

# LuAG:Ce, Mg 闪烁陶瓷的 X 射线平板探测器成像研究

胡 辰<sup>1,2</sup>, 刘书萍<sup>1,2</sup>, 冯召东<sup>2,3,4</sup>, 秦秀波<sup>3,4</sup>, 石 云<sup>1</sup>, 潘裕柏<sup>1</sup>

(1. 中国科学院 上海硅酸盐研究所, 透明光功能先进无机材料重点实验室, 上海 200050; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 中国科学院 北京高能物理研究所, 技术应用研究中心, 北京 100049; 4. 北京市射线成像技术与装备工程技术研究中心, 北京 100049)

**摘 要:** 采用固相反应法结合真空烧结技术制备了具有高光学质量高闪烁效率的(Lu, Ce, Mg)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (LuAG:0.3at% Ce, 0.2at% Mg)闪烁陶瓷。将 20 mm×20 mm×0.05 mm 的陶瓷薄片用含有石墨粉的硅胶粘接在尺寸为 25 mm×25 mm×4 mm 的石墨基底上, 再激光加工切割成 50 μm×50 μm、间距 10 μm 的正方形阵列, 进行 X 射线平板探测器成像研究, 并分别采用铅线对卡法和刀口法对陶瓷闪烁探测器的成像质量进行表征。结果表明: 陶瓷闪烁体制备的平板探测器成像清晰锐利, 铅线对卡法测试激光切割样品 10 lp/mm 下 *MTF* 可达 17.5%。刀口法测试激光切割样品 *MTF* 为 10% 时, 分辨率可达 9 lp/mm。该闪烁陶瓷具有在平板探测器上应用的潜力。

**关 键 词:** LuAG:Ce,Mg; 闪烁陶瓷; 平板探测器; X 射线成像

中图分类号: TL812 文献标识码: A

## Flat Panel X-ray Imaging of LuAG:Ce,Mg Ceramic Scintillators

HU Chen<sup>1,2</sup>, LIU Shu-Ping<sup>1,2</sup>, FENG Zhao-Dong<sup>2,3,4</sup>, QIN Xiu-Bo<sup>3,4</sup>, SHI Yun<sup>1</sup>, PAN Yu-Bai<sup>1</sup>

(1. Key Laboratory of Transparent Opto-Functional Inorganic Materials, Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. Division of Nuclear Technology and Applications, Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 4. Beijing Engineering Research Center of Radiographic Techniques and Equipment, Beijing 100049, China)

**Abstract:** (Lu, Mg, Ce)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (LuAG: Ce, Mg) transparent ceramic scintillators (LuAG: 0.3at% Ce, 0.2at% Mg) with high optical and scintillation efficiency were fabricated by solid-state reaction method combined with vacuum sintering. The ceramic scintillator with dimension of 20 mm×20 mm×0.05 mm was packed with graphite substrate of 25 mm×25 mm×4 mm by graphite powders contained silica gel. Laser cutting of cubic array with dimension of 50 μm×50 μm and distance of 10 μm was performed. Flat panel X-ray imaging based on as prepared ceramics was demonstrated. The images were good quality with a high resolution. The quality of the photos were evaluated by line-pair pattern method and knife edge method, respectively. *MTF* value of 17.5% was at 10 lp/mm for the ceramic scintillators after laser cutting, while resolution of 9 lp/mm achieved at 10% *MTF* by knife edge measurement. Based on above data, LuAG:Ce,Mg ceramics are proved to be a promising scintillator in flat panel X-ray imaging.

**Key words:** LuAG:Ce,Mg; ceramic scintillators; flat panel detector; X-ray imaging

自 1895 年德国物理学家伦琴(Roentgen)首次发现 X 射线以来, X 射线探测和成像技术已经成功地

应用到医学影像、工业无损检测和机场车站安全检查等领域<sup>[1-2]</sup>。近年来, 医学领域高分辨快速实时成

收稿日期: 2015-01-22; 收到修改稿日期: 2015-03-17

基金项目: 国家自然科学基金(11005139, U1332202);上海市科委项目(13JC1405800, 11JC1412400)

National Science Foundation of China(11005139, U1332202); Research Program of Shanghai Sciences and Technology Commission Foundation(13JC1405800, 11JC1412400)

作者简介: 胡 辰(1990-), 男, 博士研究生. E-mail: huchen@student.sic.ac.cn

通讯作者: 石 云, 副研究员. E-mail: shiyun@mail.sic.ac.cn; 潘裕柏, 研究员. E-mail: ybpan@mail.sic.ac.cn

