arXiv:2601.00872v1 [physics.ins-det] 30 Dec 2025

基于成对比值和MFV统计量的HPGe辐射传感器时间序列稳健寿命估计

Victor V. Golovko[1] [ORCID]

2026年1月6日

[1] 加拿大核实验室，加拿大安大略省查克河 联系方式：
victor.golovko@cnl.ca；电话： +1-613-584-3311

摘要

高纯锗（HPGe）伽马射线探测器是核物理和天体物理实验中的核心仪器，长期稳定性以及可靠提取衰变参数至关重要。然而，探测器时间序列数据的标准指数衰变分析通常会受到拟合参数之间强相关性，以及对探测器相关波动和离群值敏感性的影响。本研究提出了一种基于成对比值和Steiner众数（MFV）统计量的HPGe探测器衰变数据稳健分析框架。通过构造扣除本底后的净计数的点对点比值，消除了对探测器绝对响应的依赖，从而去除了传统回归中固有的振幅–寿命相关性。所得成对寿命估计值呈现重尾行为，采用专为此类分布设计的稳健估计量MFV可对其进行有效概括。作为案例研究，使用了一个来自HPGe探测器的长期稳定数据集。这些数据采集于一次低温核物理实验期间，该实验重点观测 ^{97}Ru中的216 keV伽马射线谱线。基于覆盖约10个半衰期的测量数据，我们得到平均寿命为 $\tau = 4.0959 \pm 0.0007_{\mathrm{stat}} \pm 0.0110_{\mathrm{syst}}$ d，对应半衰期为 $T_{1/2} = 2.8391 \pm 0.0005_{\mathrm{stat}} \pm 0.0076_{\mathrm{syst}}$ d。这些结果表明，成对-MFV方法为核物理和核天体物理实验中的长时段HPGe探测器数据分析提供了一种稳健且可复现的工具，尤其适用于精密衰变测量、探测器稳定性研究和低本底监测。

关键词： 高纯锗伽马射线探测器；辐射传感器；核物理仪器；时间序列分析；稳健统计；指数衰减；不确定性量化；Steiner 众数；MFV；非参数自助法； ^{97}Ru

1 引言

高纯锗（HPGe）伽马射线探测器凭借出色的能量分辨率以及适用于长时间低本底测量的特点，成为核物理和天体物理领域应用最广泛的辐射传感器之一。在许多应用中，包括活化研究、衰变监测、探测器稳定性监测活动和精密半衰期测量，传感器输出都以时间序列的形式进行分析，并且预期遵循指数趋势。因此，稳健地

从此类探测器时间序列中提取衰变参数，是一个与仪器相关的问题，因为本底、离群值和估计量相关性可能会使推断出的物理量产生偏差或变得不稳定。

放射性半衰期通常通过长期记录样品的活度并拟合指数曲线来测定。对于通过单一通道衰变的核素，预期活度以及固定计数区间内的预期计数可表示如下：

$$A(t) = A_0\, e^{-t/\tau}, \tag{1}$$

其中， A_0 是在 $t = 0$ 时的活度， τ 是平均寿命。大多数分析会使用非线性最小二乘回归，同时估计 A_0 和 τ。

尽管这种方法应用广泛，却掩盖了一个重要难题。初始活度与寿命往往呈强烈负相关：如果拟合尝试稍长的寿命，就可以通过降低振幅来补偿，使曲线仍然经过测量点。因此，所报告的 τ 不确定度可能取决于活度绝对尺度的已知程度。Silverman 的理论研究表明，采用点对点比值时不会出现这种敏感性，因为此时振幅会恰好抵消 [1]。Lorusso 及其同事随后证明，这一思路可成功应用于长寿命放射性核素的真实衰变数据，并能在现实的实验条件下得出无偏的半衰期估计值 [2]。

早期研究也探索了基于比值或非迭代的单指数衰变数据寿命提取方法 [3]。例如，20世纪70年代提出了差分方程法，通过解析消去振幅，并利用少量连续数据点直接求解衰变常数 [4]。此后，研究者又开发了用于含恒定本底衰变曲线的相关非迭代方案，同样依靠相邻数据点的代数组合，而非全局非线性回归 [5]。在另一种背景下，基于拉普拉斯投影比值的变换域方法已用于单光子衰变谱学，以估计寿命并改善信噪特性 [6]。尽管这些方法都采用了抑制对绝对归一化依赖这一关键思路，但通常将所得寿命估计视为近似高斯分布，并采用传统的最小二乘法或基于矩的论证进行概括。本研究拓展了基于比值的思路，明确认识并处理成对寿命估计量的重尾特性，并采用专为此类分布设计的稳健统计工具，例如 Steiner众数（MFV）。

从探测器和传感器分析的角度来看，这些问题并非局限于某一种同位素：长时间的辐射传感器时间序列中，常会出现少量探测器相关异常（例如局部本底波动、增益稳定性瞬变或峰拟合离群值），而这些异常可能会对传统估计量产生过大的影响。因此，能够降低对未知比例因子的依赖，并在存在离群值时保持稳定的方法，与核物理和核天体物理中的仪器研究直接相关。

在本研究中，我们采用这一互补思路。我们不对整条曲线一次性进行拟合，而是利用每一对测量点所包含的信息。对于纯指数衰变，两次测量的比值仅取决于寿命，而与初始活度无关。因此，可以针对每一对有效测量点计算寿命，再将这些成对寿命合并为一个估计值。

成对寿命的分布并非高斯分布。即使原始净计数（或相应的计数率）在高统计量下的误差近似服从高斯分布，两个含噪量的比值也会产生一种重尾分布，其形状接近柯西分布或洛伦兹形状 [7]。这些分布受长尾和离群值主导。算术平均值

执行 v 在这种情况下表现得非常差，甚至样本中位数也可能具有很大的方差 e.

Steiner 最频值法最初是为具有非高斯分布和类似柯西分布行为的数据集开发的 [8]。该方法并非通过最小化残差平方来进行估计，而是选择一个柯西模型的位置和宽度，使得使用该模型表示未知真实分布时所损失的信息或库尔贝克–莱布勒（KL）散度最小。实际上，这意味着靠近中心簇的数据点具有较高权重，而远离中心的数据点则会被平滑地降低权重，而不是被直接剔除。因此，MFV 兼具中位数的稳健性，并能更充分地利用大部分数据中的信息；理论研究和实际应用均已表明，与基于中位数的方法相比，它能够得到更小的不确定度 [9, 10]。

本研究旨在为使用高纯锗（HPGe）伽马射线探测器采集的指数衰变时间序列开发并验证一种稳健分析框架。该框架结合了：(i) 能够抑制振幅–寿命相关性的成对比值；以及 (ii) Steiner 最频值统计量，该统计量非常适合概括由基于比值的估计量产生的重尾分布。所得寿命将与传统回归分析进行比较，并讨论适用基于 MFV 的成对方法的实验条件。

Goodwin等人的一项专门半衰期测量已给出了 ^{97}Ru电子俘获（EC）半衰期的精确数值：室温下为 $T_{1/2} = 2.8370(14)$ d，19 K 下为 $T_{1/2} = 2.8382(14)$ d；其中所报告的不确定度代表总（合成）实验不确定度，如该研究 [11, 12]所述。相比之下，本分析分别报告统计和系统不确定度，因为剖面分析 [13] 和成对比值–MFV方法允许独立评估这些贡献。

本研究仅重新使用 Goodwin等人 [11, 12] 数据集中的 19 K 部分，并专门研究 ^{97}Ru 的 216 keV 峰。本研究的目的并非获得更精确的半衰期，而是考察不同统计工具应用于长期稳定的高纯锗探测器 [14]时间序列时的表现；这类时间序列代表了核物理仪器领域的实践。Golovko 近期的工作等方法学研究，探讨了不同拟合算法应用于衰变数据时的表现，为理解估计量依赖性提供了有益背景 [15]。相比之下，本分析聚焦于应用于单个特性明确的数据集的两种具体且定义清晰的方法。第一种是对回归拟合进行剖面似然分析 [16] ，无需依赖协方差矩阵即可确定寿命不确定度。第二种是成对比值分析，即根据所有点对点组合估计寿命，并使用 Steiner 最频值进行汇总；这是一种针对未知分布设计的稳健估计量。通过在真实传感器数据上比较这两种互补方法，我们旨在明确它们的优势、局限性，以及它们在未来核物理和天体物理领域精密衰变测量与探测器稳定性研究中的适用性。

本研究主要聚焦于方法学和仪器技术。所得 ^{97}Ru 半衰期数值仅属次要结果，仅用于说明各估计量的表现。

本文其余部分安排如下。第2节介绍 ^{97}本研究使用的 Ru 19 K 高纯锗数据集，包括测量条件、峰面积提取，以及纳入后续分析的输入数据。第3 节逐步说明分析方法：首先介绍传统回归和残差检验，接着引入成对比值寿命估计量，并解释其分布为何具有厚尾特征，最后说明如何使用 MFV 和自助法程序得出稳健的中心值和不确定度估计。第4节呈现结果，比较回归、基于中位数的成对估计和 MFV 汇总值，并报告最终寿命和半衰期及其统计和系统分量。第5节讨论成对-MFV方法对于长时间且稳定的探测器时间序列的实用性，概述其表现良好的实际条件，并指出未来研究方向，包括其在短时段高统计量触发率测量中的潜在应用。附录

