医用闪烁体进展

刘 波^① 施朝淑^{①②}

(中国科学技术大学^①国家同步辐射实验室, ^②物理系, 合肥 230026. E-mail: lbo@mail.ustc.edu.cn)

摘要 介绍了医学射线成像技术(包括平面 X 射线成像、X 射线计算机层析扫描、单光子发射计算机层析扫描和正电子发射层析扫描)对于闪烁体的要求. 概述医用闪烁体的发展历史, 着重介绍了近年来新型医用闪烁体(主要有 GSO : Ce, LSO : Ce, LuAP : Ce)研究的进展, 从应用的角度介绍了它们的特性以及发光的物理机制.

关键词 医用闪烁体 成像技术 发光物理机制

自从 1895 年伦琴发现了 X 射线, 1896 年两位英国医生拍摄了第 1 张 X 射线照片以来^[1], X 射线成像技术在医学上的应用使医生可以观察病人身体的内部结构, 医学成像技术对于疾病的诊断起到了巨大的作用. 20 世纪 50 年代以后医学成像技术有了飞速发展. 各种成像技术不断涌现, 尤其以闪烁探测器为基础的射线成像技术更是得到了蓬勃的发展. 本文所涉及的医用成像技术就是指以闪烁探测器为基础的射线成像技术. 射线成像技术是利用闪烁探测器对高能光子(X 射线或 γ 射线)进行探测, 并经过电子系统和计算机设备成像的一种技术. 医学成像模式包括平面 X 射线成像、X 射线计算机层析扫描(X-CT)、单光子发射计算机层析扫描(SPECT)和正电子发射层析扫描(PET). 随着各种医学成像设备不断增长的需求, 闪烁体作为探测器中探测高能光子的灵敏元件的需求也是十分巨大的, 对于闪烁体的性能也有更高的要求. 据统计, 目前医用闪烁体的年需求量大约是 175 吨, 各种成像设备及其闪烁体的需求见表 1^[2].

表 1 医用成像设备的闪烁体年需求量		
成像模式	年产量/台	闪烁体年需求量/m ³
平面 X 射线成像	1000000	50.00
X-CT	2000	0.15
SPECT	2000	6.00
PET	50	0.50

医用闪烁体的巨大需求, 已促使世界各国的科学家们投入越来越多的精力致力于医用闪烁体的研究. 医用闪烁体的研究已经成为当前闪烁体研究的一个热点, 近几年的无机闪烁体涉及医用闪烁体的报道也越来越多, 医用闪烁体的发展与交流得到了进一步的加强, 它的发展必将给医学诊断手段的提

高带来巨大的推动力.

通常理想的医用闪烁体应具有以下几个特点: (1) 高发光效率; (2) 快发光衰减; (3) 短余辉; (4) 高密度; (5) 短辐射长度; (6) 发射光谱与探测器的光谱响应匹配; (7) 低成本. 遗憾的是完全满足以上条件的理想闪烁体实际上是不存在的. 我们所做的只能是按每种成像模式的具体要求选不同侧重点, 尽可能使我们所提出的闪烁体朝理想的方向发展. 本文介绍了几种模式的医用成像设备的基本原理及其对闪烁体的要求和当前新型医用闪烁体研究的进展情况.

1 γ (或 X)射线与闪烁体的相互作用

单个光子与物质的相互作用只有两种可能, 一种是发生作用后消失或转换成另一能量与运动方向的光子, 另一种是不发生任何作用而穿过. 就大量入射光子的宏观效果而言, 穿过物质后必然有一部分光子消失, 但仍有一部分光子毫无变化地通过.

具体地说, γ 射线与物质的相互作用只有 3 种主要机制在辐射测量中起重要作用, 即光电效应、康普顿效应和电子对效应. 光电效应是指在入射光子与吸收物质原子相互作用中完全消失, 并且从原子中发射出一个光电子的行为. 发射的光电子通常是原子内壳层的原子. 原子吸收了光子的全部能量, 其中一部分消耗于光电子脱离原子束缚所需的电离能, 另一部分转换为光电子的动能. 如果 γ 光子与原子的外层电子发生碰撞, 一部分能量传给电子使它脱离原子射出而成为“反冲电子”, 同时光子损失能量并改变方向而成为“散射光子”, 这个过程叫康普顿效应. 康普顿效应与光电效应不同, 光电效应中入射光子被吸收了, 能量全部转移给光子, 康普顿效应发生后仍存在散射光子, 反冲电子只获得入射光子的

部分能量. 电子对效应则是在辐射光子能量足够高 ($h\nu > 1.02 \text{ MeV}$) 时, 转化为一个正电子和一个负电子. 通常 γ 光子与物质相互作用, 当 $h\nu < 1.02 \text{ MeV}$ 时, 光电效应和康普顿效应会同时发生, 而当 $h\nu > 1.02 \text{ MeV}$ 时, 3 种效应都会发生. 光子与物质相互作用时发生上述 3 种效应的概率用截面表示, 分别称作光电效应截面 σ_{ph} , 康普顿效应截面 σ_{c} 和电子对效应截面 σ_{p} . 它们均与物质的原子序数 Z 值相关, 即 $\sigma_{\text{ph}} \propto Z^5$, $\sigma_{\text{c}} \propto Z$, $\sigma_{\text{p}} \propto Z^2$. γ 射线穿过吸收物质后的光子数与吸收物质厚度间存在指数衰减关系: $I = I_0 e^{-\mu x}$. 吸收系数 μ 是随吸收物质密度的增大而增大的.

γ (或 X) 射线与闪烁体的相互作用也是上述 3 种效应. γ 射线是不带电的, 这种电磁辐射通过闪烁体时不能直接引起发光, 而必须利用上述 3 种效应, 通过它们与闪烁体相互作用后产生的次级电子来产生闪烁光子. 对于医用闪烁体, 需要探测的光子能量小于 1.02 MeV , 因此对于医用闪烁体主要是光电效应和康普顿效应. 医用闪烁体要求有大的吸收系数, 这样可以减小闪烁体的尺寸, 降低探测设备的造价, 并可以提高图像的清晰度, 这就要求密度高. 由于探测光子需要通过光电效应和康普顿效应产生次级电子, 这就需要增大它们的截面, 也就是选取 Z 值大的材料. 一般 Z 值高的材料密度也大.

