

Thema

# | PET 영상과 감마선 측정을 위한 새로운 섬광체

김 한수 연수생  
(한국원자력연구소 미래원자력기술개발단)  
조 승연 교수  
(연세대 환경공학과)

## 1. 서론

실은 상태에서 섬광체를 이용하여 감마선이나 중성자를 검출하는 것은 고에너지 물리, 비파괴 검사, 방사선 안전 분야 그리고 지질 탐사에 걸쳐 폭넓게 이용되고 있다. 뿐만 아니라, PET(Positron Emission Tomography: 양전자 방출 단층촬영) 영상을 위한 무기 섬광체에 대한 연구개발이 지난 몇 십년동안 상당히 많이 이루어졌으며, 이상적인 섬광체에 대한 연구가 증대되고 있다. 이상적인 섬광체는 높은 광 산출율(Light Output), 높은 저지 능(High Stopping Power)과 빠른 감쇠시간(Fast Decay Time)을 요한다. NaI(Tl)와 BGO 섬광체는 각각 30년, 20년 동안 PET에 사용되고 있으며 현재까지도 계속적으로 상업적인 PET에 적용하고 있다. LSO와 GSO 섬광체는 현재 삼차원의 PET 영상에 주목을 받고 있다. 저지능, 감쇠시간 그리고 광 산출율 요소로 볼 때 LSO와 GSO 섬광체는 비록 비용은 비싸지만, NaI(Tl)보다는 5-10배, BGO보다는 3-6배의 높은 효율성을 가지고 있다. LSO와 GSO는 2000 °C의 높은 용융점을 갖고 있어서 큰 단결정을 성장시키지 못하는 단점을 가지고 있어서 NaI(Tl)이나 BGO의 낮은 생산비용까지 낮출 수는 없지만, 생산능력의 증가로 현재보다는 낮아질 전망이다[1].

2000년대에 들어오면서 Delft대학의 Van Loef에 의해 보고된 새로운 종류의 빠른 섬광체 개발에 관심을 모으고 있다. 이 빠른 섬광체는  $\text{LaCl}_3:\text{Ce}$ ,  $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ 이다. Lanthanum계열의 이 섬광체는 NaI(Tl)과 비슷한 800~900 °C의 용융점을 가지고 있어 LSO와 BGO보다 향후 비용효과가 크다.  $\text{LaCl}_3$ 의 저지능은 NaI(Tl)과 비슷하지만,  $\text{LaBr}_3$ 은 훨씬 높아 PET 영상을 얻는데 적합하다. 이 두 란타늄계열의 섬광체는 NaI(Tl)보다 광 산출율이 높고, 탁월한 에너지 분해능을 가지고 있다[2]. 이런 란타늄계열 섬광체의 탁월한 분해능은 3-D PET의 영상의 질에 영향을 주는 요소인 산란(Scattering)과 무작위성(Random)을 무시할 수 있을 정도의 수준까지 만들 수 있는 High Energy Low Level Discriminator(ELLD)로 사용 가능하게 한다. 뿐만 아니라, 3-D PET에서 중요한 요소인 빠른 감쇠시간, 탁월한 시간적 분해능에 부합된다. 이 글에서는 향후 감마선 스펙트럼과 PET 영

상에 각광받을 Lanthanum계열의 섬광체인  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 와  $\text{LaCl}_3(\text{Ce})$  섬광체의 기술적 동향을 기술하고자 한다.

## 2. 새로운 Lanthanum계열 섬광체

표1에 감마선 측정과 PET 영상에 사용되고 있는 다양한 섬광체에 대한 특성을 나타내고 있다. 세륨이 도핑된  $\text{LaCl}_3$ 와  $\text{LaBr}_3$ 은 높은 광 산출율(각 49,000과 60,000 photons/MeV)과 빠른 감쇠시간을 가지고 있어서 감마선 스펙트럼과 PET영상에 적합하다.

표 1. Properties of scintillators for gamma-ray spectroscopy and PET. Energy resolution 662keV [1].