进一步介绍该方法表现良好的实际条件，并指出未来研究方向，包括其在短时段高统计量触发率测量中的潜在应用。第6节总结主要结论。附录A 提供独立的拉普拉斯域一致性检验，包括用于复现交叉检验结果的公式和重采样程序。

2 实验数据

本研究分析的测量数据取自 Goodwin等人 [12, 11]报道的钌电子俘获研究中，在 19 K 下采集的低温数据集。在该实验中，主要发表的结果涉及室温衰变，而并行采集 19 K 数据则是为了检验是否存在温度依赖性。本文仅使用 19 K 数据集。本研究旨在考察在实验过程中实验条件始终保持稳定的同一条内部一致的时间序列上，两两寿命和 MFV统计量的表现。

样品是一块高纯度钌金属圆片，化学纯度高于 99.999 %。该圆片经约 10^{12}–$10^{13}\,\mathrm{cm^{-2}\,s^{-1}}$ 的热中子通量照射，通过 (n,γ) 反应生成 ^{97}Ru。经过短暂冷却后，将活化圆片直接安装在低温抽气系统的冷头上。在此配置下，样品达到稳定的 $19 \pm 1\,\mathrm{K}$ 温度，并在整个实验期间与冷头保持良好的热接触。固定几何结构确保样品-探测器距离和探测效率不会随时间变化。

^{97}Ru 的活度通过 EC 生成 ^{97}Tc 后的 216 keV γ 射线进行监测。该谱线强度高、分离良好，且不受其他活化产物的显著干扰。使用相对值为 70% 的同轴高纯锗探测器，在低本底铅屏蔽体内采集能谱。定期检查探测器增益和能量刻度，未发现可测量的漂移，这与原始实验 [12, 11]中记录的详细稳定性测试结果一致。

对移除样品后记录的本底能谱进行分析表明，216 keV 附近的连续本底在整个测量过程中平坦且稳定。使用 RADWARE 软件套件中的 GF3 程序进行峰拟合，该程序将每个峰与描述其下方本底的局部多项式结合建模。该流程确保了在每条能谱中对微小本底贡献进行一致处理。

数据在固定死时间模式下采集。记录每条能谱的实时和活时间，从而能够准确进行死时间修正。计数持续约 30 天，相当于 ^{97}Ru 的约十个半衰期。对于每个计数区间，均记录了开始时间、活时间、净峰面积及其统计不确定度。

在本分析中，我们直接使用原始数据集中报告的扣除本底后的净计数。这些峰面积表示每个区间在各自记录的有效时间内累积的事件总数。在下方所示的衰变模型中，量 $A(t)$被解释为固定计数区间内预期的净计数，而不是瞬时计数率。由于不同光谱之间的有效时间仅有轻微变化，使用计数或计数率所得的成对比值仅相差一个常数缩放因子，而该因子会在两两寿命公式中相互抵消。

参考文献 [12, 11] 中已发表的分析主要采用传统的最小二乘回归拟合，主要用于验证探测器稳定性，并将 19 K 结果与室温运行结果进行比较。该研究未进行成对比值或 MFV 分析。在此，我们使用成对方法和 MFV 框架重新分析 19 K 数据集，不进行任何预选或点

剔除。本文后续采用的系统不确定度来自我们对本底和计时输入所做的受控扰动，而非 [12, 11] 中报告的系统误差预算。原研究未发现 19 K 数据中存在其他显著系统效应的证据，超出其基于回归的研究已考虑的范围。

3 方法

本节介绍如何根据高纯锗净峰面积估算 ^{97}Ru 的寿命，并确保方法易于复现且对罕见的不稳定数据点具有稳健性。首先，我们采用标准的单指数回归，得到一个参考寿命，并验证残差的表现是否符合随机测量噪声的特征。接着，我们应用成对比值法，该方法从构造上消除了未知振幅，并将时间序列转换为大量两点寿命估计。由于这些成对寿命形成的分布峰值尖锐且带有长尾，我们使用 Steiner 最频值进行汇总；这种方法能够保留中心簇，并自动降低极端配对的影响。最后，我们结合统计变异性的自助法研究，以及一组单独且受控的扰动，量化不确定性；后者用于估计本底、计时和不确定性尺度假设带来的系统敏感性。

3.1 全局回归拟合

在介绍成对方法之前，先概述标准回归在该数据集上的表现很有帮助。我们使用两个密切相关的模型拟合衰变曲线。在第一个模型中，我们将初始活度 A_0 和寿命 τ 视为完全自由的参数。在第二个模型中，我们利用活度与放射性原子数量N 成正比这一物理事实：

$$A(t) = \frac{N}{\tau}\, e^{-t/\tau}. \tag{2}$$

在该参数化中，我们拟合尺度参数 N 和寿命 τ。

通过最小化常用的卡方函数进行拟合

$$\chi^2 = \sum_{k} \left(\frac{y_k - A(t_k)}{\sigma_k} \right)^2, \tag{3}$$

其中， y_k 和 σ_k 分别是时间 t_k测得的净峰计数及其统计不确定度。优化在正参数的对数空间中进行，这提高了数值稳定性。利用 χ^2 的海森矩阵得到的协方差矩阵计算参数不确定度及相关性。

对于标准参数化，$\log A_0$ 与 $\log \tau$之间的相关性约为 -0.74，这意味着一个参数的增加会被另一个参数的减少强烈抵消。对于物理参数化，$\log N$ 与 $\log \tau$ 之间的相关性降至约 $+0.24$。两种拟合得到的寿命基本相同，约为 $\tau \approx 4.095$ 天，但相关结构的差异说明，回归结果对模型的表达方式可能非常敏感。

3.2 残差分析与正态性检验

只有当残差的表现符合预期时，回归拟合才有意义。每个点的残差是测得的净峰计数与该能谱拟合模型值之差。为了检查这些残差是否与所述统计不确定度一致，我们将其分别除以

各自的单点不确定性。如果模型合适，这些归一化残差应呈现为从标准钟形（正态）分布中随机抽取的样品。

首先，我们检查落在零点一个和两个标准差（SD）范围内的归一化残差数量。约 68 % 的数据点位于 $\pm 1\sigma$ 内，约 96 % 位于 $\pm 2\sigma$ 内，这与正态分布的预期高度吻合。

为便于对图 1中各面板进行视觉交叉检验，上方（回归）图中的每个数据点都采用与下方面板中对应残差（r_i）相同的颜色：满足 $|r_i| \le 1\sigma$的点以黑色表示，满足 $1\sigma < |r_i| \le 2\sigma$ 的点以蓝色表示，而满足 $|r_i| > 2\sigma$ 的离群值以红色表示。这种一一对应的颜色映射让人一目了然地看出哪些时间区间落在 1σ 带内，哪些落在 2σ 带内，以及哪些位于带外。

为使这项评估更加定量化，我们对归一化残差进行了三种标准正态性检验。Shapiro–Wilk检验 [17]得出的 p-值为 0。64，Anderson–Darling检验 [18]得出的 p-值为 0。54，Lilliefors（Kolmogorov–Smirnov）检验 [19, 20]得出的 p-值为 0。52。每个值都远高于通常采用的 0。05 阈值，这意味着所有检验均未发现残差偏离正态分布的证据。综合这些视觉和数值检查结果可知，统计不确定度估计合理，且单指数模型能够充分描述数据，这与图 1中所示的情况一致。

3.3 从指数衰变到成对寿命

成对方法从同一个指数模型出发，但采用了不同的用法。将两个不同时间 t_i 和 t_j 的方程写出来，就能最清楚地看出其思路：

$$A(t_i) = A_0\, e^{-t_i/\tau}, \tag{4}$$

$$A(t_j) = A_0\, e^{-t_j/\tau}. \tag{5}$$

对这两个表达式取比值，可以消去未知的 A_0：

$$\frac{A(t_i)}{A(t_j)} = e^{-(t_i - t_j)/\tau}. \tag{6}$$

解出方程中的 τ，得到

$$\tau_{ij} = \frac{t_j - t_i}{\ln A(t_i) - \ln A(t_j)}. \tag{7}$$

如果衰变确实遵循单指数函数，且每个时间区间的净计数测量没有误差，那么任意一对时间都会得到相同的 τ_{ij} 值。在实际数据中，计数会发生统计波动，探测器也存在少量本底。因此，计算得到的成对寿命会围绕真实值形成一个较宽的分布。

我们计算 τ_{ij} 所有满足 $j > i$ 且计数为正的点对。净计数非常相近的点对（其中 $A(t_i) \approx A(t_j)$）会导致 τ_{ij} 的值极大，甚至未定义，因为公式（7）中的分母会变得很小。这些极端值构成了分布的长尾。

3.4 为什么成对分布呈现柯西分布特征

即使原始净计数的不确定度近似服从高斯分布（例如在高计数统计条件下），比值 $A(t_i)/A(t_j)$也不服从高斯分布。当两个统计独立的噪声变量服从标准高斯分布时，它们的比值分布恰好为柯西型 [7]。在我们的情形中，测得的计数围绕非零均值近似呈高斯波动，而 Silverman 关于两点估计量的精确理论表明，

在实际的高计数条件下，所得概率密度会呈现长尾 [1]。将式（7）应用于噪声数据时，计算得到的 τ_{ij} 值因此具有重尾分布，可用柯西形式很好地近似。

对于真实的柯西分布，均值和方差都没有明确定义。样本中位数是存在的，也常被用作稳健汇总量。然而，中位数将数据中央一半中的所有点一视同仁，完全忽略它们与中心的距离。这意味着它会舍弃一些原本有助于缩小置信区间的信息。

