光电器件

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.20250222003

测量闪烁体荧光衰减特性的TCSPC系统及优化研究

张翔宇，韩纪锋*，曲国峰，刘星泉，林炜平

（四川大学 原子核科学技术研究所 辐射物理及技术教育部重点实验室，成都 610065）

摘　要： 基于飞行时间法（ToF）的液闪探测器是实现聚变点火研究中子/伽马诊断的关键方法，其性能核心依赖于闪烁体的快衰减特性。为满足闪烁体衰减特性精确测试的需求，文章基于时间相关单光子计数（TCSPC）原理建立了测试系统，并针对单光子信号获取优化了衰减机构，采用“滤片＋多孔光栅”结构。测试结果表明，该系统响应时间为0.84 ns，光强度测量动态范围达10^4，测量精度为0.61 ns，单光子信号占比95％以上。利用该系统对衰减特性差异显著的BC501液体闪烁体和CLYC晶体闪烁体进行了验证测试，成功获得了二者的衰减曲线。分析结果显示，BC501闪烁体的衰减常数分别为3.7 ns和35.5 ns，与参考值分别相差0.5 ns和3.2 ns；CLYC的衰减常数分别为1.4 ns，58.9 ns和1 074 ns，与参考值分别相差0.4 ns，8.9 ns和74 ns。分析结果证实了测量系统的可靠性，该系统将应用于后续闪烁体样品的测试对比研究。

关键词： 衰减时间常数；时间相关单光子计数技术；BC501；CLYC

中图分类号： TL812；TN247　**文章编号：** 1001－5868(2025)04－0638－07

Time-Correlated Single Photon Counting-Based System for Measuring Fluorescence Decay Characteristics of Scintillators and Optimization Research

ZHANG Xiangyu, HAN Jifeng, QU Guofeng, LIU Xingquan, LIN Weiping

(**Key Laboratory of Radiation Physics and Technology of the Ministry of Education, Institute of Nuclear Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610065, CHN**)

Abstract: Liquid scintillation detectors based on the time-of-flight method are important for neutron/gamma diagnosis in fusion ignition research, with rapidly decaying scintillators at the core. To meet the testing requirements for scintillator decay characteristics, this study developed a testing system based on the advanced time-correlated single photon counting principle and optimized the attenuation mechanism on the basis of a “filter ＋ porous grating” structure for single photon acquisition. The system response time was found to be 0.84 ns, with dynamic range of light intensity measurement of 10^4 and measurement accuracy of 0.61 ns. Notably, more than 95％ of the signal can be attributed to single photons. Validation tests were conducted on BC501 and CLYC scintillators, which differ considerably in terms of decay characteristics, and the resultant decay curves for both scintillators were obtained. The decay constants of the BC501 scintillator were found to be 3.7 and 35.5 ns, which differ from the reference values by 0.5 and 3.2 ns, respectively. Similarly, the decay constants of the CLYC scintillator were found to be 1.4, 58.9, and 1 074 ns, which differ from the reference values by 0.4, 8.9, and 74 ns, respectively. These results confirm the reliability of the developed measurement system and will be applied in subsequent testing and comparison of scintillator samples.

收稿日期：2025－02－22.

基金项目：国家重点研发计划项目（2023YFF0721700）.

* **通信作者：**韩纪锋

Key words: decay time constant; time-correlated single photon counting principle; BC501 scintillator; CLYC scintillator

0 引言

在惯性约束聚变(ICF)快点火实验中,压缩靶丸的面密度是核心观测参数,需通过分析初级DD中子和次级DT中子的产额比确定。基于快闪烁探测器和飞行时间测量技术(ToF)的测量技术因其高灵敏度成为主流诊断方法之一。然而,X和γ射线早于中子到达探测器,其信号拖尾易淹没待测中子信号——这一问题在慢衰减成分占优的闪烁体中尤为突出。因此,闪烁体的荧光衰减时间常数成为评价其适用性的关键指标[1-2]。液体闪烁体(如BC501)因具备高光产额、低伽马灵敏度以及快响应(余辉低至10^{-5}@100 ns)等优势[3],在中子诊断中备受关注。准确表征闪烁体的衰减特性,是验证其能否满足聚变诊断需求的关键。

