

基于近红外光谱检测技术的水泥生料成分含量检测研究

黄冰¹, 王孝红², 蒋萍^{2*}

1. 济南大学建筑材料制备与测试技术重点实验室, 山东 济南 250022
2. 济南大学自动化与电气工程学院, 山东 济南 250022

摘要 近红外光谱检测技术已经成功应用于水泥生料成分的快速检测, 但我国水泥企业在生产水泥生料时所用原材料品种不一, 使用不同的原材料进行生产时对近红外光谱建模带来一定影响。为了研究不同原料生产的水泥生料近红外光谱建模差异, 对不同地区水泥生产线所生产的水泥生料进行建模研究。选取两个不同地区水泥生产线的水泥生料样本各 95 份和 82 份, 各自选取 80 份和 67 份作为校正集, 15 份作为验证集。首先将两条水泥生产线的样本每份重复装样测 3 次光谱, 取平均光谱做为样本的近红外光谱。然后通过采用 S-G 平滑法对两个不同地区所生产的水泥生料近红外光谱进行预处理。对比发现两个地区水泥生料近红外光谱存在一定差异, 采用偏最小二乘回归算法建立检测模型, 所建立的模型精度差异较大。采用 CARS 波段挑选法, 分别对两种水泥生料近红外光谱进行挑选, 生产线一的水泥生料样本 SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 和 CaO 近红外光谱波段由 3 113 个变量分别保留了 85, 89, 55 和 67 个变量, 生产线二的水泥生料近红外光谱则分别保留了 51, 55, 55 和 55 个变量, 且保留的波段明显存在一定区别。最后分别建立了两个地区的水泥生料 SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 和 CaO 近红外光谱检测模型。通过对比发现原材料不同时所挑选的波段不同, 且检测模型预测效果良好。生产线一的 SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 和 CaO 检测模型的 RMSEP(预测均方根误差)分别为 0.109, 0.053, 0.034 和 0.185, 生产线二的 SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 和 CaO 检测模型的 RMSEP 分别为 0.084, 0.024, 0.023 和 0.184。结果表明当水泥生料的原材料发生变化或者产地不一时, 不能仅靠修正模型对水泥生料进行检测, 而是需要重新进行近红外光谱建模, 且光谱波段选择也会发生变化。采用波段挑选法对水泥生料近红外光谱进行波段挑选能够提高检测模型的模型精度。

关键词 近红外光谱; 水泥生料; 波段挑选; 检测模型

中图分类号: O436 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2022)03-0737-06

引言

水泥是建筑工程中不可缺少的重要材料, 并且不可能被其他材料所代替, 其质量的好坏对建筑物强度起着重要决定作用。水泥生料配料作为水泥生产的首个生产环节, 水泥生料质量影响着后续生产环节, 因此对其成分检测尤为重要。目前水泥生料成分检测的方法主要存在两种方式: (1) 离线检测: 化学滴定、XRF 荧光分析仪和钙铁分析仪检测, 虽然离线检测对水泥生料成分检测精准度高, 但制样过程繁琐检测周期较长, 存在着严重的滞后现象, 不利于指导生产。(2) 在线检测: 中子活化水泥元素在线分析仪检测, 仅少数水泥

企业引进了中子活化水泥元素在线检测仪, 并且该仪器维护成本高, 对环境和人身安全存在着潜在的威胁^[1-3], 因此研究水泥生料成分快速安全的检测方法具有重要意义。近红外光谱技术分析样品具有方便、快速、高效、准确和低成本, 不破坏样品的优点, 在工农业等领域得到了广泛的应用^[4-7]。近年来国内外学者对基于近红外光谱技术对水泥生料成分检测进行了大量研究, 肖航等^[8]针对温度对水泥生料近红外光谱检测的影响及补偿方法进行了研究; 杨振发等^[9-11]提出了一种交叉验证-绝对偏差-f 检验(CVADF)算法来消除校正集中存在的异常值, 利用间隔偏最小二乘和遗传算法选择了水泥生料近红外光谱的最优波数变量。

