

基于反向传播神经网络的激光诱导荧光光谱塑料分类识别方法研究

王翔^{1,2}, 赵南京^{1*}, 殷高方¹, 孟德硕^{1,3}, 马明俊^{1,3},
俞志敏⁴, 石朝毅⁴, 覃志松^{1,5}, 刘建国¹

1. 中国科学院安徽光学精密机械研究所, 中国科学院环境光学与技术重点实验室, 安徽 合肥 230031
2. 中国科学技术大学, 安徽 合肥 230026
3. 皖江新兴产业技术发展中心, 安徽 铜陵 244000
4. 合肥学院生物与环境工程系, 安徽 合肥 230601
5. 桂林电子科技大学计算机与信息安全学院, 广西 桂林 541004

摘要 塑料具有成本低、质量好, 可塑性强等优点被广泛用于生产生活等领域, 但废弃塑料处置不当容易引发二次污染。回收再利用有望成为解决废弃塑料污染问题的关键手段, 其前提是对废料的准确分选。传统分选手段耗时间, 效率低下, 难以实现废弃塑料的快速、经济、有效分类。激光诱导荧光技术是一种快速灵敏的光谱检测技术。具有操作简便, 检测效率高, 样品使用量小等优点常被应用于水体、土壤中油类, 多环芳烃等有机污染物的快速识别与定量分析。利用激光诱导荧光技术可以快速采集不同塑料的荧光光谱, 结合相应的模式识别算法, 可实现塑料材质的快速准确识别。实验采集了 8 种塑料 (ABS, HDPE, PA66, PLA, PP, PET, PS, PVC) 共 358 组激光诱导荧光光谱, 依据特征峰信息构建 358×10 的光谱矩阵。利用主成份分析法削减原光谱矩阵中的线性相关量, 提高数据精度。结果显示前 3 个主成分的累计方差贡献值达 98.085%, 足以表征原光谱矩阵的主要信息。将降维的主成分 PC1, PC2, PC3 作为输入进行光谱分类, 其中同种塑料光谱聚合度高, 元素构成不同的塑料如 PA66, PLA, HDPE 和 PVC 的光谱分离度较好, 而元素构成相同的塑料如 PET 和 PLA 的光谱分离度较差。PCA 算法并不能准确的对未知塑料进行识别。BP-神经网络具有收敛速度快, 预测精度高等特点被广泛用于模式识别和分类研究。将经 PCA 算法得到的简化特征矩阵作为 BP-神经网络算法的输入集, 其中随机抽取 256 组数据作为 BP-神经网络算法模型的训练集, 剩余的 102 组数据作为模型检测集。BP 神经网络的隐藏层设定值为 1, 激活函数选择双极性 Sigmoid 函数, 输出层为 8 种塑料样品。识别结果显示, 102 组数据中只有一组 HDPE 光谱数据被错误为 PS, 其余 101 组数据全部正确识别。8 种塑料荧光光谱的综合识别准确率达到 99%。研究结果表明激光诱导荧光技术结合 BP-神经网络算法可实现不同材质塑料的快速准确识别。为实现废弃塑料的自动化智能分选, 降低回收成本, 减少废弃塑料危害提供新的参考。

关键词 塑料; 激光诱导荧光; 主成分分析; 神经网络; 识别

中图分类号: O433.4 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2019)10-3136-06

引言

塑料种类繁多, 用途广泛, 但由废旧塑料处置不当引发的环境问题和危害时有发生^[1-3]。我国是塑料生产、消费大国, 2016 年我国的塑料产量超过 7 700 万吨, 同时塑料消耗

量超过 6 200 万吨^[4]。废旧塑料通常被当作固体废弃物进行焚烧填埋处理, 但由于塑料的物理化学性质稳定, 不易在土壤环境中降解, 通常需要很长时间才能转化为无害物质。对废旧塑料的回收再利用是一种有效减少塑料废弃物的手段^[5]。废弃塑料品种复杂, 通过人力分选耗时耗力, 且分选效率不高, 混杂的塑料融化制成的塑料原料成分复杂、理化

