

文章编号: 0258-7025(2009)02-0444-05

# 多 tau 光子相关器中自相关函数的归一化方法

成艳亭 申 晋 刘 伟 孙贤明 杨 燕

(山东理工大学电气与工程学院, 山东 淄博 255049)

**摘要** 提出了采用每个线性相关通道组共享一个监视通道的简化对称归一化方法, 并对标准归一化、对称归一化和简化对称归一化的估计偏差进行了理论分析。理论分析表明, 对称归一化和简化对称归一化有相近的估计偏差, 标准归一化方法的估计偏差较大。采用三种归一化方法, 对 90 nm, 1000 nm 及 90 nm 与 1000 nm 混合的标准聚苯乙烯乳胶颗粒进行了实验。实验结果表明, 标准归一化自相关函数平均估计偏差和最大估计偏差分别是对称归一化和简化对称归一化的 2.5~3.5 倍和 4.5~8.5 倍; 与对称归一化方法相比, 简化对称归一化方法只需增加少量的附加通道资源, 即可有效解决在多 tau 相关结构中存在的大延迟时间的归一化光强自相关函数偏差增大问题。

**关键词** 光学器件; 多 tau 相关器; 自相关函数; 简化对称归一化; 标准偏差

**中图分类号** TN247 **文献标识码** A **doi:** 10.3788/CJL20093602.0444

## Normalization of Autocorrelation Function for Multiple-tau Photon Correlator

Cheng Yanting Shen Jin Liu Wei Sun Xianming Yang Yan

(School of Electrical and Electronic Engineering, Shandong University of Technology, Zibo, Shandong 255049, China)

**Abstract** A reduced symmetric normalization procedure was presented to reduce the requirement for hardware channels, which needs only one monitor channel in each linearity module. Theory analysis proves that the standard deviation of the reduced symmetric normalization approximates to that of the symmetric normalization and far smaller than that of the standard normalization at large delay time. Measurements with polystyrene particles of 90 nm, 1000 nm and 90 nm mixed with 1000 nm show superiority of both symmetric and reduced symmetric normalization over standard normalization. Calculated average standard deviation of standard normalization estimator is 2.5 to 3.5 times larger than that of the symmetric and reduced symmetric ones while the maximum deviation is 4.5 to 8.5 times. Reduced symmetric normalization achieves high statistical accuracy at the expense of obviously reduced additional monitor channels compared with symmetric normalization in multi-tau photon correlator.

**Key words** optical devices; multi-tau correlator; autocorrelation function; reduced symmetric normalization; standard deviation

## 1 引 言

光子相关光谱 (Photon Correlation Spectroscopy, PCS) 技术是测量亚微米及纳米颗粒粒径及其分布的有效方法<sup>[1,2]</sup>, 光子相关器是其中的核心装置。早期的光子相关器采用线性通道结构, 将通道在信号的动态范围内平均分配, 因此在信号变化缓慢部分, 通道数量相对过多, 浪费硬件通道资源, 而在信号快速变化部分, 则由于通道数量相对不足, 造成信号的分辨率过低。随着 PCS 技术应用

领域的拓宽, 对相关器的动态范围的要求也在不断增大, 提出了用于解决大动态范围与时间分辨率矛盾的多 tau 相关技术<sup>[3]</sup>。

在光子相关光谱测量技术中, 需反演第一类 Fredholm 积分方程, 但由于该方程的病态解问题, 测量过程中的微小实验误差都会导致测量结果的严重失真<sup>[4]</sup>。在线性光子相关器结构中, 相关函数的归一化采用的是标准归一化方法, 可有效去除基线误差, 但对归一化自相关函数的估计存在线性偏差。

收稿日期: 2008-04-23; 收到修改稿日期: 2008-06-24

基金项目: 国家自然科学基金(60877050)和山东省自然科学基金(2004ZX30)资助项目。

作者简介: 成艳亭(1983—), 女, 硕士研究生, 主要从事光电精密测试技术方面的研究。

导师简介: 申 晋(1962—), 男, 教授, 博士, 主要从事光电精密测试、微弱信号检测和动态光散射测量技术等方面的研究。

E-mail: shenjin@sdut.edu.cn (通信联系人)

