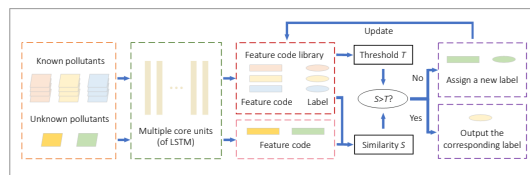


增量学习驱动的未知新污染物 三维荧光光谱识别方法

胡映天^{1*}, 方连杰¹, 郝 麦¹, 董晓文¹, 赵冬冬²

¹浙江工业大学信息工程学院, 浙江 杭州 310012;

²浙江工业大学计算机科学与技术学院, 浙江 杭州 310012



摘要: 针对未知新污染物监测挑战, 提出了一种基于三维荧光光谱的增量学习驱动的动态特征码库构建及未知新污染物识别方法。该方法将光谱数据按激发波长的顺序重构为时序信号, 利用长短期记忆网络提取具有鉴别性的特征表示, 并引入增量学习机制构建动态特征码库, 实现未知新污染物的自动识别与特征码入库。在河水污染模拟实验中, 本方法对单一污染物的识别准确率达到 93.3%, 对混合污染物中所有组分均正确识别的比例达 70.8%, 性能优于主成分分析、平行因子分析、残差神经网络及增量学习基准方法 iCaRL, 表现出良好的扩展性与适应能力。

关键词: 特征码库; 增量学习; 三维荧光光谱; 未知新污染物识别

The English title and abstract appear at the end of the paper.

DOI: 10.12086/oee.2026.250284 | CSTR: 32245.14.oee.2026.250284 | 中图分类号: O433.4; TP391 | 文献标识码: A

胡映天, 方连杰, 郝麦, 等. 增量学习驱动的未知新污染物三维荧光光谱识别方法 [J]. 光电工程, 2026, 53(4): 250284

Hu Y T, Fang L J, Hao M, et al. Incremental learning-driven method for identification of unknown new pollutants based on three-dimensional fluorescence spectroscopy[J]. *Opto-Electron Eng*, 2026, 53(4): 250284

1 引言

水体污染物识别是环境监测的重要环节之一, 有助于环境治理和环境保护。目前常用的水体污染物识别方法有高灵敏度传感器^[1]、色谱分析^[2]、吸收光谱^[3]、拉曼光谱法^[4]、荧光光谱法^[5]等。其中, 三维荧光光谱法作为一种新兴的快速检测技术, 由于操作简单、灵敏度高、样品制备容易、无需额外的试剂等优点, 在污染物识别方面快速发展。例如, 李雷等人^[6]采用三线性分解算法结合荧光光谱对多组分共存的天麻粉进行了理论分析。纪昌等人^[7]详细介绍了荧光光谱与表面增强拉曼散射联用原理, 为复杂样品的多维度分析提供了新的思路。

目前, 利用三维荧光光谱数据进行污染物识别的主

要方法有主成分分析^[8](principal component analysis, PCA)、平行因子分析^[9](parallel factor analysis, PARAFAC) 和神经网络^[10]训练。然而这些方法都是通过建立依赖于高质量标注数据的识别模型来识别污染物。近年来, 随着工业化的发展和化妆品的广泛使用, 水环境中的新污染物^[11]种类和数量急剧增加, 这些新出现的污染物往往无历史数据或标准品, 难以生成监督学习所需要的标签, 从而使得预测结果不令人满意。

增量学习^[12]旨在模仿人类的学习方式, 使模型能够从连续不断的数据流中持续学习新知识, 同时保留对以往学到的旧知识的记忆。该思想被广泛应用于自动驾驶、自然语言处理、机器人等领域。例如, Hu 等人^[13]提出了一种基于拓扑数据分析的联邦增量学习算法增强了全

收稿日期: 2025-09-22; 修回日期: 2026-01-09; 录用日期: 2026-01-16; 网络出版日期: 2026-04-25

基金项目: 国家自然科学基金 (62571492); 浙江省自然科学基金 (LMS25F010004)

*通信作者: 胡映天, huyt@zjut.edu.cn

版权所有©2026 中国科学院光电技术研究所

局模型的识别性能并且在公开数据集上表现优秀。Li 等人^[14]通过自监督对比学习结合增量学习实现了非密码身份验证。在荧光光谱领域, 增量学习在水污染物识别中的应用还有待探索。根据增量学习理论, 水体污染物识别模型可以在持续不断的识别水体污染物过程中持续学习新污染物的识别能力, 同时保留对以往已经训练过的旧污染物的识别能力。

本文提出了一种基于增量学习的借由长短期记忆网络^[15](long short-term memory, LSTM) 提取特征的三维荧光光谱识别方法。长短期记忆网络将三维荧光光谱数据按激发波长的顺序重塑为一个类时间序列, 在每一个时间步 (即激发波长), 输入数据是对应激发波长下的发射光谱, LSTM 按顺序阅读每一个激发波长下的完整发射光谱, 使其能学习到一个能够高度概括整个光谱信息的特征码。此外, 借由增量学习的思想, LSTM 会设置一个特征码库和一个阈值, 若和特征码库中的特征码的相似度都低于阈值, 则认为是新的污染物, LSTM 会将该特征码存入特征码库中并赋予新的标签, 从而使得该模型能持续学习新的污染物特征码并保留对以往学到的污染物的识别能力。最后, 通过一系列河流模拟污染实验验

证该方法的有效性。

2 相关工作

2.1 光谱数据采集和预处理

本文采用了一套自行搭建的荧光光谱测量系统, 该系统包含图 1 所示的多个关键组件: 一台 150 瓦氙灯 (型号 XBO 150 W/4, 欧司朗公司), 作为覆盖 220~1000 nm 波长范围的稳定光源; 一台单色仪 (型号 Omni-k2005i, 中国卓立汉光仪器有限公司), 配备每毫米 1200 条刻线的光栅 (闪耀波长 300 nm), 用于波长选择; 一个样品池; 以及一台光谱仪 (型号 MAYA2000PRO, 美国海洋光学公司), 用于信号检测。该系统的工作流程如下: 氙灯提供宽带照明; 配备双光学光栅的单色仪将白光色散为特定的激发波长; 样品池用于放置样品, 同时反射镜和准直透镜优化光的传输; 光谱仪利用色散光栅和电荷耦合器件 (CCD) 将特定波长的光转换为电信号; 最后由计算机记录所采集的光谱。