收稿日期: 2018-09-07, **修订日期:** 2019-01-29

基金项目: 国家自然科学基金项目(61705238), 国家重点研发计划项目(2016YFD0800902-2), 安徽省教育厅高等学校自然科学重大项目(KJ2017ZD46), 安徽省科技重大专项(16030801117), 安徽光机所所长基金(AGHH201602)资助

作者简介: 王翔, 1988 年生, 中国科学与技术大学博士研究生 e-mail: amoeba0101@163.com

* 通讯联系人 e-mail: njzhao@aiofm.ac.cn

性质不稳定,通常不能作为优质甚至正常的原料使用,这是对塑料资源的巨大浪费。

针对塑料分类传统的手段有标签分选、浮力分选、静电分选等^[6]。随着光电技术的发展,研究人员开始利用光谱法如红外光谱法、激光诱导等离体光谱法、X射线吸收光谱法等分析不同材质废旧塑料的光谱差异,进而对其进行分选^[7-9]。但是以上光谱法用于检测塑料材质时仍存在的问题,如红外吸收光谱谱线复杂,不同材质塑料的谱线差异性较小,且易受外界干扰因素影响;激光诱导等离体光谱法基于待测样品中的元素谱线进行物质成分鉴别,只能依靠 C 和 H 等元素的含量比来实现未知塑料识别与分析,对于分子式相同相近,分子结构不同的塑料分辨效果较差。

激光诱导荧光技术是一种光致发光的光谱分析技术。利用激光作为激发光源照射待测样品,样品吸收激光能量发射出具有指纹特征的荧光信号,通过对荧光光谱的特征波段和荧光强度解析,可以得到待测样品的成分和含量等信息^[10-12]。采用激光诱导荧光技术可以快速获得塑料的荧光光谱,结合相应的识别算法可以准确获取未知塑料的材质信息。

利用实验室搭建的激光诱导荧光检测系统采集了 8 种塑料共计 358 组荧光光谱。提取特征波段的荧光强度,构建 358×10 的光谱特征矩阵。利用主成分分析法压缩特征矩阵,提高运算效率,对方差贡献率最高的前三个特征变量进行分类分析。后将简化后的特征矩阵作为 BP-神经网络的输入集,随机抽取 256 组荧光光谱的特征向量作为 BP-神经网络模型的训练集,剩余 102 组特征向量作为模型检测集,对八种塑料光谱识别分析,结果显示综合识别准确率达到 99%。研究表明 LIF 技术结合 BP-神经网络可实现不同材质塑料的快速有效识别。

1 实验部分

1.1 LIF 装置

LIF 实验装置示意图如图 1 所示,系统采用 Quantel 公司的 ND:YAG 四倍频固体激光器作为激发光源(波长为 266 nm,工作频率 1~10 Hz 可调,单脉冲激光能量为 20~100 mJ,脉冲宽度 6 ns,激光束直径 9 mm)。激光束经过 266 nm 全反射镜反射后,垂直作用在塑料样品表面,塑料样品吸收激光能量后发射特征荧光,荧光经过透镜聚焦后由光纤传输至光谱仪进行荧光探测分析。光纤孔径为 500 μm ,光谱仪型号为 Ocean 公司的 Maya-2000pro,光谱探测范围为 200~1100 nm,分辨率为 1.1 nm。

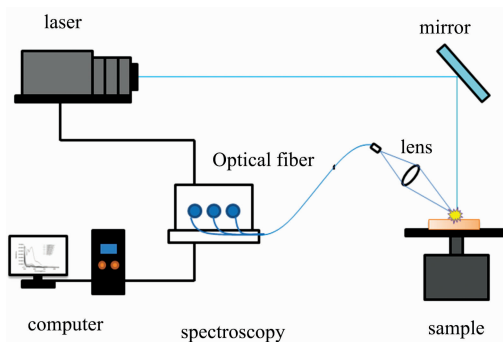


图 1 LIF 实验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of LIF experiment setup

1.2 材料

实验中的待测样品为来自不同厂家的八种塑料颗粒以及经注塑压片成型的不同规格塑料块,包括 ABS, HDPE, PA66, PLA, PP, PET, PS 和 PVC,其名称和分子式如表 1 所示。

