

감마선 분광분석을 위한 실리콘 광 증배소자 기반 Ce:GAGG 섬광검출기의 분광특성 연구

박혜민, 김정호, 김동성, 주관식
명지대학교

2015년 1월 16일 접수 / 2015년 4월 1일 1차 수정 / 2015년 5월 5일 2차 수정 / 2015년 5월 9일 채택

본 연구에서는 실리콘 광 증배소자(Silicon photomultiplier)와 Ce:GAGG 섬광체 단결정을 이용한 섬광검출기를 제작하고, 감마선 분광특성 분석을 통해 기존에 상용화된 LYSO, CsI:Tl 섬광체와의 분광특성을 비교하였다. 섬광체 단결정의 크기는 $3 \times 3 \times 20 \text{ mm}^3$ 이며 $3 \times 3 \text{ mm}^2$ 실리콘 광 증배소자를 이용하여 섬광검출기를 제작한 후, 표준 감마선원인 ^{133}Ba , ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{60}Co 에 대한 에너지 분해능을 각각 측정하고 비교하였다. 그 결과 Ce:GAGG 섬광검출기의 감마선에 대한 에너지 분해능은 ^{133}Ba 0.356 MeV에서 13.5%, ^{22}Na 0.511 MeV에서 6.9%, ^{137}Cs 0.662 MeV에서 5.8% 그리고 ^{60}Co 1.33 MeV에서 2.3%의 분광 특성을 확인 할 수 있었다.

중심어 : 실리콘 광증배소자(SIPM), Ce:GAGG, LYSO, CsI:Tl, 감마선 분광분석, 에너지 분해능

1. 서론

감마선 분광분석 방법에는 감마선이 전기적 신호로 변환되는 방식에 따라 직접검출방식(direct detection method)과 간접검출방식(indirect detection method)으로 구분할 수 있다. 직접검출방식은 감마선 흡수에 의해서 중간 단계를 거치지 않고 바로 전기적인 신호를 발생시키는 반도체(semiconductor) 소자를 사용하며, 간접검출방식은 감마선이 섬광체와 반응하여 가시광영역의 광자를 갖는 광자(photon)를 방출하면, 이를 광전소자가 전기적 신호로 검출하는 섬광검출 방식이다 [1].

직접검출방식의 반도체소자에는 주로 HPGe (high purity germanium), Si (silicon) 등이 사용되고 있으며, 섬광검출기에 비해 우수한 에너지 분해능을 갖는 특성을 보여 감마선 분광 분석에 있어 선호되고 있지만 섬광결정과 비교하여 사용 및 보관 시 냉각장치가 필요하며, 고방사선 환경 하에서는 방사선손상(radiation damage)에 의한 감도 및 분해능의 저하가 문제 된다 [2]. 반면 간접검출방식의 섬광결정으로는 NaI(Tl), CsI(Tl), LYSO 등이 주로 사용되며, 반도체검출기에 비해 낮은 에너지 분해능을 갖지만 우수한 감도 특성을 보인다.

이와 같이 각 분석방법들에 대한 특성들로 인해 반도체검출기와 함께 섬광검출기도 지속적인 연구개발의 필요성이 요구되고 있다. 따라서 본 연구에서는 감마선 에너지에 대해 광 수율과 형광 감쇠시간, 에너지 분해능이

향상된 Ce:GAGG (cerium doped gadolinium aluminum gallium garnet) 섬광체와 실리콘 광 증배소자를 이용하여 섬광검출기를 제작 한 후 표준 감마선원인 ^{133}Ba , ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{60}Co 에 대한 에너지 분해능을 측정하여 섬광검출기의 감마선 분광특성을 비교 분석하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 Cerium doped GAGG 섬광체

