

Особенности синтеза образов сигнала спада свободной индукции ядерного магнитного резонанса для их распознавания нейронной сетью в интеллектуальных устройствах типа «электронный язык»

Е. М. Лапшенков¹, В. П. Кулагин², В. Я. Волков³

Московский технологический университет (МИРЭА)

¹elapshenkov@mail.ru, ²kulagin@mirea.ru, ³volkovobolensk@mail.ru

Аннотация. Работа посвящена проблематике построения интеллектуального устройства типа «электронный язык» для анализа химического состава объектов на основе распознавания сигналов ядерного магнитного резонанса (ЯМР) с использованием искусственных нейронных сетей. Конкретно рассмотрены особенности представления образов сигнала спада свободной индукции (ССИ) от низкополевых ЯМР-датчиков для их распознавания «широкими нейронными сетями». Проанализирована информация, содержащаяся в образах сигнала ССИ, предложена методика выделения «зон интереса» в образах и исключения избыточных данных. Указанная методика позволила сократить количество данных, описывающих образ сигнала ССИ, в 3 – 4 раза, при этом вносимая погрешность сравнима с уровнем шума стандартного низкополевого ЯМР-датчика.

Ключевые слова: распознавание химического состава объектов; электронный язык; ядерный магнитный резонанс; искусственная нейронная сеть

I. ВВЕДЕНИЕ

Под «электронным языком» обычно понимают портативное электронное устройство, способное определять химический состав жидких и твердых объектов [1]. Область применения таких устройств весьма широка, она включает такие сферы, как анализ состава пищевых продуктов [2], углеводородного сырья и продуктов [3], контроль качества фармацевтических препаратов [4] и выявление наличия пестицидов в почве [5]. Обычно в качестве средства получения информации о составе объекта в таких устройствах используются вольтамперометрические датчики, хеморезисторы, датчики на основе ионоселективных полевых транзисторов [6]. Их особенностью является наличие обязательного контакта с анализируемым объектом и их использование для анализа твердых объектов крайне затруднено. Альтернативным средством получения информации о составе объекта являются датчики на основе ЯМР, лишённые указанного недостатка при анализе твердых объектов. Отметим, что в прежних работах по тематике «электронный язык» методы на

основе ЯМР признавались малопригодными из-за высокой стоимости и больших габаритных размеров конструкции датчика и сложности его обслуживания, но современный уровень развития низкополевых ЯМР-датчиков по большей части лишён указанных недостатков [7].

Анализ сигналов и распознавание состава объектов также может быть выполнен несколькими методами. В частности для этих целей могут быть использованы: метод главных компонентов, кластерный анализ, различные регрессионные методы [8]. Особый интерес представляет использование искусственных нейронных сетей, позволяющих «обучать» устройство для распознавание новых химических составов («вкусов») в процессе эксплуатации по эталонным образцам, не имея априорной информации о характере сигнала ЯМР от них. Этот факт делает устройство по настоящему интеллектуальным.

Для организации распознавания состава объектов искусственной нейронной сетью требуется формировать (синтезировать) образы сигналов, получаемых от ЯМР-датчиков. От портативных низкополевых ЯМР-датчиков обычно регистрируют два вида сигналов: сигнал спада свободной индукции (ССИ) и сигнал получаемый из серии спиновых эхо, который служит для формирования кривой спин-спиновой релаксации [9]. Первый вид сигнала в условиях ЯМР низкого разрешения используется для анализа твердых кристаллических и аморфных объектов, так как они имеют короткие времена спин-спиновой релаксации, меньше чем время спада сигнала из-за потери фазовой когерентности, вызванной неоднородностью магнитного поля. Именно оптимальному представлению образа ССИ для распознавания искусственной нейронной сетью в устройстве типа «электронный язык» посвящена настоящая работа.

II. ЗАДАЧИ И ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ ОБОСНОВАНИЕ

A. Особенности регистрации ССИ

Классическая система для регистрации сигналов ЯМР (рис. 1) состоит из передатчика, формирующего

радиочастотные импульсы для создания переменного магнитного поля H_1 в катушке датчика с частотой Ларморовской прецессии ω_L , которая зависит от напряжённости постоянного магнитного поля H_0 . Радиочастотный импульс стимулирует вращение вектора макроскопической намагниченности M , сигнал от которого принимается приёмником с помощью той же катушки. Приёмник его оцифровывает и передаёт для формирования образа сигнала.

