

Überwachung der Luftqualität in Innenräumen mittels komplexer Sensorsysteme und Deep Learning Ansätzen

Yannick Robin¹, Johannes Amann¹, Payman Goodarzi¹, Tobias Baur¹, Caroline Schultealbert¹, Tizian Schneider¹ und Andreas Schütze¹

¹Lehrstuhl für Messtechnik, Universität des Saarlandes, Saarbrücken, Deutschland

Kontakt: y.robin@imt.uni-saarland.de

Einleitung

Die Innenraumluftqualität ist laut der World Health Organisation (WHO) eine der größten Gefahrenquellen für die Gesundheit des Menschen [1]. So kann beispielsweise eine zu hohe Konzentration von Formaldehyd und anderen flüchtigen organischen Verbindungen (engl.: Volatile Organic Compounds, VOCs) in der Atemluft krebserregend sein [2]. Problematisch für den Menschen sind hierbei besonders zwei Dinge. Erstens halten sich die meisten Menschen zu ca. 90 % in Innenräumen auf [3] und sind dadurch permanent von einer ausreichenden Innenraumluftqualität abhängig. Zweitens ist die Innenraumluftqualität eine komplexe, schwer überwachbare Größe, wodurch heute eine gesunde Innenraumluft kaum gewährleistet werden kann [4]. Erschwerend kommt hinzu, dass durch die zunehmende Versiegelung und Isolierung der Bausubstanz zur Energieeinsparung der Luftaustausch reduziert wird und heute in Innenräumen häufig höhere Schadstoffkonzentrationen vorliegen als in der Außenluft [5, 6].

In dieser Arbeit wird gezeigt, dass es möglich ist, einige ausgewählte flüchtige organische Verbindungen, die einen negativen Einfluss auf die Gesundheit haben, auf ppb Niveau auch in komplexen Umgebungen zu quantifizieren. Dies wird mittels einer Kombination aus kostengünstigen Metalloxid-Halbleiter-Gassensoren (MOS), einem komplexen Temperaturzyklus (TCO) [7] und einer Auswertung mit Deep Learning Methoden erreicht. Dazu wird der Sensor zunächst mithilfe einer Gasmischanlage (GMA) [7] kalibriert. Während der Kalibrierung wird der Sensor in der GMA verschiedenen komplexen, aber genau bekannten Gasgemischen ausgesetzt. Anhand der aufgezeichneten Sensorsignale kann nun ein datengetriebenes Modell trainiert werden, welches es ermöglicht, die Gaskonzentrationen für unbekannte Mischungen der gleichen Gase sowohl in Laborumgebungen als auch im Feld vorherzusagen.

Methoden und Materialien

Datensatz

Im Folgenden wird der Datensatz von Baur et al. [7] verwendet. Dieser Datensatz beinhaltet neben zwei zeitlich voneinander getrennte Feldtests, die zur Evaluierung der Methoden in realen Umgebungen dienen, ebenfalls drei Kalibrierungsphasen im Labor. Mithilfe dieser Daten soll gezeigt werden, dass es möglich ist, die Konzentration aller Gase, die mittels der Kalibriermessungen im Labor trainiert worden sind, sowohl innerhalb der Laboruntersu-

chungen als auch in den Feldtests auf ppb-Niveau vorherzusagen. Die Gasgemische der Kalibrierungsphasen wurden dabei so zusammengestellt, dass sie vereinfacht der typischen Innenraumluft entsprechen. Die Gasgemische enthielten neben dem Schadstoff Formaldehyd, die VOCs Aceton, Toluol und Ethanol. Des Weiteren beinhalteten die Gasgemische die relevanten Hintergrundgase Wasserstoff und Kohlenstoffmonoxid, die die Quantifizierung von VOCs stark beeinflusst.