在数据预处理阶段, 由于设备采集的原始三维荧光

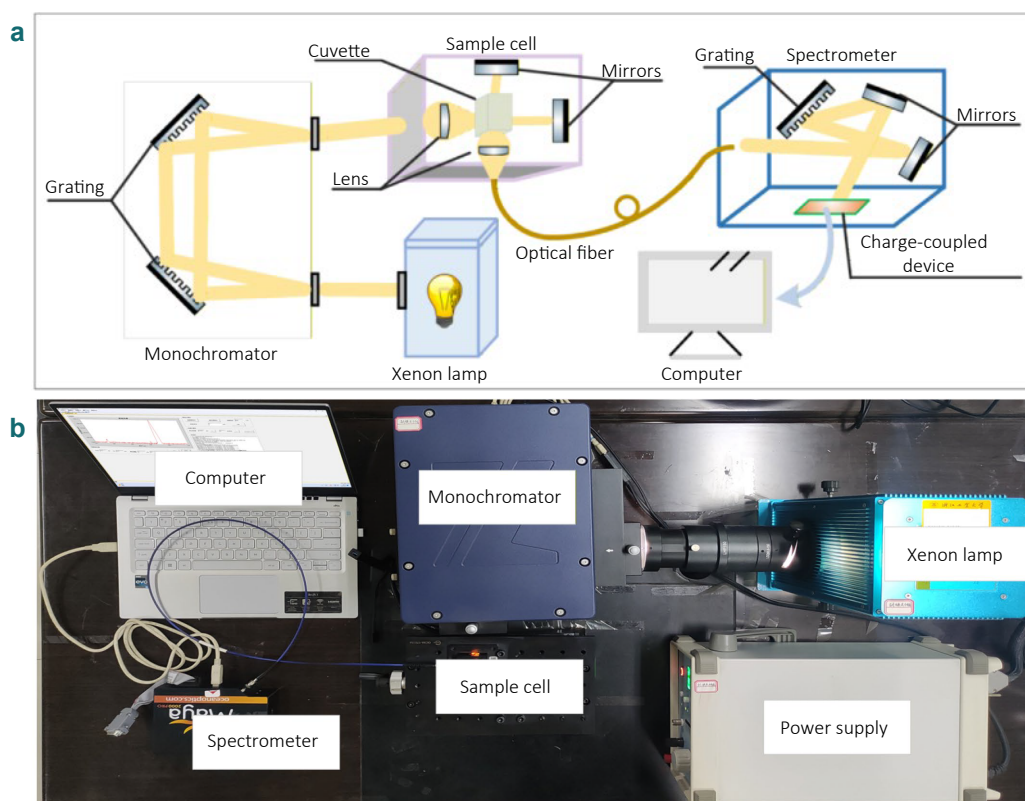


图 1 自建三维荧光光谱采集设备。(a) 光学原理图; (b) 实物图

Fig. 1 Self-built three-dimensional fluorescence spectroscopy acquisition equipment. (a) Optical schematic diagram; (b) Physical image

光谱数据发射波长范围为 197.20~1118.33 nm, 间隔约为 0.62 nm, 不符合本研究预设的波长范围与分辨率要求, 因此对原始光谱进行了线性插值处理。处理后, 发射波长与激发波长的范围统一调整为 220~600 nm, 间隔为 5 nm, 以满足后续模型输入与分析方法的需要。此外, 本文还对发射谱进行平滑和拉平暗噪声^[16]处理, 对三维荧光光谱进行去散射处理^[17], 去散射处理采用的是 Delaunay 三角剖分法消除散射峰对光谱的影响。所有步骤都是在 MATLAB2022b 上进行的。

2.2 污染物特征码提取

为了能够捕捉三维荧光光谱在激发波长方向上的复杂依赖关系, 自动提取出强大的深层特征^[18], 本文采用长短期记忆网络来进行污染物的特征码提取。首先, 为了使网络能够系统性地、连贯地以及前后关联地理解三维荧光光谱数据, 避免孤立地看待每个点的荧光强度, 我们将光谱数据重塑为一种类时间序列结构。在该结构中, 发射光谱随激发波长的递增而连续变化, 形成一种具有内在顺序和上下文关系的动态序列, 其变化趋势中隐含着物质种类、浓度等深层次的化学信息, 具体如式 (1) 所示。

$$EEM = \begin{bmatrix} I_{11} & \cdots & I_{1m} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ I_{n1} & \cdots & I_{nm} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} I_{EX1}(\lambda_{EM}) \\ \vdots \\ I_{EXN}(\lambda_{EM}) \end{bmatrix}, \quad (1)$$

式中: EEM 表示三维荧光光谱矩阵; I_{nm} 表示在第 n 个

激发波长、第 m 个发射波长下的荧光强度; I_{EXN} 表示第 n 个激发波长下的发射光谱; λ_{EM} 表示发射波长。

其次, 将发射光谱依照激发波长顺序依次输入到 LSTM 网络中, LSTM 网络的核心单元可通过门控单元动态调控三维荧光光谱在激发波长方向上复杂依赖关系的数学表征 C_t 的更新过程, 如图 2 所示。

其中遗忘门 f_t 负责筛选并滤除上一时间步的数学表征 C_{t-1} 中不重要的信息; 输入门 i_t 用于评估新输入的发射光谱的重要程度; 候选数学表征 c_t 会基于当前时间步输入的发射光谱提出一个对数学表征 C_t 的可能更新方案, 如式 (2) 所示; 输出门 o_t 的核心作用是控制信息的最终输出, 它可以决定当前的数学表征中哪些部分可以作为当前时间步的最终输出。数学表征 C_t 的更新如式 (3) 所示, 当前时间步的最终输出如式 (4) 所示。

$$c_t = \tanh(W_c \cdot [h_{t-1}; I_{EXt}(\lambda_{EM})] + b_c), \quad (2)$$

$$C_t = f_t \odot C_{t-1} + i_t \odot c_t, \quad (3)$$

$$h_t = o_t \odot \tanh(C_t), \quad (4)$$

式中: W_c 表示权重矩阵; b_c 表示偏置向量; h_{t-1} 和 h_t 表示上一时间步和当前时间步的最终输出; $\odot$ 表示逐元素点乘。

最后, 由于 h_t 集成了截止时间步 t 输入网络的所有发射光谱信息, 凝练了发射光谱序列的上下文信息, 捕获了其间的依赖关系, 因此, 可以取最后一个时间步的最终输出作为整个光谱的特征表示, 即特征码。

