文章编号: 0253-2239(2008)04-0813-04

# 一种基于微通道板的脉冲 X 射线时间谱仪

## 顾 牡 王 迪 倪 晨 刘小林 黄世明 刘 波

(同济大学波耳固体物理研究所、波与材料微结构实验室,上海 200092)

摘要 为适应新型超快闪烁材料研究的需要,在原有脉冲 X 射线时间谱仪的基础上,通过改装微通道板光电倍增管(MCP-PMT),并采用具有快时间响应的前置放大器(FPA)和恒比甄别器(CFD)的方法,使谱仪的时间分辨极限提高到 170 ps 左右。BaF<sub>2</sub> 晶体闪烁光快成分衰减时间谱的测量结果表明:该谱仪可很好地满足新型超快闪烁材料发光衰减时间特性的研究。

关键词 脉冲 X 射线; 时间分辨; 微通道板光电倍增管; 衰减时间谱

中图分类号 O434 文献标识码 A

# A Pulsed X-Ray Facility for Fluorescent Lifetime Measurement Based on Microchannel Plate Photomultiplier Tube

Gu Mu Wang Di Ni Chen Liu Xiaolin Huang Shiming Liu Bo (Key Laboratory of Waves and Microstructure Materials, Pohl Institute of Solid State Physics, Tongji University, Shanghai 200092, China)

**Abstract** To meet the needs of research on new fast scintillation materials, the home-made pulsed X-ray facility for fluorescents lifetime measurement was upgraded by using microchannel plate photomultiplier tube (MCP-PMT), fast preamplifier (FPA) and fast constant-fraction discriminator (CFD). The time resolution of the facility is improved to about 170ps. The decay time measurement of the fast scintillation component in  $BaF_2$  crystal shows that the facility can be well adequate to the research on decay times of fast scintillation materials.

Key words pulsed X-ray; time resolution; microchannel plate photomultiplier tube; decay time

### 1 引 言

随着闪烁材料在高能物理实验、核技术应用中的快速拓展,人们对闪烁材料特性尤其是应用于高计数率测量的闪烁材料发光衰减时间特性提出了更高的要求。因此新型超快闪烁材料的研究已成为当今闪烁材料研究的一个重点。

时间关联单光子计数法被认为是测量超快闪烁 材料荧光衰减时间较为理想的方法<sup>[1]</sup>。根据射线源 的不同该方法又可分为两类。一类利用<sup>60</sup> Co 衰变 双 γ 的级联跃迁或者<sup>22</sup> Na 产生的正电子湮没放出 的两个 γ 光子作为辐射源<sup>[2,3]</sup>;另一类采用同步辐射 光源的脉冲 X 射线作为激发光源<sup>[4]</sup>。然而以上两 类实验手段,或是由于 γ 射线对材料的穿透力较强 不适合粉末状样品的测量;或是由于同步辐射装置 设备巨大,实验代价昂贵,且用光时间有限。这些因 素都极大的限制了该方法应用。

本实验室,以脉冲 X 射线为光源,运用时间关联单光子测量技术,研制设计出一套脉冲 X 射线激发荧光寿命谱仪<sup>[5,6]</sup>。该谱仪具有时间分辨极限高、动态范围大、波长响应宽、使用灵活方便等特点,且具有很强的可扩展性。并运用这一谱仪我们已成功进行了BaF<sub>2</sub>、PbWO<sub>4</sub>、CeF<sub>3</sub>、Lu<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Ce、LaCl<sub>3</sub>:Ce、LaBr<sub>3</sub>:Ce等一系列新型闪烁材料发光动力学的研究<sup>[7,8]</sup>。

本工作主要是在原有时间谱仪的基础上,通过对谱仪探测器部件的改进,以及后继电子学器件的更换,开发出一种基于微通道板的超短脉冲 X 射线激发荧光寿命谱仪,提高该谱仪的时间分辨极限以满足超快闪烁材料研究的需要。

**收稿日期:** 2007-10-10; **收到修改稿日期:** 2007-11-15

基金项目: 国家自然科学基金(50672068,10476018)和上海市科委研究项目(05JC14062,05ZR14123)资助课题。

作者简介: 顾 牡(1961一),男,教授,主要从事固体发光方面的研究。E-mail: mgu@mail. tongji. edu. cn

### 2 设计思路及工作原理

#### 2.1 改进思路及谱仪结构

对超短脉冲 X 射线激发荧光寿命谱仪而言,影响系统时间分辨极限的关键因素之一是:光电倍增管(PMT)光电子的渡越时间分散(TTS)。一般光电倍增管的渡越时间分散(TTS)在亚纳秒量级,再加上光源脉冲宽度和电子学器件的时间漂移,谱仪的时间分辨极限在 1 ns 左右。基于这一考虑,我们选用具有较小光电子渡越时间分散的微通道板光电倍增管(MCP-PMT),并配以可适用快信号放大和甄别的前置放大器和恒比甄别器,作为改善整台谱仪时间分辨本领的主要手段。

