УДК 621.384.8

В. В. Манойлов, А. И. Солодовников, И. В. Заруцкий

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ СИСТЕМЫ БАЗИСНЫХ ФУНКЦИЙ ДЛЯ ВЫЯВЛЕНИЯ НАЛИЧИЯ ПРИМЕСЕЙ В ИЗОТОПНОМ МАСС-СПЕКТРЕ ТРАНСУРАНОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

Рассматриваются возможности использования спектральных преобразований в системе базисных функций для выявления наличия примесей в изотопном масс-спектре трансурановых элементов. В качестве эталонных сигналов используются масс-спектры стандартных образцов элементов. Показывается, что использование данного подхода к обработке сигналов обеспечивает возможность выявления наличия примеси с массой, отличающейся на 0,001% от массы одного из изотопов в стандартном образце.

Ключевые слова: *масс-спектрометрия, изотопный анализ, система обработки сигналов, система базисных функций.*

Введение. Во многих научно-технических областях, где применяются масс-спектрометрические приборы, основу решения прикладных задач составляет обработка сигналов, анализ которых как носителей информации раскрывает их информативное содержание, связанное с решаемой задачей. Получение достоверной информации посредством анализа сигналов масс-спектрометра в ряде случаев осложняется недостаточным разрешением приборов, наличием нежелательных шумов и наводок, а также посторонних примесей в анализаторе масс-спектрометра. В связи с этим в настоящее время является актуальным использование алгоритмов, позволяющих снизить влияние мешающих факторов при реализации программного обеспечения масс-спектрометров. Во многих практических задачах, связанных с обработкой сигналов, нашли применение ортогональные преобразования, в частности, те из них, которые имеют быстрый вычислительный алгоритм, обеспечивающий возможность оперативного анализа данных. В этой области в последнее время активно развиваются параметрически перестраиваемые ортогональные преобразования с быстрыми алгоритмами [1—5], позволяющие путем изменения параметров приспосабливать оператор преобразования к характеру исходных данных.

В настоящей статье предлагается при обработке сигналов применять аппарат ортогональных преобразований с параметрически перестраиваемыми по форме базисными функциями, что обеспечит возможность приспосабливать такое преобразование к анализируемым данным. Разработка и экспериментальный анализ алгоритмов оценки наличия примесей в изотопных масс-спектрах трансурановых элементов являются предметом исследования в настоящей статье.

Выбор математической основы для разработки алгоритма. Задача по выявлению информативных признаков в масс-спектрометрических сигналах может быть представлена как задача нахождения вектора Y:

$$Y = FX,$$

где $X = [x_1, x_2, ..., x_N]^T$ — вектор исходных данных преобразования; F — оператор преобразования; $Y = [y_1, y_2, ..., y_N]^T$ — вектор информативных признаков, характеризующий полезную информацию исходного сигнала.

При решении этой задачи возникает проблема выбора класса оператора преобразования F. Известно [1, 3, 5], что общий подход к поиску процедур оценки признаков (параметров масс-спектрометрических сигналов) основан на линейных преобразованиях. Среди них наибольшее распространение получили ортогональные преобразования [4], использование которых позволяет выбрать систему базисных функций (СБФ), наиболее приспособленных к решаемой задаче. При этом может быть обеспечено высокое быстродействие таких преобразований, которые могут выполняться по быстрым алгоритмам.

Ортогональные преобразования, основные свойства. В рамках теории цифровой обработки сигналов понятие ортогонального преобразования может быть представлено в виде матричного уравнения

$$Y = HX,$$

где H — матрица ортогонального преобразования; $Y = [y_1, y_2, ..., y_N]^T$ — вектор информативных признаков, представляющий собой вектор спектральных коэффициентов (является отображением вектора X в спектральной области).

Оператор преобразования H включает в себя систему базисных функций и имеет следующую структуру:

$$H = \begin{bmatrix} h_1 \\ h_2 \\ \vdots \\ h_M \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} [h_{11} \cdots h_{1N}] \\ [h_{21} \cdots h_{2N}] \\ \cdots\cdots\cdots\cdots \\ [h_{M1} \cdots h_{MN}] \end{bmatrix},$$

где $[h_{i1}, h_{i2}, \ldots, h_{iN}]$ — вектор дискретных значений i-й базисной функции.

Система функций $\{h_i\}$ является базисной, если все функции ортогональны друг другу и образуют полную систему, для которой не существует ни одной другой функции, ортогональной ко всем остальным. При выполнении этого условия справедливо равенство $M=N$. Система ортогональных базисных функций является нормированной (или ортонормированной), если норма каждой базисной функции в пространстве L_2 равна единице.

