

# 离子成像实验图像处理引入的近似及修正<sup>\*</sup>

张竞辉<sup>\*\*</sup>, 许继军, 解金春, 沙国河

(中国科学院大连化学物理研究所分子反应动力学国家重点实验室, 大连 116023)

**摘要:** 针对传统离子成像实验中使用的图像分析算法中引入的近似, 结合标准的离子成像装置模型提出了一种修正方法, 计算结果表明, 这种方法可以很大程度上改善所得到的三维剖面分布的精确度. 利用这一方法重新计算了碘原子在 278.50 nm 处(2+1)REMPI 产生的光电子的平均动能分布, 指出其中存在着两个不同的离子态( $^3P_0$ ,  $^3P_1$ )跃迁, 同时得到了达 3.9% 的相对能量分辨率.

**关键词:** 光电离; 光电子成像; 反阿贝尔变换

中图分类号: O433.1 文献标识码: A

## 1 引言

在许多动力学过程中, 典型的如光解离和光电离, 都会释放出具有某种空间取向分布的碎片. 如果希望对所研究的过程有完整而准确的认识, 同时掌握碎片的能量分布和角分布的信息就显得非常重要. 1987 年, 为研究光解离过程中碎片角分布的规律, Chandler 和 Houston 发展了一种称为离子成像(Ion Imaging)的技术<sup>[1]</sup>. 在这种技术中, 一般使用由微通道板(MCP)、荧光屏和 CCD 相机组成的位置敏感探测器(二维)代替传统的一维探测器, 可以一次获得带电粒子的二维投影分布结果, 从而得到关于所研究动力学过程的完整认识, 极大地提高了对光解过程中有关参数的获取效率. 这种方法在光电离过程的研究中也得到了应用. 在光解实验中, 我们希望了解反应产物的全部三维空间分布, 而在离子成像实验中直接的实验结果只是碎片三维分布在探测器表面上的二维投影  $f(x, y)$ . 一般仅仅依靠二维投影不可能得到完整的三维空间分布, 但如果我们采用线偏振的解离激光并让激光的偏振方向平行于探测器的表面, 这时产物的速度是围绕解离光偏振方向成轴对称分布的, 即  $F(r, y)$ . 此时, 我们可以利用一种叫反 Abel 变换( Abel Inversion )的数学处理方法从二维投影  $f(x, y)$  得到离子完整的三维空间分布  $F(r, y)$ . 反 Abel 变换在实验研究中的最初应用是分析在燃烧和等离子体等实验中得到的断层扫描图

像, Chandler 等人首先将其应用于离子成像实验的图像处理<sup>[2]</sup>. 但目前在几乎所有的离子成像工作中, 都没有考虑到实验的实际情况与标准反 Abel 变换间的差异.

本文中, 我们首先介绍反 Abel 变换的具体数学处理过程, 然后讨论在离子成像实验中这种变换引入的近似及需要做的修正.

## 2 反 Abel 变换的基本原理

正如上面所提到的, 当带电粒子分布满足轴对称性要求时(在多数光解动力学过程中, 这一点都能得到满足), 我们可以利用反 Abel 变换来从二维投影  $f(x, y)$  求得它们的三维分布  $F(r, y)$ .

为简化起见, 我们选取这种投影中的一个“细胞”——一个把二维轴对称分布的平面压成一维分布的子投影. 图 1 显示了这个过程, 对于  $x$ - $y$  平面上的一个轴对称分布  $\epsilon(r)$  ( $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ ), 它在  $y$  方向的投影为  $P(x)$ . 我们可以写出  $P(x)$  的表达式为:

$$\begin{aligned} P(x) &= 2 \int_0^{\infty} \epsilon(r) dy \\ &= 2 \int_x^{\infty} \frac{r\epsilon(r)}{(r^2 - x^2)^{1/2}} dr \end{aligned} \quad (1)$$

此积分变换一般称之为阿贝尔变换( Abel Transform ). 其逆变换给出了从投影曲线得到原始平面分布的途径, 又称为反阿贝尔变换( Abel Inversion )<sup>[3]</sup>:

$$\epsilon(r) = - \frac{1}{\pi} \int_r^{\infty} \frac{P'(x)}{(x^2 - r^2)^{1/2}} dx \quad (2)$$

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金资助项目(29953001). <sup>\*\*</sup> 通讯联系人, E-mail: jhzhang@dicp.ac.cn

根据这一公式,我们对二维投影  $f(x, y)$  逐行进行变换就可以得到离子完整的三维空间分布  $F(r, y)$ .

