

引用格式: HUA Xiaohong, GUO Yuliang, YAN Tianmin, et al. Time-stamp Camera Centroiding Algorithm and Dissociation Electron/Ion Momentum Distribution Simulation[J]. Acta Photonica Sinica, 2024, 53(4):0402001

花晓宏,郭玉良,阎天民,等.时间戳相机中心算法和解离电子/离子动量分布仿真[J].光子学报,2024,53(4):0402001

# 时间戳相机中心算法和解离电子/离子动量分布仿真

花晓宏<sup>1,2,3</sup>, 郭玉良<sup>1,2</sup>, 阎天民<sup>1</sup>, 李帅<sup>1,4</sup>, 王新成<sup>2</sup>, 江玉海<sup>1,2,3</sup>

(1 中国科学院上海高等研究院 基础交叉研究中心, 上海 201210)

(2 上海科技大学 物质科学与技术学院, 上海 201210)

(3 中国科学院大学, 北京 100049)

(4 阿贡国家实验室, 美国 雷蒙特 60439)

**摘要:**模拟仿真了速度成像谱仪中解离电子/离子飞行运动轨迹,获得电子/离子动量三维分布的真实图像,针对时间戳相机 Tpx3Cam 在动量分布探测成像中存在的团簇效应问题,发展了适用于高计数率情况下的中心算法。仿真结果显示,提出的中心算法可以减少约一个数量级的数据容量,并让单像素位置精度提高到 0.1 像素,实现了粒子动量分布的超分辨位置成像。模拟 ns 态电子电离和 N<sub>2</sub> 分子(1,1) 通道库伦爆炸实验,发现中心算法能够使电子平行于探测器平面的动量分辨提升 30%;使库伦爆炸产生的 N<sup>+</sup> 飞行时间谱分辨提升 80%。同时,在具有背景气体干扰情况下,对 CO 分子库伦爆炸产物离子进行半径协方差分析,提出的中心算法成功观测到 C<sup>+</sup> 和 O<sup>+</sup> 的关联。

**关键词:**时间戳相机;成像算法;电子和离子探测;超分辨成像;速度成像谱仪

中图分类号:O433

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20245304.0402001

## 0 引言

自由电子激光是最新出现的大型光源,现阶段主要特点是单脉冲能量很高,但重复频率较低。在与原子分子反应过程中,单脉冲往往产生较多的产物计数,反应后产物通过速度成像(Velocity Map Imaging, VMI)谱仪<sup>[1-4]</sup>等装置收集,实现产物粒子的二维成像。但对于较复杂的分子,电离后的产物通道较多,协方差是常用的研究分子不同反应通道的有效方法,但需要同时测量所有分子碎片带电粒子的飞行时间信息。传统 VMI 是 MCP-荧光屏(Phosphor Screen, PS)-CCD 相机成像模式,和冷靶反冲离子动量谱仪(Cold Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy, COLTRIMS)<sup>[5-9]</sup>相比,是一种更高效的粒子探测系统,能容忍单脉冲离子计数率较高,得到了广泛的应用<sup>[10-13]</sup>。相机是这个系统的重要组成部分之一,用于记录信号并将数据传输到电脑存储。但传统的 CCD 相机无法获取一个曝光周期内每个单独信号的飞行时间信息,只能提供探测器平面的二维分布信息,因此难以获得带电粒子的完整三维动量分布。虽然可以对相机采集到的二维位置分布进行反阿贝尔变换(Inverse Abel Transform)从数学上还原三维空间分布<sup>[14-16]</sup>,但这种方法要求粒子的原始空间分布必须具有柱对称性且柱对称的对称轴必须平行于探测器平面。因此对于原始空间分布不满足这些条件的二维图像,反阿贝尔变换方法就不再适用。

随着相机技术的发展,具有时间戳功能的 TimePix 系列相机的诞生,包括最新的 Tpx3Cam,打破了传统 CCD 相机的局限性。Tpx3Cam 具有高达 1.6 ns 的高时间分辨率,可以提供每个独立像素的精确时间和位置信息<sup>[17]</sup>,直接获得带电粒子的位置( $x$ )-位置( $y$ )-时间( $t$ )三维分布,因此可以根据这些信息计算粒子的初始

基金项目:国家自然科学基金(Nos. 11827806, 12174284),国家重点基础研究发展计划(No. 2022YFA1604302)

第一作者:花晓宏, huaxh@shanghaitech.edu.cn

通讯作者:江玉海, jiangyh3@shanghaitech.edu.cn

收稿日期:2023-09-23;录用日期:2023-11-24

<http://www.photon.ac.cn>

三维动量分布,并利用每个独立信号的三维信息进行多种参数的协方差分析。Tpx3Cam的出现,弥补了传统VMI不具有时间分辨的劣势,同时由于其广泛的适用性,在带电粒子探测、光子探测等领域都有出色表现。

但是Tpx3Cam会遇到一些基于相机本身的问题,影响记录信号的时间和空间精度,例如时间行走效应(Time-walk Effect)<sup>[18]</sup>和团簇效应(Cluster Effect)<sup>[19]</sup>。时间行走效应我们已在先前的工作中提出了解决方案<sup>[20]</sup>。早期的针对团簇效应的去团簇化中心算法(Declustering Centroiding Algorithm)在2008年由JAKUBEK J等基于初代TimePix芯片发展而来<sup>[21]</sup>,他们对 $\alpha$ 粒子撞击TimePix芯片产生的团簇进行二维高斯拟合以寻找中心位置和强度,并在粒子能量高于2 000 keV的情况下实现了高于 $1 \mu\text{m}$ 的亚像素超分辨(Subpixel Super-Resolution)(像素尺寸 $55 \mu\text{m} \times 55 \mu\text{m}$ )。随后更多的去团簇化中心算法被提出,以适用于不同的实验条件和数据处理要求<sup>[22-24]</sup>。但目前现有的用于TimePix系列相机的中心算法都是针对低计数率的情况,即要求团簇之间在位置上互相孤立,在计数率较高时难以对位置相连的团簇进行识别。

为了解决这个问题,基于Tpx3Cam相机在现有中心算法和我们提出的时间行走效应修正算法<sup>[20]</sup>,我们开发出了一种可适用于较高计数率条件下的中心算法,兼顾了计算效率与亚像素超分辨的能力,在提高Tpx3Cam的成像分辨的同时结合了对信号的时间行走效应的修正。利用SIMION软件对速度成像谱仪的电子和离子探测过程与团簇的形成进行了模拟,以贴近真实实验情况。使用中心算法对模拟产生的包含团簇效应的高计数率情况下的速度成像结果进行去团簇化处理,对比中心算法处理前后的电子/离子的位置分布/飞行时间分布展宽的变化,验证中心算法对实际实验中动量分辨的提升效果。对带有背景杂质信号干扰情况下的离子位置协方差分析进行了模拟,研究中心算法对协方差分析的作用。最后对中心算法适用的计数率上限问题进行了讨论。

