

放射性衰变曲线分解的非迭代方法(I)*

已知一组份衰变常数的三组份衰变曲线的分解

李伟生 李文新 沈翠华

(中国科学院近代物理研究所,兰州)

摘 要

本文提出了一个不用迭代程序分解已知一组份衰变常数的三组份衰变曲线的方法。使用人为合成的衰变数据进行了检验,获得了好的结果。并讨论了该方法长处以及使用的局限性。

在核化学以及活化分析中经常碰到放射性衰变曲线的分解。对单组份的衰变曲线可以很方便地用线性最小二乘法去拟合;而存在两个或更多的独立放射性核素时,通常不得使用非线性的最小二乘法。这种方法以一组初值开始进行迭代计算,迭代过程一直继续到所要求的收敛程度被满足为止。众所周知,该方法固有的困难在于衰变常数以及强度初始值的估计。尤其当衰变常数比较接近时,初值更难选定。如果初值估计不适当,迭代过程可能得不到收敛而导致拟合失败。为了避免使用初值的迭代过程,人们作出了各种努力。Mokoyama 曾用非迭代方法解决了一个组份加本底的衰变曲线分解^[1]。接着,他又用差分方程将非线性函数线性化,提出了不用迭代过程拟合二组份衰变曲线的方法^[2]。冯锡璋等人用表观衰变常数随时间变化的近似关系式进行拟合,求得二组份衰变半寿命初值,随后用逐次逼近计算解决了二组份衰变曲线的分解^[3]。上述这些方法虽然取得了较好的结果,但均局限于二组份衰变情况。多于二组份衰变曲线分解肯定更加复杂,迄今为止,尚未见到用非迭代过程分解多于二组份衰变曲线的有效方法。

我们试图用不带迭代过程的计算方法直接分解多于二组份的放射性衰变曲线。本文首先报道已知其中一个组份衰变常数的三组份衰变曲线的分解方法。使用这个方法,不需要任何初值估计,即可直接解得另两个组份的衰变常数和三个组份各自的初始强度,总共5个未知数。

考虑三组份衰变曲线的分解,其放射性强度随时间 t 变化的计算公式如下:

$$I(t) = I_1(0)e^{-\lambda_1 t} + I_2(0)e^{-\lambda_2 t} + I_3(0)e^{-\lambda_3 t}, \quad (1)$$

其中 $I_1(0)$ 、 $I_2(0)$ 、 $I_3(0)$ 分别是三种核素的初始放射性强度, λ_1 、 λ_2 、 λ_3 是它们的衰

* 中科院七五重大项目资助课题。
本文 1988 年 9 月 2 日收到。

变常数。假设 λ_1 为已知的,由(1)我们导出了由时间 t 开始,有相等时间间隔的连续 4 点处的放射性强度应满足的差分方程^[4]:

$$I(t+3\Delta t) - e^{-\lambda_1\Delta t}I(t+2\Delta t) - [I(t+2\Delta t) - e^{-\lambda_1\Delta t}I(t+\Delta t)] \cdot u_1 + [I(t+\Delta t) - e^{-\lambda_1\Delta t}I(t)]u_2 = 0. \quad (2)$$

其中 Δt 为各测量点之间的时间间隔

$$u_1 = e^{-\lambda_2\Delta t} + e^{-\lambda_3\Delta t}, \quad u_2 = e^{-\lambda_2\Delta t} \cdot e^{-\lambda_3\Delta t}$$

设 y_i 是在时间 $t = t_i$ 处测得的放射性强度值, ($i = 1, 2, \dots, m$), 为此,我们建立如下最优化目标函数:

$$\min_{\lambda_1, \lambda_2} \sum_{i=1}^{m-1} [y_{i+3} - e^{-\lambda_1\Delta t}y_{i+2} - (y_{i+2} - e^{-\lambda_1\Delta t}y_{i+1}) \cdot u_1 + (y_{i+1} - e^{-\lambda_1\Delta t}y_i)u_2]^2. \quad (3)$$

对于上述目标函数,我们可以使用线性最小二乘法求得 u_1 、 u_2 的最佳估计值,计算方法和程序流程如下:

1. 输入各测量点的放射性强度 $y_i (i = 1, 2, \dots, m)$
2. 形成矩阵 $C_{(m-3) \times 4}$

$$C = \begin{pmatrix} y_4 & y_3 & y_2 & y_1 \\ y_5 & y_4 & y_3 & y_2 \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ y_m & y_{m-1} & y_{m-2} & y_{m-3} \end{pmatrix}$$

3. 对矩阵 C 施以如下初等变换

- (1) 以第 j 列减去第 $(j+1)$ 列 $\times e^{-\lambda_1\Delta t}$ ($j = 1, 2, 3$).
- (2) 以 -1 乘以第三列,得到矩阵 C' .

从而得到矩阵 C'

$$C' = \begin{pmatrix} y_4 - y_3e^{-\lambda_1\Delta t} & y_3 - y_2e^{-\lambda_1\Delta t} & -(y_2 - y_1e^{-\lambda_1\Delta t}) & y_1 \\ y_5 - y_4e^{-\lambda_1\Delta t} & y_4 - y_3e^{-\lambda_1\Delta t} & -(y_3 - y_2e^{-\lambda_1\Delta t}) & y_2 \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ y_m - y_{m-1}e^{-\lambda_1\Delta t} & y_{m-1} - y_{m-2}e^{-\lambda_1\Delta t} & -(y_{m-2} - y_{m-3}e^{-\lambda_1\Delta t}) & y_{m-3} \end{pmatrix}$$

以 C' 的第 1 列作为矩阵 B , C' 的第 2, 3 列作为矩阵 A .

