

基于多尺度扩张卷积神经网络的近红外光谱定量分析模型研究

李强 陈蓓* 张芳

(陕西科技大学电气与控制工程学院, 西安 710021)

摘 要 近红外光谱(Near infrared spectroscopy, NIRS)技术广泛应用于医药、食品和化工行业的定量分析中。本研究提出了一种基于多尺度扩张卷积神经网络的近红外光谱定量分析模型(Multi-scale dilated convolutional spectral network, MDCSpecNet),该模型由一维卷积层、批归一化层、最大池化层、多尺度扩张卷积神经网络和全连接层组成,其中,一维卷积层和最大池化层对原始光谱做初步特征提取和特征降维,批归一化层加快模型收敛,多尺度扩张卷积神经网络对光谱特征进行提取与融合,全连接层对特征信息进行线性表示,增加模型的预测精度和泛化能力。利用公开的药品、谷物、小麦、牛奶、汽油与三聚氰胺的近红外光谱数据集建立 MDCSpecNet 预测模型,并与一维卷积神经网络(One dimensional convolution neural network, 1D-CNN)、偏最小二乘法(Partial least squares, PLS)、支持向量机(Support vector regression, SVR)和极限学习机(Extreme learning machine, ELM)建模方法的预测结果进行对比分析。结果表明,在药品活性成分(Active pharmaceutical ingredient, API)含量、谷物葡萄糖含量、谷物乳酸盐含量、谷物水分含量、小麦蛋白质含量、汽油辛烷值以及三聚氰胺浊点预测中,相较于其它 4 种建模方法, MDCSpecNet 模型的精度分别提升了 16.0%、36.7%、25.1%、22.6%、34.2%、15.2%、22.6%(1D-CNN), 46.9%、66.7%、73.2%、65.8%、16.6%、15.9%、13.7%(PLS), 68.1%、70.6%、81.7%、73.9%、69.2%、77.9%、56.0%(SVR)和 62.0%、20.4%、48.9%、85.6%、50.4%、13.0%、44.6%(ELM)。基于多尺度扩张卷积神经网络的 MDCSpecNet 模型解决了传统近红外光谱建模方法精度低和泛化能力差等问题,利用 MDCSpecNet 模型进行多种物质的近红外光谱定量分析是可行的。

关键词 近红外光谱; 定量分析; 扩张卷积; 多尺度特征融合

相比于传统的化学分析方法,近红外光谱(Near infrared spectroscopy, NIRS)技术具有快速分析、无损检测、操作简便以及绿色无污染等显著优势,常被用于样品的在线分析检测^[1]。为更好地将该技术应用于农业^[2]、食品^[3]和医药^[4]等领域的定量分析,建立一种预测精度高且泛化能力强的近红外光谱定量分析模型尤为重要。目前,近红外光谱定量分析中常用的建模方法包括偏最小二乘法(Partial least squares, PLS)^[5]、支持向量机回归法(Support vector machine, SVM)^[6]、极限学习机(Extreme learning machine, ELM)^[7]和 BP 神经网络(Back propagation neural network, BP)^[8]等。这些传统建模方法依赖于光谱数据的预处理操作,其定量分析过程复杂,光谱重要特征信息易丢失,同时可能引入无用噪声,降低模型的预测精度。此外,当光谱变量存在多重共线性等问题时,传统建模方法通常无法有效捕捉到变量间的潜在联系,导致模型预测精度与泛化能力下降。

随着深度学习的发展,卷积神经网络(Convolution neural network, CNN)因其信息提取能力强、精度高而被用于图像处理,后拓展至近红外光谱分析中,其中,一维卷积神经网络(One dimensional convolution neural network, 1D-CNN)处理高维数据时优势明显,可端到端建模且无需复杂预处理^[9-10]。陈俊名等^[11]利用特征金字塔与自适应特征融合网络提取到更丰富的光谱数据特征,基于该网络建立的定量模型在处理玉米数据集时表现良好;Liu 等^[12]利用光谱数据融合技术建立了一种 1D-CNN 模型用于柴油中的甲醇与乙醇含量预测,其性能指标优于传统的 1D-CNN,于水等^[13]将专家和门控模块引入到 1D-CNN 中,实现了

谷物和玉米的多组分定量分析。上述定量模型多基于少量数据集构建,且精度和泛化能力均有待提高。

本研究提出了一种基于多尺度扩张卷积神经网络的近红外光谱定量分析模型(Multi-scale dilated convolutional spectral network, MDCSpecNet),在扩张卷积神经网络(Dilated convolution neural network, DCNN)中引入多尺度特征融合(Multi-scale feature fusion, MSFF)思想^[14],对近红外光谱数据的全局有效特征进行提取。以药片、谷物、小麦、牛奶、汽油以及三聚氰胺数据集为研究对象对模型进行评估。结果表明,与 1D-CNN、PLS、SVR 和 ELM 相比,MDCSpecNet 模型的预测精度以及泛化能力等更优。

1 实验部分

1.1 数据来源

1.1.1 药品数据集

药品数据集源自 <https://eigenvector.com/wp-content/uploads/2019/06>,该数据集由两台丹麦 Foss 公司产的仪器(NIRSystems Multitab Spectrometers)采集。本研究使用国际发展研究中心(International Development Research Centre, IDRC)2002 “Shootout”数据集的 655 个药片样本,波长范围为 600~1898 nm,波长间隔为 2 nm,共 650 个波长点。药品活性成分(Active pharmaceutical ingredient, API)含量统计见表 1,药品数据集光谱如图 1A 所示。

1.1.2 谷物数据集

谷物数据集源自 <https://eigenvector.com/wp-content/uploads/2021/04>,本研究采用谷物库(Cereals Grain Library, CGL)中 CGL 数据集的 231 个谷物样本的 NIRS 数据,波长范围为 1104~2495 nm,波长间隔为 12 nm,共 117 个波长点。谷物的酪蛋白、葡萄糖、乳酸盐和水分含量统计见表 1,谷物数据集光谱如图 1B 所示。

1.1.3 小麦数据集

小麦数据集源自 https://www.cnirs.org/content.aspx?page_id=86&club_id=409746,本研究采用 IDRC 2016 “Shootout”数据集中 248 个小麦(Wheat)样本的 NIRS 数据,波长范围为 730~1100 nm,波长间隔为 0.5 nm,共 741 个波长点。小麦蛋白质含量统计见表 1,小麦数据集的光谱如图 1C 所示。

1.1.4 牛奶数据集

牛奶数据集源自 <http://code.google.com/p/multivariate-calibration/downloads/list>,本研究使用牛奶(Milk)数据集的 67 个样本数据,各样本光谱扫描 32 次并取其平均值,扫描间隔为 4 cm⁻¹,波长范围为 1000~2500 nm。牛奶蛋白质含量统计见表 1,牛奶数据集光谱如图 1D 所示。