整套系统包括:脉冲 X 射线源、样品室、光电转换器件、时间符合快电子学器件、微机数据采集系统。由脉冲激光控制器同时产生两路脉冲信号,一路作为起始信号(start)经延迟直接进入时幅转换器(TAC);而另一路信号驱动激光二极管,脉冲激光照射光激发 X 射线管的光阴极,产生脉冲 X 射线(脉冲宽度:113 ps)<sup>[5]</sup>;样品被脉冲 X 射线激发产生荧光,采用微通道板光电倍增管测量样品发出的单光子信号,信号经放大、甄别作为事件的终止信号(stop)进入时幅转换器,大量起始与终止信号时间间隔的统计分布反映了该闪烁材料的时间特性。谱仪的基本结构如图 1。

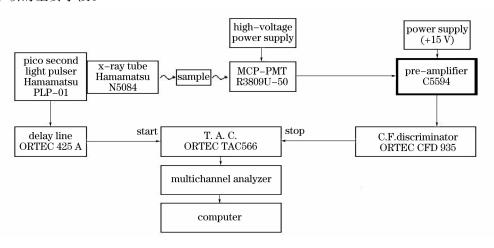


图 1 脉冲 X 射线示意图

Fig. 1 Schematic of the pulsed X-ray facility

鉴于脉冲 X 射线源、样品室、时幅转换器、多道和微机数据采集系统等均未作变动,以下仅就谱仪中被调整部分做一分析与说明。

#### 2.2 光电转换器微通道板光电倍增管

微通道板光电倍增管是一种采用微通道板 (MCP)作为电子倍增级的新型光电倍增管。微通道板通道直径约为  $6\sim20~\mu\mathrm{m}$ ,通道长度为  $1~\mathrm{mm}$  左右,倍增级电压连续分布,光电面与微通道板以及微通道

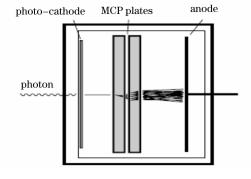


图 2 微通道板光电倍增管结构图

Fig. 2 Construre of microchannel plate photomultiplier tube

板与阳极距离都很近(几个毫米的量级),如图 2。由于微通道板光电倍增管的独特结构,使得微通道板光电倍增管的独特结构,使得微通道板光电倍增管具有:响应快、增益高、电耗低、结构紧凑、抗磁干扰强等特点<sup>[9]</sup>,特别适用于超快信号的测量<sup>[10]</sup>。

依据快闪烁材料荧光寿命测量的要求。我们选用了 Hamamatsu 公司的 R3809-05 型微通道板光电倍增管。该产品具有时间响应快、噪声低、有效工作面大、抗环境干绕能力强、工作稳定等特点。具体性能指标见表 1。

表 1 R3809-05 性能参量 Table 1 Specifications of R3809-05

Type	MCP-PMT
Photocathode area size /mm	Dia. 11
Wavelength (peak) /nm	430
Photocathode material	Multialkali
Supply voltage /V	-3000
Gain	$1 \times 10^5$
Rise time of ime response /ps	150
Fall time of time response /ps	360
T. T. S. /ps	25

脉冲 X 射线激发荧光寿命谱仪,其系统的时间分辨本领 8 可由下式表示[<sup>9</sup>]:

$$\delta = \sqrt{(T_{\rm TS})^2 + (T_{\rm w})^2 + (T_{\rm i})^2},$$

其中  $T_{TS}$  为光电管的渡越时间分散, $T_{w}$  为脉冲 X 射线的宽度, $T_{i}$  为电子学系统引起的时间漂移。一般光电倍增管的  $T_{TS}$  在亚纳秒量级,输出脉冲的上升时间在 ns 量级,而 R3809-05 型微通道板光电倍增管不仅其  $T_{TS}$  仅为 25 ps,且输出脉冲的上升时间仅约为 150 ps,从而为提高信号的时间甄别精度创造了条件。可见采用微通道板光电倍增管对于提高谱仪的分辨本领是十分有益的。

#### 2.3 制冷系统

计数模式下工作的微通道板光电倍增管,即使在无光照的情况下,也会有信号输出。这部分信号来自于微通道板光电倍增管的暗电流,会降低测量的信噪比。暗电流产生的最主要原因是:光阴极及MCP壁表面的热电子发射。为了减少热电子发射,我们为微通道板光电倍增管选配了 Hamamatsu C4878 制冷系统。其具体性能参量如表 2。

表 2 C4878 性能参量

Table 2 Specifications of C4878

Specifications	
Cooling	Thermoelectric effects
Coolant	water
Temperature range	-30 °C ~0 °C
Stable time	about 120 minter
Optical window material	Double-pane fuse silica

