

# Измерение основных характеристик кристалла $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$

Д. Епифанов, Б. Сикач

ИЯФ СО РАН, лаб. 3-3

15 мая, 2023

# Введение

- К настоящему времени в ИЯФ СО РАН разработан источник нейтронов для бор-нейтронзахватной терапии (БНЗТ) рака. Ведутся работы по развитию методики облучения опухоли нейтронами и контроля поглощённой дозы в тканях пациента.
- В реакции захвата нейтрона ядром  $^{10}\text{B}$ , содержащимся в доставленном в опухоль фармпрепарате, образуется на время порядка пикосекунды возбуждённый изотоп  $^{11}\text{B}^*$ , который затем распадается на возбуждённый изотоп лития  $^7\text{Li}^*$  ( $T_{\text{Li}} = 0.84$  МэВ) и  $\alpha$ -частицу ( $T_{\alpha} = 1.47$  МэВ). Время жизни  $^7\text{Li}^*$  составляет около 0.1 пикосекунды, после снятия возбуждения рождается стабильный изотоп  $^7\text{Li}$  и  $\gamma$ -квант с энергией  $E_{\gamma} = 477.6$  кэВ. Доплеровское уширение гамма линии прямоугольной формы составляет  $\pm E_{\gamma} \sqrt{\frac{2T_{\text{Li}}}{M_{\text{Li}}}} = \pm 7.6$  кэВ (т.е. энергия излучённого  $\gamma$ -кванта в системе покоя  $^{11}\text{B}^*$  равномерно распределена от 470 кэВ до 485.2 кэВ).
- Таким образом наличие  $\gamma$ -кванта с энергией  $E_{\gamma} = 477.6$  кэВ является маркером бор-нейтронзахватной реакции. Помимо сигнальных  $\gamma$ -квантов с характерной энергией  $E_{\gamma} = 477.6$  кэВ в БНЗТ будут генерироваться фоновые  $\gamma$ -кванты с энергией  $E_{\gamma bkg} = 511.0$  кэВ. Ожидаемая скорость счёта фоновых  $\gamma$ -квантов приблизительно на два порядка превосходит скорость счёта сигнальных  $\gamma$ -квантов.
- Для мониторинга процесса БНЗТ и оценки поглощённой дозы в опухоли пациента требуется измерять скорость счёта именно сигнальных  $\gamma$ -квантов. Т.е. счётчик  $\gamma$ -квантов должен существенно различать фоновые ( $E_{\gamma bkg} = 511.0$  кэВ) и сигнальные ( $E_{\gamma} = 477.6$  кэВ)  $\gamma$ -кванты. Учитывая различие энергий  $\gamma$ -квантов  $\Delta E = 511 - 477.6 \approx 33$  кэВ и требуемый высокий уровень разделения  $\gamma$ -квантов  $(5 - 6)\sigma$ , получается, что энергетическое разрешение счётчика  $\sigma_E/E$  для энергий  $\gamma$ -квантов около 500 кэВ должно быть  $\lesssim 1\%$ .
- Компактные счётчики  $\gamma$ -квантов на основе неорганических сцинтилляционных кристаллов позволяют достичь приемлемой эффективности регистрации  $\gamma$ -квантов (с энергиями от сотен кэВ до нескольких МэВ) и довольно высокого энергетического разрешения. Рекордное энергетическое разрешение достигается в кристаллах с высоким световыходом ( $LY > 50000$  фот./МэВ), а также низким остаточным собственным разрешением (которое определяется зависимостью световыхода кристалла от энерговыделения при низких энергиях  $\lesssim (10 \div 50)$  кэВ). Одним из чемпионов по достижимому энергетическому разрешению является кристалл  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ .  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$  является перспективным кандидатом для его использования в системе мониторинга процесса БНЗТ.
- В данной работе измерены характеристики кристаллика  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$  в форме прямоугольного параллелепипеда с размерами  $16 \times 16 \times 20$  мм<sup>3</sup> производства OST Photonics.

