

Адаптивный съем измерительной информации в импульсной спектрометрии. Дианов С.Г., Мельцин А.Л., Фридман П.А. // Научное приборостроение. Физика аналитических приборов. Л.: Наука, 1989. - С. 77-85.

Развит метод адаптивной дискретизации неравномерной сетки отсчетов при последовательной регистрации компонент многомерного спектра. В качестве базисных функций при кусочно-многочленной интерполяции интервалов измерений использованы кубические сплайн-функции. Проведен анализ погрешности указанной интерполяции. Рассмотрен итеративный алгоритм формирования оптимального распределения отсчетов, адаптированного к структуре восстанавливаемого спектра. Проведено численное моделирование развитого метода на ЭВМ для различных типов двумерных спектров при наличии шумов. Показана эффективность развитого метода, обеспечивающего значительное сокращение числа необходимых отсчетов при сохранении точности восстановления спектра. Отмечена особая значимость метода адаптивной дискретизации последовательных отсчетов в импульсной лазерной спектрометрии при изучении сред, обладающих низким порогом фотодеструкции. Лит. - 7 назв., ил. - 5.

АДАПТИВНЫЙ СЪЕМ ИЗМЕРИТЕЛЬНОЙ ИНФОРМАЦИИ В ИМПУЛЬСНОЙ СПЕКТРОМЕТРИИ

Развитие методов импульсной спектроскопии в нано- и пикосекундном диапазоне стимулирует получение качественно новой информации о динамике излучательных и безизлучательных переходов, путях миграции энергии возбуждения, нелинейных эффектах взаимодействия излучения со средой [1-3]. При этом, благодаря простоте реализации, типичной методикой измерения многомерных спектрально-поляризационных и временных характеристик исследуемых сред является последовательная регистрация интенсивностей спектральных компонент с произвольным равномерным шагом, обычно выбираемым оператором, исходя из физических соображений.

Однако изучение короткоживущих объектов и сред, обладающих низким порогом разрушения и подверженных влиянию внешних возмущающих факторов, накладывает весьма жесткие ограничения на длительность измерений и допустимое число зондирующих импульсов. При этом традиционная методика последовательных измерений становится явно неэффективной.

В статье развит адаптивный метод оптимизации распределения отсчетов в пространстве измерений многомерного спектрально-временного образа исследуемого объекта. Под оптимальным понимается такое распределение отсчетов, которое обеспечивает регистрацию искомой многомерной функции с наилучшей точностью за минимальное число последовательных измерений.

Процесс многомерных спектральных измерений, связанный с построением при помощи ЭВМ некоторой функции $I_N(\vec{x})$, где $\vec{x} - N$ -мерный вектор координат, всегда включает в себя процедуру дискретизации по координатам x_1, \dots, x_N . В результате измерений формируется массив отсчетов неизвестной функции, по которым необходимо восстановить искомую поверхность с наилучшей точностью, т.е. найти оценку

$\hat{I}_N(\bar{x})$, наименее уклоняющуюся от $I_N(\bar{x})$.

Согласно теореме отсчетов [4] трехмерная функция $\bar{I}(x, y, z)$, имеющая ограниченные частотные спектры по каждой координате, может быть представлена в виде интерполяционного ряда:

$$\bar{I}(x, y, z) = \sum_{m_x=-\infty}^{\infty} \sum_{m_y=-\infty}^{\infty} \sum_{m_z=-\infty}^{\infty} I\left(\frac{x m_x}{\omega_x}, \frac{y m_y}{\omega_y}, \frac{z m_z}{\omega_z}\right) \times \\ \times \frac{\sin(\omega_x x - m_x \pi)}{\omega_x x - m_x \pi} \frac{\sin(\omega_y y - m_y \pi)}{\omega_y y - m_y \pi} \frac{\sin(\omega_z z - m_z \pi)}{\omega_z z - m_z \pi}. \quad (1)$$

Граничные частоты $\omega_x, \omega_y, \omega_z$ определяют минимальные величины шагов отсчетов по каждой координате $h_{x,y,z} = \pi/\omega_{x,y,z}$, обеспечивающих полное восстановление искомой функции.