像的需求不断扩大,国防、海关和航空航天等领域对无损检测成像的质量和精度要求也在不断提高,传统的 X 射线成像技术在分辨率和成像质量等方面已经不能满足需求,研究人员期望通过对 X 射线实时成像检测技术的研究,对扫描方式和重建算法的改进,提高图像质量和精度,并大幅度缩短扫描和重建时间。

基于平板探测器(FPDs, flat panel detectors)的 X 射线实时成像检测技术(Digital Radiography, DR)出现于 20 世纪 90 年代末<sup>[3]</sup>,具有轻便耐用、灵敏度高以及图像畸变小等优点,是继 X 射线胶片成像和计算机 X 射线成像(Computer Radiography, CR)之后新一代 X 射线实时成像技术,代表了该技术未来发展的方向。平板探测器又可分为直接能量转换和间接能量转换两类,其中基于闪烁探测器成像的间接转换类型 X 射线探测器(IDR, Indirect FPDs)是最常用的一种平板探测器成像技术。目前西门子、飞利浦和 GE 等公司都有商用的平板探测器产品,其闪烁材料主要是以碘化铯(CsI)<sup>[4]</sup>和硫氧化钆(Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S, GOS)为主<sup>[5]</sup>。

立方石榴石结构的(Lu, Ce)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>(LuAG: Ce)具有密度高( $\rho=6.73\text{ g/cm}^3$ )和有效原子序数大( $Z_{\text{eff}}=62.9$ )等优点,对 X 射线吸收能力强,是理想的 X 射线探测材料。与商用 CsI 和 GOS 相比, LuAG:Ce 除了具有密度、有效原子序数和辐射长度等优势外,其发射波长(510 nm)与硅光电二极管的灵敏探测区(500~1000 nm)匹配良好,且具有较高的光产额和更快的衰减时间(~70 ns),有利于提高成像质量<sup>[6]</sup>。LuAG 的熔点在 2000℃以上,单晶生长技术要求高,且成本较高。我们利用透明陶瓷制备技术,在国际上首次成功制备 LuAG:Ce 透明陶瓷,并实现了闪烁光输出<sup>[7]</sup>。2013 年<sup>[8]</sup>,本课题组又通过二价碱土离子(Mg<sup>2+</sup>)共掺杂技术,显著提高 LuAG:Ce 透明陶瓷的闪烁性能,获得了光产额高(21,900 ph/MeV)(高于文献报道的 LuAG:Ce 单晶的结果(18,000 ph/MeV)),且快衰减时间更快(~40 ns)以及余辉低的闪烁体。在  $\gamma$ 射线探测用国产 PET 仪的研究中,本课题组采用 4×4 LuAG:Pr 陶瓷阵列单元实现了二维散点图成像,所成散点图清晰可辨,证明透明闪烁陶瓷在医疗器械 PET 仪上的应用潜力<sup>[9]</sup>。

与 LuAG:Pr 陶瓷相比, LuAG:Ce, Mg 陶瓷闪烁体应用于 X 射线探测的优势更明显,本研究制备了具有高光学质量的(Lu, Ce, Mg)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (LuAG: 0.3at% Ce, 0.2at% Mg)透明闪烁陶瓷。针对平板探测器要求,对陶瓷进行激光加工和平板封装,组装了

闪烁陶瓷平板探测器,并开展成像研究。

## 1 实验方法

通过固相反应法以及真空烧结技术制备(Lu, Ce, Mg)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (LuAG: 0.3at% Ce, 0.2at% Mg)透明闪烁陶瓷。以高纯商业亚微米级 Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CeO<sub>2</sub> 和 MgO 粉体(99.99%)为原料,按照化学计量比 LuAG:Ce, Mg([Lu<sub>(1-x-y)</sub>Ce<sub>x</sub>Mg<sub>y</sub>]<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>,  $x=0.003$ ,  $y=0.002$ )配料,以无水乙醇为介质,在高速球磨机中球磨混合粉料 10 h。混合浆料干燥后过 200 目筛(74  $\mu\text{m}$ ),用钢模在 50 MPa 下成型,再冷等静压(200 MPa)得到陶瓷素坯。陶瓷素坯在 1850℃真空烧结,保温时间为 20 h,再在 1450℃空气气氛下退火。所制备的 LuAG:Ce, Mg 陶瓷块体,经过双面抛光即可得到 LuAG:Ce, Mg 透明陶瓷。所有样品均保持相同尺寸( $\phi 14\text{ mm}\times 2\text{ mm}$ )。

采用 UV-VIS-NIR 分光光度计(Cary-5000 型,美国 Varian 公司)测量陶瓷的透过光谱。采用自制的 X 射线激发发射仪测试陶瓷的 X 射线激发发射光谱,工作电压 70 kV,电流 2.5 mA,后端耦合 QE65000 型(Ocean Optical 公司)CCD 接收信号。该实验选取目前商业上广泛使用的 BGO 闪烁单晶作为对比试样,单晶由本单位采用 CZ(Czochralski)法生长,并切割、双面抛光成与陶瓷相同的尺寸。