1.1.5 汽油数据集

汽油数据集源自 <https://github.com/qli067542/NIR>,本研究采用汽油(Gasoline)数据集的 60 个样本,波长范围为 900~1700 nm,波长间隔为 2 nm,共 401 个波长点。汽油辛烷值统计见表 1,汽油数据集的光谱如图 1E 所示。

1.1.6 三聚氰胺数据集

三聚氰胺数据集源自 <https://github.com/RNL1/Melamine-Dataset>,本研究选择三聚氰胺(Melamine)数据集的 3032 个样本进行实验,波长范围为 1599~1803 nm,每个样本的光谱含有 225 个波长点。三聚氰胺数据的浊点读数统计见表 1,该数据集的光谱如图 1F 所示。

以上数据集均采用 Kennard-Stone(K-S)方法进行划分,将数据集按 8:2 的比例划分为训练集和测试集,统计结果见表 1。

1.2 模型原理

1.2.1 模型结构

近红外光谱数据变量多且含有大量噪声,传统卷积操作在提取光谱序列中关键信息时的感受野小,容易丢失重要特征,而扩张卷积通过在特征序列中添加填充零,使其与普通卷积相比,在包含相同的参数的同时感受野显著增大。这一特性有助于减少模型参数量,提升网络对光谱数据长距离特征的捕捉能力,从而使模型能有效学习光谱样本与其对应性质之间的复杂关系。

表 1 不同样本的训练集和测试集中真实值统计表
Table 1 Statistics table of true values in train sets and test sets for different samples

样本 Sample	数据集 Data set	样本数 Number of samples	最大值 Maximum	最小值 Minimum	平均值 Mean	标准差 Standard deviation
药片 API Tablets API (%)	训练集 Train set	524	0.6373	0.4072	0.5031	0.0469
	测试集 Test set	131	0.5790	0.4110	0.4936	0.0416
谷物酪蛋白 Grain casein (%)	训练集 Train set	185	88.8300	0.0	30.5630	23.2787
	测试集 Test set	46	71.0400	0.0	25.7828	18.2253
谷物葡萄糖 Grain glucose (%)	训练集 Train set	185	91.5000	0.0	32.8642	24.2101
	测试集 Test set	46	64.0400	0.0	20.9876	14.6371
谷物乳酸盐 Grain lactate (%)	训练集 Train set	185	75.7099	0.0	22.4679	18.2771
	测试集 Test set	46	68.1299	0.0	36.3680	18.4292
谷物水分 Grain moisture (%)	训练集 Train set	185	24.2900	5.3000	12.0852	4.2558
	测试集 Test set	46	22.5499	6.4200	15.1559	4.3625
小麦蛋白质 Wheat protein (%)	训练集 Train set	198	18.6900	7.9700	13.5463	2.1179
	测试集 Test set	50	18.5000	8.7000	14.0174	2.0292
牛奶蛋白质 Milk protein (%)	训练集 Train set	54	3.4790	0.8287	2.0546	1.0128
	测试集 Test set	13	3.3503	1.0254	1.5781	0.9281
汽油辛烷 Gasoline octane (%)	训练集 Train set	48	89.6000	83.4000	87.2104	1.5129
	测试集 Test set	12	88.9000	84.4000	87.0458	1.5275
三聚氰胺浊点 Melamine turbidity point (°C)	训练集 Train set	2426	44.2000	-7.0000	19.4185	16.4952
	测试集 Test set	606	43.0000	-5.0000	21.1196	16.7010

注(Note): API,药品活性成分(Active pharmaceutical ingredient)。

本研究提出的 MDCSpecNet 模型由输入层卷积、批归一化层、最大池化层、扩张卷积神经网络、展平层和全连接层组成,其结构图如图 2 所示。其中,输入层卷积核数目为 32,卷积核大小为 5×1;批归一化层的输入维度为 32;最大池化层窗口大小为 2,缩小比例因数为 2;多尺度扩张卷积神经网络由 n 个具有不同扩张率的并联扩张卷积和 n 个具有不同扩张率的串联扩张卷积组成,卷积核数目均为 32,卷积核大小均为 3×1;FC 为展平层;全连接层输出维度为 1,无激活函数。

为了提升扩张卷积神经网络对光谱信息的提取能力,本研究在扩张卷积神经网络中引入了多尺度特征融合思想,建立了一种多尺度扩张卷积神经网络(Multi-scale dilated convolution neural network),其结构图如图 3 所示。在该网络中,光谱特征通过不同扩张率的扩张卷积提取多尺度特征,并将得到的多尺度

