

中子探测用有机闪烁体的研究进展

胡万平¹ 张贵宇^{1,2} 张云龙¹ 庾先国^{1,2}

1(四川轻化工大学 自动化与信息工程学院 宜宾 644000)

2(四川轻化工大学 人工智能四川省重点实验室 宜宾 644000)

摘要 中子探测中,由于存在非弹性散射和慢中子捕获等作用,形成了 n/γ 混合辐射场,增加了中子探测的复杂性。有机闪烁体因其闪烁效率高、衰减时间短、探测效率高被广泛应用于中子探测。脉冲形状甄别是根据有机闪烁体中粒子衰减时间不同引起的脉冲形状差异来甄别 n/γ 的关键技术。传统脉冲形状甄别方法包括时域和频域甄别方法;近年来,各种机器学习技术也相继应用于 n/γ 甄别,并取得较好效果。为了更好地使用有机闪烁体和 n/γ 甄别方法进行中子探测,我们从有机闪烁体的发光机理、脉冲形状甄别原理、有机闪烁体类型及 n/γ 甄别方法等方面进行了较为全面的分析和综述,并总结了有机闪烁体和 n/γ 甄别方法的各种性能评价指标。最后,对有机闪烁体和 n/γ 甄别方法的发展趋势提出了展望。

关键词 中子探测, 有机闪烁体, 脉冲形状甄别, 机器学习, 品质因数

中图分类号 TL812, TL816

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.060401

Research progress of organic scintillators for neutron detection

HU Wanping¹ ZHANG Guiyu^{1,2} ZHANG Yunlong¹ TUO Xianguo^{1,2}

1(School of Automation & Information Engineering, Sichuan University of Science & Engineering, Yibin 644000, China)

2(Artificial Intelligence Key Laboratory of Sichuan Province, Sichuan University of Science & Engineering, Yibin 644000, China)

Abstract During the neutron detection process, owing to the effects of inelastic scattering and slow neutron capture, a neutron-gamma mixed radiation field is formed, which increases the complexity of neutron detection. Organic scintillators are widely used in neutron detection because of their high flashing efficiency, short decay time, and high detection efficiency. Pulse shape discrimination (PSD) is a key technology for discriminating neutrons and gamma rays according to the difference in pulse shape caused by the difference in particle decay time in organic scintillators. Traditional PSD methods include time-domain and frequency-domain discrimination methods. In recent years, various machine-learning techniques applied to neutron-gamma discrimination have achieved better results. To better use organic scintillators and the corresponding neutron-gamma discrimination methods in neutron detection, we conducted a comprehensive analysis of the glowing mechanism of organic scintillators, PSD principle, organic scintillator types, and neutron-gamma discrimination methods and investigated the performance evaluation indexes of organic scintillators and neutron-gamma discrimination methods. Finally, the future development directions of organic scintillators and neutron-gamma discrimination methods were examined.

Key words Neutron detection, Organic scintillators, PSD, Machine learning (ML), Figure of merit (FOM)

国家自然科学基金(No.42004151)、四川轻化工大学研究生创新基金(No.Y2022117)资助

第一作者: 胡万平, 男, 1997年出生, 2020年毕业于成都东软学院, 现为硕士研究生, 研究领域为中子探测

通信作者: 张贵宇, E-mail: gyz_118@163.com

收稿日期: 2023-03-06, 修回日期: 2023-04-11

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.42004151), Postgraduate Innovation Fund Project of Sichuan University of Science and Engineering (No.Y2022117)

First author: HU Wanping, male, born in 1997, graduated from Chengdu Neusoft University in 2020, master student, focusing on neutron detection

Corresponding author: ZHANG Guiyu, E-mail: gyz_118@163.com

Received date: 2023-03-06, revised date: 2023-04-11

中子不带电,与物质的原子核之间没有库仑斥力,难以直接探测,但可以通过核反应产生的次级带电粒子或光子实现中子探测。中子探测方法主要包括:核反冲法、核裂变法、核反应法和核活化法^[1]。有机闪烁体是一组由电离辐射在分子水平上激发的辐射探测器,利用中子与氢核的核反应产生的反冲质子(核反冲法)实现中子探测。但是中子探测中存在非弹性散射和慢中子俘获等作用,伴有大量 γ 射线^[2],并且有机闪烁体对快中子和 γ 射线敏感,因此, n/γ 甄别是中子探测的关键。此外,加载适量金属元素形成的负载有机闪烁体可以提高热中子的探测效率。中子和 γ 射线在有机闪烁体中诱发的荧光脉冲包含瞬时和延迟衰变成分,主要表现为延迟荧光的差异,这种差异取决于激发粒子的能量损失^[3],脉冲形状甄别(Pulse Shape Discrimination, PSD)技术正是根据这种脉冲波形差异实现 n/γ 甄别。这一特性使得具有PSD功能的有机闪烁体广泛应用于特殊核材料检测、核不扩散、辐射防护和国土安全等领域^[4]。早期的PSD技术只能通过复杂的模拟电路实现,随着高性能模数转换器(Analog-to-Digital Converter, ADC)、数字信号处理(Digital Signal Processing, DSP)技术和现场可编程门阵列(Field Programmable Gate Array, FPGA)的发展,数字PSD技术逐渐取代模拟PSD技术,同时机器学习(Machine Learning, ML)技术也为 n/γ 甄别提供了一种新的思路。

1 有机闪烁体中的中子探测原理

1.1 有机闪烁体的闪烁机理

有机闪烁体主要是由碳原子和氢原子构成的具有一定对称性的有机分子组成,这种对称性形成了 π 电子结构。所有的有机闪烁体都遵循相同的基本原理,即不同粒子的脉冲信号具有不同的衰减时间。驱动这些原理的物理机制存在于 π 电子的单态和三重态中^[5]。有机闪烁体产生闪烁光的物理机制如图1所示。具有 π 电子结构的有机分子被电离辐射激发到较高的单态,然后激发态分子通过振动耗散部分能量,达到激发态的最小能量,最终去激发回到基态。激发能和去激发能之间的差异是产生闪烁光的原因。

图1中一系列单态(自旋为0)标记为 S_x ,一系列三重态(自旋为1)标记为 T_x 。 S_{xx} 或 T_{xx} 是 S_x 或 T_x 之间的振动态。在具有 π 电子结构的单个分子的能级跃迁过程中,主要伴随着瞬时荧光、磷光和延迟荧光的产生^[6]。瞬时荧光是由单态 S_{10} 去激发回到基态 S_0 的

振动态 S_{0x} 产生的。磷光是由处于单态 S_{10} 的 π 电子发生“内系统交叉”进入三重态 T_1 再去激发回到基态 S_0 的过程中产生的。处于三重态 T_1 的 π 电子被热激发回到 S_1 ,然后正常去激发回到基态 S_0 的过程中产生延迟荧光。

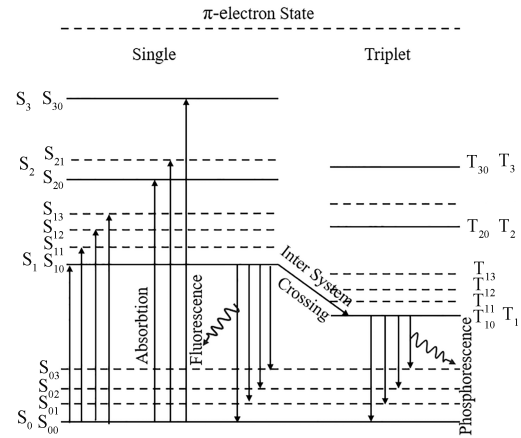


图1 有机闪烁体产生闪烁光的物理原理
Fig.1 Physical mechanism of organic scintillators producing scintillating light

1.2 脉冲形状甄别原理

中子和 γ 射线在有机闪烁体中分别形成反冲质子和电子,具有相同能量的质子和电子不会产生相同量的荧光;由于猝灭效应,质子产生的荧光大大减少;与电子相比,质子激发出密度更大的 π 电子三重态^[7]。这就导致了来自中子的瞬时荧光比 γ 射线少,而延迟荧光比 γ 射线多, n/γ 脉冲信号也因此表现出差异性。PSD正是利用这一原理实现 n/γ 甄别的,脉冲波形具体差异示意图如图2所示。