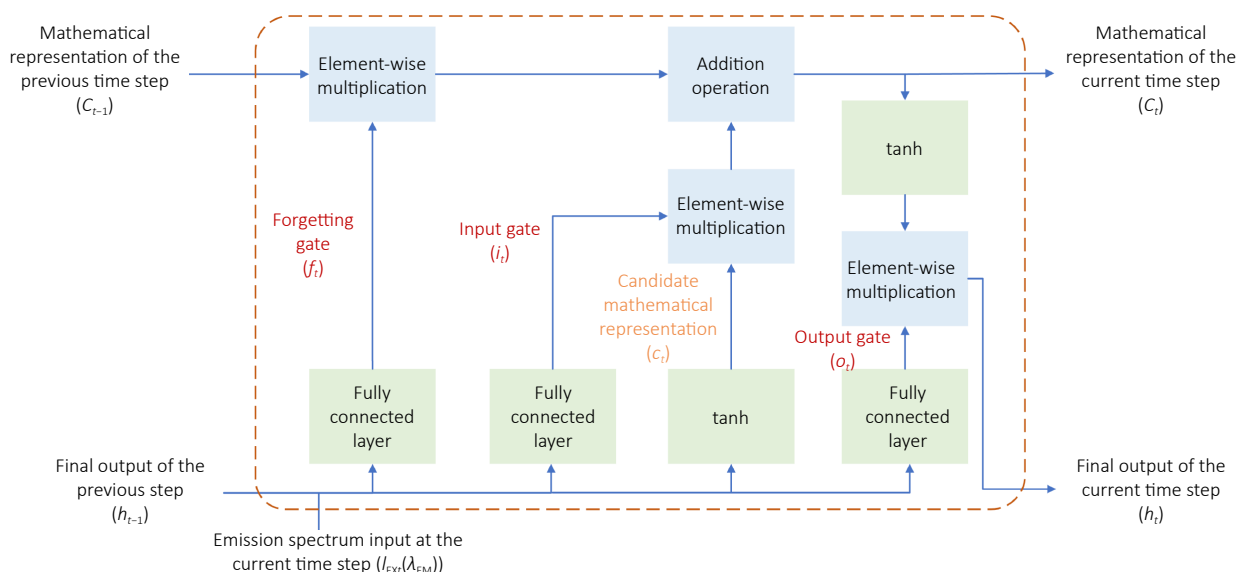


图 2 长短期记忆网络核心单元

Fig. 2 Core unit of LSTM

2.3 基于增量学习的未知新污染物识别

为了使模型在遇到新的污染物时能学习新的污染物信息并将其运用到后续污染物识别任务中, 引入增量学习思想, 具体框架图如图 3 所示。首先, 提取已知污染物样本的特征码, 以获取能够代表其本质属性的关键信息, 为后续识别提供数据基础。其次, 根据提取的特征码建立一个特征码库, 将所有已知污染物的特征信息结构化存储, 形成识别的参考标准。然后, 通过已知污染物的特征码计算相似度阈值, 用于判断待测样本与参考标准的匹配程度, 确保识别结果的准确性与可靠性。最后, 对待测样本提取特征码, 并与特征码库中的参考标准进行相似度对比, 依据设定的阈值判断其所属类别, 从而实现污染物的自动识别。

在识别流程的初始阶段, 特征提取是实现精准识别的前提与基础。通过上一节所述方法, 对已知污染物样本的光谱数据进行处理, 提取出能够表征其关键特性的特征码, 为后续识别提供有效的判别依据。

为支持后续的污染物识别任务, 需构建一个系统化、可检索的特征码库。该库以“每类污染物的代表性特征”为基本条目, 因此, 在构建过程中, 我们针对每类已知污染物, 从其不同浓度的多个样本中提取特征码, 并选取高、中、低浓度下的三个代表性特征码, 共同作为该类污染物的标准特征码, 如式 (5) 所示。随后, 将各类污染物的标准特征码及其对应的类别标签 (污染物名称) 共同录入数据库, 最终形成结构化的特征码库。

$$h_p = \{h_{p\text{high}}, h_{p\text{mid}}, h_{p\text{low}}\}, \quad (5)$$

式中: h_p 表示第 p 类污染物的标准特征码; $h_{p\text{high}}$, $h_{p\text{mid}}$, $h_{p\text{low}}$ 分别表示第 p 类污染物的高、中、低浓度下的三个代表性特征码。

为实现准确的分类决策, 需设定一个合理的相似度阈值, 用于判断待测样本的特征码与标准特征码是否具有足够的一致性, 从而确定其类别归属。为此, 本文采用基于相似度分布的阈值确定方法。具体而言, 针对每个已知污染物样本, 分别计算其特征码与特征码库中该类污染物标准特征码之间的余弦相似度, 以及与所有异类污染物标准特征码之间的余弦相似度。通过统计分析, 获取同类相似度中的最小值 (代表最差匹配情况) 和异类相似度中的最大值 (代表最强干扰情况)。在此基础上, 将二者之间的中间值作为最终的分类决策阈值 T , 以兼顾识别的灵敏性与鲁棒性, 如式 (6) 所示。

$$T_p = \frac{1}{2} \cdot \min_{\forall i} [S(h_{p\text{high}}, h_{pi}), S(h_{p\text{mid}}, h_{pi}), S(h_{p\text{low}}, h_{pi})] + \frac{1}{2} \cdot \max_{\forall q \neq p, \forall i} [S(h_{q\text{high}}, h_{pi}), S(h_{q\text{mid}}, h_{pi}), S(h_{q\text{low}}, h_{pi})], \quad (6)$$

式中: i 表示第 i 个样本; q 表示不同于第 p 类的任意污染物; T_p 表示第 p 类污染物的分类决策阈值; S 表示余弦相似度函数。

对于待测样本的识别, 首先利用已训练并保存的 LSTM 模型直接提取其特征码; 随后, 将该特征码与特征码库中各类污染物的标准特征码逐一进行相似度计算。若该样本特征码与某一已知类别三个标准特征码之间的最高相似度 S 超过预设阈值 T , 则判定其包含该类别污染物; 若与所有已知类别标准特征码的相似度均低于阈值, 则认为其不包含任何已知类别污染物, 判定为一种新污染物。当待测样本被判定为新污染物时, 触发特征码库的动态更新机制: 其特征码被自动纳入特征码库, 并分配一个唯一的新增标签, 形式为“新污染物 X ”, $X = \{1, 2, \dots, N\}$ 。若该污染物的化学组成在后续得以确认, 其对应标签可在特征码库中更新为对应化学名称。随着识别任务的推进, 特征码库在检测到新污染物时逐步扩展,

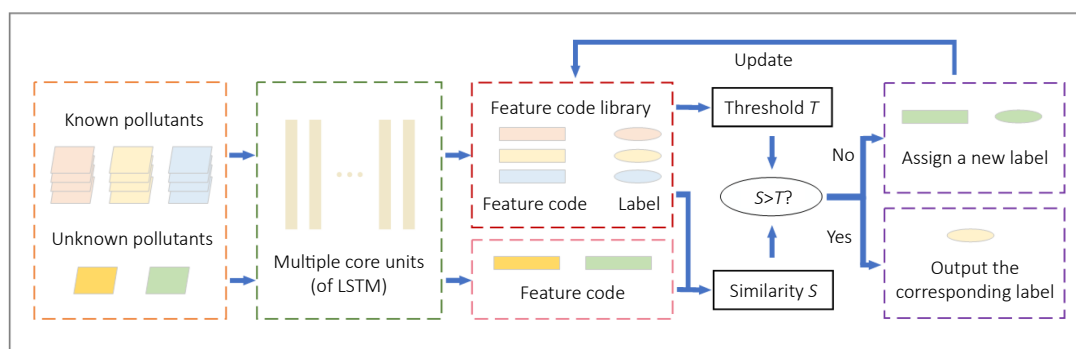


图 3 基于增量学习的污染物识别

Fig. 3 Pollutants identification based on incremental learning

实现对未知新污染物的持续积累与覆盖。

3 实验结果

3.1 特征码的提取

本文采用了 5 种典型污染物：荧光素 (fluorescein)、苯胺 (aniline)、水杨酸 (salicylic acid)、环丙沙星 (ciprofloxacin) 和诺氟沙星 (norfloxacin)。实验中使用的五种物质都是光谱纯的。五种物质的三维荧光光谱图如图 4 所示，可以观察到，不同物质的发射光谱随激发波长增加所呈现的变化趋势存在显著差异；此外，同种物质相邻激发波长下的发射光谱高度相关，变化平滑连续，这意味着序列内部的依赖关系具有很强的局部性和严格的顺序性。