表 1 不同材质塑料分子式

Table 1 Different materials and appellation of the plastics

样品	英文名称	中文名称	分子式
ABS	Acrylonitrile-Butadiene-Styrene Copolymers	丙烯腈-丁二烯-苯乙烯共聚物	$(C_{15}H_{17})_n$
HDPE	High Density Polyethylene	高密度聚乙烯	$(C_2H_4)_n$
PA66	Polyamide 66	聚酰胺 66	$(C_6H_9O_2N)_n$
PLA	polylactide, polylactic acid	聚乳酸	$(C_3H_4O_2)_n$
PP	Polypropylene	聚丙烯	$(C_3H_6)_n$
PET	Polyethylene Terephthalate	聚对苯二甲酸乙二醇酯	$(C_{10}H_8O_4)_n$
PS	Polystyrene	聚苯乙烯	$(C_8H_8)_n$
PVC	Polyvinyl chloride	聚氯乙烯	$(CH_2-CHCl)_n$

2 结果与讨论

2.1 塑料样品的激光诱导荧光光谱

激光照射塑料样品表面时,塑料的荧光基团受激产生特征光谱是识别塑料材质的重要依据,经均值标准化和平滑处

理后的八种塑料的激光诱导荧光光谱如图 2 所示。

LIF 检测系统使用 266 nm 波长激光作为激发光源。通常情况下,样品分子外层电子吸收激光能量后发生能级跃迁至激发态,激发态的分子不稳定会以热能、振动、发射光子等去激形式回到基态。因去激过程中的部分能量损耗,使得样品的荧光发射波长大于入射光波长。结合实际检测到的塑