MFV 方法正是为这种情况而设计的 [8, 10]。MFV 不仅依赖顺序统计量，而是以尽量减少信息损失的方式，将柯西形模型拟合到分布未知的数据上；这里的信息损失以未知真实分布与近似柯西分布之间的 Kullback–Leibler 散度来衡量。在这一框架中，中心位置参数被确定为众数，而尺度参数有时也称为二聚性，用于量化数据密集核心的宽度。

3.5 用于成对寿命的实用 MFV 算法

对于一个包含成对寿命 $\{\tau_k\}$的有限样本，可以使用迭代加权平均过程计算 MFV。两个关键量是位置 M （即 MFV 本身）和尺度 ε（即二聚性）。从初始猜测值 M_0 和 ε_0开始，其中 M_0 为样本中位数，而初始尺度选择为 [9]

$$\varepsilon_0 = \frac{\sqrt{3}}{2}\,(\tau_{\max} - \tau_{\min}),$$

其中， $\tau_{\max}$ 和 $\tau_{\min}$ 分别表示样品 $\{\tau_k\}$中的最大值和最小值。应用以下迭代方程:

$$M_{n+1} = \frac{\sum_k \tau_k \left[\varepsilon_n^2 + (\tau_k - M_n)^2\right]^{-1}}{\sum_k \left[\varepsilon_n^2 + (\tau_k - M_n)^2\right]^{-1}}, \tag{8}$$

$$\varepsilon_{n+1}^2 = 3\,\frac{\sum_k (\tau_k - M_n)^2 \left[\varepsilon_n^2 + (\tau_k - M_n)^2\right]^{-2}}{\sum_k \left[\varepsilon_n^2 + (\tau_k - M_n)^2\right]^{-2}}. \tag{9}$$

这些公式是基于柯西替代分布 [8, 10]进行 KL 最小化所推导出的连续表达式的变体。可以这样理解：靠近当前 M 值的点具有较大的权重，而长尾中的点权重可忽略不计。迭代持续进行，直到 M 和 ε 的变化均不再超过一个较小的容差。最后，将 M作为寿命的 MFV 估计值，有效中心点数则用于估计其统计不确定度。

迭代收敛后，MFV 框架还提供了一种简单的内部方法，用于估算位置参数的统计不确定度。对于每个数据点，我们定义一个权重

$$w_k = \frac{\varepsilon^2}{\varepsilon^2 + (\tau_k - M)^2}, \tag{10}$$

对于密集中心簇中的点，该权重接近于 1；而在长尾中则会变小。相应的中心点有效数量为

$$n_{\mathrm{eff}} = \sum_k w_k = \sum_k \frac{\varepsilon^2}{\varepsilon^2 + (\tau_k - M)^2}. \tag{11}$$

Csernyak 和 Steiner 表明，对于对称分布，MFV 估计量的方差可以写成紧凑的形式

$$\sigma_M = \frac{\varepsilon}{\sqrt{n_{\mathrm{eff}}}}, \tag{12}$$

其作用相当于 1σ 在 M [8]上的标准不确定度。具体而言， ε决定了中心簇的内禀宽度，而 n_{eff} 则统计了在确定 MFV 时具有显著权重的点数。本文将此 MFV 内部不确定度用作所报告的 MFV 寿命统计误差（见第4.3节），同时采用基于自助法的区间，对估计量的重尾行为进行外部一致性检查。

为验证 MFV实现，我们对文献 [21] 中使用的中子寿命测量应用了相同的 MFV 和自助法程序。我们复现了其已发表的 MFV 估计值 $\tau_n = 881.16^{+2.25}_{-2.35}$s，以及相应的 68.27% 和 95.45% 置信区间。我们已确认 MFV 和重采样程序在数值上的正确性。

Hajagos 和 Steiner 将基于MFV的滤波器与中值滤波器进行了比较，发现 MFV 滤波对离群值的抑制效果至少与中值滤波一样好，同时使剩余信号中的随机误差更小 [9]。换言之，MFV 保持了与中位数相同的稳健性，但由于采用平滑权重而非围绕中位数进行硬截断，因此具有更高的精度（见公式 10）。

3.6 MFV和中位数的不确定度估计

为量化稳健估计量的统计离散程度，我们对原始时间序列而非 τ_{ij} 值本身应用非参数自助法。每个自助样本都通过对光谱列表 $\{t_k, y_k, \sigma_k\}$ 进行有放回重采样构建。随后，将重采样得到的光谱重新按时间顺序排序，重新计算所有有效的成对寿命τ_{ij} ，并针对该次自助法实现分别计算样本中位数和 MFV。

自助法中位数的集合采用其中心 68.27% 百分位区间进行概括，该区间由 15.865% 和 84.135% 分位数定义。该区间对应于通常的 $\pm1\sigma$范围。我们将其视为单个标准差置信区间的基于百分位数的对应形式。结果部分给出的中位数是原始（未重采样）成对分布的中位数，而自助法百分位数则围绕这一中心值提供“$\pm1\sigma$”误差棒。

对于 MFV，我们采用 MFV算法本身返回的内部不确定度作为主要统计误差。该内部误差记为 σ_M，由密集中心簇中的有效点数推导得出。对于分布未知的数据集，它可提供一种高效的方差估计（见式 12）。MFV 值的自助法分布用作诊断：为完整起见，我们报告其标准差和中心 68.27% 区间。但它们不作为最终寿命和半衰期值中所报告的 MFV 误差。

尽管成对寿命分布表现出较长且非对称的尾部，但这并不与 MFV 不确定性估计所依据的假设相冲突。对 MFV 而言，重要的并非分布的整体形状，而是 MFV 权重较大的中心区域的对称性。以 MFV 值为中心直接进行分位数检验，证实该核心区域近乎对称。25%和75%分位数分别仅比 MFV 位置低 0.0501 d 和高 0.0518 d

($M = 4.0959$d)，比值为 1.03，表明数据中间 50% 的部分具有极佳的对称性。较宽的区间，即 68.27 %（正态等效 $\pm 1\sigma$）范围，显示出略大的非对称性：比 M 低 0.1106 d，高 0.1245 d（比值为 1.13），因为该范围已延伸至长尾区域。这些尾部的 MFV 权重极小，因此对 MFV 位置或内部不确定度几乎没有影响。

这种行为与 MFV 权重（公式 10）直接相关；MFV 权重会对接近 M 的点赋予较高权重，并抑制距离较远的点。因此，MFV位置及其内部标准不确定度（公式 12）几乎完全由对称的中心簇决定，而高度不对称尾部的贡献可以忽略。基于这一原因，不进行任何截尾或数据选择：所有成对寿命都纳入 MFV 计算，但其影响通过 MFV加权方案加以调节。

通常，使用内部 MFV 不确定度（σ_M）意味着假设分布在中心部分近似对称，而中心部分对 MFV 权重的贡献很大。如果简单的对称性检验（例如比较（M）到 25%和75%分位数的距离，或到中心 68.27% 区间边界的距离）显示核心部分明显不对称，则最好不要将公式（12）作为主要误差估计。在这些情况下，仍以 MFV 作为中心位置估计量，但最好直接根据 MFV 值的自助法分布推导其统计不确定度。一种合理的方法是使用（M）周围的中心 68.27% 自助法区间作为不对称的“1σ等效”置信区间。如果需要对称误差条，则使用该区间上下偏差中较大的一个。这种基于自助法的方法既保持了 MFV 估计量的稳健性，又避免依赖可能不适用于特定数据集的对称性假设。参考文献 [22]展示了该方法的一种实际实现，即使对于少于 10 个元素的数据集，也能将各个元素的不确定度纳入考虑。

3.7 系统不确定度

通过在受控条件下对输入数据进行修改，并重复标准回归拟合，评估系统效应。本研究旨在评估拟合寿命对本底水平、测量时间戳以及估算的统计不确定度的合理变化有多敏感。原则上，这些量中的每一项都可能影响提取出的衰变常数。因此，我们分别对每项施加了保守幅度的扰动，随后重新进行了完整的回归分析。

在用于确定统计不确定度的似然剖面分析 [16]中，本底扣除后的峰面积保持不变。因此，所得 $\Delta\chi^2(\tau)$ 曲线仅反映测得计数的统计散布。任何可能的本底扣除误差都必须单独考察。我们将所有净峰面积统一上调或下调一个固定量，该量代表本底确定的不确定度。由于 216 keV连续谱较小、平坦，且针对每个能谱进行局部拟合，其不确定度最适合用峰面积本身的典型统计不确定度来表征。因此，本底变化设为峰面积不确定度中位数，约为 $\pm 4.7 \times 10^2$ 计数。使用这一修改后的数据集重复回归后，拟合寿命变化约为 0。0110 d，这被视为本底相关系统不确定度。

为考虑可能存在的仪器效应，我们考察了另外两个来源。将所有时间戳统一向前或向后平移一分钟，以保守估计数据采集时钟中可能残留的同步误差。同样，将所有统计误差条按 1% 的比例缩放，以检验拟合对不确定性模型中轻微缺陷的敏感性，例如峰形假设或死时间修正可能引起的缺陷。这两种

变化对拟合寿命的影响比背景效应小几个数量级，在目前的精度水平下可视为可以忽略不计。

将各系统贡献按平方和开方合并后，得到寿命的总系统不确定性约为 0.0110 d（半衰期约为 0.0076 d）。由于成对寿命由回归拟合所使用的同一组背景校正峰面积计算得到，因此 MFV 结果采用相同的系统误差预算。