Der Datensatz wurde mittels eines MOS-Gassensors (SGP30, Sensirion, Staefa ZH, Schweiz) aufgezeichnet. Der SGP30 besteht aus vier gassensitiven Schichten auf einer Hotplate. Die Selektivität und Sensitivität wurden mittels des temperaturzyklischen Betriebs deutlich gesteigert [7]. Der Temperaturzyklus besteht aus mehreren Hoch- und Niedertemperaturphasen im Bereich von 100 °C bis 400 °C (s. Abb. 1). Eine Messung beinhaltet genau einen vollständigen Temperaturzyklus (2 Minuten). Die aufgezeichneten Daten repräsentieren die Widerstandswerte der vier gassensitiven Schichten über die Zeit. Insgesamt wurden während der Kalibrierungsphasen zehn Temperaturzyklen pro Gasgemisch aufgezeichnet. Dabei wurden 500 unterschiedliche Gasgemische während der Initialkalibrierung, 500 während der ersten Rekalibrierung (nach dem ersten Feldtest) und weitere 100 in der zweiten Rekalibrierung (nach dem zweiten Feldtest) aufgezeichnet (insgesamt 1100 unterschiedliche Gasgemische). Aufgrund von Synchronisationsproblemen wer-

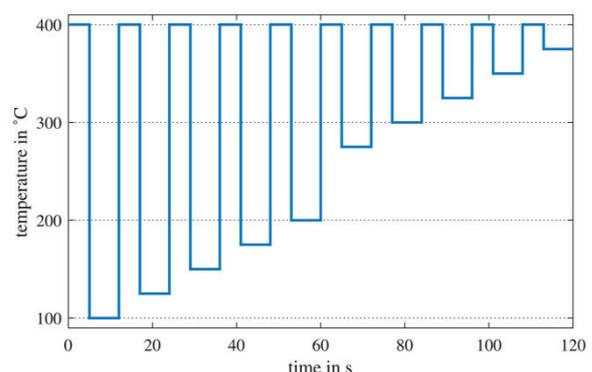


Abb. 1: Komplexer Temperaturzyklus [7].

den für die Auswertung nur fünf Temperaturzyklen pro Gasgemisch analysiert.

Außerdem werden für die weiteren Auswertungen lediglich die Gasgemische der Initialkalibrierung und die ersten 100 der ersten Rekalibrierung benutzt. Dadurch können die folgenden Ergebnisse mit den Ergebnissen aus [7] verglichen werden. Des Weiteren werden die Sensorsig-

nale, wie im Sauerwald-Baur Modell beschrieben [9,10], in den logarithmischen Leitwert überführt. Für die nachstehenden Auswertungen werden die Daten nochmals auf Basis der Gasgemische in 70 % Trainings-, 10 % Validierungs- und 20 % Testdaten unterteilt.

Modelle

Zur Auswertung werden als Referenz die Modelle aus [7] herangezogen. Diese Modelle basieren auf linearen Modellen des klassischen maschinellen Lernens, welche im folgenden FESR Modelle genannt werden. Die neu eingeführte Methode basiert auf einem Convolutional Neuronal Network (CNNs, s. Abb. 2), welches im folgenden TCOCNN [13] genannt wird.

Die Modelle des klassischen maschinellen Lernens verwendet Feature Extraktion (FE), Feature Selektion (FS) und ein Regressionsmodell, um die Gaskonzentrationen vorherzusagen. Zur Feature Extraktion werden die Leitwertsignale in 120 äquidistante Segmente eingeteilt. Auf jedem dieser Segmente wird der Mittelwert und die Steigung berechnet. Die daraus resultierenden 240 Features pro Sensorschicht (960 für alle Schichten) werden mittels rekursiver Feature Eliminierung (RFE) basierend auf der Regression der kleinsten Quadrate auf die 300 besten Features reduziert. Anschließend wird die partielle kleinste Quadrate Regression (engl. PLSR) bezüglich der benutzten Features und PLSR Komponenten mithilfe der Trainings- und Validierungsdaten optimiert. Eine detaillierte Beschreibung der Modellbildung ist in [7] zu finden.

Tab. 1: Parameter inklusive Wertebereich für Hyperparameteroptimierung [13].

