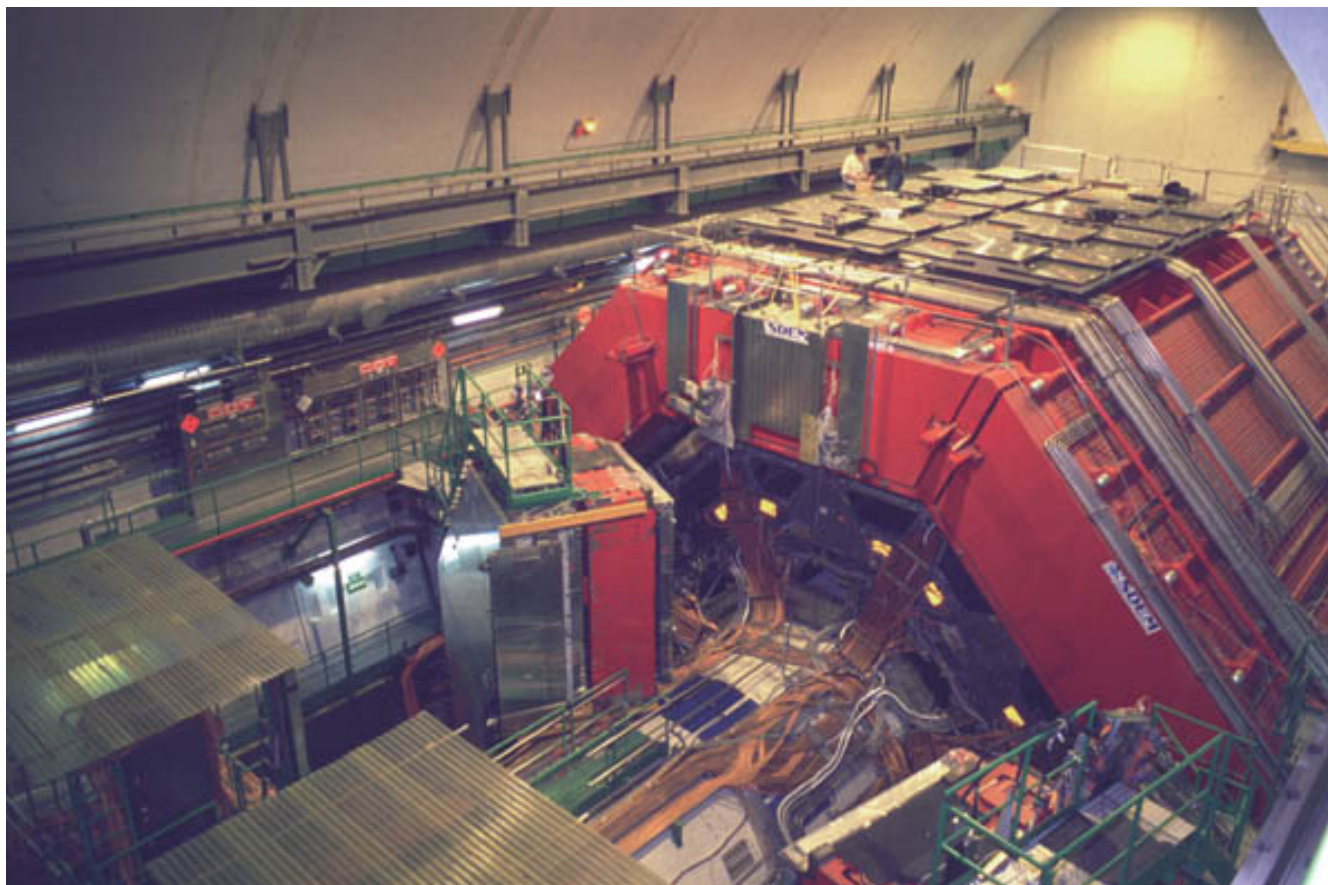


Niet voor een gat te vangen

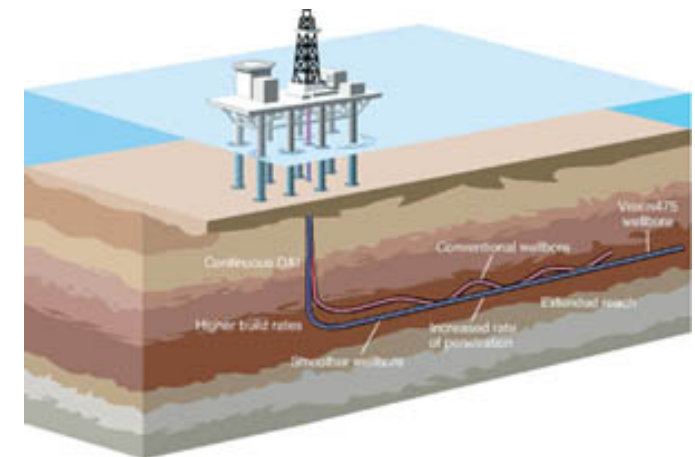
*Meer zien met
minder (straling)*



DOOR JOOST VAN KASTEREN

Röntgen- en gammastraling worden op grote schaal gebruikt in ziekenhuizen, laboratoria, in de industrie en in de mijnbouw. Er zijn verschillende manieren om de straling «zichtbaar» te maken, zoals scintillatoren, films en halfgeleidermaterialen. Scintillatoren zijn kristallen die ioniserende straling omzetten in zichtbaar licht. Op dat gebied valt er nog wel het een en ander te verbeteren. Zo zijn sommige kristallen erg moeilijk te maken of zijn ze traag in responstijd. Op zoek naar betere kristallen kwam promovendus Hans van 't Spijker uit bij bromide- of chlorideverbindingen. Die blijken behoorlijk efficiënt, zodat het mogelijk wordt om met minder

De L3 detector van het CERN, het Europese instituut in Genève waar met deeltjesversnellers onderzoek wordt gedaan naar de eigenschappen van elementaire deeltjes, is 16 x 16 meter groot en weegt 8500 ton. In de lep-versneller (27 km lang) worden botsingsexperimenten uitgevoerd met elektronen en positronen om nieuwe deeltjes (quarks) te ontdekken. Binnen de rood geschilderde magneet bevinden zich verschillende typen stralingsdetectoren. Daaronder zijn zo'n 10.000 kristallen (scintillatoren) die licht uitzenden wanneer er elementaire deeltjes op vallen.