样品来源和样品杂质含量对近红外检测结果存在着一定

收稿日期: 2021-02-02, 修订日期: 2021-04-15

基金项目: 国家自然科学基金项目(62073153), 山东省重大科技创新项目(2019JZZY010448)和山东省重点研发计划项目(2019GSF109018)资助

作者简介: 黄冰, 1991年生, 济南大学建筑材料制备与测试技术重点实验室博士研究生 e-mail: cse_huangb@ujn.edu.cn

* 通讯作者 e-mail: cse_jiangp@ujn.edu.cn

的影响^[12],我国一些水泥生产线没有自己的矿山原材料而依靠采购,且同时采购几个地方的原材料,因此水泥生料成分波动和杂质含量变化较大。Slobodan^[13]等将两种多态杂质与一批预期形式的活性药物成分(API)混合物分别进行多元建模,结果表明所建交叉验证模型的准确性显著不同。仇循楠等^[14]总结了近些年来近红外发光稀土配合物及近红外发光稀土杂化材料的研究进展。Alexey 等^[15]对掺杂铋的 CsCdBr 3-第一溴化三元相的近红外光谱进行了研究。但国内外至今没有对不同生产线生产的水泥生料对检测结果影响进行研究。因此对不同生产线的水泥生料检测进行研究有着重要的意义。

本工作选取山东两条不同生产线所生产的水泥生料在相同环境下进行检测光谱研究,分析了不同水泥生料对近红外光谱建模的影响。

1 实验部分

1.1 仪器与试剂

试验仪器使用 MB3600 傅里叶近红外光谱仪,配固体漫反射测量附件和 Horizon MB 光谱采集软件(瑞士 ABB 公司);ARL ADVANT'X 型 X 射线荧光光谱仪(美国 Thermo Fisher Scientific 公司)。

选取山东曲阜某水泥公司和山东临沂某水泥公司的水泥生料进行研究。曲阜某水泥公司所采用的原材料为:石灰石、砂岩、泥岩、铁尾渣,而临沂某水泥公司所采用的原材料为:石灰石、砂岩、煤矸石、铁尾渣,两个水泥厂的原材料来源不相同。因为现场生产条件和检测方法的限制对水泥生料成分检测采用了 XRF 荧光检测法。选取了曲阜 95 个样本,临沂 82 个样本,XRF 荧光检测对两个厂的 SiO₂, Al₂O₃, Fe₂O₃, CaO 的含量检测结果如表 1 所示。

表 1 曲阜、临沂生料样本成分含量分布表
Table 1 Content distribution table of raw materials from Qufu and Linyi

样品来源	SiO ₂ /%	Al ₂ O ₃ /%	Fe ₂ O ₃ /%	CaO /%	
曲阜	Max	13.79	3.44	2.12	43.67
	Min	11.37	2.52	1.78	41.44
	Average	12.8	3.02	2.01	42.28
临沂	Max	14.02	3.38	2.21	41.83
	Min	11.57	3.12	2.02	40.58
	Average	13.59	3.25	2.15	41.13

1.2 方法

研究不同生产线水泥生料近红外光谱的建模差异实验方案如下:

(1)将曲阜的水泥生料样本分成 80 份校正集样本和 15 份验证集样本。对校正集样本和验证集样本每份重复测量 3 次采集近红外光谱并取平均值,以减小制样过程对建模的影响。

(2)将临沂的水泥生料样本分成 67 份校正集样本和 15

份验证集样本。校正集样本和验证集样本每份重复测量 3 次采集近红外光谱并取平均值,减小制样过程对建模的影响;

(3)观察对比两种水泥生料近红外光谱差异;

(4)对光谱进行全局 PLS 建模对比建模结果;