实验表明,计数模式下工作的微通道板光电倍增管,在一30℃时的暗电流比室温条件(24℃)下的暗电流低两个量级,因而,低温工作可有效提高测量的信噪比。

#### 2.4 电子系统的改进

由于 R3809-05 型微通道板光电倍增管单光子信号输出脉冲的上升时间快(150 ps),脉冲宽度窄(约300 ps),幅度有限(小于100 mV)。为此,需要配置可进行快信号处理的快前置放大器和恒比甄别器。

实验选用了 Hamamatsu 公司的 C5594 型高速前置放大器,该放大器频带响应为 50 k-1.5 GHz,典型功率增益为 36 dB、输出脉冲上升时间小于 1.5 ns。采用 Tektronix 公司的 TDS7254 高性能数字荧光示波器观察,经该前置放大器放大后信号的上升时间为 0.87 ns,脉冲宽度为 1.7 ns。

恒比甄别器(CFD)采用恒比技术通过输出幅度 一定、宽度一定的方波信号给出输入信号的时间,然 而,当出入信号上升时间及脉宽过小时(如小于 2 ns),将不能正常触发普通的恒比甄别器,从而造成事件的丢失。鉴于这一情况,我们选择可用于快信号触发的 Ortec 935 CFD,该器件能接收脉冲信号的最小宽度为 1 ns,在 100:1动态范围内信号漂移小于 50 ps,输出脉冲宽度小于 4 ns。

### 3 结果与讨论

#### 3.1 时间分辨极限的测量

时间分辨极限决定了系统能够测量材料荧光衰减时间的下限,对测量数据的分析有着重要意义。我们测量系统分辨极限的具体方法为:脉冲激光控制器同时产生两路脉冲信号。一路经延迟进入时幅转换器,作为起始信号;另一路用于产生同频的脉冲X射线,为了避免闪烁材料荧光衰减时间对谱仪分辨极限测量的影响,选用荧光衰减时间仅为10~30ps孔雀石绿[11]作为受激材料,其发出的光脉冲经微通道板光电倍增管转换成电信号,经前置放大器和恒比增别器后进入时幅转换器,作为终止信号。图4为实测的谱仪时间分辨函数。

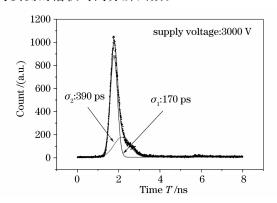


图 3 谱仪分辨极限

Fig. 3 Resolution of the facility

从测量结果可以看到,系统的时间分布并非标准的高斯对称型。出现这一现象的原因是由于微通道板光电倍增管光阴极产生的光电子部分被 MCP 前面板反弹回光阴极,从而造成这部分光电子到达阳极的时间略大于未被反弹的光电子。针对这种情况,我们使用双高斯函数进行总的分辨极限的拟合。拟合函数为

$$y = y_0 + I_1 \exp \left[ -rac{(t-t_0)^2}{2\sigma_1^2} 
ight] + \ I_2 \exp \left[ -rac{(t-t'_0)^2}{2\sigma_2^2} 
ight],$$

其具体拟合结果为:  $I_1 = 882.8$ ,  $\sigma_1 = 170 \pm 10$  ps;  $I_2 = 173.9$ ,  $\sigma_2 = 390 \pm 23$  ps。从两高斯函数的相

对强度可以看出谱仪的时间分辨函数主要来自于第一个函数的贡献。影响谱仪分辨极限的主要因素有:X光源的脉冲宽度约为113 ps,微通道板光电倍增管所造成的渡越时间分散为25 ps,以及前置放大器、恒比甄别器等电子学系统带来的时间漂移。

#### 3.2 BaF<sub>2</sub> 快成分衰减时间谱测量

BaF<sub>2</sub> 晶体具有快慢两个闪烁成份,快成份衰减时间为 0.78 ns,约占 12%,慢成份衰减时间为 610 ns,约占  $86\%^{[12]}$ 。为了检验谱仪的工作性能,应用这一谱仪我们测量了 BaF<sub>2</sub> 晶体闪烁光快成分的发光衰减时间谱。

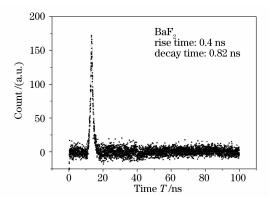


图 4 X 射线激发 BaF2 衰减时间谱

Fig. 4 Fluorescent decay time of BaF2 excited by X-ray

实验结果如图 5,通过对结果的拟合得到 BaF<sub>2</sub> 快成份的发光衰减时间为 0.82 ns,与已知的结果符合的很好。表明谱仪能很好地满足新型超快闪烁材料发光衰减时间特性的研究。

