

卤化铅钙钛矿闪烁体的X射线成像性能模拟

张育育^{1,3} 杨智^{1,2} 盛亮³ 段宝军³ 严维鹏³ 宋岩³ 汪敏强¹

1(西安交通大学 电子科学与工程学院 电子陶瓷与器件教育部重点实验室 国际电介质中心

陕西省先进储能电子材料与器件工程研究中心 西安 710049)

2(郑州大学 物理学院 材料物理教育部重点实验室 郑州 450052)

3(西北核技术研究所 强脉冲辐射环境模拟与效应国家重点实验室 西安 710024)

摘要 近年来,卤化铅钙钛矿闪烁体在X射线成像领域受到广泛关注。20~120 keV硬X射线医学成像使用闪烁体探测器,其灵敏度和成像空间分辨率是重要指标。利用Geant4模拟卤化铅钙钛矿量子点/聚合物复合闪烁体的X射线相对探测效率和成像空间分辨率,并利用次级电子运动解释能量与钙钛矿量子点占比对分辨率的影响。结果表明:增大复合闪烁体厚度和钙钛矿量子点占比可提高相对探测效率;降低厚度和增加钙钛矿量子点占比都可以提高空间分辨率;当吸收效率达到99.5%时计算得到20 keV X射线激发下钙钛矿闪烁体空间分辨率可与商用CsI闪烁体相媲美,而50 keV X射线激发下空间分辨率则有所下降。表明卤化铅钙钛矿在20 keV低能X射线医疗成像中具有一定应用潜力。

关键词 钙钛矿, X射线闪烁体, Geant4, 相对探测效率, 空间分辨率

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.120202

Simulation of X-ray imaging property of halide lead perovskite scintillators

ZHANG Yuyu^{1,3} YANG Zhi^{1,2} SHENG Liang³ DUAN Baojun³

YAN Weipeng³ SONG Yan³ WANG Minqiang¹

1(Electronic Materials Research Laboratory (EMRL), Key Laboratory of Education Ministry; International Center for Dielectric Research (ICDR);

Shaanxi Engineering Research Center of Advanced Energy Materials and Devices, School of Electronic and Information Engineering,

Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

2(Key Laboratory of Materials Physics, Ministry of Education, School of Physics and Microelectronics, Zhengzhou University, Zhengzhou 450052, China)

3(State Key Laboratory of Intense Pulsed Radiation Simulation and Effect, Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China)

Abstract [Background] In recent years, lead halide perovskite scintillators have received extensive attention in the field of X-ray imaging. Hard X-ray medical imaging in energy range of 20~120 keV using scintillator detectors, sensitivity and imaging spatial resolution are important performance indicators. [Purpose] This study aims to explore X-ray imaging property of halide lead perovskite scintillators by simulation. [Methods] First of all, 3D MAPbBr₃ quantum dots/polystyrene and 2D PEA₂PbBr₄ quantum dots/polystyrene scintillators were taken as research objects. Then, simulation code Geant4 was employed to establish detector model and simulate the X-ray relative detection efficiency and imaging spatial resolution of lead halide perovskite quantum dots/polymer composite scintillators. Finally, the effect of energy and the ratio of perovskite quantum dot occupation on the resolution were explained by

国家自然科学基金(No.61604122)、高功率微波技术重点实验室基金(No.6142605190202)资助

第一作者:张育育,女,1997年出生,2020年毕业于长安大学,现为硕士研究生,研究领域为电子科学与技术专业

通信作者:杨智, E-mail: yangzhi029@xjtu.edu.cn

收稿日期:2022-07-10, 修回日期:2022-10-29

Supported by National Natural Science Foundation of China (No. 61604122), Key Laboratory of High Power Microwave Technology (No. 6142605190202)

First author: ZHANG Yuyu, female, born in 1997, graduated from Chang'an University in 2020, master student, focusing on electronic science and technology

Corresponding author: YANG Zhi, E-mail: yangzhi029@xjtu.edu.cn

Received date: 2022-07-10, revised date: 2022-10-29

secondary electron motion. **[Results]** The results show that increasing the thickness of the composite scintillator and the proportion of perovskite quantum dots can improve the relative detection efficiency whilst reducing the thickness and increasing the proportion of perovskite quantum dots can improve the spatial resolution. When the absorption efficiency reaches 99.5%, 80% of 3D MAPbBr₃ quantum dots/polystyrene excited by 20 keV X ray obtain the same spatial resolution of 10 lp·mm⁻¹ as CsI. When the incident energy increases to 50 keV, the spatial resolution of CsI is 8 lp·mm⁻¹, while that of lead halide perovskite scintillators is less than 4 lp·mm⁻¹. **[Conclusions]** It is shown by this study that lead halide perovskites have certain application potential in 20 keV low-energy X-ray medical imaging.