Практическое применение выражения (1) ограничено из-за отсутствия априорной информации о граничных частотах и корректности представления функции $\bar{I}(x, y, z)$ в виде конечного ряда. Кроме того, неоднородные дифференциальные свойства исходной функции по координатам делают неоптимальной равномерную дискретизацию точек отсчетов на всем интервале измерений, которая приводит к неоправданному увеличению количества и времени измерений без повышения информативности.

Исходя из априорной неопределенности свойств восстанавливаемой многомерной функции и необходимости оптимального распределения дискретизации отсчетов представляется целесообразным использование адаптивного подхода [5], при котором интервал между отсчетами и степень многочлена, аппроксимирующего функцию между ними, выбирается итеративно, исходя из "гладкости", т.е. дифференциальных свойств восстанавливаемой функции. По результатам отсчетов необходимо с наилучшей точностью восстановить измеряемую функцию, т.е. провести интерполяцию.

Способ интерполяции должен обладать хорошими аппроксимирующими свойствами и быть доступным в программной реализации. Следуя теории интерполяции [6] для приближения одномерной функции алгебраическими многочленами, введем понятие многочлена наилучшего приближения $F_n(x)$ степени n , для которого достигается минимум ошибки:

$$E_n(f) = \inf_{x \in [a, b]} \max |f(x) - F_n(x)|.$$

Здесь $E_n(f)$ - наименьшее уклонение среди многочленов степени не выше n от функции $f(x)$. Величина этого уклонения для ρ раз непрерывно дифференцируемой функции $f(x)$ может оцениваться неравенством вида [7]

$$E_n(f) \leq \frac{C_\rho}{n^\rho} \omega\left(\frac{\delta - a}{2(n-\rho)}, f^{(\rho)}\right), \quad (2)$$

где C_ρ - константа, $\omega(\delta, f)$ - модуль непрерывности, характеризующий гладкость функции $f(x)$ на отрезке δ :

$$\omega(\delta, f) = \sup |f(x') - f(x'')|, \quad (3)$$

где $|x' - x''| \leq \delta$; $x', x'' \in [a, b]$. Из формулы (2) видно, что погрешность интерполяции зависит от модуля непрерывности ρ -й производной приближаемой функции.

При интерполяции функции со значительной неоднородностью, характерной для электронно-колебательных спектров молекул при низких температурах, приближение измеряемой функции алгебраическими многочленами обладает существенным недостатком, так как погрешность приближения в какой-либо точке x_i зависит от поведения функции $f(x)$ в других точках интервала измерений $[a, b]$. Поэтому нами ис-

пользован способ кусочно-многочленной интерполяции, при котором весь диапазон измерений в процессе регистрации итеративно разделяется на несколько областей с различной неоднородностью и своими сетками отсчетов, более частыми на участках с высокой неоднородностью и разреженными в зонах с малыми изменениями приближаемой функции. Таким образом, сетки отсчетов адаптируются к структуре функции $f(x)$.

В качестве базисных функций при кусочно-многочленной интерполяции выбраны сплайн-функции, обладающие хорошими аппроксимирующими свойствами и достаточно просто вычисляемые. Наиболее приемлемыми для решения поставленной задачи представляются кубические сплайны. Ограничиваясь рассмотрением трехмерной функции $I(x, y, z)$, зададим область измерений $\Omega: [-X, X] \cdot [-Y, Y] \cdot [-Z, Z]$ с сеткой отсчетов $\Delta = \Delta_x \cdot \Delta_y \cdot \Delta_z$, где $\Delta_x: -X = x(0) < x(1) < \dots < x(m_x) = X$; $\Delta_y: -Y = y(0) < y(1) < \dots < y(m_y) = Y$; $\Delta_z: -Z = z(0) < z(1) < \dots < z(m_z) = Z$.