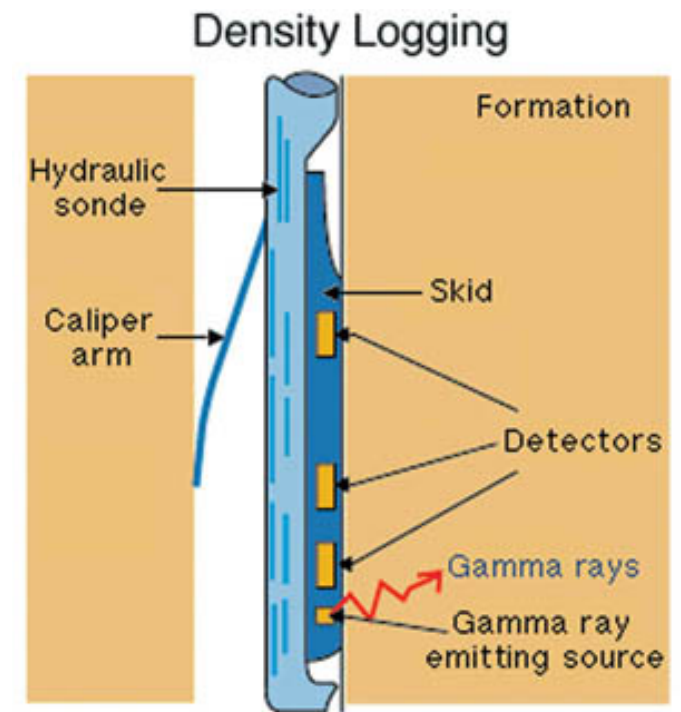
Om te bepalen of een boorput olie en/of gas bevat, worden in de put verschillende sondes neergelaten die verschillende meetinstrumenten bevatten, onder meer een gammabron met scintillatiedetector.

straling méér te zien.

Radioactieve straling wordt op ruime schaal toegepast. Röntgenstraling bijvoorbeeld wordt gebruikt voor medische diagnostiek en therapie, maar ook voor niet-destructief onderzoek van materialen bijvoorbeeld om te kijken of een verbinding goed is gelast. Gammastraling wordt eveneens gebruikt in de medische diagnostiek maar ook bijvoorbeeld om boorputten te onderzoeken. Om straling te kunnen gebruiken voor diagnose, heb je niet alleen een stralingsbron nodig maar ook een middel om de uitgezonden straling te detecteren. Dr. ir. Hans van 't Spijker promoveerde op een onderzoek naar nieuwe materialen voor het detecteren van gammastraling.

De tandarts bijvoorbeeld maakt gebruik van een fotografische plaat voor het maken van een röntgenfoto. Even een envelopje tegen de kies aan houden, een seconde belichten met röntgenstraling en binnen een paar minuten weet je of er nog wat geboord en gevuld moet worden. De fotografische plaat is echter voor veel toepassingen niet echt handig, meent dr.ir. Pieter Dorenbos, universitair docent bij de Afdeling Instrumentatie Stralingsonderzoek van het Interfacultair Reactor Instituut. Hij was de begeleider van Van 't Spijker en doet al jaren onderzoek naar nieuwe detectoren; niet alleen voor gamma- en röntgenstraling maar ook voor neutronenstraling. Onhandig is dat fotografie een chemisch procédé is, tegenwoordig wil men de informatie liever digitaal, want daarmee kan de informatie worden bewerkt.

Stofwisselingsprocessen Dat bewerken gebeurt op grote schaal in diagnosetechnieken als computertomografie (CT) en positron-emissie-tomografie (PET). Bij computertomografie wordt een lichaamsdeel vanuit verschillende hoeken belicht door röntgenstraling om een doorsnede van het lichaam te maken. PET wordt in de medische wereld gebruikt voor het zichtbaar maken van stofwisselingsprocessen in het menselijk lichaam. Anders dan bij röntgendiagnostiek komt de te meten straling niet van buiten, maar van binnenuit het lichaam, meer in het bijzonder van radioactieve stoffen, die snel vervallen. Het principe is het volgende: de patiënt krijgt een stof toegediend die een rol speelt bij de stofwisseling in bijvoorbeeld de hersenen. Een van de atomen in de verbinding is vervangen door een radioactieve isotoop en produceert bij verval een positron, een positief geladen deeltje met een lading gelijk aan, maar tegengesteld aan die van een elektron. Het vrijkomende positron annihileert vrijwel onmiddellijk met een elektron uit het weefsel. Daarbij komen twee kwanta (foton) gammastraling vrij, die - buiten het lichaam - kunnen worden gedetecteerd. Ook is na te gaan op welke plaats binnen het orgaan die kwanta worden geproduceerd. Als er maar genoeg radioactieve kernen vervallen, kan er een tijdsopname worden gemaakt van het



De gammastraling komt in de poreuze laag terecht, een gedeelte vloeit weer terug en kan worden gemeten door de detector. De mate van energieverlies geeft informatie over de laag. (Afbeelding: Anadrill Schlumberger)

verloop van de stofwisseling in een bepaald orgaan.

Vonker

Nauwkeurig detecteren van de bij PET uitgezonden gammastraling is essentieel voor de diagnose. Op de eerste plaats is er behoefte aan een scherpe afbeelding, dat wil zeggen een beeld met een plaatsresolutie van twee millimeter of minder. Ook de meettijd is van belang. Om een afbeelding te maken van de hersenen, moeten er zo'n 500 miljoen positron-elektron annihilaties worden waargenomen. Om dat binnen een redelijke tijd te kunnen doen, zijn detectoren nodig die de fotonen efficiënt kunnen detecteren.