(5)对光谱进行预处理,并进行波段选择然后进行局部 PLS 建模对比建模结果。

2 结果与讨论

2.1 光谱对比

如图 1 和图 2 所示分别为对曲阜和临沂的水泥生料样本进行测量得到的近红外光谱。可以看出两种水泥生料的近红外光谱存在着明显的差异,大致推测是由于煤矸石颜色较深所生产的水泥生料颜色偏暗对吸光度存在一定的影响,或者原材料所含杂质不同,导致在 10 000~6 000 cm⁻¹ 两种水泥生料光谱斜度不一,在 6 000~4 000 cm⁻¹ 光谱峰存在类似现象但峰值存在着差异。

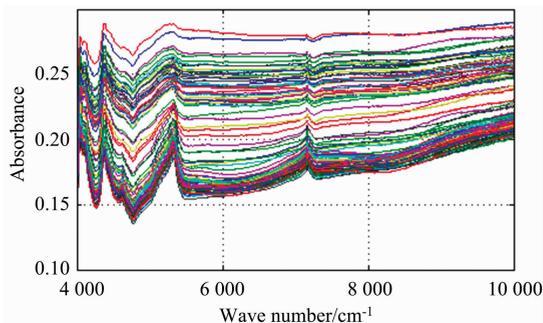


图 1 曲阜生料样本近红外光谱图

Fig. 1 Near infrared spectra of raw material samples from Qufu

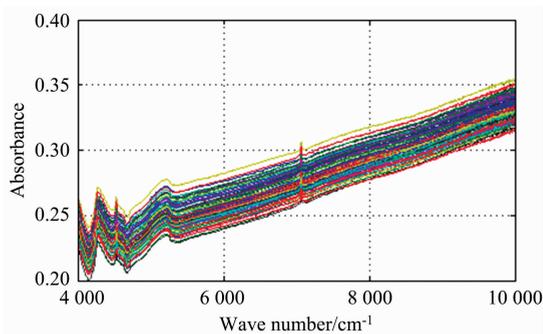


图 2 临沂生料样本近红外光谱图

Fig. 2 Near infrared spectra of raw material samples from Linyi

2.2 样本划分

在对水泥生料近红外光谱数据进行建模时,将样本划分为训练集和测试集,训练集用于建立水泥生料成分近红外光谱检测模型,测试集用来测试模型的适配度。训练集和测试集的划分对于检测模型的稳定性和适配性非常重要,一般划分方法有:随机法、样品化学值划分法、样品吸光度划分法等。对于水泥生料近红外光谱划分时,将成分信息和近红外光谱信息相结合,样本划分所建立起的检测模型可靠性和稳

定性更高。

本研究采用 SPXY(sample set partitioning based on joint x-y distance)法对样本进行划分。如表 2, 表 3 所示为曲阜和临沂样本划分情况。

表 2 曲阜样本划分表
Table 2 Qufu sample partition

样本		Number /%	Max /%	Min /%	Average /%
CaO	训练	80	14.01	11.57	13.53
	测试集	15	14.02	13.26	13.71
SiO ₂	训练	80	3.38	3.12	3.25
	测试集	15	3.34	3.17	3.26
Al ₂ O ₃	训练	80	2.21	2.02	2.14
	测试集	15	2.20	2.09	2.15
Fe ₂ O ₃	训练	80	41.83	40.63	41.17
	测试集	15	41.80	40.58	41.05

表 3 临沂样本划分表
Table 3 Linyi sample partition

样本		Number /%	Max /%	Min /%	Average /%
CaO	训练	67	41.83	40.58	41.10
	测试集	15	41.81	41.03	41.29
SiO ₂	训练	67	14.02	11.57	13.61
	测试集	15	13.83	11.77	13.49
Al ₂ O ₃	训练	67	3.38	3.12	3.26
	测试集	15	3.32	3.15	3.24
Fe ₂ O ₃	训练	67	2.21	2.02	2.15
	测试集	15	2.2	2.1	2.14

