

激光与光电子学进展

LIBS 结合机器学习算法的江西名优春茶采收期鉴别

陶雷^{1,2}, 蔡广源^{1,2}, 程占东^{1,2}, 黄林³, 何秀文¹, 徐将^{1,2}, 姚明印^{1,2*}¹江西农业大学工学院, 江西 南昌 330045;²江西省高校生物光电及应用重点实验室, 江西 南昌 330045;³江西农业大学生物科学与工程学院, 江西 南昌 330045

摘要 春茶采收期极大地影响其经济价值和消费者接受度。为快速鉴别不同采收期春茶,以庐山云雾茶和狗牯脑茶的明前茶、雨前茶为对象,研究激光诱导击穿光谱(LIBS)结合机器学习的茶叶鉴别方法。每类茶叶和茶水采集 100 幅光谱数据,并以 3:2 的比例随机划分训练集和测试集。对 LIBS 光谱进行基线校正预处理后优选出 11 组谱线数据,分别输入线性判别分析(LDA)、支持向量机(SVM)、K 最近邻(KNN)、集成学习(EML)分类模型进行分析。结果表明,将茶叶茶水数据融合可有效鉴别春茶采收期,且数据融合后表现出更好的稳定性和鲁棒性,其中,LDA 模型在庐山云雾春茶和狗牯脑春茶的测试集识别率分别达到 98.60%、99.38%。即 LIBS 结合机器学习算法区分不同采收期春茶具有可行性。

关键词 光谱学; 激光诱导击穿光谱; 机器学习; 线性判别分析; 茶叶鉴别

中图分类号 O433.4

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP231154

Using Laser Induced Breakdown Spectroscopy and Machine Learning to Identify Jiangxi Spring Tea Harvesting Periods

Tao Lei^{1,2}, Cai Guangyuan^{1,2}, Cheng Zhandong^{1,2}, Huang Lin³, He Xiuwen¹,
Xu Jiang^{1,2}, Yao Mingyin^{1,2*}¹College of Engineering, Jiangxi Agricultural University, Nanchang 330045, Jiangxi, China;²Key Laboratory of Biological Optoelectronics and Application in Jiangxi Universities, Nanchang 330045,
Jiangxi, China;³College of Bioscience and Bioengineering, Jiangxi Agricultural University, Nanchang 330045, Jiangxi, China

Abstract The harvesting period of spring tea significantly affects its economic value and consumer preference. To quickly identify different harvesting periods of spring tea, we employed laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS) combined with machine learning algorithms. This approach was used to identify the before-brightness tea and before-rain tea of Mt. Lushan fog tea and Dog bull head tea. One hundred spectra were collected for each type of tea leaves and tea infusion, and the training and test sets were randomly divided in a ratio of 3 : 2. The LIBS spectra were pre-processed with baseline correction and then 11 sets of spectral data were preferentially selected, and input into the linear discriminant analysis (LDA), support vector machines (SVM), K-nearest neighbor (KNN) and ensemble machine learning (EML) classification models for analysis, respectively. Findings showed that combining tea leaves and tea infusion data effectively identified the spring tea's harvesting period. This fusion approach exhibited superior stability and robustness. Specifically, the LDA model achieved recognition rates of 98.60% and 99.38% in the test sets for Mt. Lushan fog tea and Dog bull head tea, respectively. Therefore, this study demonstrates the feasibility of integrating LIBS with machine learning algorithms to discern different harvesting periods of spring tea.

Key words spectroscopy; laser-induced breakdown spectrum; machine learning; linear discriminant analysis; tea identification

收稿日期: 2023-04-23; 修回日期: 2023-06-05; 录用日期: 2023-06-15; 网络首发日期: 2023-07-12

基金项目: 国家自然科学基金(32260626)、国家重点研发计划子课题(2022YFD160060102)、江西省教育厅科技基金项目(GJJ190189)

通信作者: *mingyin800@126.com

1 引言

茶是世界三大饮品之一^[1],长期饮茶对人体有抗肿瘤、抗氧化、抗辐射和抗肥胖等诸多益处^[2]。研究表明,茶叶的品质因季节而异,不同采收期茶叶质量有较大差异^[3]。此外,夏秋季节收获的新鲜茶叶制成的茶比春季收获的茶更苦,这也导致春茶经济价值比夏秋茶高得多^[4]。可见,茶叶的质量和价格与采收期密切相关,这也影响了消费者对不同采收期茶叶的选择。

