



Universidad Complutense de Madrid
Facultad de Ciencias Físicas
Dpto. de Física Atómica, Molecular y Nuclear
Programa de Doctorado de Física Nuclear



Defensa de Tesis Doctoral

Mejoras en la Detección de Rayos Gamma con Cristales Centelladores de Última Generación y Aplicaciones

Esteban Picado Sandí

Directores:
Dr. Luis Mario Fraile Prieto
Dr. José Manuel Udías Moinelo

Viernes 5 de Julio de 2013

1. Introducción y Contexto
2. Caracterización de HPGe
3. Estudio del LuAG:Pr
4. Estudio del CeBr₃
5. Nueva idea de Phoswich
6. Conclusiones

1.1. Contexto General

La espectroscopía gamma es una herramienta para caracterizar la interacción de la radiación gamma con la materia. Actualmente el número de aplicaciones está en crecimiento. Entre los escenarios destacados encontramos:



Seguridad Fronteriza



Patrimonio Cultural



Manejo de Desechos



Diagnóstico y Terapia

Existen varios tipos de materiales que pueden ser utilizados para detectar la radiación gamma, cada uno con propiedades dosimétricas y espectroscópicas particulares. El escenario de aplicación condiciona el tipo de detector que se puede utilizar.

Los dos tipos de detectores más utilizados son los semiconductores (*HPGe*, *Si*, *CZT*, etc.) o cristales centelladores (*NaI*, *MLS*, *LaBr₃:Ce*, etc.).

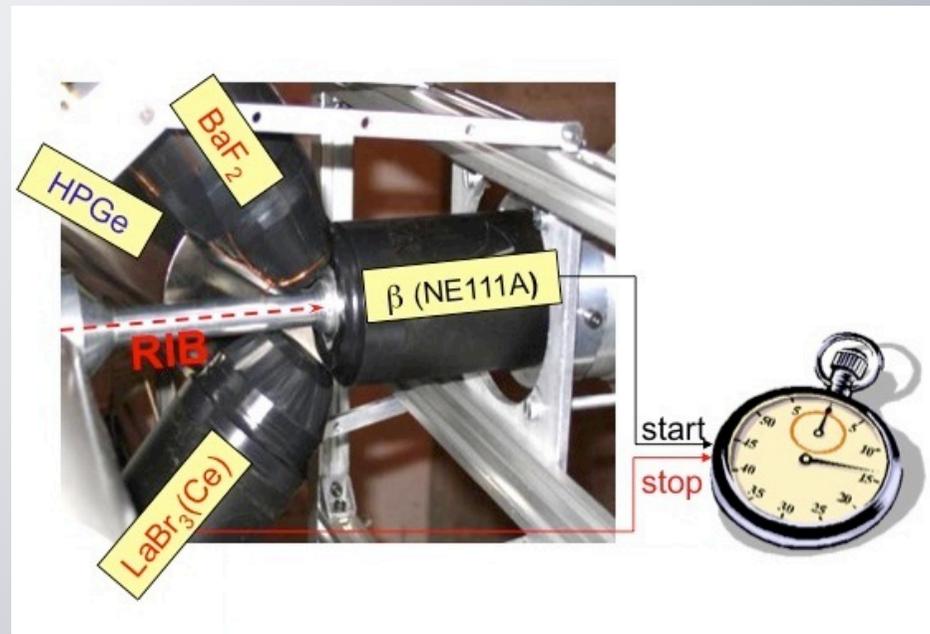


Algunos de estos materiales detectores han sido introducidos recientemente en el mercado, y en esta tesis presentamos una caracterización completa de sus propiedades fundamentales.

1.2. Contexto en el GFN

Los resultados presentados en esta Tesis se enmarcan dentro de las actividades que se realizan en el *Grupo de Física Nuclear* de la UCM, en particular en proyectos que requieren desarrollo de Detectores de Radiación Nuclear, por ejemplo:

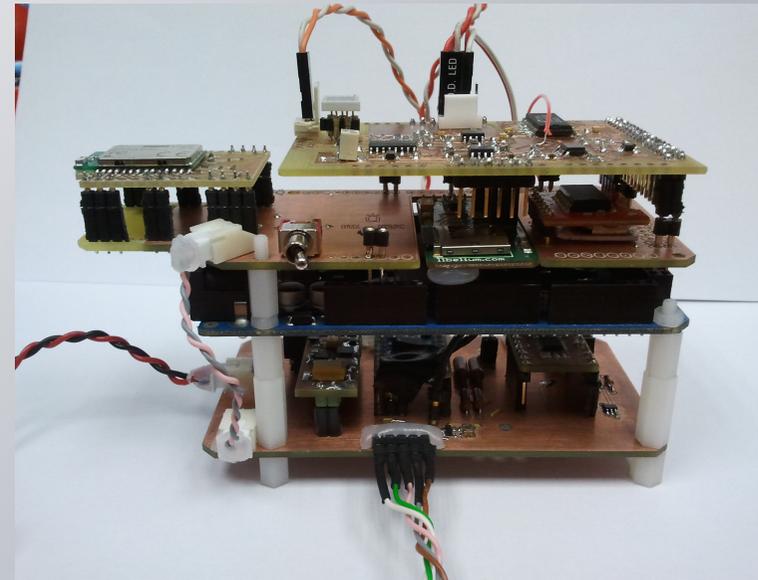
1. Por su actividad en experimentos de Investigación Básica con Haces Radiactivos: ISOLDE, ILL y FAIR-GSI. En especial el trabajo FATIMA (*FAst TIMing Array*), el cual es coordinado por *Luis Mario Fraile*.



2. Por su actividad en Física Nuclear Aplicada, tales como desarrollo de detectores para PET (*Positron Emission Tomography*) e Instrumentación para Dosimetría Personal (CSN).



Mejoras en Escáneres PET
clínicos y pre-clínicos.

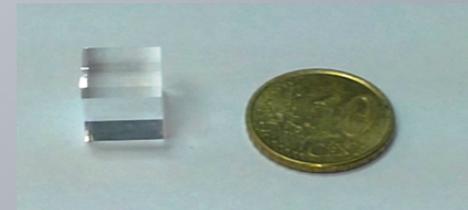


Dosímetros Portátiles,
Inteligentes y con autonomía.

1.3. Alcance de la Tesis

En esta tesis caracterizamos cuatro detectores usados en espectrometría gamma, tres de ellos de última generación:

- Un detector semiconductor: HPGe (modelo LOAX)
- Dos centelladores inorgánicos: LuAG:Pr y CeBr₃
- Una configuración Phoswich: LuAG:Pr y LYSO



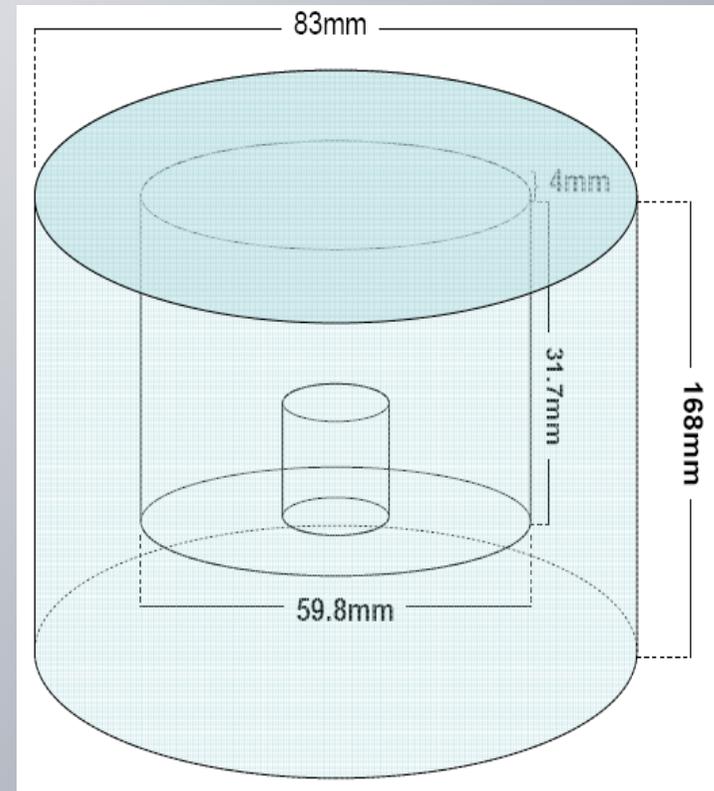
El objetivo principal es explorar las propiedades de estos detectores para definir su viabilidad como candidatos para diferentes escenarios de medición o aplicación.

1.4. Comparación de los Detectores Caracterizados

Propiedad	Detector				
	HPGe	LYSO:Ce	LuAG:Pr	CeBr ₃	BaF ₂
Tipo de Detector	Semiconductor	Centellador			
Densidad (g/cm ³)	5.32	7.2	6.7	5.1	4.9
Resolución en 662 keV	< 0.5%	~9%	~6%	~5%	~9%
Temperatura de Operación (°C)	-178	Ambiental (no requiere refrigeración)			
Pico de Emisión (nm)	N-A	420	310	370	210-310
Actividad Interna	Despreciable para nuestros fines.	Sí, principalmente de ¹⁷⁶ Lu.		Despreciable	Ligeramente
Higroscopicidad	Sí	No		Sí	Ligeramente

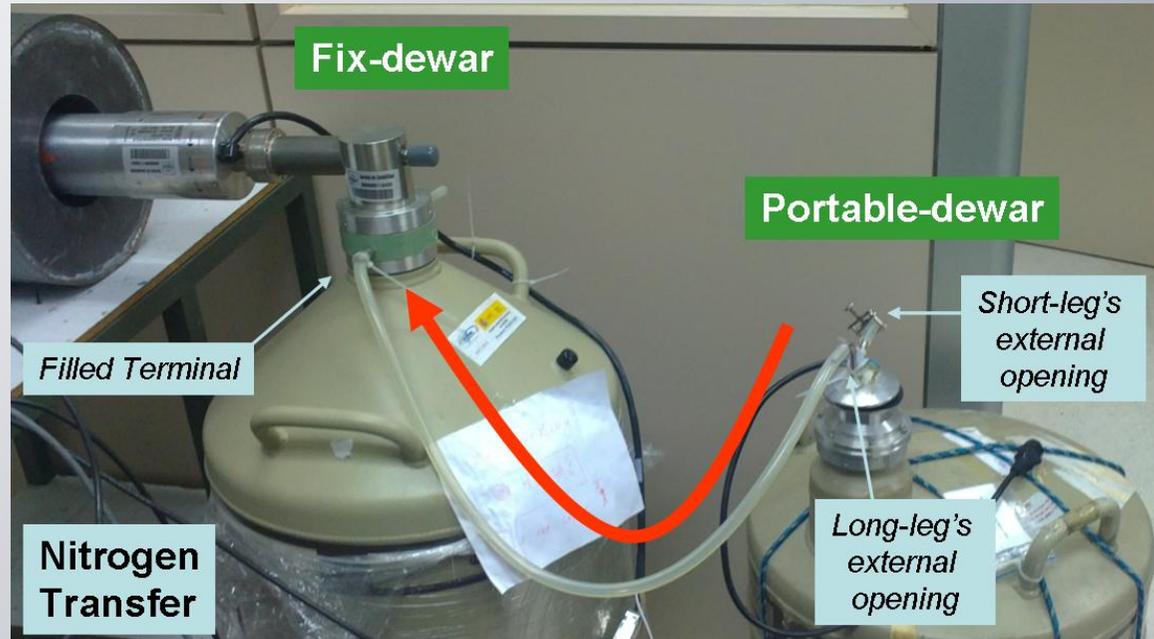
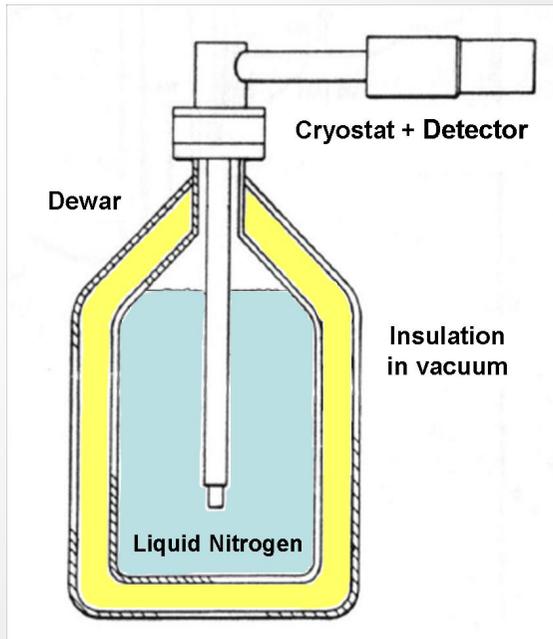
2. Caracterización del HPGe

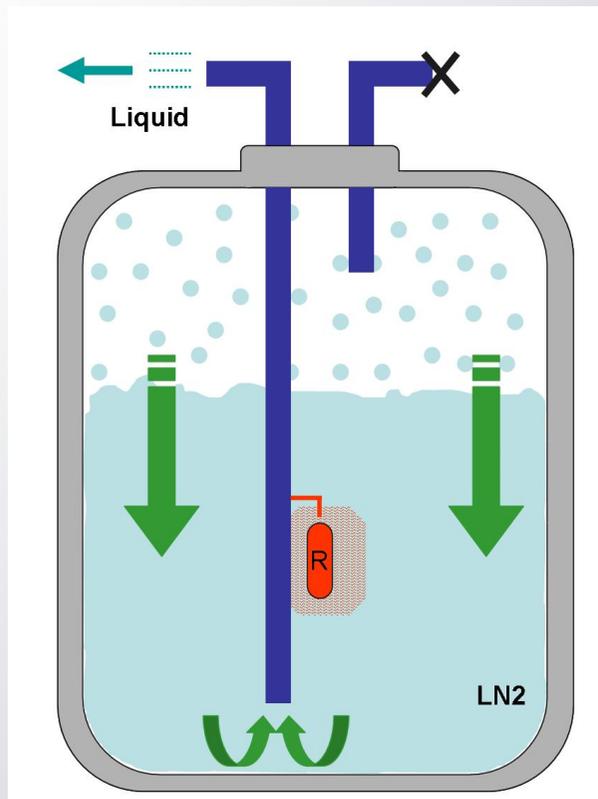
Se caracterizó un detector semiconductor de Germanio Hiperpuro (HPGe) tipo-N modelo **LOAX 60450-30P-CW** comercializado por ORTEC.



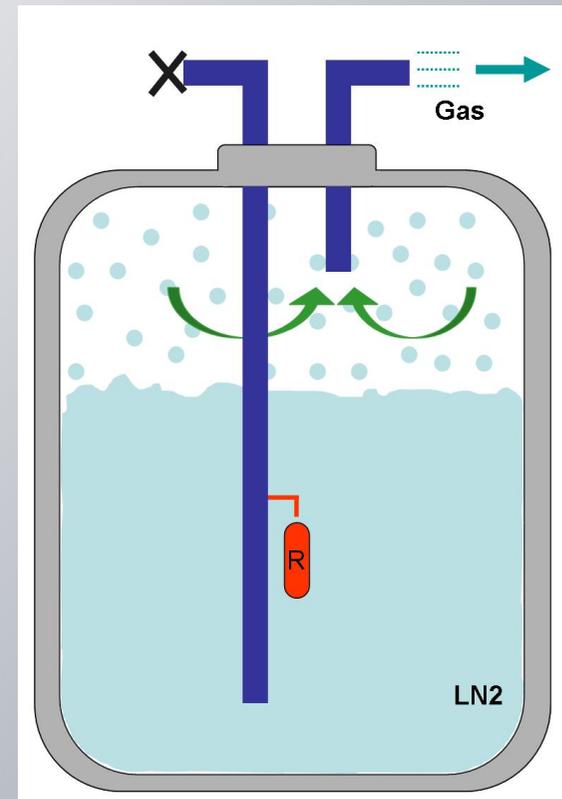
2.1. Criogenización del Detector

Se ha implementado un sistema de rellenado de LN2 basado en el que existe en Laboratorio de Análisis de Materiales por Aniquilación de Positrones del profesor Javier del Río (2010, *comunicación interna*).





