

УТВЕРЖДАЮ:
Директор ИАиЭ СО РАН,
чл.-корр. РАН
Бабин Сергей Алексеевич
«21» июня 2024 г.



ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института автоматике и электрометрии Сибирского отделения Российской академии наук (ИАиЭ СО РАН)

Диссертация «Методы обработки линейчатых спектров с малым количеством отсчётов на спектральную линию» выполнена в лаборатории 05 «Оптических информационных систем» ИАиЭ СО РАН.

В 2012 году Ващенко П.В. окончил Физический факультет Новосибирского государственного университета (НГУ), кафедра «Квантовая оптика». В 2016 году окончил аспирантуру ИАиЭ по специальности 05.11.07 – «Оптические и оптико-электронные приборы и комплексы». Начиная с 2009, является сотрудником тематической группы 05-1.

Научный руководитель – доктор технических наук Лабусов Владимир Александрович, заведующий лабораторией 05 «Оптических информационных систем» ИАиЭ СО РАН.

Диссертация «Методы обработки линейчатых спектров с малым количеством отсчётов на спектральную линию» была рассмотрена на межлабораторном объединённом семинаре учебно-научного центра «Квантовая Оптика» и «Информационные технологии и системы» 20 июня 2024 года.

На семинаре присутствовали:

Шалагин Анатолий Михайлович, академик РАН, ИАиЭ СО РАН
Суровцев Николай Владимирович, чл.-корр. РАН, ИАиЭ СО РАН
Ильичев Леонид Вениаминович, д.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Каблуков Сергей Иванович, д.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Лабусов Владимир Александрович, д.т.н., ИАиЭ СО РАН
Резник Александр Львович, д.т.н., ИАиЭ СО РАН
Фрумин Леонид Лазаревич, д.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Донцова Екатерина Игоревна, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Евменова Екатерина Алексеевна, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Лобач Иван Александрович, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Николаев Назар Александрович, к.т.н., ИАиЭ СО РАН
Пугачев Алексей Маркович, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Бабин Сергей Александрович, м.н.с, ИАиЭ СО РАН
Болдова Светлана Сергеевна, инженер-исследователь, ИАиЭ СО РАН
Борисов Антон Валерьевич, ст. инженер-электроник, ИАиЭ СО РАН
Гаранин Виктор Геннадьевич, к.х.н., ООО «ВМК-Оптоэлектроника»
Григорьева Светлана Владимировна, инженер-программист, ИАиЭ СО РАН
Додонов Станислав Викторович, и.о. инженер-исследователь, ИАиЭ СО РАН
Коверзнев Даниил Александрович, и.о. инженер-исследователь, ИАиЭ СО РАН
Малиничев Михаил Евгеньевич, и.о. инженер-исследователь, ИАиЭ СО РАН
Пак Александр Сергеевич, инженер-электроник, ИАиЭ СО РАН

и другие сотрудники ИАиЭ СО РАН, всего 21 человек, в том числе 5 соавторов.

В обсуждении работы приняли участие академик РАН Шалагин Анатолий Михайлович, чл.-корр. РАН Суровцев Николай Владимирович, д.ф.-м.н. Ильичев Леонид Вениаминович, д.ф.-м.н. Каблуков Сергей Иванович, д.т.н. Резник Александр Львович и другие. Вопросы касались способа вычисления формы контура спектральной линии и функции для её аппроксимации, методов обработки спектров с малым количеством отсчетов, приходящихся на спектральную линию, а также способа вычисления спектрального фона в спектрах поглощения. Высказанные замечания касались используемых формулировок, а также высокого темпа речи и избыточных материалов в презентации.

По результатам рассмотрения диссертации «Методы обработки линейчатых спектров с малым количеством отсчётов на спектральную линию» принято следующее заключение:

Актуальность

В настоящее время методы атомно-эмиссионной и атомно-абсорбционной спектроскопии широко применяются для определения элементного состава веществ и материалов. В соответствующих оптических спектрометрах в качестве системы регистрации спектров широко используются многоэлементные детекторы излучения (линейные или матричные). Высокочувствительные линейные детекторы с быстродействием порядка 1000 спектров/с дали возможность развить способ сцинтилляционной атомно-эмиссионной спектроскопии, а также создать метод одновременной многоэлементной атомно-абсорбционной спектроскопии с источником излучения непрерывного спектра и электротермическим атомизатором. Это позволяет существенно улучшить метрологические характеристики представленных методов оптической спектроскопии, но увеличивает требования к способам обработки спектров с малым количеством отсчетов на спектральную линию.