Scintillator	$\tau(\text{ns})$	$\mu(\text{cm}^{-1})$	$\Delta E/E(\%)$	Relative light output(%)
$\text{NaI}(\text{Tl})$	230	0.35	6.6	100
$\text{BGO}$	300	0.95	10.2	15
$\text{CsF}$	3	0.39	18.0	5
$\text{BaF}_2$	2	0.45	11.4	5
$\text{GSO}$	60	0.70	8.5	25
$\text{LSO}$	40	0.86	10.0	75
$\text{LuAp}$	18	0.95	~15	30
$\text{LPS}$	30	0.70	~10	73
$\text{LaCl}_3$	26	0.36	3.3	120
$\text{LaBr}_3$	35	0.47	2.9	160

그림1과 그림2는 Saint-Gobain社의  $\text{LaCl}_3$ 와  $\text{LaBr}_3$  섬광체와 이를 이용한 PET 영상을 보여주고 있다.  $\text{LaCl}_3$ 는 작은 섬광체 검출기 응용이 가능하고, 동위원소 판별을 위한 CZT 반도체 및 GM 검출기에 대체가 가능하고, 1인치 지름에 1인치 높이로 제한되었던 것이 현재 다양한 크기로 생산되고 있다.  $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ 는  $\text{LaCl}_3:\text{Ce}$ 에 비해 더 빠른 이미지 획득이 가능하나 그 제조공정이 훨씬 까다로운 단점을 가지고 있다.  $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ 는 섬광체의 밀도가 높아 최소 두께로 방사능 검출이 가능하고, 에너지 분해능이 높아 PET의 영상 획득에 적합하다.

### 2.1 $\text{LaCl}_3:\text{Ce}$

$\text{LaCl}_3$ 는  $\text{Ce}^{3+}$ 가 10% 도핑 되었을 때 1 MeV의 에너지에 대해 약 49,000개의 빛을 생성하며, 26 ns의 빠른 감쇠시간을 가지고 있어 감마선 스펙트럼에 적

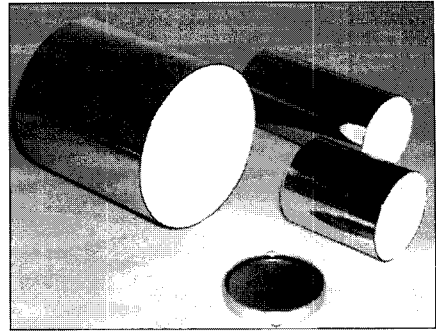


그림 1. Saint-Gobain Crystals - Lanthanum Chloride and Lanthanum Bromide.

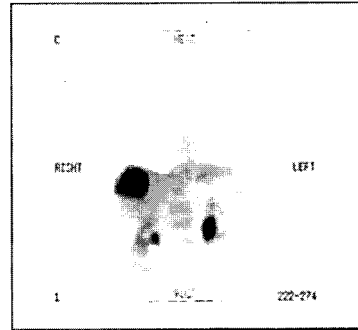


그림 2. PET으로 찍은 기관지의 X-선 단층 촬영 사진.

합하다.  $\text{LaCl}_3$ 의 결정은  $\text{UCl}_3$  타입의 육방정계 구조를 가지고 있으며, 밀도는  $3.9 \text{ g/cm}^3$ 이다. 이 화합물은  $860^\circ\text{C}$ 에서 녹기 때문에 Bridgman과 Czochralski와 같은 방법으로 성장시킬 수 있다. 따라서 용융점을 이용한 이 두 방법은 섬광체를 크게 성장시킬 수가 있으므로  $\text{LaCl}_3$  또한 크게 성장시킬 수가 있다. 99.99% 순도의 초 건조 상태의  $\text{LaCl}_3$ 와  $\text{CeCl}_3$ 를 90:10로 혼합 성장을 시킨다.  $\text{LaCl}_3:\text{Ce}$ 를 Vertical Bridgman 방식으로 성장시킬 때, 두 온도 영역으로 나눌 수 있다. 위쪽의 온도는  $\text{LaCl}_3$ 의 용융점( $860^\circ\text{C}$ )보다 높게 설정을 하고, 아래쪽은  $860^\circ\text{C}$ 보다 낮게 설정을 한다. 성장된 인곳(Ingot)을 절단(Cut)하고 연마(Polishing)과정을 거치게 된다. 연마 시  $\text{LaCl}_3$ 의 흡습성으로 인해  $\text{Al}_2\text{O}_3$  Grit에 광유(Mineral Oil)를 섞은 연마제를 사용한다. 연마를 마친 후 습기와 반응하지 않도록 패키징을 해야 한다.

662 keV의 에너지를 가지는 Cs-137 감마선을 이용하여 광 산출율을 BGO 섬광체와 비교하였을 때 그림3과 같다. 이 측정은 섬광체에 PMT(Photo-multiplier Tube)를 연결하여 파고분석을 통하여 행해진다. 또한 광 산출율을 최대로 하기 위해 흰색 테프론 테이프를 PMT와 연결된 부분을 제외한 모든 면에 감싸준다. 그림3에서 포토 피크와 Photocathode Quantum 효율의 측정으로 광 산출율을 측정할 수 있는데, 이로부터 BGO보다 LaCl<sub>3</sub>:Ce의 광 산출율이 훨씬 좋은 것을 볼 수 있다.