研究闪烁体荧光衰减特性的方法主要有三种:直接示波法[4]、平均波形取样示波法[5]和时间相关单光子计数法(TCSPC)[6-8]。直接示波法和平均波形取样法的实验装置较简单,但闪烁光强度动态范围受限(小于10^2)[4]。TCSPC通过时间符合与器件冷却抑制本底,动态范围显著提升(国内达10^4[9],国外达10^5[3])

利用单光子计数法测量闪烁体荧光衰减曲线,主要采用两种实验布局:(1)使用放射源对待测闪烁体进行激发[6,8,10],在闪烁体的两个出光面分别给出多光子和单光子信号,通过两路信号的符合获得衰减时间曲线;(2)利用放射源发生正电子湮灭发出的两条相同能量的伽马射线,同时激发定时闪烁体和待测闪烁体,分别给出多光子和单光子信号[3,7],符合获得衰减时间曲线。第一种布局要求闪烁体有两个出光面,闪烁体、多光子探测器件、衰减机构和单光子探测器件布局严格固定,更换样品需要破坏两个探测器件的避光环境,更换样品较为不便、存在布局变化的风险。第二种布局只需要闪烁体有一个出光面,更换样品仅需破坏单光子探测器的避光条件,较易实现且可保证布局的一致性。

实验基于第二种布局进行调试测量和优化。在本测试系统的符合线路中,定时闪烁体产生的荧光作为起始信号,待测闪烁体产生的荧光经衰减为单光子后作为停止信号,以此记录闪烁体受激发后的单光子数随时间的分布,反映闪烁体受激发后特定时刻产生1个光子的概率,即闪烁体荧光衰减时间曲线[11]。为将闪烁体荧光衰减至单光子,在实验布局上设计构造一种基于"滤片+多孔光栅"的新型衰减机构,通过改变光栅上小孔数量可实现衰减倍数的精确控制,并通过脉冲宽度、幅度和形状等参数确认获得的信号的单光子特性及占比。针对衰减特性差异较大的两种基准闪烁体BC501和CLYC,利用所建立的单光子计数测量系统获得了衰减特性曲线,分析结果与文献数据一致,验证了测量系统的可靠性。

1 实验装置和方法

1.1 装置基本结构

实验采用的单光子计数系统如图1所示,使用^{22}Na作为激发源,利用其发生正电子湮没产生的两条同时、反向的伽马射线对待测闪烁体Scintillator1和定时闪烁体Scintillator2进行激发[3,7]。Scintillator1激发出的荧光通过衰减机构后被PMT1采集输出,输出信号依次经快速前置放大器、恒比定时器和延迟盒处理,随后作为停止信号输入时幅转换器。Scintillator2与PMT2良好耦合,其产生的荧光直接由PMT2采集输出,输出信号依次经过快速前置放大器和恒比定时器,然后作为开始信号输入时幅转换器。时幅转换器测量开始信号和停止信号之间的时间间隔,之后将该时间间隔成比例转化为模拟脉冲输入到多道分析器中。多道分析器记录脉冲的幅度和数量,最终重建出Scintillator1的衰减曲线。Scintillator2选择超快响应的BaF_2晶体,其快成分上升时间为0.31 ns、FWHM为1.12 ns[12-13],适合用于伽马射线的定时。

实际测量中,杂散光诱发的电子、PMT阴极的热电子发射会引入非时间相关的噪声信号。杂散光的影响通过双层暗室进行隔离;热噪声的影响则采用了两种途径:(1)选择专用于光子计数的光电倍增管作为PMT1,在增益为1×10^7的条件下阳极暗计数低至10 s^{-1};(2)通过冷水机和基于帕尔贴半导体的冷却机对光电倍增管采取降温措施,实验所选用的PMT在−20℃下的热电子发射率衰减至常温下的1/4。