Key words Perovskite, X-ray scintillator, Geant4, Relative detection efficiency, Spatial resolution

目前, X射线成像技术被广泛应用于放射诊断和描述骨骼位置(包括骨折、脱位和骨病等)医疗诊断领域,具有非破坏性、低成本等优点。探测器的快速发展推动了X射线成像技术,无机闪烁体对于硬X射线具有高的探测效率。不同的X射线成像应用场景需要不同性能的闪烁体,商用化闪烁体CsI:Tl、Bi₄Ge₃O₁₂(BGO)、Gd₂O₂S(GOS)在X射线计算机断层扫描(Computed Tomography, CT)、单光子发射计算机断层扫描(Single-Photon Emission Computed Tomography, SPECT)、正电子发射断层扫描(Positron Emission Tomography, PET)获得广泛应用,但是寻找具有高响应速度、高分辨率、高发光效率的新型闪烁体以实现快速实时成像、高能量分辨成像、低剂量率成像是目前研究的热点^[1-4]。

卤化铅钙钛矿闪烁体具有高的X射线衰减系数(包含Pb、卤素等高原子序数(*Z*)元素)、高光产额、快衰减时间、溶液法制备^[5-6]等优点,近年来,在X射线成像、快中子成像、快时间响应探测领域展示了其应用潜力,因此获得了国内外研究人员的广泛关注^[7-10]。3D MAPbBr₃(MA, CH₃NH₃)钙钛矿单晶被发现随着温度降低光产额快速地增加,归结于单晶在室温下激子结合能0.015 eV小于热离化能0.026 eV,因此只有在低温77 K才能获得高达90 000 photons·MeV⁻¹光产额,同时具有超快的0.1 ns衰减时间^[11-13]。相对而言,室温下CsPbBr₃量子点由于量子限域效应具有0.12 eV激子结合能,可以获得21 000 photons·MeV⁻¹光产额^[14-15]。当A位阳离子采用大尺寸有机胺阳离子时,获得低维2D钙钛矿PEA₂PbBr₄(PEA, C₆H₅C₂H₄NH₃)在室温下具有0.2 eV激子结合能^[16],从而可以实现30 000 photons·MeV⁻¹光产额^[18],目前可以生长出高质量厘米级的PEA₂PbBr₄单晶,可用于快中子与γ射线的联合诊断^[17-18]。Geant4已经被广泛应用于模拟闪烁体几何形状、射线源能量以及位置对探测器探测效率和空间分辨率的影响^[19-21]。特别地,Geant4被用于模拟2D PEA₂PbBr₄钙钛矿阵列的成像分辨率,结果表明,1 200 μm厚度的钙钛矿成像分辨率为

8.8 lp·mm⁻¹,而200 μm厚度的CsI为6 lp·mm⁻¹^[19]。这些结果表明了Geant4模拟在闪烁体结构设计中的重要作用。

将钙钛矿量子点(Quantum Dots, QDs)分散到聚合物形成复合块体是一种常用的闪烁体形式,聚合物不仅为钙钛矿量子点提供载体,同时可以提高钙钛矿的环境稳定性。本文以3D MAPbBr₃量子点/聚苯乙烯和2D PEA₂PbBr₄量子点/聚苯乙烯闪烁体为研究对象,通过Geant4建立探测器模型,根据射线在闪烁体中的能量沉积讨论了厚度、钙钛矿占比和钙钛矿的低维结构对相对探测效率和成像空间分辨率的影响,后续将添加可见光输运过程使得模拟更加接近实际情况,为钙钛矿复合闪烁体的结构设计和性能测试提供理论指导。

1 模拟方法

1.1 相对探测效率

探测器的灵敏度主要由能量沉积效率、发光效率、光收集效率以及光阴极材料的量子效率等决定^[22],闪烁体的探测效率是灵敏度的重要决定因素。本文采用理论计算闪烁体的吸收效率,利用Geant4模拟计算能量沉积效率,这两者分别从强度和能量方面表示了闪烁体对射线的探测能力强弱,因此均定义为相对探测效率。

根据射线在物质中的衰减规律,得到吸收效率^[23]:

$$AE(\epsilon, d) = (1 - e^{-(c(\epsilon) \times \rho \times d)}) \times 100\% \quad (1)$$

式中:*d*表示闪烁体的厚度;材料的光子散射截面函数*c*(ϵ)来自于美国国家标准与技术研究院(National Institute of Standards and Technology, NIST)的XCOM程序; ϵ 为光子能量; ρ 为闪烁体密度。根据式(1)可求出闪烁体的吸收效率。吸收效率越大更容易产生可被探测到的电信号,同时对外界辐射剂量越小。

Geant4是欧洲核子中心开发的一款基于C++语言的开源软件,它采用蒙特卡罗的思想实现核物理

的模拟^[24]。可通过以下4步在Geant4中模拟计算闪烁体相对探测效率^[20]：1)在DetectorConstruction中设置闪烁体材料时不考虑制备工艺，只考虑闪烁体的物理参数，选取材料分别为钙钛矿量子点/聚苯乙烯复合闪烁体以及几种典型的有机、无机闪烁体，如表1所示，钙钛矿量子点质量比是10%、30%、50%、80%，对应的密度分别是 $1.11\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 、 $1.27\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 、

$1.48\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 、 $1.96\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ，闪烁体结构为圆柱体，处于真空环境中；2)粒子源为 10^6 个单能的X光子以点源形状垂直入射闪烁体中心方向；3)物理过程为FTFP_BERT，它包含光电效应、康普顿效应和电子对效应；4)在run中输出总的能量沉积并在step中收集每一步的能量沉积及其位置信息输出到文件中，得出能量沉积效率，即为相对探测效率。

表1 常见闪烁体的参数
Table 1 Parameters of common scintillators

闪烁体 Scintillator	密度 Density / $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	组分 Component	光产额 Light yield / $\text{photons}\cdot\text{MeV}^{-1}$	发光波长 Peak emission wavelength / nm
CsI	4.51	CsI	66 000	550
GOS	7.3	$\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}$	60 000	545
蒽 Anthracene	1.24	$\text{C}_{14}\text{H}_{10}$	17 000	447
二维钙钛矿 QDs 2D perovskite QDs	2.50	$(\text{PEA})_2\text{PbBr}_4$	30 000	420
三维钙钛矿 QDs 3D perovskite QDs	2.50	MAPbBr_3	30 000	520

