АКАДЕМИЯ НАУК СССР
СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ
А В Т О М Е Т Р И Я

№ 3 1987

СИСТЕМЫ АВТОМАТИЗАЦИИ ЭКСПЕРИМЕНТА

УДК 535.36 : 517.9 : 681.3 : 53

И. Г. ЕРШ, Л. С. МУРАТОВ, С. Ю. НОВОЖИЛОВ. Б. М. ШТОКМАН, М. И. ШТОКМАН

(Новосибирск)

АВТОМАТИЗИРОВАННЫЙ ЛАЗЕРНЫЙ ФОТОН-КОРРЕЛЯЦИОННЫЙ СПЕКТРОМЕТР (АППАРАТУРА, АЛГОРИТМЫ ОБРАБОТКИ ДАННЫХ И ПРОГРАММЫ)

Введение. Наиболее перспективным направлением спектроскопии квазиупругого рассеяния является фотон-корреляционная спектроскопия: рассеянный свет регистрируется фотоэлектронным умножителем — счетчиком фотонов; фотоотсчеты вводятся в специализированный процессор (коррелятор), определяющий их взаимно- или автокорреляционную функцию. Она, как известно [1], линейно связана с функцией корреляции флуктуаций интенсивности света $G^{(E)}(t)$.

В настоящей работе описан автоматизированный фотон-корреляционный спектрометр на базе широко распространенной техники: аппаратуры в стандарте КАМАК и микроЭВМ типа «Электроника 60» (комплекс микроКАМАКлаб). Подобный прибор разработан впервые в СССР. Для обработки поступающей информации в нем реализован новый алгоритм нерегуляризующего типа для решения некорректной обратной задачи корреляционной спектроскопии. Этот алгоритм ориентирован на определение распределения рассеивающих частиц по размерам и основан на усреднении методом Монте-Карло по начальным данным.

1. **Фотон-корреляционный спектрометр (аппаратура).** На рис. 1 приведена схема оптической части спектрометра. Источник излучения *1* — гелий-неоновый лазер ЛГ-79-1. Известно [1, 2], что в методе фотон-корреляционной спектроскопии зондирующий лазерный пучок должен быть свободен от флуктуаций по интенсивности с временами порядка характерных времен исследуемых процессов. Поэтому применена система [3] активной стабилизации мощности зондирующего пучка. На рис. 1 показано, что от исходного лазерного пучка в акустооптическом модуляторе *4* отщепляется зондирующий пучок, мощность которого поддерживается

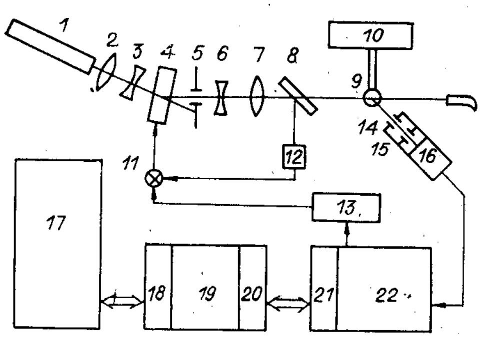

Рис. 1. Схема корреляционного спектрометра:

1 — лазер ЛГ-79-1; *2, 3, 6, 7* — линзы направляющей оптики; *4* — акустооптический модулятор МЛ-201; *5, 14, 15* — диафрагмы; *8* — плоскопараллельная пластинка; *9* — кювета с образцом; *10* — устройство подачи кювет; *11* — управляемый аттенюатор; *12* — фотоприемник; *13* — высокочастотный генератор; *16* — ФЭУ, работающий в режиме счета фотонов; *17* — ЭВМ (комплект MERA-60 с процессором «Электроника 60»); *18* — крейт-контроллер; *19* — крейт КАМАК; *20, 21* — интерфейсные модули; *22* — коррелятор фотоотсчетов в конструктиве КАМАК рующего луча отражается плоскопараллельной пластинкой 8 на фотодиод 12. Напряжение на выходе дифференциального усилителя, пропорциональное разности сигнала с фотодиода и стабильного опорного источника, поступает на управляющий вход регулируемого аттенюатора 11. Мощность проходящего через аттенюатор на модулятор 4 сигнала радиочастотного генератора 13 (частота 80 МГц, мощность 4 Вт) изменяется таким образом, чтобы интенсивность дифрагировавшего света была постоянной. Использование в качестве рабочего пучка именно дифрагировавшего излучения делает оптическую схему невзаимной, и лазер оказывается защищенным от паразитной обратной связи.

Линзами 6, 7 пучок фокусируется в центр кюветы 9 с исследуемым раствором. Диаметр пучка в кювете около 0,2 мм. Рассеянный образцом свет пропускается через полевую диафрагму 14. Апертурная диафрагма 15, установленная перед фотокатодом ФЭУ 16, обеспечивает освещение участка фотокатода, приблизительно равного одной площадке когерентности. ФЭУ, линза и система диафрагм установлены на поворотном плече гониометра, а кювета с исследуемым раствором — строго в центре неподвижного столика гониометра. Кюветы — высококачественные цилиндрические пробирки из кварца диаметром 2,5 мм.

Электронная часть корреляционного спектрометра включает блок фотоприемника, коррелятор фотоотсчетов, КАМАК-интерфейс для связи с ЭВМ «Электроника 60». В блоке фотоприемника применен специально отобранный по методике [4] экземпляр ФЭУ-100 в режиме счета фотонов. Электрические импульсы выхода ФЭУ длительностью по основанию около 10 нс поступают на вход токового предусилителя с полосой пропускания 0—200 МГц и коэффициентом передачи 2 В/мА. Предусилитель размещен в непосредственной близости от ФЭУ в одном с ним корпусе из магнитомягкой стали. Усиленные одноэлектронные импульсы поступают на двухуровневый дискриминатор. Верхний и нижний уровни дискриминации определяются по форме амплитудного распределения одноэлектронных импульсов конкретного ФЭУ [4]. Прошедшие импульсы стандартизируются по амплитуде (2,5 В), а также по длительности (25 нс) и поступают на вход цифрового коррелятора. Последний работает по схеме с одноканальной привязкой [5]; его построение в основном соответствует ранее опубликованному описанию [6].