Hyperparameter	Wertebereich
Initial learning rate (logarithmisch)	$1 \cdot 10^{-4}$ - $9 \cdot 10^{-3}$
Number of filters (erste beiden Schichten)	60 - 240
Kernel size (erste beiden Schichten)	40 - 80
Striding size (erste Schicht)	15 - 45
Dropout	30 % - 50 %
Number of neurons (Fully Connected Layer)	1000 - 2500

Das Modell des neuronalen Netzes besteht aus zehn Convolutional Layern gefolgt von zwei Fully-Connected Layern und basiert grundlegend auf dem Netz aus [8]. Das TCOCNN hat gegenüber [8] den Vorteil der geringeren Komplexität aufgrund der weggefallenden direkten Verbindungen zwischen zwei Convolutional Layern (s. Abb. 2). Für die Optimierung der Hyperparameter wird eine Neural Architecture Search (NAS) für jedes Gas durchgeführt. Bei der NAS werden alle Hyperparameter aus Tabelle 1 mittels einer Bayesschen Optimierung dahingehend angepasst, dass der Root Mean Square Error (RMSE) der Validierungsdaten minimiert wird. Dieses Vorgehen soll gewährleisten, dass das Modell auf jedes Gas angepasst wird und einen minimierten Fehler auf den Testdaten garantiert.

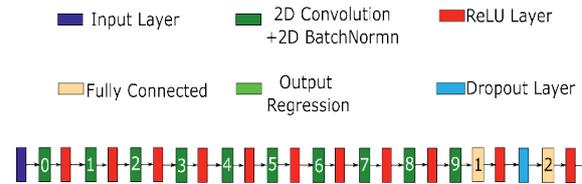


Abb. 2: Generelle Architektur des TCOCNN (angepasst von [8,13]).

Auswertung

Um die verschiedenen Modelle auf Basis der Kalibrierdaten untereinander vergleichen zu können, wird für jedes Gas ein Modell auf den Trainings- und Validierungsdaten gebildet. Anschließend können über den RMSE der Testdaten die zwei verschiedenen Modelle für ein spezifisches Gas verglichen werden.

Des Weiteren werden die Modelle, welche auf den Kalibrierdaten trainiert wurden, ebenfalls dazu benutzt, die Vorhersagequalität der Modelle auf den Feldtests miteinander zu vergleichen. Dabei wird, wie in den Labortests, zunächst ein Modell auf Basis der ersten 600 Kalibrierungsgemische trainiert und dann auf die Feldtests angewendet. Die Bewertung der Modelle basiert dann auf einem quantitativen Vergleich. Dazu wird zunächst die Ungenauigkeit der Vorhersagen der beiden Modelle verglichen. Um eine möglichst objektive Aussage treffen zu können, wurde ein möglichst konstanter Bereich zwischen dem 4. Oktober 12:00 Uhr und dem 5. Oktober 00:00 Uhr mithilfe eines gleitenden Mittelwertfilters (Fenstergröße eine Stunde) geglättet und als Referenz gewählt. Die Unsicherheit bestimmt sich nun durch die Standardabweichung der Vorhersage von dieser Referenz. Zusätzlich werden generelle Eigenschaften der Vorhersage untersucht, wie beispielsweise die Vorhersage von negativen Konzentrationen und die Grundkonzentrationen.

Des Weiteren werden die beiden Freisetzungen von Aceton und Toluol vom 16. Oktober untersucht. Dabei soll gezeigt werden, dass neben dem FESR Modell, ebenfalls das TCOCNN Modell dazu in der Lage ist, die Freisetzungen unter realen Bedingungen zu detektieren. Bei der untersuchten Freisetzung wurden zunächst um 14:50 Uhr ungefähr 600 ppb Aceton und Toluol freigesetzt. Diese Freisetzung wurde nochmals um 18:00 Uhr mit den gleichen Gasen und Stoffmengen wiederholt. Dadurch, dass die freigesetzten Mengen bekannt sind, sollten die beiden datengetriebenen Modelle, unter der Annahme das kein Gas verloren geht und sich die Gase im Raum gleichmäßig verteilen, ebenfalls Konzentrationen nahe der 600 ppb für Aceton und Toluol vorhersagen.

Außerdem wird die Vorhersage mit analytischen Messsystemen verglichen, welche zur gleichen Zeit im Einsatz waren. Dazu gehört der tragbare Gaschromatograph X-pid 9500 mit Photoionisationsdetektor (Dräger Safety AG & Co KGaA, Lübeck, Germany), welcher zur Untersuchung der VOCs dient. Zusätzlich wurden Tenax Röhren (Markes International Ltd, Llantrisant, Wales, UK) aufgezogen, um die Innenraumluft ebenfalls mittels Thermode-

sorption-Gaschromatographie-Massenspektroskopie (TD-GC-MS) zu analysieren.