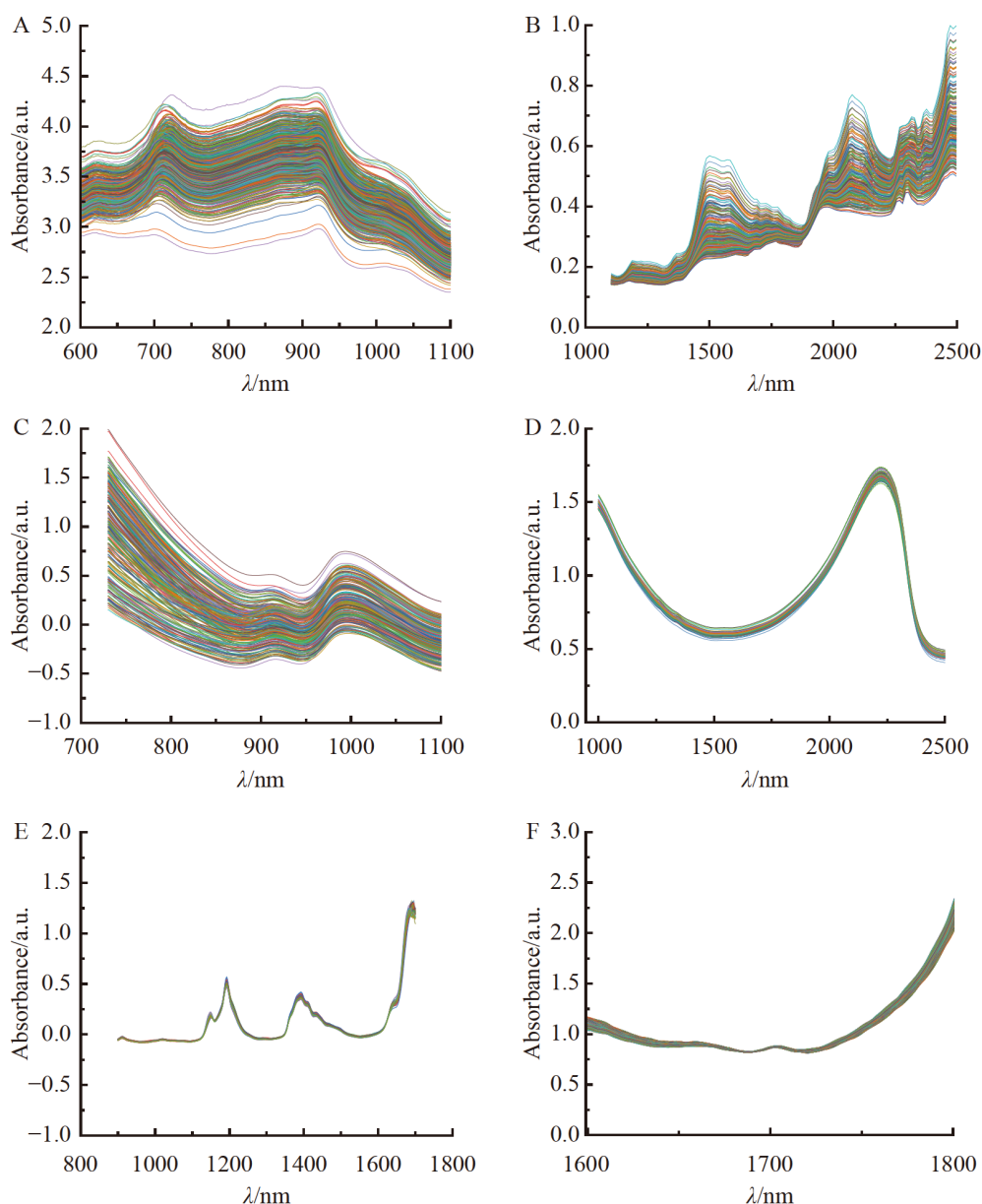


图1 6种数据集的近红外光谱图: (A) 药品样本; (B) 谷物样本; (C) 小麦样本; (D) 牛奶样本; (E)汽油样本; (F)三聚氰胺样本

Fig.1 Near-infrared spectra of six data sets: (A) Tablet samples; (B) Grain samples; (C) Wheat samples; (D) Milk samples; (E) Gasoline samples; (F) Melamine samples

的特征序列 Add 1、Add 2、Add 3 至 Add n 进行交叉求和操作,生成特征信息 Add,再由串联扩张卷积进行二次特征提取,其中,不同的 Block 代表不同扩张率的扩张卷积。

MDCSpecNet 模型训练过程中使用 Adam 优化器,训练轮次为 200,训练批次大小为 16,初始的学习率设定为 0.001,同时,将学习率衰减速率设定为 0.5,使用均方误差(Mean squared error, MSE)损失函数。MSE 定义如下:

$$\text{MSE} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (\hat{y}_i - y_i)^2 \quad (1)$$

其中, y_i 和 $\hat{y}_i$ 分别是第 i 个样本的真实值和模型预测值; n 是样本数量。

1.2.2 算法原理

基于扩张卷积神经网络搭建 MDCSpecNet 模型,光谱数据依次通过输入卷积层、池化层、多尺度扩

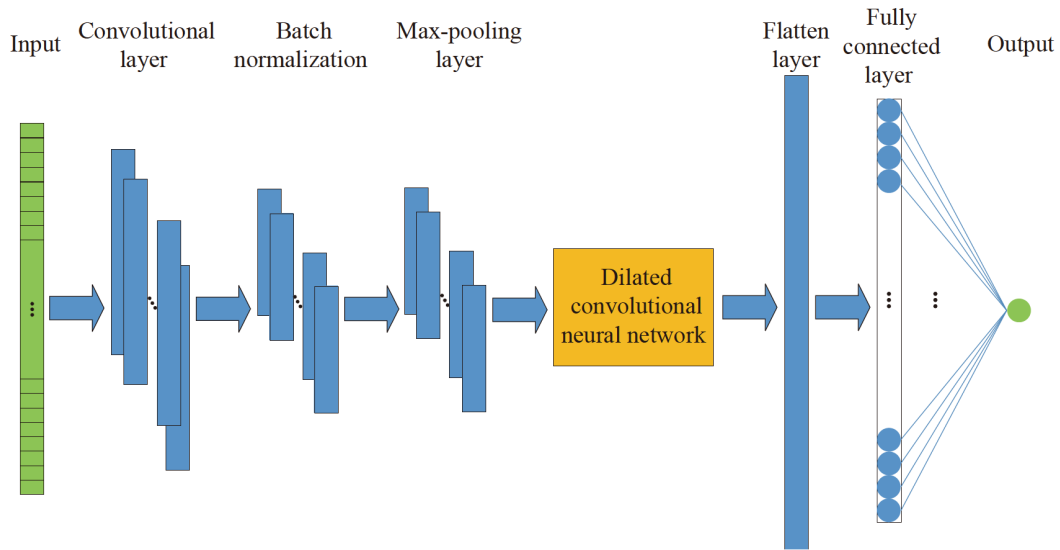


图2 多尺度扩张卷积神经网络光谱定量分析模型(MDCSpecNet)的结构图

Fig.2 Structure diagram of multi-scale dilated convolutional spectral network (MDCSpecNet)

