

DOI: 10.16452/j.cnki.sdkjzk.2020.06.016

文章编号:1672-3767(2020)06-0123-10

引用格式:马光耀,曹茂永,马凤英,等.改进正则化对动态光散射含噪数据的反演研究[J].山东科技大学学报(自然科学版),2020,39(6):123-132.

MA Guangyao, CAO Maoyong, MA Fengying, et al. Particle size noise data inversion of dynamic light scattering by improved regularization[J]. Journal of Shandong University of Science and Technology (Natural Science), 2020, 39(6): 123-132.

# 改进正则化对动态光散射含噪数据的反演研究

马光耀<sup>1</sup>, 曹茂永<sup>1,2</sup>, 马凤英<sup>2</sup>, 纪 鹏<sup>2</sup>

(1. 山东科技大学 电气与自动化工程学院, 山东 青岛 266590; 2. 齐鲁工业大学 电气工程与自动化学院, 山东 济南 250353)

**摘 要:**针对颗粒粒度的动态光散射含噪数据反演过程中 Tikhonov 正则化法对所有奇异值进行修正导致反演结果抗扰动性差、TSVD 正则化法将所有小奇异值进行完全截断导致反演结果粒度信息细节性缺失的问题,本研究在两种算法原理的基础上结合奇异值理论,提出了一种改进的正则化方法 Tikhonov-TSVD(TTSVD)。该正则化是通过 TSVD 的截断参数和 Tikhonov 正则化的正则参数将奇异值序列按照不同的区间进行三部分划分并进行不同的处理来实现对噪声干扰下的数据反演。通过在不同强度噪声下对模拟数据进行反演实验,将反演结果与传统的 Tikhonov 正则化和 TSVD 正则化结果进行对比,结果表明该方法具有比原粒度分布更高的拟合度,在低噪声下反演得到比 Tikhonov 和 TSVD 算法更精确的结果,对高噪声下反演结果也具有较好的抗噪性与精确性。最后,350 nm 的实测颗粒反演结果也验证了该结论。

**关键词:**动态光散射;改进正则化;修正奇异值;反演;含噪数据

**中图分类号:**O433.4

**文献标志码:**A

## Particle size noise data inversion of dynamic light scattering by improved regularization

MA Guangyao<sup>1</sup>, CAO Maoyong<sup>1,2</sup>, MA Fengying<sup>2</sup>, JI Peng<sup>2</sup>

(1. College of Electrical Engineering and Automation, Shandong University of

Science and Technology, Qingdao, Shandong 266590, China;

2. College of Electrical Engineering and Automation, Qilu University of Technology, Jinan, Shandong 250353, China)

**Abstract:** In the process of the particle size noise data inversion of dynamic light scattering, the modification of Tikhonov regularization to all singular values leads to the inversion results' poor resistance to disturbance and the complete truncation of TSVD regularization method for all the small singular values causes the missing of inversion results of particle size details. To solve these problems, this paper proposed a new regularization method-Tikhonov-TSVD (TTSVD) based on the principle of two kinds of algorithm combined with the theory of singular value. The regularization is a method to realize data inversion under noise interference by dividing the sequence of singular values into three parts according to different intervals by the truncation parameter of TSVD and the regularization parameter of Tikhonov regularization. Through the inversion experiment of simulated data under different noise intensities, the inversion results are compared with the traditional Tikhonov regularization and TSVD regularization results. The results show that this method has a higher fitting degree with the original particle size distribution, and

收稿日期:2020-02-17

基金项目:国家自然科学基金青年科学基金项目(61903207)

作者简介:马光耀(1995—),男,山东临沂人,硕士研究生,主要从事颗粒粒度检测及反演研究。

曹茂永(1964—),男,山东潍坊人,教授,博士生导师,主要从事声光电检测及图像处理等方面研究,本文通信作者。

E-mail: my-cao@263.net

the inversion results under low noise are more accurate than Tikhonov and TSVD algorithms, and the inversion results under high noise also have better noise resistance and accuracy. Finally, the measured inversion results of 350 nm particles verifies the validity of the proposed method.

**Key words:** dynamic light scattering; improved regularization; modified singular value; inversion; particle size noise data

颗粒粒径及其分布情况是衡量颗粒产品优良性最为重要的参数,粒径的大小及分布情况直接决定了由颗粒生产所得产品的性能以及环境污染程度的判别<sup>[1-2]</sup>。动态光散射技术(dynamic light scattering, DLS)具有非接触、测量速度快等诸多特性,在颗粒粒度分布(particle size distribution, PSD)检测方面得到了广泛应用<sup>[3-4]</sup>。然而,此方法在检测过程中存在比较大的缺陷:当测量数据含有微小扰动或噪声时,会导致最终检测结果与真实结果有较大差距。所以在运用该方法时需要尽可能地去噪声的影响,将病态不适定方程问题转换成一个与之近似的适定方程问题求解<sup>[5-7]</sup>。

目前,已有很多关于动态光散射反问题的优秀研究方法被提出,最为常用且拥有较好反演精度和抗噪能力的是 Tikhonov 正则化<sup>[8]</sup>和截断奇异值(truncated singular value decomposition, TSVD)正则化<sup>[9]</sup>方法。其中, Tikhonov 正则化法是通过引入正则化参数和稳定泛函来设定滤子函数,从而改善矩阵的病态性;截断奇异值正则化法是通过设定滤子函数把容易造成观测数据噪声放大的小奇异值进行截断处理<sup>[10-13]</sup>,从而将不适定的病态问题转换成适定问题并得到结果。为了让 Tikhonov 和 TSVD 算法反演得到更好的效果,文献<sup>[10]</sup>将 Morozov 偏差确定正则参数的迭代原理运用到 DLS 含噪数据反演中,在一定程度上优化了低噪声单峰颗粒粒度的反演精度,但是该迭代算法的终止参数却难以确定;林东方等<sup>[11]</sup>、郭家桥等<sup>[12]</sup>通过对奇异值矩阵的小奇异值部分进行修正减小了一定的正则化误差引入量,虽然该方法引入的是小奇异修正值,但引入量中仍存在部分未能及时修正的奇异值,导致结果出现偏差;王雅静等<sup>[14]</sup>提出以小波正则化与对反演问题进行分解,用 Tikhonov 正则化、TSVD 正则化分别对粗尺度、细尺度进行寻优并处理,得到了具有较好抗噪性以及准确性的结果,但该算法计算量大且寻优过程中需保证非负性,难度较大。在模拟实验过程中,发现 Tikhonov 相对于 TSVD 而言,反演结果的平滑性更好;而 TSVD 的抗噪性、精确性更好一些<sup>[15]</sup>。