Ergebnisse

Labormessungen

Abb.3 zeigt, dass das TCOCNN für alle Gase im Mittel bessere Ergebnisse erzielt als das FESR Modell. Lediglich

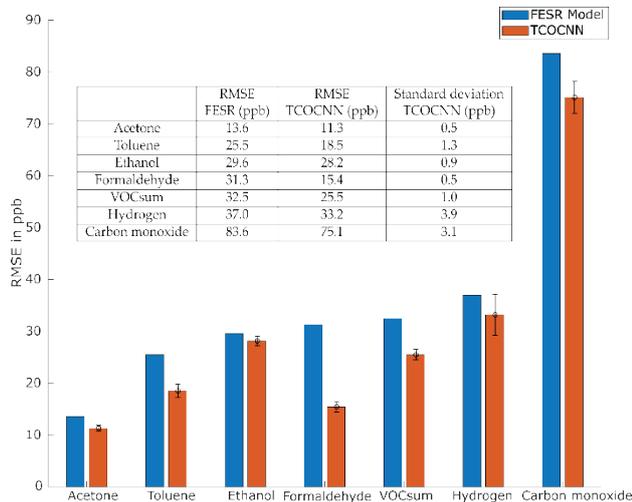


Abb. 3: Vergleich der erreichten RMSE-Werte von FESR (Baur et al. [7]) und TCOCNN (mit Standardabweichung) [13].

für Wasserstoff wurden einzelne Ergebnisse erzielt, die oberhalb des FESR Modells liegen. Die größte Verbesserung erreichte das TCOCNN Modell für Formaldehyde, hier konnte im Mittel ein 15.9 ppb kleinerer RMSE erreicht werden. Die besonders signifikante Verbesserung für Formaldehyde kann damit begründet werden, dass das ursprüngliche Modell von [8] für dieses Gas optimiert wurde. Es kann angenommen werden, dass mit einem weitreichenden Hyperparametertuning (auch Parameter, die für diesen Versuch konstant waren) ähnliche Verbesserungen für die anderen Gase erreicht werden können. Nichtsdestotrotz konnte gezeigt werden, dass es möglich ist, dass das TCOCNN an alle Gase automatisiert angepasst werden kann und bessere Ergebnisse erzielt als das FESR Modell [13].

Generelle Feldtests

Bevor die Feldtests bezüglich der Freisetzungen analysiert werden, werden in diesem Abschnitt die generellen Verläufe der datengetriebenen Modelle untersucht. In Abb. 4 sind die vorhergesagten Konzentrationen von Formaldehyd und Wasserstoff für die FESR und TCOCNN Modelle dargestellt. Zunächst wird anhand von Abb. 4 deutlich, dass sich die Grundkonzentration der FESR und TCOCNN Modelle deutlich unterscheiden. So ist beispielsweise die Grundkonzentration für das TCOCNN bezüglich der Formaldehydkonzentration immer deutlich geringer als die des FESR Modells. Im Gegensatz dazu ist die Grundkonzentration des TCOCNN Modells für Was-