Detectie gebeurt door middel van scintillatie. De gammakwanta worden 'ingevangen' (geabsorbeerd) in een kristal en omgezet in licht, dat vervolgens wordt gedetecteerd door, bijvoorbeeld, een fotodiode. De diode maakt er een elektrisch signaal van waarmee kan worden gerekend. Het lichtpulsje dat wordt gegenereerd door de gammastraling wordt scintillatie genoemd, naar het Latijnse woord voor vonk, scintilla. Het materiaal dat de energie van het gammafoton omzet in licht heet bijgevolg een scintillator, ofwel een 'vonker'.

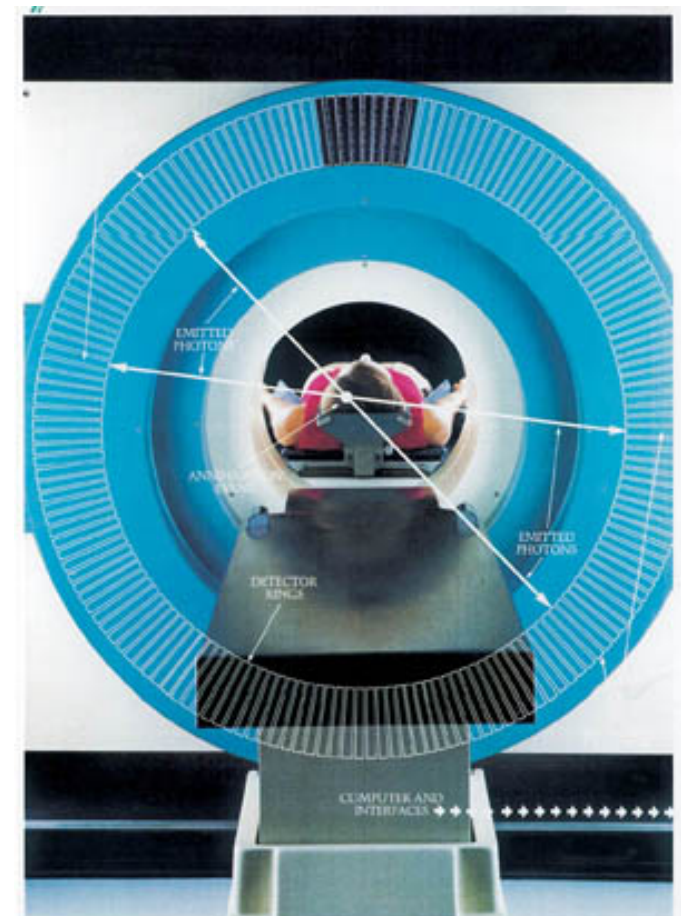
Keukenzout

Scintillators werden al snel na de ontdekking van röntgenstraling (in 1895) gebruikt. Wilhelm C. Röntgen (1845-1923) gebruikte zelf een scintillator om de later naar hem vernoemde straling te detecteren. Bij bestraling van een glasplaat, bestreken met barium platinocyanide, gingen de bestraalde delen van de plaat fluoresceren. Een paar maanden na de ontdekking door Röntgen, vond Edison, dat calciumwolframaat nog beter voldoet. Sinds die tijd zijn vele scintillators ontdekt en beproefd, waaronder oxiden, sulfiden en haliden van cadmium, cesium, bismut en gadolinium (een van de zeldzame aarden). Haliden zijn verbindingen van fluor, broom, chloor en jodium. Een van de meeste gebruikte scintillator-materialen is natriumjodide (ook een halide) met thallium, dat dezelfde kristalstructuur heeft als keukenzout.

In het algemeen zijn de scintillators goed doorzichtige kristallen. Dorenbos laat een blokje bismut-germanaat zien; helder als glas, maar een stuk zwaarder. Het wordt gemaakt door een poeder te smelten in een oven en dat vervolgens heel langzaam uit de smelt te trekken. Het maken van een groot kristal (50 cm) kan soms weken duren. Tijdens het afkoelen ontstaan min of meer regelmatige kristalroosters. «Min of meer», omdat zo'n rooster altijd wel wat defecten bevat. Bovendien wordt er vaak bewust een verontreiniging aan toegevoegd, die ervoor zorgt dat de scintillator licht uitzendt.

Fotomultiplicator

'Op dit moment is er grote behoefte aan efficiëntere scintillators', stelt Van 't Spijker.



Bij een Positron Emissie Tomografie-camera (PET) wordt gekeken naar stofwisselingsprocessen in het lichaam. Hierbij wordt gebruik gemaakt van het verschijnsel dat er twee gamma kwanta tegelijkertijd en in tegengestelde richting worden uitgezonden wanneer een elektron met een positron annihileert («reageert»). Om bijvoorbeeld de doorstroming van het hart in beeld te brengen, moet de patiënt een radioactief drankje innemen. Door daarna de straling te meten, kan met zo'n 500.000 annihilaties een beeld worden gevormd van de hartstreek.

'Wanneer je de detectie-doelmatigheid van de scintillator kunt vergroten, heb je minder gammastraling nodig om hetzelfde resultaat te bereiken. Ook de «scan»-tijd kan korter worden. Beide zijn gunstig voor de patiënt.' Een andere aanleiding is, volgens Dorenbos, dat er op het moment een verschuiving gaande is in de methode om het scintillatielicht te meten. In het verleden en nu ook nog wordt er gebruik gemaakt van fotomultiplicatorbuizen, zeg maar een omgekeerd TV-toestel. Het licht valt op een fotokathode. Daarbij ontstaat een elektron dat door de buis naar de anode vliegt en daar een stroompje veroorzaakt. Fotomultiplicatorbuizen nemen nogal wat ruimte in en zeker in de medische diagnostiek is dat een nadeel. Fotodiodes zijn compacter. Als de fotomultiplicatoren worden vervangen door diodes kunnen er meer scintillatiekristallen worden gemonteerd, waardoor de resolutie verbetert.