### 4 结 论

通过改装微通道板光电倍增管,并采用具有快时间响应的快前置放大器(FPA)和恒比甄别器(CFD),研制开发出一种基于微通道板的脉冲 X 射线时间谱仪,该谱仪具有较高的时间分辨极限 170 ps。通过对 BaF<sub>2</sub> 闪烁晶体发光快成分衰减时间谱的准确测量,表明该系统能准确测量超快衰减闪烁材料的荧光寿命。对于研究和开发新型闪烁材料有着非常重要的意义。

然而随着人们对闪烁材料认识的加深,闪烁材料荧光形成过程逐渐受到人们的关注。因此,如何改进现有测量系统,提高谱仪时间分辨极限,使该谱仪能准确测量出在几个皮秒荧光形成过程乃是以后

作的重点。

#### 参考文献

- 1 Bollinger L. M., Thoms G. E.. Measurement of the time dependence of scintillation intensity by a delayed-coincidence method[J]. The Review of Scientific Instruments, 1961, 32(9): 1044
- 2 Wang Zhaomin, Xu Zizong, Wu Chong et al.. Study on the fluorescence decay characteristics of lead tungstate crystals[J]. Nuclear Techniques, 1999, 22(2): 89

  汪兆民,许咨宗,吴 冲等. 钨酸铅晶体荧光衰减时间特性的研究[J]. 核技术, 1999, 22(2): 89
- 3 Deng Jingkang, Shang Rencheng, Ning Chuangang *et al.*. Measurements of scintillation characteristics of PbWO<sub>4</sub> crystals [J]. *J. Tsinghua University*, 1997, **37**(12): 81 邓景康,尚仁成,宁传刚 等. 钨酸铅晶体闪烁性能的测试[J]. 清华大学学报,1997, **37**(12): 81
- 4 Jiang Haiyin, Wang Dewu, Gu Mu et al.. Study of fluorescent decay properties of fluorides with Beijing synchrotron radiation source[J]. High Energy Physics and Nuclear Physics, 1996, 20 (12): 1103
- 蒋海音,王德武,顾 牡 等. 用北京同步辐射光源研究氟化物闪 烁体的荧光时间衰减特性[J]. 高能物理与核物理, 1996, **20** (12): 1103
- 5 Duan Yong, Gu Mu, Liang Ling et al.. The development of an ultrashort pulsed X-ray facility for fluorescent lifetime measurement[J]. Nuclear Electronic & Detection Technology, 2003, 23(1): 42~45,52
  - 段 勇,顾 牡.梁 玲等. 超短脉冲 X 射线激发荧光寿命谱仪的设计与研制[J]. 核电子学与探测技术, 2003, **23**(1):  $42\sim45$ , 52
- 6 Gu Mu, Cao Dunhua, Duan Yong et al.. Development of pulsed X-ray facility for wavelength resolved fluorescent lifetime measurement[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2006, 40(2): 162~167
  - 顾 牡,曹顿华,段 勇 等. 光谱分辨的脉冲 X 射线时间谱仪的 研制[J]. 原子能科学技术, 2006,  $\mathbf{40}(2)$ .  $162\sim167$
- 7 Gu Mu , Ma Xiaohui, Xu Rongkuan et al.. Slow component suppression and γ-radiation hardness of BaF<sub>2</sub> crystal modified by photonicband multilayer filter [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2005, 17(1); 42~46
  - 顾 牡,马晓辉,徐荣昆等. 加载光子带隙膜系  $BaF_2$  晶体的闪烁光慢成分抑制和抗  $\gamma$  辐照损伤的研究[J]. 强激光与粒子束,2005, 17(1):  $42\sim46$
- 8 Huang Yanlin, Zhu Wenliang, Feng Xiqi et al.. Properties of Dy<sup>3+</sup>-doped PbWO<sub>4</sub> single crystal grown by modified Bridgman method[J]. J. Cryst. Growth, 2003, 247: 387~392
- 9 Microchannel Plate-Photomultiplier tube (MCP-PMTS) R3809U-50 Series[R]. Hamamatsu, 1997
- 10 Zhang Duoming, Wang Yuhua, Zhang YuLin. Developmental work on microchannel plates[J]. *J. Electron.*, 1982, **4**: 60~68 张多明,王毓华,章玉林. 微通道板的研究[J]. 电子学通讯, 1982, **4**:60~68
- 11 W. Yu, F. Pellegrino, M. Grant et al.. Subnanosecond fluoresecence quenching of dye molecules in solution[J]. The J. Chem. Phys., 1977, 67: 1766~1773
- 12 Schotamus P, Van Eijk C W E, Hollander R W et al.. Photoelectron production in BaF<sub>2</sub>-TMAE detectors [J]. Nucl. Instrum. and Methods, 1987, A259: 586~588