На каждом кубе $[x(i), x(i+1)] \cdot [y(j), y(j+1)] \cdot [z(k), z(k+1)]$ задан многочлен третьего порядка от трех переменных x, y, z в виде

$$S(x, y, z) = \sum_x^3 \sum_y^3 \sum_z^3 C_{\alpha\beta\gamma}^{ijk} (x - x(i))^\alpha (y - y(j))^\beta (z - z(k))^\gamma.$$

Многочлен $S(x, y, z)$ принадлежит пространству $C^{2,2,2}[\Omega]$ дважды дифференцируемых функций в области Ω , т.е. $S(x, y, z) \in C^{2,2,2}[\Omega]$. Величина $S(x, y, z)$ равна результатам измерений функции $I(x, y, z)$ в узлах интерполяции.

$$S(x(i), y(j), z(k)) = I(x(i), y(j), z(k))$$

при $i = 0, 1, \dots, m_x$; $j = 0, 1, \dots, m_y$; $k = 0, 1, \dots, m_z$.

Дополнив указанные особенности граничными условиями, можно показать, что интерполяционный кубический сплайн существует и единственен. Важно отметить, что среди множества функций, принадлежащих пространству $W_2^{2,2,2}[\Omega]$ (с абсолютно непрерывной производной и второй производной, интегрируемой с квадратом) и принимающих на сетке Δ значение $I(x_i, y_j, z_k)$, минимизирует функционал [7]:

$$\begin{aligned} \gamma = & \int_{-X}^X \int_{-Y}^Y \int_{-Z}^Z \left[\frac{\partial^2 \partial^2 \partial^2 I(x, y, z)}{\partial x^2 \partial y^2 \partial z^2} \right]^2 dx dy dz + \sum_{i=0}^{m_x} \int_{-Y}^Y \int_{-Z}^Z \frac{\partial^2 \partial^2}{\partial y^2 \partial z^2} I(x_i, y, z) dy dz + \\ & + \sum_{j=0}^{m_y} \int_{-X}^X \int_{-Z}^Z \frac{\partial^2 \partial^2}{\partial x^2 \partial z^2} I(x, y_j, z) dx dz + \sum_{k=0}^{m_z} \int_{-X}^X \int_{-Y}^Y \frac{\partial^2 \partial^2}{\partial x^2 \partial y^2} I(x, y, z_k) dx dy. \end{aligned}$$

Оценка погрешности интерполяции функции $I(x, y, z)$ с непрерывной первой производной трехмерным кубическим сплайном описывается выражением вида

$$|I(x, y, z) - S(x, y, z)| \leq B [h_x \omega(I, h_x) + h_y \omega(I, h_y) + h_z \omega(I, h_z)],$$

где B - константа; $\omega(I, h_x)$, $\omega(I, h_y)$, $\omega(I, h_z)$ - частные модули непрерывности по координатам x, y, z , которые в соответствии с выражением (3) имеют вид:

$$\omega(I, h_x) = \text{Sup} [I(x', y, z) - I(x'', y, z)], \quad (4)$$

где

$$|x' - x''| \leq h_x; x', x'' \in [-X, X].$$

Для $\omega(I, h_y)$ и $\omega(I, h_x)$ выражения аналогичны формуле (4) с соответствующей заменой переменных.

До сих пор рассмотрение интерполяционной задачи проводилось без учета погрешности измерений, обычно присутствующих в реальных условиях. Их учет означает необходимость сглаживания результатов измерений, т.е. подбор такой интерполирующей функции, гладкость которой была бы компромиссом между стремлением с наибольшей точностью восстановить структуру неизвестной функции и наилучшим сглаживанием шумов.

При сплайн-аппроксимации задача оптимального сглаживания решается путем нахождения такой сплайн-функции, для которой достигается соотношение

$$\begin{aligned} \min \left\{ \sum_{i=0}^{m_x} \sum_{j=0}^{m_y} \sum_{k=0}^{m_z} \rho_{ijk} \left[I_{\xi}(x_i, y_j, z_k) - S(x_i, y_j, z_k) \right]^2 + \right. \\ \left. + \alpha \iiint_{\Omega} \left[\left(\frac{\partial^2 S(x, y, z)}{\partial x^2} \right)^2 + 2 \left(\frac{\partial^2 S(x, y, z)}{\partial x \partial y} \right)^2 + 2 \left(\frac{\partial^2 S(x, y, z)}{\partial x \partial z} \right)^2 + \right. \right. \\ \left. \left. + 2 \left(\frac{\partial^2 S(x, y, z)}{\partial y \partial z} \right)^2 + \left(\frac{\partial^2 S(x, y, z)}{\partial y^2} \right)^2 + \left(\frac{\partial^2 S(x, y, z)}{\partial z^2} \right)^2 \right] dx dy dz \right\}^{1/2}, \quad (5) \end{aligned}$$