## 1 时间行走效应与团簇效应原理

对于Tpx3Cam来说,信号采集具有延迟效应,如图1所示,红色和绿色曲线表示两个同时到达相机但具有不同强度峰值的光信号( $V_{s1}$ 和 $V_{s2}$ )。这些光信号在实际到达时间( $t_0$ )抵达Tpx3Cam传感器,然后信号在经过一个固定的放大周期(Time for Amplification, TFA)之后被放大<sup>[24]</sup>。信号强度在时间 $t_c$ 处达到峰值,并在一定时间后衰减到接近0。相机记录的信号到达时间(Time of Arrival, ToA)不是 $t_0$ ,而是信号强度超过阈值 $V_T$ 的时刻。只有经过放大后强度在 $V_T$ 以上的信号才会被记录。ToA和 $t_0$ 之间存在时间差 $\delta$ ,这个时间差的大小取决于信号的峰值,这种现象被称为时间行走效应。由于时间行走效应,相机记录的到达时间要晚于信号的实际到达时间。相机记录的另一个与时间相关的量是过阈值时间(Time over Threshold, ToT),它表示信号脉冲超过阈值 $V_T$ 的持续时间。ToT与信号的峰值呈正相关( $V_s$ ),这意味着ToT越大,信号就越强。另一方面,ToT与 $\delta$ 呈负相关,ToT越大,时间延迟 $\delta$ 越小。基于信号到达传感器后强度随时间的演化模型,我们提出了一个具体的函数<sup>[20]</sup>,可以写成

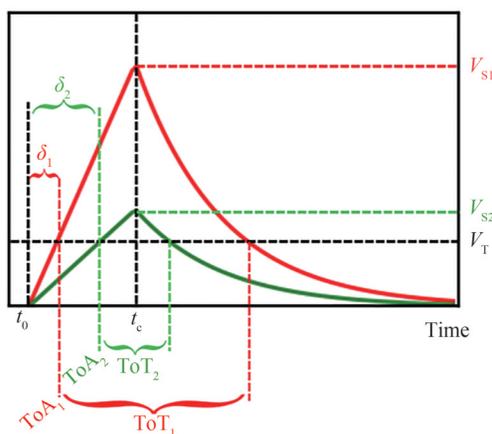


图1 两个不同幅值的光学信号在到达相机传感器之后强度随时间的演化

Fig. 1 The time evolution of intensity after signals of different peak intensities arrive at the camera sensor at the same time

$$\delta = \frac{1}{k} W(k \cdot \text{TFA} \cdot e^{k(\text{TFA} - \text{ToT})}) \quad (1)$$

式中,  $k$  为荧光屏衰减系数, TFA 为相机本身的信号放大时间,  $k$  和 TFA 都是常数;  $W$  指的是 Lambert W 函数, 该函数是  $f(x) = xe^x$  反函数。这个函数表明信号的 ToT 值和时间延迟  $\delta$  之间的定性关系, 意味着只需要根据每个信号的 ToT 值就可以修正其时间行走效应。

影响 Tpx3Cam 成像的另一个因素称为团簇效应。当荧光屏上的发光点通过光学透镜映射到 Tpx3Cam 的传感器上时, 光信号会同时照亮一片相邻的像素, 形成强度值近似为高斯分布的像素团簇(对于 TimePix 系列芯片直接采集带电粒子的情况下, 由于电荷扩散, 也会形成类似的二维高斯型强度分布的团簇)。如图 2 所示, 每个正方形代表一个传感器像素, 图 2(a) 中的光斑代表实际情况下由荧光屏-光学透镜成像系统直接映射到相机传感器的光信号的分布和位置, 这个光斑具有一定大小和高斯分布的强度<sup>[24-25]</sup>; 图 2(b) 是相机传感器上点亮的像素分布, 这也是我们直接采集到的团簇的形状。因此, 团簇效应导致屏幕上的一个原始信号被记录为多个独立像素的信号, 导致最终数据量增加, 成像分辨率降低。

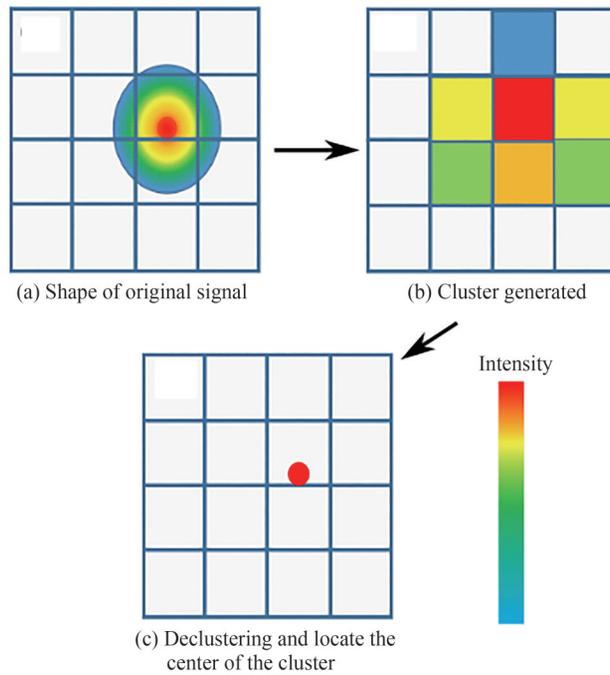


图 2 团簇效应及去团簇化的原理示意图

Fig. 2 Schematic diagram of the cluster effect and declustering

时间行走效应和团簇效应都会影响 Tpx3Cam 信号采集的时间和位置精度。因此, 本文的主要目标是开发一种方法来消除它们的影响, 最终将图 2(b) 的团簇恢复到相应的图 2(c) 的光斑中心精确位置, 消除由团簇效应产生出的额外像素, 并找到每个团簇的中心点的精确坐标, 以实现超出像素分辨极限的位置分辨。为了实现这一目标, 需要利用 Tpx3Cam 采集数据中的 ToA, ToT 和位置信息。