그림 1은 왼쪽부터 각 $3 \times 3 \times 20 \text{ mm}^3$ 크기의 Ce:GAGG, LYSO, CsI:Tl 섬광체와 Active area $3 \times 3 \text{ mm}^2$ 의 실리콘 광 증배소자를 보여준다. 표 1에는 세 종류의 섬광체에 대한 특성을 나타내었다. Ce:GAGG는 520 nm의 최대 방출파장을 가지며 90 nsec의 빠른 잔광시간(decay time)을 갖는다. 밀도는 $6.63 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 의 높은 구성 밀도로 효율적인 저지능을 보여 감마선에 의해 생성된 2차 전자에 대한 반응성이 높으며, 1 MeV의 에너지를 갖는 감마선에 대하여 약 55,000개의 높은 광자 방출 확률을 보인다[3]. Ce:GAGG와 기존에 상용화된 섬광체인 LYSO, CsI:Tl과 비교 시, LYSO는 40 nsec의 빠른 잔광시간을 갖지만 구성 원소 중 포함된 Lutetium (^{176}Lu : $78 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$)의 자가 방사능으로 인해 분광분석 시 배경잡음(background noise)의 영향을 받으며, CsI:Tl은 Ce:GAGG과 대비 1000 nsec의 느린 잔광시간과 공기중 수분에 민감한 조해성을 갖는 단점이 있다[4]. 실험에 사용된 Ce:GAGG는 일본 Furukawa Denshi Co, Ltd로부터 Seed Crystal을 이용한 Czochralski (Cz) 결정성장

책임저자 : 주관식, ksjo072@gmail.com
경기 용인시 처인구 남동 명지대학교(자연캠퍼스) 물리학과

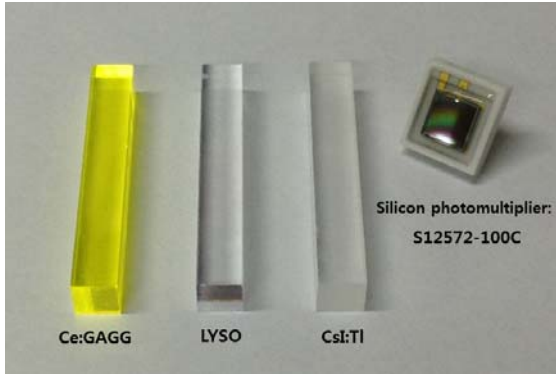


Fig. 1. Picture of Ce:GAGG(left), LYSO(Mid) and CsI:TI (Right) together with the $3 \times 3 \text{ mm}^2$ Hamamatsu S12572-100C SiPM.

Table 1. Physical and Scintillation Properties of Ce:GAGG and Other Scintillators.

Scintillator	Ce:GAGG	LYSO	CsI:TI
Density ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)	6.63	7.4	4.51
Peak Emission (nm)	520	420	550
Decay time (ns)	90	40	1000
Light yield (photons/MeV)	55000	32000	52000
Hygroscopic	No	No	Slightly
Natural activity	No	Yes	No

Table 2. Specifications of the SiPM used in this Study.

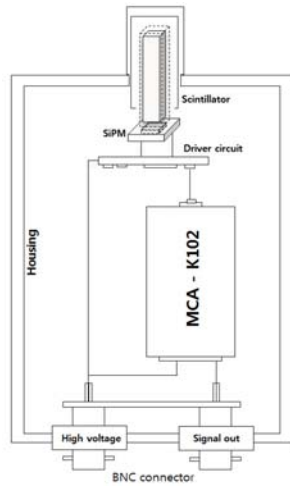
Parameter	Value
Photosensitive area	$3 \times 3 \text{ mm}^2$
Number of pixels	900
Spectral response range	320 ~ 900 nm
Peak PDE (at 450 nm)	35%
Bias voltage	$V_{br} + 1.4 \text{ V}$
Breakdown voltage	$65 \pm 10 \text{ V}$
Gain	2.8×10^6
Operating temperature	$-20 \sim 40^\circ\text{C}$

방법으로 제작되었으며, 약 1%의 Cerium을 함유하고 있다.