本文选取苯胺、水杨酸和环丙沙星作为已知污染物样本，提取其对应的标准特征码，并以此构建初始特征码库。在模型训练阶段，将上述 3 种物质的三维荧光光谱数据输入 LSTM 网络，相关参数设置为隐藏层维度 128，嵌入层维度 40，最大训练轮次 30，批大小为 4。训练过程中，网络通过输入门从 128 个维度对按激发波长顺序依次输入的 77×1 发射光谱进行特征提取，并将提取结果与上一时间步的输出进行拼接，从而在特征表达中逐步融入沿波长方向的光谱变化信息。输入门对应的权重矩阵如图 5 所示。最终，网络将整个序列信息浓缩为一个具有判别力的特征码，实现对不同污染物的有

效区分。由于特征码为高维抽象特征，为直观展示其分布特性，采用 t-SNE 方法将三类污染物的特征码降维至三维空间进行可视化，结果如图 6 所示。图中每一点代表一个样本的特征码，可见同类污染物的特征码在空间中显著聚集，不同类之间则呈现明显分离趋势，表明所提取的特征码具有良好的类内一致性与类间区分度，验证了其在污染物识别中的有效表征能力。

3.2 模型增量学习能力检测

为验证该方法是否能持续不断学习未训练的污染物样本知识，选择苯胺、水杨酸和环丙沙星作为已知污染物，选择荧光素作为未知新污染物。这四种物质的水溶液的制备都使用 Milli-Q 净水系统 (Millipore, Billerica, MA, USA) 将其溶解在去离子水中。表 1 列出了四种污染物的浓度范围和样本数量。此外，为模拟真实环境中的变异性，还配置了不同 pH 条件下的三种已知污染物样本，具体参数见表 2。在模型验证阶段，我们将本文方法与四种现有方法进行对比，包括主成分分析法 (PCA)、平行因子分析法 (PARAFAC)、残差神经网络 (ResNet) 以及增量学习基准方法 iCaRL，从而系统评估本方法在增量学习任务中的性能表现。其中，PCA 方法通过自主选择能够解释原始数据 95% 方差的主成分个数来提取特征，然后将特征输入支持向量机 (support vector machine, SVM) 进行分类。PARAFAC 方法通过张量分

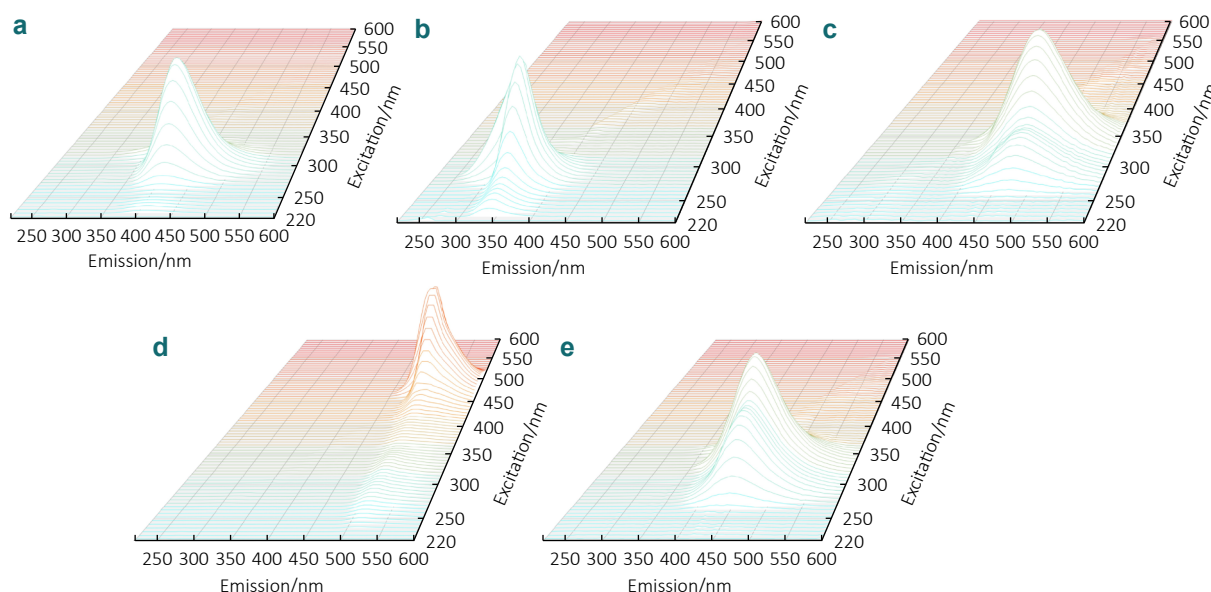
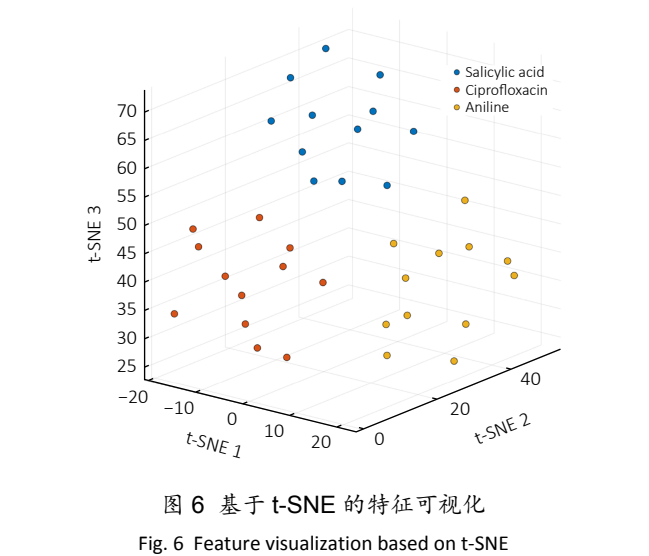
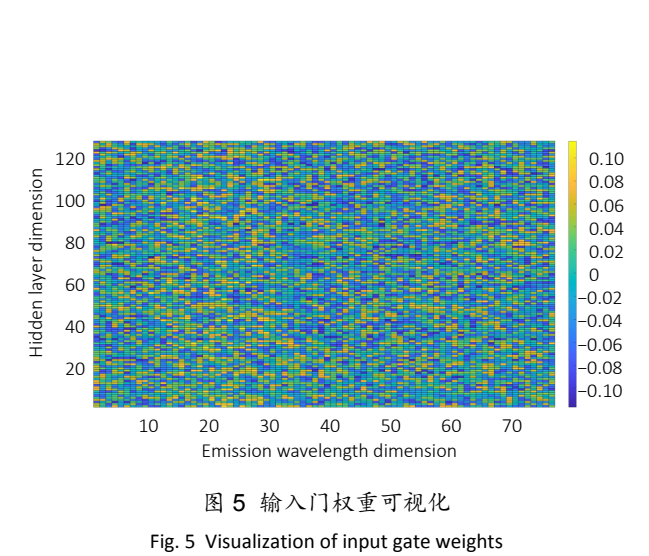