$$I_{\xi} = I(x_i, y_j, z_k) + \xi_{ijk};$$

где ξ_{ijk} - случайная погрешность измерений с дисперсией σ_{ijk}^2 ;
 $\rho_{ijk} = 1/\sigma_{ijk}^2$.

Значение параметра α подбирается итеративно таким образом, чтобы уменьшить невязку ρ_{α} до уровня $\rho_{\alpha} \approx \epsilon$:

$$\rho_{\alpha} = \left[\sum_{i=0}^{m_x} \sum_{j=0}^{m_y} \sum_{k=0}^{m_z} |S_{\alpha}(x_i, y_j, z_k) - I_{\xi}(x_i, y_j, z_k)|^2 \right]^{1/2}. \quad (6)$$

Укажем статистический критерий подбора величины α_i на основе неравенства Колмогорова. Величина $\sum_{i=0}^{m_x} |S_{\alpha}(x_i) - I_{\xi}(x_i)|$ сравнивается с порогом ϵ_x , определяемым из условия

$$\epsilon_x = \left[\left(\sum_{i=0}^{m_x} \sigma_i^2 \right) / \eta \right]^{1/2},$$

($1 - \eta$) - заданный уровень надежности (доверительная вероятность).

Уменьшения величины α_i при последовательных итерациях производится до выполнения условия $\sum_{i=0}^{m_x} |S_{\alpha}(x_i) - I_{\xi}(x_i)| \gg \epsilon_x$. Очевидно, что значения α_j и α_x определяются аналогичным образом.

Сглаживающие сплайны аналогично интерполяционным также обладают экстремальным свойством, т.е. среди всех функций из пространства $W_2^{2,2,2}[\Omega]$ существует единственный кубический сплайн S_{α} , обеспечивающий минимум (5).

С учетом рассмотренных теоретических положений процедура адаптивной дискретизации и сглаживания результатов измерений с использованием кубических сплайнов заключается в следующем:

1. Выбор начальной равномерной сетки отсчетов с максимальными физически разумными интервалами h_{ox} , h_{oy} , h_{oz} в области Ω .

2. Измерение и сглаживание данных $I_k(x_i, y_j, z_k)$ путем построения сглаживающего сплайна с учетом ошибок измерений $\xi_{ij,k}$ и ограничений на гладкость, т.е. минимизация функционала (5) по невязке (6). В результате получаем нулевое приближение $S_0(x, y, z)$ к неизвестной функции $I(x, y, z)$.

3. Деление каждого из отрезков $x_i - x_{i-1}; y_j - y_{j-1}; z_k - z_{k-1}$ пополам (дихотомический поиск), т.е. формирование вдвое более частой сетки отсчетов с шагами

$$h_{ix} = h_{0x}/2; h_{iy} = h_{0y}/2; h_{iz} = h_{0z}/2$$

4. Дополнительные измерения $I(x, y, z)$ в точках $x_i + h_{ix}; y_j + h_{iy}; z_k + h_{iz}$.

5. Построение новой аппроксимирующей функции $S_1(x, y, z)$ с учетом новых отсчетов.

6. Сравнение кубических сплайнов S_1 и S_0 . При выполнении соотношения

$$\Delta S_1 = \sum_{x, y, z \in R} |S_1(x, y, z) - S_0(x, y, z)| > \epsilon \quad (7)$$

отсчеты, полученные в п.4, считаются информативными. Если $\Delta S_1 < \epsilon$, то дальнейшее деление сетки отсчетов не производится.

7. Повторение операций по п.3 на тех участках, где выполняется соотношение (7).

Таким образом, реализуется оптимальная неравномерная сетка отсчетов, адаптированная к дифференциальным свойствам восстанавливаемой функции. На рис.1 приведена блок-схема алгоритма, реализующего развитый метод на ЭВМ ДВК-3 и IBM PC AT.

