

# 两相流相空间多元图重心轨迹动力学特征\*

赵俊英<sup>1)2)</sup> 金宁德<sup>1)†</sup>

1) (天津大学电气与自动化工程学院, 天津 300072)

2) (天津电子信息职业技术学院电子技术系, 天津 300350)

(2010年12月28日收到; 2011年8月20日收到修改稿)

本文提出了一种新的混沌时间序列高维相空间多元图重心轨迹动力学特征提取方法. 在确定了最佳嵌入维数和延迟时间后, 将相空间中高维矢量点映射到二维平面的雷达图上, 相应地将相空间中高维矢量点变换为对应的几何多边形. 通过提取几何多边形的重心位置得到重心轨迹动力学演化特性, 并利用重心轨迹矩特征量区分不同性质的混沌时间序列. 在此基础上, 处理分析了气液两相流电导传感器动态信号, 发现高维相空间多元图重心轨迹矩特征量不仅可以辨识泡状流、段塞流和混状流, 而且为流型动力学演化机理提供了新的分析途径.

**关键词:** 两相流, 高维相空间, 重心轨迹, 流型动力学

**PACS:** 47.55.Ca, 47.52.+j

## 1 引言

两相流流动现象广泛存在于工业生产过程中. 由于两相流存在随机可变的相界面, 其流动结构复杂多变, 且流动过程参数难于测量. 准确识别流型及理解其动力学演化机理对两相流生产过程优化具有重要意义.

由于两相流属耗散非线性动力学系统, 采用非线性分析方法揭示其流型动力学特性具有较好优势<sup>[1-4]</sup>. 从两相流测量信号中提取混沌特征不变量(关联维数、Kolmogorov熵等)为其常规分析方法<sup>[5,6]</sup>. 近年来的吸引子形态几何分析<sup>[7,8]</sup>及多尺度非线性分析<sup>[9,10]</sup>在揭示流型动力学演化机理方面取得了一定进展. 文献<sup>[11]</sup>总结了近年来的高维非线性系统的降维技术. Zoldi等<sup>[12]</sup>指出了相关长度可以作为高维混沌时空非均匀特征指示量. 基于流形学习的非线性降维及从混沌不稳定周期轨道探测高维吸引子特性提供了另外途径<sup>[13-16]</sup>. 采用信息理论对相空间嵌入参数优化也有助于揭示吸引子全貌特性<sup>[17,18]</sup>. 而基于小波变换的相空间重构为从多尺度研究吸引子结构提供了有效途径<sup>[19]</sup>. 尽管高维相空间吸引子分析取得了较大进展, 但由于高维几何分析方法局限性, 已有分析方法仍限于

混沌吸引子的两维投影分析, 直接提取高维相空间混沌特征量仍存在一定困难.

数图结合是科学研究的重要思想和方法, 由于高维空间数据不可视, 要将其结构展现出来就必须借助平面图形表示方法. 多元统计图表示方法就是将高维空间数据点用图形的形式表现出来, 这种图形表示方法已经应用在模式识别研究中<sup>[20]</sup>. 受其多元统计图表示原理的数学思想启发, 本文提出了一种基于多元图相空间混沌吸引子特征提取方法, 该方法将高维空间中的每个点依次映射到雷达图中, 使每个高维矢量点对应于雷达图中的一个多边形, 并将这一多边形重心的轨迹形态及统计学特征(矩特征量)引入气液两相流电导波动信号分析, 为两相流流型动力学机理分析提供了新的途径.

## 2 多元图嵌入方法及其重心特征提取

由Takens<sup>[21]</sup>提出的嵌入定理是相空间重构理论基石. 对于混沌观测时间序列 $x(it)$  ( $i = 1, 2, \dots, N$ ,  $N$ 为采样点总数), 如果选取嵌入时间延迟为 $\tau$ , 嵌入维数为 $m$ , 则相空间中的点可表示为

$$X(k) = \{x(kt), x(kt + \tau), \dots\},$$

\* 国家自然科学基金(批准号: 50974095, 41174109)和国家科技重大专项(批准号: 2011ZX05020-006)资助的课题.

† E-mail: ndjin@tju.edu.cn

$$x[kt + (m - 1)\tau], \quad (1)$$

式中  $k = 1, 2, \dots, M, M = N - (m - 1)\tau/t$  为重构相空间后吸引子上点的总数.

目前吸引子形态分析方法因高维相空间吸引子不可视及计算复杂, 一般选取 2 维或 3 维相空间嵌入 [7,8], 因此, 其吸引子形态无法完全展开, 不可避免地导致一些有用信息被叠加或覆盖. 本文提出的多元图相空间嵌入基本思想是: 将高维矢量数据以图形的形式展示, 并以此为基础对两相流流型动力学机理进行分析.