近年来,茶叶采收期真伪备受关注。Cui等^[5]采用超高效液相色谱-串联三重四级杆飞行时间质谱技术,并结合差异脂质和代谢物组合的重建模型,对早春茶与晚春茶进行分类鉴别研究。Peng等^[6]运用高效液相色谱-二极管阵列检测器(HPLC-DAD)结合不同化学计量学方法,成功实现对崂山绿茶的采收季节高精度识别。Liu等^[7]利用电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)、电感耦合等离子体发射光谱(ICP-OES)方法,获取5种年份采收期下云南普洱茶矿物元素和稳定同位素组成的指纹图谱,并建立基于两种无监督和三种有监督学习方法的普洱茶预测模型。需要说明的是,这些方法耗时长、仪器昂贵,同时依赖于操作人员的专业知识,无法满足快速、原位、现场检测的现实需要。

值得一提的是,名优春茶的需求和经济利益不断增长,而其中的明前茶更是有“明前茶,贵如金”的美誉。然而,为获得更高的经济效益,部分不法生产商混淆春茶采收期标签进行销售,这极大地损害了消费者的利益,扰乱了市场秩序。为确保春茶的品质和安全,并维护良好的市场秩序,春茶采收期真实性评价成为质量保证的基础,也是质量安全管理及相关法规实施的关键。通常,春茶采收期是绿茶品质最重要的判断

标准,也是确定其价格的决定性因素^[5]。目前,春茶采收期鉴别方法主要依赖传统的感官评价。然而,感官评价需要高度专业的评茶员,并且具有一定的主观性。此外,由于春茶采收期之间的时间间隔短,且属于同一类茶叶,感官评价的难度大。因此,从实际需求出发,探索一种绿色、快速、准确的春茶采收期分类鉴别方法,是促进我国现代农业发展的必然趋势。

激光诱导击穿光谱(LIBS)技术是近些年发展起来的一种对材料所含元素进行定性和定量分析的检测技术^[8],相对于其他分析技术,LIBS技术具有多元素同时检测、结构简单、检测速度快等独特优势^[9]。目前,利用LIBS检测技术对茶叶样品进行快速分类已成为国内外LIBS领域研究的热点^[10-13]。这些研究表明,利用LIBS表征的物质元素光谱信息结合化学计量学模型对茶叶的地理来源和品种进行追溯是可行的。然而,目前缺乏春茶采收期LIBS鉴别相关研究。因此,本工作通过分析江西特色名优春茶不同采收期的LIBS特征光谱,寻找春茶采收期快速鉴别方法。

2 材料与方 法

2.1 样品制备

本工作所分析的春茶样品均采自中国江西省,分为明前(清明节气前采收)茶与雨前(清明节气到谷雨节气间采收)茶两类采收期春茶,样品具体信息如表1所示,其中,CNY/50 g表示的是每50 g茶叶的价格。值得说明的是,庐山云雾茶和狗牯脑茶在江西品牌价值中排名前两位,在2021年中国茶叶区域公用品牌价值评估中,庐山云雾茶和狗牯脑茶分别排第18位和第32位^[14]。本研究以这两种江西特色名优茶叶为例,开展基于LIBS的春茶采收期鉴别分析工作,并据此将样品进行规范保存、预处理和实验。

表1 春茶样品信息

Table 1 Information of spring tea samples

No.	Harvesting period	Tea name	CNY/50 g	Sample source
1	before-brightness	Mt. Lushan fog tea	120	Jiangxi Gonghehou Tea Industry Co. Ltd.
2	before-rain	Mt. Lushan fog tea	70	(Jiujiang, China)
3	before-brightness	Dog bull head tea	100	Suichuan County Tanghu-guotou
4	before-rain	Dog bull head tea	50	Tea Factory (Ji'an, China)

对于茶叶样品,为获得较好的LIBS信号,并减少样品中元素物理、化学基体的影响,采用粉碎机将茶叶粉碎后过100目筛,利用电子天平称量3 g样品粉末,在压片机20 t的压力下将待测样品压制直径约为25 mm、厚度约为3 mm的圆饼片。每类春茶取10个重复样本,共得到40个实验样本。

对于茶水样品,当LIBS技术应用于液体中重金属元素检测时,激光能量损耗大、水体的淬灭效应、水体对等离子体的压缩作用和水中等离子体的离散结构等会导致检测的光谱信号弱且不稳定^[15]。为了解决这

一问题,本实验组探索了多种改变液体样品形态的方法,包括原始溶液、冷冻样品、木片富集和滤纸富集。经过测试,滤纸富集技术被确定为最有效的方法。最终采取如下茶水富集实验方案:将3 g茶叶称入100 mL烧杯中,加入50 mL的100 °C蒸馏水,浸泡5 min,再将茶水样品浸入直径为60 mm含有定量滤纸的培养皿中,目的是将茶水中浸出的物质富集在滤纸上,并让滤纸自然干燥。对每类春茶的10个茶水样品重复此方案,共获得40个测试样品。