'Bovendien', zo vult Dorenbos aan, 'zijn ze ook relatief duur. Daarom gebruikt men liever fotodiodes, alleen werken die echter vooral in het rode gebied, terwijl de meeste scintillators licht afgeven met een golflengte in het blauwe en ultraviolette gebied. Ook om die reden is er behoefte aan andere typen scintillators.' Naast deze praktische overwegingen is de zoektocht naar nieuwe, verbeterde scintillators ook geïnspireerd door wetenschappelijke nieuwsgierigheid, vertelt Dorenbos. 'Scintillatie is een vrij ingewikkeld proces, waarbij op atomair niveau verschillende fenomenen een rol spelen. Omdat we nog niet precies weten hoe het werkt, is onderzoek naar scintillatie ook wetenschappelijk een uitdaging.'

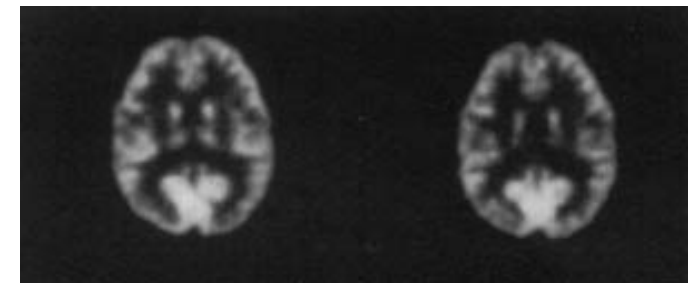
Bindingsenergie

Het mechanisme van scintillatie bestaat uit vier stappen, vertelt Van 't Spijker. Het begint met de absorptie van de gammakwanta. Absorptie gebeurt door interactie met de atomen van het kristalrooster van de scintillator. Doordat de kwanta een hoge energie hebben -in de orde van 1 Mega-elektronvolt (mev)- zijn er behoorlijk zware materialen nodig om die interactie tot stand te brengen. Zwaar slaat in dit geval op de atoomkern. Hoe zwaarder deze is, hoe hoger de bindingsenergie van de elektronen die eromheen cirkelen. Hoe hoger die energie is, hoe groter de kans op interactie.

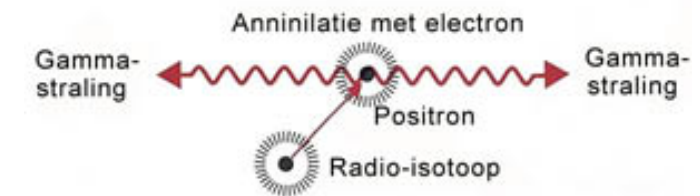
Dorenbos: 'Daarom wordt meestal lood als afscherming gebruikt tegen straling. Bij lichte materialen schiet een gammakwant er gewoon doorheen, maar bij lood wordt hij al na enkele millimeters afgestopt.'

Klap

De gammakwant heeft zoveel energie dat die met gemak een elektron van een van de atomen in het kristalrooster uit zijn baan om de kern schiet. Het gaat om een elektron in een van de binnenschillen van het atoom. Door de klap beschikt het elektron over bijna evenveel energie als het oorspronkelijke gammakwant. Het



Doorsneden van het hoofd, gemeten met de PET-scanteknik.



losgeslagen elektron ploegt door het kristal en ontketent een waterval aan ionisatiereacties. Elektronen worden in groten getale uit de buitenste schil, de valentieband, naar de geleidingsband geschoten. Afhankelijk van het gebruikte kristal kunnen dat er wel 50.000 tot 100.000 zijn, stelt Dorenbos. De afstand waarover de waterval aan ionisaties zich voordoet ligt in de orde van 1 millimeter. De tijdspanne bedraagt minder dan 1 miljardste van een seconde.

Lichtgeven centrum

De losgeslagen elektronen in de geleidingsband vallen na enige tijd weer terug naar hun oorspronkelijke energieniveau en gaan weer braaf hun banen rond de atoomkern draaien. Een aantal ervan is echter door het kristalrooster gemigreerd en terechtgekomen bij een afwijkend atoom in het kristalrooster, aangeduid als het luminescentiecentrum, ofwel het lichtgevend centrum. Van 't Spijker: 'Het kristal bevat ongeveer een half procent van deze centra, waardoor lokaal andere energieniveaus ontstaan. Als een elektron hier terugvalt naar de buitenste schil, dan gebeurt dat onder het uitzenden van een foton. Licht dus, dat kan worden waargenomen.'

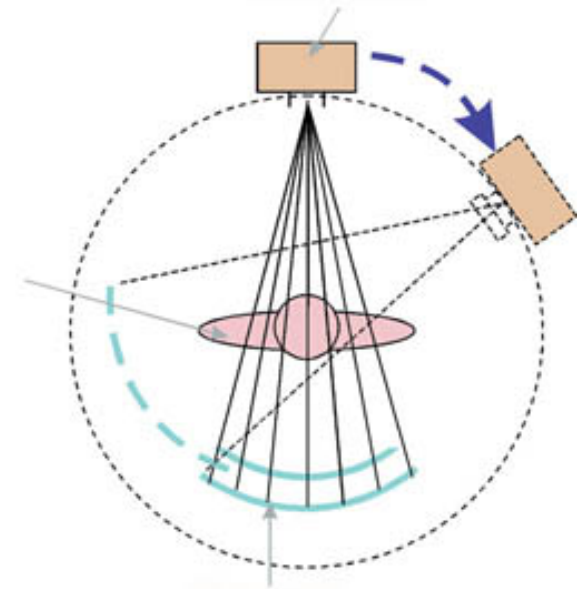
De efficiëncy van de scintillator wordt door een aantal factoren bepaald. Allereerst natuurlijk door de efficiëncy waarmee de gammakwanten worden ingevangen en omgezet in elektronen die uit de (valentie-)band springen. Daarvoor zijn, zoals gesteld, zware atomen nodig. Een andere belangrijke factor is de efficiëncy waarmee de elektronen migreren naar de luminescentiecentra, die de fotonen moet produceren.

