

Optimizacija merilnih tuljav pri jedrski kvadrupolni resonanci

Vojko Jazbinšek

Inštitut za matematiko, fiziko in mehaniko, Ljubljana

E-pošta: vojko.jazbinsek@imfm.si

Optimization of detection coils in nuclear quadrupole resonance

Nuclear quadrupole resonance is a radiofrequency (RF) spectroscopy method, where like in the nuclear magnetic resonance method transitions between atomic energy levels are measured. The intensity of measured signal is proportional to the total number of resonant nuclei, what allows the quantitative analysis of samples (the mass ratio of various crystalline phases, the degree of hydration, or the ratio of the crystalline and amorphous phases). The necessary condition for such quantitative analyses is approximately homogeneous amplitude of RF magnetic field that is applied in the sample area. In this paper, we study various types of cylindrical coils with uneven distances between turns, which are optimized in order to increase the portion of coil volume where the amplitude of RF exceeds either 95% or 99% of the maximum amplitude of RF field inside the coil.

1 Uvod

Jedrska kvadrupolna resonanca (JKR) je radiofrekvenčna (RF) spektroskopska metoda, kjer podobno kot pri jedrski magnetni resonanci (JMR) merimo prehode med energijskimi nivoji atomskih jeder v preiskovani snovi. Medtem ko pri JMR resonančno frekvenco določa predvsem interakcija z zunanjim magnetnim poljem, pri JKR resonanco določa interakcija med električnim kvadrupolnim momentom atomskega jedra in gradientom električnega polja bližnjih valenčnih elektronov, zato pri tej metodi niso potrebni veliki in dragi superprevodni magneti. Pri obeh metodah je intenziteta izmerjenega signala sorazmerna številu resonančnih atomskih jeder, kar omogoča kvantitativno analizo vzorcev (maso, razmerja različnih kristalnih faz, stopnjo hidratacije, ali pa razmerje med kristalno in amorfno fazo). Na King's College London so na primer potrdili [1], da lahko z JKR meritvami zanesljivo zaznajo vrsto in ugotovijo število tablet v originalno zaprti embalaži zdravila. Pogoj za takšno kvantitativno analizo vzorcev je približno homogeno RF polje na področju vzorca. V [1] so to dosegli s tuljavo pravokotnega profila z optimiziranimi neenakomernimi razdaljami med posameznimi ovoji.

V tem prispevku obravnavamo valjaste tuljave, pri katerih v prvem približku ovoje tuljav predpostavimo kot zaporedje krožnih zank, pri končnem izračunu pa v obliki

vijačnice, pri kateri se položaj ovoja zvezno spreminja s polarnim kotom. Pri tem smo optimizirali razdalje med ovoji tako, da smo dobili čim večji delež, kjer polje preseže 95% (η_{95}) ali 99% (η_{99}) maksimalne vrednosti RF polja znotraj tuljave.

2 Metode

2.1 Izračun magnetnega polja

V prvem približku sestavimo valjasto tuljavo iz vzporednih krožnih zank. Za izračun magnetnega polja postavimo zanko v središče xy ravnine (slika 1). Magnetno polje v točki $\vec{r} = (x, y, z)$ izračunamo z Biot-Savartovo enačbo [2]

$$\vec{H}(\vec{r}) = \frac{I}{4\pi} \int_0^{2\pi} \frac{\vec{t}' \times (\vec{r} - \vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} d\varphi' \quad (1)$$

Radialni vektor do tokovnega elementa je $\vec{r}' = (x', y', 0) = r_0(\cos \varphi', \sin \varphi', 0)$, kjer je r_0 radij zanke in polarni kot $\varphi' = \arctan(y'/x')$. Tangenta na zanko je $\vec{t}' = \partial \vec{r}' / \partial \varphi'$ in tokovni element vzdolž zanke $I \vec{t}' d\varphi'$. Rešitev zgornjega integrala v splošnem ni enostavna, razen za posebni primer, ko iščemo polje na osi z

