

基于改进的 Chahine 迭代算法的粒径分布反演

曹丽霞¹, 赵军¹, 孔明¹, 单良², 郭天太¹

- (1. 中国计量学院 计量测试工程学院, 浙江 杭州 310018;
2. 中国计量学院 信息工程学院, 浙江 杭州 310018)

摘要: 反演算法的速度、精度及稳定性一直是颗粒测量领域中的研究重点。针对传统的 Chahine 迭代算法在反演过程中出现毛刺、伪峰及震荡等不稳定现象, 将正则化理论与 Chahine 迭代算法相结合的改进算法用于颗粒粒径分布的重建。通过引入正则化理论建立新的线性方程, 采用 L 曲线法确定正则化参数, 再利用 Chahine 迭代算法求解该线性方程。仿真及实验结果表明: 改进的算法解决了 Chahine 迭代算法的缺点, 提高了反演结果的稳定性和平滑性。利用改进的算法实现国家标准颗粒的测量, 其迭代 15 000 次所得中值粒径 D50 的相对误差在 2% 以内, 用于描述分布曲线展宽的 D10、D90 的相对误差均在 5% 以内, 且反演时间小于 1 min, 可满足颗粒粒径在线测量的需求。

关键词: 反演; Chahine 迭代算法; 稳定性; 正则化; 粒径分布

中图分类号: O436 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-2276(2015)09-2837-07

Inversion of particle size distribution based on improved Chahine algorithm

Cao Lixia¹, Zhao Jun¹, Kong Ming¹, Shan Liang², Guo Tiantai¹

- (1. College of Metrology & Measurement Engineering, China Jiliang University, Hangzhou 310018, China;
2. College of Information Engineering, China Jiliang University, Hangzhou 310018, China)

Abstract: The speed, precision and stability of inversion algorithm are research emphasis in the field of particle measurement. To counter the problems such as burrs, false peaks and concussion etc. in the process of inversion with traditional Chahine algorithm, an improved algorithm that combines regularization theory with Chahine algorithm was used to reconstruct particle size distribution. A new linear equation was constructed by introducing the regularization theory, the regularization parameter was determined by using L-curve, and Chahine algorithm was used to solve the linear equations. Simulation and experiment results show that the improved algorithm overcomes the disadvantages of traditional Chahine algorithm and improves the stability and gliding property of inversion results. Measured results of standardized polystyrene microsphere is measured by using the improved algorithm, which shows that the relative errors for median diameter D50 is within 2%, and D10, D90 (characterize broadening of

收稿日期: 2015-01-22; 修订日期: 2015-02-27

基金项目: 国家自然科学基金(51476154, 51404223); 浙江省自然科学基金(LQ14E060003, LY13E060006);
能源清洁利用国家重点实验室开放基金

作者简介: 曹丽霞(1989-), 女, 硕士生, 主要从事颗粒测量技术、光电检测方面的研究。Email: clx_zj@163.com

导师简介(通讯作者): 孔明(1978-), 男, 教授, 博士, 主要从事光电检测、精密仪器方面的研究。Email: mkong@cjlu.edu.cn

distribution curve) are both within 5% when the number of inversion is 15 000. In addition, the inversion time is less than 1 minute, which meets online particle size measurement.

Key words: inversion; Chahine algorithm; repeatability; regularization; particle size distribution;

0 引言

颗粒的粒径是颗粒材料的一个重要性质, 实现颗粒粒径的快速、准确测量对于环境、医药、化工、能源等领域有着重要的意义^[1]。在各种颗粒粒径的测量方法中, 由于光散射法具有测量范围宽、速度快、精度高及重复性好等优点, 已广泛应用于工业在线颗粒粒径测量^[2]。