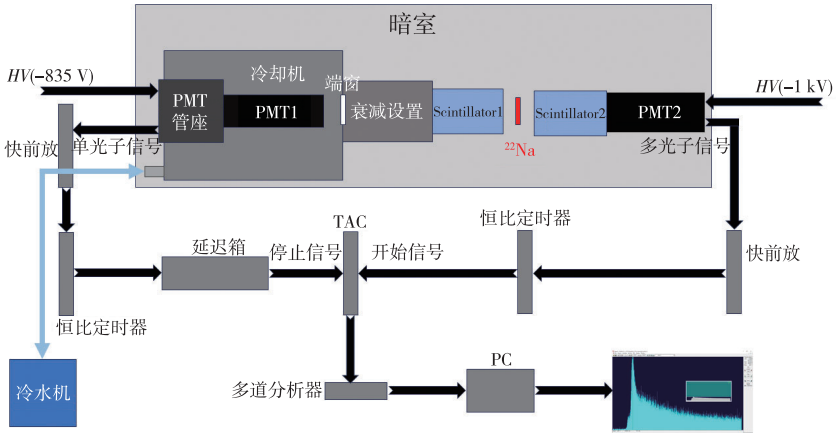


图1 实验装置框图

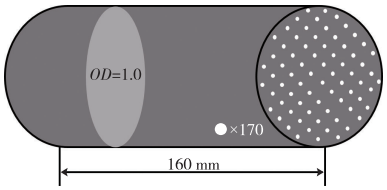
1.2 衰减机构

将闪烁体荧光衰减至单个光子是单光子计数的关键。需要通过精细调节衰减机构的参数,既保证衰减后单光子的占比,又避免过度衰减导致测量效率降低。衰减机构的设置存在多种模式:增加闪烁体与光电倍增管之间的距离实现衰减的距离衰减模式[8]、使用中性滤光片[4]和单孔光栅[9]的“滤片+单孔光栅”衰减模式及传统的“距离+单孔光栅”衰减模式等。以上方式均存在一些弊端,比如距离难以调控、滤光片的组合与调节繁琐、单孔光栅位置影响较大或孔径微调困难等。

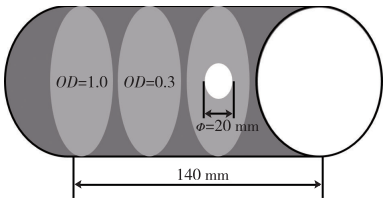
实验对传统的“滤片+单孔光栅”衰减机构进行优化,制作如图2(a)衰减设置1所示的“滤片+多孔光栅”衰减机构。该衰减机构使用Φ55 mm×160 mm的光学套筒耦合待测闪烁体的出光面与冷却机的端窗,用遮光布覆盖套筒靠闪烁体出光面一侧,并在遮光布上制作分布均匀、直径约为1 mm的小孔170个,小孔密度约为7个/cm^2。套筒中设置一个衰减倍数为10倍的滤光片,使总衰减倍数达到约8 000倍。

同步制作传统的“距离+单孔光栅”衰减机构,如图2(b)所示:使用Φ55 mm×140 mm的光学套筒耦合待测闪烁体的出光面与冷却机的端窗,并在套筒内设置一个孔径为20 mm的光栅和两个总衰减倍数约为25倍的中性滤光片。经测试分析,设置2的总衰减倍数约为3 000倍。

对比发现:设置2的光栅直径产生1 mm变化引起的光栅面积变化达到10.3%,难以通过调整光栅孔径来精确控制设置2的衰减倍数。相较之下,设置1中增减一个小孔对光栅总面积的改变小于1%,可实现衰减倍数的精确微调。在易调节性和设置合理性方面,设置1明显优于设置2。



(a) 衰减设置1



(b) 衰减设置2

图2 衰减机构

1.3 测试样品

为验证测试系统的性能,Scintillator1选用衰减特性差异较大的BC501液体闪烁体和CLYC晶体闪烁体。BC501的三个衰减成分分别为3.2 ns,32 ns和270 ns[14],CLYC的三个衰减成分分别为1 ns,50 ns和1 000 ns[15]。两个待测闪烁体的各个衰减成分量值差异数倍,可检验测量系统对不同闪烁体各组分衰减常数的测量准确性。CLYC晶体闪烁体尺寸为Φ38 mm×38 mm、BC501液体闪烁体尺寸为Φ50.8 mm×50.8 mm。