### 2.1 多元图表示

常用的多元图表示方法有雷达图 [22](又称径向图, 星形图或蜘蛛网图) 及平行坐标图 [23]. 综合考虑各种图形表示方法特点及其特征量的提取情况, 本文高维数据表示采用了雷达图的表示方法. 图 1 为一个六维数据  $X = \{x_1, x_2, x_3, x_4, x_5, x_6\}$  的雷达图表示. 雷达图特征量一般包括多边形重心、面积、对称性、分区面积比等. 本文通过提取这些图形特征并应用于高维相空间数据序列, 再提取有效特征量, 最终区别不同的高维相空间吸引子.

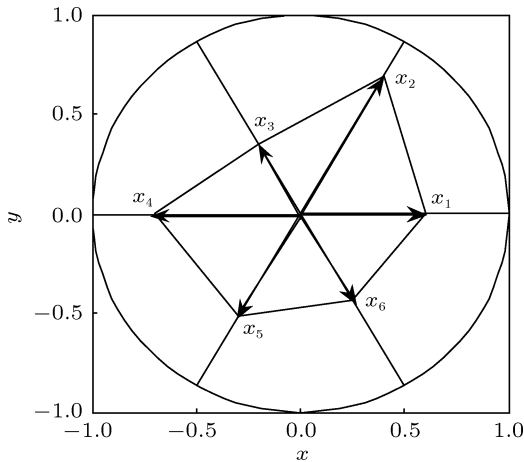


图 1 一个六维数据的雷达图表示

高维数据雷达图表示过程为: 首先将数据进行归一化处理, 因雷达图不能表示负数, 同时为数据处理量纲的一致, 故需要将所有数据线性映射到 [0,1] 区间, 通常采用极差正规化变换

$$x_i^* = \left(x_i - \min_{1 \leq t \leq N} x_t\right) / R_j, \quad (2)$$

式中,  $x_i^*$  表示变换后的作图数据,  $x_i$  表示第  $i$  个原始数据,  $R_j = \max_{1 \leq t \leq N} x_t - \min_{1 \leq t \leq N} x_t$  表示极差. 然后根据数据维数将一个圆等分, 如果是 6 维数据, 则

进行 6 等分, 高维数据中的每个分量大小依次对应雷达图中相应的径向长度, 将各个径向点首尾相连, 就构成了如图 1 所示的多边形. 由此, 不同的高维矢量数据就映射成了雷达图上不同的多边形, 通过提取多边形重心特征可对混沌时间序列进行定量分析.

### 2.2 多边形重心提取算法

传统多边形重心算法随着多边形边数的增加而使得计算量加大, 在多元信息雷达图表示中, 对象的多元信息表现为雷达图的各维径向坐标, 即雷达图多边形的各顶点, 可以认为多元信息雷达图表示的顶点为信息质点.

对于  $m$  个相邻变量形成的重心特征可以采用质量集中在顶点的多边形重心数学模型. 由  $(r_1, r_2, \dots, r_m)$  形成的  $m$  变量重心矢量特征表示公式为 [20]

$$\begin{aligned} \text{abs}_m &= \left\{ \left( \sum_{i=1}^m p_i r_i \cos \frac{2(i-1)\pi}{n} \right)^2 + \left( \sum_{i=1}^m p_i r_i \sin \frac{2(i-1)\pi}{n} \right)^2 \right\}^{1/2}, \\ \text{angle}_m &= \arctan \frac{\sum_{i=1}^m p_i r_i \sin \frac{2(i-1)\pi}{n}}{\sum_{i=1}^m p_i r_i \cos \frac{2(i-1)\pi}{n}}, \\ 0 &< \text{angle}_m < \frac{2m\pi}{n}, \end{aligned} \quad (3)$$

其中,  $\text{abs}_m$  为  $m$  变量重心矢量特征的幅值;  $\text{angle}_m$  为  $m$  变量重心矢量特征的角度;  $p_i$  为各变量的信息质点权值, 可以根据各变量的信息熵函数来确定, 应用中为方便通常取定值为  $1/m$ . 在本文后续的时间序列高维嵌入重心特征提取中亦采用了这种算法.

### 2.3 不同信号的雷达图相空间嵌入及重心轨迹

本节讨论了 Logistic 信号、Lorenz 信号、正弦信号和高斯白噪声的雷达图嵌入情况, 并给出了其重心演化轨迹. 在嵌入参数选取时, 对于 Lorenz 信号, 按照 C-C 算法 [24], 取最佳嵌入维数 6, 最佳延迟时间为  $11\tau_s$  ( $\tau_s$  为取样间隔). 对于正弦信号, 高斯白噪声以及 Logistic 信号尚未进入混沌的情况, 因混沌时间序列嵌入参数选取准则对其并不适用, 本文选取了使其嵌入效果较明显的一组参数.