颗粒粒径分布的求解可以归结为第一类Fredholm积分问题^[3]。目前, 国内外对于这类问题的求解还没有解析解, 所以反演算法是颗粒测量的核心。光散射法求解颗粒粒径分布的方法可归结为两大类: 非独立模式算法和独立模式算法。相比于非独立模式算法, 独立模式算法具有不依赖颗粒信息的优点, 在实际颗粒粒径测量过程中, 被测颗粒的粒径信息往往是未知的, 此时, 独立模式算法具有更大的优势^[4]。近年来, 许多学者致力于研究基于正则化理论的颗粒粒度反演, 如徐立军等通过构建基于 Tikhonov 正则化的 ℓ_1 的目标函数实现颗粒粒度反演^[5]; 王燕民等利用松弛迭代技术求解关于 Tikhonov 平滑泛函的线性方程获得稳定的正则解^[6]; 唐红将改进的正则化迭代算法用于消光法颗粒粒度的反演^[7]等。

Chahine 迭代算法是实现颗粒粒度反演的有效方法之一, 具有迭代格式简单、收敛速度快及精度高的特点, 但是该算法具有对噪声较敏感、迭代截止条件较难选择等缺点^[8]。为克服 Chahine 迭代算法不稳定的缺点, 文中构建了基于优化正则化理论的线性方程, 再利用一种非线性迭代算法—Chahine 迭代算法求解该线性方程。分析了随机噪声和迭代次数对算法的影响, 同时, 将这种改进算法与迭代正则化算法和改进的 Tikhonov 算法进行比较。

1 Mie 散射理论的测量原理

当被测颗粒满足不相关单散射的多分散颗粒体系时, 基于 Mie 散射理论的散射光在光电探测器环上的归一化光能分布计算公式为^[2]:

$$E_n = \sum_i \frac{W_i}{D_i^3} \int_{\theta_n}^{\theta_{n+1}} (i_1 + i_2) \sin \theta d\theta \quad (1)$$

式中: i 为颗粒粒径分档数; n 为环号; θ_{n+1} 和 θ_n 分别为内外径的散射角; i_1 和 i_2 分别为垂直和平行于散射面的散射强度函数; D_i 为颗粒粒径; W_i 为待求的颗粒粒径分布。对公式(1)进行离散化处理后写成矩阵形式为:

$$E = TW \quad (2)$$

式中: $E = (e_1, e_2, e_3, \dots, e_n)'$ 为光能分布列向量; $W = (W_1, W_2, W_3, \dots, W_n)'$, 符号“ $'$ ”表示对矩阵转置; T 为光能分布系数矩阵。其表达式如下:

$$T_{i,n} = \frac{1}{D_i^3} \int_{\theta_n}^{\theta_{n+1}} (i_1 + i_2) \sin \theta d\theta \quad (3)$$

颗粒粒径分布的求解问题归结为对公式(2)的求解。公式(2)是一个不适定问题, 直接求解公式(2)会产生不稳定的解, 对于不适定问题的求解需引入反演算法。

2 不适定分析及反演算法

2.1 不适定分析及线性方程的确定

在实际问题中, 对于一个线性不适定方程 $y = Ax$, 由于观测数据 y 受到实验系统内部和外部噪声的干扰而带有一定的误差, 对数据 y 加一扰动误差 δ , 即 $y^\delta = \delta y_i$, 带有扰动误差的观测数据为 $y_\delta = y + y^\delta$, 线性方程为 $y_\delta = Ax$, 则线性方程的解的误差如下^[9]:

$$x_\delta - x = \delta \frac{u_n}{\beta_n} \quad (4)$$

式中: β_n 为矩阵 A 的奇异值; u_n 为左奇异向量。

由公式(4)可以看出, 当奇异值 $\lim_{n \rightarrow \infty} \beta_n = 0$ 时, 线性方程的解的误差被放大, 即 $\delta u_n / \beta_n \rightarrow \infty$, 从而影响解的稳定性。正则化方法可以改善小奇异值对线性方程稳定性的影响, 正则化后的解用奇异系统表达如下式:

$$x = R_\alpha y = \sum_{i=1}^{\infty} \frac{q(\alpha, \beta_i)}{\beta_i} (y, v_k) u_k \quad (5)$$