Brooks等^[8]最早发现了有机闪烁体中辐射粒子的脉冲形状差异,之后逐渐形成了根据脉冲形状的不同(主要是慢分量)来识别粒子的PSD技术。图3

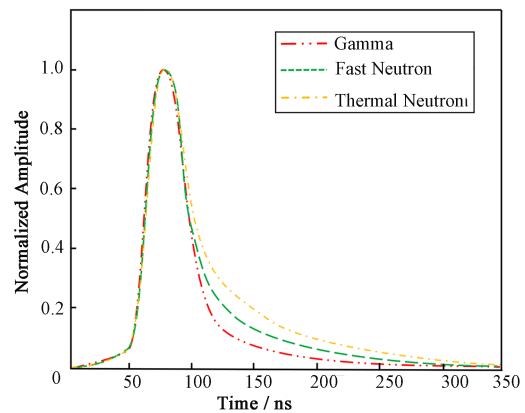


图2 快中子、热中子和 γ 射线脉冲波形示意图
Fig.2 Schematic diagram of the fast neutron, thermal neutron, and gamma ray pulse shapes

展示了有机闪烁体进行中子探测的流程示意图,有机闪烁体(Organic Scintillator)通过光导耦合到光电倍增管(Photomultiplier Tube, PMT)上组成闪烁体探测器对辐射源(Radiation Source)进行探测,并连接放大器(Amplifier)、数据采集系统(Data

Acquisition System)和数据收集系统(Data Collection System)获取中子和 γ 脉冲波形。采用数字信号处理技术对脉冲信号进行处理,然后采用PSD技术和机器学习技术对脉冲信号进行甄别。

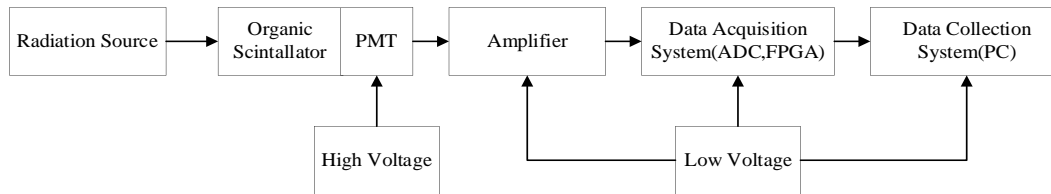


图3 有机闪烁体进行中子探测的流程示意图
Fig.3 Flowchart of the neutron detection experiment with organic scintillators

2 有机闪烁体的研究进展

有机闪烁体由芳香烃化合物类苯环组成的平面分子构成,可以在液体、气体、塑料和晶体等状态下制造^[7],主要包括有机晶体、液体闪烁体、塑料闪烁

体和负载有机闪烁体,理想的有机闪烁体应具有以下特性:发光效率高、线性好、发射和吸收光谱不重叠、可塑性好及合适的折射率等。常见有机闪烁体的重要物理特性^[9]如表1所示。

表1 常见有机闪烁体的重要物理特性
Table 1 Important physical properties of common organic scintillators

有机闪烁体 Organic scintillators	密度 Density / $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	折射率 Refractive index	发光效率 Light output / %	衰减时间 Decay time / ns	最大波长 Wavelength / nm
蒽 Anthracene	1.250	1.620	100	30	447
二苯乙烯 Stilbene	1.160	1.626	50	3.5~4.5	390~410
NE-213	0.874	1.508	78	3.7	425
BC-501	0.901	1.538	80	3.3	425
BC-501A	0.874	1.530	78	3.2	425
EJ-309	0.900	1.570	80	~3.5	424
EJ-301	0.874	1.505	78	3.2	425
EJ299-33	1.080	1.550	50	4.6	420
EJ299-33A	1.080	1.550	56	4.6	425
EJ-276	1.096	1.630	56	4.5	425
EJ-276G	1.096	1.580	52	4.6	490

2.1 有机晶体

有机晶体一般由一种成分(化合物)组成,其中蒽晶体和芪晶体的基本性能和PSD性能较好。Brooks^[10]在1959年成功地使用2.54 cm厚的二苯乙烯晶体以9.5%的效率检测到2 MeV的中子,同时将 γ 射线的检测效率降低到0.007%。蒽晶体在有机闪烁体中具有最高的发光效率,并且具有光衰时间短、性能稳定和结构完整等优点^[11],其他有机闪烁体的发光效率通常由蒽晶体光输出的百分比表示,在开发新晶体时也经常被用作参考。与二苯乙烯和对三联苯等有机晶体相比,蒽具有最佳的PSD能力。二苯乙烯晶体的光输出比较小,是蒽晶体的0.5倍,但

其发光衰减时间只有3.5~4.5 ns,相对容易制备和纯化,无毒无害,具有良好的晶体透明度^[12]。

有机晶体的缺点之一是对入射粒子的各向异性响应,当探测器的方向发生改变时会影响性能,Weldon等^[13]使用²⁵²Cf中子源测量了5种不同的二苯乙烯晶体中质子反冲的光输出的各向异性,其中a轴光输出最大。大尺寸有机晶体在中子探测领域具有独特的性能优势,但是制备大体积闪烁体仍具有挑战性。到目前为止,只有劳伦斯利弗莫尔国家实验室(Lawrence Livermore National Laboratory, LLNL)通过溶液生长技术^[14]生长出超过10 cm的大尺寸反式二苯乙烯单晶,与传统熔融生长技术的晶

体相比,品质因数(Figure of Merit, FOM)值提高了30%~40%,有望用于大规模中子探测。此外, Arulchakkaravarthi 等^[15]利用苯乙烯单晶和 Bridgeman-Stockbarger 生长法制备了 200 mm(直径)×20 mm(高)大体积复合二苯乙烯闪烁体,成功地从具有 γ 背景辐射的信号中分离出中子信号。有机晶体的性能还会受到纯度的影响,过多的杂质会导致主材料的荧光猝灭,性能变差^[16],研究人员在制备和表征高纯度有机晶体方面做了巨大努力。Zaitseva 的研究结果^[17]表明,在混合二苯乙烯和二苯乙烯单晶的模型体系中,带隙能量低的杂质可能是影响有机晶体 PSD 性能的主要因素,降低这类影响将会提高探测器的 PSD 性能。

2.2 液体闪烁体

液体闪烁体是由一种(或几种)具有闪烁特性的有机物质(溶质)溶解在一种(或几种)溶剂中组成的二元(或多元)混合物^[18]。溶质产生闪烁光,有时为了提高光产额,在溶剂中加入少量的波移剂(也称为第二溶质),以更好地匹配光电倍增管的吸收光谱;溶剂主要用于溶解溶质和吸收辐射能量。典型的第一溶质主要有 PPO(2, 5-Diphenyloxazol)、PBD(2-Phenyl, 5-(4-Biphenyl)-1, 3, 4-Oxadiazol)、p-Terphenyl($C_{18}H_{14}$, PPP)等;第二溶质主要有 POPOP(1, 4-bis-[2-(5-Phenyloxazolyl)]-Benzen)、BBQ(Benzimidazo-Benzisochinolin-7-on)等;常用溶剂主要有苯(C_6H_6)、甲苯(C_7H_8)、二甲苯(C_8H_{10})等。迄今为止,已知有 50 多种溶液在核辐射的照射下可以产生闪烁光,但是光输出足够大并且能够可靠地用于实验的液体闪烁体并不多^[19]。

早期的液体闪烁体主要以有机芳香化合物甲苯、二甲苯和异丙苯为主要溶剂^[20]。NE-213 是第一款广泛应用于中子探测的液体闪烁体,由 Nuclear Enterprises Limited 生产,通常密封在铝或玻璃容器中,能够制成大小和形状不同的闪烁体。1968 年, Kuchnir 等^[21]测量了由苯乙烯、NE-213、NE-213M 和 NE-218 激发的中子和 γ 的脉冲形状,为随后使用 NE-213 探测中子奠定了基础。Cavallaro 等^[22]设计一种基于 NE-213 的模拟 PSD 快速展宽电路,避免了对电荷积分器的依赖,提高了低阈值和低能量下的 PSD 性能。Pour 等^[23]使用 NE-213 完成了 0.2~148 MeV 能量范围内中子响应函数的分析和建模。Banerjee 等^[24]研究了 n/ γ 甄别结果与 BC-501A 尺寸及时间分辨率之间的关系,随着探测器尺寸的增加,光损失更高, FOM 值更低。French 等^[25]使用 BC-501A、实验室级塑料闪烁体 E23、和两个塑料闪烁体(EJ-200 和 EJ299-33)和差分直方图法(Histogram-

