

TSVD-Tikhonov 正则化多尺度动态光散射反演

王雅静¹, 窦智², 申晋¹, 刘伟¹, 尹丽菊¹, 高明亮¹

¹ 山东理工大学电气与工程学院, 山东 淄博 255049;

² 天津大学电子信息工程学院, 天津 300072

摘要 在大反演范围内,小波正则化反演(WRIM)是一种改进动态光散射(DLS)数据反演精度的有效方法,但该方法对强噪声及双峰颗粒数据的反演精度偏低。在 WRIM 基础上,结合传统的单尺度 Tikhonov、截断奇异值分解(TSVD)正则化在动态光散射反演中的优点,提出了一种 Tikhonov-TSVD-WRIM(TTWRIM)多尺度动态光散射反演方法。该方法首先将 Tikhonov 用于粗尺度反演范围的自适应调整,然后将 TSVD 用于细尺度反演,并对反演结果进行五点三次平滑处理。在 0.001、0.005 及 0.01 三种噪声下,分别采用 Tikhonov、TSVD、WRIM 及 TTWRIM 四种方法对模拟数据进行了反演,结果表明,TTWRIM 反演精度更高、抗干扰能力及双峰分辨力更强。最后,实测颗粒的反演也验证了模拟数据的结论。在 $[1\text{ nm}, 2000\text{ nm}]$ 的反演范围内,TTWRIM 对 300 nm 单峰及 100~500 nm 双峰实测颗粒的反演峰值误差分别为 0.18% 和 2.81%。

关键词 散射; 动态光散射; 粒径反演; 正则化; 多尺度

中图分类号 O433.4

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201744.0104003

Multi-Scale Inversion Combining TSVD-Tikhonov Regularization for Dynamic Light Scattering

Wang Yajing¹, Dou Zhi², Shen Jin¹, Liu Wei¹, Yin Liju¹, Gao Mingliang¹

¹ School of Electrical and Electronic Engineering, Shandong University of Technology, Zibo, Shandong 255049, China;

² School of Electronic information Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China

Abstract In the large inversion range, wavelet-regularization inversion method (WRIM) is an effective method to improve the inversion accuracy of dynamic light scattering (DLS) data. However, the inversion accuracy of WRIM is still low for the strong noise and bimodal particles data. Based on WRIM, combined with the advantages of the traditional single scale Tikhonov and Truncated singular value decomposition (TSVD) regularization in DLS inversion, the multi-scale Tikhonov-TSVD-WRIM (TTWRIM) used for the DLS data is proposed. In this method, Tikhonov is applied to the adaptive adjustment of the coarse scale inversion range, and then TSVD is applied to the fine scale inversion, and its inversion result is processed by cubical smoothing algorithm with five-point approximation. Under three kinds of noise levels with 0.001, 0.005 and 0.01, the simulated data are inverted by Tikhonov, TSVD, WRIM and TTWRIM, respectively. The results show that TTWRIM has a high accuracy, strong anti-interference ability and bimodal resolution. Finally, the inversions of the measured particles also verify the conclusions of the simulated data. In the inversion range of $[1\text{ nm}, 2000\text{ nm}]$, the peak value error of TTWRIM for 300 nm unimodal and 100~500 nm bimodal measured particles are 0.18% and 2.81%, respectively.

Key words scattering; dynamic light scattering; particle size inversion; regularization; multi-scale

OCIS codes 290.5850; 290.5870; 300.6330

1 引言

动态光散射(DLS)技术是测量超细颗粒粒径分布(PSD)的有效方法,该方法通过测量颗粒的散射光强

收稿日期: 2016-05-28; 收到修改稿日期: 2016-08-30

基金项目: 国家自然科学基金(61601266)、山东省自然科学基金(ZR2014FL027, ZR2015FL034, ZR2016EL16)

作者简介: 王雅静(1971—),女,博士,副教授,主要从事动态光散射纳米颗粒测量技术等方面的研究。

E-mail: wangyajing0725@126.com

自相关函数(ACF)获取粒度分布信息^[1-3]。由光强 ACF 求解粒径分布需要反演第一类 Fredholm 积分方程,该方程是病态方程,其求解一直是 DLS 技术的难点。针对 DLS 反演问题,目前已提出了多种反演算法,如 CONTIN 法^[4]、Tikhonov 正则化^[5]、双指数法^[6]、极大似然法^[7]、NNLS 法^[8]、非负约束截断奇异值分解(TSVD)法^[9]等。这些方法一般都是在单尺度空间、固定粒径反演范围内对问题进行求解,反演范围选择不合适时,固定的反演范围很难给出准确的反演结果。尽管在实际测量时,可以通过多次手动调整反演范围,但很多场合下,如材料聚合、生物学分析等,测量粒径一直是变化的,手动逐步调整反演范围无法实现。针对该问题,Wang 等^[10]提出了一种多尺度反演范围自适应调整策略,基于该策略,结合标准 Tikhonov 正则化(Tikhonov)方法,提出了一种多尺度小波正则化反演(WRIM)算法。该算法可以在预先选择的大初始反演范围内,有效地实现反演范围的自适应调整并反演 PSD。根据文献[11],DLS 噪声水平一般低于 0.001,所以该方法仅考虑了噪声水平为 0.001 以下的情况,相对于单尺度 Tikhonov,WRIM 明显地改善了反演结果。但是随着 DLS 技术应用范围的拓宽,比如在线测量、凝胶分析等,一些较高噪声场合会出现。在 WRIM 中,对多尺度空间子问题都统一采用了 Tikhonov 进行反演,由于 Tikhonov 对强噪声及双峰数据的反演精度偏低,从而也导致了 WRIM 对该类数据的反演精度偏低。

为了提高 WRIM 强噪声及双峰数据的反演精度,本文对 Tikhonov 及 TSVD 两种正则化法在 DLS 反演中的应用进行了比较研究,得出了两种方法的优点。基于此研究,分别将它们用于不同的多尺度子空间反演,由此提出了一种 TSVD 与 Tikhonov 相结合的多尺度 DLS 反演方法(TTWRIM)。该方法在大初始反演范围内,具有较高的精度,较强的抗干扰能力及双峰分辨力。