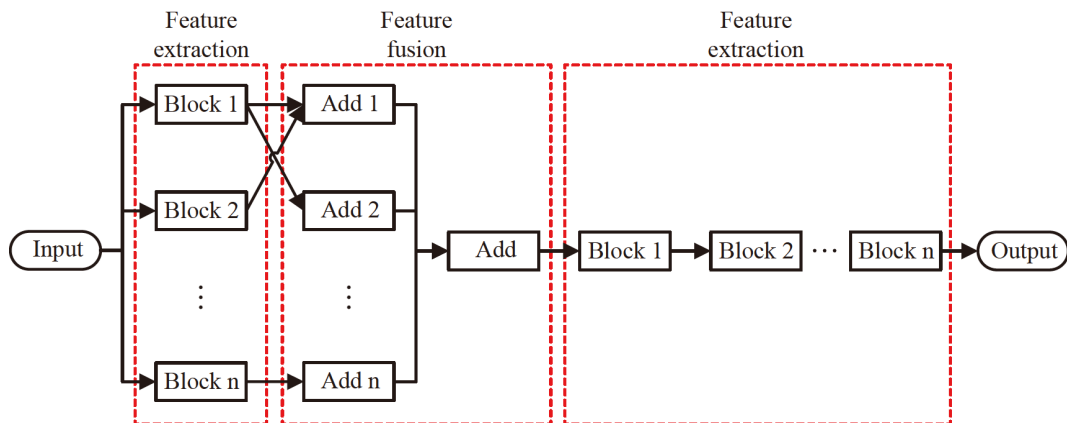


图3 多尺度扩张卷积网络结构图

Fig.3 Structure diagram of multi-scale dilated convolutional network

张卷积网络与全连接层,建立近红外光谱数据 X 与真实值 Y 之间的映射关系,模型算法流程如图 4 所示。首先,采集样本的近红外光谱数据及其真实值,划分数据集并初始化模型参数后,开始训练模型。原始光谱进入模型后,先由输入端卷积层初步处理其光谱特征,随即进行批归一化操作,再经池化层降维。处理后的光谱特征序列进入多尺度扩张卷积网络,通过其并联结构提取不同感受野的光谱特征,特征融合操作保留不同尺度的互补特征信息,再由串联扩张卷积进行深层抽象特征的捕捉,抽取的关键特征序列经展平层处理为一维特征序列,再经全连接层线性表示之后得到预测值。计算预测值与真实值的 MSE,并由 Adam 优化器对模型参数进行调整,重复以上过程直至训练轮次达到设定值,最终保存最优的 MDCSpecNet 模型。

1.3 模型评价

本研究采用的模型评价指标分别为均方根误差(Root-mean-square error, RMSE)、相关系数(Coefficient of determination, R^2)、相对分析误差(Residual predictive deviation, RPD)。各评价指标的计算公式如下:

$$\text{RMSE} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (\hat{y}_i - y_i)^2}{N-1}} \quad (2)$$

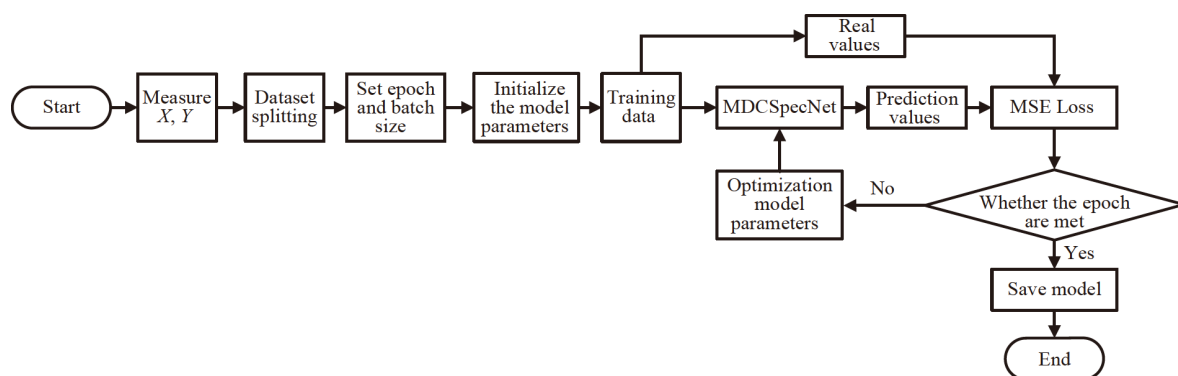


图4 MDCSpecNet 模型算法流程图。X, 近红外光谱样本数据; Y, 近红外光谱样本真实值; Epoch, 模型训练轮数; Batch size, 样本批次大小; MSE Loss, 均方误差损失

Fig.4 Algorithm flow chart of MDCSpecNet model. X, near infrared spectroscopy sample data; Y, near infrared spectroscopy sample true value; Epoch, number of model training rounds; Batch size, sample lot size; MSE Loss, mean square error loss

$$R^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (\hat{y}_i - \bar{y})^2}{\sum_{i=1}^N (y_i - \bar{y})^2} \quad (3)$$

$$RPD = \frac{SD}{RMSE} \quad (4)$$

其中, y_i 和 $\hat{y}_i$ 分别为数据集的第 i 个样本的真实值和模型预测值; $\bar{y}$ 为数据集样本真实值的平均值; N 为数据集样本数; SD 为预测集样本的标准差; 式(4)中的 RMSE 为测试集均方根误差。

2 结果与讨论

首先对建立的定量模型中的扩张卷积神经网络的结构与参数进行优化,以获得最佳的定量模型。随后在药品、谷物、小麦、牛奶、汽油与三聚氰胺数据集中对 MDCSpecNet、1D-CNN、PLS、SVR 和 ELM 建模方法的预测结果进行对比分析,实验设计如图 5 所示。其中,1D-CNN 含有 7 个卷积层,各卷积层后均有 1 个池化层和 1 个批归一化层,由全连接层输出预测值,其卷积核大小均为 5,步长为 1,卷积核数量均为 32。PLS 使用 5 倍交叉验证优化潜在变量(Latent variables, LV),6 种数据集对应的潜在变量分别为 8、10、8、6、7、8,均采用 Sigmoid 激活函数。SVR 使用网格搜索进行超参数优化,从 0.001、0.01、0.1、1、10、100、1000 和 0.0001、0.001、0.01、0.1、1、10、100 中选取其 Gamma 参数和核系数,并使用 RBF 作为核函数。ELM 在 6 种数据集上对应的隐藏层参数分别为 22、23、20、18、19 和 20。所有模型均在 Pytorch2.0.0 框架和 Sklearn1.0.2 框架以及 Numpy 和 Pandas 数据库等环境下搭建,并在 NVIDIA GeForce GTX3090 上训练。

2.1 模型优化

2.1.1 扩张卷积神经网络中卷积层数对模型性能的影响

为建立预测性能最佳且网络结构合理的定量模型,以汽油数据集为例,建立 MDCSpecNet 模型,并将模型中扩张卷积神经网络的 Block 层数对预测性能的影响进行对比分析。在实验中设定 Block 层数为 0~12,同时从 0 开始增加扩张卷积网络中并联与串联的 Block 层,间隔层数为 2,扩张率为 1~13,间隔为 2。模型中输入卷积层、批归一化层、最大池化层、展平层与全连接层的结构与参数均保持不变,共进行 7 组实验,实验结果见表 2。

由表 2 可知,当 Block 层数小于 6 时,随着 Block 层数增加,模型测试集的 RMSE 逐渐下降,且模型的 RPD 值增大;当 Block 层数大于 6 时,随着 Block 层数增加,模型测试集 RMSE 开始增大,RPD 值减小且模型参数量骤增,此时模型精度下降是由于扩张卷积神经网络的深度增加,导致模型对新数据的泛化能

