

СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫЕ МАТЕРИАЛЫ ДЛЯ ЯДЕРНОЙ МЕДИЦИНЫ

М. В. Коржик, А. С. Лобко, О. В. Мисевич, А. А. Федоров

Середина 90-х годов ознаменовалась бурным развитием научно-исследовательских направлений, лежащих на стыке ядерной физики, химии, медицины, фармакологии и связанных с разработкой и усовершенствованием методов диагностики, контроля эффективности лечения и создания новых лекарственных препаратов, что хорошо прослеживается по большому количеству публикаций. Научная деятельность в этом направлении получила поддержку на государственном уровне во многих развитых странах, а также в крупнейших международных исследовательских организациях, таких как МАГАТЭ, ЦЕРН и др. [1]. Большинство «ядерных» организаций заинтересовано во внедрении новейших технологий детектирования ионизирующих излучений в другие области, в частности в терапию, диагностику, в разработку лекарственных препаратов. В этой связи в их деятельности помимо традиционных направлений исследований появляется ряд новых, связанных с разработкой и совершенствованием медицинских сканеров различного назначения, которые, по существу, являются сложнейшими многокомпонентными детекторами ионизирующих излучений. Важнейшими критическими элементами этих устройств являются первичные преобразователи – как правило, это сцинтиллятор, сопряженный с фотоприемником.

Однако требования к сцинтилляторам в физике [2] и в медицине [3] в значительной степени различны: для медицины в первую очередь важна эффективность, что обеспечит снижение дозы облучения пациента. Для физики (где детекторы могут содержать тонны сцинтиллятора) важны цена сцинтилляционного материала и его радиационная прочность, что для медицинских применений не является определяющим ввиду небольших размеров установок и малых доз облучения. Тем не менее проектирование в последние годы большого количества высокоточных многоэлементных детекторов в физике высоких энергий дало мощный импульс исследованиям сцинтилляционных материалов. Была значительно развита теория, выращены и исследовались десятки сцинтилляторов – кандидатов на роль рабочего тела в электромагнитных гомогенных калориметрах для новых экспериментов на строящемся суперколлайдере LHC. В результате по совокупности физических и сцинтилляционных свойств, а также принимая во внимание цену при массовом производстве, для применения в экспериментах ALICE [4] и CMS [5] был отобран сцинтилляционный кристалл $PbWO_4$ (PWO).

Учитывая повышенный в настоящее время интерес к аппаратуре и методам ядерной медицины [1, 6], мы проанализировали большое количество различных сцинтилляционных материалов под углом зрения специфических требований ядерно-медицинской диагностики и установили, что весьма перспективными для этих применений являются кристаллы на базе лютетия. В настоящей работе приведены исходные посылки и основные результаты этого анализа.

Наиболее бурно развиваются сейчас томографические методы диагностики: рентгеновская компьютерная томография (ХСТ), однофотонная эмиссионная

компьютерная томография (SPECT) и позитронная эмиссионная компьютерная томография (PET). Характерными диапазонами энергий излучения являются:

- для рентгенодиагностики – ~ 20 кэВ (маммография), ~ 60 кэВ (диагностика зубов), ~ 150 кэВ (диагностика тела);
- для SPECT – $60\text{--}511$ кэВ, при этом излучение изотопа ^{99m}Tc с энергией 140 кэВ используется наиболее часто;
- для PET – 511 кэВ (коллинеарные аннигиляционные фотоны электрон-позитронной пары).

Рассмотрим схемы детектирования излучений в различных томографах и установим требования к сцинтилляторам и возможности улучшения детекторов с помощью применения новых сцинтилляционных материалов.

На рис. 1 показан однокольцевой PET сканер последнего поколения, где используется тяжелый сцинтиллятор $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO). Известная проблема детекторов этого сканера состоит в большой величине постоянной времени высвечивания сцинтилляции и низком световыходе BGO. В частности, медленность BGO (а также и NaI, CsI) делает невозможным использование информации о «времени пролета» в современных позитронных томографах. В случае, если кристалл BGO в сканере PET будет заменен сцинтиллятором, имеющим лучший коэффициент преобразования, пространственное разрешение сканера может быть улучшено до двух раз. Более быстрый сцинтиллятор обеспечит меньшее «мертвое» время и лучший контраст изображения из-за того, что более узкое временное окно схемы совпадений позволит уменьшить скорость счета случайных совпадений. Сцинтиллятор, имеющий большую поглощательную способность, увеличит поле зрения и контрастность изображения. Таким образом, можно значительно улучшить качество измерений с одновременным снижением дозы облучения пациента.