2 多尺度 DLS 反演原理

在 DLS 技术中,PSD 能够从归一化光强自相关函数中求得:

$$g(\tau) = \int_0^{\infty} G(\Gamma) \exp(-2\Gamma\tau) d\Gamma, \quad (1)$$

(1)式是病态积分方程,其中, Γ 、 τ 分别为衰减线宽及延迟时间, $G(\Gamma)$ 是衰减线宽分布函数,且 $\int_0^{\infty} G(\Gamma) d\Gamma = 1$ 。通过(1)式求得 $G(\Gamma)$,再通过以下关系式即可求得相应的 PSD。

$$\begin{cases} \Gamma = Dq^2 \\ q = \frac{4\pi n}{\lambda_0} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right), \\ D = \frac{k_B T}{3\pi\eta d} \end{cases}, \quad (2)$$

式中 q 为散射波矢量, D 为颗粒的平移扩散系数, λ_0 为激光在真空中的波长, θ 为散射角, n 为溶液的折射率, T 为绝对温度, k_B 为玻尔兹曼常数, d 为当量球型颗粒的直径, η 为溶液的粘性系数。

为求解(1)式,将其离散化为

$$g(\tau_j) = \sum_{i=1}^N G(\Gamma_i) \exp(-2\Gamma_i\tau_j), \quad (3)$$

式中 j 为相关器通道数, i 为测量颗粒反演分级数。(3)式可用矩阵方程表示为

$$\mathbf{A}x = \mathbf{b}, \quad (4)$$

式中 $x_i = G(\Gamma_i)$, $b_j = g(\tau_j)$, \mathbf{A} 的元素为 $a_{i,j} = \exp(-2\Gamma_i\tau_j)$ 。对(4)式进行求解可得 $G(\Gamma_i)$,其与粒径的关系即为 PSD。但由于(4)式的病态性,不能直接进行求解,只有通过各种优化算法求其近似稳定解。

在 DLS 反演中,由于测量 ACF 噪声以及不合适的反演范围影响,极易使参数优化陷入局部极小值,难以得到全局最优解。小波变换具有多尺度的特点,它能够将含噪 ACF 分解到一系列多尺度嵌套子空间,粗尺度空间对应近似部分,细尺度空间对应细节部分,即噪声部分,随着分解尺度变粗,噪声分量被去掉,相关函数逐渐平滑。这样,经过多尺度变换后,ACF 被分解到多个子空间,从而构成多个子反演问题。具体反演规则为:首先从粗尺度开始对各子问题进行反演,因粗尺度 ACF 最平滑,即使选择大的粒径反演范围也易于搜索出该尺度的全局最优值,获取大致的粒径分布;然后,尺度逐步变细,将上述粗尺度反演得到的粒径分布

范围逐步用于细尺度。尽管此时 ACF 的细节部分逐步得到恢复,但由于缩小了反演范围,相当于在最优值附近寻优,较容易搜寻到该尺度的最优粒径。依此类推直到降到原始尺度,获得最终的全局最优粒径分布。具体运算流程如图 1 所示。

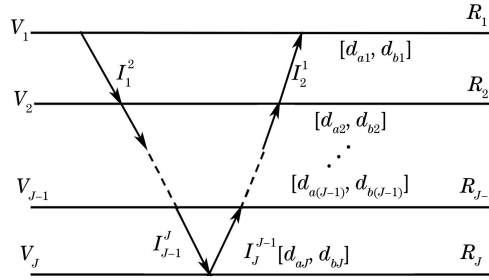


图 1 多尺度空间运算流程图

Fig. 1 Operation flow chart of multi-scale space

在图 1 中, $V_i (i=1,2,\dots,J)$ 表示第 i 个尺度空间, I_{j-1}^j, I_j^{j-1} 分别表示 ACF 的小波分解及重构, R_j 表示 J 尺度子问题的反演运算, $[d_{aJ}, d_{bJ}]$ 表示 $J-1$ 尺度的反演范围, 其是 J 尺度子问题反演结果的分布范围。其中小波分解与重构采用 Mallat 算法实现^[12]。在每个子空间, 各子反演问题仍是不同病态程度的单尺度反演问题, 可以采用相应的反演方法进行求解。

3 TTWRIM 动态光散射反演

3.1 Tikhonov 及 TSVD 反演

DLS 反演问题为(4)式的病态方程求解问题。该方程中 \mathbf{b} 的微小噪声将会导致解出现很大偏差, 甚至出现不稳定的现象。Tikhonov 正则化是解决这类问题的有效方法^[13-14], 它通过引入展平泛函构造正则算子对问题进行求解:

$$M^\alpha[x, \mathbf{b}] = \|\mathbf{A}x - \mathbf{b}\|_2^2 + \alpha \|\mathbf{L}(x - x_0)\|_2^2, \quad (5)$$

式中 \mathbf{L} 为微分算子, x_0 为解的初始估计, α 为正则化参数。当 \mathbf{L} 为单位矩阵时, 称为标准 Tikhonov 正则化。 $x_0 = 0$ 时, 标准 Tikhonov 正则化可表示为

$$M^\alpha[x, \mathbf{b}] = \|\mathbf{A}x - \mathbf{b}\|_2^2 + \alpha \|x\|_2^2. \quad (6)$$

选择一定的正则化参数, 其正则解为 $x_{\text{Tikhonov}} = \min\{M^\alpha[x, \mathbf{b}]\}$ 。

由奇异值分解理论可知, 较小的奇异值反映数据中的噪声部分, 其对解的误差起到放大作用。TSVD 正则化的原理就是把小奇异值去掉, 从而达到减小解误差的目的。

假设矩阵 $\mathbf{A} \in R^{m \times n} (m \geq n)$, 对 \mathbf{A} 进行奇异值分解:

$$\mathbf{A} = \mathbf{U} \sum \mathbf{V}^T = \sum_{i=1}^n u_i \sigma_i v_i^T, \quad (7)$$

式中 σ_i 为奇异值, $\sum = \text{diag}(\sigma_1, \sigma_2, \dots, \sigma_n)$, $\mathbf{U} = (u_1, u_2, \dots, u_n) \in R^{m \times n}$, $\mathbf{V} = (v_1, v_2, \dots, v_n) \in R^{m \times n}$ 分别为左、右奇异向量。