Conexión y Recarga

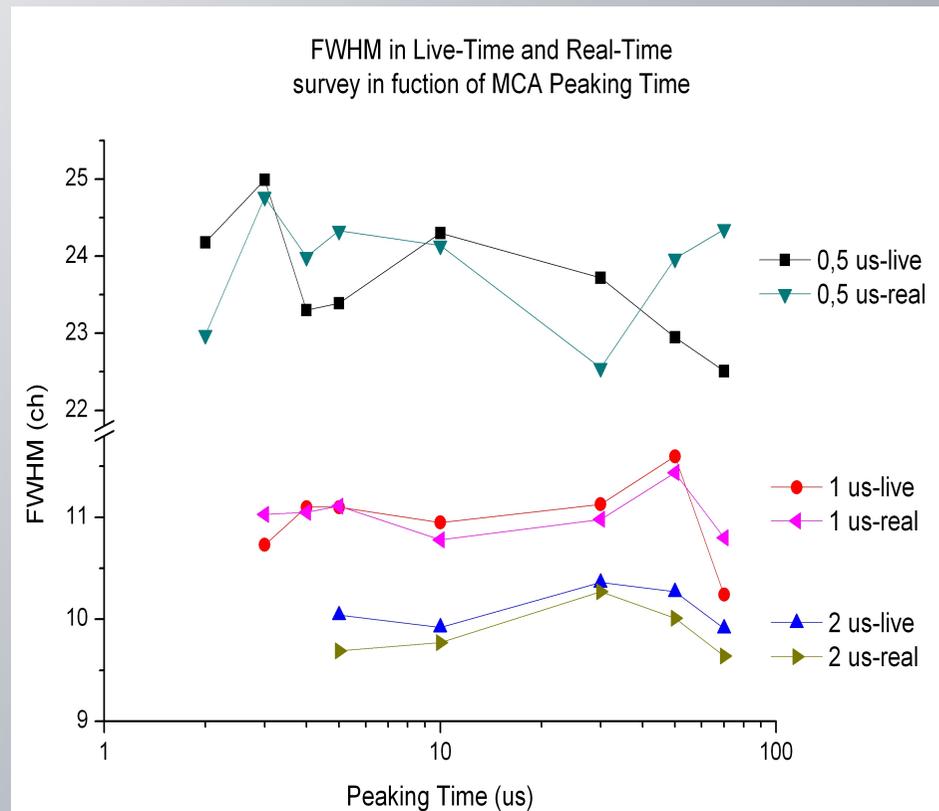
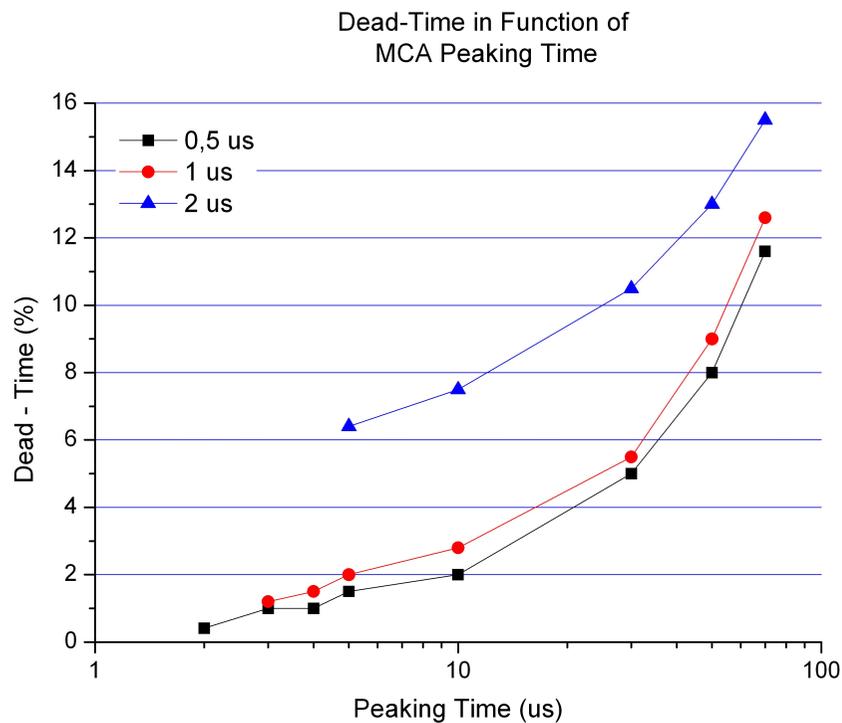


Desconexión

2.2. Optimización de Parámetros Electrónicos

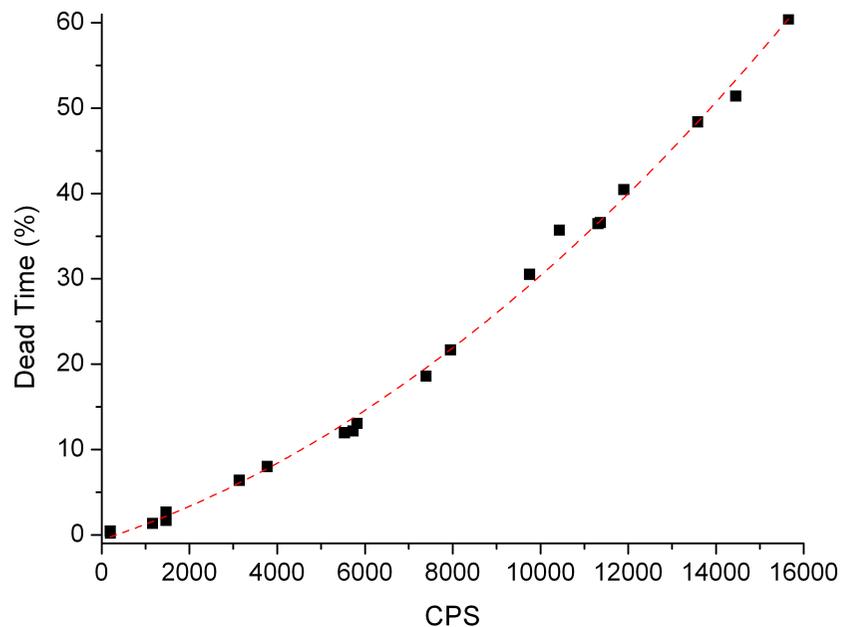
2.1.1. Shaping Time y Peaking Time

Se usó una fuente gamma puntual para exponer al detector a una fluencia constante para así poder optimizar el tiempo muerto y la resolución en función del *shaping time* y *peaking time*.

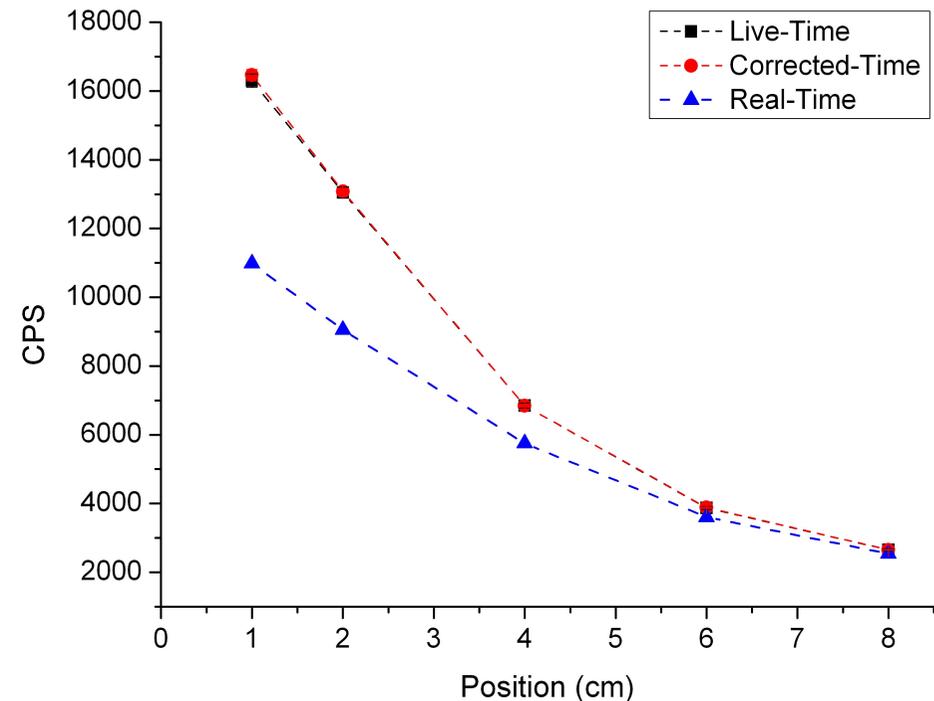


2.1.2. Caracterización del Tiempo Muerto

Se utilizó una fuente de ^{137}Cs de $5 \mu\text{Ci}$ (*Ene-2000*) para exponer el detector a distintas fluencias. De este modo se pudo explorar tanto el tiempo muerto como la corrección para Tiempo Vivo que hace el Multicanal (MCA). Se fijaron los parámetros de *shaping* y *peaking time*.



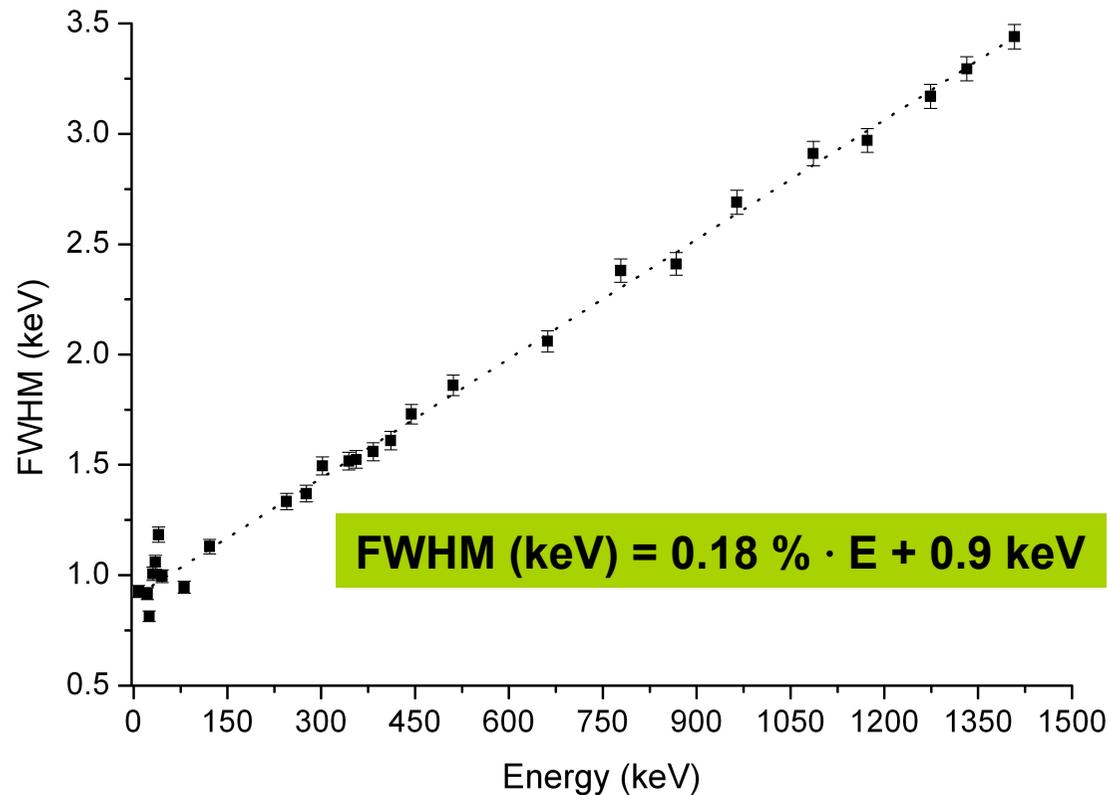
Ajuste cuadrático del Tiempo Muerto (%) en función de número de CPS.



Relación del número de CPS en función de la distancia de la fuente.

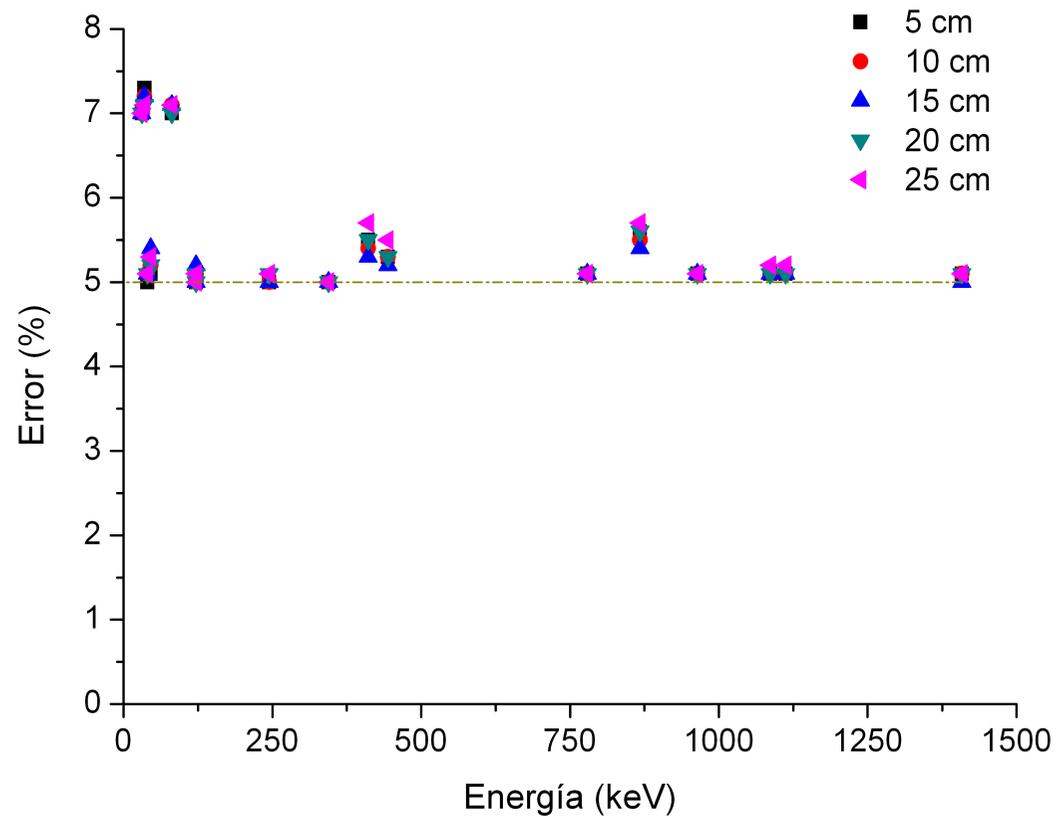
2.3. Resolución en Función de la Energía

El HPGe tiene una respuesta bastante lineal, para graficar todo el rango de energía (20 a 1500 keV). Sin embargo, las mediciones se realizaron con distintas fuentes gamma y en dos rangos de energía distintos.



2.4. Eficiencia Absoluta del HPGe

Para determinar la Eficiencia Absoluta de Fotopico (FEP) del detector, utilizamos una fuente de ^{152}Eu con actividad calibrada al 5%.



2.5. Conclusiones

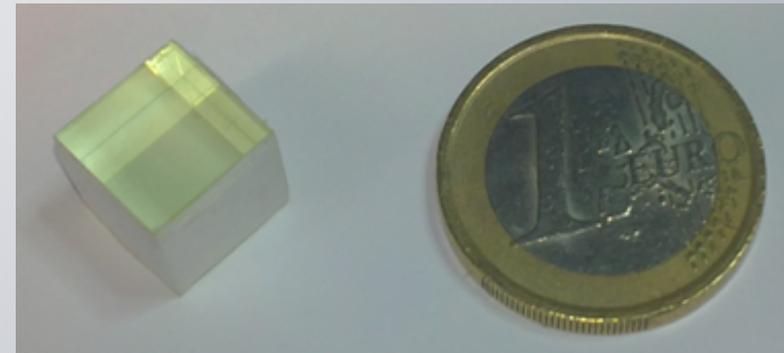
Las conclusiones de esta sección del trabajo:

- a) Se caracterizó un detector semiconductor de HPGe tipo-N modelo LOAX 60450-30P-CW de ORTEC.
- b) Se reprodujo exitosamente un sistema de rellenado de LN₂.
- c) Se optimizaron parámetros temporales de medición.
- d) Se calibró la Eficiencia Absolutamente del HPGe mediante una fuente calibrada.
- e) Se determinaron las actividades de fuentes gamma puntuales y la actividad interna de cristal centellador (*siguiente sección*).