Difference Method, HDM)测量了 ²⁵²Cf 源的中子百分比, BC-501A 的结果最为准确,约 29.9% 是中子脉冲。Guerrero 等^[26]研究并测试了 BC-501A 的 PSD 性能,成功实现了信号能量在 150 keV 上的 n/ γ 甄别。

Eljen Technology 生产的 EJ-301 和 EJ-309 等液体闪烁体同样具有优异的性能。Pino 等^[27]探索了 EJ-309 的光学输出响应和中子探测效率,与 Geant4 (GEometry ANd Tracking)和 MCNP (Monte Carlo N Particle Transport Code)蒙特卡罗模拟结果一致。Jones 等^[28]使用 ²⁵²Cf 源研究了 EJ-309 的 PSD 性能对角度的依赖性,当探测器水平固定使用时,获得了最佳 PSD 性能。此外,光脉冲形状还会随着闪烁体体积中的相互作用点而变化^[29], 102 mm 立方体 EJ-309 的 FOM 值比 102 mm×102 mm 的圆柱体 EJ-309 高 4.1% 左右。Stevanato 等^[30]证明了 EJ-301 的 PSD 性能略优于 EJ-309,两者都适用于 γ 背景辐射下的中子检测,在 95% 的置信水平下以 95% 的概率探测到弱中子源。Liao 等^[31]使用 Geant4 模拟仿真和实验研究了 EJ-301 和 EJ-339A 的 PSD 性能,实验和仿真结果相一致, EJ-301 具有更好的 PSD 性能。然而,液体闪烁体存在一定毒性、易起泡、包装复杂、闪点低、不易长时间储存和检测密度低等问题,因此很难在一些特殊的实验环境和现场检测中应用。

2.3 塑料闪烁体

塑料闪烁体本质上就是固态聚合的液体闪烁体,容易加工成各种形状,并且尺寸更大。Brooks^[8]在 1960 年首次描述了使用塑料闪烁体获得 PSD 能力的可能性。在随后的几十年中,由于技术限制,塑料闪烁体中的 PSD 性能始终被认为显著低于有机晶体或液体闪烁体,引发了塑料闪烁体不适合中子探测的观点^[32]。Hansen 等^[33]通过 MCNP 模拟和实验研究了塑料闪烁体的尺寸和类型对 n/ γ 脉冲形状的影响,从理论上证明了使用塑料闪烁体进行中子探测的可行性。直到 2012 年, Zaitseva 利用加载 PPO 的聚乙烯甲苯(Polyvinyltoluene, PVT)聚合物基质系统^[34]证明了塑料闪烁体同样具有良好的 PSD 能量,塑料闪烁体的开发才取得了突破性进展。

自 2013 年以来, Eljen Technology 推出了 5 代 EJ-299 系列塑料闪烁体^[35-36]: EJ299-33、EJ299-33A、EJ299-33G、EJ299-34 和 EJ299-34G。初代 EJ299-33 自吸收较大、光输出低,而 EJ299-33G 和 EJ299-33A 是 EJ299-333 的改良版,可塑性和 PSD 性能有所提高。EJ299-34 在 EJ299-33A 的基础上,进一步强化了可塑性,目前正逐步用于快中子探测和成像领域。Lawrence 等^[37]证明 EJ299-33 相较于 EJ-309,响应矩阵条件差,光谱性能差, PSD 性能差,但是可以为液

体闪烁体或晶体无法访问的现场应用带来适度的 PSD 能力。Hartman 等^[38]测量了 EJ299-33A 的快中子响应函数,从响应中去除光子事件,有效地减少了对中子响应的影响。Pozzi 等^[39]比较了 EJ299-33 和 EJ-309 在自发裂变中子源 ²⁵²Cf 环境中不同阈值下的 PSD 性能,EJ299-33 在 120 keV 和 180 keV 时的 FOM 值分别为 0.82 和 0.96,而 EJ-309 的 FOM 值为 1.43 和 1.54,EJ-309 具有更高的光学输出;但当阈值增加到 180 keV 时,EJ-309 的甄别错误率比 EJ299-33 更高。

2018 年,Eljen Technology 推出新一代塑料闪烁体 EJ-276。EJ-276 由芳香族溶剂、氯化溶剂、酮类溶剂等溶剂组合制成。与 EJ-299 系列相比,EJ-276 和 EJ-276G 具有更好的物理硬度和长期稳定性,光产率比 EJ299-33 多 20%,在 n/γ 分辨性能上有了显著提高,其基本性能也更接近液体闪烁体。

Mianowski 等^[40]通过闪烁体物理性质(光产额、发射光谱和吸收光谱)的变化研究了 EJ-276 的辐照硬度,在注量率高达 $10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}$ 情况下,闪烁体性能依然比较稳定。硅光倍增管(Silicon Photomultiplier, SiPM)阵列可以用于读出 EJ-276 中的闪烁光^[41], $2.54 \text{ cm} \times 2.54 \text{ cm}$ 的 EJ-276 在能量值大于 250 keV 时获得 1.41 的 FOM 值,有效实现了 n/γ 甄别,但与同体积的 EJ-301 相比,其性能仍稍逊一筹,但是 EJ-276 更适用于现场应用。可见,具有高闪点、毒性小和便携性好的塑料闪烁体逐渐发展成为现场检测中的有机闪烁体。

2.4 负载有机闪烁体

由低 Z 值原子(碳氢化合物)组成的传统有机闪烁体,仅对快中子灵敏,当探测热中子或低能中子

时,通常需要添加锂(Li)、硼(B)、钆(Gd)等元素来增加中子捕获截面,这些介质就将热化后的中子俘获并产生重带电粒子,在有机闪烁体中产生闪烁光,实现热中子探测^[42]。但是加载材料通常具有发光的猝灭效应,应严格控制纯度和剂量。

Fisher 等^[43]使用掺杂有 0.15 wt% ⁶Li 的液体闪烁体进行中子检测,将 ⁶Li 液体闪烁体和 ¹⁰B 塑料闪烁体的数据与蒙特卡罗模拟进行了比较,获得了良好的一致性,在考虑掺杂同位素时,原则上浓度越高越好,但是必须考虑由此导致的光输出减少。LiME、PPO、POPOP 和甲基丙烯酸在苯乙烯溶液中的混合物形成的基于聚苯乙烯锂负载有机闪烁体^[44],在热中子检测应用中显示了较高的计数率和优越的计时能力。

Normand 等^[45]开发了一种由苯乙烯混合、含有 1.5 wt% 的 PPP 和 0.01 wt% 的 POPOP 的含硼塑料闪烁体,通过与 BC-454 含硼塑料闪烁体进行比较,验证了该闪烁体的 PSD 性能,过零时间法在该闪烁体上运行良好,能够在线识别热中子、快中子和 γ 射线。最常用的 ¹⁰B 负载有机闪烁体有 BC-523A、EJ-309B 和 EJ-339 等,它们的主要物理特性如表 2 所示。BC-523A 的主要成分与 BC-501 的主要成分相似^[46],对热中子、快中子和 γ 射线敏感,热中子被 ¹⁰B 捕获,该探测器在边境检测和核不扩散等领域具有良好的发展前景。EJ-339A 载硼闪烁体的 PSD 性能^[47]比液体闪烁体(BC-501 或 EJ-301)更差,但它仍能满足许多应用,并且比常规芳香族有机溶剂的化学危害更小。Liao 等^[48]使用 Geant4 模拟了硼负载液体闪烁体的可靠性和 PSD 性能,并证明 EJ-339A 具有良好的 PSD 性能。

表 2 ¹⁰B 负载有机闪烁体的重要物理特性
Table 2 Important physical characteristics of ¹⁰B-loaded organic scintillators