为了去掉小奇异值 σ_i 对解的影响, 当任意 $k < \text{rank}(\mathbf{A})$ 时, 截掉后 $k \times k$ 维系数矩阵可构造新矩阵:

$$\mathbf{A}_k = \sum_{i=1}^k u_i \sigma_i v_i^T, \quad (8)$$

式中矩阵 \mathbf{A}_k 是秩为 k 的矩阵中最接近原矩阵 \mathbf{A} 的。这样将原问题 $\mathbf{A}x = \mathbf{b}$ 的求解转化为 $\mathbf{A}_k x = \mathbf{b}$ 的求解, 其解可表示为

$$x_{\text{TSVD}} = \min \|\mathbf{A}_k x - \mathbf{b}\|_2^2, \quad (9)$$

式中 k 称为正则参数, 选择一定的正则参数, 可求其正则解。

3.2 TTWRIM 动态光散射反演算法

由多尺度 DLS 反演原理可知, 反演范围的自适应调整是通过多个嵌套子问题的反演逐步获取的。考虑

粗尺度空间主要是获取反演范围,对解的精度要求不高,但对解的平滑性要求较高,这样由反演结果获取反演范围更容易、误差更小。在获取反演范围后,在最细尺度空间获得最终的反演结果。因此,最细尺度空间反演方法对反演结果精度的影响较大。由 Tikhonov 及 TSVD 用于 DLS 反演的分析可以得出:Tikhonov 平滑性好、TSVD 抗噪能力及双峰分辨能力更强。因此,将平滑性较好的 Tikhonov 用于粗尺度反演,这样更易于寻找反演范围。获取最终的反演范围后,将抗干扰能力及双峰分辨力强的 TSVD 用于细尺度反演。该算法结合了两种正则化的优点进行反演。同时为了保证最细尺度空间解的平滑性,对其解采用如下的五点三次平滑算法^[15]进行处理得到最终的 PSD 为

$$\begin{cases} \bar{x}_{-2} = \frac{1}{70}(69x_{-2} + 4x_{-1} - 6x_0 + 4x_1 - x_2) \\ \bar{x}_{-1} = \frac{1}{30}(2x_{-2} + 27x_{-1} + 12x_0 - 8x_1 + 2x_2) \\ \bar{x}_0 = \frac{1}{35}(-3x_{-2} + 12x_{-1} + 17x_0 + 12x_1 - 3x_2), \\ \bar{x}_1 = \frac{1}{35}(2x_{-2} - 8x_{-1} + 12x_0 + 27x_1 + 2x_2) \\ \bar{x}_2 = \frac{1}{70}(-x_{-2} + 4x_{-1} - 6x_0 + 4x_1 + 69x_2) \end{cases} \quad (10)$$

式中 x_i 、 \bar{x}_i 分别为平滑处理前后的解。在两种正则化方法中,均需要确定正则化参数。两种方法的正则参数均采用 L-curve 准则^[16]确定。对于反演结果,考虑 PSD 的非负性,应满足 $x \geq 0$ 的约束条件。对于 Tikhonov 反演,采用 x 负值置零的方法。对于 TSVD 反演,采用 Trust 非负约束^[17]。另外,在反演范围获取时,为了防止粗尺度 PSD 在靠近边缘处误差偏大,从而影响临近细尺度反演范围的确定,可以将粗尺度反演 PSD 边缘处的几点 PSD 置为零。

4 模拟反演分析

4.1 模拟反演的实验参数及条件

为了研究 TTWRIM 的反演效果,采用模拟 DLS 数据进行分析。模拟数据获取方法为:首先模拟产生不同颗粒系的无噪声 ACF,然后在无噪 ACF 中分别加入不同水平的正态分布白噪声。在模拟实验中,模拟初始粒径分布采用 Johnson's SB 函数^[18],该函数的表达式为

$$f(x) = \frac{\sigma}{\sqrt{2\pi}(x_{\max} - x_{\min})} [t(1-t)]^{-1} \exp\left\{-0.5 \left[u + \sigma \ln\left(\frac{t}{1-t}\right) \right]^2\right\}, \quad (11)$$

式中 $t = (x - x_{\min}) / (x_{\max} - x_{\min})$ 是归一化尺寸, x_{\max} 、 x_{\min} 分别为分布粒子中最大及最小粒径, u 和 σ 是分布参数,通过改变分布参数,能够模拟出不同形式的 PSD。模拟实验中的参数分别为:分散介质(水)折射率为 1.331,入射光波长为 632.8 nm,测量温度为 25 °C,散射角为 90°,水的粘性系数为 $0.89 \times 10^{-3} \text{ N}\cdot\text{s}/\text{m}^2$,玻尔兹曼常数为 $1.3807 \times 10^{-23} \text{ J}/\text{K}$ 。为了研究该方法的准确性,引入以下参数作为衡量指标:

- 1) 峰值(PV),颗粒分布峰值点对应的粒径。
- 2) 峰值误差(PVE, E_{PV}),描述反演峰值与真实峰值的相对误差大小。

$$E_{\text{PV}} = (|d_{\text{ps}} - d'_{\text{ps}}| / d'_{\text{ps}}) \times 100\%, \quad (12)$$

式中 d_{ps} 、 d'_{ps} 分别为反演峰值,模拟 PSD 峰值(即真实峰值)。

- 3) PSD 相对误差(PSDRE, E_{PSDR}),描述反演 PSD 与真实 PSD 误差的大小。

$$E_{\text{PSDR}} = (\|x - x'\|_2 / \|x'\|_2) \times 100\%, \quad (13)$$

式中 x 、 x' 分别为反演 PSD 与模拟 PSD(即真实 PSD)。

4.2 Tikhonov 与 TSVD 单尺度反演分析

分别取粒径 250~550 nm 单峰以及 100~600 nm 双峰分布颗粒系进行分析。其中,单峰颗粒系相应的参数为: $u = 0$, $\sigma = 1.1$, $\alpha_{\max} = 550 \text{ nm}$, $\alpha_{\min} = 250 \text{ nm}$ 。双峰颗粒系由两个单峰颗粒系按 1:1 的光强比进行混