1.2 空间分辨率

调制传递函数 (Modulation Transfer Function, MTF) 曲线描述成像系统随着空间频率增大对比度衰减的情况，这里用来描述闪烁体的空间分辨率。当入射源为X射线时，产生的荧光能量与次级电子的能量沉积成正比，因此能量沉积效率正比于发光强度^[25]，按照次级电子的能量沉积分布来计算闪烁

体的空间分辨率，不考虑次级电子转换为荧光光子后的可见光输运过程。取栅元间隔为 0.01 mm 的圆柱环，对Geant4中step输出的沉积能量及其位置信息进行划分得出每一个圆柱环中单位体积内的能量沉积，得到点扩散函数PSF^[26]，对其作二维傅里叶变换求取模值得到MTF。本文中X射线成像空间分辨率是 $\text{MTF}=0.2$ 对应的空间频率。Geant4模型如图1所示。

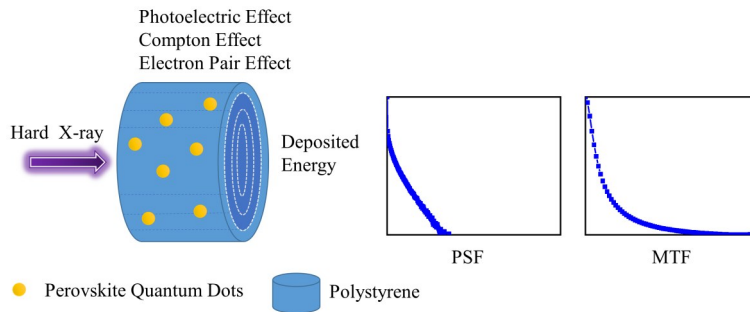


图1 钙钛矿量子点/聚苯乙烯闪烁体的Geant4模型
Fig.1 Geant4 model of perovskite quantum dots/polystyrene scintillators

2 结果和讨论

2.1 相对探测效率的影响因素

实验上能获得高达80%占比的量子点/聚合物^[27]，过高的量子点占比不可避免地导致团聚，增加了光散射并降低了透明度。为进一步了解80%钙钛矿QDs的特性，本文首先基于XCOM程序计算了80%钙钛矿QDs/聚苯乙烯闪烁体和商用无机、有机闪烁体的衰减系数。如图2所示，由于2D和3D钙钛矿量子点/聚苯乙烯闪烁体具有相同的高Z元素

Pb，在 2.586 keV 、 13.04 keV 和 88 keV 处均出现了锯齿状吸收限，并且钙钛矿系列闪烁体衰减系数略低于传统的无机闪烁体CsI、GOS，而显著地高于有机闪烁体蒽，表明复合钙钛矿闪烁体与 $0\sim 120\text{ keV}$ X射线的作用截面介于有机闪烁体与无机闪烁体之间。图3是根据式(1)计算的在 20 keV X射线入射下不同闪烁体的吸收效率。在相同厚度下，GOS的吸收效率高于CsI，80%MAPbBr₃量子点/聚苯乙烯闪烁体的吸收效率与CsI相当，80%(PEA)₂PbBr₄量子点/聚苯乙烯闪烁体次之，有机闪烁体蒽最小。如表2所示，当吸收效率达到99.5%时，80%MAPbBr₃

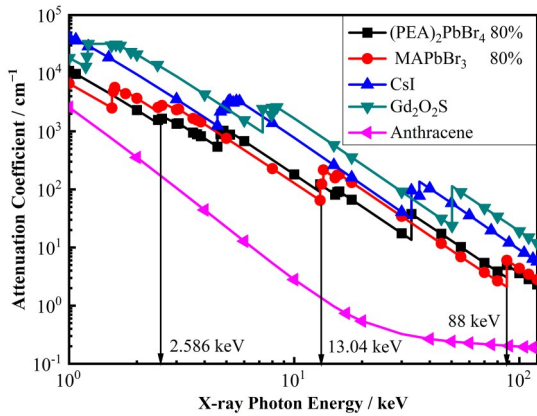


图2 0~120 keV X射线入射不同闪烁体的衰减系数
Fig.2 Attenuation coefficients of different scintillators for 0~120 keV X-ray incident

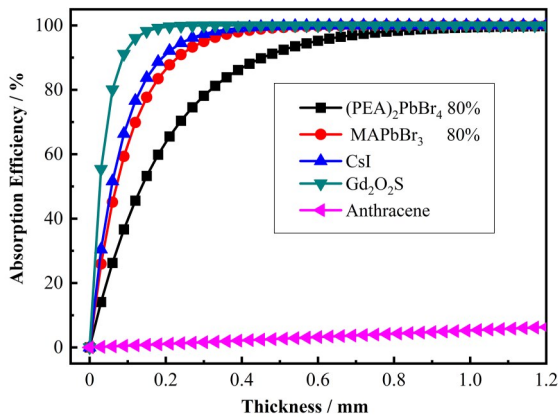


图3 20 keV X射线入射下不同闪烁体的吸收效率
Fig.3 Absorption efficiency of different scintillators under 20 keV X-ray incidence.

