

# 多指数曲线拟合分析正电子湮没寿命谱的方法

王淑英

(中国科学院高能物理研究所)

## 摘 要

通过非晶态金属等样品  $e^+$  湮没寿命谱的分析,研究了分析中的几个实际问题. 包括拟合起点的选择,各寿命组份的相对强度归一化和寿命谱尾部实验点的影响等. 建立了实际可行的二组份拟合计算程序.

单个正电子在介质中湮没时,其延迟时间(即存活时间)是一种随机事件.用寿命谱仪测量正电子放射源  $^{22}\text{Na}$  中和正电子同时发射(延迟  $\sim 3\text{ps}$ )的  $1.28\text{MeV}\gamma$  射线与  $0.511\text{MeV}$  湮没  $\gamma$  射线之间的时间间隔,即可加以记录.大量正电子湮没的延迟时间呈现一定的统计分布,一般服从指数规律.根据  $e^+$  与介质相互作用过程即湮没机制的不同,在寿命谱中出现不同的湮没组份.它们具有不同的指数衰减速率—— $\lambda$ ,或相应的平均寿命—— $\tau$  ( $\tau = \frac{1}{\lambda}$ ,以下简称寿命).当几种湮没机制同时发生时,理想寿命谱应为多指数组份的叠加(图1).其数学模型由下式表示:

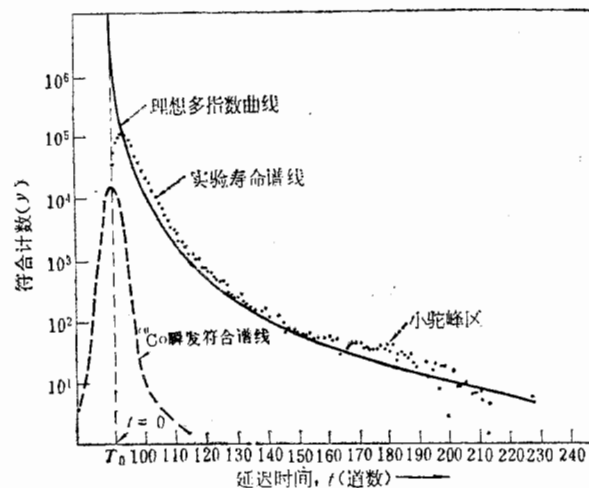


图1 正电子湮没寿命谱

$$Y(t) = \sum_{j=1}^m I_{0j} \exp(-\lambda_j t) \quad (1)$$

其中,  $m$  代表寿命组份数目,  $\ln I_{0j}$  代表第  $j$  个组份的截矩, 与该组份强度有关. 图 1 中坐标  $y$  代表符合计数的实验测量值.

目前已知的各种湮没机制中, 最短的寿命一般大约为  $>100\text{ps}$ . 例如,  $e^+$  在晶格完整的金属中的自由湮没以及三重态正电子素 ( $\sigma\text{-Ps}$ ) 在可形成 Ps 介质中的快速猝熄湮没 (如化学反应和自旋变向等). 但在有缺陷的金属中, 由于自由  $e^+$  被缺陷捕获, 表现自由湮没寿命可缩短至几十 ps. 长寿命组份通常为几个 ns. 在特定条件下可以测得接近  $\sigma\text{-Ps}$  在真空中自湮没寿命 (140ns) 的长寿命组份.

由现代电子学器件组成的延迟符合寿命谱仪仍有定时误差, 使谱仪具有一定的时间分辨. 目前最好可列 200ps 左右, 一般为 220—300ps. 谱仪分辨由  $^{60}\text{Co}$  中 1.33 和 1.17MeV 两个  $\gamma$  射线在  $e^+$  湮没能窗下瞬发符合谱的半高宽 (FWHM) 表示.

图 1 半对数坐标中的点线, 是一条以短寿命为主要成份的典型寿命谱. 其附近的实线为式(1)所表示的理想多指数曲线. 由图可见, 谱仪分辨使理想谱线严重变形, 在零时附近出现峰形分布. 但在峰右方一定时间量程后, 除高度外仍保持理想形状.

