

文章编号: 1007-4627(2011)03-0315-06

一种基于 Windows 界面的正电子湮没谱分析软件包^{*}

李辉, 周凯, 王柱[#], 陈志权, 王少阶

(武汉大学物理科学与技术学院, 湖北 武汉 430072)

摘要: 在保留正电子寿命谱分析程序 PATFIT 和连续谱分析程序 MELT 主要优点的基础上研究开发了一个新的正电子湮没谱分析软件 PASA。主要的改进包括: 将 PATFIT、MELT 和多普勒展宽谱 3 种正电子湮没分析方法集成在 Windows 界面程序中, MELT 程序脱离 MATLAB 环境独立运行; 编写了完整的多普勒展宽谱分析程序, 谱文件的读取、输入参数的调节和拟合结果的输出更加方便快捷, 重点加强了正电子湮没实验谱和拟合结果的图形显示。介绍 PASA 软件的使用经验。

关键词: 正电子湮没谱分析; 数据拟合; 图形显示

中图分类号: TP311.56; TP319 **文献标识码:** A

1 引言

正电子湮没技术因其对材料电子密度的高度敏感性而成为一种研究电子结构和缺陷性质的有力手段。常用的正电子实验方法主要有正电子寿命测量、多普勒展宽测量和角关联测量技术。正电子寿命谱能近似地表示为有限个指数函数衰减项与仪器分辨函数的卷积和常数本底之和, 经最小二乘法拟合后可以得到各寿命分量的寿命值及其相应的强度大小。国际上通用的正电子寿命谱拟合程序 PATFIT 能以多种灵活的方式完成以上的拟合任务, 但 PATFIT 程序界面不够友好, 使用起来不方便^[1]。唐政等将 PATFIT 程序做了改进后发展出程序包 S-PATFIT, S-PATFIT 操作简便而且能对拟合质量进行判断, 并具有屏幕编辑和图形显示功能, 但这种程序包缺乏 Windows 界面友好性^[2]。研究正电子寿命连续分布的 MELT 程序需要在 MATLAB 环境下运行, 不利于软件移植^[3]。用于研究缺陷化学环境的多普勒展宽谱技术目前还没有成熟通用的程序版本。本文介绍了利用 VC++ 编写成的正电子分析软件 PASA (Positron Annihilation Spectrum Analysis), 该软件将 PATFIT、MELT 和多普勒展宽谱学 3 种正电子分析方法集成到一个 Windows 程序界面中, 在保留了原 PATFIT、MELT 精度

高、功能强等特点的基础上, 加强了实验谱读取功能、参数调节功能、多个谱一次拟合功能、结果输出功能、图形显示功能, 使得正电子实验谱分析更直观快捷、灵活高效。

2 PASA 软件主要功能

2.1 从 PASA 主界面中可以选择

(1) 正电子寿命谱。正电子寿命解谱包括解分立寿命的 PATFIT 分析程序和连续寿命谱的 MELT 分析程序, 软件主界面(图 1(a)和正电子寿命谱(图 1(b))。

(2) 多普勒展宽谱。多普勒展宽谱分析包括单探头多普勒展宽谱分析和双探头符合多普勒展宽谱分析, 单探头多普勒展宽谱(图 1(c)和符合多普勒谱见图 1(d))。

2.2 读取实验谱

通过选择谱文件对象, PASA 软件能够直接读取待解谱文件, 并在操作界面中显示其实验谱图, 从而使解谱过程更加直观。

2.3 方便快捷的参数调节

PASA 采用了 Windows 操作界面, 各参数设置都包含在相应的参数对话框中, 参数调节非常简便。

* 收稿日期: 2010-11-19; 修改日期: 2010-12-16

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10775107)