Основные технические характеристики коррелятора: время выборки t_1 от 40 нс до 20 мс; число каналов коррелятора 48 и дополнительно 7 каналов для определения базовой линии с задержкой 78 t_1 перед первым из них (имеется возможность наращивания числа каналов: 24 канала на модуль КАМАК 4М); автоматическая установка уровня привязки в пределах от 0 до 100 с временем усреднения от $4t_1$ до $1024t_1$; емкость каждого канала накопителя 24 двоичных разряда.

2. **Теория и алгоритмы обработки данных.** Известно, что в случае гауссовой статистики флуктуаций интенсивности рассеянного излучения корреляционная функция, измеренная методом одноканальной привязки, совпадает с измеряемой полным (без привязки) коррелятором [1]. При рассеянии на системе случайно расположенных в пространстве многих частиц статистика флуктуаций является гауссовой. Более того, в настоящих экспериментах совпадение корреляционных функций имеет место безотносительно к статистике флуктуаций, поскольку среднее число фотоотсчетов за время выборки мало и последовательность фотоотсчетов после привязки практически совпадает с точной.

Для используемого в настоящей работе при фотоприеме режима самобиений теоретическое выражение нормированной корреляционной функции фотоотсчетов имеет вид

$$g^{(2)}(t) = [g^{(1)}(t)]^2, \tag{1}$$

где $g^{(1)}$ — автокорреляционная функция амплитуд поля. Для диффундирующих полидисперсных рассеивателей, на изучение которых ориентирован рассматриваемый спектрометр, $g^{(1)}$ представляется в виде

$$g^{(1)}(t)=\int_0^\infty P(\Gamma)\,e^{-\Gamma t}d\Gamma, \tag{2}$$

где $P(\Gamma)$ — распределение частиц по скорости диффузионной релаксации $\Gamma=Dq^2$; D — коэффициент диффузии; q — волновой вектор рассеяния. Величины (2) нормированы согласно

$$g^{(1)}(0)=1;\ g^{(1)}(\infty)=0;\ \int_0^\infty P(\Gamma)\,d\Gamma=1. \tag{3}$$

Обратная задача корреляционной спектроскопии заключается в нахождении распределения $P(\Gamma)$ по накопленной в корреляторе оценке автокорреляционной функции второго порядка $G^{(E)}(t)$. Для решения этой задачи производится минимизация функционала

$$\chi^2=\sum_{j=1}^{M}\frac{1}{\sigma_j^2}\left[g^{(E)}(t_j)-g^{(2)}(t_j)\right]^2, \tag{4}$$

где t_j — задержка по времени j-го канала коррелятора (число каналов $M=55$); $g^{(E)}$ — оценка нормированной экспериментальной коррелограммы:

$$g^{(E)}(t_j)=AG^{(E)}(t_j)+B; \tag{5}$$

A — нормировочный множитель; B — сдвиг «нулевой линии»; σ_j — стандартное отклонение случайной величины $g^{(E)}(t_j)$.

Значение χ^2 — квадратичная форма от A, B. Поэтому значения A, B легко находятся в общем виде:

$$\begin{gathered}A=d_A/d;\ B=d_B/d;\ d\equiv\langle G^{(E)2}\rangle-\langle G^{(E)}\rangle^2;\\ d_A\equiv\langle g^{(2)}G^{(E)}\rangle-\langle g^{(2)}\rangle\langle G^{(E)}\rangle;\\ d_B\equiv\langle G^{(E)2}\rangle\langle g^{(2)}\rangle-\langle g^{(2)}G^{(E)}\rangle\langle G^{(E)}\rangle,\end{gathered} \tag{6}$$

где $\langle\ldots\rangle$ среднее по каналам коррелятора, для произвольной функции времени $F(t)$ определенное формулой

$$\langle F\rangle\equiv\frac{1}{M}\sum_{j=1}^{M}\frac{1}{\sigma_j^2}F(t_j). \tag{7}$$

После нахождения A, B согласно (6) величина χ^2 остается функционалом от P. Нахождение последнего сводится к обратному преобразованию Лапласа функции $\sqrt{g^{(E)}}$, заданной только на отрезке действительной оси. Это преобразование, в свою очередь, сводится к решению уравнения Фредгольма I рода, что является некорректной задачей [7].

Введем базисный набор распределений $P_i(\Gamma)$, так что

$$P(\Gamma)=\sum_{i=1}^{N}n_iP_i(\Gamma), \tag{8}$$

где P_i нормированы так же, как и P (см. (3));

$$n_i\geqslant 0,\ \sum_{i=1}^{N}n_i=1. \tag{9}$$

Величины n_i могут интерпретироваться как доли от полного числа частиц, имеющих распределения P_i. Корреляционная функция $g^{(1)}$ (2) выражается в виде

$$g^{(1)}(t)=\sum_{i=}^{N} n_i g_i(t);\ g_i(t)=\int_0^\infty P_i(\Gamma)\, e^{-\Gamma t} d\Gamma. \tag{10}$$

После введения базиса (8), (10) решение обратной задачи корреляционной спектроскопии сводится к минимизации χ^2 (4) по N величинам n_i. Удобно перейти к переменным

$$x_i=\sqrt{n_i};\ \mathbf{x}^2\equiv\sum_{i=1}^{N} x_i^2=1. \tag{11}$$

Значение $\mathbf{x}$ согласно (11) следует искать на поверхности единичной гиперсферы.

Минимизация χ^2 (4) по x_i осуществляется с помощью итеративной процедуры, основанной на методе скорейшего спуска. Пусть $\mathbf{x}^{(n)}$ — исходный вектор для данной итерации. Текущий вектор $\mathbf{x}$ определяется согласно

$$\mathbf{x}=\mathbf{x}^{(n)}-l\nabla\chi^2, \tag{12}$$

где ∇ — оператор градиента; $l\geqslant 0$ — действительная переменная, так что функционал (4) становится функцией одной переменной l, минимум по которой ищется по методу удвоения шага. Значение $\mathbf{x}$ в минимуме принимается за следующий вектор $\mathbf{x}^{(n+1)}$. Далее итерации повторяются, пока они являются успешными, т. е. приводят к уменьшению χ^2.