## 2 适用于高计数率情况下的中心算法

首先需要明确的是, 团簇中的像素位置上都是紧密成团的; 而且由于团簇具有近似高斯型的强度分布, 距离中心的远近不同, 像素的 ToT 值也不一定相同, 根据式(1), 由于时间行走效应, 各相邻像素之间的 ToA 也存在较小的差别。相比之下, 来自于不同团簇的像素在位置上通常是不相邻的, 且 ToA 差距也比较大。因此, 从理论上利用像素的位置和时间信息就可以判断它们是否来自于同一个团簇。中心算法依赖于两个关键判据: 首先, 团簇中的任何像素必须至少与同一团簇中的另一个像素在位置上相邻; 其次, 同一团簇内任意两个相邻像素对应的 ToA 值的差值要小于一个特定的值, 即  $\Delta \text{ToA} < \tau$ 。  $\tau$  的取值应根据设备的具体情况和所观察团簇的实际分布确定。根据实验中观察到的团簇的真实分布<sup>[24]</sup>, 模拟产生团簇: 选定一个

随机位置,以其为中心并赋予随机的强度,然后向周边扩散点亮像素并依照强度分布分别赋予这些像素强度,直到点亮的边缘像素强度刚好超过Tpx3Cam可探测的阈值为止。利用这种方法模拟产生了大量团簇( $2 \times 10^4$ 个),并记录每个团簇中相邻像素的 $\Delta\text{ToA}$ ,如图3所示, $\Delta\text{ToA}$ 的大部分值都小于60 ns。这意味着无论团簇的中心强度是多少,来自同一个团簇几乎所有像素与相邻像素的ToA的差值都不会超过60 ns,因此设定时间判据 $\tau = 60$  ns。

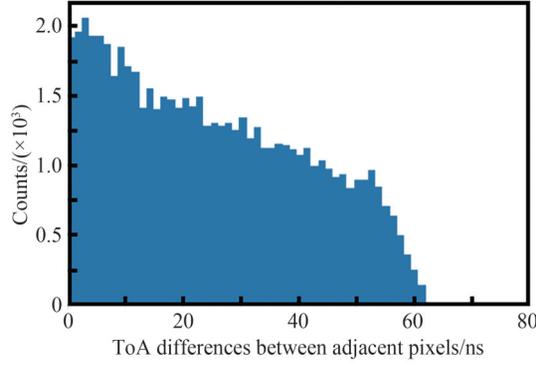


图3 来自同一个团簇的相邻像素之间的ToA差值分布  
Fig. 3 Time difference distribution of adjacent pixels from the same clusters

通过这两个判据,可以从大量的数据中筛选区分出不同的团簇。为了确定精确的团簇中心,对每个已识别出来的团簇进行二维高斯拟合。因为团簇中每个像素的ToT在位置上近似满足高斯分布,使用高斯拟合获得的中心将比相机本身采集到的整数像素坐标更精确,从而最终实现超分辨率<sup>[21]</sup>。

虽然理论上采用高斯拟合确定中心是更加科学和准确的方法,但对团簇的每个像素加权平均是一种更简单、更有效的选择,加权平均方法所消耗的运算时间要远远小于高斯拟合方法,仅为0.1%左右,并且依然可以获得较为准确的结果。该方法对团簇中每个像素的 $x$ 和 $y$ 坐标进行加权平均,权重为像素对应的ToT值,这样最后得到的加权平均坐标就是定位到的精确中心。

实际上,对于尺寸较大的团簇来说,可以证明利用高斯拟合确定中心和加权平均确定中心这两种方法是近似等价的。对于任意方向,以 $x$ 方向为例,在有 $n$ 个像素的团簇中,取像素的坐标为 $x_i$ ,其加权平均结果 $x_a$ 表示为

$$x_a = \frac{\sum_i^n x_i e^{-\frac{(x_i - x_0)^2}{\sigma^2}}}{\sum_i^n e^{-\frac{(x_i - x_0)^2}{\sigma^2}}} \quad (2)$$

式中, $x_0$ 为高斯分布的真正解析中心,指数部分表示符合高斯分布的ToT值。式(2)可转化为

$$\frac{\sum_i^n x_i e^{-\frac{(x_i - x_0)^2}{\sigma^2}}}{\sum_i^n e^{-\frac{(x_i - x_0)^2}{\sigma^2}}} = x_0 + \frac{\sum_i^n t_i e^{-\frac{t_i^2}{\sigma^2}}}{\sum_i^n e^{-\frac{t_i^2}{\sigma^2}}} \quad (3)$$

式中, $t_i = x_i - x_0$ ,表示团簇中的第 $i$ 个像素到团簇中心之间的距离。由于团簇近似是对称的, $t_i$ 相对于0也近似对称,式(3)的右边可以化简为

$$\frac{\sum_i^n t_i e^{-\frac{t_i^2}{\sigma^2}}}{\sum_i^n e^{-\frac{t_i^2}{\sigma^2}}} \approx 0 \quad (4)$$

最终可以得出 $x_a \approx x_0$ 。因此,团簇中每个像素点坐标的加权平均值近似等于高斯分布的中心。

通过上述过程,最终实现了中心算法,能够实现超越相机传感器像素分辨极限的超分辨,如图4所示,模

拟产生了 $10^4$ 个具有随机中心位置和中心强度的团簇,并使用中心算法对它们进行去团簇化定位中心,定位出的中心位置与原始信号的真正位置的偏差几乎都小于0.1个像素。随着团簇体积的增大,中心算法定位到的团簇中心越准确<sup>[21]</sup>,图5(a)与(b)是团簇中心像素的ToT值与平均团簇大小和经过中心算法之后的位置分辨(定位中心的精度)之间的关系。同时根据式(1),通过团簇中心的ToT值(近似等于团簇像素中最高的ToT)修正时间行走效应,使最终定位到的中心信号的时间精准度也得到提高。由于中心算法可以将一团紧密的像素信号转变为独立的单个信号,在数据容量上得到了极大的缩减,在平均团簇尺寸为 $3\times 3$ (像素)及以上的情况下,最终数据容量可以减少一个数量级,对后续数据处理的效率有很大提升。下文将模拟实验结果来展示中心化算法的优点,同时讨论其潜在的缺点。

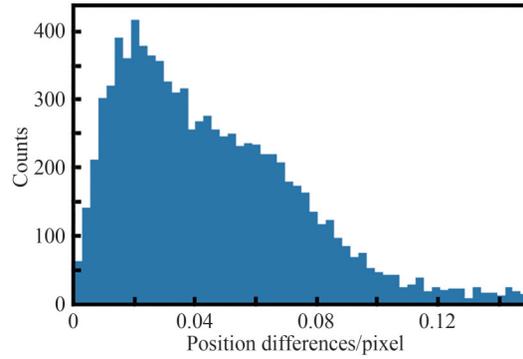


图4 经过中心算法处理后得到的信号中心与理想情况下真正的信号中心的距离差的分布

Fig. 4 Distribution of the position difference between the true center and fitted center with centroiding algorithm