图 2 为 Logistic 信号单周期、倍周期、四周期、八周期和进入混沌的嵌入多边形效果及重心轨迹. 其中实线部分为嵌入雷达图之后的多边形混叠在一起的效果, 我们将其称之为多元图混沌吸引子 (multivariate-graph chaotic attractor, MGCA), 而靠近原点的星形连线部分是多边形序列的重心轨迹. 由于 Logistic 序列本身即为 0 到 1 之间正值, 故相空间嵌入未进行极差标准化处理. 可以看出, 单周期信号形成的多边形重叠为一个多边形, 其重心也重叠为一点; 倍周期信号形成的多边形重叠为两个多边形, 其重心轨迹为两点连线; 同样, 四周期信号得到四个重心点连线; 八周期信号得到 8 个重心点连线; 混沌信号为一系列嵌入多边形重心连线.

图 3 中给出了 Lorenz 信号、正弦和高斯白噪声多元图高维嵌入重心轨迹的 Matlab 仿真结果. 可

以看出: 混沌信号与正弦、高斯白噪声的多元图嵌入重心轨迹明显不同, 其中 Lorenz 信号嵌入重心轨迹为类似的奇异吸引子区域, 正弦信号多元图嵌入的重心轨迹为一确定性椭圆形状, 高斯白噪声嵌入重心轨迹为原点附近的无规则轨线.

### 2.4 重心轨迹矩特征量

从上述仿真分析可以看出: 对于 Logistic 单周期、倍周期、四周期及进入混沌的情况, 其多元图混沌吸引子 (MGCA) 形态特征存在显著差别. 但是, 随着嵌入序列方程参数的变化, MGCA 内部的多边形混叠在一起, 不能直观地区分不同类型信号. 然而, 其内嵌多边形重心轨迹存在显著差别 (图 3), 随着混沌信号混沌度的不同, 其 MGCA 的重心轨迹所占的区域也有明显不同 (图 2).

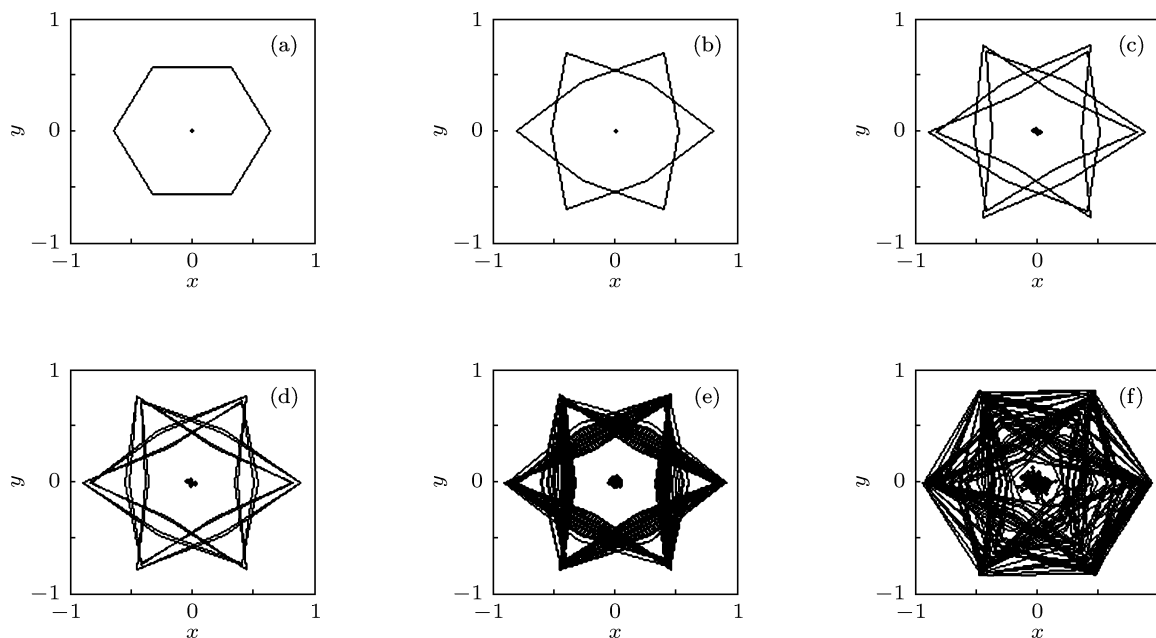


图 2 Logistic 信号 ( $x_{n+1} = \lambda x_n(1 - x_n)$ ,  $n = 1, 2, \dots$ ) 取不同参数时多元图嵌入及重心轨迹 ( $m = 6, \tau = 3$ ) (其中实线为嵌入多边形, 星形线表示多边形重心轨迹) (a)  $\lambda = 2.8$ ; (b)  $\lambda = 3.2$ ; (c)  $\lambda = 3.53$ ; (d)  $\lambda = 3.55$ ; (e)  $\lambda = 3.6$ ; (f)  $\lambda = 3.8$