合而成,相应的参数为: $u_1 = 3.8, \sigma_1 = 2.1, u_2 = -2.4, \sigma_2 = 2.0, \alpha_{\max} = 600 \text{ nm}, \alpha_{\min} = 100 \text{ nm}$ 。分别采用单尺度 Tikhonov、单尺度 TSVD,对噪声水平分别为 0.001、0.005、0.01 的上述两种颗粒数据进行反演。其中单峰、双峰颗粒系的初始反演范围分别为 $[150 \text{ nm}, 700 \text{ nm}]$ 、 $[1 \text{ nm}, 800 \text{ nm}]$,反演 PSD 及数据如图2~3 及表 1~2 所示。

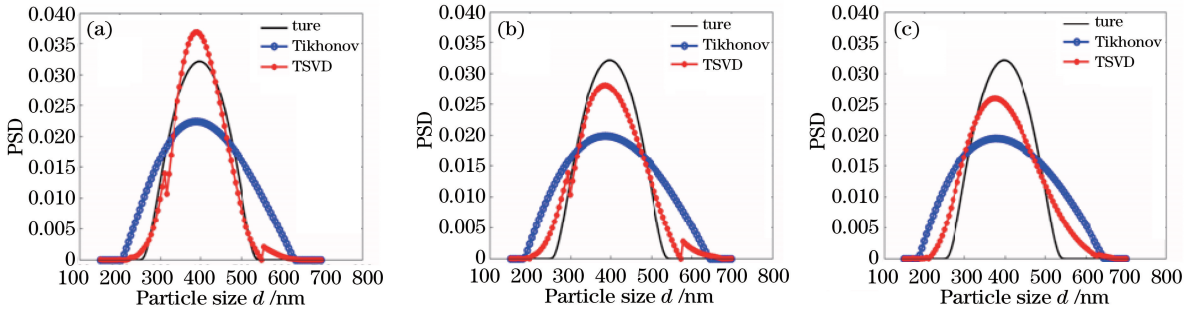


图 2 不同噪声水平下,250~550 nm 单峰分布颗粒系的反演 PSD。(a) 0.001;(b) 0.005;(c) 0.01

Fig. 2 Inverse PSD of unimodal distribution particles with particle size in range of 250~550 nm at different noise levels. (a) 0.001; (b) 0.005; (c) 0.01

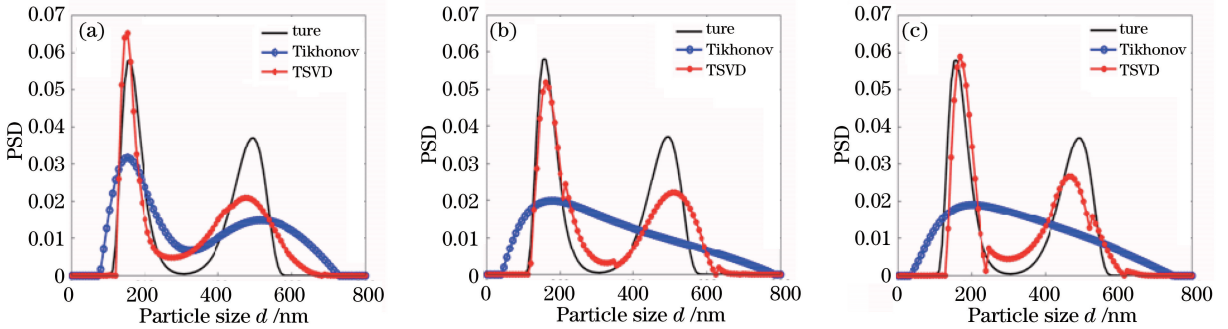


图 3 不同噪声水平下,100~600 nm 双峰分布颗粒系的 PSD。(a) 0.001;(b) 0.005;(c) 0.01

Fig. 3 Inverse PSD of bimodal distribution particles with particle size in range of 100~600 nm at different noise levels. (a) 0.001; (b) 0.005; (c) 0.01

表 1 250~550 nm 单峰分布颗粒的反演数据

Table 1 Inverse data of unimodal distribution particles with particle size in range of 250~550 nm

Noise level	Tikhonov			TSVD		
	PV /nm	PVE /%	PSDRE	PV /nm	PVE /%	PSDRE
0.001	392.0	1.38	0.3899	392.0	1.38	0.1427
0.005	386.5	2.77	0.4604	386.5	2.77	0.1851
0.01	375.5	5.53	0.4756	375.5	5.53	0.2607

表 2 100~600 nm 双峰分布颗粒的反演数据

Table 2 Inverse data of bimodal distribution particles with particle size in range of 100~600 nm

Noise level	Tikhonov			TSVD		
	PV /nm	PVE /%	PSDRE	PV /nm	PVE /%	PSDRE
0.001	152.81, 512.36	4.97, 3.22	0.5668	152.81, 472.41	4.97, 4.83	0.3473
0.005	-, -	-, -	0.7394	160.80, 512.36	0, 3.22	0.3356
0.01	-, -	-, -	0.7425	168.79, 464.44	4.97, 6.43	0.3621

由图 2、3 和表 1、2 可以看出, Tikhonov 反演 PSD 的平滑性更好, 而 TSVD 的平滑性较差; 相对 Tikhonov, TSVD 的 PSDRE 更低, 对单峰及双峰分布颗粒, TSVD 最多可改善 PSDRE 分别为 0.2753、0.4038; 对双峰分布颗粒, TSVD 的双峰分辨能力更强。在噪声达到 0.01 时还能得到明显的双峰 PSD, 而 Tikhonov 只有在噪声水平为 0.001 时才能够得到双峰的 PSD, 当噪声水平大于等于 0.005 时, 不能得到双峰的 PSD。这也从另一个角度说明 TSVD 具有较强的抗干扰性; 从 PVE 角度看, TSVD 一般能够得到较小的

PVE, 由于数据的随机性, 偶尔也会出现高于 Tikhonov 的情况, 如双峰颗粒在噪声为 0.001 时, TSVD 第二个 PVE 由 3.22% 变为 4.83%。因此, 通过上述分析总体可以得出: TSVD 反演粒径误差及峰值误差更小、抗噪声能力及双峰分辨能力更强, 但平滑性较差。