本研究在 Tikhonov 正则化法和 TSVD 正则化法的基础上,通过对两者滤子函数的研究<sup>[16-17]</sup>,提出一种将 TSVD 和 Tikhonov 相结合的新正则化方法 TTSVD,并对动态光散射含噪数据进行模拟反演实验。通过将反演结果与真实值、Tikhonov 算法结果、TSVD 算法结果进行比对,发现新算法有较好的精度和抗噪性。

## 1 动态光散射及 Tikhonov、TSVD 反演原理

### 1.1 动态光散射原理

在动态光散射测量技术中,粒度分布函数是根据归一化光强自相关函数<sup>[18]</sup>获得的:

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

其中,  $\tau$  是延迟时间,  $\Gamma$  为 Rayleigh 线宽, 又称衰减率。若想求 PSD 结果, 需要在求得衰减线宽分布函数  $G(\Gamma)$  之后, 根据平移扩散系数公式和 Stokes-Einstein 关系进行求解。为求解衰减线宽函数  $G(\Gamma)$ , 将式(1)进行离散化得:

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

式中:  $j$  表示相关器的采样通道序列,  $i$  是样品颗粒粒径分级数。式(2)可以用矩阵形式进行简写:

$$Ax = b, \quad (3)$$

其中:  $x_i = G(\Gamma_i)$ ,  $b_j = g(\tau_j)$ ; 矩阵  $A$  的元素  $a_{i,j} = \exp(-\Gamma_i \tau_j)$ 。对方程(3)进行求解即可得到 PSD 结果。

### 1.2 Tikhonov 正则化和 TSVD 反演理论

DLS 反演问题即是对病态不适定方程(3)的求解问题, 理论上可由最小二乘的求解问题来替换:

$$\varphi_1 = \min(\|\mathbf{Ax} - \mathbf{b}\|_2^2). \quad (4)$$

假设矩阵  $\mathbf{A} \in \mathbf{R}^{m \times n}$  ( $m \geq n$ ), 根据奇异值分解理论, 对矩阵  $\mathbf{A}$  进行奇异值分解得:

$$\mathbf{A} = \mathbf{U} \begin{bmatrix} \boldsymbol{\Sigma} \\ \mathbf{0} \end{bmatrix} \mathbf{V}^T = \sum_{i=1}^n \mathbf{u}_i \sigma_i \mathbf{v}_i^T. \quad (5)$$

式中,  $\mathbf{U} = (\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2, \dots, \mathbf{u}_m) \in \mathbf{R}^{m \times m}$ ,  $\mathbf{V} = (\mathbf{v}_1, \mathbf{v}_2, \dots, \mathbf{v}_n) \in \mathbf{R}^{n \times n}$ ,  $\boldsymbol{\Sigma} = \text{diag}(\sigma_1, \sigma_2, \dots, \sigma_n) \in \mathbf{R}^{n \times n}$ ,  $\sigma_1 \geq \sigma_2 \geq \dots \geq \sigma_n$  为奇异值,  $\mathbf{u}_i$ 、 $\mathbf{v}_i$  分别是矩阵  $\mathbf{A}$  的左、右奇异向量。

所以, 理论上的最小二乘解为:

$$\mathbf{x}_{LS} = \sum_{i=1}^n \frac{\mathbf{u}_i^T \mathbf{b}}{\sigma_i} \mathbf{v}_i. \quad (6)$$

由于奇异值矩阵中含有非常小的奇异值, 当测量数据  $\mathbf{b}$  包含微小噪声或受到轻微扰动时,  $\mathbf{x}_{LS}$  就会产生非常大的随机波动, 求取的结果会非常不稳定<sup>[15]</sup>。

Tikhonov 正则化是通过引入展平泛函将不适定问题近似转换程适定问题, 并进行近似求解:

$$M^\lambda[\mathbf{x}, \mathbf{b}] = \|\mathbf{Ax} - \mathbf{b}\|_2^2 + \lambda^2 \|\mathbf{L}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_0)\|_2^2, \quad (7)$$

式中,  $\mathbf{L}$  是正则算子,  $\mathbf{x}_0$  为解的初始估计,  $\lambda$  为正则化参数。当  $\mathbf{x}_0 = \mathbf{0}$ ,  $\mathbf{L}$  取单位矩阵时, Tikhonov 正则化可表示成:

$$M^\lambda[\mathbf{x}, \mathbf{b}] = \|\mathbf{Ax} - \mathbf{b}\|_2^2 + \lambda^2 \|\mathbf{x}\|_2^2, \quad (8)$$

在选取适当的正则参数后, 即可求得正则解:  $\mathbf{x}_{\text{Tikhonov}} = \min\{M^\lambda[\mathbf{x}, \mathbf{b}]\}$ 。

TSVD 正则化是通过将奇异值矩阵中使得数据中噪声进行放大的小奇异值部分进行截断, 从而消除观测数据中噪声对结果的影响。为了避免小奇异值对正则解的影响, 当任意  $k < \text{rank}(\mathbf{A})$  时, 截取  $k \times k$  维奇异值矩阵进而获得截断后的矩阵

$$\mathbf{A}_k = \sum_{i=1}^k \mathbf{u}_i \sigma_i \mathbf{v}_i^T, \quad (9)$$

式中  $k$  为截断正则参数。在选取适当的正则参数后, 式(4)的解为  $\mathbf{x}_{\text{TSVD}} = \min(\|\mathbf{A}_k \mathbf{x} - \mathbf{b}\|_2^2)$ 。