2 系统性能

2.1 系统响应与时间刻度

光电倍增管的时间弥散特性及核电子学插件的时间晃动,使得时间分布为“零”的光源的时间分布测量结果具有一定展宽,该分布就是闪烁体荧光衰减时间测量系统的响应函数t_{resp}。测量系统获得的衰减特性测量结果为闪烁体荧光真实衰减时间

与系统自身响应时间的卷积结果。

在图 1 实验布局中，将待测闪烁体 Scintillator1 设置为 BaF_2 晶体，开展系统响应时间的测量。在理想条件下，^{22}Na 正电子湮没发射的两条伽马射线在两个探测器中同时产生一对信号，多次计数后在时间谱上表现为某一时间道上的一条谱线[9]。单光子计数系统的响应时间谱结果如图 3 所示，半高宽为 7 道、每一道对应 0.12 ns，可得响应时间为 0.84 ns。

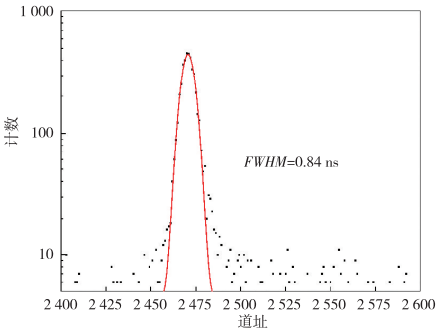


图 3　闪烁体发光衰减时间测量系统的响应时间曲线

在测量系统响应时间的实验基础上，通过改变延迟盒的延迟时间 τ，并记录不同延迟时间下系统响应曲线的峰位，完成系统的时间刻度。刻度和拟合结果如图 4 所示，拟合方法为最小二乘法，拟合 R^2 大于 0.999 99。

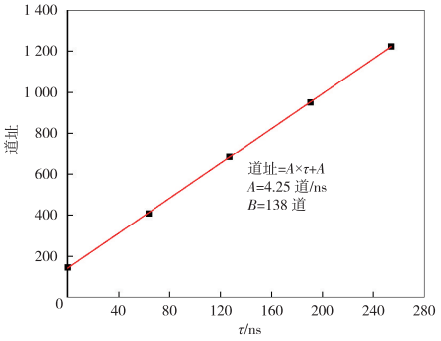


图 4　衰减时间测量系统时间刻度和拟合结果

2.2　信号波形分析

为保证测量结果的可靠性，对进入时幅变换器的停止信号进行观测分析。作为停止信号的单光子信号，其脉冲通常具有以下特征：幅度接近 20 mV、宽度小于 5 ns，并且相较于多光子信号其形状更为对称[16]。

在测试系统调试过程中，利用示波器观测光电倍增管处于不同高压下的脉冲波形。经实验观察发现，停止信号脉冲波形可分为特性明显的两类（如图 5 所示）：(1)FWHM 约为 4 ns，左右对称，后沿较为光滑，见脉冲（一）；(2)主峰后沿叠加多个小峰，主峰 FWHM 约 2 ns 并且主峰近似左右对称，见脉冲（二）。

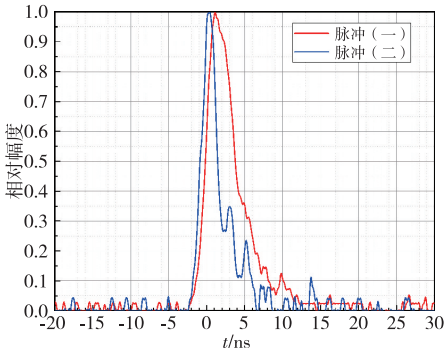


图 5　两种 PMT 输出脉冲波形

对不同电压下的 2 000 个脉冲归一化后的平均波形进行对比分析，如图 6 所示。当电压在 −700～−730 V 范围内时，平均波形的 FWHM 约为 4 ns，且波形与图 5 中脉冲（一）相似。随着电压升高，脉冲前沿变陡，后沿逐渐出现分立的峰。大于 −750 V 时，脉冲的第一个峰的 FWHM 变窄至 2 ns，波形与图 5 中脉冲（二）相似。