Выбор той или иной системы базисных функций производится в соответствии с требованиями конкретной задачи анализа сигналов. При решении задачи оценки наличия примесей в изотопных масс-спектрах СБФ должна обеспечивать получение пространства информативных признаков невысокой размерности и должна быть выражена в факторизованной форме, что позволяет оперативно выполнить ортогональное преобразование по быстрому алгоритму. Сокращение размерности при этом заключается в том, что при ортогональном преобразовании основная часть исходных данных отображается k спектральными коэффициентами ($k << N$). За счет исключения остальных спектральных коэффициентов как неинформативных размерность вектора информативных признаков существенно уменьшается.

Таким образом, при решении рассматриваемой задачи следует выбирать такую базисную систему, которая обеспечивает максимальное уменьшение размерности вектора информативных признаков при минимальных информационных потерях. В работах [1, 2, 5] предложен подход к построению ортогональных преобразований с параметрически перестраиваемыми по форме базисными функциями с сохранением их ортогональности и полноты. Рассмотрим аппарат таких преобразований более подробно.

Перестраиваемые ортогональные преобразования. Сущность метода перестраиваемых ортогональных преобразований состоит в таком факторизованном представлении матрицы спектрального оператора, при котором ненулевые элементы факторизованной матрицы взаимосвязаны условиями ортонормированности и полноты и имеют степени свободы, обеспечивающие параметрическое формирование множества базисов с алгоритмами быстрых преобразований. В основе построения алгоритма лежит представление оператора преобразования H в виде произведения факторизованных (слабозаполненных далее неразложимых) матриц:

$$H = G_n G_{n-1} \cdots G_1 .$$

Здесь $G_i(\varphi_{ij})$ — факторизованные (слабозаполненные далее неразложимые) матрицы, ненулевые элементы которых зависят от параметров φ_{ij}, $i = \overline{1, n}$, $j = \overline{1, N/2}$, где n — число факторизованных матриц G_i, в частности, при $N = 2^n$, $n = \log_2 N$ (N — размерность вектора исходного сигнала). При этом каждая из матриц G_i содержит $N/2$ элементарных матричных блоков, обобщенная модель которых имеет параметрическую форму и названа в силу неразложимости спектральным ядром. Для операторов размерностью $N = 2^n$ факторизованные матрицы G_i составляются из параметрических элементов ядер:

$$V_{ij} = \begin{bmatrix} \alpha_{ij} & \cdots & \gamma_{ij} \\ \beta_{ij} & \cdots & \delta_{ij} \end{bmatrix}.$$

Приведем пример структуры факторизованной матрицы G_i:

$$G_i = \begin{bmatrix} \begin{bmatrix} \alpha_{i1} & 0 & \cdots & 0 & \gamma_{i1} \\ \beta_{i1} & 0 & & 0 & \delta_{i1} \end{bmatrix} & \begin{matrix} 0 & \cdots & 0 \\ 0 & & 0 \end{matrix} \\ \begin{matrix} 0 \\ 0 \end{matrix} \begin{bmatrix} \alpha_{i2} & 0 & \cdots & 0 & \gamma_{i2} \\ \beta_{i2} & 0 & & 0 & \delta_{i2} \end{bmatrix} & \begin{matrix} \cdots & 0 \\ & 0 \end{matrix} \\ \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots & \\ \begin{matrix} 0 & \cdots & 0 \\ 0 & & 0 \end{matrix} \begin{bmatrix} \alpha_{iN/2} & 0 & \cdots & 0 & \gamma_{iN/2} \\ \beta_{iN/2} & 0 & & 0 & \delta_{iN/2} \end{bmatrix} & \end{bmatrix}.$$

В этом случае параметрические элементы ядер вычисляются следующим образом:

$$V_{ij} = \begin{bmatrix} \alpha_{ij} & \cdots & \gamma_{ij} \\ \beta_{ij} & \cdots & \delta_{ij} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos\varphi_{ij} & \cdots & w_{ij}\sin\varphi_{ij} \\ \sin\varphi_{ij} & \cdots & -w_{ij}\cos\varphi_{ij} \end{bmatrix},$$

где $w_{ij} = \exp(j\theta_{ij})$, $\varphi_{ij} \in [0, 2\pi]$, $\theta_{ij} \in [0, 2\pi]$.

