

文章编号: 0253-2239(2004)07-1000-4

非线性荧光光谱的神经网络分析及其应用*

申金媛^{1,2} 韩应哲¹ 常胜江¹ 张延焯¹ 罗琦³ 陈瑞良³

1 南开大学现代光学研究所光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300071
2 郑州大学河南省激光与光电信息技术重点实验室, 郑州 450052
3 加拿大拉瓦尔大学物理学、工程物理及光学系, 魁北克 加拿大 G1K7P4

摘要: 大功率超快脉冲激光和气体相互作用可产生非线性荧光光谱, 不同的气体分子具有不同的非线性荧光光谱, 因而这种光谱可以作为物质的指纹模式加以识别分类, 进而获知气体的成分。由于不同气体分子的光谱在同一波段上有很大的交叉重叠, 用传统的光谱分析方法分析存在困难, 采用神经网络方法分析上述非线性荧光光谱, 利用经过预处理的荧光光谱数据作为模式样本, 其中一部分样本作为学习样本对级联神经网络进行训练, 用训练好的网络对所有样本进行实时识别, 学习样本和测试样本的正确识别率均可达 100%, 结果表明此方法可实时判断混合气体的组分。

关键词: 光谱分析; 模式识别; 级联神经网络模型; 非线性荧光光谱; 指纹模式

中图分类号: O437 文献标识码: A

Neural Network Analysis and Application of Nonlinear Fluorescence Spectra

Shen Jinyuan^{1,2} Han Yingzhe¹ Chang Shengjiang¹ Zhang Yanxin¹ Luo Qi³ Chin S L³

1 Key Lab of Opto-Electronics Information Technical Science, The Chinese Ministry of Education, Institute of Modern Optics, Nankai University, Tianjin 300071
2 Henan Key Laboratory of Laser and Optoelectric Information Technology, Zhengzhou University, Zhengzhou 450052
3 Center d'Optique, Photonique et Laser et Département de Physique, de Génie Physique et d'optique, Université Laval, Québec, Québec G1K 7P4, Canada

(Received 26 March 2003; revised 5 September 2003)

Abstract: Nonlinear fluorescence with distinguishable molecular spectra is emitted when fs laser pulses are launched in air due to the nonlinear effects between fs laser pulse and gases. Since every molecule has its particular feature in the fluorescence spectra, these fluorescence spectra can be used to analyze the components of gases in the air. However, since the spectra created by different molecule overlap, it is hard to analyze the nonlinear spectra by the conventional spectroscopic analysis methods. A cascaded neural network model is proposed to analyze the nonlinear fluorescence spectra. To improve learning speed of the neural network and the recognition rate, some preprocessing has been done. 100% correct recognition rates are achieved for both training spectrum samples and test spectrum samples. The simulations show that the proposed algorithm is a new effective method for real-time recognizing the gas components without analytical sampling.

Key words: spectroscopic analysis; pattern recognition; cascaded neural network model; nonlinear fluorescence spectra; fringe pattern

* 国家自然科学基金(60277022)、博士点基金(20030055022)和南开大学创新基金资助课题。

E-mail: jyshen@nankai.edu.cn

收稿日期: 2003-03-26; 收到修改稿日期: 2003-09-05

1 引言

众所周知, 物质的荧光光谱取决于物质的原子分子结构, 所以不同的物质具有不同的荧光光谱。

非线性荧光光谱是利用大功率超短激光脉冲和气体的非线性作用得到的。对于这种非线性荧光光谱的研究,主要集中在形成原理、光谱强度等方面,由于采用传统的光谱分析方法分析该光谱存在很大的困难,所以这方面的研究还处在起步状态。我们发现由此得到的非线性荧光光谱与超短脉冲激光器的波长以及强度无关,只与气体的分子原子结构有关,对于混合气体,则与其组成成分(包括浓度的不同)有关,因而可以用来进行混合气体成分识别。含有不同成分的混合气体的非线性荧光光谱虽然不同,但不同的气体在同一波段上可能有很大成分的交叉重叠,因此很难像吸收光谱^[1~3]那样找出每种气体特有的非线性荧光光谱,然后利用最小二乘法进行拟合而加以识别。神经网络对于不能精确或近似用数学公式加以描述的模式识别具有非常好的识别能力和推广性。有不少关于气体传感器(电子鼻)联合神经网络识别分析气体组成成分的报道^[4~6],这些方法的一个共同特点就是必须对检测的气体进行取样,因而不能实时的检测混合气体的组成成分。本文正是基于这种原理和思想,提出利用混合气体的非线性荧光光谱联合神经网络模式识别的方法来实时检测识别混合气体成分的新方法。