В случае регистрации ССИ подаётся один радиочастотный импульс (рис. 2), имеющий длительность и амплитуду, позволяющие отклонить вращающийся вектор M на 90° относительно H_0 . Такой импульс имеет название 90-градусный и он обеспечивает наибольшую амплитуду регистрируемого сигнала ЯМР после своего окончания. Регистрация сигнала ССИ ведётся с достаточно небольшим временем дискретизации, так для частоты ω_L равной 20 МГц время дискретизации обычно выбирают 0,5 мкс. Также отметим наличие так называемого «мёртвого времени», то есть времени после окончания импульса в течение которого регистрация не ведётся из-за перегрузки входа приёмника, вызванной приёмом передаваемого импульса, имеющего большую амплитуду.

В. Постановка задачи

Время дискретизации при регистрации ССИ может быть 0,5 мкс и меньше, а длительность регистрации у низкочастотных датчиков ЯМР может составлять до 2 мс и более. По этой причине при регистрации может получиться значительный объём данных, несколько тысяч отсчётов. В случае распознавания образов с использованием искусственной нейронной сети большой объём данных в распознаваемом образе приводит к увеличению количества входов нейронной сети, что увеличивает потребность в вычислительных ресурсах при её функционировании и обучении. Этот факт более критичен для глубоких нейронных сетей типа сети Галушкина–Хинтона, но он имеет место и при использовании для распознавания сигнала «широких нейронных сетей» [10]. Однако в измерительных устройствах обычно используются маломощные процессоры и микроконтроллеры. Таким образом, обработка информации в реальном масштабе времени на месте её получения невозможна, но с другой стороны, обращение к удалённым вычислительным мощностям ведёт как к высокому потреблению энергии, так и к потере данных, что в конечном итоге приводит к потере точности измерений. Стоит отметить, что исследования в США, проведенные под эгидой организации DARPA, показали, что происходит потеря непозволительно большой части информации из-за невозможности своевременно обработать измерительные данные во всей полноте [11].

В итоге основной задачей работы является синтез образа сигнала ССИ таким образом, чтобы достичь минимального объёма данных при минимальной потере информации о составе анализируемого объекта.