作者简介: 李辉(1985—), 男(汉族), 博士, 从事正电子谱学研究; E-mail: lih213@126.com

通讯联系人: 王柱, E-mail: wangz@whu.edu.cn

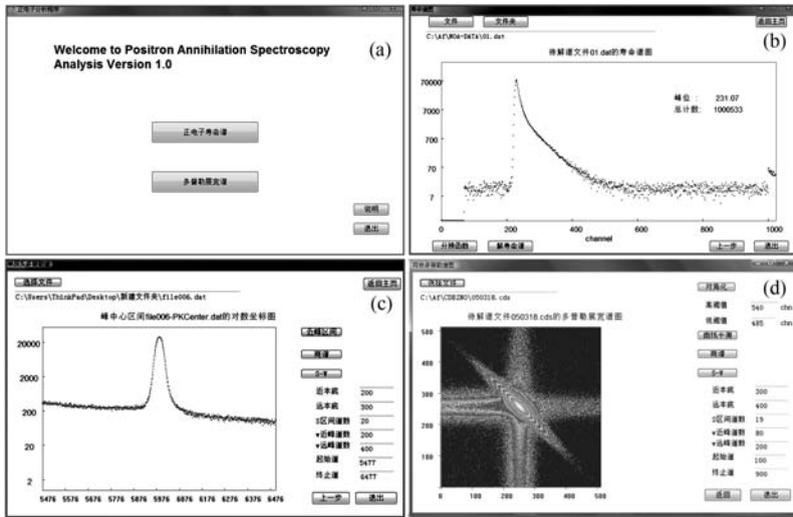


图 1 PASA 软件主界面及显示实验谱图

2.4 多个谱一次拟合

若在解谱过程中需要以相同参数解多个谱文件，可以将多个谱文件都放入同一文件夹内，在解谱前选择读该谱文件夹，然后进行解谱，即可得到多个谱的拟合结果。

2.5 拟合结果输出

在解正电子寿命谱时，寿命拟合结果输出包含两种方式，一种是将原始的拟合结果输出，另外一种为列表输出，即将寿命谱拟合结果中最关心的结果提取出来并列表存放于一文件中输出。在解多个谱文件时，由于原始的输出文件较大，将结果以列表方式输出的优点尤为明显。

2.6 图形显示

PASA 具有非常直观的图形显示功能。通过读取谱文件，操作界面上将显示其实验谱图。在解谱

过程中，PASA 还能显示拟合效果图，方便用户直接判断拟合质量。

3 PASA 软件组成

3.1 PASA 软件包

PASA 软件包采用 VC++ 编写而成，整个软件为压缩包 PASA.rar，主要包含 PASA.EXE, POSITRON.EXE, RESOLUTI.EXE, CORE.exe, Melt.exe 等可执行文件和一些参数文件。将软件包解压到 PC 机上，即可使用。

3.2 PASA 软件的运行环境

在 Windows XP, Vista, Windows 7 等系统上都能正常运行，其运行效率与硬件性能有关。PASA 设计程序流程图见图 2。

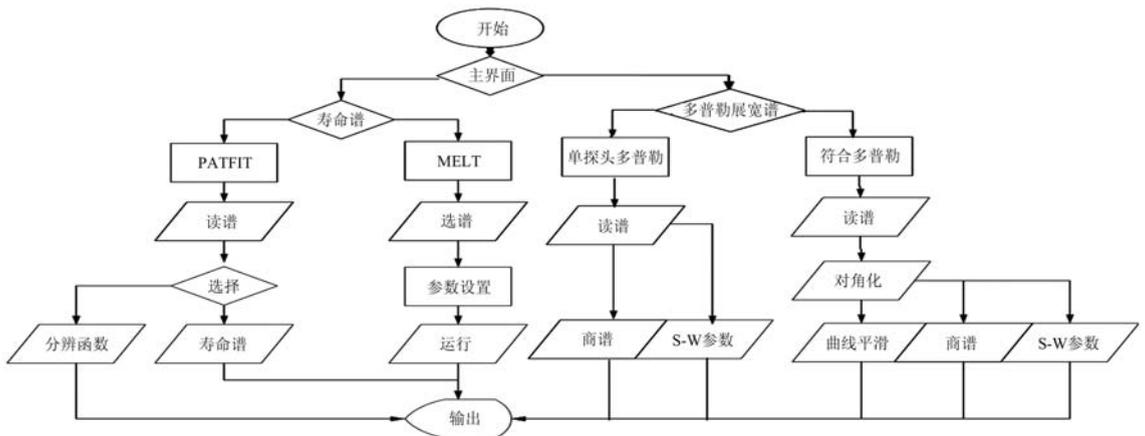


图 2 PASA 设计流程图

4 PASA 软件的使用经验

4.1 解正电子寿命谱

4.1.1 拟合仪器分辨函数

正电子寿命谱是随时间指数衰减的理想寿命谱与仪器分辨函数的卷积。在进行正电子寿命谱拟合之前,需要先确定仪器的分辨函数,而仪器的分辨函数受许多因素的影响(如仪器测量精度、电子线路的温度漂移、能窗的设定、源和探头几何位置等)。实验中有两种方法来确定仪器的分辨函数^[2]。