Вектор $\nabla\chi^2$ параллелен поверхности гиперсферы:

$$\mathbf{x}\nabla\chi^2=0;\ \nabla_i\chi^2=\sum_{k=1}^{N}\left(\delta_{ik}-\frac{x_i x_k}{x^2}\right)\frac{\partial}{\partial x_k}\chi^2. \tag{13}$$

Данное свойство обеспечивает в главном порядке сохранение нормы вектора $\mathbf{x}$:

$$\mathbf{x}^2\approx\mathbf{x}^{(n)2}-2l\mathbf{x}^{(n)}\nabla\chi^2=\mathbf{x}^{(n)2}. \tag{14}$$

Таким образом, преимуществом выбора $\mathbf{x}$ в качестве переменной является то, что направление, на котором χ^2 падает с максимальной скоростью, совместимо с условием сохранения нормы (9).

При тестировании алгоритма мы задавали функции $P_i(\Gamma)$ в виде «столбиков» гистограммы:

$$P_i(\Gamma)=\frac{1}{\Delta\Gamma}\Theta(\Gamma_{i+1}-\Gamma)\,\Theta(\Gamma-\Gamma_i);\quad \Delta\Gamma\equiv\Gamma_{i+1}-\Gamma_i=\text{const}, \tag{15}$$

где Θ — функция Хевисайда; $\Gamma_i - N+1$ значений в интервале от $\Gamma_{\min}$ до $\Gamma_{\max}$. Соответствующие базисные функции, очевидно, имеют вид

$$g_i(t)=\frac{1}{t\Delta\Gamma}e^{-\Gamma_i t}\left(1-e^{-t\Delta\Gamma}\right). \tag{16}$$

Помимо полной гистограммы распределение $P(\Gamma)$ оказалось удобным характеризовать также средним значением $\bar\Gamma$ и полушириной $\Delta\bar\Gamma$:

$$\bar\Gamma=\int_0^\infty \Gamma P(\Gamma)\,d\Gamma;\ \Delta\bar\Gamma=\left[\int_0^\infty P(\Gamma)(\Gamma-\bar\Gamma)^2\,d\Gamma\right]^{1/2}. \tag{17}$$

Для оценки $\bar\Gamma$ применялся также независимый метод кумулянтов [8]. В начальной части коррелограммы при $t\Gamma\ll 1$ разложение экспоненты дает

$$\ln g^{(2)}(t)\approx -2\bar\Gamma t. \tag{18}$$

Таким образом, нахождение $\bar\Gamma$ сводится к задаче линейной регрессии. Ее решение выполнялось по первым семи точкам коррелограммы, причем приближенно полагалось:

$$A = [G^{(E)}(t_1) - G^{(E)}(t_M)]^{-1}; \quad B = -AG^{(E)}(t_M). \tag{19}$$

Рассмотренная выше задача минимизации не является линейной: функционал χ^2 (4) не квадратичен по переменным n_i. Однако можно найти другой функционал

$$\tilde{\chi}^2 = \sum_{j=1}^{M} \frac{4\,|g^{(E)}(t_j)|}{\sigma_j^2} \left[\sqrt{|g^{(E)}(t_j)|} - g^{(1)}(t_j)\right]^2, \tag{20}$$

где $g^{(E)}$ дается (5) при значениях констант (19). При $g^{(1)}$, определяемом формулой (10), χ^2 — квадратичная форма от n_i. При условии

$$g^{(E)}(t_j) \gg \sigma_j \tag{21}$$

функционал (20) близок к χ^2 (4) как по величине, так и по положению минимума.

Условие (21), очевидно, выполняется всюду, кроме «хвостов» коррелограммы, включение которых в сумму (20) таким образом незаконно. (Подобное условие не учтено в работе [9].) Можно лишь несколько улучшить точность, распространив суммирование в (20) на все точки коррелограммы, но заменив

$$\sqrt{|g^{(E)}(t_j)|} \to \operatorname{sign}(g^{(E)}(t_j))\sqrt{|g^{(E)}(t_j)|}.$$

Из квадратичности (20) по n_i следует, что приближенно справедлив принцип суперпозиции: любая линейная комбинация наборов $\{n_i\}$, являющихся приближенными решениями обратной задачи корреляционной спектроскопии, также будет приближенным (с той же точностью) решением. Данное заключение важно, поскольку вследствие некорректности задача близка к вырожденной: существует множество решений, почти эквивалентных по величине χ^2 (см. ниже численное исследование).

Величину $\tilde{\chi}^2$ (20) можно, очевидно, переписать в эквивалентном виде

$$\tilde{\chi}^2 = a + \sum_{i=1}^{N} n_i b_i + \sum_{i,k=1}^{N} n_i n_k c_{ik}, \tag{22}$$

где a, b_i, c_{ik} — не зависящие от $\{n_i\}$ скаляр, вектор (длины N) и матрица ($N \times N$) соответственно;

$$\begin{gathered} a = -4\sum_{j=1}^{M}\left[\frac{g^{(E)}(t_j)}{\sigma_j}\right]^2; \quad b_i = -8\sum_{j=1}^{M}\frac{|g^{(E)}(t_j)|}{\sigma_j^2}\, g_i(t_j); \\ c_{ik} = 4\sum_{j=1}^{M}\frac{|g^{(E)}(t_j)|}{\sigma_j^2}\, g_i(t_j)\, g_k(t_j). \end{gathered} \tag{23}$$

Данные величины могут быть вычислены 1 раз перед процедурой минимизации. Поэтому наряду с точной процедурой, использующей функционал (4), реализован также алгоритм «быстрой минимизации» величины $\tilde{\chi}^2$ (22), работающий в $\sim M/N \sim 10$ раз быстрее.

В программах вместо Γ использована переменная $\gamma = \Gamma T$, где T — максимальное время на непрерывной части коррелограммы ($T = 48t_1$, t_1 — время задержки на канал коррелограммы). Распределения $P(\gamma)$ рассматривались при $\gamma \in (0, 6)$.