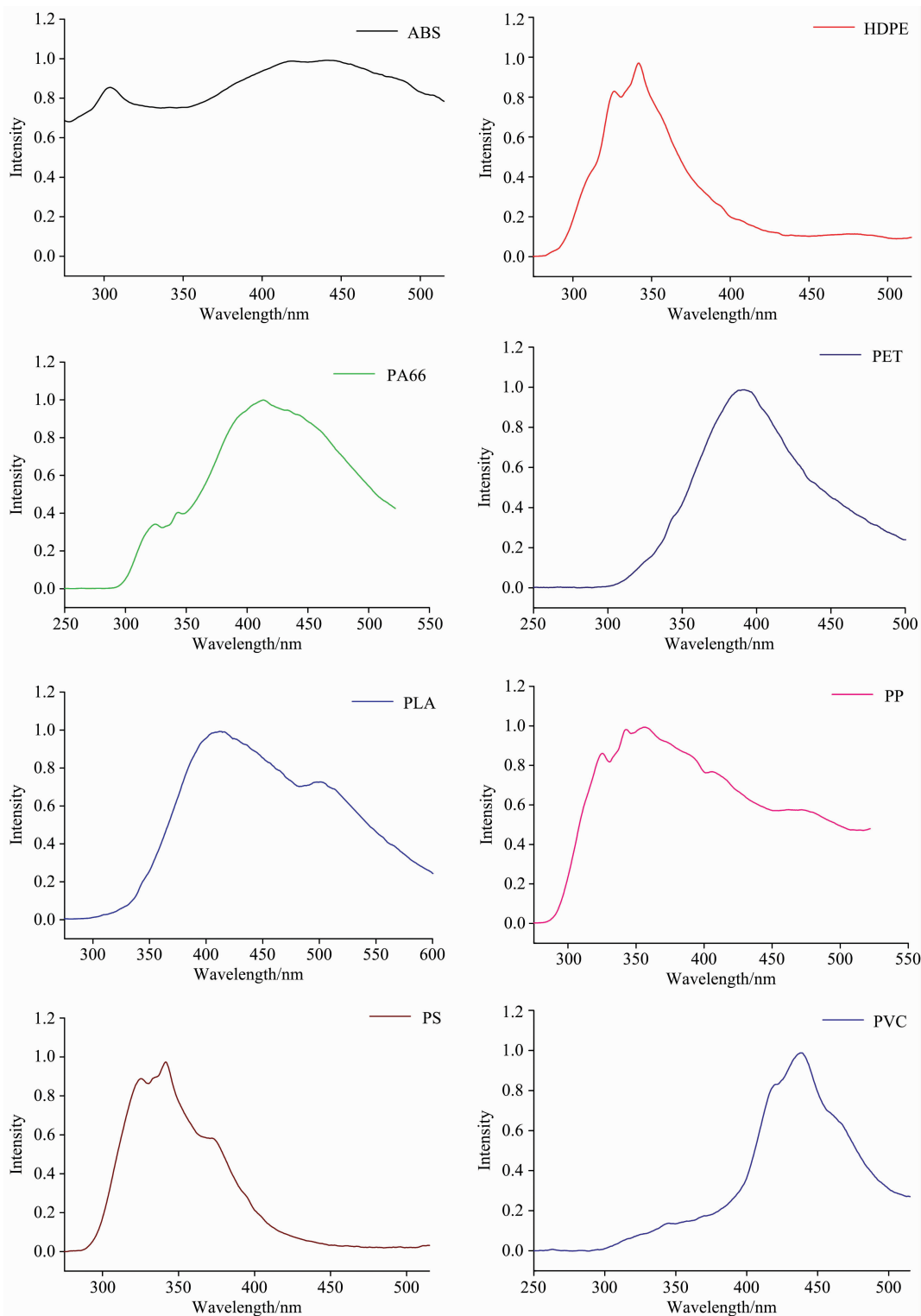


图 2 8 种塑料荧光光谱

Fig. 2 Fluorescence spectra with eight kinds of plastic

料荧光光谱, 实验中选择的检测波段范围为 275~500 nm。

由图 2 可以看出, 其中几种塑料的荧光光谱的差异性是比较明显的, 如 PET 只有一个波峰, 主峰位置在 391 nm 附近; PVC 主峰对应波长最大, 位于 439 nm 附近; PLA 主峰

位于 406 nm 附近, 主峰左侧无出峰; PA66 主峰位于 414 nm 附近, 主峰右侧无出峰; ABS 除了在 300~450 nm 波段有出峰外, 在 490 nm 处也有明显出峰。HDPE, PS 和 PP 三种塑料的荧光较为相似。需进一步利用算法进行区分。

2.2 主成分分析

利用 LIF 检测系统采集 8 种不同材质塑料共 358 组荧光光谱数据。基于不同塑料的荧光峰位置、数目以及峰强度的差异性，以荧光光谱中波峰波谷对应的波段作为特征波段，共选取 10 个特征波段的光强值来表征初始光谱数据，构建 358×10 的特征矩阵。作为主成分分析法和反向传播神经网络识别算法的基础数据。

由于特征变量矩阵中包含较多线性相关的信息，如果不做处理，会增加后期识别算法的运算量。利用主成分分析 (principal component analysis, PCA) 方法在尽可能多的保留原有数据信息的同时削减原变量矩阵中的线性相关量，从而简化了目标研究对象，提高分析效率。经 PCA 分析后得到每个主成分的方差贡献值如表 2 所示。

表 2 各成分的 PCA 方差贡献值

Table 2 PCA variance contribution of each component

主成分	特征值	方差贡献率/%	累计方法贡献率/%
1	5.730	57.302	57.302
2	3.458	34.582	91.883
3	0.620	6.202	98.085
4	0.165	1.645	99.731
5	0.02	0.195	99.926
6	0.004	0.035	99.961
7	0.002	0.024	99.985
8	0.001	0.008	99.993
9	0.000	0.005	99.998
10	0.000	0.002	100.000

由表 2 可知，前 3 个主成分的方差贡献值得分总和累计达到 98.085%，说明前 3 个主成分囊括的信息足以代表以上塑料荧光光谱，利用 PCA 法可有效简化光谱数据。将降维的主成分 PC1, PC2, PC3 作为输入值进行三维制图，可直观的显示不同塑料的分类效果。

