報 文

非負拘束最小二乗法を用いた超分解デコンボリューション

中村 収・河田 聡・南 茂夫

大阪大学工学部応用物理学教室 吹田市山田丘 2-1 (〒565)

(1986年2月10日受理)

Superresolving Deconvolution by Nonnegative Least Squares Method

Osamu NAKAMURA, Satoshi KAWATA, and Shigeo MINAMI

Department of Applied Physics, Faculty of Engineering, Osaka University
Yamadaoka, Suita, Osaka 565

(Received February 10, 1986)

A new nonnegative-constrained deconvolution method is proposed to restore the original spectrum from its observation blurred by the slit-function of a spectrophotometer. The developed method is based on the Nonnegative Least Squares Method incorporating with the Minimum Mean Squared Error Estimation. Using *a priori* knowledge about the longitudinal axis of the spectrum as a constraint, the method may expand the band limit of the system or the resolution limit determined by the conventional Wiener-Helstrom filter due to the existence of noise. Experimental results by the proposed method for the spectra of emission lines of a hollow cathode lamp and infrared absorption of ammonia gas demonstrate the effectiveness of the method.

1. はじめに

モノクロメータのスリット関数等の装置関数によって劣化を受けて観測されたスペクトルから、真のスペクトルを回復する手法はデコンボリューションと呼ばれ、以前から多くの研究が行われてきた¹⁻⁴⁾。理想的には測定スペクトルに対し装置関数の逆関数（インバースフィルター）を演算を行うことにより、真のスペクトルが回復される。ところがスペクトルスリット幅が比較的に広い場合、分光光度計のスリット関数は数学的に悪い状態（ill-condition）になり、観測スペクトルに含まれるわずかな雑音や変動、あるいは計算過程での丸め誤差がデコンボリューション演算の結果、非常に大きく増幅され、解は不安定なものとなる。これらの誤差、雑音の影響を抑える方法として最小二乗平均誤差（MMSE: Mini-

mum Mean Squared Error）規範に基づく Wiener フィルター⁵⁾と、逆変換によるデコンボリューションを組み合わせた Wiener-Helstrom フィルター⁶⁾がよく知られている。このフィルターによって得られるスペクトルは統計的に信号対雑音比（SN 比）が最大となるが、逆にスペクトルの分解は不満足なものになってしまう。このように雑音の抑圧と分解能向上を完全に両立させることは本来不可能な問題である。もし真のスペクトルに関する先験的な知識が有り、それを推定解に対する拘束条件として導入できれば、それだけ信号に関する情報が増加し、雑音を抑圧してかつ高分解能のスペクトルを得ることが可能となる。このような手法は光学、分光学の分野でよく研究されており、帯域を超えるという意味で超分解像法（superresolution）と呼ばれている⁷⁾。Harris は信号の拡りが有限であれば、そのスペクトルの解析接続

性より帯域外情報を外挿できることを示した⁹⁾。その後、Gerchberg がその反復解法を提案したのがきっかけとなり⁹⁾、多くの研究がなされてきた¹⁰⁻¹²⁾。Kawata らはフーリエ分光で得られるインターフェログラムを自己回帰モデルに適合させることによりそのスペクトルの超解像を行なった^{13), 14)}。これはインターフェログラムが有限個の調和関数から成り立つとの仮定が必要であり、このことが信号に関する拘束条件と解釈できる。

本論文では、これらの研究により有効性が確認されている超解像法の発想に基づき、スペクトルの強度は非負であること、あるいは透過率は100%を越えないこと等、求めるスペクトルの縦軸に関する事前情報を拘束条件として導入することにより、雑音に対して十分強く、かつ系の帯域を越えた分解を持つスペクトルを回復するデコンボリューション法を提案し、その分光計測データへの応用例を示す。

縦軸に関する存在領域の拘束のもとに解を求めることは、最急降下法等の反復法において反復毎に解の存在領域を制限することにより簡単に実現できるが¹⁵⁾、系の条件が悪いときこれらの手法の解への収束には無限回の反復が必要であり、実用的には近似解しか求まらない。我々は制約条件のもとに二次の目的関数を最小化する二次計画法の一手法である非負拘束最小二乗法 (NNLS 法: Nonnegative Least Squares Method)¹⁶⁾をデコンボリューションに応用する。この方法は有限反復で必ず収束する。また雑音を考慮した MMSE 規範⁹⁾を導入し、雑音を含むデータに対しても適用可能となるよう手法を改良した。