Ввиду того, что процесс преобразования спектрометром оптического сигнала в аналитический является сложным и многоступенчатым, разработка новых методов обработки спектров требует создания компьютерной модели процесса регистрации атомно-эмиссионных и атомно-абсорбционных спектров с помощью многоэлементных детекторов излучения, где бы рассматривался каждый элемент процесса и его влияние на погрешность вычисления аналитического сигнала. Реализация такой модели с использованием современных инструментов программирования и компьютерной техники ускорит процесс разработки новых методов обработки спектров с целью повышения метрологических характеристик методов атомно-эмиссионной и атомно-абсорбционной спектроскопии.

В представленной работе для решения практических задач, связанных с улучшением метрологических характеристик результатов анализа, определению оптимальных параметров спектрального прибора, а также повышения производительности анализа были разработаны методы обработки спектров и вычисления аналитического сигнала.

Основная цель диссертационного исследования Ващенко П.В. сформулирована как разработка новых методов обработки атомно-эмиссионных и атомно-абсорбционных спектров при малом количестве отсчетов на спектральную линию, получаемых с использованием многоэлементных детекторов излучения, и вычисления аналитического сигнала для улучшения метрологических характеристик методов атомно-эмиссионной и атомно-абсорбционной спектроскопии (снижение пределов обнаружения, увеличение диапазона определения, повышение воспроизводимости и правильности определения), а также повышения производительности анализа. Для достижения этой цели были поставлены следующие задачи:

1. Провести обзор известных методов математической обработки атомно-эмиссионных и атомно-абсорбционных спектров, а также методов вычисления аналитического сигнала;
2. Разработать компьютерную модель процесса регистрации атомно-эмиссионных и атомно-абсорбционных спектров с использованием линейных детекторов излучения для оценки существующих и разрабатываемых методов обработки спектров и вычисления аналитического сигнала, а также определения оптимальных параметров спектрального прибора для решения аналитической задачи;
3. Разработать методы математической обработки последовательностей атомно-эмиссионных и атомно-абсорбционных спектров во времени, которые позволят автоматизировать процесс обнаружения спектральных линий и вычисления спектрального фона;
4. Разработать методы вычисления аналитического сигнала при асимметричном контуре спектральной линии, в том числе в случае самопоглощения, «зашкаливающих» отсчетов и спектральных наложений для улучшения метрологических характеристик результатов анализа. Все поставленные задачи ориентированы на спектры с малым количеством отсчетов, приходящихся на спектральную линию, что делает невозможным использование классических методов обработки спектров и вычисление аналитического сигнала.

Личное участие соискателя

В ходе выполнения работ Ващенко П.В. поставлена задача изучения процесса регистрации спектров с малым количеством отсчетов, приходящихся на спектральную линию с использованием линейных детекторов излучения. Для решения поставленной задачи была разработана компьютерная модель процесса регистрации, реализованная в виде программной библиотеки на языке Python, а также набор прикладных программ моделирования для проверки адекватности модели путем сравнения расчетных результатов с экспериментальными данными. Автором создан «цифровой двойник» атомно-абсорбционного спектрометра на основе компьютерной модели процесса регистрации спектров, что позволило определить причины нелинейности градуировочного графика и оценить оптимальное разрешение спектрального прибора с точки зрения метрологических характеристик результатов анализа. На основе предложенной компьютерной модели процесса регистрации спектров были разработаны методы их обработки и вычисления аналитического сигнала, которые были внедрены в программное обеспечение «Атом» при непосредственном участии автора.

При выполнении диссертационной работы Ващенко П.В. проявил себя квалифицированным научным сотрудником, способным самостоятельно решать задачи и проводить исследования на высоком научном уровне.