На рис. 2 показаны две возможные конструкции гамма-камер для SPECT. В первом случае представлена так называемая «логика Ангера», где координата взаимодействия гамма-квантов с монолитным сцинтиллятором NaI или CsI определяется по сравнению сигналов от набора ФЭУ. Во втором случае используется прямое определение координат взаимодействия с помощью позиционно-чувствительного ФЭУ, присоединенного к матрице из сцинтилляционных кристаллов. Обычно в этой конструкции применяют матрицы из кристаллов $\text{YAlO}_3:\text{Ce}$ (YAP) или CsI, поэтому некоторые исследователи называют этот дизайн «YAP-камера». Основная перспектива применения таких камер – томографы лабораторных животных и оперативные медицинские зонды. В SPECT следует применять сцинтилляторы с более высокой поглощательной способностью, тогда чувствительность прибора и его пространственное разрешение были бы увеличены. Более быстрый сцинтиллятор обеспечил бы меньшее «мертвое» время и лучший контраст изображения. В YAP-камере, кристалл YAP, имеющий максимум спектра высвечивания при рентгеновском возбуждении в УФ-области, мог бы быть заменен другим сцинтиллятором с большей длиной волны высвечивания, тогда считывание с помощью твердотельных фотоприемников уменьшило бы цену камеры. К тому же лучшая поглощательная способность сцинтиллятора позволила бы уменьшить размер элемента детектирующей матрицы и соответственно повысить пространственное разрешение.

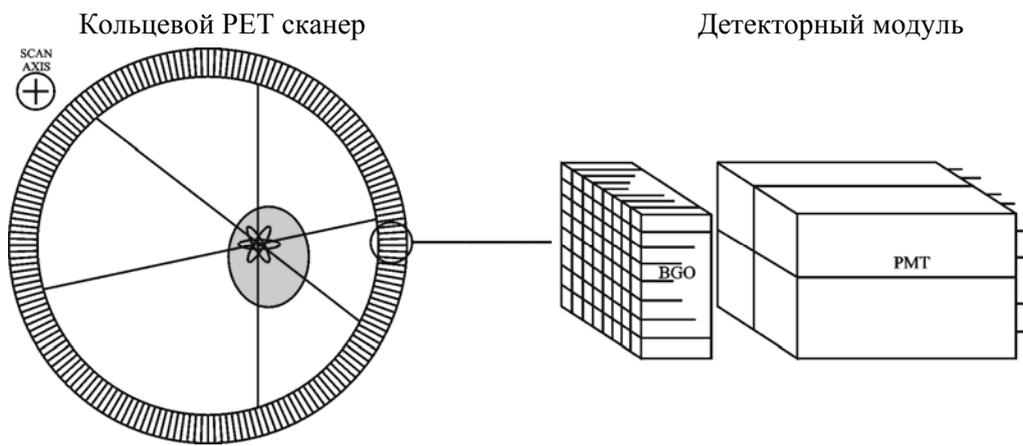


Рис. 1. Схема детектирования в позитронном эмиссионном томографе (PET)

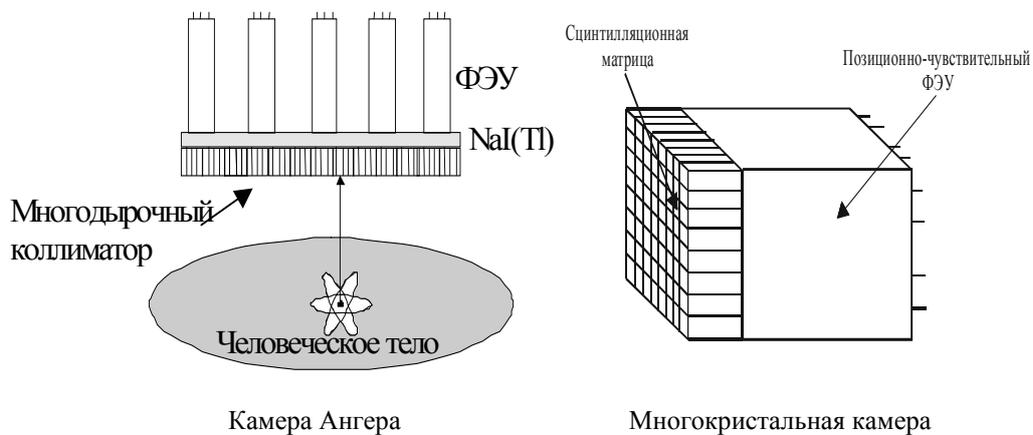


Рис. 2. Схема детектирования в однофотонном эмиссионном томографе (SPECT)