实验寿命谱曲线可由分辨函数  $P(t)$  和  $Y(t)$  的褶积积分表示:

$$F(t) = \int_0^{\infty} Y(t')P(t-t')dt' \quad (2)$$

为简单起见, 假定  $P(t)$  由单一高斯函数描述 (实际上比较复杂), 则式(2)积分后得:

$$F(t) = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^m I_{0j} \exp[-\lambda_j(t-T_0)] \exp\left(\frac{1}{4} \lambda_j^2 \sigma^2\right) \cdot \left[1 - \text{erf}\left(\frac{1}{2} \lambda_j \sigma - \frac{t-T_0}{\sigma}\right)\right] \quad (3)$$

其中,  $\sigma$  为高斯分布的标准偏差, 且  $\sigma = \text{FWHM}/2\sqrt{\ln 2}$ ;  $T_0$  为  $^{60}\text{Co}$  瞬发谱峰位, 代表时间零点. 其中的误差函数  $\text{erf}(t)$  解释了零时附近的峰型分布.

最小二乘曲线拟合是分析正电子湮没寿命谱的主要方法. 该方法要求预先指定数学模型, 包括寿命谱的组份数目. 目前普遍采用的是 (3) 式所示的褶积函数拟合法<sup>[1-3]</sup>. 其优点是原则上能直接分解任何短寿命成份. 不过, 由于无法从实验上准确模拟  $e^+$  湮没条件下的谱仪分辨函数, 因而需要根据特定的谱仪系统并选择适当的标准样品进行测量 (一系列样品中组份最简单者), 通过拟合, 确定最佳的分辨函数参数. 否则, 将在分析结果中引进显著的系统误差, 甚至得不到合理的拟合结果.

分析寿命谱的另一种最小二乘法是多指数函数拟合. 这时, 式(1)适用于谱峰右方一定时间量程以上的整个区域. 文献 [6] 对这一方法进行了详细论述. 但该文对指数拟合分析中几个实际问题并未提及. 其它文献中也较少具体讨论.

本文在处理一系列非晶态合金<sup>[7]</sup> 和聚四氟乙烯等样品寿命谱的实践中, 探寻了解决这些实际问题的方法. 编制出可供解谱的计算程序. 这些方法和程序 (ALSPA) 经多位同事的检验<sup>[8]</sup> 和使用<sup>[9-12]</sup> 证明是可行的.

## 方法的研究和结果

### 1. 拟合起点的选择

这是多指数曲线拟合中的一个重要问题。

理想多指数谱线在零时附近变形的物理原因是由于  $e^+$  湮没时不可能产生延迟时间为负的事件。因而, 谱仪固有的分辨使相当数目的瞬时和短时的  $e^+$  湮没延迟符合事件单方向地分散在  $^{60}\text{Co}$  峰位左方区域, 但得不到相反的补偿。这和峰右方一定时间量程以上相互分散补偿的情况是不同的。因此, 采用多指数函数拟合分析寿命谱时, 必须舍弃零时附近严重变形区域。关键在于适当选择拟合起点。其选取原则是既要使分辨函数和相邻长寿命组份对短寿命组份的影响尽量少, 又必须尽可能保留主要表征短寿命组份的那些实验点, 以便在计算中保证统计精度, 并使容易得出正确的收敛结果。

具体步骤是以谱峰右方曲线开始变直的实验点附近开始, 使拟合起点逐点右移, 分别进行拟合。根据拟合优度  $Q$  的变化和拟合结果的变化, 合理选择寿命值。本文所指拟合优度是谱线各点归一化的理论与实验值残差的加权平方和表 1 列举了计算例子。可以看出, 改变拟合起点时, 寿命值由大到小再由小变大的趋势。根据上述原则, 取转折处数值最相近的几点的平均值作为各组份寿命值是恰当的。以后发现, 这样选取的数值与文献值是一致的。见表 2。

表 1 逐点改变拟合起点选取各组份寿命值的例子\*

拟合起点 (道序)	拟合结果		选取值**		$Q(\times 10^{-4})$
	$\tau_1(\text{ns})$	$\tau_2(\text{ns})$	$\tau_1$	$\tau_2$	
96	0.165	0.58			5.7
97	0.158	0.54			1.5
{ 98	{ 0.155	{ 0.52	0.155	0.52	1.1
{ 99	{ 0.154	{ 0.52			1.1
{ 100	{ 0.156	{ 0.52			1.1
101	0.159	0.53			0.9
102	0.163	0.55			0.8
103	0.165	0.55			0.8
106	0.180	0.59			0.8
109	0.204	0.65			0.6
					0.4

