

光谱分辨的脉冲 X 射线时间谱仪的研制

顾 牡,曹顿华,段 勇,马晓辉,刘小林,张 睿

(同济大学 波耳固体物理研究所 波与材料的微结构重点实验室,上海 200092)

摘要:通过 1 台高效率凹面光栅单色仪的研制,在原有脉冲 X 射线时间谱仪的基础上,开发完成了 1 套光谱分辨的荧光衰减时间谱仪,其波长和时间分辨率分别可达 nm 和亚 ns 量级。由 BaF₂ 闪烁晶体的测试结果表明:谱仪可有效进行光谱分辨的发光衰减时间谱测量,加载单色仪后,谱仪的测量效率仅下降 2 个数量级,达到了设计所预期的指标。利用这一装置,对 CeF₃ 晶体光谱分辨的发光衰减时间谱进行了分析。

关键词:超短脉冲 X 射线;光谱分辨;衰减时间谱;单光子技术

中图分类号:TL81 文献标识码:A 文章编号:1000-6931(2006)02-0162-06

Development of Pulsed X-ray Facility for Wavelength Resolved Fluorescent Lifetime Measurement

GU Mu, CAO Dun-hua, DUAN Yong, MA Xiao-hui, LIU Xiao-lin, ZHANG Rui

(Key Laboratory of Waves & Microstructure Materials,

Pohl Institute of Solid State Physics, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract: With the development of a high efficiency concave grating monochromator, a pulsed X-ray facility for wavelength resolved decay time measurement is made upon the basis of original ultra-short pulsed X-ray facility. The wavelength resolution and time resolution of the facility are in the scale of nanometer and subnanosecond, respectively. The study of BaF₂ shows that the equipment can be applied to measure decay time of different fluorescent components from scintillator quite well. The counting rate for such measurement is only two orders of magnitude lower than for decay time spectra measurement without the monochromator. In addition, the wavelength resolved fluorescent lifetime of CeF₃ scintillation crystal is studied by the facility.

Key words: ultra-short pulsed X-ray; wavelength resolved; decay time spectrum; single photon technique

随着高能物理和核技术应用的发展,用于 X 射线、 γ 射线等高能电磁辐射测量的新型闪

收稿日期:2004-12-20;修回日期:2005-09-30

基金项目:国家“863”高科技项目(2002AA324070);教育部高等学校优秀青年教师教学科研奖励计划(教人司(2002)123);上海市教育委员会重点学科研究项目和青年教师项目(01QN18)

作者简介:顾 牡(1961—),男,上海人,教授,固体发光专业

烁材料的研究取得了很大的进展。从目前闪烁材料发展的趋势来看,除要求其具有辐射长度短(密度高)、光产额高、抗辐照能力强、化学性能稳定和成本低等性能外,对材料发光时间响应提出了越来越高的要求,以满足辐射时间信号测量特别是高计数率条件下测量的需要。结合实际需要,我们以超短脉冲 X 射线管为激发光源研制了 1 台小型荧光衰减时间谱仪^[1],可用于晶体、粉末等各种固体和液体闪烁材料发光衰减时间谱的测量,避免了采用同步辐射激发光源在实验时间安排上的限制和测试仪器托运方面的不便,在不少新型闪烁材料的研究和开发中发挥了重要作用^[2-4]。由于许多闪烁材料均含有多个发光带,而不同发光带的发光衰减时间特性往往是不同的,因此,开展光谱分辨的发光衰减时间谱仪的研制,对于新型闪烁材料的研究和开发具有重要意义。

将荧光衰减时间谱仪与单色仪组合原则上就可构建光谱分辨的荧光衰减时间谱仪,问题是经单色仪后光子的通量往往会下降很多,以至于无法测量。目前采用单色仪的台式 X 射线激发光谱分辨荧光衰减时间谱仪国际上仅美国劳伦兹伯克利国家实验室有 1 台^[5,6],所采用的是平面光栅单色仪,与非光谱分辨的时间谱仪相比,相同波段的测量效率下降了 3 个数量级^[5]。

本工作拟通过 1 台高效率的凹面光栅单色仪的研制,在原有脉冲 X 射线时间谱仪的基础上,开发完成一套具有较高测量效率和实验精度的光谱分辨衰减时间谱仪,并通过 BaF₂ 闪烁晶体不同发光波段时间谱的测量以检验其性能。利用这一谱仪还将对 CeF₃ 闪烁晶体不同波段的发光衰减时间特性进行分析。