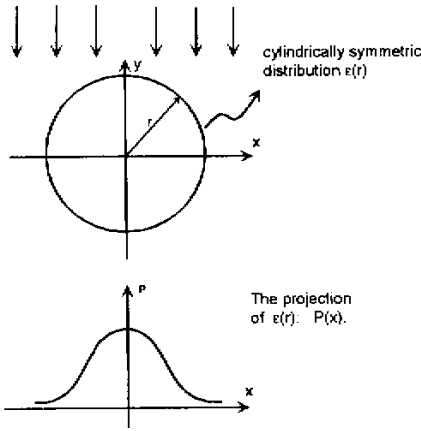


图 1 轴对称图形的投影示意图

Fig.1 A projection of a cylindrically symmetric distribution  $\epsilon(r)$

### 3 离子成像实验中的投影方式

在前面关于反 Abel 变换的讨论中,存在一个隐含的约定,即由三维立体分布得到的投影是在平行入射光线(fan-beam)的“照射”下得到的(图 1),但实际情形是带电粒子从一个点源出发轰击在探测器上的,它们的飞行轨迹构成了一个锥形面(cone-beam)(图 2)这种差别也意味着对应着平行投影的反 Abel 算法的失效.在早期的离子成像研究中,因为当时的分辨率比较低,平行投影和锥形投影的差别还不足以反映在分辨率的变化上,这时反 Abel 算法还是有效的.但自从 Parker 等人提出速度成像方法<sup>[4]</sup>以来,离子成像的分辨率有了很大的改善,这时就有必要仔细考察图像的形成过程并选用合适的算法了.

Bordas 等人在 1996 年提到这一问题<sup>[5]</sup>,他们还图示了在不同设置下问题的严重程度,但没有给出解决办法.其后的 1999 年, Winterhalter 等人提出了一种称为正则化方法(regularization method)<sup>[6]</sup>的反演算法来解决这个问题,他们的方法很复杂,更接近于一种普适的理论,而且实验模型也与常用的离子成像装置差别很大.这里,我们结合我们的装置讨论有关问题并给出一种简单而有效的修正方法.

首先讨论离子成像实验中带电粒子的行为,关于离子成像装置已有详细介绍<sup>[1,4]</sup>.图 2 给出了一个被典型的平行电场(由带电栅网定义)加速后经过一段时间的自由飞行打在探测器表面上的离子轨迹.

设定离子的初始速度为  $V_0(V_{0x}, V_{0y})$  经加速后速度达到  $V_1(V_{1x}, V_{1y})$  加速总电压为  $U_0$ ,  $U_s$  为离子产生处与栅网间的电压,其余参数如图所示.根据能量守恒有:

$$\begin{aligned} V_{0x} &= V_{1x} \\ V_{1y} &= \sqrt{V_{0y}^2 + \frac{2qU_{sd}}{m}} \\ &= \sqrt{\frac{2qU_{sd}}{m}} + \frac{1}{2} \frac{V_{0y}^2}{\sqrt{2qU_{sd}/m}} - \dots \end{aligned} \quad (3)$$

其中,  $U_{sd} = U_s + U_d$ ,  $q, m$  分别为带电粒子的电荷和质量.在实际的研究中,  $U_{sd}$  的典型值为数千伏,而带电粒子的动能仅为几个电子伏特或更小.因此,上式中从第二项以后的所有展开项均可忽略.

