

文章编号 : 0253-2239(2002)11-1345-05

利用人工神经网络方法提高差分光学吸收光谱系统 测量精度研究*

齐 锋 刘文清 周 斌 李振壁 崔延军

(中国科学院安徽光学精密机械研究所环境光学研究室 , 合肥 230031)

摘要 : 差分光学吸收光谱法已经变成了测量大气中微量气体浓度常用的方法。微量气体的浓度通过对大气吸收光谱的分析得到。但在实际应用中 , 由于受到硬件条件的限制 , 使得每次分析的光谱带宽有限 , 造成分析的误差较大 , 结果不够稳定。这里提出了一种利用多层自适应线性 (Madaline) 神经网络对光谱进行扩展的方法 , 并对试验结果进行了比较 , 收到了良好的效果。

关键词 : 差分光学吸收光谱法 ; 多层自适应线性神经网络

中图分类号 : TP183 : O659.32 文献标识码 : A

1 问题的提出

随着全球工业的迅猛发展 , 对环境的污染越来越严重 , 尤其在发展中国家 , 环境监测及治理手段还都比较落后。我国已经把环境保护确立为一项长期坚持的基本国策 , 确定了环境与经济社会协调和可持续发展的战略。

对环境监测目前普遍采用化学方法和光谱学方法。差分光学吸收光谱法便是光谱方法的典型代表。

1.1 差分光学吸收光谱方法简介

差分光学吸收光谱方法是通过窄带分子吸收波段来区分微量气体 , 并用它们的吸收强度来得到对流层或平流层中微量气体的浓度。一种典型的测量平流层中气体浓度的差分光学吸收光谱系统的结构如图 1 所示^[1,2]。由一个合适的光源发出强度为 $I_0(\lambda)$ 的光 , 通过大气 , 最后被望远镜接收。在光通过大气的路径中 , 光经历了不同种类微量气体的吸收和气体分子和雾颗粒的散射。根据朗伯-比尔公式 , 在光路末端的光强 $I(\lambda, L)$ 由 (1) 式决定。

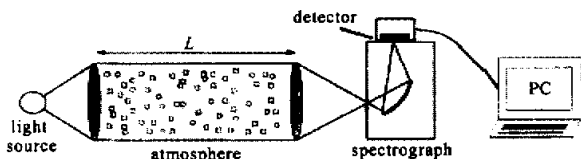


Fig.1 Schematic view of a DOAS instrument

$$I(\lambda, L) = I_0(\lambda) \exp \left\{ \int_0^L \sum_j [- \sigma_j^{Abs}(\lambda, p, T) \times \rho_j(l)] - \epsilon_R(\lambda, l) - \epsilon_M(\lambda, l) dl \right\} + N(\lambda), \quad (1)$$

第 j 种气体的吸收由它的吸收截面 $\sigma_j^{Abs}(\lambda, p, T)$ 来标识 , 它依赖于波长 λ , 压力 p 和温度 T , 以及它在光路上 l 处的密度 $\rho_j(l)$ 。悬浮颗粒的瑞利散射和米

氏散射用 $\epsilon_R(\lambda, l)$ 和 $\epsilon_M(\lambda, l)$ 描述。 $N(\lambda)$ 是光子的噪声 , 它依赖于 $I(\lambda, L)$ 。

差分光学吸收光谱的基本思想是将吸收截面分成两部分 $\sigma_j^{Abs} = \sigma_j^B + \sigma_j'$, 其中 σ_j^B 代表宽带光谱特征 , 而差分吸收截面 σ_j' 代表了窄带光谱特征。当仅仅考虑 σ_j' 时 , 将会避免瑞利散射和米氏散射的影响。利用差分光学吸收光谱方法进行微量气体浓度

