

# CMOS 기반 X선 영상의 해상력 향상을 위한 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 미세형광체 필름 제작 및 영상 질 평가

강상식, 최영준, 정봉재, 노시철, 조창훈, 윤인찬, 박지군

한국국제대학교 방사선학과

## Fabrication of Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb fine scintillator film and evaluation of image quality for resolution improvement of X-ray imaging based on CMOS

Sangsik Kang, Youngzoon Choi, Bongjae Jung, Sicheul No, Chan hoon Cho, Inchan Yoon, Jikoon Park

*Department of Radiological Science, IUK*

### 요 약

본 연구는 고해상도 디지털 X선 영상 검출기 적용을 위해 미세 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 형광체 분말을 저온 액상법을 이용하여 합성하였다. 제조된 형광체 분말을 이용하여 입자침전법을 이용하여 형광체 필름을 제작하여 발광특성을 조사하였다. 측정결과, Tb 첨가농도에 따른 상대적인 발광량 측정결과 5 wt%의 첨가농도에서 가장 높은 발광효율을 보였으며, 첨가농도가 증가할수록 소광현상에 의한 발광강도가 급격히 감소하는 경향을 보였다. 또한 270 μm 두께의 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb에서 2945 pC/cm<sup>2</sup>/mR의 발광 강도를 가졌으며, 발광 강도가 거의 포화되는 것을 관찰할 수 있었다. 끝으로 제조된 형광체의 영상획득 성능을 평가하기 위해 상용화된 CMOS 센서를 이용하여 X선 영상을 획득하여 MTF, NPS를 측정하여 DQE 평가를 수행하였다. 측정결과, DQE(0)의 값은 37%로 다소 낮은 값을 보였다. 향후 필름 제조 공정상의 문제점을 해결한다면, DQE를 개선할 수 있을 것이며, 고해상도 의료 방사선 영상 시스템 적용에 유용하게 적용 가능할 것으로 판단된다.

중심단어 : 형광체, 검출기, 엑스선영상, 변조전달함수, 입자침전법

### Abstract

In this study, fine Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb powder was synthesized by using a low temperature solution-combustion method for a high-resolution digital x-ray imaging detector. From the fabricated phosphor power, the fine scintillator films was fabricated by particle sedimentation method and was investigated the luminescent property. From the experimental results of relative light output as a function of terbium concentration, the highest luminescent efficiency has at 5 wt% Tb concentration, and luminescent intensity decreased rapidly according to quenching effect about higher Tb concentration. Also, the relative light output of 270 μm -Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb film has 2945 pC/cm<sup>2</sup>/mR. And light intensity was saturated at higher film thickness. Finally, to evaluate an image acquisition performance of fabricated phosphor, images were obtained by using commercial CMOS sensor and measured the MTF, NPS, and DQE. DQE(0 lp/mm) of fine phosphor film has 37%. But, DQE

improvement of fine phosphor film is possible by resolving problem of film fabrication process and has a significant potential in the application of digital radiation imaging system later.

Key Word : phosphor, detector, x-ray imaging, modulation transfer function, particle-in-binder,