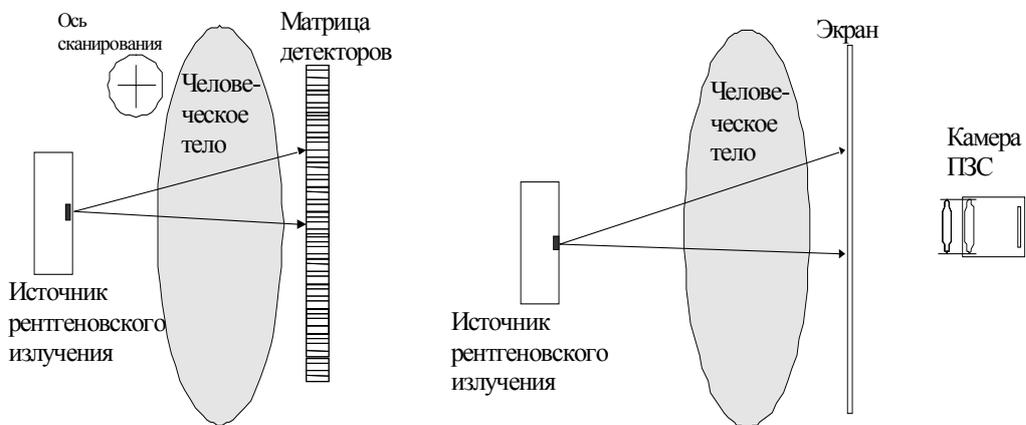


Рис. 3. Схемы детектирования в компьютерной рентгеновской томографии (ХСТ)

Сцинтилляторы, применяемые в ядерной медицине

Сцинтиллятор	ρ , г/см ³	LY, фот./МэВ	λ , нм	τ , мкс	Гигроско- пичность	Применение
NaI(Tl)	3,67	38000	415	0,23	да	СПЕКТ
CsI(Tl)	4,51	54000	550	1,00	слабая	ПЕТ, СПЕКТ, ХСТ
Bi ₄ Ge ₃ O ₁₂ (BGO)	7,13	9000	480	0,30	нет	ПЕТ
CdWO ₄ (CWO)	7,90	~28000	470/540	20/5	нет	ХСТ
(Y,Gd) ₂ O ₃ :Eu керамика	5,9	–	610	1000	нет	ХСТ
Gd ₂ O ₂ S:Pr,Ce,F керамика	7,34	–	520	2,40	нет	ХСТ

Таблица 2

Перспективные сцинтилляторы

Сцинтиллятор	ρ , г/см ³	LY, фот./МэВ	λ , нм	τ , нс	Гигро- скопичность
YAlO ₃ :Ce (YAP)	5,55	16000	350	30	нет
Gd ₂ SiO ₅ :Ce (GSO)	6,70	8000/1000	440	60/600	нет
Lu ₂ SiO ₅ :Ce (LSO)	7,40	27000	420	40	нет
LuPO ₄ :Ce (LuPO)	6,20	13000	360	24	нет
Lu ₃ Al ₅ O ₁₂ :Ce (LuAG)	6,67	3000/11000	300, 530	~100	нет
Lu ₃ Al ₅ O ₁₂ :Sc (LuAG:Sc)	6,67	22400	275	610	нет
LuAlO ₃ :Ce (LuAP)	8,34	9600	380	11/28/835 60/26/13 %	нет

На рис. 3 представлены две из нескольких возможных конструкций блоков формирования рентгеновских изображений. В первой конструкции пространственная разрешающая способность зависит от размера пикселя детекторной матрицы – обычно это кристаллы CsI, присоединенные к матрице фотодиодов. В этом случае применение более длинных или тяжелых кристаллов означает лучшую эффективность детектора и как следствие – меньшую дозу облучения пациента. Напротив, толщина сцинтилляционного экрана во второй конструкции едва ли может быть увеличена без потери пространственного разрешения в случае порошкового или керамического экрана. Обычно толщина таких экранов

составляет несколько десятых долей миллиметра, что обеспечивает разрешающую способность в несколько пар линий на миллиметр. Та же самая ситуация возникает, когда скинтилляционный экран помещен на волоконно-оптическую пластинку, соединенную с микроканальной пластиной. Исследователи пробуют найти решение проблемы «разрешение – эффективность», выращивая ориентированные длинные и узкие кристаллы CsI на пиксельной подложке. Другое возможное решение состоит в применении скинтилляционных кристаллов, порошков или керамики с более высокой тормозной способностью. В рентгеновской томографии более высокая поглощательная способность скинтилляционного экрана очевидно ведет к уменьшению дозы облучения пациента. Детекторная матрица, сделанная из скинтилляционного материала с лучшими коэффициентами преобразования и поглощательной способностью, также уменьшила бы время сканирования и дозу облучения пациента.