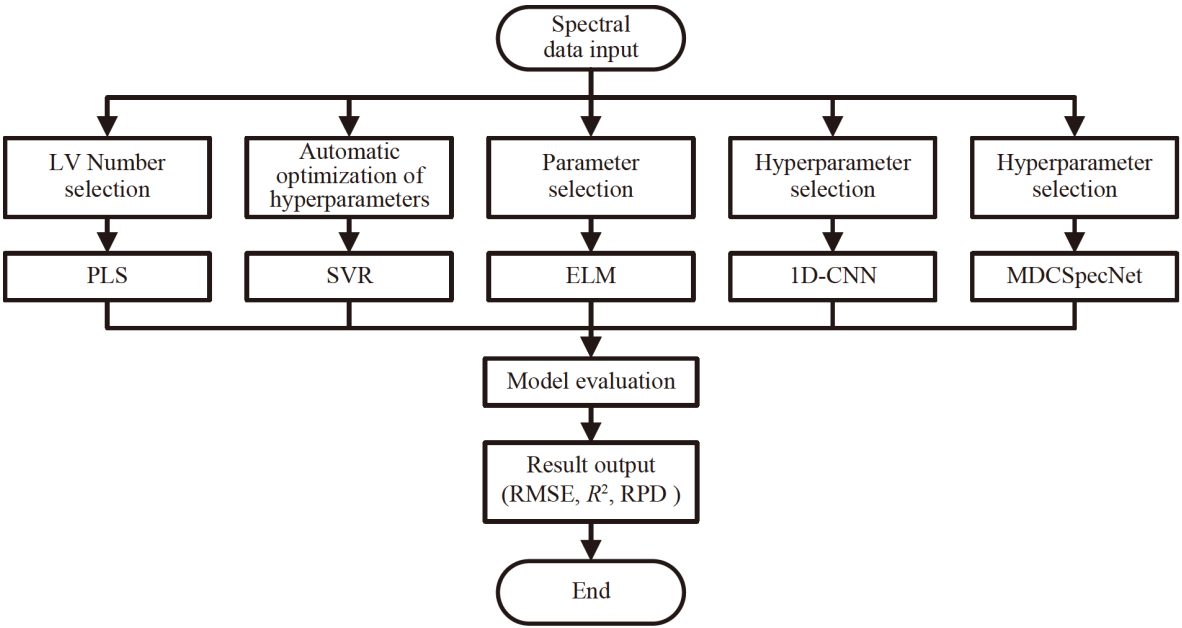


图5 实验设计示意图

LV Number,潜在变量的数量; PLS,偏最小二乘法; SVR,支持向量回归法; ELM,极限学习机回归法; 1D-CNN,一维卷积神经网络; RMSE,建模均方根误差; R^2 ,建模相关系数; RPD,相对分析误差

Fig.5 Experimental design illustration

LV Number, the number of latent variables; PLS, partial least squares; SVR, support vector regression; ELM, extreme learning machine regression; 1D-CNN, one-dimensional convolutional neural networks; RMSE: modeling root-mean-square error; R^2 , correlation coefficient of calibration; RPD, relative percent deviation

表 2 Block 层数与预测性能变化关系

Table 2 Relationship between the number of Block layers and the predicted performance

模块数量 Block number	训练集 Train set		测试集 Test set		相对分析误差 RPD	模型参数量 Model parameter
	R^2	RMSE/%	R^2	RMSE/%		
0	0.9736	0.2402	0.9578	0.3137	4.8690	3425
2	0.9791	0.2032	0.9665	0.2791	4.1690	9633
4	0.9778	0.2193	0.9733	0.2492	5.3675	15841
6	0.9847	0.1860	0. 9751	0. 2407	6. 3454	22049
8	0.9676	0.2583	0.9650	0.2855	5.3494	28257
10	0.9675	0.2326	0.9673	0.2760	5.5333	34465
12	0.9576	0.2996	0.9533	0.3298	4.6310	40673

注(Note): 表中加粗的数据为最佳 Block 层数时模型的预测结果 (The data in bold in the table is the prediction result of the model when the number of blocks is optimal)。

力变差,模型出现过拟合现象。当 Block 层数为 6 时,模型的性能最佳且参数量少,为平衡模型参数量与预测性能,选择 Block 层数为 6 的网络结构进行后续实验。

2. 1. 2 不同扩张率设定的模型性能对比

以牛奶数据集为例,对 MDCSpecNet 中扩张卷积神经网络的不同扩张率设定下的模型性能进行分析,选取三组扩张率: Dilation rate=1, 3, 5, 7, 9, 11; Dilation rate=3, 5, 7, 9, 11, 13; Dilation rate=5, 7, 9, 11, 13, 15,模型中其它层及其参数均保持不变,模型的预测结果如图 6 所示。

由图 6 可知,随着扩张率增加, MDCSpecNet 模型训练集的 RMSE 和测试集的 RMSE 均增大,模型精度降低,较大的扩张率使网络具有更大的感受野,能学习到更远距离的特征,但较大的扩张率也会引起过

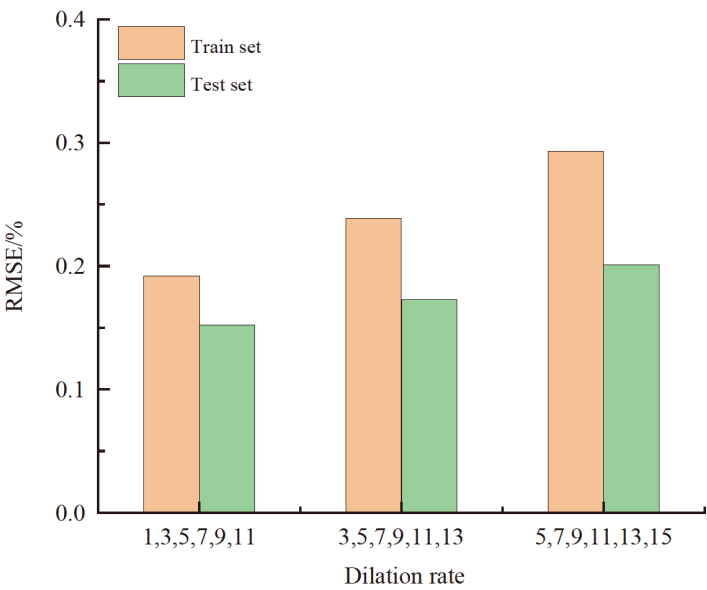


图6 不同扩张率设定下模型的预测性能
Fig.6 Predictive performance of the model under different dilation rate settings

多的零填充,使得网络中过多的权重被用于零填充,而不是用于光谱特征,导致网络遗漏近距离特征信息,从而使模型精度降低。因此,选择合适的扩张率有利于建立精度更高的定量模型,后续实验均选取 Dilation rate=1, 3, 5, 7, 9, 11 进行。MDCSpecNet 模型参数设计见表 3。

