

ВОССТАНОВЛЕНИЕ ОРИЕНТАЦИОННОЙ ФУНКЦИИ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ЧАСТИЦ

Н.А. Евдокимова, Д.В. Лукьяненко, А.Г. Ягола

Рассматривается задача определения ориентационной функции распределения, которая показывает долю частиц, ориентированных в данном угловом интервале. Одним из эффективных методов определять ориентационную функцию распределения частично ориентированных молекул является метод электронного парамагнитного резонанса (ЭПР). Из спектров ЭПР может быть получена более детальная информация об ориентационном распределении парамагнитных частиц. Экспериментальные задачи были связаны с определением ориентации частиц в образцах аксиальной симметрии. При этом интенсивность резонансного сигнала в каждой точке спектра H определяется из интегрального двумерного уравнения Фредгольма первого рода, в котором ОФР неизвестна. При решении уравнения возникает необходимость минимизировать регуляризирующий функционал Тихонова (используется метод сопряженных градиентов). Вычислять значения функционала и его градиента требует больших временных затрат. Поэтому задачу распараллеливают, т.е. пишут программу таким образом, чтобы независимые части программы выполнялись на разных процессорах. Это дает возможность применения многопроцессорной системы.

Ключевые слова: ориентационная функция распределения, регуляризирующий функционал Тихонова, двумерное интегральное уравнение Фредгольма первого рода, распараллеливание задачи.

Свойства многих искусственных и природных материалов, таких, как растянутые полимеры, жидкие кристаллы, пленки Ленгмюра-Блоджетт, синтетические и биологические мембраны и так далее, определяются ориентационной упорядоченностью молекул. Экспериментальное определение ориентационного распределения частиц в таких частично упорядоченных системах является важной проблемой современной физической химии.

Восстановление ориентационной функции

Наиболее точной характеристикой упорядоченности молекул является ориентационная функция распределения $\rho(\alpha, \beta, \gamma)$, которая показывает долю частиц, ориентированных в угловом интервале $\alpha + d\alpha, \beta + d\beta, \gamma + d\gamma$ (α, β, γ — углы Эйлера, связывающие систему координат отдельной частицы с системой координат образца). Одним из эффективных методов определять ориентационную функцию распределения частично ориентированных молекул является метод ЭПР. Положение резонансного сигнала каждой парамагнитной частицы в спектре ЭПР зависит от ориентации этой частицы относительно вектора напряженности магнитного поля.

Таким образом, из спектров ЭПР может быть получена более детальная информация об ориентационном распределении парамагнитных частиц. В связи с этим, актуальной задачей является разработка метода анализа спектров ЭПР анизотропного образца с целью определения ориентационной функции распределения парамагнитных частиц.

Постановка задачи

Интенсивность резонансного сигнала в каждой точке спектра определяется следующим образом:

$$I(H, \Theta, \Phi) = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} F(H, g, A, h) \rho(\alpha, \beta, \gamma) \sin\beta \, d\alpha \, d\beta \, d\gamma.$$

Углы Θ и α фиксированы. Поэтому достаточно решить интегральное уравнение

$$I(H, \Phi) = \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} F(H, g, A, h) \rho(\beta, \gamma) \sin\beta \, d\beta \, d\gamma, \quad (1)$$

где $\rho(\beta, \gamma)$ — ориентационная функция распределения — неизвестная функция, которую требуется найти, $I(H, \Theta, \Phi)$ — интенсивность резонансного сигнала — известная функция, которую получают посредством эксперимента, $F(H, g, A, h)$ — форма индивидуальной резонансной линии (задается из теоретических соображений), $g_{\text{эфф}}$ и $a_{\text{эфф}}$ — эффективные значения g — фактора и константы СТВ соответственно, h — значение ширины индивидуальной резонансной линии (расстояние между точками максимального наклона).

Углы Θ и φ определяют положение вектора напряженности магнитного поля в системе координат, связанной с образцом ($X'Y'Z'$) (Θ — угол между H и осью Z' , φ — угол между проекцией H на плоскость ($X'Y'$) и осью Y').

Углы Эйлера α, β и γ связывают систему координат образца ($X'Y'Z'$) с системой координат отдельной парамагнитной частицы ($X''Y''Z''$).

Задача является некорректно поставленной задачей (см. [1]).

Способ решения

В данном случае (см. [2]) при решении интегрального уравнения (1) возникает необходимость минимизировать регуляризирующий функционал Тихонова

$$M^\alpha[\rho] = \int_{H_1}^{H_2} \int_{\varphi_1}^{\varphi_2} dH \, d\varphi \left\{ \int_0^\pi \int_0^{2\pi} F(H, \varphi, \beta, \gamma) \rho(\beta, \gamma) \sin\beta \, d\beta \, d\gamma - I(H, \Phi) \right\}^2 + \alpha \Omega,$$