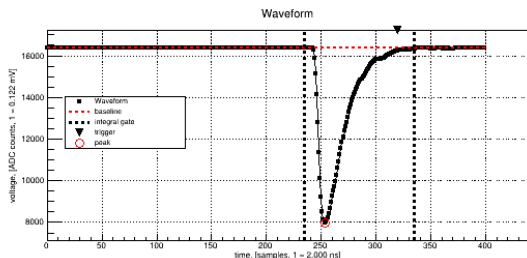
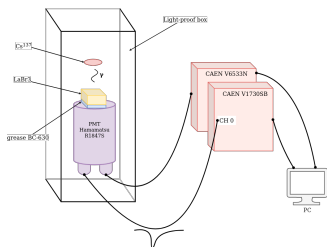
# Кристалл $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$



Рентгенограмма: слева - фронтальная, справа - боковая (окном вниз)

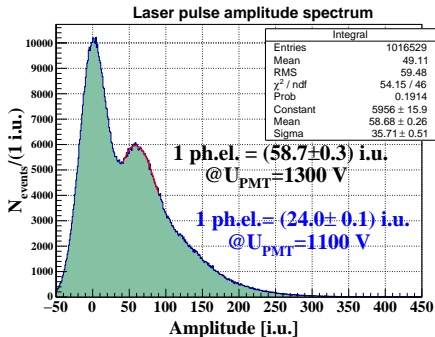
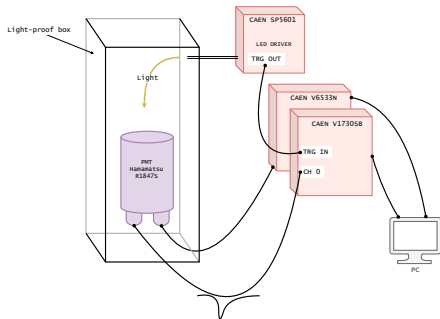


# Схема стенда



- Кристаллик, заключённый производителем в специальный изолированный от внешней атмосферы контейнер, открытой (для прохождения сцинтилляционного света) гранью  $16 \times 16 \text{ мм}^2$  устанавливался (с оптической смазкой BC-630 или без неё) на фотокатод ФЭУ (Hamamatsu R1847S) в светоизолированном коробе. Он облучался  $\gamma$ -квантами с энергией  $E_\gamma = 662 \text{ кэВ}$  от источника  $\text{Cs}^{137}$ .
- Сигнал с ФЭУ ( $U_{\text{PMT}} = 1100 \text{ В}$ ) обрабатывался оцифровщиком CAEN V1730SB, по порогу записывалась амплитудная осциллограмма сигнала с ФЭУ с временным шагом 2 нс.
- При обработке данных проводилось интегрирование сигнала в течение 200 нс. (имитация ЗЦП с воротами 200 нс). В качестве амплитуды сигнала с ФЭУ далее рассматривается именно этот интеграл.  
Он измеряется в единицах (i.u.):  $1 \text{ i.u.} = 0.12 \text{ мВ} \times 2 \text{ нс}$