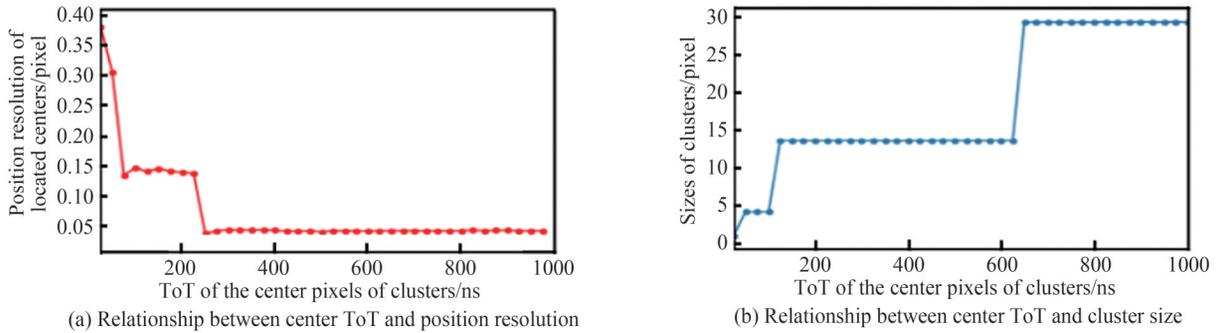


图5 团簇中心像素的ToT值与团簇尺寸和中心算法定位中心位置分辨的关系

Fig. 5 The relationship between the clusters' center ToT and the resolution of the cluster's center position located by centroiding algorithm/the sizes of clusters

### 3 基于SIMION软件的速度成像仿真

SIMION是一款专业用于电磁场模拟以及带电粒子在电磁场中运动轨迹计算的软件,在SIMION中构建与真实速度成像谱仪的离子透镜形状和电压相同的电极,模拟在速度成像谱仪中任意带电粒子的飞行轨迹,以此来获得接近真实情况的电子/离子的飞行时间谱和二维成像结果。

图6(a)是速度成像谱仪的核心部位,即离子透镜(Ion Lens)的实物图。根据离子透镜与自由飞行区的实际尺寸,在SIMION中进行3D模型的构建,如图6(b)所示。图6(c)为图6(b)中柱对称结构的离子透镜过中轴线的切面,可以看到由极板产生的电场的等势线分布。在反应区生成一定数量的待模拟的电子或离子,根据模拟的具体参数,赋予这些粒子特定的初始动能分布与出射角度分布,这些粒子将在电场的作用下加速到位于自由飞行区末端的探测器平面( $x-y$ 平面)上,与Tpx3Cam在实际实验中的表现类似,此时SIMION可以分别记录每个粒子撞击的具体位置坐标和从产生到撞击所需的飞行时间。

随后以每个粒子落点的位置为中心在Tpx3Cam相机的 $256\times 256$ 像素阵列上模拟产生团簇。对于我们的设备来说,Tpx3Cam直接采集到的是荧光屏发出的荧光信号,在Tpx3Cam内置阈值一定的情况下,团簇

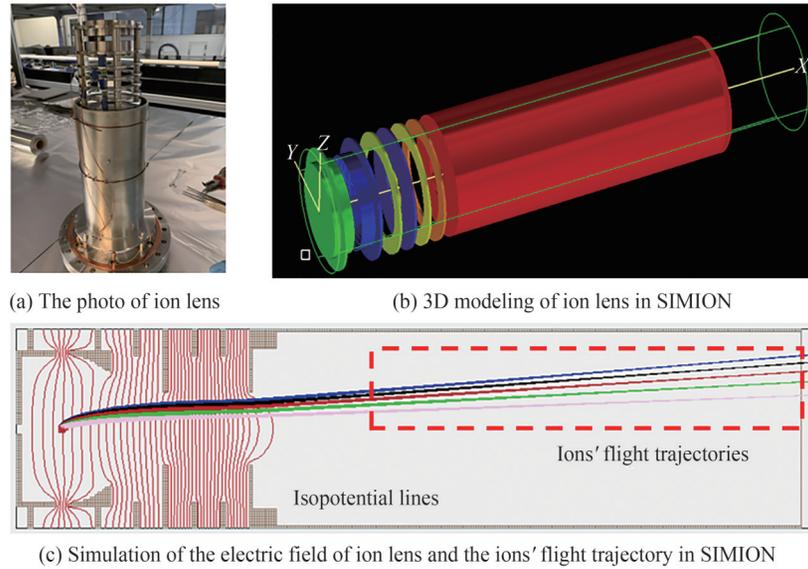


图6 速度成像谱仪的离子透镜实物图与SIMION模拟  
Fig. 6 The photo and SIMION simulation of ion lens of velocity map imaging

的大小与荧光信号的强弱有关, 荧光信号越强, 产生的团簇尺寸越大。但荧光信号的强弱与很多因素有关, 例如MCP的增益电压、离子透镜聚焦电场的强弱等。合理的假设荧光能够点亮Tpx3Cam传感器像素的ToT范围为25~1 000 ns (ToT=25 ns是TimePix3芯片所能感受到的最低亮度)。给每个在模拟中记录下来的粒子信号一个符合上述范围的随机ToT值, 并以此为团簇中心, 按照前述的高斯分布参数<sup>[24]</sup>点亮周边的像素(即衍生像素)并赋予它们ToT。最后由衍生像素的ToT与团簇中心的ToT的差值, 以及SIMION记录的中心像素的ToA, 根据时间行走效应公式(1)计算时间延迟并得到这些衍生像素的ToA, 这样得到了一组贴近真实实验的包含团簇效应和时间行走效应的结果, 其中包含每个被点亮像素的ToA、ToT、 $x$ 和 $y$ , 这些仿真结果将被用来验证中心算法的有效性。

## 4 结果与讨论

利用SIMION模拟速度成像系统的成像过程, 研究中心算法对分辨率的提升和对协方差分析的影响, 以及该算法的局限性。

### 4.1 中心算法对电子分辨的提升

对于VMI电子成像, 由于电子的高荷质比和极板的高引出电压, 电子的飞行时间展宽小于或相等于区分团簇的时间判据( $\tau = 60$  ns)。因此, 中心算法对电子的时间分辨和精度的提高并不明显。然而, 对于一般的多光子电离反应来说, 电子的动能分布展宽很窄, 在VMI的成像上具有很高的位置分辨, 因此团簇效应对电子的位置分辨有较为显著的影响。本文模拟了Tpx3Cam探测器上的电子成像过程, 由程序生成 $10^4$ 个电子, 初始动量方向按偶极近似的ns态电离分布排列

$$\frac{d\sigma_{ea}}{d\Omega} = \frac{\sigma_{ea}}{4\pi} [1 + \beta P_2(\cos \gamma)] \quad (-1 \leq \beta \leq 2) \quad (5)$$