有机闪烁体 Organic scintillators	含硼量 ¹⁰ B-loaded / %	闪点 Flash point / °C	发光效率 Light output / %	衰减时间 Decay time / ns	最大波长 Wavelength / nm
BC-523	0.96	-8	65	3.7	425
BC-523A	4.41	-8	65	3.7	425
EJ-309B	1	144	69	~3.5	424
EJ-309B	2.5	144	64	~3.5	424
EJ-309B	5	144	57	~3.5	424
EJ-339	0.96	-8	65	~4.0	425
EJ-339A	4.6	-8	65	~4.0	425
EJ-339A2	2.5	-8	70	~4.0	425

钆(Gd)在所有天然元素中具有最高的热中子吸收截面,Lightfoot 等^[49]制造了一种具有高光产率和透射率的钆加载液体闪烁体,用于太阳中微子探测和中子测量。文献[50]报道了一种应用于双闪烁

体系统的补偿方法的原理,充当热中子吸收体的就是 Gd 负载有机闪烁体,第二个塑料闪烁体作为补偿闪烁体来检测中子和光子之间的相互作用,有效地检测和分离了热中子、快中子和 γ 射线。

3 有机闪烁体中的 n/γ 甄别方法

3.1 模拟 PSD 技术

由于技术的限制,早期 PSD 技术只能通过模拟电路实现,最早的模拟 PSD 技术可以追溯到 1959 年 Brooks 提出的模拟系统中的电荷积分 (Charge Integration, CI) 方法^[10]。Aryaeinjad 等^[51]使用 CI 和过零时间 (Zero-Crossing Time, ZC) 两种模拟方法开发了基于 BC-501 液体闪烁体的手持式中子探测装置, ZC 在能量低于 100 keV 时具有更好的 PSD 性能,而 CI 在高于 100 keV 分离效果更好。在模拟 CI 中,通常需要两个独立的电荷灵敏模数转换器 (Analog-to-digital Conversion, ADC), 一个 ADC 对脉冲上升部分进行积分,另一个 ADC 则对脉冲下降部分进行积分。在模拟 ZC 中,探测器信号发送到整形放大器进行积分和微分,并使用时间振幅转换器测量过零点。在随后的一项研究中^[52],他们将模拟 ZC 与数字 ZC 技术进行了比较,显然数字 ZC 方法提供了更好的分离效果。近年来, Sosa 等^[53]研究了基

于 MPD4 (模拟 PSD 单元) 的模拟 CI 和数字 CI 方法之间的性能比较,数字 PSD 技术的采样率高达 250 MHz,足以解析尾部脉冲形状,整体性能提高了 20%。

3.2 数字化时域甄别方法

数字 PSD 技术可以分为时域和频域甄别方法,表 3 总结了有机闪烁体中数字化时域和频域甄别方法相关研究。

时域甄别方法主要包括:电荷比较法 (Charge Comparison Method, CCM)、过零时间法 (ZC)、上升时间法 (Risetime, RT) 和脉冲梯度分析法 (Pulse Gradient Analysis, PGA) 等。CCM 方法^[53] (也称为 CI) 根据脉冲的两个不同时间间隔的积分比值的差异来区分中子和 γ,更多地利用了全部脉冲中包含的信息。ZC 方法^[54] 则是根据快分量和慢分量引起的电压脉冲的上升时间不同对 n/γ 进行甄别的。RT 方法的基本原理^[55] 是通过比较电压脉冲前沿的上升时间来甄别 n/γ。PGA 方法^[56] 则是根据脉冲衰减信号的差异引起的梯度不同对 n/γ 进行甄别。

表 3 数字化的时域和频域甄别方法相关研究
Table 3 Relevant research on digital time-domain and frequency-domain discrimination methods

数字化方法 Digital methods	有机闪烁体 Organic scintillators	中子源 Neutron sources	评价方法 Evaluation methods	参考文献 References
ZC	BC-501	²⁵² Cf	FOM	[52]
RT, CCM, FGA	Stilbene	²⁵² Cf	FOM, DER	[55]
CCM, ZC	BC-501A	²⁴¹ Am-Be	FOM	[57]
PGA, CCM	BC-501A	²⁴¹ Am-Be, ²⁵² Cf	FOM	[56]
WT	EJ-301	²⁴¹ Am-Be	FOM	[58]
FGA	EJ-301	⁷ Li-Be	TOF, FOM	[59]
DFTM	BC-501	²⁴¹ Am-Be	FOM	[60]

Nakhostin^[57]认为当量化噪声的影响显著时, ZC 比 CCM 具有更好的 n/γ 甄别能力;当量化噪声不显著时, CCM 略优于 ZC;并将 CCM 和 ZC 扩展到 FPGA,以实现递归方法。Buefler 等^[61]验证了 CCM 适用于能量范围为 10~100 MeV 的中子环境。Hawkes 等^[62]分析了 CCM、PGA 和模型脉冲法的优缺点, CCM 具有更高的 FOM 值,并且在便携式系统中最容易实现实时处理;PGA 可以在脉冲结束之前判断事件类型;模型脉冲法使用 χ^2 标准拟合未知 n/γ 波形,可以处理堆积或失真脉冲。综上可知数字时域甄别方法具有算法简单、甄别效率高、易于在 FPGA 实现等优点。

3.3 数字化频域甄别方法

数字化频域甄别方法将时域特征转化为频域特征,提高了抗噪声干扰能力和稳定性。Yousefi 等^[58]

利用小波变换 (Wavelet Transform, WT) 提取频域特征来识别中子和 γ,小波变换在时频上分析非平稳信号,消除了对时域特征的依赖,并提高了对噪声的抗干扰能力。Singh 等^[63]提出了一种基于离散小波变换 (Discrete Wavelet Transform, DWT) 的 n/γ 甄别方法,在高计数率和大量脉冲堆积事件的条件下具有优势;同时评价了不同母小波的 PSD 性能,其中 db2 母小波表现最好。Liu 等^[59]提出了一种基于傅里叶变换的频率梯度分析 (Frequency Gradient Analysis, FGA) 方法,傅里叶变换通常被认为是时域和频域之间最好的变换,因为它是时移不变的,并通过飞行时间法 (Time of Flight, TOF) 验证了 FGA 方法的 FOM 值优于 PGA 方法。Safari 等^[60]提出了一种基于正弦和余弦傅里叶变换结合离散傅里叶变换 (Discrete Fourier Transform Method, DFTM) 将时域信号转换为频域信号的方法在弱光输出和 100~1 600 keV 能

量范围内具有比CCM和FGA更高的FOM值,并且对噪声具有更强的鲁棒性。Lang等^[64]引入了基于傅里叶变换和拉普拉斯变换的PSD甄别因子,提高了0~800 keV能量范围内的n/γ甄别能力。刘明哲和柳炳琦等^[65-66]分别提出了一种分形频谱方法和基于卡尔曼滤波的脉冲堆积修正和脉冲甄别方法,解决了n/γ脉冲堆积和甄别问题,提高了甄别准确率和抗噪声干扰能力,甄别性能优于传统时域和频域甄

别方法。

3.4 监督学习方法

机器学习(Machine Learning, ML)的优势在于解决低能量范围内的n/γ甄别,主要分为监督学习、无监督学习和深度学习。当使用监督学习对中子和γ进行分类时,通常需要使用TOF实验或其他的方法创建明确的中子和γ数据集。表4总结了有机闪烁体中的机器学习n/γ甄别方法相关研究。

表4 基于机器学习的n/γ甄别研究
Table 4 Neutron gamma discrimination methods research based on machine learning

机器学习方法 ML methods	有机闪烁体 Organic scintillators	中子源 Neutron sources	评价方法 Evaluation methods	参考文献 References
BPNN	BC-501A	Pu-Be	FOM, DER	[67]
ENN	EJ-335	²⁴¹ Am-Be	FOM, DER	[68]
SVM, GMM	NE-213	JET	FOM	[69]
DT	NE-213	²⁵² Cf, ²⁴¹ Am- ⁹ Be	Relative Percent Error	[70]
K-means	NE-213	²⁵² Cf	FOM	[71]
Fc-NN, RNN	Stilbene	²⁵² Cf	DER, Recall	[72]
CNN	BC-501A, EJ-276	¹³⁷ Cs, ²⁵² Cf	Confusion Matrix	[73]
KPCA-GMM-ANN	EJ-309	²⁵² Cf, ²⁴¹ Am-Be	F1, DER	[74]