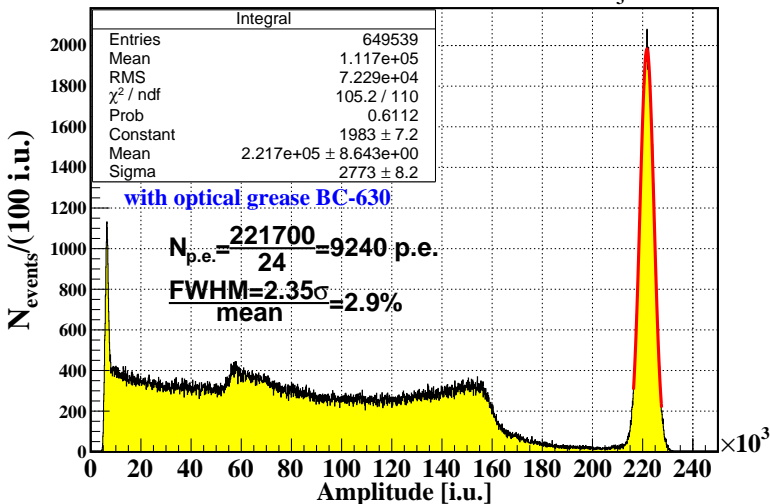
# Калибровка спектрометрического тракта



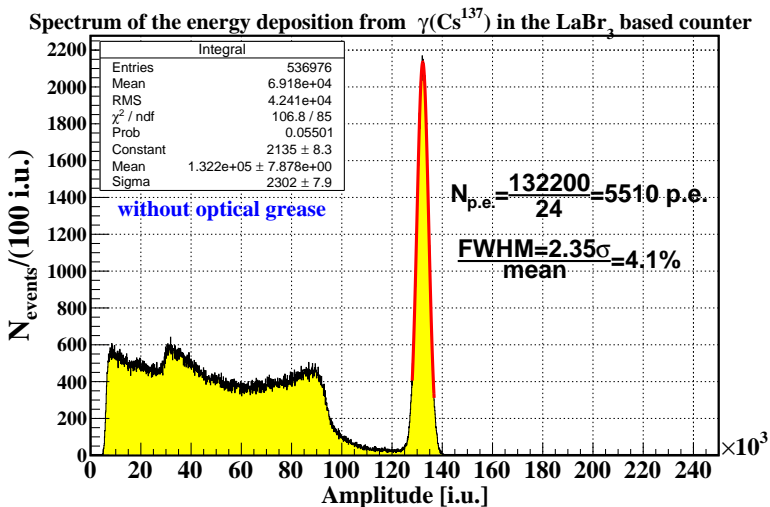
- Для калибровки спектрометрического тракта в фотоэлектронах (ф.э.) фотокаод ФЭУ освещался слабыми вспышками света (свет от светодиода заводился в короб через оптоволокно), такими, что в каждом импульсе света на фотокаод ФЭУ попадало в среднем около 1 фотона.
- События в оцифровщике записывались по триггеру от источника питания светодиода.
- Одноэлектронный пик в амплитудном распределении хорошо идентифицируется. Для напряжения на ФЭУ  $U_{\text{PMT}} = 1300$  В чувствительность спектрометрического тракта: 1 ф.э. =  $(58.7 \pm 0.3)$  i.u. Пересчёт чувствительности тракта для  $U_{\text{PMT}} = 1100$  В даёт: 1 ф.э. =  $(24.0 \pm 0.1)$  i.u.

# Спектр энерговыведения с оптической смазкой BC-630

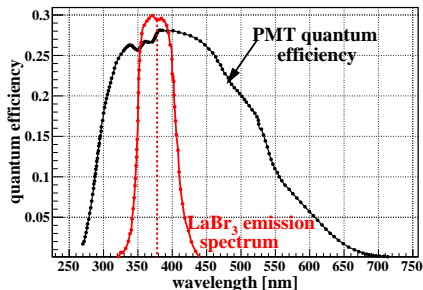
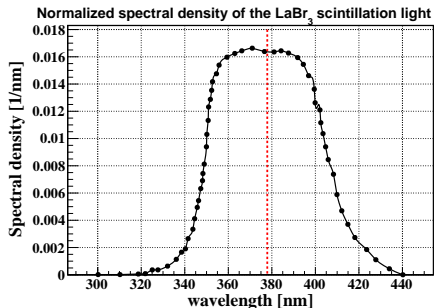
Spectrum of the energy deposition from  $\gamma(\text{Cs}^{137})$  in the  $\text{LaBr}_3$  based counter



# Спектр энерговыведения без оптической смазки



# Квантовая эфф. фотокатода ФЭУ



- Спектр сцинтилляционного света  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ ,  $S(\lambda)$ , довольно широкий, с медианой при  $\lambda = 380$  нм.
- Квантовая эффективность (кв.эфф.) ФЭУ вычислялась по формуле  $\kappa = \int K(\lambda)S(\lambda)d\lambda$ , где  $K(\lambda)$  - спектральная кв.эфф. ФЭУ, и  $\int S(\lambda)d\lambda = 1$ .
- $\kappa = 0.27 \pm 0.03$ .