## 2 新正则化算法 TTSVD

根据 Lanczos 奇异值分解理论可知, 在方程病态时, 奇异值  $\sigma_n$  是一个非常小的近似为 0 的值, 且奇异值  $\sigma_1$  远大于  $\sigma_n$ 。矩阵  $\mathbf{A}$  中较大的奇异值及其相应的左右奇异向量构成了其数值模型中的可靠部分, 而小奇异值及其相应的左右奇异向量构成了数值模型中的不可靠部分。矩阵中的不可靠部分会将式(6)中数据  $\mathbf{b}$  所包含的噪声进行放大, 导致结果出现较大偏差。Tikhonov 正则化通过引入滤子函数对矩阵的奇异值进行修正, 在修正不可靠部分的小奇异值过程中也不可避免地将可靠部分的大奇异值进行变换, 导致反演结果对噪声数据较为敏感, 稳定性较差; TSVD 正则化通过将矩阵不可靠部分也就是奇异值矩阵中的小奇异值部分进行完全截断, 在消除矩阵不可靠部分中对噪声放大部分的的同时造成不可靠部分中所含信息的缺失, 降低了解的准确性<sup>[14-15]</sup>。

在对 Tikhonov 正则化和 TSVD 正则化两种算法进行综合考虑后, 结合这两种算法的优点, 通过设定不同的阈值将矩阵按照大奇异值、小奇异值以及剩余奇异值分成非常可靠部分、不确定部分以及非常不可靠部分, 让滤子函数仅对中间不确定部分进行修正调整, 对非常可靠部分不做变化, 并将非常不可靠部分进行完全截断, 以期实现在保留不可靠部分细节性信息的同时降低其中非常不可靠成分对噪声的放大作用。

Tikhonov 正则化算法的滤子函数是:

$$f_{\text{Tikhonov} \langle i \rangle} = \frac{\sigma_i^2}{\lambda^2 + \sigma_i^2}, i = 1, 2, \dots, n. \quad (10)$$

根据滤子函数式(10)及选取的正则参数, 可求得解为:

$$\mathbf{x}_{\text{Tikhonov}} = \sum_{i=1}^n \frac{\sigma_i}{\lambda^2 + \sigma_i^2} \mathbf{u}_i^T \mathbf{b} \mathbf{v}_i, i = 1, 2, \dots, n. \quad (11)$$

TSVD 正则化算法的滤子函数是:

$$f_{\text{TSVD}(i)} = \begin{cases} 1, & i=1, 2, \dots, k \\ 0, & i=k+1, \dots, n \end{cases} \quad (12)$$

根据滤子函数式(11)及其选取的截断正则参数,可求得解为:

$$\mathbf{x}_{\text{TSVD}} = \sum_{i=1}^k \frac{\mathbf{u}_i^T \mathbf{b}}{\sigma_i} \mathbf{v}_i, i=1, 2, \dots, k. \quad (13)$$

由式(11)与(13)可以看出,Tikhonov 正则化会将所有矩阵的所有奇异值均进行变化,在保留小奇异修正值的同时也将大奇异值进行了变化;而 TSVD 正则化是直接将其所认定的小奇异值进行了完全截断,导致数值模型的部分信息缺失。

改进的正则化算法 TTSVD 的滤子函数是:

$$f_{\text{TTSVD}(i)} = \begin{cases} 1, & i=1, 2, \dots, k; \\ \frac{\sigma_i^2}{\lambda^2 + \sigma_i^2}, & i=k+1, \dots, t; \\ 0, & i=t+1, \dots, n. \end{cases} \quad (14)$$

式中, $k$  代表非常可靠部分的设定阈值,其值为截断奇异值的序列号; $\lambda$  为选取的正则化参数, $t$  代表的是不确定部分的设定阈值,其值是根据正则化参数  $\lambda$  和截断奇异值序列号  $k$  来确定的。当正则化参数为  $\lambda$  时,奇异值序列中必定存在一个与之相近的奇异值  $\sigma_{\lambda_1}$  满足以下条件:

$$\frac{|\sigma_{\lambda_1} - \lambda|}{\sigma_{\lambda_1}} = \min \left( \frac{|\sigma_i - \lambda|}{\sigma_i} \right), i=1, 2, \dots, n. \quad (15)$$

$t$  是以奇异值  $\sigma_{\lambda_1}$  的序列号  $\lambda_1$  为中心,从  $\lambda_1$  向右扩充截断参数  $k$  后的奇异值总数,即:

$$t = \lambda_1 + k. \quad (16)$$

根据滤子函数式(14)及其选取的参数  $k$  和  $t$ ,可求得解为:

$$\mathbf{x}_{\text{TTSVD}} = \sum_{i=1}^k \frac{\mathbf{u}_i^T \mathbf{b}}{\sigma_i} \mathbf{v}_i + \sum_{i=k+1}^t \frac{\sigma_i \mathbf{u}_i^T \mathbf{b}}{\lambda^2 + \sigma_i^2} \mathbf{v}_i, i=1, \dots, k, k+1, \dots, t. \quad (17)$$

在以上三种求解算法中,均需要确定正则化参数,本研究采用应用广泛的 L 曲线法进行选取。

### 3 模拟实验分析

#### 3.1 模拟实验及参数设定

为了更全面地展现并研究 TTSVD 算法对于动态光散射噪声数据反演结果的影响,本研究通过建立模拟动态光散射含噪数据来代替实际观测数据进行全面分析。在实际颗粒粒度检测过程中,样品的杂质与浓度情况、实验温度的变化、光电倍增管的背景杂散光等诸多因素的存在,会使得实际观测数据中包含大量由不同因素所导致的随机噪声。依据中心极限定理思想,通过以正态分布白噪声对模拟的无噪数据进行激励,让模拟产生的观测数据能够达到与真实结果较为接近的效果。具体模拟实现过程:首先通过模型分别建立单峰窄分布颗粒系、单峰宽分布颗粒系、双峰窄分布颗粒系、双峰宽分布颗粒系四种不同的粒度分布函数作为模拟的真实颗粒粒度分布结果,然后通过公式分别得到其自相关函数数据,也就是在颗粒粒度检测过程中所得到的不含噪声污染的理论观测数据,最后在相关函数数据中分别加入不同强度水平的正态分布白噪声,得到噪声干扰下的实际观测数据来进行研究。