Задавая параметры элементов ядер φ_{ij} и θ_{ij}, можно формировать спектральные операторы H. При этом φ_{ij} вычисляются исходя из отсчетов усредненного масс-спектра и результатов вычислений элементов матриц на предыдущих шагах итерационной процедуры. Для вещественных сигналов $\theta_{ij}=0$.

Данный подход к обработке сигналов был исследован для изучения возможностей его применения в масс-спектрометрии. При изотопном анализе продукта на предприятиях ядерно-топливного цикла существенным этапом технологического процесса при настройке и калибровке масс-спектрометра является измерение изотопного состава стандартных образцов с заранее известными изотопными отношениями. Существуют ситуации, при которых изотопные отношения могут быть искажены наличием в анализируемых пробах посторонних примесей (массы примесей могут быть очень близки к массам проб). В ряде случаев применение преобразований в СБФ может решить задачу по выявлению примесей в стандартных образцах. В качестве эталона [6] в этом случае необходимо использовать усредненный нормированный спектр стандартного образца изотопного масс-спектра трансурановых элементов.

На рис. 1 представлены исследуемые масс-спектры: по оси ординат отложена интенсивность I ионного тока, а по оси абсцисс — масса m изотопов (в атомных единицах массы); на рисунке кривая *1* соответствует масс-спектру стандартного образца при отсутствии в нем примесей, кривая *2* — масс-спектру образца при наличии в нем примесей, кривая *3* — масс-спектру примеси. Спектр стандартного образца в СБФ представлен на рис. 2, *а*, спектр этого же образца с примесью — на рис. 2, *б*.

