

利用粒子群算法优化反向传播人工神经网络模型 预测熏肠中4种多环芳烃含量

邢巍¹, 刘兴运¹, 许朝阳¹, 惠腾², 王石宇¹, 蔡克周^{1*}, 周辉¹, 陈从贵¹, 徐宝才¹

(1.合肥工业大学农产品生物化工教育部工程研究中心, 安徽 合肥 230009;

2.中国农业科学院农产品加工研究所, 北京 100081)

摘要: 构建基于粒子群优化 (particle swarm optimization, PSO) 算法的反向传播人工神经网络 (back propagation artificial neural network, BP-ANN) 预测模型, 对熏肠中4种多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) (苯并(a)芘、苯并(a)蒽、苯并(b)荧蒽、蒽) 含量进行预测。以烟熏温度、烟熏时间、肥瘦比和熏肠色泽 (红绿值和黄蓝值) 作为BP-ANN模型的输入层参数, 熏肠的4种PAHs含量作为输出层参数, 通过PSO-BP-ANN模型来优化初始权重和阈值, 以获得最佳参数。结果表明: 构建的PSO-BP-ANN熏肠PAHs含量预测模型均方误差为0.018, 模型的训练、验证、测试和全局数据集的相关系数 (R^2) 分别为0.951、0.929、0.933和0.940, 均优于BP-ANN模型, 使用PSO-BP-ANN模型具有更好的准确性和鲁棒性。

关键词: 熏肠; 反向传播人工神经网络; 优化设计; 多环芳烃; 灵敏度分析

Prediction of the Contents of Four Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Smoked Sausage Using Back Propagation Neural Network Optimized by Particle Swarm Optimization Algorithm

XING Wei¹, LIU Xingyun¹, XU Zhaoyang¹, HUI Teng², WANG Shiyu¹, CAI Kezhou^{1*}, ZHOU Hui¹, CHEN Conggui¹, XU Baocai¹

(1.Engineering Research Center of Agricultural Bio-Chemicals, Ministry of Education, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China;

2.Institute of Food Science and Technology, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100081, China)

Abstract: A predictive model based on a back propagation artificial neural network (BP-ANN) optimized by particle swarm optimization (PSO) algorithm was developed to predict the contents of four polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) (benzo(a)pyrene, benzo(a)anthracene, benzo(b)fluoranthene, and chrysene) in smoked sausage. Smoking temperature, smoking time, fat/lean meat ratio and smoked sausage color (a^* and b^* values) were used as input layer parameters, and the measured contents of four PAHs as output layer parameters. The PSO-BP-ANN model was used to optimize the initial weight and threshold to obtain the best parameters. The results showed that the mean square error (MSE) of the proposed predictive model was 0.018, and the correlation coefficients (R^2) for training, validation, test and global data sets were 0.951, 0.929, 0.933 and 0.940 respectively. All these parameters were better than those of the BP-ANN model, indicating that the PSO-BP-ANN model had better accuracy and robustness.

Keywords: smoked sausage; back propagation artificial neural network; optimized design; polycyclic aromatic hydrocarbons; sensitivity analysis

DOI:10.7506/rlyj1001-8123-20210708-183

中图分类号: TS251.1

文献标志码: A

文章编号: 1001-8123 (2022) 01-0034-07

引文格式:

邢巍, 刘兴运, 许朝阳, 等. 利用粒子群算法优化反向传播人工神经网络模型预测熏肠中4种多环芳烃含量[J]. 肉类研究, 2022, 36(1): 34-40. DOI:10.7506/rlyj1001-8123-20210708-183. <http://www.rlyj.net.cn>

收稿日期: 2021-07-08

基金项目: “十三五”国家重点研发计划重点专项 (2019YFC1606200)

第一作者简介: 邢巍 (1997—) (ORCID: 0000-0003-2137-1823), 男, 硕士研究生, 研究方向为食品现代化加工。

E-mail: 376315995@qq.com

*通信作者简介: 蔡克周 (1980—) (ORCID: 0000-0001-9676-0829), 男, 教授, 博士, 研究方向为肉品加工与质量控制。

E-mail: kzcai@hfut.edu.cn

XING Wei, LIU Xingyun, XU Zhaoyang, et al. Prediction of the contents of four polycyclic aromatic hydrocarbons in smoked sausage using back propagation neural network optimized by particle swarm optimization algorithm[J]. Meat Research, 2022, 36(1): 34-40. DOI:10.7506/rlyj1001-8123-20210708-183. <http://www.rlyj.net.cn>

烟熏是一种古老的肉类食品加工方法,通过熏制可以赋予肉品特有的色泽和风味,如市场上常见的熏肠、熏鸡和熏鱼,凭借特有的色、香、味深受人们喜爱^[1]。熏制加工过程中的热和熏烟还具有脱水、抗菌和抗氧化作用,因此烟熏还可以在在一定程度上改善食品的贮藏性^[2]。传统烟熏多利用天然硬木控制性燃烧产生的熏烟^[3],对肉类原料进行直接熏制^[4]。这些硬木在有限氧条件下裂解产生多酚和有机酸等烟熏风味特征化合物^[5],此外还会产生多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)类化合物。PAHs是一类由3个以上苯环稠环形成的化合物,这类化合物绝大多数已被证明具有致癌性和致突变性^[6],摄入污染PAHs的烟熏肉制品是人们接触PAHs的主要途径^[7]。欧盟最新条例(EU)2020/1255明确规定,烟熏、烧烤肉制品中4种PAHs(苯并(a)芘、苯并(a)蒽、苯并(b)荧蒽、蒽)的最大残留限量分别为12、30 $\mu\text{g/kg}$ ^[8]。