* 中国科学院知识创新工程 (kgcx2-03) 资助课题。

E-mail : fqi@aiofm.ac.cn

收稿日期 2001-11-26 ; 收到修改稿日期 2002-01-17

的反演过程如图 2 所示。

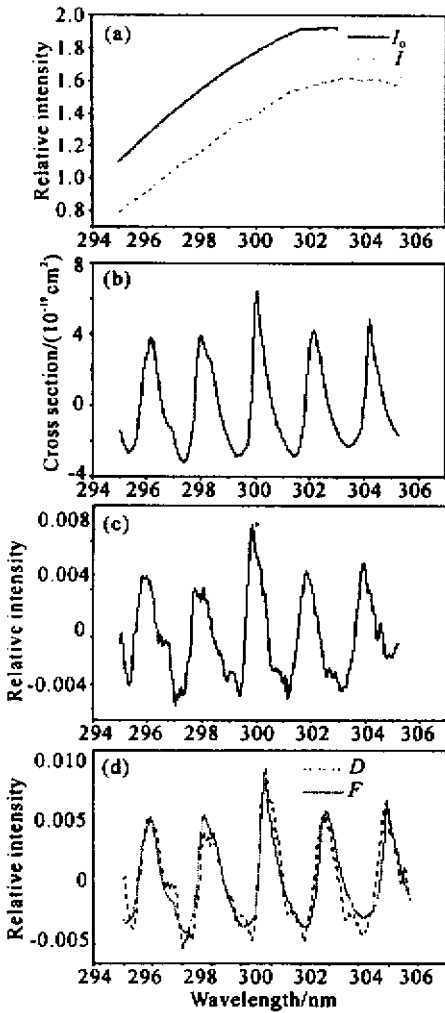


Fig.2 Spectra analysis process to calculate gases concentrations. (a) I_0 : lamp spectra, I : signal spectra; (b) The standard absorption spectra of SO_2 ; (c) Signal spectra after analysis (low-pass or high pass filter, interpolate etc.); (d) Fitting graph

1.2 存在问题

实践表明,当采集的谱线的带宽满足一定的宽度时,将获得很好的拟合效果,同时达到抗噪声的目的。如果谱线带宽有限,则反演出的浓度受到噪声的影响很大,结果不够稳定,误差较大。而对于一个固定的光谱仪来说,在一次分析过程中它所能提供的谱线带宽是一定的,如中国科学院安徽光学精密机械研究所的 DOAS21C 型空气质量监测系统中,每条谱线的带宽为 10 nm,由 400 个通道组成^[3,4]。10 nm 的带宽对于分析 SO_2 的浓度,是能够满足要求的,因为在 SO_2 的吸收波段,10 nm 的带宽包括了 SO_2 的多个差分吸收峰[见图 3(a)],已经具有了足够的吸收特征,而对于 NO_2 在 10 nm 的带宽内差分吸收截面的吸收峰个数较少[见图 3(b)],受噪声的

影响很大,而如果能够取 15 nm 带宽时,对于 NO_2 也具有了足够多的吸收峰[见图 3(c)],能够有效地抑制噪声,反演浓度的结果精度也会得到提高。

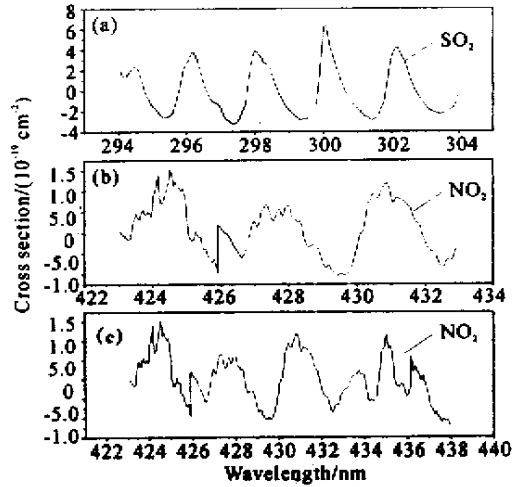


Fig.3 Cross sections of SO_2 and NO_2

扩展分析信号的谱线带宽,可以通过减少光栅的刻线的方法来实现,但是这必须更改光谱仪的硬件设置,对于系统的改变较大。下面介绍一种在软件上,利用多层自适应线性神经网络来实现扩展光谱的方法。

