

激光与光电子学进展

基于多分支空洞卷积网络的光谱定量分析

陈国喜^{1,2}, 刘忆森^{2*}, 周松斌², 赵路路²¹昆明理工大学信息工程与自动化学院, 云南 昆明 650500;²广东省科学院智能制造研究所, 广东 广州 510070

摘要 卷积神经网络(CNN)近年来已经广泛应用在各种化学计量学任务中。然而,通过CNN从光谱中学习长程相关性仍然是一个挑战,为了避免过拟合,很多之前的工作中使用的CNN架构都很浅。本文提出了一种并行空洞卷积网络(ACPnet)的方法来学习定量光谱的长程相关性,该方法将具有不同空洞率的并行卷积分支组合在一起,以寻找近程和长程相关性的最佳平衡。并在片剂(拉曼光谱)、土壤(近红外光谱)和葡萄酒(核磁共振光谱)3个数据集上验证了该方法的通用性。结果表明,与偏最小二乘回归(PLS)、最小二乘支持向量机(LS-SVM)、常规CNN和级联模式空洞卷积网络(ACCnet)相比,ACPnet在3个数据集的回归精度都达到了最佳。此外,将ACPnet提取的特征输入到不同的回归器中进行分析,来评估该结构作为有监督特征提取器的性能。特征提取-回归模型的预测结果表明,ACPnet在3个数据集上提取的特征信息都要优于常规CNN。

关键词 光谱学; 空洞卷积神经网络; 定量光谱分析; 短程和长程相关性

中图分类号 O433

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP213339

Quantitative Spectrometric Analysis Based on a Multi-Branch Atrous Convolutional Network

Chen Guoxi^{1,2}, Liu Yisen^{2*}, Zhou Songbin², Zhao Lulu²

¹Faculty of Information Engineering and Automation, Kunming University of Science and Technology, Kunming 650500, Yunnan, China;

²Institute of Intelligent Manufacturing, Guangdong Academy of Sciences, Guangzhou 510070, Guangdong, China

Abstract The convolutional neural network (CNN) has been widely used in various chemometric tasks in the past few years. However, learning long-range correlations from spectra using the CNN remains challenging, because most CNN architectures utilized in previous studies are quite shallow to avoid overfitting. In this paper, we present an atrous convolutional network (ACPnet) for learning long-range spectral correlation in quantitative spectrometric analysis. Paralleled convolution branches with different atrous rates are assembled to determine the best trade-off between short-range and long-range information. Three data sets, viz. tablets (Raman), soil (NIR), and wines (NMR), are evaluated to demonstrate the versatility of the proposed network. The overall results indicate that the ACPnet achieves better regression accuracies for all three data sets than those of partial least squares regression (PLS), least square support vector machine (LS-SVM), a regular CNN, and an atrous CNN in a cascaded pattern (ACCnet). Furthermore, the features extracted by the ACPnet are fed into different regressors to evaluate the proposed network as a supervised feature extractor. The results of the extraction - regression model show that ACPnet gives better feature-extraction performance than that of a conventional CNN on the three data sets.

Key words spectroscopy; atrous convolutional neural network; quantitative spectrometric analysis; short-range and long-range correlation

收稿日期: 2021-12-24; 修回日期: 2022-01-19; 录用日期: 2022-03-03; 网络首发日期: 2022-03-13

基金项目: 国家青年科学基金(61803107)、广东省自然科学基金(2020A1515010768)、梅州市科技计划(2021B0203001)

通信作者: *ys.liu@giim.ac.cn

1 引言

随着化学与测量学的结合,拉曼(Raman)光谱^[1]、近红外(NIR)光谱^[2]和核磁共振(NMR)光谱^[3]已经被证明是医疗诊断^[4]、制药^[5]和食品科学^[6]等各个领域中的一个强大工具。将样品分类和估算样品中感兴趣化学成分的浓度是化学计量学的两项基本任务。用于这些任务的常用方法包括支持向量机(SVM)、线性判别分析(LDA)、随机森林(RF)、偏最小二乘回归(PLS)、多元线性回归(MLR)、高斯过程回归(GPR)和人工神经网络(ANN)。

卷积神经网络(CNN)是正在进行的深度学习革命中发展起来的重要网络架构之一,近年来已经开始对化学计量学产生影响^[7]。CNN的优势在于信息理解能力强,对数据集的先验知识要求较低,光谱与形态信息易于整合,能够找到有效特征^[8]。例如,Erzina等^[9]将功能化的表面增强拉曼光谱(SERS)与CNN结合实现了精确的癌症检测。Acquarelli等^[10]使用CNN对振动[Raman、NIR和傅里叶红外(FT-IR)]光谱进行分类,并开发了一种再训练算法来选择重要波长。Wu等^[11]采用预训练的CNN架构AlexNet进行迁移学习,提取3D荧光光谱的光谱特征,实现了鉴别假冒芝麻油同时测定其成分的。王欣等^[12]改进DenseNet模型中的三维卷积块,并引入空间注意力机制和通道注意力机制实现了遥感图像的高性能分类。

尽管CNN已经在化学计量学研究中取得了许多成果。然而,与计算机视觉数据集不同的是,较高的样

品制备和测试成本使得大多数化学计量学任务的样本量较小(通常从几十个到几百个)。因此光谱分析中使用的大多数CNN架构都非常简单,因为更深的网络会产生过拟合问题。研究表明,在这些浅层网络中,卷积层只学习到相邻小区域内的短程相关性,通常起到平滑和导数等预处理作用^[13]。因此,如何利用有限的卷积层获取光谱数据的长程相关性仍然是一个有待解决的问题。