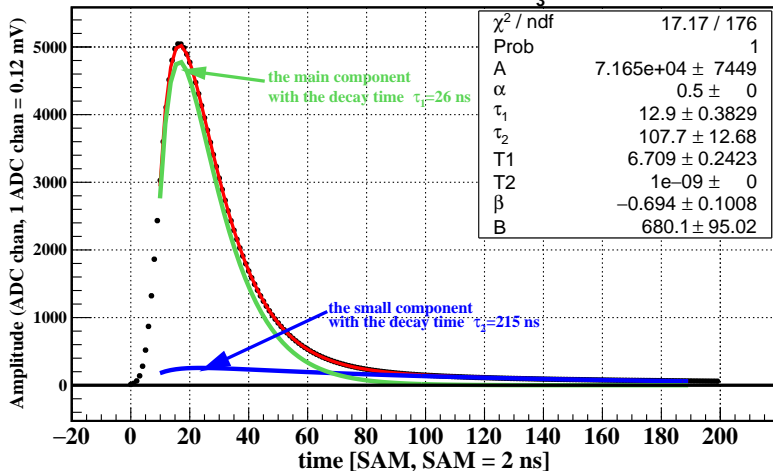


# Определение световыхода кристалла $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$

- Измеренный световыход счётчика  $S$  (в ф.э.) связан со световыходом кристалла  $LY$  (в фотонах/МэВ) следующим образом:  $S = \kappa \cdot \eta \cdot LY \cdot E_\gamma(\text{МэВ})$ , где:
  - $\kappa = 0.27 \pm 0.03$  - квантовая эффективность фотокатода ФЭУ;
  - $\eta$  - коэффициент светосбора в счётчике;
  - $E_\gamma(\text{МэВ}) = 0.662$
- Для оценки  $\eta$  и проводились два измерения - с оптической смазкой и без неё. Для небольшого кристаллика околочувствительной формы используется оценка для коэф. светосбора  $\eta = \frac{q \cdot (1 - \cos \alpha_c)}{q \cdot (1 - \cos \alpha_c) + \mu}$ , где:  $q = S_{PMT} / S_{tot} = 16 \cdot 16 / (2 \cdot 16 \cdot 16 + 4 \cdot 16 \cdot 20) = 1/7$ ,  $\mu \ll 1$  - коэффициент поглощения света в счётчике на длине  $d \sim 20$  мм,  $\alpha_c = \arcsin(n_1/n_0)$  - угол полного внутреннего отражения света в кристалле ( $n_0 = 1.9$  - показатель преломления света в кристалле,  $n_1 = 1/1.465$  для воздуха/смазки). Отношение амплитуд фотопиков со смазкой ( $A_1 = 9240$  ф.э.) и без смазки ( $A_0 = 5510$  ф.э.) равно отношению коэф. светосбора  $z = A_1/A_0 = \eta_1/\eta_0$ . Подставив выражения для  $\eta_{0,1}$ , разрешив уравнение отн.  $\mu$ , а потом подставив это выражение в формулу для  $\eta$  получим:  $\eta_1 = (1 - zx)/(1 - x)$ ,  $x = \frac{1 - \cos \alpha_{c0}}{1 - \cos \alpha_{c1}}$ ,  $\alpha_{c0} = \arcsin(\frac{1}{1.9})$ ,  $\alpha_{c1} = \arcsin(\frac{1.465}{1.9})$ ,  $\eta_0 = \eta_1/z$ .
- $\eta_1 = 0.53$  (со смазкой),  $\eta_2 = 0.31$  (без смазки),  $\mu = 0.047$ . Нужно отметить, что точность оценки коэф. светосбора невелика ( $\approx 15\%$ ). В результате получим световыход кристалла:  $LY = \frac{9240}{0.27 \cdot 0.53 \cdot 0.662} = (97000 \pm 18000)$  фотонов/МэВ.