В табл. 1 и табл. 2 сведены главные свойства применяемых и перспективных скинтилляционных материалов. Однако отметим, что только физические и скинтилляционные свойства материалов не в полной мере дают возможность сравнения, так как эффективность детекторов описывают комбинированные параметры, которые более детально рассмотрены ниже.

Резюмируя требования к скинтилляторам, выдвигаемые в различных типах томографической аппаратуры, можно отметить, что наиболее часто встречающееся требование – это необходимость повышения быстродействия. Рис. 4 демонстрирует преимущества скорости новых, активированных церием скинтилляторов по сравнению с известными традиционными скинтилляторами. Оценка граничных скоростей счета пропорциональна $1/\tau$, где τ скинтиллятора – средняя величина постоянных времени высвечивания. Разрешающая способность по времени пропорциональна LY/τ , где световыходы определены для ФЭУ с бищелочным фотокатодом.

Далее, на рис. 5 сравнивается среднее количество фотонов, испускаемых скинтиллятором, возбужденным единичным рентгеновским квантом, в зависимости от энергии рентгеновского излучения и толщины скинтиллятора. Вычисления были сделаны с помощью коэффициентов поглощения энергии (а не линейного ослабления). Также использовалось предположение о линейности световыхода (конверсионной эффективности) скинтилляторов в этом энергетическом диапазоне. Это сравнение предназначено для анализа применимости скинтилляторов в аппаратуре рентгеновской компьютерной томографии, в которой используется режим интегрирования тока (т. е. считывание с помощью ПЗС матриц).

Видно, что для малой толщины скинтилляционного экрана (0,1–0,2 мм) скинтилляционная керамика (представленная $Gd_2O_2S:Pr,Ce,F$) имеет очевидные преимущества по сравнению со всеми монокристаллическими скинтилляторами. Для самых низких энергий $Gd_2O_2S:Pr,Ce,F$ толщиной 0,2 мм производит количество фотонов, близкое к насыщению, т. е. это толщина, достаточная для 20 кэВ (сравним: $N_{ph} = 1000$ для $Gd_2O_2S:Pr,Ce,F$ с $d = 0,2$ мм и $N_{ph} = 1100$ для CsI(Tl) с $d = 5,0$ мм). В энергетических диапазонах рентгенодиагностики зубов и диагностики всего тела, начиная с толщин скинтиллятора, равных 0,5–1,0 мм, ситуация меняется. Увеличение толщины керамики теперь приводит к потере световыхода, и здесь монокристаллы становятся предпочтительными. До тол-

щин ~2 мм сцинтилляторы, основанные на лютеции, могут конкурировать с CsI(Tl) благодаря своей более высокой тормозной способности. В CsI(Tl) толщиной более 5 мм поглощение, предположительно, насыщается, отображая преимущество CsI(Tl) в световых выводе.

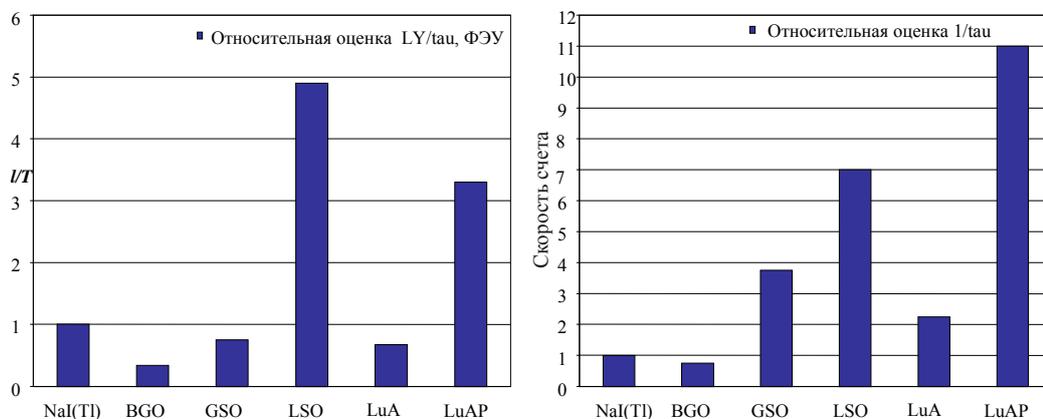


Рис. 4. Временное разрешение (слева) и предельные скорости счета (справа) некоторых типов сцинтилляторов