4.3 TTWRIM 动态光散射反演分析

在较大的初始反演范围及强噪声情况下, 为了验证 TTWRIM 的有效性, 将该方法与传统的 Tikhonov、TSVD 及 WRIM 进行了对比研究。采用四种宽窄不同的单峰及双峰分布颗粒, 具体参数见表 3。每种颗粒的数据噪声水平分别为 0.001、0.005 和 0.01。四种方法的初始反演范围均为 $[1 \text{ nm}, 2000 \text{ nm}]$ 。在 WRIM 及 TTWRIM 方法中, 小波变换采用 Inrid Daubechies 构造的小波基函数 Daubechies (db N), 其中, N 为小波消失矩^[19]。本文采用的 Matlab 软件中提供的小波基“db25”。此外, 在这两种方法中, 小波初始分解尺度的选取原则为: 选取 1 到 7 个初始分解尺度, 取 PSDRE 最小的尺度对应的反演 PSD 作为最终反演结果, 则四种方法的反演 PSD 及数据如图 4~7 及表 4~7 所示。

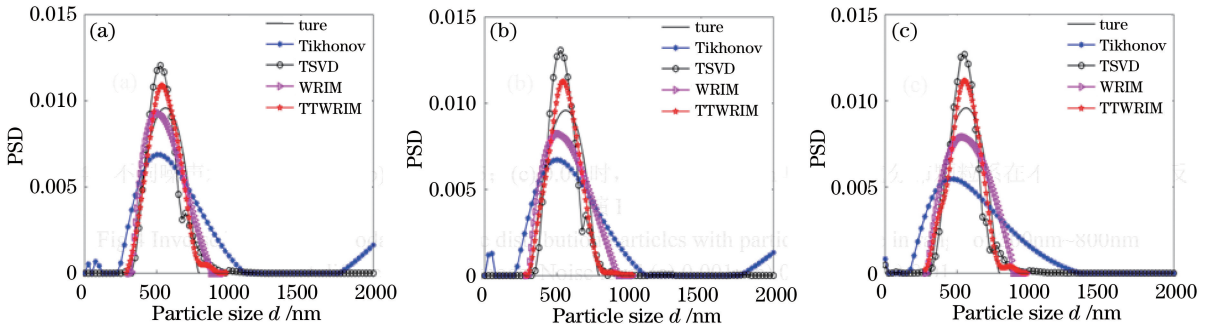


图 4 不同噪声水平下, 300~800 nm 单峰宽分布颗粒系在不同方法下的反演 PSD。(a) 0.001; (b) 0.005; (c) 0.01

Fig. 4 Inverse PSD of unimodal wide distribution particles with particle size in range of 300~800 nm using different methods at different noise levels. (a) 0.001; (b) 0.005; (c) 0.01

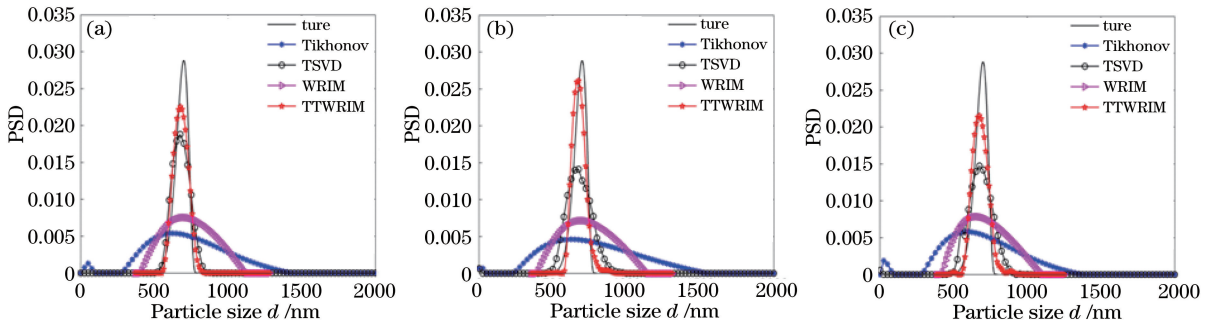


图 5 不同噪声水平下, 300~800 nm 单峰窄分布颗粒系在不同方法下的反演 PSD。(a) 0.001; (b) 0.005; (c) 0.01

Fig. 5 Inversion PSD of unimodal narrow distribution particles with particle size in range of 300~800 nm using different methods at different noise levels. (a) 0.001; (b) 0.005; (c) 0.01

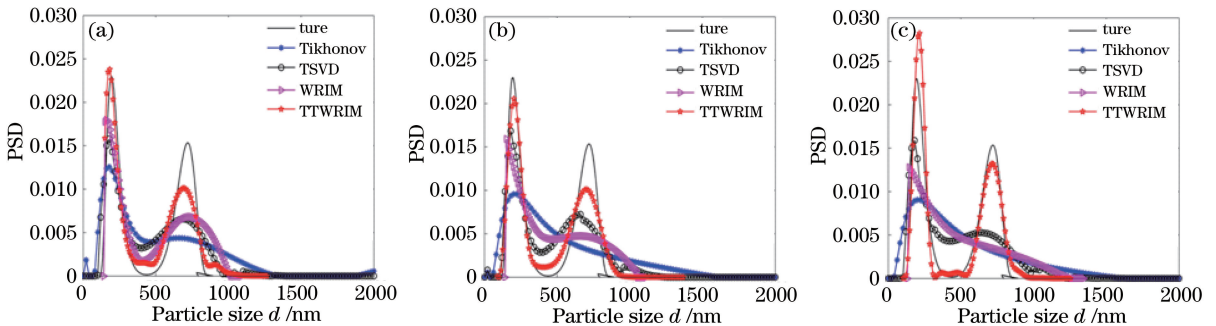


图 6 不同噪声水平下, 100~900 nm 双峰宽分布颗粒系在不同方法下的反演 PSD。(a) 0.001; (b) 0.005; (c) 0.01

Fig. 6 Inversion PSD of bimodal wide distribution particles with particle size in range of 100~900 nm using different methods at different noise levels. (a) 0.001; (b) 0.005; (c) 0.01