# Анализ формы импульса (I)

The digitized pulse shape from the LaBr<sub>3</sub> based counter



## Анализ формы импульса (II)

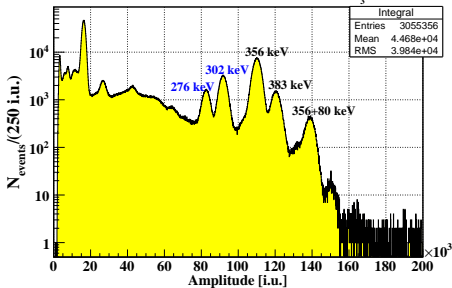
- Записанная форма импульса фитировалась свёрткой суммы двух экспоненциальных распределений (с постоянными времени  $\tau_1$  и  $\tau_2$ ), которые моделируют высвечивание в кристалле  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ , и импульсной характеристики спектрометрического тракта, которая моделировалась интегрирующей цепочкой с временем  $T1$ . Нужно отметить, что полоса частот тракта (ФЭУ + оцифровщик) велика и составляет  $\sim 250$  МГц, т.е. характерное время  $T1$  порядка нескольких наносекунд и д.б.  $T1 \ll \tau_{1,2}$ . Т.е. изучаемый спектр сигнала высвечивания лежит глубоко внутри полосы пропускания, вдали от края полосы при высоких частотах. Это позволяет извлечь  $\tau_1$  и  $\tau_2$  путём фитирования формы импульсов описанной функцией, причём  $T1$  - тоже свободный параметр фита.
- Аппроксимация формы импульса довольно хорошая. Тем не менее априорное незнание  $T1$  и извлечение его из фита вносит значительную систематическую погрешность в  $\tau_1$  и  $\tau_2$ . Оценка систематики заключалась в варьировании  $T1$  на  $\pm 20\%$  от его оптимального значения, при этом  $\tau_1/\tau_2$  изменялись на величины вплоть до  $15\%/25\%$  от их оптимальных значений. Эти отклонения и брались в качестве финальных погрешностей  $\tau_1$  и  $\tau_2$ .
- $\tau_1 = (26 \pm 4)$  нс (с долей  $\geq 95\%$ ),  $\tau_2 = (215 \pm 50)$  нс (с долей  $\leq 5\%$ ).

# Обсуждение и заключение (I)

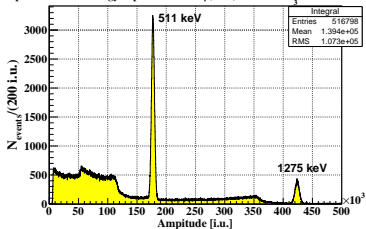
- Световойход кристалла:  $LY = (97000 \pm 18000)$  фотонов/МэВ
- Две компоненты высвечивания с временами:  
 $\tau_1 = (26 \pm 4)$  нс (с долей  $\geq 95\%$ ),  $\tau_2 = (215 \pm 50)$  нс (с долей  $\leq 5\%$ ).
- Измеренное энергетическое разрешение счётчика на основе кристалла  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ :  $2.9\% @ 662$  кэВ ( $\sigma_E/E = 1.2\% @ 662$  кэВ).
- Следует отметить, что измеренное энергетическое разрешение счётчика на основе кристалла  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ ,  $2.9\% @ 662$  кэВ ( $\sigma_E/E = 1.2\% @ 662$  кэВ), хуже, чем паспортное разрешение от производителя:  $2.6\% @ 662$  кэВ ( $\sigma_E/E = 1.1\% @ 662$  кэВ). Ухудшение разрешения в нашем измерении связано с особенностями интегрирования сигнала с ФЭУ. Дело в том, что сигнал интегрировался внутри временных ворот конечной длины 200 нс, и сам сигнал "плавал" внутри этих ворот в зависимости от амплитуды сигнала. Т.к. не весь сигнал интегрируется (есть большая по времени длинная компонента), то из-за флуктуации временного положения сигнала внутри ворот, дополнительно флуктуировал и интеграл. Этот эффект доп. разрешения в нашем случае составлял  $\sim 1\%$ . Этого эффекта можно избежать при оффлайн-обработке сигнала, когда интегрирование каждого сигнала можно проводить строго от его начала, в результате даже для конечной длины ворот интегрирования для каждого сигнала мы будем брать строго одну и ту же долю полного интеграла сигнального тока.
- При высоком энергетическом разрешении счётчика на основе  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$  будет возможно разделить  $\gamma$ -кванты с энергиями 478 кэВ и 511 кэВ. В качестве примера см. линии 276 кэВ и 302 кэВ (разница 26 кэВ и при более низкой энергии  $\gamma$ -квантов) источника Ва-133.