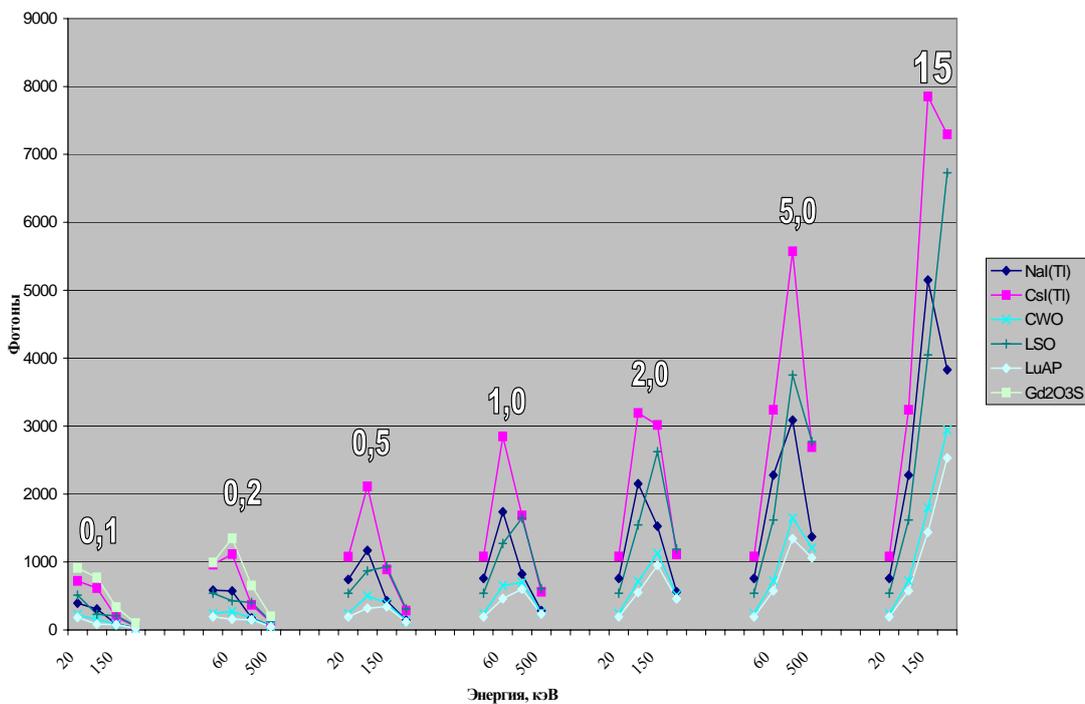


Рис. 5. Количество фотонов, испускаемых различными сцинтилляторами, в зависимости от толщины

На рис. 6 представлены результаты почти такого же анализа, как и в предыдущем случае, но фотоны, испускаемые сцинтиллятором, возбужденным одним рентгеновским квантом, детектируются бищелочным ФЭУ с типичным спектральным откликом. Высокий потенциал LSO отображен на энергии 150 кэВ для всех толщин и для толщины 0,1–0,2 мм – на энергии 20 кэВ. Это, в частности, означает, что порошок LSO может с успехом использоваться для производства экранов, рассчитанных на низкие энергии (возможно, для этой цели могут использоваться отходы обработки кристаллов).

На рис. 7 также рассмотрена аппаратура рентгеновской компьютерной томографии, но уже в режиме счета (были использованы линейные коэффициенты затухания). Снова тонкая керамика хороша в диапазонах 20 и 60 кэВ, так же как и тонкий LuAP на 20 кэВ. Для больших толщин кристаллы на базе Lu показывают значительное преимущество по сравнению с NaI и CsI на энергии 150 кэВ. Самые близкие конкуренты этих кристаллов по поглощательной способности – CWO и BGO (не отображен) – имеют намного большее время высвечивания.