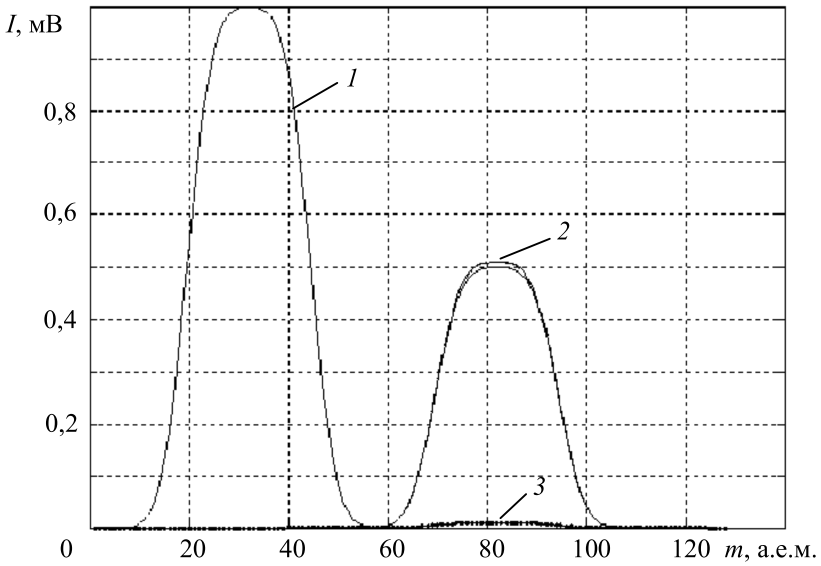

Рис. 1

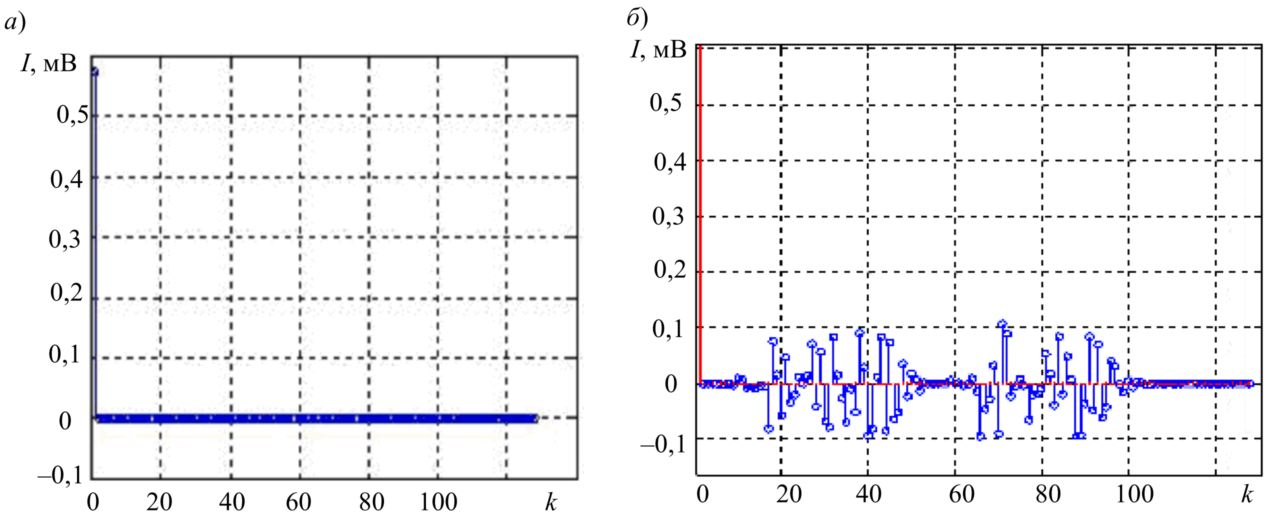

Рис. 2

Для масс-спектра стандартного образца в результате его разложения в СБФ получаем единственную линию (начальный компонент), например, так же как для бесконечной функции $y=\cos \omega t$ в традиционном ортогональном базисе Фурье.

Критерием для принятия решения о наличии примеси является сравнение норм и квадратов максимальных значений начальных компонент векторов, полученных в результате выполнения преобразования в СБФ соответственно стандартного образца и тестируемых сигналов. Вектор Y, полученный в результате преобразования исходного сигнала в СБФ, принадлежит классу масс-спектров, в которых отсутствуют примеси, если

$$\left.\begin{aligned}&\left\|Y-Y_{\text{эт}}\right\|\le\delta;\\&\left|Y(1)^2-Y_{\text{эт}}(1)^2\right|\le\varepsilon,\end{aligned}\right\}$$

где $Y_{\text{эт}}$ — вектор спектра „чистого“ сигнала в СБФ; $Y(1)$ — элемент вектора Y для спектрального коэффициента k=1.

В противном случае вектор Y принадлежит классу масс-спектров с примесями. Параметры δ и ε выбираются путем использования информации о функции, описывающей форму пика и величину СКО шума.

Заключение. Рассмотренные алгоритмы оценки наличия примесей в изотопных масс-спектрах трансурановых элементов на основе ортогональных преобразований в системе базисных функций имеют следующие преимущества:

— независимость от формы исходного сигнала;

— простота реализации;

— возможность автоматизированной юстировки масс-спектрометрического прибора: масс-спектр в правильно настроенном приборе должен совпадать со спектром стандартного образца, что можно объективно установить с помощью преобразованного в СБФ сигнала.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Солодовников А. И., Спиваковский А. М.* Основы теории и методы спектральной обработки информации: Учеб. пособие. Л.: Изд-во ЛГУ, 1986. 272 с.

2. *Абденнби Абенау.* Разработка и исследование метода и алгоритмов классификации сигналов на основе присбосабливаемых спектральных ортогональных преобразований: Автореф. дис. … канд. техн. наук. СПб.: СПбГЭТУ, 2005.

3. *Неймарк Ю. И., Басин Ю. Г.* Алгоритмы приспособленного базиса в задачах распознавания образов // Изв. АН СССР. Сер. Техн. кибернетика. 1970. № 2. С. 145—161.

4. *Ахмед Н. Д., Рао К. Р.* Ортогональные преобразования при обработке цифровых сигналов. М.: Связь, 1980. 248 с.

5. *Солодовников А. И.* Синтез полных ортонормированных функций, имеющих алгоритм быстрого преобразования // Вопросы теории систем автоматического управления: межвуз. сб. Л.: Изд-во ЛГУ, 1978. Вып. 4. С. 94—105.

6. *Манойлов В. В.* Развитие методов обработки информации в масс-спектрометрии для изотопного и элементного анализа: Автореф. дис. … д-ра техн. наук. СПб.: ИАП, 2008.

Сведения об авторах

Владимир Владимирович Манойлов — д-р техн. наук, доцент; Санкт-Петербургский государственный университет информационных технологий, механики и оптики, кафедра нанотехнологий и материаловедения; E-mail: manoilov_vv@mail.ru

Алексей Иванович Солодовников — канд. техн. наук, профессор; Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет „ЛЭТИ“, кафедра автоматики и процессов управления

Игорь Вячеславович Заруцкий — канд. техн. наук; Учреждение РАН Институт аналитического приборостроения, Санкт-Петербург; E-mail: IgorZV@yandex.ru

Рекомендована кафедрой
нанотехнологий и материаловедения СПбГУ ИТМО

Поступила в редакцию
20.05.08 г.