2.3 全局建模结果对比

采用偏最小二乘回归建模(PLS)法分别对曲阜和临沂的水泥生料近红外光谱建模, 建模结果如表 4 所示。在未对光谱数据预处理时进行全局 PLS 建模。SiO₂, Al₂O₃, Fe₂O₃ 和 CaO 的成分预测模型并不理想。然而相比之下曲阜的成分预测模型优于临沂的成分模型, 大致判断曲阜的水泥生料近红

表 4 曲阜、临沂生料近红外光谱全局 PLS 建模结果
Table 4 Qufu and Linyi raw material near infrared spectrum global PLS modeling results

Model		R ²	RMSECV/%	RMSEP/%
SiO ₂	曲阜	0.441	0.317	0.526
	临沂	0.001	0.50	0.25
Al ₂ O ₃	曲阜	0.402	0.153	0.165
	临沂	0.06	0.06	0.06
Fe ₂ O ₃	曲阜	0.384	0.049	0.061
	临沂	0.05	0.04	0.04
CaO	曲阜	0.319	0.305	0.621
	临沂	0.03	0.38	0.38

外光谱相比临沂的水泥生料近红外光谱更容易建立预测模型, 且模型精度高于临沂的水泥生料检测模型。

2.4 挑选波段建模

首先分别对曲阜和临沂的水泥生料近红外光谱进行 S-G(savitzky-golay)预处理, 然后采用 CARS(竞争性自适应重加权)法分别对曲阜和临沂的生料样本近红外光谱曲线(共 3113 个波长点)进行波段选择。以曲阜水泥中 SiO₂ 为例说明变量筛选过程, 如图 3(a, b, c)所示。从交互验证所得残差 RMSECV 的趋势变化图可以得出 1~26 次间残差递减, 此时去除了与样本无关的光谱数据变量, 之后很有可能一些有关变量被剔除了残差开始变大, 因此此时所挑选出的光谱数据变量最优。Regression coefficients path 图所表示 RMSECV 的最小值, 以及随着运行次数的变化光谱数据变量也变化。曲阜的水泥生料样本的 SiO₂, Al₂O₃, Fe₂O₃ 和 CaO 近红外光谱波段由 3 113 变量分别保留了 85, 89, 55 和 67 个变量。临沂的水泥生料样本的 SiO₂, Al₂O₃, Fe₂O₃ 和 CaO 近红外光谱波段由 3113 变量分别保留了 51, 55, 55 和 55 个变量。波段选择结果如图 4—图 11 所示, 虽然都是水泥生料但是对波段进行选择时曲阜和临沂的样本存在着明显的差异。但是

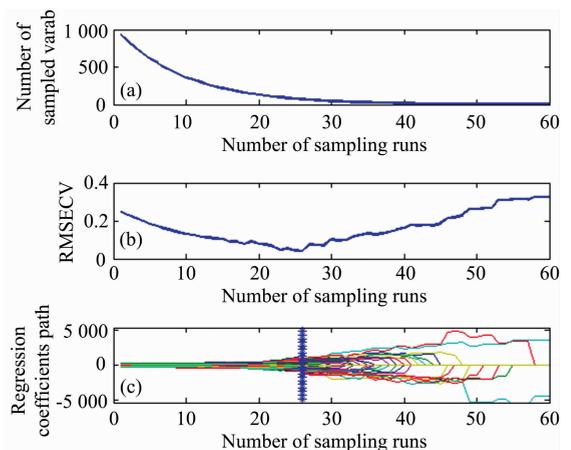


图 3 曲阜 SiO₂ 样本 CARS 波段选择

(a): 波段选择过程样本变化; (b): 波段选择过程交叉验证均方根误差变化; (c): 波段选择过程回归系数变化

Fig. 3 Qufu SiO₂ sample band selection by CARS

(a): Band selection process sample changes; (b): RMSECV variation in band selection process; (c): Change in regression coefficient of band selection process

