差分拉曼光谱对眼药水塑料瓶的分类研究

陈丽萍¹,唐宇璇¹,姜红¹,王圆圆¹,章欣²,段斌²,刘峰²

(1.中国人民公安大学 侦查学院,北京 100038; 2.南京简智仪器设备有限公司,南京 210049)

摘要:目的 建立一种便捷精准无损检验眼药水塑料瓶的方法。方法 使用便携式差分拉曼光谱仪检测 33 个塑料眼药水瓶,根据获得的各样品数据,包括差分拉曼光谱图的峰位、峰数等对样品进行成分分 析,并通过统计分析软件"统计产品与服务解决方案"(SPSS 26.0)对样品进行 K 均值聚类,利用轮廓 系数优选 K 值。对分类结果中样品数目较多的一类样品进行填料分析,利用皮尔逊相关系数验证分析结 果的准确性。结果 样品主要成分为聚乙烯和聚对苯二甲酸乙二醇酯,利用轮廓系数优选 K 值为 2,K 均值聚类算法对样品的分类结果与成分分析结果能够相互印证。以聚乙烯类样品为例,根据填料不同可 将其分为 7 组。皮尔逊相关系数计算结果能够证明上述分类分组结果可靠。结论 利用该方法能够准确 无损地检测眼药水塑料瓶,并对其进行分类研究。

关键词:差分拉曼;眼药水瓶; K均值聚类;相关性分析;轮廓系数 中图分类号:TB99 文献标识码:A 文章编号:1001-3563(2023)05-0196-07 DOI: 10.19554/j.cnki.1001-3563.2023.05.025

Classification of Plastic Bottles of Eye Drops by Differential Raman Spectroscopy

CHEN Li-ping¹, TANG Yu-xuan¹, JIANG Hong¹, WANG Yuan-yuan¹, ZHANG Xin², DUAN Bin², LIU Feng²

(1. Investigation Institute, People's Public Security University of China, Beijing 100038, China;
 2. Nanjing Jianzhi Instrument and Equipment Co., Ltd., Nanjing 210049, China)

ABSTRACT: The work aims to establish a rapid, accurate and nondestructive method for testing the plastic bottles of eye drops. Portable differential Raman spectrometer was used to test 33 plastic bottles of eye drops. Then, according to the sample data obtained such as peak position and peak number of the differential Raman spectrum, the composition of the samples was analyzed. At the same time, *K*-means clustering was carried out to the samples by statistical analysis software "Statistical Products and Services Solutions" (SPSS 26.0) and the most optimal *K*-means was selected based on Silhouette Coefficient. The samples with a large number in the classification results were analyzed, and the accuracy of the analysis results was verified by Pearson correlation coefficient. The samples were mainly composed of polyethylene and polyethylene terephthalate. The most optimal *K*-means selected based on Silhouette Coefficient was 2 and the *K*-means clustering algorithm verified the classification result and composition analysis result of the samples. With polyethylene samples as an example, they could be divided into 7 groups according to different fillers. The calculation results of Pearson correlation coefficient proved the reliability of the above classification and grouping results. This method can accurately and non-destructively detect and classify the plastic bottles of eye drops.

KEY WORDS: differential Raman; bottles of eye drops; K-means clustering; correlation analysis; Silhouette Coefficient

收稿日期: 2022-04-13

基金项目:国家重点研发项目(2018YFC1602701);中央高校基本科研业务费专项资金资助(2019JKF418)

作者简介:陈丽萍(2001-),女,本科生,主攻刑事科学技术理化检验。

通信作者: 姜红 (1963—), 女, 教授, 硕导, 主要研究方向为理化物证检验的教学。

近年来,与眼药水相关的案件时有发生,眼药水 瓶常出现在各类案件现场,对其进行检验可为公安机 关侦查工作提供帮助。眼药水瓶多为塑料制品,现阶 段已有大量检测塑料的方法,例如拉曼光谱法^[1]、红 外光谱法^[2]、液相色谱/质谱法^[3-4]、气相色谱法^[5]以 及扫描电镜/能谱法^[6]等。在上述方法中,一些操作复 杂、所需时间长,部分方法存在易受干扰的问题,还 有一些方法的使用会损坏检材。差分拉曼光谱法具有 较多优点,如操作简单、便捷,抗噪声、干扰性强, 无损检材等^[7-8],故选用便携式差分拉曼仪对所收集 的眼药水塑料瓶进行检测分析。