作为一种有效的非参数模式识别工具,人工神经网络(Artificial Neural Network, ANN)在低能n/γ甄别中取得了良好的效果,根据具体场景选择合适的隐藏层和神经元是关键,为了减少输入特征的数量,一般选择来自具有较大差异的脉冲尾部样本。对于能量低于100 keV的中子,神经网络分类器^[67]可以实现中子和光子的分离,误差约为5%。Liu等^[75]开发了一种ANN甄别器单元结合脉冲堆积管理单元以提高准确性,并且可以同时处理堆积事件和脉冲形状甄别,但是算法复杂性和计算负担的问题不容忽视。Zhang等^[68]提出了一种基于动态回归神经网络的n/γ甄别方法,该Elman神经网络(Elman Neural Network, ENN)包含4层:输入层、隐藏层、输出层和特定内容层-传统BPNN(Back Propagation Neural Network)的附加层,使得FOM从0.907±0.034增加到0.953±0.037。

支持向量机(Support Vector Machine, SVM)的主要思想是基于训练样本构建一个线性分类器,以分离未分类的样本。Gelfusa等^[69]将概率支持向量机和高斯混合模型(Gaussian Mixture Model, GMM)应用于NE-213获得的热核聚变中的n/γ脉冲,概率支持向量机在大概率范围内具有较高FOM值。Krömer等^[76]使用遗传算法进化出的模糊规则和SVM对²⁵²Cf-100和²⁵²Cf-400中的n/γ进行分类,最佳进化模糊规则在²⁵²Cf-100辐射场中的分类精度与SVM相当,但在²⁵²Cf-400辐射场中,分类精度比

SVM低1.3%;SVM的总体结果优于模糊规则算法,而模糊规则不依赖于数据维度,易于在FPGA中实现。

2018年,Dutta等^[77]使用一种改进的主成分分析方法(Principal Component Analysis and Normalized Cross Correlation, PCA-NCC)从归一化互相关梯度曲线中提取特征,获得了更高的甄别效率。Alharbi等^[78]证明了PCA在85~600 keV范围内比CCM具有更高的FOM值,脉冲形状特征主要反映在第一主分量上,PCA具有自动提取脉冲形状特征而无须调整PSD参数和低计算成本的优点。Arahmane等^[79]使用非负张量因子分解(Nonnegative Tensor Factorization, NTF)从二苯乙烯晶体探测器输出的混合信号中提取成分,再利用PCA-SVM模型获得了更高的FOM值。Hosseini等^[70]使用基于数据处理组方法和决策树(Decision Tree, DT)算法重建了²⁵²Cf和²⁴¹Am-Be中子源的能谱,与MCNPX-ESUT程序的模拟能谱非常吻合。

3.5 无监督学习方法

无监督学习方法不需要真实标签数据集进行训练,通过聚类的方式来区分中子和γ。K-means是一种计算简单且快速收敛的方法,将脉冲波形数据集划分为N维空间中的点,识别每个聚类的中心,然后根据其更接近的聚类中心对每个脉冲波形进行聚类。Uchida等^[71]使用期望最大化算法(Expectation

Maximization, EM)和K-means自动识别中子和 γ , GMM作为一种聚类技术,以高效和无监督的方式产生了跨越能量谱的改进,当分量的数量已知时,通常使用EM迭代估计GMM的参数。Simms等和Blair等^[80-81]探索了通过Dirichlet过程实现n/ γ 聚类的非参数方法,并成功地将GMM分类器部署在现场可编程门阵列(FPGA)上,在低能量下获得更快的分类执行速度。刘路峰等^[82-83]研究了基于EJ-309液体闪烁体的k-means、GMM、DBSCAN的n/ γ 聚类方法,其中K-means方法甄别效率相对较好,后续的研究中利用PCA和KPCA(Kernal Principal Component Analysis)对GMM进行改进建立了PCA-GMM、KPCA-GMM和KPCA-GMM-ANN等模型,获得了更好的甄别效率。

3.6 深度学习的方法

深度学习通过多层神经网络来训练大规模数据集,被广泛应用于图像识别、信号识别、自然语言处理等领域。近几年,Moore等^[84]使用集成学习、递归神经网络(Recurrent Neural Network, RNN)和长短期记忆网络(Long Short-Term Memory, LSTM)实现了n/ γ 甄别,集成学习分类准确率达到91%,而RNN在最佳情况下仅获得86.8%的最高分类准确率;但是RNN降低了算法的复杂性,训练速度也快得多。全连接神经网络^[72](Fully-connected Neural Network, Fc-NN)和递归神经网络(RNN)不仅可以实现单个脉冲的PSD,还可以恢复和分类堆积脉冲,两种算法都已在Virtex-5 XC5VSX95T FPGA上实现。Yoon等^[73]使用CCM和混淆矩阵(Confusion Matrix)验证了基于卷积神经网络(Convolutional Neural Network, CNN)的n/ γ 甄别方法具有与传统人工神经网络相同的PSD性能,同时证明了EJ-276塑料闪烁体的性能弱于BC-501液体闪烁体。此外,Song等^[85]提出了一种基于残差连接结构的神经网络,在复杂情况下的n/ γ 甄别性能比CNN更好。虽然深度学习方法在一定程度上提高了n/ γ 甄别准确率,但是算法复杂度也不容忽视。

4 性能评价指标

性能评价指标反映了n和 γ 射线分离的程度和甄别效率。1971年,Winyard等^[86]定义了用于评价n/ γ 甄别效率的FOM。n/ γ 双高斯拟合分布示意图如图4所示,FOM具体如式(1):

$$FOM = \frac{S}{FWHM_n + FWHM_\gamma} \quad (1)$$

式中: S 是两个峰值之间的距离, $FWHM_n$ 表示中子

峰值的半高宽; $FWHM_\gamma$ 表示 γ 峰值的半高宽。Zaitseva等^[34]认为当 $FOM \geq 1.27$ 时,有机闪烁体具有足够的PSD性能; FOM 值越大,PSD性能就越好。虽然 FOM 可以很好表示分离程度,但是无法计算出误判率,因此 FOM 值一般不能用作机器学习方法的评价指标。

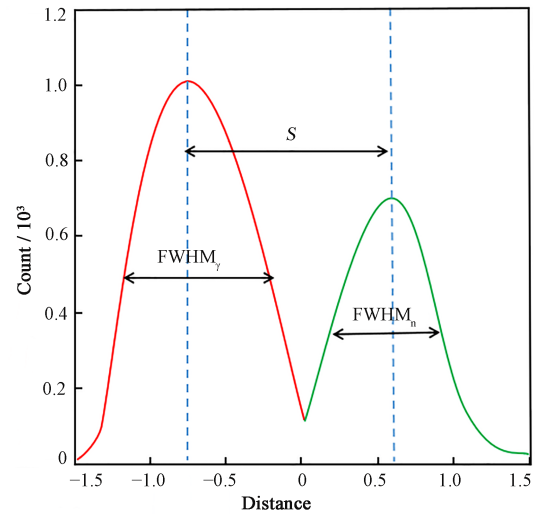


图4 n/ γ 双高斯拟合分布示意图

Fig.4 Distribution of neutrons and gamma rays: double Gaussian fitting

Ranucci等^[87]提出了一种类似于FOM的 D 值,表示为两个峰值方差(S_n, S_γ)之差与平均值(var_n, var_γ)之和的平方根之比:

$$D = \frac{S_n - S_\gamma}{\sqrt{var_n + var_\gamma}} \quad (2)$$

甄别错误率(Discrimination Error Rate, DER)^[68,75]一般用于评价机器学习算法的性能,定义为:

$$DER_n = \left| \frac{N_n - N_{nc}}{N_n} \right| \times 100\% \quad (3)$$

$$DER_\gamma = \left| \frac{N_\gamma - N_{\gamma c}}{N_\gamma} \right| \times 100\% \quad (4)$$

式中: $N_n, N_{nc}, N_\gamma, N_{\gamma c}$ 分别表示中子事件总数、正确分类的中子事件数、 γ 事件总数和正确分类的 γ 事件数。