在多 tau 相关结构中, 采样时间不再是常量, 随着信号延迟时间的增加, 动态范围增大了几个数量级, 标准归一化自相关函数估计偏差随着通道延时增加而增大, 使得偏差问题变得突出。K. Schätzle 等<sup>[5,6]</sup>提出的对称归一化方法可有效去除大延时通道的线性偏差问题, 但该方法需为每个相关通道附加硬件监视通道, 当所测相关函数的衰减线宽较大时增加大延时通道数目。由于光子相关器是对光子脉冲信号进行实时处理的高速硬件电路, 附加监视通道会占用更多的硬件资源, 增加电路的复杂程度, 从而加大了相关器制造成本。Zbigniew Kojro<sup>[7]</sup>提出了补偿归一化方法, 可去除全部通道的归一化自相关函数估计的线性偏差, 由于小延时通道的线性偏差问题并不严重, 因此该方法更具理论意义。与对称归一化方法一样, 补偿归一化方法也需为每个相关通道附加硬件监视通道, 从而占用过多的硬件通道资源, 增加了光子相关器的制造成本。随着相关技术的广泛应用<sup>[8-11]</sup>, 为减小相关器的成本, 各种新型相关器不断提出<sup>[12-16]</sup>。本文通过对归一化自相关函数偏差的理论分析, 提出了可有效节省光子相关器硬件通道资源的简化对称归一化方法。

## 2 PCS 颗粒测量原理

光子相关光谱法颗粒测量技术通过研究颗粒散射光波动的时问相关性来获取颗粒粒径及其分布信息。颗粒散射光强自相关函数定义为

$$G^{(2)}(\tau) = \langle I(t)I(t+\tau) \rangle = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T I(t)I(t+\tau) dt, \quad (1)$$

式中  $I(t)$ ,  $I(t+\tau)$  分别为  $t$  及  $(t+\tau)$  时刻的散射光强。

归一化光强自相关函数为

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{G^{(2)}(\tau)}{\langle I(t) \rangle^2}. \quad (2)$$

对于满足高斯分布的光场, 归一化散射光强自相关函数和归一化散射电场自相关函数之间满足 Siegert 关系式  $g^{(2)}(\tau) = 1 + \beta |g^{(1)}(\tau)|^2$ , 其中  $\beta$  为散射光场的相干度,  $g^{(1)}(\tau)$  为归一化散射电场自相关函数。

对于单分散、无限稀释的悬浮液, 有

$$|g^{(1)}(\tau)| = \exp(-\Gamma\tau), \quad (3)$$

式中  $\Gamma$  为瑞利线宽。多分散颗粒系的散射光电场强度则为单指数加权之和或分布积分

$$|g^{(1)}(\tau)| = \int_0^\infty G(\Gamma) \exp(-\Gamma\tau) d\Gamma, \quad (4)$$

式中瑞利线宽  $\Gamma = q^2 D_T$ ,  $q = \frac{4\pi m}{\lambda_0} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)$  为散射波矢,  $\lambda_0$  为入射光在真空中的波长,  $D_T$  为平移扩散系数。对于溶液粘滞系数  $\eta$ , 粒径为  $d$  的球形颗粒, 由 Stoks-Einstein 公式,  $D_T = K_B T / 3\pi\eta d$ ,  $K_B$  为玻尔兹曼常量,  $T$  为绝对温度。通过散射光强自相关函数, 即可求得颗粒粒径及其分布。

## 3 标准归一化方法及偏差分析

早期的 PCS 颗粒测量系统中, 光强自相关函数的归一化采用标准归一化方法, 光强自相关函数的标准归一化估计

$$\hat{g}_k^{\text{sta}} = \frac{\frac{1}{M} \sum_{j=1}^M n_j n_{j-k}}{\left(\frac{1}{M} \sum_{j=1}^M n_j\right)^2}, \quad (5)$$