1 实验

1.1 实验原理

差分拉曼技术^[9]原理见图 1,其利用有细微偏移 的不同波长的激发光测得 2 张不同的拉曼光谱,理论 上将光谱的基线对齐后,两条谱线相减,使噪声背景 和受激发射谱彻底抵消,最后再通过去噪解卷积算法 获得更纯净的拉曼光谱^[10]。



选择了市面常见的 33 个不同品牌不同厂家的眼 药水塑料瓶样品(样品表略)。各样品包括透明与不 透明眼药水塑料瓶,其中透明样品包括无色、红色、 蓝色、棕色样品,不透明样品为白色。

1.3 设备及仪器

主要仪器: SERDS Portable-Standard 型便携式 差分拉曼光谱仪,南京简智仪器设备有限公司。

1.4 实验过程

1.4.1 实验条件

实验条件:激发光源波长为 785 nm 和 784 nm,激 光功率为 440 mW,测试波数范围为 260~2 800 cm⁻¹, 积分时间为 10 s,分辨率为 5 cm⁻¹。

1.4.2 样品前处理

用乙醇棉球对 33 个样品进行擦拭,样品晾干后 贴上编号待检。

1.4.3 样品检测方法

电脑设置相关参数,将样品按序置于差分拉曼光 谱仪激光探头前,在自然光环境下完成检测。

1.4.4 重现性实验

为保证实验仪器的稳定性,随机选取样品17[#],设置 上述实验条件,对样品17[#]的同一部位进行5次平行检测。

2 结果与分析

2.1 重现性实验结果

重现性实验结果表明(见图2),5次平行实验在1059、 1125、1292、1437、2006 cm⁻¹都存在明显的特征峰,而 且峰数、峰位、峰强都基本一致,由此判断实验仪器稳定。



2.2 成分分析

眼药水塑料瓶主要成分有聚对苯二甲酸乙二醇 酯(PET)、聚乙烯(PE)、聚丙烯(PP)。通过查阅 文献获得目前已知塑料成分的主要拉曼特征峰,将各 成分的相同特征峰以及不在扫描范围的特征峰去除, 留下每个成分特有的特征峰。分析实验所得每个样品 的差分拉曼光谱图,判断在误差范围内每个样品是否 存在拉曼特征峰与各塑料成分特有的拉曼特征峰重 合,若存在,则判断该样品含对应塑料成分。分析表 1可知,有18个样品的主要成分为聚乙烯(PE),另 15 个样品的主要成分为聚对苯二甲酸乙二醇酯 (PET)。

表 1 样品成分分析结果 Tab.1 Sample composition analysis results

类别	主要成分	样品编号
Ι	PE	4 [#] 、5 [#] 、8 [#] 、10 [#] 、11 [#] 、14 [#] 、17 [#] 、 19 [#] 、20 [#] —22 [#] 、24 [#] 、25 [#] 、29 [#] —33 [#]
II	PET	$1^{\#} - 3^{\#} \ 5^{\#} \ 7^{\#} \ 9^{\#} \ 12^{\#} \ 13^{\#} \ 15^{\#} \ 16^{\#} \ 18^{\#} \ 23^{\#} \ 26^{\#} \ 27^{\#} \ 28^{\#}$

PE类的主要拉曼特征峰^[11]在1063、1129、1295、 1440、2721、2848、2882 cm⁻¹处(见图3)。选择 25号样品(见图4),通过比较分析发现,其在1059、 1125、1292、1439 cm⁻¹处存在拉曼特征峰,故可认 定25号样品主要成分为PE。





PET 类的主要特征拉曼峰^[12]分别在 632、858、 1 096、1 289、1 614、1 727 cm⁻¹ 处(见图 5),选择 9 号样品(见图 6),通过比较分析发现,其在 629、855、 1 093、1 287 cm⁻¹ 处存在拉曼特征峰,故可认定 9 号 样品的主要成分为 PET。