2 医学成像设备基本原理

在医学成像领域里, 所需探测的光子能量约为 $15 \sim 600 \text{ keV}$ 的范围. 探测系统必须具有高效率, 才能使病人身体接受的射线辐射剂量尽可能的低, 以降低辐射对身体的损害. 提高探测系统的信噪比和分辨率决不可以通过增强放射源(如 X 射线, 注射用放射性药物)的强度来获得, 只许通过提高探测器的探测效率来实现. 在医学成像的能量为 $15 \sim 600 \text{ keV}$ 范围的光子, 在人体内的衰减长度为 $2 \sim 10 \text{ cm}$. 光子在人体内与人体组织发生相互作用, 由于人体组织由低有效原子数的分子组成, 因此大多数的相互作用为康普顿散射, 大多数散射的光子不易被吸收而继续进行康普顿散射直到离开身体. 被探测器接收到的光子中有 $10\% \sim 50\%$ 是未被散射的光子, 它们形成了精确的成像, 而大多数的康普顿散射光子形成成像的背底. 因此, 为提高图像的分辨率, 探测系统必须减少康普顿散射背底.

2.1 平面 X 射线成像

平面 X 射线成像技术中, X 射线是由加速的电子

束轰击金属靶, 通过韧致辐射作用产生的. X 射线是连续谱, 光子能量大小决定于加速电压的大小, 一般根据成像部位的不同, 加速电压从 $25 \sim 300 \text{ kV}$ 不等, X 射线光子能量约为 $15 \sim 200 \text{ keV}$. 当 X 射线穿过人体不同组织的时候, 对 X 射线的吸收是不同的, 通过对出射 X 射线的记录(通常为感光胶片或增强屏), 得到身体部位的影像. 这种成像模式所用的 X 射线不是单色的, 因此不能从测量光子能量的方法得到更多的信息. 对于平面 X 射线成像闪烁体的要求, 按重要性顺序为^[2]: (1) 高发光效率 (> 60000 光子/ MeV); (2) 高密度 ($> 7 \text{ g/cm}^3$); (3) 发射波长与胶片响应波长匹配 (550 nm 附近); (4) 好的颗粒形状(近椭圆, 直径 $3 \sim 10 \mu\text{m}$). 目前使用最广泛的 X 射线平面成像荧光粉是 $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S} : \text{Tb}$, 另外还有 $\text{LaOBr} : \text{Tb}$ 和 $\text{Y}_2\text{O}_2\text{S} : \text{Tb}$ 等.

在成像过程中应尽量提高速度, 就是在射线照射下缩短成像所必须的时间, 这样才能减少病人在成像过程中的射线辐照剂量. 这就必须提高发光效率、缩短辐射长度或提高微观闪烁结构(如柱状 $\text{CsT} : \text{Ti}$)以降低侧面的光散射^[3]. $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S} : \text{Tb}$ 荧光粉发射波长位于 540 nm 附近, 高密度 (7.3 g/cm^3), 有一个 51 keV 的 K 边吸收, 可以加强对高能光子的吸收. 然而作为荧光屏, 它的空间分辨率与其厚度成反比. 真空中生长的 $\text{CsI} : \text{Ti}$ 单晶虽然密度不如 $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S} : \text{Tb}$ 高, 但其紧凑的柱状结构和光导效应可以降低侧面光散射. 因此它的空间分辨率不依赖于厚度, 这与荧光粉不同. 33 和 36 keV 的 K 边吸收增加了对 X 射线的吸收, 其光产额与 $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S} : \text{Tb}$ 接近.

2.2 计算机层析扫描成像技术

常规平面 X 射线成像技术是利用透射原理完成的, 将人体的三维结构通过投影后显示在一个二维的平面上, 这就造成了图像上的器官重叠, 读片困难, 得到的信息有限. 计算机层析扫描成像技术则从根本上解决了这个问题, 它可以形成横切面的图像, 这样就可以提供更多的关于器官内部的情况. X-CT, SPECT 和 PET 都属于这种成像技术.

(i) X-CT. X 射线 CT 由 X 射线源及多个各自独立的排列成弧形的 X 射线探测器组成. 探测器为光电二极管, 闪烁体为单晶或陶瓷形态. 为了降低误差, 提高成像精度, 必须降低闪烁体余辉和发光强度随温度变化的不稳定性, 并提高辐照硬度 ($\approx 10 \times 10^{-2} \text{ Gy}$ 的剂量). 通常陶瓷闪烁体发光表现出比单晶

有更好的一致性，这是由于陶瓷是由许多微小的单晶均匀混合组成的多晶形态，发光特性是许多单晶的平均值，表现出各向同性的性质。常用的 X 射线 CT 闪烁体是 CdWO_4 ; $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S} : \text{Pr}, \text{Ce}, \text{F}$ 和 $(\text{Y}, \text{Gd})_2\text{O}_3 : \text{Eu}, \text{Pr}$ 。它们的特性见表 2。这 3 种材料都已用于商业 CT 产品。对于 X 射线 CT 闪烁体的要求为^[2]：(1) 快发光衰减；(2) 高稳定性(包括化学、温度、辐照的稳定性)；(3) 高密度($> 6 \text{ g/cm}^3$)；(4) 发光效率高(> 15000 光子/MeV)；(5) 发射光谱与光电二极管的光谱响应匹配(500 ~ 1000 nm)。

(ii) SPECT 成像系统。1958 年 Anger^[4]发明了一种更加灵敏的 γ 相机用来探测 γ 光子成像。 γ 相机利用闪烁晶体与一组光电倍增管的耦合来探测并记录发射 γ 光子的药物分布情况。病人需要注射或口服微量的放射性药物，药物会分布在病人体内的不同部位，并发射出 γ 光子，通过对 γ 光子的探测可以知道药物所在位置并可以进一步成像。最常用的 γ 光子放射性药物是 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ，其发射的 γ 光子的能量为 662 keV。 γ 相机由以下几个部分组成：准直器、闪烁体单晶、光导和 PMT(光电倍增管)阵列。