3. Caracterización del cristal LuAG:Pr

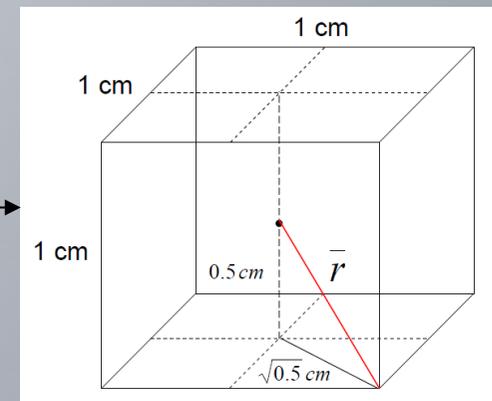
El *LuAG:Pr* es un cristal centellador con propiedades atractivas para mediciones de rayos X y gamma:

- Alta Z y densidad,
 - Alto rendimiento de conversión a luz,
 - Rápido tiempo de subida,
 - Débilmente higroscópico.
- *Desventaja:* tiene Actividad Interna.



Lo acoplamos al PMT de Hamamatsu R5320.

Es un cristal cúbico de 1 cm^3 proporcionado por Furukawa.

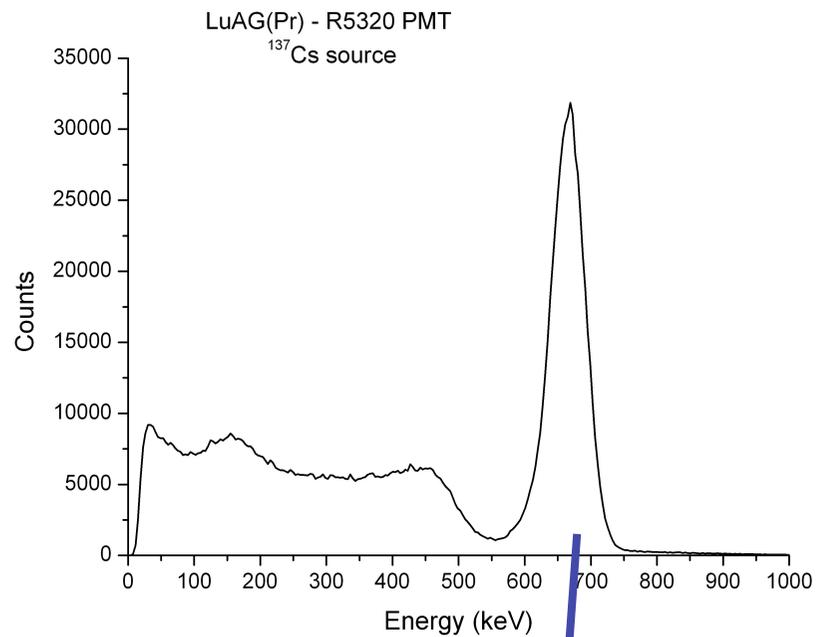


1.4. Comparación de los Detectores Caracterizados

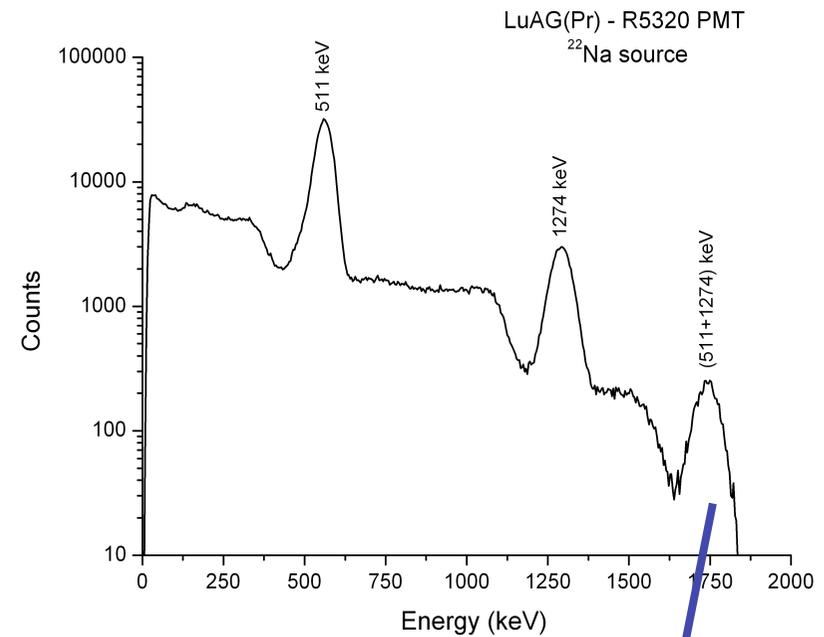
Propiedad	Detector				
	HPGe	LYSO:Ce	LuAG:Pr	CeBr ₃	BaF ₂
Tipo de Detector	Semiconductor	Centellador			
Densidad (g/cm ³)	5.32	7.2	6.7	5.1	4.9
Resolución en 662 keV	< 0.5%	~9%	~6%	~5%	~9%
Temperatura de Operación (°C)	-178	Ambiental (no requiere refrigeración)			
Pico de Emisión (nm)	N-A	420	310	370	210-310
Actividad Interna	Despreciable para nuestros fines.	Sí, principalmente de ¹⁷⁶ Lu.		Despreciable	Ligeramente
Higroscopicidad	Sí	No		Sí	Ligeramente

3.1. Resolución en Energía y Linealidad

Se obtuvieron espectros de energía de fuentes gamma tales como ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{60}Co y ^{152}Eu .

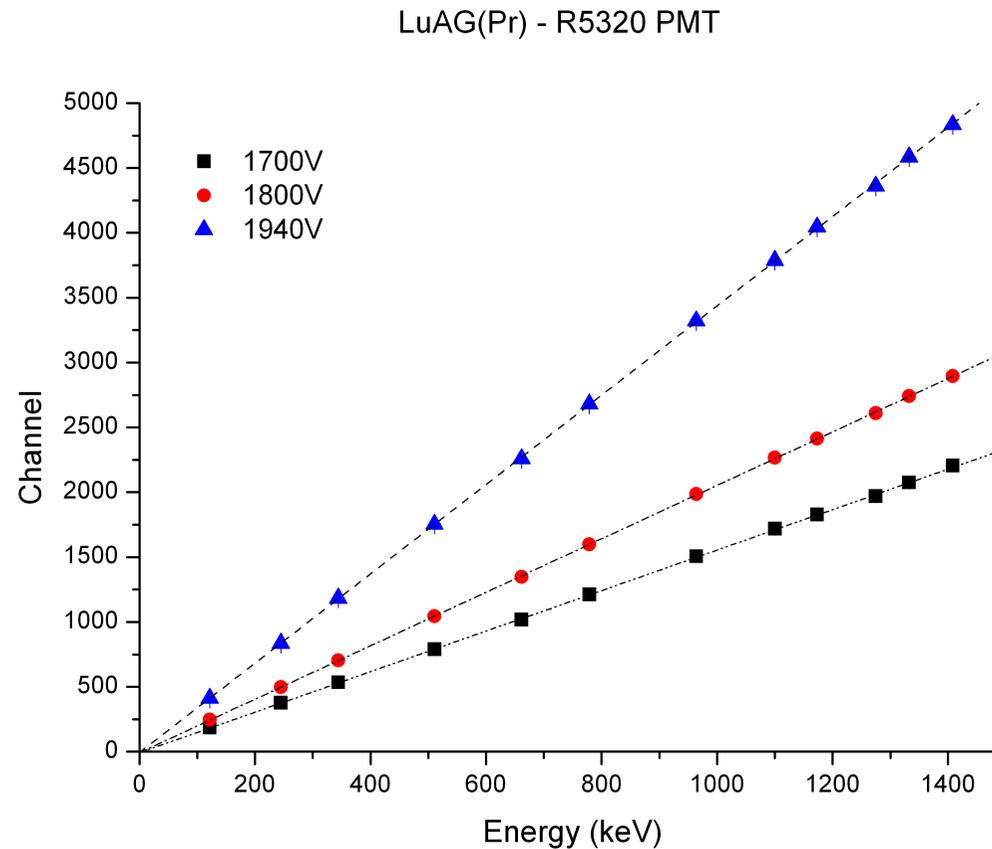


Tiene un Resolución de 6.0%



Se ve el pico suma

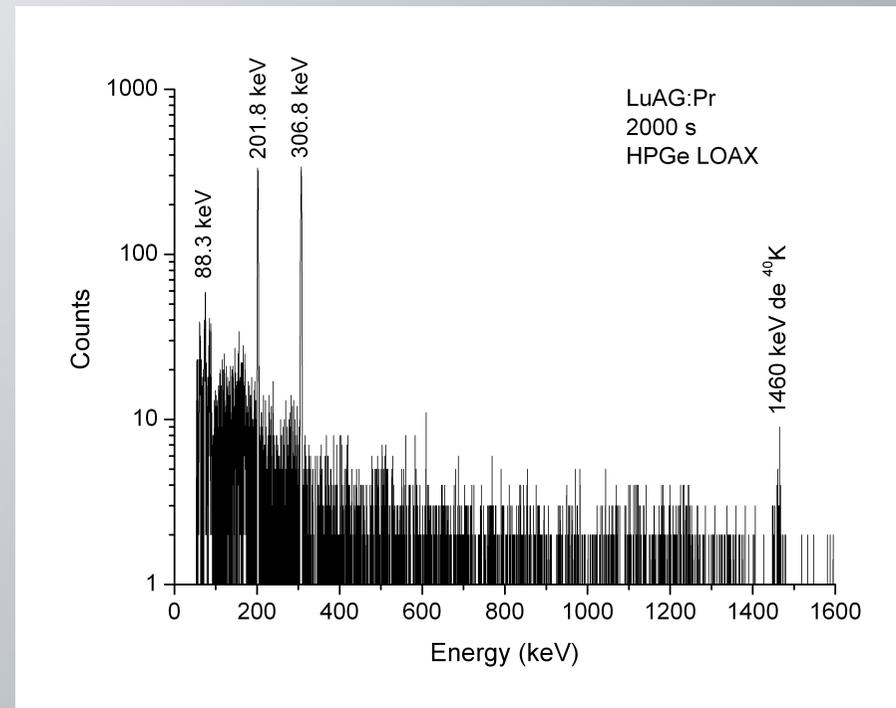
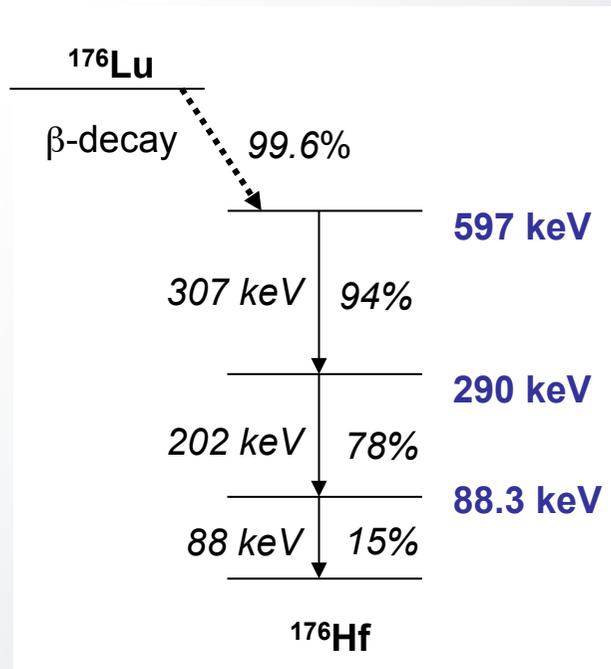
Se ha explorado la linealidad energética en función del voltaje aplicado.



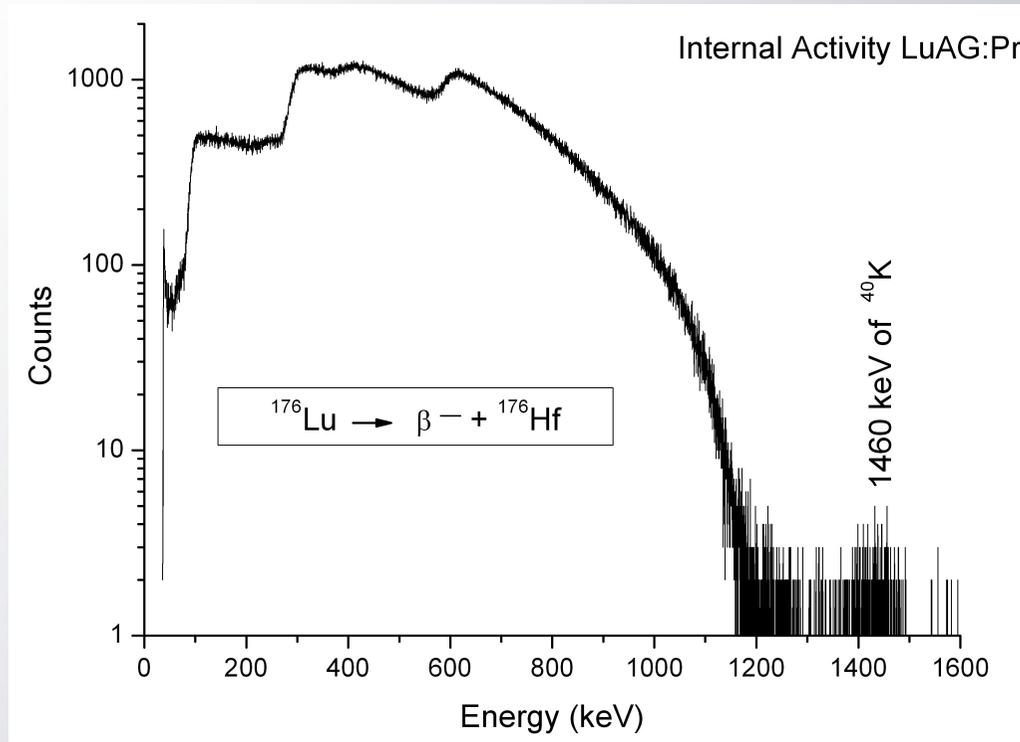
Los resultados muestran que tanto el cristal como el PMT tienen un comportamiento bastante lineal para el rango de energía estudiado: 122 a 1408 keV.

3.2. Actividad Intrínseca

El LuAG:Pr es un cristal que en su constitución $(\text{Pr}_{0.025}\text{Lu}_{0.975})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ posee Lutecio. El 2.6% del Lutecio natural corresponde al isótopo inestable de ^{176}Lu .



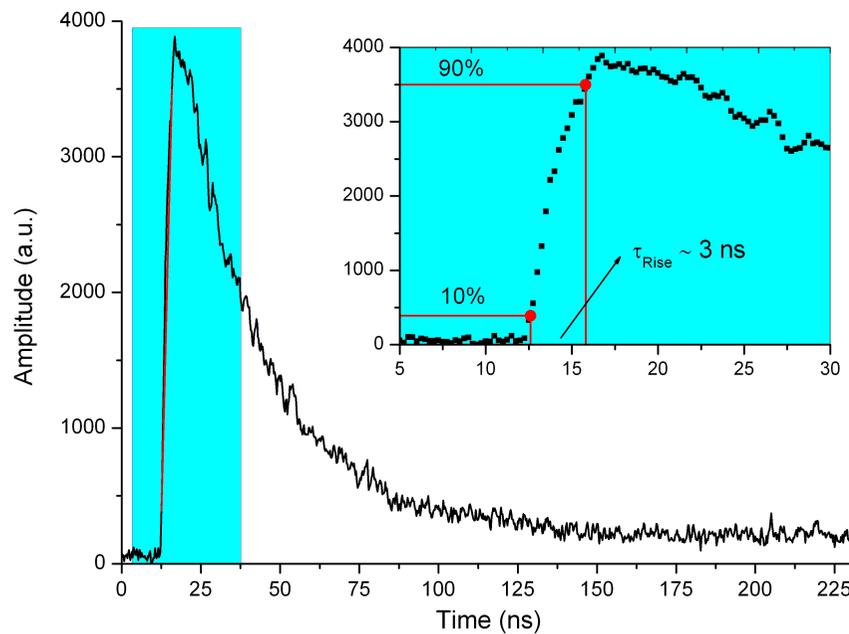
También realizamos mediciones con el cristal acoplado al PMT. En la gráfica se aprecia la contribución del cristal (autocuentas) y la presencia del fondo.