(1) 从一标准谱中拟合出仪器分辨函数,这需要先测量具有单一已知寿命的标准样品的正电子寿命谱。在 PASA 中选择分辨函数拟合,将标准样品的寿命值作为拟合初值并固定,同时把源成分寿命和强度值也固定下来,拟合结果将以多高斯函数之和的形式给出逼近的仪器分辨函数。

(2) 测定⁶⁰Co 同时发射的两个 γ 光子(能量分别为 1.17 和 1.33 MeV)的延时时间符合谱。在 PASA 中选择分辨函数拟合,并将寿命值固定成 0.0 ps,则拟合的结果将以多高斯函数之和的形式来给出逼近真实的仪器分辨函数。

4.1.2 拟合正电子寿命及其强度

将上一步得到的分辨函数代入到寿命拟合输入参数中进行拟合,从而分离出实验谱中的有限个寿命值及其相应强度。在拟合过程中要注意以下几点:

(1) 拟合范围的确定

拟合范围内的数据点应包含寿命谱的所有重要的物理信息。由于固有的时间分辨函数影响,使得在瞬时和短时的湮没事件单方向分散在零时间道的左侧而得不到相应的补偿(没有湮没时间为负值的事件,导致没有来自零时间道左侧的事件补偿),同时零时间点附近的数据点将严重偏离指数拟合模型。为此,必须舍弃零时间道附近的一些数据点,但舍弃太多数据点会导致这部分实验数据点统计精度降低,从而不能表征短寿命成分。在具体选取拟合起始点时,可逐点移动拟合起始点,观测拟合结果变化,直到拟合效果最佳且趋势平稳时较好,一般选峰位左侧离峰约为谱仪分辨率一半的位置做拟合起始点比较合适。

(2) 拟合寿命个数

只有选择了正确的物理模型才能够真实地反映

材料内部信息,这需要我们结合理论和经验来选择拟合寿命个数。对于具有短寿命成分的金属和半导体等材料,一般用两态模型得到的拟合结果会比较好。在进行三态拟合时,需要先固定一个寿命来降低拟合自由度,否则无法分离开寿命大小相近的短寿命成分。而对于高分子材料和多孔材料等具有长寿命湮没成分的材料,其拟合寿命个数可以到 3 个以上。当不清楚寿命拟合数时,可以先用单寿命拟合,得到一拟合优度,然后逐步增加拟合寿命个数再次拟合,看拟合优度变化,将具有最优结果的拟合寿命数用作实验分析。

(3) 拟合初值设定

拟合初值是为了拟合循环所设定的初始值,只有设置合理的初始值,拟合循环才能进行下去并得到拟合解。另外,拟合解的分布也与拟合初值设定有关,若要求拟合结果以 $\tau_1 < \tau_2 < \tau_3$ 分布,则拟合初值大小也必须满足 $\tau_{10} < \tau_{20} < \tau_{30}$,且初值范围要分布合理。通过固定拟合初值大小降低拟合自由度,我们可以研究具有已知寿命成分的材料(在拟合初值中输入已知寿命成分并固定)。

(4) 源修正的确定

正电子实验所用的源一般是将²²Na 源沉积在一衬垫物上并用膜(Al, Ti 和 Ni 等)封装起来,²²Na源衰变时发射出来的正电子总会有一部分在衬垫物和膜中湮没,在正电子进入样品内部之前,还有一部分会在空气或样品表面发生湮没(正电子素湮没,具有长寿命值)。这些非在样品内部湮没的寿命成分必须从实验谱中扣除。直接测定各源成分寿命值大小及其强度非常困难,实验中常通过测量一标准样品(密度与所测样品接近)的寿命谱,先拟合得到所有源成分的贡献,然后在实验谱中将源成分贡献扣除。

(5) 拟合质量判断

拟合质量不好的原因主要是设置了不正确的分辨函数或采用了错误的拟合模型,对拟合结果质量的判断,我们主要通过以下两种方法来判定:

1) 直接通过拟合结果判定:① 要看拟合优度是否接近于 1;② 不完善模型显著性是否接近 50%;③ 相关矩阵应接近对角化。

2) 通过观测权重剩余谱来判断拟合质量。

正电子寿命谱第 i 道权重剩余定义为

$$\gamma_i = \frac{y_i - f_i}{\sigma_i} \quad (1)$$

其中 y_i 为测量值, f_i 为真值, $\sigma_i^2 = y_i$ 为权重因子。由于放射性测量计数的统计误差服从泊松分布, 真值的区间为 $y_i \pm (y_i)^{1/2}$, 所以有 $-(y_i)^{1/2} < y_i - f_i < (y_i)^{1/2}$, 即 $-1 \leq r_i \leq 1$ 。这说明当拟合质量好时, 权重剩余谱的数据点应大部分落在剩余谱图中央 $r_i = \pm 1$ 的两条横线之内, 拟合效果图(图 3(a))和权重剩余谱图(图 3(b))。

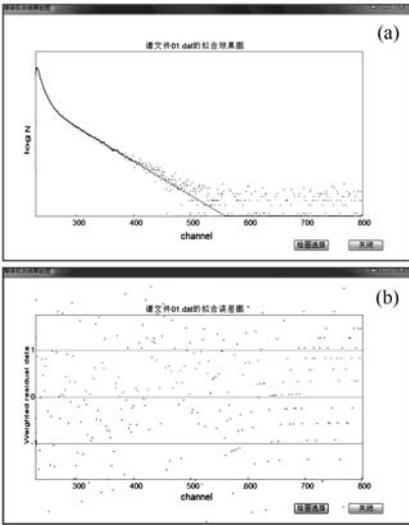


图 3 PASA 正电子寿命拟合结果图

4.2 MELT 连续谱分析

目前主要用两种连续寿命谱分析方法研究正电子寿命谱: 一种是利用拉普拉斯逆变换法分析正电子寿命谱的 CONTIN 程序^[4]; 另外一种是在 Shukla 于 1993 年发展完成的一种基于最大熵法分析方法研究正电子寿命连续分布的 MELT 程序^[3]。与 CONTIN 相比, MELT 不需要标准谱做参考, 而且具有高的分辨率和稳定性, 因而广泛地应用于正电子湮没分析研究中。

在进行 MELT 分析时, 有以下几点需要注意:

(1) 参数输入: MELT 的大部分输入参数和 PATFIT 参数相一致, 如谱仪分辨函数、道宽、拟合道的范围等, 不同的是 MELT 中不需要指定拟合寿命个数。

(2) 时间零点: 在 MELT 分析中需要输入时间零点值, 由于 MELT 能自动计算时间零点的整数道部分, 我们只需要设定其小数位值(称为 t_0 -shift)。确定 t_0 -shift 有两种方法: ① 给 t_0 -shift 设

定一初始值, 然后通过反复增加或减少 1 ps 进行拟合, 直到找到最佳的拟合结果为止; ② 先通过 PATFIT 拟合得出时间零点值, 然后将拟合得到的时间零点值的小数位部分做参数代入 MELT, 再通过微小的调整并拟合而寻找到最优解。Chen 曾指出 t_0 值选择不当主要影响短寿命成分^[5], 尤其对第一寿命分量 τ_1 , 而对长寿命成分影响较小。当 t_0 偏离真值时, τ_1 值会有所增加, 当 t_0 比真值偏低时, 拟合优度 χ^2 随着 t_0 的降低而迅速增加, 当 t_0 比真值偏高时, χ^2 的变化并不明显, 所以不能仅通过考察 χ^2 来判断拟合结果的好坏。

(3) 从熵权重因子 α 来判断拟合质量。

在 MELT4.0 中, 熵权重因子 α 由程序在设定的范围内自动改变, 这个范围由输入参量决定(Entropy-Weight-Start 到 Entropy-Weight-Stop)。设