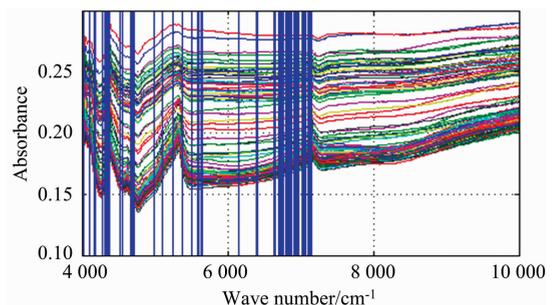


图 4 曲阜 SiO₂ 样本波段选择

Fig. 4 Qufu SiO₂ sample band selection

每种成分波段选择均包含了 $7\ 000\sim 6\ 000\ \text{cm}^{-1}$ 波段。由此可以推测出 $7\ 000\sim 6\ 000\ \text{cm}^{-1}$ 包含了部分水泥生料成分信息。

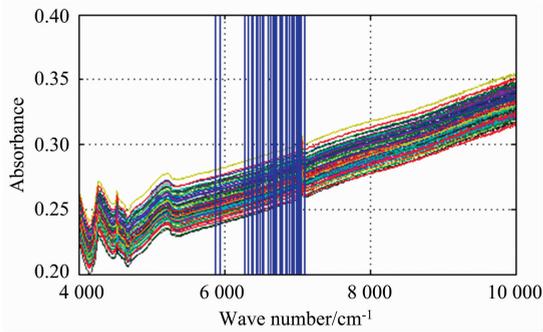


图 5 临沂 SiO_2 样本波段选择

Fig. 5 Linyi SiO_2 sample band selection

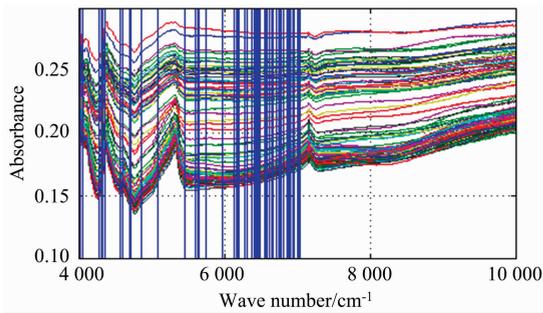


图 6 曲阜 Al_2O_3 样本波段选择

Fig. 6 Qufu Al_2O_3 sample band selection

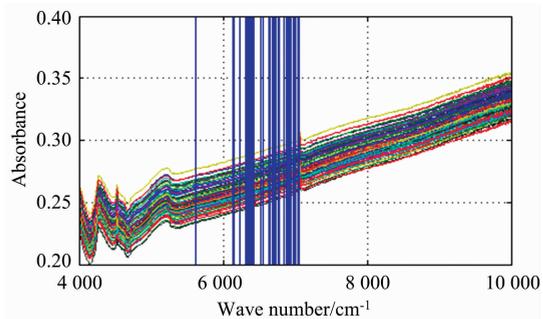


图 7 临沂 Al_2O_3 样本波段选择

Fig. 7 Linyi Al_2O_3 sample band selection

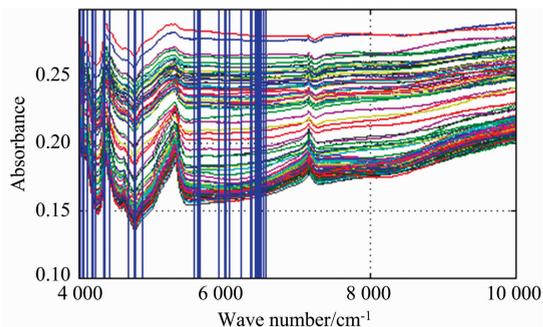


图 8 曲阜 Fe_2O_3 样本波段选择

Fig. 8 Qufu Fe_2O_3 sample band selection

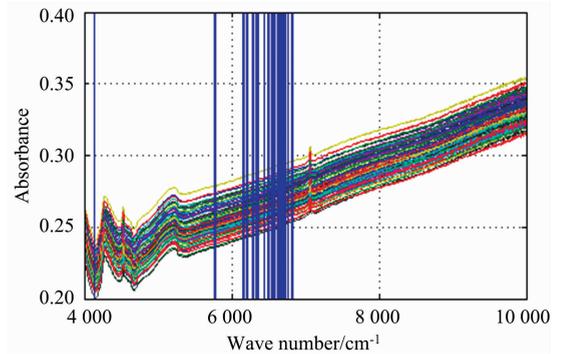


图 9 临沂 Fe_2O_3 样本波段选择

Fig. 9 Linyi Fe_2O_3 sample band selection

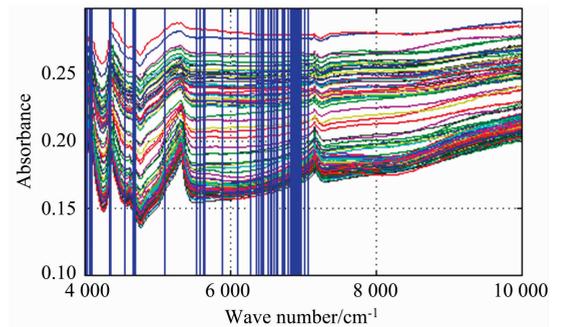


图 10 曲阜 CaO 样本波段选择

Fig. 10 Qufu CaO sample band selection

