обрані температури відбору фракцій є максимально допустимими температурами відбору відповідно 10, 50, 90% відгону бензину. Це дозволяє не проводити додаткових досліджень для класифікації зразків палив при проведенні контролю якості їх фракційного складу відповідно до ДСТУ 4063-2001.

Виявилось, що використання цих даних у сукупності з кластерним аналізом та аналізом головних компонент дозволяє не тільки розділити зразки на дві групи: товарні бензини та легкі газоконденсатні фракції, але й провести внутрішньогрупову класифікацію товарних бензинів за маркою та легких газоконденсатних фракцій за місцем видобування вихідного газового конденсату. У останньому випадку для покращення результатів класифікації запропоновано використовувати дані про об'єми відібраних за температурами кипіння вузьких фракцій та густину вихідної легкої фракції. Похибка, яка характеризувала класифікацію товарних бензинів за маркою з використанням кла-

стерного аналізу, складала близько 3%, а при класифікації легких газоконденсатних фракцій за місцем добування вихідного газового конденсату — близько 10%.

Однак застосування кластерного аналізу та аналізу головних компонент для диференціації аміновмісних бензинів від легких газоконденсатних фракцій і товарних бензинів показало похибку на рівні 20–30% та більше. Велике значення похибки унеможливило практичне застосування кластерного аналізу та аналізу головних компонент навіть при попередньому аналізі бензинів та потребує застосування інших хемометричних методів для зниження похибки до задовільних значень.

Нейронні мережі: загальні відомості

Добре відомо, що обробка інформації мозком людини значно відрізняється від методів, що використовують звичайні цифрові комп'ютери. Мозок має можливість організовувати свої структурні компоненти, що називаються нейронами, таким чином, щоб вони могли виконувати конкретні завдання такі, як, наприклад: розпізнавання образів, обробка сигналів та ін. За аналогією з роботою нейронів мозку штучні нейронні мережі складаються зі штучних нейронів, які є одиницею обробки інформації в нейронній мережі. Основними елементами такої одиниці обробки інформації є набір синапсів (зв'язків), кожен з яких характеризується своєю вагою (*w*). Кожен сигнал, який надходить до нейрона, враховується з відповідним значенням ваги, яка може приймати як позитивні, так і негативні значення. Крім вхідних сигналів до нейрона може також надходити фіксований вхідний сигнал, що зветься порогом. Після цього сигнали додаються у суматорі (у випадку нейрона з лінійної трансформацією):

$$c = b + \sum_{i=1}^n w_i x_i \quad (3)$$

Отриманий результат трансформується та нормалізується за допомогою функції активації, що приводить до вихідного сигналу *d*:

$$d = f(c) \quad (4)$$

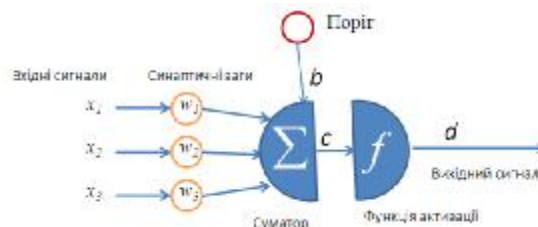


Рис. 2. Схема нейрона

У якості функцій активації можуть застосовуватись лінійна функція, коли вихідний сигнал

Примітка: ¹ — на рис. 1 та подальших рисунках сірим кольором позначені діапазони зміння діелектричної проникності від зразка до зразку всередині певної групи

співпадає з отриманим у суматорі, логістична, гіперболічна, квадратний корінь та ін. Вибір оптимальної функції активації обирається у кожному конкретному випадку.

Нейронні мережі, що складаються з кількох нейронів, можна класифікувати, наприклад, за структурою. Найбільш вживаними нейронними мережами, що навчаються, є одно- та багатошарові прямі нейронні мережі (*single and multilayer feed-forward neural networks, MLP*) та мережі з радіальними базисними функціями (*radial basis function neural networks, RBF*). Схеми багатошарових прямих нейронних мереж та мережі з радіальними базисними функціями наведено на рис. 3.