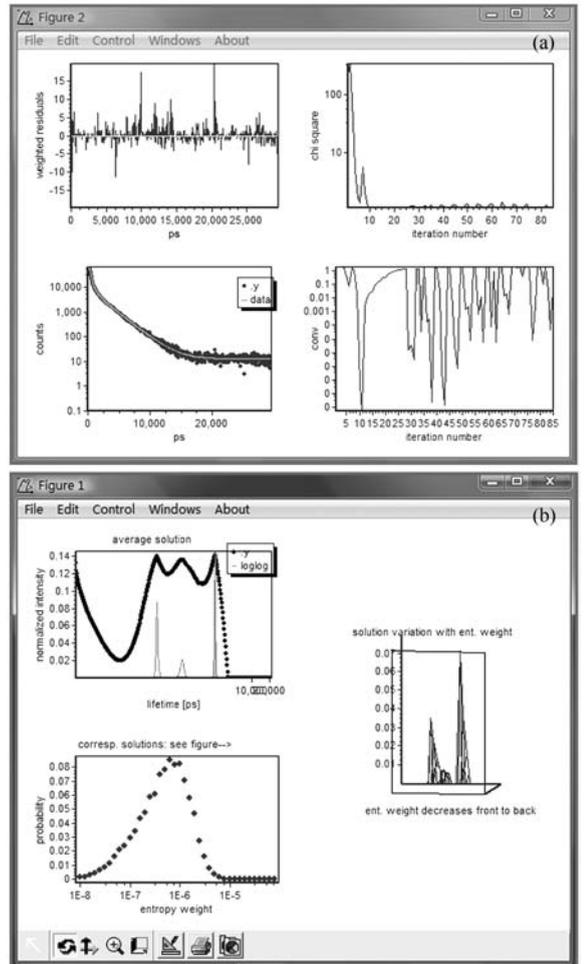


图 4 PASA 连续寿命分析(MELT)拟合结果图

定范围最恰当的方法是使得 α 从 Entropy-Weight-Start 变化到 Entropy-Weight-Stop 时, Probability 从零开始达到最大值然后再降至零, 最后将所有这些解取平均后作归一化得到最终解。MELT 分析的拟合效果图(图 4(a))和权重剩余谱图(图 4(b))。

4.3 多普勒展宽谱分析

由于多普勒展宽谱的能量分辨率较差, 实验中常用线性参数法来分析多普勒展宽谱的变化。常用的线性参数有 S 和 W 参数。 S 参数定义为扣除本底后, 511 keV 峰附近低动量的面积与总面积之比, 而 W 参数则定义为峰两侧高能区间的面积与总面积之比。求 S 和 W 参数的公式如下:

$$S = \frac{A_S}{A_0}, A_S = \int_{E_0-E_s}^{E_0+E_s} N_D dE, \quad (2)$$

其中, A_S 为扣除本底后, 峰附近的低动量区间的面积, A_0 为多普勒展宽谱扣除本底后的总面积, N_D 为正电子湮没的动量分布, E_0 为峰位对应的能量, E_s 为计算 S 参数时选择的能量区间的半宽度。

$$W = \frac{A_W}{A_0}, A_W = \int_{E_0-E_2}^{E_0-E_1} N_D dE + \int_{E_0+E_1}^{E_0+E_2} N_D dE, \quad (3)$$

其中, A_W 为扣除本底后, 峰两侧的高动量区间的面积, E_1 是计算 W 参数时选取的高动量区间到峰的最近距离, E_2 是高动量区间到峰的最大距离。图 5 显示了 S 和 W 参数的定义区域。

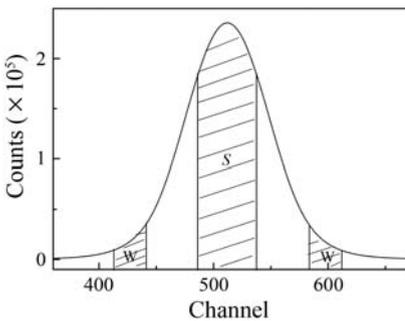


图 5 多普勒展宽谱 S 和 W 参数定义区域

4.3.1 单探头多普勒展宽谱分析

PASA 中单探头多普勒谱分析方法按照(2)式和(3)式进行(程序界面见图 1(c)), 其解谱参数设置上有以下几点要求:

(1) 近本底和远本底

多普勒展宽测量存在电荷收集不完全、康普顿

散射、环境辐射和 3γ 湮没等效应, 因此单探头多普勒谱本底过高, 峰本比约为 10^3 。在进行本地扣除时, 其本底范围应选取在谱形平缓处。

(2) S 区间和 W 区间设置

S 参数主要由正电子与低动量的价电子湮没所决定, 而 W 参数是由正电子与高动量的核芯电子湮没所决定。在设置区间时, S 和 W 参数应能充分反映其物理意义, 同时也要保证统计计数不能太小。