式中,  $\sigma_{ea}$ 为截面,  $P_2(\cos \gamma) = (3 \cos^2 \gamma - 1)/2$ 为勒让德多项式。假设引发电离产生电子的线偏振激光的偏振方向平行于探测器, 各向异性参数 $\beta = 2$ , 电子的原始动能分布服从高斯分布, 中心值为4 eV, 标准差为0.02 eV。在SIMION软件上模拟电子在电场中的运动轨迹。以电子在探测器上的落点的像素坐标为中心按照随机中心强度生成团簇。由此得到电子二维位置图像原始和经过中心算法处理后的径向分布, 如图7所示。显然, 经过中心算法处理后的峰更尖锐, 这表明径向分布的分辨更好。采用中心算法后, 半径分布的峰值的半高全宽(Full Width at Half Maximum, FWHM)减少了约30%, 粒子落点半径正比于平行于探测器平面的速度分量, 因而电子平行于探测器方向的动量分量的分辨率相应提高了约30%。

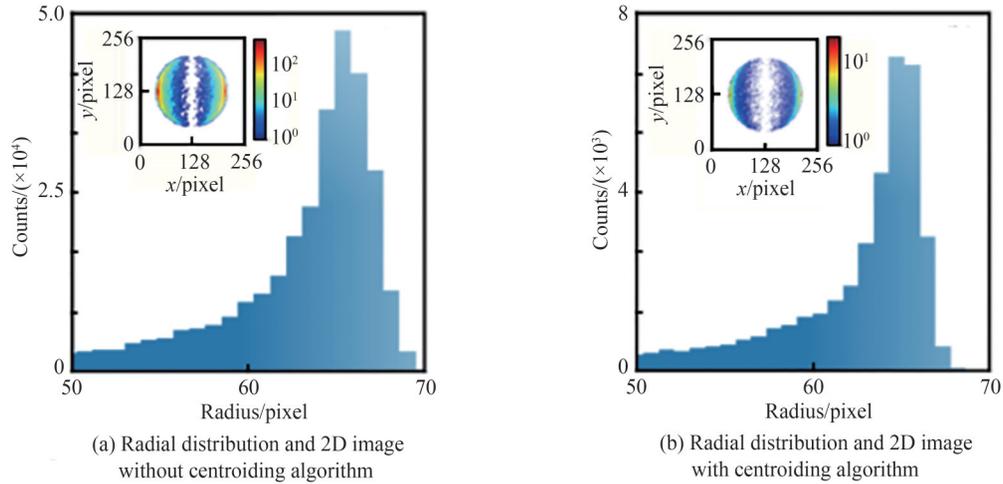


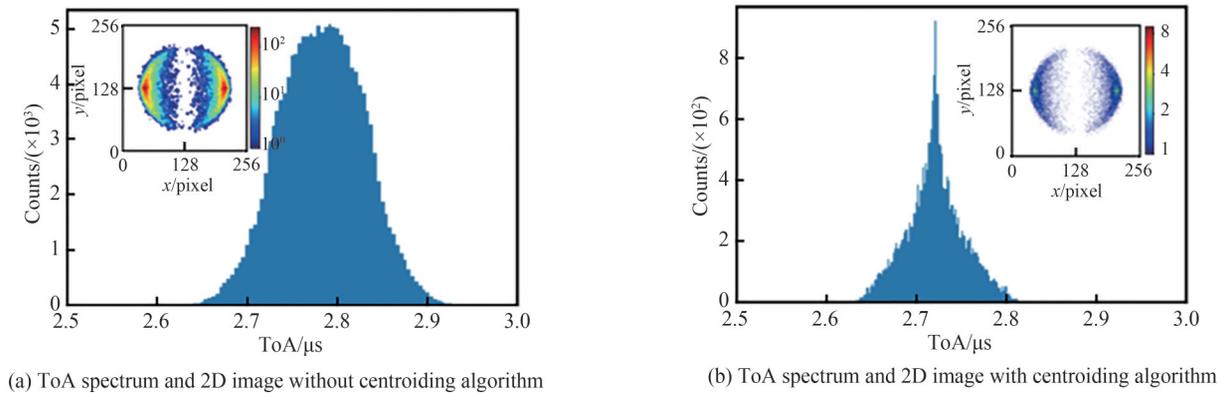
图7 中心算法对电子二维图像和径向分布的影响

Fig. 7 The effect of centroiding algorithm on electron 2D image and radial distribution

#### 4.2 中心算法对离子分辨的提升

对于光电离过程中产生的离子来说,特别是库伦爆炸的情况下,离子的动量分布展宽很大。在这种情况下,中心算法可以有效地减少数据容量,但对位置分辨的提高并不明显。另一方面,相比于电子来说,离子由于质量更大,飞行时间比电子长得多。根据与4.1节模拟使用的相同的VMI参数设置,离子的飞行时间在微秒量级,每个ToA峰的FWHM在 $10^{-7}$ 数量级。团簇效应和时间行走效应使时间分辨率明显变差,在ToA峰较为拥挤时难以区分。ToA的位置也由于时间行走效应存在偏移,导致三维动量特别是根据飞行时间重构的飞行时间方向动量的精度较差<sup>[20]</sup>。

对 $N_2$ 的(1,1)通道库伦爆炸<sup>[26]</sup>进行模拟, $2 \times 10^4$ 个 $N^+$ 离子在反应区产生并在电场作用下运动,原始动能大小分布服从中心值为3.9 eV,标准差为0.4 eV的高斯分布。比较原始的和经过中心算法处理后的ToA分布,如图8所示,应用了中心算法之后的ToA峰的FWHM比没有经过中心算法处理的FWHM小很多。经过拟合,FWHM减小了80%左右,离子的时间分辨具有很大的提升。同时根据飞行时间方向( $z$ 方向)的动量重构方法<sup>[20]</sup>, $P_z$ 的分辨取决于飞行时间的分辨,重构出的 $z$ 方向动量的分辨也相应提升了80%;Tpx3Cam在时间记录上存在的时间行走效应也得到了修正,记录下的飞行时间也更加接近真实的飞行时间。

图8 中心算法对库伦爆炸 $N^+$ 离子二维图像和ToA时间谱的影响Fig. 8 The effect of centroiding algorithm on 2D image and ToA spectrum of  $N^+$  from Coulomb explosion

#### 4.3 中心算法对方差分析的提升

协方差分析(Analysis of Covariance, ANCOVA)<sup>[27-29]</sup>在光电离反应产物分析中是一种非常有效的技术,它最初由FRASINSKI L J等引入物理实验数据分析中<sup>[29]</sup>,允许在无法进行符合测量(Coincidence