获得的单个茶叶及茶水富集的样品如图1所示。

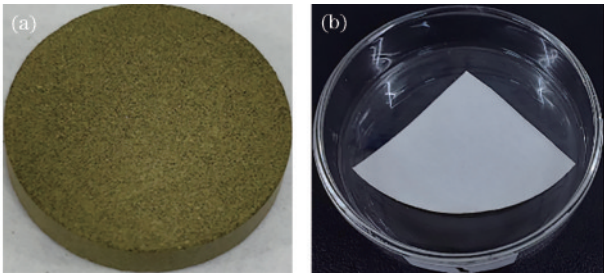


图1 单个实验样品。(a)茶叶;(b)茶水富集

Fig. 1 Single experimental sample. (a) Tea leaves; (b) tea infusion enrichment

2.2 LIBS 实验装置

LIBS 检测系统主要装置如图 2 所示。采用波长为 1064 nm、脉冲能量为 170 mJ、脉冲宽度为 8 ns、重复频率为 2 Hz 的调 Q Nd:YAG 激光器 (Beamtech VLite-200, 北京镭宝光电技术有限公司, 中国), 激光聚焦到样品表面的光斑直径约为 250 μm 。将样品放置在二维匀速旋转平台 (SC300-1A, 北京卓立汉光仪器有限公司, 中国) 上, 激光通过 45° 反射镜和穿孔镜后聚焦到 100 mm 焦距的石英透镜。激光激发样品等离子体信号通过另一 100 mm 焦距的平凸透镜聚焦于直径为 600 μm 的光纤, 等离子体光谱信号被 200~1050 nm 的光谱波长范围、0.06~0.13 nm 光谱分辨率的光谱仪 (AvaSpec-2048FT-8RM, 北京爱万提斯科技有限公司, 中国) 收集。光谱仪和激光器由延时触发器 (DG645, 斯坦福研究系统公司, 美国) 外部触发。为保证测量光谱具有较好的信号, 对光谱仪的积分时间和延迟时间进行优化, 分别为 2 ms 和 1.28 μs 。

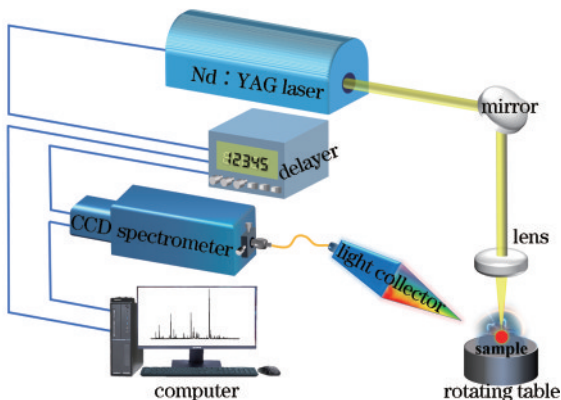


图2 LIBS 主要装置示意图

Fig. 2 Schematic diagram of LIBS main installation

需要说明的是, 对于每类采收期春茶, 前期分别获得 10 个茶叶样品和 10 个茶水样品。而针对于每个样本, 随机取 10 个测试位点进行光谱采集, 同时为减少光谱的波动性, 将每个位点产生的 3 个脉冲光谱均值作为一幅光谱, 即每类茶叶和茶水样品得到 100 幅光谱数据, 4 类关联采收期春茶的茶叶和茶水分别获得 400 幅光谱数据。

2.3 算法描述

主成分分析 (PCA) 是把多个特征映射为少数几个综合特征, 以快速处理数据的一种统计分析方法。

线性判别分析 (LDA) 是一种经典的线性学习方法, 其数学思想是: 寻找一个投影空间, 使得所有样本在该投影空间, 满足同类样本的投影点尽可能接近和异类样本的投影点尽可能远离的要求^[16]。支持向量机 (SVM) 最早在 20 世纪 90 年代由 Cortes 等^[17]提出, 是一种二分类模型, 它的基本模型是定义在特征空间上的间隔最大的线性分类器, 本实验的 SVM 模型采用线性核。K 最近邻 (KNN) 是机器学习中一种基本的分类方法^[18], 分类时, 对于待预测样本, 根据其 K 个最近的训练样本的类别, 通过多数表决的方式进行预测。集成学习 (EML) 算法, 其分类原理是将多个弱分类器相结合, 当多个弱分类器的类型相同时为同质集成, 反之为异质集成^[19]。

值得注意的是, 这些算法是在 Matlab 2020a 上实现的, 其中的机器学习算法都包含在 Matlab 自带的分类学习者应用程序 (统计和机器学习工具箱 11.7) 中。总的来说, 这些算法是机器学习的强大工具, 被广泛用于解决各种分类和特征提取问题。