$$q(\alpha, \beta_i) = \frac{\beta_i^2}{(\alpha + \beta_i^2)^2} \quad (6)$$

式中： $u_k、v_k$ 分别为左右奇异向量； (y, v_k) 表示 $y、v_k$ 两个向量的内积； $q(\alpha, \beta_i)$ 为正则滤波函数， α 为正则化参数， $r > 0$ ，当 $r=1$ 时， $q(\alpha, \beta_i)$ 为 *Tikhonov* 正则化滤波函数。由公式(5)和(6)可知，正则化后的线性方程解的稳定性不仅受到矩阵 A 的奇异值的影响，还受到正则化参数的影响，选择合适的正则化参数能减缓小奇异值对线性方程的影响，使解趋于稳定。

在以上分析的基础上，文中引入李功胜的优化正则化方法来构造目标函数^[10]：

$$((T' T) + \varepsilon L' L) W = (T')' E \quad (7)$$

式中： ε 为正则化参数； L 为正则算子。

对于公式(7)中的正则化参数的选择，文中利用 L 曲线法确定正则化参数^[11]。

2.2 Chahine 迭代算法

近年来，无论在动态光散射法还是在静态光散射法测量领域，Chahine 迭代算法在颗粒粒径反演问题上得到了广泛应用。其迭代格式为：

$$W^{(k+1)} = c^{(k)} * W^{(k)} \quad (8)$$

$$\begin{cases} c^{(k)} = (T' r^{(k)}) ./ \text{sum}(T) \\ r^{(k)} = E ./ E^{(k)} \\ E^{(k)} = T W^{(k)} \end{cases} \quad (9)$$

式中： k 为迭代次数； W 为颗粒粒径分布； T 为光能分布系数矩阵； E 为光能分布列向量；“ $*$ ”表示向量中各对应元素相乘；“ $./$ ”表示向量中各对应元素相除； $\text{sum}(T)$ 表示对矩阵 T 相同列向量中的元素求和。

根据以上分析，通过引入正则化理论将颗粒粒径分布的求解由公式(2)转换成公式(7)的求解问题，利用 L 曲线准则确定正则化参数后，再利用 Chahine 迭代算法求解公式(7)。

3 仿真结果与分析

文中采用 R-R 分布模型对单峰分布的均匀球形颗粒进行仿真实验。

设 R-R 分布的参数 $(X, N) = (39, 4)$ ，颗粒的折射率 $m = (1.596 - 0.1i) / 1.33$ ，颗粒的粒径范围设定为 1~100 μm ，入射光波长 $\lambda = 0.6328 \mu\text{m}$ ，傅里叶透镜焦距 $f = 25 \text{ mm}$ ，考虑光散射含有不同程度的随机噪声，对光能分布列向量分别加入 1%、5%、10% 的随机噪声。公式(7)中 r 的取值不宜过大， $0 < r \leq 1$ 是合适的，

为研究方便，文中取 $r=1, L$ 为单位矩阵。为研究传统的和改进的 Chahine 迭代算法的稳定性，在每一种随机噪声条件下，分别模拟两种算法迭代 1 000、5 000、10 000 次的颗粒粒径分布曲线，并与理论分布进行比较，反演结果如表 1 所示。

表 1 相对均方根误差

Tab.1 RMS

Random noise	Number of iterations	RMS	
		Chahine	Improved Chahine
1%	1 000	5.62%	23.66%
	5 000	6.01%	11.96%
	10 000	6.21%	8.72%
5%	1 000	21.89%	22.38%
	5 000	23.32%	14.68%
	10 000	23.35%	13.24%
10%	1 000	39.37%	25.82%
	5 000	43.85%	16.12%
	10 000	43.90%	14.07%