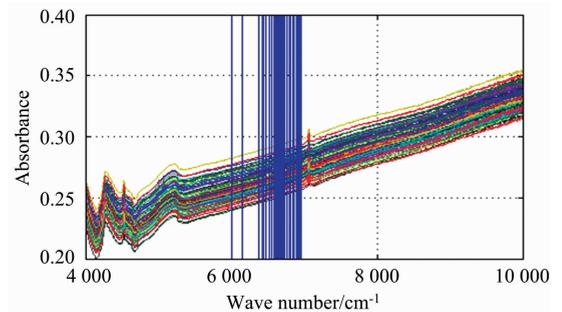


图 11 临沂 CaO 样本波段选择

Fig. 11 Qufu CaO sample band selection

采用 CARS 法挑选出的水泥生料近红外光谱波段和对应的化验值进行 PLS 建模并验证, 模型的 R_c^2 (校正集模型决定系数)、RMSECV (交叉验证均方根误差)、 R_p^2 (预测集模型决定系数)、RMSEP (预测均方根误差) 的值如表 5 所示。与全局建模相比预测模型结果得到了明显提升。

对于曲阜水泥生料 SiO_2 成分含量检测模型 $R_p^2 = 0.981$, RMSEP = 0.109, 临沂水泥生料 SiO_2 成分含量检测模型 $R_p^2 = 0.975$, RMSEP = 0.084, 虽然两者相差不大但在建立模型时所挑选的波段数和波段区间存在明显的差异。因此原材料种类变化对 SiO_2 成分检测存在一定的影响。

对于曲阜水泥生料 Al_2O_3 成分含量检测模型 $R_p^2 = 0.960$, RMSEP = 0.053, 临沂水泥生料 Al_2O_3 成分含量检测

模型 $R_p^2=0.745$, $RMSEP=0.024$, 虽然 R_p^2 相差较大但 R_c^2 和 $RMSECV$ 相差不大, 且临沂 Al_2O_3 成分含量检测模型的对于曲阜水泥生料 Al_2O_3 成分含量检测模型的 $R_p^2=0.960$, $RMSEP=0.053$, 临沂水泥生料 Al_2O_3 成分含量检测模型的 $R_p^2=9.745$, $RMSEP=0.024$, 虽然两者的 R_p^2 值相差较大, 但 R_c^2 , $RMSECV$ 相差不大, 且临沂水泥生料 Al_2O_3 含量检测模型的 $RMSEP$ 却优于曲阜 Al_2O_3 成分含量检测模型。在建立曲阜 Al_2O_3 成分含量检测模型挑选的波段数对于临沂的检测模型, 因此原材料种类变化对 Al_2O_3 成分检测存在一定的影响。