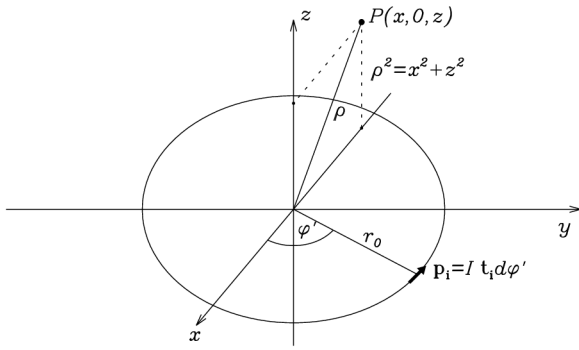
$$\vec{H}(\vec{r}) = \left(0, 0, \frac{I r_0^2}{2(z^2 + r_0^2)^{\frac{3}{2}}} \right). \quad (2)$$

Zaradi osne simetrije problema, je splošno rešitev boljše napisati v cilindričnem koordinatnem sistemu, kjer je H_φ komponenta enaka nič, radialna komponenta H_ρ in komponenta vzdolž osi H_z pa izrazimo s popolnima eliptičnima integraloma prvega in drugega reda [3].

V bolj realističnem modelu sestavimo tuljavo v obliki vijačnice in magnetno polje izračunamo z numerično integracijo enačbe (1). Vsak ovoj tuljave razdelimo na N_d elementov $\Delta\phi = 2\pi/N_d$, tokovni element vzdolž zanke $I \vec{t}' d\varphi$ nadomestimo s tokovnim dipolom $\vec{p}_i = I \vec{t}_i \Delta\varphi$ v točki $\vec{r}_i = r_0(\cos \varphi_i, \sin \varphi_i, 0)$, kjer sta $\varphi_i = (i-0.5)\Delta\varphi$ in $\vec{t}_i = r_0(-\sin \varphi_i, \cos \varphi_i, 0)$. Celotno polje dobimo z vsoto prispevkov vseh N_d dipolov

$$\vec{H}(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi} \sum_{i=1}^{N_d} \frac{\vec{p}_i \times (\vec{r} - \vec{r}_i)}{|\vec{r} - \vec{r}_i|^3} \quad (3)$$

Prvi približek valjaste tuljave so vzporedne krožne zanke, po katerih teče tok I . Tuljavo z radijem r_0 in



Slika 1: Krožna zanka

dolžino L sestavimo iz n ovojev, ki so med seboj oddaljeni $\Delta L = L/(n-1)$. Bolj realistični model so vijavnice, pri katerih se višina ovojev h , ki so naviti okoli valja z radijem r_0 linearno spreminja s polarnim kotom φ v cilindričnem koordinatnem sistemu z izhodiščem v središču tuljave z n ovoji in s polarno osjo z vzdolž tuljave:

$$z(\varphi) = \frac{L}{2\pi(n-1)}\varphi, \quad \varphi \in [-n\pi, n\pi] \quad (4)$$

kjer dolžino tuljave L pa določa razdalja med višinama zadnjega in prvega ovoja, ki ju določimo na sredini mejnih ovojev pri polarnih kotih $\pm(n-1)\pi$:

$$z(\pm(n-1)\pi) = \pm \frac{L}{2}. \quad (5)$$

Za krožne zanke izrazimo polarni kot s $\varphi = k\pi$, kjer $k = -(n-1) + 2i$, $i = 0, 1, 2, \dots, n-1$, in zapišemo (4) kot

$$z(k) = \frac{L}{2(n-1)}k, \quad k \in [-(n-1), n-1], \quad (6)$$

kjer velja $z(\pm(n-1)) = \pm \frac{L}{2}$. Če polarni kot izrazimo s $\varphi = u(n-1)\pi$, kjer je $u = k/(n-1)$, lahko oba zapisa (4) in (6) združimo v