Новизна

В диссертации получены следующие основные научные результаты:

1. впервые предложена компьютерная модель процесса регистрации атомно-эмиссионных и атомно-абсорбционных спектров с учетом контура спектральной линии, аппаратной функции спектрального прибора и характеристик линейного детектора излучения;
2. впервые предложен метод обнаружения спектральных линий, основанный на теоретической оценке шума в зависимости от уровня выходного сигнала и параметров детектора (зарядовая емкость и шум чтения), что позволяет автоматизировать алгоритмы обработки спектров и вычисления аналитического сигнала;
3. предложен метод вычисления спектрального фона, основанный на аппроксимации спектра с применением алгоритма Савитского-Голая, который в отличие от

известных методов использует обратную связь, что позволяет автоматизировать процесс вычисления фона и аналитического сигнала в спектрах поглощения и, следовательно, повысить производительность анализа, а также улучшить метрологические характеристики результатов анализа;

4. предложен метод вычисления аналитического сигнала путем аппроксимации спектральной линии функцией псевдо-Фойгта, причем, в отличие от известных методов аппроксимации, определение параметров функции происходит с помощью итерационного алгоритма с использованием линий, зарегистрированных в окрестности аппроксимируемой линии, при условии того, что контур линии определяется аппаратной функцией спектрального прибора;
5. предложен метод снижения систематической погрешности вычисления интенсивности спектральной линии с малым количеством отсчетов, возникающей вследствие её дрейфа, путём линейной интерполяции и интегрирования в диапазоне, определённом по контуру спектральной линии.

Новизна результатов подтверждена приоритетными научными публикациями и патентом РФ № 2 702 854.

Степень достоверности результатов

Достоверность компьютерной модели процесса регистрации спектров была экспериментально проверена на множестве аналитических задач как атомно-эмиссионной, так и атомно-абсорбционной спектрометрии. Разработанные с её помощью методы математической обработки спектров и вычисления аналитического сигнала прошли многолетнюю экспериментальную проверку в программном обеспечении «Атом», входящем в состав многоканальных анализаторов эмиссионных спектров МАЭС и спектрометров оптических Гранд. Подтверждено соответствие характеристик этих приборов требованиям Росстандарта при их включении в Государственный реестр средств измерений РФ, а также положительным опытом их применения в промышленности, обеспечившим получение результатов атомно-эмиссионного и атомно-абсорбционного анализа на уровне современных отечественных и международных стандартов.

Практическая значимость

Результаты диссертации имеют практическую значимость. На основе разработанной компьютерной модели процесса регистрации атомно-эмиссионных и атомно-абсорбционных спектров создан набор программ по математическому моделированию, которые позволяют оценить погрешность методов обработки спектров и вычисления аналитического сигнала, а также определить оптимальные параметры спектрального прибора для решения поставленной аналитической задачи.

Методы обработки спектров и вычисления аналитического сигнала, разработанные при выполнении работы, внедрены в программное обеспечение «Атом», входящее в состав многоканальных анализаторов эмиссионных спектров МАЭС и спектрометров оптических Гранд, зарегистрированных в Государственном реестре средств измерений РФ. Они позволили улучшить метрологические характеристики методов атомно-эмиссионной и атомно-абсорбционной спектрометрии (снизить пределы обнаружения, увеличить диапазон определения, повысить воспроизводимость и правильность определения), а также повысить их производительность.

Соответствие специальности

Диссертационная работа соответствует специальности 2.2.6 «Оптические и оптико-электронные приборы и комплексы», так как тематика и методы исследования соответствуют паспорту специальности в части технических наук.

Полнота изложения материалов диссертации в работах, опубликованных соискателем

Результаты работ по теме диссертации были доложены на следующих конференциях и семинарах: XI-XVII Международных симпозиумах «Применение анализаторов МАЭС в промышленности» (Новосибирск, 2011-2021 г.г.); XVI Всероссийской конференции молодых ученых по математическому моделированию и информационным технологиям, (Красноярск, 2015 г.), II и III Всероссийской конференции по аналитической спектроскопии с международным участием, (Краснодар, 2015 и 2019 г.г.).