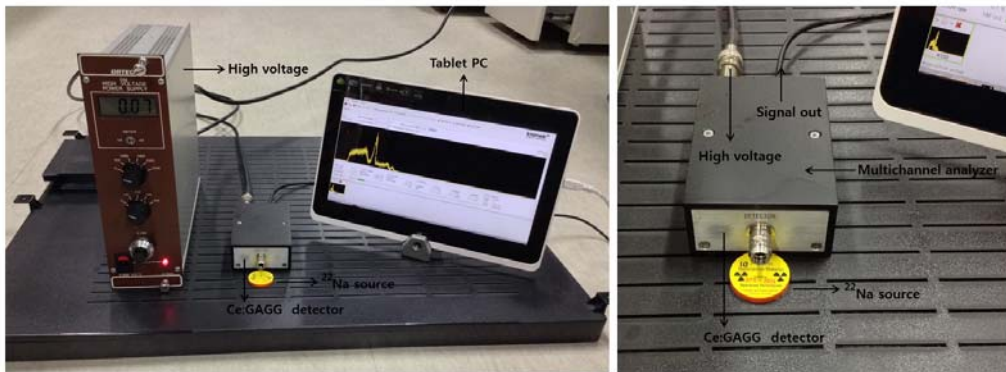
Ce:GAGG 섬광검출기의 검출소자로는 Hamamatsu의 실리콘 광 증배소자(silicon photomultiplier) : S12572-100C를 사용하였다. 검출소자에 대한 특성은 표 2와 같다.

2.2 Ce:GAGG 섬광검출기

그림 2는 본 연구를 위해 제작된 Ce:GAGG 섬광검출기와 전체 시스템이다. 전체 시스템은 섬광검출 부, 신호처리 부, 전압공급 부, 신호분석 부, 출력 부 등으로 구성된다.



(a)



(b)

Fig. 2. (a) Structures of Ce:GAGG scintillation detector and, (b) Spectroscopy system.

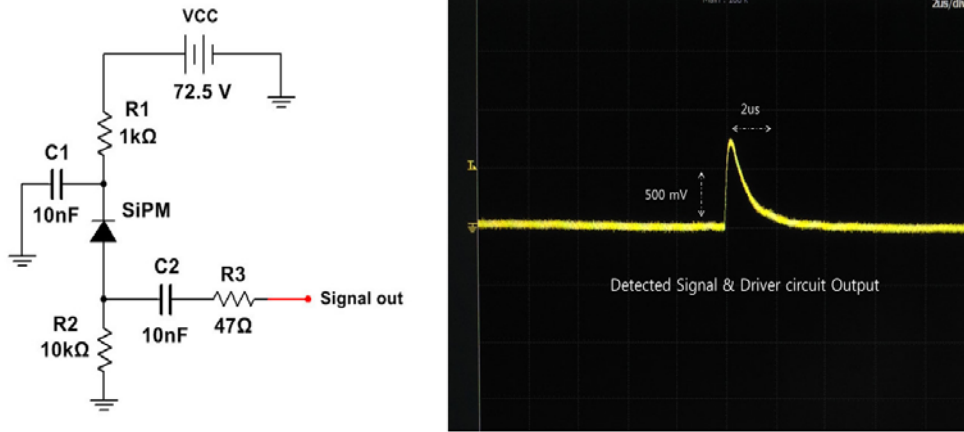


Fig. 3. Diagram of driver circuit (left) and output signal of driver circuit (right).

Table 3. Energy Resolution of Scintillation Detectors.