表 3 MDCSpecNet网络参数设置统计表
Table 3 Parameters of MDCSpecNet specifies network

网络层 Network layer	参数 Parameter	
卷积层 Convolutional layer	卷积核数 Filters	32
	卷积核大小 Kernel size	5*1
	步长 Stride	2
	特征数量 Feature number	32
最大池化层 Max-pooling layer	卷积核大小 Kernel size	2*1
	步长 Stride	1
扩张卷积神经网络 Dilated convolutional neural network	扩张率 Dilation rate	1, 3, 5, 7, 9, 11
	卷积核数量 Filters	32
	卷积核大小 Kernel size	3
	步长 Stride	1
全连接层 Fully connected layer	神经元数量 Units	1

2.2 各数据集下不同建模方法结果分析

为验证模型的预测性能,采用 MDCSpecNet、1D-CNN 、PLS、SVR 和 ELM 模型对药品、谷物、小麦、牛奶、汽油和三聚氰胺的近红外光谱数据建模,并对各模型在不同数据集中的预测结果(表 4)进行对比分析。

由表 4 可知, MDCSpecNet 模型在药品 API 含量、谷物葡萄糖含量、谷物乳酸盐含量、谷物水分含量、小麦蛋白质含量、汽油辛烷值与三聚氰胺浊点预测中表现最佳,其测试集的 RMSE 值分别为 0.0068、1.1751、1.0106、0.2340、0.4103、0.2654 和 2.8533, RPD 值分别为 7.5908、13.6421、19.6000、19.7147、5.0406、5.7544 和 5.9236。相较于其它 4 种建模方法, MDCSpecNet 模型测试集的 RMSE 分别

表 4 不同数据集中各模型预测结果统计
Table 4 Statistics of prediction results of each model in different data sets

数据集 Data set	建模方法 Method	训练集 Train set		测试集 Test set		相对分析误差 RPD
		R^2	RMSE/%	R^2	RMSE/%	
药品 API Tablet API	MDCSpecNet	0.9616	0.0073	0. 9649	0. 0068	7. 5908
	1D-CNN	0.9967	0.0023	0.9504	0.0081	5.6495
	PLS	0.9057	0.0144	0.9049	0.0128	3.2431
	SVR	0.8289	0.0191	0.7724	0.0213	1.5745
	ELM	0.7193	0.0248	0.8138	0.0179	2.4358
谷物酪蛋白 Grain casein	MDCSpecNet	0.9939	1.5175	0. 9933	1. 4392	12. 8193
	1D-CNN	0.9910	1.9212	0.9923	1.5263	12.1590
	PLS	0.9834	2.9933	0.9842	2.2908	7.9555
	SVR	0.9702	4.0160	0.9787	2.6541	6.8666
	ELM	0.9989	0.7568	0.9974	0.9194	19.8219
谷物葡萄糖 Grain glucose	MDCSpecNet	0.9960	1.3683	0. 9935	1. 1751	13. 6421
	1D-CNN	0.9912	2.0107	0.9822	1.8553	8.0319
	PLS	0.9577	4.9758	0.9269	3.9554	0.8575
	SVR	0.9462	5.6124	0.9101	4.3863	3.3369
	ELM	0.9980	0.7701	0.9790	1.6541	18.5333
谷物乳酸盐 Grain lactate	MDCSpecNet	0.9930	1.0364	0. 9966	1. 0106	19. 6000
	1D-CNN	0.9949	1.1265	0.9940	1.3498	13.8916
	PLS	0.9713	3.0943	0.9668	3.3560	0.7965
	SVR	0.9591	3.6931	0.9288	4.9151	3.7494
	ELM	0.9801	0.7517	0.9892	1.7391	18.3056
谷物水分 Grain moisture	MDCSpecNet	0.9942	0.2823	0. 9969	0. 2340	19. 7147
	1D-CNN	0.9942	0.2952	0.9947	0.3024	15.0782
	PLS	0.9759	0.6597	0.9725	0.7223	0.7860
	SVR	0.9720	0.7121	0.9528	0.9474	4.6043
	ELM	0.9985	0.7189	0.9872	1.7209	18.3011
小麦蛋白质 Wheat protein	MDCSpecNet	0.9421	0.4671	0. 9627	0. 4103	5. 0406
	1D-CNN	0.8927	0.6499	0.8802	0.6237	3.7175
	PLS	0.9650	0.4006	0.9511	0.4267	4.8274
	SVR	0.7492	1.0723	0.6426	1.1539	0.8091
	ELM	0.8530	0.8208	0.8619	0.7171	2.8337

续表4 (Continued to Table 4)

数据集 Data set	建模方法 Method	训练集 Train set		测试集 Test set		相对分析误差 RPD
		R^2	RMSE/%	R^2	RMSE/%	
牛奶蛋白质 Milk protein	MDCSpecNet	0.9276	0.2212	0.9825	0.1226	7.5671
	1D-CNN	0.9647	0.1792	0.9329	0.2402	3.8628
	PLS	0.9342	0.2596	0.9580	0.1901	0.7943
	SVR	0.7029	0.5520	0.8716	0.3324	0.8621
	ELM	0.9885	0.1082	0.9729	0.1305	8.0978
汽油辛烷 Gasoline octane	MDCSpecNet	0.9809	0.2020	0.9698	0.2654	5.7544
	1D-CNN	0.9883	0.1391	0.9579	0.3131	4.8782
	PLS	0.8526	0.5807	0.9618	0.2983	4.8921
	SVR	0.4231	1.1490	0.4461	1.1367	0.8613
	ELM	0.9868	0.1734	0.9689	0.2885	7.1719
三聚氰胺浊点 Melamine turbidity point	MDCSpecNet	0.9677	2.9087 ^a	0.9711	2.8533^a	5.9236
	1D-CNN	0.9757	2.5161 ^a	0.9507	3.6856 ^a	4.5398
	PLS	0.9581	3.3747 ^a	0.9608	3.3053 ^a	5.0528
	SVR	0.8623	6.1204 ^a	0.8490	6.4891 ^a	2.5736
	ELM	0.9027	5.1436 ^a	0.9049	5.1494 ^a	3.2433

注(Note): 表中加粗的数据为 MDCSpecNet 模型的测试集预测结果(The data in bold in the table are the test set predictions of the MDCSpecNet model); a,单位为℃(Unit is ℃)。

下降了 16.0%、36.7%、25.1%、22.6%、34.2%、15.2%、22.6%(1D-CNN), 46.9%、66.7%、73.2%、65.8%、16.6%、15.9%、13.7%(PLS), 68.1%、70.6%、81.7%、73.9%、69.2%、77.9%、5.06%(SVR)和 62%、20.4%、48.9%、85.6%、50.4%、13.0%、44.6%(ELM)。