2. 非負拘束付デコンボリューション法

モノクロメータで波長走査を行ない測光される試料の発光あるいは吸光スペクトルは、真のスペクトルと入射および射出スリットの開口幅で決まるスリット関数とのコンボリューション積分の形で得られる。すなわち、観測スペクトルと真のスペクトルをそれぞれ $g(\nu)$, $f(\nu)$ で表わし、スリット関数を $h(\nu)$ で表わすと、

$$g(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} f(\nu') \cdot h(\nu - \nu') d\nu' \quad (1)$$

である。但し、 ν は波数を表わす。

両スリットの幅が等しければスリット関数 $h(\nu)$ は三角形関数となる。 $g(\nu)$, $f(\nu)$ をそれぞれベクトル表記で $\mathbf{g}$, $\mathbf{f}$ とし[†]、コンボリューション積分を施すスリット関数の行列を H で表わすと (1) 式は (2) 式に書き換えら

[†] $\mathbf{g}$ および $\mathbf{f}$ の要素はそれぞれ $g(\nu)$ および $f(\nu)$ のサンプル値が与えられる。

れる。

$$\mathbf{g} = H\mathbf{f} \quad (2)$$

(2) 式の両辺の二乗誤差和を最小にする規範、すなわち、

$$\text{Minimize } e = \|\mathbf{g} - H\mathbf{f}\|^2 \quad (3)$$

を満足する $\mathbf{f}$ の解 $\hat{\mathbf{f}}$ は e を $\hat{\mathbf{f}}$ について偏微分し結果を 0 と置くことにより求まる。すなわち、

$$\begin{aligned} \frac{\partial e}{\partial \hat{\mathbf{f}}} &= -2(H^t \mathbf{g} - H^t H \hat{\mathbf{f}}) \\ &= 0 \end{aligned} \quad (4)$$

より、

$$\hat{\mathbf{f}} = (H^t H)^{-1} H^t \mathbf{g} \quad (5)$$

で与えられる。ここで t は行列の転置を表わす。もし H が正則であれば (5) 式は

$$\hat{\mathbf{f}} = H^{-1} \mathbf{g} \quad (6)$$

となる。これがいわゆるデコンボリューションの操作を表わす式であり、 H の逆行列 H^{-1} はインバースフィルターと呼ばれる。

発光の場合、強度分布 $\mathbf{f}$ の要素に負の強度を有することは物理的に有り得ず、吸光の場合、透過率分布 $\mathbf{f}$ の要素に 0% より小さい、あるいは 100% より大きい透過率をとることは有り得ない。ところが実験で得られた観測スペクトルから (5) または (6) 式を用いて $\hat{\mathbf{f}}$ を計算してやると、雑音の影響や系が悪条件であることのために、しばしば負の強度や 100% より高い透過率が解として得られる。

この問題を解決するためには、(3) 式にかわって $\mathbf{f}$ に関する制約条件のもとでの最適解 $\mathbf{f}^*$ を求める必要がある。ここでは簡単のため $\mathbf{f}$ の要素は非負であることを拘束に用いて説明する。すなわち、

$$\begin{cases} \text{Minimize } e = \|\mathbf{g} - H\mathbf{f}^*\|^2 & (7-1) \\ \text{Subject to } f_j^* \geq 0 \quad j=1, 2, \dots, N & (7-2) \end{cases}$$

但し、 f_j^* , $j=1, 2, \dots, N$ は $\mathbf{f}^*$ の各要素を表わし、 N はサンプル点数を示す。最も簡単な例として $\mathbf{f}$ が二変数 f_1, f_2 から成る場合の e の等高線と (3) 式の最小解 $\hat{\mathbf{f}}$ および (7) 式の制約条件下での最小解 $\mathbf{f}^*$ を Fig. 1 に示す。Fig. 1 では (3) 式の e を最小にする解 $\hat{\mathbf{f}}$ はその要素 $\hat{f}_1$ が雑音の影響により負であり、(7-2) 式の拘束を満足しない。 $\hat{f}_1, \hat{f}_2$ ともに負にならないで e を最小にする解は Fig. 1 においては $\mathbf{f}^*$ である。