Gamma-ray energy		¹³³ Ba	²² Na	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co	
		0,356 MeV	0,511 MeV	0,662 MeV	1,17 MeV	1,33 MeV
Scintillation detectors	Ce:GAGG	13,5%	6,9%	5,8%	-	2,3%
	LYSO	21,5%	9,2%	8,1%	-	4,2%
	CsI:TI	24,8%	11,5%	10,2%	-	-

섬광검출부의 섬광체 단결정 크기는 검출소자의 Photosensitive Area와 동일한 3 mm × 3 mm 크기의 정방형(square type) 결정 형태와 감마선원의 고유한 특성이 되는 에너지 피크의 분광분석을 위해 감마선 에너지를 충분히 흡수할 수 있도록 20 mm의 길이로 제작하였다[5]. 섬광체 단결정의 반사체로는 수광 효율을 높이기 위하여 250~1000 nm 방출파장영역에 대하여 90% 이상의 반사율을 가지는 Teflon reflector를 이용하여 반사면을 형성하였으며, 반사체 표면은 검은색 아크릴 수지도료(acrylic resin coating)를 도포하여 주변광의 간섭을 최소화하였다. 또한 SiPM의 광 입사창과 섬광체 광출력 접촉면 사이의 공기층에 의한 광 산란 및 광 손실을 최소화하기 위해 SiPM과 섬광체 단결정 접촉면 사이에 1.465의 굴절률과 280~700 nm 파장에서 약 95%의 광 투과율을 갖는 Saint-Gobain의 BC-630을 사용하여 광학용 수지(optical grease) 층을 도포시켜주었다[6]. 감마선 분광분석을 위한 신호처리 부로는 기존에는 섬광검출 부에서 발생하는 전하신호를 전압신호로 변환해주는 전하 민감형 전치증폭기(charge sensitive preamplifier, CSP)와 변환된 전압 신호의 증폭과 동시에 가우시안 형태로 신호를 성형 해주는 성형 증폭기(shaping amplifier)를 설계하여 사용된다. 하지만 이러한 신호처리과정은 임피던스 부정합(impedance mismatch)에 의한 신호 감쇠와 신호 증폭 및 성형을 통한 신호 대 잡음비(signal-to-noise ratio, SNR)의 저하, 불감시간에 따른 출력전압의 중첩 등으로 인한 출력신호의 손실 문제를 수반하게 된다[7]. 따라서 본 연구에서는 실리콘 광 증배소자의 높은 전자증폭 이득을 갖는 특성을

고려하여 기존의 신호처리 과정을 제외하고 섬광검출부의 구동회로(driver circuit)만을 설계 및 구성하여 설계된 회로의 출력 신호를 분석하였다. 그림 3은 섬광검출부의 구동회로와 ²²Na 선원을 사용하여 구동회로부터 측정된 약 2 μs의 펄스폭을 갖는 700 mV 펄스신호이다. 전압공급 부는 HVPS-556 (ortec, USA)를 사용하여 73 ± 1.5 V의 전압을 발생시켰고, 신호분석 부는 4096채널의 MCA-K102 (kromek, UK) 파고분석기를 사용하여 출력부인 Tablet PC를 통해 분광분석을 수행하였다.

2.3 방사선원

감마선 분광분석을 위해 사용된 방사선원으로는 Disc type의 표준선원을 사용하였으며, 표준 감마선원(gamma-ray source)인 ¹³³Ba 0.356 MeV, ²²Na 0.511, 1.27 MeV, ¹³⁷Cs 0.662 MeV, ⁶⁰Co 1.17, 1.33 MeV (spectrum techniques, USA)이 사용되었다. 1 μCi의 방사능(activity)을 기준으로 하였으며, ¹³³Ba은 10.74년의 반감기 그리고 ²²Na는 2.6년, ¹³⁷Cs은 30.17년, ⁶⁰Co은 5.27년의 반감기를 갖는다.

3. 결과 및 논의

3.1 감마선 분광특성

표 3은 Ce:GAGG, LYSO, CsI:TI 섬광체 단결정을 사용하여 섬광검출기를 제작한 후 각각 ¹³³Ba, ²²Na, ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co의 감마선 에너지에 대한 에너지 분해능 값을 측정 한 결과이다. 감마선 스펙트럼은 300 sec동안 누적시켰다.