本研究的核心结果是在时域中通过回归、成对比值、MFV 汇总和自助重采样获得的。为提供不采用相同拟合结构的独立交叉检验，我们还在拉普拉斯 [23] 空间中重复进行了寿命提取。这些拉普拉斯空间检验遵循与成对方法相同的指导思想：基于在实际采样时间处计算的离散求和构建，其中一项检验使用比值来消除整体振幅。附录A 给出了拉普拉斯空间拟合中使用的明确公式、加权方式、 s 网格的选择，以及用于计算所报告的 68.27% 区间的自助法程序。

4 结果

结果分为三个步骤进行介绍。首先，我们总结标准回归拟合的表现及相关残差检验。其次，我们描述所有成对寿命的分布，并将其自助法表现与中位数和 MFV 估计量进行比较。最后，我们给出推荐的平均寿命和半衰期；这两个数值综合了 MFV 中心值、基于 MFV 的统计不确定度，以及回归研究的系统不确定度预算。

4.1 回归拟合、轮廓与回归

对背景扣除后的峰面积进行标准双参数回归，得到的最佳拟合寿命如下：

$$\tau_{\mathrm{reg}} = 4.0947 \ \mathrm{d},$$

对应的半衰期为

$$T_{1/2,\mathrm{reg}} = \tau_{\mathrm{reg}} \ln 2 = 2.8383 \ \mathrm{d}.$$

使用以下方法对正参数取对数后进行拟合： χ^2 如第 3.1 节所述的最小化过程，所得极小值表现良好。拟合曲线及标准化残差见表 1。图 1 展示了拟合的视觉效果良好，且残差中不存在随时间变化的结构。拟合优度总体由 $\chi^2/$自由度数 $= 99.6/114 \approx 0.87$表征，这表明在所报告的统计不确定度范围内，单指数函数能够充分描述这些数据。

为研究对参数化方式的依赖性，我们进行了两种版本的拟合：一种是“标A_0准”形式，其中（τ）为自由参数（式1）；另一种是“物理”形式，其中参数为（N， τ），并将其作为自由参数（式2）。在标准参数化中，$\log A_0$ 与 $\log \tau$ 之间的相关系数约为 -0.74，表明振幅与寿命之间存在很强的负相关。在物理参数化中，$\log N$与 $\log\ \tau$之间的相关性在绝对值上减弱，并改变符号，约为 $+0.24$。尽管相关结构存在这些差异，两种参数化得到的最佳拟合寿命几乎完全一致，并且在 χ^2 沿 τ方向的曲率也非常相似。

回归寿命的统计不确定度取自 τ中的单参数剖面似然。对于每个固定的 τ，重新优化振幅参数，并据此构建

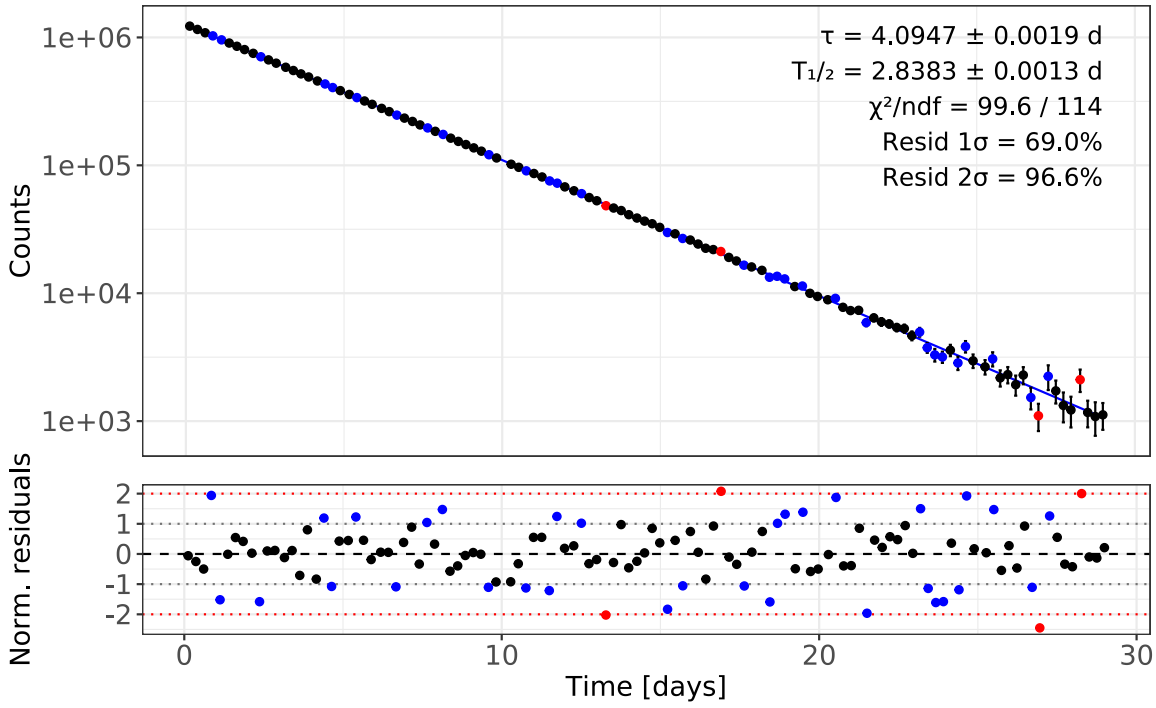

图 1： ^{97}Ru 19 K 数据集的回归分析。上图显示了指数衰减拟合（实线）以及背景校正后的净峰计数。下图显示了归一化残差及 $\pm1\sigma$ 和 $\pm2\sigma$ 参考带。残差中没有明显结构，证实单指数模型是合适的，且统计不确定度估计正确。

$\Delta\chi^2(\tau) = \chi^2(\tau) - \chi^2_{\min}$。该剖面在 $\Delta\chi^2 = 1$处的半宽定义了单个关注参数的 1σ置信区间。将此过程应用于标准拟合，得到如下结果：

$$\tau_{\mathrm{reg}} = 4.0947 \pm 0.0019_{\mathrm{stat}}\ \mathrm{d},$$

或等价地

$$T_{1/2,\mathrm{reg}} = 2.8383 \pm 0.0013_{\mathrm{stat}}\ \mathrm{d}.$$

协方差矩阵（海森矩阵）的误差估计与这些剖面值相差不到百分之一。然而，我们采用基于剖面的不确定度作为主要回归结果，因为它不依赖于对似然面的近似。标准参数化与物理参数化下 $\Delta\chi^2(\tau)$ 的比较见图2。两条曲线几乎重合，证实提取出的 τ 统计不确定度对振幅参数不敏感。

通过对扰动后的输入重复进行回归拟合，评估与扣除的背景、可能存在的全局时间偏移以及统计误差条的整体缩放相关的系统效应。我们将背景水平上下调整一个净峰计数统计不确定度中位数（$\pm4.65 \times 10^2$ 计数），并将时间轴整体偏移 ±1 分钟。我们还将所有所报告的不确定度缩放 $\pm1\%$。对于每种扰动，均重新进行拟合，并将最佳拟合寿命的变化换算为系统不确定度。主要贡献来自背景变化，而计时和误差

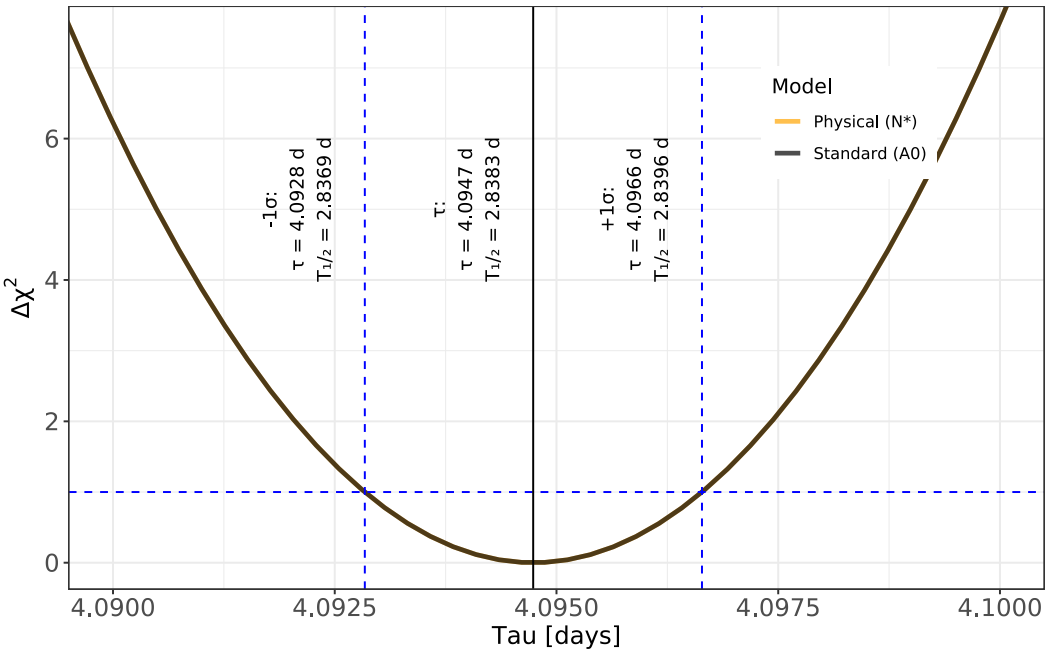

图2：标准（A_0, τ）和物理（N, τ）参数化方式的似然剖面对比。 $\Delta\chi^2(\tau)$曲线几乎重合，表明提取的寿命和统计不确定度对振幅参数不敏感。竖线标示最佳拟合值以及与 $\Delta\chi^2 = 1$对应的 $\pm 1\sigma$ 范围。