本文采用CNN的一种特殊架构——空洞卷积神经网络^[14-15]来解决定量光谱分析中的远程相关性问题。空洞CNN(又称扩张CNN)的基本思想是在卷积核的信号像素之间插入空洞(零点),在不增加网络参数的情况下扩大感受野。本文设计两种空洞卷积网络用于光谱定量分析,分别是级联模式的空洞CNN(ACCnet)和并联模式的空洞CNN(ACPnet)。为了证明方法的通用性,本文对片剂(Raman)、土壤(NIR)和葡萄酒(NMR)光谱3个数据集进行了评估。此外,将ACPnet作为特征提取器,将提取特征输入给PLS和最小二乘支持向量机(LS-SVM)模型进行回归分析,进一步验证ACPnet的“短-长程”信息融合能力。

2 数据及方法

2.1 数据集

本文采用3个公共数据集进行定量光谱分析。数据集的详细信息汇总在表1中。各数据集中单个样本的光谱曲线如图1所示。3个数据集均可在网站(<http://www.models.life.ku.dk/datasets>)上下载。

表1 3个数据集详细信息

Table 1 Detailed information of three data sets

Data set	Scan	Sample size	Feature size	Target	Mean	Range	Standard deviation
Soil	NIR	108	1050	Soil organic matter	85.43%	42.91%-95.85%	10.82%
Tablets	Raman	120	3400	Active substance	7.38%	5.12%-8.48%	1.13%
Wines	NMR	40	1500	Ethanol	12.84 g·L ⁻¹	11.19-14.54 g·L ⁻¹	0.78 g·L ⁻¹

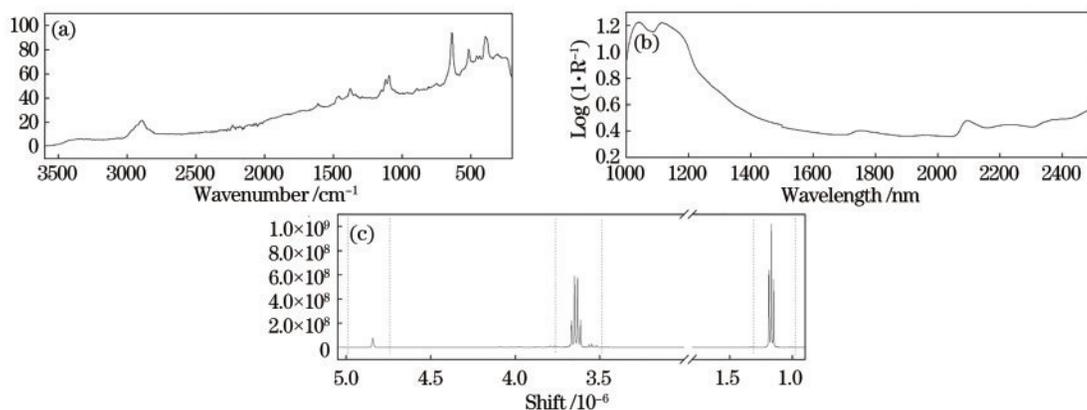


图1 各个数据集中一个样本的光谱曲线。(a) 片剂(Raman)光谱数据集;(b) 土壤(NIR)光谱数据集;(c) 葡萄酒(NMR)光谱数据集

Fig. 1 Spectral curve of one sample for each data set. (a) Tablets (Raman) data set; (b) soil (NIR) data set; (c) wines (NMR) data set

2.1.1 片剂(Raman)光谱数据集

本数据集旨在通过 Raman 光谱法测定艾司西酞普兰片的活性物质含量。共测定 120 片,活性物质含量范围为 5.12%~8.48%。使用 Perkin-Elmer System 2000 NIR FT-Raman 光谱仪采集片剂的 Raman 光谱,其 Raman 波数偏移范围为 200~3600 cm^{-1} (间隔为 1 cm^{-1}),平均每个样本扫描 64 次用于分析。由于 Raman 光谱添加一阶导数等预处理对经典分类方法和基于 CNN 分类方法均无改善,因此本文使用原始数据作为输入。对于基于 CNN 的方法需将数据归一化至 [0,1]。

2.1.2 土壤(NIR)光谱数据集

该数据集通过 NIR 光谱测定土壤有机质(SOM)含量。土壤样本是在瑞典北部阿比斯科亚北极地区的荒地上进行的长期气候变化实验获得的。用 NIRSystems 6500 型近红外分光光度计测定了总共 108 个土壤样品的 NIR 反射光谱,光谱波长范围为 400~2500 nm,间隔为 2 nm。对每个样品平均扫描 32 次用于分析。本文对 NIR 数据进行了一阶 Savitzky-Golay 导数(平滑点 9、多项式阶 2)预处理,以达到基线校正和平滑的目的。

2.1.3 葡萄酒(NMR)数据集

数据来源于对 40 种不同产地和颜色的葡萄酒的 1H-NMR 分析。本文对葡萄酒样品中的乙醇含量进行了定量分析。葡萄酒样品的 1H-NMR 光谱由 Bruker Avance 400 光谱仪获得。虽然有 $6.0 \times 10^{-6} \sim 0.5 \times 10^{-6}$ 的 NMR 谱区,但为避免过拟合,模型仅选取了 $5.05 \times 10^{-6} \sim 4.74 \times 10^{-6}$ 、 $3.79 \times 10^{-6} \sim 3.47 \times 10^{-6}$ 和 $1.27 \times 10^{-6} \sim 0.95 \times 10^{-6}$ 3 个谱区共 1500 个 NMR 光谱数据点作为输入进行回归建模。除了基于 CNN 的网络要将数据归一化到 [0,1] 之间,各模型不做其他数据预处理。

2.2 模型的设计与评估

采用 ACCnet 和 ACPnet 两种不同的空洞卷积体

系结构,对 Raman、NIR 和 NMR 数据进行了定量分析。与经典的方法比如 PLS、LS-SVM 和常规的 CNN 进行性能比较,并建立特征提取与回归模型,将 ACPnet 作为特征提取器,与常规的 CNN 提取器进行比较。