4. 求解线性方程组 $A^T A U = A^T B$, 得到

$$U = (u_1, u_2).$$

5. 求解二次方程 $x^2 - u_1x + u_2 = 0$ 得 x_1, x_2 从而得到

$$\lambda_2 = \frac{-\ln x_1}{\Delta t}, \quad \lambda_3 = -\frac{\ln x_2}{\Delta t}.$$

在求得了各元素的衰变常数 λ_2, λ_3 后,我们可以建立如下最优化目标函数得到各元素初始强度的最佳估计值:

$$\min_{I_j(0)} \sum_{i=1}^m [y_i - I_1(0)e^{-\lambda_1 t_i} - I_2(0)e^{-\lambda_2 t_i} - I_3(0)e^{-\lambda_3 t_i}]^2.$$

其计算过程如下:

- (1) 建立矩阵 $A_{m \times 3}$, $B_{m \times 1}$,

其中

$$A = \begin{pmatrix} e^{-\lambda_1 t_1} & e^{-\lambda_2 t_1} & e^{-\lambda_3 t_1} \\ e^{-\lambda_1 t_2} & e^{-\lambda_2 t_2} & e^{-\lambda_3 t_2} \\ \dots & \dots & \dots \\ e^{-\lambda_1 t_m} & e^{-\lambda_2 t_m} & e^{-\lambda_3 t_m} \end{pmatrix},$$

$$B = (y_1, y_2, \dots, y_m)^T.$$

(2) 求解线性方程组

$$A^T A X = A^T B, \text{ 得到 } X = (x_1, x_2, x_3),$$

则

$$I_1(0) = x_1, I_2(0) = x_2, I_3(0) = x_3.$$

上述计算过程表明,对于形如(1)式的含有5个未知变量的非线性函数的拟合,由于使用了差分方程(2),可以通过两次线性最小二乘拟合方便地得到求解。

为了检验计算方法的正确性,我们假定了不同衰变半寿命以及初始强度的三个组份,计算具有相同时间间隔的不同时间的衰变强度,得到了人为合成的衰变曲线。并根据本文提出的方法编制了相应的计算程序在 VAX 计算机上分解三组份衰变曲线,输入其中一组份半寿命求解另两组份的衰变半寿命以及三个组份各自的初始强度。计算结果列于表1中。误差仍用目前惯用的非线性最小二乘法的误差。由表1可见,本文提出的方法能相当好地再现预期结果,即使当其中二组份的半寿命非常接近,或者二组份初始强度相差高达100倍时,仍能得到十分满意的结果。此外,程序设计中充分利用了矩阵运算优越性,使得程序结构明了,使用十分方便。

表1 三组份衰变曲线的分解结果

| | | 半寿命(小时) | | | 初始强度(衰变/分) | | |
|---|-----|-----------|-----------|----------|------------|-----------|----------|
| | | T_1 | T_2 | T_3 | I_1 | I_2 | I_3 |
| 1 | 预设值 | 5.00 | 6.00 | 12.00 | 10000 | 10000 | 10000 |
| | 计算值 | 5.00* | 5.99±0.05 | 12.0±0.1 | 9949±119 | 10036±100 | 10015±60 |
| 2 | 预设值 | 4.00 | 10.0 | 30.0 | 10000 | 8000 | 5000 |
| | 计算值 | 4.00* | 9.95±0.10 | 29.8±0.5 | 9989±100 | 7957±64 | 5040±35 |
| 3 | 预设值 | 4.00 | 5.00 | 20.0 | 10000 | 10000 | 100 |
| | 计算值 | 4.00* | 5.00±0.01 | 19.6±0.5 | 10123±65 | 9879±26 | 99.7±3.4 |
| | 计算值 | 4.01±0.02 | 5.01±0.01 | 20.0* | 10117±3 | 9983±3 | 99.8±5.9 |

* 计算中取作已知值的半寿命。

本文提出了一个不用迭代过程和不需要初值估计分解三组份衰变曲线的方法,和惯常的非线性最小二乘法一样,计算结果可靠性强烈依赖于实验测定数据的正确程度。但是,即使在最不理想的情况下,本方法也能为非线性最小二乘法提供合理的迭代初值,为迭代过程收敛提供了重要条件。当然本文提出的计算方法也有一定局限性,它要求衰变曲线的实验数据具有相等的时间间隔。对于半寿命相差很大的三组份,在实验中上述要求不能不认为是相当苛刻的。因此本方法更为适用于半寿命比较接近的三组份,而这恰

好是使用非线性最小二乘法感到比较棘手的情况,所以本工作提出的方法为非线性最小二乘法的重要补充.预期它对分析和鉴定放射性核素以及新核素的衰变性质研究都能发挥重要作用.

参 考 文 献

- [1] Takeshi Mukoyama, *Nuclear Instruments and Methods*, **197**(1982), 397.
- [2] Takeshi Mukoyama, *Nuclear Instruments and Methods*, **179**(1981), 357.
- [3] 冯锡璋、刘庆年、韩俊英, *高能物理与核物理*, **8**(1984), 110.
- [4] 李伟生,“非迭代过程的 n 组份衰变曲线的分解”, *科学通报*, 待发表。

NON-ITERATIVE METHODS FOR RESOLUTION OF RADIOACTIVE DECAY CURVES (I) RESOLUTION OF THREE-COMPONENT DECAY CURVE WITH A DECAY CONSTANT BEING KNOWN

LI WEISHENG LI WENXIN SHEN CUIHUA
(*Institute of Modern Physics, Academia Sinica, Lanzhou*)

ABSTRACT

A method without iterative procedure is presented for resolution of a three-component decay curve with a decay constant being known. Artificial decay data have been used to test the present method and good results have been obtained.