表2 20 keV X射线入射下吸收效率达到99.5%时对应的闪烁体厚度

Table 2 The corresponding scintillator thickness when the absorption efficiency reaches 99.5% under 20 keV X-ray incidence

闪烁体 Scintillator	厚度 Thickness /mm
80% MAPbBr ₃	0.54
80% (PEA) ₂ PbBr ₄	1.05
100% MAPbBr ₃	0.35
100% (PEA) ₂ PbBr ₄	0.48
GOS	0.2
CsI	0.45

量子点与80% (PEA)₂PbBr₄量子点的厚度分别为0.54 mm和1.05 mm。

针对X射线医学成像应用包括20 keV(乳腺X射线成像)、50 keV(放射线成像)、80 keV(双能CT中的低能入射源)、120 keV(单能CT)等能量,利用Geant4模拟计算了不同单能X射线入射1 mm厚80%钙钛矿 QDs/聚苯乙烯闪烁体的能量沉积效率。由图4可以看出,能量沉积效率总体上呈现随着入

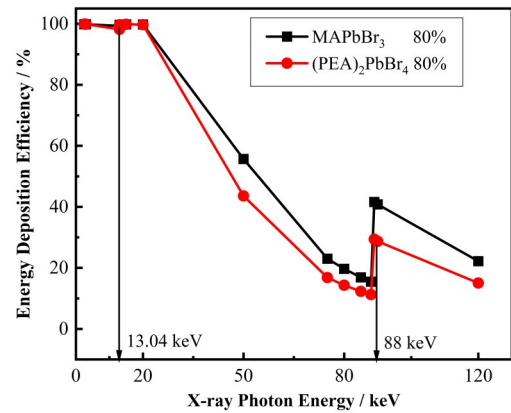


图4 能量沉积效率与入射能量的关系
Fig.4 The relationship between incident energy and energy deposition efficiency.

射X射线能量增大而减小的趋势,在2.586 keV、13.04 keV以及88 keV处能量沉积效率突然增大,与图2衰减系数中吸收限位置相吻合,并且3D钙钛矿的能量沉积效率总是高于2D钙钛矿。特别地,当X射线入射能量是20 keV时,1 mm厚度钙钛矿 QDs/聚苯乙烯闪烁体的能量沉积效率高于96%,有助于在乳腺成像中实现外部环境的低剂量辐射。

然后,利用Geant4模拟分析了20 keV单能X射线入射时闪烁体结构参数(钙钛矿 QDs 占比、厚度)对能量沉积效率的影响。如图5所示,能量沉积效率随着钙钛矿 QDs 占比和厚度增加而增加,并且3D钙钛矿的能量沉积效率总是高于2D钙钛矿,归结于2D钙钛矿中加入的大尺寸有机胺降低了材料密度。当80%占比的量子点/聚合物具有1 mm厚度时,能量沉积效率已接近100%,并且在0.2~1 mm厚度范围内具有超过60%的能量沉积效率。在1 mm厚度范围内钙钛矿 QDs 占比对能量沉积效率的影响大

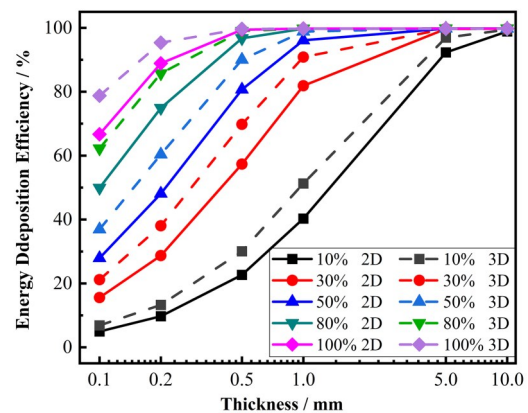


图5 能量沉积效率与闪烁体结构参数(钙钛矿量子点占比、厚度)的关系
Fig.5 Relationship between energy deposition efficiency and scintillator structure parameters (perovskite quantum dots ratio, thickness)

于厚度对能量沉积效率的影响,而在厚度超过 5 mm 时,改变钙钛矿 QDs 占比对能量沉积效率影响很小,因此在薄膜结构^[6]钙钛矿复合闪烁体中相比增大厚度,增大钙钛矿 QDs 占比能更有效提升能量沉积效率。

2.2 空间分辨率的影响因素

在不考虑荧光输运过程,而是依据能量沉积分布构建点扩散函数来计算空间分辨率的理论下,可以得出闪烁体的厚度是影响 X 射线成像空间分辨率的关键因素。空间分辨率随着厚度减小而提高,但是 X 射线相对探测效率随着厚度减小而降低,在保证足够能量响应的前提下降低厚度提高空间分辨率才有意义;空间分辨率随着厚度增加而减小,源于次级电子的运动轨迹扩大,荧光弥散效应加剧。图 6 (a)显示,基于 Geant4 模拟 20 keV X 射线入射 80% MAPbBr₃ QDs/聚苯乙烯复合闪烁体时的空间分辨率与厚度的关系,可以看出,当厚度从 0.1 mm 增大到 0.5 mm 时空间分辨率随着厚度增大而下降,而从

0.5 mm 起增大厚度空间分辨率保持不变,原因是在 0.5 mm 时 80% MAPbBr₃ 的能量沉积效率已经超过 95%,厚度增大对能量沉积分布和能量沉积效率不会产生大的影响,因此空间分辨率保持不变;为进一步确定这种结论的可靠性,利用相同方法分析了 80% MAPbBr₃、80% PEA₂PbBr₄、MAPbBr₃ 单晶、PEA₂PbBr₄ 单晶、CsI、Gd₂O₂S 等 6 种闪烁体在 20 keV X 射线入射时的 MTF=0.2 对应的空间分辨率随厚度变化的关系如图 6(b)所示。可以看出,随着厚度增大闪烁体的空间分辨率均呈现出先减小后不变的趋势,各曲线的拐点对应的横坐标均在闪烁体的能量沉积效率达到 99.5% 对应的厚度附近,图 6(a)和图 6 (b)均表明,从能量沉积分布计算 MTF 时,厚度增大到一定程度后不再对空间分辨率产生影响,这是因为按照能量沉积分布构建点扩散函数时,次级电子在闪烁体中运动一定的距离后,由于能量完全损耗会停止运动,因此当厚度增加到一定程度时次级电子能量已经减小为 0,再增加厚度能量沉积效率和能量沉积分布也不会改变,相应的空间分辨率不会