依据熏烟和肉品接触方式,烟熏可分为直接烟熏和间接烟熏,而根据熏烟温度,烟熏又可分为冷熏或热熏。与传统的直接热熏相比,直接冷熏和间接烟熏都能有效控制PAHs污染^[9]。然而,实际工业生产过程中为了获得浓郁的烟熏味和特有的色泽,国内大多数企业普遍采用直接热熏,因此产品中PAHs污染极易超标,开展烟熏肉制品PAHs含量快速监测尤为重要。采用传统高效液相色谱(high performance liquid chromatography, HPLC)技术,提取和检测周期较长。基于烟熏加工主要影响因子和PAHs关系建立快速预测模型是一个很好的选择,现有研究表明,烟熏肉制品PAHs含量受熏烟时间、熏烟温度和产品中脂肪含量等多个因素的影响^[10],熏制后产品的色泽也被证实与熏制加工程度有关^[11],并且这些因素与烟熏肉制品中PAHs含量关系复杂,并非传统的线性关系,常规预测模型已不适用于烟熏肉制品PAHs含量预测模型构建。

人工神经网络(artificial neural network, ANN)是一种模仿动物神经网络行为特征进行分布式并行信息处理的算法数学模型^[12],已在多领域数据分析中得到应用,包括数据映射、回归、建模和分类^[13],它具有极强的学习能力,能够反映复杂的非线性关系,可以满足在线模拟、在线优化的需要^[14]。近年来,ANN已成功应用于建模、优化多种食品的质量控制,目前在熏肠多元品质研究^[15]、评估特级初榨橄榄油的稳定性^[16]、食品中大肠杆菌含量预测^[17]、牛羊肉掺假^[18]方面都取得较好的效果。粒子群优化(particle swarm optimization, PSO)算法是一种基于人工智能的随机非线性优化形式^[19-20],PSO

算法结合神经网络的设计方法能够避免局部极值问题,提高预测模型的精度和速率。已有研究利用反向传播(back-propagation, BP)-ANN建立熏肠中苯并(a)芘的预测模型^[21],但未对预测模型的结构进行优化以提升预测精度。

针对上述不足,本研究以传统熏肠为研究对象,以烟熏温度、烟熏时间、肥瘦比和熏肠色泽(红绿值(a^*)和黄蓝值(b^*))为输入层参数,以熏肠中4种PAHs含量为输出层参数,建立基于PSO优化BP-ANN的4类PAHs含量预测模型,为传统肉制品烟熏过程中PAHs的调控机制研究提供研究依据和理论基础。

1 材料与方法

1.1 材料与试剂

新鲜猪后腿肉、食盐、胶原蛋白肠衣(直径25 mm)、烟熏苹果木屑 合肥翡翠路沃尔玛超市。

甲醇、二氯甲烷、环己烷(均为色谱纯) 美国Tedia公司;氢氧化钾、硫酸(均为分析纯) 国药集团化学试剂有限公司;4种PAHs(苯并(a)芘、苯并(a)蒽、苯并(b)荧蒽、蒽)标准品 加拿大TRC公司。

1.2 仪器与设备

RYX-40烟熏炉 浙江瑞邦机械有限公司; TJ12-H电动绞肉机 东莞市恒耀厨具有限公司; SG型手动灌肠机 亿邦食品机械有限公司; TM20真空滚揉机 美国Packaging Solutions公司; WSF分光测色仪 上海申光仪器仪表有限公司; 1100 HPLC仪 美国Agilent公司; ND200氮气吹扫仪 杭州瑞诚仪器有限责任公司; Hei-VAP旋转蒸发仪 德国Heidolph公司; AR1140/C电子天平 奥豪斯国际贸易(上海)有限公司; CR15RT台式高速冷冻离心机 青岛科易仪器有限公司; SB-5200D超声仪 宁波新芝生物科技有限公司; T18高速均质分散机 德国IKA公司; ASE-12固相萃取仪 南京华璧科学仪器有限公司。

1.3 方法

1.3.1 原料肉处理和样品制备

参考陈炎等^[22]方法并略作改动。在4℃冷库中,首先分开新鲜猪后腿肉瘦肉和肥膘、剔除其结缔组织,用绞肉机分别绞制成肉糜(瘦肉采用筛盘孔径4 mm,肥膘采用筛盘孔径6 mm)。将绞制后的猪肥膘和瘦肉分别按照质量比0:10、1:9、2:8、3:7、4:6混合均匀后再绞制2次,制备不同脂肪含量的肉糜。在肉糜中加入质量分数2%的食盐并在4℃条件下真空滚揉30 min,腌制12 h后用

灌肠机灌肠，每根香肠规格为直径2.5 cm、长度20 cm、质量(100±5) g。

1.3.2 烟熏处理

将灌制好的香肠挂置于烟熏炉架子上进行熏烤，烟熏时间设定为20、40、60、80、100、120 min，烟熏温度设定为50、60、70、80 ℃。共制得120份熏肠样品，待熏肠冷却至常温后真空包装并置于-18 ℃冰箱冻藏。

1.3.3 色泽测定

采用分光测色仪测定^[23]。仪器预热20 min后，用黑板和白板(0=黑色，100=白色)校准。在室温(25±3) ℃下测定。样品平面与摄像装置对准后测定每组样品的 a^* 和 b^* 。每个样品测定3次，取平均值。

1.3.4 PAHs含量测定

参照聂文^[24]、杨潇^[25]等的方法并稍作修改，具体操作如下：

提取：用绞肉机将熏肠绞碎，取5.0 g转移到预先准备的50 mL圆底离心管中；加入25 mL正己烷并涡旋1 min；将其置于8 000 Hz、25 ℃条件下超声30 min，然后在高速冷冻离心机中4 ℃、8 000 r/min离心15 min；取上清液转移至50 mL小烧杯中，将离心管底部的沉淀物与20 mL正己烷混合，重复上述操作后合并上清液。