图 4 五种污染物的三维荧光光谱图。(a) 水杨酸；(b) 苯胺；(c) 环丙沙星；(d) 荧光素；(e) 诺氟沙星

Fig. 4 Three-dimensional fluorescence spectra of five pollutants. (a) Salicylic acid; (b) Aniline; (c) Ciprofloxacin; (d) Fluorescein; (e) Norfloxacin



解将原始数据分解成因子矩阵，然后利用支持向量机进行分类。ResNet 方法通过多个残差块从原始数据中提取多尺度层次特征，然后通过全局平均池化和全连接层将特征映射为类概率，实现分类。iCaRL 方法采用最近质心均值分类法，通过计算待测样本到各类别质心的距离，并将其归入距离最近的类别以实现分类。为进行公平比较，所有对比方法均采用统一的增量学习设置。具体而言，为每种方法引入一个距离阈值：当待测样本与所有已知类别的最小距离仍大于该阈值时，即判定该样本为

未知新污染物；此类样本将被保存，并用于更新后续的判定条件。

测试之前，选取三种已知污染物的样本数据，采用三折交叉验证对本文提出的方法进行评估。在数据划分上，首先将每类污染物按浓度范围划分为高、中、低三个层级，每个层级各包含六个样本。在此基础上，每次交叉验证从各层级中随机抽取两个样本组成测试集，并确保三轮验证的测试样本互不重复，以此避免训练集与测试集之间的数据分布偏差。测试结果如表 3 所示，模

表 1 四种污染物的浓度范围和样本数量

Table 1 The concentration ranges and sample sizes of the four pollutants

Pollutants	Concentration range/(mg/L)	Sample size
Salicylic acid	0.1-10	18
Aniline	0.1-10	18
Ciprofloxacin	0.1-10	18
Fluorescein	0.1-10	12

表 2 三种污染物的 pH 范围和样本数量

Table 2 The pH ranges and sample sizes of the three pollutants

Pollutants and concentration	pH ranges	pH intervals	Sample size
1 mg/L salicylic acid	2.4-4.4	0.5	5
5 mg/L aniline	4.8-6.8	0.5	5
0.3 mg/L ciprofloxacin	7.1-10.3	0.8	5

表 3 三折交叉验证结果

Table 3 Results of three-fold cross-validation

Score for each fold			Mean ± standard deviation
1.000	1.000	0.944	0.981±0.026

型取得了很高的平均准确率, 且标准差保持在较低水平。这既证明了模型本身的稳定性, 也预示着其在大多数未知数据上的表现将与其平均性能高度接近, 出现意外性能滑坡的风险很小。

将三种已知污染物的样本按 2:1 的比例划分为训练集和测试集, 并设计了三轮测试, 如表 4 所示: 第一轮测试集由三种已知污染物的原测试集与表 1 中任选的六个荧光素样本组成; 第二轮测试集沿用相同的已知污染物测试集, 并加入表 1 中全部荧光素样本; 第三轮测试集则由表 2 所列样本与表 1 中的全部荧光素样本共同构成。三轮测试结果如图 7 所示。从图 7(a) 可以看出, 在已知污染物识别方面, 本文方法表现最为稳定, 即使在不同 pH 样本的干扰下仍能保持较高的准确率。从图 7(b) 可以看出, 在未知新污染物识别方面, 所有方法在首次接触荧光素 (第一轮测试) 时均无法有效识别; 至第三轮测试时, PCA 与 PARAFAC 方法对未知新污染物的识别能力仍然较弱, iCaRL 与 ResNet 虽具备一定识别能力, 但性能仍不够理想, 而本文方法对未知新污染物的识别准确率达 91.7%, 显著优于其他方法, 展现出更强的知识吸纳与适应能力。从图 7(c) 可以看出, 在整体性能方面, PCA 与 PARAFAC 方法表现较差, 说明传统特征提取方法不适用于本任务; ResNet 作为一类强大的深度学习模型, 在增量学习场景中表现一般; iCaRL 作为经典的增量学习方法, 在缺乏历史数据的情况下仍具备一定的有效性; 而本文所提方法在缓解灾难性遗忘

与适应新类别知识两方面均优于其他方法。这一结果充分证明了该方法具备持续学习与增量识别能力, 能够在实际监测过程中逐步扩展可识别污染物的种类, 从而有效应对未知或新涌现污染物带来的挑战。

3.3 在实际水样中的应用

为验证本文方法在实际水环境中的适用性, 以河水为基质, 通过添加特定污染物模拟污染事件。实验选取苯胺、水杨酸和环丙沙星作为已知污染物, 荧光素和诺氟沙星作为未知新污染物。在干净河水中分别加入上述五种污染物, 其浓度与样本数量如表 5 所示。

为进一步模拟实际河水中可能存在的复合污染情形, 还配置了混合污染物样本, 具体组成见表 6。在模型验证阶段, 将表 1 中苯胺、水杨酸和环丙沙星在清水中的样本作为训练集, 表 5 中五种污染物在河水中的样本作为测试集进行两轮测试, 再将表 6 中的混合样本作为第三轮测试集, 并在统一增量设置下与其它对比方法进行性能比较。三轮测试设置具体如表 7 所示。

每轮测试的结果如表 8 所示。从第一轮测试的整体准确率来看, 所有方法的表现较为接近。这主要是由于首次接触新污染物, 尚未学习到其有效特征, 因此无法实现对未知新污染物的准确识别。而在已知污染物的识别方面, 基于主成分提取的 PCA 方法与基于张量分解的 PARAFAC 方法受河水背景荧光干扰显著, 识别准确率相对较低。ResNet 方法凭借其强大的神经网络架构与

表 4 三轮测试流程
Table 4 Three-round testing procedure

Procedure	Training dataset	First-round test	Second-round test	Third-round test
Pollutant species	Salicylic acid, aniline, ciprofloxacin	Salicylic acid, aniline, ciprofloxacin, fluorescein (newly added)	Salicylic acid, aniline, ciprofloxacin, fluorescein (newly added)	Salicylic acid, ciprofloxacin, and aniline at different pH levels, fluorescein (newly added)
Purpose	Training on old classes	New class learning	Performance testing on new classes	Robustness verification