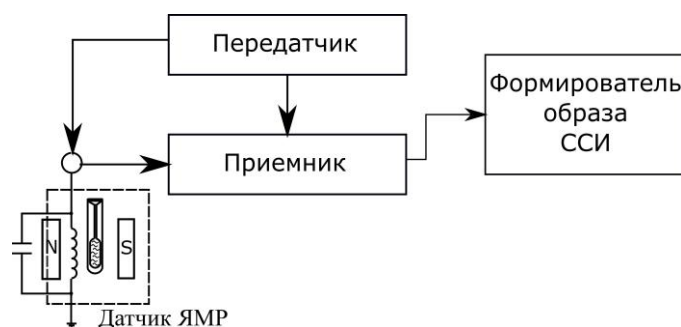


Рис. 1. Измерительная система на основе ЯМР для регистрации ССИ

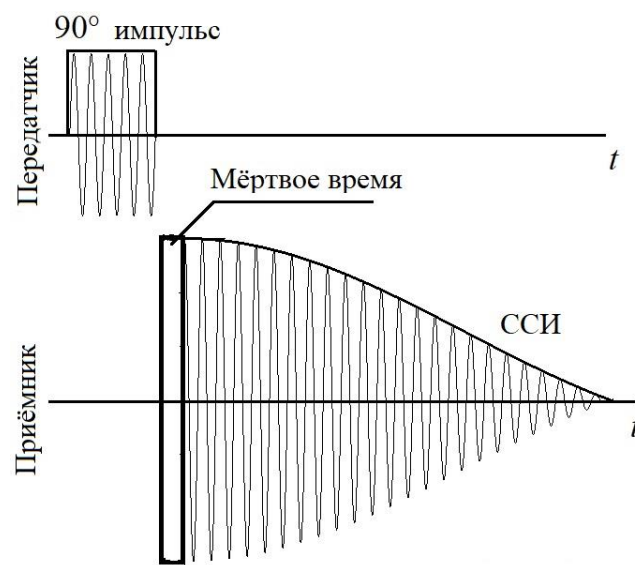


Рис. 2. Регистрация ССИ

С. Математическое обоснование оптимизации образа ССИ

Уменьшение количества данных, описывающих сигналы ЯМР, можно достичь, используя нерегулярное кодирование [12, 13]. Но эти методы актуальны, когда сигнал описывается достаточно простой математической зависимостью, например, монотонно убывающей экспоненциальной кривой. Однако для сигнала ССИ от гетерогенных объектов это не так.

Для гетерогенных анализируемых объектов, содержащих вещества в твёрдой и жидкой фазах ССИ выражается формулой (1) [14, 15].

$$M(t) = (\sum M_s(t) + \sum M_{sa}(t) + \sum M_l(t)) \times e^{-\left(\frac{t}{T2^*}\right)^2}, \quad (1)$$

где $M_s(t)$ – сигналы от кристаллических составляющих с внутримолекулярным вкладом во второй магнитный момент M_2 сигнала ЯМР (выражения (2)), M_{sa} – сигналы от твёрдых аморфных составляющих (выражения (3)), $M_l(t)$ – сигналы от жидких составляющих (выражение (4)), $T2^*$ – постоянная времени спада сигнала, вызванного потерей

когерентности из-за неоднородности постоянного магнитного поля, t – время после завершения 90° импульса.

$$M_s(t) = M_s(0) \times e^{-\left(\frac{t}{T2_s}\right)^2} \times \frac{\sin(b \times t)}{b \times t} \quad (2)$$

$$M_{sa}(t) = M_{sa}(0) \times e^{-\left(\frac{t}{T2_{sa}}\right)^2}, \quad (3)$$

$$M_l(t) = M_l(0) \times e^{-\frac{t}{T2_l}}, \quad (4)$$

где $M_s(0)$, $M_{sa}(0)$, $M_l(0)$ – значение начальных амплитуд, $T2_s$, $T2_{sa}$, $T2_l$ – значение времен релаксации для твёрдых кристаллических, аморфных и жидких компонентов соответственно, b – коэффициент, характеризующий периодичность кристаллических структур. Форма суммарной кривой ССИ и входящих составляющих для твёрдых кристаллических, аморфных и жидких компонентов показана на рис. 3.

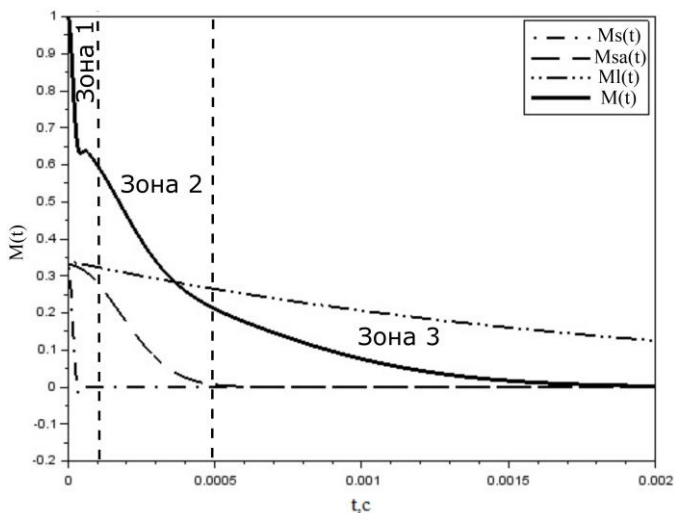


Рис. 3. Три «зоны интереса» ССИ в зависимости от агрегатного состояния компонентов