式中  $n_j$  为第  $j$  个采样周期内的光子脉冲采样值,  $M$  为总的采样次数。

记相关器第  $j$  通道采样值  $n_j = \mu(1 + \delta_j)$ , 其中  $\mu = \langle n \rangle$  为平均光子计数值。令  $\langle \delta_j^2 \rangle = \sigma^2$ ,  $\rho_k = \langle \delta_0 \delta_k \rangle / \sigma^2$ , (2) 式可改写为

$$\begin{aligned} \hat{g}_k^{\text{sta}} &= 1 + \frac{1}{M} \sum_{j=1-k}^0 \delta_j - \frac{1}{M} \sum_{j=M-k+1}^M \delta_j + \\ &\frac{1}{M} \sum_{j=1}^M \delta_j \delta_{j-k} - \frac{1}{M^2} \sum_{j=1}^M \sum_{l=1-k}^{M-k} \delta_j \delta_l - \\ &\frac{1}{M^2} \sum_{j=1}^M \sum_{l=1-k}^0 \delta_j \delta_l + \frac{1}{M^2} \sum_{j=1}^M \sum_{l=M-k+1}^M \delta_j \delta_l + o(\delta^3), \end{aligned} \quad (6)$$

光强自相关函数标准归一化估计期望值为

$$\begin{aligned} \langle \hat{g}_k^{\text{sta}} \rangle &= 1 + \sigma^2 \rho_k + \frac{\sigma^2}{M^2} \sum_{j=1}^M \sum_{l=1-k}^0 (\rho_{j-l} - \rho_{j-l+M}) - \\ &\frac{\sigma^2}{M^2} \sum_{p=1-M}^{M-1} (M - |p|) \rho_{p+k}, \end{aligned} \quad (7)$$

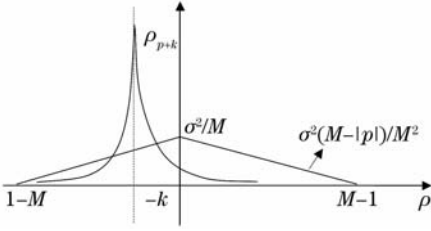
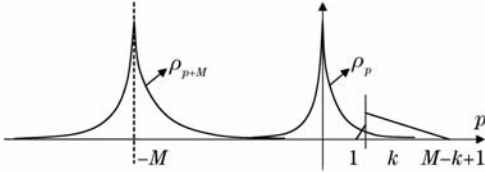
标准偏差

$$\begin{aligned} E^{\text{sta}} &= \langle \hat{g}_k^{\text{sta}} \rangle - g_k = \\ &-\frac{\sigma^2}{M^2} \sum_{p=1-M}^{M-1} (M - |p|) \rho_{p+k} + \frac{\sigma^2}{M^2} \sum_{p=1}^{M+1-k} k_p \rho_p - \\ &\frac{\sigma^2}{M^2} \sum_{p=1}^{M+1-k} k_p \rho_{p+M}, \end{aligned} \quad (8)$$

式中  $k_p = \begin{cases} M - k - p, & p \in [k, M - k + 1] \\ p, & p \in [1, k - 1] \end{cases}$ ,

(8) 式中第一项为曲线  $\rho_{p+k}$  的三角加权, 如图 1 所示。第二、三项对应的曲线及其权重如图 2 所示。

由于  $\rho_p$  迅速衰减, 在分段加权曲线下可忽略不

图 1  $\rho_{p+k}$  及其权重曲线Fig. 1  $\rho_{p+k}$  and corresponding weighting curve图 2  $\rho_p, \rho_{p+M}$  及其权重曲线Fig. 2  $\rho_p, \rho_{p+M}$  and corresponding weighting curves

计。如图 2 所示(8)式中第三项近似为零,因此

$$E^{\text{sta}} \approx -\frac{\sigma^2}{M^2} \sum_{p=1-M}^{M-1} (M-|p|)\rho_{p+k}, \quad (9)$$