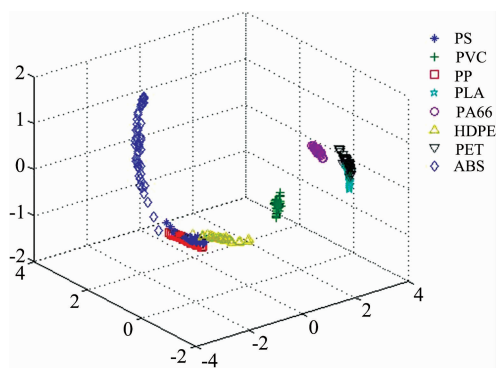


图 3 不同塑料的 PCA 分类图

Fig. 3 PCA clustering chart of different plastics

如图 3 所示，除 ABS 外其他相同材质样品的聚合度较高，这可能是由于 ABS 作为丙烯腈-丁二烯-苯乙烯共聚物其材质的均匀性和混合度有所差异导致荧光光谱信号的离散度高于其他材质塑料样品，但 ABS 仍与其他材质塑料的区分

度较高。此外 PA66 和 PVC 也显示出明显的区分度。HDPE, PP 和 PS 聚合度较高，从分子元素构成上来看，三者都是由 C 和 H 元素组成、分子结构以 C—H 键、C=C 键为主，相同的元素构成和相似的分子结构可能是造成三者荧光光谱类似的原因。同样的聚类情况还出现在 PET 和 PLA 之间，两种材料都由 C, H 和 O 构成。从分子结构上看，PET 中含有 PLA 没有的苯环结构，两者与其他塑料样品区分度较高，但彼此间的区分度还是偏低。需要借助其他的分类识别算法对其进行区分和识别。

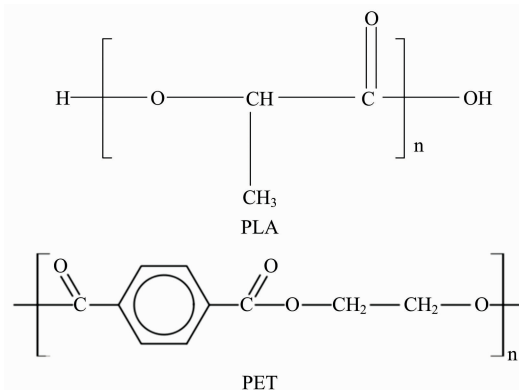


图 4 PLA 与 PET 分子结构

Fig. 4 The molecular structure of PLA and PET

2.2 反向传播神经网络

PCA 聚类属于无监督的分类模式，不能满足精度较高的识别需求。人工神经网络 (artificial neural network, ANN) 作为有监督学习模式的算法具有运算速度快，识别精度高等优点被广泛应用于模式识别、图像处理、智能控制等领域^[13-15]，其中反向传播 (back propagation, BP) 神经网络由于其反馈调整算法的优势在数据分析中发挥越来越多的作用。

BP 神经网络是基于误差反向传播算法的多层向前神经网络 (multilayer feed-forward neural networks, MFNN)。BP 神经网络的神经元常采用的是 Sigmoid 传递函数。图 5 为典型的 BP 神经网络模型。

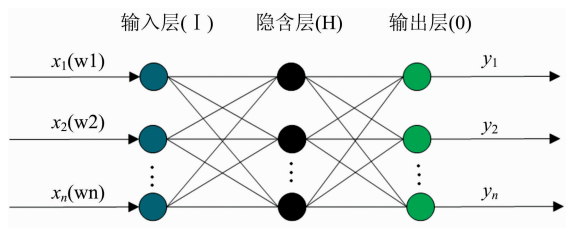


图 5 BP 神经网络模型

Fig. 5 Structure of BP neural networks

BP 神经网络通常包含输入层、输出层、一个或多个隐藏层。相邻层节点的连接被赋予不同权重系数。BP 算法中首先向前传递信号，而后反向传播误差。在向前传递过程中，输入信息从输入层经隐层单元处理后，传至输出层。神经元的信息传递只在层间完成，层内并无信号传递，如果输出层误差过大，误差信号将沿连接路径返回，并同时修改各层神经

元之间的连接权值以达到最优逼近, BP 神经网络模型是一种有监督学习训练的 ANN 模型。

提取经 PCA 得到的前 4 个方差贡献率最大的特征变量构成一组向量, 对应于每个样品的一组荧光光谱。从 358 组特征向量中随机提取 256 组数据作为 BP 神经网络算法的训