2.2.1 空洞 CNN

在一维 CNN 中,卷积核以一定的步长在谱信号上滑动,感受野的大小等于卷积核(K)的大小。而空洞卷积根据空洞率(r)填充零到卷积核相邻元素间。对一维数据来说,一个空洞卷积层的输出可以表示为

$$y[i] = \sum_{k=1}^K x[i+r*k]w[k], \quad (1)$$

式中: $x[i]$ 为输入信号; $w[k]$ 表示长度为 k 的空洞卷积的卷积核的权重。可以看到,空洞卷积能在不增加任何参数和额外计算的情况下通过增加空洞率 r 来扩展感受野。经典卷积可以看作是 $r=1$ 时的特殊情况。不同空洞率($r=1,2,3$)的一维空洞卷积操作如图 2 所示。

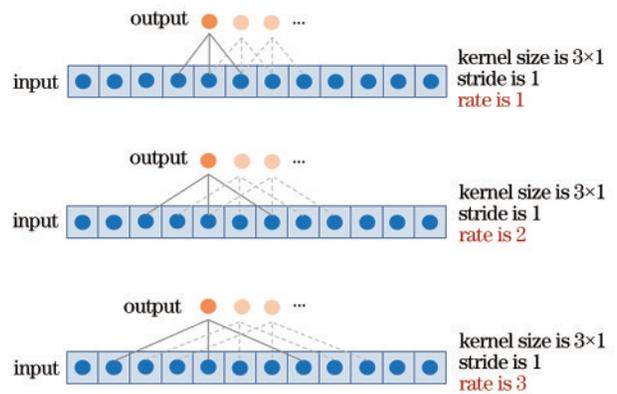


图 2 不同的空洞率下 3×1 的卷积核对应的空洞卷积层
Fig. 2 Atrous convolutional layers with a kernel size of 3×1 and different atrous rates

2.2.2 ACCnet 结构

ACCnet 采用经典的 CNN 架构,由空洞卷积层和平均池化层级联堆叠,最后加上全连接层[图 3(a)]。

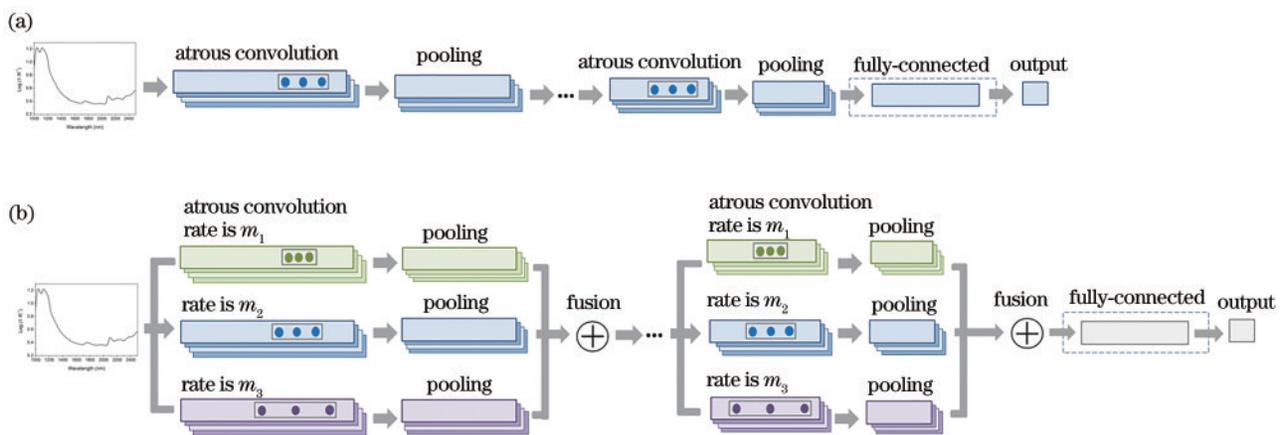


图 3 提出的空洞卷积网络框架。(a) ACCnet; (b) ACPnet
Fig. 3 Architectures of proposed atrous convolutional networks. (a) ACCnet; (b) ACPnet

采用参数修正线性单元(PReLU)作为空洞卷积层的激活函数^[16-17]。池化层是在空洞卷积层之后的一种采样操作,用于特征提取和降低计算成本。在计算机视觉任务中,为了防止信息丢失,通常采用空洞卷积层来代替池化层。然而,已发现光谱分析仍然需要池化操作,因为其中特征数量远远超过样本量。最后采用全连接层将之前的卷积层和池化层获得的信息进行整

合,本文对每个数据集的全连接层数在0~2个范围内进行优化。

ACCnet的结构参数包括空洞卷积层的深度(卷积层的数量)和厚度(每个卷积层中的卷积核数量)、池化层的数量和步长,以及全连接层的数量由训练集中的10倍交叉验证过程决定。各数据集优化后的ACCnet的详细结构参数列于表2~4。

表2 片剂(Raman)数据集的常规CNN、ACCnet和ACPnet详细参数

Table 2 Detailed parameters for regular CNN, ACCnet, and ACPnet of tablets (Raman) data set