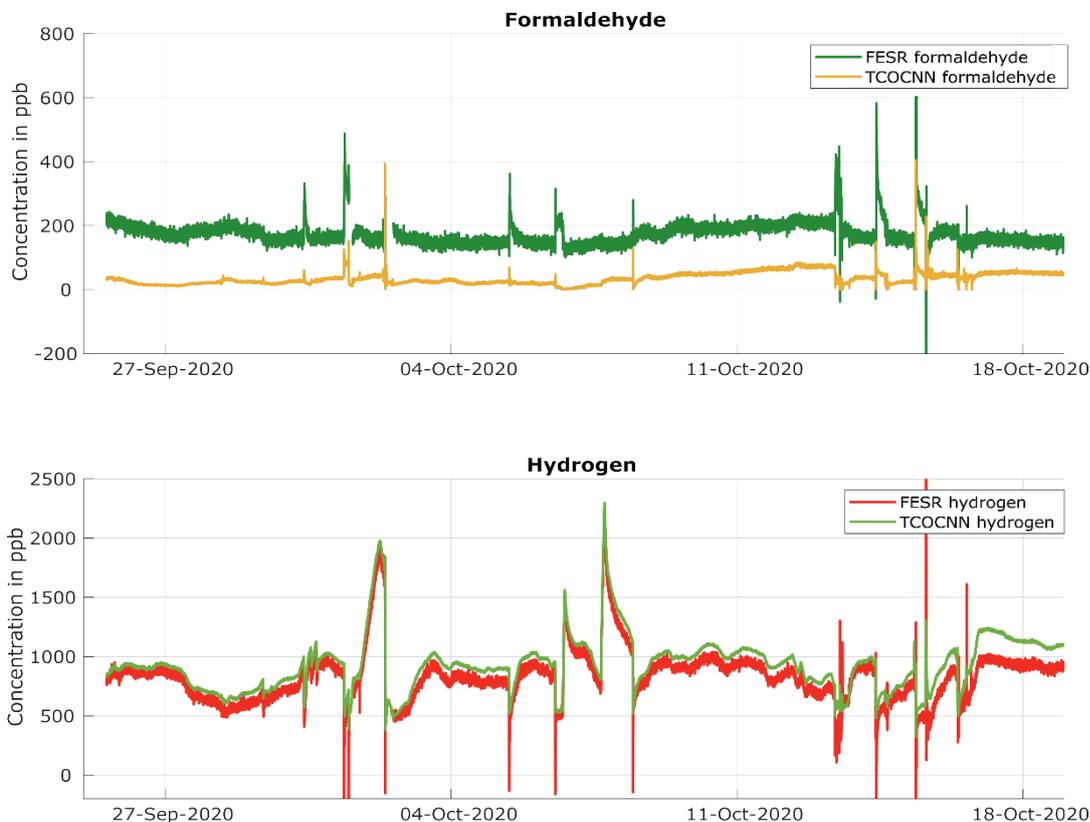


Abb. 4: Vorhersage von Formaldehyd und Wasserstoff über einen längeren Zeitraum mittels TCOCNN und FESR [13].

serstoff leicht höher. Bezüglich der absoluten Genauigkeit kann keine Aussage getroffen werden, da beide Modelle gleichermaßen falsch liegen können. Um dies genau zu spezifizieren, sind weitere kalibrierte Referenzsysteme notwendig. Es kann allerdings festgehalten werden, dass die vorhergesagten Konzentrationen des TCOCNN durchaus realistischer sind. Das kann bei Formaldehyd dadurch begründet werden, dass die vorhergesagten Konzentrationen des TCOCNN größtenteils unterhalb des von der WHO festgelegten Maximum von 80 ppb [12] liegen. Das gleiche gilt für Wasserstoff. Dort wird während der Lüftungsevents eine Konzentration von 500 ppb erwartet [11]. Dieser Wert wird für das TCOCNN während dieser Events erreicht, wohingegen das FESR meist niedrigere Konzentrationen vorhersagt.

Des Weiteren zeigt Abb. 4, dass die Vorhersagen der FESR Modelle eine größere Standardabweichung aufweist (Formaldehyd: TCOCNN 1.6 ppb vs. FESR 9.9 ppb; Wasserstoff: TCOCNN 3.7 ppb vs. FESR 19.0 ppb [13]) und das während der Lüftungsevents sowohl für Formaldehyd als auch Wasserstoff des Öfteren Konzentrationen unterhalb von 0 ppb vorhergesagt werden. Diese Signaleigenschaften zeigen deutlich, dass das TCOCNN Modell dazu fähig ist, qualitativ hochwertige

Vorhersagen zu generieren, die dem FESR Modell überlegen sind [13].

Freisetzung von Aceton und Toluol im Feld

Abb. 5 zeigt, dass sowohl die FESR Modelle als auch die TCOCNNs die beiden Freisetzungen von Aceton und Toluol mit einer zeitlich hohen Auflösung detektieren können. Hierbei ist besonders anzumerken, dass die generellen zeitlichen Verläufe bei den verschiedenen datengetriebenen Modellen nahezu identisch sind.

Es ist ebenfalls zu sehen, dass die vorhergesagte Konzentration der Toluol Modelle langsamer ansteigt als die der Aceton Modelle. Dies kann damit begründet werden, dass Toluol einen niedrigeren Dampfdruck als Aceton besitzt. Dieser Effekt wird besonders bei der zweiten Freisetzung deutlich. Zu diesem Zeitpunkt war die Raumtemperatur geringer als bei der ersten Freisetzung (bei Nacht), weswegen das Toluol nochmals langsamer verdampfte. Mithilfe dieser Beobachtung kann gezeigt werden, dass beide Modelle physikalisch plausible Verläufe vorhersagen.