2 原理、实验及识别结果

非线性荧光光谱的获得不同于普通荧光光谱的获得,它是利用大功率超短激光脉冲和气体的非线性作用得到的。由于气体是一种克尔介质,所以飞秒激光脉冲在气体中传输时的非线性作用主要有克尔效应导致的自聚焦和等离子体中的自由电子散焦作用。首先,飞秒激光脉冲在气体中由于克尔效应产生自聚焦,导致光束直径减小因而激光脉冲出现峰值强度,因此在自聚焦区域,高强度的激光脉冲引起气体中气体分子的多光子/隧道电离(MPI),形成一个弱的等离子体。然后等离子体中的自由电子对激光脉冲具有散焦作用。这样克尔效应引起的自聚焦作用和等离子体中自由电子的散焦作用相互影响相互制约,达到平衡,出现自聚焦成丝行为^[7,8],形成高强度的激光脉冲。由于二者的相互作用,激光脉冲强度被钳制在一定的幅度内,形成一个强度相对稳定的强光光场^[9],其光强与脉冲激光器的波长和强度关系不大。由于气体分子与强光光场的非线性作用,大部分分子会被击碎分裂和发生多光子/隧道电离,大部分的分子分裂和电离可以发射具有分

子光谱特性的光谱-非线性荧光光谱,显然由于这些光谱与分子的分裂和电离能有关,所以每种分子的非线性荧光光谱具有一些独特的特征,因而这些光谱可以作为气体组成成分的指纹模式加以识别。而且这些非线性荧光光谱不像普通的荧光光谱那样受到照射光源波长和强度的影响,他们基本上与脉冲激光的波长和强度无关。

我们获取气体非线性荧光光谱的实验装置如图1所示,飞秒激光脉冲入射到气体中,由于克尔效应产生自聚焦。在自聚焦区域,又由于气体分子的多光子/隧道电离的作用,形成一个浓度约为 10^{15} cm^{-3} (1个大气压下空气的浓度约 $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) 弱等离子体。等离子体中自由电子的散焦作用与克尔效应相互制约,相互影响,最后达到平衡,因此光强在自聚焦区域内被钳制在一个很小的范围内,形成一个强度相对稳定的新强光光源。实验中自聚焦区域内的激光脉冲强度被钳制在大约 $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 附近。在如此强的光场中,气体分子被击碎分裂和发生多光子/隧道电离,发射非线性荧光光谱。两个透镜将非线性荧光光谱成像在一个 Acton Spectrapro-150 Spectrometer 和 CCD 阵列上,因而得到混合气体的非线性荧光光谱。实验中一个输入脉冲激光能量为 10 mJ 脉宽为 50 fs, 重复频率为 10 Hz, 混合气体气压为 101325 Pa, 掺杂的气体分别为乙烯(Ethylene), 1-丁烯(1-Butene), N-丁烷(N-Butane)。掺杂体积分数: 乙烯为 25%, 12.5%, 6.25%, 3.13%, 1.56%, 0.78%, 0.39%, 0.20%, 0.10%, 0.049% (10 个), 1-丁烯为: 25%, 12.5%, 6.25%, 3.13%, 1.56%, 0.78%, 0.39%, 0.20%, 0.10%, 0.05% (10 个); N-丁烷为: 12.5%, 1.56%, 0.78%, 0.39%, 0.20%, 0.098%, 0.049% (7 个)。