当采样次数  $M$  足够大时,由于系数  $\sigma^2/M^2$  的削弱作用,归一化光强自相关函数估计偏差很小,可忽略不计。但对于多  $\tau$  相关器,采样时间不再是常量,而是随通道延迟时间的增加而变长,因此一定测量时间下大延迟时间相关通道的采样数量减小,系数  $\sigma^2/M^2$  增大,归一化相关函数估计偏差显著变大。对于单次实验,噪声主要通过(6)式中一次项掺杂在归一化相关函数曲线中,这种噪声影响随采样次数  $M$  的减小而愈加明显。

## 4 对称归一化及简化实现方法

光强自相关函数的对称归一化估计为<sup>[5,6]</sup>

$$\hat{g}_k^{\text{sym}} = \frac{\frac{1}{M} \sum_{j=1}^M n_j n_{j-k}}{\frac{1}{M^2} \sum_{j=1}^M n_j \sum_{j=1-k}^{M-k} n_j}, \quad (10)$$

按(2)式的变换方式,(10)式可改写为

$$\hat{g}_k^{\text{sym}} = 1 + \frac{1}{M} \sum_{j=1}^M \delta_j \delta_{j-k} - \frac{1}{M^2} \sum_{j,l=1}^M \delta_j \delta_l + o(\delta^3), \quad (11)$$

统计偏差

$$E^{\text{sym}} = -\frac{\sigma^2}{M^2} \sum_{j,l=1}^M \rho_{j-l} = -\frac{\sigma^2}{M^2} \sum_{p=1-M}^{M-1} (M-|p|)\rho_p, \quad (12)$$

与(9)式相比,(12)式中不再包含一次项,因此单次实验中噪声对归一化光强自相关函数估计影响明显

减小。

虽然对称归一化方法可得到更小的归一化光强自相关函数偏差,但硬件上要求为每个相关通道附加监视通道。对于大衰减线宽的相关函数曲线,附加监视通道会占用相当可观的硬件资源。为尽可能减少附加通道的数量,提出在相关器大延时通道部分,每个线性相关通道组共享一个附加监视通道的“简化对称归一化”方法,定义相应的归一化光强自相关函数为

$$\hat{g}_k^{\text{red}} = \frac{\frac{1}{M} \sum_{j=1}^M n_j n_{j-k}}{\frac{1}{M^2} \sum_{j=1}^M n_j \sum_{j=1-(k+\Delta k)}^{M-(k+\Delta k)} n_j}, \quad (13)$$

式中  $\Delta k = -k \bmod r$ ,  $r$  为每个线性相关通道模块内的通道个数。采用(13)式,只需为第  $k$  通道所属线性相关模块内第一通道(第  $k + \Delta k$  通道)附加监视通道,组内其他通道的归一化光强自相关函数估计均采用该附加通道所得延迟信号累加值。(13)式可改写为

$$\begin{aligned} \hat{g}_k^{\text{red}} &= \frac{\frac{1}{M} \sum_{j=1}^M n_j n_{j-k}}{\frac{1}{M^2} \sum_{j=1}^M n_j \sum_{j=1-k-\Delta k}^{M-k-\Delta k} n_j} = \\ &= 1 - \frac{1}{M} \sum_{j=\Delta k+1}^0 \delta_j \delta_{j-k} + \frac{1}{M} \sum_{j=M+\Delta k+1}^M \delta_j \delta_{j-k} + \\ &= \frac{1}{M} \sum_{j=1}^M \delta_j \delta_{j-k} - \frac{1}{M^2} \sum_{j,l=1}^M \delta_j \delta_{l-k} - \\ &= \frac{1}{M^2} \sum_{j,l=1}^M \delta_{j-k} \delta_{l-(k-\Delta k)} + \\ &= \frac{1}{M^2} \sum_{j,l=1}^M \delta_{j-(k-\Delta k)} \delta_{l-(k-\Delta k)} + o(\delta^3), \quad (14) \end{aligned}$$