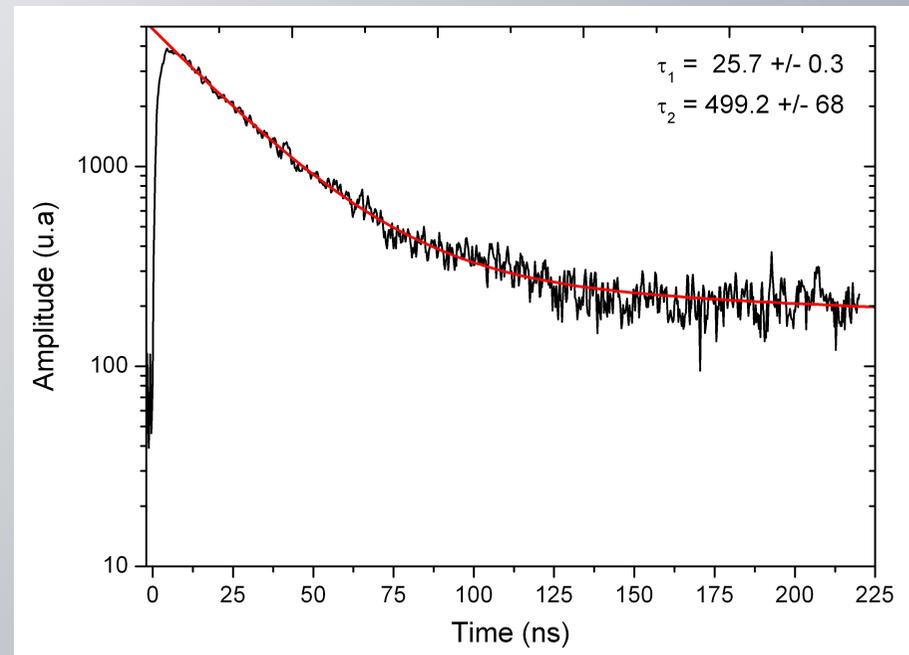
Estrategia	Actividad (Bq/cm ³)	Anteriormente
Teórica	215±20	210 Bq/cm ³ (Drozdowski et al. 2008)
Experimental	171±30	

3.3. Forma del Pulso

Se han digitalizado 2000 formas de pulso para estudiar su tiempo de subida y de bajada.



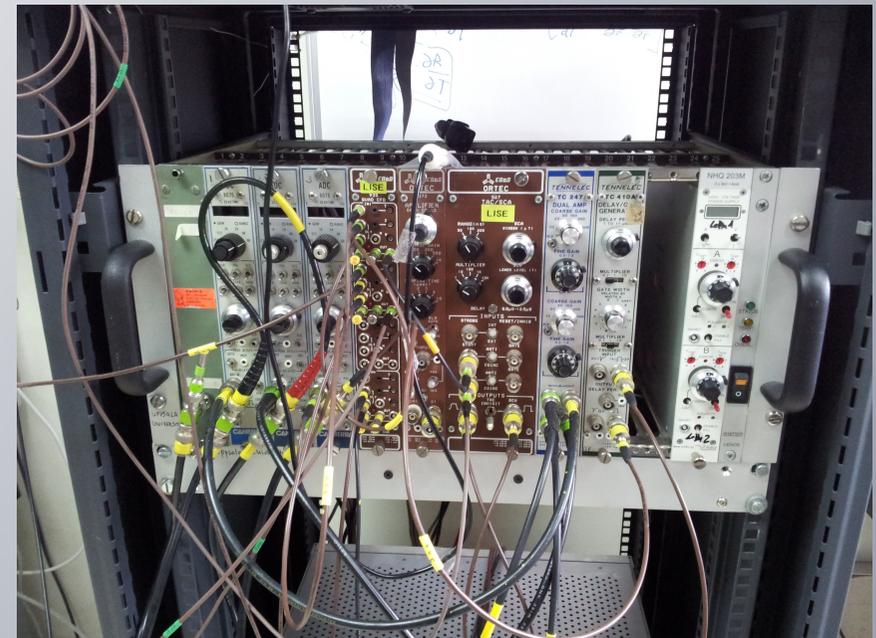
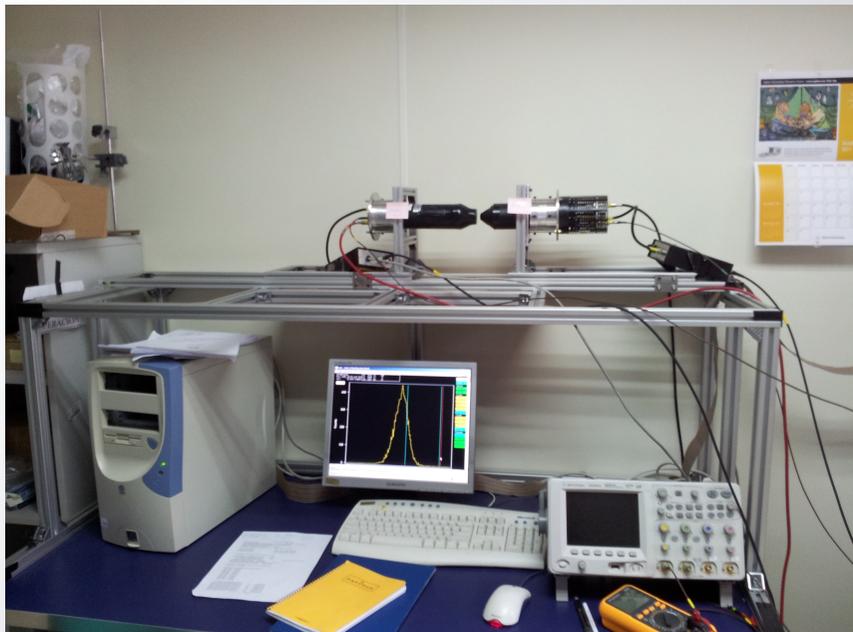
Es un pulso del Ánodo invertido con tiempo de subida de 3 ns.



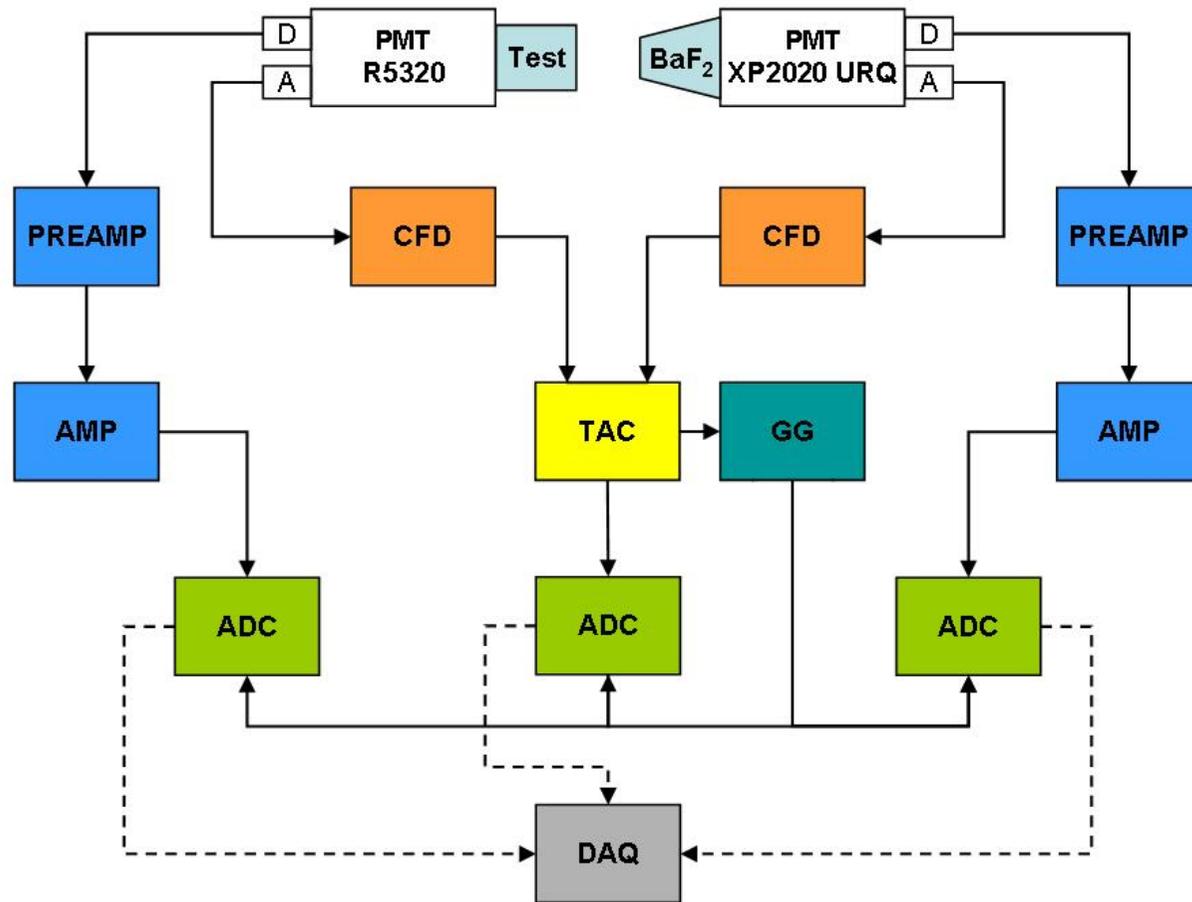
El tiempo de bajada se puede estimar con dos componentes: lenta y rápida.

3.4. Respuesta temporal (Timing)

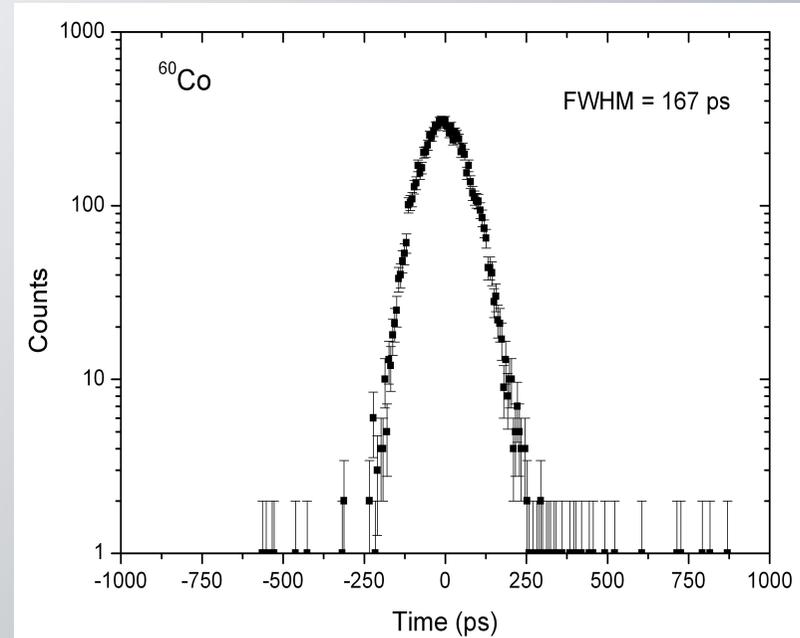
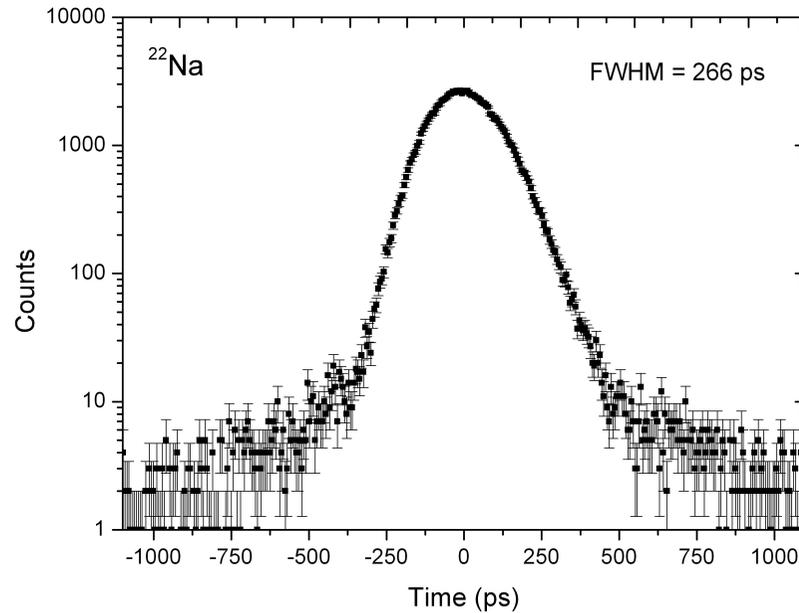
Se ha utilizado el **Método de Coincidencias Ultrarrápidas** para medir el intervalo temporal entre eventos correlacionados, en este caso utilizamos los fotones de 511 keV de la aniquilación del positrón del ^{22}Na y la cascada de gammas del ^{60}Co .



Esquema de la electrónica utilizada para las medidas de Resolución Temporal:



El espectro de tiempo obtenido debe convolucionarse para obtener la resolución temporal del cristal:



Energía (keV)	Fuente	BaF ₂ (referencia)	Resolución Temporal
511	²² Na	119±2 ps	238±2 ps
1173 - 1333	⁶⁰ Co	80±2 ps	147±2 ps

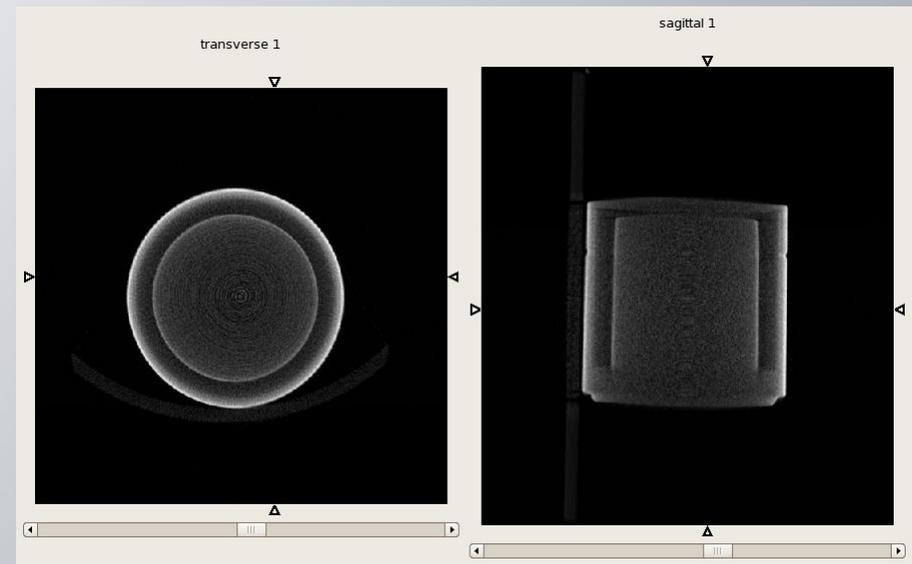
3.5. Conclusiones

En comparación con otros cristales utilizados en PET como LSO, MLS, LFS o LYSO; la nueva fórmula del LuAG:Pr presenta propiedades muy interesantes y que fueron caracterizadas durante ésta tesis:

- a) Mayor poder de frenado.
- b) Mejor resolución Temporal.
- c) Mejor Resolución en Energía.
- d) Tiene buena linealidad.
- e) La concentración de ^{176}Lu es menor que otros cristales basados en Lu.
- f) Menor conversión de luz.