1 仪器装置及工作原理

1.1 仪器结构和工作原理

谱仪由脉冲 X 射线源、样品室、单色仪和光电测量系统 4 部分组成(图 1)。谱仪的基本工作原理如下:脉冲激光控制器同时产生两路脉冲信号,一路直接进入时幅转换器,作为整个事件的起始信号,另一路用来驱动激光二极管,产生的脉冲激光直接打在光激发 X 射线管的光阴极上,从而产生与驱动脉冲同频率的脉冲

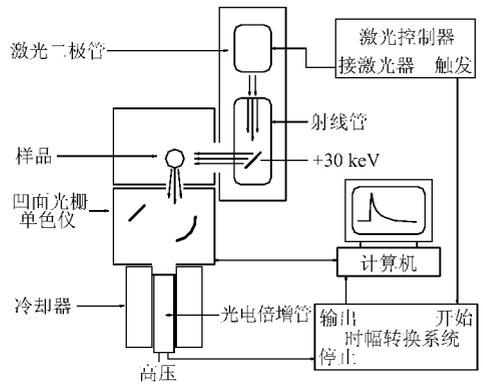


图 1 光谱分辨的荧光衰减时间谱仪

Fig. 1 Facility for wavelength resolved fluorescence lifetime measurement

X 射线。受脉冲 X 射线激发的闪烁样品将发出闪烁光,闪烁光经单色仪分光和光阑调节后由光电倍增管记录其单光子信号,输出的电脉冲作为整个事件的终止信号,从而实现光谱分辨的单光子时间分辨取样。大量起始和终止信号之间的时间间隔的统计分布反映了待测闪烁材料光谱分辨的发光衰减时间特性。

谱仪的脉冲 X 射线源系统由 Hamamatu 的 PLP-01 光脉冲控制器、LDH065 激光器和 N5084 光激发 X 射线管组成。样品室采用 6 mm 钢板加工制作,表面经氧化发黑处理,以尽可能减少杂散光的影响,其具体尺寸参见文献^[1]。单光子测量和时间符合系统采用 Philips 的 XP2020Q 光电倍增管、EG&G Ortec 公司的 CFD583 恒比甄别器、DB463 延迟箱、TAC566 时幅转换器和上海原子核研究所的 ADC8192 多道分析器。

1.2 单色仪

鉴于单色仪效率对于光谱分辨荧光衰减时间谱仪研制的重要性,选用法国 Jobin Yvon 公司生产的凹面光栅(具体参数列于表 1),采用超环面光栅单色器的设计原理,研制了 1 台相对孔径为 1/2.5 的反射式凹面光栅单色仪,其结构示于图 2。图中的圆是以凹面光栅曲率半径为直径的罗兰圆,入射狭缝 S₁、光栅 G、出射狭缝 S₂ 以及 S₂ 在反射镜 M 中的虚象 S'₂ 均在以 O 为圆心的罗兰圆上。在扫描过程中,凹面光栅的转动由丝杆推动,丝杆可由计算机通过 RS232C 接口和 MCU51 芯片控制。单色仪扫

表 1 凹面光栅参数

Table 1 Parameters of concave grating

刻线密度/ ($\text{gr} \cdot \text{mm}^{-1}$)	光谱范围/ nm	闪耀波长/ mm	刻线尺寸/ mm^2	偏向角/ $^\circ$
1 200	200~1 000	350	42.4×42.4	34.7

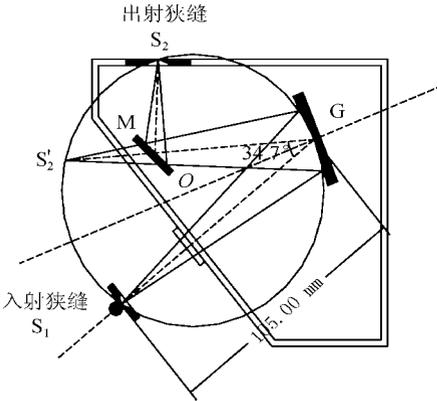


图 2 凹面光栅单色仪示意图

Fig. 2 Scheme of concave grating monochromator

描的波长最小步间距为 1 nm, 可任意选择起始及终止波长, 并可在每一波长停顿任意长时间(停留时间可设定), 可进行正反向扫描, 扫描过程中可自动切换滤色片, 也可用软件终止切换功能。