Measurement)实验的条件下寻找粒子之间的相关性,以确定解离反应通道等信息。协方差矩阵的计算公式表示为

$$\text{cov}(M, N) = \langle M \times N \rangle - \langle M \rangle \times \langle N \rangle \quad (6)$$

式中, $M$ 和 $N$ 为因变量矩阵。对于带电粒子来说,因变量可以是飞行时间、动量或角度等物理量。若 $M$ 与 $N$ 随着激光脉冲的顺序具有相同的涨落,则 $\text{cov}(M, N) > 0$ 。以二维离子图像径向分布的ANCOVA为例,讨论中心算法对ANCOVA的影响。

模拟在 $N_2$ 背景气体中CO分子在强激光场中的库仑爆炸。为了方便起见假设背景的 $N_2$ 和CO的库仑爆炸都为(1,1)通道,反应产生 $N^+$ 、 $C^+$ 和 $O^+$ 3种不同的离子,且所有产物离子的动量都遵循式(5)所描述的各向异性参数为2的初始角分布。 $C^+$ 的初始动能为3.5 eV, $O^+$ 为3.0 eV<sup>[30]</sup>, $N^+$ 为3.9 eV<sup>[26]</sup>。如图9所示, $\alpha$ 、 $\beta$ 和 $\gamma$ 峰对应 $O^+$ 、 $C^+$ 和 $N^+$ 离子。由于 $C^+$ 和 $O^+$ 来自同一个解离通道,理论上它们具有正相关性,在协方差矩阵的对应区域的矩阵元应该为正值。可以看到,图9(b)中,对应于中心算法结果的红色虚线框标记的 $\alpha$ 和 $\beta$ 峰之间具有较亮的斜线,这表示来自同一解离通道的 $C^+$ 和 $O^+$ 之间的关联性,在图9(a)中,未经中心算法处理过的结果并不明显。导致这种差别的原因可能是由于团簇效应引入了一个新的变量即团簇的容量波动,这种随机波动对相关离子的涨落有干扰,本身较弱的关联关系可能因为这种随机容量涨落而被抹平,最终影响协方差运算的结果。因此,将中心算法应用于ANCOVA可以消除团簇带来的随机计数波动,帮助我们更容易地找到一些反应产物之间较为微弱相关性,特别是在背景信号较为强烈的情况下。

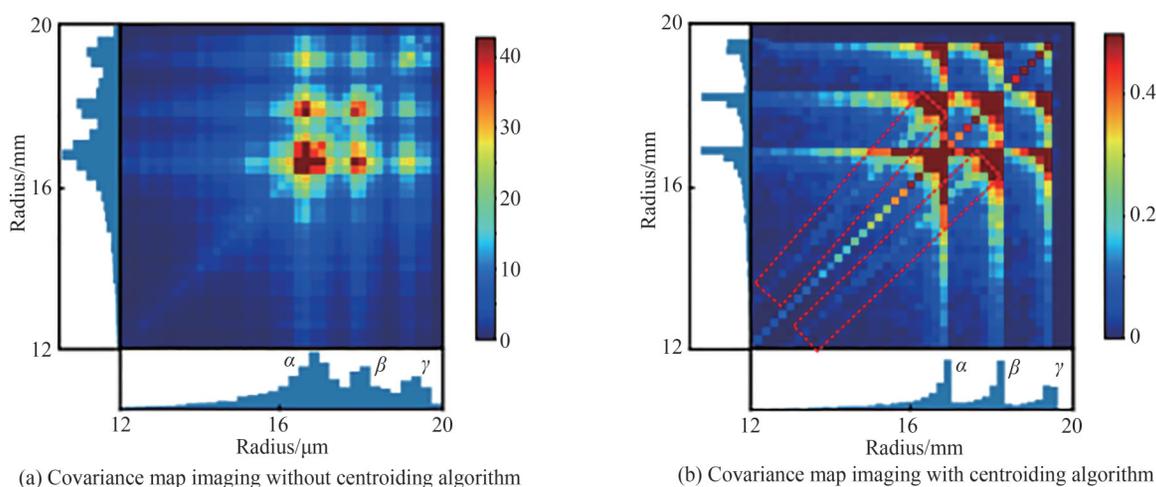


图9 离子图像半径分布的协方差运算结果对比  
Fig. 9 Comparison of the covariance maps of radial distribution of ion images

#### 4.4 中心算法的计数率限制

在计数率很高的情况下,可能会出现短时间内临近的像素相继被不同的信号点亮的情况,此时产生的不同的团簇可能会位置相邻且TOA差值很小,中心算法会将它们识别为同一个团簇,从而无法区分这些团簇。在这种情况下,中心算法会将相邻的不同团簇视为一个团簇,中心算法定位到的团簇中心就会存在很大偏差,且只能定位到一个中心,继而丢失真实信号。

以模拟与4.3节相同角度分布的离子为例,假设团簇的平均大小为5 pixel $\times$ 5 pixel,离子图像的最大半径为70像素。根据式(5),对于尺寸为10 $\times$ 10像素的信号密度最高的区域(此时 $\gamma = k \times \pi$ , $k$ 为整数),如图10所示,在不考虑初始能量展宽的情况下,离子飞入该区域的概率约为 $\frac{2\theta + \sin 2\theta}{\pi} \approx 9\%$ ,其中 $\theta = \arcsin\left(\frac{5}{70}\right)$ 。因此,在每个激光脉冲产生10个离子的情况下,大约有6%的可能性,其中两个离子会飞到密度最大的区域,由它们产生的团簇会相接触导致在位置上变得无法区分。在这种情况下,平均每100个计数中至少有6个会丢失。当每个激光脉冲产生20个离子时,这个概率增加到17%。不同的位置分布、时间分

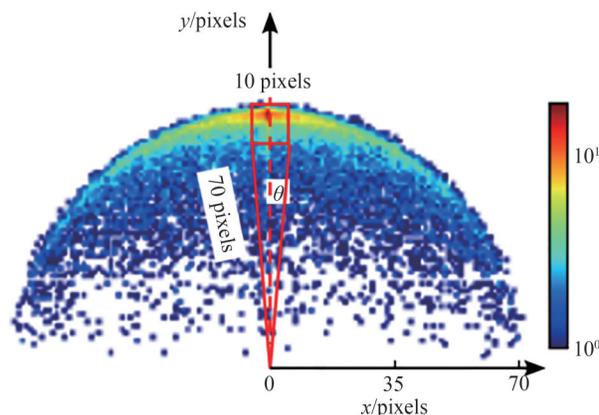


图10 信号最密集区域示意图  
Fig. 10 Schematic diagram of the densest signal area

布和平均团簇大小会影响中心算法容忍的计数率上限。如果荧光屏和相机的信号增益更大,所获得的团簇的平均尺寸也会更大,团簇之间更容易在位置上相连,中心算法适用的计数率上限也就更低。因此在实验中应结合实际,注意计数率对中心算法的限制。