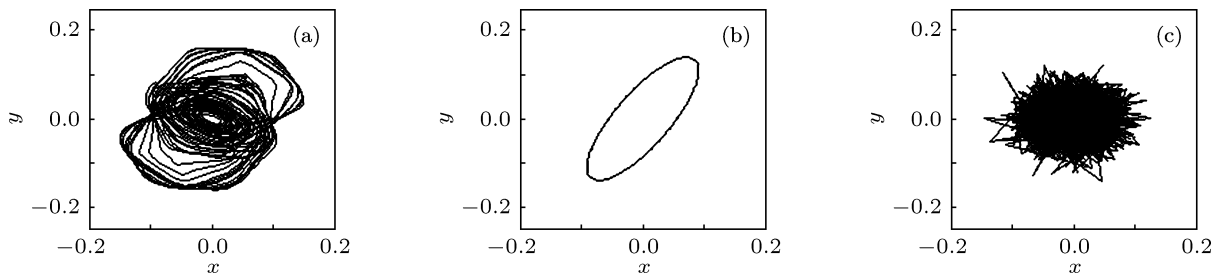


图 3 三种典型时间序列的多元图嵌入重心轨迹 (a) Lorenz 信号 ( $dx/dt = -\sigma x + \sigma y$ ,  $dy/dt = rx - y - xz$ ,  $dz/dt = -bz + xy$ , 其中  $\sigma = 16, r = 45.92, b = 4$ ); (b) 正弦信号,  $y = \sin x$ , 采样间隔  $\pi/180$ ; (c) 高斯白噪声数据. 以上信号各取 3000 个数据点

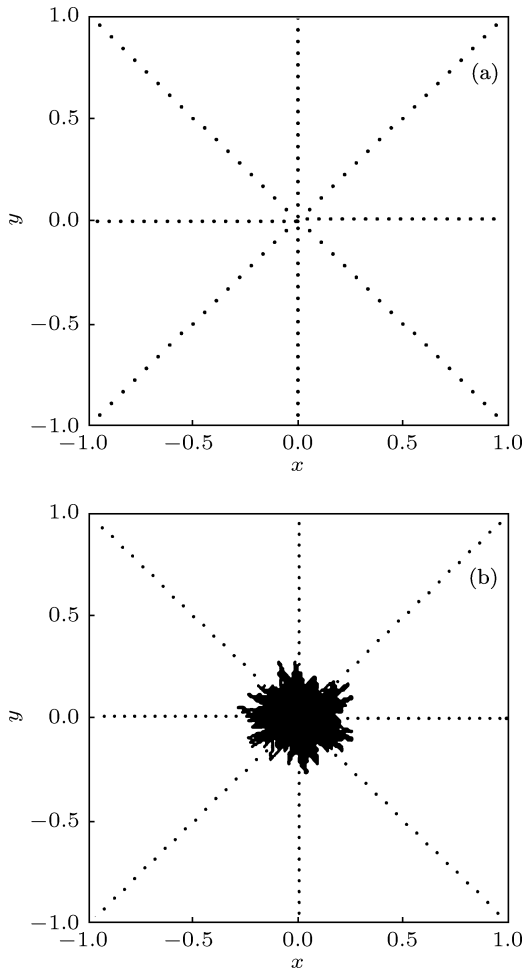


图4 参考截面示意图 (a) 四个参考截面; (b) Logistic 信号 MGCA 重心轨迹相对四个参考截面的情况

为了衡量 MGCA 内嵌多边形的重心轨迹所占面积的大小, 这里引入矩的概念<sup>[8]</sup>, 如图4所示, 以原点、 $x$ 轴、 $y$ 轴, 直线  $y = x$  和  $y = -x$  建立参考截面. 设  $X(k) = \{x_1(k), x_2(k), \dots, x_m(k)\}$  为高维相空间矢量点,  $G_k = \{g_x(k), g_y(k)\}$  为该点对应的多边形重心, 则重心到各个参考截面的距离表示为到原点的距离

$$d_0(k) = \sqrt{g_x(k)^2 + g_y(k)^2}; \quad (4)$$

到  $x$  轴距离

$$d_x(k) = g_y(k); \quad (5)$$

到  $y$  轴距离

$$d_y(k) = g_x(k); \quad (6)$$

到参考截面  $y = x$  轴的距离

$$d_1(k) = \frac{1}{\sqrt{2}}\{g_x(k) - g_y(k)\}; \quad (7)$$

到参考截面  $y = -x$  轴的距离

$$d_2(k) = \frac{1}{\sqrt{2}}\{g_x(k) + g_y(k)\}; \quad (8)$$

重心轨迹矩定义为

$$M_{i,j} = \frac{\sum_{k=1}^M d_i(k)^j}{M}. \quad (9)$$

其中  $i$  取 0, 1, 2,  $x, y$ , 表示不同的距离类型,  $j = 1, 2, 3$ , 称为阶数,  $M$  为重构相空间后吸引子上点的总数. 在式 (9) 中当  $j$  取偶数时, 体现了 MGCA 重心轨迹对所考察的参考截面分散程度, 而当  $j$  为奇数时, 体现了 MGCA 重心轨迹对所考察的参考截面对称性.