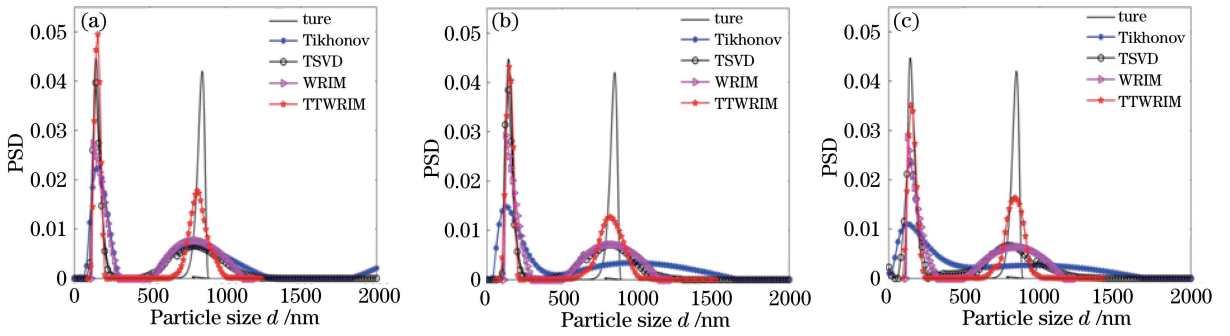


图 7 不同噪声水平下,100~900 nm 双峰窄分布颗粒系在不同方法下的反演 PSD。(a) 0.001;(b) 0.005;(c) 0.01

Fig. 7 Inversion PSD of bimodal narrow distribution particles with particle size in range of 100~900 nm using different methods at different noise levels. (a) 0.001; (b) 0.005; (c) 0.01

表 3 不同颗粒的模拟参数

Table 3 Simulation parameters of different particles

Particals		Min /nm	Max /nm	u_1	σ_1	u_2	σ_2
Unimodel	Wide	300	800	-0.2	2.0	-	-
	Narrow	300	800	-2.5	2.0	-	-
Bimodel	Wide	100	900	-2.5	2.2	3.8	2.1
	Narrow	100	900	-5.5	2.2	5.5	2.1

表 4 不同噪声水平下,300~800 nm 单峰宽分布颗粒的反演数据

Table 4 Inverse data of unimodal wide distribution particles with particle size in range of 300~800 nm at different noise levels

Method	0.001			0.005			0.01		
	PV /nm	PVE /%	PSDRE	PV /nm	PVE /%	PSDRE	PV /nm	PVE /%	PSDRE
Tikhonov	500.75	10.7	0.4160	500.75	10.74	0.4325	475.76	15.20	0.5359
TSVD	525.74	6.28	0.2789	525.74	6.28	0.3308	550.72	1.83	0.2902
WRIM	500.28	10.82	0.1774	505.96	9.81	0.2495	543.13	3.19	0.2647
TTWRIM	532.79	5.03	0.1219	543.13	3.18	0.1374	551.92	1.62	0.1509

表 5 不同噪声水平下,300~800 nm 单峰窄分布颗粒的反演数据

Table 5 Inverse data of unimodal narrow distribution particles with particle size in range of 300~800 nm at different noise levels

Method	0.001			0.005			0.01		
	PV /nm	PVE /%	PSDRE	PV /nm	PVE /%	PSDRE	PV /nm	PVE /%	PSDRE
Tikhonov	625.68	10.49	0.8385	625.68	10.49	0.8642	600.70	14.06	0.8355
TSVD	675.66	3.34	0.3446	675.66	3.34	0.5123	675.66	3.34	0.4853
WRIM	700.24	0.17	0.7835	700.32	0.19	0.7930	654.32	6.39	0.7657
TTWRIM	677.32	3.10	0.2374	676.31	3.25	0.2449	676.11	3.28	0.2743

表 6 不同噪声水平时 100 nm~900 nm 双峰宽分布颗粒系的反演数据

Table 6 Inverse data of bimodal wide distribution particles with particle size in range of 100~900 nm at different noise levels

Method	0.001			0.005			0.01		
	PV /nm	PVE /%	PSDRE	PV /nm	PVE /%	PSDRE	PV /nm	PVE /%	PSDRE
Tikhonov	180.91	7.23	0.5853	-,-	-,-	0.6973	-,-	-,-	0.7127
	660.67	8.24							
TSVD	180.91	7.23	0.4579	180.91	7.23	0.4267	180.91	7.23	0.5096
	680.66	5.46		660.67	8.24		640.68	11.02	
WRIM	161.07	17.40	0.4312	151.66	22.23	0.5531	-,-	-,-	0.6251
	739.39	2.69		665.43	7.58				
TTWRIM	183.86	5.72	0.2349	203.48	4.34	0.2603	216.09	10.81	0.2487
	696.91	3.21		702.67	2.41		712.39	1.06	

表 7 不同噪声水平下,100~900 nm 双峰窄分布颗粒系的反演数据

Table 7 Inverse data of bimodal narrow distribution particles with particle size in range of 100~900 nm at different noise levels

Method	0.001			0.005			0.01		
	PV /nm	PVE /%	PSDRE	PV /nm	PVE /%	PSDRE	PV /nm	PVE /%	PSDRE
Tikhonov	160.92	10.97	0.6708	120.94	16.60	0.7816	120.94	16.60	0.8369
	780.61	7.62		980.51	16.04		960.52	13.67	
TSVD	140.93	2.81	0.4965	140.93	2.81	0.4785	140.93	2.81	0.6049
	800.60	5.26		820.59	2.89		800.60	5.26	
WRIM	125.45	13.49	0.6177	125.84	13.22	0.6058	126.11	13.03	0.6228
	797.75	5.59		824.60	2.41		844.03	0.12	
TTWRIM	155.54	7.26	0.4020	146.17	0.8	0.4223	147.11	1.45	0.4160
	813.60	3.71		817.81	3.22		839.12	0.70	

根据图 4~7 及表 4~7,对上述四种方法的反演结果进行分析。

1) 从 PSDRE 的角度:TTWRIM 的 PSDRE 最小,Tikhonov 的 PSDRE 最大,WRIM、TSVD 介于两者之间。但相对 WRIM 而言,TSVD 更小,这是由于 WRIM 每个子问题都统一采用了 Tikhonov 进行反演,而 Tikhonov 的抗干扰能力差。因 TTWRIM 结合 Tikhonov 与 TSVD 的优点进行反演,所以 PSDRE 最小。与 WRIM 相比,对于单峰宽、单峰窄、双峰宽及双峰窄四种颗粒,TTWRIM 可分别改善 PSDRE 为 0.1138、0.5481、0.3764、0.2157。与 TSVD 相比,可分别改善 PSDRE 为 0.1934、0.2674、0.2609、0.1189。与 Tikhonov 相比,TTWRIM 的 PSDRE 改善更大,分别为 0.3850、0.6193、0.4640、0.4209。以上数据表明,TTWRIM 对单峰窄、双峰宽分布颗粒的反演,误差改善最显著。