$\hat{\mathbf{f}}$ でなく $\mathbf{f}^*$ を求めるために、Jansson は (6) 式に対する Jacobi の反復解法を改良し、各反復回毎に解を非負拘束する方法を提案した¹⁵⁾。この方法は、各反復におけるステップ幅は一定であるので、最小値に近づくにつ

Fig. 1. Potential contour map of the error energy e of eq. (3) for a two-variate system with minimum $\hat{f}$ and the estimates f^1 , f^2 , f^3 by the conventional steepest descent method in iteration towards the constrained optimum f^* .

れ、収束速度は著しく遅くなる。Jacobi 法の各反復のステップ幅を最適にすることにより収束性を高める方法は最急降下法と呼ばれ、次式で表わされる。

$$f^{k+1} = f^k + \alpha^k \left(-\frac{\partial e}{\partial f^k} \right) \quad (8)$$

但し、 f^k は k 回反復後の推定解であり、加速係数 α^k は次式により最適化される。

$$\alpha^k = \left\| \frac{\partial e}{\partial f^k} \right\|^2 / 2 \left\| H \frac{\partial e}{\partial f^k} \right\|^2 \quad (9)$$

この最急降下法に非負拘束を導入した手法の反復の様子を Fig. 1 の図中に示した。すなわち、各反復後に f^k の要素に負があれば、その要素のみを 0 におき換え新しい f^k とする。2 回の反復の後解の f_1 成分は負であったので、そのみ 0 におき換えて新しい f^2 がつくられる。 f^3 , f^4 , ... にも同じ処理が施されている。この図から f^k は最終的に $\hat{f}$ ではなく f^* に収束することがわかる。しかし特に系の条件が悪いとき（すなわち、スリット幅が広いとき、あるいは劣化の程度が大きいとき） f^* の近くで収束は遅くなり、有限回の反復での収束性は保証できない。反復法には有限回で解に収束する共役勾配法があるが、修正ベクトルの共役性をこわす非負拘束は直接的には導入できない。

3. 非負拘束最小二乗法によるデコンボリューション

目的関数 e が (7) 式のように二次方程式で表わせる場合に制約領域内で e を最小化する問題は、一般に凸二次計画問題と呼ばれ、 e が凸である性質を利用していくつかのアルゴリズムが考案されている^{16)~19)}。(7) 式の凸二次計画問題では、解が満たすべき必要十分条件は Kuhn-Tucker 条件¹⁶⁾ より次式となる。

$$f_i^* \geq 0, \quad i=1, 2, \dots, N \quad (10-1)$$

$$\frac{\partial e}{\partial f_i^*} \geq 0, \quad j=1, 2, \dots, N \quad (10-2)$$

$$\left(\frac{\partial e}{\partial f^*} \right)^t \cdot f^* = 0 \quad (10-3)$$

(10-3) 式は f^* のすべての要素 f_i^* , $i=1, 2, \dots, N$ について f_i^* と $\frac{\partial e}{\partial f_i^*}$ のどちらかは 0 であることを示している。つまり、 $f_i^* > 0$ なら $\frac{\partial e}{\partial f_i^*} = 0$ で、また $\frac{\partial e}{\partial f_i^*} > 0$ なら $f_i^* = 0$ である。

Fig. 1 において f^* の位置を見ると、 f^* のどの要素を変化させても e が増加するか制約領域外に出てしまうかのいずれかであり、(10) 式に対応している。このような最適解 f^* を求める手法は一般に二次計画法と呼ばれているが、特にデータ数が膨大ではない場合、NNLS 法を利用して f^* を求めることができる。NNLS 法では初期値を (10-1), (10-3) 式を満たす値に選び、 e の減少方向に進みながら f^* に到達する方策をとる。Fig. 2 に

Fig. 2. Same as Fig. 1, but with the estimates by the nonnegative least squares method.