模拟实验中,使用 Johnson's SB<sup>[19]</sup> 分布作为模拟粒径分布模型(即真实粒度分布),其表达式是:

$$f(t) = \frac{\delta}{\sqrt{2\pi}(d_{\max} - d_{\min})} [t(1-t)]^{-1} \exp \left\{ -0.5 \left[ u + \delta \ln \left( \frac{t}{1-t} \right) \right]^2 \right\}. \quad (18)$$

式中, $t = (d - d_{\min}) / (d_{\max} - d_{\min})$  是粒径大小归一化的结果, $d_{\max}$  和  $d_{\min}$  分别是模拟粒度分布中粒子的最大粒径和最小粒径; $u$  和  $\delta$  表示模型的分布参数,这两个参数值将决定模拟的粒度分布情况。模拟实验参数分别为:温度 25 °C,分散介质(水)的折射率 1.331,入射光的波长 632.8 nm,散射角 90°,水的黏度系数  $0.89 \times 10^{-3} \text{ N} \cdot \text{s} / \text{m}^2$ ,波尔兹曼常数  $1.3807 \times 10^{-23} \text{ J} / \text{K}$ 。通过对自相关函数  $\mathbf{g}(\tau)$  添加不同水平的正态分布白噪声,

来模拟在实际测量过程中可能出现的不同程度的干扰情况。

为了能够更直观地展示算法对模拟反演结果的影响,将新算法所得的结果与传统的 Tikhonov 正则化、TSVD 正则化结果进行对比,同时引入峰值粒径(peak particle size, PPS)、峰值相对误差(peak particle size relative error, PPSRE)、粒度分布误差(particle size distribution error, PSDE)三个重要指标参数并以数据形式展现出来。其中峰值粒径指的是粒度分布峰值点所对应的粒径值,峰值相对误差指的是算法求取峰值与模拟峰值的相对误差大小

$$R_{PPSRE} = (|d_{pps\_inv} - d_{pps\_true}| / d_{pps\_true}) \times 100\% \quad (19)$$

其中,  $d_{pps\_inv}$  和  $d_{pps\_true}$  分别代表算法峰值粒径和模拟峰值粒径。粒度分布误差指的是算法求取的粒度分布与模拟的粒度分布之间的误差:

$$R_{PSDE} = \|\mathbf{x}_{psd\_inv} - \mathbf{x}_{psd\_true}\|_2 \quad (20)$$

其中,  $\mathbf{x}_{pps\_inv}$  和  $\mathbf{x}_{pps\_true}$  分别代表算法求取的粒度分布和模拟的粒度分布。

### 3.2 结果对比与数据分析

#### 3.2.1 单峰颗粒系的反演结果与数据对比

单峰窄分布颗粒系对应的模拟参数为:  $u = 3.8, \sigma = 2.0, d_{\min} = 1, d_{\max} = 800$ ; 单峰宽分布对应的模拟参数为:  $u = 0.8, \sigma = 1.8, d_{\min} = 1, d_{\max} = 800$ 。两种单峰分布颗粒系的反演结果和数据如图 1~2 以及表 1~2 所示。

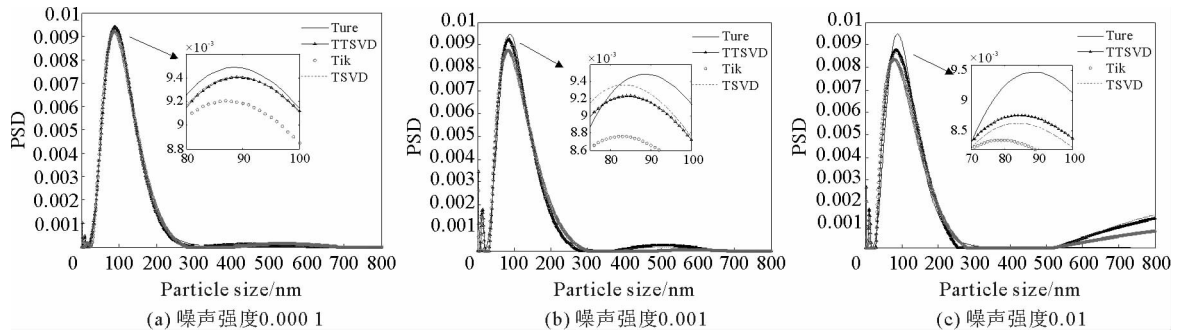


图 1 单峰窄分布颗粒系在不同噪声强度下的反演结果

Fig. 1 Inversion results of unimodal narrow distribution particles under different noise intensities

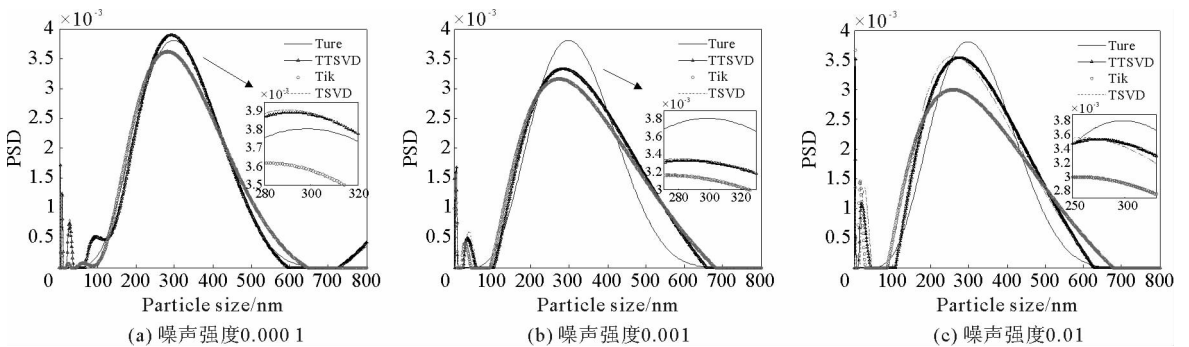


图 2 单峰宽分布颗粒系在不同噪声强度下的反演结果

Fig. 2 Inversion results of unimodal wide distribution particles under different noise intensities