CsI:Tl 섬광체 단결정을 사용한 CsI:Tl-섬광검출기의 경우 ^{133}Ba 의 저 에너지 영역인 0.356 MeV의 전에너지 피크 측정 시, ^{133}Ba 의 0.303 MeV의 피크가 중첩되어 Multiplet을 형성하였다. 중첩된 ^{133}Ba 0.356 MeV 영역의 에너지 분해능 측정 시 24.8%의 에너지 분해능을 보였으며, ^{22}Na 의 베타 붕괴 시 양전자 소멸로 인하여 발생하는 0.511 MeV의 에너지에 대해서는 11.5%, ^{137}Cs 의 0.662 MeV의 에너지에 대해 10.2%의 분해능을 보였다. 하지만 ^{60}Co 에 대해서는 고 에너지 영역인 1.17, 1.33 MeV에 해당하는 채널에서 에너지 스펙트럼이 검출은 되었지만, 고 에너지 영역의 감마선이 제한적인 섬광체 면적과 느린 잔광시간(decay time)에 의해 피크 구별 및 분해능 측정이 제한되었다.

LYSO 섬광체 단결정을 사용한 LYSO-섬광검출기에서는 ^{133}Ba 의 전에너지 피크 측정 시 CsI:Tl-섬광검출기와 마찬가지로 0.303 MeV의 피크가 중첩된 중첩피크가 검출되었으며, 중첩피크를 형성한 해당 영역의 에너지 분해능은 21.5%로 평가되었다. ^{22}Na 의 0.511 MeV 에너지에서는 9.2% 그리고 ^{137}Cs 의 0.662 MeV의 에너지에 대해 8.1%의 분해능을 보였다. ^{60}Co 의 경우에는 CsI:Tl-섬광검출기와 달리 1.33 MeV 에너지에서 4.2%의 분해능이 측정 되었지만 1.17 MeV 피크는 여전히 광전효과로 인한 주 피크보다는 고 에너지 감마선의 콤프턴 효과에 의한 스펙트럼과 중첩되어 에너지 분별에 대한 어려움이 있다.

Ce:GAGG 섬광체 단결정을 사용한 Ce:GAGG-섬광검출기에서는 ^{133}Ba 의 전에너지 피크 측정 시 앞서 CsI:Tl, LYSO-섬광검출기에서 중첩피크로 검출되었던 ^{133}Ba 의 0.303 MeV 피크가 검출되었다. ^{133}Ba 은 0.303 및 0.356

MeV의 감마선이 18%와 62%의 확률로 각각 방출되며, Ce:GAGG-섬광검출기에서는 보다 정확한 ^{133}Ba 의 0.356 MeV 피크가 확인되었으며, 0.356 MeV 영역의 에너지 분해능 측정 시 13.5 %의 에너지 분해능을 보였다. ^{22}Na 의 0.511 MeV 에너지의 경우에는 6.9%, ^{137}Cs 의 0.662 MeV의 에너지에 대해서는 5.8%의 분해능을 보였다. ^{60}Co 의 경우에는 1.33 MeV 에너지에서 2.3%의 향상된 분해능이 측정 되었으며 1.17 MeV의 피크도 검출 되었지만, 콤프턴 효과에 의한 스펙트럼과의 중첩으로 1.17 MeV의 분해능 분석은 제한되었다.

그림 4는 Ce:GAGG, LYSO, CsI:Tl 섬광체 단결정을 사용한 섬광검출기의 감마선 에너지 스펙트럼을 보여 준다.

감마선 에너지에 대한 섬광검출기들의 에너지 분해능은 그림 5에서 볼 수 있듯이 높은 저지능(stopping power)과 광 수율(light yield), 빠른 잔광시간(decay time)을 갖는 Ce:GAGG기반 섬광검출기에서 가장 우수한 에너지 분해능을 보였으며, 그 다음은 LYSO-섬광검출기, 그리고 CsI:Tl-섬광검출기의 순서로 나타났다.