Результаты диссертационной работы достаточно подробно отражены в 11 опубликованных печатных работах в рецензируемых научных журналах, входящих в Перечень ВАК РФ, и 1 патенте РФ. Количество опубликованных печатных работ в журналах, соответствующих специальности 2.2.6 «Оптические и оптико-электронные приборы и комплексы», в полном объеме удовлетворяет требованиям ВАК РФ на соискание ученой степени кандидата наук:

1. Ващенко П.В., Лабусов В.А., Лихачев А.В. Восстановление распределения интенсивности излучения на поверхности многоэлементного твердотельного детектора // Заводская лаборатория. Диагностика материалов. 2012. Т. 78, № 1-II. С. 94-95
2. Панкратов С.В., Лабусов В.А., Неклюдов О.А., Ващенко П.В. Автоматическая градуировка спектрометров с анализаторами МАЭС по длинам волн (профилирование) // Заводская лаборатория. Диагностика материалов. 2015. Т. 81, № 1-II. С. 128-134.
3. Семёнов З.В., Лабусов В.А., Неклюдов О.А., Ващенко П.В. Алгоритм обработки последовательностей спектров для сцинтилляционного атомно-эмиссионного спектрального анализа // Заводская лаборатория. Диагностика материалов. 2015. Т. 81, № 1-II. С. 135-142.
4. Ващенко П.В., Болдова С.С., Лабусов В.А. Алгоритм обработки последовательностей атомно-абсорбционных спектров с непрерывным источником излучения // Заводская лаборатория. Диагностика материалов. 2015. Т. 81, № 1-II. С. 153-157.
5. Семёнов З.В., Ващенко П.В., Лабусов В.А., Неклюдов О.А., Болдова С.С. Алгоритм расчёта формы фона в последовательности атомно-абсорбционных спектров с непрерывным источником излучения // Заводская лаборатория. Диагностика материалов. 2017. Т. 83, № 1-II. С. 129-132.
6. Лабусов В.А., Болдова С.С., Селюнин Д.О., Скоробогатов Д.Н., Саушкин М.С., Зарубин И.А., Бокк Д.Н., Семенов З.В., Неклюдов О.А., Ващенко П.В. Атомно-абсорбционный спектрометр высокого разрешения для одновременного многоэлементного анализа // Аналитика и контроль. 2018. Т. 22, № 4. С. 451-457. <http://dx.doi.org/10.15826/analitika.2018.22.4.003>
7. V.A. Labusov, S.S. Boldova, D.O. Selyunin, Z.V. Semenov, P.V. Vashchenko, S.A. Babin «High-resolution continuum-source electrothermal atomic absorption spectrometer for simultaneous multi-element determination in the spectral range of 190–780 nm» // J. Anal. At. Spectrom., 2019, 34, 1005-1010. <https://doi.org/10.1039/c8ja00432c>
8. Ващенко П.В., Лабусов В.А., Гаранин В.Г., Борисов А.В. Расширение диапазона определяемых содержаний элементов за счет использования линий с самопоглощением // Заводская лаборатория. Диагностика материалов. 2019. Т. 85. № 1-2. С. 112-116. <https://doi.org/10.26896/1028-6861-2019-85-1-II-112-116>
9. Ващенко П.В., Лабусов В.А. Измерение интенсивности спектральных линий по дискретным отсчетам линейчатого спектра // Аналитика и контроль. 2021. Т. 25, № 4. С. 350-357. <http://dx.doi.org/10.15826/analitika.2021.25.4.012>
10. Ващенко П.В., Лабусов В.А., Шиманский Р.В. Апертурные характеристики линеек фотодетекторов БЛПП-2000 и БЛПП-4000 // «Заводская лаборатория. Диагностика

материалов». 2022. Том 88. № 1. ч. II. С. 22-26. DOI: <https://doi.org/10.26896/1028-6861-2022-88-1-II-22-26>

11. Ващенко П.В., Болдова С.С., Колосов Н.А., Лабусов В.А. Моделирование атомно-абсорбционного спектрометра с источником излучения непрерывного спектра // Аналитика и контроль. 2023. Т. 27, № 3. С. 168-179. DOI: 10.15826/analitika.2023.27.3.005
12. Пат. 2702854 Рос. Федерация. Способ определения содержания элементов и форм их присутствия в дисперсной пробе и её гранулометрического состава / П.В. Ващенко, В.Г. Гаранин, А.А. Дзюба, В.А. Лабусов, О.В. Пелипасов; № 2019108939; заявл. 27.03.2019; опубл. 11.10.2019 Бюл. № 29. 19 с.

Диссертация «Методы обработки линейчатых спектров с малым количеством отсчётов на спектральную линию» Ващенко Павла Владимировича рекомендуется к защите на соискание учёной степени кандидата технических наук по специальности 2.2.6 «Оптические и оптико-электронные приборы и комплексы».

Председатель семинара
Академик РАН



Шалагин А.М.