练集, 将剩余的 102 组数据作为算法模型的预测集, BP 神经网络的隐藏层设定值为 1, 激活函数选择双极性 Sigmoid 函数, 输出层为 10 种塑料样品, 激活函数为 softmax, 对样品进行分析预测, 样品预测结果如表 3 所示。

表 3 PCA 结合 BP-神经网络的不同塑料识别结果

Table 3 Identification result of different plastics using PCA and BPNN

	ABS	HDPE	PA66	PET	PLA	PP	PS	PVC	准确率/%
ABS	13								100
HDPE		9					1		90
PA66			19						100
PET				12					100
PLA					7				100
PP						16			100
PS							12		100
PVC								13	100

如表 3 所示, 8 种塑料共计 102 组数据预测结果显示除 HDPE 有一组数据被识别为 PS 外, 其他塑料的识别准确率都为 100%, 整体预测准确值高达 99%, 结果表明结合 PCA 和 BP 神经网络法可实现对 8 种不同塑料的准确识别。对已有各种塑料建立指纹光谱库后, 采集未知塑料光谱与光谱库数据进行算法比较, 从而实现未知塑料的快速检测与识别。

3 结 论

塑料在激光作用下可产生明显的荧光信号, 利用 LIF 检

测系统采集不同塑料样品的荧光光谱。选择 10 个特征波段的荧光强度作为特征变量, 构建塑料光谱特征矩阵。利用 PCA 法对特征矩阵成功降维, 得到综合贡献值最高的前 4 个主成分作为 BP 神经网络的输入端, 减少了冗余数据给神经网络算法带来的负担, 提高运算效率。从不同塑料的 PCA 聚类结果可以看出, 相同塑料样品的聚合度较高, 具有相同元素组成的塑料样品区分度较弱, 结合 BP 神经网络算法, 可对不同塑料样品进行识别预测, 综合预测准确率达 99%。实验结果表明, LIF 技术可成功应用于塑料材质的快速识别, 为废弃塑料的快速分类回收提供了一种新的技术。

References

- [1] Tang Z W, Zhang L Z, Huang Q F, et al. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2015, 122: 343.
- [2] Liao Q, Qu J H, Wang J P, et al. *World Sci-Tech R&D*, 2015, 37(2): 206.
- [3] Rochman C M, Browne M A, Halpern B S, et al. *Nature*, 2013, 494(7436): 169.
- [4] China Plastics Processing Industry Association(中国塑料加工工业协会). *China Plastics Processing Industry(2016)(中国塑料加工工业(2016))*. *China Plastics(中国塑料)*, 2017, (5): 1.
- [5] Ministry of Commerce of the People's Republic of China(中华人民共和国商务部). *2017 Report of China Renewable Resource Recycling Industry Development(中国再生资源回收行业发展报告 2017)*. *Resource Recycling(资源再生)*, 2017, (5): 16.
- [6] YUAN Zhi-ye, BAI Gen-yun, ZHANG Wen-tao, et al(袁志业, 白根云, 张文涛, 等). *Environmental Engineering(环境工程)*, 2015, (S1): 615.
- [7] Unnikrishnan V K, Choudhari K S, Kulkarni S D, et al. *RSC Advances*, 2013, 3(48): 25872.
- [8] YIN Feng-fu, YAN Lei, HAN Qing-xin, et al(尹凤福, 闫磊, 韩清新). *Environmental Engineering(环境工程)* 2017, 35(12): 134.
- [9] Wang Q, Wu X M, Chen L C, et al. *Applied Spectroscopy*, 2017, 71(11): 2538.
- [10] HAN Xiao-shuang, LIU De-qing, LUAN Xiao-ning, et al(韩晓爽, 刘德庆, 栾晓宁, 等). *Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析)*, 2016, 36(2): 445.
- [11] Trost J, Zigan L, Leipertz A, et al. *Applied Optics*, 2013, 52(33): 8001.
- [12] Taketani F, Kanaya Y, Nakamura T, et al. *Journal of Aerosol Science*, 2013, 58: 1.
- [13] YUAN Jin-sha, SHANG Hai-kun(苑津莎, 尚海昆). *Electric Power Automation Equipment(电力自动化设备)*, 2013, 33(6): 27.
- [14] DONG Zao-peng, LIU Tao, WAN Lei, et al(董早鹏, 刘涛, 万磊, 等). *Chinese Journal of Scientific Instrument(仪器仪表学报)*, 2015, 36(4): 863.
- [15] CHANG Liang, DENG Xiao-ming, ZHOU Ming-quan, et al(常亮, 邓小明, 周明全, 等). *Acta Automatica Sinica(自动化学报)*, 2016, 42(9): 1300.