SPECT 利用一台或多台 γ 相机围绕着被探者旋转，在不同角度上探测人体放出的 γ 光子并计数， γ 相机在各个不同的角度上获取投影数据后，就可以

利用 X-CT 的方法，得到人体某断面上放射性药物的分布。最近发展的一种三头探测系统^[5]，3 组探测系统成三角形摆放，每分钟可以旋转 4 周。

(iii) PET 成像系统。正电子发射层析扫描成像技术与单光子发射层析扫描相似，同样需要病人服用一种放射性药物作为标记。但在 PET 系统中使用的是发射正电子的放射性同位素。通常的正电子发射的放射性同位素有 ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O 和 ^{18}F 。药物在体内发射的正电子不会穿透人体组织，只能运动几毫米，它就会与周围的电子发生湮灭，产生两个运动方向相反的能量为 511 keV 的 γ 光子。它由在同一平面的光子探测器阵列组成。 γ 光子的探测是利用符合检测技术(湮灭后产生的 γ 光子是同时的)探测成对光子，当两个探测器检测到一对 γ 光子时，则正负电子的湮没发生于两个探测器的连线上的某点，这就可以确定其位置。与 SPECT 相比，PET 不必使用准直器，因而提高了系统的灵敏度。PET 系统对闪烁体的要求如下^[2]：(1) 短辐射长度 $< 1.2 \text{ cm}$ ；(2) 快发光衰减；(3) 高发光效率；(4) 光谱匹配(300 ~ 500 nm)；(5) 低成本。早期 PET 系统用 $\text{NaI} : \text{Tl}$ 作为闪烁体，以后大多被 $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}(\text{BGO})$ 取代，因为 BGO 有更好的阻止本领，它们的辐射长度为 1.12 cm，比 $\text{NaI} : \text{Tl}$ 的 2.56 cm 短很多。目前 BGO 是应用最多的 PET 闪烁体。

表 2 闪烁体性质比较一览表

闪烁体	光产额/光子 · MeV ⁻¹	密度 /g · cm ⁻³	衰减/ns	波长/nm	辐射长度/cm	有效原子数	折射率	¹³⁷ Cs 能量分辨率/%	吸湿性
NaI(Tl)	38000	3.7	230	415	2.59	51	1.85	7.0	强
CsI(Tl)	60000	4.5	1000	560	1.85	54	1.80	9.0	稍微
BGO	8000	7.13	300	480	1.12	74	2.15	9.5	不
LSO : Ce	25000	7.35	11/36	420	1.14	66	1.82	12.0	不
GSO : Ce	8000	6.7	56/600	440	1.38	59	1.85	7.8	不
YSO : Ce	10000	4.54	37/82	420				9.0	不
YAP : Ce	16000	5.37	28	360	2.24	34	1.93	11.0	不
LuAP : Ce	9600	8.34	11/28	355					不
Lu _{0.3} Y _{0.7} AP : Ce	14000	6.19	25	360		53			不
Lu _{0.3} Gd _{0.7} AP : Ce	10800	7.93		360		63			
Gd ₂ O ₂ S : Tb	70000	7.3		545		64	2.1		
Y ₂ O ₂ S : Tb	60000	4.9		545					
CdWO ₄	14000	7.9	5000	500					
(Y, Gd) ₂ O ₃ : Eu, Pr	19000	5.9	毫秒级	600					
Gd ₂ O ₂ S : Pr, Ce, F	21000	7.3	3000	600					

<https://engine.scichina.com/doi/10.1360/csb2002-47-1-1>

3 新型医用闪烁体

人们利用 CaWO_4 荧光粉作为闪烁材料已有一个世纪之久^[6]. 自从 1948 年 Hofstadter^[7]发明了单晶闪烁体 $\text{NaI}:\text{Tl}$ 以来的几十年里, 由于这种闪烁体的光产额很高而被广泛应用, 成为闪烁探测器中最重要的闪烁材料. 但遗憾的是 $\text{NaI}:\text{Tl}$ 的密度低(3.67 g/cm^3), 辐射长度大, 限制了能量分辨率的提高, 进而降低了成像质量. 因此, 当 Weber 和 Monchamp^[8]提出了一种新的高密度闪烁体 $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO)以后, BGO 立即成为一种很有发展前途的闪烁体被广泛研究. 今天, BGO 已经占领了 PET 系统闪烁体市场的 50%以上^[9]. 但是 BGO 的光产额只有 $\text{NaI}:\text{Tl}$ 的 20% ~ 25%, 并且它的衰减时间较长($\approx 300\text{ ns}$), 不利于时间分辨率的提高. 这就要求新一代的 PET 和 γ 相机闪烁体具有高原子序数(Z 值大), 高光产额, 比 BGO 的发光衰减更快的闪烁体. 由于 Ce^{3+} 具有快发光衰减, 如果能找到高密度的基质材料并顺利掺入 Ce^{3+} , 且光产额可以满足要求, 就可以成为新的医用闪烁体. 目前发展的新型医用闪烁体就是沿着这个思路展开的, 当然还需要解决晶体生长、能量分辨率的改善等问题. 目前正在被大量研究的掺 Ce 闪烁体有 $\text{Lu}_2\text{SiO}_5(\text{LSO}:\text{Ce})$, $\text{Gd}_2\text{SiO}_5(\text{GSO}:\text{Ce})$, $\text{LuAlO}_3(\text{LuAP}:\text{Ce})$ 等. 表 2 列出了一些闪烁体的性质.

3.1 LuAP : Ce

Weber^[10]于 1973 年提出了 $\text{YAlO}_3:\text{Ce}(\text{YAP}:\text{Ce})$ 材料, 它的闪烁特性被相继研究^[11~14], 是一个快发光衰减、高光产额的闪烁体, 但其密度低, 为了增加密度提高其阻止本领, 曾有几个实验室努力用更重的离子 Lu^{3+} 来代替 Y^{3+} 离子^[15~21], 即 $\text{LuAP}:\text{Ce}$. 室温下 $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 发射波长在 355 nm 附近(图 1), 衰减时间为 11 和 28 ns, 光产额比 BGO 高 20%, 并且密度高(8.34 g/cm^3), 因此 $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 是一个很有希望的新型医用闪烁体, 但生长 $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 单晶是一个十分困难的事情. 用 Czochralski 方法只能生长出很小的晶体, 并且产量很低^[17,22]. Petrosyan 等人^[23]利用 Bridgeman 方法生长出了 $5\text{ mm} \times 5\text{ mm} \times 50\text{ mm}$ 的单晶. 不同方法或不同制备条件生长的 $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 晶体其发光性能会表现出很大差异^[22,24], 并且会出现其他相的晶体结构, 特别是石榴石型. 生长单晶的困难在于很难稳定 Lu 的正交相. 有人提出了一种克服此困难的方法, 即掺入 Y 或 Gd^[25,26], 生长出 $\text{Lu}_x(\text{RE}^{3+})_{1-x}$ -