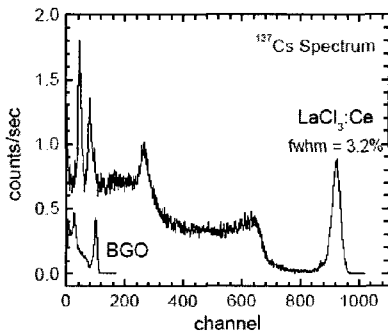


그림 3. 동일한 동작 조건하에서의 BGO와 LaCl<sub>3</sub>:Ce의 Cs-137 감마 소스에 대한 파고 분석 스펙트럼[4].

Ce의 도핑 농도에 대한 광 산출 변화를 Ce 농도 0.1%, 1.0%, 10%, 20%에 따른 그래프를 그림4에 나타내었다. 이때 사용된 감마선은 60 keV Am-241이다. 그림에서 볼 수 있듯이, Ce의 농도가 10%까지는

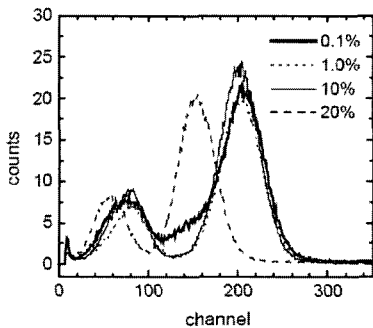


그림 4. Ce 농도 변화에 대한 60keV 241-Am에 대한 스펙트럼. 광 산출율은 피크 에서 측정되었다[4].

비슷한 모양을 나타내지만, 20 %에서는 조금 낮게 나타났다. 이는 정확히, 0.1 %와 1 %에서의 광 산출율은 50,500(photons/MeV)이고, 10 %에서의 광 산출율은 50,000(photons/MeV)이다. 하지만, 20 %에서의 광 산출율은 38,000(photons/MeV)로 조금 낮은 수치로 나타났다[3,4].

또한 Ce의 농도에 따른 규격화시킨 빛의 세기를 그림5에 나타내었다. 규격화는 350 nm 파장에서 행해졌으며, X-ray에 의해 나오는 여기(Excitation) 작용을 이용하여 측정을 하였다. 그래프에서 볼 수 있듯이, Ce의 농도 변화에도 빛의 파장( $\lambda_{max}$ )이 350 nm 인 피크는 모두 가지고 있다. 뿐만 아니라, 빛의 파장이 420-440 nm의 범위에 걸친 넓은 피크도 나타난다. Ce의 농도가 10 %와 20 %일 때, 모든 빛은 350 nm 밴드에서 모두 방출이 되지만, 0.1 %와 1 %의 농도일 때는 420 nm에서도 많은 부분이 방출된다.

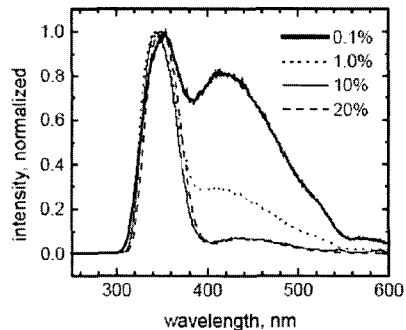


그림 5. Ce<sup>3+</sup> 농도에 따른 광학 스펙트럼[4].

펄스형 X-ray 빔을 이용하여 Ce의 농도에 대한 감쇠 시간을 그림6에 나타내었다. 모든 데이터는 200 ps 이하에서 올라가는 것을 볼 수 있고, Ce의 농도가 10 %, 20 %일 때 감쇠시간이  $\leq 25$  ns로 짧으며, 0.1 %와 1 %일 때는 ~213 ns로 다소 길게 나타났다. 그림5과 그림6을 볼 때 Ce의 농도가 높을 때 350 nm 파장에서 대부분의 빛이 생성되었다가 20-25 ns의 감쇠 상수로 소멸을 한다.

### 2.2 LaBr<sub>3</sub>:Ce

LaBr<sub>3</sub>:Ce 결정은 LaCl<sub>3</sub>:Ce와 마찬가지로 Bridgman 방식으로 성장시킬 수 있다. Ce으로 도핑

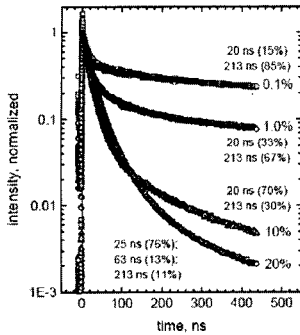


그림 6. Ce 농도에 따른 광 소멸시간 스펙트럼[4].