3.2 혼합선원의 감마선 분광특성

그림 6은 Ce:GAGG 섬광검출기의 감마선 분광특성의 분석결과를 기반으로 ^{133}Ba , ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{60}Co 선원을 이용하여 혼합선원에서의 감마선 에너지 분광특성을 보여주고 있다. 각각 1 μCi 의 선원에 대하여 혼합된 선원의 동시 측정 시 ^{133}Ba 의 0.303, 0.356 MeV, ^{22}Na 의 0.511 MeV, ^{137}Cs 의 0.662 MeV 그리고 ^{60}Co 의 1.33 MeV 감마선 에너지 피크가 검출되어, 혼합선원에서의 감마선 분광분석이 가능함을 확인하였다.

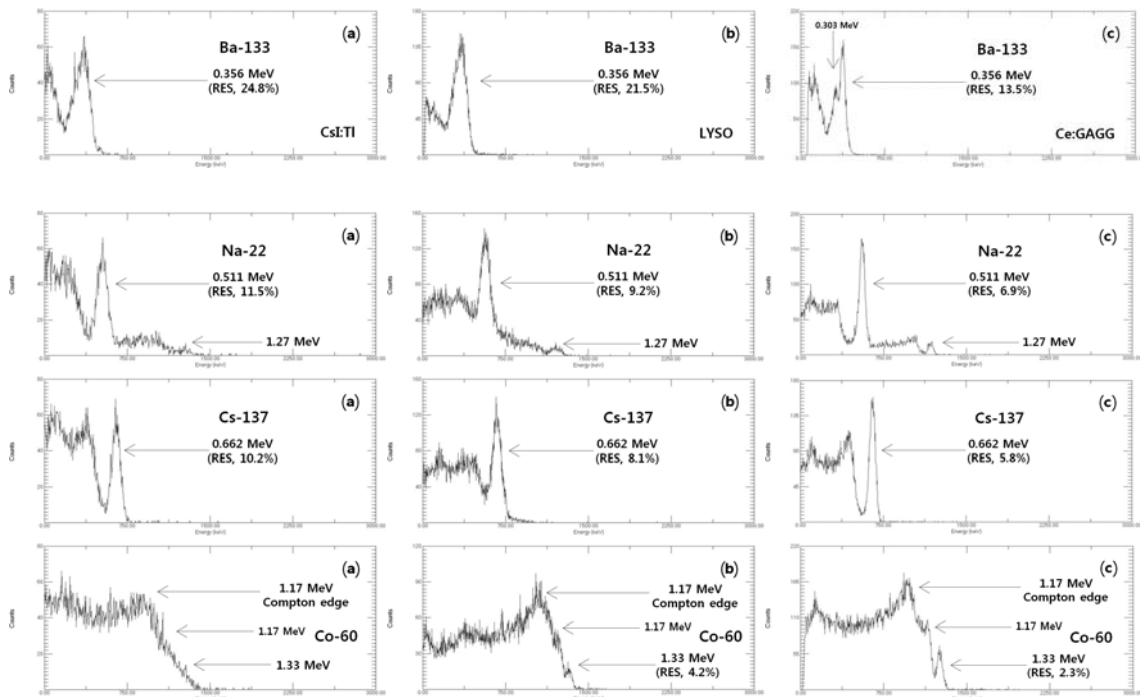


Fig. 4. Measured energy spectra of gamma-ray using the Ce:GAGG, LYSO, CsI:Tl scintillation detectors. (a : CsI:Tl-detector, b : LYSO-detector, c : Ce:GAGG-detector)