2.3 优选 K 值进行 K 均值聚类分析

为使分类结果更加科学准确,减小人工分类误差,利用 K 均值聚类分析验证上述结果。K 均值聚类

算法通过距离评定相似性,2个对象距离越近则相似 程度越大,距离接近的对象组成簇,再根据数据变量 与聚类中心的相似度迭代更新聚类中心位置,以此减 小类簇的误差平方和,直到其不再改变或目标函数收 敛,分类停止^[13]。在该方法中,最优初始 *K* 值的选 取尤为重要。



轮廓系数^[14](Silhouette Coefficient)是结合内聚 度和分离度 2 种因素来评估聚类效果的方式,其计算 方法如下:

1) 计算样品 *i* 到同簇中其他样品的距离的平均 值 *a*(*i*)。

 2) 令样品 *i* 到某一不包含它的簇 *C_j*内的每个点 的平均距离为 *b_{ij}*, 计算 *b(i)* =min{*b_{i1}*, *b_{i2}*, ..., *b_{ik}*}。

3)距离即指不相似度,距离越大,不相似度越大。*a*(*i*)是样品*i*到同簇内其他样品不相似程度的平均值,*a*(*i*)越小,说明该样品与同簇其他样品越相似,越应该被聚类到该簇。*b*(*i*)是样品*i*到其他簇的平均不相似度的最小值,*b*(*i*)越大,说明该样品与其他簇不相似度越大,越不属于其他簇。

4) 根据 a(i)和 b(i)定义样品 i 的轮廓系数 S(i):

 $S(i) = \frac{b(i) - a(i)}{\max\{aa(i), b(i)\}}$

由此可见, *S*(*i*)取值在[-1,1],该值越大,说明对 样品*i*的聚类越合理。将各样品的轮廓系数求均值, 即为聚类结果的轮廓系数,能够用于度量该聚类是否 合理有效。故在进行*K*均值聚类分析之前,分别计算 不同*K*值所得聚类结果的轮廓系数,轮廓系数最大时 所对应的*K*值即为最优聚类值。

实验中利用数学软件 Matlab 计算不同 K 值时 每个样品的轮廓值,得到如图 7 所示结果。通过软 件数据游标功能读取各个样品的对应轮廓值,再计 算出平均值,从而得出该 K 值对应聚类结果的轮廓 系数。



图 7 K 值为 2 时聚类结果轮廓图 Fig.7 Contour diagram of clustering results when K value is 2

其中,当 K 为 7 时,出现较多样本轮廓值为负 且分布较分散(见图 8),说明聚类数过多,故停止 计算。

*K*为2、3、4、5、6时,计算结果见表2。由表2可知,*K*为2时,轮廓系数最大,聚类效果最好。



图 8 K 值为 7 时聚类结果轮廓图 Fig.8 Contour diagram of clustering results when K value is 7

表 2 轮廓系数计算结果 Tab.2 Calculation results of Silhouette Coefficient

K 值	轮廓系数
2	0.821 8
3	0.686 6
4	0.609 7
5	0.513 5
6	0.560 5

根据上述结果,将 K 值设置为 2,对样品进行 K 均值聚类分析得到聚类结果(见表 3),并与表 1 中结果相比较,发现只有 26 号样品分类结果不同,故 在误差允许范围内,能够认为表 1 中分类结果可靠。

表 3 K 均值聚类分析结果 Tab.3 K-means clustering results

聚类	个案号
1	$4^{\#}$, $5^{\#}$, $8^{\#}$, $10^{\#}$, $11^{\#}$, $14^{\#}$, $17^{\#}$, $19^{\#}$ — $22^{\#}$, $24^{\#}$ — $26^{\#}$, $29^{\#}$ — $33^{\#}$
2	$1^{\#}$ $3^{\#}$ $6^{\#}$ $7^{\#}$ $9^{\#}$ $12^{\#}$ $13^{\#}$ $15^{\#}$ $16^{\#}$ $18^{\#}$ $23^{\#}$ $27^{\#}$ $28^{\#}$

2.4 填料分析

塑料中常见的填料有碳酸钙、高岭土、硫酸钡等, 填料的差异也是导致样品主要特征峰不同的原因之 一,故通过查找文献获得常见填料的主要特征峰,将 各填料相同的特征峰以及不在扫描范围的特征峰去 除,留下各填料特有的特征峰。分析实验所得差分拉 曼光谱图,判断在误差范围内(±5 cm⁻¹)样品是否 存在拉曼特征峰与各填料特有的拉曼特征峰位置重 合,若存在,则判断该样品含对应填料。以样品数目 较多的第I类为例,分析结果见表 4。