Des Weiteren ist zu sehen, dass sowohl das TCOCNN (550 ppb) als auch das FESR Modell (600 ppb) für die beiden Gase Aceton und Toluol Konzentrationsanstiege

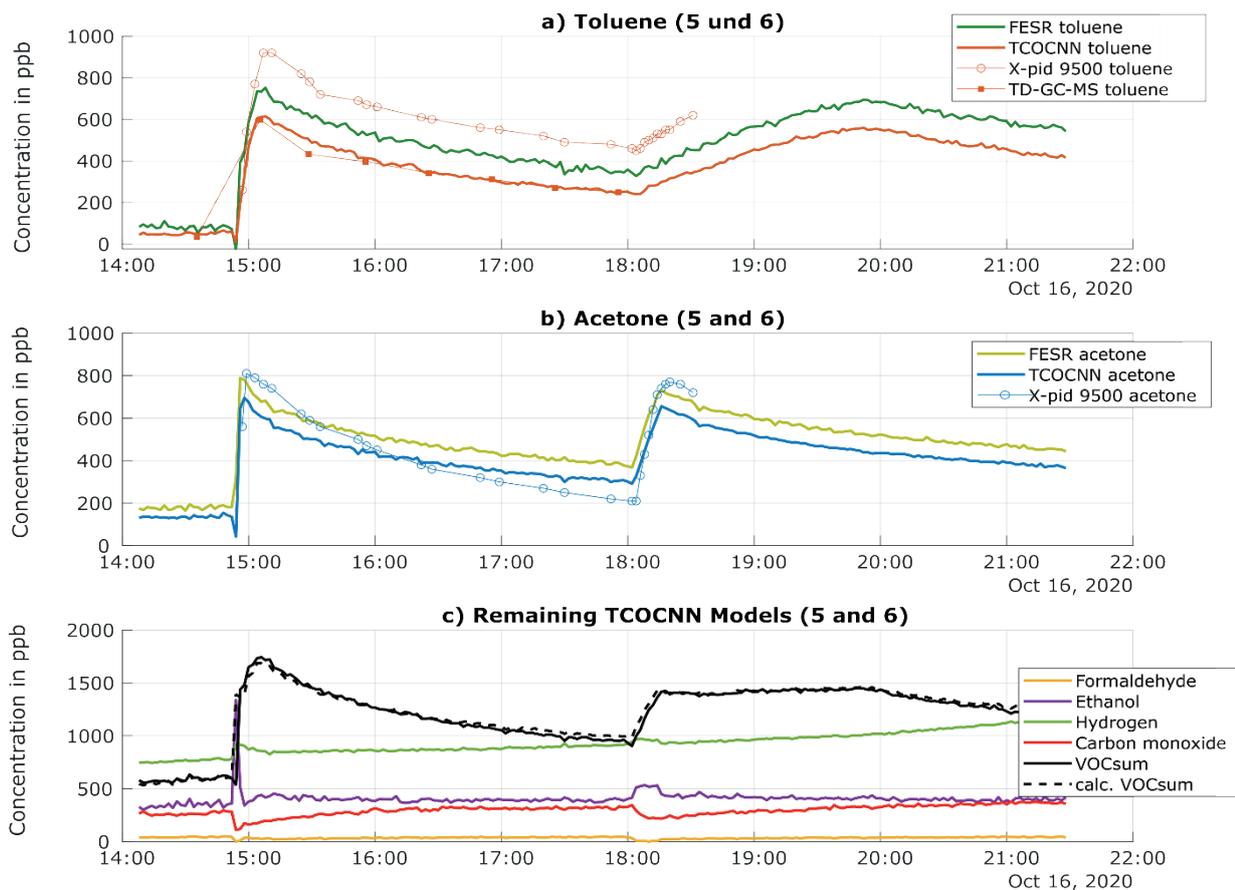


Abb. 5: Vorhersage aller Gase während der Freisetzung von Toluol und Aceton mittels TCOCNN, FESR, X-pid 9500 und TD-GC-MS. (a) Vorhersage von Toluol mittels TCOCNN, FESR, X-pid 9500 und TD-GC-MS. (b) Vorhersage von Aceton mittels TCOCNN, FESR, X-pid 9500. (c) Vorhersage aller anderen trainierter Gase und Kenngrößen mittels TCOCNN (angepasst von [7,13]).