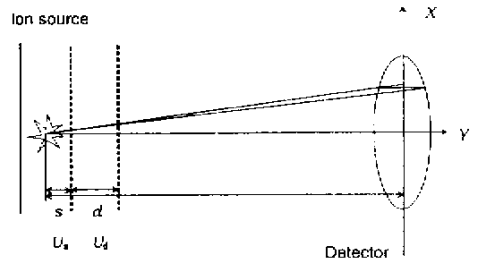


图 2 典型离子成像装置中离子飞行轨迹示意图

Fig.2 Sketch of experimental project method in Ion Imaging experiments

设  $\Delta t$  为初速度为  $V_0$  的离子与速度为零的离子到达探测器时的时间差,可表示为:

$$\Delta t = \frac{V_{0y}}{a_s} = \frac{V_{0y}sm}{qU_s} \quad (4)$$

这样,初速度  $V_0(V_{0x}, V_{0y})$  的离子到达探测器时偏离探测器中心的位移  $S$  为:

$$\begin{cases} S_x = V_{0x}(t_s + t_d + t_l) = V_{0x}T_x \\ S_y = V_{1y}\Delta t = V_{0y}T_y \end{cases} \quad (5)$$

其中,

$$\begin{cases} T_x = s\sqrt{\frac{2m}{qU_s}} + d\sqrt{\frac{2m}{qU_d}} + (l - d - s)\sqrt{\frac{m}{2qU_{sd}}} \\ T_y = \frac{V_{1y}sm}{qU_s} = \frac{s}{U_s}\sqrt{\frac{2mU_{sd}}{q}} \end{cases} \quad (6)$$

所以,速度大小为  $V_0$  的离子在飞行了  $l$  距离后的空间分布为椭球,即我们得到的离子成像图像是一个椭球的锥形投影.这个椭球的长短轴比为:

$$\eta = \frac{T_y}{T_x} = \frac{\sqrt{\frac{2U_{sd}}{U_s}}}{\sqrt{2} + \frac{d}{s}\sqrt{\frac{2U_s}{U_d}} + \frac{l-d-s}{s}\sqrt{\frac{U_s}{2U_{sd}}}} \quad (7)$$

这个比值仅与实验装置的设置有关,与带电粒子的性质无关。一般地,离子在探测平面附近的成椭球状分布,  $\eta$  对应着椭球的长短轴比。 $\eta \rightarrow 0$  时,离子三维分布很扁,基本上紧贴着探测器平面,这时反 Abel 结果与实际情形偏差最小。

#### 4 迭代修正及在碘原子光电子成像中的应用

因为离子的投影行为已不符合反 Abel 变换的要求,我们需要对反 Abel 变换算法作一些修正以适应实际情况。作者发展了一种迭代变换的方法来满足需要,基于的出发点是:实验中的  $\eta$  值一般都比较小(0.20.3),这样得到的图像与平行投影会有一些偏差,但不会太大。因此,由反 Abel 变换得到的结果应是一个很好的估计值,计算由此重构出的图像与原始结果间的差别,把它们的差值的反 Abel 变换的结果作为第一步结果的修正,重复这个步骤,直到得到与实验结果符合得很好的修正结果来。这种迭代算法带来的另一个好处是可以修正反 Abel 变换

本身带来的误差。按照 Dasch 的结果<sup>[7]</sup>,对三点阿贝

尔去卷积算法,误差可达 3% 以上,对二点阿贝去卷积等方法,误差更大。迭代算法可以有效的校正这些误差。

为说明锥形投影与平行投影间的差别,我们选取一个在剖面上呈横向高斯分布(纵向无分布,半高全宽 FWHM 为 3 个像点)的轴对称三维分布,它的平行投影图在纵向没有分布,但它的锥形投影则会引起纵向的弥散。图 3 显示了这一情况,纵向的弥散达两个像点(对应的  $\eta$  为 0.3)。