된 LaBr<sub>3</sub>는 광 산출량이 60,000 photons/MeV, 25 ns의 빠른 광 감쇠시간과 662 keV Cs-137에 대해 3.2%의 에너지 분해능을 가지고 있어 감마 스펙트럼 및 PET 영상에 적합하다. LaBr<sub>3</sub> 결정은 UCl<sub>3</sub> 타입의 육방정계 구조를 가지고 있으며, 밀도는 5.3 g/cm<sup>3</sup>이다. 이 화합물은 783 °C에서 녹기 때문에 Bridgman과 Czochralski와 같은 방법으로 성장시킬 수 있다. 따라서 용융점을 이용한 이 두 방법은 섬광체를 크게 성장시킬 수가 있으므로 LaBr<sub>3</sub> 또한 크게 성장시킬 수가 있다. 99.99% 순도의 초 건조 상태의 LaBr<sub>3</sub>와 CeBr<sub>3</sub>를 혼합 성장을 시킨다. LaBr<sub>3</sub>:Ce를 Vertical Bridgman 방식으로 성장시킬 때, 두 온도 영역으로 나누어 위쪽의 온도는 LaBr<sub>3</sub>의 용융점(783 °C)보다 높게 설정을 하고, 아래쪽은 이 온도보다 낮게 설정

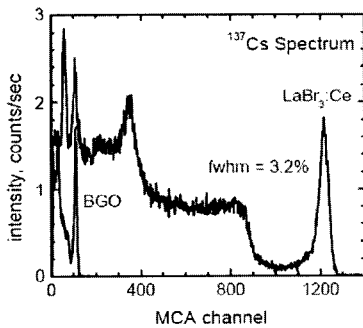


그림 7. LaBr<sub>3</sub>:Ce와 BGO의 Cs-137에 대한 반응 스펙트럼[5].

을 한다. 성장된 인곳(Ingot)을 절단(Cut)하고 연마(Polishing)과정을 거치게 된다.

662 keV의 에너지를 가지는 Cs-137 감마 소스를 이용하여 광 산출율을 BGO 섬광체와 비교하였을 때 그림7과 같다. 이 측정 또한 섬광체에 PMT를 연결하여 파고분석을 통하여 행해진다. 이때 사용된 LaBr<sub>3</sub>:Ce는 1 cm<sup>3</sup> 크기로 Ce이 0.5% 도핑될 때이다. 그림7에서 포토 피크와 Photocathode Quantum 효율의 측정으로 광 산출율을 측정하였을 때, BGO보다 LaBr<sub>3</sub>(Ce)의 광 산출율이 훨씬 좋은 것을 볼 수 있다.

또한 Ce의 농도에 따른 규격화된 빛의 세기를 그림8에 나타내었다 이 또한 X-ray에 의해 나오는 여기(Excitation) 작용을 이용하여 측정을 하였다. LaCl<sub>3</sub>:Ce와 달리, Ce의 농도 변화에도 빛의 파장( $\lambda_{max}$ )이 360과 380 nm인 부분에 모두 나타난다.

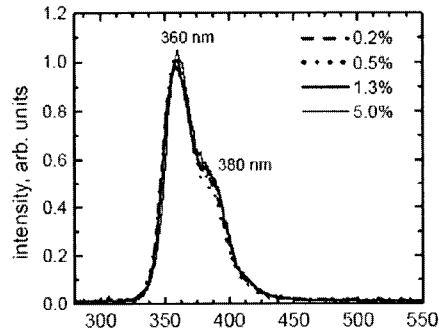


그림 8. Ce<sup>3+</sup>의 농도에 따른 광 방출 스펙트럼[5].

펄스형 X-ray 빔을 이용하여 Ce의 농도에 대한 광 산출율, Rising Time, 감쇠시간을 표2에 나타내었다. LaCl<sub>3</sub>:Ce와 달리 Ce<sup>3+</sup>의 농도에 상관없이 모두 ≤25 ns의 광 감쇠 상수를 가지는 것을 알 수 있다[3,5].