CNN		ACCnet		ACPnet			
Avg-pooling1	3	Avg-pooling1	3	Avg-pooling1		3	
Conv1	16×5	Conv1	16×5	Conv1_1	Conv1_2	Conv1_3	16×5
	PReLU		PReLU	Rate is 1	Rate is 2	Rate is 5	PReLU
Avg-pooling2	3	Avg-pooling2	3	Avg-pooling2_1	Avg-pooling2_2	Avg-pooling2_3	3
Conv2	16×5 PReLU	Conv2	16×5 PReLU	Feature fusion			Sum
				Conv2_1	Conv2_2	Conv2_3	16×5
				Rate is 1	Rate is 2	Rate is 5	PReLU
Avg-pooling3	3	Avg-pooling3	3	Avg-pooling3_1	Avg-pooling3_2	Avg-pooling3_3	3
Conv3	16×5 PReLU	Conv3	16×5 PReLU	Feature fusion			Sum
				Conv3_1	Conv3_2	Conv3_3	16×5
				Rate is 1	Rate is 2	Rate is 5	PReLU
Avg-pooling4	3	Avg-pooling4	3	Avg-pooling4_1	Avg-pooling4_2	Avg-pooling4_3	3
Fully-connected	32	Fully-connected	32	Feature fusion			Sum
				Fully-connected			32

表3 土壤(NIR)数据集的常规CNN、ACCnet和ACPnet详细参数

Table 3 Detailed parameters for regular CNN, ACCnet, and ACPnet of soil (NIR) data set

CNN		ACCnet		ACPnet			
Conv1	32×5	Conv1	32×5	Conv1_1	Conv1_2	Conv1_3	32×5
	PReLU		PReLU	Rate is 1	Rate is 2	Rate is 5	PReLU
Avg-pooling1	2	Avg-pooling1	2	Avg-pooling1_1	Avg-pooling1_2	Avg-pooling1_3	2
Conv2	32×5 PReLU	Conv2	32×5 PReLU	Feature fusion			Sum
				Conv2_1	Conv2_2	Conv2_3	32×5
				Rate is 1	Rate is 2	Rate is 5	PReLU
Avg-pooling2	2	Avg-pooling2	2	Avg-pooling2_1	Avg-pooling2_2	Avg-pooling2_3	2
Conv3	32×5 PReLU	Conv3	32×5 PReLU	Feature fusion			Sum
				Conv3_1	Conv3_2	Conv3_3	32×5
				Rate is 1	Rate is 2	Rate is 5	PReLU
Avg-pooling3	2	Avg-pooling3	2	Avg-pooling3_1	Avg-pooling3_2	Avg-pooling3_3	2
				Feature fusion			Sum

2.2.3 ACPnet 结构

ACPnet是由并行的空洞卷积模块组成。如图3(b)所示,并联模块的构造如下:1)将谱信号输入到3个并行的不同空洞率的空洞卷积层中,得到不同尺寸的感受野;2)在每个空洞卷积分支后采用平均池化层进行特征尺寸缩减;3)对每个分支的池化后特征按元素对应相乘的方式进行融合。采用这种多分支结构,提取并融合了短距离(小空洞率)和远距离(大空洞率)的特征。在ACPnet中,通过级联叠加多个并行模块,学习

多个尺度上的光谱特征。

为了公平比较,ACPnet的结构参数与每个数据集的ACCnet保持一致。每个数据集的ACPnet的详细结构参数见表2~4。

2.2.4 对比方法

PLS是一种用于NIR、Raman和NMR数据定量分析的经典化学计量学算法。在目前的工作中,每个PLS模型中使用主成分数量在3~25的范围内通过10倍交叉验证过程在训练集内优化。

表 4 葡萄酒(NMR)数据集的常规 CNN、ACCnet 和 ACPnet 详细参数

Table 4 Detailed parameters for regular CNN, ACCnet, and ACPnet of wines (NMR) data set

CNN		ACCnet		ACPnet			
Avg-pooling1	2	Avg-pooling1	2	Avg-pooling1		2	
Conv1	4×5	Conv1	4×5	Conv1_1	Conv1_2	Conv1_3	4×5
	PReLU		PReLU	Rate is 1	Rate is 2	Rate is 5	PReLU
Avg-pooling2	3	Avg-pooling2	3	Avg-pooling2_1	Avg-pooling2_2	Avg-pooling2_3	3
Conv2	4×5	Conv2	4×5	Feature fusion			Sum
	PReLU		PReLU	Conv2_1	Conv2_2	Conv2_3	4×5
				Rate is 1	Rate is 2	Rate is 5	PReLU
Avg-pooling3	3	Avg-pooling3	3	Avg-pooling3_1	Avg-pooling3_2	Avg-pooling3_3	3
Conv3	4×5	Conv3	4×5	Feature fusion			Sum
	PReLU		PReLU	Conv3_1	Conv3_2	Conv3_3	4×5
				Rate is 1	Rate is 2	Rate is 5	PReLU
Avg-pooling4	2	Avg-pooling4	2	Avg-pooling4_1	Avg-pooling4_2	Avg-pooling4_3	2
				Feature fusion			Sum

LS-SVM 是一种基于 SVM 的优化算法,它使用一组线性方程组,而不是标准 SVM 使用的二次规划。LS-SVM 模型采用 RBF 作为核函数,通过在训练集中进行网格搜索和 10 折交叉验证确定 RBF 核函数参数 σ^2 和正则化参数 γ 。

建立无空洞策略的一维 CNN 模型进行比较。采用经典的 CNN 架构,由一维卷积层和池化层叠加,然后是全连接层。为了方便比较,对于每个数据集,常规 CNN 模型的结构参数与 ACCnet 网络保持一致。

2.2.5 特征提取器

将 ACPnet 作为特征提取器,并与常规 CNN 进行比较。将 ACPnets 和 CNN 的输出特征输入 PLS 和 LS-SVM 模型中进行回归。提取-回归模型中 PLS 和 LS-SVM 的参数优化遵循上述交叉验证过程。