4. Caracterización CeBr_3

Es un cristal centellador con excelentes propiedades centelladoras como rápido tiempo de subida, constante de decaimiento de 17 ns, y una excelente producción de luz. En general, es similar al $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ pero más barato y sin actividad interna.



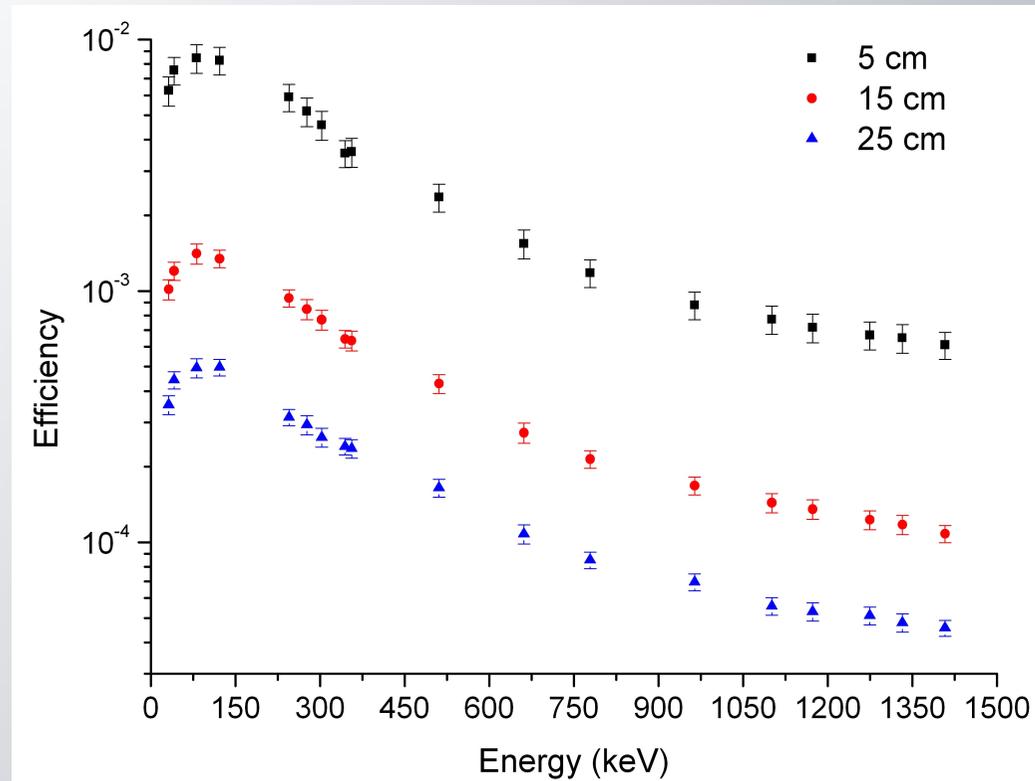
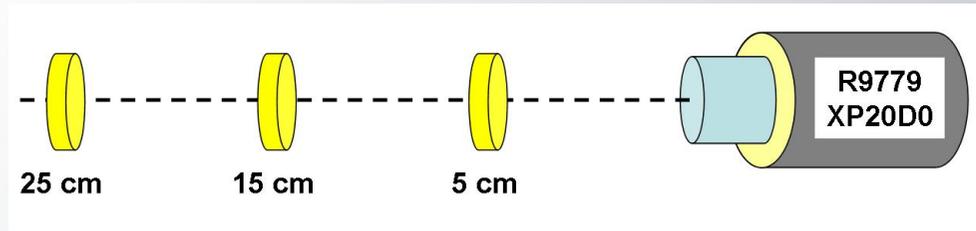
En nuestro caso tenemos 2 cristales, uno de 1"x1" y de 30x30 mm. El primero lo utilizamos para la mayoría de las medidas y el segundo únicamente para determinar su radiopureza.

1.4. Comparación de los Detectores Caracterizados

Propiedad	Detector				
	HPGe	LYSO:Ce	LuAG:Pr	CeBr ₃	BaF ₂
Tipo de Detector	Semiconductor	Centelador			
Densidad (g/cm ³)	5.32	7.2	6.7	5.1	4.9
Resolución en 662 keV	< 0.5%	~9%	~6%	~5%	~9%
Temperatura de Operación (°C)	-178	Ambiental (no requiere refrigeración)			
Pico de Emisión (nm)	N-A	420	310	370	210-310
Actividad Interna	Despreciable para nuestros fines.	Sí, principalmente de ¹⁷⁶ Lu.		Despreciable	Ligeramente
Higroscopicidad	Sí	No		Sí	Ligeramente

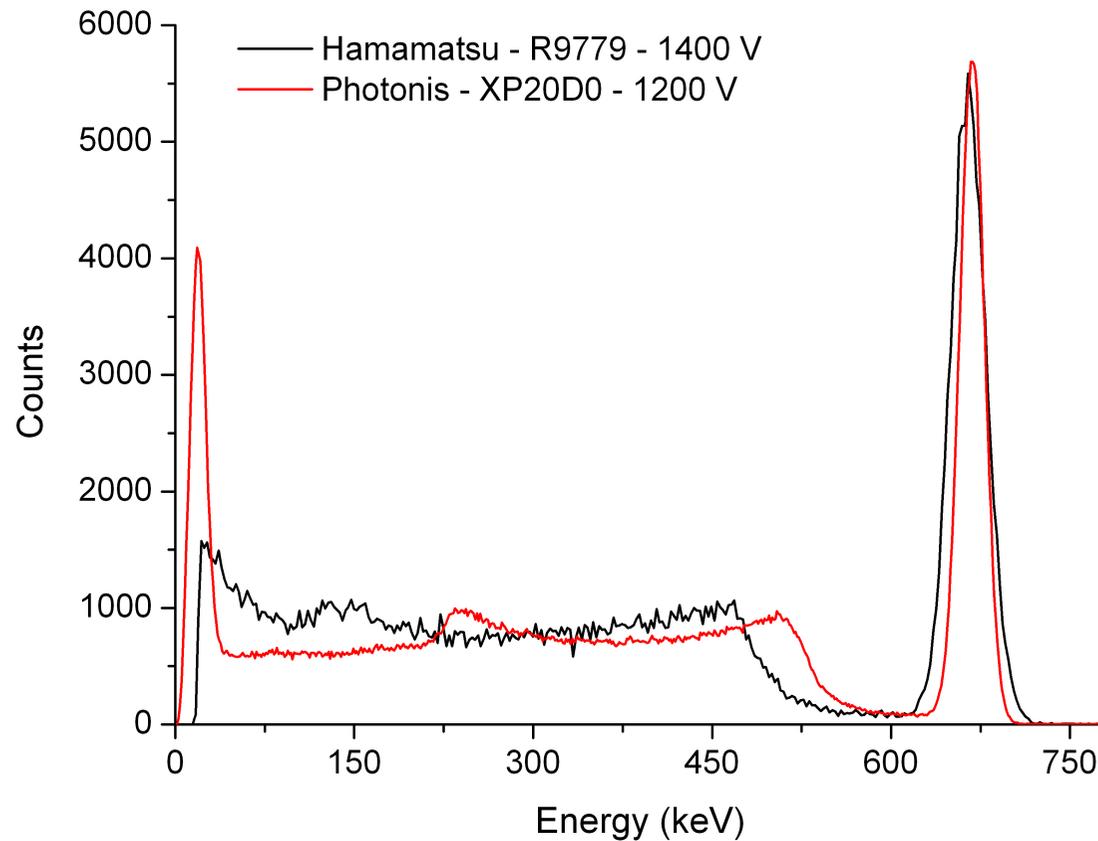
4.1. Eficiencias

Por primera vez se ha determinado la Eficiencia Absoluta de un cristal de CeBr_3 .



4.2. Resolución en Energía y Linealidad

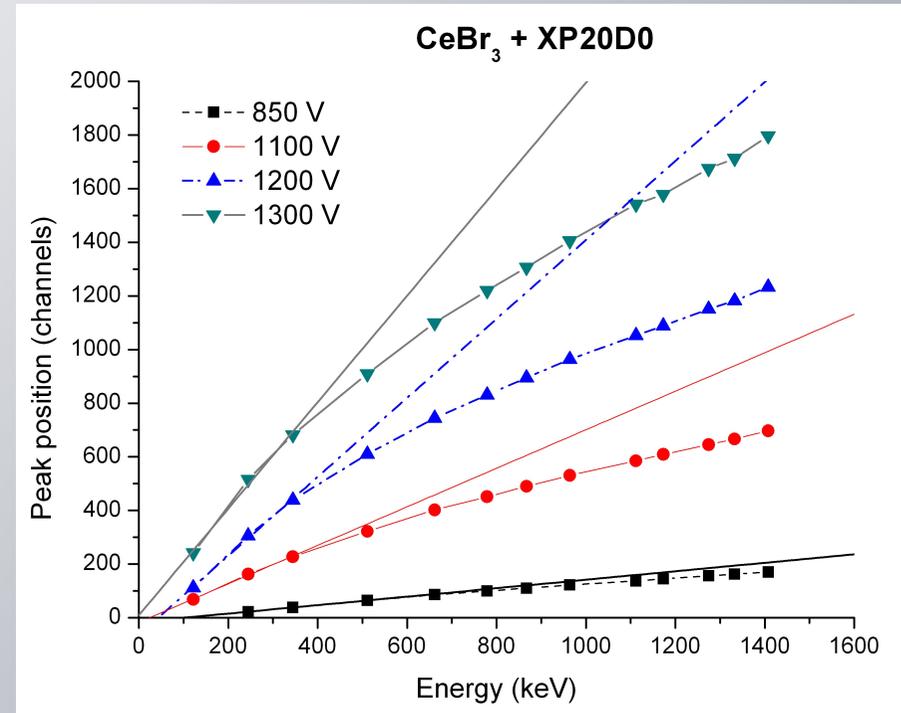
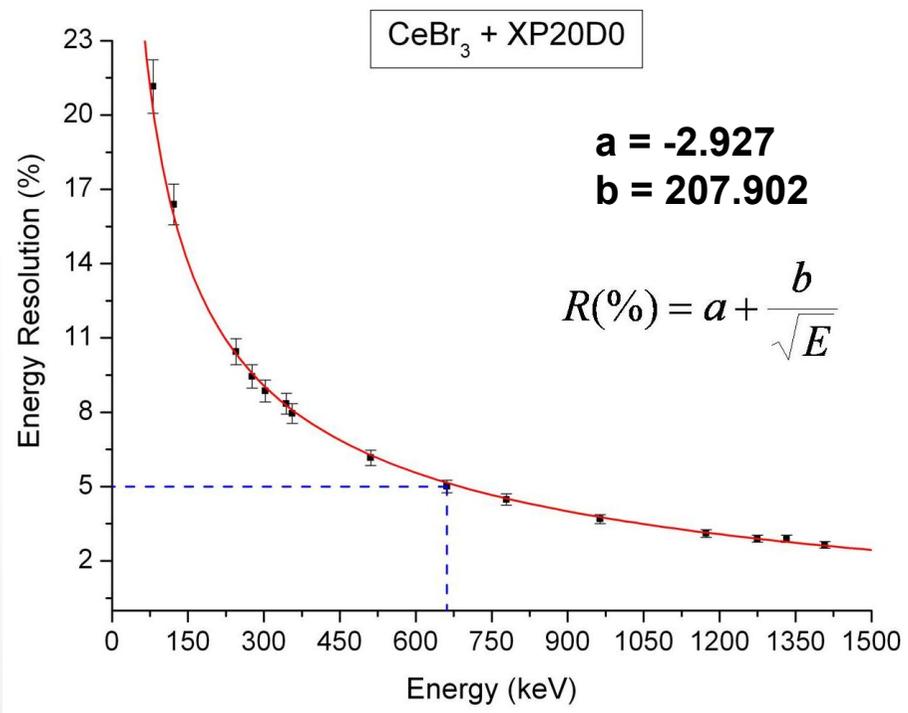
Se han usado varias fuentes puntuales gamma para explorar la linealidad del sistema y determinar su resolución en energía.



Resolución en Energía
a 662 keV - ^{137}Cs

XP20D0	5.0%
R9779	5.2%

El sistema presenta distinta linealidad según el PMT que se utilice para las mediciones.



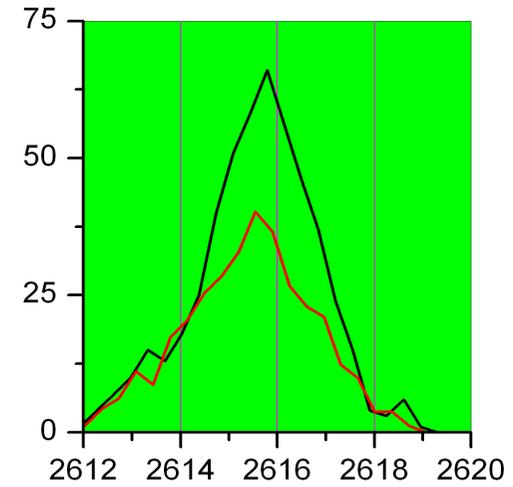
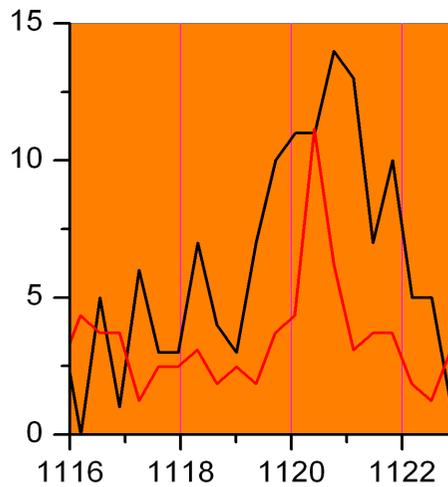
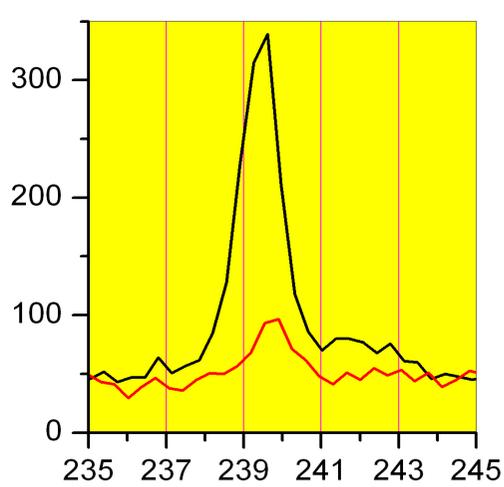
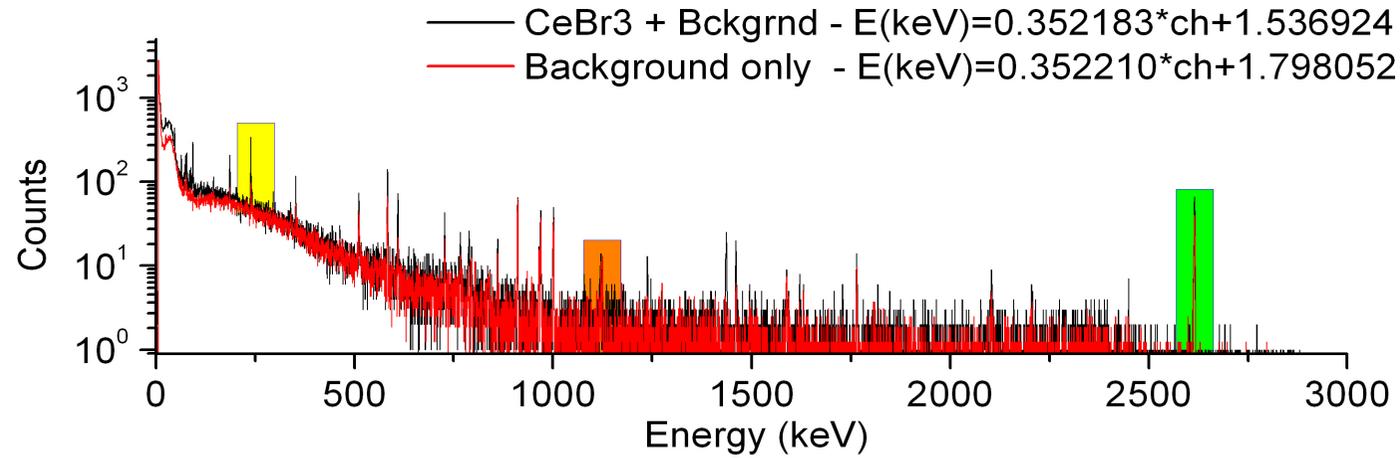
4.3. Radiopureza del CeBr_3