净化：将上清液倾倒在用3 mL二氯甲烷和5 mL正己烷活化的Florisil固相萃取柱上进行固相萃取；用9 mL正己烷-二氯甲烷(3:1, V/V)从固相萃取柱上洗脱PAHs；将洗脱液旋转蒸发(40 ℃、30 r/min)至1~2 mL后，将浓缩物转移至10 mL离心管中并在氮气下干燥；添加2 mL乙腈以溶解提取物，最后通过0.22 μm微孔有机滤膜过滤到2 mL HPLC注射瓶中，进行HPLC测定。

色谱条件：Eclipse PAH柱(250 mm×4.6 mm, 5.0 μm)；进样量20 μL；柱温35 ℃；流速1 mL/min；流动相A：乙腈，流动相B：水；洗脱条件为：0~3 min，60%流动相A；3~15 min，60%~100%流动相A；15~46 min，100%流动相A；46~53 min，100%~60%流动相A；荧光检测器的激发/发射波长：苯并(a)蒽为 $\lambda_{274\text{ nm}}/\lambda_{382\text{ nm}}$ ，蒽为 $\lambda_{260\text{ nm}}/\lambda_{360\text{ nm}}$ ，苯并(b)荧蒽为 $\lambda_{283\text{ nm}}/\lambda_{430\text{ nm}}$ ，苯并(a)芘为 $\lambda_{285\text{ nm}}/\lambda_{410\text{ nm}}$ 。重复测定3次。

PAHs含量按下式计算。

$$X = \frac{\rho \times V}{m}$$

式中： X 为样品PAHs含量/(μg/kg)； ρ 为依据标准曲线计算得到的样品待测液中PAHs质量浓度/(ng/mL)； V 为待测样品液定容体积/mL； m 为样品质量/g。

1.3.5 PSO-BP-ANN预测模型构建

1.3.5.1 BP-ANN模型构建

利用MATLAB R2019a建立熏肠中4种PAHs含量的预测模型，在本研究中，烟熏温度(℃)、烟熏

时间(min)、肥瘦比和熏肠色泽(a^* 、 b^*)作为BP-ANN的输入层神经元，PAHs含量(μg/kg)作为BP-ANN的输出层神经元(图1)。数据通过神经元从输入层传播到隐藏层和输出层，神经元与权重(w)系数相连，每个输入都经过适当的权重并连接到下一层，最后以 y 输出(图2)^[26]。通过改进学习算法、调整隐藏层神经元个数、学习速率及动量系数，使其预测性能达到最佳，经过不断训练后最终采用Levenberg-Marquardt算法、神经元个数为10、学习速率为0.6、动量系数为0.5的预测模型优化参数。将120个实验数据以80%训练集、10%验证集和10%预测集随机分配，进行网络训练。

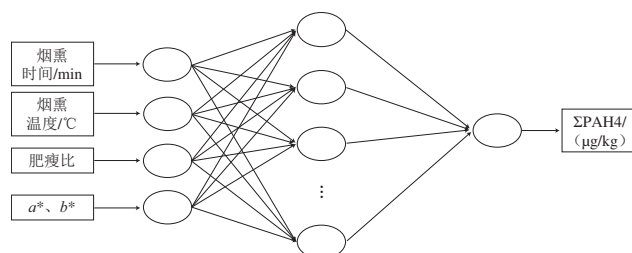
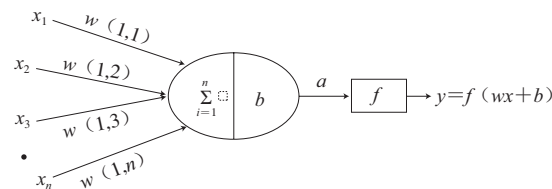


图1 BP-ANN预测4种PAHs含量示意图

Fig. 1 Schematic diagram of prediction of four PAHs by BP-ANN



w . 权重; b . 阈值; x . 输入层变量; a . 隐藏层输出; y . 输出层函数。

图2 BP-ANN模型

Fig. 2 BP-ANN model

1.3.5.2 PSO算法优化BP-ANN模型

PSO算法是一种启发式算法和进化算法^[19]，粒子在空间中运动时，会根据个体极值和全局极值不断改变位置，从而更新自身的适应度值，达到在预设空间中寻优目的。相比于BP-ANN模型，PSO算法能在一定程度上避免BP-ANN陷入局部最优^[27]。PSO参数设置如下：种群规模40，迭代次数70，加速因子 $c_1=c_2=1.494\ 45$ ，粒子位置和速度的间隔分别为 $[-5,5]$ 和 $[-1,1]$ 。图3为PSO-BP-ANN预测模型算法流程，该模型的预测过程如下：1) 将收集到的数据分为训练集和测试集，并将数据进行标准化处理；2) 将导入的数据进行BP-ANN、PSO算法参数优化；3) 运行PSO算法优化BP-ANN的初始权重和阈值；4) 建立最佳的PSO-BP-ANN模型；5) 比较PSO-BP-ANN模型和BP-ANN模型的预测效果。

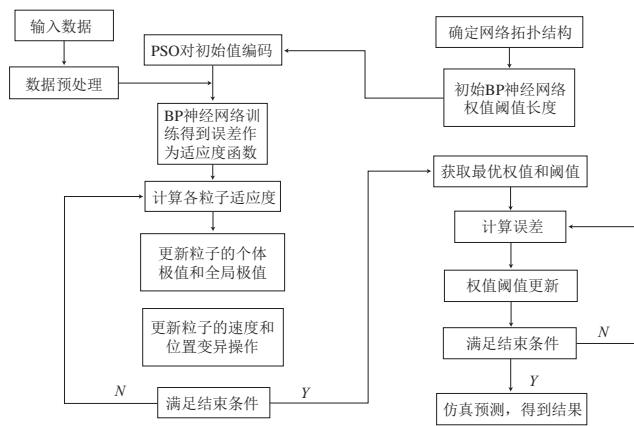


图3 PSO-BP-ANN模型算法流程

Fig. 3 Algorithm flowchart of PSO-BP-ANN model

1.4 数据处理

实验数据采用Origin 2017软件进行统计与分析, 并采用Duncan's比较法进行显著性检验, $P<0.05$ 表示差异具有统计学意义。采用SPSS 23软件对实验数据归一化和建立多元回归模型, 采用MATLAB R2019a软件建立预测模型。