2.2.6 模型评估

对于 3 个数据集,采用 10 折交叉验证过程中验证集均方根误差 (RMSECV)、决定系数 (R^2) 和预测率

(RPD) 来评价各回归模型的预测能力。RPD 的计算为

$$p_{RPD} = \sigma_{SD} / e_{RMSECV} \quad (2)$$

式中, σ_{SD} 是验证集在每折的标准偏差。

PLS 和 LS-SVM 是在每折模型构建之前通过内部交叉验证进行参数的优化。

3 结果与讨论

3.1 回归性能比较

表 5~7 分别展示了 PLS、LS-SVM、CNN、ACCnet 和 ACPnet 对 Raman、NIR 和 NMR 数据集的回归性能 (其中 RMSEC 表示训练集均方根误差, RMSEP 表示测试集预测均方根误差)。ACCnet 以空洞率为 2、ACPnet 以空洞率为 {1, 2, 5} 进行回归性能比较。对于这 3 个数据集, ACPnet 模型的 R^2 和 RPD 均最高, RMSECV 最低。与 PLS、LS-SVM、CNN 和 ACCnet 模型相比, ACPnet 获得的 3 个数据集的 RMSECV 平均增益分别为 25.1%、28.1%、22.0% 和 18.8%。

表 5 片剂(Raman)数据集 ACPnet 与对比方法回归结果

Table 5 Regression results of ACPnet and contrast methods of tablets (Raman) data set

Method	RMSEC / %	RMSEP / %	RMSECV / %	R^2	RPD
PLS	0.30±0.02	0.53±0.10	0.59±0.14	0.75±0.08	2.15±0.38
LS-SVM	0.22±0.06	0.54±0.16	0.57±0.22	0.71±0.18	2.16±0.56
CNN	0.27±0.06	0.44±0.18	0.47±0.17	0.80±0.14	3.12±1.72
ACCnet (rate is 2)	0.29±0.04	0.43±0.16	0.45±0.16	0.80±0.18	2.99±1.17
ACPnet (rate is 1/2/5)	0.23±0.03	0.36±0.20	0.39±0.19	0.85±0.20	3.76±1.40

表 6 土壤(NIR)数据集 ACPnet 与对比方法回归结果

Table 6 Regression results of ACPnet and contrast methods of soil (NIR) data set

Method	RMSEC / %	RMSEP / %	RMSECV / %	R^2	RPD
PLS	0.75±0.13	1.67±0.46	2.07±0.57	0.96±0.05	6.18±1.74
LS-SVM	0.24±0.13	1.66±0.71	2.10±0.78	0.95±0.05	5.99±2.33
CNN	1.06±0.09	1.78±0.39	2.16±0.44	0.95±0.04	5.85±2.26
ACCnet (rate is 2)	1.09±0.36	1.67±0.70	1.50±0.65	0.96±0.03	6.45±2.82
ACPnet (rate is 1/2/5)	0.42±0.22	1.27±0.33	1.34±0.34	0.98±0.02	8.26±3.10

表 7 葡萄酒(NMR)数据集 ACPnet 与对比方法回归结果

Table 7 Regression results of ACPnet and contrast methods of wines (NMR) data set

Method	RMSEC / (g·L ⁻¹)	RMSEP / (g·L ⁻¹)	RMSECV / (g·L ⁻¹)	R ²	RPD
PLS	0.02±0.02	0.26±0.12	0.43±0.37	0.71±0.29	3.60±2.39
LS-SVM	0.02±0.03	0.29±0.09	0.44±0.30	0.70±0.25	2.52±0.09
CNN	0.18±0.03	0.26±0.11	0.25±0.15	0.68±0.40	3.38±2.11
ACCnet (rate is 2)	0.19±0.02	0.25±0.11	0.15±0.06	0.69±0.49	3.52±1.95
ACPnet (rate is 1/2/5)	0.11±0.01	0.21±0.09	0.14±0.06	0.74±0.39	4.27±2.86

3 个数据集的回归曲线如图 5~7 所示。

对于研究的这 3 个小数据集,常规的 CNN 网络并没有明显表现出优于经典的化学计量学方法 PLS 和 LS-

SVM。对比常规 CNN 和 ACCnet,当 5×1 卷积核的空洞率由 1 变为 2 时,感受野从 5 增加到 9,采用空洞策略后,3 个数据集的回归精度均略有提高。在 ACPnet 中,

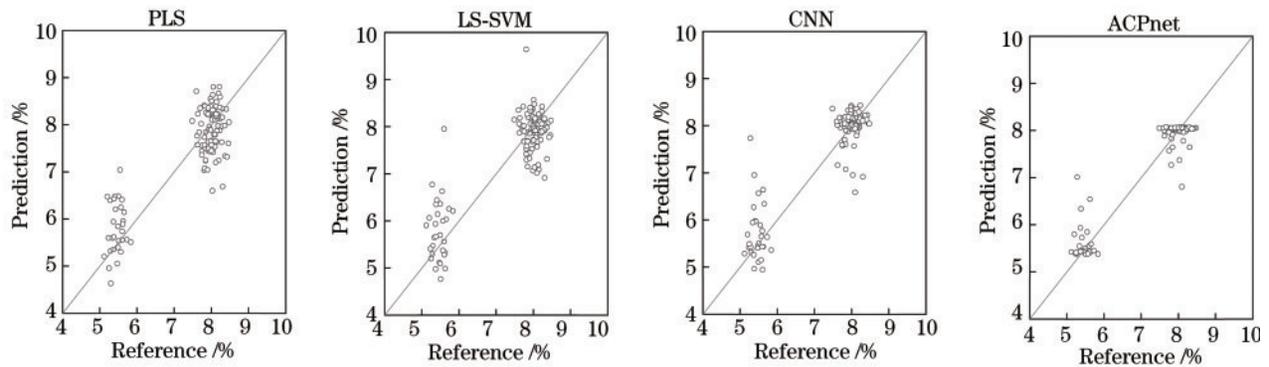


图 5 ACPnet 和对比方法得到的片剂(Raman)数据集回归图

Fig. 5 Regression curves of tablets (Raman) data set obtained by ACPnet and contrast methods