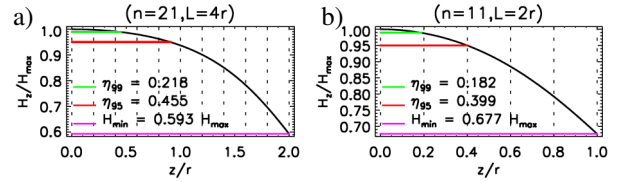
$$z(u) = \frac{L}{2}u, \quad u \in [-1, 1], \quad (7)$$

kjer je $z(\pm 1) = \pm \frac{L}{2}$

2.2 Optimizacija tuljav

Če pogledamo profil magnetnega polja vzdolž osi tuljave (slika 2), ki jo aproksimiramo z enakomerno razmaknjenimi krožnimi ovoji, vidimo, da je maksimalno polje na sredini tuljave, potem precej časa počasi pada, na koncu tuljave pa začne hitreje padati. Pri kvantitativnih meritvah želimo, da je čim večji del vzorca v približno enako velikem polju, saj nam le to omogoča iz velikosti signala oceniti količino vzorca. Sklepamo lahko, da bomo to dosegli z redčenjem ovojev sredi tuljave in zgoščevanjem ovojev proti koncu tuljave. Optimalno rešitev poiščemo z nastavkom:

$$z(u) = \frac{L}{2} [\lambda u + g(u)], \quad (8)$$



Slika 2: Magnetno polje vzdolž tuljave ($z \geq 0$) z enakomerno razmaknjenimi ovoji, ki so označeni s prekinjenimi črtami za tuljavi z n ovoji in dolžino L : a) ($n=21, L=4r$) in b) ($n=11, L=2r$). H_{\max} in H_{\min} sta maksimalno in minimalno polje, η_{95} je delež polja nad $0.95H_{\max}$ in η_{99} delež nad $0.99H_{\max}$.

kjer je $g(0) = 0$, $g(-u) = -g(u)$ in $g(\pm 1) = \pm(1-\lambda)$. Vpeljali smo parameter λ , s katerim spremenimo nagib linearnega dela in dodatni popravek $g(u)$. Možnosti λ :

- če je $\lambda = 1$, potem je ali $g(u) \equiv 0$ (ekvidistančna rešitev) ali samo $g(0) = g(\pm 1) = 0$,
- če je $\lambda = 0$, potem je $z(u) = g(u)$,
- drugače je popravek $g(u)$ naložen na linearni del z nagibom $\lambda \frac{L}{2}$.

Funkcija $g(u)$, ki jo iščemo je liha (simetrična glede na koordinatno izhodišče), tako da lahko pri iskanju primer-nih funkcij iščemo le na pozitivnem intervalu $u \in [0, 1]$, saj je $g(-u) = -g(u)$. Poleg tega mora višina ovoja ves čas naraščati ($\frac{dz}{du} \geq 0$), tako da je maksimalna višina dosežena na koncu pri $u = 1$, oziroma pri $k = n-1$ ali polarnem kotu $\varphi = (n-1)\pi$. V nadaljevanju bom prikazal rezultate za nekaj možnih izbir funkcij $g(u)$.

3 Rezultati za različne $g(u)$

3.1 Potenčna funkcija $g(u) = au^p$

Najpreprostejši približek za $g(u)$ je potenčna funkcija

$$z(u) = \frac{L}{2} [\lambda u + au^p]. \quad (9)$$

Ker je $z(1) = \frac{L}{2}$, velja $a = (1-\lambda)$, iz česar sledi

$$z(u) = \frac{L}{2} [\lambda u + (1-\lambda)u^p] \quad (10)$$

Za posebna primera, ko sta ali $\lambda = 1$ ali $p = 1$, dobimo rešitev (7) z med seboj enako oddaljenimi ovoji. Za izbrano število ovojev n in dolžino tuljave L , je spreminjanje razdalje med ovoji odvisno le od parametrov λ in p , ki določata nagib v središču tuljave in potenco. Zaradi dodatnega pogoja, ($\frac{dz}{du} \geq 0$), velja naslednja omejitev