2) 从反演 PSD 的平滑性角度:虽然 Tikhonov 的 PSD 有时会存在一定程度的次峰分布,但是其平滑性最好。WRIM 沿袭了 Tikhonov 的优点,平滑性也很好。TSVD 的平滑性最差,其 PSD 有时会出现毛刺。尽管 TTWRIM 在最细尺度空间上采用了 TSVD 进行反演,但由于对反演 PSD 进行了平滑处理,其平滑性得到了明显地改善。

3) 从反演 PVE 角度:由于过大反演范围及较强噪声的影响,Tikhonov 峰值稳定性差,其 PVE 最大,如对双峰窄颗粒(0.01)的反演,PVE 可达 16.6%。相对于 Tikhonov,WRIM 的 PVE 大多数情况下会得到不同程度的改善,但强噪声情况下,改善并不显著。相对于 Tikhonov 和 WRIM,TSVD 的 PVE 大多数情况都会明显变好,但由于数据的随机性,偶尔也会出现变差的情况,如单峰窄颗粒(0.005),TSVD 的 PVE 为 3.34%,而 WRIM 只有 0.17%,但总体而言 TSVD 的 PVE 较小。相对于 TSVD,TTWRIM 的 PVE 大多数情况都会有不同程度的改善,对于单峰宽、单峰窄、双峰宽及双峰窄四种颗粒,其 PVE 最多可改善 3.1%、0.24%、9.96%、12.42%,相对于其他两种方法改善更明显。因此,一般来看,TTWRIM 的峰值误差最小。

4) 从双峰分辨能力角度:双峰分辨能力可以用于衡量反演算法对双峰颗粒反演的准确性。Tikhonov 只有在较小噪声(0.001)时,才能分辨出宽窄不同的两种双峰颗粒,但是由于反演范围过大,其 PSD 的双峰特征不显著。WRIM 对于窄颗粒,双峰分辨能力较好,但对于宽颗粒,其数据噪声大于 0.005 时,不能反演出双峰的 PSD。对于窄颗粒,TSVD 的双峰分辨能力与 WRIM 相差不大。对于宽分布颗粒,TSVD 的双峰分辨能力有一定程度的增强,但仍不够。TTWRIM 分辨能力最强,对于两种宽窄不同的颗粒,在三种噪声下都能分辨出明显的双峰 PSD,且与理想峰值高度最接近。因此,TTWRIM 的双峰分辨能力最强。

综合以上分析,可以得出结论:在较强噪声及较大的初始反演范围内,采用 Tikhonov、TSVD、WRIM 以及 TTWRIM 四种方法对颗粒进行反演时,TTWRIM 反演误差最小,抗干扰及双峰分辨能力最强,一般情况下峰值误差最小,有较好的平滑性。

5 实验数据的反演分析

使用 Brookhaven 实验装置获得 DLS 实验数据。实验中,激光器采用波长为 632.8 nm 的 He-Ne 激光器、散射角为 90°、温度为 25 °C、分散介质为纯净水。实验颗粒为标准聚苯乙烯乳胶颗粒,分别为 300 nm 单

峰、100~500 nm(光强比约 1:1)双峰颗粒。在初始反演范围[1 nm, 2000 nm]内,分别采用 Tikhonov、TSVD、WRIM 和 TTWRIM 对实验数据进行反演,反演 PSD 及数据如图 8 及表 8 所示。

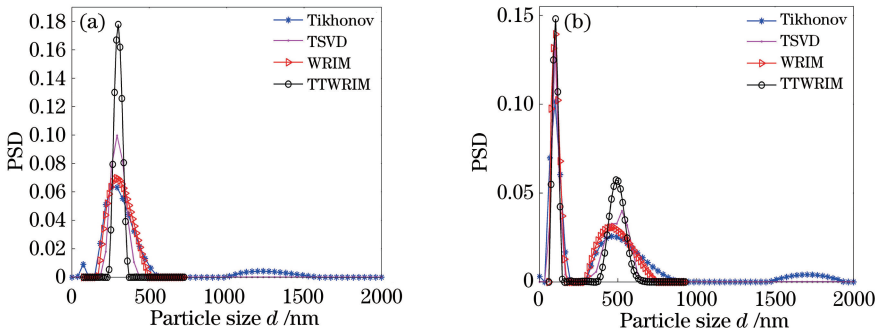


图 8 不同粒径实验颗粒在不同反演方法下的反演 PSD。(a) 300 nm; (b) 100~500 nm
Fig. 8 Inverse PSD of the experiment particles with different diameters using different methods.
(a) 300 nm; (b) 100~500 nm

从图 8 及表 8 可以看出,Tikhonov 的平滑性好,但反演 PSD 含有次峰分布、PVE 最大,300nm 单峰达到 14.86%,与实际粒径分布相差较大。对比 Tikhonov、TSVD、WRIM 三种方法,TTWRIM 的 PVE 最小,300 nm 单峰颗粒只有 0.18%,100~500 nm 双峰颗粒为 2.81%,其反演 PSD 的平滑性较好,并能明显地分辨出两个峰,表明其双峰分辨能力最强。相对 Tikhonov,WRIM 及 TSVD 的 PVE、双峰分辨能力都有不同程度的改善,但比起 TTWRIM,两种方法改善均不够显著,且 TSVD 反演 PSD 的平滑性较差。因此,实验数据的反演结果也验证了模拟数据的结论。

表 8 不同粒径实验颗粒在不同反演方法下的反演数据

Table 8 Inverse data of the experiment particles with different diameters using different methods