3 结果与讨论

3.1 样品 LIBS 特征谱线分析

在优化的 LIBS 实验条件下, 采集的庐山云雾茶和狗牯脑茶明前、雨前原始茶叶的 LIBS 平均光谱对比如图 3(a)、(b) 所示, 茶水富集后的 LIBS 平均光谱对比如图 4(a)、(b) 所示。可以看出, LIBS 光谱包含众多离散的光谱线, 而光谱线的强度与特定化学元素的浓度有关, 这些元素可通过美国国家标准与技术研究所 (NIST) 的原子光谱数据库来确定。在 200~1050 nm 波长范围内, 所测特征谱线波长差异小, 即不同采收期茶叶所含元素类型几乎相同; 而不同采收期 LIBS 光谱强度在特定的波长上观察到明显的区别, 这和 Lu 等^[20]工作中的特征光谱表征结果类似。同时, 本工作中的两类名优茶的雨前整体 LIBS 光谱强度较明前更高, 可能的原因是雨前茶的生长周期更长。

此外, 可看到原始光谱在 550~700 nm 等波段存在轻微的背景干扰。因此, 采用一种典型的基线校正方法对原始 LIBS 数据进行预处理, 即对谱峰进行识别, 扣除基线强度, 其能有效地避免基线强度对谱线强度造成的影响和防止模型过拟合。以庐山云雾茶为例, 基线校正后 LIBS 茶叶平均图谱如图 5 所示, LIBS 光谱中连续背景辐射得到了有效消除, 且光谱预处理前后的整体趋势未发生改变。

3.2 光谱特征提取

在 LIBS 检测过程中, 会产生高维度的光谱数据, 这项工作中单幅光谱直接获得的数据维度为 16359 维, 而 LIBS 分析通常只使用特征峰的波长和强度信

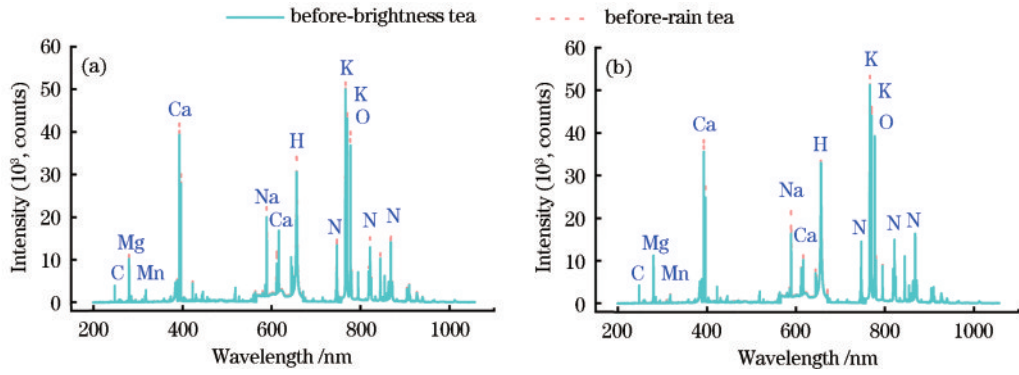


图 3 茶叶 LIBS 平均光谱图。(a)庐山云雾茶叶原始光谱；(b)狗牯脑茶叶原始光谱

Fig. 3 LIBS average spectrogram of tea leaves. (a) The original spectrum of Mt. Lushan fog tea leaves; (b) the original spectrum of Dog bull head tea leaves

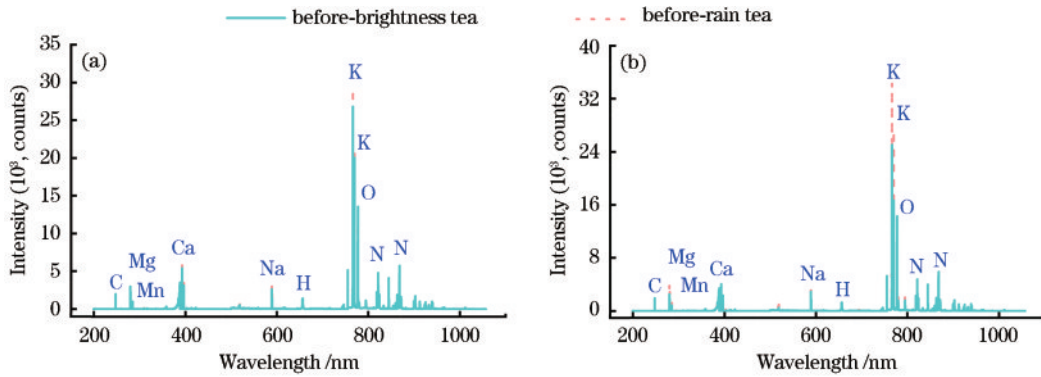


图 4 茶水 LIBS 平均光谱图。(a)庐山云雾茶原始光谱；(b)狗牯脑茶原始光谱

Fig. 4 LIBS average spectrogram of tea infusion. (a) The original spectrum of Mt. Lushan fog tea infusion; (b) the original spectrum of Dog bull head tea infusion