В программах, основанных на описанных выше алгоритмах, принималось $\sigma_j \equiv \sigma = \mathrm{const}$. Это оправдывается тем, что обычно «нулевая линия» значительно превосходит «полезный сигнал»: $G^{(E)}(t_1) - G^{(E)}(t_M) \ll G^{(E)}(t_M)$. Таким образом, числа отсчетов во всех каналах коррелятора разнятся относительно мало. Для оценки качества подгонки по критерию χ^2 значение σ вычислялось для каждой конкретной коррелограммы по алгоритму скользящего сглаживания. При этом среднеквадратичное отклонение g^2 от $g^{(E)}$ есть $\delta = \sqrt{\sigma^2\chi^2/M}$.

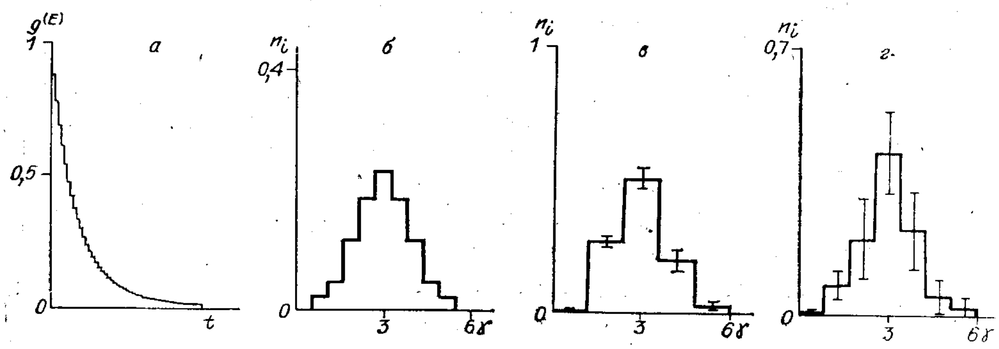

Рис. 2. Модельная коррелограмма (*а*); исходная гистограмма одномодального распределения по γ (*б*); восстановленные гистограммы распределения с $N = 5$; 7 (*в*, *г*). Зашумление модельной коррелограммы отсутствует. Приведенные ошибки гистограмм — оценки стандартного отклонения единичного решения обратной задачи со случайным начальным вектором

3. **Тестирование алгоритмов с помощью численного моделирования по методу Монте-Карло и натурного эксперимента.** Численное моделирование проводилось путем задания некоторого исходного набора n_i и вычисления модельной коррелограммы

$$G^{(E)}(t_j) = \left[\sum_{i=1}^{N} n_i g_i(t_j)\right]^2 + \xi_j, \tag{24}$$

где «шум» ξ_j — некоррелированные при разных j гауссовы случайные величины с нулевым средним и (не зависящим от j) стандартным отклонением σ. Далее описанным выше образом решалась обратная задача и найденные значения n_i сравнивались с исходными. Поскольку реальные распределения являются гладкими, то число столбцов гистограммы при моделировании выбиралось бо́льшим ($N = 11$), чем при решении обратной задачи ($N = 5$; 7). С целью исследования устойчивости обработки по отношению к выбору исходного вектора итеративного процесса в качестве $\mathbf{x}^{(0)}$ для каждой коррелограммы генерировался случайный вектор (с равномерным распределением на единичной гиперсфере). Статистика накапливалась по разным реализациям модельной коррелограммы. Аналогичная процедура статистической обработки применялась и в натурном эксперименте (см. далее). Во всех случаях размер выборки составлял 12.

На рис. 2 представлены результаты исследования для одномодального распределения без «зашумления» ($\sigma = 0$). Показаны коррелограмма, исходная гистограмма ($N = 11$), а также гистограммы распределений (т. е. значения n_i), полученные путем решения обратной задачи ($N = 5$; 7). На рис. 3 — то же самое, но для бимодального исходного распределения. В качестве ошибок гистограмм здесь и далее отложены выборочные оценки стандартного отклонения для единичной обработки. Для приведенных на рисунках средних гистограмм ошибки, разумеется, в $\sqrt{12}$ раз меньше.

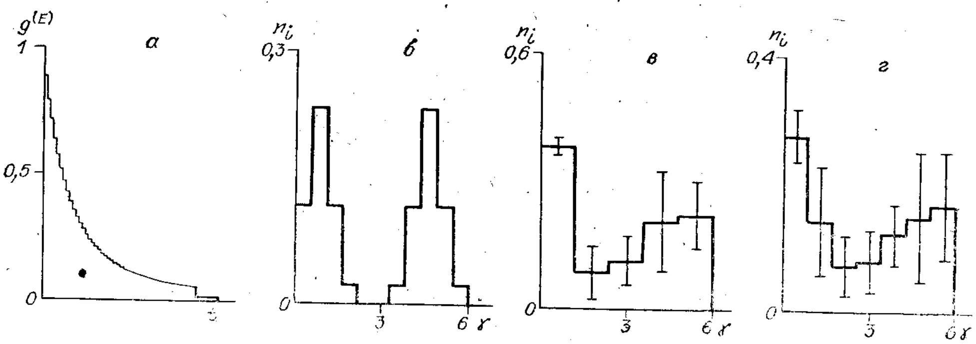

Рис. 3. То же, что и на рис. 2, но для бимодального распределения

Результаты статистической обработки модельных коррелограмм: выборочные

Параметры исходного распределения	$N=7$					
	σ	δ	χ^2	$\bar{\gamma}$	$\Delta\bar{\gamma}$	$\bar{\gamma}_c$
Одномодальное	0	$1{,}8(9)\times10^{-4}$	—	3,00(1)	0,95(7)	3,08
$\bar{\gamma}=3{,}0$	0,002	0,0021(2)	59(14)	3,02(2)	1,02(8)	3,06(3)
$\Delta\bar{\gamma}=0{,}95$	0,01	0,0104(9)	59(10)	3,05(9)	1,1(2)	3,1(1)
Бимодальное	0	$0{,}7(4)\times10^{-3}$	—	2,76(6)	2,0(1)	2,74
$\bar{\gamma}=2{,}80$	0,002	0,0022(1)	67(9)	2,76(3)	1,95(5)	2,72(4)
$\Delta\bar{\gamma}=1{,}95$	0,01	0,0102(1)	57(1)	2,78(7)	2,0(1)	2,7(1)
Натурный эксперимент с суспензией латексных сфер (средний диаметр	0,003	0,0033(7)	68(20)	2,90(4)	1,3(1)	3,03(4)
0,28 соответствует $\bar{\gamma}=3{,}1$)	0,01	0,010(2)	55(22)	2,8(1)	1,2(4)	3,1(2)