2 多层自适应线性网络模型

多层自适应线性(madaline)神经网络是美国学者 Widrow^[5]提出的,这个模型与感知机模型网络相比,主要是其输入为连续线性模拟量,其输出既可以取模拟量,也可以通过一个双极值函数作用于输出的模拟量而得到数字输出。

利用多层自适应线性神经网络扩展光谱的基本思想是:首先提供足够数量的宽带光谱供网络训练,宽带光谱可以通过硬件系统增加采样时间来获得(实验时可以这样做,仪器正常运行时采样时间是固定的),然后将宽带光谱分成两部分,其中后面作为期望输出,前面作为输入,然后通过调整网络权值得由输入计算出的网络输出尽可能的接近期望输出,通过足够多的样本进行训练,就可以将网络的权值调整到合适的值,使得对所有的样本都能够得到期望的输出,这时,网络的训练就结束了,可以用于扩展光谱了。扩展光谱的过程是,给出实际测得的窄带光谱(仪器正常工作时的采样时间对应的的光谱),然后通过网络,计算出输出的光谱,将两部分结合起来,便组成了宽带光谱。利用多层自适应线性神经网络实现光谱带宽扩展的系统结构如图 4 所示。

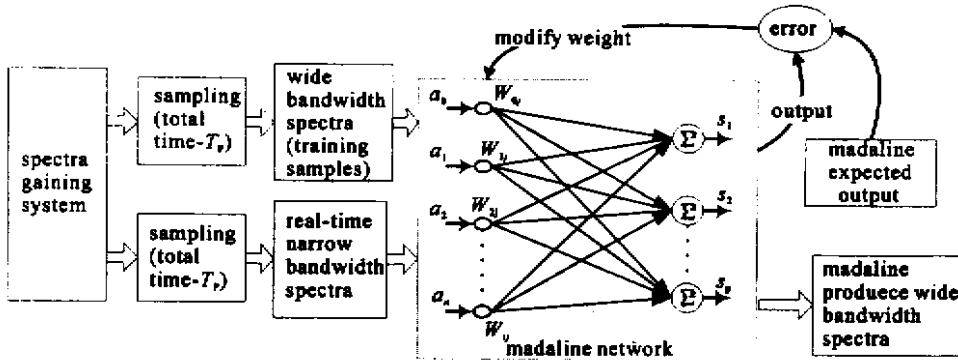


Fig.4 The structure of spectra bandwidth expanding system with madaline

整个系统的上部是网络训练部分,下面部分是利用已经训练的网络进行扩展光谱的网络应用部分。网络训练部分的工作过程是,通过光谱获得系统(差分光学吸收光谱的硬件系统)得到模拟信号,然后通过数据采集卡采集 T_F (T_F 比正常工作时的采样时间 T_p 长)时间数据,由于采样时间长,而光谱的带宽与采样时间成线性关系,故获得的带宽较正常工作时的带宽宽,我们令其为满波长光谱数据。我们设计的系统为 15 nm,包括 600 个通道。光谱获得后,将其分成两部分,前面 10 nm(400 个通道)作为网络输入,后面 5 nm(200 个通道)作为期望输出。这样便构成了输入层有 400 个神经元,输出层有 200 个神经元的有监督的多层自适应线性网络。