由图 1(a)与表 1 数据所示,对于在噪声强度为 0.0001 时的单峰窄分布颗粒系,TTSVD 算法和 TSVD 算法均能反演出与真实结果相同的 PPS,比 Tikhonov 算法的结果更精确;同时,TTSVD 结果的 PSDE 比 Tikhonov 的低 0.0012,比 TSVD 低 0.0001。这也就是说,在低噪声的情况下 TTSVD 所选取的可靠部分加上不确定部分已经近似替代了原矩阵,使得 TTSVD 反演结果与真实结果之间的拟合程度更优于其他两种算法;而非非常不可靠部分的截断使得修正后的矩阵获得比 Tikhonov 更精确的结果。同样的,对于单峰宽

表1 单峰窄分布颗粒系在不同噪声强度下的反演数据

Tab. 1 Inversion data of unimodal narrow distribution particles under different noise intensities

噪声强度	Tikhonov			TSVD			TTSVD		
	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE
0.000 1	87	2.25	0.003 4	89	0	0.002 3	89	0	0.002 2
0.001 0	83	6.74	0.008 6	83	6.74	0.006 6	84	5.62	0.006 7
0.010 0	79	11.24	0.015 0	84	5.62	0.017 2	84	5.62	0.015 9

表2 单峰宽分布颗粒系在不同噪声强度下的反演数据

Tab. 2 Inversion data of unimodal wide distribution particles under different noise intensities

噪声强度	Tikhonov			TSVD			TTSVD		
	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE
0.000 1	282	5.36	0.004 5	290	2.68	0.004 8	292	2.01	0.004 5
0.001 0	274	8.05	0.011 1	281	5.70	0.009 8	284	4.70	0.009 8
0.010 0	259	13.09	0.014 0	260	12.75	0.010 6	275	7.71	0.008 8

分布颗粒系也印证了这一解释。如图2(a)所示,在噪声为0.000 1时的单宽峰颗粒系,TTSVD的PPSRE比Tikhonov低3.35%、比TSVD低0.67%;在PSDE方面,TTSVD结果也表现出与单窄峰颗粒系相类似的情况。这也说明对选取的不确定部分进行修正以及对非常可靠部分保持不变的处理是非常有必要的,优化了反演的精度以及平滑性。

如图1和图2(b)、2(c)所示,随着噪声强度不断增强,三种算法的结果均出现了不同程度的变化,其中以Tikhonov算法受噪声的干扰最为严重,而TTSVD和TSVD算法受噪声干扰的影响相对较小。相较于Tikhonov算法,随着噪声的不断增强,TTSVD的PPSRE相较真实值变化不大,而Tikhonov算法的PPSRE也随着噪声强度增强而变大,在噪声强度为0.010 0时,两种算法的单宽峰颗粒系峰值粒径相对误差达到4.36%,单窄峰颗粒系峰值粒径相对误差达到5.62%。Tikhonov算法已经不能得到准确的PPS。这说明,相较于将奇异值完全修正的Tikhonov算法,TTSVD的部分截断与部分修正是完全有必要的。相较于TSVD算法,TTSVD和TSVD的PPSRE相差不大,且在单宽峰分布颗粒系TTSVD结果的PPSRE要优于TSVD结果,在噪声强度为0.010 0时,单宽峰颗粒系TTSVD算法的PPSRE要比TSVD的低5%;与此同时,不管噪声强度如何变化,TTSVD算法的PSDE始终保持着比TSVD算法更低的值。这是由于TTSVD算法在截断非常不可靠部分的小奇异值后,相较于Tikhonov算法受噪声的扰动影响变小;确定部分的完全保留与不确定部分的修正,使得TTSVD算法能够具有比Tikhonov和TSVD算法更低的PSDE,提高了Tikhonov、TSVD算法与真实结果的拟合度。

综上所述,改进的TTSVD算法能够在单峰分布颗粒系的反演中得到比较精确且稳定的结果。相较于Tikhonov算法,TTSVD具有更好的抗噪性与精确性,特别是噪声强度为0.010 0时,峰值误差至少降低了3%,粒度分布结果也更接近真实粒度分布情况;相较于TSVD算法,TTSVD算法反演结果具有更高的拟合度,在低噪声的情况下具有更好的精确性。

### 3.2.2 双峰颗粒系的反演结果与数据对比

本实验中双峰颗粒系是由两种单峰颗粒系按照1:1的光强比进行混合而成,双峰窄分布对应的模拟系数为: $u_1=4.9, \sigma_1=3.1, u_2=-3.9, \sigma_2=4.0, d_{\min}=1, d_{\max}=800$ ;双峰宽分布颗粒系对应的模拟系数为: $u_1=3.0, \sigma_1=2.1, u_2=-2.1, \sigma_2=2.2, d_{\min}=1, d_{\max}=800$ 。两种由不同颗粒系混合而成的双峰分布颗粒系反演结果和数据如图3~4以及表3~4所示。