С целью оценки эффективности предложенного метода проведено численное моделирование на ЭВМ. В качестве модельных спектров задавались функции в виде суперпозиций кривых лоренцевой формы с различными ширинами, амплитудами и степенью перекрытия, имитирующие неоднородно уширенные спектры с плавными и изрезанными участками.

Восстановление двумерных модельных спектров проводилось по алгоритму (см. рис.1), где $\{[a, b][c, d]\}$ - область регистрации; N - число отрезков дробления на k -й итерации; L - число отрезков дробления, на которых не достигнута заданная точность; M - число отсчетов, используемых для построения сплайна в области $\{[a_i, b_i][c_j, d_j]\}$; σ^2 - дисперсия шума; I_σ - верхняя граница дискретного взвешенного среднеквадратичного отклонения между аппроксимирующими функциями и отсчетами в области $\{[a_i, b_i][c_j, d_j]\}$; N_{max} - максимально допустимое число отрезков дробления; G - множество точек в области регистрации, на которых отклонение ρ меньше допустимого уровня шума; I_k -

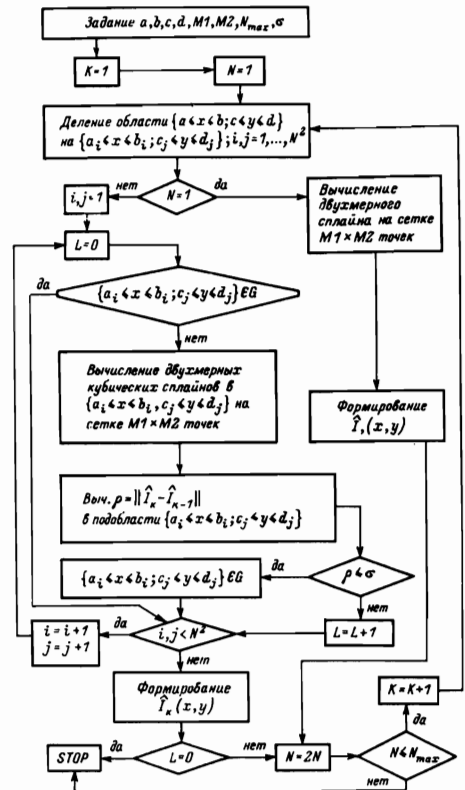


Рис.1. Блок-схема алгоритма адаптивной дискретизации точек отсчетов оптимального восстановления двумерного спектра

аппроксимирующая функция на k -й итерации.

На рис. 2, 3 приведена динамика восстановления модельных двумерных спектров вида

$$I(x, y) = \sum_{i=1}^4 \frac{A_i B_i}{[1 + \alpha_i (x - x_{0i})^2][1 + \beta_i (y - y_{0i})^2]} + \xi(x, y) \quad (8)$$