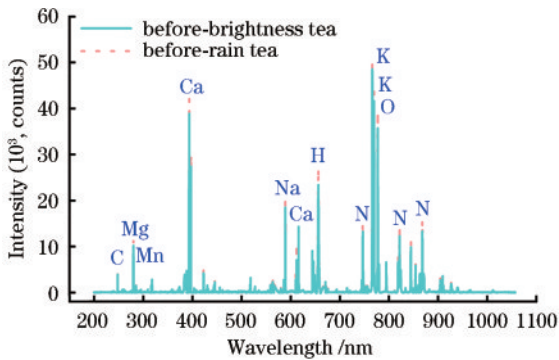


图 5 基线校正庐山云雾茶叶平均光谱图

Fig. 5 Baseline corrected average spectrogram of Mt. Lushan fog tea leaves

息。因此,对 LIBS 光谱数据进行特征提取有助于提高分类的识别准确率和效率。对其主要的元素组成进行鉴定和标记后可以看出 Mg、Mn、Ca、Na、K 等金属以

及 C、H、O、N 等非金属元素清晰的特征谱线。由于实验在自然环境下进行,为减少空气中氧气和氮气对结果的影响,故不参考 O 和 N 的特征谱线。优选出 11 条谱线差异的信息作为光谱指纹来识别不同类型的茶,如表 2 所示。

3.3 春茶样品 PCA 探索性分析

将上述优选的 11 条特征谱线数据作为输入变量,分别采用 PCA 法对春茶样品的茶叶、茶水及茶叶茶水融合的光谱数据进行聚类分析。值得说明的是,茶叶茶水融合的方法是特征级融合,即将茶叶和茶水各自优选的 11 个特征峰拼接起来,形成 22 个谱峰数据融合的特征空间。分别利用庐山云雾春茶和狗牯脑春茶的 PCA 前三主成分得分绘制三维散点图,并标出 95% 的置信区间,如图 6、7 所示。可以看出,尽管类内样本较为集中,但茶叶类别之间有重叠的 PCA 聚类属性,这表明了区分的挑战性。其可能的原因是明前茶、雨前

表 2 优选的 11 条谱峰

Table 2 Preferred 11 spectrum peaks

Characteristic element	C I	Mg II	Mn I	Ca II	Na I	H I	K I
Wavelength /nm	247.86	279.55	279.83	393.37	589.00	656.29	766.49
		280.27		396.85	589.59		769.90

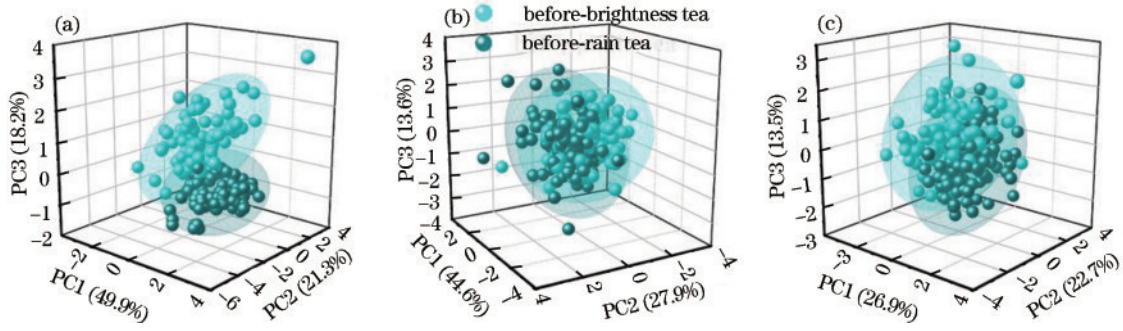


图 6 庐山云雾春茶 PCA 三维散点图。(a)茶叶;(b)茶水;(c)融合数据

Fig. 6 PCA three-dimensional scatter plot of Mt. Lushan fog tea. (a) Tea leaves; (b) tea infusion; (c) fusion data