每组样品数目较少,可以不必再进一步分类。若

实际操作中样品数目过多,可使用 X 射线荧光光谱 法^[15]测样品中所含无机元素种类及含量,以便对样品 做出再区分。

表 4 第I类的填料分析结果 Tab.4 Analysis results of type I filler

类别	填料	样品编号
I–1	二氧化钛	4 [#] 、5 [#] 、11 [#] 、19 [#]
I–2	碳酸钙	8#
I–3	纤维素	30 [#] \ 31 [#]
I4	二氧化钛+纤维素	10 [#] 、20 [#] 、21 [#] 、32 [#] 、 33 [#]
I–5	碳酸钙+纤维素	17 [#] 、25 [#]
I–6	二氧化钛+碳酸钙+ 纤维素	24 [#]
I–7	无明显填料	$14^{\#}$ $22^{\#}$ $29^{\#}$

二氧化钛的主要拉曼特征峰在 449、612 cm⁻¹处^[16], 分析实验所得样品 4[#]光谱图(见图 9),发现样品具有 特征峰分布在 452 cm⁻¹处和 613 cm⁻¹处,故可以判断 样品 4[#]中存在填料二氧化钛。





碳酸钙在 208、711、1 085 cm⁻¹ 处有主要拉曼特征 峰^[16],分析实验所得样品 8[#]的光谱图(见图 10),可以 发现样品具有特征峰分布在 710 cm⁻¹ 处和 1 080 cm⁻¹ 处,故可以判断样品 8[#]中存在填料碳酸钙。

纤维素在 371、1114、1285、1330、1371、1462 cm⁻¹ 处有主要拉曼特征峰^[17],分析实验所得样品 30[#]光谱 图(见图 11),发现样品具有特征峰分布在 363、1292、 1462 cm⁻¹处,故可以判断样品 30[#]中存在填料碳酸钙。

从样品 24[#]的差分拉曼光谱图(见图 12)中发 现样品具有的特征峰分布在 451、611 cm⁻¹处,故可 以判断样品 24[#]中存在填料二氧化钛;样品具有的特 征峰分布在 709、1 080 cm⁻¹处,故可以判断样品 24[#] 中存在填料碳酸钙;样品具有的特征峰分布在 1 292、 1 369、1 459 cm⁻¹处,故可以判断样品 24[#]中存在填 料纤维素。



2.5 皮尔逊相关系数

Pearson 相关系数^[18-19]是值介于-1 与 1 之间,用 来度量 2 个变量之间的线性相关关系的数学量,其 定义:

$$r = \frac{\sum_{i=1}^{n} (X_i - \bar{X})(Y_i - \bar{Y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^{n} (X_i - \bar{X})^2 \sum_{i=1}^{n} (Y_i - \bar{Y})}}$$

计算各样品之间皮尔逊相关系数,可根据相关性 判断分类结果是否可靠。选取样品1[#]、2[#]、17[#]、25[#]、 10[#]、32[#]、33[#],计算此7个样品之间的相关性,结果 见表 5。

由表 5 可知,样品 1[#]、2[#]的相关性大于 0.9,样 品 17[#]、25[#]、10[#]、32[#]、33[#]之间的相关性大于 0.15, 但样品 1[#]、2[#]与样品 17[#]、25[#]、10[#]、32[#]、33[#]之间相 关性均小于 0.12 且多为负数,显著不相关;与表 1 中样品 1[#]、2[#]为一类,样品 17[#]、25[#]、10[#]、32[#]、33[#] 为一类的成分分析相符,可认为表 1 所示分类结果可 靠。样品 10[#]、32[#]、33[#]之间的相关性都大于 0.96,样 品 17[#]、25[#]的相关性为 0.985,但样品 10[#]、32[#]、33[#]与 样品 17[#]、25[#]之间的相关性都小于 0.212;与表 4 中样 品 17[#]、25[#]为一组,样品 10[#]、32[#]、33[#]为一组的填料 分析结果相符,可认为表 4 所示分组结果可靠。