В образе данной кривой можно выделить три «зоны интереса». Первая зона соответствует кристаллическим компонентам и характеризуется быстрым спадом сигнала. Вторая зона соответствует аморфным органическим веществам и характеризуется более медленным спадом сигнала. Так как в этой зоне перепад между двумя отсчётами с шагом 0,5 мкс может быть ниже уровня шума измерительной системы (датчика ЯМР), допускается увеличивать шаг между отсчётами и кодировать образ с меньшим количеством данных без внесения дополнительной погрешности. Третья зона соответствует жидким компонентам, которые имеют достаточно больше время спин-спиновой релаксации $T2$ и достаточно медленный спад ССИ. При этом в третьей зоне доминирует составляющая спада, вызванная неоднородностью магнитного поля, характеризуемая временем $T2^*$. Таким образом в третьей зоне спад между несколькими соседними отсчётами может быть в разы

ниже уровня шума, и достаточно большое количество отсчётов, полученных с шагом 0,5 мкс могут быть исключены.

III. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты получены методами компьютерного математического моделирования в среде SciLab. Длительности зон интереса выбраны исходя из справочных данных о временах релаксации твёрдых кристаллических, аморфных и жидких органических веществ [16]. В ходе выбора шага между отсчётами в каждой «зоне интереса» образа ССИ опирались на значения среднеквадратичного и максимального отклонений между исходным образом и образом, возникающим при увеличении шага между отсчётами кратно 0,5 мкс. В результате для первой зоны шаг предложено оставить 0,5 мкс, для второй зоны увеличить до 1 мкс и тем самым исключить половину отсчётов. В третьей зоне предложено шаг между отсчётами увеличить до 2,5 мкс и тем самым исключить 80% отсчётов. Возникающие при этом среднеквадратичное и максимальное отклонение в зонах 2 и 3 сведены в таблицу. Постоянная времени спада из-за неоднородности поля принята $T2^* = 1$ мс. Моделирование проводилось для каждой зоны при условии доминирования компонента соответствующего ей класса (твёрдый, аморфный, жидкий) с минимальным и максимальным временем спин-спиновой релаксации $T2$.

ТАБЛИЦА I МАКСИМАЛЬНЫЕ И СРЕДНЕКВАДРАТИЧНЫЕ ОТКЛОНЕНИЯ В ЗОНАХ 2 И 3 ПРИ УВЕЛИЧЕНИИ ИНТЕРВАЛА (ШАГА) МЕЖДУ ОТСЧЁТАМИ

Зона	$T2, 10^{-6} \text{ с}$	Отклонение полученного образа от исходной кривой	
		Максимальное	Среднеквадратичное
2	45	0,0023	0,0002
	100	0,0043	0,001
3	400	0,0016	0,0003
	80000	0,0017	0,0003

Таким образом, зафиксированное наибольшее максимальное отклонение 0,0043 соотносится с показателем сигнал/шум около 230. Отметим, что большинство производимых промышленно низкочастотных датчиков ЯМР обеспечивают отношение сигнал/шум не более 200. То есть предложенный подход позволяет уменьшить количество данных во второй зоне образа ССИ в два раза, а в третьей в 5 раз с внесением искажений, не превышающих уровня шума измерительной системы.

IV. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложен подход, позволяющий сократить количество обрабатываемых данных, основанный на выделении трёх зон интереса в образе сигнала ССИ, предназначенном для его распознавания искусственной нейронной сетью в интеллектуальном устройстве типа «электронный язык». Если в первой «зоне интереса»

перепад практически всегда превышает уровень шума датчика ЯМР, то в зонах 2 и 3 перепад сигнала между соседними отсчётами может быть ниже уровня шума, что позволяет удалить часть отсчётов, увеличив интервал между соседними отсчётами с вносимым искажением на уровне шума. В рассмотренном классическом случае, когда исходный интервал регистрации сигнала ССИ 0,5 мкс и длительность регистрации 2 мс при отношении сигнал/шум измерительной системы 200, удалось увеличить интервал в зоне 2 до 1 мкс, а в зоне 3 до 2,5 мкс. То есть количество отсчётов всего образа сократилось с 4000 до 1147 (почти в 4 раза).