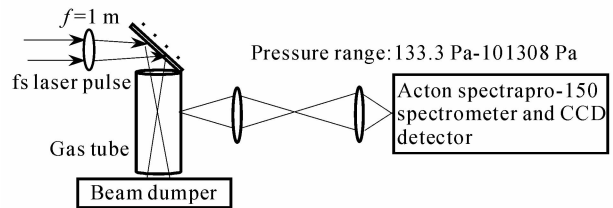


Fig. 1 Lab system of obtaining nonlinear fluorescence spectra of gas

由于混合气体的非线性荧光光谱谱带较宽,如图2、图3所示,图中横坐标为非线性荧光光谱波长,纵坐标为相对非线性荧光光谱强度;显然不同的气体其非线性荧光光谱有很大的交叉,所以像吸收光谱那样直接寻找某种气体的特征光谱是非常困难的,

而且这些光谱很难用具体确定的数学公式来描述, 进行分类识别, 是一个好的识别方法。在这种情况下, 神经网络模式识别可以用来很好地

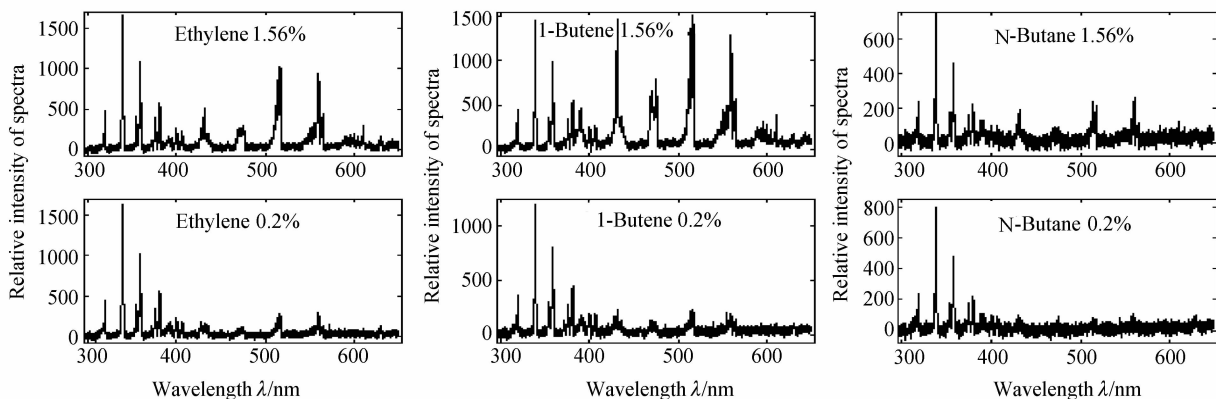


Fig. 2 Some fluorescence spectra used as training samples

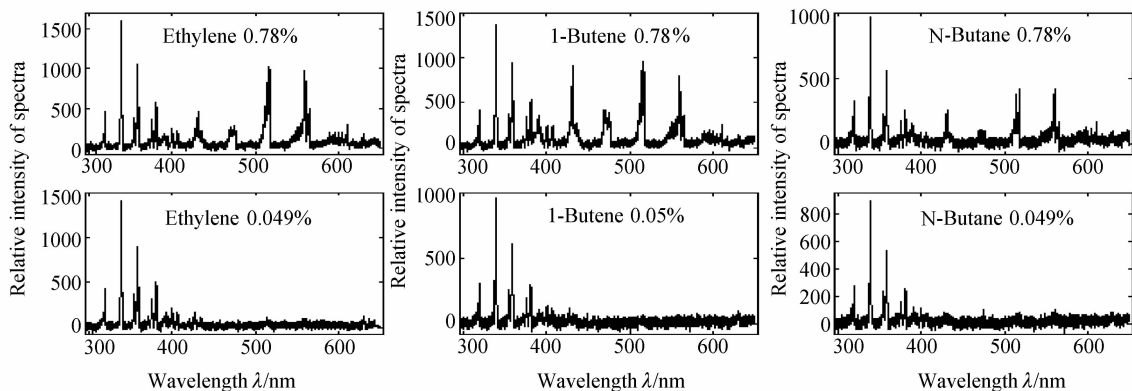


Fig. 3 Sine fluorescence spectra used as test samples

本文采用级联神经网络模型^[10]对几种不同浓度的掺杂气体的荧光光谱进行识别。级联神经网络模型可以看成是一个特殊的多层前馈网络, 它是由几个单层神经网络级联组成, 与一般多层前馈网络的不同在于对每一个单层神经网络赋予不同的任务而单独训练其权重, 因此具有简单、快速学习、容错能力大等特点。