尺度效应在当前精度下可以忽略不计。寿命和半衰期的不确定度预算汇总于表 1。

通过考察归一化残差的分布，进一步评估回归拟合质量。归一化残差定义为测得的净峰计数与拟合模型值之差除以各自的统计不确定度。约有69 %的点落在 $\pm 1\sigma$ 范围内，约有97 %落在 $\pm 2\sigma$范围内，这与标准正态分布的预期高度吻合。对残差进行的三种经典正态性检验所得 p-值均显著高于通常采用的0.05阈值：Shapiro–Wilk检验 [17] 得到 $p = 0.64$，Anderson–Darling检验 [18] 得到$p = 0.54$，Lilliefors（Kolmogorov–Smirnov）检验 [19, 20] 得到 $p = 0.52$。结合对图 1的目视检查，这些结果证实单指数模型能够充分描述数据，且所报告的统计不确定度既未被低估，也未被高估。

4.2 成对寿命的分布

使用公式（7），我们计算τ_{ij} 所有有效点对的结果分布包含数千个数值，并在 4.096 d 附近呈现明显的尖峰，尾部则延伸至更短和更长的寿命。将其在合适的范围内绘制为直方图时，峰值狭窄且对称。这种形状是柯西型分布的典型特征，也符合预期（第 3.4节）。

该分布的简单样本中位数为

$$\tau_{\mathrm{med}} = 4.0962 \ \mathrm{d}. \tag{13}$$

表1： ^{97}Ru 平均寿命 τ 和半衰期 $T_{1/2}$ （天）的不确定度。相对值是相对于基于轮廓分析的中心值 $\tau = 4.0947$d 计算的。对于每个来源，用于 $\pm 1\sigma$ 偏移的标称值及其 1σ 不确定度显示在第一列。“统计”表示在 $\Delta\chi^2 = 1$处的单参数轮廓半宽。主要的系统贡献来自背景水平（BG）的变化。计时和误差尺度效应可以忽略不计。BG 不确定性对应于对分析中所有净峰面积施加统一的 $\pm 4.65 \times 10^2$计数偏移。

分量（标称值 $\pm$不确定度）	τ [天]	$T_{1/2}$ [天]	相对值 (%)
中心值（来自轮廓最小值）	4.0947	2.8383	—
统计（剖面 $\Delta\chi^2 = 1$；最佳值 $= 4.0947$；$1\sigma = [4.0928, 4.0966]$）	± 0.0019	± 0.0013	± 0.046
系统不确定性：本底水平 [扣除的本底， $0 \pm 4.65 \times 10^2$ 计数]	± 0.0110	± 0.0076	± 0.269
系统不确定性：时间偏移 [0 ± 1 分钟]	$\pm 2.8 \times 10^{-7}$	$\pm 1.9 \times 10^{-7}$	≈ 0.000007
系统不确定性：误差尺度因子 [1.00 ± 0.01]	≈ 0	≈ 0	≈ 0
总系统不确定性（各项系统不确定性的平方和开方）	± 0.0110	± 0.0076	± 0.269
总计（统计 $\oplus$ 系统）	± 0.0112	± 0.0078	± 0.273

对同一数据应用 MFV算法后，得到如下结果：

$$\tau_{\mathrm{MFV}} = 4.0959 \text{ d}. \tag{14}$$

中位数与 MFV 中心值高度吻合，表明大部分数据表现良好，而所估计的不确定度主要受长尾影响。

成对寿命分布的整体形态以及不同估计量之间的关系如图所示。3。直方图显示，4。096 d 附近存在狭窄的中心峰，同时极端配对形成了延伸的尾翼。竖线标示回归结果、成对分布中位数和 MFV 估计值，表明这三个中心值在各自所报告的不确定度范围内彼此一致。

通过对原始时间序列进行重采样构建的 3,000 次重抽样样本自助法研究表明，中位数分布的中心 68.27% $\tau_{\mathrm{med}} - 0.0042$ d 至 $\tau_{\mathrm{med}} + 0.0048$ d。相应的半衰期区间为 $T_{1/2,\mathrm{med}} - 0.0029$ d 至 $T_{1/2,\mathrm{med}} + 0.0033$ d。对于 MFV 估计量，MFV 内部不确定度（式 12）为 $\sigma_M \approx 0.0007$ d，相当于半衰期约 0。0005 d。自助法 MFV 值形成了更宽的 68.27% 区间，从 $\tau_{\mathrm{MFV}} - 0.0045$ d 至 $\tau_{\mathrm{MFV}} + 0.0046$ d，这反映了极端配对对分布长尾的影响，但 MFV 中心值仍保持稳定。这一行为符合一般结论：基于 MFV 的估计量能够有效利用中心簇结构，同时对离群值保持很强的抵抗力 [9, 10]。我们采用 MFV 内部不确定度作为所报告的统计误差，因为它反映了密集中心簇的信息量，而估计量主要由该中心簇决定；相比之下，自助法区间有意将所有数据的影响纳入考量。

4.3 最终寿命和半衰期

结合 MFV 中心值及统计不确定度（式 12），并纳入回归研究得出的系统不确定度预算，我们给出以下结果：

$$\tau(^{97}\mathrm{Ru}) = 4.0959 \pm 0.0007_{\mathrm{stat}} \pm 0.0110_{\mathrm{syst}} \text{ d}. \tag{15}$$

相应的半衰期为

$$T_{1/2} = \tau \ln 2 = 2.8391 \pm 0.0005_{\mathrm{stat}} \pm 0.0076_{\mathrm{syst}} \text{ d}. \tag{16}$$

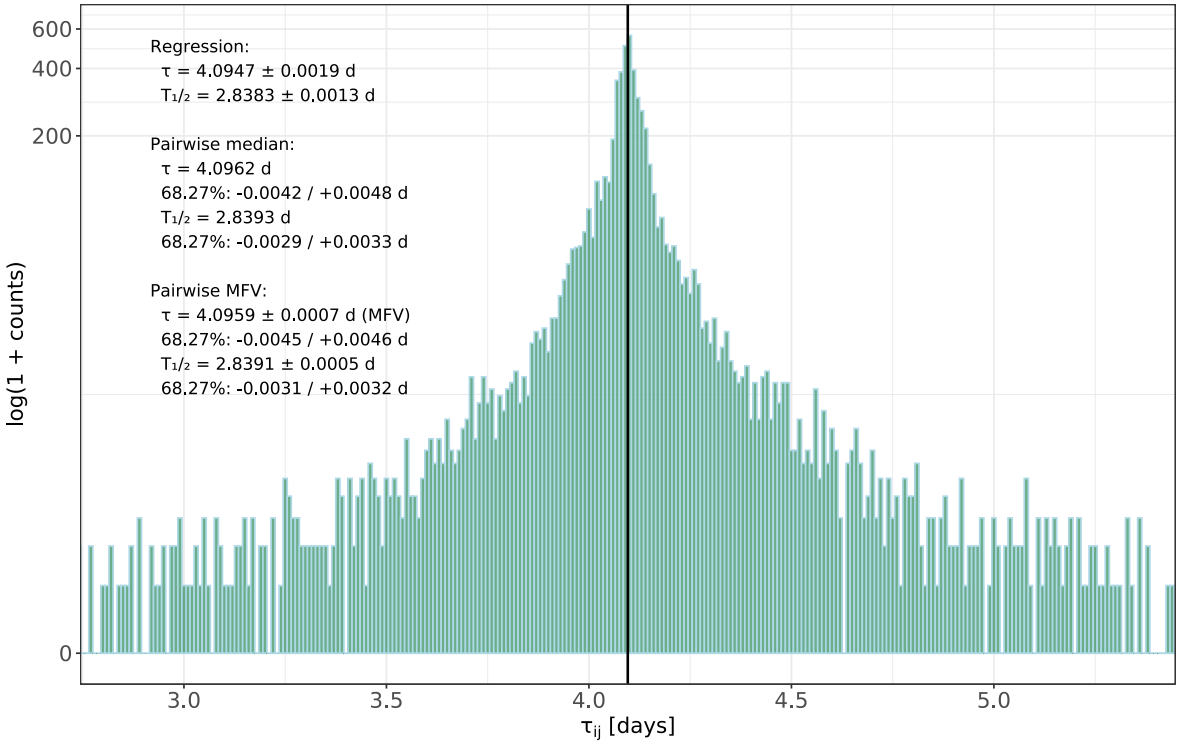

图3：由背景校正后的净峰计数τ_{ij} 构建的所有成对寿命的分布。具有尖锐中心峰和长重尾的形态是柯西型行为的特征。实心竖线标示MFV寿命估计值，插图文字总结了回归结果、中位数及其68.27%的自助法区间，以及MFV值及其基于MFV的不确定度。

这些数值与针对同一数据集先前基于回归的测定结果以及采用的文献值完全一致，但它们是通过一种几乎完全不受振幅–寿命相关性影响、且能以统计上合理的方式处理成对分布重尾特性的方法得出的。