Dorenbos: 'Voor een deel hangt dat samen met de defecten in het materiaal. Die kunnen al in het materiaal aanwezig zijn, maar de defecten kunnen ook worden geproduceerd tijdens het scintillatieproces. Defecten in het kristalrooster hebben bijvoorbeeld de neiging om elektronen weg te vangen. Gevolg is dat de energie van het elektron niet wordt overgedragen naar het luminescentiecentrum. Er ontstaat geen foton en dus neem je niks waar.'

Nu is het ene defect het andere niet. De chloriden en bromiden, de groep waarop Van 't Spijker zich heeft gericht, bevatten ook defecten in het kristalrooster. Deze kunnen worden veroorzaakt door de ioniserende straling en dragen bij aan de overdracht van energie naar het luminescentiecentrum. Als een elektron van de valentieband naar de geleidingsband wordt geschoten, ontstaat er ook een «gat» in een ion.

Bij de chloriden en bromiden kunnen twee ionen zich verbinden tot een «gaterval», een plek in het kristalrooster met een positieve lading. Van 't Spijker en Dorenbos spreken van een «zelf ingevangen gat». De positieve lading, het «gat», kan zich via gatenvallen door het rooster verplaatsen; dus zonder dat de ionen zichzelf verplaatsen. Er ontstaat als het ware naast de elektronenstroom ook een

Patiënten die met een Computer Tomografie (CT)-scanner worden onderzocht, hoeven geen radioactieve stoffen te slikken, maar wel een contrastvloeistof, omdat men bij de CT-scanner wordt doorgelicht met röntgenstraling. Deze methode wordt vooral toegepast voor het maken van doorsneden van het lichaam.



De röntgenbron en de detector staan loodrecht op elkaar en draaien in stappen om de patiënt heen. Door de transmissie van de röntgenstraling te meten, ontstaat een 2-dimensionale doorsnede van de patiënt.

gatenstroom door het rooster. Van 't Spijker vermoedt dat de gatenvol goed functioneert in de haliden, in het bijzonder chloriden en bromiden. Het gevolg hiervan is dat de kristallen een hoge lichtopbrengst hebben.'

Doteren

De aandacht van Van 't Spijker ging vooral uit naar kristalroosters opgebouwd uit chloriden of bromiden van lanthaan, gadolinium en lutetium. Deze gastmaterialen zijn kunstmatig licht verontreinigd met driewaardig cerium Ce^{3+} , een element uit de reeks zeldzame aarden. De scintillators bieden een hoge lichtopbrengst, veel hoger dan de meeste fluoriden die zijn gedoteerd met cerium. Dat betekent dat er een efficiënte energie-overdracht plaatsvindt naar de luminescentiecentra. De vervaltijd is echter vrij lang en ligt in de orde van enkele microseconden. De vervaltijd is de gemiddelde tijd die ligt tussen het moment waarop de gammakwant wordt ingevangen en het moment dat het kristal zijn fotonen uitzendt. Het is een maat voor de snelheid waarmee de energie wordt overgedragen. Dat die zo laag ligt, is een verrassing.

Van 't Spijker: 'We dachten eigenlijk dat gadolinium in het kristalrooster zou fungeren als een efficiënt doorgeefluik van energie naar het cerium, het luminescentiecentrum. Dat bleek niet het geval. Daarom wordt er nu gezocht naar andere elementen voor het kristalrooster. Een van de kandidaten is lutetium (Lu), eveneens een van de zeldzame aarden.'

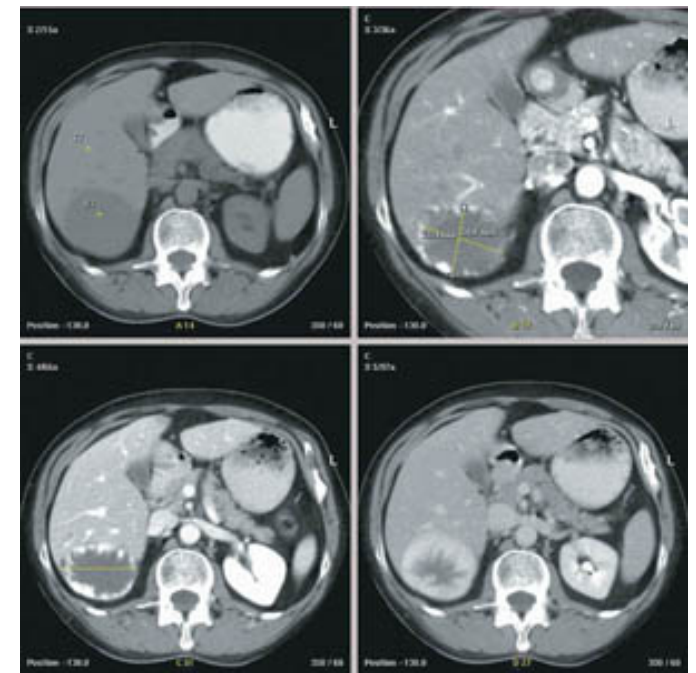
Octrooi

Het onderzoek van Van 't Spijker heeft de belangstelling van de industrie gewekt. Crismatec, onderdeel van het Franse bedrijf Saint Gobain, bekend van glas en kristal en ook een grote leverancier van scintillators, heeft een optie genomen op de resultaten ervan. Tot een octrooi heeft dat (nog) niet geleid, omdat de nieuwe scintillators technisch teveel beperkingen hebben. Wel kunnen de verworven inzichten de grondslag leggen voor de verdere ontwikkeling van efficiëntere scintillators. 'Want ondanks bijna een eeuw ontwikkeling van scintillators is er toch nog steeds ruimte voor verbetering', stelt Van't Spijker.