## I. 서 론

디지털 방사선 영상화 기술은 다양한 산업용 비파괴 검사와 의료진단 등의 분야에서의 적용을 위해 급속히 발전되고 있다. 최근 평판형 디지털 X선 영상 시스템은 높은 공간 해상력, 우수한 양자검출효율(DQE), 그리고 기하학적인 왜곡이 없는 실시간 영상획득 등과 같은 많은 장점으로 인해 많은 연구개발이 이루어지고 있다<sup>[1]</sup>. 이러한 방사선 영상 진단기기에 널리 이용되고 있는 형광체는 방사선을 빛으로 변환시켜 인체 내부의 구조를 가시화하는데 이용되고 있는데, 이러한 형광체 입자의 크기는 영상의 공간해상력(spatial resolution)과 신호대잡음비(signal to noise ratio) 향상에 중요한 파라미터가 된다. 이러한 형광체 화합물 중에서  $Gd_2O_2S:Tb$ 는 높은 원자번호에 의한 고에너지에 대한 높은 흡수율과 우수한 발광효율을 가지므로 현재 널리 이용되고 있으며,  $Gd_2O_2S:Tb$ 의 발광특성을 향상시키기 위한 더 많은 연구가 진행되고 있다. 특히, 종래의 마이크로 크기 이상의 벌크형태의 분말을 이용하여 필름화 함으로써 사용되어지고 있는 있는데, 이러한 벌크입자들에 의해 광 신호의 산란에 의해 해상력 저하와 질량밀도(mass density)가 낮아 발광효율의 저감 등의 문제점이 대두되어 왔다<sup>[2-3]</sup>. 이러한 문제점을 개선하기 위하여 형광램프(luminescent lamp), PDP(plasma display panel) 등의 디스플레이 분야 외 다양한 산업분야에서는 이미 나노입자 제조에 대한 연구가 많이 진행되었다. 지금까지 나노 형광체에 대한 광학적 특성을 향상시키기 위해서 형광체 분말 제조 방법 및 활성제에 의한 발광특성 등의 많은 연구가 행되어 왔는데, 이러한 나노 크기의 형광체 입자들은 기존의 벌크 형태의 형광체에 비해 전기적, 광학적 특성들이 다소 다르다는 연구들이 보고되었다.<sup>[4-5]</sup> 매우 작은 크기의 입자들의 전기적 및 광학적 특성의 변화는 작은 입자 내에 존재하는 양자 허용 상태의 감소에 의한 밴드갭(band gap)의 증가와 표면 및 계면 효과를 향상시키는 부피에 대한 표면적의 비가 높기 때문에

나타나는 양자 크기 효과(quantum size effect)에 기인한다고 보고되고 있다.<sup>[6-7]</sup> 이러한 효과와 작은 크기의 입자들로 이루어진 형광체 소자는 발광효율을 향상시킴과 동시에 발광한 빛 광자의 산란을 감소시킴으로써 높은 해상력의 영상을 획득할 수 있다.

한편,  $Gd_2O_2S:Tb$  형광체는 방사선에 대한 효율이 높고 광센서(CMOS, CCD) 등과의 광 스펙트럼 일치가 우수한 것으로 보고되고 있다. 미세 입자 크기의  $RE_2O_2S:Tb$  [RE=Y, Gd] 형광체는 그들의 특이한 전기적, 광학적, 그리고 구조적인 특성 때문에 최근 몇 년간 self-burning method, sol-gel method를 이용한 미세 입자의 형광체 제조 연구가 발광특성에 대한 입자 크기의 영향을 조사하기 위해 이루어졌다.<sup>[8]</sup>

본 연구에서는 고해상도 방사선 영상을 위하여  $Gd_2O_2S:Tb$  미세 형광체 입자를 제조하였으며, 발광 특성을 조사하였다. 합성된  $Gd_2O_2S:Tb$  형광체 입자의 Tb 농도와 필름의 두께에 대한  $Gd_2O_2S:Tb$ 의 발광 특성에 미치는 영향을 제시하고자 한다. 형광체 필름의 제조는 대면적 평판형 X선 영상 적용과 두꺼운 필름 형성을 위하여 새로운 입자침전(particle sedimentation) 방법을 이용하였다. 끝으로  $Gd_2O_2S:Tb$  미세 형광체 필름과 CMOS 센서를 이용한 영상획득 및 영상 질(quality) 평가에 대한 실험적 결과를 제시하였다.

## II. 재료 및 방법

저온 액상법으로 제조된 형광체 분말 입자를 이용하여 X선 영상검출기로 적용하기 위해서는 수백 마이크로 두께의 형광체 필름으로 제작하여야 한다. 본 연구에서는 미세 형광체의 수백 마이크로 두께의 대면적 필름 형성을 위해 특별한 입자침전방식을 이용하였다. 이 방법은 유리기판위에 수 mm 두께의 폴리머 마스크를 부착한 후, 바인더 용액과 혼합하여 젤 형태의  $Gd_2O_2S:Tb$  형광체 페이스트를 상온, 대기압 상태에서 10시간 이상 침전시킨 후 80°C에서 소결 후처리를 통해 제작하는 방법이다. 입자침전법에 의해 제조된

Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 필름의 Tb 농도에 따른 발광효율 영향을 조사하기 위해 Tb를 1, 3, 5, 8, 10, 15, 20 wt%로 첨가하여 두께 100 μm, 필름면적을 2 cm × 2 cm 크기로 제작하였다.