2 结果与分析

2.1 不同烟熏条件熏肠的 a^* 、 b^* 变化

表1 不同烟熏条件熏肠的 a^* 变化Table 1 Changes in a^* of smoked sausage under different smoking conditions

肥瘦比	烟熏温度/℃	烟熏时间/min					
		20	40	60	80	100	120
0:10	50	3.951±0.483 ^c	5.351±0.231 ^d	14.410±0.775 ^c	16.907±0.331 ^b	17.629±0.382 ^b	21.449±0.673 ^a
	60	4.452±1.741 ^c	8.118±0.258 ^d	11.315±0.849 ^c	17.465±0.515 ^b	19.110±1.177 ^b	19.115±1.440 ^b
	70	6.031±0.159 ^c	6.709±0.729 ^d	7.303±1.323 ^d	14.278±0.323 ^c	20.016±1.086 ^b	22.063±1.360 ^a
	80	3.555±0.458 ^c	5.241±0.110 ^d	5.833±0.714 ^d	8.749±0.230 ^c	11.192±0.316 ^b	18.350±0.369 ^a
1:9	50	2.960±0.168 ^d	4.266±0.326 ^c	5.342±0.657 ^d	9.835±0.326 ^c	11.009±0.565 ^b	17.414±0.790 ^a
	60	3.831±0.353 ^d	7.393±1.073 ^c	12.031±1.328 ^d	14.708±0.819 ^c	16.022±0.312 ^b	20.958±0.316 ^a
	70	6.258±0.988 ^d	10.262±0.439 ^c	11.288±0.919 ^d	13.028±0.638 ^c	14.788±0.294 ^b	15.572±0.635 ^a
	80	6.075±0.837 ^c	7.297±0.426 ^c	8.908±0.614 ^d	10.433±0.729 ^c	11.163±0.162 ^b	16.317±0.839 ^a
2:8	50	2.758±0.085 ^c	4.060±0.287 ^d	4.534±0.625 ^d	5.489±0.528 ^c	10.621±0.463 ^b	12.013±0.728 ^a
	60	3.174±0.265 ^d	3.827±0.723 ^d	4.001±0.251 ^c	4.330±0.104 ^c	6.909±0.361 ^b	9.345±0.273 ^a
	70	3.968±0.237 ^d	5.130±0.183 ^c	11.785±0.486 ^d	16.372±0.827 ^c	21.150±0.655 ^b	22.670±0.926 ^a
	80	3.767±0.162 ^d	6.604±0.117 ^c	18.331±0.528 ^d	21.389±0.625 ^c	24.255±0.329 ^b	26.790±0.384 ^a
3:7	50	5.626±0.267 ^c	6.086±0.283 ^c	9.619±0.183 ^d	14.276±0.637 ^c	18.500±0.523 ^b	19.713±0.623 ^a
	60	2.742±0.063 ^c	4.462±0.176 ^c	4.531±0.135 ^c	6.582±0.382 ^c	11.019±0.536 ^b	14.848±0.327 ^a
	70	1.400±0.058 ^d	4.409±0.263 ^c	6.391±0.328 ^d	12.454±0.286 ^c	13.115±0.274 ^b	14.038±0.382 ^a
	80	3.280±0.263 ^c	6.439±0.108 ^c	7.418±0.216 ^c	12.807±0.347 ^b	13.618±0.332 ^b	13.702±0.273 ^a
4:6	50	3.396±0.163 ^c	3.593±0.126 ^c	5.462±0.235 ^d	6.142±0.261 ^c	9.179±0.273 ^b	10.411±0.384 ^a
	60	5.565±0.237 ^c	12.458±0.528 ^d	13.162±0.623 ^d	13.790±0.294 ^c	15.087±0.273 ^b	19.025±0.427 ^a
	70	7.111±0.318 ^d	14.475±0.527 ^c	17.682±0.283 ^d	18.597±0.372 ^c	19.549±0.638 ^b	21.320±0.342 ^a
	80	3.663±0.085 ^d	7.730±0.173 ^c	7.973±0.254 ^c	13.704±0.255 ^b	13.723±0.184 ^b	19.593±0.362 ^a

注: 同行小写字母不同, 表示差异显著 ($P<0.05$)。表2~3同。

表2 不同烟熏条件熏肠的 b^* 变化Table 2 Changes in b^* of smoked sausage under different smoking conditions

