

Regularización de ecuaciones integrales no lineales en un parámetro.
Aplicación a la determinación de la distribución de tamaños y del índice
de refracción de látex por dispersión de luz.

Gloria L. Frontini

Trabajo de Tesis presentado como requisito parcial para la obtención del título de
Doctora en Ingeniería de la Universidad de Buenos Aires, Argentina
15 de agosto de 2008

Directora: Dra. Elena Fernández Berdaguer

gfrontin@fi.mdp.edu.ar
Instituto de Investigaciones en Ciencia y Tecnología de Materiales
Departamento de Matemática-Facultad de Ingeniería
Universidad Nacional de Mar del Plata

AGRADECIMIENTOS

A la Dra. Elena Fernández Berdaguer por la dirección y revisión del trabajo realizado en esta tesis.

Al CONICET y a la UNMDP por el apoyo económico.

A mis compañeros del INTEC de Santa Fe con quienes me inicié en la actividad científica.

A mis colegas del INTEMA y del Departamento de Matemática de la Facultad de Ingeniería que hacen más interesante y placentera mi actividad de cada día.

A mis amigos, quienes me brindan afecto y respeto y me enriquecen compartiendo sus diferentes puntos de vista.

A mis padres, quienes estimularon mi curiosidad y me enseñaron a disfrutar adquiriendo nuevos conocimientos.

A mi familia.

Resumen

La regularización de un problema inverso mal condicionado es la aproximación del problema dado por uno aproximado pero estable. La solución de este problema tiene características que han sido establecidas rigurosamente para los problemas lineales. Resolver un problema inverso lineal requiere, generalmente, la selección de un parámetro de regularización y el cálculo de la función incógnita que optimiza un problema de mínimos cuadrados.

Los problemas no-lineales se estudian en forma particular. Las ecuaciones integrales de Fredholm de primer tipo con un parámetro desconocido en el núcleo de la ecuación constituyen un problema inverso no-lineal específico. No es factible anticipar la existencia, unicidad y estabilidad de la solución sin realizar el análisis correspondiente.

Los resultados de esta tesis muestran que, imponiendo ciertas condiciones en el núcleo de la integral, es posible afirmar que la solución es única, y que el parámetro desconocido dentro del núcleo no agrega inestabilidades a la solución. Se muestra también la factibilidad de obtener la solución del problema, lo que implica estimar el parámetro desconocido en el núcleo y la función incógnita, y seleccionar el valor del parámetro de regularización, por medio de un procedimiento iterativo en el que se resuelve secuencialmente un problema lineal, utilizando el método de Phillips-Tikhonov y la técnica estadística de Validación Cruzada, y uno no-lineal.

Las conclusiones obtenidas pueden aplicarse a una variedad de problemas ingenieriles. El abarcado en este trabajo de investigación es el problema de caracterizar materiales del tipo de un látex de polímero mediante una técnica no-destructiva, la medición de la intensidad de luz dispersada por el mismo a distintos ángulos. El modelo matemático que representa esta medición toma la forma de una integral donde el índice de

refracción de las partículas en suspensión es el parámetro que aparece en el núcleo de la misma, y la distribución de los tamaños de las partículas es la función desconocida, la que se relaciona linealmente con la medición. La identificación del índice de refracción y de la distribución de tamaños es fundamental para caracterizar el material.

El análisis inverso propuesto se aplicó en mediciones simuladas de dispersión de luz estática para distintos látex. Se analizó primeramente la efectividad de los distintos métodos de regularización existentes para el problema lineal de determinar la distribución suponiendo conocido el índice de refracción. Los resultados obtenidos se utilizaron para mejorar la solución del problema completo. La identificación de las características del material es perfecta bajo la hipótesis de mediciones ideales. El ruido de medición perturba los resultados a valores levemente diferentes de los verdaderos en la mayoría de las situaciones consideradas. Las mediciones experimentales de dos patrones de látex muestran que los procedimientos propuestos pueden aplicarse en situaciones reales.

Abstract

Regularization is the approximation of an ill-posed inverse problem by a family of closed well-posed problems. The theory of regularization methods is well developed and the properties of the regularized solutions are established rigorously for linear problems. To solve an inverse linear problem usually requires the selection of a regularization parameter and the determination of a function that optimizes a least square problem.