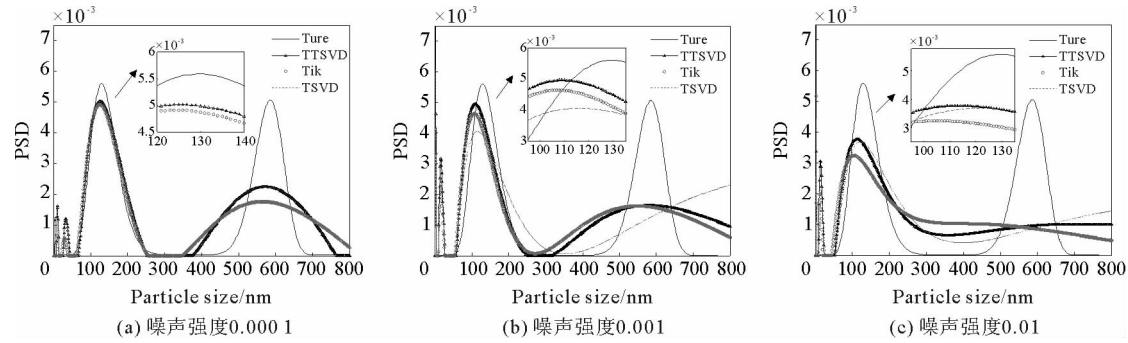


图 3 双峰窄分布颗粒系在不同噪声强度下的反演结果

Fig. 3 Inversion results of bimodal narrow distribution particles under different noise intensities

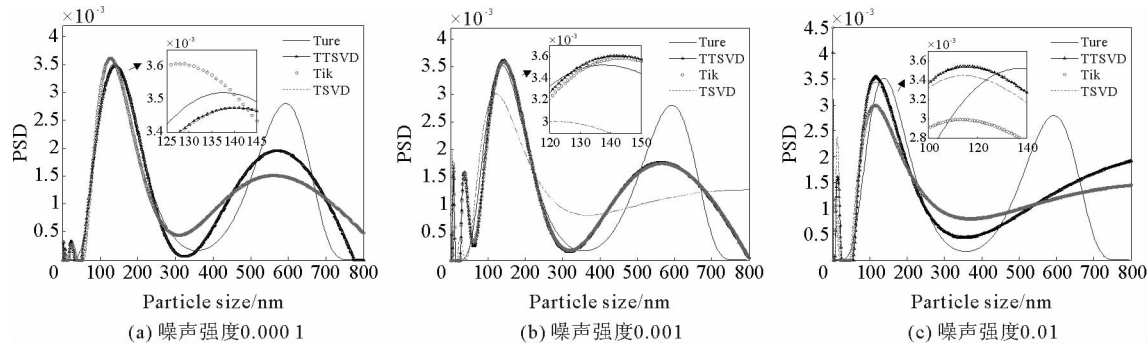


图 4 双峰宽分布颗粒系在不同噪声强度下的反演结果

Fig. 4 Inversion results of bimodal wide distribution particles under different noise intensities

表 3 双峰窄分布颗粒系在不同噪声强度下的反演数据

Tab. 3 Inversion data of bimodal narrow distribution particles under different noise intensities

噪声强度	Tikhonov			TSVD			TTSVD		
	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE
0.000 1	125	5.38	0.029 5	126	5.38	0.026 4	126	5.38	0.026 4
	565	3.24		572	2.39		572	2.39	
0.001 0	107	17.69	0.035 6	116	10.77	0.040 9	109	16.15	0.035 4
	549	6.31		—	—		582	0.68	
0.010 0	105	19.23	0.042 5	122	6.15	0.041 1	114	12.31	0.039 9
	—	—		—	—		710	21.16	

表 4 双峰宽分布颗粒系在不同噪声强度下的反演数据

Tab. 4 Inversion data of bimodal wide distribution particles under different noise intensities

噪声强度	Tikhonov			TSVD			TTSVD		
	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE	PPS/nm	PPSRE/%	PSDE
0.000 1	128	7.25	0.015 9	141	2.17	0.010 5	140	1.45	0.010 4
	562	5.39		571	3.87		571	3.87	
0.001 0	143	3.62	0.014 4	122	11.59	0.022 4	142	2.90	0.014 3
	567	4.55		—	—		565	4.88	
0.010 0	113	18.12	0.023 5	114	17.39	0.025 2	116	15.94	0.024 8
	—	—		—	—		—	—	

如图3和图4(a)所示,在噪声强度为0.0001时,三种算法均能得到比较精准的双峰颗粒系的峰值粒径,其中又以TTSVD算法结果的PPSRE最小,拟合效果最好。由表3数据可知,在双窄峰颗粒系中三种算法得到的第一个峰值粒径完全一样,在第二个峰值上TTSVD和TSVD算法比Tikhonov算法的PPSRE低0.85%;根据表4数据,TTSVD算法在双宽峰颗粒系的PPSRE比TSVD算法低0.5%左右,比Tikhonov算法低1.5%~5.8%。这说明,在外部噪声较小的情况下,TTSVD算法和TSVD算法对非常可靠部分奇异值的保留是很有必要的,提高了反演的精度。从粒度分布反演误差PSDE的角度以及图像双峰的分辨率来看,宽峰颗粒系和窄峰颗粒系的规律基本一致,TTSVD算法结果的粒度分布误差均低于TSVD和Tikhonov算法,与真实结果的拟合度较高,能够较好地反映真实结果的粒度分布情况。

如图3和图4(b)、4(c)所示,随着噪声强度的不断增强,三种算法对颗粒粒度反演的结果不断变差,特别是在噪声强度为0.0100时,三种算法已经基本失去了第二种颗粒系的分布情况。相比较而言,TTSVD算法具有比Tikhonov算法和TSVD算法更好的结果。如图3(b)所示,在噪声强度为0.0010时,TSVD算法反演结果在第一个颗粒系上的峰值准确性要优于TTSVD和Tikhonov算法,但其同时也丢失掉第二颗粒系信息;而TTSVD算法能够同Tikhonov算法一样获取第二个峰的颗粒信息,且得到了比Tikhonov算法在第一峰值PPSRE上低1.54%、第二峰值上低5.63%的反演结果。与之相类似的是,在图4(b)中,Tikhonov算法在0.0010噪声时取得了较噪声强度0.0001时更好的结果。出现这种情况均是因为施加噪声随机性较大以及L曲线选取的参数未能达到最优从而导致Tikhonov和TTSVD算法反演结果受到影响,但与Tikhonov算法不同的是,TTSVD对非常不可靠部分奇异值的截断处理使得该算法能够取得比Tikhonov算法更好的结果,进一步说明TTSVD算法对非常不确定部分奇异值的截断处理是很有必要的。如图3和图4(c)所示,在噪声强度为0.0100时,TTSVD算法得到的第一个峰值颗粒系结果比Tikhonov和TSVD算法更准确,同时在双窄峰颗粒系上,能够分辨出第二个颗粒系的存在情况。造成这种结果的原因是TSVD将不确定部分与不可靠部分的奇异值进行了截断,使得在反演中缺失部分有效数据,随着噪声强度增加截断的奇异值就越多,所保留的有效信息也就越少,最终导致反演结果在高噪声情况下失去第二种颗粒系的粒度分布情况;Tikhonov正则化算法虽然保留了大量有效信息,但是其滤子函数对矩阵数学模型中大小奇异值的处理不充分,使得小奇异值对噪声变化非常敏感,大奇异值的变化使得结果对可用信息的处理效率降低。而TTSVD算法将小奇异值部分进行划分并分别处理,在尽可能保留有效信息的同时,降低了小奇异值对噪声的放大作用,在一定程度上对Tikhonov和TSVD算法进行了优化。