按照我们的迭代算法,我们重新计算了曾报道<sup>[8]</sup>的碘原子的光电子成像结果的三维分布,发现迭代算法对计算结果有很大改进。图 4 为第一次迭代和经过八次迭代后得到的剖面分布重构出的投影分布与实验原始结果(强度分布区间为[0,255])间的差别,表 1 为每次迭代后差的平方和及差值范围(|Max| + |Min|)。要指出的是,虽然第八次迭代后差值范围为 1.9682,但 90% 的差值都落在区间[-0.1383,0.1398]中,相对最高强度为 255 的原始结果来讲,重构图像的精度已非常高了。

利用上面所讨论的迭代反 Abel 变换方法,我们重新计算了碘在 278.50 nm 处的  $[5p^2P_{3/2}] \rightarrow I(^3P_0) 6p[1]_{1/2} \rightarrow I^+$  通道的光电子平动能分布,如图 5 所示,关于该工作的实验细节见文献[8]。通过对

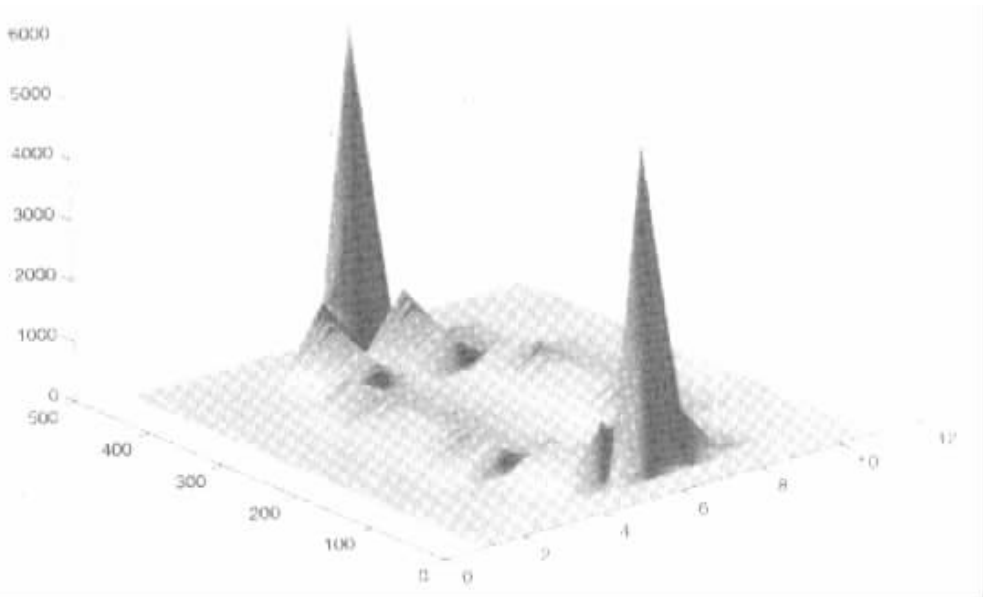
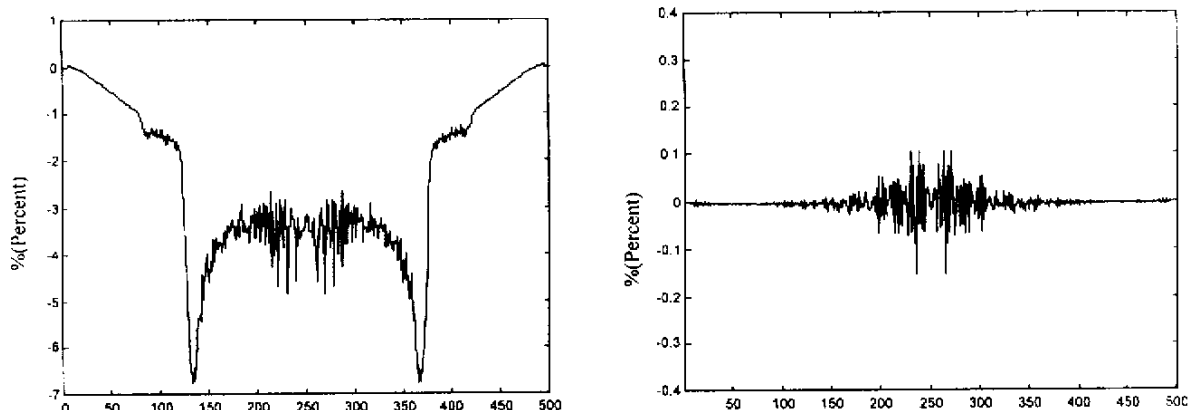