X 射线平板探测器成像实验在中国科学院高能物理研究所完成。将 LuAG:Ce, Mg 陶瓷加工成 20 mm×20 mm×0.05 mm 的正方形薄片,然后用含有石墨粉的硅胶将陶瓷粘接在尺寸为 25 mm×25 mm×4 mm 的石墨基底上,再经过激光加工切割成 50  $\mu\text{m}\times 50\text{ }\mu\text{m}$  间距 10  $\mu\text{m}$  的正方形阵列。采用 MTF 曲线评价成像质量,分别采用铅线对卡法和刀口法测试 MTF 曲线,铅线对卡法的测试条件为 80 kV, 20 mA 曝光时间 60 s;刀口法选择标准 IEC62220-1 中规定的 RQA5 实验条件进行测试。

## 2 结果和讨论

### 2.1 LuAG:Ce, Mg 陶瓷闪烁体的制备

图 1 是制备的 LuAG:Ce, Mg 陶瓷在 200~800 nm 处的直线透过率曲线(样品厚度为 2 mm),插图为其实物照片。样品在可见光区的直线透过率可达 73%。样品存在两个明显的吸收带,分别位于 345 和 450 nm,这两个峰均对应于 Ce<sup>3+</sup>的特征吸收,来源于 Ce<sup>3+</sup>的 4f-5d 跃迁。该样品在 250~350 nm 的透过率非常低,

这是由于从 320 nm 开始  $\text{Ce}^{4+}$  的电荷转移态吸收带造成的, 说明在 Ce、Mg 共掺的样品中不仅存在  $\text{Ce}^{3+}$ , 还存在一定量的  $\text{Ce}^{4+}$ 。文献[8]研究表明:  $\text{Ce}^{4+}$  将有效地降低闪烁体的衰减时间以及缺陷浓度, 提高材料的光产额。

图 2 对比了 LuAG:Ce,Mg 陶瓷和提拉法生长同等尺寸的 BGO 单晶在 X 射线激发下的稳态发光效率。所制备的 LuAG:Ce,Mg 陶瓷的发光强度是 BGO 单晶的 7.5 倍, 发光性能优异。510 nm 发光峰对应于  $\text{Ce}^{3+}$  的 5d-4f 跃迁, 与硅光电二极管的探测灵敏区匹配良好。以上结果说明 LuAG:Ce,Mg 陶瓷是一种有潜力的平板探测器用闪烁体。

## 2.2 X 射线平板探测器成像

图 3 是 X 射线平板探测器成像原理示意图。X 射线光束经过准直器准直后, 穿过测试的线对卡达到 LuAG:Ce,Mg 陶瓷闪烁体上转化为可见光。可见光再通过光锥导入 CCD 转化为电信号, 最终由电

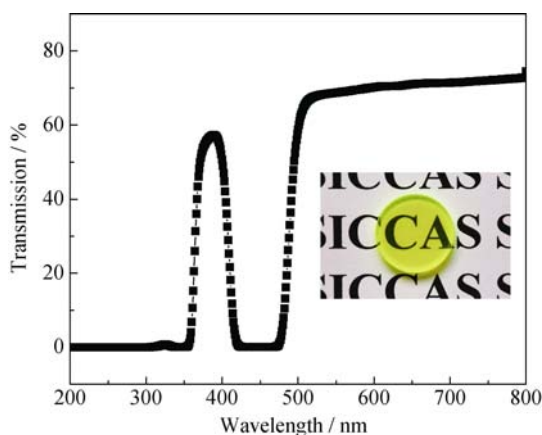


图 1 固相反应法制备 LuAG:Ce,Mg 陶瓷的透射率曲线及其实物照片(2 mm 厚)

Fig. 1 Transmission and photograph of LuAG:Ce,Mg ceramics fabricated by solid-state reaction method (2 mm thick)

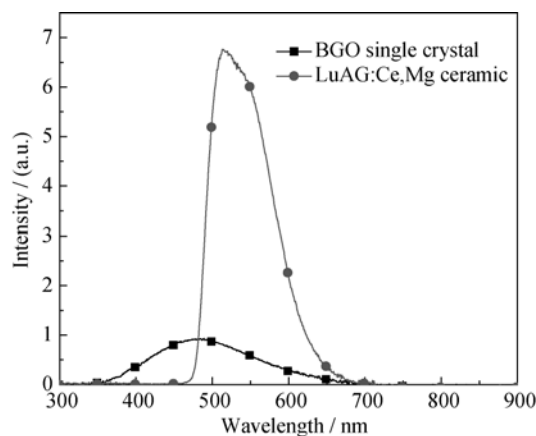


图 2 LuAG:Ce,Mg 陶瓷和 BGO 单晶的 X 射线激发发射强度  
Fig. 2 Radioluminescence spectra of LuAG:Ce,Mg ceramics and BGO single crystal