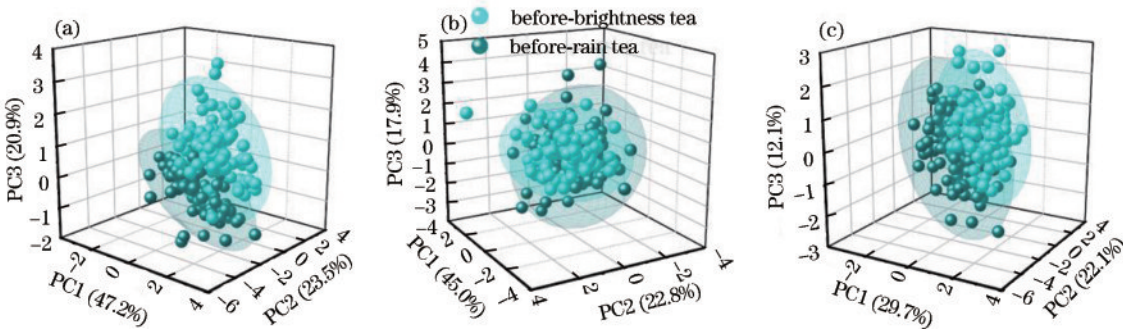


图 7 狗牯脑春茶 PCA 三维散点图。(a)茶叶;(b)茶水;(c)融合数据

Fig. 7 PCA three-dimensional scatter plot of Dog bull head tea (a) Tea leaves; (b) tea infusion; (c) fusion data

茶生长条件类似(包括气候和土壤等)。因此,有必要引入其他算法以实现春茶采收期鉴别。

3.4 机器学习算法分类

将优选的茶叶、茶水以及茶叶茶水融合谱峰构建特征空间,同时采用机器学习中常用的随机化测试策略,对于每个分类任务,光谱数据以 3:2 的比例随机分为训练样本和测试样本^[21]。值得说明的是,训练集识别率的统计采用小样本的 5-折交叉验证法,即将样本随机分为 5 等份,每次将其中 1 份作为验证集,剩下 4 份作为训练集进行训练,将 5 次结果的正确率平均值作为对训练集精度的估计。

基于此,采用 LDA、SVM、KNN 和 EML 机器学习算法实现江西名优春茶快速鉴别。此外,为了保证训

练集和测试集的代表性和平衡性,以及避免过拟合或欠拟合的问题。评估随机划分训练集和测试集 1000 次的分类效果,同时这个过程并没有进行迭代优化,以保证结果的独立性和可靠性。值得提出的是,茶叶、茶水和融合数据在单次的模式识别用时都稳定在 0.1 s 左右,说明茶叶茶水融合之后数据处理过程并没有增加太多时间消耗。庐山云雾春茶、狗牯脑春茶的每种模式识别连续 1000 次交叉验证集和测试集平均识别率结果如表 3、表 4 所示,括号内数值表示的是 1000 次分类结果的标准误差。

绘制庐山云雾春茶、狗牯脑春茶测试集连续 1000 次平均识别率,如图 8(a)、(b)所示,误差棒表示的是 1000 次分类结果的标准误差。

表 3 庐山云雾茶的交叉验证集和测试集的分类模型结果比较

Table 3 Comparison of classification model results for the cross-validation sets and test sets of Mt. Lushan fog tea

Mt. Lushan fog tea	Tea leaves	Tea infusion	Fusion date	Tea leaves	Tea infusion	Fusion date
Model	Cross-validation sets / %			Test sets / %		
LDA	96.46 (1.29)	91.31 (1.86)	98.29 (1.07)	96.78 (1.98)	91.48 (2.51)	98.60 (1.37)
SVM	96.56 (1.65)	89.30 (2.30)	97.64 (1.30)	97.23 (2.02)	90.39 (2.98)	98.05 (1.52)
KNN	94.60 (1.81)	87.41 (2.53)	94.66 (1.67)	94.70 (2.12)	87.79 (3.43)	95.25 (2.11)
EML	97.41 (1.15)	86.97 (2.40)	97.66 (1.08)	97.45 (1.88)	87.66 (4.12)	97.71 (1.70)

分析验证集和测试集的平均识别率结果可知,茶叶的分类效果优于茶水,而数据融合之后的效果最好,同时数据融合之后 1000 次运行结果的标准差变小了,即分类结果更为稳定。以 LDA 模型为例:庐山云雾春

茶数据融合之后测试集准确率相较于茶叶和茶水分别提升了约 1.82 个百分点和 7.12 个百分点,而标准差分别降低了约 30.81% 和 45.42%;狗牯脑春茶数据融合之后测试集准确率相较于茶叶和茶水分别提升了约

表 4 狗牯脑茶的交叉验证集和测试集的分类模型结果比较

Table 4 Comparison of classification model results for the cross-validation sets and test sets of Dog bull head tea

Dog bull head tea	Tea leaves	Tea infusion	Fusion date	Tea leaves	Tea infusion	Fusion date
Model	Cross-validation sets /%			Test sets /%		
LDA	99.01 (0.79)	94.63 (1.66)	99.20 (0.72)	99.09 (0.89)	95.13 (2.19)	99.38 (0.77)
SVM	96.52 (1.18)	95.20 (1.58)	98.50 (0.94)	96.81 (1.92)	95.43 (2.05)	98.70 (1.13)
KNN	93.46 (1.78)	92.72 (2.01)	95.63 (1.68)	94.10 (2.66)	93.43 (2.49)	96.11 (2.09)
EML	97.05 (1.07)	95.21 (1.59)	99.37 (0.51)	96.87 (1.64)	95.48 (2.28)	99.43 (0.72)