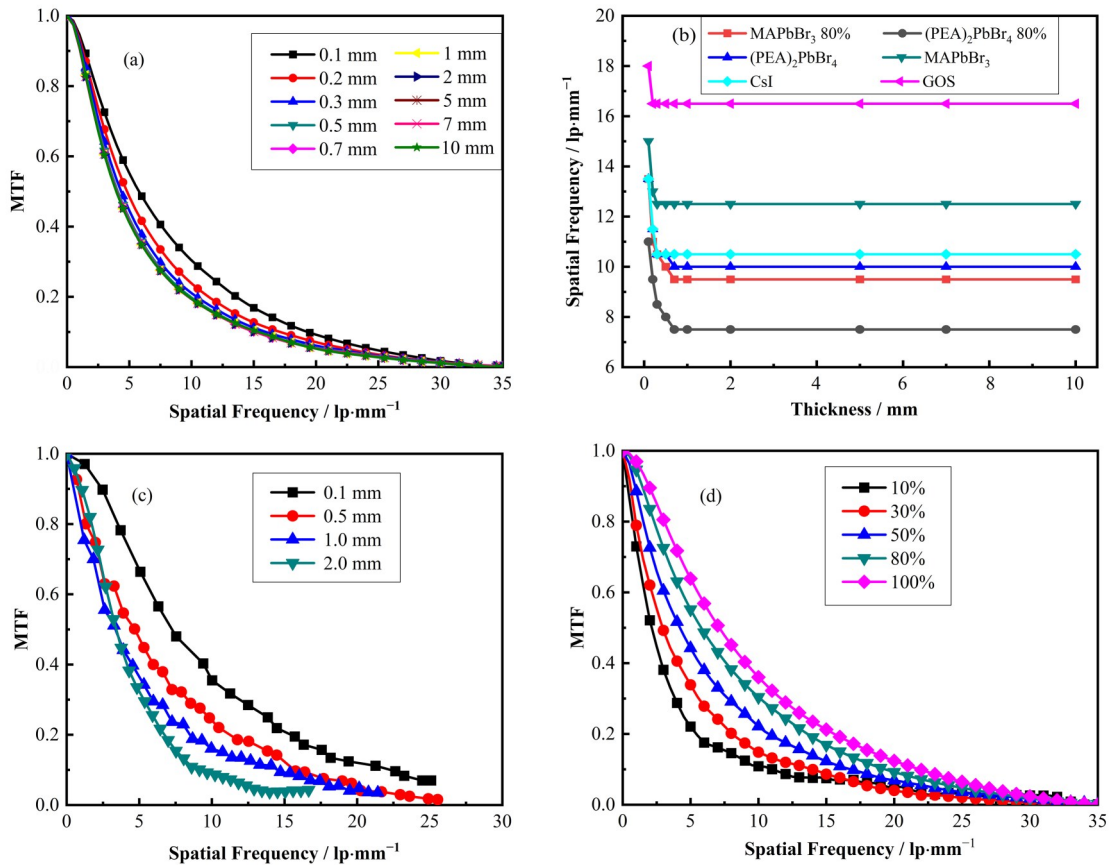


图 6 80% MAPbBr₃ 闪烁体空间分辨率与厚度的关系(a),各闪烁体的 MTF=0.2 对应空间分辨率与厚度的关系(b),实验测试 80% MAPbBr₃ 闪烁体空间分辨率与厚度的关系(c),0.1 mm 的 MAPbBr₃ 闪烁体空间分辨率与钙钛矿 QDs 占比的关系(d)

Fig.6 The relationship between the spatial resolution and thickness of 80% MAPbBr₃ scintillator (a), the relationship between the spatial resolution and thickness corresponding to the MTF=0.2 of each scintillator (b), the relationship between the spatial resolution and thickness of 80% MAPbBr₃ scintillator measured experimentally (c), and the relationship between the spatial resolution of 0.1 mm MAPbBr₃ scintillator and the proportion of perovskite QDs (d)

改变。图6(c)为实验中测试的20 keV X射线入射不同厚度的80% MAPbBr₃QDs/聚苯乙烯复合闪烁体的MTF曲线,可以看出,图6(c)与图6(a)在一定厚度范围内呈现的趋势一致,实验经过荧光输运过程使得图6(c)中闪烁体厚度超过0.5 mm时空间分辨率仍然随着厚度增大而降低。实验使用刃边法获得边缘扩散函数(Edge-Spread Function, ESF)对其微分得到线扩散函数(Line-Spread Function, LSF),最后做一维傅里叶变换求取模值得到MTF,即实验与模拟计算空间分辨率方式不一致、射线源与理想点源的差异、样品的均匀性等因素导致了实验和模拟在不同厚度下的变化率不同。Geant4模拟计算的20 keV X射线入射0.1 mm不同MAPbBr₃ QDs占比的闪烁体的调制传递函数曲线如图6(d)所示,它表明复合钙钛矿闪烁体空间分辨率随着钙钛矿 QDs 占比增大而增大。