2.1 用多层自适应线性网络进行光谱扩展的可行性分析

从多层自适应线性的训练样本可以看到,它是通过将一条满波长的谱线分成两部分,用前面的部分来得到后面的一段。这种情况下,要求后面一部分的谱线是和前面的谱线之间存在着一定的关系,这种方法才是有效的。事实上,光谱的后面的部分与前面的部分的确存在着一定的关系,这种关系是由于气体分子对不同波长的光吸收特性决定的。由(1)式可知,不同波长的光强 $I(\lambda)$,即不同通道的光强,在消除瑞利散射、米氏散射后,其强度上的差异主要是由于分子对不同的波长吸收特性不同造成的。而分子对不同波长的吸收特性是已知的,如 SO_2 在波长为 296.18 nm、297.98 nm、300.03 nm 和 302.15 nm 上都有很强的吸收峰,则知道这四个点上三个点的光强后,能够大致知道另外一个点上的强度,如这三个点的强度与谱线最大强度比较相差很大时(当气体的浓度很大时,就会如此),那么另外一个点处的信号强度也一定相差很大,而它们之间的定量关系是不容易表示的,而通过对神经网络进

行有效的训练后,便可得到正确表示各个通道之间关系的网络之间的连接权值,有关系的点之间的连接权值将较大,没有联系的点之间的权值很小或者为零。训练成功结束后,便可利用网络进行光谱的带宽扩展,网络能够利用其记忆联想功能,得到扩展光谱数据。

2.2 多层自适应线性网络的学习过程

多层自适应线性网络按最小平方误差学习规则,通过提供的样本对网络进行训练。

网络输入向量:

$$A_k = (a_0^k, a_1^k, a_2^k, \dots, a_n^k),$$

a_n 为输入通道的模拟值,在我们的系统中为输入层上各个点的光谱强度, $n = 1, 2, \dots, 400$ 表示有 400 个输入。 $k = 1, 2, \dots, m$, m 表示训练的样本总数。希望输出:

$$Y_k = (y_1^k, y_2^k, \dots, y_p^k),$$

y_p 为输出通道的模拟值即扩展光谱的强度, $p = 1, 2, \dots, 200$ 表示有 200 个输出,它们组成扩展光谱。

连接权向量:

$$W_{ij} = (w_{i1}, w_{i2}, \dots, w_{ip}),$$

$$i = 1, 2, \dots, 400, j = 1, 2, \dots, 200$$

为输入层到输出层之间的连接权值。

按以下步骤对网络进行训练:

1) 初始化 给各连接权 W_{ij} 赋予 $[-1, 1]$ 区间内的随机值。

2) 任选一学习样本对提供给网络。

3) 计算网络输出值:

$$s_j^k = \sum_{i=1}^n w_{ij} a_i^k, \quad j = 1, 2, \dots, p.$$

4) 计算网络各输出单元的期望输出 y_j^k 与实际输出 s_j^k 之间的误差:

$$d_j^k = y_j^k - s_j^k, \quad j = 1, 2, \dots, p.$$

5) 进行连接权修正

$$w_{ij}(N+1) = w_{ij}(N) + \Delta w_{ij}(N),$$

其中 $\Delta w_{ij} = a \sum_{i=1}^n d_j^k a_i^k$, a 为学习率 ($0 < a < 1$)

6) 取下一个学习模式对提供给网络, 重复步骤 2) ~ 5), 直到误差 d_j^k 变得足够小为止。

在实际应用中我们选择了 1000 对训练样本, 其中样本包括了各种条件下的测量数据(如不同温度、不同气体浓度以及不同的光电倍增管高压), 最后得到了全连通网络的 $400 \times 200 = 80000$ 个权值。

2.3 多层自适应线性网络拓扑结构的改进

从上面可知, 由于采用了全连通的网络拓扑结构, 而且输入层和输出层的神经元数目也较多, 造成网络的规模比较大, 训练的效率较低, 并且在应用到实时的系统中, 耗费的时间也很多。对网络拓扑结构的改进可以从两个方面考虑, 一是将全连通的网络改为非全连通的, 但是由于对于输入层的某个神经元到底与输出层的某个神经元是否存在关系, 是无法得知的, 只有在对网络训练后才知道, 故这种方法是不可取的。另外一种方法是减少输入层和输出层的神经元数目, 从而降低网络的规模。因为我们