表 1 中，理论分布曲线及反演所得分布曲线的相对均方根误差(RMS)按照参考文献[4]计算，可以看出，对于传统的 Chahine 迭代算法反演颗粒粒径分布时，在每一种随机噪声条件下，随着迭代次数的增加，RMS 反而会增大，对于 5% 和 10% 的随机噪声情况下，当迭代次数在 5 000 和 10 000 时，RMS 都超过 20%。在相同迭代次数条件下，随机噪声增大时，RMS 呈现增大的趋势。由此可见，传统的 Chahine 迭代算法对迭代次数和噪声比较敏感。当随机噪声在 5% 和 10% 时，改进的 Chahine 迭代算法降低了 RMS，在同一种随机噪声条件下，随着迭代次数的增加，反演所得精度越高，当迭代次数在 10000 次时，RMS 在 15% 以内，反演精度较高。

图 1 为对应于表 1 的传统的 Chahine 迭代算法反演结果。由图 1 可以看出，当随机噪声在 1%，迭代次数在 1 000、5 000、10 000 次时，反演所得分布曲线和理论分布曲线拟合较理想，峰值所在位置和分布宽度都与理论分布相差不大。当随机噪声分别为 5% 和 10% 时，随着迭代次数的增加，反演所得分布曲线均出现毛刺、伪峰、震荡等不稳定现象。在相同迭代次数下，随机噪声增大时，分布曲线逐渐出现稳定性不足及分布宽度变窄的情况。

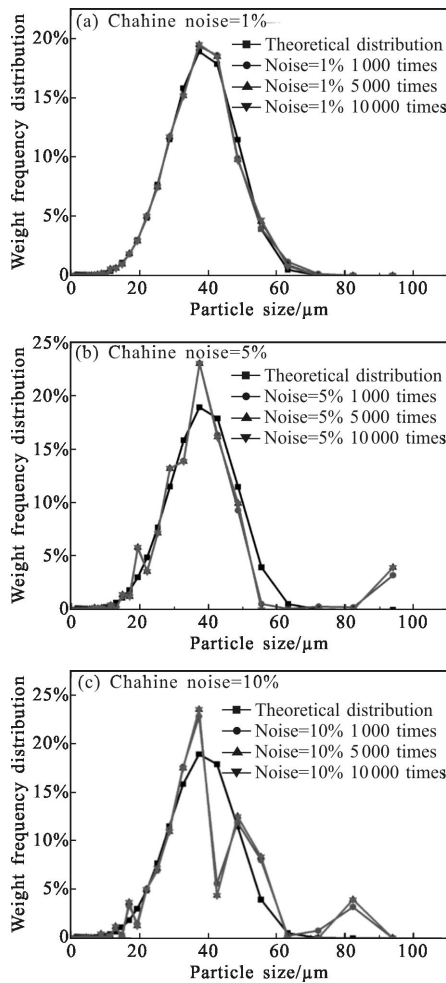


图 1 传统的 Chahine 迭代算法反演结果

Fig.1 Inversion results of traditional Chahine algorithm

图 2 为对应于表 1 的改进的 Chahine 迭代算法反演结果,根据 L 曲线准则,在 1%、5%、10% 的随机噪声条件下,计算所得正则化参数 ϵ 分别为 1.9×10^{-5} 、 6.9×10^{-6} 、 3.7×10^{-4} ,比较图 1 和图 2 可知,当随机噪声在 5% 和 10% 时,改进的 Chahine 迭代算法克服了传统的 Chahine 迭代算法在反演过程中的缺点,提高了颗粒粒径分布反演的稳定性和平滑性,且迭代次数越多,反演所得分布与理论分布越接近。

