

Применение перцептрона для решения задачи анализа спектра флуоресценции сенсора на основе DBMBF₂ в смеси ароматических углеводородов

И.Е. Катанов¹, А.В. Куприянов¹, Ю.Н. Кононевич², Д.С. Ионов³

¹Самарский национальный исследовательский университет им. академика С.П. Королева, Московское шоссе 34А, Самара, Россия, 443086

²Институт элементоорганических соединений им. А.Н. Несмеянова Российской академии наук, Вавилова 28, Москва, Россия, 119991

³Центр фотохимии РАН, ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН, Новаторов 7А, корп. 1, Москва, Россия, 119421

Аннотация. В статье рассматривается задача выбора архитектуры нейронной сети в задаче анализа данных сигналов, полученных с помощью съёмки спектров с флуоресцентных сенсоров, в основе которых лежит образование эксиплексов между флуорофором дибензоилметанатом дифторида бора (DBMBF₂) и ароматическими соединениями. Внимание уделяется проблеме подбора структурных особенностей и параметров сети в процессе обучения и тестирования на имеющихся данных.

1. Введение

Данная работа основана на использовании данных, получаемых с сенсора, описанного в работе [1]. Данный сенсор способен селективно определять бензол и его производные в многокомпонентных смесях соединений ароматических углеводородов. Его работа основана на свойствах флуорофора дибензоилметаната дифторида бора (DBMBF₂). В процессе работы данного сенсора происходят замеры изменений спектров флуоресценции DBMBF₂, обусловленных образованием в возбужденном состоянии комплексов (эксиплексов) между флуорофором и ароматическими соединениями. На выходе сенсор предоставляет данные формы спектра в виде 2048 значений спектра, каждое из которых представляет собой интенсивность сигнала на определённой частоте. В [1] обработка и анализ спектральных данных осуществляется на основе модели [2] изменения формы спектров флуоресценции DBMBF₂, адсорбированного на силикагель. Для определения параметров данной модели используется многомерный метод наименьших квадратов [4]. Получаемые параметры затем применяются для решения обратной задачи вычисления концентрации по известной форме спектра. Однако, попытка анализировать данные, получаемые с двух или более хемочувствительных элементов, по-разному реагирующих на изменения концентрации газов, показала недостаточную эффективность данного метода в описанной задаче.

Задачу вычисления концентрации углеводородов по известной форме спектра можно решить не только с помощью метода наименьших квадратов. Данная задача анализа данных характеризуется отсутствием информации о структуре данных, зависимостях между ними и распределении анализируемых показателей. В данных условиях наилучшим решением видится использование нейронных сетей для создания нейросетевой модели, способной определять

концентрацию углеводов по форме спектра. Это обусловлено способностью нейронных сетей обучаться и моделировать нелинейные процессы, работая с данными, не имеющими чётких связей и зависимостей.

Однако, использование нейронных сетей сопряжено с рядом сложностей. В частности, нам необходимо подобрать архитектуру сети, подходящую под задачу, а также определить значения гиперпараметров, такие, которые бы позволяли решить задачу наилучшим образом, используя имеющиеся данные. При таком подходе нам предстоит перебор всех вариантов архитектур, и выбор определенной архитектуры, которая будет иметь наилучшие результаты решения поставленной задачи среди представленных вариантов.

2. Выбор архитектуры нейронной сети

В описанном случае мы решаем задачу прогнозирования концентрации газа на основе имеющихся значений формы спектра, снимаемых с двух сенсоров. При этом данные спектров, снятые с сенсора не зависят друг от друга и не образуют какой-либо чёткой последовательности. Каждый элемент исходных данных представляет собой одномерный массив интенсивностей излучения на различных длинах волн, снятый для конкретной концентрации различных углеводов в воздухе.

Для решения задачи прогнозирования наиболее часто применяются сети прямого распространения. Основой сетей такого класса является многослойный перцептрон, который широко применяется для обработки данных при моделировании, идентификации различных ситуаций и прогнозировании каких-либо событий или значений [8-13]. В сочетании с форматом имеющихся данных, многослойный перцептрон является весьма перспективным решением. По этой причине для дальнейшего исследования было решено выбрать архитектуру, основанную на использовании многослойного перцептрона.

3. Выбор гиперпараметров нейронной сети

Гиперпараметры нейронной сети – параметры сети, используемые при обучении сети, но не изменяющиеся в его процессе. К ним относятся такие параметры как:

- Скорость обучения.
- Функции активации нейронов.
- Алгоритм оптимизации.
- Размер пакета (Batch Size).
- Количество нейронов в скрытых слоях

Сложность выбора гиперпараметров состоит в том, что выбор должен удовлетворять двум условиям – решать поставленную задачу при наименьших значениях ошибок предсказаний и обеспечивать достаточную обобщающую способность сети, чтобы избежать переобучения [5].