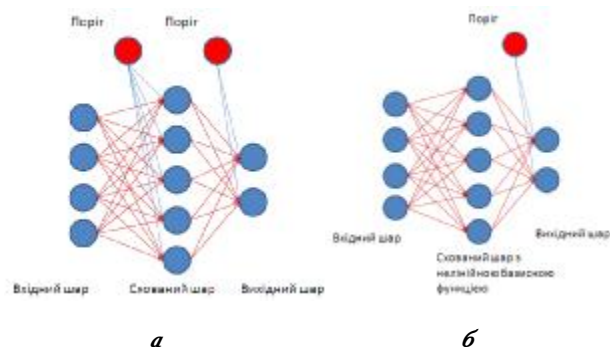


Рис. 3. Схеми багатошарових прямих нейронних мереж (а) та мережі з радіальними базисними функціями (б), що складаються з 4 вхідних нейронів, 5 схованих нейронів та 2 вихідних нейронів

У обох типах мереж кожен нейрон зв'язаний з усіма наступними нейронами та відсутні зворотні зв'язки. Принциповою відмінністю мереж з радіальною базисною функцією від багатошарових прямих нейронних мереж є використання у схованому шарі нелінійної, частіше за все Гаусової, функції для трансформації вхідних сигналів перед їх додаванням у суматорі. Для більш детального ознайомлення з теорією нейронних мереж можна звернутись, наприклад, до книги [28]. Дослідження можливостей та обмеження нейронних мереж активно здійснюється в напрямках валідації їх структури для вирішення певних завдань та встановлення оптимальних умов навчання [29,30]. На сьогодні однак існує можливість оптимізувати структуру найпростіших багатошарових прямих нейронних мереж і мереж з радіальною базисною функцією за допомогою автоматичних алгоритмів, що, наприклад, реалізовані в програмі Statistica 8.0.

Поділ зразків на групи товарних бензинів, легких газоконденсатних фракцій і фальсифікатів з використанням нейронних мереж за діелектрометричними даними

Перший та найважливіший етап дослідження паливних матеріалів є віднесення певного зразка до групи, в нашому випадку — (i) товарного бензину; (ii) легкої газоконденсатної фракції; (iii) фальсифікату товарного бензину (легкі газокон-

денсатні фракції з додаванням амінів). Як було вказано вище, виявлення фальсифікатів серед товарних бензинів і легких газоконденсатних фракцій за результатами діелектрометрії, за допомогою кластерного аналізу та аналізу головних компонент є досить складним завданням. Іншою проблемою виявилось визначення компонентного складу фальсифікатів з використанням стандартної газохроматографічної програми дослідження компонентного складу товарних бензинів, що унеможливує точний аналіз фальсифікованих палив невідомого складу. Так, при аналізі аміновмісних бензинів газохроматографічним методом виявленню амінів, зокрема *N*-метиланіліну, переважають важкі ароматичні вуглеводні з десятьма вуглецевими атомами [31]. Визначення амінів ІЧ-спектроскопічним методом, який наведено у роботі [2], не завжди можливе внаслідок дорожньої обладнання та пристосуванні останнього для вирішення питань іншого характеру (дослідження лакофарбових покриттів, полімерних матеріалів тощо).

Результати застосування нейронних мереж до діелектрометричних даних (4 вхідних нейрони відповідають значенням діелектричної проникності вихідного зразка та трьох відібраних за температурою кипіння фракцій, 3 вихідних нейрони відповідають трьом групам паливних матеріалів) для класифікації зразків за трьома групами виявились практично бездоганними. Після тренування, для якого було використано 80% від кількості досліджених зразків, на етапі тестування мереж виявилось, що багатошарова пряма мережа з одним схованим шаром з 7 нейронів та мережа з радіальною базовою Гаусовою функцією дозволили 100%-во розділити зразки на три групи. У інших випадках похибка віднесення складала не більше 5% (табл. 2)

Визначення марки бензину та місця добування легкої газоконденсатної фракції за діелектрометричними та газохроматографічними даними

Наступним етапом класифікації зразків є віднесення товарних бензинів до певної марки, а легких газоконденсатних фракцій — до місця видобування вихідного газового конденсату. Спроба застосування нейронних мереж для такої класифікації до сукупних результатів, що включали три групи паливних матеріалів, виявилась незадовільною. Похибка при тестуванні мереж складала близько 40%. Тому надалі класифікацію здійснювали окремо в кожній з визначених груп. У табл. 3 наведено результати класифікації бензинів за маркою з використанням діелектрометричних та газохроматографічних даних. Вочевидь, нейронні мережі забезпечують 100% віднесення товарних бензинів до певної марки як при використанні діелектрометричних даних, так і при використанні газохроматографічних даних про компонентний склад кожного зразка.