单色仪的主要技术指标为: 波长范围 200~800 nm; 相对孔径 1/2.5; 线色散 7 nm/mm; 波长精度 1 nm; 狭缝为插片式, 可在 0.1~8 mm 范围内调节; 滤光片透光范围 400~800 nm。与普通的平面光栅单色仪相比, 该谱仪不仅相对孔径大, 同时由于凹面光栅兼有分光、准直和成像的作用, 减少光强在光学元件上的损耗, 提高了探测效率。

从设计的角度可估算加载凹面光栅单色仪后探测效率的变化。已知光栅的尺寸为 $42.4 \text{ mm} \times 42.4 \text{ mm}$, 从发光位置(入射狭缝 S_1)到光栅中心的距离为 105 mm, 因此, 光栅所收集到的光强占光源所发光强的比例为 $42.5 \times 42.5 / 4\pi / 105^2 = 1.30 \times 10^{-2}$ 。考虑到光栅在 200~550 nm 波段的一级平均衍射效率 ϵ 为 $40\% \leq \epsilon \leq 65\%$, 平面反射镜 M 的效率约为 90%, 所以, 单色仪的效率 $\eta = 1.30 \times 10^{-2} \epsilon \times 90\%$, 即 $4.7 \times 10^{-3} \leq \eta \leq 7.6 \times 10^{-3}$ 。鉴于不使用单色仪测量时, 闪烁材料与光电倍增管间

距为 65 mm, 光电倍增管光阴极的有效直径约为 44 mm, 而设计的单色仪入射狭缝紧挨样品, 所以, 有或无单色仪时光电倍增管所接受到的光强比 $\kappa = \eta / (\pi \times 22^2 / 4\pi \times 65^2)$, 即 $0.16 \leq \kappa \leq 0.27$ 。考虑到 X 射线照射到闪烁样品有效面积约为 $\pi \times 17.5^2 = 962 (\text{mm}^2)$, 而实验中单色仪入射狭缝常用面积 56 mm^2 (对应缝宽为 4 mm), 因此, 有或无单色仪时光电倍增管实际所接受到光强比 ξ 还需乘系数 $56/962$, 即 $\xi = (56/962)\kappa$, $0.93 \times 10^{-2} \leq \xi \leq 1.6 \times 10^{-2}$ 。可见, 加载单色仪后, 探测效率将下降 2 个数量级。这一指标比美国劳伦兹伯克利国家实验室的仪器高 1 个数量级。

2 结果与分析

为检验谱仪性能, 对已知具有快、慢两个发光成分的 BaF_2 闪烁晶体进行了光谱分辨的时间谱测量, 并进一步对 CeF_3 闪烁晶体光谱分辨的发光衰减时间谱进行了分析。 BaF_2 晶体由北京玻璃研究所提供, 其尺寸为 $\phi 40 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ 。 CeF_3 晶体由上海硅酸盐研究所提供, 其尺寸为 $20 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 3.5 \text{ mm}$ 。两种晶体均采用 Bridgman 方法生长。实验中, 单色仪缝宽选为 4 mm, 对应的波长分辨率为 28 nm。仪器的时间分辨函数取高斯函数形式。X 射线的脉冲宽度仅为 113 ps, 将被散射的少量脉冲 X 射线直接打到光电倍增管的光阴极上, 将该输出信号作为终止信号, 即可获得谱仪的时间分辨函数^[1], 其具体测得的时间分辨率 $\sigma = 0.77 \text{ ns}$ 。闪烁材料的荧光强度通常随时间按自然指数规律衰减, 将仪器分辨函数与衰减指数函数进行卷积, 则由卷积函数与实测的光谱分辨的时间谱拟合即可获得材料的荧光衰减时间常数^[1]。

2.1 BaF_2 晶体的测量

BaF_2 是目前时间响应最快的无机闪烁晶体, 它具有快、慢两个发光成分, 快成分峰位于 195 nm 和 220 nm, 其发光衰减时间常数约为 0.87 ns, 慢成分峰位于 310 nm, 发光衰减时间常数为 620 ns^[7]。实验中, 分别对不用和使用单色仪情况下测到的 BaF_2 晶体发光衰减时间谱进行对比。