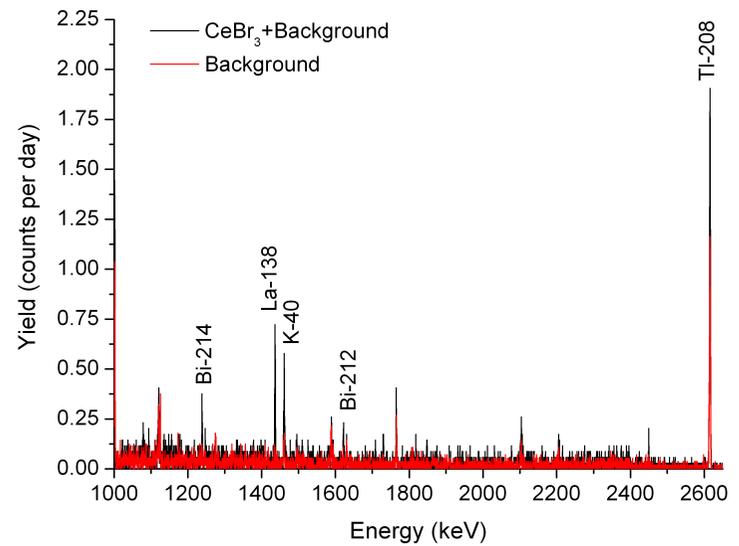
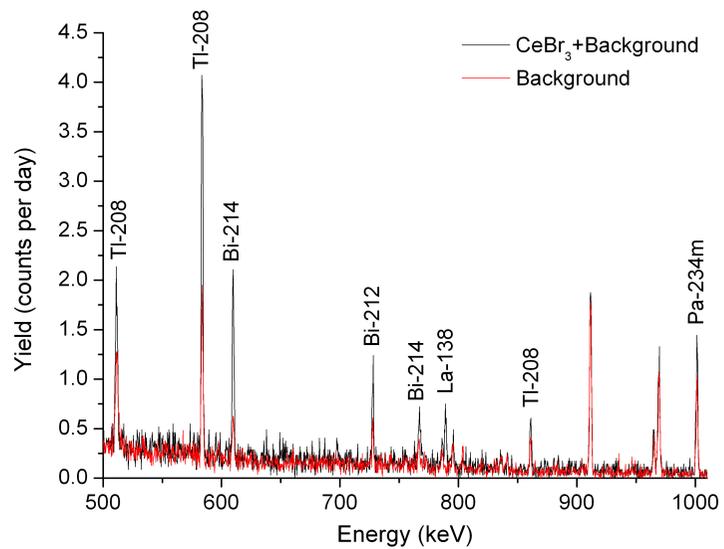
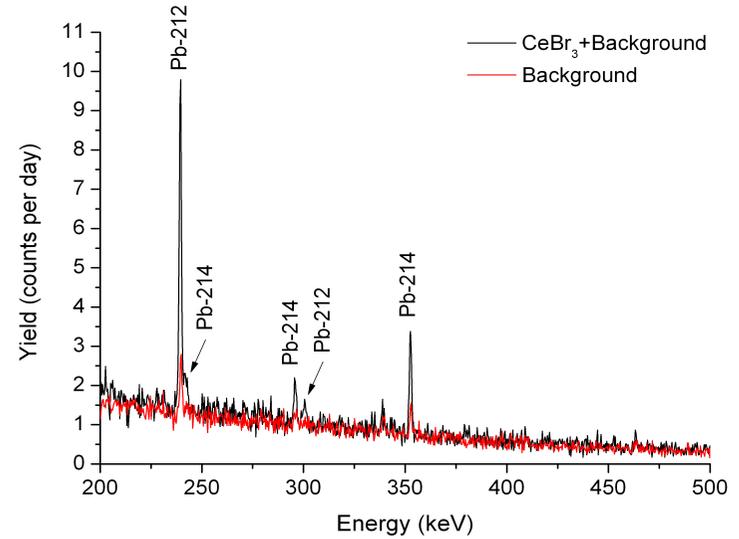
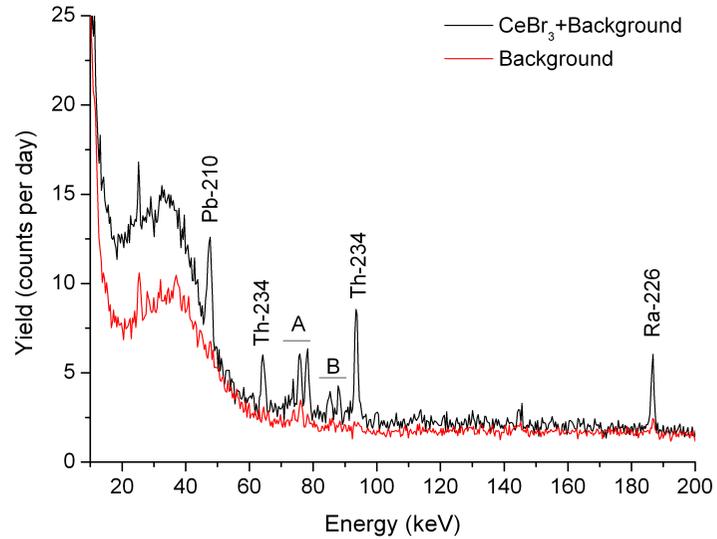
Las mediciones de radiopureza (o actividad interna) del cristal se realizaron en el *Laboratorio Subterráneo de Canfranc* (LSC), el cual se halla a 850 metros (2450 *m.w.e*) de profundidad debajo de monte El Tobazo en los Pirineos españoles.



Dentro del laboratorio de Servicio de Radiopureza hay 6 detectores de HPGe, nosotros hemos utilizado para estas medidas un HPGe tipo p de Canberra con una masa de $\sim 2,2$ kg y un fondo de 708 ± 3 cpd·kg.

Espectros de casi 35 días de medición continua.





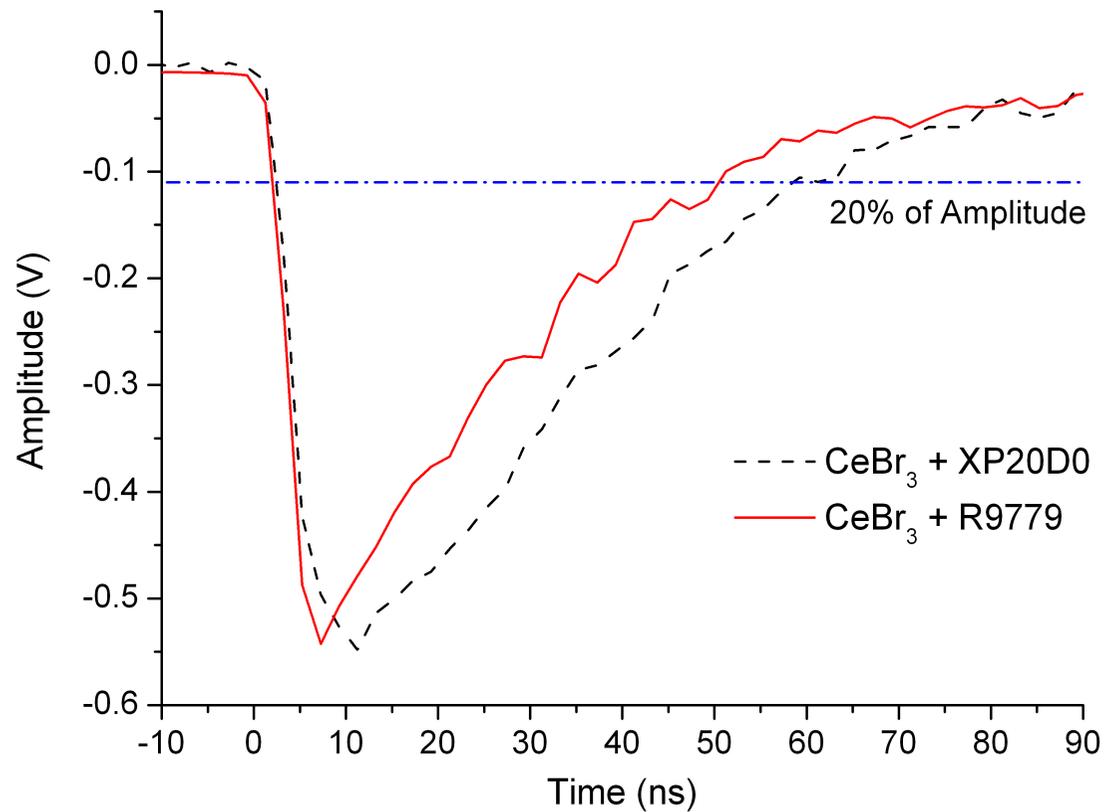
Estos son los resultados obtenidos del análisis de los resultados:

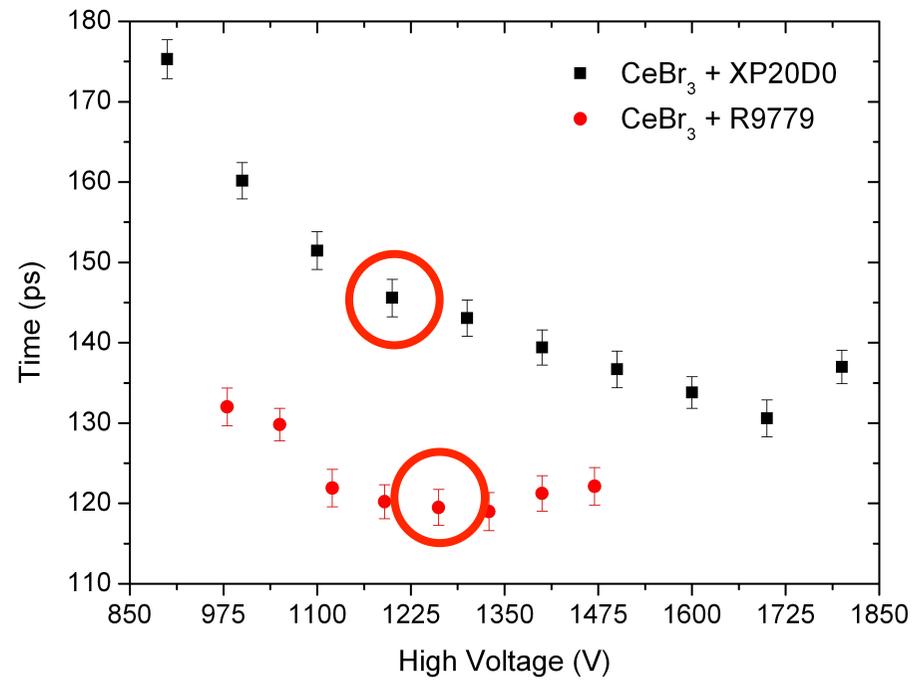
Radionúclido	Actividad (mBq)
^{212}Bi	8.5 ± 8.2
^{214}Bi	5.3 ± 3.9
^{40}K	9.2 ± 1.8
^{138}La	2.1 ± 0.6
$^{234\text{m}}\text{Pa}$	82.3 ± 26.9
^{210}Pb	244.9 ± 37.3
^{212}Pb	10.1 ± 8.3
^{214}Pb	4.1 ± 4.0
^{226}Ra	60.2 ± 9.5
^{234}Th	148.2 ± 27.7
^{208}Tl	3.9 ± 1.7

Durante el análisis se publicó un artículo de Billnert et al., 2013, con resultados divergentes a los nuestros.

4.4. Respuesta Temporal (Timing)

Primero exploramos la forma de los pulsos provenientes del cristal acoplado a cada PMT.





Detector	⁶⁰ Co (1173/1332 keV)	²² Na (511 keV)
CeBr ₃ – XP20D0	146 ± 2 ps	210 ± 2 ps
CeBr ₃ – R9779	119 ± 2 ps	164 ± 2 ps

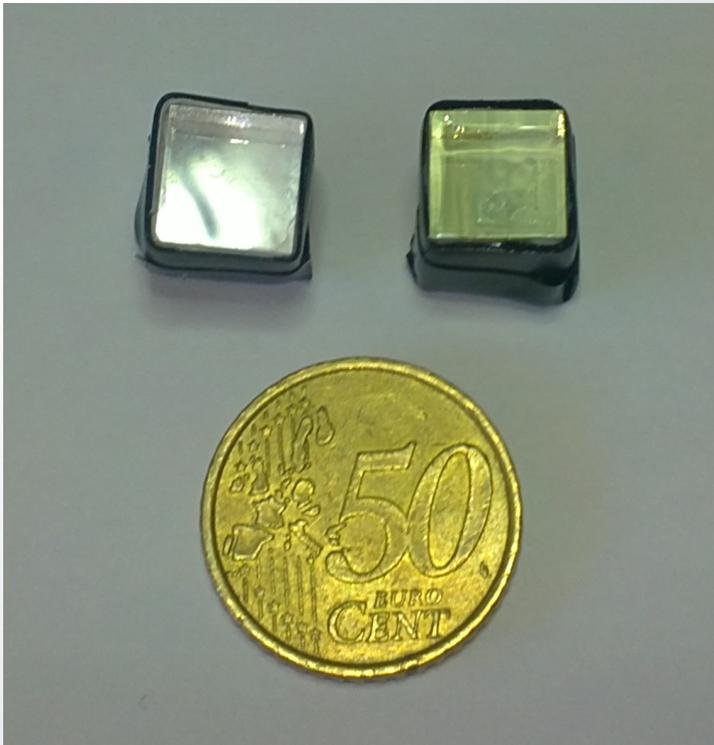
4.5. Conclusiones

En principio es un cristal similar al $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$, con un precio un poco menor y casi sin actividad interna. En este trabajo se caracterizó por primera vez algunas de sus propiedades y se realizaron otras para un cristal grande. En general podemos decir que:

- a) Una buena conversión de luz (yield)
- b) Excelente poder de frenado.
- c) Buena resolución Temporal.
- d) Buena Resolución en Energía.
- e) Tiene buena linealidad.
- f) Casi no tiene actividad intrínseca.
- g) Los cristales grandes todavía presentan problemas en el encapsulado.

5. Caracterización de un Phoswich

Se estudia la viabilidad de una novedosa configuración phoswich de dos cristales centelladores para aplicaciones de imagen médica: LYSO y LuAG:Pr.