Таблиця 2

Результати класифікації товарних бензинів, легких газоконденсатних фракцій та бензинів кустарного виробництва за діелектрометричними даними

№ з/п	Тип мережі та кількість нейронів схованого шару	Точність при		Алгоритм навчання	Функція похибки	Функція активації нейронів прихованого шару	Функція активації нейронів вихідного шару
		тренуванні	тестуванні				
Диференціація зразків на групи товарних бензинів, легких газоконденсатних фракцій і фальсифікатів							
1	RBF 22	100	100	RBFT ¹	CE ²	Gaussian ³	Softmax ⁶
2	MLP 7	100	100	Квазі-Ньютон	CE	Tanh ⁴	Softmax
3	RBF 20	100	95	RBFT	CE	Gaussian	Softmax
4	MLP 25	98,75	95	Квазі-Ньютон	CE	Logistic ⁵	Softmax
5	MLP 8	98,75	95	Квазі-Ньютон	CE	Exponential	Softmax

Примітка: 1 – RBFT – алгоритм навчання мережі радіальної базисної функції; 2 – CE – крос ентропія; 3 – Gaussian – Гаусова функція; 4 – Tanh – гіперболічна тангенційна функція; 5 – Logistic – логістична функція; 6 – Softmax – експоненціальна функція, виходи якої нормуються таким чином, щоб сума усіх активацій шару дорівнювала 1

Таблиця 3

Результати класифікації товарних бензинів за маркою, за діелектрометричними та газохроматографічними даними

№ з/п	Тип мережі та кількість нейронів схованого шару	Точність при		Алгоритм навчання	Функція похибки	Функція активації нейронів прихованого шару	Функція активації нейронів вихідного шару
		тренуванні	тестуванні				
Класифікація товарних бензинів за маркою за діелектрометричними даними							
1	RBF 13	100	100	RBFT	CE	Gaussian	Softmax
2	RBF 9	100	100	RBFT	SOS	Gaussian	Identity
3	MLP 24	100	100	Квазі-Ньютонівський	CE	Exponential	Softmax
4	RBF 10	96,15	100	RBFT	SOS	Gaussian	Identity
5	MLP 13	96,15	100	Квазі-Ньютонівський	SOS	Logistic	Logistic
Класифікація товарних бензинів, за маркою за газохроматографічними даними							
1	MLP 19	100	100	Квазі-Ньютонівський	CE	Exponential	Softmax
2	MLP 23	100	100	Квазі-Ньютонівський	CE	Tanh	Softmax
3	MLP 16	96,2	100	Квазі-Ньютонівський	CE	Exponential	Softmax
4	MLP 9	96,2	100	Квазі-Ньютонівський	CE	Logistic	Softmax
5	MLP 10	92,3	100	Квазі-Ньютонівський	CE	Logistic	Softmax

При використанні діелектрометричних даних 4 вхідних нейрони відповідають значенням діелектричної проникності вихідного зразка та трьох відібраних за температурами кипіння фракціям, 4 вихідних нейрони відповідають чотирьом маркам товарних бензинів.

При використанні газохроматографічних даних 38 вхідних нейронів відповідають значенням часток основних компонентів бензинів, 4 вихідних нейрони відповідають чотирьом маркам товарних бензинів.

Необхідно також відмітити, що в обох випадках класифікація виявилась кращою, ніж отримана нами раніше при використанні кластерного аналізу [19].