图 3 是不用单色仪时测到的 BaF_2 晶体发

光衰减时间谱。通过与实验曲线的拟合可得快成分的衰减时间常数为 0.64 ns,慢成分的衰减时间常数为 531 ns。图 4 为加载单色仪、并将分光波长调在 220 nm 处时测到的 BaF₂ 晶体发光衰减时间谱,选用量程为 50 ns。从实验测量的结果可看到,这里仅有快成分。图 5 为加载单色仪、并将分光波长调在 310 nm 处时测到的 BaF₂ 晶体发光衰减时间谱,选用量程为 1 000 ns。从实验同样可看到,这里仅有慢成分。由此可证明谱仪可很好地进行光谱分辨的时间谱测量。通过与实验曲线的拟合可知:220 nm 波段 BaF₂ 晶体的发光衰减时间常数为 0.81 ns,310 nm 波段 BaF₂ 晶体的发光衰减时间常数为 603 ns,与已报道的结果基本一致。

BaF₂ 晶体的快成分含有两个子成分,峰位分别位于 195 nm 和 220 nm,但这两个成分的强度比约为 1 : 3.5^[7],同时 XP2020Q 光电倍增管在这两个子成分处的探测效率比约为

1 : 1.3,所以,无单色仪时,两子成分对时间谱快成分的贡献比为 1 : 4.6,计数主要来自于 220 nm 这一成分。当谱仪加载单色仪后,由于入射和出射缝的宽度取 4 mm,对应的波长分辨宽度为 28 nm,因此,当单色仪分光波长取 220 nm 时,单色仪通光波段基本可覆盖 BaF₂ 晶体 220 nm 这一发光成分。当其他实验条件不变时,时间谱的本底计数与单色仪无关。这一事实表明,本底计数主要来自于电子学噪声。由此通过有、无单色仪时间谱快成分峰值与本底计数之比的比较可估算加载单色仪后探测效率的变化。从图 3a 和图 4 的实验结果得知:无单色仪时,时间谱峰位计数为 18 192,本底计数为 12;使用单色仪后时间谱峰位计数为 1 029,本底计数为 68。由此可得加载单色仪后探测效率的变化率为:

$$\frac{(1\ 029 - 68) / 68}{[4.6 / (1 + 4.6)] \times [(18\ 192 - 12) / 12]} = 1.12 \times 10^{-2},$$

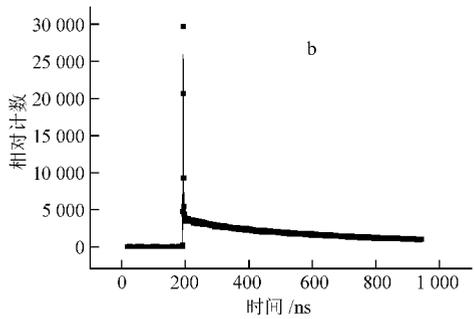
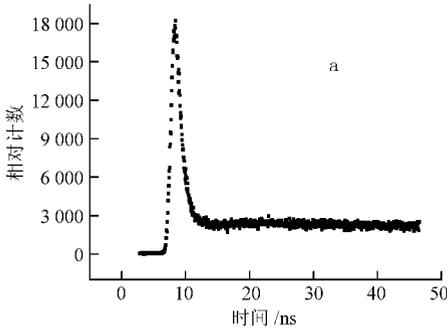


图 3 无单色仪时的 BaF₂ 晶体发光衰减时间

Fig. 3 Decay time of BaF₂ without monochromator

量程:a——50 ns;b——1 000 ns

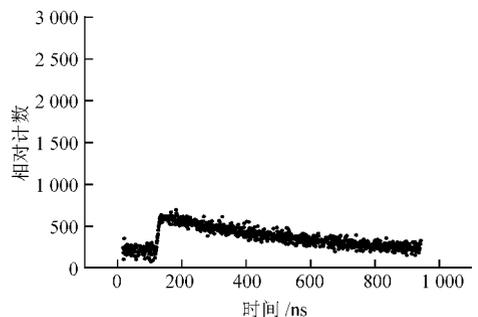
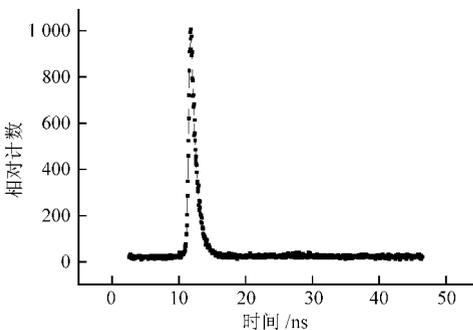