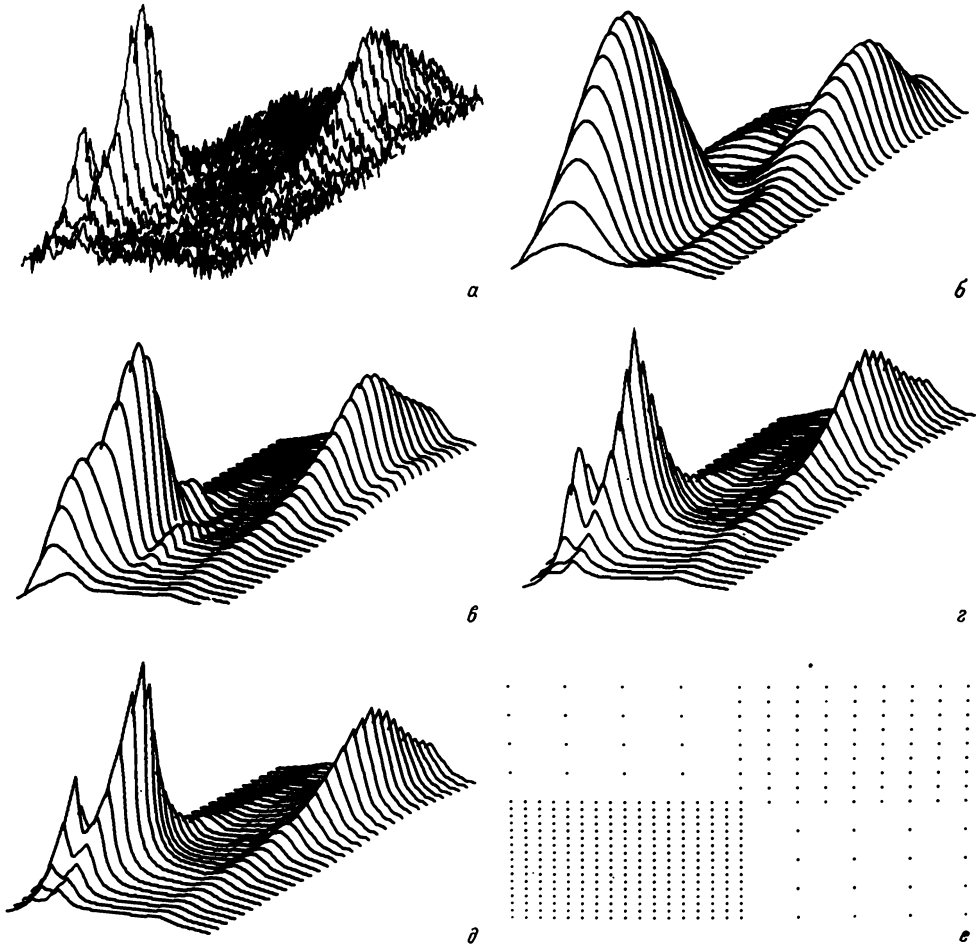


Рис.2. Динамика адаптивного восстановления двумерной функции вида (8) при $A_{1-4} = 0,2; 2; 1; 1$; $B_{1-4} = 1, 1, 1, 1$; $\alpha_{1-4} = 0,06; 5; 9; 2,5$; $\beta_{1-4} = 0; 9; 36; 2,2$; $x_{0,1-4} = 4; 2; 1; 6$; $\sigma = 0,05$; $y_{0,1-4} = 0; 1; 0,5$; 3: а - исходный спектр при 4257 отсчетах; б-д - функции, восстановленные по адаптивной методике, на последовательных итерациях по 25, 50, 84, 401 отсчетам, соответственно; е - оптимальное распределение отсчетов в пространстве измерений, обеспечивающее восстановление спектра, приведенного на д

характерного для электронных неоднородно уширенных спектров молекул в конденсированной фазе при комнатной температуре (см.рис.2) и температуре кипения жидкого азота (см.рис.3). Как следует из результатов численного моделирования, развитый метод оптимизации позволил для спектра, приведенного на рис.2, снизить