Voor nadere informatie over dit onderwerp kunt u contact opnemen met Dr.Ir. Hans van 't Spijker,
tel. (015) 278 2676,
fax (015) 278 8047,
e-mail j.c.vantspijker@stm.tudelft.nl, of met Dr. Pieter Dorenbos,
tel. (015) 278 1336,
fax (015) 278 6422,



Dwarsdoorsnede van de hersenen gemaakt met een CT-scanner.



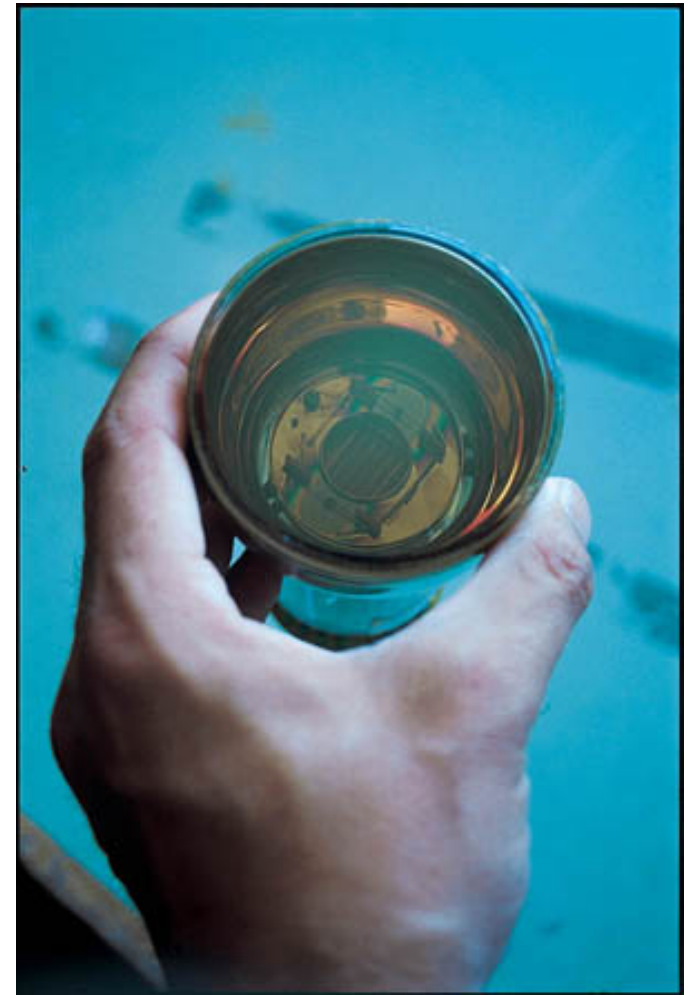
CT-opname van de buikholte.



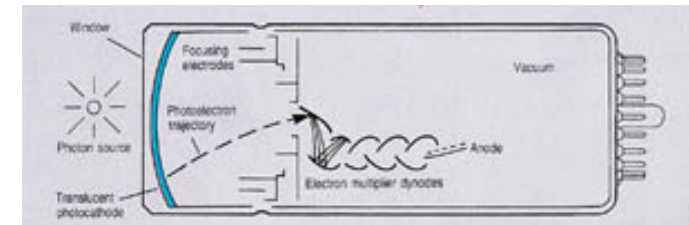
Scintillatoren zijn kristallen die licht geven (luminesceren) wanneer ze bestraald worden met ioniserende straling. De luminescentie van deze kristallen kan variëren van het ultraviolette tot het rode deel van het zichtbare spectrum, afhankelijk van het soort kristal waarvan de scintillator is gemaakt. Er worden thans zo'n twintig soorten kristallen gebruikt in commerciële toepassingen.



Een «Whole Body Counter» wordt gebruikt om besmetting door radioactiviteit in het lichaam te meten. De patiënt ligt in een met lood afgeschermd ruimte om de invloed van de natuurlijke achtergrondstraling zo klein mogelijk te houden. De straling wordt gemeten met vier grote cilindervormige scintillatoren.

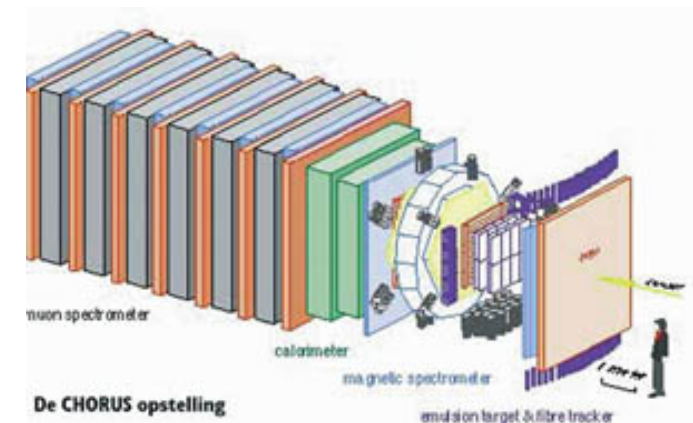


Fotoversterkerbuis zoals die wordt gebruikt voor het meten van kleine lichtintensiteiten.

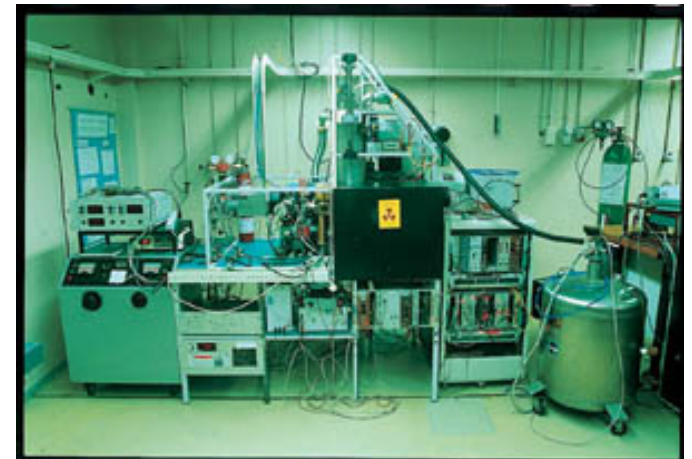


Operating principle of a photomultiplier tube. Electrodes focus and accelerate photoelectrons.