nahe der theoretisch freigesetzten Menge von 600 ppb vorhersagen. Wie allerdings schon im Abschnitt bezüglich der generellen Feldtestergebnissen angemerkt, kann sowohl das TCOCNN als auch das FESR Modell näher an dem tatsächlichen Konzentrationsanstieg liegen. Dies liegt vor allem daran, dass der Anstieg der Konzentration sensorseitig durch Verluste aufgrund von Ventilation, Adsorption an Oberflächen oder ungleichmäßiger Verteilung im Raum sowohl geringer als auch höher zu dem theoretisch zu erwartendem Wert sein kann. Um weitere Aussagen über die Qualität der Vorhersagen treffen zu können, wurden zusätzlich zu den Gassensoren ebenfalls Daten mit dem X-pid 9500 und dem TD-GC-MS aufgezeichnet.

Das Referenzsystem X-pid-9500 sagt sowohl für Aceton als auch Toluol eine höhere maximale Konzentration als die datengetriebenen Modelle vorher. Die höhere Konzentration kann damit erklärt werden, dass die Quantifikationsgrenze für Toluol bei 1 ppm und für Aceton bei 500 ppb liegt und damit die reelle Konzentration der beiden Gase von den gemessenen Werten abweichen können. Nichtsdestotrotz kann mithilfe des X-pid 9500 der generelle Verlauf der datengetriebenen Modelle validiert werden.

Das TD-GC-MS als „Gold-Standard“ für Toluol kann über die absolute Konzentration von Toluol eine Aussage treffen. Dabei ist zu sehen, dass das TD-GC-MS sowohl eine ähnliche Grundkonzentration als auch Konzentrationsanstieg wie das TCOCNN vorhersagt. Allerdings muss angemerkt werden, dass das GC-MS nicht kalibriert war und deshalb die Ergebnisse mit Vorsicht betrachtet werden müssen. Nichtsdestotrotz gibt das Ergebnis einen Hinweis darauf, dass das TCOCNN Modell möglicherweise dazu in der Lage ist, genauere Konzentration vorherzusagen.

In Abb. 5c sind die Modelle des TCOCNNs für die weiteren Gase abgebildet. Dabei entspricht der Summen-VOC-Wert weitestgehend der Addition der verschiedenen Einzelgase (VOCs). Außerdem sind die Modelle der anderen Gase kaum von den Freisetzung von Aceton und Toluol beeinflusst. Ethanol und Formaldehyde zeigen lediglich einen temporären und verhältnismäßig vernachlässigbaren Ausschlag. Bezüglich des Wasserstoffs sind ebenfalls kleine kurze Anstiege zu erkennen, wobei die ursprüngliche Konzentration schnell wieder erreicht wird. Wasserstoff zeigt des Weiteren einen Anstieg über die Zeit. Dieser Anstieg kann mit dem Zerfall der VOCs in Wasserstoff in Verbindung gebracht werden. Das einzige Gas, welches signifikant von den Freisetzungstests beeinflusst wird, ist Kohlenstoffmonoxide. Für dieses Gas kann ein deutlicher Abfall der Konzentration beobachtet werden, welcher deutlich über eine längere Periode anhält. Dieser Effekt kann damit begründet werden, dass der SGP30 keine besonders gute Selektivität für dieses Gas besitzt [7], wie bereits mithilfe der datengetriebenen Modelle in den Laboruntersuchungen gezeigt [13].

Diskussion

Die gezeigten Ergebnisse belegen, dass das TCOCNN sowohl im Labor als auch in den Feldtests zur Quantifizierung von VOCs und Hintergrundgasen eingesetzt werden kann und durchaus bessere Ergebnisse liefert als die linearen Modelle der FESR Methode. Es wurde gezeigt, dass die TCOCNN Methode für alle Gase, die während der Laboruntersuchung analysiert wurden, kleinere RMSE Werte als die FESR Modelle erreicht. Bezüglich der Feldtests waren die vorhergesagten Konzentrationen des TCOCNN Modell von höherer Qualität als die der FESR Modelle, da eine geringere Standardabweichung erreicht werden konnte und keine Vorhersagen unterhalb von 0 ppb getroffen wurden. Bezüglich der Freisetzungstests war deutlich zu erkennen, dass sowohl das FESR Modell als auch das TCOCNN dazu in der Lage waren die Freisetzungen mit hoher zeitlicher Auflösung zu detektieren. Letztlich bestand die höchste Übereinstimmung für Toluol zwischen dem TD-GC-MS und dem TCOCNN Modell. Diese Ergebnisse bestätigen, dass das TCOCNN Modell in Verbindung mit MOS-Gassensoren und komplexer Betriebsmodi dazu in der Lage ist, die Qualität der Innenraumluft vorherzusagen.