На рис. 8 рассмотрено применение сцинтилляторов в PET/SPECT. Тяжелые LSO и LuAP близки к BGO в поглощательной способности на 511 кэВ, что является наиболее важным фактором для PET. Кроме того, они имеют и уже вышеупомянутые преимущества в световых выходе и скорости. Для диапазона энергий SPECT (60–300 кэВ) кристаллы, основанные на Lu, могут быть в несколько раз более тонкими, чем традиционные NaI и CsI при такой же эффективности. Однако на толщине 1–2 мм собственная радиоактивность кристаллов на основе Lu (приблизительная величина для LSO – около $300 \text{ с}^{-1} \text{ на см}^3$) может, в зависимости от рабочих скоростей счета, обуславливать проблемы для SPECT. Для PET этот фактор не является существенным.

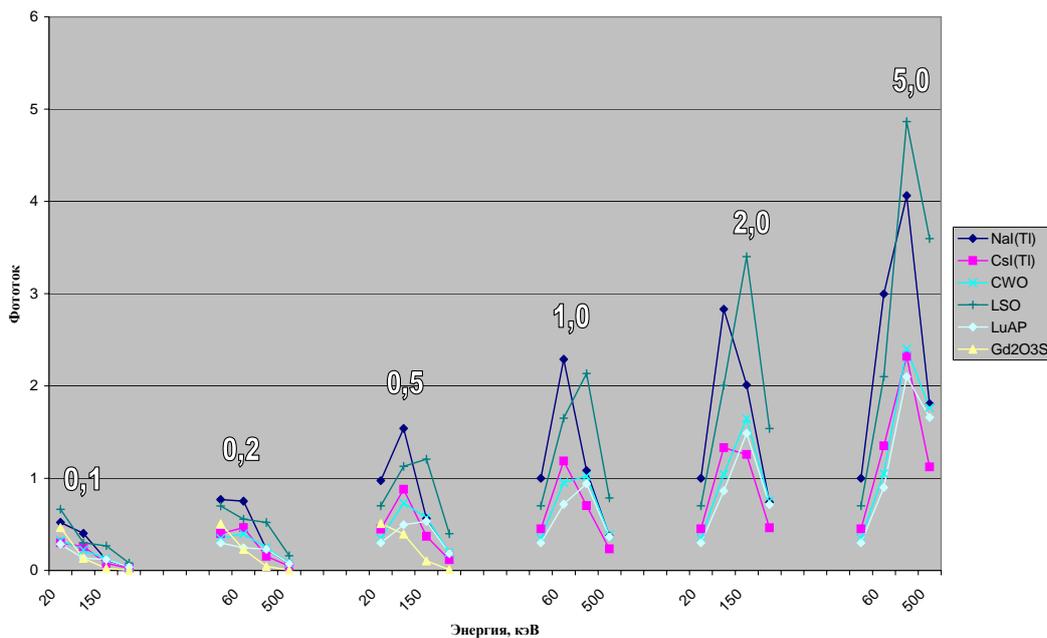


Рис. 6. Фототок, создаваемый различными сцинтилляторами, в зависимости от их толщины

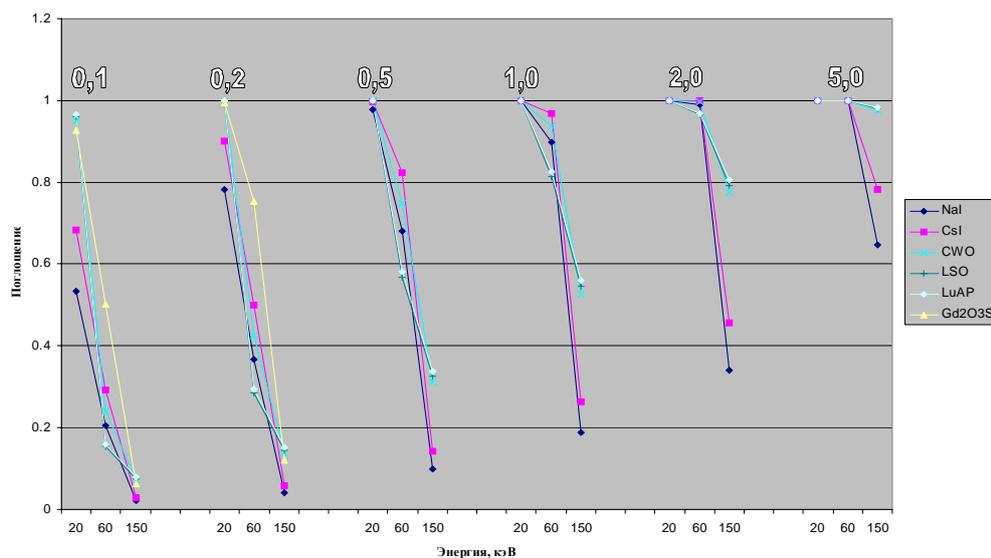


Рис. 7. Относительное поглощение для сцинтилляторов различной толщины в диапазоне энергий ХСТ