Для подбора значений гиперпараметров нейронной сети существуют различные подходы [6,7]. Наиболее популярным является метод, называемый Grid Search, представляющий собой перебор сочетаний всех предлагаемых значений гиперпараметров сети и выбор наилучшего из них по определённой метрике, например по величине отклонения предсказанных значений от истинных, в rpm . Именно этот подход и было решено использовать в данной работе.

Каждый из сенсорных элементов, использованных в эксперименте передаёт данные в виде массива из 2048 значений интенсивности излучения на разных длинах волн. При детальном изучении данных было установлено что из 2048 каналов, предоставляемых каждым сенсором, на изменения концентрации реагировали только 882. При обучении сети использовались данные одновременно с двух сенсоров. Таким образом, так как данные, используемые для обучения сети представляют собой одномерный массив из 1764 элементов, представляющих собой интенсивности излучения, снимаемые датчиками с двух сенсорных элементов, состоящих из различных хемосенсорных материалов, отличающихся поверхностной модификацией матрицы носителя или использованием различных производных DBMBF₂[4], количество входных нейронов было принято равным числу имеющихся элементов – 1764. В качестве вариантов количества нейронов в скрытых слоях принимались произведения

количества входных нейронов на различные степени числа 2. Таким образом были приняты варианты 220, 441, 882, 1764, 3528 и нейронов на скрытый слой. Допустимым количеством скрытых слоёв было решено принять 1, 2, 3 и 4 слоя.

Из алгоритмов оптимизации выбор представлен такими алгоритмами как Adam, Adagrad, Adadelta, SGD (Stochastic Gradient Descend).

Выбор функций активации для скрытых слоёв состоит из ReLU, LeakyReLU, Tanh (гиперболический тангенс), сигмоиды и линейной функции.

Скорость обучения представлена значениями от 0.001 до 0.0001 с шагом 0.0001.

Таким образом, на выборке значений интенсивностей излучения и концентраций, полученной от сенсоров, в процессе эксперимента, описанного в [1] были обучены и провалидированы с помощью перекрёстной валидации все сочетания представленных параметров нейронных сетей и среди них было выбрано одно с наименьшим показателем средней ошибки перекрёстной валидации, имеющей значения $k = 10$.

В результате были получены следующие параметры нейронной сети:

- Количество скрытых слоёв: 3;
- Количество нейронов в скрытых слоях: 882, 882 и 220 последовательно;
- Функция активации скрытых слоёв нейронов: ReLU;
- Скорость обучения: 0.0004;
- Алгоритм оптимизации: Adagrad.

4. Оценка полученных параметров

Полученный набор гиперпараметров был повторно проверен путём обучения на 1376 примерах замеров сенсоров с использованием перекрёстной валидации методом K-Fold, где $k = 10$, что дало нам результаты предсказаний для концентраций бензола, представленные на рисунке 1.

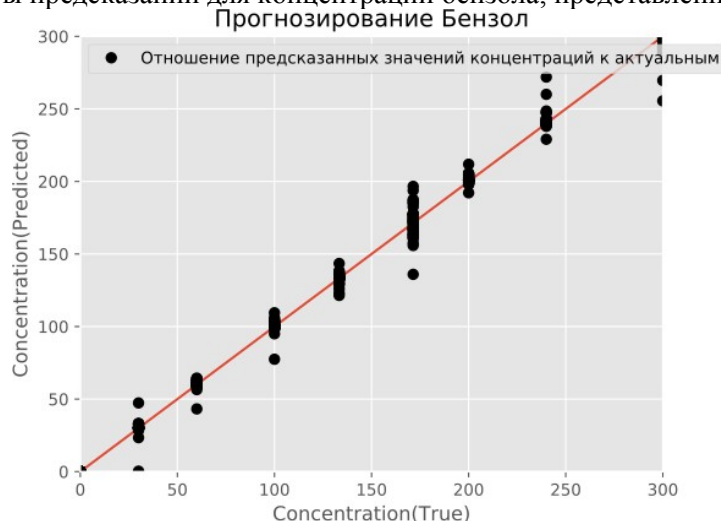


Рисунок 1. Отношение предсказанных концентраций бензола к реальным, концентрация измеряется в ppm.

Как можно увидеть по рисунку, предсказанные значения концентраций весьма близки к реальным. Средний показатель ошибки при валидации составил 8 ppm, при замерах бензола с равномерно распределёнными концентрациями, равными 30, 60, 100, 133, 171, 200, 240 и 300 ppm. Это подтверждает то, что многослойный перцептрон с представленной в данной работе архитектурой может быть использован в задаче анализа спектральных данных с использованием двух или более сенсоров, что позволит получать достаточно высокую точность предсказания концентраций газов.

5. Возможности улучшения

Несмотря на то, что полученный результат подбора гиперпараметров при обучении уже показывает результаты, близкие к реальным, возможно достигнуть ещё большей точности

путём подбора гиперпараметров с использованием эволюционных алгоритмов, таких как генетический алгоритм, который в последние годы наращивает популярность при выполнении поставленной задачи.