### 3 流型辨识及其动力学机理分析

实验数据选取了本课题组先前采集的垂直上升气液两相流泡状流、段塞流、混状流三种典型信号<sup>[25]</sup>, 共 144 种流动工况. 由 C-C 算法计算得最佳延迟时间在 40—80 ms 之间, 最佳嵌入维数在 5—10 维之间. 为了得到统一合适的嵌入参数, 本次实验中选取延迟时间分别为 40 ms, 60 ms, 80 ms, 嵌入维数分别选取 5, 6, 7, 8, 9, 将上述延迟时间和嵌入维数两两组合进行比较, 发现在嵌入维数  $m = 9$  及延迟时间  $\tau = 40$  ms 时 ( $16\tau_s, \tau_s$  为实际的采样周期), 各种流型重心轨迹矩特征量区分效果最明显.

图5、图6、图7分别选取了泡状流、段塞流、混状流三种流型的各两种工况, 给出了电导波动信号及相应的 MGCA 重心轨迹演化图. 可以看出, 段塞流与泡状流及混状流 MGCA 重心轨迹演化特征明显不同, 表现出明显的 MGCA 重心轨迹由内轨道到外轨道的嵌套演化结构, 反映了段塞流中气塞与含液塞拟周期间歇性运动特征. 泡状流 MGCA 重心轨迹演化区域更为分散, 反映了泡状流运动模式复杂多变特征. 与泡状流 MGCA 重心轨迹特征相比, 混状流 MGCA 重心轨迹演化区域则比较集中在原点附近, 反映了段塞流中气塞被击碎后形成的不规则振荡式运动模式, 其动力学复杂性程度比泡状流更弱.

为了实现对三种流型的辨识, 我们引入矩特征量对其 MGCA 重心轨迹进行表征. 从图5和图7可以看出, 泡状流和混状流的重心轨迹所占区域大小明显不同, 但二者相对原点和参考截面的对称性较好; 如图6所示, 段塞流重心轨迹相对原点和四个参考截面的运动规律性明显, 但对称性不好.

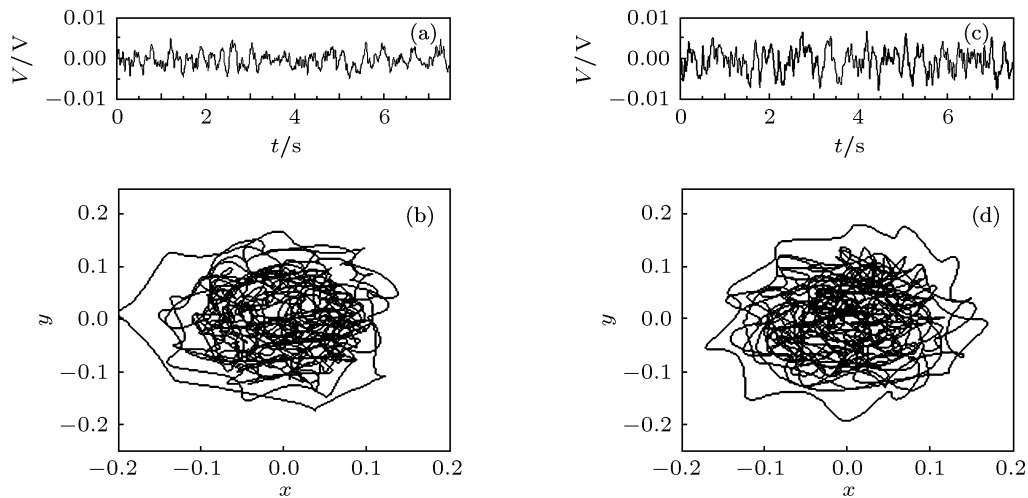


图5 不同泡状流工况的电导波动信号及 MGCA 重心轨迹图 (嵌入参数  $m = 9$ ,  $\tau = 40$  ms) ( $Q_g$  及  $Q_w$  分别为气相及液相体积流量) (a), (b)  $Q_g = 0.368$  m<sup>3</sup>/h,  $Q_w = 7.05$  m<sup>3</sup>/h; (c), (d)  $Q_g = 1.235$  m<sup>3</sup>/h,  $Q_w = 7.05$  m<sup>3</sup>/h