$\text{AP}:\text{Ce}(\text{RE}^{3+} = \text{Y}^{3+}\text{或}\text{Gd}^{3+})$ 单晶. 另外, 目前的研究表明: $\text{Lu}_x(\text{RE}^{3+})_{1-x}\text{AP}:\text{Ce}$ 的光产额高于 $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 也是发展 $\text{Lu}_x(\text{RE}^{3+})_{1-x}\text{AP}:\text{Ce}$ 的原因之一. 实验表明^[27~29], 当 $\text{RE}^{3+} = \text{Y}^{3+}$ 时, $x = 0.1, 0.2$ 和 0.3 为佳; $\text{RE}^{3+} = \text{Gd}^{3+}$ 时, $x = 0.6$ 和 0.7 的结果最好. $\text{Lu}_x(\text{RE}^{3+})_{1-x}\text{AP}:\text{Ce}$ 晶体的光产额比 BGO 高 40% ~ 75%. $\text{Lu}_x(\text{RE}^{3+})_{1-x}\text{AP}:\text{Ce}$ 的闪烁特性已接近 $\text{YAP}:\text{Ce}$, 但单晶的产量和尺寸尚不如 $\text{YAP}:\text{Ce}$. 对于 PET 应用, $\text{Lu}_{0.3}\text{Y}_{0.7}\text{AP}:\text{Ce}$ 将是一个很有希望的材料, 而 $\text{Lu}_x\text{Gd}_{1-x}\text{AP}:\text{Ce}$ 却有更高的有效原子序数和密度, 但光产额低于 $\text{Lu}_x\text{Y}_{1-x}\text{AP}:\text{Ce}$. 在 PET 和 SPECT 应用上, 密度高的闪烁体辐射长度短, 可以降低闪烁单晶的厚度, 提高系统的空间分辨率, $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 是目前研究密度最高的医用闪烁体, 人们最终的目的应该是找到 $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 生长的最佳方法并提高其光产额, $\text{Lu}_x(\text{RE}^{3+})_{1-x}\text{AP}:\text{Ce}$ 可能是在从低密度的 $\text{YAP}:\text{Ce}$ 单晶向高密度高发光效率的 $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 单晶发展过程中的一种过渡材料.

图 1 LuAP : Ce 的室温和低温发射谱
激发波长为 152 nm

$\text{REAP}:\text{Ce}$ 的陷阱十分丰富, 包括室温以上的和室温以下的. 这些陷阱的起源还不是十分明了, 但它们的存在却严重影响发光特性, 尤其是对光输出与发光的时间特性产生较大影响. $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 的光输出在室温以上有显著增强^[30], 这可能是受室温以上的陷阱影响造成的. 室温以下的陷阱会引起发光衰减的变化, 这是因为陷阱中的电子参与发光后影响了发光动力学过程, 从而改变发光的时间特性. 热释光是研究陷阱情况的有力工具, 有关 $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 的热释光报道十分丰富^[27, 31~35]. 例如有报道表明, $\text{LuAP}:$

Ce 的室温以上热释光位于 360, 500, 600 和 730 K 附近, 陷阱深度约为 0.7 ~ 1.9 eV^[30], 室温以下的有 183 和 266 K 的热释光峰^[33]. $\text{Lu}_x\text{Y}_{1-x}\text{AP}:\text{Ce}$ 室温以上有 50, 100 ~ 130, 175 和 225℃ 的热释光峰^[30], 陷阱深度约为 1.15 eV, 光谱成分是 Ce^{3+} 的 $5d \rightarrow 4f$ 的跃迁(3.45 eV). 由于没有检测到热释电信号, 推测陷阱中的热释电子没有经过导带而是通过隧道过程直接进入 Ce^{3+} 的 $5d$ 态, 产生发光, 并且通过退火实验提出电子陷阱与氧空位有关的观点. Mares 等人^[36]报道了 $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 在 γ 射线的辐照下(3000 Gy 的剂量)产生色心如 O^- 和 F^+ , 甚至可以使稀土离子产生变价. $\text{LuAP}:\text{Ce}$ 的发光温度依赖、不稳定性及衰减时间的变化与晶体中的缺陷密切相关, 但缺陷的具体来源及其种类还很不清楚, 加强缺陷方面的研究工作, 加深对其陷阱情况的认识, 对于改进晶体生长方法, 提高晶体质量具有重大意义.

3.2 $\text{RE}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$

在新型医用闪烁体的探索中掺铈硅酸盐是一个研究的重点和热点. 这类闪烁体包括 $\text{YSO}:\text{Ce}$, $\text{GSO}:\text{Ce}$, $\text{LSO}:\text{Ce}$ 和 $\text{LGSO}:\text{Ce}$. $\text{YSO}:\text{Ce}$ 已经作为商业荧光粉材料^[37,38]. $\text{GSO}:\text{Ce}$ 单晶于 1983 年由 Takagi 等人^[39]提出. $\text{GSO}:\text{Ce}$ 比 BGO 有更快的衰减, 比 $\text{NaI}:\text{Tl}$ 有更高的密度和良好的本征能量分辨率, 是一个有希望用于 PET 系统和 γ 相机的闪烁体^[40-42]. Melcher 等人^[43]于 1992 年首次提出了 $\text{LSO}:\text{Ce}$, 由于其高光产额, 高密度, 快发光衰减, 迅速成为一个最有发展前途的 PET 闪烁体^[44-52]. 1998 年, $\text{LGSO}:\text{Ce}(\text{Lu}_{1-x}\text{Gd}_x\text{SiO}_5:\text{Ce})$ 由 Yamamoto^[53]提出, 其有关性质被随后报道^[49,54]. Gd 的含量通常为 10% 左右, LGSO 目前由于研究刚处于起步阶段, 发展不成熟, 其晶体生长技术也有待于提高, 光产额比 LSO 低约 20%, 能量分辨率也比 LSO 差, 但其背景辐射低, 因此这也是一个有希望的医用闪烁体.