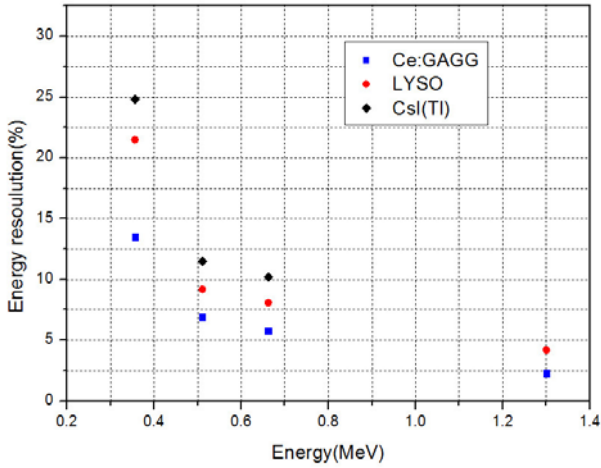


Fig. 5. Energy resolutions of scintillation detectors as a function of gamma energy.

3.3 감마선 에너지 선형성 평가

그림 7은 감마선 에너지의 선형성 평가를 위해 측정된 Ce:GAGG 섬광검출기의 에너지 교정선이다. 0.356 MeV에서 1.33 MeV까지의 에너지 영역을 이용해 측정된 감마선 에너지가 증가할수록 에너지 피크의 채널이 선형적으로 증가하는 경향을 보여 제작된 검출기를 통해 측정된 감마선 에너지와 에너지 피크 채널간의 선형성을 확인할 수 있다. 측정된 에너지 교정선에 대한 추계선의 결정계수(R-square)는 0.9984이다.

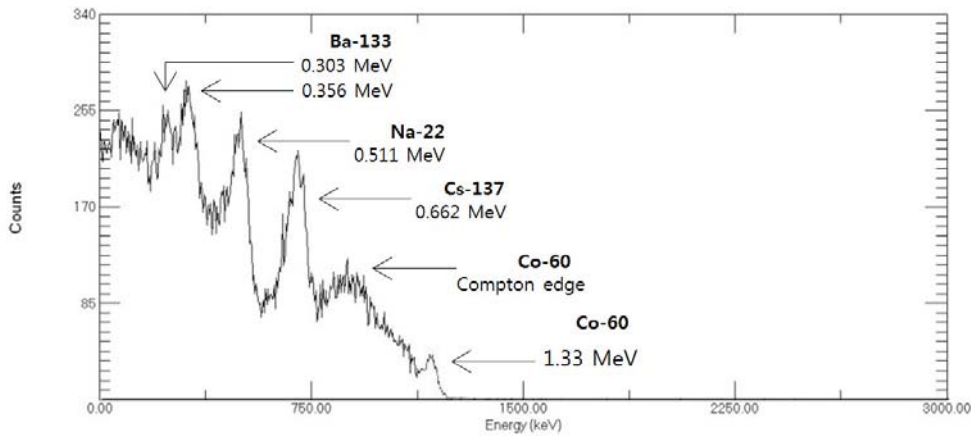


Fig. 6. Energy spectra of gamma-ray emitted from ¹³³Ba, ²²Na, ¹³⁷Cs and ⁶⁰Co.

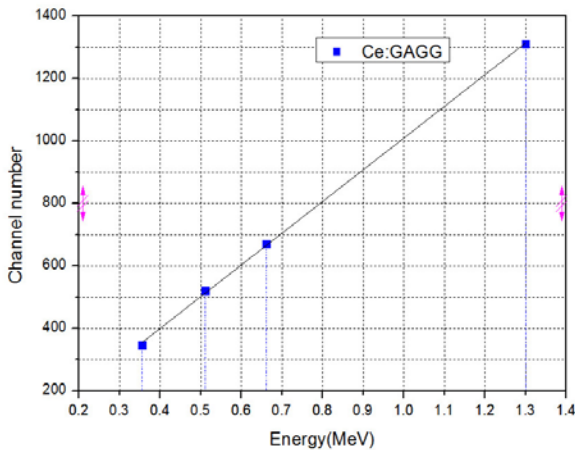


Fig. 7. Energy calibration curve of Ce:GAGG detector.