У випадку класифікації легких газоконденсатних фракцій за місцем добування при використанні діелектрометричних даних результати виявились незадовільними. Тому, як і в нашій попередній роботі, дані з діелектричної проникності вихідного зразка та трьох відібраних за температу-

рами кипіння фракції поповнили даними про об'єми трьох відібраних фракцій та густини вихідного зразка.

Таким чином, кількість вхідних нейронів збільшилась до 8, кількість вихідних нейронів дорівнювала 7 відповідно до кількості місць добування досліджених газоконденсатних фракцій. У табл. 4 наведено результати класифікації легких газоконденсатних фракцій за діелектрометричними даними та фізико-хімічними параметрами і за газохроматографічними даними.

При використанні газохроматографічних даних 37 вхідних нейронів (на 1 нейрон менше, ніж для товарних бензинів за рахунок відсутності у складі легких газоконденсатних фракцій метил-третбутилового етеру) відповідають значенням часток основних компонентів бензинів, 7 вихідних нейронів відповідають кількості місць добування вихідного газового конденсату досліджених газоконденсатних фракцій).

Нейронні мережі дозволили безпомилково

Результати класифікації легких газоконденсатних фракцій за родовищем видобування газового конденсату за діелектрометричними та газохроматографічними даними

№ з/п	Тип мережі та кількість нейронів схованого шару	Точність при		Алгоритм навчання	Функція похибки	Функція активації нейронів прихованого шару	Функція активації нейронів вихідного шару
		тренуванні	тестуванні				
Класифікація легких фракцій за родовищем видобування газового конденсату за діелектрометричними даними та фізико-хімічними параметрами							
1	MLP, 10	100	100	Квазі-Ньютонівський	CE	Logistic	Softmax
2	MLP, 6	97,4	100	Квазі-Ньютонівський	CE	Tanh	Softmax
3	MLP, 7	97,4	100	Квазі-Ньютонівський	CE	Logistic	Softmax
4	RBF, 16	94,9	100	RBFT	CE	Logistic	Softmax
5	RBF 21	94,9	100	RBFT	CE	Gaussian	Softmax
Класифікація легких фракцій за родовищем видобування газового конденсату за газо-хроматографічними даними							
1	MLP 17	100	100	Квазі-Ньютонівський	CE	Logistic	Softmax
2	MLP 14	100	100	Квазі-Ньютонівський	SOS	Identity	Tanh
3	MLP 11	97,4	100	Квазі-Ньютонівський	SOS	Identity	Identity
4	MLP 19	97,4	100	Квазі-Ньютонівський	CE	Tanh	Softmax
5	MLP 16	94,9	100	Квазі-Ньютонівський	SOS	Exponential	Identity

класифікувати зразки за місцем добування, на відміну від класичних методів класифікації: кластерного аналізу (див. [19]) та аналізу головних компонент.

Висновки

Отримані результати показали ефективність застосування штучних нейронних мереж при класифікації товарних автомобільних бензинів, легких газоконденсатних фракцій і бензинів кустарного виробництва, що містили у своєму складі аміни, як за діелектрометричними даними, так і за даними компонентного складу.

При використанні даних діелектрометричного дослідження вимірювання діелектричної проникності здійснювалось для вихідного бензинового зразка та отриманих з нього шляхом фракційної перегонки трьох вузьких бензинових фракцій. Відбір вузьких бензинових фракцій виконувався у наступних температурних інтервалах: початок кипіння – 75°C, 75–120°C, 120–190°C.

Штучні нейронні мережі є оптимальним засобом для встановлення приналежності досліджуваних зразків до певної групи, а саме – товарних автомобільних бензинів, легких газоконденсатних фракцій і бензинів, виготовлених у позазаводських (кустарних) умовах. Класифікація бензинових зразків на ці групи показала у всіх випадках відмінні результати лише при використанні діелектрометричних даних. Це особливо важливо при виявленні такої ознаки, як наявність амінів у складі бензинів, газохроматографічне встановлення якої потребує додаткової оптимізації умов розділення. Така ознака може свідчити, у певних умовах, про факт позазаводського виробництва (фальсифікації) бензину.