肥瘦比	烟熏温度/℃	烟熏时间/min					
		20	40	60	80	100	120
0:10	50	20.144±0.338 ^c	28.697±0.837 ^d	37.949±1.683 ^c	43.473±1.052 ^b	46.724±0.833 ^b	47.097±0.935 ^a
	60	20.120±0.831 ^c	25.650±0.868 ^c	39.155±1.764 ^d	42.146±0.771 ^c	45.467±0.828 ^b	48.458±0.839 ^a
	70	23.340±0.633 ^d	23.986±0.578 ^d	38.563±0.757 ^c	39.059±0.688 ^c	44.875±1.988 ^b	55.380±0.883 ^a
	80	31.976±0.540 ^c	37.109±1.901 ^d	43.063±0.645 ^c	50.265±0.972 ^b	51.085±0.940 ^b	59.560±0.802 ^a
1:9	50	24.793±1.012 ^c	35.954±0.874 ^d	37.708±0.876 ^c	38.808±1.084 ^c	52.501±0.805 ^b	58.563±1.781 ^a
	60	29.303±0.986 ^c	31.171±1.086 ^d	41.475±2.251 ^c	44.871±2.010 ^c	46.133±1.200 ^b	48.956±0.839 ^a
	70	34.745±0.632 ^d	45.620±0.995 ^c	46.492±0.515 ^c	46.807±1.479 ^c	48.992±0.617 ^b	50.149±0.396 ^a
	80	36.429±0.682 ^c	42.508±0.676 ^d	45.236±1.050 ^c	47.826±1.734 ^c	48.894±0.971 ^b	53.575±0.839 ^a
2:8	50	20.921±0.645 ^d	29.687±0.788 ^c	30.464±1.375 ^c	32.392±1.393 ^b	45.870±0.927 ^b	46.608±2.013 ^a
	60	24.003±0.554 ^c	28.452±1.521 ^d	28.732±1.182 ^d	34.295±1.073 ^c	37.001±0.971 ^b	47.651±0.777 ^a
	70	20.922±1.259 ^c	20.975±1.106 ^c	25.368±0.640 ^d	34.223±0.971 ^c	40.550±0.969 ^b	55.085±1.781 ^a
	80	26.329±1.588 ^c	30.924±0.883 ^c	33.700±0.819 ^d	38.736±1.036 ^c	46.391±1.565 ^b	51.845±1.971 ^a
3:7	50	18.118±0.714 ^d	19.196±1.015 ^d	22.343±0.771 ^c	25.516±0.945 ^c	25.864±1.472 ^b	27.208±0.877 ^a
	60	23.960±0.831 ^c	34.395±0.837 ^c	36.043±1.683 ^d	47.094±1.052 ^c	52.503±0.833 ^b	55.499±0.935 ^a
	70	28.915±0.633 ^d	41.015±1.132 ^d	45.642±1.629 ^c	46.704±1.666 ^c	49.557±1.253 ^b	51.310±1.181 ^a
	80	38.125±0.904 ^c	46.157±1.132 ^d	50.821±0.753 ^c	51.637±1.683 ^c	51.961±2.137 ^b	54.423±0.898 ^a
4:6	50	18.897±1.176 ^c	19.763±0.885 ^c	19.958±1.104 ^c	20.805±0.838 ^c	44.811±1.084 ^b	45.296±1.785 ^a
	60	21.218±1.643 ^d	21.707±1.275 ^d	22.831±1.836 ^d	35.751±0.983 ^c	41.518±2.527 ^b	48.601±1.293 ^a
	70	31.067±1.545 ^d	32.194±1.128 ^d	38.030±1.946 ^c	44.828±1.739 ^c	46.646±1.086 ^b	50.617±1.685 ^a
	80	32.031±1.108 ^c	34.940±1.539 ^d	36.443±1.948 ^c	51.108±1.085 ^b	52.801±0.972 ^b	53.278±1.836 ^a

由表1~2可知, 烟熏温度、烟熏时间和肥瘦比对熏肠的外观色泽均有明显影响。熏制时间越长, 熏肠的 a^* 、 b^* 越高, 这可能是由于熏制时间越长, 熏烟中着色化合物附着的程度加深。烟熏温度对熏肠 a^* 影响总体不明显, b^* 则呈现明显增加的趋势, 这可能是由于烟熏温度升高, 美拉德反应加快, 导致熏肠褐变程度加深。

2.2 不同烟熏条件熏肠中4种PAHs含量的变化

表3 不同烟熏条件熏肠中4种PAHs含量的变化

Table 3 Changes in contents four PAHs in smoked sausage under different smoking conditions

肥瘦比	烟熏温度/℃	烟熏时间/min						μg/kg
		20	40	60	80	100	120	
0:10	50	8.724±2.240 ^d	12.152±1.560 ^c	17.387±4.262 ^d	21.683±6.365 ^c	28.698±6.531 ^b	30.034±9.352 ^a	
	60	13.914±1.185 ^d	16.642±0.983 ^c	28.829±5.252 ^b	29.463±3.578 ^b	39.331±7.290 ^a	41.400±5.275 ^a	
	70	14.142±1.351 ^c	18.757±1.250 ^c	22.090±2.253 ^c	32.481±6.592 ^b	36.445±3.380 ^b	39.122±6.400 ^b	
	80	12.186±0.560 ^c	18.545±2.582 ^d	23.082±1.586 ^c	27.114±3.642 ^b	27.978±3.732 ^b	40.376±5.272 ^a	
1:9	50	10.887±0.382 ^c	21.621±3.643 ^d	23.408±2.642 ^c	24.265±2.492 ^c	29.343±5.281 ^b	33.498±3.292 ^a	
	60	20.753±2.536 ^c	22.705±2.580 ^d	24.096±5.162 ^c	25.836±3.652 ^c	33.784±6.252 ^b	38.996±6.251 ^a	
	70	18.813±1.362 ^c	27.367±4.682 ^d	31.212±2.674 ^c	31.451±5.647 ^c	37.000±5.250 ^b	41.554±2.732 ^a	
	80	14.331±0.750 ^d	25.627±3.643 ^c	38.698±4.582 ^b	25.505±2.730 ^c	39.897±6.282 ^b	39.176±5.157 ^a	
2:8	50	16.692±1.731 ^b	12.346±1.489 ^d	16.815±3.272 ^b	14.514±2.352 ^c	15.136±1.631 ^c	25.115±3.646 ^a	
	60	7.143±0.892 ^d	8.964±0.786 ^c	6.138±2.641 ^d	15.956±2.181 ^c	19.409±3.273 ^b	24.984±2.800 ^a	
	70	18.702±2.766 ^c	25.337±4.231 ^c	59.626±4.685 ^c	55.512±9.640 ^b	89.893±8.369 ^b	100.890±7.536 ^a	
	80	47.397±5.782 ^c	51.016±7.264 ^d	67.941±7.467 ^c	53.075±7.852 ^d	76.984±7.232 ^b	135.363±9.627 ^a	
3:7	50	37.162±6.385 ^c	41.263±5.287 ^d	45.746±4.272 ^c	50.065±5.487 ^b	50.682±6.587 ^b	58.603±6.292 ^a	
	60	14.721±1.256 ^c	22.797±1.482 ^d	27.793±2.648 ^c	28.808±3.282 ^c	40.308±6.262 ^b	58.117±5.352 ^a	
	70	13.947±2.531 ^c	17.106±1.782 ^d	24.247±2.381 ^c	24.256±1.851 ^c	27.495±3.642 ^b	32.425±4.312 ^a	
	80	30.731±3.366 ^d	33.165±5.382 ^c	34.668±5.832 ^c	37.063±2.657 ^b	55.582±7.346 ^b	57.431±6.287 ^a	
4:6	50	20.996±3.142 ^d	26.553±4.292 ^c	49.538±5.382 ^b	50.443±8.620 ^b	62.582±6.281 ^a	64.298±8.212 ^a	
	60	14.284±2.361 ^d	17.784±1.752 ^c	34.527±4.795 ^c	37.954±4.281 ^c	40.673±9.256 ^b	46.047±5.562 ^a	
	70	11.655±2.532 ^d	12.696±2.471 ^d	13.368±1.362 ^d	18.525±2.512 ^c	21.851±2.486 ^b	25.522±6.247 ^a	
	80	14.467±1.643 ^c	14.550±1.362 ^c	17.982±1.645 ^d	23.783±2.478 ^c	37.681±6.258 ^b	35.272±2.647 ^b	