忽略高次项,与(11)式相比,(14)式多了两个一次项和两个二次项。相应的标准偏差

$$\begin{aligned} E^{\text{red}} &= \langle \hat{g}_k^{\text{red}} \rangle - g_k \approx \\ &= -\frac{\sigma^2}{M^2} \sum_{p=1-M}^{M-1} (M-|p|)[\rho_{p+k} + (\rho_p - \rho_{p+\Delta k})], \quad (15) \end{aligned}$$

简化对称归一化处理后的标准偏差与对称归一化的标准偏差的差别为  $-\frac{\sigma^2}{M^2} \sum_{p=1-M}^{M-1} (M-|p|)(\rho_p - \rho_{p+\Delta k})$ ,对于衰减非常缓慢的相关函数曲线,该项趋近于零。由于(14)式给出的简化对称归一化估计较对称归一化多出两个一次累加项,但累加次数仅为  $\Delta k$ ,远少于标准归一化估计中的一次项累加次数,

因此噪声对测量结果的影响显著减小。

## 5 实验分析

实验系统中光源采用功率 25 mW 的 He-Ne 激光器, 散射角取  $90^\circ$ , 样品溶液温度  $22^\circ\text{C}$ , 分散介质(蒸馏水)粘滞度  $\eta = 9.43 \times 10^{-8}$  N。光子相关器采用 64 通道多 tau 结构, 每 8 个通道为一个线性相关模块, 共 8 个线性相关模块。第  $i$  模块采样频率为第一模块采样频率的  $2^{i-1}$  分频。分别采用三种归一化方法, 对 90 nm, 1000 nm 的标准聚苯乙烯乳胶颗