X선에 의한 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 필름의 발광 강도 측정을 위해 사용한 X선 발생장치인 인버터 X선 장비(invertor X-ray generator, shimadzu TR-500-125)를 사용하였으며, X선 조사조건은 관전압을 70 kVp, 관전류를 100 mA, 그리고 30 msec의 조사시간으로 고정하였다. 형광체에 조사된 X선에 의해 방출된 빛을 검출하기 위한 검출기는 실리콘(Si) 포토다이오드를 이용하였으며, 오실로스코프를 이용하여 전기적 신호 파형을 획득하였다. 또한, 형광체 필름의 X선에 대한 선형성을 조사하기 위한 선량계측을 위해 radical cooperation 제품인 2060C 전리함을 이용하였다.

끝으로, Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 필름을 이용하여 X선 영상을 획득하여 영상 질(quality)을 평가하기 위해 rad-ikon CMOS X선 영상센서(Rad-ikon)를 이용하였다. 본 연구에서 제작된 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 미세형광체 필름을 이용하여 test pattern 영상을 획득하였으며, 획득된 영상으로부터 영상 질의 정량적 평가를 위해 MTF(modulation transfer function)과 NPS(noise power spectrum)를 측정하여 DQE(detective quantum efficiency)를 도출하였다.

### III. 결 과 및 고 찰

#### 1. Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 미세형광체의 발광스펙트럼

제조된 미세 형광체의 발광 특성을 조사하기 위해 single-grating 0.3mm 모노크로메터를 가진 발광 스펙트로메터(FS900CDT)를 이용하여 발광 스펙트럼을 얻었다. 광자극을 위해 이용된 여기 광원은 254nm 단일 파장의 450W 제논 램프를 이용하였으며, 스펙트럼의 파장영역은 480-600 nm에서 획득하였으며, 발광된 광자는 광증배관(R955, hamamatsu)를 이용하여 전기적 신호로 검출하였다. 그림 1.은 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 미세 형광체 입자의 발광 스펙트럼 결과를 나타내었다. 그림과 같이, 발광 스펙트럼은 480nm에서 600 nm의 스펙트럼 영역에서 3개의 가파른 발광 라인을 보였다. 또한, 가장 강한 라인은 Tb<sup>3+</sup> 이온의 천이에 해당하는 <sup>5</sup>D<sub>4</sub> - <sup>7</sup>F<sub>5</sub>와

일치하는 것을 관찰할 수 있었다. 스펙트럼의 미세 구조는 Tb<sup>3+</sup> 중심 주위의 crystal field에 민감하기 때문에 형광체 입자의 가파른 발광 스펙트럼은 결정화가 잘 되었으며, Gd<sup>3+</sup> 위치에 Tb<sup>3+</sup>의 대체가 잘 이루어진 것을 알 수 있었다.

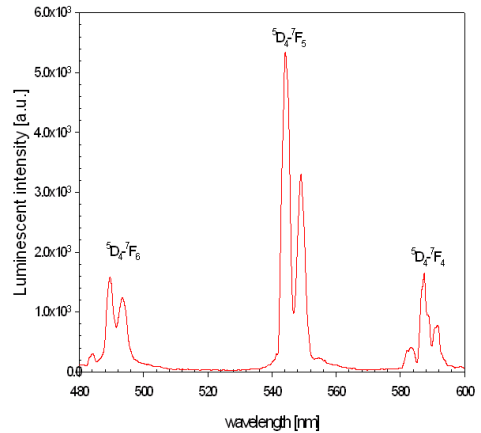


그림 1. Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 미세형광체 입자의 발광 스펙트럼

#### 2. Tb 농도에 따른 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 미세형광체의 발광특성

그림 2.는 Tb 농도변화에 따른 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 형광체 필름의 상대적인 발광량 크기를 나타내었다. 그림과 같이 5 wt%의 Tb 농도에서 가장 높은 값을 얻었으며, 더 높은 Tb 농도에서 감소하는 것을 알 수 있었다.