图 4 BaF₂ 晶体 220 nm 波段的发光衰减时间

Fig. 4 Decay time of luminescence

at 220 nm of BaF₂ crystal

图 5 BaF₂ 晶体 310 nm 波段的发光衰减时间

Fig. 5 Decay time of luminescence

at 310 nm of BaF₂ crystal

与设计所预期的基本相符。

2.2 CeF₃ 晶体的测量

CeF₃ 晶体有 3 个发光峰, 分别位于 286 nm、305 nm 和 340 nm。其中, 前两个峰较窄, 对应于正常格位 Ce³⁺ 的 5d→4f_{5/2,7/2} 跃迁; 后一个峰较宽, 对应于受缺陷扰动 Ce³⁺ 的 5d→4f 的跃迁。与光致发光不同的是, 在辐射发光情况下, 由于自吸收的作用, 286 nm 的发光峰并未出现, 且 340 nm 的发光峰强度因体内受扰动的 Ce³⁺ 密度低于表面而相应减弱^[8]。鉴于不同波段发光机制不同, 相应的发光衰减时间特性各异, 且处于正常格位的受激 Ce³⁺ 还可通过非辐射退激将能量传递给受扰 Ce³⁺, 并引起受扰 Ce³⁺ 发光, 因此, CeF₃ 晶体的发光衰减时间谱通常可用三成分拟合, 各成分的相对强度将因不同晶体中所含缺陷的不同而有所差异。

实验中, 分别对不用和使用单色仪情况下 CeF₃ 晶体的发光衰减时间谱进行了研究。图 6 为无单色仪情况下测到的发光衰减时间谱, 选

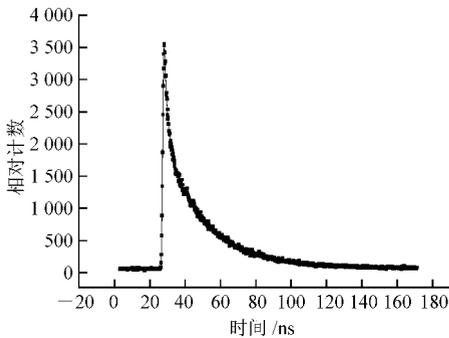


图 6 无单色仪时的 CeF₃ 晶体发光衰减时间

Fig. 6 Decay time of CeF₃ without monochromator

用量程为 200 ns。图 7 为加载单色仪, 并将分光波长分别调至 305、340 和 365 nm 处时测到的 CeF₃ 晶体发光衰减时间谱, 选用量程为 200 ns。从图中可看到, 不用单色仪时, 只能获得 CeF₃ 晶体各成分发光的平均衰减时间特性, 而使用单色仪后, 可观测到 CeF₃ 晶体发光衰减时间随波长的变化, 从而可为改进材料的发光性能提供依据。表 2 列出 CeF₃ 晶体发光衰减时间特性随波长的变化。从表 2 可看出, 随着波长的变长, 发光的快、慢成分将发生改变。