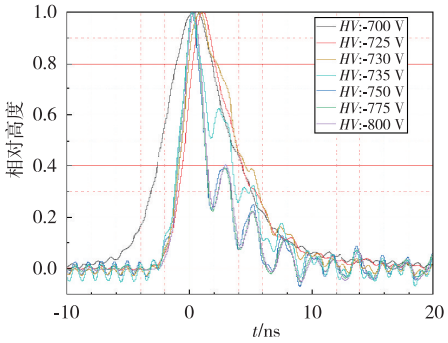


图 6　平均波形随 PMT 电压的变化

对不同高压下两种脉冲波形的计数及比例进行分析，如图 7 所示。随着 PMT 所加电压升高，FWHM 为 2 ns 的脉冲数量增加，占比从 35% 上升到 98%，当电源电压达到 −750 V 时趋于稳定，这与图 6 中脉冲平均波形随电压的变化规律一致。

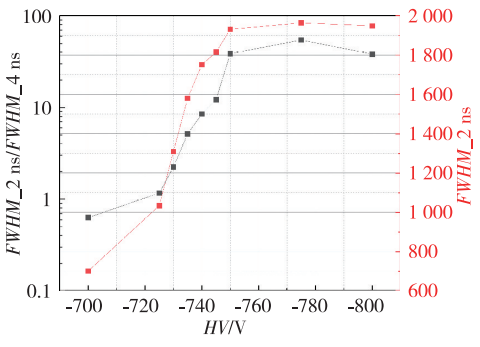
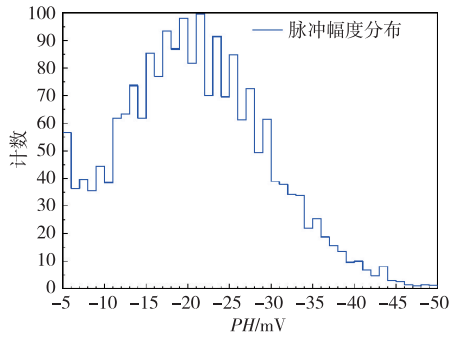
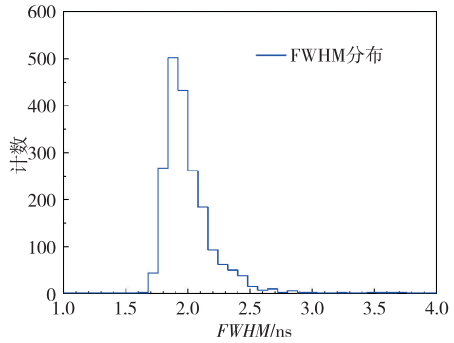


图 7　两种脉冲的数量和占比随 PMT 电压的变化

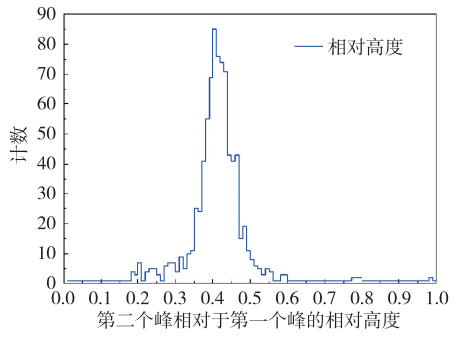
为确认测量系统的工作条件及单光子信号特性，对－800 V条件下的脉冲做进一步分析，包括脉冲幅度、FWHM、脉冲后沿第一个次峰相对于主峰的高度和两峰之间的时间间隔，统计结果如图8所示。