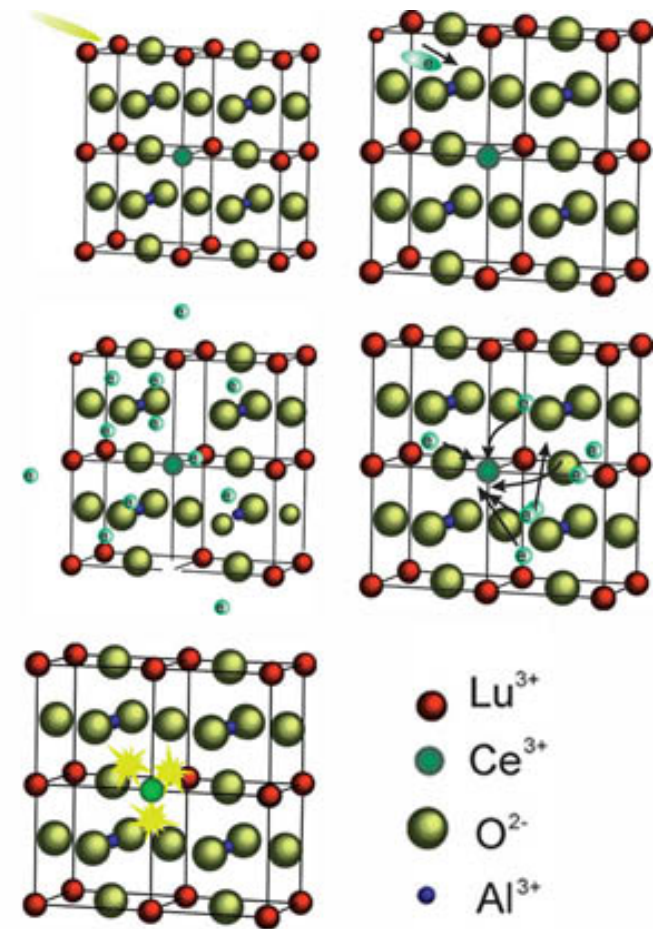
Principe van de stralingsmeting met een scintillator en een fotoversterkerbuis. Straling veroorzaakt een klein lichtflitsje in het scintillatiekristal. Wanneer het licht op de fotokathode van de versterkerbuis valt, wordt een klein aantal elektronen geproduceerd. De elektronen worden met een factor 100.000 vermenigvuldigd door middel van een aangelegde hoogspanning op de versterkerplaten (dynodes). Aan de uitgang van de fotomultiplicatorbuis (de anode) wordt een klein stroompje gegenereerd, dat een maat is voor de energie van de straling.



De chorus-detector op het CERN. De detector zal worden gebruikt om te achterhalen of het neutrino wel of geen massa heeft. Hierbij wordt een bundel muon-neutrino's gericht op de detector. De neutrinos passeren een grote hoeveelheid fotografische emulsie (800 kg). Heel af en toe treedt een neutrino in wisselwerking met een atoomkern in deze emulsie en daarbij wordt soms een muon geproduceerd. Met behulp van een aantal scintillatoren worden deze muonen gedetecteerd. Met de lood-calorimeter en de muonspectrometer wordt de baan van de muonen gevolgd.

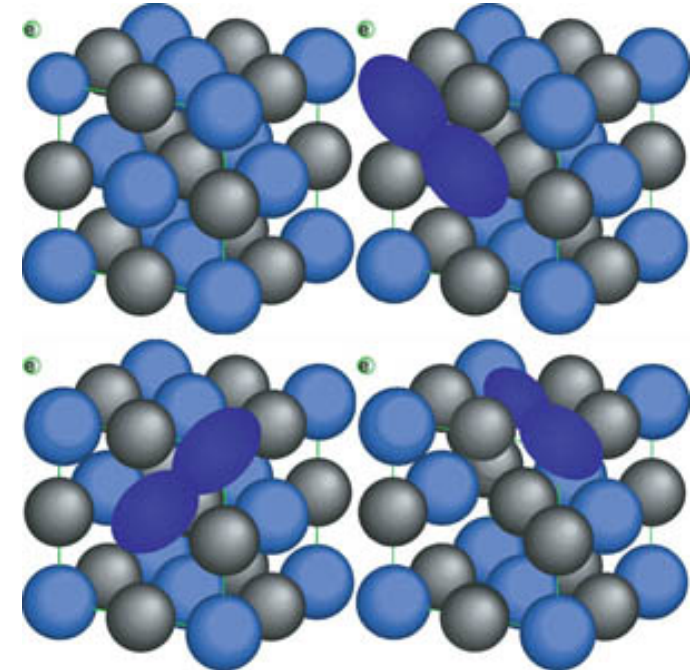


Meetopstelling bij het Interfacultair Reactor Instituut voor het bestuderen van de luminiscentie-eigenschappen van scintillatoren. De kristallen worden bestraald met een röntgenbuis. Het licht van de scintillatiekristallen wordt vervolgens geanalyseerd met behulp van een monochromator en een fotoversterkerbuis. De monochromator selecteert het licht op een bepaalde golflengte.