NNLS 法の反復の様子を示す。まず初期値として $\mathbf{f}^0 = \mathbf{0}$ を選ぶと、 $\mathbf{f}^0$ は (10-1), (10-3) 式を満たしている。 $\mathbf{f}^0$ の位置では $\frac{\partial e}{\partial f_1}$ および $\frac{\partial e}{\partial f_2}$ は負であるが、 $\frac{\partial e}{\partial f_1} < \frac{\partial e}{\partial f_2}$ であるので、 $\frac{\partial e}{\partial f_1} = 0$ となるまで f_1 を大きくしてやる。この位置を $\mathbf{f}^1$ とする。次に $\mathbf{f}^1$ の位置では、 $\frac{\partial e}{\partial f_2} < 0$ であるので、今度は $\frac{\partial e}{\partial f_1}, \frac{\partial e}{\partial f_2}$ ともに 0 となる点を求め $\mathbf{f}^2$ とする。しかし $\mathbf{f}^2$ では、 $f_1 < 0$ となっているので $\mathbf{f}^2$ と $\mathbf{f}^1$ の内分点で $f_1 = 0$ となる点を求め (この点を $\mathbf{f}^{2+}$ とする.)、さらに $\mathbf{f}^{2+}$ での $\frac{\partial e}{\partial f_2} < 0$ であるので、 $\frac{\partial e}{\partial f_2} = 0$ となるまで f_2 成分を大きくする。この点、 $\mathbf{f}^3$ は (10-2) 式をも満たすので $\mathbf{f}^3$ は最適解 $\mathbf{f}^*$ となる。このように、NNLS 法を用いれば有限回の反復で最適解 $\mathbf{f}^*$ に到達できる。

4. 最小二乗平均誤差規範の導入

前節で述べたように NNLS 法によるデコンボリューションを用いれば、雑音の影響等によって処理結果に負値が発生することを防ぐことができる。しかし、それだけでは雑音の除去は不十分であり、依然大量の正值の雑音が残る。SN 比が高くないデータに対しては、最小二乗規範ではなく、MMSE 規範⁵⁾ を用いてデコンボリューションを行なう⁶⁾ ことにより、統計的に SN 比が最大となるスペクトルが回復できる。しかし逆にこの規範は SN 比の悪い帯域信号情報を抑圧しており、規範下でデコンボリューションを行なった結果のスペクトルの分解能は低い。また帯域を制限することにより、処理結果にはカットオフ周波数でのリングングが生じ、そこにおいて負の強度や 100% を越える透過率の分布が発生する。そこで、MMSE 規範下で解に対して非負や 100% 以下の縦軸の制約を設けると、このリングングを抑えることができ、帯域を拡大してかつ SN 比最大のスペクトルを回復することができる。

MMSE 規範は次式で示される。

$$\text{Minimize } e = E\{\|\mathbf{f} - \hat{\mathbf{f}}\|^2\} \quad (11)$$

但し、 $E\{\cdot\}$ は期待値を表わす。

スペクトルおよび雑音は無相関で互いに独立な確率過程であることを仮定すれば[†]、(11) 式は (12) 式に書き換えられる。

$$\text{Minimize } e = \|\mathbf{g} - H\hat{\mathbf{f}}\|^2 + \gamma \|\hat{\mathbf{f}}\|^2 \quad (12)$$

[†] この仮定をすれば、MMSE 規範下のデコンボリューションは、Wiener-Helstrom フィルターと⁶⁾一致する。

ここで γ は SN 比のパワーの逆数を表わす。

結局、制約条件下での MMSE 規範に基づくデコンボリューションは次式を満たす解を求める問題となる。

$$\begin{cases} \text{Minimize } e = \|\mathbf{g} - H\mathbf{f}^*\|^2 + \gamma \|\mathbf{f}^*\|^2 & (13-1) \\ \text{Subject to } f_j^* \geq 0, j=1, 2, \dots, N & (13-2) \end{cases}$$

(13) 式の問題を NNLS 法で解く場合、(10) 式がそのまま使え、目的関数 e の勾配ベクトルを (4) 式から次式に変更するのみである。

$$\frac{\partial e}{\partial \mathbf{f}^*} = -2\{H^t \mathbf{g} - (H^t H + \gamma I) \mathbf{f}^*\} \quad (14)$$