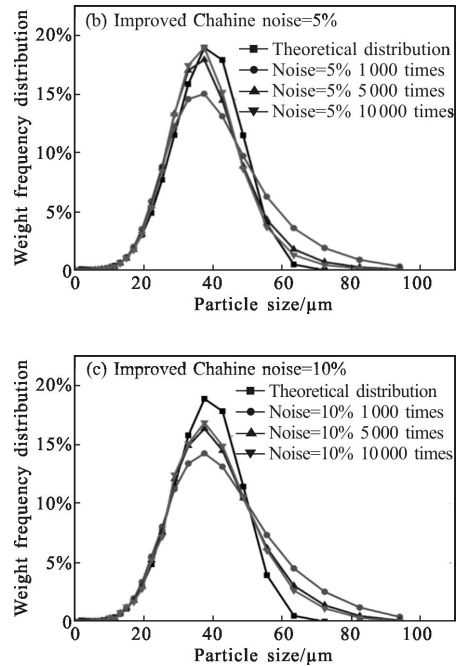
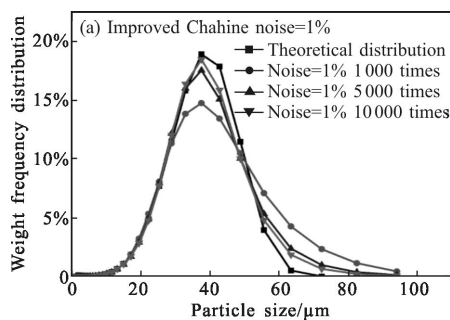


图 2 改进的 Chahine 迭代算法反演结果

Fig.2 Inversion results of improved Chahine algorithm

图 3 为系数矩阵的奇异值比较,图中计算了线性方程式(2)的系数矩阵 T 和在 1%、5%、10% 的随机噪声条件下,线性方程式(7)的系数矩阵 $(T' T + \epsilon L' L)$ 的奇异值(取对数)随着系数矩阵维数的变化规律。由图 3 可以看出,随着矩阵维数的增大,系数矩阵的奇异值都趋向于 0,相比于线性方程式(2),引入正则化后的系数矩阵的奇异值趋于 0 的程度明显得到改善。由此可知,正则化理论的引入使系数矩阵的小奇异值得到改善,结合图 1、图 2、表 1 的分析,正则化理论的引入明显提高了线性方程解的稳定性。

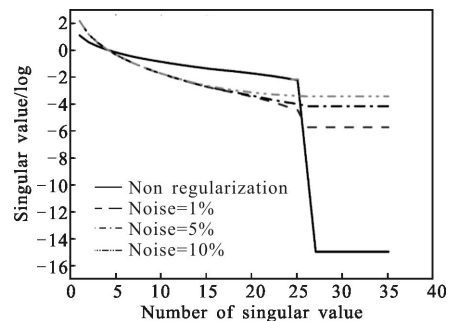


图 3 系数矩阵的奇异值比较

Fig.3 Comparison of singular values of coefficient matrix

图 4 为随机噪声在 10% 时,分别利用文中提出的改进算法、正则化迭代算法中稳定性较好的

Landweber 算法^[12]及改进的 Tikhonov 算法^[7]反演所得的分布曲线。理论分布与反演结果的 RMS 分别为 14.07%、46.27%、57.52%。通过对比可知,文中所提出的算法在随机噪声为 10%时仍然具有较高的精度,改进的算法具有更好的抗噪能力。