现有的应对数据丢失的办法是在对识别出的团簇执行中心算法之后进行一步额外的判断,如果定位到的中心并没有落在强度最高的那个像素上,则可以认为这个团簇并不是单一团簇,而是至少两个团簇复合而成的,此时我们可以通过强度寻峰来定位每个团簇的中心像素。在计数率很高的情况下这种办法可以有效减少数据丢失的概率,但相应的需要放弃超分辨的实现。我们当前的工作是进一步改进中心算法,以提高其应对高计数率的能力。

## 5 结论

本文提出的针对高计数率的中心算法可以较为准确的识别位置相连的团簇,消除大量不必要的衍生信号,减少实验结果的数据容量(一般可以减少一个数量级),提高后续数据处理效率;同时,从团簇定位的信号中心位置具有0.1像素以内的分辨,实现了二维成像的亚像素超分辨。本文提出的中心算法使来自ns轨道电离的电子图像的位置分布半高全宽减小了约30%,意味着探测器平面方向上的动量分辨率提高了30%;(1,1)通道 $N^+$ 离子的飞行时间谱半高宽减小了约80%,时间分辨率提高了80%,重构的离子飞行时间方向动量分辨率也有相应的提高<sup>[20]</sup>。模拟分子库伦爆炸解离,中心算法对协方差分析也有很大的帮助,可以将离子的关联性凸显出来。然而,随着计数率的进一步提高,不同的光信号在极短的难以区分的时间间隔内照射到相同或临近位置的概率也会增加,不同的信号产生的团簇紧密聚集在一起,导致中心算法无法正确区分它们,影响定位中心的准确度,并在中心算法的运算中丢失许多真实信号。

### 参考文献

- [1] PARKER D, EPPINK A. Photoelectron and photofragment velocity map imaging of state-selected molecular oxygen dissociation/ionization dynamics[J]. *Journal of Chemical Physics*, 1997, 107(7): 2357-2362.
- [2] EPPINK A, PARKER D. Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses: Application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen[J]. *Review of Scientific Instruments*, 1997, 68(9): 3477.
- [3] YAN Yihui, LIU Yuzhu, DING Pengfei, et al. Multiphoton ionization dissociation dynamics of iodoethane studied with velocity map imaging technique[J]. *Acta Physica Sinica*, 2018, 67(20): 2033101.  
颜逸辉,刘玉柱,丁鹏飞,等.利用速度成像技术研究碘乙烷多光子电离解离动力学[J]. *物理学报*, 2018, 67(20): 203301.
- [4] LIU Yuzhu, XIAO Shaorong, ZHANG Chengyi, et al. Calibration of velocity map imaging system and photodissociation dynamics of 1, 4-C4H8BrCl[J]. *Acta Physica Sinica*, 2012, 61(19): 193301.  
刘玉柱,肖韶荣,张成义,等.离子速度成像系统校准及1,4-氯溴丁烷的紫外光解动力学[J]. *物理学报*, 2012, 61(19): 193301.
- [5] DORNER R, MERGEL V, ZHAOYUAN L, et al. 3-body final-state momentum distributions for swift  $H^+$  and  $He^{2+}$  on

- Hecollisions[J]. *Journal of Physics B*, 1995, 28(3): 435-444.
- [6] JIANG W B, WANG X C, ZHANG S, et al. A reaction microscope for AMO science at shanghai soft X-ray free-electron laser facility[J]. *Applied Sciences*, 2022, 12(4): 1821.
- [7] ZHANG S, WANG X C, JIANG W B, et al. Charge-encoded multi-photoion coincidence for three-body fragmentation of CO<sub>2</sub> in the strong laser fields[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2022, 156(13): 134302.
- [8] JIANG W B, WANG X C, ZHANG S, et al. Dissociative multi-ionization of N<sub>2</sub>O molecules in strong femtosecond laser field[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2022, 157(8): 084302.
- [9] FANG Yiqi, LIU Yunquan. Progress on the interaction between intense spatially structured light fields and atoms(invited) [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2021, 50(8): 0850209.  
方一奇,刘运全. 具有空间结构的强激光场与原子相互作用研究的新进展(特邀)[J]. *光子学报*, 2021, 50(8): 0850209.
- [10] SMITH J, WINKEL J, GOTTS N G, et al. Hadamard-transform imaging spectrometer for time-resolved and energy-resolved photofragmentation spectroscopy[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 1992, 96(24): 9696-9703.
- [11] ROHRBACHER A, CONTINETTI R. Multiple-ion-beam time-of-flight mass spectrometer[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2001, 72(8): 3386-3389.
- [12] GRAHAM A W G, RAY S J, ENKE C G, et al. First distance-of-flight instrument: opening a new paradigm in mass spectrometry[J]. *Journal of the American Society for Mass Spectrometry*, 2011, 22(1):110-117.
- [13] MANTUS D, MORRISON G. Ion image detection with a microchannel plate evaluated by using a charge coupled device camera[J]. *Analytical Chemistry*, 1990, 62(11): 1148-1155.
- [14] BORDAS C, PAULIG F, HELM H, et al. Photoelectron imaging spectrometry: Principle and inversion method [J]. *Review of Scientific Instruments*, 1996, 67(6): 2257-2268.
- [15] DRIBINSKI V, OSSADTCHI A, MANDELSHTAM V, et al. Reconstruction of abel-transformable images: The Gaussian basis-set expansion abel transform method[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2002, 73(7): 2634-2642.
- [16] ROBERTS G M, NIXON J L, LECOINTRE J, et al. Toward real-time charged-particle image reconstruction using polar onion-peeling[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2009, 80(5): 053104.
- [17] LLOPART X, BALLABRIGA R, CAMPBELL M, et al. Timepix, a 65k programmable pixel readout chip for arrival time, energy and/or photon counting measurements[J]. *Nuclear Instruments and Methods*, 2007, 581(1-2): 485-494.
- [18] AKIBA K, ARTUSO M, BADMAN R, et al. Charged particle tracking with the Timepix ASIC[J]. *Nuclear Instruments and Methods*, 2012, 661(1): 31-49.
- [19] CAMPBELL M, HAVRANEK V, HEIJNE E, et al. Charge collection from proton and alpha particle tracks in silicon pixel detector devices[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2007, 1-11:1047-1050.
- [20] HUA X H, GUO Y L, WANG X C, et al. Tpx3Cam applications: 3D momentum reconstruction based on analytic time-walk correction and noise reduction[J]. *AIP Advances*, 2023, 13(7): 075305.
- [21] JAKUBEK J, CEJNAROVA A, HOLY T, et al., Pixel detectors for imaging with heavy charged particles[J]. *Nuclear Instruments and Methods*, 2008, 591(1): 155-158.
- [22] ESPOSITO M, JAKUBEK J, METTIVIER G, et al., Energy sensitive Timepix silicon detector for electron imaging [J]. *Nuclear Instruments and Methods*, 2011, 652(1): 458-461.
- [23] TREMSIN A S, VALLERGA J V, MCPHATE J B, et al. High resolution photon counting with MCP-timepix quad parallel readout operating at > 1 KHz frame rates[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2013, 60(2): 578-585.
- [24] ZHAO A, VAN BEUZEKOM M, BOUWENS B, et al. Coincidence velocity map imaging using Tpx3Cam, a time stamping optical camera with 1.5 ns timing resolution[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2017, 88(11): 113014.
- [25] JAMIL A, FILIPENKO M, GLEIXNER T, et al. Influence of magnetic fields on charge sharing caused by diffusion in medipix detectors with a Si sensor[J]. *Nuclear Instruments and Methods*, 2016, 810: 19-26.
- [26] JIANG Y H, RUDENKO A, KURKA M, et al. Few-photon multiple ionization of N-2 by extreme ultraviolet free-electron laser radiation[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 102(12): 123002.
- [27] HEATHCOTE D, ROBERTSON P A, BUTLER A A, et al. Electron-induced dissociation dynamics studied using covariance-map imaging[J]. *Faraday Discuss*, 2022, 238: 682-699.
- [28] HEATHCOTE D, VALLANCE C. Partial and Contingent Recoil-Frame Covariance-Map Imaging[J]. *The Journal of Physical Chemistry A*, 2021, 125(32): 7092-7098.
- [29] FRASINSKI L J, CODLING K, HARHERLY P A. Covariance Mapping - a Correlation method applied to multiphoton multiple ionization[J]. *Science*, 1989, 246(4933): 1029-1031.
- [30] CHEN J X, MA R, REN H Z, et al. Polarization-dependence of coulomb explosion of CO irradiated with an intense femtosecond laser pulse[J]. *Chinese Physics Letters*, 2003, 20(7): 1040-1042.