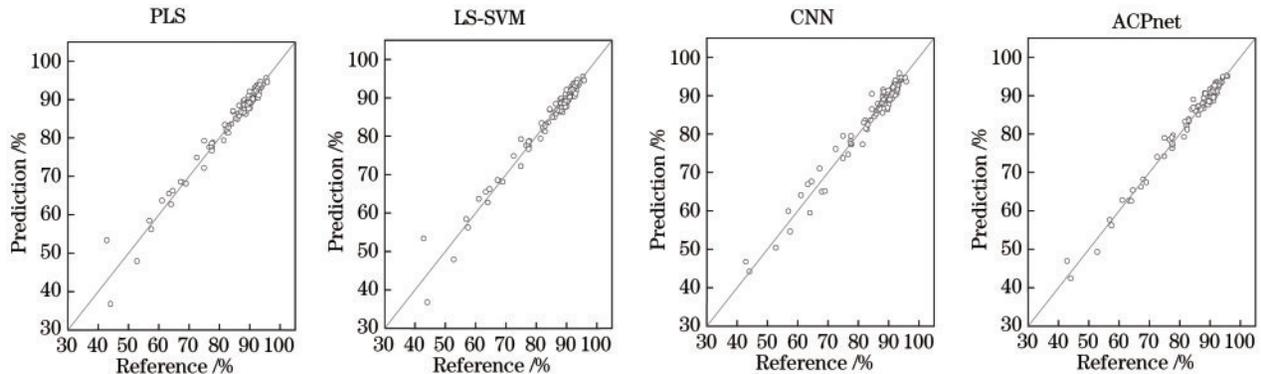


图 6 ACPnet 和对比方法得到的土壤(NIR)数据集回归图

Fig. 6 Regression curves of soil (NIR) data set obtained by ACPnet and contrast methods

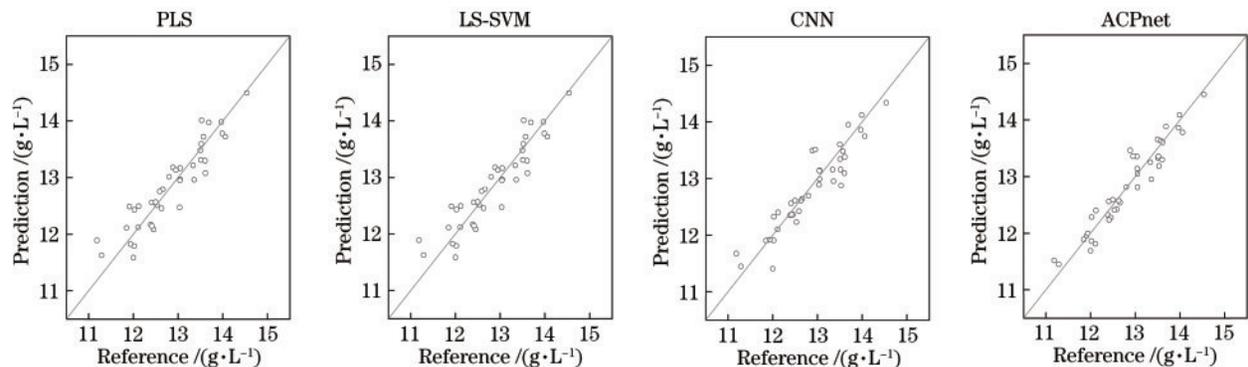


图 7 ACPnet 和对比方法得到的葡萄酒(NMR)数据集回归图

Fig. 7 Regression curves of wines (NMR) data set obtained by ACPnet and contrast methods

并行空洞卷积分支的感受野分别为 5、9 和 21, 其中空洞率分别为 1、2 和 5。总体结果表明, 短距离相关和长距离相关的平衡与融合比简单地增加感受野重要得多, 因此, 光谱曲线中某些特定峰的强度和形状以及不同峰之间的强度和位置关系都是光谱分析的关键。通过叠加具有锯齿波样空洞率的并行分支, 融合了多尺度的光谱特征。因此, ACCnet 的性能改进比 ACCnet 更为显著。

3.2 空洞率的影响

在本节中, 针对 ACCnet 和 ACPnet 研究了空洞率对回归精度的影响。图 3 中演示了 ACCnet 的回归建模结果, 其中空洞率从 1 到 10 不等。可以看出, 虽然在

空洞率为 2 时 ACCnet 的性能优于常规 CNN, 但随着空洞率的进一步增加, 3 个数据集的 RMSECV 总体上升。模型性能下降的原因可以从两个方面来解释: 一是增加空洞率导致所谓的“网格化”现象, 即无法学习光谱输入的一些短程信息; 二是有效权重的数量随着空洞率的增加而减少, 这是因为在大空洞率的情况下, 大量的权重被应用在填充零而不是真实的光谱像素上。在特征图和空洞率大小相似的极端情况下, 空洞卷积的卷积核甚至可能退化为 1×1 卷积核。图 8 中所示的训练集均方根误差 (RMSEC) 的增加也表明了大空洞率下回归拟合的退化。