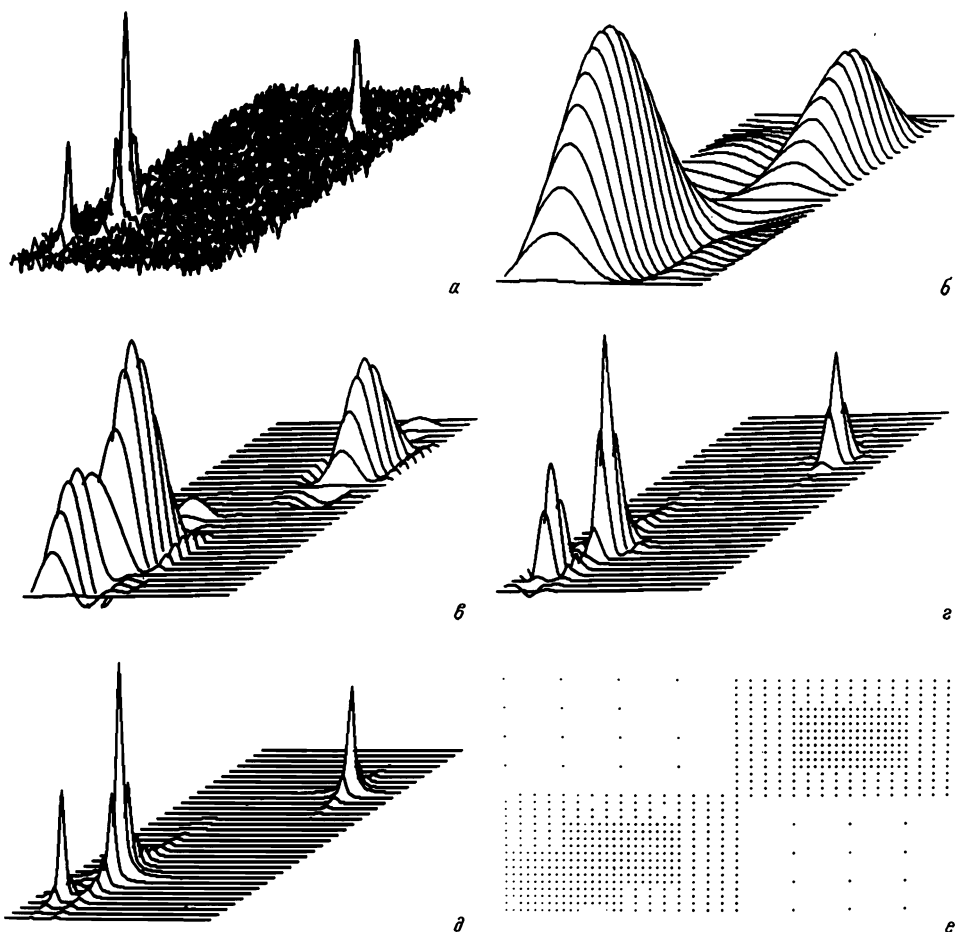


Рис.3. Динамика адаптивного восстановления двухмерной функции вида (8) при $A_{1-3} = 2, 1, 1$. $B_{1-3} = 1, 1, 1$. $\alpha_{1-3} = 50, 90, 50$. $\beta_{1-3} = 90, 360, 220$. $x_{0,1-3} = 2, 1, 6$. $y_{0,1-3} = 1; 0,5; 3$. $\sigma = 0,05$: а - исходный спектр при 4257 отсчетах; б-д - функции, восстановленные по адаптивной методике, на последовательных итерациях по 25, 81, 193, 805 отсчетам, соответственно; е - оптимальное распределение отсчетов в пространстве измерений, обеспечивающее восстановление спектра, приведенного на д

число отсчетов до 401 без снижения точности, что по сравнению со стандартной методикой равномерного считывания по 4257 точкам позволяет сократить число отсчетов в 10,6 раз. Для спектра, приведенного на рис.3, оптимизация режима считывания позволяет сократить число отсчетов с 4257 до 805, т.е. в 5,3 раз.

На рис.4 показана динамика адаптивного восстановления двухмерного спектра вида

$$I(x, y) = \sum_{i=1}^3 \frac{A_i}{1 + \alpha_i (x - x_{0i})^2} \exp(-\beta_i y) + \xi(x, y), \quad (9)$$