但し、 I は単位行列である。

5. 実験結果

雑音を考慮した制約条件のもとでのデコンボリューション法を、実際に分光光度計で測定した可視発光および赤外吸収データに適用した。Fig. 3 (a) は鉄ニッケルホロカソードランプ (浜松テレビ L733 型) のネオンガスの発光スペクトル (波長域 520~521nm) をモノクロメータ、島津 MAF-II 型によってスペクトルスリット幅を 0.332nm に固定して測定した結果である。スリット関数により各発光線が三角形関数でコンボリューションされている。このスペクトルに対し、従来のインパースフィルター ((6) 式) によるデコンボリューションを行なった結果が Fig. 3 (b) である。但し逆関数の発散点は 0 に抑えた。デコンボリューションの結果、雑音が増幅され偽のピークが現れているのが観察できる。物理的に有り得ない負の強度も多く発生している。Fig. 3 (c) は MMSE 規範でのデコンボリューションの結果である。雑音は抑えられ、処理結果のスペクトルの SN 比は向上しているが、逆に分解能は低い。またカットオフ周波数によるリングングが生じ、その結果の負値が存在している。Fig. 3 (d) は提案する手法、すなわち MMSE 規範と制約条件、を付加した場合のデコンボリューションによる結果である。ただし、この場合非負拘束ではなく、検出器の暗電流等によるバイアス成分より大であるという拘束を用いた。Fig. 3 (b)・(c) と比較してみると、拘束が有効に働き SN 比は高くかつ高分解能のスペクトルが回復されている。また Fig. 3 (e) は比較のためにスリット幅を狭くし (スペクトルスリット幅 0.083nm)、高分解能で測定した結果である。これと Fig. 3 (d) を比較すれば提案するデコンボリューション法が非常に良い結果を与えていることが確認できる。

吸収スペクトルに対しても提案するデコンボリューション法による分解能向上を試みた。Fig. 4 (a) はアンモニアガスの赤外吸収スペクトル (波数域 1100~1000

Fig. 3. Experimental results of deconvolution for a visible emission spectrum of Fe-Ni hollow cathod lamp: (a) Measured spectrum; resultant spectra of (a) by (b) inverse filtering, (c) Wiener-Helstrom filtering, and (d) the proposed method; (e) high-resolution spectrum for comparison.

cm^{-1}) を, スペクトルスリット幅を 2.16 cm^{-1} に固定し, 分光光度計 JASCOA 3 型を用いて測定した結果である. Fig. 4 (b) は (a) のスペクトルに対し, インバースフィルターを施すことによるデコンボリューションを行った結果であり, やはりスペクトルは雑音成分に支配されている. MMSE 規範によるデコンボリューションを (a) のスペクトルに対して行った結果が Fig. 4 (c) である. Fig. 3 (c) と同様に, 雑音は抑えられているが分解能は低く, また帯域制限によるリングングが生じ, その結果 100% を上まわる透過率が発生している. Fig. 4 (d) は提案するデコンボリューション法による結果である. 制約条件としては透過率の上限を Fig. 4 (a) で 2 次

式近似して求めたものを用いた. Fig. 3 (d) の場合と同様に SN 比は高くかつ高分解能の結果が得られている. Fig. 4 (e) は, 比較のためスリット幅 0.87 cm^{-1} で測定した高分解スペクトルである. (c), (d) および (e) を比較すると特に図中の矢印の部分において提案するデコンボリューション法の有効性が確認できる.

6. 結 び

モノクロメータのスリット関数等の装置関数で劣化を受けた観測スペクトルから真のスペクトルを回復する目的に対し, スペクトルの縦軸に関する先験情報を拘束条件として解法に導入することにより高分解スペクトルを

Fig. 4. Experimental results of deconvolution for an infrared absorption spectrum of ammonia gas: (a) Measured spectrum: resultant spectra of (a) by (b) inverse filtering, (c) Wiener-Helstrom filtering, and (d) the proposed method; (e) high-resolution spectrum for comparison.