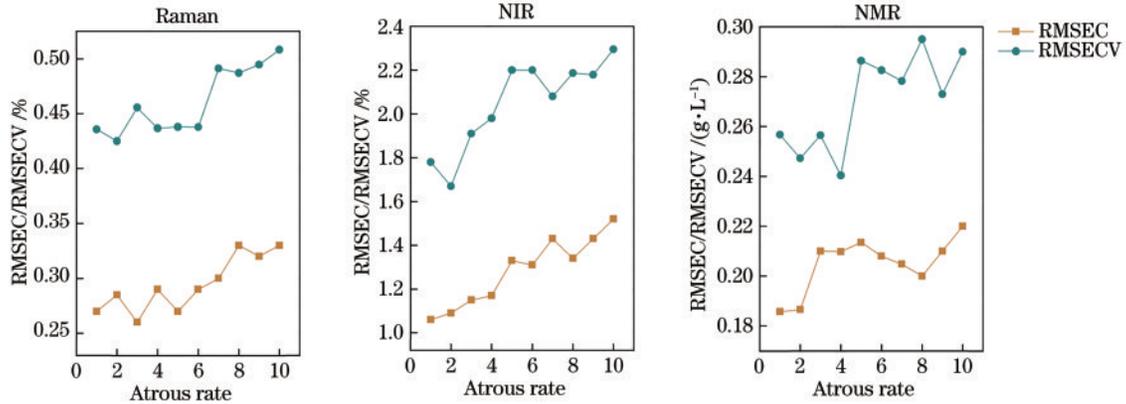


图 8 不同空洞率下 ACCnet 的回归结果

Fig. 8 Regression results obtained by ACCnet with different atrous rates

比较了 ACPnet 在 3 种不同空洞率规模 (小尺寸: $r=1, 2, 5$; 中尺寸: $r=3, 5, 9$; 大尺寸: $r=4, 8, 12$) 下的结果。如图 9 所示, 与 ACCnet 的结果相似, 3 个数据集下 ACPnet 的最佳性能是在空洞率较小的情况

下得到的。对比图 8 和图 9 的结果, 还可以观察到, 在较大空洞率的情况下, ACPnet 仍然比 ACCnet 表现更好。可以看出并行分支在消除“网格化”现象和避免卷积的卷积核退化方面有了一定改善。

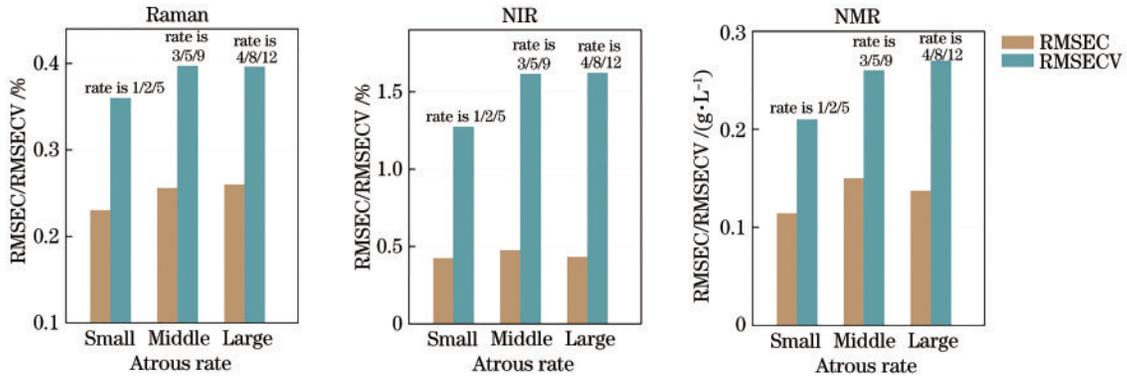


图 9 不同空洞率下 ACPnet 的回归结果

Fig. 9 Regression results obtained by ACPnet with different atrous rates

3.3 空洞卷积作为特征提取

CNN 模型的输出层可以看作是逻辑回归。因此, 将 CNN 提取的特征输入到不同的回归器^[18-19]可以评估提取特征的有效性。将性能最好的 ACPnet ($r=\{1, 2, 5\}$) 提取的特征输入到 PLS 和 LS-SVM 中, 建立提取-回归模型, 并将其与常规 CNN 提取的特征进行比较。如表 8~10 所示, 采用常规 CNN 和 ACPnet 提

取的特征后, PLS 和 LS-SVM 的性能均优于原始光谱特征, 说明基于 CNN 的网络可以有效地作为特征提取器。ACPnet 对所有 3 组数据集和所有回归器的性能都优于常规 CNN, 验证了提出的并行空洞卷积结构作为光谱特征提取器的优越性。与常规 CNN 提取器相比, ACPnet 获得的 Raman、NIR 和 NMR 数据集的 RMSECV 平均增益分别为 15.7%、5.5% 和 10.2%。

表 8 提取-回归模型下片剂(Raman)数据集的回归结果

Table 8 Regression results of tablets (Raman) data set obtained by extractor-regressor models

Regressor	Feature extractor					
	CNN			ACPnet		
	RMSECV / %	R^2	RPD	RMSECV / %	R^2	RPD
PLS	0.44±0.19	0.80±0.17	3.07±1.32	0.38±0.21	0.83±0.20	3.52±1.45
LS-SVM	0.45±0.21	0.78±0.19	3.10±1.52	0.37±0.25	0.83±0.23	3.99±1.71

表 9 提取-回归模型下片土壤(NIR)数据集的回归结果

Table 9 Regression results of soil (NIR) data set obtained by extractor-regressor models

Regressor	Feature extractor					
	CNN			ACPnet		
	RMSECV / %	R^2	RPD	RMSECV / %	R^2	RPD
PLS	1.55±0.16	0.96±0.02	7.17±2.56	1.48±0.75	0.96±0.01	7.55±2.50
LS-SVM	1.53±0.62	0.96±0.02	6.82±1.62	1.43±0.56	0.97±0.01	7.34±1.96

表 10 提取-回归模型下葡萄酒(NMR)数据集的回归结果

Table 10 Regression results of wines (NMR) data set obtained by extractor-regressor models

Regressor	Feature extractor					
	CNN			ACPnet		
	RMSECV / (g·L ⁻¹)	R^2	RPD	RMSECV / (g·L ⁻¹)	R^2	RPD
PLS	0.25±0.13	0.63±0.54	3.67±1.92	0.22±0.07	0.79±0.16	3.82±2.39
LS-SVM	0.24±0.12	0.67±0.45	3.91±2.48	0.22±0.09	0.82±0.14	3.88±2.43