粒样品溶液以及 90 nm 与 1000 nm 的混合聚苯乙烯乳胶颗粒样品溶液进行了实测, 得到的归一化光强自相关函数曲线如图 3 所示。

从图 3 可见, 简化对称归一化和对称归一化得到的归一化相关函数曲线十分接近, 都能较好地收敛于基线, 而标准归一化在大延时部分偏离基线情况较严重。

对 90 nm, 1000 nm 及两种颗粒混合样品溶液的散射光信号进行 8 次实测, 得到的三种归一化相关函数在不同延时时间下的标准偏差结果如图 4 所示。

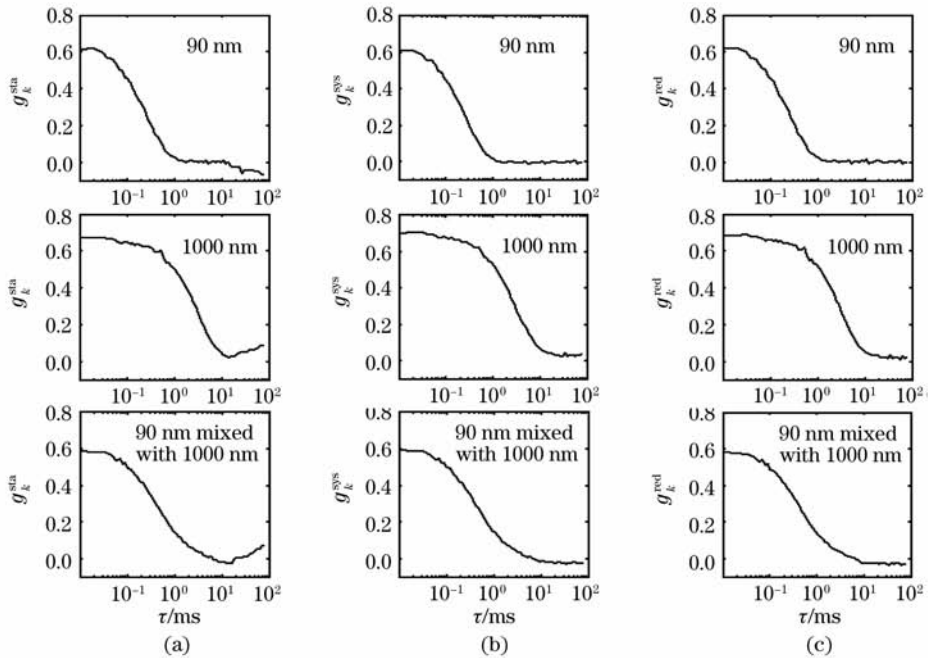


图 3 90 nm, 1000 nm 及 90 nm 与 1000 nm 的混合颗粒散射光信号标准归一化(a)、对称归一化(b)和简化对称归一化(c)自相关函数曲线

Fig. 3 Standard normalized (a), symmetric normalized (b) and reduced symmetric normalized (c) correlation function of light intensity scattered by particles of 90 nm, 1000 nm and 90 nm mixed with 1000 nm

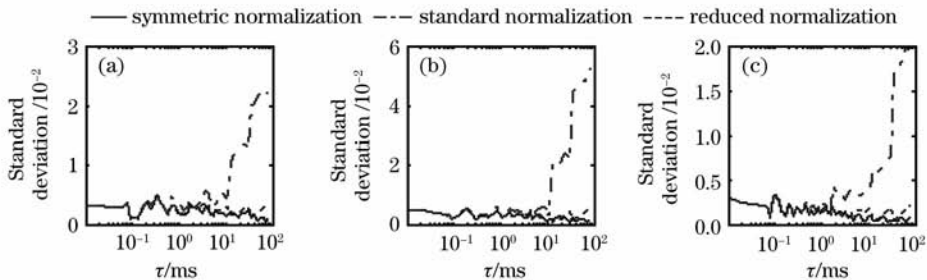


图 4 对 90 nm(a), 1000 nm(b) 颗粒以及 90 nm 与 1000 nm 的混合颗粒(c) 进行实测得到的自相关函数的标准偏差  
Fig. 4 Experimental standard deviation of autocorrelation function obtained with monodisperse system of 90 nm (a), 1000 nm (b) and polydisperse system of 90 nm mixed with 1000 nm (c)

图 4 表明, 在延时时间较小时三种归一化方法所得归一化光强自相关函数标准偏差变化不大, 随延时时间的增加, 标准归一化方法所得归一化光强

自相关函数标准偏差显著增大, 而对称归一化与简化对称归一化自相关函数标准偏差则无显著变化。表 1 给出了三种颗粒样品溶液散射光信号自相关函

数分别进行标准归一化、对称归一化及简化对称归一化处理得到的平均相对标准偏差(RSD)及最大相对标准偏差。

由表 1 可见,简化对称归一化和对称归一化自

表 1 归一化自相关函数平均标准偏差及最大标准偏差

Table 1 Average and maximum standard deviation of normalized autocorrelation function

Method	90 nm		1000 nm		90 nm+1000 nm	
	Mean RSD	Maximal RSD	Mean RSD	Maximal RSD	Mean RSD	Maximal RSD
Standard normalization	0.0069	0.0224	0.0119	0.0527	0.0051	0.0199
Symmetric normalization	0.0024	0.0048	0.0031	0.0055	0.0014	0.0033
Reduced normalization	0.0027	0.0048	0.0034	0.0061	0.0016	0.0033

## 6 结 论

提出了采用每个线性相关通道组共享一个监视通道的简化对称归一化方法。理论分析表明,对称归一化和简化对称归一化有相近的估计偏差,标准归一化方法的估计偏差较大。采用三种归一化方法,对90 nm,1000 nm及90 nm与1000 nm混合的标准聚苯乙烯乳胶颗粒进行了实验,验证了理论分析的正确性。简化对称归一化方法与标准归一化方法相比,只需增加少量的附加通道资源,即可有效解决多 tau 相关结构中大延迟时间的归一化光强自相关函数的偏差增大问题,在使用较少的相关器硬件资源条件下,达到与对称归一化接近相同的归一化自相关函数估计。