根据马继明等人提出的闪烁体PSF尺寸与电子射程、出射角度的关系如下所示^[26]:

$$R \propto L \times \sin(\varphi + \alpha) \quad (2)$$

式中: R 表示PSF的尺寸; R 越小闪烁体对射线源成像的结果越清晰,表明该闪烁体的空间分辨率越高; L 表示次级电子平均射程,当入射光子能量增加时,次级电子能量增加使得 L 增大; φ 表示次级电子平均出射角度; α 表示电子多次散射偏转角投影,其中 α 与次级电子的辐射长度成反比。谢红卫等人提出20 keV X射线入射闪烁体时产生的次级电子角度主要分布在(40°, 120°)之间^[28],入射光子能量越大次级电子的前冲效果更加明显,次级电子出射方向与入射方向夹角越小,因此 $(\varphi + \alpha)$ 随入射能量增加而减小;并且随着次级电子能量增大出射电子增多,相对探测效率降低。低能时次级电子射程较短完全沉积在闪烁体中没有出射,而次级电子的平均射程与材料的等效原子序数成反比,因此 $L_{\text{High},Z} < L_{\text{Low},Z}$;相同

能量的次级电子在高Z材料中的辐射长度小于低Z材料中的辐射长度,因此 $\alpha_{\text{High},Z} > \alpha_{\text{Low},Z}$ 。对于不同MAPbBr₃ QDs占比的钙钛矿闪烁体,QDs占比越大,钙钛矿复合闪烁体中Pb基成分越多其等效原子序数 Z 越高,QDs占比增大导致 L 的减小超过了 α 的增幅,因此随着QDs占比增大,点扩散函数的半径 R 减小,荧光弥散效应减弱使得空间分辨率增大。

为了更加客观地评价钙钛矿量子点/聚苯乙烯闪烁体的X射线成像性能,本文模拟了20 keV和50 keV X射线入射下钙钛矿与商用闪烁体的成像空间分辨率,特别地,以吸收效率达到99.5%来确定闪烁体厚度。图7(a)显示20 keV激发下GOS具有最大的吸收效率,获得最薄的厚度0.2 mm,导致了最高的空间分辨率17 lp·mm⁻¹。2D钙钛矿单晶PEA₂PbBr₄获得与CsI相同的10 lp·mm⁻¹的空间分辨率,相比而言,3D钙钛矿单晶MAPbBr₃具有更薄的厚度0.35 mm,其空间分辨率为12 lp·mm⁻¹高于CsI。当钙钛矿占比是80%时,实现高的吸收效率需要更大的厚度,导致3D和2D钙钛矿复合闪烁体的空间分辨率分别下降到10 lp·mm⁻¹和7 lp·mm⁻¹。总之,针对20 keV乳腺X射线成像应用,80% MAPbBr₃/聚苯乙烯闪烁体具有接近商用CsI闪烁体的空间分辨率,而MAPbBr₃单晶的空间分辨率则表现出钙钛矿体系材料相比CsI具有一定优势。图7(b)表示当入射能量增大到50 keV时,CsI的空间分辨率为8 lp·mm⁻¹,而钙钛矿闪烁体的空间分辨率均降低到4 lp·mm⁻¹以下,表明在一定范围内增加X射线能量,闪烁体的成像分辨率降低。原因是当入射能量由20 keV增大到50 keV时吸收效率达到99.5%所需的闪烁体厚度增大,虽然 $\sin(\varphi + \alpha)$ 减小,但是次级电子的平均射程 L 随入射能量的增大超过出射角度的减小,最终使得弥散半径 R 增大,导致图7(b)中整体MTF曲线左移,空间分辨率减小。

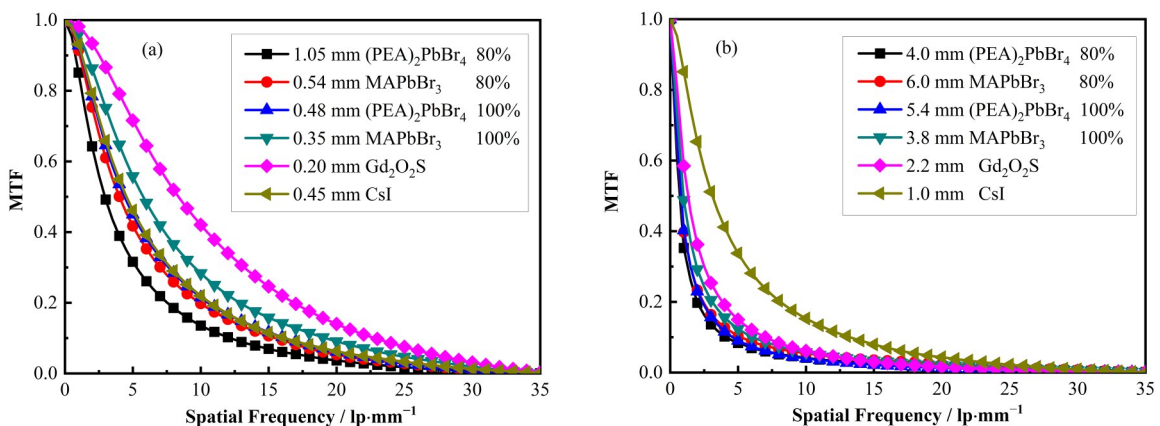


图7 20 keV (a)与50 keV (b) X射线入射下不同厚度的几种闪烁体的空间分辨率
Fig.7 Spatial resolution of scintillators with different thickness at 20 keV (a) and 50 keV (b) X-ray incidence