在回归器方面,PLS和LS-SVM均没有优于常规CNN和空洞卷积的输出层,可能是因为高层特征是由卷积网络通过一系列非线性下采样操作提取出来的。因此,回归器不需要额外的降维和非线性变换。

4 总 结

本文构建了一种并行的空洞卷积方法,称为ACPnet,用于定量光谱分析,并在Raman、NIR和NMR数据集上进行了评估。在ACPnet中,采用具有多尺度空洞率的并行空洞卷积分支对光谱信号的近、远信息进行提取和融合。结果表明,与PLS、LS-SVM、常规CNN和ACCnet相比,该方法获得了最佳的回归性能。尽管应用空洞策略可以提高常规CNN的表现,但通过研究空洞率的影响可以发现,单纯增加空洞率会导致模型因局部信息丢失而退化,并且对于级联模式和并联模式的空洞卷积网络而言,会导致卷积的卷积核退化。将ACPnet提取的特征输入到PLS和LS-SVM中进行评估。与常规的CNN相比,ACPnet在所有的提取-回归模型中都取得了更好的性能,进一步验证了定量光谱分析中提取和融合短-长程相关性的意义。

参 考 文 献

- [1] Roggo Y, Degardin K, Margot P. Identification of pharmaceutical tablets by Raman spectroscopy and chemometrics[J]. *Talanta*, 2010, 81(3): 988-995.
- [2] Nicolai B M, Beullens K, Bobelyn E, et al. Nondestructive measurement of fruit and vegetable quality by means of NIR spectroscopy: a review[J]. *Postharvest Biology and Technology*, 2007, 46(2): 99-118.
- [3] Dais P, Hatzakis E. Quality assessment and authentication of virgin olive oil by NMR spectroscopy: a critical review[J]. *Analytica Chimica Acta*, 2013, 765: 1-27.
- [4] Tu Q, Chang C. Diagnostic applications of Raman spectroscopy[J]. *Nanomedicine: Nanotechnology, Biology and Medicine*, 2012, 8(5): 545-558.
- [5] Chavez P F, Sacré P Y, de Bleye C, et al. Active content determination of pharmaceutical tablets using near infrared spectroscopy as process analytical technology tool[J]. *Talanta*, 2015, 144: 1352-1359.
- [6] Xu M L, Gao Y, Han X X, et al. Detection of pesticide residues in food using surface-enhanced Raman spectroscopy: a review[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2017, 65(32): 6719-6726.
- [7] Lussier F, Missirlis D, Spatz J P, et al. Machine-learning-driven surface-enhanced Raman scattering optophysiology reveals multiplexed metabolite gradients near cells[J]. *ACS Nano*, 2019, 13(2): 1403-1411.
- [8] Liu Y S, Zhou S B, Han W, et al. Convolutional neural network for hyperspectral data analysis and effective wavelengths selection[J]. *Analytica Chimica Acta*, 2019, 1086: 46-54.
- [9] Erzina M, Trelin A, Guselnikova O, et al. Precise cancer detection via the combination of functionalized SERS surfaces and convolutional neural network with

- independent inputs[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2020, 308: 127660.
- [10] Acquarelli J, van Laarhoven T, Gerretzen J, et al. Convolutional neural networks for vibrational spectroscopic data analysis[J]. *Analytica Chimica Acta*, 2017, 954: 22-31.
- [11] Wu X J, Zhao Z L, Tian R L, et al. Identification and quantification of counterfeit sesame oil by 3D fluorescence spectroscopy and convolutional neural network[J]. *Food Chemistry*, 2020, 311: 125882.
- [12] 王欣, 樊彦国. 基于改进 DenseNet 和空谱注意力机制的高光谱图像分类[J]. *激光与光电子学进展*, 2022, 59(2): 0210014.
Wang X, Fan Y G. Hyperspectral image classification based on modified DenseNet and spatial spectrum attention mechanism[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2022, 59(2): 0210014.
- [13] Cui C H, Fearn T. Modern practical convolutional neural networks for multivariate regression: applications to NIR calibration[J]. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 2018, 182: 9-20.
- [14] Wang P Q, Chen P F, Yuan Y, et al. Understanding convolution for semantic segmentation[C]//2018 IEEE Winter Conference on Applications of Computer Vision, March 12-15, 2018, Lake Tahoe, NV, USA. New York: IEEE Press, 2018: 1451-1460.
- [15] 王爱丽, 张宇泉, 吴海滨, 等. 基于空洞卷积胶囊网络的激光雷达数据分类[J]. *中国激光*, 2021, 48(11): 1110003.
Wang A L, Zhang Y X, Wu H B, et al. LiDAR data classification based on dilated convolution capsule network[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(11): 1110003.
- [16] Chen L C, Papandreou G, Schroff F, et al. Rethinking atrous convolution for semantic image segmentation[EB/OL]. (2017-06-17)[2021-12-24]. <https://arxiv.org/abs/1706.05587>.
- [17] He K M, Zhang X Y, Ren S Q, et al. Delving deep into rectifiers: surpassing human-level performance on ImageNet classification[C]//2015 IEEE International Conference on Computer Vision, December 7-13, 2015, Santiago, Chile. New York: IEEE Press, 2015: 1026-1034.
- [18] Chen Y S, Jiang H L, Li C Y, et al. Deep feature extraction and classification of hyperspectral images based on convolutional neural networks[J]. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 2016, 54(10): 6232-6251.
- [19] Malek S, Melgani F, Bazi Y. One-dimensional convolutional neural networks for spectroscopic signal regression[J]. *Journal of Chemometrics*, 2018, 32(5): e2977.