由表3可知, 烟熏时间、烟熏温度和肥瘦比均明显影响PAHs含量。随着烟熏时间的延长, 熏肠的PAHs含量显著增加。当肥瘦比为2:8、3:7、4:6时, PAHs含量随着烟熏温度的升高呈现先降低后增加的趋势, 可能是由于烟熏初期木材控制性燃烧产生的PAHs附着在熏肠表面, 随着烟熏温度的升高加快了脂肪滴落, 从而熏肠表面的PAHs脱落, 随着脂肪滴落的速率降低, PAHs含量在熏肠表面重新增加。当肥瘦比为0:10、1:9时, 烟熏温度的升高导致PAHs含量明显增加, 可能是由于木材控制性燃烧产生的PAHs附着在熏肠表面的速率大于脂肪滴落时熏肠表面PAHs脱落的速率。

2.3 PSO-BP-ANN模型预测结果

BP-ANN是食品产品数据分析中最常用的ANN^[28], 典型的BP-ANN拓扑结构由输入层、隐藏层和输出层构成。总共有120组实验数据用于PSO-BP-ANN模型的建立和评估, 随机选取12组数据作为预测集。

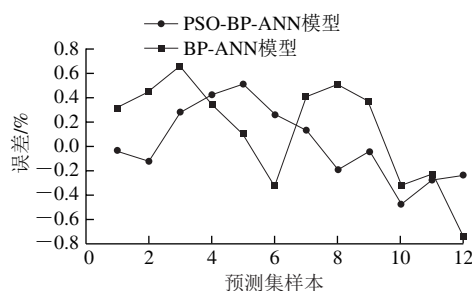


图4 BP-ANN和PSO-BP-ANN模型预测值与真实值间的绝对误差

Fig. 4 Comparison of absolute errors between predicted values and actual values of BP-ANN and PSO-BP-ANN model

由图4可知, PSO-BP-ANN模型和BP-ANN模型都取得较好的预测效果, 预测模型的绝对误差低于10%, 在可控制的预测误差范围内, 且PSO-BP-ANN模型的预测误差比BP-ANN模型更小。

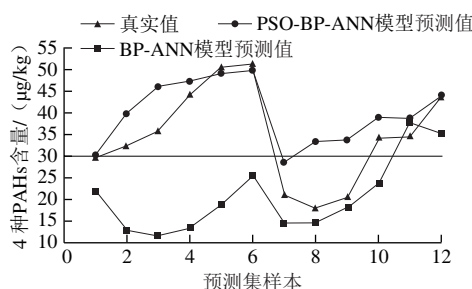


图5 BP-ANN和PSO-BP-ANN模型预测值与真实值的比较

Fig. 5 Comparison between predicted values and actual values of BP-ANN and PSO-BP-ANN models

由图5可知, 使用PSO-BP-ANN模型比BP-ANN模型可以更好地预测PAHs含量, 根据欧盟的新法规^[8], 熏熏肉中4种PAHs含量应小于30 μg/kg, 而熏肠中4种PAHs真实值和预测值都超过了该限量。

表4 预测模型均方误差及相关系数

Table 4 Mean square errors and correlation coefficients of BP-ANN and PSO-BP-ANN models

预测模型	MSE	相关系数 (R^2)			
		训练集	验证集	测试集	全局数据
BP-ANN	0.032	0.872	0.893	0.913	0.873
PSO-BP-ANN	0.018	0.951	0.929	0.933	0.940

注: MSE, 均方误差 (mean square error)。

通过PSO-BP-ANN和BP-ANN模型建立的预测模型相关系数 (R^2) 可以确定实验输出数据 (预测值) 和实验数据 (真实值) 之间的相关性。由表4可知, BP-ANN模型训练集、验证集、测试集和全局数据的 R^2 均略低于PSO-BP-ANN模型, 并且PSO-BP-ANN模型的MSE比BP-ANN模型略小, 这进一步表明PSO-BP-ANN模型的预测值与真实值之间的误差相对较小。PSO-BP-ANN模型能够较好地描述烟熏温度、烟熏时间、肥瘦比和熏肠色泽与PAHs含量的不确定性和非线性关系。对实验数据进行归一化后建立多元非线性回归模型: $Y = -0.592 - 0.029X_1 - 0.041X_2 - 0.013X_3 - 0.058X_4 + 0.060X_5$, 其中, Y 表示4种PAHs含量, X_1 表示烟熏温度, X_2 表示烟熏时间, X_3 表示肥瘦比, X_4 表示 a^* , X_5 表示 b^* 。