本文采用两级三层网络, 其结构如图 4 所示。第一级网络得到输入模式所对应的多值码, 第二级对多值码进行识别得到识别结果。输入模式为气体的非线性荧光光谱, 是一个 1×3979 维的矢量; 所以第一级网络中的权重 W_{ij} 的数目为 3×3979 个。中间层神经元的激活函数为线性函数。输出层神经元之间存在自循环的互连权重, 使得输出层神经元具有自适应取阈功能。对于乙烯和 1-丁烯我们分别有 10 个不同浓度的荧光光谱, N-丁烷则有 7 个。每种气体选其中 3 个模式作为学习模式训练第一级网络的互连权重, 权重的训练采用 δ -法则。第二级网络对第一级输出的码进行识别, 第二级网络的输入

层 L_2 与输出层 L_3 间的互连权重 T_{ij} 由气体的理想多值编码采用 δ -法则训练网络得到。整个网络的输出也即第二级网络的输出为二值编码, 本模拟中, 输出层的每一个神经元与一种掺杂气体相对应, 输出 1 表示混合气体中含有这种气体, 0 表示没有。

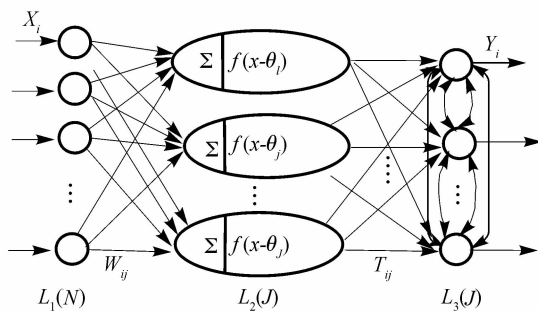


Fig. 4 Three-layer cascaded neural network model

为了尽快得到好的互连权重值, 我们对初始的荧光光谱进行了一些预处理, 例如消除空气本身的荧光光谱的影响, 另外, 为了消除峰值谱线多和强度比较大的杂质气体可能占有的优势, 我们将荧光光谱值两极化, 使得谱线不再是单纯的正值, 二极化时

选用与平均值成正比的数作为阈值。另外为加快学习训练速度,初始权重选为训练模式的平均值,即第一个互连权重子矩阵的初始权重为乙烯的三个学习模式的平均值,第二个互连权重子矩阵的初始权重为 1-丁烯的三个学习模式的平均值,第三个互连权重子矩阵的初始权重为 N-丁烷的三个学习模式的平均值;修改权重前首先选取合适的阈值,这里选取(5.5, 8.75, 5),然后利用 δ -法则修改互连权重,步长为 0.01。图 2 是训练网络互连权重所用的部分学习训练模式;图 3 是部分测试模式,其中横坐

标为非线性荧光光谱的波长,纵坐标为相对强度;图 5 为第一级网络的互连权重,横坐标为每个子矩阵的维数,纵坐标为对应的权重值,从上到下分别为第一、二、三子矩阵。整个网络对 9 个学习训练模式可以 100% 判别,18 个测试模式判别正确 17 个,一个发生错误,正确判别率达 94.4%。用发生错误的模式对第一级网络进行训练,修改权重,则可以对所有 27 个模式全部正确识别,可见选择适当的学习训练模式(包括适当的个数)可以提高模型的识别率。