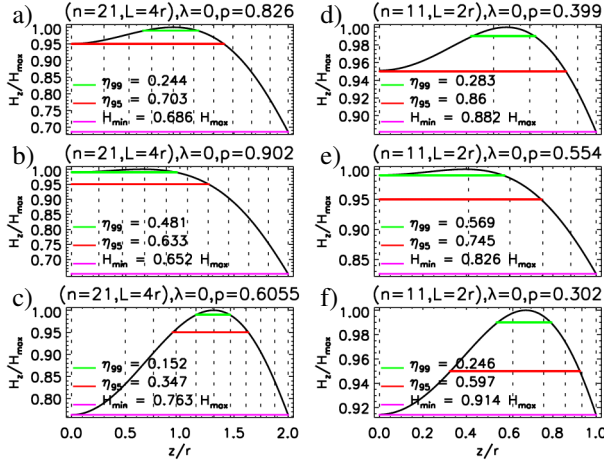
$$\lambda + p(1-\lambda)u^{p-1} \geq 0 \quad (11)$$

iz česar dobimo naslednjo zvezo

$$\lambda \geq -\frac{pu^{p-1}}{pu^{p-1} - 1}. \quad (12)$$

Na koncu tuljave pri $u = 1$ dobimo

$$\lambda + p(1-\lambda) \geq 0 \implies p \geq \frac{\lambda}{\lambda-1}, \quad \lambda \geq \frac{p}{p-1}. \quad (13)$$



Slika 3: Rezultati za potenčno funkcijo (10) pri $\lambda=0$, za tuljavo ($n=21$, $L=4r$): a) $p=0.902$, b) $p=0.826$ in c) $p=0.6055$ ter za tuljavo ($n=11$, $L=2r$): d) $p=0.554$, e) $p=0.3996$ in f) $p=0.302$.

Za $\lambda=0$ velja $p > 0$, saj $p=0$ v tem modelu nima smisla. Ker pričakujemo, da se pri optimalni rešitvi oboji gostijo proti robu tuljave, je ena od možnosti, da postavimo $\frac{dz}{du}(u=1)=0$, kar pomeni, da funkcija $z(u)$ na robu doseže maksimum. V tem primeru v (13) velja enačaj in je dovolj, da optimiziramo le enega od parametrov λ in p .

Na sliki 3 so prikazani rezultati, ko postavimo $\lambda=0$ in optimiziramo potenco p . Pri tem lahko poiščemo rešitvi, kjer imamo največji η_{95} in η_{99} , to sta deleža prostornine tuljave, kjer je polje nad $0.95H_{\max}$ (sliki 3a,d) in nad $0.99H_{\max}$ (sliki 3b,e) ter rešitev, kjer je minimalno polje H_{\min} največje (sliki 3c,f). Tako za vsak pogoj dobimo različne rešitve, ki so odvisne tudi števila ovojev in razmerja med dolžino in polmerom tuljave.

Če poleg potence p v (10) spreminjamo še nagib linearnega dela ($\lambda \neq 0$), lahko še dodatno povečamo deleža η_{95} (slika 4a) in η_{99} (slika 4b).

3.2 Vsota dveh potenc $g(u) = au^{p_1} + bu^{p_2}$

Če je $g(u)$ vsota dveh potenčnih funkcij

$$z(u) = \frac{L}{2} [\lambda u + au^{p_1} + bu^{p_2}], \quad (14)$$

zaradi $z(1) = \frac{L}{2}$ velja naslednja zveza

$$a + b = (1 - \lambda). \quad (15)$$

Ker imamo zdaj več prostih parametrov, takoj predpostavimo, da je odvod na robu enak nič ($\frac{dz}{du}(1) = 0$), dobimo

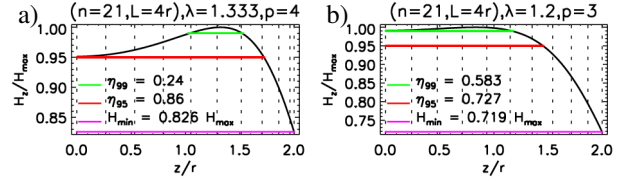
$$\lambda + ap_1 + bp_2 = 0 \implies ap_1 + bp_2 = -\lambda. \quad (16)$$