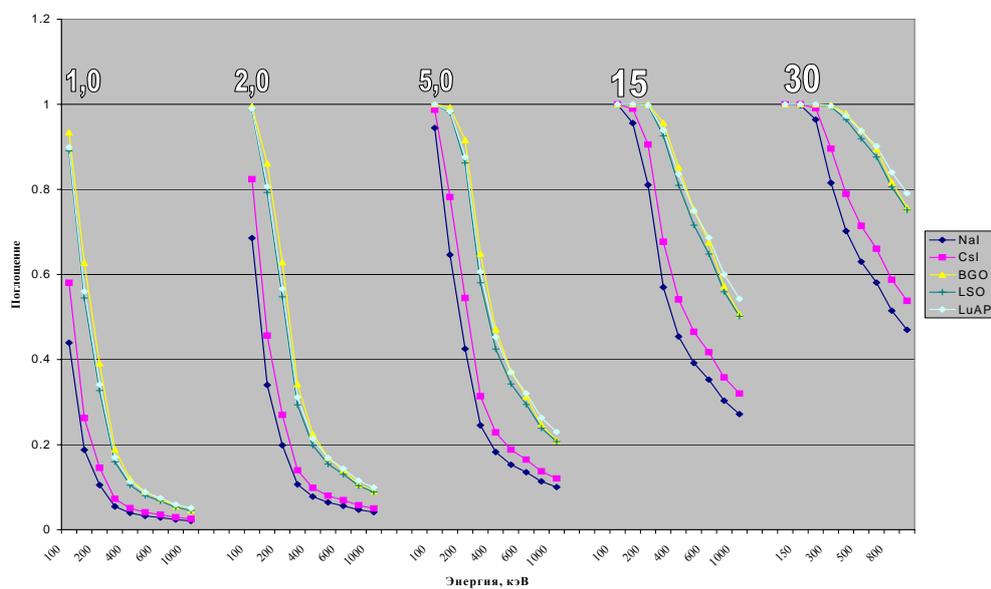


Рис. 8. Относительное поглощение для сцинтилляторов различной толщины в диапазоне энергий СPECT/РЕТ

Результаты нашего анализа и работы других авторов (например, [3, 7]) показывают, что качество РЕТ/СPECT аппаратуры может быть значительно улучшено по сравнению с уже существующими коммерческими сканерами, так как многие параметры детекторов еще далеки от теоретически достижимых. Здесь

исследования развиваются в двух направлениях: подбор наиболее подходящего сцинтиллятора и разработка новых фотодетекторов.

Мы предлагаем обсудить прагматический подход к разработке сцинтилляторов. Период 70–80-х годов можно рассматривать как время «романтического» поиска сцинтилляторов. От первого их изучения до массового производства и применения проходило более десяти лет. Почему это так получалось? Потому, что развитие технологий не было ориентировано на пользователя. Теперь, ввиду того что рынок аппаратуры ядерно-медицинской диагностики развивается взрывными темпами, можно считать, что потребитель определен.

Значит, настало время, чтобы уйти от «романтического» поиска к разработке технологий сцинтилляционных кристаллов. В качестве наглядного примера мы можем упомянуть проект с РВО, развитый ЦЕРНом, когда за считанные годы перспективный материал – кандидат на использование в экспериментах на LHC был доведен до массового производства усилиями международной группы исследователей совместно с технологами-ростовиками.

Как было отмечено выше, LuAP – один из перспективных материалов, которые можно применить в PET сканерах и рентгенографии. Но он также нуждается в техническом подходе к его дальнейшей разработке и исследованиям, чтобы пройти путь от лабораторного выращивания и исследования до массового применения.

В данном случае цель не является отвлекающей: разработка новых сцинтилляторов на основе Lu, активированных Ce, и совершенствование существующих материалов могут значительно способствовать улучшению оборудования ядерно-медицинской диагностики, что благоприятно отразится на эффективности здравоохранения.