$\text{RESO}:\text{Ce}$ 中 Ce^{3+} 离子有两个格位分别为 Ce1 和 Ce2, 它们形成不同的发光中心, 有不同的发光光谱. 如图 2 和 3 所示. $\text{GSO}:\text{Ce}$ 在 11 K 时用 345 nm 激发 Ce1 中心产生 430 nm 发光带, 用 378 nm 激发 Ce2 中心产生 480 nm 发光带; 而在 296 K 时 Ce1 的发光只是强度略有下降, 但 Ce2 的发光有很大变化, 发射波长向短波方向移动至 460 nm 附近, 并且强度急剧下降, 激发峰也向短波方向移动. 这样, 在室温时发光主要是 Ce1 占主导^[44]. 施朝淑等人^[55]曾对

图 2 不同温度下 $\text{GSO}:\text{Ce}$ 的发射谱
激发波长为 345 nm (Ce^{3+} 格位 1)

图 3 不同温度下 $\text{GSO}:\text{Ce}$ 的发射谱
激发波长为 378 nm (Ce^{3+} 格位 2)

$\text{GSO}:\text{Ce}$ 进行过真空紫外(VUV)激发的发光研究, 发现在 189 nm 的 VUV 激发下温度直至 453 K 都未出现温度猝灭, 并且观察到了两个新的发射带分别位于 581 和 652 nm, 这可能来源于 Ce2 中心或某些缺陷中心; 在低温(6 K)时, 450 nm 发射的 VUV 激发谱中, 出现了一个位于 6.5 eV 的窄带和一个位于 22.5 eV 的宽带激发, 前者是与“价带-导带”跃迁相关的激发, 后者则是 Gd^{3+} 的 $5p, 5d$ 芯能级的混合态的激发. 在室温和低温(4 K)下 $\text{LSO}:\text{Ce}$ 的发光光谱见图 4. $\text{LSO}:\text{Ce}$ 在 11 K 时的激发峰位于 356 nm (Ce1)和 376 nm (Ce2), 发射位于 393, 427 (Ce1)和 460 nm (Ce2)^[42]. 室温以上的发光位于 410 ~ 440 nm 之间, 但不同的样品表现出不同的情况, 激发谱也有较大差别^[46], 这可能是生长技术不成熟所致, 晶体中会有很多的缺陷和陷阱影响着发光的特性.

在 PET 应用领域里, $\text{LSO}:\text{Ce}$ 是最好的 BGO 的

图 4 LSO : Ce 的室温和低温发射谱
激发波长为 188 nm

替代品, LSO 在光产额、密度和衰减时间方面均优于 BGO. 但目前发展 LSO 面临的主要困难是 Lu_2O_3 的成本很高, 另一个难题是它的光输出稳定性差, 这不仅是不同 LSO : Ce 单晶的光输出有差别, 而且同一块单晶不同部位的光输出也不同^[48]. 关于 LSO : Ce 光输出不稳定性的研究也较多^[46,50], 认为造成不稳定性的原因是 LSO : Ce 中存在两种不同的发光中心 Ce1 和 Ce2, 常温下 LSO : Ce 的发光是两种发光中心发光的总合, 这就造成了能量分辨率的降低, 662 keV 的分辨率为百分之十几, 对于质量不好的单晶, 能量分辨率则更差. 而 GSO : Ce 虽然光产额低于 LSO : Ce, 与 BGO 相当, 密度比 BGO 稍低, 但衰减比 BGO 快很多. GSO : Ce 中也存在两个发光中心 Ce1 和 Ce2, 但在室温下 Ce2 的发光发生猝灭^[46], 所以只有发光中心 Ce1 是有效的发光中心, 因此其发光的稳定性就比 LSO : Ce 高, 导致其能量分辨率也高于 LSO : Ce. 所以 GSO : Ce 也可以替代 BGO 作为 PET 系统的闪烁体.

4 光产额随激发能量增加的非线性响应与闪烁体的本征能量分辨率

一个理想闪烁体产生的闪烁光子数目应该正比于入射的能量, 但这种理想情况没有观察到, 而是都存在一定的非线性响应^[56]. 1956 年, 人们首次发现 NaI(Tl) 的闪烁光子分布不是严格按照泊松分布^[57], 并且其分布有一些明显的附加增宽, 叫做闪烁体本征能量分辨率. 几乎同时, NaI(Tl) 光产额能量变化的非线性变化现象被观察到^[58]. 最初这两种特性被独立研究, 直到 1961 年 Iredale^[59]和 Zerby 等人^[60]报道

了 NaI(Tl) 光产额的非线性现象是产生本征能量分辨率的一个重要的起源. 近年来, 有关医用闪烁体的能量分辨率及光产额的非线性响应研究十分活跃^[61~65]. 几乎所有闪烁体都有非线性的能量响应, 例如 LSO 有着十分明显的亚线性增长, 当能量大于 800 keV 以上时, 其光产额几乎不再增长^[51]. 但 YAP : Ce 却是一个例外, 表现出了几乎线性增长的现象^[18]. 最近的研究表明能量的非线性响应与晶体结构直接相关, 而与掺杂元素无关^[18]. GSO, YSO 和 YSO 有着十分相似的能量响应. LuAP : Ce 与 YAP : Ce 具有相同的晶体结构, 应该有相似的线性响应, 但目前的实验表明 LuAP : Ce 与 YAP : Ce 有很大差别, 没有表现出线性响应, 这可能与目前 LuAP : Ce 的生长技术不成熟使晶体中有较多的缺陷有关^[65].

能量分辨率定义为: 谱仪对某种单色 γ 射线能谱中全能峰的半高宽度(FWHM)除以峰值所对应的能量, 表达式为: $\Delta E/E$. ^{137}Cs 的 γ 射线谱为典型的单能 γ 谱, 发射能量为 662 keV 的 γ 射线, 常用作鉴定谱仪能量分辨率及能量定标的标准源. 能量分辨率不但与仪器有关, 同时还和闪烁体的本征能量分辨率有关.