作为对我们MFV实现的另一项验证，我们将结果与近期在参考文献 [97]中报道的、基于独立MFV方法确定的 [15]Ru半衰期进行了比较。在该研究中，MFV和混合参数自助法（HPB）框架并未应用于原始衰变曲线，而是应用于汇编的历史半衰期测量值集合；其中每个测量值均作为一个独立值处理，并保留其已发表的不确定度。因此，MFV算法处理的是由先前报道的结果组成的小型数据集，而不是单个内部一致的时间序列。所得半衰期为

$$T_{1/2}^{\mathrm{MFV(HPB)}} = 2.8385^{+0.0022}_{-0.0075}\,\mathrm{d}, \tag{17}$$

这反映了在应用不确定度加权和基于MFV的离群值抗性后，这些既有测量结果的统计共识。

尽管该数值不能与本研究分析的单次实验的19 K数据集直接比较，但我们的 MFV 结果仍落在其所报告的不确定度范围内。这种一致性构成了方法学交叉检验：它证实，当输入相似类型的输入数据时，我们的 MFV流程能够复现已发表的基于 MFV 的评估结果，从而验证数值

实现，然后将其应用于高精度19 K 衰变序列的完整成对 MFV 分析。

5 讨论与未来工作

本节概述成对 MFV 方法的概念基础，并说明为何该方法能为符合单指数函数描述、但呈现重尾统计行为的数据集提供稳健的寿命估计。讨论围绕三个关键思想展开：使用点对点比值、所得寿命分布的重尾特性，以及重采样在量化不确定度方面的作用。随后，我们概述 MFV 方法表现良好的实际条件，并说明所得不确定度与针对同一数据集的早期分析之间的关系。

MFV 方法的首要原理是，连续测量值或间隔较远的测量值之比可以消除未知的初始活度。假设在测量区间内衰变遵循单指数函数，且探测器效率、死时间修正和本底扣除随时间保持稳定，则每个比值仅取决于寿命。在这些条件下，该方法基本不受绝对效率或源强不确定度的影响。这种对乘性因子的恒定性确保后续分析能够直接聚焦于关注参数。

第二个思路涉及成对寿命的统计性质。已知 τ_{ij} 的分布具有厚尾特征。在这种情况下，算术平均值表现不佳，因为极端值会对其产生支配作用。样本中位数具有更好的稳定性，但它仅利用排序信息，而忽略了各点之间的距离。MFV 估计量通过寻找数据的中心区域，使真实的未知分布与柯西模型 [8, 10]之间的信息损失（KL 散度）最小，从而对此进行了改进。靠近中心的值贡献较大，而尾部的值则被降权。这样得到的估计量几乎具有与中位数相当的稳健性，同时数据集的方差显著更低 [9]。

该方法的第三个分量利用重采样来评估 MFV 估计量的不确定度。自助法无需对估计量分布的形状作出假设，并且对于偏斜或长尾数据表现可靠 [24]。将自助法与 MFV 结合后，可以得到置信区间，同时反映厚尾的影响和数据集有限规模所带来的影响。一个自然的扩展是混合参数自助法，其中每个重采样样本都根据各自的不确定度，包含新的点选取和新的模拟峰面积。此类混合方案已经应用于相关的核研究和分子研究中 [15, 10]。对于未来的高精度寿命测量，它们可能会越来越有价值。

本研究提出了若干应用 MFV 方法的实用指南。当底层衰变可用单指数函数很好地描述、实验装置随时间保持稳定，且中心值不受少数早期高统计量数据点过度影响时，该方法效果最佳。如果数据表明存在多组分衰变、时间依赖系统效应，或测量时间之间存在较强相关性，那么采用明确的多组分回归模型可能会提供更准确的描述。

最后一点涉及成对方法预期能够可靠适用的实验条件。Silverman 的解析处理表明，只有当测量序列满足若干实际要求时，两点寿命估计的分布才会趋近于类柯西形式。其中最重要的一点是，每个能谱都必须包含足够多的计数，使净峰面积中的统计涨落能够很好地近似为高斯噪声。当计数统计量较高时，两次测量的比值会呈现可预测的

变化方式，而由此得到的成对寿命会形成峰值尖锐的分布，而不是一片宽泛且界限模糊的数值云。

第二项要求是，数据集必须足够长，以提供大量相互独立的成对数据。Silverman 的计算表明，当时间序列包含约一百次以上测量时，τ_{ij} 值的分布会趋于稳定，其中心峰也会变得清晰可辨。测量次数较少时，峰值仍然可见，但重尾结构尚未充分形成，因此稳健估计会更加困难。

第三项条件与测量间隔有关。衰变必须比光谱之间的时间间隔慢。在这种情况下，用于计算成对寿命的对数差会沿序列平滑变化，其统计变异性在各对之间几乎保持恒定。这种平滑性使 Silverman 推导出的精确概率密度能够简化为其经验类柯西形式。

满足这些条件时，成对方法会产生定义明确的寿命估计中心簇，非常适合使用 MFV 进行分析。本研究考察的 ^{97}Ru 数据集满足所有这些要求：每个能谱都具有较高的计数统计量，时间序列较长，且采样间隔相对于半衰期较短。因此，成对分布呈现尖锐的峰值，MFV 得以对平均寿命作出稳定且有意义的估计。

尽管本分析使用了与 Goodwin 等人相同的 *19 K* 时间序列， [12], 但我们报告的统计和系统不确定度与原始发表结果中的数值不同。系统不确定度取决于分析流程，而非仅取决于底层数据集。本文采用的 MFV 方法和剖面似然方法纳入了不同的灵敏度测试和建模假设。因此，本研究得出的不确定度应被视为特定于该方法，而非对 Goodwin 等人的不确定度预算 [12]的修订。

本研究仅限于单个特性明确的高纯锗时间序列。固定计数区间内的预期计数数目遵循简单的指数衰变，可作为成对最频值方法的受控试验平台。未来一个自然的研究方向是探究如何将相同思路扩展到短时段高统计量触发率测量；在这类测量中，观测到的速率由比单指数函数更复杂的模型决定。

一个典型例子是使用 DEAP-3600 液氩探测器进行的直接 ^{39}氩半衰期测量 [25]。在这种情况下，可用统计量极高，单次速率测量的不确定度相应很小；然而，观测窗口仅占 ^{39}氩半衰期的极小部分。可观测的触发率被写成底层衰变活度的非线性函数，其中明确纳入了堆积过程、选择效率和恒定本底分量的影响。因此，本研究使用的简单闭式成对寿命估计量并不直接适用。

然而，成对方法的基本逻辑仍然具有相关性。在未来的研究中，可以根据分箱触发率序列构造成对或多点率比，并利用玩具蒙特卡罗将每个候选寿命映射到完整触发率模型下此类基于比值的代理量所对应的预期分布。随后，可以将稳健位置估计量（例如众数）应用于这些代理量分布，作为全局似然拟合的补充诊断工具，尤其用于识别对罕见逐次运行异常的敏感性。

开展此类未来研究的一个动机是，DEAP-3600 最近直接测得的 ^{39}Ar 半衰期与文献中此前采用的几个数值存在差异 [26]。DEAP-3600 分析报告的半衰期为 $T_{1/2}(^{39}\mathrm{Ar}) = 302 \pm 8_{\mathrm{stat}} \pm 6_{\mathrm{syst}}$ 年，该结果基于高统计量的触发率测量，而测量时间跨度仅占 ^{39}Ar 半衰期的一小部分 [25]。早期测定则基于对以各种实验技术获得的既有 ^{39}Ar 半衰期测量结果的汇总，且

随后使用稳健统计方法重新评估，得到的数值为 $T_{1/2} = 268.2^{+3.1}_{-2.9}$ 年。在这项重新分析中，所报告的不确定度明确计入了原始测量中存在的系统效应 [27]。这一统计精度很高、却与早期测定结果不一致的结果，凸显了采用互补分析策略的重要性；这类策略能够检验 DEAP-3600 的模型假设、参数相关性，以及利用玩具蒙特卡罗数据研究高统计量、短时间跨度测量的影响。

未来应用中值得研究的另一个方面是触发率模型的相关结构。在此类分析中，推断出的寿命预计会与初始触发率尺度高度相关，因为寿命的变化可以通过整体归一化的补偿性变化得到部分抵消。在原始 DEAP-3600 分析中， [25],采用了轮廓似然方法来估计参数不确定度，从而稳健地确定了一维置信区间。然而，拟合参数的完整协方差或相关矩阵并未明确报告。当存在较强的参数相关性时，这一缺失会使所报告不确定度的解读变得复杂，因为单个参数表面上的精度可能高度依赖于所选的模型参数化，以及干扰参数如何被纳入剖面。

对 DEAP-3600 模型进行适当的重新参数化，将有助于解决这一问题，使主要相关性更加清晰。特别是，这种重新参数化可以将大气氩中 ^{39}Ar 的相对丰度作为显式拟合参数处理。该量具有独立的物理意义，因为大气中的 ^{39}Ar/Ar 比值在地球物理定年 [28], 环境示踪剂研究 [29], 中发挥着核心作用， [30, 31] 同时也有助于量化全球 ^{39}Ar 储量中的宇宙成因贡献和人为贡献 [32]。结合完整触发率模型的玩具蒙特卡罗模拟，这种方法可以直接研究推断出的丰度–寿命相关性，而不是将其隐含地吸收到初始触发率归一化中。

如本研究针对 ^{97}Ru 数据集所示，对衰变模型进行适当的重新参数化，可以在不改变底层物理的情况下显著改变相关结构（参见第3.1节）。因此，未来在高统计量、短时间跨度的测量中，将类似的重新参数化策略应用于复杂的触发率模型，并进一步开展寿命参数的轮廓似然研究，将为寿命不确定度稳健性提供有价值且透明的交叉检验。