6. Литература

- [1] Ionov, D. Simple Fluorescent Sensor for Simultaneous Selective Quantification of Benzene, Toluene and Xylene in a Multicomponent Mixture / D. Ionov, G. Yurasik, Y. Kononevich, V. Sazhnikov, A. Muzafarov, M. Alfimov // *Procedia Eng.* – 2016. – Vol. 168. – P. 341-345.
- [2] Ионов, Д.С. Модель формирования эксиплексов дибензоилметаната дифторида бора с ароматическими углеводородами на поверхности кремнезема / Д.С. Ионов, Г.А. Юрасик, А.В. Антонов, В.А. Сажников, М.В. Алфимов // *Химия высоких энергий.* – 2015. – Vol. 49(3). – P. 210-215.
- [3] Ионов, Д.С. Эксиплексы фтор- и метилпроизводных дибензоилметаната дифторида бора с бензолом и толуолом на поверхности триметилсилилированного аэросила / Д.С. Ионов, В.А. Сажников, Г.А. Юрасик, А.А. Сафонов, Ю.Н. Кононевич, М.В. Алфимов // *Химия Высоких Энергий.* – 2018. – Vol. 52(6). – P. 473-479.
- [4] Maeder, M. Practical Data Analysis in Chemistry / M. Maeder, Y.-M. Neuhold – Oxford: Elsevier. – 2007. – Vol. 26. – 326 p.
- [5] Watanabe, E. Relationships between internal representation and generalization ability in multi layered neural network for binary pattern classification problem / E. Watanabe, H. Shimizu // *Proc. IJCNN, Nagoya, Japan, 1993.* – Vol. 2. – P. 1736-1739.
- [6] Царегородцев, В.Г. Определение оптимального размера нейросети обратного распространения через сопоставление средних значений модулей весов синапсов / *Материалы 14 международной конференции по нейрокибернетике, Ростов-наДону, 2005.* – Т. 2. – С. 60-64.
- [7] Ларько, А.А. Оптимизация размера нейросети обратного распространения [Электронный ресурс]. – Режим доступа: <http://www.sciteclibrary.ru/rus/catalog/pages/8621.html> (20.12.2019).
- [8] Гридин, В.Н. Оптимизация размера нейросети обратного распространения // *Материалы Научно-практического семинара "Новые информационные технологии в автоматизированных системах"* – Москва, 2016. – С. 270-273.
- [9] El Haddad, J. Artificial neural network for on-site quantitative analysis of soils using laser induced breakdown spectroscopy / J. El Haddad, M. Villot-Kadri, A. Ismael, G. Gallou, K. Michel // *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2013. – P. 78-79.
- [10] Kuang, B. Comparison between artificial neural network and partial least squares for on-live visible and near infrared spectroscopy measurement of soil organic carbon, pH and clay content / B. Kuang, Y. Tekin, A.M. Mouazen // *Soil and Tillage Research – Cranfield University, Cranfield*, 2015.
- [11] Asmau, M.A. Quantitative analysis of petroleum hydrocarbon contaminated soils using spectroscopy, spectral unmixing and deep neural networks / A.M. Asmau, O. Duran, Y. Zweiri, M. Smith // *Proc. SPIE Image and Signal Processing for Remote Sensing XXIV*, 2018. – P. 10789.
- [12] Zhao, Y. A spectral analysis based heteroscedastic model for the estimation of value at risk // *The Journal of Risk Finance.* – 2018. – Vol. 19(3).
- [13] Ferreira, E.C. Artificial neural network for Cu quantitative determination in soil using a portable Laser Induced Breakdown Spectroscopy system / E.C. Ferreira, D. Milori, E.J. Ferreira, R.M. da Silva, L. Martin-Neto // *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2008.

Application of a perceptron to solve the problem of analyzing the fluorescence spectrum of a DBMBF2 sensor in a mixture of aromatic hydrocarbons

I.E. Katanov¹, A.V. Kupriyanov¹, Y.N. Kononevich², D.S. Ionov³

¹Samara National Research University, Moskovskoye Shosse 34, Samara, Russia, 443086

¹Institute of Organoelement compounds. A. N. Nesmeyanov of the Russian Academy of Sciences, Vavilova str. 28, Moscow, Russia, 119991

¹Photochemistry center of the RAS, NRC "Crystallography and Photonics" of the RAS, Novatorov str. 7A/1, Moscow, Russia, 119421

Abstract. The article deals with the problem of choosing the neural network architecture in the problem of analyzing signal data obtained by shooting spectra from fluorescent sensors, which are based on the formation of exciplexes between the boron Dibenzoyl methanate fluorophore (DBMBF2) and aromatic compounds. Attention is paid to the problem of selecting the structural features and parameters of the network in the process of training and testing on available data.