混淆矩阵可以较为直观地反映n/ γ 的分类结果^[74],进而计算精确率(P)和召回率(R),而 F_1 分数(F -score)可以衡量分类器的综合性能,根据 P 和 R 表示为:

$$F_1 = \frac{2 \times P \times R}{P + R} \quad (5)$$

真阳性率(True Positive Rate, TPR)和假阳性率(False Positive Rate, FPR)^[7]也是一类通过混淆矩阵

计算并用于评价 n/γ 分类准确性的指标。Wurtz 等^[88] 使用 ROC (Receiver Operator Characteristic) 曲线来评估分类器性能, ROC 曲线下方的区域越大, 分类器的性能越好。针对不同的甄别方法和技术选择合适的性能指标能够更加准确地评价甄别方法, 或者综合两种或以上的性能指标综合评价可以更好地避免误差影响。

5 结语

具有 PSD 能力的有机闪烁体在中子探测的研究和实际应用中都得到了广泛的应用, 尤其是在环境辐射检测、特殊核材料检测、军事、医学、空间探测等领域具有重要研究意义, 因此对于今后有机闪烁体的应用以及 n/γ 甄别方法的发展主要有以下几点问题需注意:

1) 在有机闪烁体中, 有机晶体发光效率高、危害较小, 但可塑性较差; 液体闪烁体光输出较高、衰减时间短、PSD 性能较好, 但它们毒性较大且难以保存; 有机晶体和液体闪烁体的优异性能可以在专业实验室中发挥重要作用。塑料闪烁体的较好的物理稳定性和安全性使它们在非实验条件下的现场应用中具有更加明显的优势, 而便携式塑料闪烁体探测器也是长远的发展趋势。加载有机闪烁体具有更高热中子的探测效率。因此, 针对不同应用场景选择合适的有机闪烁体探测器是成功探测中子辐射的关键。

2) 传统的数字化时域甄别方法简单, 易在 FPGA 中实现, 而频域甄别方法具有较强的抗干扰能力和良好的稳定性, 但是它们的使用具有一定的局限性, 难以解决低能量下的 n/γ 甄别。在当前人工智能时代, 机器学习和深度学习能够适应大量数据集的训练与测试, 挖掘脉冲波形差异的内在特征, 而 n/γ 甄别问题本质上又属于二分类问题, 因此针对复杂情况下的中子探测, 开发相应的监督学习、无监督学习和深度学习的 n/γ 甄别模型是下一步研究重点。

作者贡献声明 胡万平负责文献调查研究和提出编写思路, 初稿写作和修改; 张贵宇负责方向指导和审阅; 张云龙负责调查研究和文献收集; 虞先国负责技术指导和校对。

参考文献

- 1 杨剑波, 黄红, 刘志, 等. 初探中子探测器的研究现状与发展趋势[J]. 科学技术与工程, 2016, 16(14): 89-96. DOI: 10.3969/j.issn.1671-1815.2016.14.017
- 2 李奎念, 张显鹏, 李阳, 等. 液闪探测器的几种 n/γ 甄别方法研究[J]. 原子能科学技术, 2014, 48(5): 913 - 919. DOI: 10.7538/yzk.2014.48.05.0913
- 3 Iwanowska J, Swiderski L, Krakowski T, *et al.* The time-of-flight method for characterizing the neutron response of liquid organic scintillators[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2015, 781: 44 - 49. DOI: 10.1016/j.nima.2015.01.051.
- 4 Hamel M C, Polack J K, Ruch M L, *et al.* Active neutron and gamma-ray imaging of highly enriched uranium for treaty verification[J]. Scientific Reports, 2017, 7(1): 7997. DOI: 10.1038/s41598-017-08253-x.
- 5 Knoll G F. Radiation detection and measurement[M]. 3rd Ed. New York: John Wiley and Son, 2000.
- 6 汪晓莲, 李澄, 邵明. 粒子探测技术[M]. 合肥: 中国科学技术大学出版社, 2009.
- 7 Senteno D A. Application of unsupervised machine learning algorithms to neutron/gamma particle identification using organic scintillators[D]. Raleigh, North Carolina: North Carolina State University, 2021.
- 8 Brooks F D, Pringle R W, Funt B L. Pulse shape discrimination in a plastic scintillator[J]. IRE Transactions on Nuclear Science, 1960, 7(2/3): 35 - 38. DOI: 10.1109/TNS2.1960.4315733.
- 9 Cieslak M, Gamage K, Glover R. Critical review of scintillating crystals for neutron detection[J]. Crystals, 2019, 9(9): 480. DOI: 10.3390/cryst9090480.
- 10 Brooks F D. A scintillation counter with neutron and gamma-ray discriminators[J]. Nuclear Instruments and Methods, 1959, 4(3): 151 - 163. DOI: 10.1016/0029-554X(59)90067-9.
- 11 Yanagida T, Watanabe K, Fujimoto Y. Comparative study of neutron and gamma-ray pulse shape discrimination of anthracene, stilbene, and p-terphenyl[J]. Nuclear

- Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2015, **784**: 111 - 114. DOI: 10.1016/j.nima.2014.12.031.
- 12 Lee S K, Son J B, Jo K H, *et al.* Development of large-area composite stilbene scintillator for fast neutron detection[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2014, **51**(1): 37 - 47. DOI: 10.1080/00223131.2014.845539.
- 13 Weldon R A, Mueller J M, Lynch C, *et al.* High-precision characterization of the neutron light output of stilbene along the directions of maximum and minimum response [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2019, **927**: 313 - 319. DOI: 10.1016/j.nima.2018.10.075.
- 14 Zaitseva N, Glenn A, Carman L, *et al.* Scintillation properties of solution-grown trans-stilbene single crystals [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2015, **789**: 8 - 15. DOI: 10.1016/j.nima.2015.03.090.
- 15 Arulchakkaravarthi A, Santhanaraghavan P, Kumar R, *et al.* Detection characteristics of vertical Bridgman grown stilbene crystals for gamma rays using ^{60}Co , ^{137}Cs and ^{22}Na gamma ray sources[J]. Materials Chemistry and Physics, 2003, **77**: 77 - 80. DOI: 10.1016/S0254-0584(01)00561-2.
- 16 Zaitseva N P, Newby J, Hamel S, *et al.* Neutron detection with single crystal organic scintillators[C]//SPIE Optical Engineering + Applications. Proc SPIE 7449, Hard X-Ray, Gamma-Ray, and Neutron Detector Physics XI, San Diego, California, USA. 2009, **7449**: 207 - 216. DOI: 10.1117/12.829870.
- 17 Zaitseva N, Glenn A, Carman L, *et al.* Pulse shape discrimination in impure and mixed single-crystal organic scintillators[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2011, **58**(6): 3411 - 3420. DOI: 10.1109/TNS.2011.2171363.
- 18 汲长松. 中子探测[M]. 北京: 中国原子能出版社, 2014. Ji Changsong. Neutron detection[M]. Beijing: China Atomic Energy Press, 2014.
- 19 Iwanowska J, Swiderski L, Moszynski M. Liquid scintillators and composites in fast neutron detection[J]. Journal of Instrumentation, 2012, **7**(4): C04004. DOI: 10.1088/1748-0221/7/04/c04004.
- 20 Lombardi P, Ortica F, Ranucci G, *et al.* Decay time and pulse shape discrimination of liquid scintillators based on novel solvents[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2013, **701**: 133 - 144. DOI: 10.1016/j.nima.2012.10.061.
- 21 Kuchnir F T, Lynch F J. Time dependence of scintillations and the effect on pulse-shape discrimination[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 1968, **15**(3): 107 - 113. DOI: 10.1109/TNS.1968.4324923.
- 22 Cavallaro M, Tropea S, Agodi C, *et al.* Pulse-shape discrimination in NE213 liquid scintillator detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2013, **700**: 65 - 69. DOI: 10.1016/j.nima.2012.10.056.
- 23 Pour H G, Tajik M. Analytical modeling of the neutron response function of the NE213 organic liquid scintillator in the energy range of 0.2 MeV to 148 MeV[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2021, **995**: 165088. DOI: 10.1016/j.nima.2021.165088.
- 24 Banerjee K, Ghosh T K, Kundu S, *et al.* Variation of neutron detection characteristics with dimension of BC501A neutron detector[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2009, **608**(3): 440 - 446. DOI: 10.1016/j.nima.2009.07.034.
- 25 French R M, Thevenin M, Hamel M, *et al.* A histogram-difference method for neutron/gamma discrimination using liquid and plastic scintillators[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2017, **64**(8): 2423 - 2432. DOI: 10.1109/TNS.2017.2720798.
- 26 Guerrero C, Ott D, Fernández-Ordóñez M, *et al.* Analysis of the BC501A neutron detector signals using the true pulse shape[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators Spectrometers Detectors and Associated Equipment, 2008, **597**(2 - 3): 212 - 218. DOI: 10.1016/j.nima.2008.09.017.
- 27 Pino F, Stevanato L, Cester D, *et al.* The light output and the detection efficiency of the liquid scintillator EJ-309 [J]. Applied Radiation and Isotope, 2014, **89**: 79 - 84. DOI: 10.1016/j.apradiso.2014.02.016.
- 28 Jones A R, Joyce M J. The angular dependence of pulse shape discrimination and detection sensitivity in