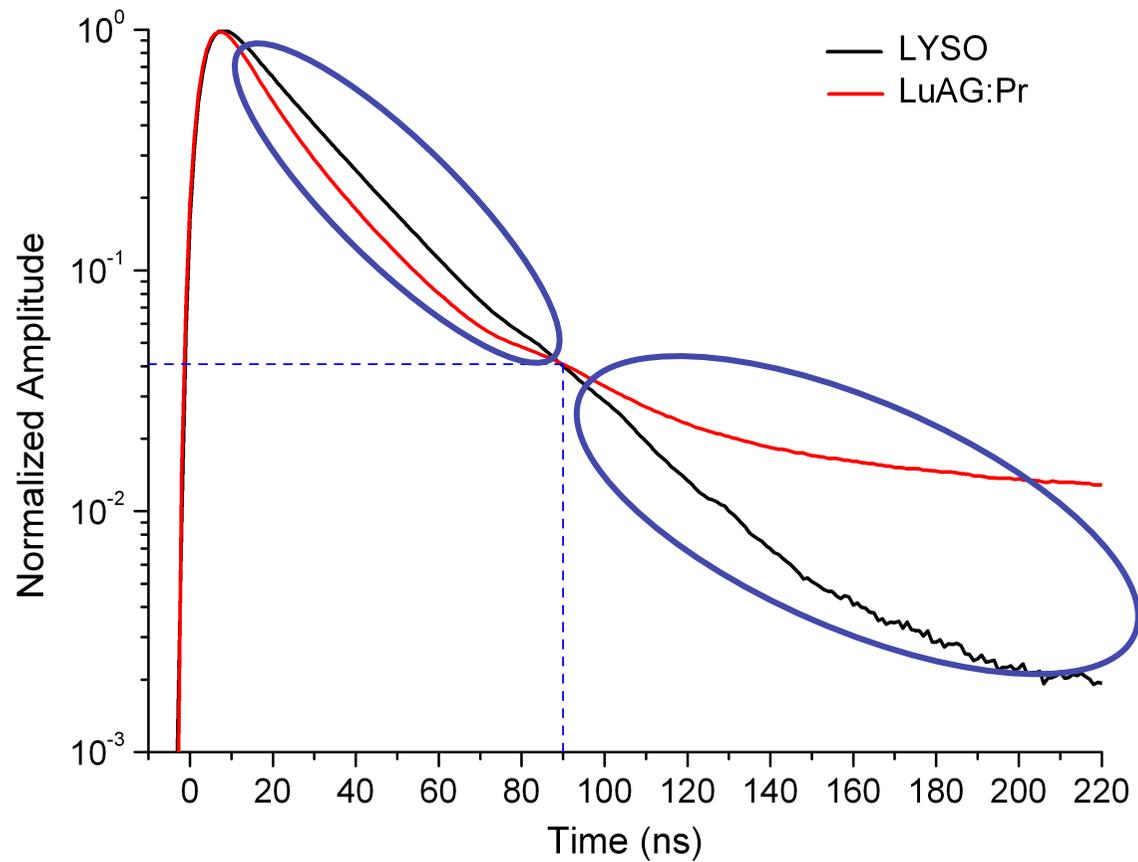
Ambos son acoplados al PMT de Hamamatsu R5320.

Probamos si son compatibles ópticamente para una configuración phoswich.

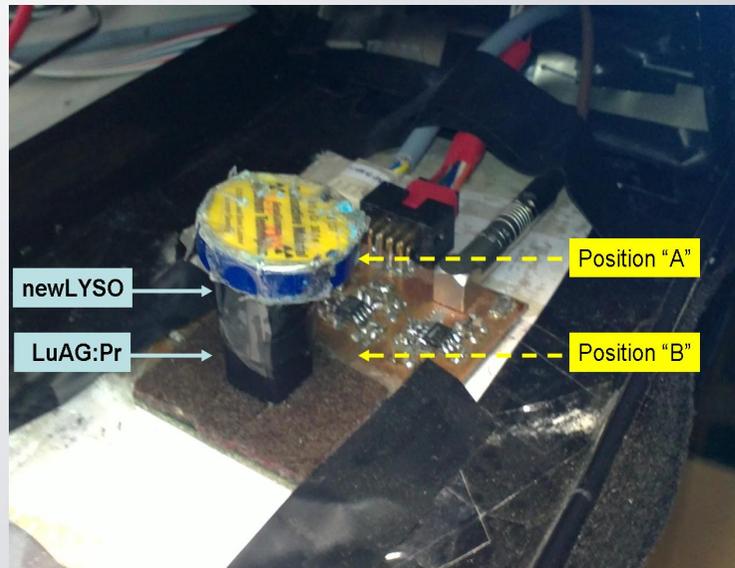
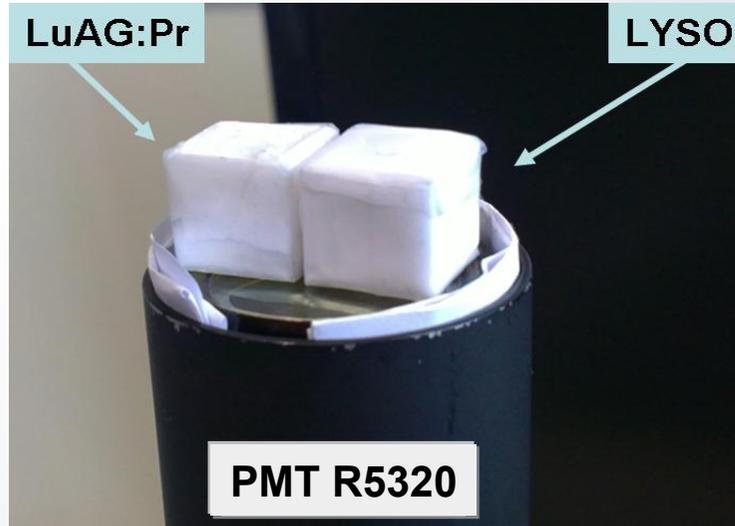
Dos cristales parecidos, con buen poder de frenado, resta mirar si la forma de sus pulsos es lo suficientemente diferente para distinguirlos.

5.1. Forma del Pulso

Primero exploramos la forma de los pulsos provenientes del cristal acoplado a cada PMT.

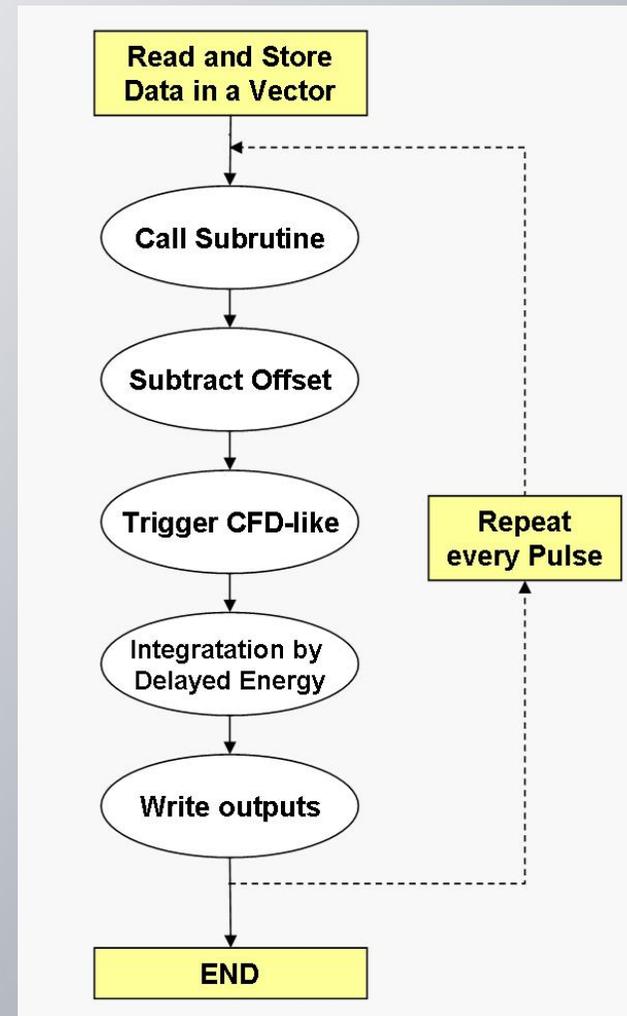
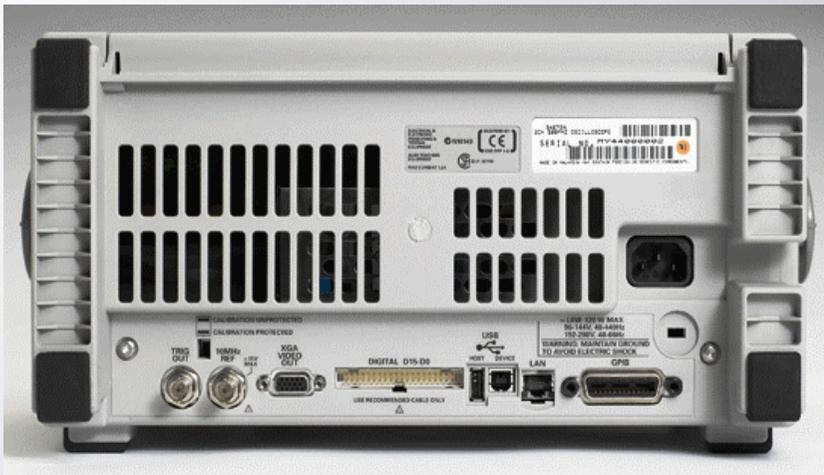
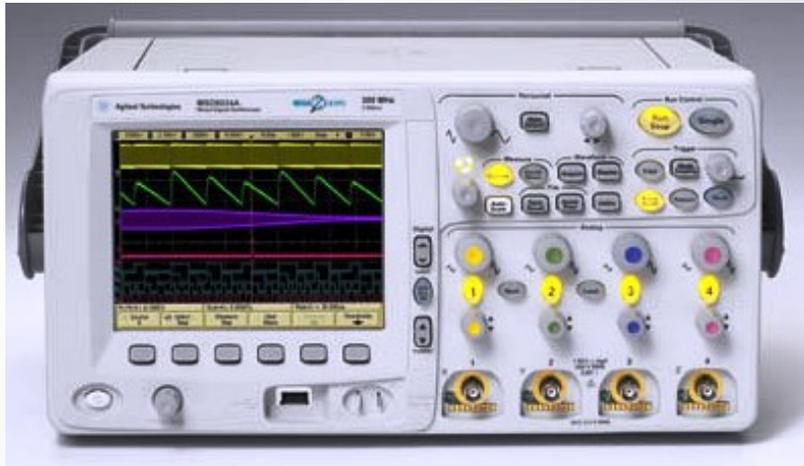


5.2. Configuraciones de los cristales y Fotosensores



5.3. Digitalización y Procesamiento

Hemos utilizado un osciloscopio de Agilent modelo DSO6104A con 4 GSa/s y 1 GHz para digitalizar los pulsos.

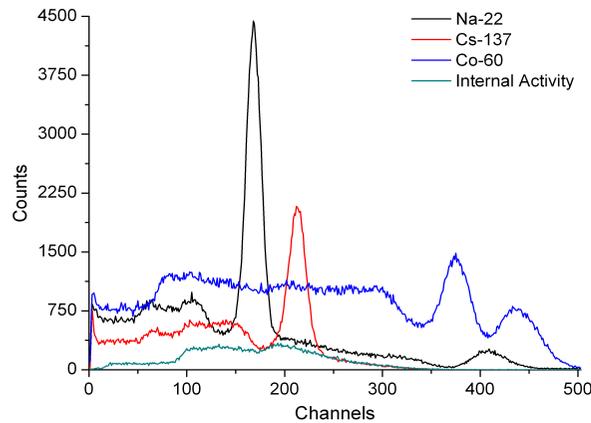


5.4. Comparación de cristales

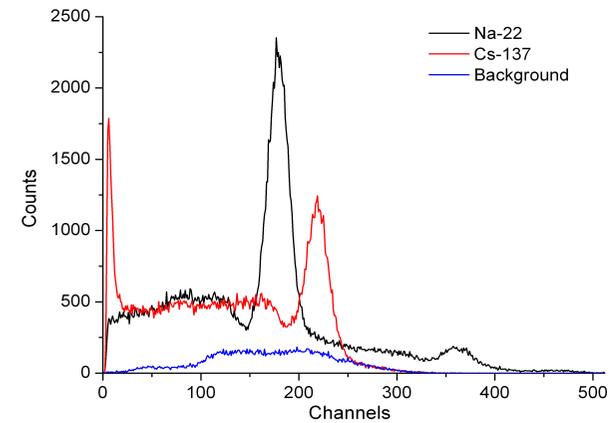
Espectros de Energía de los cristales por separado acoplados a cada fotosensor:

LYSO

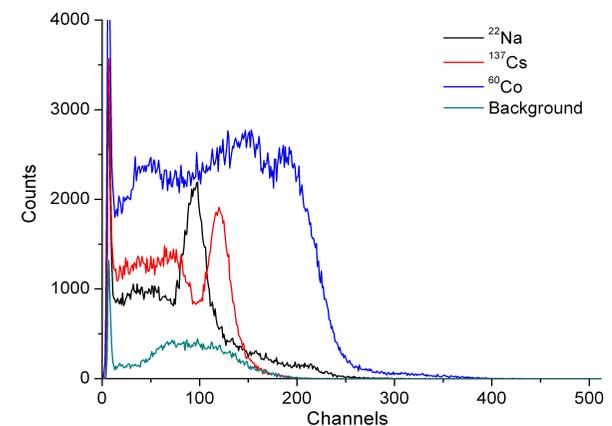
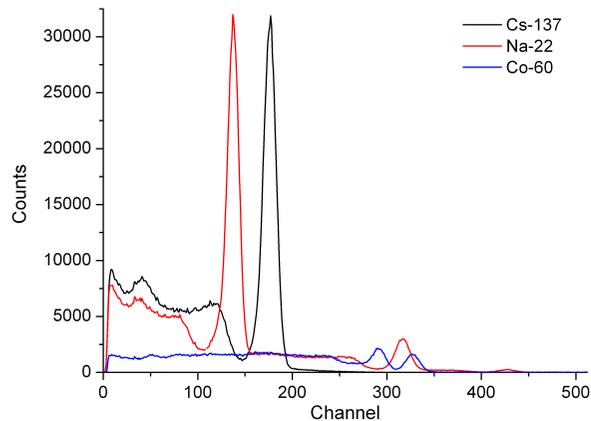
PMT