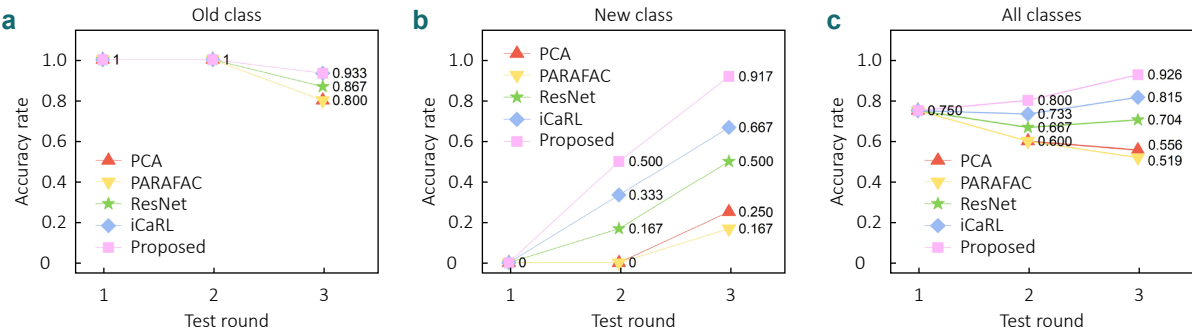


图 7 三轮测试结果。(a) 旧类污染物; (b) 新类污染物; (c) 全部污染物
Fig. 7 The results of three rounds of tests. (a) Old-class pollutants; (b) New-class pollutants; (c) All-class pollutants

表 5 五种污染物的浓度范围和样本数量
Table 5 The concentration ranges and sample sizes of the five pollutants

Pollutants	Concentrations/(mg/L)					
	Sample 1	Sample 2	Sample 3	Sample 4	Sample 5	Sample 6
Salicylic acid	1.4	1.8	2.4	2.8	3.4	3.8
Aniline	0.5	1	1.2	1.5	1.6	2
Ciprofloxacin	0.01	0.02	0.03	0.04	0.05	0.06
Fluorescein	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6
Norfloxacin	0.1	1	2	3	4	5

表 6 混合污染物样本浓度
Table 6 Concentrations of mixed pollutant samples

Pollutants	Concentrations/(mg/L)							
	Sample 1	Sample 2	Sample 3	Sample 4	Sample 5	Sample 6	Sample 7	Sample 8
Salicylic acid/ciprofloxacin	1/2	1/3	1/4	1/5	3/1	3/2	3/3	3/4
Salicylic acid/norfloxacin	1/5	2/1.5	3/1.5	4/1.5	4/2.5	4/3.5	4/4.5	5/1
Ciprofloxacin/norfloxacin	1/2	1/3	1/4	1/5	2/2	3/2	4/2	5/2

表 7 模拟污染三轮测试安排
Table 7 Three-round simulated pollution testing schedule

Procedure	Training dataset	First test	Second test	Third test
Pollutant species	Salicylic acid, aniline, ciprofloxacin	Salicylic acid, aniline, ciprofloxacin, fluorescein (newly added), norfloxacin (newly added)	Salicylic acid, aniline, ciprofloxacin, fluorescein (newly added), norfloxacin (newly added)	Pairwise mixtures of Salicylic acid, ciprofloxacin and norfloxacin
Purpose	Training on old classes	New class learning	Performance testing on new classes	Complex environment adaptability test

表 8 河流污染模拟实验的结果比较
Table 8 Comparison of the results of the simulation river pollution experiment

Method	Accuracy rates per round/%				
	First round	Second round	Third round		
			All correct	Partially correct	All wrong
PCA	50.0	66.7	16.7	62.5	20.8
PARAFAC	50.0	60.0	16.7	66.6	16.7
ResNet	53.3	76.7	41.7	50.0	8.3
iCaRL	53.3	83.3	54.2	45.8	0
Proposed	56.7	93.3	70.8	29.2	0

跳跃连接机制，在特征提取与梯度传播方面具备优势，然而所学习到的特征表示仍受到复杂水体背景的干扰，限制了其性能的进一步提升。iCaRL 方法采用基于特征的最近质心均值分类策略，但其特征提取仍依赖于卷积网络，对背景干扰的抑制能力有限，导致准确率难以显著提高。相比之下，本研究提出的方法将激发波长从 220 nm 至 600 nm 的递增过程建模为时间步序列，使模

型能够有效捕捉沿激发波长方向的复杂依赖关系，从而提取判别力更强的特征表示。通过引入门控机制，模型能够自适应地聚焦于相邻激发波长及荧光峰区域间的关键特征关联，显著增强了对河水背景荧光干扰的鲁棒性，因此在识别准确率上优于其他对比方法。

从第二轮测试的整体准确率来看，本文方法展现出良好的增量学习与适应能力，整体准确率达 93.3%，显

著优于其他对比方法。进一步分析两轮测试中各样本的识别情况发现, 除环丙沙星外, 其余测试样本的信噪比均高于 5。在环丙沙星样本中, 除浓度为 0.01 mg/L 的样本信噪比低于 2 外, 其余五个样本的信噪比均介于 2 至 5 之间。值得注意的是, 两轮测试中唯一被持续识别错误的样本正是该 0.01 mg/L 环丙沙星样本。上述结果表明, 该方法对于信噪比低于 2 的样本识别效果仍不理想, 但对于信噪比高于 2 的样本, 其识别准确率令人满意。

从第三轮测试的准确率来看, 在混合污染物识别任务中, 本文方法在“两种污染物均被正确识别”的样本占比达到 70.8%, 虽然该性能低于单污染物识别任务, 但仍优于其他对比方法。进一步分析发现, 环丙沙星与诺氟沙星的荧光峰位置较为接近, 二者混合后容易在特征层面产生混淆, 导致模型倾向于将其判定为单一物质, 从而在一定程度上限制了混合样本的整体识别性能。尽管存在此类挑战, 本文方法在关键指标上的相对优势, 仍显示出其在混合污染物识别领域具有良好的发展潜力与应用前景。

综合分析三轮测试结果可以得出, PCA 与 PARAFAC 方法在多轮污染物识别场景中虽具备一定的识别能力, 但错误率较高, 难以满足增量学习任务的要求。ResNet 方法的整体准确率显著优于传统方法, 在多轮场景中展现出一定的适应性, 但其稳定性与准确性仍落后于更先进的增量学习方法。iCaRL 方法在多轮污染场景中表现出良好的稳定性与准确性, 充分体现了其作为基准对比方法的参考价值。相比之下, 本文提出的方法在多轮实验中均保持了最高的准确率与稳定性, 体现了其在复杂污染场景下优异的适应能力与可靠性。

4 结 论

在本研究中, 为解决新污染物识别中普遍存在的缺乏历史参考数据, 以及模型在面对未训练污染物时需重复训练的挑战, 提出了一种基于长短期记忆网络 (LSTM) 与增量学习的三维荧光光谱特征码库构建及污染物识别方法。该方法通过挖掘相邻激发波长下发射光谱的短期依赖关系, 以及远距离激发波长间发射光谱的长期依赖关系, 提取出具有强抗干扰能力的污染物三维荧光光谱特征码。进一步, 基于增量学习框架构建动态可扩展的特征码库, 使水体污染物识别模型能够在持续感知与识别过程中, 不断学习新污染物的特征, 同时保