- cylindrical and cubic EJ-309 organic liquid scintillators [J]. *Journal of Instrumentation*, 2017, **12**: T01005. DOI: 10.1088/1748-0221/12/01/t01005.
- 29 Ellis M, Tintori C, Schotanus P, *et al.* The effect of detector geometry on EJ-309 pulse shape discrimination performance[C]//2013 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (2013 NSS/MIC). October 27 - November 2, 2013, Seoul, Korea (South). IEEE, 2014: 79 - 84. DOI: 10.1109/NSSMIC. 2013. 6829467.
- 30 Stevanato L, Cester D, Nebbia G, *et al.* Neutron detection in a high gamma-ray background with EJ-301 and EJ-309 liquid scintillators[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2012, **690**: 96 - 101. DOI: 10.1016/j.nima.2012.06.047.
- 31 Liao C, Yang H R. n/γ pulse shape discrimination comparison of EJ301 and EJ339A liquid scintillation detectors[J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2014, **69**: 57 - 61. DOI: 10.1016/j.anucene.2014.01.039.
- 32 Bertrand G H V, Hamel M, Sguerra F. Current status on plastic scintillators modifications[J]. *Chemistry - A European Journal*, 2014, **20**(48): 15660 - 15685. DOI: 10.1002/chem.201404093.
- 33 Hansen R R, Reeder P L, Peurrung A J, *et al.* Neutron-gamma discrimination in plastic scintillators[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2000, **47**(6): 2024 - 2028. DOI: 10.1109/23.903840.
- 34 Zaitseva N, Rupert B L, Pawelczak I, *et al.* Plastic scintillators with efficient neutron/gamma pulse shape discrimination[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2012, **668**: 88 - 93. DOI: 10.1016/j.nima.2011.11.071.
- 35 Zaitseva N P, Glenn A M, Mabe A N, *et al.* Recent developments in plastic scintillators with pulse shape discrimination[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2018, **889**: 97 - 104. DOI: 10.1016/j.nima.2018.01.093.
- 36 Grodzicka-Kobylka M, Szczesniak T, Moszynski M, *et al.* Fast neutron and gamma ray pulse shape discrimination in EJ-276 and EJ-276G plastic scintillators[J]. *Journal of Instrumentation*, 2020, **15**(3). DOI: 10.1088/1748-0221/15/03/P03030.
- 37 Lawrence C C, Febbraro M, Massey T N, *et al.* Neutron response characterization for an EJ299-33 plastic scintillation detector[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2014, **759**: 16 - 22. DOI: 10.1016/j.nima.2014.04.062.
- 38 Hartman J, Barzilov A, Peters E E, *et al.* Measurements of response functions of EJ-299-33A plastic scintillator for fast neutrons[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2015, **804**: 137 - 143. DOI: 10.1016/j.nima.2015.09.068.
- 39 Pozzi S A, Bourne M M, Clarke S D. Pulse shape discrimination in the plastic scintillator EJ-299-33[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2013, **723**: 19 - 23. DOI: 10.1016/j.nima.2013.04.085.
- 40 Mianowski S, Brylew K, Dziedzic A, *et al.* Neutron hardness of EJ-276 scintillation material[J]. *Journal of Instrumentation*, 2020, **15**(10): p10012. DOI: 10.1088/1748-0221/15/10/p10012.
- 41 Ryabeva E V, Molodtsev D A, Urupa I V, *et al.* EJ-276 based neutron spectrometer with neutron-gamma pulse shape discrimination capability[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2022, **1034**: 166791. DOI: 10.1016/j.nima.2022.166791.
- 42 Zaitseva N, Glenn A, Martinez H P, *et al.* Pulse shape discrimination with lithium-containing organic scintillators[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2013, **729**: 747 - 754. DOI: 10.1016/j.nima.2013.08.048.
- 43 Fisher B M, Abdurashitov J N, Coakley K J, *et al.* Fast neutron detection with ${}^6\text{Li}$ -loaded liquid scintillator[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2011, **646**(1): 126 - 134. DOI: 10.1016/j.nima.2011.04.019.
- 44 Breukers R D, Bartle C M, Edgar A. Transparent lithium loaded plastic scintillators for thermal neutron detection [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2013, **701**: 58 - 61. DOI: 10.1016/j.nima.2012.10.080.

- 45 Normand S, Mouanda B, Haan S, *et al.* Study of a new boron loaded plastic scintillator[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2002, **49**(4): 1603 - 1608. DOI: 10.1109/tns.2002.805282.
- 46 Flaska M, Pozzi S A. Digital pulse shape analysis for the capture-gated liquid scintillator BC-523A[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2009, **599**(2 - 3): 221 - 225. DOI: 10.1016/j.nima.2008.10.030.
- 47 Pino F, Stevanato L, Cester D, *et al.* Detecting fast and thermal neutrons with a boron loaded liquid scintillator, EJ-339A[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2014, **92**: 6 - 11. DOI: 10.1016/j.apradiso.2014.05.025.
- 48 Liao C, Yang H R. Study on neutron energy spectrum correction and pulse shape discrimination with a boron-loaded scintillator[C]//2012 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Record (NSS/MIC). October 27 - November 3, 2012, Anaheim, CA, USA. IEEE, 2013: 141 - 145. DOI: 10.1109/NSSMIC.2012.6551079.
- 49 Lightfoot P K, Kudryavtsev V A, Spooner N J C, *et al.* Development of a gadolinium-loaded liquid scintillator for solar neutrino detection and neutron measurements[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2004, **522**(3): 439 - 446. DOI: 10.1016/j.nima.2003.11.390.
- 50 Dumazert J, Coulon R, Hamel M, *et al.* Gadolinium-loaded plastic scintillators for thermal neutron detection using compensation[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2016, **63**(3): 1551 - 1564. DOI: 10.1109/TNS.2016.2535278.
- 51 Aryaeinejad R, Reber E L, Spencer D F. Development of a handheld device for simultaneous monitoring of fast neutrons and gamma rays[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2002, **49**(4): 1909 - 1913. DOI: 10.1109/TNS.2002.801508.
- 52 Aryaeinejad R, Hartwell J K, Spencer D F. Comparison between digital and analog pulse shape discrimination techniques for neutron and gamma ray separation[C]//IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record. October 23-29, 2005, Fajardo, PR, USA. IEEE, 2006: 500 - 504. DOI: 10.1109/NSSMIC.2005.1596302.
- 53 Sosa C S, Flaska M, Pozzi S A. Comparison of analog and digital pulse-shape-discrimination systems[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2016, **826**: 72 - 79. DOI: 10.1016/j.nima.2016.03.088.
- 54 Nakhostin M, Walker P M. Application of digital zero-crossing technique for neutron-gamma discrimination in liquid organic scintillation detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2010, **621**(1 - 3): 498 - 501. DOI: 10.1016/j.nima.2010.06.252.
- 55 Ma T D, Song H S, Lyu B Y, *et al.* Comparison of artificial intelligence algorithms and traditional algorithms in detector neutron/gamma discrimination[C]//2020 International Conference on Artificial Intelligence and Computer Engineering (ICAICE). October 23-25, 2020, Beijing, China. IEEE, 2021: 173 - 178. DOI: 10.1109/ICAICE51518.2020.00040.
- 56 Gamage K A, Joyce M J, Hawkes N P. A comparison of four different digital algorithms for pulse-shape discrimination in fast scintillators[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2011, **642**(1): 78 - 83. DOI: 10.1016/j.nima.2011.03.065.
- 57 Nakhostin M. A comparison of digital zero-crossing and charge-comparison methods for neutron/ γ -ray discrimination with liquid scintillation detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2015, **797**: 77 - 82. DOI: 10.1016/j.nima.2015.06.041.
- 58 Yousefi S, Lucchese L, Aspinall M D. Digital discrimination of neutrons and gamma-rays in liquid scintillators using wavelets[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2009, **598**(2): 551 - 555. DOI: 10.1016/j.nima.2008.09.028.
- 59 Liu G F, Joyce M J, Ma X D, *et al.* A digital method for the discrimination of neutrons and γ rays with organic scintillation detectors using frequency gradient analysis [J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2010, **57**(3): 1682 - 1691. DOI: 10.1109/TNS.2010.2044246.
- 60 Safari M J, Davani F A, Afarideh H, *et al.* Discrete Fourier transform method for discrimination of digital