\* 实验号 NO.65; \*\* 带左括号的三个相邻值的平均。

这样确定的寿命值是合理和可靠的。但必须指出, 可用这种方法确定的最短寿命值显然受谱仪分辨的限制。本工作所用谱仪的分辨是  $260\text{ps}^{[13]}$ 。由表 2 可以看出, 对于以自由湮没寿命为主要成份的退火金属以及有缺陷的金属和离子晶体等样品的寿命谱线, 都可以确定出合理的结果。但在有缺陷样品中一般不能直接分解几十 ps 的表观自由湮没寿命。在研究化学问题中, 有时更关心较长的寿命组份。这时, 指数拟合方法比较方便。

其

其

者。

 $^{60}\text{Co}$   
可加  
合拟  
合  
重  
复围  
内  
是  
住  
还  
不了  
上  
述  
过  
程  
过  
1

表 2 几种材料中  $e^+$  自由湮没寿命

材 料	拟合结果 $\tau_i(\text{ns})$	文献值 $\tau_i(\text{ns})$
退火纯铁	$0.111 \pm 0.001^{[9]}$	$0.117 \pm 0.004^{[12]}$
退火光谱纯铝	$0.164 \pm 0.002^{[10]}$	$0.165 \pm 0.002^{[13]}$
本征单晶硅	$0.220 \pm 0.004^{[11]}$	$0.223 - 0.245^{[12]}$
退火纯钴	$0.152 \pm 0.002^{[7]}$	$0.162 \pm 0.004^{[14]}$

## 2. 各寿命组份相对强度的确定

寿命谱线下归一化总强度定义为:

$$\int_0^{\infty} \sum_{j=1}^m \frac{I_{0j}}{A} \exp(-\lambda_j t) dt \quad (4)$$

其中  $A$  代表谱线下总计数, 包括峰左方区域。

令  $I_{0j}/A = a_j$ , 积分(4)式, 得

$$\sum_{j=1}^m a_j / \lambda_j = \sum_{j=1}^m I_j = 1 \quad (5)$$

其中  $I_j = a_j / \lambda_j$  代表第  $j$  个组份的相对强度。

由图 1 可见, 由于谱仪分辨函数对理想谱线的影响, 实验谱线的高度在峰右方高于后者。可由式(3)中的指数增强因子  $H = \exp\left(\frac{1}{4} \lambda_j^2 \sigma^2\right)$  得到解释。如果在拟合计算中取  $^{60}\text{Co}$  瞬发峰位为零时位置, 必然得出总强度大于 100% 的结果。如调节零时位置  $T_0$ , 则对此进行校正而不影响寿命值。因为参数  $a_j$  是线性的。

$H$  与  $\tau$  有关。寿命越短,  $H$  值越大。例如  $\tau \sim 100\text{ps}$  时,  $H \sim 1.27$ , 即相对强度增加 27%;  $\tau \sim 1\text{ns}$  时,  $H \sim 1.0025$ , 相对强度只增加 0.25%。调节  $T_0$  相当于调节从拟合起点至  $T_0$  的距离—— $\Delta T$ 。实际计算中就是调节  $\Delta T$  值。

表 3 所列结果证明, 最长寿命组份的相对强度对  $\Delta T$  很不敏感。因此在进行二组份拟合时, 粗略调节  $\Delta T$  即可确定  $I_2$  值。剩余部分即为  $I_1$ 。相对强度的准确度主要取决于重复测量的精密度和拟合优度。以表 3 中第二组结果为例, 当总强度在 95.9—129.3% 范围内变化时,  $I_2$  仅由 6.0% 增加到 6.2%。因此取 6.1% 已足够准确。该表中第二组结果是由三组份拟合得出的,  $I_3$  的变化也很小。但  $I_2$  的变化已比较明显。这里  $\Delta T$  的调节还不够细致。

为便于了解分辨函数对相对强度的影响, 表 4 比较了用上述方法确定的零时位置  $T_0$  与  $^{60}\text{Co}$  瞬发峰位  $T_0$  的差别。可以看出, 二者之差均为负值, 具有系统偏差的性质。与上述的分析是一致的。另外, 在一组重复测量结果中, 差值大小不同。这可能主要与测量过程中谱仪的电子学漂移有关。因此调节  $\Delta T$  的步骤实际上考虑了零点漂移的影响。不过, 其效果是平均的。在实际测量中, 用  $^{60}\text{Co}$  监视峰位漂移时, 发现最大漂移一般可不超过 1 道 ( $\sim 45\text{ps}$ ), 通常漂移 0.2—0.5 道。

严格来说, 在三组份以上寿命谱的拟合分析中, 至少应对中等寿命组份的相对强度  $H$

因子进行校正,尚待在程序中改进.此外,如果将  $T_0$  作为拟合参量进行分析时,也应在数学模型中考虑  $H$  因子的校正,并把对  $T_0$  最敏感的相对强度作为约束条件,即令其为总强度为减去其它组份强度后的部分.