持对已训练旧污染物的识别性能, 从而有效支持模型在开放环境中的持续进化与适应性增强。

为验证本文方法的可行性与有效性, 本研究设计了河流模拟污染实验, 并与多种现有方法进行了系统对比, 包括基于三维荧光光谱的常见识别方法 (PCA、PARAFAC、神经网络方法) 以及增量学习基准方法 (iCaRL)。实验结果表明, 本文方法在缓解灾难性遗忘和适应新类别知识两方面均优于其他方法, 在单污染物识别任务中整体准确率达 93.3%, 在混合污染物识别任务中所有组分皆识别正确的占比达 70.8%。这些优势得益于所提出的特征码机制, 该机制使模型无需重新训练, 仅通过提取并存储新污染物的特征码即可实现有效识别。因此, 本文方法展现出更强的扩展性与适应性, 为实际水环境中新污染物的检测提供了可行的技术路径。

作者贡献

胡映天: 研究资料的收集、分析, 算法研究, 论文写作, 论文修改; 方连杰: 研究资料的收集、分析, 算法研究, 论文写作, 论文修改; 郝麦: 研究资料的收集、分析; 董晓文: 研究资料的收集、分析; 赵冬冬: 指导论文选题。

利益冲突

所有作者声明无利益冲突

参考文献

1. 尚兴路, 赵大森. 水体有机污染物的高灵敏检测方法及其环境监测应用[J]. 实验室检测, 2025, 3(11): 148–151.
2. Zhu F, Yao Z J, Huo Z L, et al. Determination of four antipyretic and analgesic drugs in water by solid-phase extraction coupled ultra-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. *Chin J Chromatogr*, 2020, 38(12): 1465–1471.
朱峰, 姚志建, 霍宗利, 等. 固相萃取-超高效液相色谱-串联质谱法测定水体中 4 种解热镇痛类药物[J]. 色谱, 2020, 38(12): 1465–1471.
3. Zhao S, Liu Y X, Zhang H, et al. Study of optical solar mirrors based on metamaterials[J]. *Opto-Electron Eng*, 2024, 51(11): 240186.
赵颂, 刘昱轩, 张恒, 等. 基于超材料的光学太阳反射镜的研究[J]. 光电工程, 2024, 51(11): 240186.
4. Yuan Y T, Mi J J, Wang M, et al. The preparation and surface enhanced Raman Scattering spectroscopy of AuNRs@ZIF-8[J]. *Opto-Electron Eng*, 2023, 50(6): 230029.
袁阳涛, 米佳佳, 王曼, 等. AuNRs@ZIF-8 的制备及其表面增强拉曼散射光谱研究[J]. 光电工程, 2023, 50(6): 230029.
5. Wang X, Zhao N J, Yu Z M, et al. Detection method progress and development trend of organic pollutants in soil using laser-induced fluorescence spectroscopy[J]. *Spectrosc Spectral Anal*, 2018, 38(3): 857–863.
王翔, 赵南京, 俞志敏, 等. 土壤有机污染物激光诱导荧光光谱检测方法研究进展[J]. 光谱学与光谱分析, 2018, 38(3): 857–863.
6. Li L, Wu Q Z, Wang T. Study on fluorescence spectra of multi-component coexisting *Gastrodia elata* powder using trilinear decomposition algorithm[J]. *Laser Technol*, 2025, 49(3): 363–367.

- 李雷, 吴庆州, 王涛. 三线性分解算法研究多组分的天麻粉荧光光谱[J]. *激光技术*, 2025, **49**(3): 363–367.
7. Ji C, Yue Y X. Principle and research progress of surface-enhanced Raman scattering (SERS) laser spectroscopy technology combination[J]. *Opto-Electron Eng*, 2025, **52**(9): 250225.
- 纪昌, 岳远霞. SERS 激光光谱技术联用原理与研究进展[J]. *光电工程*, 2025, **52**(9): 250225.
8. Shen L B, Tian L P, Tian D P, et al. Laser-induced breakdown spectroscopy combined with PCA-BP algorithm for phosphor detection and recognition[J]. *Laser Technol*, 2025, **49**(3): 469–474.
- 沈令斌, 田丽萍, 田东鹏, 等. 激光诱导击穿光谱结合 PCA-BP 算法的荧光粉检测与识别[J]. *激光技术*, 2025, **49**(3): 469–474.
9. Wang X Y, Jiang Z Z, Ji R D, et al. Detection and analysis of mixed organic pesticides based on three-dimensional fluorescence spectroscopy and PARAFAC[J]. *Spectrosc Spectral Anal*, 2024, **44**(11): 3082–3089.
- 王晓燕, 蒋喆臻, 季仁东, 等. 基于三维荧光光谱与平行因子的混合有机农药检测分析[J]. *光谱学与光谱分析*, 2024, **44**(11): 3082–3089.
10. Cui L, Zhan J G, He C T. LED fluorescence spectroscopy combined with convolutional neural network algorithm for predicting the mixed concentration of walnut oil and sunflower oil[J]. *J Light Scattering*, 2025, **37**(1): 129–135.
- 崔亮, 占军贵, 贺常涛. LED 荧光光谱结合卷积神经网络算法预测核桃油与葵花油的混合浓度[J]. *光散射学报*, 2025, **37**(1): 129–135.
11. Tan X M, Zhang Y W, Jiao Z Y, et al. Advances in molecular networking technology for discovering emerging contaminants and transformation products[J]. *Chin J Chromatogr*, 2025, **43**(1): 33–42.
- 谈晓梅, 张雨薇, 焦昭钰, 等. 基于分子网络技术识别新污染物及其转化产物的研究进展[J]. *色谱*, 2025, **43**(1): 33–42.
12. Sun J Y, Wang X C, Cai G Y, et al. Open set recognition based on meta class incremental learning[J]. *Comput Sci*, 2025, **52**(5): 187–198.
- 孙晋永, 王雪纯, 蔡国永, 等. 基于元增量学习的开放集识别方法[J]. *计算机科学*, 2025, **52**(5): 187–198.
13. Hu K, Gong S, Li L X, et al. Federated incremental learning algorithm based on topological data analysis[J]. *Pattern Recognit*, 2025, **158**: 111048.
14. Li D Z, Chen X W, Hong S H, et al. FSCIL-SEI: few-shot class-incremental learning approach for specific emitter identification[J]. *IEEE Trans Instrum Meas*, 2025, **74**: 2504914.
15. Lai X, Qian Z C, Yang X, et al. LSTM-WGAN-based model predictive control method of plunger-foam compound drainage system[J]. *J Electron Meas Instrum*, 2025, **39**(2): 11–20.
- 赖欣, 钱中程, 杨肖, 等. 基于 LSTM-WGAN 模型的柱塞-泡排复合排水系统预测控制方法[J]. *电子测量与仪器学报*, 2025, **39**(2): 11–20.
16. Zhang W L, Shi X D, Ye F X, et al. Improved iterative smoothing for correcting baseline in atomic emission spectra fitting algorithm[J]. *Laser Technol*, 2024, **48**(5): 671–676.
- 张文利, 石秀东, 叶反修, 等. 改进平滑迭代拟合原子发射光谱基线校正算法[J]. *激光技术*, 2024, **48**(5): 671–676.
17. Wu Z H, Huang B J, Li X Q, et al. A self-adapting method for removing scatterings in the excitation-emission matrix spectroscopy[J]. *Spectrosc Spectral Anal*, 2024, **44**(4): 969–976.
- 伍卓慧, 黄冰佳, 李学勤, 等. 一种自适应的三维荧光光谱去散射方法[J]. *光谱学与光谱分析*, 2024, **44**(4): 969–976.
18. Huang Y B, Li C, Dong W B, et al. Spiking neural network target detection method based on efficient deep feature extraction[J]. *Comput Sci Appl*, 2025, **15**(1): 187–198.
- 黄永斌, 李晨, 董文波, 等. 基于深层特征高效提取的脉冲神经网络目标检测方法[J]. *计算机科学与应用*, 2025, **15**(1): 187–198.