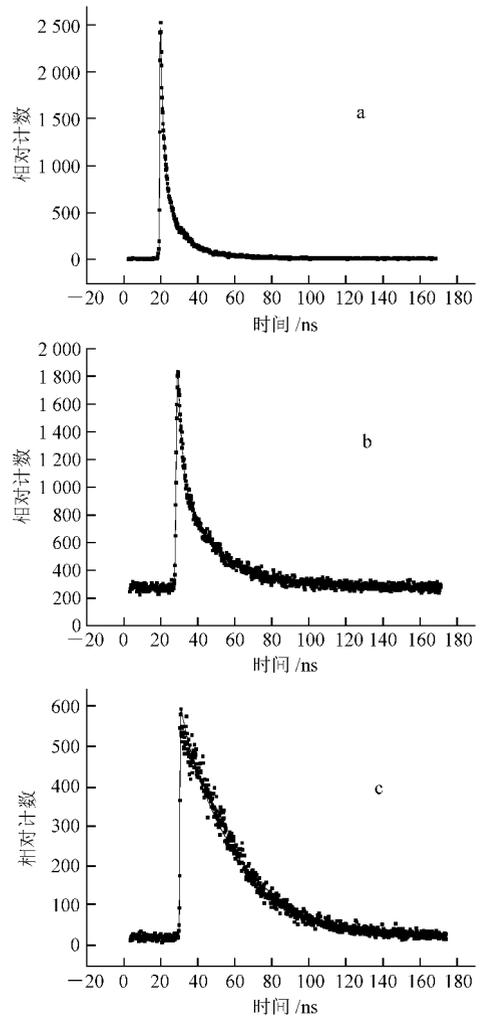


图 7 加载单色仪时的 CeF₃ 晶体发光衰减时间

Fig. 7 Decay time of CeF₃ crystal with monochromator
分光波长: a—305 nm; b—340 nm; c—365 nm

表 2 CeF₃ 晶体发光衰减时间特性随波长的变化
Table 2 Variation of decay time with wavelengths for CeF₃

波段/nm	成分数	衰减时间/ns	相对强度/%
305	2	1.7/12.6	27.3/72.7
340	3	2.2/16.6/33.1	13.2/54.5/32.3
365	1	30.9	100
未分光	3	1.9/18.5/30.9	8.6/42.5/48.9

3 结论

通过 1 台高效率凹面光栅单色仪的研制, 在原有脉冲 X 射线时间谱仪的基础上, 开发完成了 1 套光谱分辨的荧光衰减时间谱仪, 其波长和时间分辨率分别可达 nm 和亚 ns 量级。

BaF₂ 闪烁晶体的测试结果表明:谱仪可有效进行光谱分辨的发光衰减时间谱测量,加载单色仪后,谱仪的测量效率仅下降 2 个数量级,达到了设计所预期的指标。利用这一装置,还对 CeF₃ 晶体光谱分辨的发光衰减时间谱进行了研究,观测到 CeF₃ 晶体的闪烁光中存在着衰减时间常数分别为 2 ns、16 ns 和 32 ns 的 3 个成分,且随着波长的变长,发光的快、慢成分将发生改变。

参考文献:

- [1] 段勇,顾牡,马晓辉,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: 42-45.
DUAN Yong, GU Mu, MA Xiaohui, et al. The development of an ultrashort pulsed X-ray facility for fluorescent lifetime measurement[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2003, 23: 42-45(in Chinese).
- [2] ZHANG Haibin, ZHEN Jianming, REN Guohao, et al. Growth by Bridgman method and luminescence properties of Na:PbFCl crystal[J]. J Cryst Growth, 2004, 267: 588-591.
- [3] 顾牡,马晓辉,徐荣昆,等. 加载光子带隙膜系 BaF₂ 晶体的闪烁光慢成分抑制和抗 γ 辐照损伤的研究[J]. 强激光与粒子束,2005, 17(1): 42-46.
GU Mu, MA Xiaohui, XU Rongkuan, et al. Slow component suppression and γ -radiation hardness of BaF₂ crystal modified by photonic band multilayer filter[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2005, 17(1):42-46(in Chinese).
- [4] HUANG Yanlin, ZHU Wenliang, FENG Xiqi, et al. Properties of Dy³⁺-doped PbWO₄ single crystal grown by modified Bridgman method[J]. J Cryst Growth, 2003, 247: 387-392.
- [5] MOSES W W, DERENZO S E, WEBER S C, et al. Scintillator characterization using the LBL pulsed X-ray facility [J]. Radiation Measurements, 1995, 24: 337-341.
- [6] DERENZO S E, MOSES W W, BLANKESPOOR S C, et al. Design of a pulsed X-rays system for fluorescent lifetime measurements with a timing accuracy of 109 ps[J]. IEEE Trans Nucl Sci, 1994, NS41(3): 629-631.
- [7] SCHOTAMUS P, van EIJK C W E, HOLLANDER R W, et al. Photoelectron production in BaF₂-TMAE detectors [J]. Nucl Instrum Methods, 1987, A259: 586-588.
- [8] AUFRAY E, BACCARO S, BECKERS T, et al. Extensive studies on CeF₃ crystals, a good candidate for electromagnetic calorimetry at future accelerators [J]. Nucl Instrum Methods, 1996, A383: 367-390.