The study of non-linear inverse problems is accomplished for each particular case. A Fredholm integral equation of the first kind with an unknown parameter in its kernel constitutes a specific non linear problem. It is not possible to anticipate the existence, uniqueness and stability of the solution before analyzing the problem in hand.

The results obtained in this thesis show that under certain assumptions on the integral kernel, it can be assessed that there exist a unique solution and that its stability is not affected by the unknown parameter. It is also shown that the solution can be obtained implementing an iterative procedure that consists in solving sequentially a linear problem and a non-linear one, in order to estimate the unknown function and the unknown parameter in the kernel, respectively. Simultaneously, a proper regularization parameter should be selected. For the linear problem we apply Phillips-Tikhonov regularization technique and the Generalized Crossed Validation methodology.

The conclusions obtained can be applied to a variety of engineering problems. In this research we approached a material characterization problem: the identification of a latex properties by means of a non-destructive technique, the “Static Light Scattering”, in which the intensity of the light scattered by the sample is measured at different angles. The mathematical formulation leads to an integral equation in which the relative refractive index of the particles to the medium is the unknown parameter that appears in the kernel,

and the particle size distribution is the unknown function. The identification of size distribution and refractive index is very important for the latex final properties.

The inverse analysis proposed was applied to synthetic measurements for different latex. First, we analyzed the performance of different regularization methods for the linear problem of estimating the unknown distribution, considering that all other parameters in the model, including the refractive index, are known exactly. The conclusions were used to improve the solution of the complete problem. The identification of the material properties was perfect when ideal measurements were considered. For noisy measurements, the results are slightly perturbed in most of the considered cases. The analysis performed with the experimental data taken from two latex patterns shows that the proposed procedure can be applied to real laboratory measurements.

Índice

Capítulo 1.

Introducción	1
--------------------	---

Capítulo 2.

Ecuaciones integrales lineales	6
2.1 Problemas inversos lineales.	6
2.1.1 Problemas inversos de dimensión finita.	7
2.1.2 Ecuación integral de Fedholm. Un problema inverso de dimensión infinita.	7
2.2 Mal condicionamiento de los problemas inversos	8
2.2.1 Formulación matemática del problema inverso lineal	10
2.3 Solución de los problemas inversos lineales	11
2.4 Métodos de regularización para problemas inversos lineales.	14
2.4.1 Regularización de Tikhonov-Phillips	16
2.4.2 Regularización por truncamiento de la descomposición en valores singulares	20
2.4.3 Tikhonov-Phillips en su versión generalizada	23
2.4.4 Factores de Filtrado.	24
2.4.5 Otras técnicas de regularización: proyección y restricción	26

2.5	Métodos de selección del parámetro de regularización	27
2.5.1	Principio de discrepancia	28
2.5.2	Validación cruzada generalizada	28
2.5.3	Método de la Curva $-L$	30

Capítulo 3.

	Ecuaciones integrales no lineales en un parámetro.	32
3.1	Problemas inversos no-lineales.	32
3.2	Ecuaciones integrales no lineales en un parámetro.	33
3.3	Análisis de las soluciones generalizadas.	34
3.3.1	El caso ideal: mediciones sin ruido.	35
3.3.2	El caso real: mediciones con ruido.	39
3.4	Algoritmo de cálculo propuesto.	42

Capítulo 4.

	El problema directo: La luz dispersada por sistemas de partículas.	44
4.1	Dispersión de una onda electromagnética	45
4.2	Dispersión de luz por una partícula. Teoría de Mie.	46
4.3	El índice de refracción.	51
4.4	Dispersión de luz por un sistema de partículas.	51
4.5	Relación entre la DLE y el índice de refracción.	52
4.6	Técnicas de medición de dispersión de luz.	55
4.7	Modelo matemático para el problema directo: enfoque unificado.	57

Capítulo 5.