Примечание. После каждого среднего в скобках указана оценка стандартного откло-
обратной задачи (для указанных средних ожидаемые ошибки в $\sqrt{12}$ раз меньше); $\bar{\gamma}_c$ — оценка $\bar{\gamma}$,
релограммы от модельной (усреднение по точкам коррелограммы и по разным реализациям); для
ная по алгоритму скользящего сглаживания.

Подчеркнем, что в представленных на рис. 2, 3 данных случайность в коррелограммах отсутствует. Весь разброс гистограмм обусловлен случайностью в выборе начального вектора $\mathbf{x}^{(0)}$. Наблюдаемая зависимость от начальной точки — следствие некорректности обратной задачи.

Выборочные оценки параметров для указанных (и прочих модельных) коррелограмм приведены в таблице. Обратим внимание на важную особенность: в случае незашумленных ($\sigma=0$) коррелограмм среднеквадратичное относительное отклонение δ теоретической (восстановленной) коррелограммы $g^{(2)}$ от исходной (модельной) $g^{(E)}$ весьма мало. Оно составляет лишь $\leqslant 2\cdot10^{-4}$ для одномодального распределения и $(5-7)\times\times10^{-4}$ для бимодального. Таковые отклонения много меньше, чем минимальное зашумление коррелограмм, которое может быть достигнуто в реальном эксперименте (обычно за 10 мин накопления удается получить $\sigma\geqslant0{,}002$).

Таким образом, несмотря на то что (как видно из приведенных на рис. 2, 3 ошибок) индивидуальные восстановленные распределения могут значительно отклоняться от исходного, соответствующие коррелограммы совершенно несущественно (по сравнению с реальными шумами) отличаются от модельных. Данное обстоятельство также является следствием некорректности обратной задачи.

Рассмотрим обработку зашумленных коррелограмм. Исследовались выборки модельных коррелограмм с дисперсией значения канала $\sigma=$ $=0{,}002$ и $\sigma=0{,}01$. Соответствующие коррелограммы и гистограммы приведены на рис. 4, 5 (оценки средних параметров см. в таблице). Из этих данных можно сделать вывод, что влияние некорректности обратной задачи увеличивается с ростом числа параметров гистограммы; оно сильнее для бимодальных распределений, чем для одномодальных.

Обсудим данные, приведенные в таблице. Из значения χ^2 следует, что во всех случаях зашумления нет противоречия с нулевой гипотезой: отличие теоретической коррелограммы от модельной обусловлено только шумами последней; систематических отклонений нет. Величина $\bar{\gamma}$ находится во всех случаях с очень высокой точностью, и весьма удовлетворительно определяется также интегральная полуширина распределения $\Delta\bar{\gamma}$. Хотя определение $\bar{\gamma}$ по методу кумулянтов и приводит к небольшой ($\approx3\%$) систематической ошибке (в большую сторону для одномодальных и меньшую для бимодальных распределений), оценка $\bar{\gamma}_c$ явно полезна,

оценки (по выборке из 12 коррелограмм для каждого значения σ)

			$N=5$		
σ	δ	χ^2	$\overline{\gamma}$	$\Delta\overline{\gamma}$	$\overline{\gamma}_c$
0	$1{,}2(4)\times10^{-4}$	—	3,00(4)	0,98(2)	3,08
0,002	0,0020(2)	57(10)	3,01(1)	1,00(6)	3,08(4)
0,01	0,0105(9)	55(8)	3,07(7)	1,2(2)	3,1(1)
0	$0{,}5(2)\times10^{-3}$	—	2,79(3)	1,96(7)	2,74
0,002	0,0021(2)	58(9)	2,79(3)	1,97(5)	2,72(3)
0,01	0,0097(7)	52(8)	2,78(6)	1,95(9)	2,7(2)
0,002	0,0029(5)	51(17)	2,96(5)	1,4(2)	3,04(3)
0,01	0,009(1)	56(11)	3,1(2)	1,2(6)	3,2(2)

нения в единицах последнего приведенного знака. Последнее рассчитано для единичного решения полученная по методу кумулянтов; δ — среднеквадратичное отклонение значения рассчитанной корнатурного эксперимента σ — оценка стандартного отклонения канала коррелограммы, получен-

поскольку может находиться в реальном темпе накопления коррелограмм (что и реализовано в программах).

Прямой проверкой установлено, что средняя гистограмма также хорошо (по критерию χ^2) описывает исходные коррелограммы. Этот результат не вполне тривиален, поскольку рассматриваемая задача мини-