表3  $\Delta T$  与各组份相对强度的关系

组别	样品	$\Delta T$ (道数)	$I_1$	$I_2$	$I_3$ (%)	总强度	寿命 (ns)	
1	聚四氟乙烯	2.0	35.9	25.7	20.4	82.2	$\tau_1$	3.829
		3.0	42.9	27.4	20.7	91.0		
		3.5	46.9	28.3	20.8	96.0	$\tau_2$	0.70
		4.0	51.9	29.2	20.9	102.0		
		5.0	61.9	31.2	21.2	114.3	$\tau_3$	0.25
2*	纯钴金属	6.0	89.9	6.0	—	95.9	$\tau_1$	0.138*
		6.3	98.7	6.2	—	104.9		
		6.7	122.7	6.6	—	129.3	$\tau_2$	0.48

\* 这是一组寿命谱之一,测量时,因反散射造成瞬发偶然符合成份,用多指数拟合时,使  $\tau_1$  降低,显示出与正常拟合值(0.152)的区别.

表4 强度归一化的零时位置  $T'_0$  与  $^{60}\text{Co}$  瞬发峰位  $T_0$  的比较

	总强度 (%)	$T'_0$ (道序)	$T_0$ (道序)	$T_0 - T'_0$ (道)
1	100.0	490.8	490.1	-0.7
	102.0	491.1		-1.0
	105.0	490.8—490.1		-(0.7—1.0)
2	100.5	492.5	491.3	-1.2
	99.9	492.5		-1.2
	99.1	492.5		-1.2
	102.1	492.4		-1.4
	99.3	492.7		-0.4
	100.2	492.7		-1.4
3	101.1	92.4	91.4	-1.0
	99.3	92.9	91.4	-1.5
	99.9	92.5	91.8	-0.7

### 3. 寿命谱尾部成份的检验和拟合终点的选择

由图1可见,接近偶然符合本底的谱线尾部区域,计数统计很差.此外,  $e^+$  在源基体材料、衬托物特别是样品表面的湮没组份往往贡献到其中,使谱尾部复杂化<sup>[18]</sup>.这在金属、合金等短寿命为主要成份的样品中尤其突出.本文测量所用谱仪系统在谱尾固定量程处( $\sim 3.5\text{ns}$ )产生噪音,构成小驼峰,额外地增加了数据处理的困难.但一般来说,即使不存在可能的噪音响应,也不能忽视尾部成份对拟合结果的影响.而且,峰右方实验点舍弃越多,影响越大.在采用褶积法拟合时,为减少谱峰漂移的影响而舍弃峰区实验点时,也存在同一问题<sup>[4]</sup>.

在本文所处理的一系列非晶态样品寿命谱中,发现有寿命较长( $\sim 2\text{ns}$ )相对强度很

弱 ( $<0.5\%$ ) 的第三组份。这从表 5 所列结果的趋势中可以定性看出。但由于上述复杂原因, 当采用高斯-牛顿法<sup>[19]</sup>求解线性方程组时, 三组份拟合往往不易收敛。考虑到这一组份对结果的解释不重要, 仍采用二组份拟合。这时, 必须对终点进行检验, 使分析结果不因终点位置在一定范围内的变化而改变, 以便进行不同样品和不同条件下实验结果的比较。分析结果见表 5 和表 6。

表 5 二组份指数拟合终点的影响

样 品	拟合起点(道序)	拟合终点(道序)	拟合实验点数	寿命值 (ns)	
				$\tau_1$	$\tau_2$
Fe <sub>40</sub> Ni <sub>40</sub> B <sub>20</sub> 非晶态	236	301	66	0.142	0.74
		315	80	0.146	0.83
		336	101	0.149	0.92
Fe <sub>40</sub> Ni <sub>40</sub> B <sub>20</sub> 晶化样品	498	556	59	0.153	0.55
		563	66	0.155	0.57
		577	80	0.158	0.62
		591	94	0.160	0.65