训练和测试数据的 R^2 分别为0.815和0.847, 低于PSO-BP-ANN模型和BP-ANN模型优化后的 R^2 , 这表明ANN拟合复杂的非线性回归比多元回归模型效果更好。

2.4 灵敏度分析

灵敏度分析是基于输入层参数的变化导致输出层中的模型预测效果变化程度, 因此, 在输出层中观察到的 R^2 越高, 相对于输入层参数的灵敏度就越高^[29-30]。

使用PSO-BP-ANN模型进行灵敏度分析, 以确定每种因素 (烟熏时间、烟熏温度、肥瘦比和色泽) 和2种因素间可能的相互作用对熏肠中4种PAHs含量的影响。

表5 输入层参数对4种PAHs含量预测模型的灵敏度

Table 5 Effect of input layer parameters on sensitivity of PSO-BP-ANN model

因素	MSE	R^2
X_1	0.078	0.225
X_2	0.047	0.517
X_3	0.051	0.285
X_4	0.071	0.382
X_5	0.037	0.544
X_1X_2	0.036	0.589
X_2X_3	0.038	0.585
X_1X_3	0.029	0.764
X_4X_5	0.031	0.783
$X_1X_2X_3X_4X_5$	0.018	0.940

由表5可知, 单因素中烟熏时间和 b^* 对熏肠中4种PAHs含量预测具有较高的灵敏度, R^2 分别为0.517和0.544, MSE分别为0.047和0.037。当考虑到2个因素间可能的相互作用时, 与单因素相比发现 R^2 显著提升, MSE

显著降低, 这表明因素之间的相互作用对4种PAHs含量具有比单因素更大的促进作用, 特别是烟熏温度和肥瘦比、 a^* 和 b^* 的相互作用对预测4种PAHs含量具有极强的灵敏度, R^2 分别为0.764和0.783, MSE分别为0.029和0.031, 这说明烟熏温度和肥瘦比的联合作用对4种PAHs的生成起重要作用, 但是烟熏时间、烟熏温度和肥瘦比都或多或少影响4种PAHs的生成, 因此需要精确控制烟熏温度、烟熏时间和肥瘦比, 确保烟熏香肠的4种PAHs含量控制在标准范围内。此外, 本研究为通过无损、快速测定熏肠 a^* 和 b^* 预测4种PAHs含量提供了可能性, 为快速检测熏肠中4种PAHs含量提供了理论可能。

3 结论

建立基于PSO-BP-ANN的熏肠中4种PAHs含量预测模型, 以烟熏温度、烟熏时间、肥瘦比和熏肠色泽(a^* 、 b^*)作为神经网络的输入层参数, 测得的4种PAHs含量作为输出层参数。结果表明: PSO-BP-ANN模型MSE为0.018, 通过实验确定的训练、验证、测试和全局数据集的 R^2 分别为0.951、0.929、0.913和0.940, BP-ANN模型MSE为0.032, 训练、验证、测试和全局数据集的 R^2 分别为0.872、0.893、0.933和0.873; 使用PSO-BP-ANN模型具有更好的准确性和鲁棒性, 该模型可以概括出烟熏温度、烟熏时间、肥瘦比和熏肠色泽影响4种PAHs含量的内在规律, 模拟烟熏过程4种PAHs含量的变化; 灵敏度分析表明, 烟熏时间比烟熏温度和肥瘦比对于4种PAHs含量预测更为关键, 而烟熏温度、肥瘦比的联合作用对熏肠中4种PAHs含量具有更好的预测效果, 通过建立基于熏肠 a^* 和 b^* 对4种PAHs含量的预测模型, 为快速监测熏肠PAHs含量提供了理论可能。

参考文献:

- [1] 周光宏. 畜产品加工学[M]. 北京: 中国农业出版社, 2012: 3-5.
- [2] 崔国梅, 彭增起, 孟晓霞. 烟熏肉制品中多环芳烃的来源及控制方法[J]. 食品研究与开发, 2010(3): 188-191. DOI:10.3969/j.issn.1005-6521.2010.03.054.
- [3] ROZENTALE I, ZACS D, BARTKIENE E, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons in traditionally smoked meat products from the Baltic states[J]. Food Additives and Contaminants: Part B, 2018, 11(2): 138-145. DOI:10.1080/19393210.2018.1440637.
- [4] PURCARO G, MORET S, CONTE L S. Overview on polycyclic aromatic hydrocarbons: occurrence, legislation and innovative determination in foods[J]. Talanta, 2013, 105: 292-305. DOI:10.1016/j.talanta.2012.10.041.
- [5] WRETTLING S, ERIKSSON A, ESKHULT G A, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in Swedish smoked meat and fish[J]. Journal of Food Composition and Analysis, 2010, 23(3): 264-272. DOI:10.1016/j.talanta.2012.10.041.
- [6] DAS D N, BHUTIA S K. Inevitable dietary exposure of benzo[a]pyrene: carcinogenic risk assessment an emerging issues and concerns[J]. Current Opinion in Food Science, 2018, 24: 16-25. DOI:10.1016/j.talanta.2012.10.041.
- [7] ZELINKOVA Z, WENZL T. The occurrence of 16 EPA PAHs in food: a review[J]. Polycyclic Aromatic Compounds, 2015, 35(2): 1-37. DOI:10.1080/10406638.2014.918550.
- [8] European Union. No 1255/2020 of 8 September 2020 amending regulation (EC) No 1225/2020 as regards maximum levels for polycyclic aromatic hydrocarbons in foodstuffs[S]. European Union, 2020.
- [9] LEDESMA E, RENDUELES M, DÍAZ M. Contamination of meat products during smoking by polycyclic aromatic. Hydrocarbons: processes and prevention[J]. Food Control, 2016, 60: 64-87. DOI:10.1016/j.foodcont.2015.07.016.
- [10] ŠIMKO P. Factors affecting elimination of polycyclic aromatic hydrocarbons from smoked meat foods and liquid smoke flavorings[J]. Molecular Nutrition and Food Research, 2005, 49(7): 637-647. DOI:10.1002/mnfr.200400091.
- [11] LEE S Y, YIM D G, LEE D Y, et al. Overview of the effect of natural products on reduction of potential carcinogenic substances in meat products[J]. Trends in Food Science and Technology, 2020, 99: 568-579. DOI:10.1016/j.tifs.2020.03.034.
- [12] CANAKCI M, OZSEZEN A N, ARCAKLIONGLU E, et al. Prediction of performance and exhaust emissions of a diesel engine fueled with biodiesel produced from waste frying palm oil[J]. Expert Systems with Applications, 2009, 36(5): 9268-9280. DOI:10.1016/j.eswa.2008.12.005.
- [13] CORREA D A, CASTILLO P, MARTELO R J. Neural networks in food industry[J]. Contemporary Engineering Sciences, 2018, 11(37): 1807-1826. DOI:10.12988/CES.2018.84141.
- [14] DĘBSKA B, GUZOWSKA-ŚWIDER B. Application of artificial neural network in food classification[J]. Analytica Chimica Acta, 2011, 705(1/2): 283-291. DOI:10.1016/j.aca.2011.06.033.
- [15] 陈炎. 基于BP人工神经网络的烟熏香肠多元品质预测研究[D]. 合肥: 合肥工业大学, 2017: 5-10.
- [16] SILVA S F, ANJOS C, CAVALCANTI R N, et al. Evaluation of extra virgin olive oil stability by artificial neural network[J]. Food Chemistry, 2015, 179: 35-43. DOI:10.1016/j.foodchem.2015.01.100.
- [17] DENG Yun, XIAO Hanjie, XU Jianxin, et al. Prediction model of PSO-BP neural network on coliform amount in special food[J]. Saudi Journal of Biological Sciences, 2019, 26(6): 1154-1160. DOI:10.1016/j.sjbs.2019.06.016.
- [18] 范维, 高晓月, 董雨馨, 等. 基于数据挖掘建立北京地区牛、羊肉串掺假风险预测模型[J]. 食品科学, 2020, 41(20): 292-299. DOI:10.7506/spkx1002-6630-20200316-245.
- [19] SARKER R, MOHAMMADIAN M, YAO X, et al. Evolutionary optimization[M]. Springer, 2002. DOI:10.1007/b101816.
- [20] ASTRAY G, GULLÓN B, LABIDI J, et al. Comparison between developed models using response surface methodology (RSM) and artificial neural networks (ANNs) with the purpose to optimize oligosaccharide mixtures production from sugar beet pulp[J]. Industrial Crops and Products, 2016, 92: 290-299. DOI:10.1016/j.indcrop.2016.08.011.

- [21] CHEN Yan, CAI Kezhou, TU Zehui, et al. Prediction of benzo[a]pyrene content of smoked sausage using back-propagation artificial neural network[J]. Journal of the Science of Food and Agriculture, 2018, 98(8): 3022-3030. DOI:10.1002/jsfa.8801.
- [22] 陈炎, 屠泽慧, 聂文, 等. 基于BP神经网络的烟熏香肠色泽预测研究[J]. 食品研究与开发, 2017(20): 1-10. DOI:10.3969/j.issn.1005-6521.2017.20.001.
- [23] BOZKURT H, BAYRAM M. Colour and textural attributes of sucuk during ripening[J]. Meat Science, 2006, 73(2): 344-350. DOI:10.1016/j.meatsci.2006.01.001.
- [24] 聂文. 食品组分对烤肠中PAHs生成的影响及其抑制研究[D]. 合肥: 合肥工业大学, 2019: 12-14.
- [25] 杨潇. 烟熏液对卤煮牛肉中杂环胺和多环芳烃含量的影响研究[D]. 合肥: 合肥工业大学, 2016: 21-24.
- [26] NOGHABI M S, KAVIANI M, NIAZMDAND R. Modeling of oxidation stability of canola oil using artificial neural networks during deep fat frying of potatoes[J]. Journal of Food Processing and Preservation, 2015, 39(6): 1006-1015. DOI:10.1111/jfpp.12314.
- [27] KHAJEH M, SARAFRAZ-YAZDI A, MOGHADAM A F. Modeling of solid-phase tea waste extraction for the removal of manganese and cobalt from water samples by using PSO-artificial neural network and response surface methodology[J]. Arabian Journal of Chemistry, 2017, 10(Suppl 2): S1663-S1673. DOI:10.1016/j.arabjc.2013.06.011.
- [28] ZHU Ning, WANG Kai, ZHANG Shunliang, et al. Application of artificial neural networks to predict multiple quality of dry-cured ham based on protein degradation[J]. Food Chemistry, 2020, 344(12): 128586. DOI:10.1016/j.foodchem.2020.128586.
- [29] MONTAN J J, PALMER A. Numeric sensitivity analysis applied to feedforward neural networks[J]. Neural Computing and Applications, 2003, 12(2): 119-125. DOI:10.1007/s00521-003-0377-9.
- [30] ZHANG Yanqing, JIA Shiru, ZHANG Wujiu. Predicting acetic acid content in the final beer using neural networks and support vector machine[J]. Journal of the Institute of Brewing, 2013, 118(4): 361-367. DOI:10.1002/jib.50.