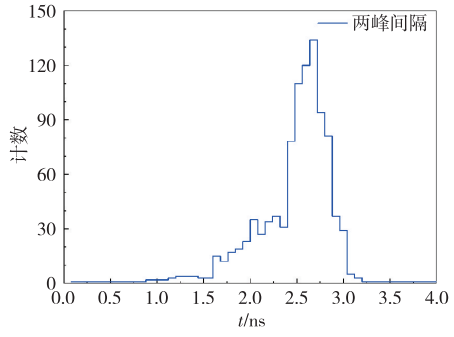
（a）脉冲幅度



（b）FWHM



（c）脉冲后沿第一个次峰相对于主峰的高度



（d）两峰之间的时间间隔

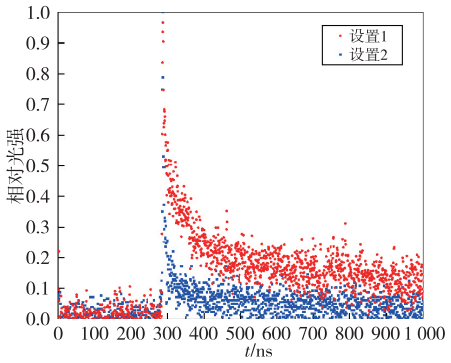
图8 PMT采集的脉冲波形特征

结果表明，脉冲幅度分布在10 mV附近有明显的低谷，为热单电子与单光子信号的分离区域，之后脉冲数量随脉冲幅度先增后减，在20 mV处脉冲数量最多，幅度大于40 mV的脉冲少于2%；脉冲主峰FWHM在1.8 ns到2.5 ns占98%；脉冲后沿第一个次峰相对主峰的高度呈高斯分布，相对高度在0.35到0.5范围内的脉冲占83%；第一个次峰和主峰间隔1.5 ns到3 ns的脉冲占94%。可见脉冲波形中的次峰在波形特征方面存在高度一致性，而多光子信号的次峰不具备这样的一致性，排除了多光子信号的可能。另外，采用多种长度、类型的信号电缆进行测试，波形特性未发生变化，排除了信号反射的可能。

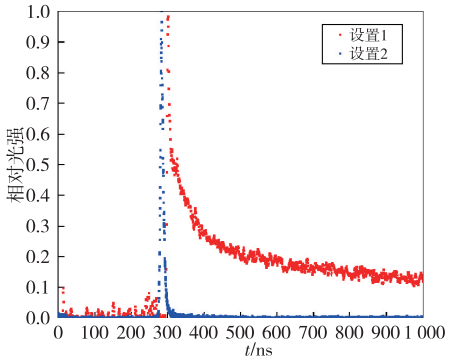
在上述波形条件下进行衰减时间曲线测试，确认停止信号脉冲波形后沿小峰对测试结果不构成影响。至此，测量系统获得的信号在幅度、宽度及对称性方面均完成了测试。取脉冲幅度10～40 mV、宽度小于3 ns的脉冲信号为单光子信号，统计单光子信号占95%以上。综上所述，测量系统性能满足单光子测试要求。

3 测量结果

测量系统直接获得的脉冲幅度谱需要经过幅度-时间转换和本底扣除，最终获得闪烁体的衰减时间曲线。图9(a)是CLYC闪烁体发光衰减曲线使用两种不同衰减设置时的测量结果。红色散点为当使用衰减设置1进行闪烁光衰减时，获得的衰减曲线测量结果。蓝色散点为采用衰减设置2在低衰减倍数条件下获得的测量结果。可见蓝色散点的衰减速度快于红色散点，这种现象源于荧光的不充分衰减，导致在CLYC的单次闪烁中有多个光子被PMT探测到。在一个定时周期内，当有多个光子被PMT探测到并产生脉冲信号时，只有最早被探测到的光子信号会被时幅转化器用作停止信号，而较晚发射的光子则被舍弃，这使得荧光衰减速度的测量结果相较真实衰减速度偏快。为进一步确认测试结果的可靠性，延长不同衰减设置下的测量时间，结果见图9(b)。图9(b)与图9(a)结果一致，均说明了对于所测量的CLYC样品，设置1对闪烁光的衰减更充分，获得的测量结果更准确。