El problema inverso: Identificación de propiedades de látex poliméricos	58
5.1 Formulación del problema inverso	59
5.2 Identificación de propiedades para sistemas monidispersos y polidispersos	60
5.3 Caracterización de sistemas polidispersos. Resultados obtenidos mediante simulaciones.	62
5.3.1 Determinación de la distribución de tamaños de partículas . . .	65
5.3.1-a) Método general propuesto para recuperar la PSD. . . .	80
5.3.1-b) Recuperación de la PSD a partir de mediciones a ángulos bajos	83
5.3.1-c) Análisis de la condición del problema.	90
5.3.2 Determinación de la distribución de tamaños de partículas y del índice de refracción.	91
5.4 Caracterización de un látex polimérico a partir de mediciones experimentales	107

Capítulo 6.

Conclusiones	113
Apéndice.	118
Notación	120
Referencias.	121

Referencias

1. Ageev, A. L. and T. V. Antonova, "On solving equations of the first kind nonlinear on a parameter in classes of discontinuous functions", *J. of inverse and ill-posed problems* ,7, 1, 1-16 (1999).
2. Alifanov, O. M., **Inverse Heat Transfer Problems**, Springer Verlag, (1994).
3. Anderssen, R. S. and P.M. Prenter, " A Formal Comparison of Methods proposed for the numerical solution of First Kind Integral Equations", *J. Austral. Math Soc. Ser. B*, 22, pp. 488-500. (1981)
4. Arias, M.L., and G.L. Frontini, "Particle Size Distribution Retrieval from Elastic Light Scattering Measurements by a Modified Regularization Method". *Part. & Part. Syst. Charact.* 23, 5 , 374 – 380, (2006).
5. Aster, R., B. Borchers, C. Thurber, **Parameter Estimation and Inverse Problems**, Elsevier Academic Press, USA, (2005).
6. Barber, P. W. and S. C. Hill, **Light Scattering by Particles: Computational Methods**, World Scientific Pub, Singapore, (1990).
7. Bohren, C.F., Huffman, D.R., **Absorption and Scattering of Light by Small Particles**, Willey, (1983).
8. Bui, H. D., **Inverse Problems in the Mechanics of Materials: An Introduction** . CRC Press, (1994).
9. Colonius, F., and K.Kunisch, "Stability for parameter estimation in two point boundary value problems", *J. Reine Angew. Math.* 370, 1-29(1986).
10. Colton, D. and R. Kress, **Inverse Acoustic and Electromagnetic Scattering Theory**, Springer (1998).
11. Deimling, K., "Nonlinear Volterra Integral Equations of the First Kind". *Nonlinear Analysis: Theory, Methods, and Applications*, 25:951-957, (1995).
12. Devon, M. J. and A. Rudin, "A Simple Technique for Measuring the Refractive Index of Polymer Latexes at Various Wavelengths", *J. of Appl. Polym Sci.*,34,469-476 (1987).
13. Eliçabe G., Schroeder, W.F., Frontini, G.L., Pettarin, V., "Particle Systems Characterization Using a Flat Cell Static Light Scattering Apparatus", *J. of Col. and Int. Sci.* **24**,3, 163 – 172 (2007).
14. Engl H. W., Kunisch K and A. Neubauer. "Convergence rates for Tikhonov regularization of nonlinear ill-posed problems", *Inverse Problems* 5, 523-40., 1989.
15. Engl H. W., Kunisch K and A. Neubauer. "Optimal a posteriori parameter choice for Tikhonov regularization for solving nonlinear ill-posed problems". *Siam J.* 30, 1796-883,(1993).
16. Engl, H. W., M. Hanke and A. Neubauer. **Regularization of Inverse Problems**, Kluwer Academic Publishers. (1996).
17. Finsy, R., Deriemaker, L., Gelade, E. and J. Joosten. "Inversion of static light scattering measurements for particle size distributions". *Journal of Colloid and Interface Science*, **153**, 2, 337 (1992).