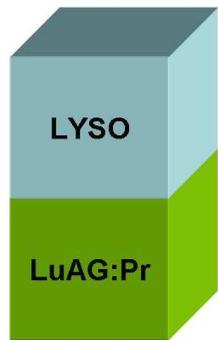
SiPM



LuAG:Pr

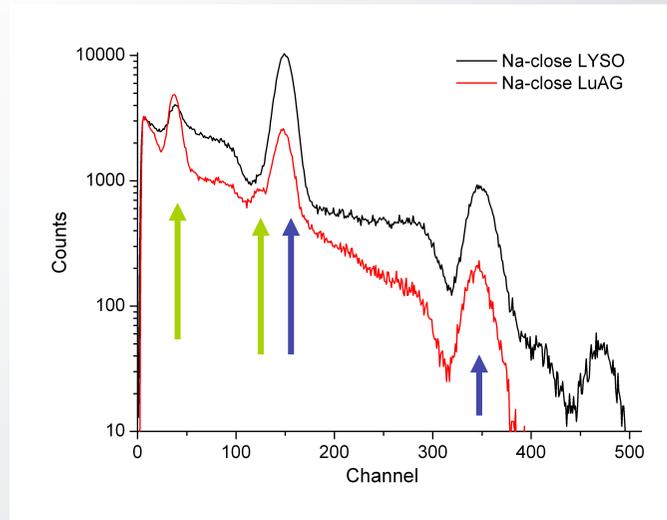


5.5. Comparación de configuraciones Phoswich

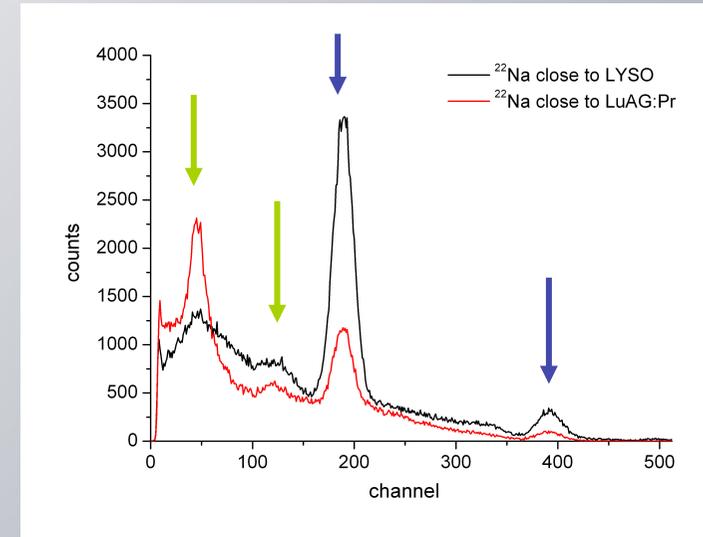


Fotosensor

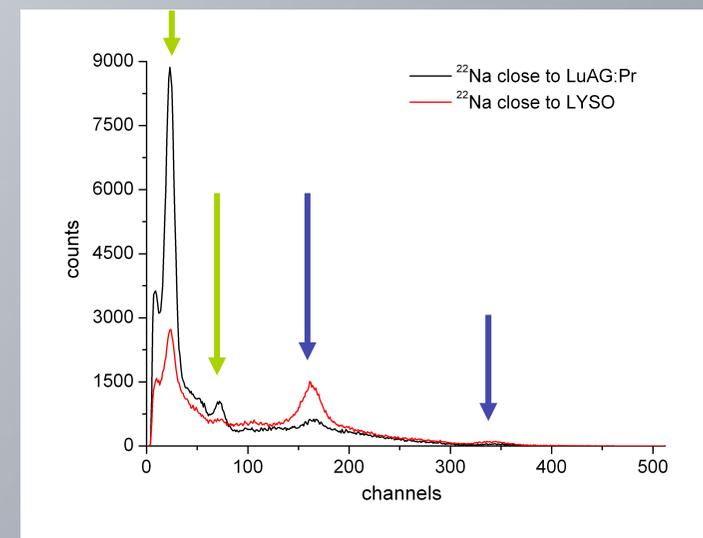
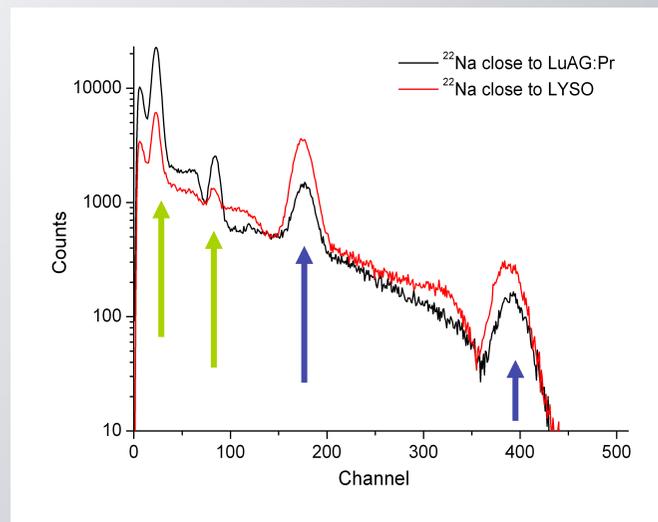
PMT



SiPM

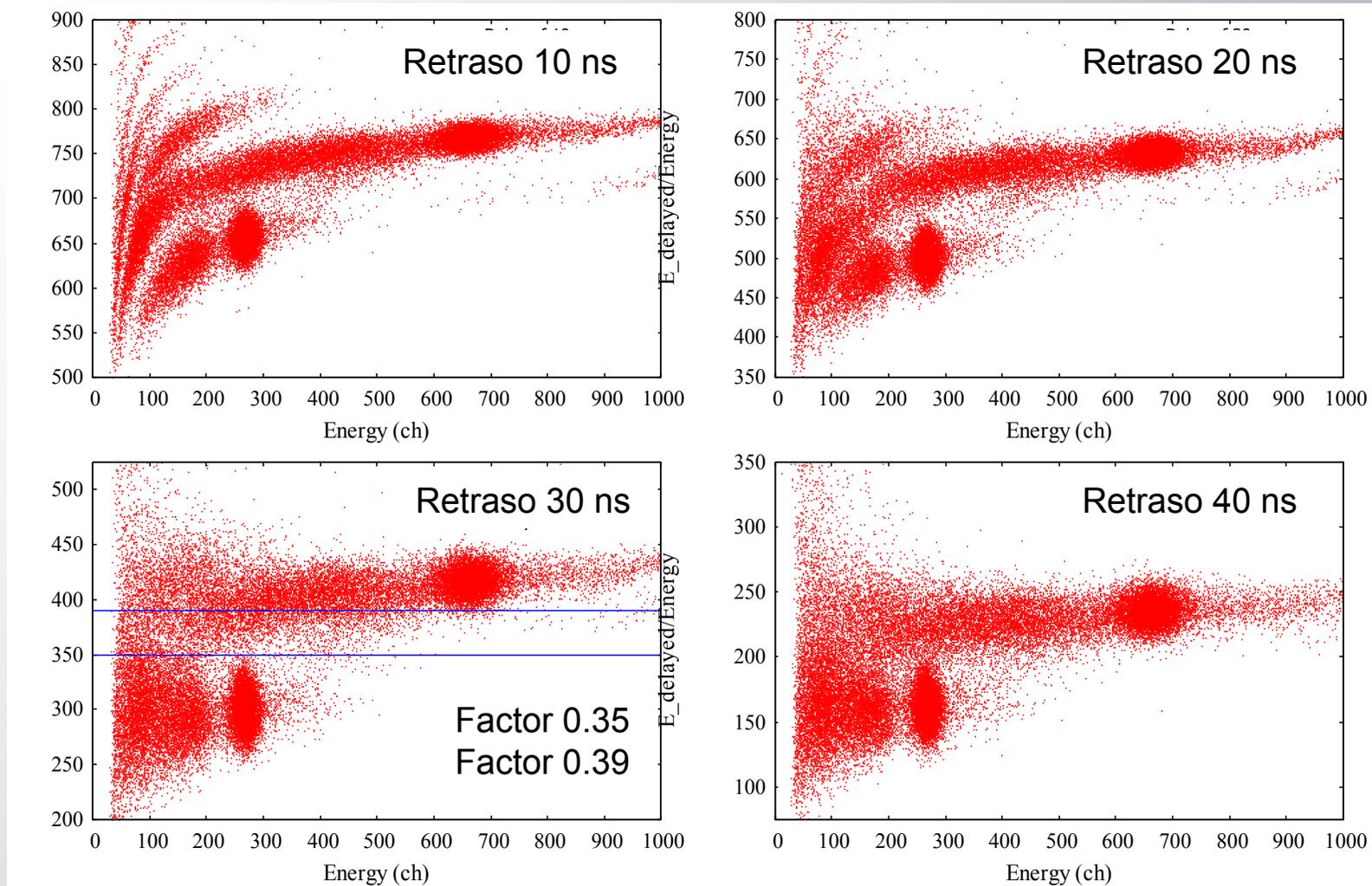


Fotosensor



5.5. Variación del Parámetro de Retardo

Primero exploramos la forma de los pulsos provenientes del cristal acoplado a cada PMT.

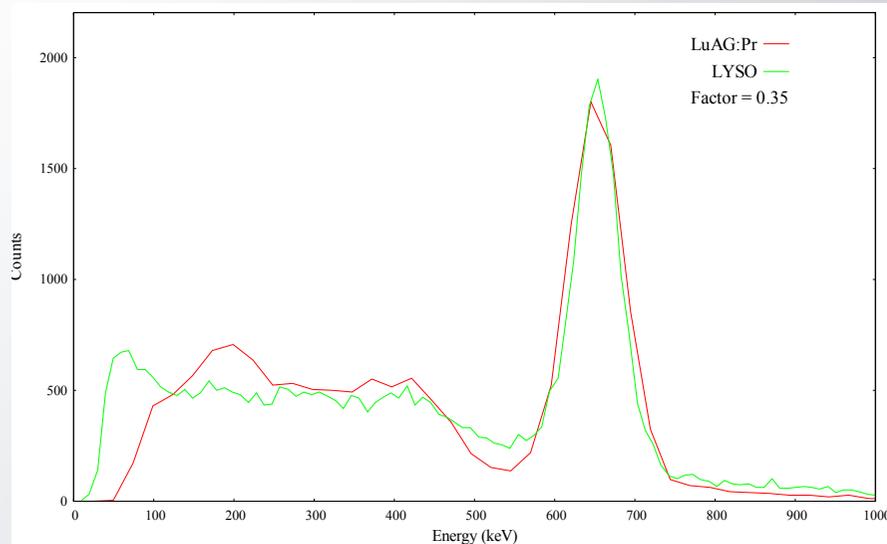


5.6. Resultados

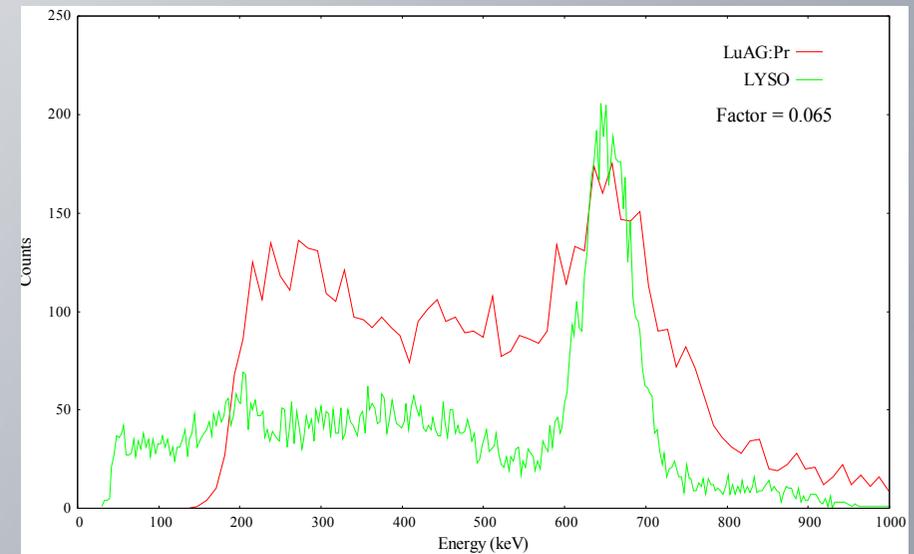
Los valores obtenidos para nuestro phoswich son:



Fotosensor	Tiempo de Integración (ns)	Retraso (ns)	Factor de Capa Limitante
PMT	80	30	0.35
SiPM	220	70	0.065



PMT



SiPM

5.7. Conclusiones

La actual propuesta de phoswich ha probado ser viable para aplicaciones médicas, en particular para PET. Se mostró que:

- a) El phoswich es viable si se acopla a PMT.
- b) El phoswich es viable si se acopla a SiPM.
- c) La actividad interna de ambos cristales basados en Lutecio no afecta los resultados obtenidos.

6. Conclusiones Generales

Hemos probado tres detectores novedosos:

1. Para el cristal de LuAG:Pr hemos caracterizado la linealidad, resolución en energía, resolución temporal y actividad interna.

Conclusión: A pesar de tener menor conversión de luz, es un buen candidato a sustituir al LYSO o LSO como detector en aplicaciones médicas.

2. Para el cristal de CeBr₃ hemos caracterizado la linealidad, resolución en energía, eficiencia absoluta, resolución temporal y actividad interna.

Conclusión: Este cristal es una alternativa posible al LaBr₃:Ce/LaCl₃:Ce y es un buen candidato para medidas de ultra bajo nivel.

3. Hemos propuesto un arreglo phoswich optimizado para aplicaciones PET, el cual podrá ser utilizado tanto con fotosensor tipo PMT o SiPM. La configuración óptima coloca al LuAG:Pr acoplado directamente al fotosensor.

Conclusión: El presente phoswich es un candidato a detector en aplicaciones diagnósticas, principalmente PET.





Universidad Complutense de Madrid

Facultad de Ciencias Físicas

Dpto. de Física Atómica, Molecular y Nuclear

Programa de Doctorado de Física Nuclear



Defensa de Tesis Doctoral

Mejoras en la Detección de Rayos Gamma con Cristales Centelladores de Última Generación y Aplicaciones

Esteban Picado Sandí

Directores:

Dr. Luis Mario Fraile Prieto

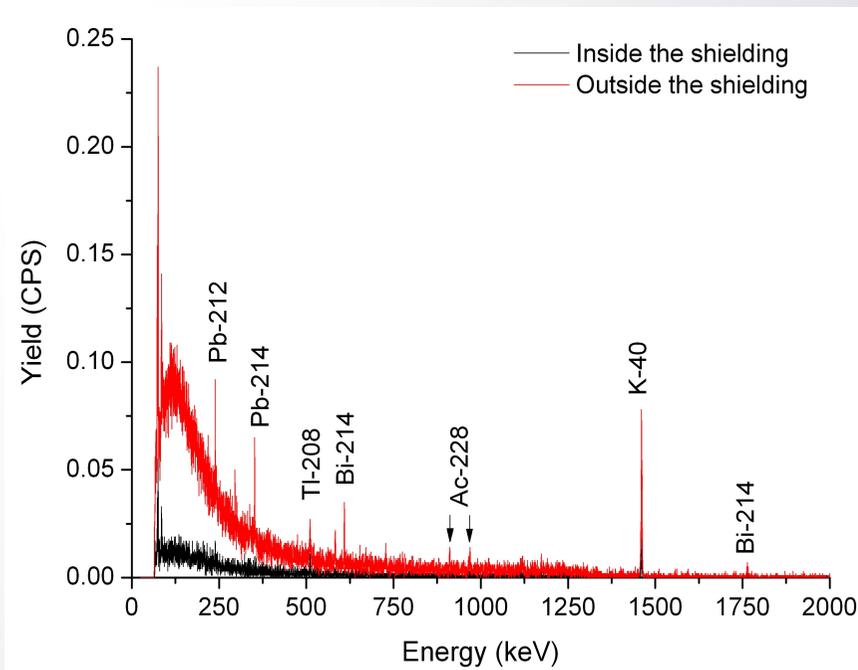
Dr. José Manuel Udías Moinelo

Viernes 5 de Julio de 2013

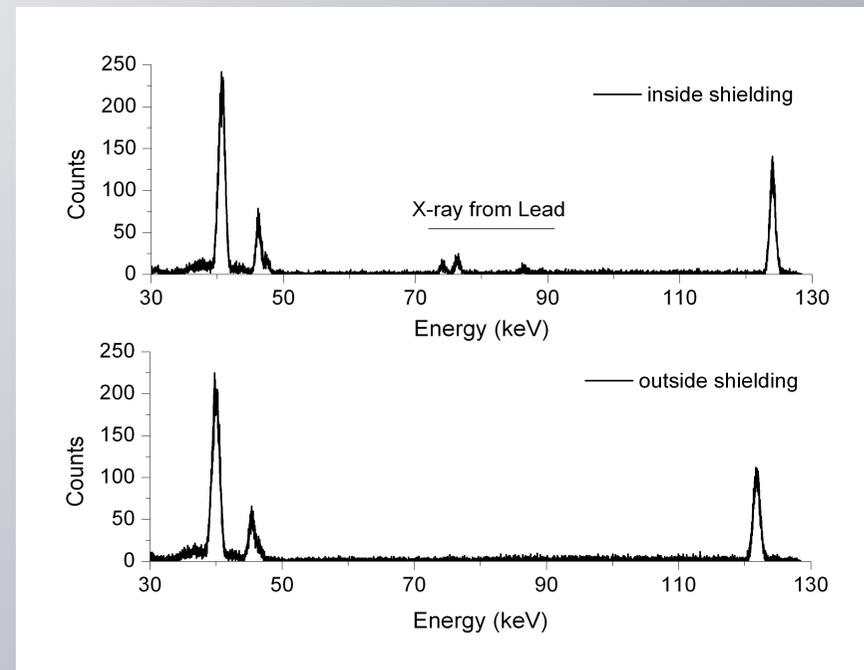
ANEXOS

2.3. Efecto del Blindaje

Se estudió el efecto del blindaje de plomo (Castillo de Pb) sobre las mediciones de fuentes gamma y atenuando el fondo de radiación.



Espectros tomado en Tiempo Vivo donde se aprecia la atenuación del fondo, pasa de 85 a 15 cps en el rango de 60 a 2000 keV.



Detalle de un espectro de ^{152}Eu que muestra RX de fluorescencia del Pb.

Nuestras mediciones se han realizado con los cristales más grandes de CeBr_3 que se han fabricado, así que es normal que se tengan problemas de encapsulado.



21 December 2011



19 January 2012



1 February 2012



25 March 2012