表 6 二组份指数拟合终点的检验

拟合终点*(道序)	与零时距离(道)	寿命值 (ns)		相对强度(%)	
		$\tau_1$	$\tau_2$	$I_1$	$I_2$
550	58.7	0.151	0.45	92%	8%
551	59.7	0.152	0.45		
552	60.7	0.152	0.46		
553	61.7	0.152	0.45		
554	62.7	0.152	0.46		
555	63.7	0.152	0.45		
556	64.7	0.152	0.46		
559	67.7	0.153	0.47		

\* 零时道序: 491.3; 拟合起点道序: 499.

## 结 论

在所用寿命谱仪分辨条件下 ( $\sim 260$ ps), 用最小二乘多指数拟合方法分析金属、合金和离子晶体等样品中以短寿命 ( $\geq 110$ ps) 为主要成份的寿命谱是可行的。其特点是数学模型简单, 并可选取基本上不受谱仪分辨影响的区域进行拟合, 从而避免了分辨函数形状和宽度等参数选择引起的系统误差。谱仪分辨越好, 这一优点越显著。

在实际应用中, 最重要的是首先正确选择拟合起点, 确定各组份寿命值。其次是通过调节零时位置, 使强度归一化, 确定各组份相对强度。这种方法用于二组份拟合时尤其方便。但必要时, 应对指数增强因子进行校正。最后, 对可能存在的尾部组份进行检验, 适当选择拟合终点, 对于分析结果的可靠性具有普遍意义。

## 致 谢

本文所用数据是作者所在研究组的集体实验成果；在数据处理过程中与本组同志进行了有益的讨论，在编制程序和计算方面，得到本所倪蕙苓、郁忠强、李德中等多位同志和本组同志的具体帮助。恕不一一列举，谨致谢意。

## 参 考 文 献

- [1] P. Kirkegaard et al., *Computer Phys. Commun.*, **3**(1972), 240; **7**(1974), 401.  
 [2] P. Kirkegaard et al., *Risø-M-1399*; 1400.  
 [3] C. J. Virtue et al., *Computer Phys. Commun.*, **15**(1978), 97.  
 [4] M. Eldrup et al., *Appl. Phys.*, **15**(1978), 65.  
 [5] W. Puff, *Appl. Phys.*, **18**(1979), 165.  
 [6] J. S. Tao, *IEEE NS-15* (1968), 175.  
 [7] Y. Y. Waig et al., "Positron Annihilation", Proc. of ICPA-5 (1979), P. 227.  
 [8] 王蕴玉、薛嘉渔, *核技术*, **1**(1983).  
 [9] 曹玓等, *物理学报*, **1**(1982).  
 [10—12] 见1981年第一次全国正电子湮灭学术讨论会文集中, 殷定贞、季国坤、熊兴民等同志的文章。即将由“核技术”杂志出版。  
 [13] 张天保, 刘年庆, *核探测器与核电子学*, 1979年会议资料汇编, 328页(原子能出版社).  
 [14—17] S. Berko, *Phys. Rev.*, **154**(1967), 249; P. Hautojaarvi et al., *Appl. Phys.*, **11**(1976), 191; P. Sen et al., *J. Phys.*, **C**, **7**(1974), 2776; S. J. Tao et al., Proc. of the Symp. on NDE, San Antonio (1975).  
 [18] N. K. Dové et al., *Appl. Phys.*, **15**(1978), 197.  
 [19] 概率统计计算, 中国科学院计算中心概率统计组编著, 科学出版社(1979).

## METHOD OF ANALYSING POSITRON ANNIHILATION LIFETIME SPECTRUM WITH A MULTI EXPONENTIAL CURVE FITTING

WANG SHU-YING

(Institute of High Energy Physics, Academia Sinica)

### ABSTRACT

A method to solving a few practical problems in analysing lifetime spectrum is searched through analysis of the lifetime spectra of  $e^+$  annihilation in amorphous alloy samples and other ones. It includes the selection of the starting point of fitting data one by one above a certain time range on the right of the spectrum peak, the normolazation of the sum of relative intensities of the lifetime components by adjusting the zero time position, and finally testing the tail component to diminish the effect on analysis of the end position of the fitting data.

空中  
程放

而辐射

其中,

是通常

大

色散反

$n \gg 1$

就是反

初步证

讨钠素

它们的