Iz enačb (15) in (16) izrazimo parametra a in b

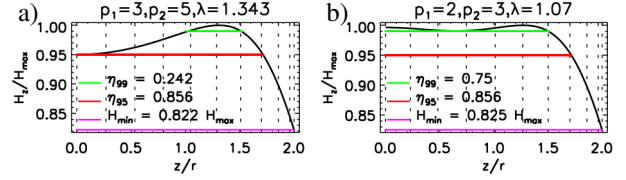
$$a = \frac{\lambda - p_2(\lambda - 1)}{(p_2 - p_1)}, \quad b = \frac{p_1(\lambda - 1) - \lambda}{(p_2 - p_1)}, \quad (17)$$

iz česar sledi

$$z(u) = \frac{L}{2} \left[\lambda u + \frac{\lambda - p_2(\lambda - 1)}{(p_2 - p_1)} u^{p_1} + \frac{p_1(\lambda - 1) - \lambda}{(p_2 - p_1)} u^{p_2} \right]. \quad (18)$$



Slika 4: Rezultati za potenčno funkcijo (10) za tuljavo ($n=21$, $L=4r$), ko je $\lambda \neq 0$: a) $\lambda=1.333$, $p=4$ in b) $\lambda=1.2$, $p=3$.



Slika 5: Rezultati za vsoto dveh potenc (18) za tuljavo ($n=21$, $L=4r$): a) $p_1=3$, $p_2=5$, $\lambda=1.343$ in b) $p_1=2$, $p_2=3$, $\lambda=1.07$.

V tem modelu moramo optimizirati le parameter λ , če v naprej določimo p_1 in p_2 . Za tuljavo ($n=21$, $L=4r$) tako dobimo $\eta_{95}=0.856$ (slika 5a) in $\eta_{99}=0.75$ (slika 5b). V primeru, ko je $\frac{dz}{du}(1) > 0$, moramo optimizirati še enega od parametrov a ali b , medtem ko drugega določimo iz (15), na primer $b = 1 - \lambda - a$:

$$z(u) = \frac{L}{2} [\lambda u + au^{p_1} + (1 - \lambda - a)u^{p_2}]. \quad (19)$$

3.3 Sinusna funkcija $g(u) = a_s \sin(\alpha u)$

Sinus je kot liha funkcija primeren kandidat za $g(u)$

$$z(u) = \frac{L}{2} [\lambda u + a_s \sin(\alpha u)], \quad (20)$$

kjer zaradi $z(1) = \frac{L}{2}$ velja $a_s = \frac{1-\lambda}{\sin \alpha}$. Ker je odvod sinusa pri $u = 0$ različen od nič, v tem modelu odvod pri $u = 0$ ni enak $\lambda \frac{L}{2}$, zato vpeljem še en parameter λ_0 , ki je določen z odvodom v središču tuljave $\frac{dz}{du}(0) = \lambda_0 \frac{L}{2}$ in ga lahko izrazimo s parametroma λ in α

$$\lambda = \frac{\alpha - \lambda_0 \sin \alpha}{\alpha - \sin \alpha} \implies \lambda_0 = \lambda + (1 - \lambda) \frac{\alpha}{\sin \alpha}. \quad (21)$$

Zaradi $\frac{dz}{du} \geq 0$ velja še naslednja omejitev

$$\alpha \frac{\cos \alpha}{\sin \alpha} \geq \frac{\lambda}{\lambda - 1}. \quad (22)$$

V primeru, ko je $\lambda=1$, sta tudi $\lambda_0=1$ in $a_s=0$ in dobimo rešitev (7).