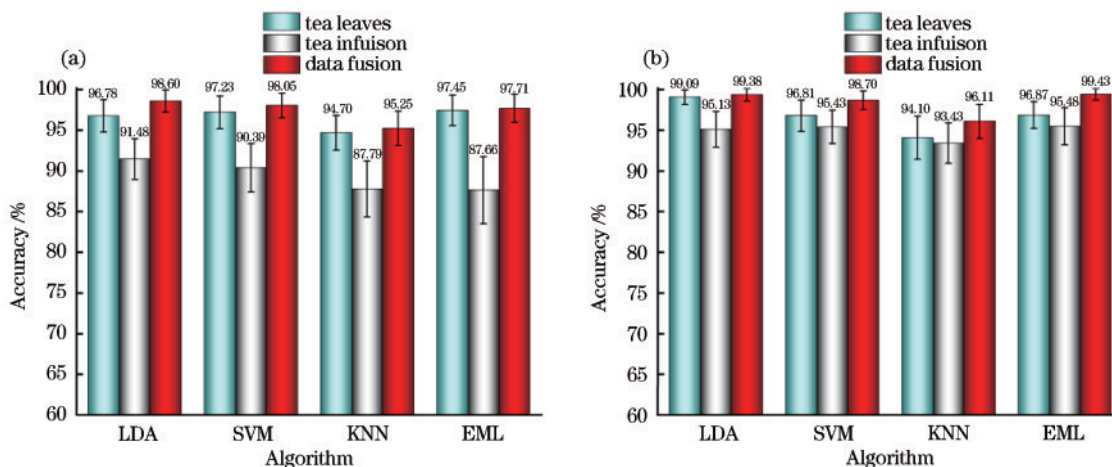


图 8 1000 次平均识别率对比图。(a)庐山云雾春茶;(b)狗牯脑春茶

Fig. 8 Comparison chart of the average recognition rate of one thousand times. (a) Mt. Lushan fog Spring tea; (b) Dog bull head Spring tea

0.29 个百分点和 4.25 个百分点,而标准差分别降低了约 13.48% 和 64.84%。因此,融合方法比单独的方法具有更好的稳定性和鲁棒性。

通过比较 4 种识别算法,发现 LDA 模型具有更好的性能和稳定性:庐山云雾春茶的茶叶、茶水及数据融合的 1000 次测试集平均识别率分别为 96.78%、91.48% 和 98.60%;狗牯脑春茶的茶叶、茶水及数据融合的 1000 次测试集平均识别率分别为 99.09%、95.13% 和 99.38%。而 KNN 模式识别测试结果较差,但表现较差的茶水分类结果仍在 87% 以上,数据融合之后可达 95% 的准确率,可见所使用的机器学习算法均具有良好的分类性能。

4 结 论

在茶叶检测中,对不同采收期春茶的鉴别是一项重要工作。本研究采集了 2022 年江西两种名优茶春季不同采收期 LIBS 光谱,采用基线校正方法对 LIBS 光谱背景信号进行修正,并优选出 11 组特征变量,引入 LDA、SVM、EML、KNN 算法构建训练分类模型。结果表明,融合数据的分类结果优于单独使用茶叶或茶水获得的结果,其中,LDA 模型表现较好,对于庐山云雾春茶与狗牯脑春茶的 1000 次交叉验证集和测试集,平均准确率分别达到 98.29% 和 98.60% 以及 99.20% 和 99.38%。研究结果表明,LIBS 结合机器学习方法对春茶采收期鉴别具有可观潜力。此外,针

对茶叶和茶水的 LIBS 光谱学和化学计量学相结合的方法可以扩展到其他茶叶类型的识别。

参 考 文 献

- [1] Yan Z M, Zhong Y Z, Duan Y H, et al. Antioxidant mechanism of tea polyphenols and its impact on health benefits[J]. *Animal Nutrition*, 2020, 6(2): 115-123.
- [2] Zeng C Z, Lin H Y, Liu Z X, et al. Metabolomics analysis of *Camellia sinensis* with respect to harvesting time[J]. *Food Research International*, 2020, 128: 108814.
- [3] Liu Y, Huang J L, Li M H, et al. Rapid identification of the green tea geographical origin and processing month based on near-infrared hyperspectral imaging combined with chemometrics[J]. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 2022, 267: 120537.
- [4] Dai W D, Qi D D, Yang T, et al. Nontargeted analysis using ultraperformance liquid chromatography-quadrupole time-of-flight mass spectrometry uncovers the effects of harvest season on the metabolites and taste quality of tea (*Camellia sinensis* L.) [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2015, 63(44): 9869-9878.
- [5] Cui H N, Gu H W, Li Z Q, et al. Integration of lipidomics and metabolomics approaches for the discrimination of harvest time of green tea in spring season by using UPLC-Triple-TOF/MS coupled with chemometrics[J]. *Frontiers in Sustainable Food Systems*, 2023, 7: 1119314.
- [6] Peng T Q, Yin X L, Gu H W, et al. HPLC-DAD fingerprints combined with chemometric techniques for