18. Frontini, G. L. and J. Chaubell , “Deconvolution of relaxation spectrum of viscoelastic fluid by spline functions”. *Latin American Applied Research*, 25-S, 17-22,(1995).
19. Frontini, G. L., J. Chaubell , G. Eliçabe. “Inversion of Turbidity Measurements of Polymer Latex Using Wavelet Functions”. *Chemometrics and Intelligent Lab. Syst.* 47, 89-97 (1999).
20. Frontini, G.L. and E.M. Fernández Berdaguer, “Inversion of Elastic Light Scattering measurements to determine Refractive Index and Particle Size Distribution of Polymeric Emulsions”. *Journal of Inverse Problems in Engineering*, Vol 11, No. 4, 329-340, (2003).
21. Frontini, G.L. and Elena. M. Fernández Berdaguer, “Analysis of the Solution of the Elastic Light Scattering Inverse Problem for Polymeric Emulsions”. *Journal of Inverse Problems in Science and Engineering*, Vol. 15, No. 2, 123-135, (2007).
22. Gilbert, R.G., **Emulsion Polymerization. A Mechanistic Approach**. Academic Press, London, (1995).
23. Glatter, O. “ A New Method for the Evaluation of Small Angle Scattering Data”, *J. Appl. Cryst.*, 10,415-421, (1977).
24. Glatter, O., Hofer, M., Jorde, C. and W. Eigner, “Optical Sizing of Small Colloidal Particles: an optimized Regularization Technique”, *Applied Optics.*, 30, 33, (1991_a).
25. Glatter, O., H. Sieberer and H. Schnablegger, "A comparative study on different scattering techniques and data evaluation methods for sizing of colloidal systems using light scattering", *Part., Part. Syst. Charac*, 8,1, 274-282, (1991_b).
26. Golub, G. H., M. Heath, G. Whaba, "Generalized Cross-Validation as a Method for Choosing a Good Ridge Parameter", *Technometrics*, 21, 2, (1979).
27. Groetsch, C.W., **Inverse Problems in the Mathematical Sciences**, Vieweg (1993).
28. Groetsch, C. W., **The Theory of Tikhonov Regularization for Fredholm equations of the first kind**. Pitman, Boston, (1984).
29. Hadamard, J., “Lectures on Cauchy’s Problem in Linear Partial Differential Equations”, *Yale Univ. Press*, New Haven , (1923).
30. Hansen, P. C., **Rank-Deficient and discrete ill-posed problems**, SIAM, (1998).
31. Hansen, P. C. , “Regularization Tools: A Matlab package for analysis and solution of discrete ill-posed problems”, *Numerical Algorithms* 6 , pp. 1-35(1994).
32. Heinz W. Engl, Martin Hanke and Andreas Neubauer, **Regularization of inverse problems**, Kluwer Academic Publishers, (1996).
33. Hodgson, R. J. W., “Genetic Algorithm Approach to Particle Identification by Light Scattering”, *J. of Colloid and Interface Sci.*, 229,399-406 (2000).
34. Hofer, M., J. Schurz and O. Glatter, "Oil-water Emulsions: Particle Size Distributions from Elastic Light Scattering Data", *J. of Colloid and Interface Science*, Vol 127, No. 1, (1989).