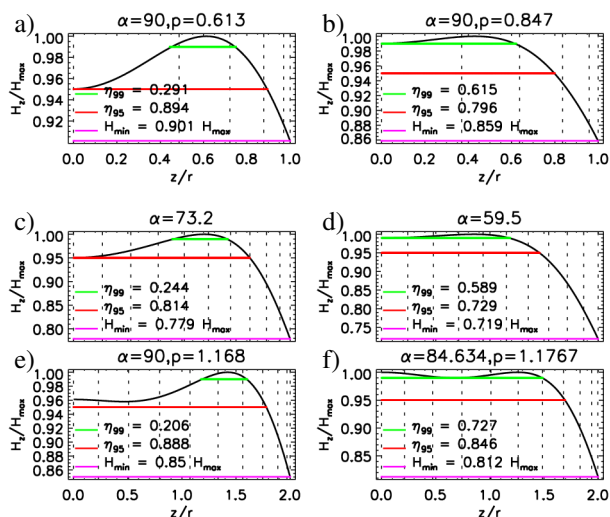
3.4 Potencirana sinusna funkcija

Sinusno funkcijo lahko tudi potenciramo:

$$z(u) = \frac{L}{2} [\lambda u + a_s \sin^p(\alpha u)], \quad (23)$$

kjer zaradi $z(1) = \frac{L}{2}$ velja $a_s = \frac{1-\lambda}{\sin^p \alpha}$ in zaradi $\frac{dz}{du} \geq 0$ velja še naslednja omejitev

$$p\alpha \frac{\cos \alpha}{\sin \alpha} \geq \frac{\lambda}{\lambda - 1} \quad (24)$$



Slika 6: Rezultati za potencirano sinusno funkcijo (23) za tuljavo ($n=11$, $L=2r$) pri $\alpha=90$: a) $p=0.613$ in b) $p=0.847$ in za tuljavo ($n=21$, $L=4r$) pri ($p=1$): c) $\alpha=73.2$, d) $\alpha=59.5$ in pri ($p \neq 1$): e) $\alpha=90$, $p=1.168$ in f) $\alpha=84.634$, $p=1.1767$.

Pogoj (24) vedno velja za $\alpha \leq 90$ stopinj. Za $\alpha > 90$ je števec na levi strani (24) zaradi kosinusa negativen in mora biti zato λ ustrezno manjši od 1. Za posebni primer, ko je $\lambda = 1$, dobimo rešitev (7). V primeru, ko je $p = 1$, dobimo rešitev (20).

Če postavimo $\lambda=0$, moramo v (20) optimizirati le kot α in v (23) dodatno potenco p . Za tuljavo z manj ovoji ($n=11$, $L=2r$) se izkaže, da dobimo v tem primeru najboljše rezultate pri $\alpha=90$, kar pomeni, da je potrebno optimizirati le p za optimalna η_{95} in η_{99} (sliki 6a,b). Pri tuljavi z več ovoji ($n=21$, $L=4r$) pri izbiri $p=1$ optimiziramo α (sliki 6c,d) ali oba parametra α in p (sliki 6e,f).

4 Razprava

V valjastih tuljavah z enakomerno odmaknjenimi ovoji začne amplituda polja, ko se bližamo robu tuljave, v zadnji četrtini hitro padati (slika 2). Delež prostornine η_{95} , kjer je polje večje od 95% H_{\max} , je manj kot 50%, to je ~45% za daljšo ($L=4r$) tuljavo z $n=21$ ovoji (slika 2a) in ~40% za krajšo ($L=2r$) tuljavo z $n=11$ ovoji (slika 2b), medtem ko je delež prostornine η_{99} , kjer je polje večje od 99% H_{\max} v obeh primerih ~20%. Polje na robu tuljave je približno $\frac{3}{5}H_{\max}$ za tuljavo ($n=21$, $L=4r$) in približno $\frac{2}{3}H_{\max}$ za tuljavo ($n=11$, $L=2r$). Z modelom (8) in potenčno funkcijo (10), ki ju pri $\lambda=0$ določa le en paramater p , lahko η_{95} , η_{99} in H_{\min} vsakega posebej povečamo na približno 0.7, 0.63 in 0.76 H_{\max} (slike 3a,b,c) za tuljavo ($n=21$, $L=4r$) in na 0.86, 0.57 in 0.91 H_{\max} (slike 3d,e,f) za tuljavo ($n=11$, $L=2r$).