3 结语

本文基于 Geant4 对钙钛矿复合闪烁体的 X 射线成像性能进行模拟研究。首先利用 Geant4 模拟和公式计算两种方法计算了钙钛矿闪烁体的相对探测效率,并分析了入射能量、厚度和钙钛矿量子点占比对钙钛矿复合闪烁体相对探测效率的影响;其次设置栅元结构获得点扩散函数来计算空间分辨率,并利用次级电子的运动解释了相应结果。结果表明:0~120 keV 内钙钛矿复合闪烁体与 X 射线的作用截面介于有机闪烁体与无机闪烁体之间;当吸收效率达到 99.5% 时计算空间分辨率,20 keV 下 80% MAPbBr₃QDs/聚苯乙烯闪烁体空间分辨率可以与商用 CsI 闪烁体相媲美;在一定厚度范围内实验测试获得了与模拟结果相同的规律;增加 X 射线能量到 50 keV 时空间分辨率下降;相比于厚度,增加钙钛矿占比是提升相对探测效率与空间分辨率的有效手段。本文按照能量沉积的空间分布来模拟空间分辨率,没有考虑可见光在材料中的吸收、散射、折射进而实现荧光输出这一部分。未来工作中将增加可见光输出部分,获得更加准确的结果,为钙钛矿复合闪烁体结构设计和性能测试提供参考。

作者贡献声明 张育育:负责数据模拟处理、论文的撰写和最终版本的修订;杨智:负责钙钛矿材料特性的分析、文章思路的提出及文章修改;盛亮、宋岩:负责文章思路的指导;段宝军:负责辐射物理方向的思路把握和文章整体结构的调整;严维鹏:负责模拟软件和数据处理的指导;汪敏强:负责论文的修改和资金的获取。

参考文献

- van Eijk Carel W E. Inorganic scintillators in medical imaging[J]. *Physics in Medicine and Biology*, 2002, **47**(8): R85 - R106. DOI: 10.1088/0031-9155/47/8/201.
- Ou X Y, Chen X, Xu X N, *et al.* Recent development in X-ray imaging technology: future and challenges[J]. *Research (Washington D C)*, 2021, **2021**: 9892152. DOI: 10.34133/2021/9892152.
- 陈积阳, 施鹰, 冯涛, 施剑林. 闪烁陶瓷及其在医学 X-CT 上的应用[J]. *硅酸盐学报*, 2004, **32**(7): 868 - 872. DOI: 10.3321/j.issn: 0454-5648.2004.07.016.
CHEN Jiyang, SHI Ying, FENG Tao, *et al.* Scintillation ceramics and their application on medical xct[J]. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2004, **32**(7): 868 - 872. DOI: 10.3321/j.issn: 0454-5648.2004.07.016.
- 赵景泰, 王红, 金滕滕, 等. 闪烁晶体材料的研究进展[J]. *中国材料进展*, 2010, **29**(10): 40 - 48, 58.
ZHAO Jingtai, WANG Hong, JIN Tengting, *et al.* Research development of inorganic scintillating crystals[J]. *Materials China*, 2010, **29**(10): 40 - 48, 58.
- 季庚午, 张晓楠, 杨迎国, 等. 前驱体混合比例对 CH₃NH₃PbI₃ 钙钛矿薄膜微观结构及光伏器件性能的影响[J]. *核技术*, 2016, **39**(12): 120101. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2016.hjs.39.120101.
JI Gengwu, ZHANG Xiaonan, YANG Yingguo, *et al.* Influences of precursor ratio on microstructure of perovskite CH₃NH₃PbI₃ film and photoelectric conversion properties of perovskite solar cell[J]. *Nuclear Techniques*, 2016, **39**(12): 120101. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2016.hjs.39.120101.
- 张晓楠, 郑官豪杰, 苏圳煌, 等. 大气环境中溶剂添加剂对制备钙钛矿薄膜的影响[J]. *核技术*, 2018, **41**(5): 050103. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.050103.
ZHANG Xiaonan, ZHENG Guanhaojie, SU Zhenhuang, *et al.* Solvent engineering during the preparation of perovskite thin films in air[J]. *Nuclear Techniques*, 2018, **41**(5): 050103. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.050103.
- Vaněček V, Děcká K, Mihóková E, *et al.* Advanced halide scintillators: from the bulk to nano[J]. *Advanced Photonics Research*, 2022, **3**(8): 2200011. DOI: 10.1002/adpr.202200011.
- Wu H D, Ge Y S, Niu G D, *et al.* Metal halide perovskites for X-ray detection and imaging[J]. *Matter*, 2021, **4**(1): 144 - 163. DOI: 10.1016/j.matt.2020.11.015.
- McCall K M, Sakhatskyi K, Lehmann E, *et al.* Fast neutron imaging with semiconductor nanocrystal scintillators[J]. *ACS Nano*, 2020, **14**(11): 14686 - 14697. DOI: 10.1021/acsnano.0c06381.
- Visvikis D. The birth of a new and unique journal: IEEE transactions on radiation and plasma medical sciences[J]. *IEEE Transactions on Radiation and Plasma Medical Sciences*, 2017, **1**(1): 1 - 2. DOI: 10.1109/TRPMS.2017.2651478.
- Birowosuto M D, Cortecchia D, Drozdowski W, *et al.* X-ray scintillation in lead halide perovskite crystals[J]. *Scientific Reports*, 2016, **6**: 37254. DOI: 10.1038/srep37254.
- Xie A Z, Nguyen T H, Hettiarachchi C, *et al.* Thermal quenching and dose studies of X-ray luminescence in single crystals of halide perovskites[J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2018, **122**(28): 16265 - 16273.