作者简介



【通信作者】胡映天 (1991-), 女, 吉林人, 2019 年于浙江大学获得博士学位, 现为浙江工业大学副教授, 硕士研究生导师。主要研究方向为光电传感、嵌入式、深度学习。

E-mail: huyt@zjut.edu.cn

Incremental learning-driven method for identification of unknown new pollutants based on three-dimensional fluorescence spectroscopy

Hu Yingtian^{1*}, Fang Lianjie¹, Hao Mai¹, Dong Xiaowen¹, Zhao Dongdong²

¹ School of Information Engineering, Zhejiang University of Technology, Hangzhou, Zhejiang 310012, China;

² School of Computer Science and Technology, Zhejiang University of Technology, Hangzhou, Zhejiang 310012, China

Abstract

Objective As various emerging new pollutants continue to emerge and multiply in the environment, their potential ecological toxicity, bioaccumulation, and environmental persistence have become increasingly prominent, posing severe, multidimensional, and complex threats to natural ecosystems and human health. Notably, emerging new pollutants typically lack historical reference data, making it difficult to generate the labels required for supervised learning. Given that conventional detection approaches rely heavily on large-scale labeled datasets for model training, such a dearth of prior data severely constrains their applicability. Consequently, traditional methods often exhibit unsatisfactory performance in the identification of unknown new pollutants.

Methods In response, an innovative method for constructing a dynamic feature code library by coupling three-dimensional fluorescence spectroscopy with long short-term memory (LSTM) networks and incremental learning was proposed, with the specific purpose of enabling accurate identification of uncharacterized new pollutants. This method first reconstructs three-dimensional fluorescence spectroscopy data into quasi-time series ordered by excitation wavelengths, thereby obtaining a dynamic sequence with intrinsic order and contextual correlations. A wealth of chemical information, including the species and concentration of target analytes, is concealed within this sequence. It then leverages LSTM networks to sequentially read the emission spectra corresponding to each excitation wavelength, enabling the capture of dependencies between different wavelengths. Finally, after iterating through all emission spectra, the final output of the last time step is taken as the feature representation. This output serves as the feature code for the fluorescence spectrum of the pollutant sample and can be used for identification. Through this process, discriminative feature codes that can highly represent the overall spectral information are extracted; these codes encapsulate the core characteristics of the spectra, laying a solid foundation for subsequent pollutant identification. Furthermore, an incremental learning mechanism is introduced. This mechanism constructs a dynamically expandable feature code library based on the previously derived feature codes, achieves automatic identification of unknown pollutants by leveraging the calculated similarity threshold, and further integrates the feature codes of these newly identified pollutants into the library to support subsequent detection tasks. This design ensures that while the model continuously learns the features of new pollutants, it still maintains robust recognition performance for existing contaminants, resolving the issue that traditional recognition methods are unable to identify pollutants not included in their training data.

Results and Discussions To verify whether this method possesses the capability of continuously learning knowledge from untrained pollutant samples, three rounds of tests were designed. To simulate the variability present in real-world environments, test samples under different pH conditions were incorporated. The test results demonstrated that this method achieved an identification accuracy of 93.3% for known pollutant categories and 91.7% for unknown new pollutant categories. These results indicate that the method exhibits excellent performance in both mitigating catastrophic forgetting and adapting to knowledge pertaining to new categories, fully validating its capacity for continuous learning and incremental identification. Furthermore, to evaluate the effectiveness of the proposed method, simulated pollution experiments were conducted by adding five typical contaminants to river water samples. The results demonstrate the proposed method achieved an identification accuracy of 93.3% for single pollutants, outperforming principal component analysis, parallel factor analysis, residual neural networks, and the incremental learning benchmark iCaRL. This is attributed to the fact that the proposed method can effectively capture the complex dependencies inherent in pollutant sample data along the excitation wavelength dimension, thereby extracting feature representations with stronger discriminative power and significantly enhancing the robustness against background fluorescence interference in river water matrices. In addition, the proposed method achieves an accuracy of 70.8% in the complete identification of all components in mixed pollutants. Although this performance is slightly lower than that in single-pollutant identification tasks, it still surpasses other comparative methods. The slight performance limitation stems from the fact that the fluorescence peaks of two specific pollutants are relatively close in position. When mixed, these two components tend to cause feature-level confusion, leading the

Foundation item: Project supported by National Natural Science Foundation of China (62571492), and Natural Science Foundation of Zhejiang Province (LMS25F010004)

*Correspondence: Hu Y T, E-mail: huyt@zjut.edu.cn

model to occasionally misclassify them as a single substance, which somewhat constrains the overall identification performance for mixed samples. Despite such challenges, the relative superiority of the proposed method across key metrics demonstrates its strong potential and promising application prospects in the field of mixed pollutant identification.

Conclusions In summary, by capturing the dependencies across different wavelengths of three-dimensional fluorescence spectroscopy data to extract feature codes and integrating an incremental learning mechanism, the proposed method provides a robust solution for the identification of unknown new pollutants. Not only can this method effectively identify known pollutants, but it also possesses the capability to learn from unknown new pollutants and transfer the acquired feature information to subsequent detection tasks, thus demonstrating favorable knowledge transfer and continuous learning characteristics. This demonstrates its excellent scalability and adaptive capability. With the continuous incorporation of additional contaminant feature codes, the method can gradually expand its recognition scope, thereby offering a reliable technical solution for the long-term monitoring and identification of emerging contaminants.

Keywords: feature code library; incremental learning; three-dimensional fluorescence spectroscopy; identification of unknown new pollutants

Hu Y T, Fang L J, Hao M, et al. Incremental learning-driven method for identification of unknown new pollutants based on three-dimensional fluorescence spectroscopy[J]. *Opto-Electron Eng*, 2026, 53(4): 250284; DOI: [10.12086/oe.2026.250284](https://doi.org/10.12086/oe.2026.250284)