## 参 考 文 献

- R. Foord, E. Jakeman, C. Oliver *et al.*. Determination of diffusion coefficients of haemocyanin at low concentration by intensity fluctuation spectroscopy of scattered laser light [J]. *Nature*, 1970, **227**:242~245
- S. P. Lee, W. Tscharnuter, B. Chu. Calibration of an optical self-beating spectrometer by polystyrene latex spheres and confirmation of the Stokes-Einstein formula [J]. *J. Polym. Sci. Phys.*, 1972, **10**:2453~2459
- K. Schätzel. Correlation techniques in dynamic light scattering [J]. *Appl. Phys. B*, 1987, **42**(4):193~213
- F. Ru, H. Michel, P. Gartner *et al.*. Determination of size distributions of submicron particles by dynamic light scattering experiments taking into account normalization errors [J]. *Progress in Colloid & Polymer Science*, 1993, **93**:159~166
- K. Schätzel, M. Drewel, S. Stimac. Photon correlation measurements at large lag times; improving statistical accuracy [J]. *J. Mod. Opt.*, 1988, **35**(4):711~718
- K. Schätzel, E. O. Schulz-DuBois. Improvements of photon correlation techniques [J]. *Infrared Phys.*, 1991, **32**:409~416

相关函数估计偏差接近,标准归一化方法的相关函数平均估计偏差是前两种方法的2.5~3.5倍,最大估计偏差则是前两种方法的4.5~8.5倍。

- Zbigniew Kojrot. Normalization and statistical noise level in the normalized autocorrelation function. Compensated normalization [J]. *J. Phys. A*, 1991, **24**:L225~L229
- Qin Laigui, Huo Yujing, He Shufang. Study on pulsed laser range finder based on digital polarity correlation algorithm [J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(7):941~944  
秦来贵,霍玉晶,何淑芳.基于数字极性相关算法的激光脉冲测距[J]. *中国激光*, 2006, **33**(7):941~944
- Yu Bin, Shen Jianqi. Simulations on high-concentration effects of transmission fluctuation spectrometry with temporal correlation with infinitesimally thin beam [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(7):1309~1315  
于彬,沈建琪.无限细光束中透射起伏时间相关频谱法高浓度效应的模拟[J]. *光学学报*, 2007, **27**(7):1309~1315
- Yang Yong, Wang Yanlei, Li Ming *et al.*. Research of high-accuracy digital image correlation measurement system [J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(2):197~201  
杨勇,王琰蕾,李明等.高精度数字图像相关测量系统及其技术研究[J]. *光学学报*, 2006, **26**(2):197~201
- Qiu Tian, Guo Li, Li Donghui *et al.*. Digital speckle marginal correlation measuring method [J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(8):1092~1096  
邱天,郭立,李东晖等.数字散斑的边缘相关测量法[J]. *中国激光*, 2006, **33**(8):1092~1096
- D. Magatti, F. Ferri. Fast multi-tau real time software correlator for dynamic light scattering [J]. *Appl. Opt.*, 2001, **40**(24):4011~4021
- D. Magatti, F. Ferri. 25 ns software correlator for photon and fluorescence correlation spectroscopy [J]. *Rev. Sci. Instr.*, 2003, **74**(2):1135~1144
- Shen Jin, Zheng Gang, Li Mengchao *et al.*. The study on the estimation of autocorrelation function in PCS particle sizing technique [J]. *Chinese Journal of Scientific Instrument*, 2003, **24**(6):585~588  
申晋,郑刚,李孟超等.PCS颗粒测量技术中软件相关方法的研究[J]. *仪器仪表学报*, 2003, **24**(6):585~588
- T. A. Laurence, S. Fore, T. Huser. Fast, flexible algorithm for calculating photon correlations [J]. *Opt. Lett.*, 2006, **31**(6):829~831
- Jin Shen, Yuming Li, Wei Liu *et al.*. Design and implementation of photon correlator based on C8051F [C]. *SPIE*, 2008, **6621**:662125