6 结论

采用基于成对净计数比和 Steiner 最频值统计量的方法，对高质量的 ^{97}Ru 衰变数据集进行了重新分析。该方法消除了振幅与寿命之间的强相关性，这种相关性会影响标准回归拟合；同时，该方法还为处理成对寿命的重尾分布提供了自然途径。MFV 估计值与回归结果高度一致，但其不确定度由成对数值的中心簇行为决定，而不是由振幅模型的细节决定，因此其解释更加透明。

本研究还阐明了成对方法表现良好的实验条件。当计数统计足够高、时间序列包含大量连续测量，且采样间隔相对于半衰期较短时，成对寿命的分布会呈现尖锐峰值的类柯西形式。在这些条件下，MFV 可提供稳定且稳健的估计量，不易受极端配对的影响，也天然适用于自助法不确定性分析。 ^{97}Ru 数据集满足这些要求，这解释了本研究所报告的 MFV 与回归结果高度一致的原因

在本研究中。

综合考虑这些因素，成对抽样、MFV估计和基于自助法的不确定性评估相结合，为满足必要统计和实验条件的衰变测量提供了一种实用且可复现的分析框架。在满足这些条件时，所提出的方法为传统回归提供了互补视角，是识别核衰变数据及其他时间序列问题中重尾行为的有用工具。

作者贡献

概念构思、方法设计、调查研究、数据整理、初稿撰写、审阅与编辑、可视化、监督及项目管理：V.V.G.。唯一作者完成了稿件的全部工作，并批准了最终版本。

资金支持

本研究未获得外部资金支持。

数据可用性

本研究中使用的所有分析代码——包括完整的回归、剖面分析、相关性提取、不确定性预算和图表生成代码——均可通过以下链接获取 [33]。

致谢

我衷心感谢 John Goodwin教授分享 ^{97}Ru半衰期数据。特别感谢 Maria Filimonova 提供的支持与帮助。我还要感谢加拿大核实验室的管理层和工作人员为本研究营造了有利的环境，尤其感谢 Genevieve Hamilton 和 David Yuke。在准备本研究期间，我使用 ChatGPT（版本：gpt-4o）进行语言检查；随后，我审阅并编辑了相关内容，以确保其准确性，并对最终发表的内容承担全部责任。

利益冲突

作者声明不存在利益冲突。

缩略语

本文使用了以下缩写：

MFV 众数（Steiner稳健估计量） HPGe 用于 γ射线能谱分析的高纯锗探测器 EC ^{97}Ru 到 ^{97}Tc 的电子俘获衰变模式 KL（散度）用于 MFV 信息损失最小化的 Kullback–Leibler 散度 GF3 来自 RADWARE 软件套件的峰拟合程序 RADWARE 用于核 γ射线能谱分析的软件包 HPB 混合参数自助重采样框架 ndf χ^2/中的自由度数 ndf BG 峰下的背景连续谱（从净计数中扣除）

术语表

本稿使用以下符号和参数：

符号	定义	[单位]
$A(t)$	时间 t固定计数区间内扣除本底后的净计数	[计数]
A_0	$t=0$ 时的活度尺度（每个区间的初始预期净计数）	[计数]
N	放射性原子数（尺度单位为 $A(t) = \frac{N}{\tau} e^{-t/\tau}$）–	[原子]
t	距开始的时间； t_i， t_j 表示特定的测量时间	[d]
y_k	能谱 k测得的扣除本底后的净峰计数	[计数]
σ_k	y_k的统计不确定度	[计数]
τ	^{97}Ru的平均寿命	[d]
$T_{1/2}$	半衰期， $T_{1/2} = \tau \ln 2$	[d]
τ_{ij}	两两寿命， $\tau_{ij} = \dfrac{t_j - t_i}{\ln A(t_i) - \ln A(t_j)}$	[d]
χ^2	卡方， $\chi^2 = \sum_k \left(\dfrac{y_k - A(t_k)}{\sigma_k} \right)^2$	[–]
$\Delta\chi^2$	剖面似然差， $\Delta\chi^2(\tau) = \chi^2(\tau) - \chi^2_{\min}$	[–]
r_k	标准化残差， $r_k = (y_k - A(t_k)) / \sigma_k$	[–]
M	MFV位置（众数） $\{\tau_{ij}\}$	[d]
ε	MFV尺度（“二聚性”）	[d]
w_k	MFV 权重， $w_k = \dfrac{\varepsilon^2}{\varepsilon^2 + (\tau_k - M)^2}$	[–]
n_{eff}	有效中心计数， $n_{\mathrm{eff}} = \sum_k w_k$	[–]
σ_M	MFV 内部标准不确定度， $\sigma_M = \varepsilon / \sqrt{n_{\mathrm{eff}}}$	[d]
$\ln$	自然对数	[–]
统计，系统	统计和系统分量的下标	[–]

拉普拉斯域一致性检验

本研究的主要结果是在时域中通过回归、成对比值、MFV 汇总和自助重采样获得的。为验证这些结果不依赖于特定的时域拟合结构，我们还使用在测得的采样时间处计算的离散求和，提取了拉普拉斯域中的寿命。一种拉普拉斯域方法直接拟合投影数据；另一种方法则在拉普拉斯空间中计算比值，从而消去整体归一化，其思路与成对比值法十分相似。

首先，我们定义测得净计数的不同拉普拉斯投影。令 y_k 表示以下采样时间 t_k （单位为天）处扣除本底后的净计数，其标准不确定度为 σ_k ： $k = 1$，……， N。为提高数值稳定性，将时间轴平移，使首次测量发生在零时刻，

$$t'_k = t_k - \min_j t_j. \tag{A.1}$$

这种平移不会影响提取的寿命，只会改善指数权重条件数。

对于选定的一组拉普拉斯频率 $\{s_i\}_{i=1}^{M}$ （单位为 d^{-1}），不同拉普拉斯投影定义如下：

$$\widehat{F}(s_i) = \sum_{k=1}^{N} y_k \, e^{-s_i t'_k}. \tag{A.2}$$

这里，指数因子 $e^{-s_i t'_k}$ 作为正权重，因此该投影是观测计数的加权和，其中拉普拉斯参数 s_i 控制对早期与晚期时刻的相对侧重。这种指数加权的不同求和对应于随机分析和可靠性分析中使用的离散拉普拉斯变换 [34]。

假设各误差相互独立，每个投影值对应的不确定度按以下方式由时域不确定度传播得到：

$$\sigma_{\widehat{F}}(s_i) = \left[\sum_{k=1}^{N} \sigma_k^2 \, e^{-2 s_i t'_k} \right]^{1/2}. \tag{A.3}$$

不确定度根据不相关输入量线性组合的不确定度传播定律获得，其中指数因子充当权重 [35]。

使用与单指数衰变对应的离散和模型对这些投影数据进行了拟合。在此表述中，寿命仅通过组合 $s_i + 1/\tau$ 出现，

$$F_{\mathrm{model}}(s_i) = A_0 \sum_{k=1}^{N} e^{-(s_i + 1/\tau) t'_k}. \tag{A.4}$$

为测试对任何残余恒定背景的敏感性，可以按如下方式添加一个可选的基线项：

$$F_{\mathrm{model}}(s_i) = A_0 \sum_{k=1}^{N} e^{-(s_i + 1/\tau) t'_k} \; + \; B \sum_{k=1}^{N} e^{-s_i t'_k}. \tag{A.5}$$

通过最小化拉普拉斯空间中的加权最小二乘目标函数，估计参数（A_0， τ）或（A_0， τ， B），如下所示：

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{M} \left(\frac{\widehat{F}(s_i) - F_{\mathrm{model}}(s_i)}{\sigma_{\widehat{F}}(s_i)} \right)^2. \tag{A.6}$$

拉普拉斯频率选取自对数网格，其范围覆盖由衰变常数确定的尺度。利用时域回归得到的初始寿命估计 τ_{init} ，我们设定 $M = 30$并选取 s_i 个值，使其在 $0.15/\tau_{\mathrm{init}}$ 与 $6/\tau_{\mathrm{init}}$之间按对数间隔分布。对于该数据集，此拉普拉斯投影拟合得到的平均寿命为 $\tau = 4.0953$d。采用 3,000 个重抽样样本进行非参数自助法，得到中心 68.27% 置信区间 $[4.0936, 4.0969]$d。相应的半衰期为 $T_{1/2} = 2.8386$ d，其 68.27% 区间为 $[2.8374, 2.8398]$ d。纳入基线项方程（A.5）后，得到的寿命与前者无法区分，这表明任何残余恒定本底的影响都可以忽略不计。

作为一种不依赖整体归一化的补充性交叉检验，我们还计算不同拉普拉斯频率对处的拉普拉斯投影之比，如下所示:

$$R_{ij} = \frac{\widehat{F}(s_i)}{\widehat{F}(s_j)} \qquad (i < j). \tag{A.7}$$

对于单指数衰变，振幅会完全抵消，寿命 τ 满足

$$\frac{\sum_{k=1}^{N} e^{-(s_i+1/\tau)t'_k}}{\sum_{k=1}^{N} e^{-(s_j+1/\tau)t'_k}} = R_{ij}. \tag{A.8}$$

使用保守区间 $\tau \in [1, 10]$ d 内的一维求根法，对每个（s_i，s_j）频率对数值求解该方程。为提高计算效率，我们使用了数千个频率对；限制频率对的数量不会改变结果，因为许多频率对包含冗余信息。