在 10 nm 中有 400 个通道, 其每个通道的分辨率为 $10/400 = 0.025$ nm, 但是由于气体的标准吸收截面谱线(在实验室测得)的分辨率和实际仪器分辨率的限制, 当通道达到一定数目时, 通道的分辨率再高也没有太大意义。对于 DOAS21C 型空气质量监测系统, 当取 100 个通道时, 每个通道的分辨率为 $10/100 = 0.1$ nm, 然后通过插值算法得到 400 个通道的数据, 与实际测得 400 个通道的数据的均方差不大于 10^{-3} , 而这个差别已经低于系统噪声的幅度, 故可以说 100 个通道就能够很好的反映整条谱线的特性了。所以我们可以从训练样本中的 400 个输入通道中等间隔抽取 100 个通道作为输入层数据, 输出层也按同等比例调整, 对应 100 个输入层神经元, 有 50 个神经元构成输出层, 同样期望输出也是从训练样本中按等间隔抽取。最后在利用网络进行光谱扩展时, 利用网络输出的 50 个通道通过插值算法来得到最后的扩展光谱。而这种精简在算法的时间和空间复杂度上都得到了很大的改善。表 1 为两种网络结构的性能的比较。

Table 1. The performance comparison of two kinds of network structure
(the configuration of PC: Pentium 433 MHz, RAM 128M)

Network structure	iteration times before convergence (global errors less than 0.005)	space needed for algorithm	time needed for extracted, interpolated algorithm	total time consumed
input: 400 P output: 200 P	21059	about 100 K	0 ms	about 3000 ms
input: 100 P output: 50 P	14328	about 10 K	50 ms	about 1000 ms

3 结果比较及方法应用

表 2 为 1000 次对直接测量的光谱和利用多层自适应线性网络扩展后的光谱进行浓度反演分析的统计结果, 实验是直接对浓度为 $111 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 的 NO_2 样品进行测量。图 5 是整个测量结果的对照图。由测量结果的分布图和统计结果可以看出, 利用扩展后的光谱进行浓度反演的效果明显好于直接由系统获得的窄带光谱得到的结果。图 6 为其中一次的拟合结果以及测得谱线减去拟合曲线得到的残差图, 图 6(a) 和图 6(c) 分别为窄带光谱和宽带光谱的拟合图, 细线为实测谱线, 粗线为由标准谱线得到的拟合谱线, 从图中也明显反映出利用扩展光谱的拟合效果优于窄带谱线, 图 6(b) 和图 6(d) 分别实测谱线减去拟合曲线得到的残差谱线, 它反映了拟合效果

的好坏, 残差越小, 说明拟合的效果越好, 反映到气体的监测结果上, 就是监测的精度越高, 从两个图的比较可以看出, 宽带谱线的拟合后的残差在量级上低于窄带谱线的残差。

由于利用多层自适应线性网络扩展后的光谱进行数据分析, 在大量的实验中获得了良好的结果, 该技术被应用于 DOAS21C 型空气质量监测系统的软件系统 CNDOAS 中, DOAS21C 型空气质量监测系统目前已经安装在广西的两个国家重点监测城市桂林和北海, 并已经成功地向国家环境监测总站上报数据已达半年之久, 目前这两个监测站已经纳入了国家常规监测网, 监测数据由中央电视台向全国播报。经过长时间的实践, 由 DOAS21C 系统测得的空气质量数据, 与当地长期的监测结果相符, 得到了环境监测专家的一致认可。

Table 2. The statistic table of 1000 times experimentation results

type of spectra	samples number	average value	standard deviation	changing range	average residual level
spectra directly gained	1000	30.01538	0.25312	1.8163	10^{-3}
spectra expanded	1000	30.00762	0.13773	1.05635	10^{-4}