Tab.5 Pearson correlation analysis results								
样本	参数	1	2	10	32	33	17	25
1	皮尔逊相关性	1	0.936	-0.031	-0.037	-0.045	0.129	0.122
	显著性(双尾)		0.000	0.187	0.116	0.053	0.000	0.000
2	皮尔逊相关性	0.936	1	0.012	-0.007	-0.016	0.111	0.106
	显著性(双尾)	0.000		0.600	0.748	0.499	0.000	0.000
10	皮尔逊相关性	-0.031	0.012	1	0.961	0.971	0.215	0.174
	显著性(双尾)	0.187	0.600		0.000	0.000	0.000	0.000
32	皮尔逊相关性	-0.037	-0.007	0.961	1	0.986	0.192	0.154
	显著性(双尾)	0.116	0.748	0.000		0.000	0.000	0.000
33 5	皮尔逊相关性	-0.045	-0.016	0.971	0.986	1	0.213	0.172
	显著性(双尾)	0.053	0.499	0.000	0.000		0.000	0.000
17 5	皮尔逊相关性	0.129	0.111	0.215	0.192	0.213	1	0.985
	显著性(双尾)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		0.000
25	皮尔逊相关性	0.122	0.106	0.174	0.154	0.172	0.985	1
	显著性(双尾)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	

	表 5	皮尔逊相关性分析结果	
Tab.5	Pears	on correlation analysis results	5

3 结语

1)文中利用便携式差分拉曼光谱仪对收集的 33 个塑料眼药水瓶进行检测,得到差分拉曼光谱图以及 相关数据。对样品进行成分分析,样品可分为 PE 和 PET 2 类,利用 Matlab 计算不同聚类数时分类结果的 轮廓系数,优选出最佳聚类数为 2,利用 K 均值聚类 法使 K 值为 2,对分类结果进行验证,结果可靠。对 PE 类样品进行填料分析,可将其分为 7 组,每组样 品数量较少,可不必再分类。选取 7 个样品进行皮尔 逊相关系数分析,通过比较相关性,可证明上述分类 分组结果可靠。

2)该方法理论和操作方法简单,无损样本,实验数据有效准确,能对相关案件的物证分析提供思路,对公安侦查工作提供帮助。

3)后续还能够使用 X 射线荧光光谱法测样品中 所含无机元素种类及含量,结合文中内容,对此类药 品塑料包装材料进行更精确的分析。

参考文献:

- DENG Ji-hong, JIANG Hui, CHEN Quan-sheng. Determination of Aflatoxin B(1) (AFB(1)) in Maize Based on a Portable Raman Spectroscopy System and Multivariate Analysis[J]. Spectrochimica Acta Part A, Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 2022, 275: 121148.
- [2] ZHANG Xin, GAO Zhang-ming, YANG Ying-lin, et al. Rapid Identification of the Storage Age of Dried Tangerine Peel Using a Hand-Held Near Infrared Spectrometer and Machine Learning[J]. Journal of Near Infrared

Spectroscopy, 2022, 30(1): 31-39.

- [3] ANSAR S M, JIANG Wen-lei, MUDALIGE T. Analysis of Verteporfin Liposomal Formulations for Phospholipids and Phospholipid Degradation Products by Liquid Chromatography-Mass Spectrometry (LC-MS)[J]. Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis, 2022, 208: 114473.
- [4] PABLO R, CORTINA, RAMÓN A, et al. Determination of Volatile Organic Compounds in Andean Tomato Landraces by Headspace Solid Phase Microextraction-Gas Chromatography-Mass Spectrometry[J]. Journal of the Brazilian Chemical Society, 2016, 28(1): 30-41.
- [5] GARCÍA I V, RODRÍGUEZ B Q A, PASEIRO L P, et al. Identification of Intentionally and Non-Intentionally Added Substances in Plastic Packaging Materials and Their Migration into Food Products[J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2018, 410(16): 3789-3803.
- [6] 务瑞杰,姜红. 扫描电镜/能谱法检验塑料拖鞋[J]. 上 海塑料, 2017(1): 18-22.
 WU Rui-jie, JIANG Hong. A Study on Discrimination of Plastic Slipper by SEM/EDS[J]. Shanghai Plastics, 2017(1): 18-22.
- [7] 方刚,殷磊,刘峰,等.基于差分喇曼技术在抑制荧光中的应用研究[J].激光技术,2019,43(3):359-362.
 FANG Gang, YIN Lei, LIU Feng, et al. Application Research of Fluorescence Suppression Based on Differential Raman Technique[J]. Laser Technology, 2019, 43(3):359-362.
- [8] 姜红,朱晓晗,何歆沂,等. 差分拉曼光谱法对塑料 瓶的鉴别分析[J]. 中国测试, 2020, 46(8): 76-79. JIANG Hong, ZHU Xiao-han, HE Xin-yi, et al. Differential Raman Analysis of Plastic Bottles[J]. China Measurement & Testing Technology, 2020, 46(8): 76-79.
- [9] LIEBER C A, MAHADEVAN-JANSEN A. Automated Method for Subtraction of Fluorescence from Biological Raman Spectra[J]. Applied Spectroscopy, 2003, 57(11): 1363-1367.
- [10] 李晟全,姜红,常鹏宇,等.差分拉曼光谱结合聚类 分析对塑料牙刷柄的检验研究[J].化学研究与应用, 2021,33(6):1174-1180.
 LI Sheng-quan, JIANG Hong, CHANG Peng-yu, et al.