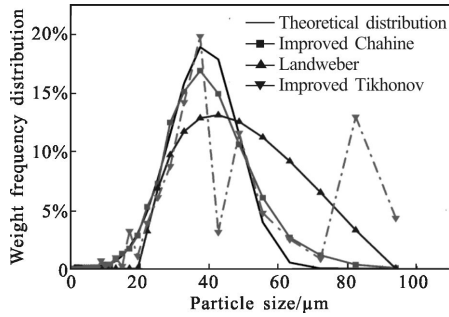


图 4 不同算法的反演结果

Fig.4 Results of different algorithms

4 实验分析

利用提出的算法对国家标准颗粒进行测量,搭建了一套基于 Mie 散射理论的小角前向散射系统,实验装置结构示意图如图 5 所示。

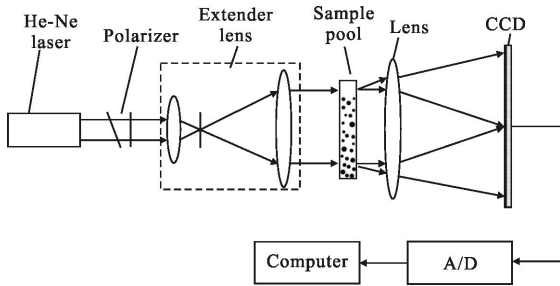


图 5 实验装置结构示意图

Fig.5 Structural representation of test apparatus

He-Ne 激光器 (波长 $\lambda=0.6328 \mu\text{m}$, 功率 $W=2.47 \text{ mW}$)作为整个系统的光源,当 He-Ne 激光器产生的激光光束经过偏振片后,其能量衰减为 1 mW 左右,然后经过 4 倍的扩束准直系统获得光束直径约为 8 mm 的单色的、平行的、光强均匀的激光光束;当光束和比色皿(横截面积为 $10 \times 10 \text{ mm}^2$)里的颗粒相互作用时,产生的散射光经透镜($f=25 \text{ mm}$)会聚在处于焦平面的 CCD (像素为 1024×1280)上,由 CCD 将采集到的散射信号转换为电信号并输入到计算机中,最后对采集的图片进行图像处理和反演计算,求解颗粒粒径分布信息。

被测样本采用国家标准颗粒 GBW(E)120044 ($35 \mu\text{m}$),选用水作为分散剂,使被测样本浓度满足不相关的单散射条件,相对折射率 $m=(1.596-0.1i)/1.33$ 。

图 6 为 $35 \mu\text{m}$ 颗粒散射信号图,为获得实际的散射光能值,在采集散射信号图时,需预先采集加入空白溶液的比色皿的散射信号图,称为背景图,如图 6(a)所示。然后,实验系统采集加入被测样本后的散射信号图,如图 6(b)所示。

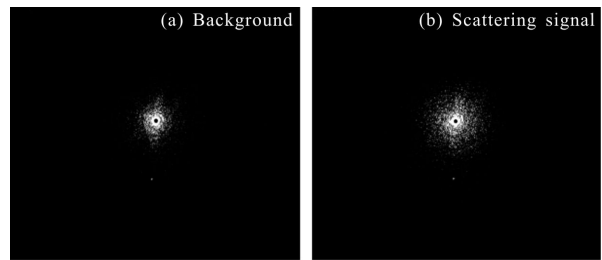


图 6 GBW(E)120044($35 \mu\text{m}$)散射信号图

Fig.6 Scattering signal figure of GBW(E)120044($35 \mu\text{m}$)

事实上,图 6(b)中包含背景信号和实际散射光信号,在计算实际的散射光能值时,需用图像处理技术对采集到的散射信号图作进一步处理,将图 6 中的(b)图扣除(a)图即得到实际散射信号图,然后根据焦点中心坐标和光电探测器环参数便可计算出实际散射光能分布,如图 7 所示。

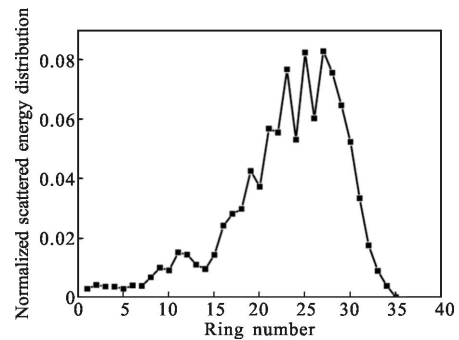


图 7 归一化散射光能分布

Fig.7 Normalized scattered energy distribution

已知散射光能分布,利用 L 曲线求得正则化参数为 0.504,反演结果如表 2 所示。用于描述标准颗粒物 GBW(E)120044($35 \mu\text{m}$)分布曲线展宽的特征粒径 D_{10} 、 D_{90} 分别为 $37.37 \mu\text{m}$ 、 $32.94 \mu\text{m}$,理论中值粒径 D_{50} 为 $35.05 \mu\text{m}$ 。表 2 描述了传统的和改进的 Chahine 迭代算法在迭代 1 000、5 000、15 000 次时的特征粒径 D_{10} 、 D_{50} 、 D_{90} 的值以及与理论值