Z izbiro drugih funkcij, kjer imamo na voljo več parametrov, lahko še dodatno izboljšamo homogenost polja znotraj tuljave. Za daljšo tuljavo ($n=21$, $L=4r$) dobimo najboljše skupne rezultate $\eta_{95}=0.86$, $\eta_{99}=0.75$ in $H_{\min}=0.875H_{\max}$ z vsoto dveh potenc (14), kjer pri $p_1=2$ in $p_2=3$, določimo optimalni $\lambda=1.07$ (slika 5b). Malce slabše rezultate $\eta_{95}=0.85$, $\eta_{99}=0.73$ in $H_{\min}=0.81H_{\max}$ dobimo s potencirano sinusno funkcijo (23) pri $\alpha=84.634$ in $p=1.1767$ (slika 6f). S to funkcijo dobimo $\eta_{95}=0.796$, $\eta_{99}=0.615$ in $H_{\min}=0.859H_{\max}$ za krajšo tuljavo ($n=11$, $L=2r$) pri $\alpha=90$ in $p=0.847$ (slika 6b).

Za tuljavo ($n=21$, $L=4r$) dobimo najboljši posamezni rezultat za $\eta_{95}=0.888$ in $H_{\min}=0.85H_{\max}$ s potencirano sinusno funkcijo (23) pri $\alpha=90$ in $p=1.168$ (slika 6e) in najvišji $\eta_{99}=0.75$ z vsoto dveh potenc (14) pri $p_1=2$, $p_2=3$ in $\lambda=1.07$ (slika 5b).

Za tuljavo ($n=11$, $L=2r$) dobimo najboljši posamezni rezultat za $\eta_{95}=0.894$ s potencirano sinusno funkcijo (23) pri $\alpha=90$ in $p=0.613$ (slika 6a) in naboljši $\eta_{99}=0.615$ z isto funkcijo pri $\alpha=90$ in $p=0.847$ (slika 6b) ter najvišji $H_{\min}=0.914H_{\max}$ s potenčno funkcijo (9) pri $p=0.302$ in $\lambda=0$ (slika 3f).

Vsi ti rezultati kažejo, da so optimalni parametri odvisni tako od števila ovojev kot od razmerja med dolžino in polmerom tuljave. Zato moramo za vsako tuljavo izbrati svojo modelsko funkcijo in določiti parametre glede na to, kaj želimo optimizirati: η_{95} , η_{99} ali H_{\min} .

5 Zaključki

S preprostim matematičnim modelom (8) smo optimizirali razdalje med sosednjimi ovoji, tako da smo dobili čim bolj homogeno velikost polja znotraj valjaste tuljave. Z optimizacijo samo enega ali dveh parametrov smo dosegli znatno povečanje prostornine, v kateri je polje večje od neke želene vrednosti. Prostornino, kjer polje preseže 95% maksimalne vrednosti, smo z manj kot manj kot 50% povečali na več kot 85% celotne prostornine tuljave. Še večje je povečanje prostornine, kjer polje preseže 99% maksimalne vrednosti, saj se ta iz okoli 1/5 poveča na več kot 3/5 celotne prostornine tuljave.

Literatura

- [1] J. Barras, S. Katsura, H. Sato-Akaba, H. Itozaki, G. Kyriakidou, M.D. Rowe, K.A. Althoefer, and J.A.S. Smith: Variable-Pitch Rectangular Cross-section Radiofrequency Coils for the Nitrogen-14 Nuclear Quadrupole Resonance Investigation of Sealed Medicines Packets. *Anal. Chem.* **84**:8970–8972, 2012.
- [2] J.A. Stratton: *Electromagnetic Theory*, Mc Graw-Hill Book Company, Inc., New York and London (1941).
- [3] <http://www.grant-trebbin.com/2012/04/off-axis-magnetic-field-of-circular.html>