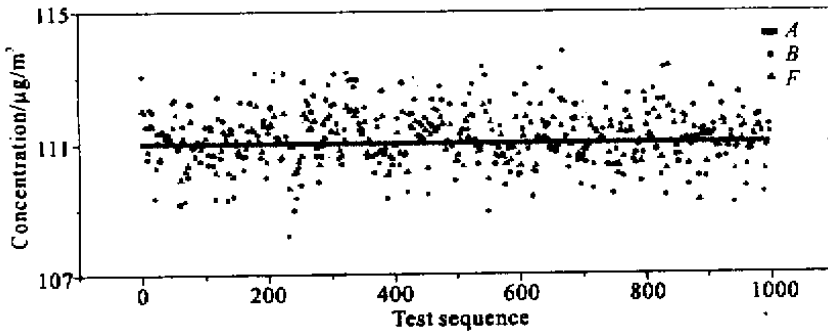


Fig.5 Comparing graph of 100 times testmeasuring results. A : The concentration of cell ; B : The results gotten from narrow bandwidth spectra. F : The results gotten from expanding wide bandwidth spectra

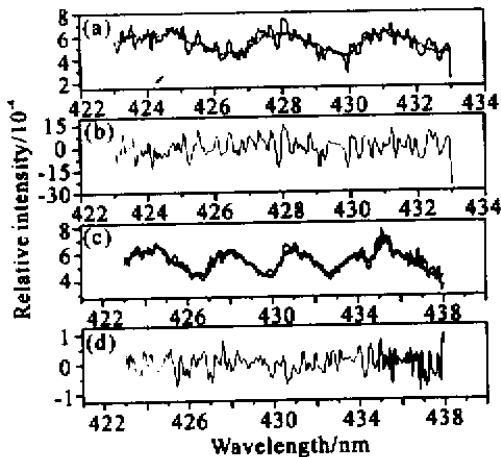


Fig.6 (a) Fitting graph of narrow bandwidth spectra ; (b) Residual of narrow bandwidth spectra fitting ; (c) Fitting graph of wide bandwidth spectra ; (d) Residual of wide bandwidth spectra fitting

参 考 文 献

- [1] Platt U , Perner D. Simultaneous measurements of atmospheric CH_2O , O_3 and NO_2 by differential optical absorption. *Geophys. Res.* ,1979 , **84** :6329 ~ 6335
- [2] Stutz J , Platt U. Numerical analysis and estimation of the statistical error of differential optical absorption spectroscopy measurements with least-squares methods. *Appl. Opt.* , 1996 , **35** (30) :6041 ~ 6053
- [3] Zhou Bin , Liu Wenqing , Qi Feng *et al.* . The studying of method to retrieve concentration in differential optical absorption spectroscopy for measuring air pollutants. *Chinese J. Physics*(物理学报) ,2001 , **50** (9) :1818 ~ 1823 (in Chinese)
- [4] Zhou Bin , Liu Wenqing , Qi Feng *et al.* . Differential optical absorption spectroscopy for atmospheric trace gases monitoring. *The Research of Environment Sciences*(环境科学研究) ,2001 , **14** (5) :23 ~ 26 (in Chinese)
- [5] Wang Wei. *Principle of Artificial Neural Network : Introduction and Application*(人工神经网络原理 : 入门与应用). Beijing : Beijing University of Aeronautics & Astronautics Publishing House ,1995. 44 ~ 50 (in Chinese)

Improving DOAS System Measurement Precision with Artificial Neural Network Method

Qi Feng Liu Wenqing Zhou Bin Li Zhenbi Chui Yanjun

(Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics , The Chinese Academy of Sciences , Hefei 230031)

(Redeived 26 November 2001 ; revised 17 January 2001)

Abstract : Differential optical absorption spectroscopy(DOAS) has become a widely used method to measure trace gases in the atmosphere. Their concentrations are retrieved by a numerical analysis of the atmospheric absorption spectra. But in the process of application , it is found the error is a bit larger and results are not steady since the limited bandwidth for each analysis subject to system hardware. A new procedure was developed , based on the Madaline artificial neural network theory to expand the spectra bandwidth. A good result was obtained with this method according to the comparison of the different test results.

Key words : differential optical absorption spectroscopy(DOAS) ; madaline artificial neural network