的相对误差。图 8(a)为对应表 2 的反演结果的分布曲线,图 8(b)比较了文中提出的算法与另两种算法的反演结果。

表 2 相对误差比较(E_{re})

Tab.2 Comparison of the relative errors(E_{re})

Number of iterations	Feature size	Chahine / μm	E_{re}	Improved Chahine / μm	E_{re}
1 000	D10	42.30	13.19%	49.23	31.74%
	D50	38.77	10.61%	35.33	0.80%
	D90	33.91	2.94%	24.71	24.98%
5 000	D10	41.99	12.36%	42.10	12.66%
	D50	39.27	12.04%	35.56	1.46%
	D90	33.50	1.70%	29.76	9.65%
15 000	D10	42.37	13.38%	38.99	4.34%
	D50	39.50	12.7%	35.42	1.06%
	D90	32.64	0.91%	32.08	2.61%

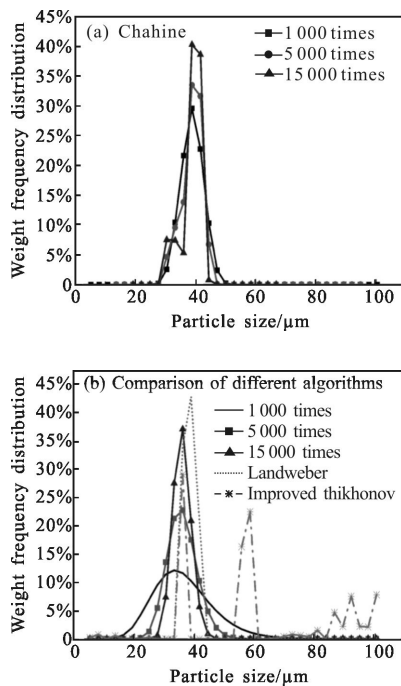


图 8 GBW(E)120044($35\ \mu\text{m}$)的反演结果

Fig.8 Inversion results of GBW(E)120044($35\ \mu\text{m}$)

结合图 8 和表 2 可知,传统的 Chahine 迭代算法反演所得的 D_{10} 、 D_{50} 的相对误差都很大,均超过了 10%。用改进的 Chahine 迭代算法求解颗粒粒径分布时,当迭代次数在 1 000 次和 5 000 次时, D_{10} 、 D_{90} 的相对误差都较大,只有中值粒径 D_{50} 在 2% 以内,分布曲线峰值所在位置较合理,其展宽较宽。

当迭代次数为 15 000 次时,利用 Landweber 算法反演所得的 D_{50} 为 $37.98\ \mu\text{m}$,颗粒粒径分布较窄,虽然反演过程稳定,但颗粒粒径分布展宽容易受到松弛因子的影响,用改进的 Tikhonov 算法反演所得分布曲线的第一个峰值位置与改进的 Chahine 迭代算法反演所得的分布曲线的峰值接近,但出现震荡、伪峰等不稳定现象。而改进的 Chahine 迭代算法反演所得中值粒径 D_{50} 为 1.06%, D_{10} 、 D_{90} 在 5% 以内,分布曲线峰值所在位置及展宽都较合理。结合仿真可知,改进的 Chahine 迭代算法具有更好的抗噪性和稳定性,反演结果精度高,且反演时间小于 1 min。