图 3 剖面上一个横向高斯分布对应的锥形投影图(平面的  $x-y$  轴坐标表示图像的像素(pixel))

Fig.3 A reconstructed intensity distribution on detector plane, produced by cone-projection of a Gaussian 2D charged particles distribution



(a). 1 iteration

(b). 8 iterations

图4 第一次和第八次迭代后得到的投影分布与实验原始结果间的差别  
纵坐标为差与原始结果最大值的百分比,横坐标表示图像的像素值(pixel).

Fig.4 The difference between the projection and the raw experimental result in Ref.8 after successive iterations according to the iterative procedure described in this article

表1 迭代后投影分布与实验结果差( $\Delta$ )的平方和及差值范围

Table 1 The difference ( $\Delta$ ) between the projection intensity and the raw experimental result after specified iterations

Iterations	1	2	3	4	5	6	7	8
$\sum \Delta^2 \times 10^6$	8.9061	0.1937	0.0163	0.0051	0.0032	0.0023	0.0017	0.0012
Range of $\Delta$	28.7152	7.0882	4.2154	3.2839	2.9134	2.6409	2.1290	1.9682

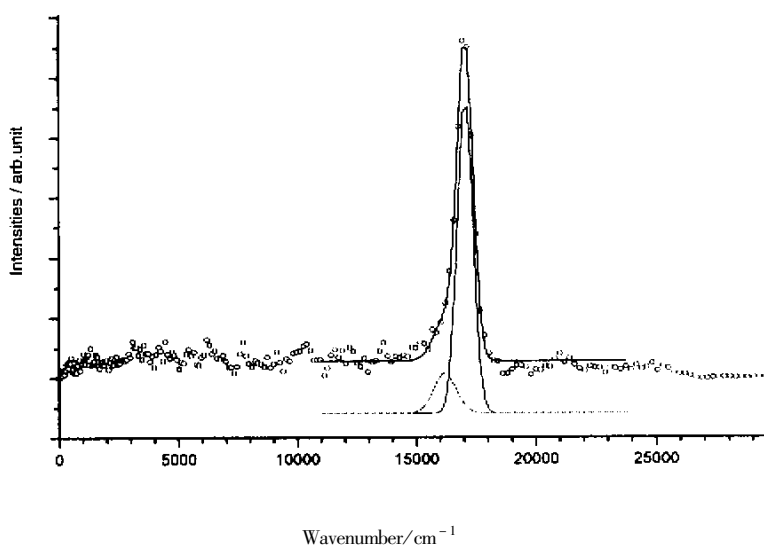


图5 碘原子在 278.50 nm 处跃迁的光电子平动能分布及高斯拟合结果

Fig.5 Open circles denote the kinetic energy distribution of photoelectrons ionized from iodine atom via (2 + 1) REMPI at 278.5 nm  
Solid lines are the Gaussian fitting results of experimental result.

各个动能峰的高斯拟合,我们可以得到光电子平动能分布的准确位置和宽度,从拟合结果中我们发现除了由 $^3P_0$ 中间态到 $^3P_0$ 离子态的跃迁较强外,还有存在着一个较弱的跃迁,它的强度约为前者的13%,

能级差为 $857\text{ cm}^{-1}$ .通过对碘离子能级数据的分析<sup>[9]</sup>,可以归属出这一跃迁对应着由 $^3P_0$ 中间态到 $^3P_1$ 离子态的跃迁,碘离子 $^3P_0$ 态与 $^3P_1$ 态间的能量差为 $726\text{ cm}^{-1}$ ,实验结果在误差范围之内.由此我们解释

了 278.5nm 光电离产生的光电子的不同分布特征的原因,这在文献 [8] 的工作中是不可能的.之所以 $^3P_0$  中间态到 $^3P_0$  离子态跃迁占主要地位,是由于我们所熟悉的里德堡态光电离选态倾向性原则决定的,即电离过程中剥离里德堡电子而保持离子核的状态不变(core conservation),而次要通道的存在可能是由于其共振中间态( $^3P_0$ )与其他电子态间存在着相互作用等因素所致.