- the authentication of plucking seasons of Laoshan green tea[J]. *Food Chemistry*, 2021, 347: 128959.
- [7] Liu H L, Zeng Y T, Zhao X, et al. Monitoring the authenticity of Pu'er tea via chemometric analysis of multielements and stable isotopes[J]. *Food Research International*, 2020, 136: 109483.
- [8] 黄梦琴, 吴书佳, 姚明印, 等. 基于空间限域提高激光诱导击穿光谱对猪饲料 Cu 元素的检测精度[J]. *激光与光电子学进展*, 2023, 60(7): 0730002.
Huang M Q, Wu S J, Yao M Y, et al. Improving detection accuracy of laser-induced breakdown spectroscopy for Cu element in pig feed based on spatial confinement[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2023, 60(7): 0730002.
- [9] 李祥友, 刘可, 周冉, 等. 激光诱导击穿光谱技术及应用综述[J]. *中国激光*, 2022, 49(12): 1202003.
Li X Y, Liu K, Zhou R, et al. Laser-induced breakdown spectroscopy and its application[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2022, 49(12): 1202003.
- [10] Yao M Y, Fu G R, Chen T B, et al. A modified genetic algorithm optimized SVM for rapid classification of tea leaves using laser-induced breakdown spectroscopy[J]. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 2021, 36(2): 361-367.
- [11] 饶刚福, 黄林, 何秀文, 等. 基于激光诱导击穿光谱的茶叶品种识别模型对比[J]. *激光与光电子学进展*, 2018, 55(2): 0230002.
Rao G F, Huang L, He X W, et al. Comparison of tea variety discriminating models based on laser induced breakdown spectroscopy[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2018, 55(2): 023002.
- [12] Wang R, Ma X H, Zhang T Y, et al. Study on tea classification based on provenance via random forests and laser induced breakdown spectroscopy[J]. *Proceedings of SPIE*, 2021, 12064: 1206402.
- [13] 徐向君, 王宪双, 李昂泽, 等. 基于激光诱导击穿光谱的茶叶品种快速分类[J]. *中国激光*, 2019, 46(3): 0311003.
Xu X J, Wang X S, Li A Z, et al. Fast classification of tea varieties based on laser-induced breakdown spectroscopy[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(3): 0311003.
- [14] 胡晓云, 李闯, 魏春丽, 等. 2021 中国茶叶区域公用品牌价值评估报告[J]. *中国茶叶*, 2021, 43(5): 32-51.
Hu X Y, Li C, Wei C L, et al. 2021 China tea regional public brand value evaluation report[J]. *China Tea*, 2021, 43(5): 32-51.
- [15] 李娜, 汤少华, 陆梦洁, 等. 激光波长对水体中激光诱导击穿光谱和空化气泡演化的影响[J]. *光学学报*, 2022, 42(18): 1801005.
Li N, Tang S H, Lu M J, et al. Effect of laser wavelength on laser-induced breakdown spectrum and evolution of cavitation bubble in bulk water[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(18): 1801005.
- [16] Martinez A M, Kak A C. PCA versus LDA[J]. *IEEE Transactions on Pattern Analysis and Machine Intelligence*, 2001, 23(2): 1801005.
- [17] Cortes C, Vapnik V. Support-vector networks[J]. *Machine Learning*, 1995, 20(3): 273-297.
- [18] Guo G D, Wang H, Bell D, et al. KNN model-based approach in classification[M]//Meersman R, Tari Z, Schmidt D C. On the move to meaningful internet systems 2003: CoopIS, DOA, and ODBASE: OTM Confederated International Conferences, CoopIS, DOA, and ODBASE 2003. Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2003: 986-996.
- [19] 赵志方. 基于激光诱导击穿光谱的分类算法研究及应用[D]. 武汉: 华中科技大学, 2021.
Zhao Z F. Research and application of classification algorithm based on laser-induced breakdown spectrum [D]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology, 2021.
- [20] Lu X, Liu Y Z, Zhang Q H, et al. Study on tea harvested in different seasons based on laser-induced breakdown spectroscopy[J]. *Laser Physics Letters*, 2020, 17(1): 015701.
- [21] Zhao S Y, Song W R, Hou Z Y, et al. Classification of ginseng according to plant species, geographical origin, and age using laser-induced breakdown spectroscopy and hyperspectral imaging[J]. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 2021, 36(8): 1704-1711.