拉普拉斯空间寿命估计的分布采用与时域成对分析相同的众数估计量进行汇总。拉普拉斯比值法得出的平均寿命为 $\tau = 4.0952$ d。对完整时间序列进行自助重采样，再次得到 68.27% 的置信区间，为 $[4.0935, 4.0969]$ d，对应的半衰期区间为 $[2.8374, 2.8398]$d。

两种拉普拉斯域方法的不确定度均通过非参数自助法评估，该方法直接对测得的时间序列进行重抽样。每个自助法重复样本通过有放回地抽取N行（t_k，y_k，σ_k），按时间排序，并重复完整的拉普拉斯域计算来生成。使用 $R = 3,000$ 个重复样本时，报告的“一个标准差”区间定义为自助法分布中央的 68.27%，对应于经验分位数

$$p_{\mathrm{lo}} = \frac{1 - 0.6827}{2}, \qquad p_{\mathrm{hi}} = 1 - p_{\mathrm{lo}}. \tag{A.9}$$

两种拉普拉斯域测定结果均与主要时域回归结果 $\tau = 4.0947$ d（相当于 $T_{1/2} = 2.8383$ d）在不确定度范围内完全一致。因此，它们可作为独立的稳健性检验，而非替代估计量。本研究采用的寿命和半衰期值基于时域分析。

参考文献

[1] Silverman, M.P.《核半衰期统计抽样测定理论》。《欧洲物理快报》2014年，105，22001。https://doi.org/10.1209/0295-5075/105/22001。[2] Lorusso, G.; Collins, S.M.; Jagan, K.; Hitt, G.W.; Sadek, A.M.; Aitken-Smith, P.M.; Bridi, D.; Keightley, J.D. 实践中通过统计抽样测量放射性半衰期。《欧洲物理快报》（EPL）2017年，120，22001。https://doi.org/10.1209/0295-5075/120/ 22001。[3] Mangelsdorf, P.C. 未知渐近线指数函数的便捷绘图方法。《应用物理学杂志》1959年，30，442–443。https://doi.org/10.1063/1.1735186。[4] Moore, W.; Yalcin, T. 存在噪声时指数时间常数的实验测量。《磁共振杂志》（1969）1973年，11，50–57。https: // doi.org/10.1016/0022-2364(73)90080-2。[5] Mukoyama, T. 一种带本底衰变曲线拟合的非迭代方法。《核仪器与方法》1982年，197，397–399。https://doi.org/10.1016/0167-5087(82)90334-9。[6] Moreno, F.; L´opez, R.J. 在单光子衰变能谱学中使用拉普拉斯变换测量寿命。《应用光谱学》1987年，41，1307–1311。https://doi.org/ 10.1366/0003702874447103。[7] Walck, C.《实验工作者统计分布手册》，斯德哥尔摩大学。内部报告 SUF–PFY/96–01，斯德哥尔摩大学，瑞典斯德哥尔摩，2007年。https://staff.fysik.su.se/~walck/suf9601.pdf。（访问日期：2026年1月6日）[8] Steiner, F.《统计学最优方法》；Akad´emiai Kiad´o，匈牙利布达佩斯，1997年。[9] Hajagos, B.; Steiner, F. MFV滤波以抑制误差——与中值滤波器的比较。《匈牙利大地测量、地球物理与矿山学报》1992年，27，185–194。[10] Golovko, V.V. 易受异常值影响的数据集的稳健置信区间估计方法：在分子和生物物理数据中的应用。《生物分子》2025年，15，704。https://doi. org/10.3390/biom15050704。[11] Goodwin, J.R. 环境因素会影响β衰变的半衰期吗？一项分析。博士论文，德克萨斯农工大学，得克萨斯州大学城，美国，2012年。https://hdl.handle.net/1969.1/148338。（访问日期：2026年1月6日）[12] Goodwin, J.R.; 等。^{97}Ru电子俘获衰变的半衰期：精确测量表明无温度依赖性。《物理评论C：核物理》2009年，80，045501。https://doi.org/10.1103/PhysRevC.80.045501。[13] Workman, R.L.; 等。粒子物理学评论2023年。p. 083C01。https://doi.org/10. 1093/ptep/ptac097。[14]Hardy, J.; Iacob, V.; Sanchez-Vega, M.; Effinger, R.; Lipnik, P.; Mayes, V.; Willis, D.; Helmer, R. 高纯锗探测器的精确效率刻度：具有亚百分比精度的放射源测量和蒙特卡罗计算。《应用辐射与同位素》2002年，56，65–69。https://doi.org/10.1016/S0969-8043(01)00168-3。

[15]Golovko, V.V. 通过混合参数自助法改进小型数据集中的置信区间和中心值估计。《信息科学》2025年，716，122254。https://doi.org/10.1016/j.ins.2025.122254。[16] Rolke, W.A.; L´opez, A.M.; Conrad, J. 存在干扰参数时的限值和置信区间。《核仪器与方法：物理研究A辑：加速器、谱仪、探测器及相关设备》2005年，551，493–503。https: //doi.org/10.1016/j.nima.2005.05.068。[17] Shapiro, S.S.; Wilk, M.B. 正态性方差分析检验（完整样本）。《生物统计学》1965年，52，591–611。[18] Anderson, T.W.; Darling, D.A. 基于随机过程的某些“拟合优度”准则的渐近理论。《数学统计年刊》1952年，193–212页。[19] Kolmogorov, A. 经验确定分布规律。《意大利精算师学会期刊》1933年，4，89–91。[20] Smirnov, N. 用于估计经验分布拟合优度的表。《数学统计年刊》1948年，19，279–281。[21] Zhang, J.; Zhang, S.; Zhang, Z.R.; 等. 用最频繁值法稳健估计中子寿命。《欧洲物理学杂志C辑》2022年，82，1106。https://doi.org/10.1140/ epjc/s10052-022-11071-9。[22] Golovko, V.V. 通过混合参数自助法优化传感器数据解读。《传感器》2025年，25。https://doi.org/10.3390/s25041183。[23] Istratov, A.A.; Vyvenko, O.F. 物理现象中的指数分析。《科学仪器评论》1999年，70，1233–1257。https://doi.org/10.1063/1.1149581。[24] Efron, B.; Tibshirani, R.J. 自助法导论；CRC出版社，博卡拉顿、伦敦、纽约、华盛顿特区，1994年。[25] Adhikari, P.; Ajaj, R.; Alp´ızar-Venegas, M.; Amaudruz, P.A.; Anstey, J.; 等. 利用DEAP-3600探测器3.4年的数据直接测量氩-39半衰期。《欧洲物理学杂志C辑》2025年，85，728。https://doi.org/10.1140/epjc/ s10052-025-14289-5。[26] Chen, J. A=39的《核数据表》。《核数据表》2018年，149，1–251。https: //doi.org/10.1016/j.nds.2018.03.001。[27] Golovko, V.V. 最频繁值法在氩-39半衰期测定中的应用。《欧洲物理学杂志C辑》2023年，83，930。https://doi.org/10.1140/epjc/ s10052-023-12113-6。[28] Jiang, W.; Williams, W.; Bailey, K.; Davis, A.M.; Hu, S.M.; Lu, Z.T.; O’Connor, T.P.; Purtschert, R.; Sturchio, N.C.; Sun, Y.R.; 等. 利用原子阱痕量分析在 10^{-16} 同位素丰度水平探测氩-39。《物理评论快报》2011年，106，103001。https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.106.103001。

[29] Lu, Z.T.; Schlosser, P.; Smethie, W.; Sturchio, N.; Fischer, T.; Kennedy, B.; Purtschert, R.; Severinghaus, J.; Solomon, D.; Tanhua, T.; 等. 稀有气体放射性核素在地球科学中的示踪应用。《地球科学评论》2014年，138，196–214。https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2013.09.002。[30] Saldanha, R.; Back, H.O.; Tsang, RHM.; Alexander, T.; Elliott, S.R.; Ferrara, S.; Mace, E.; Overman, C.; Zalavadia, M. 氩中的氩-39和氩-37的宇宙成因产生。《物理评论C》2019年，100，024608。https://doi.org/10.1103/PhysRevC.100.024608。[31] Zhang, C.; Mei, D.M. 利用地下氩评估稀有事件物理中氩-39和氩-42的宇宙成因产生。《天体粒子物理学》2022年，142，102733。https: //doi.org/10.1016/j.astropartphys.2022.102733。[32] Bhattacharya, S.; Paul, M.; Sahoo, R.; Purtschert, R.; Hoffmann, H.; Pichotta, M.; Zu- ber, K.; Bemmerer, D.; D¨oring, T.; Schwengner, R.; 等. 氩-40(n,2n)氩-39反应截面及氩-39在地球大气层中产生的首次实验测定。《地球化学与宇宙化学学报》2025年，S0016703725007227页。https: //doi.org/10.1016/j.gca.2025.12.041。[33] Golovko, V.V. 《使用成对比值和MFV统计量从HPGe辐射传感器时间序列进行稳健寿命估计》的数据。开放科学框架（OSF）项目，2025年。https://doi.org/10.17605/OSF.IO/2RVQF。[34] A Shokeralla, A. 离散拉普拉斯变换（DLT）阶数：一种比较离散剩余寿命分布的敏感方法及其在排队系统中的应用。《欧洲纯粹与应用数学杂志》2025年，18，6994。https://doi.org/10. 29020/nybg.ejpam.v18i4.6994。[35] Hughes, I.; Hase, T. 测量及其不确定度：现代误差分析实用指南；牛津大学出版社，2010年。