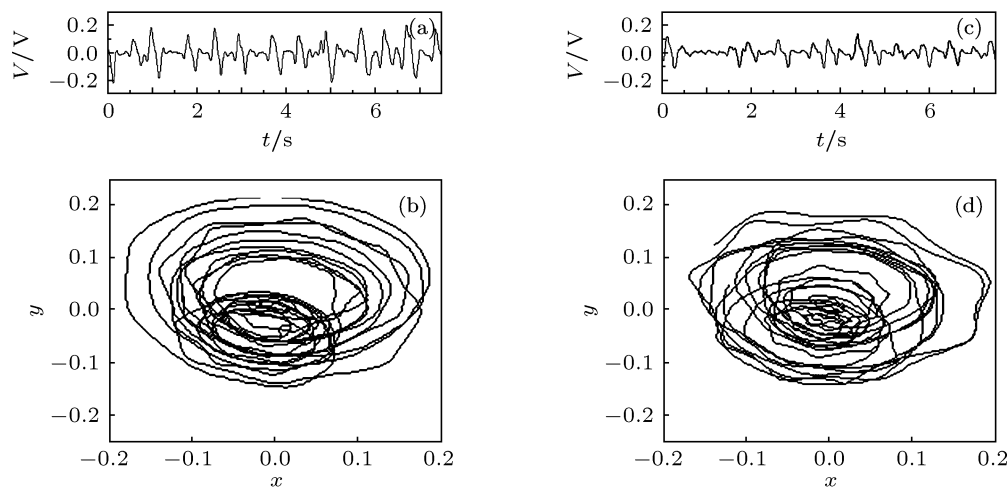


图6 不同段塞流工况的电导波动信号及 MGCA 重心轨迹图 (嵌入参数  $m = 9$ ,  $\tau = 40$  ms) ( $Q_g$  及  $Q_w$  分别为气相及液相体积流量) (a), (b)  $Q_g = 7$  m<sup>3</sup>/h,  $Q_w = 7.05$  m<sup>3</sup>/h; (c), (d)  $Q_g = 4.667$  m<sup>3</sup>/h,  $Q_w = 7.05$  m<sup>3</sup>/h

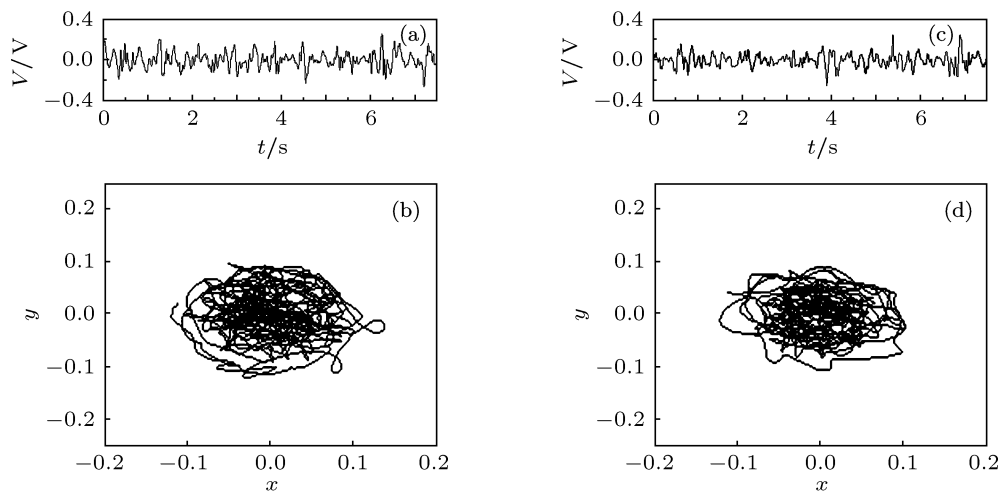


图7 不同混状流工况的电导波动信号及 MGCA 重心轨迹图 (嵌入参数  $m = 9$ ,  $\tau = 40$  ms) ( $Q_g$  及  $Q_w$  分别为气相及液相体积流量) (a), (b)  $Q_g = 40.3$  m<sup>3</sup>/h,  $Q_w = 7.05$  m<sup>3</sup>/h; (c), (d)  $Q_g = 63$  m<sup>3</sup>/h,  $Q_w = 7.05$  m<sup>3</sup>/h