35. Jones, M. R., B. P. Curry, M. Q. Brewster and K. H. Leong, "Inversion of light-scattering measurements for particle size and optical constants: experimental study", *Applied Optics*, 33,18,4035-4041, (1994).
36. Kirsch, A., **An Introduction to the Mathematical Theory of Inverse Problems**, Springer, (1996).
37. Kravaris, C. and J. H. Seinfeld, "Identification of parameters in distributed parameter systems by regularization", *Siam J. Control Optim.*, **23**, 217-241(1985).
38. Kress, R. , **Linear Integral Equations**. Springer-Verlag, New York, (1989)
39. Kress, R. and W. Rundell. "Nonlinear integral equations and the iterative solution for an inverse boundary value problem". *Inverse Problems* 21 , 1207-1223 (2005).
40. Laven, P. Ginebra Suiza, (www.philiplaven.com), Dic. (2002).
41. Lloset Rescia, M. A., "Medición de Tamaños en Látex Poliméricos y Modelado Matemático de la Nucleación en Polimerizaciones en Emulsión", Tesis, UNL, (1998)
42. Mie, G., Contribution to the optical properties of turbid media, in particular of colloidal suspensions of metals. *Ann. Phys. (Leipzig)*.25:377-452.(1908).
43. Miller, K. "Least squares methods for ill-posed problems with a prescribed bound", *SIAM J., Math. Anal.*, 1,pp.52-74 (1970).
44. Morozov, V. A. , "On the solution of functional equations by the method of regularization" *Soviet Math Dokl*, 7, 414-417 (1966).
45. Morozov, V. A., **Methods for Solving Incorrectly Posed Problems**. Springer, New York, Berlin, Heidelberg, (1984).
46. Ozisik, M. N. and H. R. B. Orlande, **Inverse Heat Transfer: Fundamentals and Applications**, Taylor & Francis, New York, (2000).
47. Phillips D. L., "A Technique for the Numerical Solution of Certain Integral Equations of the First Kind", *J. ACM*, 9, (1962).
48. Pike, E.R. and C. Sabatier, **Scattering and Inverse Scattering in Pure and Applied Science**, Academic Press, London, (2002).
49. Provencher. S. W., "A constrained Regularization Method for Inverting Data Represented by Linear Algebraic or Integral Equations", *Comp. Physics Communications*, **27**, 213-227, (1982).
50. Ramlau, R., "Morozov's Discrepancy Principle for Tikhonov Regularization of Nonlinear Operators", *J. of Num. Functional Análisis and Optim.*, **23**, 147-172 (2002)_a.
51. Ramlau, R. "A steepest descent algorithm for the global minimization of the Tikhonov functional". *Inverse Problems* 18 381-403(2002)_b
52. Richtmyer, R. D. and K. W. Morton, *Diference Methods for Initial-Value Problems*, Wiley, New York, 2nd. Edition, (1967).
53. Schnablegger, H. and Otto Glatter, "Simultaneous Determination of Size Distribution and Refractive Index of Colloidal Particles from Static Light -Scattering Experiments", *J. of Colloid and Interface Science* 158, 228-242 (1993).

54. Seidman, T. I., C. R. Vogel, Well Posedness and convergence of some regularization methods for nonlinear ill-posed problems, *Inverse Problems*, 5 227-238. (1989).
55. Shaw, G. E., "Inversion of optical scattering and spectral extinction measurements to recover aerosol size spectra", *Applied Optics*, 18, 7, 988-993, (1979).
56. Smithies, F., "The eigenvalues and singular values of integral equations", *Proc. London Math. Soc.* 43, pp 255-279. (1937)
57. Snieder, R., "The role of nonlinearity in inverse problems", *Inverse Problems* 14, 387-404(1998).
58. Tikhonov, N. and V. Y. Arsenin, **Solutions of Ill-Posed Problems**. Washington, DC: Winston & Sons, (1977).
59. Tisza, T., T. Fülöp, Z. Magyar and M. jr. Tisza, "Development of an inverse finite element system for determination of material parameters", *ECCOMAS 2000*. Barcelona, 11-14 (2000).
60. Thompson, A. M., J. C. Brown, J. K. Kay and D. M. Titterington, "A study of methods for choosing the smoothing parameter in image restoration by regularization, *IEEE Trans Pattern Anal. Machine Intell.*, 13, pp. 3326-3339. (1991)
61. Twomey, S., **Introduction to the Mathematics of Inversion in Remote Sensing and Indirect Measurements**. Dover Pub. Inc., (1977).
62. Vega, J. R., G. L. Frontini L. M. Gugliotta y G. E. Eliçabe, "Particle Size Distribution by Combined Elastic Light Scattering and Turbidity Measurements. A Novel Method to Estimate the Required Normalization Factor", *Part. & Part. Systems Characterization*, 20, 6, 361-369, (2003).
63. Vega, J. R., Frontini, G. L., Gugliotta, L. M., Eliçabe, G. E. "A Method for Solving an Inverse Problem with Unknown Parameters from *Two Sets of Relative Measurements*". *Latin American Applied Research*, 35, 2, p.149-154, (2005).
64. Whaba G. and Y. Wang, "Behavior bear zero for the distribution of GCV smoothing parameter estimates", *Stat. Probabil. Lett.*, 25, 105-111, (1995).
65. Wing, G. M., **A Primer on Integral Equations of the First Kind: The Problem of Deconvolution and Unfolding**, SIAM, Philadelphia, (1992).
66. Zakovic, S, Ulanowski, Z. and M. C. Bartholomew-Biggs. "Application of global optimization to particle identification using light scattering", *Inverse Problems* 14 1053-1067(1998).