对于闪烁体与光电倍增管耦合的能量分辨率有如下关系^[61]:

$$(\Delta E/E)^2 = (\delta_{\text{sc}})^2 + (\Delta N/N)^2,$$

这里 δ_{sc} 代表闪烁体的本征能量分辨率, $\Delta N/N$ 代表光电子统计分布. 晶体的本征能量分辨率是与许多晶体内部效应(例如光产额能量响应的非线性效应、晶体内部的不均匀导致的光输出的不一致、晶体表面反射率的不一致性等)相联系的. 光电子的统计分布可写为

$$\Delta N/N = 2.36 \times (1 + \varepsilon)^{1/2} / N^{1/2},$$

这里 N 是光电子数, ε 是光电倍增管倍增极倍增系数的变化, 例如对于 XP2020Q 光电倍增管的典型值是 0.1.

对于雪崩光电二极管(APD)与闪烁体耦合的能量分辨率可以表示为^[48]

$$(\Delta E/E)^2 = (\delta_{\text{sc}})^2 + (\Delta N/N_{\text{e-h}})^2 + (\Delta_{\text{noise}}/N_{\text{e-h}})^2,$$

这里 $\Delta N/N_{\text{e-h}}$ 代表电子空穴对的统计分布, $\Delta_{\text{noise}}/N_{\text{e-h}}$ 代表噪声分布. APD 的信号精度受噪声系数 F 影响, 反映 APD 增益的波动.

$$\Delta N/N_{\text{e-h}} = 2.36(F / N_{\text{e-h}})^{1/2},$$

这里 $N_{\text{e-h}}$ 是电子空穴对的数目. 通过公式计算可以得出仪器的噪声分布引起的分辨率, $\Delta E/E$ 可以直接

从 γ 谱中计算出来, 因此闪烁体的本征能量分辨率 δ_{sc} 就可以得到了. 对于使用高光产额的闪烁探测器, 其能量分辨率主要决定于闪烁体的本征能量分辨率, 例如 CsI(Tl), NaI(Tl) 和 LSO. 因此改善高光产额闪烁体的本征能量分辨率是十分重要的, 它是提高闪烁探测器能量分辨率的关键, 这也是为什么近年来对于高亮度的新型医用闪烁体的本征能量分辨率广泛研究的重要原因. 对于 SPECT 和 PET 系统, 虽然探测的是能量固定的 γ 光子, 但由于光子在经过人体出射的过程中, 部分光子受到康普顿散射改变了出射方向并有能量损失, 这样在能谱中全能峰的低能侧会出现康普顿散射峰, 所以能量分辨率对于 SPECT 和 PET 系统也是十分重要的.

Valentine 等人^[64]发展了一套由闪烁体能量响应的非线性引起的本征能量分辨率的理论计算公式, 他们把能量响应分为电子能量响应与 γ 光子能量响应分别计算, 计算结果与实验符合得很好.

5 总结与展望

医用射线成像技术对闪烁体的基本要求是高发光效率、短辐射长度、快发光衰减、高密度、好的能量分辨率、光谱匹配良好和低成本. 不同的成像模式对于闪烁体要求的侧重点可能不完全相同. 传统的医用闪烁体 NaI(Tl) 和 BGO 等由于有些性能不能满足要求, 还有待改善和进一步探索, 在探索新的闪烁体时, 模仿已有的闪烁体, 从相同的结构, 相同化合价元素及相近元素和相近半径互换, 相同化学比等因素出发, 是一个探索新型闪烁体的有效方法. 医用闪烁体的探索过程中人们也利用了上述方法.

发光的高效率是医用闪烁体的最重要的要求, 这与成像时人体接受的射线剂量直接相关, 含氧酸盐是高效率的发光材料, 通常它们的发光效率大大高于氟化物. 探索高效的医用闪烁体应该在含氧酸盐中寻找.

高密度的基质材料可以利用原子序数大的元素, 例如 $Y_2SiO_5:Ce$ 是效率较高的传统闪烁体, 利用 Gd 或 Lu 去替代 Y 则可以获得更高密度的闪烁体, 同时它们的发光效率也有提高, 特别是 Lu 的化合物. 虽然目前 Gd 和 Lu 的价格远高于 Y, 还不能大规模的使用, 但随着提纯技术的提高、应用领域的开拓和需求量的增大其价格将会下降到可以接受的范围. 目前对含 Gd 和 Lu 的闪烁体的研究十分活跃. 选择稀土化合物基质的另一个好处是有利于其他稀土离子

的掺杂(由于它们可以有相同的价态和接近的离子半径).

快衰减发光的获得可以是掺杂稀土离子的稀土化合物基质, 如 Ce^{3+} 化合物, 利用稀土离子的 $5d \rightarrow 4f$ 快发光过程是获得快发光衰减的重要手段, 其中以 Ce^{3+} 的掺杂得最多, 其发光衰减是纳秒级的, 可以满足医用成像设备对时间分辨的要求. 其次是 Pr^{3+} , 它的 $5d \rightarrow 4f$ 的发光同样可以到纳秒级, 它是 5d 态能级仅高于 Ce^{3+} 的稀土元素. 如果要在一个基质中得到 Ce^{3+} 的高效发光, 基质的能隙必须大于相应基质中 Ce^{3+} 的 5d 和 4f 能级差.

根据以上所述, 掺 Ce^{3+} 的材料是人们目前研制新型医用闪烁体的一个焦点, 近年来正在被广泛研究的有 LuAP:Ce, GSO:Ce 和 LuSO:Ce 等. 虽然光产额不如 NaI(Tl), 但它们都是快发光衰减、高密度的闪烁体, 是未来理想的 PET 和 SPECT 系统的探测材料. 目前它们离实际使用还有一段距离, 主要问题在于完善晶体生长技术、提高闪烁体的稳定性、进一步提高光产额、改善能量分辨率. 有关闪烁机制的研究还需要继续深入下去, 特别是对发光中心、缺陷和陷阱对发光的影响等问题需要更多的了解.

致谢 国家自然科学基金资助项目(批准号: 59732040, 19774053).