Встановлено, що багатощарові прямі нейронні

мережі та нейронні мережі з радіальною функцією дозволяють виконувати безпомилкову класифікацію товарних бензинів за маркою і легких газоконденсатних фракцій за родовищем видобування вихідного газового конденсату. У останньому випадку необхідно використовувати додаткові фізико-хімічні параметри, що можуть фіксуватись паралельно з виконанням фракційної перегонки зразка.

Використання запропонованого методу дослідження нафтопродуктів бензинового ряду, який включає відбір вузьких фракцій одночасно з визначенням фракційного складу, вимірювання діелектричної проникності отриманих фракцій і вихідного бензинового зразка і застосування штучних нейронних мереж до отриманих результатів, дозволяє швидко та ефективно визначати природу і приналежність бензинів. Оперативність виконання вимірювань у сукупності з високою надійністю отриманих результатів створюють передумови для практичного впровадження методу.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Руднев В.А., Карножицкий П.В., Климчук А.Ф. Исследование диэлектрических свойств газовых конденсатов // Вестник НТУ «ХПИ». – 2007. – № 32. – С.24-28.
2. Данилов А.М. Применение присадок в топливах: Справочник. – СПб.: ХИМИЗДАТ, 2010. – 368 с.
3. Tan V., Hardy J.K., Snavely R.E. Accelerant classification by gas chromatography/mass spectrometry and multivariate pattern recognition // Analytica Chimica Acta. – 2000. – Vol.422. – P.37-46.
4. Classification of premium and regular gasoline by gas chromatography/mass spectrometry, principal component analysis and artificial neural networks / P. Doble, M. Sandercock,

E. Du Pasquier et al. // *Forensic Science International*. – 2003. – Vol.132. – P.26-39.

5. Van Leeuwen J.A., Jonker R.J., Gill R. Octane number prediction based on gas chromatographic analysis with non-linear regression techniques // *Chemometrics and intelligent laboratory systems*. – 1994. – Vol.25. – P.325-340.

6. Clark H.A., Jurs P.C. Qualitative determination of petroleum sample type from gas chromatograms using pattern recognition techniques // *Anal. Chem.* – 1975. – Vol.47. – № 3. – P.374-378.

7. Ignitable liquid classification and identification using the summed-ion mass spectrum / Sigman M.E., Williams M.R., Castelbuono J.A. et al. // *Instrumentation science and technology*. – 2008. – Vol.36. – P.375-393.

8. Geographical classification of crude oils by Kohonen self-organizing maps / A.M. Fonseca, J.L. Biscaya, J. Aires-de-Sousa, A.M. Lobo // *Analytica Chimica Acta*. – 2006. – Vol.556. – P.374-382.

9. Balabin R.M., Safieva R.Z., Lomakina E.I. Comparison of linear and nonlinear calibration models based on near infrared (NIR) spectroscopy data for gasoline properties prediction // *Chemometrics and intelligent laboratory systems*. – 2007. – Vol.88. – P.183-188.

10. Balabin R.M., Safieva R.Z. Gasoline classification by source and type based on near infrared (NIR) spectroscopy data // *Fuel*. – 2008. – Vol.87. – P.1096-1101.

11. Bodle E.S., Hardy J.K. Multivariate pattern recognition of petroleum-based accelerants by solid-phase microextraction gas chromatography with flame ionization detection // *Analytica Chimica Acta*. – 2007. – Vol.589. – P.247-254.

12. Надь Ш. Б. Диэлектрометрия. – М.: Энергия, 1976. – 200 с.

13. Скворцов Б.В., Силов Е.А. Исследование корреляционных зависимостей между октановым числом и электродинамическими параметрами углеводородных продуктов // *Известия Самарского научного центра РАН*. – 2009. – Т.11. – № 5. – С.64-71.

14. Патент РФ 2100803, G01N27/22, G01N33/22. Способ и устройство для определения октановых чисел автомобильных бензинов // Шапохин В.Н., Чечкенов И.В., Скавинский В.П., Марталов С.А., Чечкенов О.В. – № 97105569/25. – Заявл. 15.04.97. Оpubл. 27.12.97.