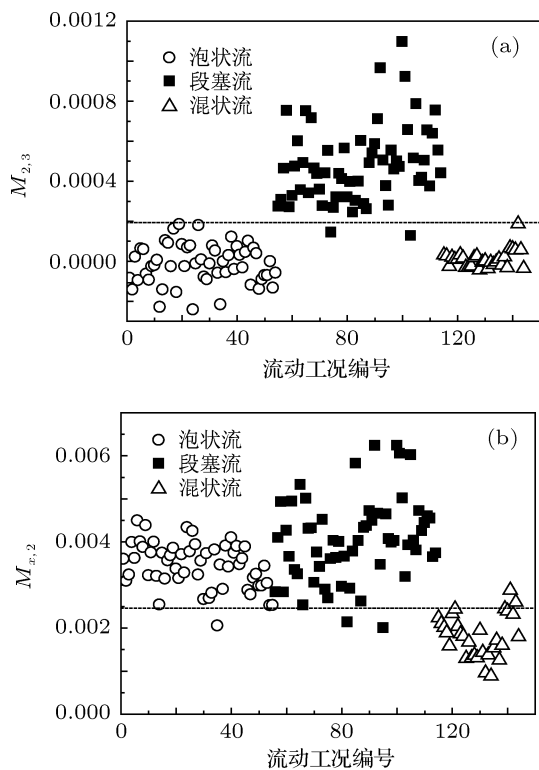


图 8  $M_{2,3}$  和  $M_{x,2}$  矩特征量对流型区分 ( $m = 9, \tau = 40$  ms)

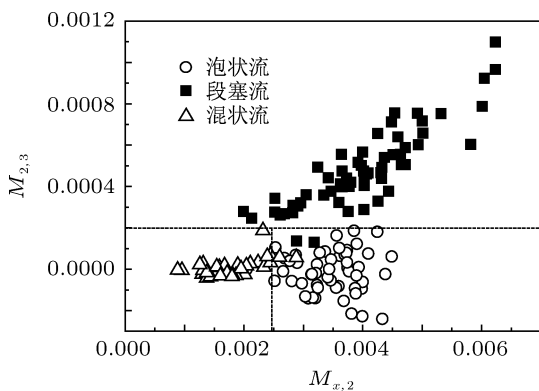


图 9 不同工况点 MGCA 重心矩特征量在  $M_{x,2}$ - $M_{2,3}$  平面上分布情况

如图 8 所示, 给出了  $M_{2,3}$  矩和  $M_{x,2}$  矩特征量对不同流型区分情况. 通过对不同的矩特征量进行比较, 得到对泡状流和混状流区分较好的矩有  $M_{0,3}, M_{2,2}, M_{x,2}$ , 对段塞流区分较好的矩

有  $M_{1,3}, M_{2,3}, M_{x,3}$ . 从 MGCA 重心轨迹形态及矩特征量对流型的区分看, 原点矩和偶阶矩因反映轨迹对参考截面的分散程度, 对泡状流和混状流的区分较好, 而奇阶矩由于反映重心轨迹的对称性, 对段塞流的区分较好. 对上述的  $M_{x,2}$  和  $M_{2,3}$  矩进行组合, 即得到对三种流型的满意辨识结果 (图 9).

如图 9 所示,  $M_{2,3} = 0.0002$  的直线将段塞流与另两种流型区分开来, 有两个段塞流点错误地划入泡状流区域, 而  $M_{x,2} = 0.0025$  的直线可将泡状流和混状流区分开, 有两个混状流点错误地划入泡状流区域, 一个泡状流点错误地划入混状流区域. 总体上说, 该 MGCA 重心矩特征量对三种流型的辨识达到了很好效果, 可以作为气液两相流流型辨识特征指标.

### 4 结论

本文提出了一种混沌时间序列多元图嵌入方法, 将高维相空间数据用雷达图多边形表现出来, 由一系列叠加的多边形构成一个新的多元图混沌吸引子 (MGCA), 发现该多元图重心轨迹可以定性区分周期信号、高斯白噪声信号及混沌信号.

通过处理及提取气液两相流电导波动信号 MGCA 重心轨迹, 发现段塞流 MGCA 重心轨迹能够反映气塞与液塞的拟周期性振荡运动特性; 泡状流和混状流 MGCA 重心轨迹较段塞流更为复杂, 但两者 MGCA 重心轨迹相对参考截面的分散程度可以反映其不同流型内部动力学运动模式的复杂性, 相比之下, 泡状流比混状流更具复杂多变的运动模式.

多元图重心轨迹矩特征量能够反映重心轨迹对参考截面的分散程度和对称性, 通过不同重心轨迹矩特征量组合可实现对气液两相流泡状流、段塞流和混状流流型辨识. 该方法计算过程简单且具有直观几何意义, 为高维混沌相空间吸引子形态统计特征分析提供了新途径.