4.3.2 双探头符合多普勒展宽谱分析

利用两个高纯锗探头做能量和时间符合处理, 可以很好地去掉多普勒能谱中由于电荷收集不完全、康普顿散射、环境辐射和 3γ 湮没等效应所造成的能量偏移, 大大降低本底, 使多普勒展宽谱的峰本比提高到 $10^5:1$ 以上。若两探头探测到的两个湮没 γ 光子能量分别为 E_1 和 E_2 , 则有:

$$E_1 = m_0 c^2 + \frac{c p_L}{2} - \frac{E_b}{2}, \quad (4)$$

$$E_2 = m_0 c^2 - \frac{c p_L}{2} - \frac{E_b}{2}, \quad (5)$$

其中, c 为光速, m_0 为电子的静止质量, E_b 是电子的结合能, p_L 是电子-正电子对在探头方向上的动量。在选取合适的中心区间后, E_1 和 E_2 构成二维图(见图 1(d))。为此就可以定义另外两个能量: 能量之和 $E_s = E_1 + E_2$ 以及能量之差 $E_d = E_1 - E_2$ 。由于 E_b 相对较小, 可忽略不计。

PASA 在分析符合多普勒展宽谱主要由以下几步组成:

(1) 符合多普勒展宽谱中心化

实验的多普勒展宽谱的峰值位置并不一定在谱图正中心, 为了便于后续分析处理, 需要先调整峰的位置(也称为 center 过程), 谱数据经过 center 处理后, 其峰值位置调整到谱图正中心。

(2) 符合多普勒展宽谱对角化

对角化过程的目的主要是将二维谱整合为一维谱, $E_1 + E_2 \approx 2m_0 c^2$ 上的点表征的是同一个正电子-电子对湮没所产生的两个 γ 光子。选取能量范围为 $E_{lower} < E_s < E_{upper}$, 其中 E_{lower} 和 E_{upper} 分别对应能量的低阈值和高阈值, 然后将该范围内谱数据沿对角线方向投影, 就能将二维谱转换为一维的多普勒展宽谱。

(3) S 和 W 参数

符合多普勒展宽谱的 S 和 W 参数区间设置和分析过程与单探头多普勒展宽谱一致,但符合多普勒展宽谱的 S 和 W 参数的求解对象是经过对角化后的一维多普勒展宽谱。

5 小结

本工作研究开发了一个新的具有 Windows 界面友好性的正电子谱分析软件 PASA。该软件集成了广泛应用于正电子研究的 3 种分析方法:分立寿命分析(PATFIT),连续寿命分析(MELT),多普勒展宽谱分析。软件保留了 PATFIT 功能强和精度高等特点,能脱离 MATLAB 环境独立运行 MELT 程序,并实现了完整的多普勒展宽谱分析功能。在软件的应用方面,对利用 PASA 分析正电子

寿命谱和多普勒展宽谱的经验作了详细的介绍。

参考文献 (References):

- [1] Kirkegaard P, Eldrup M, Mogensen O E, *et al.* Comput Phys Commun, 1981, **23**(3): 307.
- [2] Tang Zheng, Wang Shaojie. Nuclear Techniques, 1994, **17**: 709 (in Chinese).
(唐政, 王少阶. 核技术, 1994, **17**: 709.)
- [3] Shukla A, Peter M, Hoffmann L. Nucl Instr and Meth, 1993, **A335**: 310.
- [4] Gregory R B, Zhu Y K. Nucl Instr and Meth, 1990, **A290**: 172.
- [5] Chen Z Q, Wang Z, Wang S J. Nucl Instr and Meth, 2000, **B160**: 139.

A Positron Annihilation Spectroscopy Analysis Program based on Windows Interface^{*}

LI Hui, ZHOU Kai, WANG Zhu[#], CHEN Zhi-quan, WANG Shao-jie
(*Department of Physics, Wuhan University, Wuhan 430072, China*)

Abstract: Based on the commonly used PATFIT and MELT program, a new program package —— Positron Annihilation Spectrum Analysis(PASA) with many user-friendly applications was developed. The main modifications are: three kinds of positron analysis methods (PATFIT, MELT, Doppler) were incorporated into PASA; MELT could run independently without being in MATLAB environment; Detailed Doppler analysis program were programmed into PASA. Experiences of using the PASA program were also introduced.

Key words: positron annihilation spectroscopy analysis; data fitting; graphic display

* Received date: 19 Nov. 2010; Revised date: 16 Dec. 2010

* Foundation item: National Natural Science Foundation of China(10775107)

Corresponding author: Wang Zhu, E-mail: wangz@whu.edu.cn