表 5 曲阜、临沂水泥生料近红外光谱局部 PLS 建模结果表
Table 5 Qufu and Linyi cement raw meal near infrared spectrum local PLS modeling results table

成分	模型	校正集		验证集	
		R_c^2	$RMSECV$	R_p^2	$RMSEP$
SiO ₂	曲阜	0.993	0.106	0.981	0.109
	临沂	0.992	0.105	0.975	0.084
Al ₂ O ₃	曲阜	0.946	0.052	0.960	0.053
	临沂	0.956	0.027	0.745	0.024
Fe ₂ O ₃	曲阜	0.808	0.032	0.803	0.034
	临沂	0.758	0.025	0.753	0.023
CaO	曲阜	0.931	0.213	0.917	0.185
	临沂	0.896	0.173	0.707	0.184

对于曲阜水泥生料 Fe_2O_3 成分含量检测模型 $R_p^2=0.803$, $RMSEP=0.034$, 临沂水泥生料 Fe_2O_3 成分含量检测

模型 $R_p^2=0.753$, $RMSEP=0.023$ 。在建立模型时波段挑选数相同选择区间不同, 但两个检测模型检测效果相差不大, 因此原材料种类变化对 Fe_2O_3 成分检测存在一定的影响。

对于曲阜水泥生料 CaO 成分含量检测模型 $R_p^2=0.917$, $RMSEP=0.185$, 临沂水泥生料 CaO 成分含量检测模型 $R_p^2=0.707$, $RMSEP=0.184$ 。在建立模型时波段挑选数不同选择区间不同, 但两个检测模型检测效果相差不大, 因此原材料种类变化对 CaO 成分检测存在一定的影响。

综上所述, 水泥生料中 SiO₂, Al₂O₃, Fe₂O₃ 和 CaO 四种成分对应的近红外光谱多数在 4 000~7 000 cm⁻¹, 但原材料不同对近红外光谱检测有所差异。当水泥生料的原材料发生变化或者产地不一时不能仅靠修正模型对水泥生料进行检测, 而是需要重新进行近红外光谱建模, 且光谱波段选择也不一样。

3 结 论

研究了不同产地的水泥生料近红外光谱的区别, 对光谱进行平滑处理然后进行了全谱 PLS 建模, 然后对两条生产线的水泥生料近红外光谱进行波段挑选及局部 PLS 建模。研究发现利用 CARS 结合 PLS 方法建立的 SiO₂, Al₂O₃, Fe₂O₃ 和 CaO 四种成分的预测模型明显优于全局建模的。不同的水泥生产线水泥生料近红外光谱发生明显的改变, 而且在建立预测模型时所挑选的波段也会发生变化, 不能仅依靠模型修正的方法来实现水泥生料的成分检测, 需进行波段挑选建立检测模型, 为水泥行业生产监控提供了新的思路, 具有良好的应用前景。