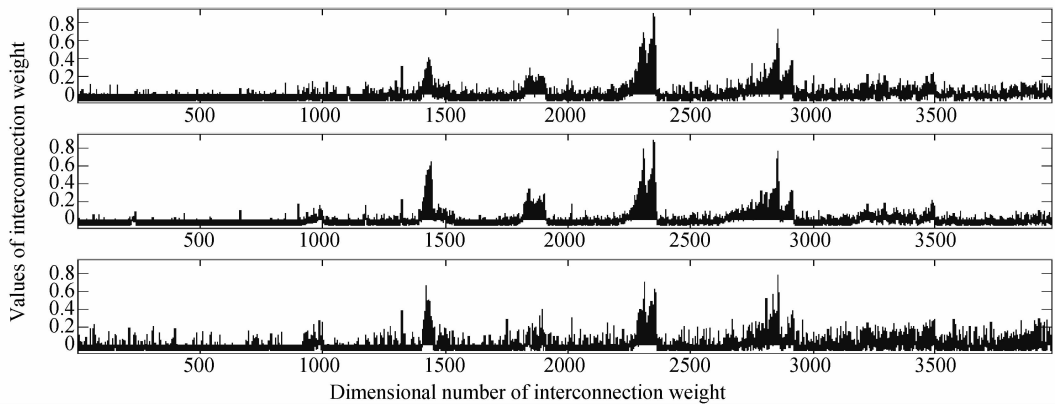


Fig. 5 Interconnection weight between input layer and hidden layer

结论 由以上实验可知,利用混合气体的非线性荧光光谱联合神经网络可以识别混合气体的组成成分,而且如果有足够多的样本,利用此方法不仅可以定性识别混合气体的组成成分,还可以判别其组成浓度;此方法和其它方法相比具有众多的优点:1)不需要采集被测气体样本,避免了采集过程中所带来的误差,而且通过对自聚焦距离的控制可以对有害环境进行遥控检测;2)可以实时检测大气污染情况或检测气体成分,得到所希望空间的气体分布情况;3)与飞秒激光器的波长和强度无关,利用同一光源可以对多种气体进行分类识别;4)由于用此方法得到的非线性荧光光谱具有较强的强度,所以不需要高灵敏度的光电探测器如光电倍增管等,可使用普通的 CCD 阵列即可;5)方便易操作等等。

参 考 文 献

- 1 Qi Feng, Liu Wengin, Zhou Bin *et al.*. improving DOAS system measurement precision with artificial neural network method. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2002, **22**(11):1345~1349 (in Chinese)
- 2 Zhou Bin, Liu Wengin, Qi Feng *et al.*. Error analysis in differential optical absorption spectroscopy. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2002, **22**(8): 957~961 (in Chinese)
- 3 Wei Heli, Wu Chengjiu, Ma Zhijun *et al.*. A new method for improving the measurement spectral resolution of

- atmospheric absorption spectra. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2002, **22**(2): 165~169 (in Chinese)
- 4 Ding Hui, Liu Junhua, Shen Zhongru. Distributed multi-subnet neural network based method of mixed gas recognition. *Chin. J. Scientific Instrument* (仪器仪表学报), 2001, **22**(6):592~598 (in Chinese)
- 5 Qu Jianling, Wang Lei, Gao Feng. Qualitative gas analysis with feed forward neural network. *Chin. J. Scientific Instrument* (仪器仪表学报), 2000, **21**(5): 471~473 (in Chinese)
- 6 Zhang Yong, Liu Junhua, Wu Haoyang *et al.*. Electronic nose with genetic neural network for mixed gases pattern recognition. *Chin. J. Scientific Instrument* (仪器仪表学报), 2001, **22**(3): 225~226 (in Chinese)
- 7 Hu Xueyuan, Zhong Fangchuan, Deng Jian *et al.*. Ultra-short intense laser pulse propagating in Atmosphere: Behavior of self-focusing. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2001, **21**(6): 641~646 (in Chinese)
- 8 Talebpour A, Abdel-Fattah M, Chin S L. Focusing limits of intense ultra fast laser pulses in a high pressure gas: road to new spectroscopic source. *Opt. Commun.*, 2000, **183**: 479~484
- 9 Talebpour A, Abdel-Fattah M, Bandrauk A D *et al.*. White-light continuum generation and filamentation during the propagation of ultra-short laser pulses in air. *Opt. Commun.*, 2001, **11**: 353~362
- 10 Shen Jinyuan, Liu Yue, Zhang Wenwei *et al.*. The option methods used in the cascaded neuron network model for recognizing 3-D targets. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2001, **21**(1): 49~51 (in Chinese)