综合上述分析得出:改进的TTSVD算法具有比TSVD算法、Tikhonov算法与原颗粒粒度分布更高的拟合度,对双峰颗粒系的反演能够得到比TSVD算法与Tikhonov算法更好的结果。TTSVD算法在低噪声的情况下反演得到的结果精确度要高于TSVD算法与Tikhonov算法;在高噪声的情况下,具有比Tikhonov算法更强的抗噪性、比TSVD算法更好的双峰分辨率。

#### 4 实验数据的反演分析

为验证该算法在颗粒粒度检测应用中的有效性,使用DLS实验装置获取nm单峰分布的标准聚苯乙烯颗粒相关函数数据并进行反演验证。DLS装置主要由波长为532nm的绿色激光器、端窗式光电倍增管以及128通道的高速数字相关器组成,测试实验温度为27℃,散射角为90°,分散介质选择纯净水。根据动态光散射技术理论可知,该技术通过采用相关去噪法对获取的光强信号进行去噪,去噪效果与测量时间成正比相关,测量时间越长去噪效果越好。而测量时间是采样时间与数据长度的乘积,这就要求实验检测时的数据量越大越好。为了得到不同程度噪声情况下的观测数据,在采样数约为 $2 \times 10^6$ 和 $2 \times 10^5$ 时分别获取相关函数数据作为低噪声与高噪声下的观测数据,并以TSVD、Tikhonov和TTSVD算法分别对实验数据进行反演,结果和数据如图5和表5所示。

由图5和表5可以看出,在采样数量为 $2 \times 10^6$ 时,三种算法均能比较准确地反演出颗粒的峰值粒径情况,其中Tikhonov算法结果的峰值误差为0.41%,粒度分布较宽;TTSVD和TSVD算法结果的峰值误差为0.21%,粒度分布较窄。相较于采样数量为 $2 \times 10^6$ 时的反演结果,在采样数量为 $2 \times 10^5$ 时,TTSVD和



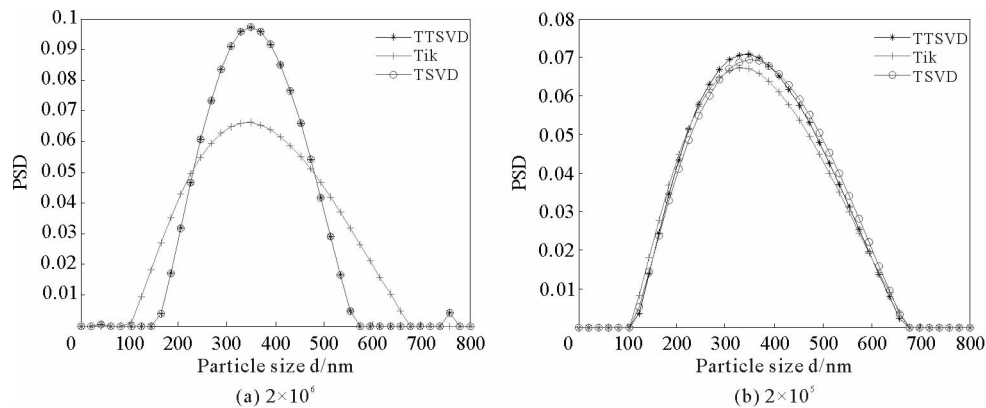


图 5 350 nm 颗粒在不同采样数量下的反演结果

Fig. 5 Inversion results of 350 nm particles under different sampling numbers

表 5 350 nm 颗粒在不同采样数量下的反演数据

Tab. 5 Inversion data of 350 nm particles under different sampling numbers

采样数量	Tikhonov		TSVD		TTSVD	
	PPS/nm	PPSRE/%	PPS/nm	PPSRE/%	PPS/nm	PPSRE/%
$2 \times 10^6$	348.58	0.41	349.26	0.21	349.26	0.21
$2 \times 10^5$	328.79	6.06	351.64	0.47	349.26	0.21

TSVD 算法仍能够比较准确地反演出颗粒粒径峰值结果,其中 TTSVD 算法结果的峰值误差保持不变,TSVD 算法结果的峰值误差增大到 0.47%,而 Tikhonov 算法结果的粒径峰值出现较大变化,峰值误差增大 5.65%。因此,TTSVD 算法能够更好反演出实际的颗粒粒度分布结果,验证了模拟数据的结论。

5 结论

在动态光散射数据的反演实验的基础上,结合 Tikhonov 正则化算法和 TSVD 正则化算法,提出一种将奇异值序列进行区域划分并分别处理的改进正则化方法 TTSVD。将奇异值序列划分为非常可靠部分、不确定部分以及非常不确定三部分,对三部分以不同的滤子函数进行处理,解决了 Tikhonov 算法对所有奇异值进行修正以及 TSVD 算法将所有小奇异值进行完全截断的缺陷。通过将原始颗粒粒度分布作为基准,以改进的正则化方法 TTSVD 和 Tikhonov、TSVD 算法分别在强度为 0.000 1、0.001 0、0.010 0 下的 DLS 数据反演进行结果比对,确定新算法结果能够有较强的抗噪性、较好的精确性以及与真实结果之间更好的拟合性。当然由于计算存在随机性,可能偶尔会出现其他方法某个参数更好的情况,但总体而言,TTSVD 方法是一种可行的颗粒粒度反演方法。