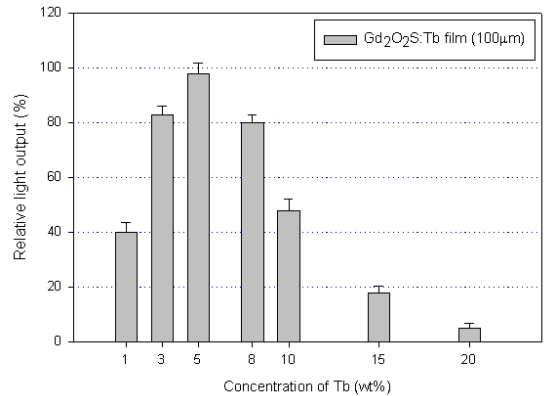


그림 2. Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 미세형광체 필름의 Tb 첨가농도에 따른 상대적 발광량

이러한 결과는 활성제(Tb) 이온에 의해 발광 중심(luminescent center)의 증가로 기인하여 발광 강도가 증가하지만, 최적의 농도 이상에서는 불필요한 이온에 의한 형광의 농도소광(concentration quenching) 현상이 기인하여 발광강도가 감소하는 것을 알 수 있었다. 즉, 과잉 농도에서 활성제 원자들의 응집(agggregation) 또는 짝맞춤(pairing)에 의해 활성제의 일부가 소광자의 역할을 하여 소광 효과를 야기하는 것으로 분석된다.

### 3. Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 미세형광체의 두께에 따른 발광효율

Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 형광체 필름의 두께의 함수에 대한 X선 조사(70kVp, 100mA, 30msec)에 의해 방출된 빛의 발광 강도를 그림 3.에 나타내었다. 그림과 같이, 270 μm 두께의 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb에서 2945 pC/cm<sup>2</sup>/mR의 발광 강도로 이 보였으며 270 μm 이상의 두께에서 발광 강도가 거의 포화되는 것을 관찰할 수 있었다.

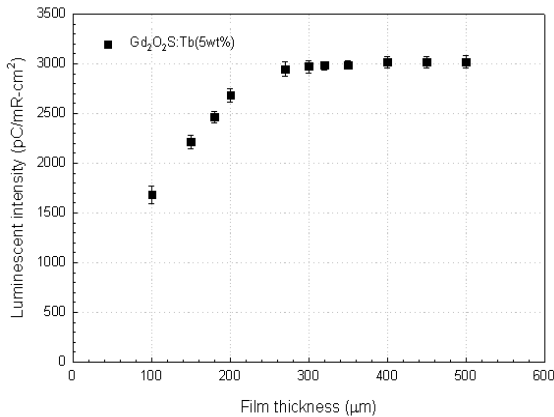


그림 3. Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 미세형광체 필름의 두께에 따른 발광 강도

이러한 결과로부터, 미세 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb의 필름의 X선에너지 흡수는 일반적인 벌크 형광체에 비해 높은 입자의 충전율(Packing factor)를 가지며, 본 연구에서 제조된 미세 입자의 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 형광체 필름은 에너지 흡수를 위한 필름의 두께를 낮춤으로써 종래의 350 μm 이상의 두께를 이용하는 형광체 필름에 비해 빛 산란을 감소시킬 수 있을 것으로 기대된다.

### 4. 영상획득 및 질(quality) 평가

MTF를 측정하기 위해 팬텀을 이용하여 영상을 얻

었으며, 같은 조건에서 NPS를 측정하기 위해 팬텀없이 영상을 획득하였다. 그림 4.에서와 같이 미세형광체 필름으로부터 획득한 영상이 전체적으로 밝은 휘도의 화질을 보였으며, 이는 발광효율의 증가에 따른 신호 대잡음비의 증가에 기인한 것으로 판단된다. 하지만, 형광체 입자의 불균일도 및 불순물에 의한 spot artifact를 관찰할 수 있었다. 이러한 현상은 향후 raw data에 대한 영상처리와 입자균일도 향상을 위한 제조공정의 최적화 연구를 통해 개선이 가능할 것으로 생각된다.

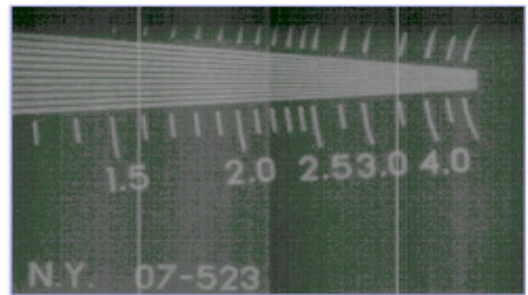


그림 4. CMOS 영상센서를 이용하여 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 미세형광체 필름으로부터 획득한 Test pattern 영상