Diameter /nm	Tikhonov		TSVD		WRIM		TTWRIM	
	PV /nm	PVE /%	PV /nm	PVE /%	PV /nm	PVE /%	PV /nm	PVE /%
300	255.42	14.86	291.76	2.75	287.64	4.12	299.45	0.18
100~500	99.31	0.69	99.31	0.69	102.82	2.82	102.81	2.81

6 结 论

在大反演范围内,WRIM 是一种提高 DLS 数据反演准确性的有效方法,但其对强噪声及双峰数据的反演精度差。为了提高 WRIM 算法的抗噪声及双峰分辨能力,通过对传统的单尺度 Tikhonov、TSVD 正则化在 DLS 反演中的应用研究得出:Tikhonov 平滑性好;TSVD 反演粒径误差、峰值误差更小,双峰的分辨能力及抗噪声能力更强。基于此研究,结合 Tikhonov 与 TSVD 各自的优点,分别将它们用于多尺度反演中的粗细子空间,由此提出了一种 TTWRIM 多尺度 DLS 反演方法。在 0.001、0.005、0.01 三种噪声情况下,分别采用 Tikhonov、TSVD、WRIM 和 TTWRIM 四种方法对模拟数据进行了反演分析。结果表明:在较大的初始反演范围内,一般 TTWRIM 反演误差最小、峰值误差最小、抗干扰能力及双峰分辨能力最强、有较好的平滑性。因为计算的随机性,可能偶而会出现其他方法某个参数好的情况,但总体而言,TTWRIM 优于其他方法。实验颗粒的反演也验证了模拟数据的结论。对于粒径分布范围未知的颗粒反演,该研究具有重大的实际意义。

参 考 文 献

[1] Liu Wei, Wang Yajing, Chen Wengang, *et al.* Influence of the regularization matrix on the inversion of bimodal dynamic light scattering data[J]. Chinese J Lasers, 2015, 42(9): 0908003.
刘 伟, 王雅静, 陈文钢, 等. 正则矩阵对双峰分布动态光散射数据反演的影响[J]. 中国激光, 2015, 42(9): 0908003.

[2] Wang Huarui, Shen Jianqi, Yu Haitao, *et al.* Inversion problem in submicron and nanometer particle sizing using laser

- self-mixing interferometry[J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, 28(12): 2335-2343.
王华睿, 沈建琪, 于海涛, 等. 激光自混合干涉法亚微米及纳米颗粒测量中的反问题[J]. *光学学报*, 2008, 28(12): 2335-2343.
- [3] Liu W, Sun X, Shen J. A V-curve criterion for the parameter optimization of the Tikhonov regularization inversion algorithm for particle sizing[J]. *Optics & Laser Technology*, 2012, 44(1): 1-5.
- [4] Provencher S W. CONTIN: A general purpose constrained regularization program for inverting noisy linear algebraic and integral equations[J]. *Computer Physics Communications*, 1982, 27(3): 229-242.
- [5] Han Qiuyan, Shen Jin, Sun Xianming, *et al.* A posterior choice strategies of the Tikhonov regularization parameter in the inverse algorithm of the photon correlation spectroscopy particle sizing techniques[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2009, 38(11): 2917-2926.
韩秋燕, 申 晋, 孙贤明, 等. 基于 Tikhonov 正则参量后验选择策略的 PCS 颗粒粒度反演方法[J]. *光子学报*, 2009, 38(11): 2917-2926.
- [6] Dahneke B E. *Measurement of suspended particles by quasi-elastic light scattering*[M]. New York: Wiley Interscience, 1983.
- [7] Sun Y f, Walker J G. Maximum likelihood data inversion for photon correlation spectroscopy[J]. *Measurement Science and Technology*, 2008, 19(11): 115302.
- [8] Morrison I D, Grabowski E F, Herb C A. Improved techniques for particle size determination by quasi- elastic light scattering[J]. *Langmuir*, 1985, 1(4): 496-501.
- [9] Zhu X J, Shen J, Liu W, *et al.* Nonnegative least-squares truncated singular value decomposition to particle size distribution inversion from dynamic light scattering data[J]. *Applied Optics*, 2010, 49(36): 6591-6596.
- [10] Wang Y J, Shen J, Zheng G, *et al.* Wavelets-regularization method for particles size inversion in photon correlation spectroscopy[J]. *Optics and Laser Technology*, 2012, 44(5): 1529-1535.
- [11] Yu S L, Yang G L, He Z J, *et al.* Iterative CONTIN algorithm for particle sizing in dynamic light scattering[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2006, 33(8): 64-69.
- [12] Ge Zhexue. *Wavelet analysis theory and the realization of MATLAB R2007* [M]. Beijing: Publishing House of Electronics Industry, 2007: 76-82.
葛哲学. *小波分析理论与 MATLAB R2007 实现*[M]. 北京: 电子工业出版社, 2007: 76-82.
- [13] Hansen P C. Regularization tools version 4.0 for Matlab 7.3[J]. *Numerical Algorithms*, 2007, 46(2): 189-194.
- [14] Budd C J, Freitag M A, Nichols N K. Regularization techniques for ill-posed inverse problems in data assimilation[J]. *Computers & Fluids*, 2011, 46(1): 168-173.
- [15] Ding Li, Wu Hongtao, Yao Yu, *et al.* Hybrid PEM-ABC algorithm for system identification of small-scale unmanned helicopter[J]. *Transactions of the Chinese Society for Agricultural Machinery*, 2016, 47(1): 8-14.
丁 力, 吴洪涛, 姚 裕, 等. 基于 PEM-ABC 算法的小型无人直升机系统辨识[J]. *农业机械学报*, 2016, 47(1): 8-14.
- [16] Hansen P C, O'Leary D P. The use of the L-curve in the regularization of discrete ill-posed problems[J]. *Siam J Sci Comput*, 1993, 14(6): 1487-1503.
- [17] Coleman T F, Li Y. An interior trust region approach for nonlinear minimization subject to bounds[J]. *Siam Journal on Optimization*, 1996, 6(2): 418-445.
- [18] Yu A B, Standish N. A study of particle size distribution[J]. *Powder Technology*, 1990, 62(2): 101-118.
- [19] Hu Guangshu. *Modern signal processing course*[M]. Beijing: Tsinghua University Press, 2004: 333-340.
胡广书. *现代信号处理教程*[M]. 北京: 清华大学出版社, 2004: 333-340.