Classification and Identification of Plastic with Laser-Induced Fluorescence Spectroscopy Based on Back Propagation Neural Network Model

WANG Xiang^{1, 2}, ZHAO Nan-jing^{1*}, YIN Gao-fang¹, MENG De-shuo^{1, 3}, MA Ming-jun^{1, 3}, YU Zhi-min⁴, SHI Chao-yi⁴, QIN Zhi-song^{1, 5}, LIU Jian-guo¹

1. Key Laboratory of Optics and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China

2. University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China

3. Wanjiang New Industry Technology Development Center, Tongling 244000, China

4. Department of Biological and Environmental Engineering, Hefei University, Hefei 230601, China

5. Institute of Computer and Information Security, Guilin University of Electronic Technology, Guilin 541004, China

Abstract With the advantages of low cost, good quality, strong plasticity, plastics are widely used in industrial production and daily life. However, waste plastics are prone to environmental pollution and secondary hazards without being handled properly. Recycling is expected to be a silver bullet to solve the problem of waste plastics, with the premise of accurate classification. Traditional sorting methods of waste plastics are time consuming, inefficient, and difficult to classify rapidly and effectively. Laser-induced fluorescence technique is usually used for rapid identification and quantitative analysis of organic pollutants such as oil and polycyclic aromatic hydrocarbons in water and soil with simple operation, high detection efficiency and little sample usage. It can be used to quickly collect the fluorescence spectra of different plastics, combined with the corresponding pattern recognition algorithm, the rapid and accurate identification of plastic materials can be realized. In this study, 358 sets of fluorescence spectra from eight kinds of plastics (ABS, HDPE, PA66, PLA, PP, PET, PS, PVC) were collected. A spectral matrix of 358×10 was constructed based on the characteristic peak of the spectra. and then it was processed by the method of principal component analysis, after that the linear correlation in the original spectral matrix was reduced and the accuracy of the data was improved. The results show that the cumulative variance contribution of the first three principal components was 98.085%, which was enough to characterize the main information of the original spectral matrix. Spectral classification was performed using the principal components PC1, PC2, and PC3 as inputs. Among them, the spectral polymerization degree of the same kind of plastic was high, and plastics composed with different elements such as PA66, PLA, HDPE, and PVC have better spectral resolution, while plastics containing the same elements such as PET and PLA have poor spectral resolution. The PCA algorithm is not accurate enough to identify unknown plastics. BP-Neural network was widely used in pattern recognition and classification research. The simplified feature matrix obtained by the PCA algorithm was used as the input set of the BP-neural network algorithm. Among them, 256 sets of data were randomly selected as the training set of the BP-neural network model, and the remaining 102 sets of data were used as detection sets. The value of the hidden layer of the BP neural network was set to 1, while the bipolar Sigmoid function was selected as activation function. Eight plastics were set as the output layer. The results showed that only one set of HDPE spectra in the 102 sets of spectra was misidentified as PS, and the remaining 101 sets of data were all correctly identified. The total recognition accuracy of the fluorescence spectra of eight plastics was 99%. So the laser-induced fluorescence technology combined with BP-neural network algorithm can be used to quickly and accurately identify different plastics. This study provided a new reference for automated intelligent sorting of waste plastics, reducing recycling costs and lowering the risk of waste plastics.

Keywords Plastic; Laser-induced fluorescence spectroscopy; Principal component analysis; Artificial neural network; Identify

(Received Sep. 7, 2018; accepted Jan. 29, 2019)

* Corresponding author