그림9에 LaBr<sub>3</sub>:Ce 섬광체를 사용하여 TOP(Time Of Flight)를 적용한 전신 3-D PET 스캐너의 검출기 예시를 나타내었다. 이 검출기는 4x4x30mm<sup>3</sup>의 LaBr<sub>3</sub>:Ce 섬광체를 어레이(Array) 시킨 후 Light Guide와 PMT 어레이를 결합하였다. 6각형의 PMT를 픽셀형태로 배치하여 4 mm의 공간 분해능(Space Resolution)을 갖게 함으로써 전신 3-D PET 스캐너의 검출로서의 사용을 가능하게 한다[6].

표 2. Ce<sup>3+</sup>의 농도에 따른 LaBr<sub>3</sub>:Ce 섬광체 성질[5].

Ce <sup>3+</sup> Concentration(%)	Light Output (Photons/MeV)	Rise Time(ns)	Decay Times(ns)
0.2	60,700	3.5	23ns (93.4%) 66ns (6.6%)
0.5	60,000	3.4	26ns (93%) 66ns (7%)
1.3	47,000	2.9	16.5ns (97%) 66ns (3%)
55	5,300	0.7	15ns (97%) 63ns(3%)

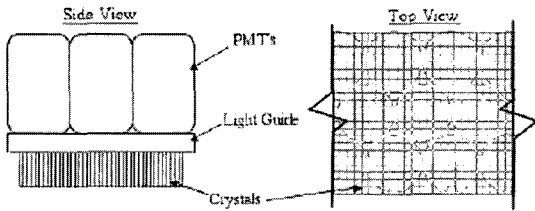


그림 9. 픽셀형태의 Anger-logic 검출기[6].

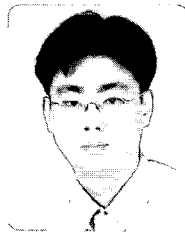
### 3. 결론

실온에서 섬광체를 이용한 감마선이나 중성자를 검출하는 것은 고에너지 물리, 비파괴 검사, 방사선 안전 분야 그리고 지질 탐사에 걸쳐 폭넓게 이용되고 있다. 여기에 기존의 섬광체보다 높은 광 산출율, 높은 에너지 분해능, 빠른 소멸시간을 가진 Lanthanum 계열의 섬광체 등장과 더불어 결정 성장 기술과 패키징 기술이 발전하면서 그 유용성은 더욱 증대되고 있다. 따라서 감마선 스펙트럼과 PET 영상에 새로운 Lanthanum 계열의 섬광체인 LaBr<sub>3</sub>:Ce와 LaCl<sub>3</sub>:Ce 섬광체가 향후 주목을 받을 것으로 전망된다.

### 참고 문헌

- [1] S. Surti et al., "Investigation of Lanthanum Scintillators for 3-D PET", IEEE, p. 1177, 2003.
- [2] Marcin Balcerzyk et al., "Comparison of LaCl<sub>3</sub>:Ce and NaI(Tl) scintillators in  $\gamma$ -ray spectrometry", Nucl. Instr. and Meth. A., 537, p. 50, 2005.
- [3] J. Glodo et al., "Thermoluminescence of LaBr<sub>3</sub>:Ce and LaCl<sub>3</sub>:Ce crystals", Nucl. Instr. and Meth. A., 537, p. 93, 2005.
- [4] K.S. Shah et al., "LaCl<sub>3</sub>:Ce Scintillator for  $\gamma$ -ray Detection", Nucl. Instr. and Meth. A., 505, 76, 2003
- [5] K.S. Shah et al., "LaBr<sub>3</sub>:Ce Scintillator for Gamma Ray Spectroscopy", IEEE, p. 92, 2003.
- [6] A. Kuhn et al., "Design of a Lanthanum Bromide Detector for TOF PET", IEEE, p. 1953, 2004.

### 저자약력

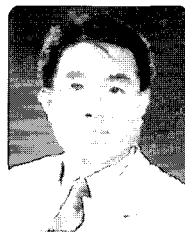


성명 : 김 한수

- ◆ 학력
  - 2000년 광운대 화학공학과 공학사
  - 2003년 연세대 대학원 환경공학 석사
  - 2005년 연세대 대학 환경공학과 공학박사 과정

◆ 경력

- 2003년 - 현재 한국원자력 연구소 미래원자력기술개발단 연수생



성명 : 조 승연

- ◆ 학력
  - 1983년 연세대 화학과 이학사
  - 1987년 미국 Purdue Univ. 이학석사
  - 1989년 미국 Purdue Univ. 이학박사

◆ 경력

- 1989년 - 1990년 미국 Purdue Univ. Post-Doc
- 1990년 - 1993년 한국원자력연구소 선임연구원
- 1993년 - 현재 연세대 환경공학과 교수