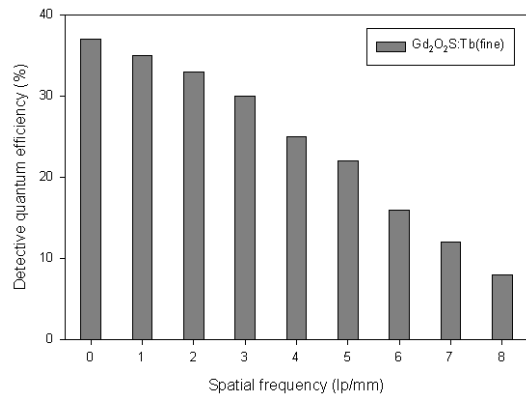


그림 5. CMOS 영상센서를 이용하여 획득한 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 미세형광체 필름의 DQE

그림 5.는 제작된 두께 270μm 두께의 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb(5wt%) 미세형광체 필름으로 획득된 CMOS test pattern 영상의 MTF와 NPS 결과로부터 얻어진 DQE 결과를 나타내었다. 그림에서와 같이, DQE(0)의 값은 37%로 상용화된 CMOS x-ray 영상 시스템보다 다소 낮은 값을 보였다. 향후 입자균일도 및 두께 편평

도 등의 필름 제조 공정상의 문제점을 보완한다면 DQE를 개선할 수 있을 것으로 생각된다. 본 연구의 결과로부터 미세 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 형광체는 향후 고해상도 의료 방사선 영상 시스템 적용에 유용하게 적용 가능할 것으로 판단된다.

#### IV. 결 론

결정화된 형광체 입자의 크기는 디스플레이 및 영상 검출 장치의 해상력을 위한 중요한 파라미터로 고해상도 영상 소자 적용을 위해 직경 10 μm 이하의 입자 크기가 요구된다. 본 연구에서는 저온 액상법을 이용하여 안정된 계면 효과를 나타낼 수 있는 나노 크기의 Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb 형광체 분말 합성 연구를 통해 Tb 첨가 농도에 따른 상대적인 발광량은 5 wt%의 첨가농도에서 가장 높은 발광효율을 보였으며, 첨가농도가 증가할수록 소광현상에 의한 발광강도가 급격히 감소하는 경향을 보였다. 또한 X선 흡수정도는 벌크 형광체 필름에 비해 높은 흡수효율을 가졌으며, 270 μm 두께에서 의료 진단형 X선 에너지에 대해 전 흡수가 됨을 알 수 있었고, 기존의 벌크 형광체의 두께를 낮춤으로써 광산란에 의한 해상력 저감을 향상시킬 수 있었다.

#### 감사의 글

이 논문은 2010년 정부(지식경제부)의 재원으로 산업원천기술개발사업 연구비 지원을 받아 수행된 사업임. (No. 10038652)

#### 참 고 문 헌

- [1] D. Cavouras, "An experimental method to determine the effective luminescence efficiency of scintillator-photodetector combinations used in x-ray medical imaging systems", the british journal of radiology, Vol 71, pp.766, 1998.
- [2] J. Yorkston. "Recent developments in digital radiography detectors" Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, Vol. 580, pp.974, 2007.
- [3] S. Arakawa, W. Itoh, K. Kohda, T. Suzuki, "Novel computed radiography system with improved image quality by detection of emissions from both sides of an imaging plate" SPIE. Proc. Phys. Med. Imaging, Vol 3659, pp.572, 1999.
- [4] Zych. E., Meijerink. A, Mello Donega. C, "Quantum efficiency

of europium emission from nanocrystalline powders of Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu, J. phys., Condens. Mat. Vol. 15, pp. 5145-5155, 2003.

- [5] Garcia-Murillo. A, Le Luyer. C, Dujardin. C, Martin. T, Garapon. C, Pedrini. C, "Elaboration and scintillation properties of Eu<sup>3+</sup>-doped Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sol-gel films", Nucl. Instrum. Metho. A, Vol. 486, pp. 181-185, 2002.
- [6] Liu X. J, Lio. H. L, Xie. R.J, Hirosaki. N, Xu. X, Huang. L. P, "Synthesis, characterization, and luminescent properties of Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu phosphors", J. Lumin., Vol. 127, pp. 469-473., 2007.
- [7] Wang. J. Liu. Q, Liu. Q. "Synthesis and luminescence properties of Eu or Tb doped Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> square nanosheet., Opt. Mater. Vol. 29, pp. 593-597, 2007.