参 考 文 献

- 1 高上凯. 医学成像系统. 北京: 清华大学出版社, 2000. 1
- 2 Moses W W. Scintillator requirements for medical imaging. In: Proceedings of SCINT99, International Conference on Inorganic Scintillators and Their Application. Moscow: Moscow State University, 1999. 11~21
- 3 Moy J P. Recent developments in X-ray imaging detectors. Nucl Instr Meth A, 2000, 442: 26~37
- 4 Anger H O. Scintillation camera. Rev Sci Instr, 1958: 27~33
- 5 Singh M, Waluch V. Physics and instrumentation for imaging in-vivo drug distribution. Advanced Drug Delivery Review, 2000, 41: 7~20
- 6 Brixner H L. New X-ray phosphors. Mater Chem Phys, 1987, 16: 253~281
- 7 Hofstadter R. Alkali halide scintillation counters. Phys Rev, 1948, 74: 100~101
- 8 Weber M T, Monchamp R R. Luminescence of $Bi_4Ge_3O_{12}$: spectral and decay properties. J Appl Phys, 1973, 44: 5495~5499
- 9 Lecoq P, Korzhik M. Scintillator developments for high energy physics and medical imaging. IEEE Trans Nucl Sci, 2000, 47: 1311~1314
- 10 Weber M T. Optical spectra of Ce^{3+} and Ce^{3+} -sensitized fluorescence in $YAlO_3$. J Appl Phys, 1973, 44: 3205~3208

- 11 Takeda T, Miyata T, Muramatsu F, et al. Fast decay UV phosphor-YAlO₃:Ce. *J Electrochem Soc*, 1980, 127: 438~444
- 12 Autrata R, Schauer P, Kvapil J, et al. A single crystal of YAlO₃:Ce³⁺ as a fast scintillator in SEM. *Scanning*, 1983, 5: 91~96
- 13 Barishevski V G, Korzhik V G, Moroz M V, et al. YAlO₃:Ce fast acting scintillators for detection of ionizing radiation. *Nucl Instr Meth B*, 1991, 58: 291~293
- 14 Tomiki T, Ishikawa H, Tashiro T, et al. Ce³⁺ centers in YAlO₃(YAP) single crystals. *J Phys Soc Jpn*, 1995, 64: 4442~4449
- 15 Dujardin C, Pedrini C, Gacon J C, et al. Luminescence properties and scintillation mechanisms of Ce- and Pr-doped lutetium orthoaluminate. *J Phys: Condensed Matter*, 1997, 8: 5229~5243
- 16 Moses W W, Derenzo S E, Fyodorov A, et al. LuAlO₃:Ce-a high density, high speed scintillator for gamma detection. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1995, 42: 275~279
- 17 Mares J A, Nikl M, Chval J, et al. Fluorescence and scintillation properties of LuAlO₃:Ce crystal. *Chem Phys Lett*, 1995, 241: 311~316
- 18 Belsky A N, Dujardin C, Pedrini C, et al. Status of development of YAP-LuAP mixed scintillators, optical, luminescence and light yield studies. In: *Proceedings of SCINT99, International Conference on Inorganic Scintillators and Their Application*, Moscow: Moscow State University, 1999. 363~368
- 19 Petrosyan A G, Shirinyan G O, Ovanesyan K L, et al. Characterization of Bridgman and Czochralski grown LuAP and LuYAP single crystal. In: *Proceedings of SCINT99, International Conference on Inorganic Scintillators and Their Application*, Moscow: Moscow State University, 1999. 408~412
- 20 Petroyan A G, Ovanesyan K L, Shirinyan G O, et al. Growth and light yield performance of dense Ce³⁺-doped (Lu,Y)AlO₃ solid solution crystals. *Journal of Crystal Growth*, 2000, 211: 252~256
- 21 Loutts G B, Zagumennyi A I, Lavrishchev S V, et al. Czochralski growth and characterization of (Lu_{1-x}Gd_x)₂SiO₅ single crystals for scintillators. *Journal of Crystal Growth*, 1997, 174: 331~336
- 22 Lempicki A, Brecher C, Wisniewski D, et al. Lutetium aluminate: spectroscopic and scintillation properties. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1996, NS-43:1316~1320
- 23 Petrosyan A G, Pedrini C. Preparation of single phase LuAlO₃:Ce scintillator crystals. In: *Proceedings of SCINT95, International Conference on Inorganic Scintillators and Their Application*. The Netherlands: Delft University Press, 1996. 498~501
- 24 Dujardin C, Pedrini C, Blanc W, et al. The study of small and large size LuAlO₃:Ce³⁺. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1998, NS-45: 467~475
- 25 Mares J A, Nikl M. Energy transfer, fluorescence and scintillation processes in cerium-doped Re³⁺AlO₃ fast scintillators. *Acta Phys Pol*, 1996, 90: 45~51
- 26 Petroyan A G, Shirinyan G O, Ovanesyan K L, et al. Bridgman single crystal growth of Ce-doped(Lu_{1-x}Y_x)AlO₃. *Journal of Crystal Growth*, 1999, 198-199: 492~496
- 27 Chval J, Clement D, Giba J, et al. Development of new mixed Lu_x(RE³⁺)_{1-x}AP:Ce scintillators (RE³⁺=Y³⁺ or Gd³⁺): comparison with other Ce-doped or intrinsic scintillating crystals. *Nucl Instr Meth A*, 2000, 443: 331~341
- 28 Mares J A. Spectroscopy and characterization of Ce³⁺-doped pure or mixed Lu_x(RE³⁺)_{1-x}AlO₃ scintillators. *J Alloys and Compound*, 2000, 300-301: 95~100
- 29 Belsky A N, Dujardin C, Pedrini C, et al. Status of development of YAP-LuAP mixed scintillators, optical, luminescence and light yield studies. In: *Proceedings of SCINT99, International Conference on Inorganic Scintillators and Their Application*. Moscow: Moscow State university, 1999. 363~368
- 30 Wojtowicz A J, Drozdowski W, Wisniewski D, et al. Thermoluminescence and scintillation of LuAlO₃:Ce. *Radiation Measurements*, 1998, 29: 323~326
- 31 Vedda A, Martini M, Meinardi F, et al. Tunneling process in thermally stimulated luminescence of mixed Lu_xY_{1-x}AlO₃:Ce crystals. *Physical Review B*, 2000, 61: 8081~8086
- 32 Bartram R H, Hamilton D S, Kappers L A, et al. Electron traps and transfer efficiency of cerium-doped aluminates scintillators. *Journal of Luminescence*, 1997, 75: 183~192
- 33 Glodo J, Wojtowicz A J. Thermoluminescence and scintillation properties of LuAP and YAP. *Journal of Alloys and Compounds*, 2000, 300-301: 289~294
- 34 Wojtowicz A J, Glodo J, Drozdowski W, et al. Electron traps and scintillation mechanism in YAlO₃:Ce and LuAlO₃:Ce scintillators. *Journal of Luminescence*, 1998, 79: 275~291
- 35 Lempicki A, Glodo J. Ce-doped scintillators: LSO and LuAP. *Nucl Instr Meth A*, 1998, 416: 333~344
- 36 Mares J A, Cechova N, Nikl M, et al. Cerium-doped RE³⁺AlO₃ perovskite scintillators: spectroscopy and radiation induced defects. *Journal of Alloys and Compounds*, 1998, 275-277: 200 ~ 204
- 37 Melcher C L, Schweitzer J S, Peterson C A, et al. Crystal growth and scintillation properties of the rare earth oxyorthosilicates. In: *Proceedings of SCINT95, International Conference on Inorganic Scintillators and Their Application*. The Netherlands: Delft University Press, 1996. 309~312
- 38 LU Y S, Mao C S, Tang X W. Application of scintillation crystals in nuclear medicine. In: *Proceedings of SCINT97, International Conference on Inorganic Scintillators and Their Application*. Shanghai: Shanghai State Ceramics, 1997. 18
- 39 Takagi K, Fukazawa T. Cerium-activated Gd₂SiO₅ single crystal scintillator. *Appl Phys Lett*, 1983, 42: 43~45
- 40 Ishibashi H, Kurashige K, Kurata Y, et al. Scintillation performance of large Ce-doped GSO single crystal. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1998, 45: 518~521
- 41 Surti S, Karp J S, Freifelder R. Optimizing the performance of a PET detector using discrete GSO crystals on a continuous light-guide. *IEEE Trans Nucl Sci*, 2000, 47: 1030~1036