- DOI: 10.1021/acs.jpcc.8b03622.
- 13 Mykhaylyk V B, Kraus H, Saliba M. Bright and fast scintillation of organolead perovskite MAPbBr₃ at low temperatures[J]. *Materials Horizons*, 2019, **6**(8): 1740 - 1747. DOI: 10.1039/C9MH00281B.
 - 14 Chen Q S, Wu J, Ou X Y, *et al.* All-inorganic perovskite nanocrystal scintillators[J]. *Nature*, 2018, **561**(7721): 88 - 93. DOI: 10.1038/s41586-018-0451-1.
 - 15 Wang L L, Fu K F, Sun R J, *et al.* Ultra-stable CsPbBr₃ perovskite nanosheets for X-ray imaging screen[J]. *Nano-Micro Letters*, 2019, **11**(1): 52. DOI: 10.1007/s40820-019-0283-z.
 - 16 van Eijk C W E, de Haas J T M, Rodnyi P A, *et al.* Scintillation properties of a crystal of (C₆H₅(CH₂)₂NH₃)₂PbBr₄[C]//2008 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record. Dresden, Germany. IEEE, 2008: 3525 - 3528. DOI: 10.1109/NSSMIC.2008.4775096.
 - 17 Xia M L, Niu G D, Liu L Y, *et al.* Organic-inorganic hybrid perovskite scintillators for mixed field radiation detection[J]. *InfoMat*, 2022, **4**(9): 12325. DOI: 10.1002/inf2.12325.
 - 18 刘林月, 万鹏颖, 欧阳晓平. 瞬态核诊断闪烁探测技术研究进展[J]. *北京师范大学学报(自然科学版)*, 2022, **58**(5): 801 - 810.
LIU Linyue, WAN Pengying, OUYANG Xiaoping. New developments in scintillation detection technology for pulsed radiation detection[J]. *Journal of Beijing Normal University (Natural Science)*, 2022, **58**(5): 801 - 810.
 - 19 Datta A, Fiala J, Motakef S. 2D perovskite-based high spatial resolution X-ray detectors[J]. *Scientific Reports*, 2021, **11**: 22897. DOI: 10.1038/s41598-021-02378-w.
 - 20 陈志强, 陈晶晶, 舒双宝, 等. LaBr₃(Ce)探测器探测效率影响因素研究[J]. *核技术*, 2022, **45**(1): 010401. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.010401.
CHEN Zhiqiang, CHEN Jingjing, SHU Shuangbao, *et al.* Simulation study on the factors affecting the detection efficiency of a LaBr₃(Ce) detector[J]. *Nuclear Techniques*, 2022, **45**(1): 010401. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.010401.
 - 21 Hassan S M, Hassanein A, Koltick D S, *et al.* Design and simulation of liquid krypton as gamma ray detector[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2013, **60**(2): 658 - 661. DOI: 10.1109/tns.2013.2252195.
 - 22 牛胜利, 雷林峰, 赵军, 等. LSO 闪烁晶体探测器能量响应研究[J]. *核电子学与探测技术*, 2003, **23**(2): 129 - 131, 146. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2003.02.009.
NIU Shengli, LEI Linfeng, ZHAO Jun, *et al.* Study of energy response for a LSO scintillator detector[J]. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 2003, **23**(2): 129 - 131, 146. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2003.02.009.
 - 23 杨体波, 王敏, 代光明, 等. 溴化镧探测器探测效率刻度及影响因素分析[J]. *核技术*, 2021, **44**(10): 100402. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.100402.
YANG Tibo, WANG Min, DAI Guangming, *et al.* Efficiency calibration of lanthanum bromide scintillation detector and analysis of influencing factors of the detection efficiency[J]. *Nuclear Techniques*, 2021, **44**(10): 100402. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.100402.
 - 24 Agostinelli S, Allison J, Amako K, *et al.* GEANT4-a simulation toolkit[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2003, **506**(3): 250 - 303. DOI: 10.1016/S0168-9002(03)01368-8.
 - 25 谢红卫, 李如荣, 宋顾周, 等. LSO 晶体射线荧光图像转换屏性能研究[J]. *核电子学与探测技术*, 2011, **31**(3): 302 - 305. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2011.03.012.
XIE Hongwei, LI Rurong, SONG Guzhou, *et al.* The study of LSO radiation fluorescence power in radiography [J]. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 2011, **31**(3): 302 - 305. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2011.03.012.
 - 26 马继明, 王奎禄, 宋顾周, 等. 闪烁体型 γ 射线-荧光图像转换屏点扩散函数理论研究[J]. *核电子学与探测技术*, 2011, **31**(4): 473 - 478. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2011.04.026.
MA Jiming, WANG Kuilu, SONG Guzhou, *et al.* Research on the PSF of scintillators as γ /fluorescence image converters[J]. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 2011, **31**(4): 473 - 478. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2011.04.026.
 - 27 Sen S, Tyagi M, Sharma K, *et al.* Organic-inorganic composite films based on Gd₃Ga₃Al₂O₁₂: Ce scintillator nanoparticles for X-ray imaging applications[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2017, **9**(42): 37310 - 37320. DOI: 10.1021/acsami.7b11289.
 - 28 谢红卫, 陈进川, 李林波. 高精度测量射线荧光转换屏 YAG 晶体的点扩散函数[J]. *核电子学与探测技术*, 2020, **40**(1): 156 - 161.
XIE Hongwei, CHEN Jinchuan, LI Linbo. High precision measurement of point spread function of fluorescent YAG scintillator converter[J]. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 2020, **40**(1): 156 - 161.