参考文献:

[1]张彪,许传龙,王式民.基于带约束 TSVD 方法的粒径分布反演[J].化工学报,2016,67(增 1):312-317.  
ZHANG Biao,XU Chuanlong,WANG Shimin.Retrieval of particle size distribution based on TSVD method with constraints [J].CIESC Journal,2016,67(S1):312-31.  
[2]EATON P,QUARESMA P,SOARES C,et al.A direct comparison of experimental methods to measure dimensions of synthetic nanoparticles[J].Ultramicroscopy,2017,182:179-190.  
[3]CHU B,LIU T.Characterization of nanoparticles by scattering techniques[J].Journal of Nanoparticle Research,2000,2(1): 29-41.  
[4]SCHEFFOLD F,CERBINO R.New trends in light scattering[J].Current Opinion in Colloid & Interface Science,2007,12 (1):7-9.  
[5]王雅静,申晋,郑刚,等.Tikhonov 正则化与多重网络技术相结合的动态光散射反演[J].光学精密工程,2012,20(5):963-971.  
WANG Yajing,SHEN Jin,ZHENG Gang,et al.Inversion of dynamic light scattering combining Tikhonov regularization

- with multiple-grid technique[J]. Optics and Precision Engineering, 2012, 20(5): 963-971.
- [6] 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): 252-261.  
LIU Wei, WANG Yajing, CHEN Wengang, et al. Influence of the regularization matrix on the inversion of bimodal dynamic light scattering data[J]. Chinese Journal of Lasers, 2015, 42(9): 252-261.
- [7] 徐敏, 申晋, 黄钰, 等. 基于颗粒粒度信息分布特征的动态光散射加权反演[J]. 物理学报, 2018, 67(13): 287-301.  
XU Min, SHEN Jin, HUANG Yu, et al. Weighting inversion of dynamic light scattering based on particle-size information distribution character[J]. Acta Physica Sinica, 2018, 67(13): 287-301.
- [8] 肖莹莹, 申晋, 王雅静, 等. 初始模型对动态光散射数据正则化反演结果的影响[J]. 强激光与粒子束, 2014, 26(12): 260-267.  
XIAO Yingying, SHEN Jin, WANG Yajing, et al. Influence of initial model on regularized inversion of noisy dynamic light scattering data[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2014, 26(12): 260-267.
- [9] HANSEN P C. The truncated SVD as a method for regularization[J]. BIT Numerical Mathematics, 1987, 27(4): 534-553.
- [10] 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.  
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.
- [11] 林东方, 朱建军, 宋迎春, 等. 正则化的奇异值分解参数构造法[J]. 测绘学报, 2016, 45(8): 883-889.  
LIN Dongfang, ZHU Jianjun, SONG Yingchun, et al. Construction method of regularization by singular value decomposition of design matrix[J]. Acta Geodaetica et Cartographica Sinica, 2016, 45(8): 883-889.
- [12] 郭家桥, 张新明, 马玲. 一种求解第一类 Fredholm 积分方程的改进 Tikhonov 正则化方法[J]. 数学的实践与认识, 2018, 48(18): 244-250.  
GUO Jiaqiao, ZHANG Xinming, MA Ling. A modified Tikhonov regularization method for the solution of Fredholm equations of the first kind[J]. Mathematics in Practice and Theory, 2018, 48(18): 244-250.
- [13] 王晨, 张彪, 曹丽霞, 等. 一种改进的反演算法测量颗粒粒径分布[J]. 光学学报, 2019, 39(2): 214-221.  
WANG Chen, ZHANG Biao, CAO Lixia, et al. An improved inversion algorithm is used to measure particle size distribution[J]. Acta Photonica Sinica, 2019, 39(2): 214-221.
- [14] 王雅静, 窦智, 申晋, 等. TSVD-Tikhonov 正则化多尺度动态光散射反演[J]. 中国激光, 2017, 44(1): 221-230.  
WANG Yajing, DOU Zhi, SHEN Jin, et al. Multi-scale inversion combining TSVD-Tikhonov regularization for dynamic light scattering[J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(1): 221-230.
- [15] 王雅静, 袁曦, 申晋. 噪声动态光散射数据 Tikhonov 与截断奇异值正则化反演[J]. 光学精密工程, 2018, 26(9): 2270-2280.  
WANG Yajing, YUAN Xi, SHEN Jin. Inversion of Tikhonov and truncated singular value decomposition regularization for noisy dynamic light scattering data[J]. Optics and Precision Engineering, 2018, 26(9): 2270-2280.
- [16] 肖庭延, 于慎根, 王彦飞. 反问题的数值解法[M]. 北京: 科学出版社, 2003: 70-78.  
XIAO Tingyan, YU Shengen, WANG Yanfei. Numerical solution of inverse problem[M]. Beijing: Science Press, 2003: 70-78.
- [17] ISLAMBEK A, YANG K C, LI W, et al. FPGA-based real-time autocorrelator and its application in dynamic light scattering[J/OL]. Optik, 2019, 194; doi: 10.1016/j.ijleo.2019.163047.
- [18] 修文正, 申晋, 肖莹莹, 等. 含噪动态光散射测量数据反演中正则化算法与 Chahine 算法的比较[J]. 光子学报, 2016, 45(11): 159-165.  
XIU Wenzheng, SHEN Jin, XIAO Yingying, et al. Comparison between the regularization algorithm and the Chahine algorithm in inversions of scattering measurement data of the noisy dynamic light[J]. Acta Photonica Sinica, 2016, 45(11): 159-165.
- [19] XU M, SHEN J, THOMAS J C, et al. Information-weighted constrained regularization for particle size distribution recovery in multiangle dynamic light scattering[J]. Optics Express, 2018, 26(1): 15-31.

(责任编辑: 傅 游)