References

- [1] Xiao H, Yang Z, Zhang L, et al. Analytical Letters, 2019, 52(2): 1.
- [2] Shan Qing, Zhang XinLei, Zhang Yan, et al. Spectroscopy Letters, 2016, 49(3): 188.
- [3] Jia Junwei, Fu Hongbo, Hou Zongyu, et al. Plasma Science and Technology, 2019, 21(3): 034001.
- [4] ZHANG Wei-dong, LI Ling-qiao, HU Jin-quan, et al(张卫东, 李灵巧, 胡锦涛, 等). Chinese Journal of Analytical Chemistry(分析化学), 2018, 46(9): 1446.
- [5] Krepper G, Romeo F, de Sousa Fernandes D D, et al. Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 2018, 189: 300.
- [6] Costa M C A, Morgano M A, Ferreira M M C, et al. LWT—Food Science and Technology, 2017, 80: 76.
- [7] Mir-Marqués A, Martínez-García M, Garrigues S, et al. Food Chem., 2016, 196: 1023.
- [8] XIAO Hang, YANG Zhen-fa, ZHANG Lei, et al(肖 航, 杨振发, 张 雷, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2020, 40(3): 867.
- [9] XIAO Hang, YANG Zhen-fa, ZHANG Le, et al(肖 航, 杨振发, 张 雷, 等). Chinese Journal of Analytical Chemistry(分析化学), 2020, 48(2): 275.
- [10] Yang Zhenfa, Xiao Hang, Zhang Lei, et al. Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 2019, 223.
- [11] Yang Zhenfa, Xiao Hang, Zhang Lei, et al. Analytical Letters, 2020, 53(17): 1.
- [12] Wang Yifei, Wang Kai, Zhou Zhao, et al. Frontiers of Chemical Science and Engineering, 2019, 13(3): 599.
- [13] Slobodan Sasic, Andrew Gilkison, Mark Henson. Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis, 2018, 148: 256.
- [14] QIU Yan-nan, SUN Li-ning, LIU Tao, et al(仇衍楠, 孙丽宁, 刘 涛, 等). Journal of the Chinese Society of Rare Earths(中国稀土学报), 2012, 30(2): 129.
- [15] Alexey N Romanov, Alexander A Veber, Daria N Vtyurina, et al. Journal of Luminescence, 2015, 167: 371.

Research on Detection of Cement Raw Material Content Based on Near-Infrared Spectroscopy

HUANG Bing¹, WANG Xiao-hong², JIANG Ping^{2*}

1. Key Laboratory of Building Materials Preparation and Testing Technology, University of Jinan, Jinan 250022, China

2. School of Automation and Electrical Engineering, University of Jinan, Jinan 250022, China

Abstract Near-infrared spectroscopy has been successfully applied to the rapid detection of cement raw meal composition, but Chinese cement companies use different raw materials when producing cement raw meal. The use of different raw materials for production has a certain impact on near-infrared spectroscopy modeling. In order to study the difference of near-infrared spectral modeling of cement raw meal produced in different regions, this paper studies the modeling of cement raw meal produced by cement production lines in different regions. 95 and 82 samples of cement raw materials from cement production lines in two different regions were selected respectively, 80 and 67 samples were selected as calibration sets, and 15 samples were selected as verification sets. Firstly, the samples from the two cement production lines are repeatedly loaded and tested three times, and the average spectrum is taken as the near-infrared spectrum of the samples. Then the near-infrared spectra of cement raw materials produced in two different regions are then pretreated by the S-G smoothing method. The partial least squares regression algorithm is used to establish the detection model, and the comparison shows that there are certain differences in the near-infrared spectra of cement raw meal in the two regions, and the accuracy of the model established by the same method is quite different. Using the CARS band selection method, the near-infrared spectra of two kinds of cement raw materials were selected. The near-infrared spectra bands of SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 and CaO samples from production line 1 retained 85, 89, 55 and 67 variables respectively from 3113 variables. The near infrared spectral bands of SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 and CaO in the cement raw meal samples of production line 2 are 51, 55, 55 and 55 variables respectively retained from 3113 variables, and the retained bands are different. Finally, the near-infrared spectrum detection models of SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 and CaO in cement raw materials in the two regions were established respectively. Through comparison, it is found that the selected wave bands are different when the raw materials are different, and the prediction effect of the detection model is good. The RMSEP (predicted root mean square error) of production line I SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 and CaO detection models are 0.109, 0.053, 0.034 and 0.185 respectively, while the RMSEP (predicted root mean square error) of production line II SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 and CaO detection models are 0.084, 0.024, 0.023 and 0.184 respectively. The results show that when the raw materials of cement raw materials change or the place of production is different, the cement raw materials cannot be detected only by the modified model, but the near-infrared spectral modeling needs to be carried out again, and the spectral band selection will also change. Using the band selection method to select the band of near-infrared spectrum of cement raw meal can improve the model accuracy of the detection model.

Keywords Near-infrared spectroscopy; Cement raw material; Band selection; Detection model

(Received Feb. 2, 2021; accepted Apr. 15, 2021)

* Corresponding author