从图 5 中还可以得到我们仪器的能量分辨率,以 $(5p \ ^3P_{3/2}) \rightarrow I(^3P_0) 6p[1 \ 1]_{1/2} \rightarrow I(^3P_0)$ 通道为例,它的光电子动能峰的宽度为  $660 \text{ cm}^{-1}$ ,相对能量分辨率为 3.9%,显著优于文献 [10] 中的结果,直观上看好 8 倍.

## 5 结 论

我们仔细考察了在离子成像实验中使用的图像分析算法,指出了其中引入的近似,并结合标准的离子成像装置模型提出了一种修正方法,计算结果表明,这种方法可以在很大程度上改善所得到的三维剖面分布的精确度.利用这一方法重新计算了碘原子在 278.50 nm 处(2+1) REMPI 产生的光电子的平动能分布,指出其中存在着两个不同的离子态跃迁,

同时得到了达 3.9% 的相对能量分辨率.

## 参 考 文 献

- [1] Chandler D W, Houston P L. *J. Chem. Phys.*, 1987, **87**: 1445
- [2] Strickland R N, Chandler D W. *Appl. Opt.*, 1991, **30**: 1811
- [3] Smith L M, Keefer D R, Sudharsanan S I. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 1988, **39**: 367
- [4] Eppink A T J B, Parker D H. *Rev. Sci. Instrum.*, 1997, **68**: 3477
- [5] Bordas C, Paulig F, Helm H, Huestis D L. *Rev. Sci. Instrum.*, 1996, **67**: 2257
- [6] Winterhalter J, Maier D, et al. *J. Chem. Phys.*, 1999, **110**: 11187
- [7] Dasch C J. *Appl. Opt.*, 1992, **31**: 1146
- [8] Zhang Jinghui (张竞辉), Tao Chong (陶冲), Dai Dongxu (戴东旭), Gu Yukun (顾玉昆), Xie Jinchun (解金春), Zhang Cunhao (张存浩). *Chin. J. Chem. Phys.* (化学物理学报), 1998, **11**: 491
- [9] Wang D., Li Y., Li S., Zhao H., *Chem. Phys. Lett.* 1994, **222**: 167
- [10] Jung Y J, Kim Y S, Kang W K, Jung K H. *J. Chem. Phys.*, 1997, **107**: 7187

# Abel Inversion in Ion Imaging : Approximation and Its Revision<sup>\*</sup>

Zhang Jinghui<sup>\*\*</sup>, Xu Jijun, Xie Jinchun, Sha Guohe

(State Key Laboratory of Molecular Reaction Dynamics, Dalian Institute of Chemical Physics, Dalian 116023)

**Abstract** We present a new iterative method for the analysis of data obtained by imaging techniques. This method is based on a detailed investigation for the motion of charged particles in ion imaging apparatus. The conventional inversion approach is a good approximation only in the case of small kinetic energies of the charged particles. The iterative method has been employed to study the photoelectron spectrum of iodine atoms via intermediate state  $\dot{P}_0$  by using 278.5nm laser. We got a relative energy resolution of 3.9% and found the photoionization involves two different passways corresponding to  $\dot{P}_0 \rightarrow ^3P_0$  and  $\dot{P}_0 \rightarrow ^3P_1$  respectively.

**Key words** Photoionization, Photoelectron Imaging, Abel Inversion.

\* Project supported by the National Science Foundation of China (29953001).

\*\* To whom correspondence should be addressed, E-mail: jh Zhang@dicp.ac.cn