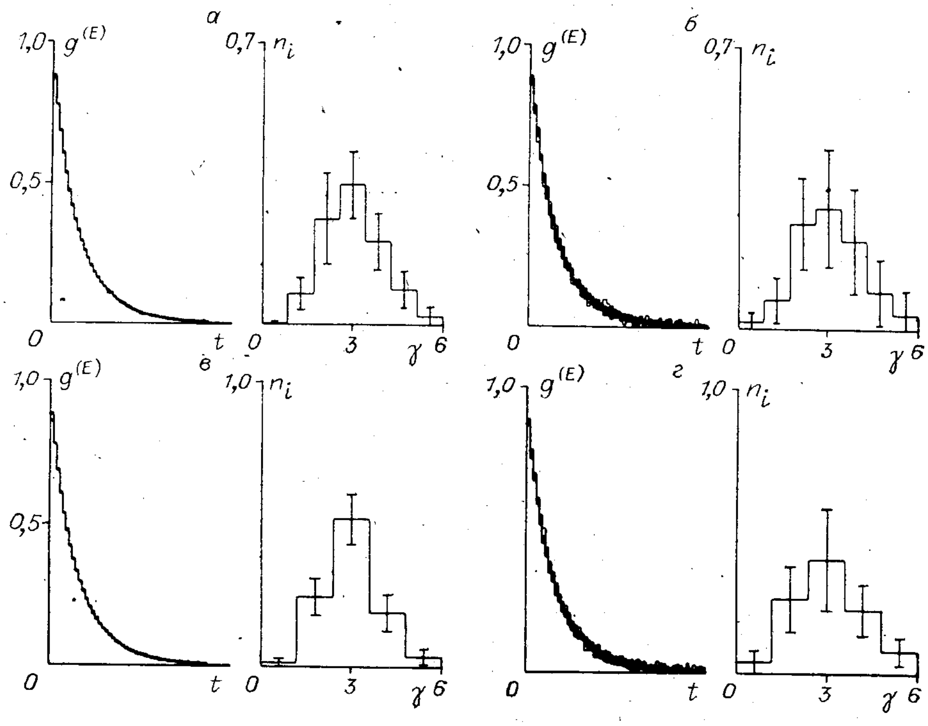

Рис. 4. Зашумленные коррелограммы и полученные путем их обработки средние (по выборке) гистограммы.

Коррелограммы, являющиеся разными реализациями зашумления исходной корреляционной функции, наложены друг на друга с тем, чтобы визуально показать характер их зашумления. Приведенные ошибки гистограмм — оценки стандартного отклонения столбца гистограммы для единичного решения обратной задачи со случайным начальным вектором x^0, найденные по выборке из 12 модельных коррелограмм: *а* — $\sigma = 0{,}002$, $N = 7$; *б* — $\sigma = 0{,}01$, $N = 7$; *в* — $\sigma = 0{,}002$, $N = 5$; *г* — $\sigma = 0{,}01$, $N = 5$. (Случай одномодального исходного распределения)

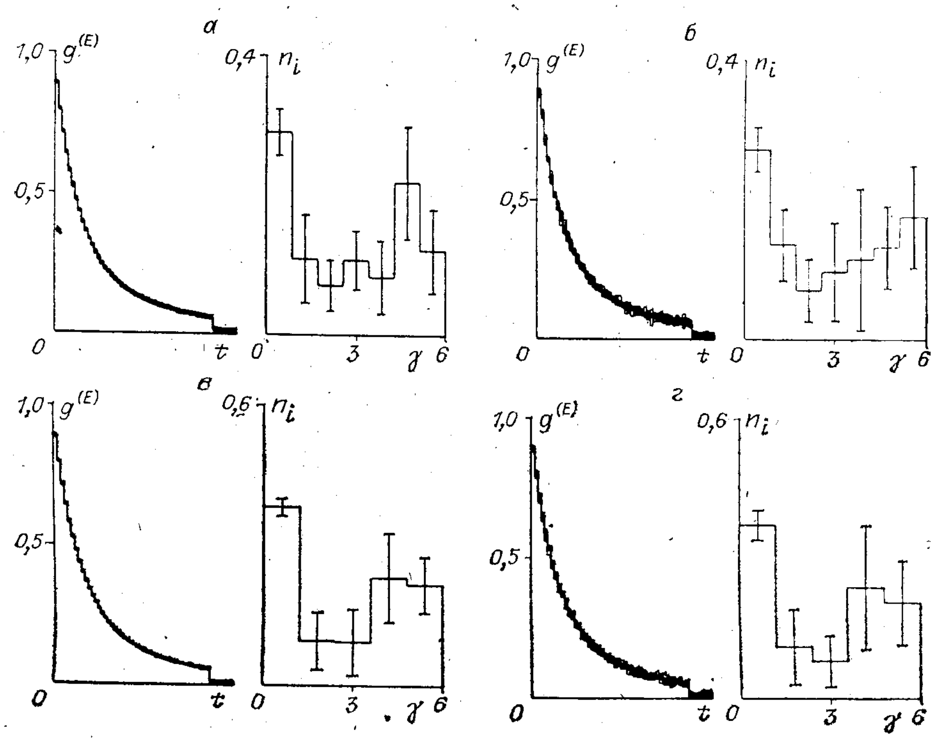

Рис. 5. То же, что и на рис. 4, но для бимодального исходного распределения

мизации нелинейна. Однако отклонения теоретических функций $g^{(2)}$ от экспериментальных $g^{(E)}$ обычно малы (см. выше). Условие минимизации функционала приближенно сводится к системе линейных по n_i уравнений (ср. с (20)). Если некоторые наборы n_i — решения этой системы, то и произвольная их суперпозиция также является решением. Одной из таких суперпозиций и будет средняя гистограмма, которая, следовательно, также минимизирует исходный функционал.

Таким образом, при объеме выборки $\geqslant 12$ средняя гистограмма с удовлетворительной точностью (относительная ошибка $\sim 10\%$) воспроизводит исходное распределение. Подчеркнем, что для малозашумленных коррелограмм ($\sigma \leqslant 0{,}002$) усреднение достаточно проводить по обработкам одной коррелограммы с различными начальными векторами $\mathbf{x}^{(0)}$. Подобное усреднение с использованием метода Монте-Карло является альтернативным методом решения некорректной обратной задачи спектроскопии квазиупругого рассеяния, которое существенно отличается от обычно используемых методов регуляризации по Тихонову [10].

В натурном эксперименте рассеивающей системой была суспензия латексных сфер в воде. Угол рассеяния $\Theta = 45°$, время задержки на канал $t_1 = 0{,}4$ мс. Коррелограммы накапливались до требуемых зашумлений: $\sigma = 0{,}01$ (типичное время регистрации 30 с) и $\sigma = 0{,}003$ (время накопления ≈ 5 мин). Количество измеренных коррелограмм каждого типа составляло 24. Половина указанного количества обрабатывалось с $N = 7$, а вторая половина — с $N = 5$.

Суперпозиции экспериментальных коррелограмм, а также оценки средних гистограмм и ошибок единичной обработки приведены на рис. 6; выборочные оценки средних параметров и стандартных ошибок см. в таблице.