- scintillation pulses in mixed neutron-gamma fields[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2016, **63**(1): 325 - 332. DOI: 10.1109/TNS.2016.2514400.
- 61 Buffler A, Comrie A C, Smit F D, *et al.* Neutron spectrometry with EJ299-33 plastic scintillator for $E_n=10-100$ MeV[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2015, **62**(3): 1422 - 1428. DOI: 10.1109/tns. 2015. 2430455.
- 62 Hawkes N P, Gamage K, Taylor G. Digital approaches to field neutron spectrometry[J]. Radiation Measurements, 2010, **45**(10): 1305 - 1308. DOI: 10.1016/j. radmeas. 2010.06.043.
- 63 Singh H, Mehra R. Discrete wavelet transform method for high flux n- γ discrimination with liquid scintillators[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2017, **64**(7): 1927 - 1933. DOI: 10.1109/TNS.2017.2708602.
- 64 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. DOI: 10.1016/ j.nima.2017.02.090.
- 65 Liu M Z, Liu B Q, Zuo Z, *et al.* Toward a fractal spectrum approach for neutron and gamma pulse shape discrimination[J]. Chinese Physics C, 2016, **40**(6): 67 - 73. DOI: 10.1088/1674-1137/40/6/066201.
- 66 柳炳琦. 基于塑料闪烁体的中子-伽马甄别关键技术研究[D]. 成都: 成都理工大学, 2019.
LIU Bingqi. Research on key technology of neutron-gamma discrimination based on plastic scintillator[D]. Chengdu: Chengdu University of Technology, 2019.
- 67 Cao Z, Miller L F, Buckner M. Implementation of dynamic bias for neutron - photon pulse shape discrimination by using neural network classifiers[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1998, **416**: 438 - 445. DOI: 10. 1016/S0168-9002(98)00654-8.
- 68 Zhang C X, Lin S T, Zhao J L, *et al.* Discrimination of neutrons and gamma-rays in liquid scintillator based on Elman neural network[J]. Chinese Physics C, 2016, **40**(8): 086204. DOI: 10.1088/1674-1137/40/8/086204.
- 69 Gelfusa M, Rossi R, Lungaroni M, *et al.* Advanced pulse shape discrimination via machine learning for applications in thermonuclear fusion[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2020, **974**: 164198. DOI: 10.1016/j. nima. 2020.164198.
- 70 Hosseini S A, Afrakoti I E P. Energy spectra unfolding of fast neutron sources using the group method of data handling and decision tree algorithms[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2017, **851**: 5 - 9. DOI: 10.1016/j.nima.2017. 01.042.
- 71 Uchida Y, Takada E, Fujisaki A, *et al.* A study on fast digital discrimination of neutron and gamma-ray for improvement neutron emission profile measurement[J]. Review of Scientific Instruments, 2014, **85**(11): 11E118. DOI: 10.1063/1.4891711.
- 72 Fu C, Di Fulvio A, Clarke S D, *et al.* Artificial neural network algorithms for pulse shape discrimination and recovery of piled-up pulses in organic scintillators[J]. Annals of Nuclear Energy, 2018, **120**: 410 - 421. DOI: 10.1016/j.anucene.2018.05.054.
- 73 Yoon S, Lee C, Won B H, *et al.* Fast neutron-gamma discrimination in organic scintillators via convolution neural network[J]. Journal- Korean Physical Society, 2022, **80**(3): 1 - 7. DOI: 10.1007/s40042-022-00398-x.
- 74 Liu L, Shao H. Study on neutron-gamma discrimination method based on the KPCA-GMM-ANN[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2023, **203**: 110602. DOI: 10.1016/ j.radphyschem.2022.110602.
- 75 Liu G, Aspinall M D, Ma X, *et al.* An investigation of the digital discrimination of neutrons and γ rays with organic scintillation detectors using an artificial neural network [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2009, **607**(3): 620 - 628. DOI: 10.1016/j.nima.2009.06.027.
- 76 Krömer P, Matej Z, Musilek P, *et al.* Neutron-gamma classification by evolutionary fuzzy rules and support vector machines[C]//2015 IEEE International Conference on Systems, Man, and Cybernetics. October 9-12, 2015, Hong Kong, China. IEEE, 2016: 2638 - 2642. DOI: 10. 1109/SMC.2015.461.
- 77 Dutta A, Holbert K E. Discrimination of neutron-gamma ray pulses with pileup using normalized cross correlation and principal component analysis[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2016, **63**(6): 2764 - 2771. DOI: 10. 1109/TNS.2016.2615287.

- 78 Alharbi T. Principal Component Analysis for pulse-shape discrimination of scintillation radiation detectors[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2016, **806**: 240 - 243. DOI: 10.1016/j.nima.2015.10.030.
- 79 Arahmane H, Hamzaoui E M, Ben Maissa Y, *et al.* Neutron-gamma discrimination method based on blind source separation and machine learning[J]. Nuclear Science and Techniques, 2021, **32**(2): 18. DOI: 10.1007/s41365-021-00850-w.
- 80 Simms L M, Blair B, Ruz J, *et al.* Pulse discrimination with a Gaussian mixture model on an FPGA[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2018, **900**: 1 - 7. DOI: 10.1016/j.nima.2018.05.039.
- 81 Blair B, Chen C, Glenn A, *et al.* Gaussian mixture models as automated particle classifiers for fast neutron detectors [J]. Statistical Analysis and Data Mining: the ASA Data Science Journal, 2019, **12**(6): 479 - 488. DOI: 10.1002/sam.11432.
- 82 刘路峰, 周红召, 邵晖. 液体闪烁体探测器无监督 n/γ 甄别算法研究[J]. 核电子学与探测技术, 2021, **41**(6): 925 - 931. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2021.06.002.
LIU Lufeng, ZHOU Hongzhao, SHAO Hui. Research on unsupervised n/γ discrimination algorithm based on liquid scintillator detector[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2021, **41**(6): 925 - 931. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2021.06.002.
- 83 刘路峰. EJ309 液体闪烁体探测器 n/γ 甄别方法研究[D]. 北京: 军事科学院, 2022.
LIU Lufeng. Research on n/γ discrimination method of EJ309 liquid scintillator detector[D]. Beijing: Military Academy of Sciences, 2022.
- 84 Moore M K, Scherrer M H, Clement S A, *et al.* Applying machine learning to neutron-gamma ray discrimination from scintillator readout using wavelength shifting fibers [J]. Journal of Radiation Effects Research and Engineering, 2021, **39**(1): 243 - 252.
- 85 Song H, Yang C, Yu B, *et al.* Neutron-gamma events discrimination under complex circumstances using ResNet [J]. Journal of Instrumentation, 2023, **18**(1): P01007. DOI: 10.1088/1748-0221/18/01/P01007.
- 86 Winyard R, Lutkin J, McBeth G. Pulse shape discrimination in inorganic and organic scintillators. I[J]. Nuclear Instruments and Methods, 1971, **95**(1): 141 - 153.
- 87 Ranucci G. A review of the statistical foundations of the classical pulse shape discrimination techniques in scintillation applications[C]//IEEE Symposium Conference Record Nuclear Science. October 16-22, 2004, Rome, Italy. IEEE, 2005: 804 - 809. DOI: 10.1109/NSSMIC.2004.1462331.
- 88 Wurtz R, Blair B, Chen C, *et al.* Methodology and performance comparison of statistical learning pulse shape classifiers as demonstrated with organic liquid scintillator[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2018, **901**: 46 - 55. DOI: 10.1016/j.nima.2018.06.001.