Также необходимо отметить, что предложенная детерминация образа на «зоны интереса» может быть основой для формирования трёх образов, отвечающих за разные классы компонентов в составе гетерогенного распознаваемого объекта. Эти образы могут быть распознаваемы разными нейронными сетями, каждая из которых настроена на свой вид агрегатного состояния вещества.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Shimizu F.M., Todão F.R., Gobbi A.L., Garcia C.D., Lima R.S. Functionalization-Free Microfluidic Electronic Tongue Based on a Single Response // *ACS Sensors*. 2017. Т. 2 вып. 7. С.1027-1034.
- [2] Diako C., Vixie B., Weller K.M., Dycus D.A., Ross C.F. Determination of 4- ethylcatechol in a Merlot wine using sensory evaluation and the electronic tongue // *International Journal of Food Science and Technology*. 2017. Т. 52, вып. 11. С. 2489-2496.
- [3] Сидельников А.В., Бикмеев Д.М., Кудашева Ф.Х., Майстренко В.Н. Вольтамперометрическая идентификация моторных масел с использованием трубчатых электродов // *Вестник Башкирского университета*. 2012. Т. 17. №3. С. 1258-1261.
- [4] Зильберг Р.А., Сидельников А.В., Яркаяева Ю.А., Кабирова Л.Р., Майстренко В.Н. Идентификация лекарственных средств на основе биспролола с использованием вольтамперометрического «электронного языка» // *Вестник Башкирского университета*. 2017. Т. 22. №2. С. 356-363.
- [5] Facure M.H.M., Mercante L.A., Mattoso L.H.C., Correa D.S. Detection of trace levels of organophosphate pesticides using an electronic tongue based on graphene hybrid nanocomposites // *Talanta*. 2017. Т. 167. С. 59-66.
- [6] Genua M. Combinatorial surface-based electronic tongue development: Analytical applications and conception of 2D and 3D biomimetic surfaces: PhD Thesis / Grenoble: Université de Grenoble, 2013. 183c.
- [7] Zaleskiy S.S., Danieli E., Blümich B., Ananikov V.P. Miniaturization of NMR Systems: Desktop Spectrometers, Microcoil Spectroscopy, and “NMR on a Chip” for Chemistry, Biochemistry, and Industry // *Chemical Reviews*. 2014. Т. 114. С. 5641-5694.
- [8] Electronic noses and tongues in food science / под. ред. M.L.R. Méndez. London: Academic Press is an imprint of Elsevier, 2016. 316 c.
- [9] Блюмич Б. Основы ЯМР. Для учёных и инженеров. М.: Техносфера, 2011. 256 с.
- [10] Kulagin V.P., Ivanov A.I., Kuznetsov Yu.M., Chulkova G.M. Multidimensional mutual ordering of patterns using a set of pre-trained artificial neural networks // *Journal of Physics:Conference Series (JPCS)*. 2017. Т. 803, С. 012083.
- [11] Power Efficiency Revolution for Embedded Computing Technologies (PERFECT) (2017). <http://www.darpa.mil/program/power-efficiency-revolution-for-embedded-computing-technologies> (доступ: 25.12.17)
- [12] Linnet T.E., Teilmann K. Non-uniform sampling of NMR relaxation data // *J Biomol NMR*. 2016. Т. 64 С. 165-173.
- [13] Mayzel M., Rosenlöw J., Isaksson L., Orekhov V.Y., Time-resolved multidimensional NMR with non-uniform sampling // *J Biomol NMR*. 2014. Т. 58, вып. 2. С. 129-139.
- [14] Schäler K. Low-field NMR studies of structure and dynamics in semicrystalline polymers: Dissertation / Halle: Martin-Luther-Universität, 2012. 192 p.
- [15] Волков В.Я., Сахаров Б.В., Клейменов М.А., Вихарев Ю.А., Бурашев В.В., Шабалин П.А. ЯМР релаксометр-анализатор «Протон-20М». Часть 1. Количественный анализ без f⁻ фактора // *Приборы*. 2012. №12. С. 7-13.
- [16] Волков В.Я., Сахаров Б.В., Хасанова Н.М. SARA-ЯМР метод группового анализа нефтей *IN SITU*. Материалы научно-практической конференции: Инновации в разведке и в разработке нефтяных и газовых месторождений: – Russia, Kazan: «Slovo», 2017, с. 97-100.