характерного для спектра люминесценции конденсированных сред с импульсным лазе-

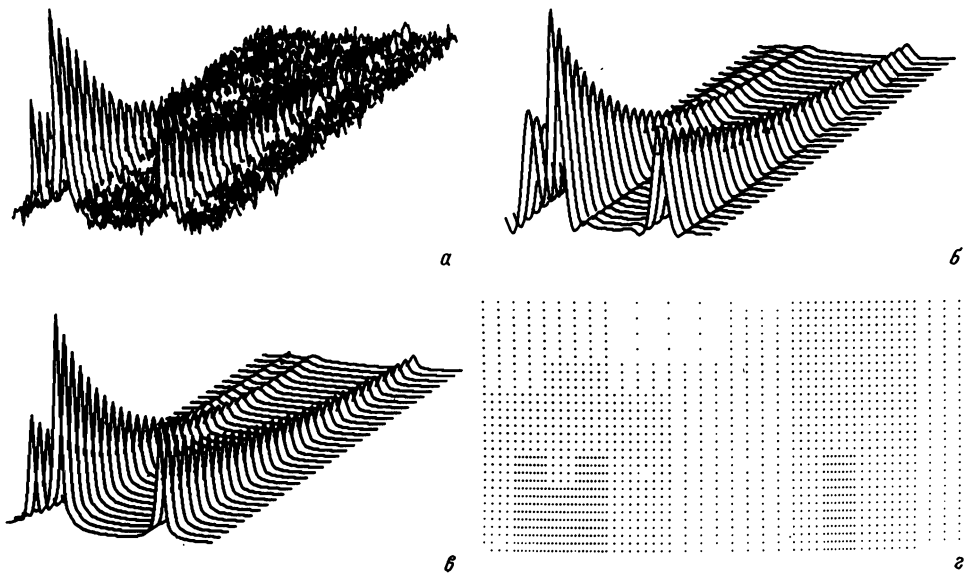


Рис.4. Динамика адаптивного восстановления двумерной функции вида (9) при $A_{1-3} = 2, 1, 1$; $\alpha_{1-3} = 50, 90, 50$; $\beta_{1-3} = 1; 1; 0,5$; $\delta = 0,05$; $x_{0,1-3} = 2, 1, 6$: а - исходный спектр при 4257 отсчетах; б-в - функции, восстановленные по адаптивной методике, на последовательных итерациях по 241 и 845 отсчетам, соответственно; г - оптимальное распределение отсчетов, обеспечивающее восстановление спектра, приведенного на в, с точностью до уровня шума

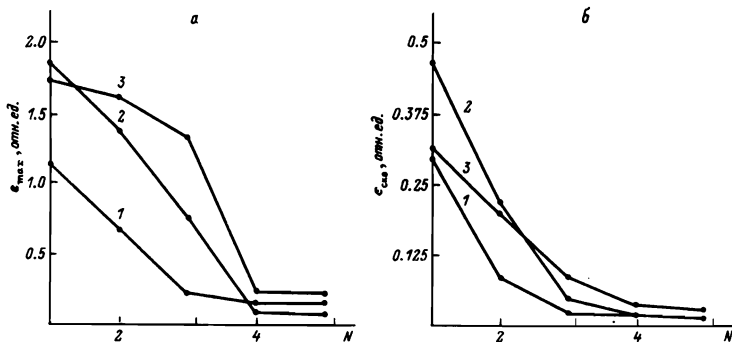


Рис.5. Зависимости погрешностей восстановления двумерных спектров: а - абсолютных; б - среднеквадратичных. Кривая 1 - по рис.2; кривая 2 - по рис.3; кривая 3 - по рис.4

рным возбуждением с разрешением во времени. Оптимальное распределение точек отсчетов показывает, что предложенный метод позволяет при восстановлении функции (9) с $\epsilon = 0,05$ за четыре итерации снизить число отсчетов с 4257 до 845.

На рис. 5 приведены графики зависимости абсолютных и среднеквадратичных погрешностей восстановления двумерных спектров, приведенных на рис. 2, 3, 4, по адаптивной методике от числа итераций при $\epsilon = 0,05$. Расчеты показывают, что даже весьма структурированные спектры с явно выраженной структурой восстанавливаются практически полностью с точностью до уровня шума уже при четырех итерациях.

Проведенный анализ и результаты численного моделирования позволяют считать, что развитый метод адаптивной дискретизации точек измерений может быть эффективно использован для оптимизации режимов считывания широкого класса спектроаналитических приборов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Аналитическая лазерная спектроскопия. Пер. с англ./Под ред. Н. Оменетто. - М.: Мир, 1982.
2. Лазерная аналитическая спектроскопия/Под ред. В. С. Летохова. - М.: Наука, 1986.
3. Лазерная пикосекундная спектроскопия и фотохимия биомолекул/Под ред. В. С. Летохова. - М.: Наука, 1987.
4. Маркюс И. Дискретизация и квантование. - М.: Энергия, 1969.
5. Завьялов Ю. С. и др. Методы сплайн-функций. - М.: Наука, 1980.
6. Суэтин П. К. Классические ортогональные многочлены. - М.: Наука, 1979.
7. Стечкин С. В., Суботин Б. Н. Сплайны в вычислительной математике. - М.: Наука, 1976.