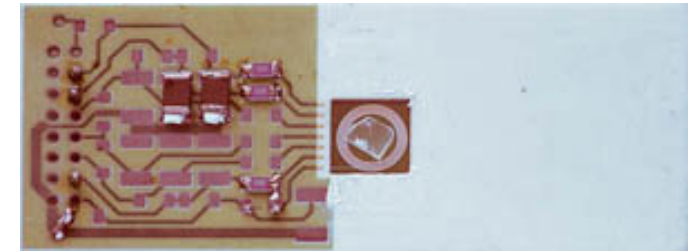
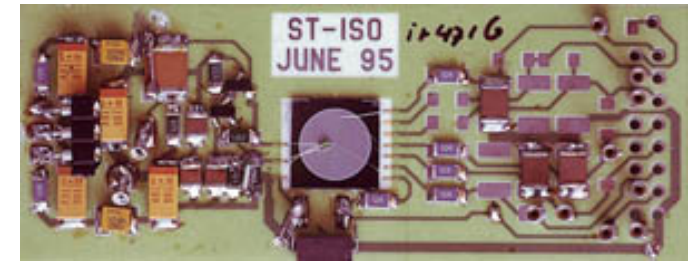


Schematische weergave van het scintillatieproces van een $\text{LuAlO}_3:\text{Ce}^{3+}$ kristal, waarbij het Ce^{3+} als een verontreiniging is aangebracht op een roosterpositie waar normaal het Lu^{3+} ion zit. Het gamma-kwantum dringt het kristal binnen. Door interactie met het zwaarste atoom in het kristalrooster (in dit geval Lu) wordt het gamma-kwantum geabsorbeerd en wordt het atoom geïoniseerd. De energie van het gamma-kwantum wordt bijna volledig overgedragen op het losgeslagen elektron. Dit elektron creëert vervolgens (secundaire) elektronen en gaten, totdat de elektronen en gaten geen energie meer

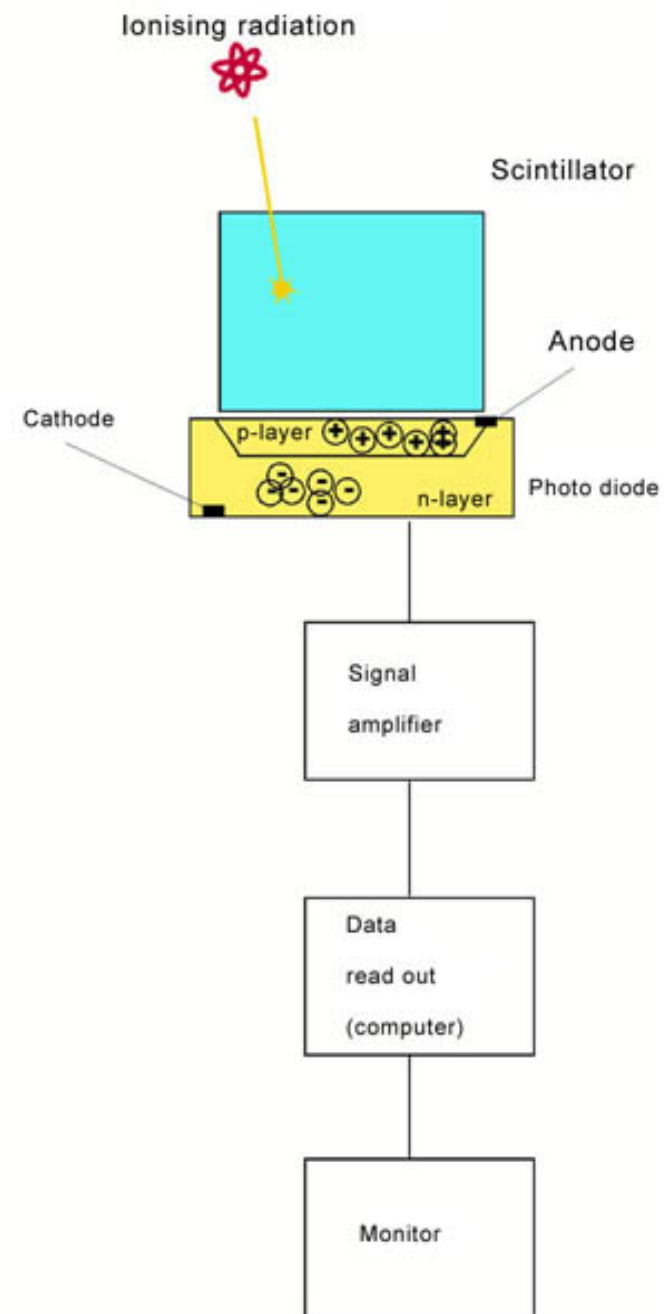
over hebben voor verdere ionisaties. Daarna wordt de energie overgedragen naar het luminescentiecentrum (in dit geval Ce^{3+} ion). Als laatste stap exciteren de elektronen en gaten het Ce^{3+} ion, dat vervolgens licht uitzendt.



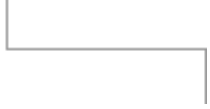
In veel chloriden en bromiden ontstaan defecten in een kristalrooster door de absorptie van straling. In keukenzout, bijvoorbeeld, kan een aantal van deze defecten door het rooster «wandelen». Wanneer het Cl^- -ion wordt geïoniseerd, ontstaat er een gat op het Cl^- -ion, ofwel er ontstaat een ClO^- -atoom. Dit ClO^- -atoom gaat een binding aan met een naburig Cl^- -ion, waardoor er een Cl_2 «molecuul» ontstaat. Dit wordt wel een «zelfingevangen gat» genoemd. Het molecuul kan door het kristalrooster «wandelen», omdat het gat steeds naar een naburig Cl^- -ion overspringt.



Prototype van een scintillator op een geminiaturiseerde fotodiode, zoals die momenteel bij het Delftse IRI wordt ontwikkeld door ir. Jan Sonsky. Op de linkerillustratie is op de fotodiode een heel kleine transistor te zien die fungeert als versterker. De rechterfoto toont de scintillator op de fotodiode. Dit type stralingsdetector is veel compacter dan de thans gangbare scintillatoren met versterkerbuizen.



Stralingsmeting met een scintillator een fotodiode. Het licht dat na absorptie van straling wordt gegenereerd valt op de fotodiode, een lichtgevoelig halfgeleidermateriaal. Een aantal elektronen in de diode worden aangeslagen en migreren naar de kathode. De achtergelaten gaten worden ingenomen door elektronen uit de anode. Het aantal elektronen is een maat voor de straling die op de scintillator is gevallen.



Za P P W aR K