Как можно видеть из сравнения рис. 6 с рис. 4, 5, в натурном эксперименте наблюдается повышенная (по отношению к моделированию по методу Монте-Карло при тех же самых значениях σ) вариабельность коррелограмм. Величина вариабельности примерно такая же или несколько больше, чем статистический шум каналов σ (оцененный для

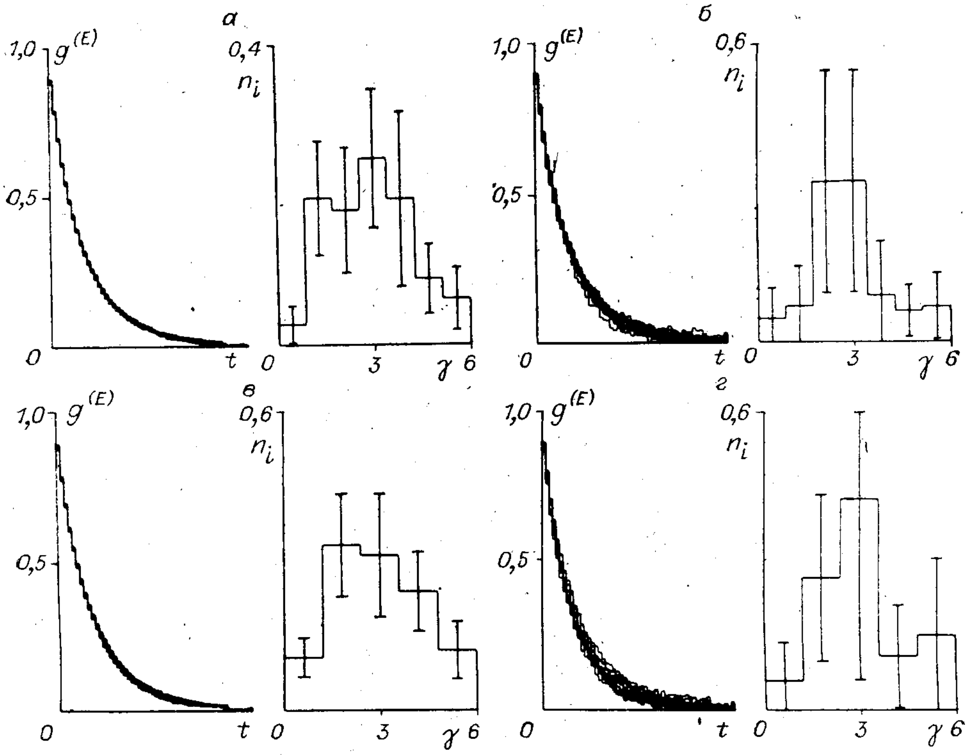

Рис. 6. То же, что и на рис. 4, но для натурного эксперимента с суспензией латексных сфер:

σ — оценка стандартного отклонения канала коррелограммы, найденная по алгоритму скользящего сглаживания: *а* — σ = 0,003, *N* = 7; *б* — σ = 0,01, *N* = 7; *в* — σ = 0,003, *N* = 5; *г* — σ = = 0,01, *N* = 5

данной коррелограммы по алгоритму скользящего сглаживания); она так же, как и σ, уменьшается с увеличением времени накопления T_a (примерно пропорционально $T_a^{-1/2}$). Последнее показывает, что коррелограмма случайным образом флуктуирует во времени. Причиной вариабельности коррелограмм, по-видимому, являются случайные гидродинамические потоки в растворе. Вместе с тем результаты рис. 6 показывают, что примерно около двух часов, в течение которых проводился эксперимент с требуемым значением $\sigma = 0{,}003$, систематическое смещение коррелограммы составило не более чем $\approx 0{,}3\%$ (по отношению к первому каналу).

Гистограммы на рис. 6 определяются большим разбросом, чем на рис. 4, 5; это, по-видимому, обусловлено упомянутой вариабельностью коррелограмм. Точность определения средних гистограмм распределений приемлема ($\approx 10\%$) для $\sigma = 0{,}003$ и недостаточна для $\sigma = 0{,}01$. Видно, что использованные латексы достаточно полидисперсны; их распределение одномодально.

Из таблицы видно, что значения $\bar{\gamma}$ находятся примерно с такой же точностью, как и при моделировании с близкими σ (ср. с таблицей). Точность нахождения величины $\Delta\bar{\gamma}$ примерно такая же, как при численном моделировании при $\sigma = 0{,}003$ и в несколько раз хуже для $\sigma = 0{,}01$. Значения χ^2 показывают, что полученным данным не противоречит нулевая гипотеза об отсутствии систематических отклонений $\bar{g}^{(2)}$ от $g^{(E)}$.

Средний диаметр частиц выражается через $\bar{\gamma}$ согласно

$$\mathscr{D}\,[\text{мкм}] = 14{,}9\,\frac{1}{\bar{\gamma}}\,t_1\,[\text{мс}]\,\frac{1}{\eta\,[\text{сП}]}\sin^2\frac{\Theta}{2}, \qquad (25)$$

где η — вязкость раствора. Подстановка в (25) среднего значения $\bar{\gamma} = 2{,}93 \pm 0{,}01$ (по данным таблицы; здесь и ниже указаны ошибки среднего) дает средний диаметр частиц в растворе $\mathscr{D} = 0{,}298 \pm 0{,}001$ мкм, который находится в разумном согласии с паспортным диаметром латексов 0,28 мкм (менее точно, по-видимому, известна последняя величина). По данным таблицы можно также проследить воспроизводимость параметров во времени. Для коррелограмм с $\sigma = 0{,}003$ из серии, обрабатываемой при $N = 7$, найдено: $\mathscr{D} = 0{,}301 \pm 0{,}002$ мкм, полуширина распределения по $\mathscr{D}$ $\Delta\mathscr{D} = 0{,}135 \pm 0{,}003$ мкм; из серии $N = 5$ — $\mathscr{D} = 0{,}295 \pm 0{,}002$ мкм; $\Delta\mathscr{D} = 0{,}140 \pm 0{,}006$ мкм. Результаты определения данных параметров хорошо согласуются между собой, хотя две указанные серии коррелограмм накапливались в течение примерно часа каждая с таким же промежутком между ними.