得るデコンボリューション法を提案し、実際の分光データへの適用においてその有効性を確認した。提案した手法は、インバースフィルターによるデコンボリューションやMMSE規範によるデコンボリューション等従来の手法と比較して次の三点において優っている。

- 1) 制約条件のもとでの最適解を有限回の反復で得ることができる。
- 2) 雑音が存在するとき、SN比で決まる帯域を越えた超分解スペクトルを得ることができる。
- 3) 提案する手法で用いた拘束は物理的に成立する条件であり、偽のピーク発生的心配はない。

一方、実用に当たり注意すべきことを以下に述べる。第一に実際の測定データには検出器の暗電流あるいはその他のバイアス成分が存在し、信号の正確な0レベルあるいは上下限がわからない場合があることが挙げられる。測定データ Fig. 3 (a), Fig. 4 (a) について故意に下限や上限をベースラインやバックグラウンドより厳しく制限し、デコンボリューションした。その結果ベースラインに近いピークは大きく影響を受け歪みが生じたり消滅したりすることがわかった。しかし発光や吸収の大きなピークは、高さは多少影響を受けるものの偽のピークは生じず、分解も低下しなかった。しかし、ベースライ

ンが正確にはわからない場合、少し拘束を緩める方がよいと思われる。

第二に、本手法を実行するための計算量は、測定データ数が多いとき、NNLS 法をそのまま実行すれば膨大となる。これは反復毎に測定データ数に近い次元の連立一次方程式を解かねばならないことによる。この点については、すでに改良されたアルゴリズムが報告されており、QR 分解とハウスホルダー変換を用いれば連立一次方程式を一回解くのと同量の計算量で済む²⁰⁾。このアルゴリズムを、分光分析機器の専用データステーションあるいはオンライン化されたパーソナルコンピュータにおいて利用すれば、分光分析機器の総合的な性能(分解能、SN 比)等を向上させることができ、装置の小型化高性能化の目的に対し、非常に有用であると思われる。

文 献

- 1) P. A. Jansson: *Deconvolution*, ed. P. A. Jansson (Academic Press, New York 1984).
- 2) H. C. Burger and P. H. van Cittert: *Z. Phys.* **79**, 722 (1932); **81**, 428 (1933).
- 3) R. N. Jones and A. Nadeau: *Can. J. Spectros.* **20**, 33 (1975).
- 4) Y. Senga, K. Minami, S. Kawata, and S. Minami: *Appl. Opt.* **23**, 1601 (1984).
- 5) A. Papoulis: *Probability, Random Variables, and Stochastic Process* (McGraw-Hill, New York, 1965), p. 395.
- 6) C. W. Helstrom: *J. Opt. Soc. Amer.* **57**, 931 (1967).
- 7) 河田 聡: 分光研究 **35**, 24 (1986).
- 8) J. L. Harris: *J. Opt. Soc. Amer.* **54**, 931 (1964).
- 9) R. W. Gerchberg: *Opt. Acta* **21**, 709 (1974).
- 10) *Conf. Digest Topical Meeting on Signal Recovery and Synthesis with Incomplete Information and Partial Constraints*, Lake Tahoe, 1983 (Optical Society of America, Washington, 1983).
- 11) 中村 収, 河田 聡, 南 茂夫: 第 20 回応用スペクトロメトリー東京計論会講演要旨集, p. 109 (1984).
- 12) S. Kawata, O. Nakamura, and S. Minami: *J. Opt. Soc. Amer.* **A 1**, 1319 (1984).
- 13) S. Kawata, K. Minami, and S. Minami: *Appl. Opt.* **22**, 3593 (1983).
- 14) K. Minami, S. Kawata, and S. Minami: *Appl. Opt.* **24**, 162 (1985).
- 15) P. A. Jansson, R. H. Hunt, and E. K. Plyler: *J. Opt. Soc. Amer.* **60**, 596 (1970).
- 16) C. L. Lawson and R. J. Hansson: *Solving Least Squares Problems* (Prentice-Hall, Englewood Cliffs, 1974) Chap. 23.
- 17) C. V. Panne: *Methods for Linear and Quadratic Programming* (North-Holland, 1975).
- 18) P. E. Gill, W. Murray, and M. H. Wright: *Practical Optimization* (Academic Press, New York, 1981).
- 19) S. Kawata, O. Nakamura, and S. Minami: *Proc. IEEE ICASSP-86*, 1753 (1986).
- 20) Ref. 16, Chap. 24.