[1] Daw C S, Lawkins W F, Downing D J, Clapp N E 1990 *Phys. Rev. A* **41** 1179  
 [2] Lawkins W F, Daw C S, Downing D J, Clapp N E 1993 *Phys. Rev. E* **47** 2520  
 [3] Daw C S, Finney C E A, Vasudevan M, vanGoor N A, Nguyen K, Bruns D D, Kostelich E J, Grebogi C, Ott E, Yorke J A 1995 *Phys.*

*Rev. Lett.* **75** 2308  
 [4] Lahey R T 1991 *Heat Mass Transfer*. **26** 351  
 [5] Letzel H M, Schouten J C, Krishna R, van den Bleek C M 1997 *Chem. Eng. Sci.* **52** 4447  
 [6] Ji H, Ohara H, Kuramoto K, Tsutsumi A, Yoshida K, Hiramata T 2000 *Chem. Eng. Sci.* **55** 403

- [7] Llauro F X, Llop M F 2006 *Int. J. Multiphase Flow* **32** 1397
- [8] Xiao N, Jin N D 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5149 (in Chinese) [肖楠, 金宁德 2007 物理学报 **56** 5149]
- [9] Zhao G B, Yang Y R 2003 *AIChE J.* **49** 869
- [10] Li H W, Zhou Y L, Sun B, Yang Y 2010 *Chin. J. Chem. Eng.* **18** 880
- [11] Yu H, Chen Y S 2009 *Advance in Mechanics* **39** 154 (in Chinese) [于海, 陈予恕 2009 力学进展 **39** 154]
- [12] Zoldi S M, Greenside H S 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1687
- [13] Meng D Y, Xu C, Xu Z B 2010 *Chin. J. Comput.* **33** 545 (in Chinese) [孟德宇, 徐晨, 徐宗本 2010 计算机学报 **33** 545]
- [14] Liu Y, Liu Y, Keith C.C.Chan 2010 *Signal Processing* **90** 2375
- [15] Auerbach D, Cvitanovic P, Eckmann J P, Gunaratne G, Procaccia I 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 2387
- [16] Saiki Y, Yamada M 2008 *Nonlinear Processes in Geophysics* **15** 675
- [17] Cong R, Liu S L, Ma R 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 7487 (in Chinese) [丛蕊, 刘树林, 马瑞 2008 物理学报 **57** 7487]
- [18] Zhang C T, Ma Q L, Peng H 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 7623 (in Chinese) [张春涛, 马千里, 彭宏 2010 物理学报 **59** 7623]
- [19] You R Y, Huang X J 2011 *Chin. Phys. B* **20** 020505
- [20] Hong W X, Li X, Xu Y H, Wang J J, Song J L 2008 *Information fusion and pattern recognition based on the principle of multidimensional chart expression* (Beijing: National Defense Industry Press) p193 (In Chinese) [洪文学, 李昕, 徐永红, 王金甲, 宋佳霖 2008 基于多元统计图表示原理的信息融合和模式识别技术 (北京: 国防工业出版社) 第 193 页]
- [21] Takens F, 1981 *Dynamical Systems and Turbulence* (Berlin: Springer Verlag) p366
- [22] Saary M J 2008 *Journal of Clinical Epidemiology* **60** 311
- [23] Hubert M, Rousseeuw P J, Verboven S 2002 *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* **60** 100
- [24] Kim H S, Eykholt R, Salas J D 1999 *Physica D* **127** 48
- [25] Zheng G B, Jin N D 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4485 (in Chinese) [郑桂波, 金宁德 2009 物理学报 **58** 4485]

# Dynamic characteristics of multivariate graph centrobaric trajectory in phase space of two-phase flow\*

Zhao Jun-Ying<sup>1)2)</sup> Jin Ning-De<sup>1)†</sup>

1) (School of Electrical Engineering and Automation Tianjin University, Tianjin 300072, China)

2) (Electronic Technology Department, Tianjin Vocational College of Electronics & Information Technology, Tianjin 300350, China)

(Received 28 December 2010; revised manuscript received 20 August 2011)

## Abstract

We propose a multivariate graph centrobaric trajectory-based method for characterizing nonlinear dynamics from high-dimensional chaotic time series. After the optimal selecting of the embedding dimension and time delay, we map the high-dimensional vector point into the two-dimensional radial plane graph, i.e., the high-dimensional vector point is transformed correspondingly to a geometric polygon. By extracting the geometric location of the polygon barycenters, we can obtain the evolving feature of the barycenter dynamical trajectory. Then we use the moment quantity of the barycenter trajectory to distinguish different chaotic time series. Finally, we apply our method to the fluctuating signals measured from gas-liquid two-phase flow experiments. The results suggest that our method can be a powerful tool for not only distinguishing the different flow patterns but also investigating the dynamical evolving mechanism of flow patterns.

**Keywords:** two-phase flow, high-dimensional phase space, centrobaric trajectory, flow pattern dynamics

**PACS:** 47.55.Ca, 47.52.+j

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50974095, 41174109), and the National Science and Technology Major Projects (Grant No. 2011ZX05020-006).

† E-mail: ndjin@tju.edu.cn