在 6 种数据集的预测中, 1D-CNN、PLS、SVR 和 ELM 的训练集 RMSE 与测试集 RMSE 的变化较明显,均有一定程度的过拟合现象,而 MDCSpecNet 模型由于采用小尺寸卷积核并使用扩张卷积替代普通卷积,在不减少感受野的同时降低了模型的参数量,同时采用池化与正则化操作,避免了模型过拟合。在药品、谷物、小麦数据集以及三聚氰胺数据集中, MDCSpecNet 模型的 RPD 值明显优于 1D-CNN、PLS、SVR 与 ELM,表明在多种数据集上,模型的全连接层能稳定的对扩张卷积神经网络输出的关键光谱特征进行线性表示,使得 MDCSpecNet 模型具有较好的泛化能力。

为进一步对比分析各模型在同一数据集上的预测结果,基于小麦数据集使用 5 种建模方法进行建模,对预测结果作散点图(图 7),其中直线为预测值与真实值的拟合直线。相比于其它 4 种建模方法, MDCSpecNet 的预测效果更佳。MDCSpecNet 模型的网络结构能够准确提取原始光谱中的关键特征,从而有效表征光谱与真实值之间的关系,因此,对小麦蛋白质含量真实值的拟合能力优于 1D-CNN、PLS、SVR 和 ELM。由图 8 中基于三聚氰胺数据集的 MDCSpecNet 模型训练集损失随 Epoch 变化的曲线可知,模型可在 200 轮次内收敛,表明其可高效学习不同物质光谱特征与真实值的关联。

综上所述, MDCSpecNet 模型的多尺度扩张卷积神经网络可准确高效地提取光谱数据的短程和长程信息,同时避免了模型的过拟合现象。在 6 种数据集的预测中, MDCSpecNet 模型均表现出较高的预测精度和较好的泛化能力,可用于多种物质的定量分析。

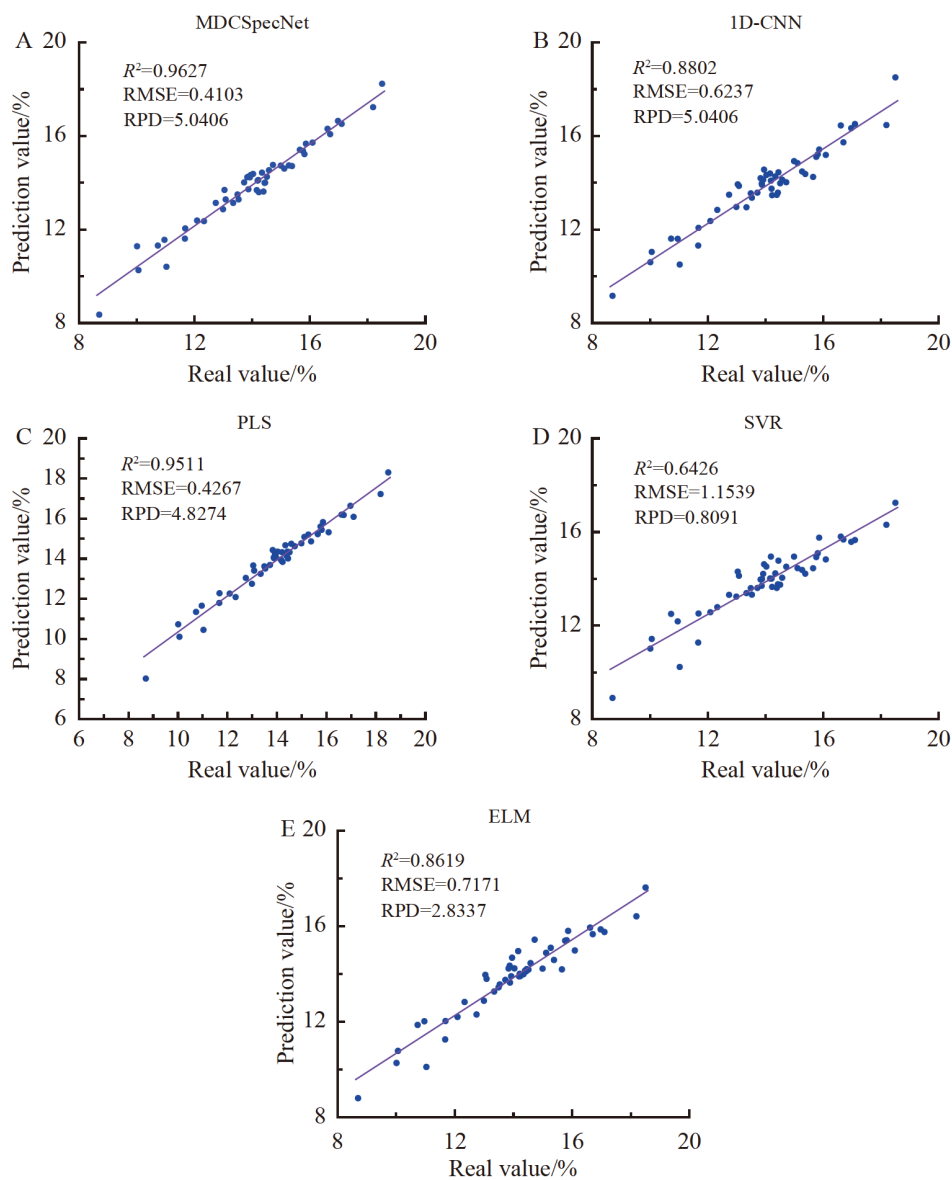


图7 不同建模方法小麦蛋白质含量预测集散点图
Fig.7 Predicted wheat protein content distribution point diagram of different modeling methods

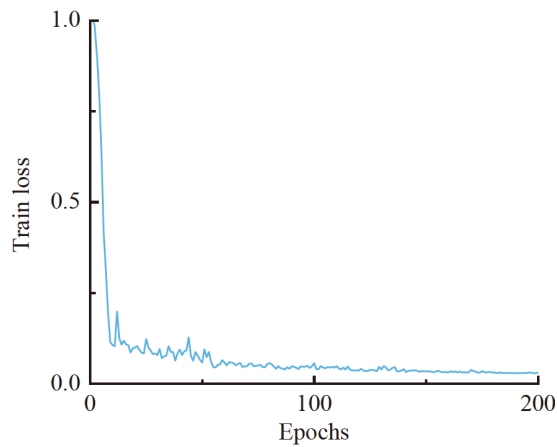


图8 MDCSpecNet 模型训练集损失随训练轮次变化曲线图
Fig.8 Loss of MDCSpecNet model training set changing with training rounds