5 结论

文中提出了基于正则化理论的改进的 Chahine 迭代算法。利用 Chahine 迭代算法来求解基于优化正则化的线性方程。仿真和实验结果表明:当随机噪声较大时,改进的 Chahine 迭代算法明显改善了传统的 Chahine 迭代算法在反演过程中的不稳定现象,随着迭代次数的增多,反演精度越高。与 Landweber 算法及改进的 Tikhonov 算法相比,提出的算法具有更好的抗噪能力和稳定性。利用改进算法测量国家标准颗粒物质,当迭代次数达到 15 000 次时,所得中值粒径 D_{50} 的相对误差在 2% 以内,用于描述分布曲线展宽的 D_{10} 、 D_{90} 的相对误差在 5% 以内,且反演时间小于 1 min,可用于工业在线颗粒粒径测量。

参考文献:

- [1] Shao Hongfei, Chai Juan, Huang Hui. Research progress of particle size analysis and particle size standard reference material [J]. *Chemical Analysis and Meterage*, 2012, 21(2): 99–101. (in Chinese)
邵鸿飞, 柴娟, 黄辉. 粒度分析及粒度标准物质研究进展 [J]. *化学分析计量*, 2012, 21(2): 99–101.
- [2] Wang Naining. *Optic Measurement Technology of Particle Size and Its Application* [M]. Beijing: Atomic Energy Press, 2002: 168–175. (in Chinese)
王乃宁. 颗粒粒径的光学测量技术及应用 [M]. 北京: 原子能出版社, 2000: 168–175.
- [3] Kouzelis D, Candel S M, Esposito E, et al. Particle sizing by laser light diffraction: improvements in optics and algorithms [J]. *Particle & Particle Systems Characterization*, 1987, 4(1–4): 151–156.

- [4] Wang Li, Sun Xiaogang. Research on pattern search method for inversion of particle size distribution in spectral extinction technique [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2013, 33(3): 618–622. (in Chinese)
王丽, 孙晓刚. 基于模式搜索的光谱消光粒径分布反演算法的研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2013, 33(3): 618–622.
- [5] Xu Lijun, Xin Lei, Cao Zhang. l_1 (1)-Norm -Based reconstruction algorithm for particle sizing [J]. *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, 2012, 61(5): 1395–1404.
- [6] Wang Yanmin, Liang Guobiao, Pan Zhidong, Inversion of particle size distribution from light-scattering data using a modified regularization algorithm[J]. *Particuology*, 2010, 8(4): 365–371.
- [7] Tang Hong. Retrieval of spherical particle size distribution with an improved Tikhonov iteration method [J]. *Thermal Science*, 2012, 16(5): 1400–1404.
- [8] Shao Yang, Wang Qinghua. Application of the smooth chahine algorithm in deducing the particle size distribution with light scattering [J]. *Journal of Nanjing Xiaozhuang University*, 2008, 11(6): 15–18. (in Chinese)
- 邵阳, 王清华. 平滑 Chahine 迭代算法在光散射法粒度分布反演中的应用[J]. *南京晓庄学院学报*, 2008, 11(6): 15–18.
- [9] Andreas Kirsch. An Introduction to the Mathematical Theory of Inverse Problems[M]. Berlin: Springer, 2011: 24–40.
- [10] Li Gongsheng, Yuan Zhongxin. A new class of optimal regularization methods for solving ill-posed problems [J]. *Journal of Zhengzhou University*, 1999, 31(4): 21–23. (in Chinese)
李功胜, 袁忠信. 求解病态问题的一种新的优化正则化方法[J]. *郑州大学学报: 自然科学版*, 1999, 31(4): 21–23.
- [11] Hansen P C. The L-curve and its Use in the Numerical Treatment of Inverse Problems [M]. Copenhagen: IMM, Department of Mathematical Modelling, Technical University of Denmark, 1999: 10–12.
- [12] Wang Bingxian, Hu Kangxiu, Wang Zewen. Advances in research in Landweber iterate method for inverse problems and its application [J]. *Journal of Shandong University of Technology*, 2010, 24(4): 24–28. (in Chinese)
王兵贤, 胡康秀, 王泽文. 反问题的 Landweber 迭代法及其应用研究进展[J]. *计算机应用研究*, 2013, 30(9): 2583–2586.