# Обсуждение и заключение (II)

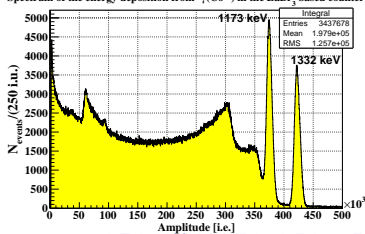
Spectrum of the energy deposition from  $\gamma$ (Ba-133) in the LaBr<sub>3</sub> based counter



Spectrum of the energy deposition from  $\gamma$ (Na<sup>22</sup>) in the LaBr<sub>3</sub> based counter



Spectrum of the energy deposition from  $\gamma$ (Co<sup>60</sup>) in the LaBr<sub>3</sub> based counter



# Обсуждение и заключение (III)

- Компания Saint-Gobain разработала кристалл  $\text{LaBr}_3(\text{Ce} + \text{Sr})$  (т.н. Enhanced Lanthanum Bromide) с улучшенным энергетическим разрешением  $2.2\% @ 662 \text{ кэВ}$  ( $\sigma_E/E = 0.94\% @ 662 \text{ кэВ}$ ). Это достигнуто специальной компенсацией в результате которой уменьшилось остаточное собственное разрешение.

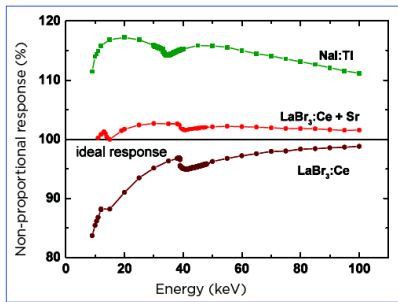


Figure 1. Non-proportionality of Lanthanum Bromide & Enhanced Lanthanum Bromide compared to NaI(Tl)

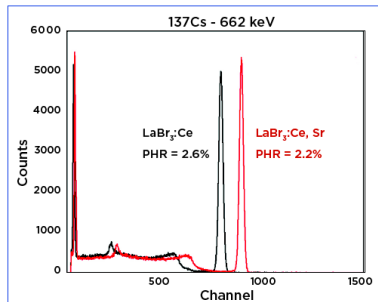
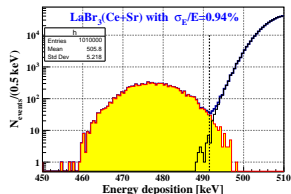
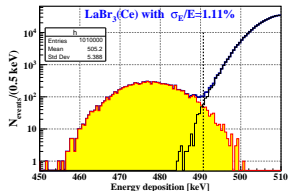
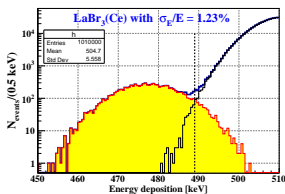


Figure 3. Pulse height spectrum compared between Lanthanum Bromide & Enhanced Lanthanum Bromide

# Обсуждение и заключение (IV)

- Было проведено моделирование отклика счётчика на фоновые  $\gamma$ -кванты с энергиями  $E_{\gamma bkg} = 511$  кэВ и сигнальные  $\gamma$ -кванты, равномерно распределённые в диапазоне [470, 485.2] кэВ: слева - счётчик на основе  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$  с измеренным в этой работе разрешением  $\sigma_E/E = 1.23\% @ 662$  кэВ; посередине - счётчик на основе  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$  с номинальным разрешением  $\sigma_E/E = 1.11\% @ 662$  кэВ; справа - счётчик на основе  $\text{LaBr}_3(\text{Ce}+\text{Sr})$  с улучшенным разрешением  $\sigma_E/E = 0.94\% @ 662$  кэВ.



- Видно, что во всех случаях в счётчике на основе  $\text{LaBr}_3$  можно хорошо отделить сигнальные БНЗТ  $\gamma$ -кванты от фоновых (даже несмотря на  $\times 100$  большее число последних).
- Благодарим за содействие в исследовании В. В. ПОРОСЕВА (лаб. 3-13) и Д. А. КАСАТОВА (лаб. 9-21).