Таким образом, исследование представленных однородных выборок приводит к следующим заключениям. Восстановление распределения по размерам частиц возможно при статистическом разбросе каналов коррелограммы не более нескольких десятых долей процента (таковой разброс достигается на описываемом приборе примерно за 5 мин накопления). Относительные статистические ошибки определения среднего по выборке из 12 коррелограмм составляют для среднего размера $\approx 0{,}7\%$; полуширины распределения по размерам $\approx 2\%$. Невоспроизводимость указанных величин на временах порядка часов не превышает их статистических ошибок, что позволяет исключить наличие систематических ошибок, изменяющихся во времени.

Высокая точность определения среднего размера позволила с помощью описанного спектрометра изучить неизвестную ранее кинетику ранней стадии иммунологической реакции агглютинации и обнаружить критический (подобный поведению при фазовых переходах) характер зависимости от концентрации сыворотки [11].

4. **Пакет программ, поддерживающий автоматизированный корреляционный спектрометр.** Программы, поддерживающие корреляционный спектрометр, написаны на языке Фортран-IV; подпрограммы обслуживания КАМАК-модулей — на языке Ассемблера Макро-11. Программы работают в операционной среде RT-11 на ЭВМ «Электроника» и СМ, начиная с Э 60. Требуемая оперативная память 28 К. Пакет состоит из следующих программ.

Программа COR. В режиме реального времени управляет коррелятором; по алгоритму скользящего сглаживания находит разброс каналов коррелограммы σ; по методу кумулянтов определяет средний размер частиц (параметр γ_c); контролирует расход времени на накопление коррелограммы. Коррелограммы и данные протокола эксперимента (заголовок коррелограммы, дата, время регистрации, статистический разброс σ) во внутреннем формате записываются в файл прямого доступа с длиной записи 256 слов (1 блок).

Программа FIT. Обрабатывает коррелограммы по методу гистограмм, используя минимизацию функционалов χ^2 (4) (основной режим) и (или) $\tilde{\chi}^2$ (22) (режим быстрой минимизации). Результат обработки упаковывает и помещает в ту же запись файла прямого доступа, где хранится исходная коррелограмма. Программа работает с произвольным набором базисных функций (см. п. 2), который считывает с указанного неформатированного файла на внешнем накопительном устройстве.

Программа DIS. Декодирует информацию, хранимую в файле прямого доступа; визуализирует результаты обработки; обеспечивает вывод графической информации на дисплей и плоттер. Дополнительными функциями данной программы является сортировка коррелограмм (с записью выбранных коррелограмм в указанный дополнительный файл прямого доступа); накопление статистики по однородным выборкам коррелограмм и их обработок. С помощью данной программы получены данные, представленные на рис. 2—6 и в таблице.

Программа BAS. Вычисляет набор базисных функций (16) для метода гистограммы с равномерной сеткой; помещает его в указанный не-
как и программа FIT).

Указанные программы находятся в активной эксплуатации более двух лет и успешно применяются для решения ряда задач.

ЛИТЕРАТУРА

1. **Спектроскопия** оптического смешения и корреляция фотонов/Под ред. X. Камминса и Э. Пайка.— М.: Мир, 1978.
2. **Chu B., Gulari Es., Gulari Er.** Photon correlation measurements of colloidal size distributions // Phys. Scr.— 1979.— V. 19, N 4.— P. 476—485.
3. **Layer H. P.** Acoustooptic modulator intensity servo // Appl. Opt.— 1979.— V. 18, N 17.— P. 2964—2967.
4. **Одноэлектронные** фотоприемники/Под ред. А. Н. Перцева.— М.: Атомиздат, 1979.
5. **Chen S. H., Veldkamp W. B., Lai C. C.** Simple digital clipped correlator for photon correlation spectroscopy // Rev. Sci. Instr.— 1979.— V. 46, N 10.— P. 1356—1367.
6. **Ерш И. Г., Яковин Д. В.** Быстродействующий коррелятор фотонов // Автометрия.— 1985.— № 2.
7. **Тихонов А. Н., Арсенин В. Я.** Методы решения некорректных задач.— М.: Наука, 1979.
8. **Koppel D. E.** Analysis of macromolecular polydispersity in intensity correlation spectroscopy: the method of cumulants // J. Chem. Phys.— 1972.— V. 57, N 11.— P. 4814.
9. **Zimmerman K., Delaye M., Licinio P.** Analysis of multiexponential decay by linear programming method: application to light scattering spectroscopy // J. Chem. Phys.— 1985.— V. 82, N 5.— P. 2228—2235.
10. **Braginskaya T. G., Dobichin P. D., Ivanova M. A. e. a.** Analysis of the polydispersity by photon correlation spectroscopy // Phys. Scr.— 1983.— V. 26, N 3.— P. 309—315.
11. **Ерш И. Г., Муратов Л. С., Новожилов С. Ю. и др.** Кинетика иммунологической реакции агглютинации и экспрессное определение бактерий с помощью автоматизированного лазерного фотон-корреляционного спектрометра // ДАН СССР.— 1986.— № 5.

Поступила в редакцию 13 мая 1986 г.

УДК 621.397 : 621.385

Ю. В. БОНДАРЕНКО, В. Я. БУДЦЕВ, А. Н. КАСПЕРОВИЧ, В. И. ПРОКОПЕНКО

(Новосибирск)

АВТОМАТИЗИРОВАННЫЙ МНОГОКАНАЛЬНЫЙ РЕГИСТРАТОР ОПТИЧЕСКИХ СПЕКТРОВ

Для регистрации оптических изображений малой интенсивности и длительности перспективными представляются системы на основе телевизионных передающих ЭЛТ [1—4]. Включение в такие системы мини-ЭВМ позволяет получить эффективные комплексы для регистрации и обработки изображений [5—7].

Испытания регистратора одномерных изображений [4] показали перспективность использования в качестве приемника изображения супервидикона ЛИ-702 (суперкремникона) и позволили определить направление дальнейших работ. Было решено разработать специализированную телевизионную передающую камеру (КТП), повысить разряд-