Литература

1. *Гром Ш.* // Бюллетень МАГАТЭ. 2000. Т. 42, № 1. С. 33–40.
2. *Lecoq P.* // Proc. Intern. Conf. SCINT99. P. 3–10.
3. *Moses W.* // Proc. Intern. Conf. SCINT99. P. 11–21.
4. ALICE Collaboration, Technical Proposal, CERN/LHCC 95–71.
5. CMS Collaboration, Technical Proposal, CERN/LHCC 94–38.
6. Nuclear Medicine (Special section) // Medical Imaging. 2000. № 6. P. NM37–NM56.
7. *Melcher C.* // Journ. Nucl. Med. 2000. Vol. 41, № 6. P. 1051–1055.

SCINTILLATION MATERIALS FOR NUCLEAR MEDICINE

M. V. Korzhik, A. S. Lobko, O. V. Missevitch, A. A. Fedorov

Taking into account current interest to the instrumentation and methods of the nuclear medicine, we have analyzed a number of different scintillation materials under point of view of the particular requirements of nuclear-medical diagnostics. It was established that scintillation crystals based on lutetium are very promising for these applications. Initial suppositions and main results of the analysis are presented.

Most actively tomographic methods of diagnostics are developing now. They are X-ray Computed Tomography (XCT), Single Photon Emission Computed Tomography (SPECT), and Positron Emission Tomography (PET). Characteristic ranges of radiation energies used in each method are as follows:

- X-ray diagnostics – ~20 keV (mammography), ~60 keV (teeth), ~150 keV (body);
- SPECT – 60–511 keV, 140 keV radiation of ^{99m}Tc isotope is used most frequently;
- PET – 511 keV (collinear annihilation photons of electron and positron pairs).

Schemes of radiation detection in different types of tomographs displayed in Figs. 1–3. Requirements to scintillators and possibility of detectors improvement with the help of application of new scintillation materials are discussed.

Efficiency of detectors is the main requirement for nuclear medicine usage. Increase of efficiency will provide of patient's exposition dose decrease.

The main properties of convenient and perspective scintillation materials are shown in Tables 1 and 2. However we shall point that just comparison of physical and scintillation properties of materials do not allow one to make conclusions, since the efficiency of detectors is featured by the combined parameters.

Summarizing the requirements to scintillators used in tomographic instrumentation of different types, it is possible to see that most frequent requirement is the necessity of decay time decrease. The Fig. 4 demonstrates advantages of fast acting new scintillators activated by cerium in comparison with common scintillators. Estimation of limiting count rates is proportional to $1/\tau$, where τ of a scintillator is the mean value of decay time constants. The time resolution is proportional to LY/τ , where the light yields LY are determined for PMT with bialkali photocathode.

Further, the average amounts of photons emitted by a scintillator excited with single X-ray quantum are compared in Fig. 5 as functions of X-ray energy and scintillator thickness. The comparison is intended for the analysis of scintillator applicability in XCT using current integration mode (CCD readout).

The results of the almost same as above analysis are shown in Fig. 6, but now photons emitted by a scintillator excited by one X-ray quantum are detected by bialkali PMT with typical spectral response. High potential of LSO is represented in 150 keV for all thicknesses, and for 0.1–0.2 mm thickness for 20 keV. It particularly means, that LSO powder can be utilized for production of screens for low energies (probably the scraps of crystal machining can be used for this purpose).

XCT instrumentation in counting mode (linear attenuation coefficients were taken) is described in Fig. 7. Again thin ceramics is good in 20 and 60 keV ranges as well as thin LuAP at 20 keV. For greater thicknesses Lu-based crystals show considerable advantage in comparison to NaI and CsI at 150 keV. Nearest competitors of these materials on stopping power – CWO and BGO (not shown) have the much greater decay time.

PET/SPECT application of scintillators is analyzed in Fig. 8. Heavy LSO and LuAP are close to BGO in stopping power at 511 keV, that is the most important factor for PET. Also they have above mentioned advantages in light yield and decay time. For SPECT range of energies (60–300 keV), the Lu-based crystals can be made thinner to some times than conventional NaI and CsI at the same efficiency.

As was pointed above, LuAP is one of the perspective candidates that can be applied in PET scanners and radiography equipment. But it requires the engineering approach to its further development to pass the root from laboratory to mass production and application.

In this case objective is not very abstract: the development of new Lu-based Ce-doped scintillators and improvement of using materials can considerably increase efficiency of equipment of nuclear-medical diagnostics. Without doubt, it will be favorably reflected in quality of public health services.