конечно-разностная аппроксимация которого принимает следующий вид:

$$M^\alpha[\rho] = \sum_{k=1}^{N_H} \sum_{l=1}^{N_\varphi} h_H h_\varphi \left[\sum_{i=1}^{N_\beta} \sum_{j=1}^{N_\gamma} h_\beta h_\gamma \hat{F}_{klij} \rho_{ij} \sin\beta_i - I_{kl} \right]^2 + \alpha \Omega,$$

где $\rho_{ij} = \rho(\beta_i, \gamma_j)$, $I_{kl} = I(H_k, \varphi_l)$, $\hat{F}_{klij} = \hat{F}(H_k, \varphi_l, \beta_i, \gamma_j)$ — сетка по $H, \varphi, \beta, \gamma$ с шагом $h_H, h_\varphi, h_\beta, h_\gamma$, числом узлов сетки $N_H, N_\varphi, N_\beta, N_\gamma$,

$$\Phi[\rho] = \sum_{k=1}^{N_H} \sum_{l=1}^{N_\varphi} h_H h_\varphi \left[\sum_{i=1}^{N_\beta} \sum_{j=1}^{N_\gamma} h_\beta h_\gamma \hat{F}_{klij} \rho_{ij} \sin\beta_i - I_{kl} \right]^2. \quad (2)$$

При минимизации функционала Тихонова необходимо вычислять его градиент (см. [3]), который имеет вид:

$$\begin{aligned} M^\alpha[\rho] &= \frac{\partial M^\alpha[\rho_{ij}]}{\partial \rho_{ij}} = \\ &= 2h_\beta h_\gamma \sum_{k=1}^{N_H} \sum_{l=1}^{N_\varphi} h_H h_\varphi \hat{F}_{klij} \left[\sum_{p=1}^{N_\beta} \sum_{q=1}^{N_\gamma} h_\beta h_\gamma \hat{F}_{klpq} \rho_{pq} \sin\beta_i - I_{kl} \right] + \alpha \frac{\partial \Omega(\rho_{ij})}{\partial \rho_{ij}}. \end{aligned}$$

Идея распараллеливания

При решении данной задачи почти все время уходит на вычисление функционала Тихонова и его градиента. Основной вклад во время вычисления функционала Тихонова вносит невязка (2). Время вычисления стабилизатора пренебрежимо мало. Из формулы (2) видно, что невязка состоит из несвязных между собой групп слагаемых (по k и l).

Это дает возможность применения многопроцессорной системы. Задачу можно распараллелить, т.е. переписать программу таким образом, чтобы независимые части программы выполнялись на разных процессорах (см. [4]). Общая теория распараллеливания приводится на рисунке 1.

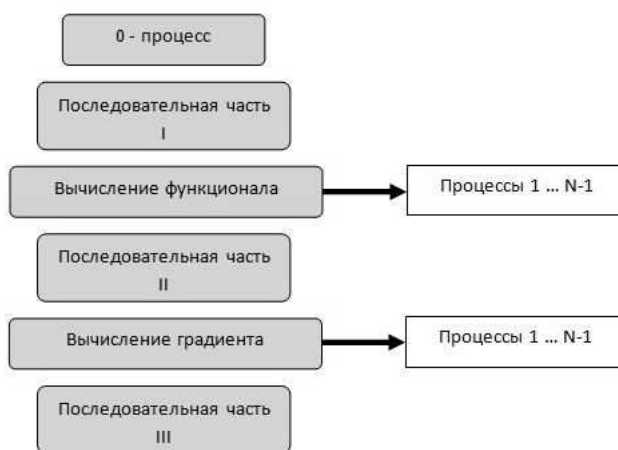


Рис. 1. Распараллеливание

Экспериментальные задачи были связаны с определением ориентации частиц в образце аксиальной симметрии. Ориентационная функция в этом случае представляет собой распределение оси симметрии образца O в системе координат, связанной с парамагнитной частицей. Углы α , β и γ выбираются таким образом, чтобы β и γ определяли положение оси симметрии образца в системе координат частицы (β — угол между O и осью Z'' , γ — угол между проекцией O на плоскость $(X''Y'')$ и осью Y'').

$$F_{\Gamma}(H, h_{\Gamma}) = \sqrt{\frac{2}{\pi h_{\Gamma}^2}} \exp\left(-\frac{2H^2}{h_{\Gamma}^2}\right), \quad (3)$$

$$F_{\perp}(H, h_{\perp}) = \frac{\sqrt{3}}{2\pi} \frac{h_{\perp}}{H^2 + \frac{3}{4h_{\perp}^2}}. \quad (4)$$

Форма линии может быть задана в виде функции Гаусса (3) или Лоренца (4), а также с помощью свертки этих функций.

В приведенных формулах центры линий находятся в точке $H = 0$. Ширина линии, как Гаусса, так и Лоренца, является тензором второго ранга.

Основные результаты

Совместно с сотрудниками Химического факультета МГУ была написана программа, выполняющая численный расчет спектра ЭПР для заданной функции распределения.

На рисунке 2 приведен экспериментально полученный спектр ЭПР. Различные кривые соответствуют разным углам поворота φ , который задает положение образца, относительно внешнего магнитного поля H .