3 结论

MDCSpecNet 作为一种近红外光谱定量分析模型,在扩张卷积神经网络中加入了多尺度特征融合思想,通过多尺度扩张卷积神经网络提取和融合多尺度光谱特征,可对多种近红外光谱样本进行定量分析。MDCSpecNet 模型的输入层通过卷积操作对光谱信息进行初步提取,批归一化层加速了模型收敛,池化层有效消除了原始光谱中的噪声,从而增强了光谱特征信息。不同扩张率的扩张卷积从多个尺度捕捉光谱特征,并实现多尺度信息的融合。全连接层能很好地将提取到的关键特征进行线性表示,以建立原始光谱与样本真实值之间的联系。在多种数据集上建立 MDCSpecNet 模型,其预测结果显示,相较于 PLS、1D-CNN、SVR 和 ELM, MDCSpecNet 模型具有更好的预测精度与泛化能力。本研究结果表明,采用 MDCSpecNet 进行近红外光谱定量建模是可行的。

References

- [1] CAMPOS M I, DEBÁN L, ANTOLÍN G, PARDO R. *Meat Sci.*, 2023, 200: 109167.
- [2] GUAN Y, YE T, YI Y, HUA H, CHEN C. *J. Pharm. Biomed. Anal.*, 2022, 207: 114435.
- [3] ZHANG H, HU X, LIU L, WEI J, BIAN X. *Spectrochim. Acta, Part A*, 2022, 270: 120841.
- [4] WU L, GAO Y, REN W, SU Y, LI J, DU Y, WANG Q, KUANG H. *Spectrochim. Acta, Part A*, 2022, 264: 120327.
- [5] MANSOURI M A, KHARBACH H M, EI MAOUARDI M, BARRA I, BOUKLOUZE A. *Spectrochim. Acta, Part A*, 2023, 303: 123268.
- [6] DAI Y, DAI Z, GUO G, WANG B. *Anal. Lett.*, 2023, 56(5): 730-743.
- [7] BIAN X H, LI S J, FAN M R, GUO Y G, CHANG N, WANG J J. *Anal. Methods*, 2016, 8(23): 4674-4679.
- [8] CHEN H, LIU Z, GU J, AI W, WEN J, CAI K. *Anal. Methods*, 2018, 10(41): 5004-5013.
- [9] LIU Kun, YIN Hui, JIANG Jun-Feng, LIU Tie-Gen, ZHAO Cheng-Wei. *Laser Optoelectron. Prog.*, 2024, 61(3): 52-61.
刘琨, 尹慧, 江俊峰, 刘铁根, 赵成伟. *激光与光电子学进展*, 2024, 61(3): 52-61.
- [10] WANG Kun, SHI Yong, LIU Chi-Chi, XIE Yi, CAI Ping, KONG Song-Tao. *Infrared Technol.*, 2021, 43(8): 757-765.
王堃, 史勇, 刘池池, 谢义, 蔡萍, 孔松涛. *红外技术*, 2021, 43(8): 757-765.
- [11] CHEN Jun-Ming, HE Zheng-Yang, LI Ling. *Spectral Prediction Regression Model Based on Multi-Scale Feature Fusion. Proc. Chin. Autom. Congr.*, 2022: 399-404.
陈俊名, 何正杨, 李灵. 基于多尺度特征融合的光谱预测回归模型. 2022中国自动化大会论文集, 2022: 399-404.
- [12] LIU S, WANG S, HU C, KONG D, YUAN Y. *Spectrochim. Acta, Part A*, 2023, 291: 122371.
- [13] YU Shui, HUAN Ke-Wei, WANG Lei, LIU Xiao-Xi, HAN Xue-Yan. *Chin. J. Anal. Chem.*, 2024, 52(5): 695-705.
于水, 宦克为, 王磊, 刘小溪, 韩雪艳. *分析化学*, 2024, 52(5): 695-705.
- [14] QIAN L, HUANG H, XIA X, LI Y, ZHOU X. *Visual Comput.*, 2023, 39(11): 5953-5969.

Quantitative Analysis Model of Near Infrared Spectroscopy Based on Multi-Scale Dilated Convolutional Neural Networks

LI Qiang, CHEN Bei^{*}, ZHANG Fang

(School of Electrical and Control Engineering, Shaanxi University of Science & Technology,
Xi'an 710021, China)

Abstract Near infrared spectroscopy (NIRS) technology has been widely applied in quantitative analysis of pharmaceuticals, food, and chemical industries. In this study, a NIRS quantitative analysis model (MDCSpecNet) based on a multi-scale dilated convolutional neural network was proposed. The model consisted of a one-dimensional convolutional layer, a batch normalization layer, a max-pooling layer, a multi-scale dilated convolutional neural network, and a full-connected layer. Among which, the one-dimensional convolutional layer and the max-pooling layer performed preliminary featured extraction and dimensionality reduction on the original spectra, the batch normalization layer accelerated the convergence of the model, the multi-scale dilated convolutional neural network extracted and fused spectral features, and the fully-connected layer linearly represented the feature information, enhancing the model's prediction accuracy and generalization ability. MDCSpecNet prediction models were established using publicly available NIRS datasets of pharmaceuticals, grains, wheat, milk, and gasoline. The prediction results were compared and analyzed with those of one dimensional convolution neural network (1D-CNN), partial least squares (PLS), support vector regression (SVR), and extreme learning machine regression (ELM) modeling methods. The results showed that, in prediction of the content of active pharmaceutical ingredient (API) in pharmaceuticals, the glucose content in grains, the lactate content in grains, the moisture content in grains, the protein content in wheat, the octane number in gasoline and the cloud point of melamine, the accuracy of the MDCSpecNet model increased by 16%, 36.7%, 25.1%, 22.6%, 34.2%, 15.2% and 22.6% compared to 1D-CNN, 46.9%, 66.7%, 73.2%, 65.8%, 16.6%, 15.9% and 13.7% compared to PLS, 68.1%, 70.6%, 81.7%, 73.9%, 69.2%, 77.9% and 56% compared to SVR, and 62%, 20.4%, 48.9%, 85.6%, 50.4%, 13% and 44.6% compared to ELM, respectively. The MDCSpecNet model based on the multi-scale dilated convolutional neural network addressed the issues of low accuracy and poor generalization ability of traditional NIRS modeling methods, and it was feasible to use the MDCSpecNet model for quantitative analysis of NIRS of various substances.

Keywords Near infrared spectroscopy; Quantitative analysis; Dilated convolution; Multi-scale feature fusion

(Received 2024-09-30; accepted 2025-02-26)

Supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 62203285).