（a）CLYC 发光衰减曲线测量结果（短测量时间）



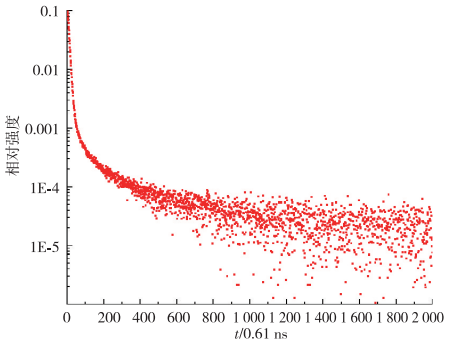
（b）CLYC 发光衰减曲线测量结果（长测量时间）

图 9　CLYC 晶体闪烁体的衰减时间测量结果

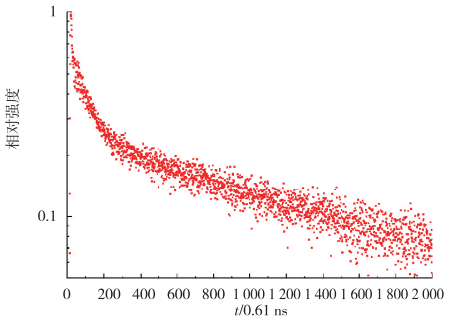
图 10 为 CLYC 闪烁体及 BC501 液体闪烁体的荧光衰减曲线测量结果。结果显示两个闪烁体均存在衰减速度不同的荧光成分，其中较快的成分接近纳秒量级。测量系统的测量精度为 0.61 ns，可测量的荧光相对光强低至 10^{-3} 以下，测量的动态范围达到 10^4。

对 CLYC 和 BC501 的衰减曲线经过幅度-时间转换和本底扣除后，通过拟合获得了两个闪烁体的衰减参数，与参考数据的对比结果如表 1 所示。

可以看出，使用单光子计数法基于优化的衰减机构对 CLYC 和 BC501 衰减常数的测量结果与文献数据较为一致。CLYC 快衰减成分的测量结果与 Berkeley Nucleonics[15] 公布的参考数据仅相差约 0.4 ns；CLYC 第二个衰减成分的测量结果与 Ferrulli[17] 测量的结果相差 1.9 ns；第三个衰减成分因为荧光相对强度较弱，并且拟合结果受所选拟合区间影响较大，所以三组数据间都存在差异，但相比之下本工作中测得的 CLYC 慢衰减成分与官方的参考数据相差最小，为 74 ns。BC501 前两个发光衰减常数的测量结果与文献数据[14] 分别相差 0.5 ns 和 3.2 ns。



（a）BC501 液体闪烁体测量结果



（b）CLYC 晶体闪烁体测量结果

图 10　BC501 和 CLYC 的荧光衰减曲线

表 1　两种闪烁体的衰减常数

闪烁体	数据来源	发光衰减常数/ns		
		t_1	t_2	t_3
CLYC	测量数据（本文）	1.4	58.9	1 074
	测量数据[17]	1.9	57.0	1 379
	参考数据[15]	1.0	50.0	1 000
BC501	测量数据（本文）	3.7	35.5	——
	参考数据[14]	3.2	32.3	270

4　总结

建立一套基于“滤片＋多孔光栅”衰减机构的可精细调节衰减倍数的单光子计数系统，经测试系统响应时间为 0.84 ns、时间刻度线性较好。测试系统获得的待测闪烁体信号脉冲幅度、半宽满足单光子特征要求、后沿次峰影响可忽略，单光子信号份额超过 95%，光强度测试动态范围达到 10^4。选用 CLYC 和 BC501 闪烁体完成了衰减曲线的测量，拟合得到 CLYC 的各衰减常数与参考数据相差 0.4 ns、8.9 ns 和 74 ns，BC501 的各衰减常数与参考数据相差 0.5 ns 和 3.2 ns。综上所述，基于原创衰减机构的单光子计数系统性能达到了国内外同行水平，该系统的精细调节衰减倍数功能可更好适配不同闪烁体的测试需求。

本工作中CLYC和BC501测量得到的荧光衰减常数比官方参考值偏大，这一差异可能归因于待测闪烁体的厚度和尺寸。后续工作中，将选用不同厚度和尺寸的闪烁体进行测量，以进一步研究衰减规律与闪烁体样品厚度和尺寸之间的关系。

参考文献：

[1] Lan J, Zhao F, Ding M, et al. A universal formula for light attenuation of scintillator detector [J]. Nuclear Physics Review, 2019, 36(1): 78-84.