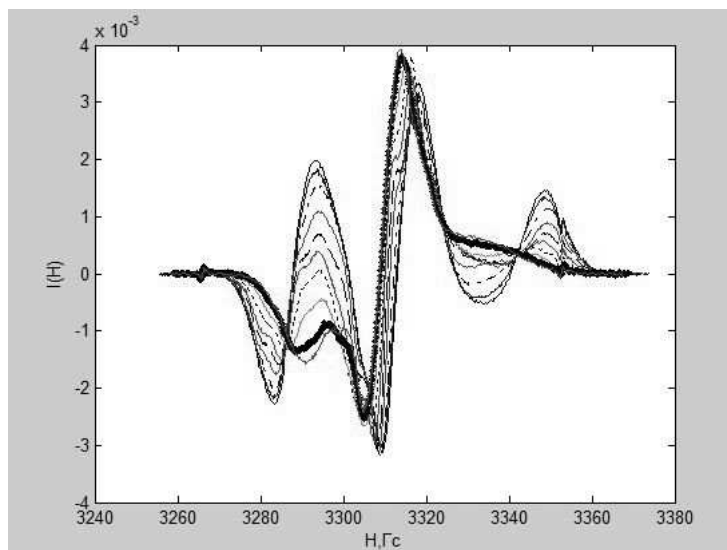


Рис. 2. Экспериментально полученный спектр ЭПР

Была написана программа решения двумерного интегрального уравнения Фредгольма первого рода, для линейного случая. Программа написана на языке Fortran 90, с использованием функций MPI. Решение задачи осуществлялось на кластерах НИВЦ МГУ и ЮУрГУ.

Работа проводилась при финансовой поддержке гранта РФФИ с 11-01-00040

Литература

1. Тихонов, А.Н. Нелинейные некорректно поставленные задачи / А.Н. Тихонов, А.С. Леонов, А.Г. Ягола. – М.: Наука, 1995.
2. Тихонов, А.Н. О регуляризации некорректно поставленных задач / А.Н. Тихонов // ДАН СССР. – 1963. – Т. 153, № 1. – С. 55 – 59.
3. Численные методы решения некорректных задач / А.Н. Тихонов, А.В. Гончарский, В.В. Степанов, А.Г. Ягола. – М.: Наука, 1990.
4. Воеводин, В.В. Параллельные вычисления / В.В. Воеводин, Вл.В. Воеводин. – СПб.: БХВ-Петербург, 2002.

Наталья Алексеевна Евдокимова, старший преподаватель, кафедра «Математический анализ», Южно-Уральский государственный университет (г. Челябинск, Российская Федерация), naevdok@math.susu.ac.ru.

Дмитрий Витальевич Лукьяненко, кандидат физико-математических наук, кафедра «Математика», Физический факультет, Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова (г. Москва, Российская Федерация), lukyanenko@physics.msu.ru.

Анатолий Григорьевич Ягола, доктор физико-математических наук, профессор, кафедра «Математика», Физический факультет, Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова (г. Москва, Российская Федерация), yagola@physics.msu.ru.

MSC 45Q05

Restoring Orientational Distribution Function of Particles

N.A. Evdokimova, South Ural State University (Chelyabinsk, Russian Federation),
D.V. Lukyanenko, M.V. Lomonosov Moscow State University (Moscow, Russian Federation),
A.G. Yagola, M. V. Lomonosov Moscow State University (Moscow, Russian Federation)

This article deals with the problem of determining the orientation distribution function (ODF), which shows the fraction of particles oriented in the angular range. One effective method to determine the orientation distribution function of partially oriented molecules is the method of electron paramagnetic resonance (EPR). More detailed information about orientational distribution of paramagnetic particles can be obtained from the EPR spectra. Experimental tasks were related to searching orientation of particles in the samples of axial symmetry. The intensity of the resonance signal at each point in the spectrum of H is determined from the two-dimensional Fredholm integral of the first kind, in which the ODF is unknown. For solving the equation is necessary to minimize the Tikhonov regularization functional (using conjugate gradient method). Calculate the value of the functional and its gradient requires time-consuming. Therefore, the problem is parallelized, ie a program is written in such way that the independent parts of the program run on different processors. This enables the use of multi-processor system.

Keywords: orientation distribution function, Tikhonov regularization functional, two-dimensional Fredholm integral of the first kind, task parallelizing.

References

1. Tikhonov A.N., Leonov A.S., Yagola A.G. *Nonlinear ill-posed problems*. Moscow, Science, 1995. (in Russian)
2. Tikhonov A.N. Regularization of Ill-Posed Problems. *DAN SSSR*, 1963, vol. 153, no. 1, pp. 55–59. (in Russian)
3. Tikhonov A.N., Goncharsky A.V., Stepanov V.V., Yagola A.G. *Numerical Methods for the Solution of Ill-Posed Problems*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht: 1995.
4. Voevodin V.V., Voevodin V.I. *Parallel Computing*, Sankt-Peterburg, BXV-Peterburg, 2002. (in Russian)

Поступила в редакцию 8 августа 2012 г.