15. Determination of octane numbers for clean gasoline using dielectric spectroscopy / L. Guan, X.L. Feng, Z.C. Li, G.M. Lin // *Fuel*. – 2009. – Vol.88. – P.1453-1459.

16. Guan L., Feng X.L., Xiong G. Engine lubricating oil classification by SAE grade and source based on dielectric spectroscopy data // *Analytica chimica acta*. – 2008. – Vol.628. – P.117-120.

17. Руднев В.А., Карножицький П.В. Применение метода диэлектрометрии при экспертном исследовании нефтепродуктов // *Вісник Харківського нац. ун-ту. Сер. Хімія*. – 2009. – № 870. – Вып.17(40). – С.172-177.

18. Киселев В.П., Киселев Ю.В. Альтернативные методы определения детонационной стойкости бензинов и их компонентов // *Катализ и нефтехимия* – 2001. – № 9-10. – С.77-86.

19. Руднев В.А., Бойченко О.П., Карножицький П.В. Класифікація товарних бензинів та легких газоконденсатних фракцій східних родовищ України на основі діелектрометричних та газохроматографічних даних // *Методи и объекты химического анализа*. – 2010. – Т.5. – № 3. – С.148-157.

20. ГОСТ 6581–75 Материалы. Электроизоляционные жидкости. Методы электрических испытаний. Введ. 01.01.88. – М.: Государственный комитет зі стандартів СРСР, 1975. – 23 с.

21. Ахадов Я. Ю. Диэлектрические свойства чистых жидкостей. – М.: Изд-во стандартов, – 1972. – 412 с.

22. ГОСТ 3900–85 Нефть и нефтепродукты. Методы определения плотности. Введ. 01.01.87. – М.: Государственный комитет зі стандартам СРСР, 1987. – 37 с.

23. ГОСТ 2177–99 Нефтепродукты. Методы определения фракционного состава. Введ. в Украине 01.07.2001. – Минск, 2001. – 23 с.

24. ДСТУ 4063–2001 Бензини автомобільні. Технічні умови. Введ. 29.11.2001. – К.: Держстандарт України, 2002. – 53 с.

25. Руднев В.А., Бойченко А.П., Карножицький П.В. «Тор-даун» похід для оцінки неопределенности измерений диэлектрической проницаемости неводных растворителей и их многокомпонентных смесей // *Вісник Харківського нац. ун-ту. Сер. Хімія*. – 2010. – № 932. – Вып.19(42). – С.160-169.

26. Руднев В.А., Карножицький П.В., Бойченко О.П. Класифікація та ідентифікація нафтопродуктів на основі діелектрометричних даних та фізико-хімічного аналізу складу // *Актуальні питання з хімії: Тез. докл. VIII Всеукраїнської конф. молодих вчених, студентів та аспірантів*. – Харків. – 2010. – С.31.

27. Руднев В.А., Бойченко А.П., Карножицький П.В. Новый подход к классификации товарных бензинов и легких газоконденсатных фракций на основе диэлектрометрических данных и хемометрических методов // *100 річниця з дня народження проф. Пятницького І.В.: Тез. доп. наукової конф.* – Київ, 2010. – С.83.

28. Хайкин С. Нейронные сети. Полный курс. – М.: Издательский дом Вильямс, 2006. – 1104 с.

29. Краснянчин Я.Н., Пантелеймонов А.В., Холин Ю.В. Некоторые аспекты параметризации искусственных нейронных сетей в задачах качественного химического анализа // *Вісник Харківського нац. ун-ту. Хімія*. – 2010. – № 932. – Вып.19(42). – С.170-181.

30. Краснянчин Я. Н., Пантелеймонов А. В., Холин Ю.В. Надежность идентификации аналитов с помощью искусственных нейронных сетей // *Вісник Харківського нац. ун-ту. Сер. Хімія*. – 2010. – № 895. – Вып.18(41). – С.39-46.

31. Юрченко Е.Н., Пагурец О.Б. Экспертное исследование азотсодержащих, высокооктановых присадок класса аминов к автомобильным бензинам // *Криминалистика и судебная экспертиза: Междугосударственный научно-методический сборник*. – 2008. – Вып.54. – С.119-125.

Надійшла до редакції 2.02.2011