[2] 李忠宝，彭太平，胡孟春，等. 几种常用闪烁体衰减时间常数的实验测量[J]. 核电子学与探测技术，2013，33(12)：1523-1526，1562.
Li Zhongbao, Peng Taiping, Hu Mengchun, et al. Decay time constant measurement for some scintillator [J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2013, 33(12): 1523-1526, 1562.

[3] Lauck R, Brandis M, Bromberger B, et al. Low-afterglow, high-refractive-index liquid scintillators for fast-neutron spectrometry and imaging applications[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2009, 56(3): 989-993.

[4] 国家质量监督检验检疫总局. 闪烁体性能测量方法：GB/T 13181—2002[S]. 北京：中国标准出版社，2004.
General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. Measurement Methods of Scintillator Characteristics: GB/T 13181—2002 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2004.

[5] 汲长松，王婷婷，张庆威，等. 锂玻璃、蒽闪烁体衰减时间测量[J]. 核电子学与探测技术，2017，37(5)：507-509.
Ji Changsong, Wang Tingting, Zhang Qingwei, et al. The decay time measurements of lithium glass and anthracene scintillator[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2017, 37(5): 507-509.

[6] Marrodán Undagoitia T, von Feilitzsch F, Oberauer L, et al. Fluorescence decay-time constants in organic liquid scintillators [J]. Review of Scientific Instruments, 2009, 80(4): 043301.

[7] Zhong W L, Li Z H, Yang C G, et al. Measurement of decay time of liquid scintillator[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2008, 587(2/3): 300-303.

[8] He L P, Fang Y, Chen S F, et al. Measurement system of decay time for liquid scintillator[J]. Applied Mechanics and Materials, 2014, 513-517: 4285-4286.

[9] 汲长松，贺宣庆，王婷婷，等. ST401型塑料闪烁体闪烁时间测量[J]. 核电子学与探测技术，2013，33(4)：462-466.
Ji Changsong, He Xuanqing, Wang Tingting, et al. The decay time measurement of ST401 type plastic scintillator [J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2013, 33(4): 462-466.

[10] Bollinger L M, Thomas G E. Measurement of the time dependence of scintillation intensity by a delayed-coincidence method[J]. Review of Scientific Instruments, 1961, 32(9): 1044-1050.

[11] 王 强，王 璐，屈菁菁，等. 基于单光子技术的闪烁体衰减时间常数测量[J]. 压电与声光，2020，42(2)：200-202.
Wang Qiang, Wang Lu, Qu Jingjing, et al. Measurement of scintillator decay time constant based on single photon technology [J]. Piezoelectrics & Acoustooptics, 2020, 42(2): 200-202.

[12] Chen X, Zhang Z C, Zhang K, et al. Study on the time response of a barium fluoride scintillation detector for fast pulse radiation detection[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2020, 67(8): 1893-1898.

[13] Laval M, Moszyński M, Allemand R, et al. Barium fluoride—Inorganic scintillator for subnanosecond timing[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1983, 206(1/2): 169-176.

[14] Lang R F, Masson D, Pienaar J, et al. Improved pulse shape discrimination in EJ-301 liquid scintillators [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2017, 856: 26-31.

[15] clyc_datasheet_bnc[Z]. Berkeley Nucleonics Corp. https://www.berkeleynucleonics.com/clycce

[16] Becker W. Advanced Time-Correlated Single Photon Counting Applications [M]. Cham: Springer International Publishing, 2015.

[17] Ferrulli F, Caresana M, Cova F, et al. Analysis and comparison of the Core-to-Valence luminescence mechanism in a large CLYC crystal under neutron and γ-ray irradiation through optical filtering selection of the scintillation light[J]. Sensors and Actuators A: Physical, 2021, 332: 113151.

作者简介：

张翔宇(2001—)，男，硕士研究生，主要从事辐射测量方面的研究；

韩纪锋(1982—)，男，博士，研究员，博士生导师，主要研究领域：辐射探测、蒙卡模拟和核聚变诊断。