섬광검출기를 제작한 후 에너지 분해능을 비교분석 하였다. 분해능 측정 결과 Ce:GAGG-섬광검출기에서 가장 우수한 에너지 분해능을 보였으며, 혼합선원에서의 분광 특성 및 에너지의 선형성 평가를 통해 감마선 분광분석을 위한 섬광검출기로서의 가능성을 확인하였다. 하지만 고 에너지 감마선 분별에 있어 다소 제한적인 검출 효율을 보였기 때문에 이에 대한 지속적인 연구가 진행된다면 의료용 핵의학 분야 및 방사선 산업에서도 응용될 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 한국연구재단 (National Research Foundation of Korea) 수탁과제(과제번호 : R1A1A2011572)의 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCES

1. Chavanelle J, Parmentier M, CsI(Tl)-PIN photodiode gamma-ray probe. Nucl. Instrum. Meth. A. 2003;504:321-324.
2. Knoll GF. Radiation detection and measurement.

4. 결론

본 연구에서는 감마선 분광분석을 위해 Ce:GAGG, LYSO, CsI:Tl 섬광체와 실리콘 광 증배소자를 사용하여

- 3rd ed. New York; John Wiley & Sons Inc, 2000.
- Yeom JY, Yamamoto S, Derenzo SE, Spanoudaki VC, Kamada K, Endo T, Levin CS. First performance results of Ce:GAGG scintillation crystals with silicon photomultipliers. *IEEE, T. Nucl. Sci.*, 2013; 60(2):988-992.
 - Yamamoto S, Ogata Y. A compact and high efficiency GAGG well counter for radiocesium concentration measurements. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. A.* 2014;753:19-23.
 - Park HM, Joo KS. Performance characteristics of a silicon photomultiplier based compact radiation detector for Homeland Security applications. *Nucl. Instrum. Meth. A.* 2015;781:1-5.
 - Park HM, Hong HS, Kim JH, Joo KS. Development of a portable device based wireless medical radiation monitoring system. *J. Radiation. Protection.* 2014; 39(3):150-158.
 - Song KH, Kim KS. Development of one-channel gamma ray spectroscope for automatic radio-pharmaceutical synthesis system. *J. I. Electronics. Information. Engineers.* 2014;51(4):193-200.

Spectroscopic Properties of a Silicon Photomultiplier-based Ce:GAGG Scintillation Detector and Its Applicability for γ -ray Spectroscopy

Hye Min Park, Jeong Ho Kim, Dong Seong Kim, and Koan Sik Joo
Myongji University

Abstract - In this study, a scintillation detector was fabricated using a silicon photomultiplier (SiPM) and a Ce:GAGG scintillator single crystal, and its spectroscopic properties were compared with those of commercially available LYSO and CsI:Tl scintillators using γ -ray spectroscopy. The energy resolutions of the self-produced scintillation detector composed of the scintillator single crystal (volume: $3 \times 3 \times 20$ mm³) and SiPM (Photosensitive area: 3×3 mm²) for standard γ -ray sources, such as ¹³³Ba, ²²Na, ¹³⁷Cs and ⁶⁰Co were measured and compared. As a result, the energy resolutions of the proposed Ce:GAGG scintillation detector for γ -rays, as measured using its spectroscopic properties, were found to be 13.5% for ¹³³Ba 0.356 MeV, 6.9% for ²²Na 0.511 MeV, 5.8% for ¹³⁷Cs 0.662 MeV and 2.3% for ⁶⁰Co 1.33 MeV.

Keywords : Silicon photomultiplier (SiPM), Ce:GAGG, LYSO, CsI:Tl, γ -ray spectroscopy, Energy resolution