Zukünftige Arbeiten werden die absolute Genauigkeit, der TCOCNN- und der FESR-Methoden mit Hilfe von kalibrierten Referenzmesssystemen untersuchen. Des Weiteren ist immer noch offen, auf Basis welcher Features das TCOCNN Modell seine Vorhersagen trifft und wie diese Features physikalisch zu interpretieren sind.

Literatur

- [1] United Nations, D.o.E.; Development, S.A. Ensure healthy lives and promote well-being for all at all ages. <https://sdgs.un.org/goals/goal3>. (Aufgerufen: 26.08.2021)
- [2] Hauptmann, M. et al.: Mortality from Solid Cancers among Workers in Formaldehyde Industries. *American Journal of Epidemiology* (2004) 159, 1117–1130, doi:10.1093/aje/kwh174.
- [3] U.S. Environmental Protection Agency. 1989. Report to Congress on indoor air quality: Volume 2. EPA/400/1-89/001C. Washington, DC.
- [4] Schütze, A.; Sauerwald, T.: Indoor air quality monitoring, in: Eduard Llobet (ed.): *Advanced Nanomaterials for Inexpensive Gas Microsensors*, Elsevier, 2020, Pages 209-234, ISBN: 978-0-12-814827-3
- [5] Pegas P N et al.: Indoor and outdoor characterization of organic and inorganic compounds in city centre and suburban elementary schools of Aveiro, Portugal. *Atmospheric Environment* (2012) 55:80–89.
- [6] Paciencia I, et al.: A systematic review of evidence and implications of spatial and seasonal variations of volatile organic compounds (VOC) in indoor human environments. *J. Toxicol. Environ. Health B* (2016) 19(2):47–64.
- [7] Baur, T. et al.: A Field Study of Metal Oxide Semiconductor Gas Sensors in Temperature Cycled Operation for Selective VOC Monitoring in Indoor Air. *Atmosphere* (2021) 12, 647. doi:10.3390/atmos12050647.

- [8] Robin, Y. et al.: Machine Learning based calibration time reduction for Gas Sensors in Temperature Cycled Operation. 2021 IEEE Int. Instr. Meas. Techn. Conf. (I2MTC), pp. 1–6. doi:10.1109/I2MTC50364.2021.9459919.
- [9] Schultealbert, C.; Baur, T.; Schütze, A.; Böttcher, S.; Sauerwald, T. A novel approach towards calibrated measurement of trace gases using metal oxide semiconductor sensors. *Sens. Actuators B Chem.* 2017, 239, 390–396.
- [10] Baur, T.; Schütze, A.; Sauerwald, T. Optimierung des temperaturzyklischen Betriebs von Halbleitersensoren (Optimization of temperature-cycled operation of semiconductor gas sensors). *TM-Tech. Mess.* 2015, 82, 187–195.
- [11] R. Schleyer, E.B.; Wallasch, M. Das Luftmessnetz des Umweltbundesamtes. Umweltbundesamt: Dessau-Roßlau, Germany 2013.
- [12] WHO. WHO Regional Office for Europe Centers of Disease Control, WHO Guidelines for Indoor Air Quality: Selected Pollutants; World Health Organization: Copenhagen, Denmark, 2010; Volume 9, ISBN 978-92-890-0213-4.
- [13] Robin, Y.; Amann, J.; Baur, T.; Goodarzi, P.; Schultealbert, C.; Schneider, T.; Schütze, A. High-Performance VOC Quantification for IAQ Monitoring Using Advanced Sensor Systems and Deep Learning. *Atmosphere* 2021, 12, 1487. <https://doi.org/10.3390/atmos12111487>