## Time-stamp Camera Centroiding Algorithm and Dissociation Electron/ ion Momentum Distribution Simulation

HUA Xiaohong<sup>1,2,3</sup>, GUO Yuliang<sup>1,2</sup>, YAN Tianmin<sup>1</sup>, LI Shuai<sup>1,4</sup>,  
WANG Xincheng<sup>2</sup>, JIANG Yuhai<sup>1,2,3</sup>

(1 *Center for Research and Interdisciplinary, Shanghai Advanced Research Institute,  
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201210, China*)

(2 *School of Physical Science and Technology, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China*)

(3 *University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(4 *Argonne National Laboratory, Lemont 60439, USA*)

**Abstract:** The time-stamped camera Tpx3Cam is a cutting-edge tool for exploring atomic and molecular dynamics, enabling the detection of photons, electrons, and ions in three dimensions with an impressive time resolution of up to 1.6 ns. Despite its advantages, Tpx3Cam faces inherent challenges, such as the cluster effect. This effect compromises both the temporal and spatial resolution of data acquisition while significantly increasing data capacity, thereby posing obstacles for subsequent data processing. To counter this, a method, known as the centroiding algorithm, is crucial to mitigate the cluster effect's impact, enhance Tpx3Cam's imaging resolution, and reduce data capacity. The current centroiding algorithm efficiently eliminates unnecessary derived signals within clusters and accurately locates their centers by analyzing their distributions, achieving subpixel super-resolution in position. However, existing centroiding algorithms are limited to handling low counting rates, specifically dealing with isolated clusters, lacking the capability to distinguish connected clusters in position. Under high counting rates, closely situated clusters could emerge within a short time. Consequently, traditional centroiding algorithms is inadequate for declustering in such scenarios.

A new centroiding algorithm has been developed to address the cluster effect encountered during high counting rate imaging processes. Based on the existing centroiding algorithm, this new method significantly enhances the capability to distinguish clusters in time. It accurately identifies each independent cluster within extensive datasets, effectively declustering them. It results in a data capacity reduction by approximately one order of magnitude, while achieving subpixel super-resolution of the cluster center location. A position resolution of about 0.1 pixel could be achieved with the application of this new algorithm for each signal. Additionally, instead of employing Gaussian fitting, we utilize the weighted average method to determine cluster centers. This choice is supported by its equivalence to Gaussian fitting, as proven in the article. Notably, the weighted average method exhibits higher efficiency compared to Gaussian fitting. It's approximately  $10^3$  times faster in locating cluster centers in calculations.

To validate the impact of the centroiding algorithm on Tpx3Cam imaging in practical experiments, we conducted simulations using SIMION to replicate the imaging process of electrons and ions in a typical Velocity Map Imaging (VMI) system. By simulating the ionization of ns state electrons and the Coulomb explosions of  $N_2$  from the (1,1) channel in VMI experiments, we observed significant improvements. The centroiding algorithm reduced the Full Width at Half Maximum (FWHM) of the electron's position distribution by 30%, thereby enhancing momentum resolution by 30% along the detector plane. Moreover, it reduced the FWHM of the time-of-flight (ToF) distribution of  $N^+$  from Coulomb explosions by 80%, leading to an 80% enhancement in time resolution. Variations might occur with alterations in the initial conditions of electrons and ions, the overall improvements in position and time resolution remain consistent. Consequently, the centroiding algorithm demonstrates its efficacy in enhancing momentum resolution in practical electron and ion detection experiments. Furthermore, conducting covariance analysis on the ions' radius distribution resulting from the Coulomb explosion of CO with background gas interference, after the implementation of the centroiding algorithm, successfully revealed the correlation between  $C^+$  and  $O^+$ . This algorithm effectively mitigates count fluctuation interference induced by the

cluster effect and remains unaffected by background impurities. Finally, the impact of count rate on the centroiding algorithm is addressed. Excessively high count rates pose a risk of data loss when employing the centroiding algorithm. We are actively addressing this concern and working towards resolving this flaw in the algorithm, aiming for a solution in the near future.

**Key words:** Time-stamp camera; Imaging algorithm; Electrons and ions detection; Super-resolution imaging; Velocity map imaging

**OCIS Codes:** 020.2649; 040.1490; 100.2960