- 42 Karp J, Adam L E, Freifelder R, et al. High-resolution GSO-based brain PET camera. In: Conference Record of the 1999 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference. Seattle: IEEE Xplore, 1999. M4~8
- 43 Melcher C L, Schweitzer J S. A promising new scintillator: cerium-doped lutetium oxyorthosilicate. *Nucl Instr Meth A*, 1992, 314: 212~214
- 44 Suzuki H, Tombrello T A, Melcher C L, et al. Light emission mechanism of $\text{Lu}_2(\text{SiO}_4)\text{O} : \text{Ce}$. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1993, 40: 380~383
- 45 Naud J D, Tombrello T A, Melcher C L, et al. The role of cerium sites in the scintillation mechanism of LSO. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1996, 43: 1324~1328
- 46 Saoudi A, Pepin C, Houde D, et al. Scintillation light emission studies of LSO scintillators. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1999, 46: 1925~1928
- 47 Moses W W, Derenzo S E. Prospects for time-of-flight PET using LSO scintillator. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1999, 46: 474~478
- 48 Melcher C L, Schmand M, Eriksson M, et al. Scintillation properties of LSO : Ce boules. *IEEE Trans Nucl Sci*, 2000, 47: 965~968
- 49 Kapusta M, Moszynski M, Balcerzyk M, et al. Comparison of the scintillation properties of LSO : Ce manufactured by different laboratories and of LGSO : Ce. *IEEE Trans Nucl Sci*, 2000, 47: 1341~1345
- 50 Antich P, Parkey R, Tsyganov E, et al. Comparison of LSO samples produced by Czochralsky and modified Musatov methods. *Nucl Instr Meth A*, 2000, 441: 551~557
- 51 Moszynski M, Balcerzyk M, Kapusta M, et al. Large size LSO : Ce and YSO : Ce scintillators for 50 MeV range γ -ray detector. *IEEE Trans Nucl Sci*, 2000, 47: 1324~1328
- 52 Lecomte R, Pein C, Roulean D, et al. Investigation of GSO, LSO and YSO scintillators using reverse avalanche photodiodes. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1998, 45: 478~482
- 53 Yamamoto S. Performance evaluation of LGSO scintillator PET application. *Radioisotopes*, 1998, 47: 673~677
- 54 Pichler B J, Boniy G, Rafecas M, et al. LGSO scintillation crystals coupled to new large area APDs compared to LSO and BGO. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1999, 46: 289~291
- 55 Shi C S, Han Z F, S Huang S H, et al. Temperature effects of Ce^{3+} emission from $\text{Gd}_2\text{SiO}_5 : \text{Ce}$ and their high excitation states. *J Elec Spect*, 1999, 101-103: 633~635
- 56 Mengesha W, Taulbee T D, Rooney B D. Light yield nonproportionality of CsI(Tl), CsI(Na) and YAP. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1998, 45: 456~461
- 57 Kelley G G, Bell P R, Davis R C, et al. Intrinsic scintillator resolution. *IRE Trans Nucl Sci*, 1956, NS-3: 57~58
- 58 Engelkmeir D. Nonlinear response of NaI(Tl) to photons. *Rev Sci Instr*, 1956, 27: 589~591
- 59 Iredale P. The effect of the non-proportional response of NaI(Tl) crystals to electrons upon the resolution for γ -rays. *Nucl Instr Meth*, 1961, 11: 340~346
- 60 Zerby C D, Meyer A, Murray R B. Intrinsic line broadening in NaI(Tl) gamma-ray spectrometers. *Nucl Instr Meth*, 1961, 12: 15~122
- 61 Moszynski M, Kapusta M, Wolski D, et al. Energy resolution of scintillation detectors readout with large area avalanche photodiodes and photomultipliers. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1998, 45: 472~477
- 62 Balcerzyk M, Moszynski M, Kapusta M, et al. YSO, LSO, GSO and LGSO, a study of energy resolution and nonproportionality. *IEEE Trans Nucl Sci*, 2000, 47: 1319~1323
- 63 Moszynski M, Kapusta M, Zalipska J, et al. Low energy γ -rays scintillation detection with large area avalanche photodiodes. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1999, 46: 880~885
- 64 Valentine J D, Rooney B D, Li J. The light yield nonproportionality component of scintillator energy resolution. *IEEE Trans Nucl Sci*, 1998, 45: 512~517
- 65 Balcerzyk M, Moszynski M, Kapusta M. Energy resolution of contemporary scintillators quest for high resolution, proportional detector. In: Proceedings of SCINT99, International Conference on Inorganic Scintillators and Their Application. Moscow: Moscow State University, 1999. 167~172

(2001-06-18 收稿, 2001-11-30 收修改稿)