Study on the Inspection of Plastic Toothbrush Handle by Differential Raman Spectroscopy and Cluster Analysis[J]. Chemical Research and Application, 2021, 33(6): 1174-1180.

[11] 董鹍, 饶之帆, 杨晓云, 等. 几种塑料的拉曼光谱检

测[J]. 塑料工业, 2011, 39(6): 67-70.

DONG Kun, RAO Zhi-fan, YANG Xiao-yun, et al. Determination of Several Plastic by Raman Spectroscopy[J]. China Plastics Industry, 2011, 39(6): 67-70.

- [12] 张愚若,姜红,刘奎江,等. 食品塑料包装袋的拉曼 光谱分析[J]. 上海塑料, 2020(1): 30-34.
 ZHANG Yu-ruo, JIANG Hong, LIU Kui-jiang, et al. Raman Spectroscopy Analysis of Food Plastic Packing Bags[J]. Shanghai Plastics, 2020(1): 30-34.
- [13] ZHU Ai-lin, HUA Ze-xi, SHI Yu, et al. An Improved K-Means Algorithm Based on Evidence Distance[J]. Entropy (Basel, Switzerland), 2021, 23(11): 1550.
- [14] KUMAR Y D, YADAV V, SHUKLA R. An Efficient Collaborative Recommender System for Textbooks Using Silhouette Index and K-Means Clustering Technique[J]. International Journal of Advanced Intelligence Paradigms, 2019, 1(1): 1.
- [15] 刘亚昌, 孙玉友, 张冀峰, 等. 使用手持式 X 射线荧 光光谱仪临场检测爆炸装置塑料碎片[J]. 刑事技术, 2019, 44(3): 228-232.
 LIU Ya-chang, SUN Yu-you, ZHANG Ji-feng, et al. Applying Portable X-Ray Fluorescent Spectrometer to Ra-

pidly Detect the Plastic Components from Improvised Explosive Devices[J]. Forensic Science and Technology, 2019, 44(3): 228-232.

[16] 姜红,田陆川,王艺霖,等. 差分拉曼光谱法结合聚
 类分析检验食品塑料包装盒[J]. 包装工程, 2021,
 42(15): 85-93.

JIANG Hong, TIAN Lu-chuan, WANG Yi-lin, et al. Differential Raman Spectroscopy Combined with Cluster Analysis for Inspection of Food Plastic Packaging Box[J]. Packaging Engineering, 2021, 42(15): 85-93.

 [17] 刘津彤,张岚泽,姜红,等.差分拉曼光谱结合支持 向量机模型对便签纸的鉴别分析[J].化学通报,2022, 85(2):259-263.

LIU Jin-tong, ZHANG Lan-ze, JIANG Hong, et al. Identification of Note Paper by Differential Raman Spectroscopy Based on Support Vector Machine[J]. Chemistry, 2022, 85(2): 259-263.

- [18] RAHMAN M, CHEN Ning-sheng, MAHMUD G I, et al. Flooding and Its Relationship with Land Cover Change, Population Growth, and Road Density[J]. Geoscience Frontiers, 2021, 12(6): 22-41.
- [19] ROBERT W E. Causation and Pearson's Correlation Coefficient[J]. Journal of Visual Impairment & Blindness, 2015, 109(3): 242-244.