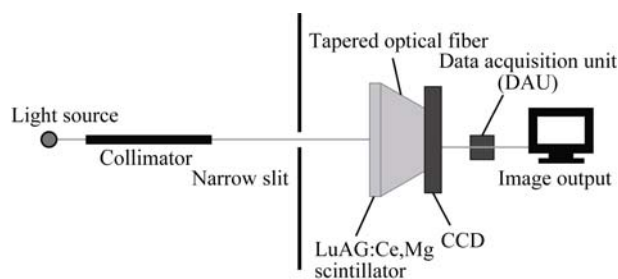


图 3 X 射线平板探测器成像原理示意图

Fig. 3 Sketch of flat panel imaging

脑收集为成像照片。本课题组采用 *MTF* (Modulation Transfer Function, 调制传递函数) 评价成像系统的成像质量。*MTF* 是目前最精确和科学的成像质量测试方法, 测试使用黑白逐渐过渡的线条标板, 通过系统进行成像, 被测量的结果是反差或分辨率的还原情况。如果所得影像的表现和测试标板完全一样, 其 *MTF* 值就为 1; 如果完全不同, *MTF* 值就是 0。因此, *MTF* 具有客观可重复性强等优点, 是本研究成像质量的评价标准。按前面所述工艺制备了尺寸为 20 mm × 20 mm × 0.05 mm 的 LuAG:Ce,Mg 闪烁陶瓷, 然后采用硅胶将陶瓷薄片粘接至石墨垫片上用于 X 射线平板探测器成像实验。为了提高材料的分辨率, 对初加工后的陶瓷薄片进行激光切割(切割参数见实验部分), 切割后样品的光学显微镜照片和实物照片(插图)见图 4。从图 4 可以看到激光切割后在样品表面所留下的痕迹清晰, 界限分明, 线间距和平行度控制精确。这些确保了方形的陶瓷阵列具有很高的加工精度。

此外, 采用未激光切割加工的原始陶瓷样品(为了保证实验可比性, 尺寸 20 mm × 20 mm × 0.05 mm 与激光切割样品一致)对比激光切割后对成像质量的影响效果。图 5 是采用成像平台拍摄的铅线对卡片照片。未激光切割加工的陶瓷和激光加工的陶瓷都获得了

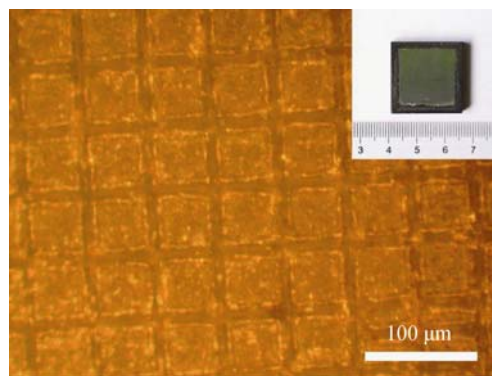


图 4 激光切割后 LuAG:Ce,Mg 陶瓷阵列在光学显微镜下的阵列结构照片及陶瓷块体实物照片

Fig. 4 Photographs of laser cut ceramics samples taken by optical microscope and digital camera

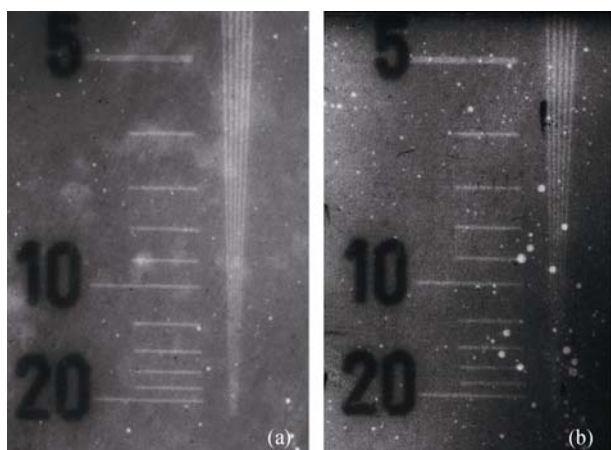


图 5 未经激光切割陶瓷样品(a)和激光切割后陶瓷样品(b)的铅线对卡片 X 射线成像照片

Fig. 5 X-ray imaging of standard line-pair pattern by ceramics samples (a) without and (b) with cutting

较高的成像质量, 5 lp/mm 处明暗相间条纹清晰可辨。但是两张照片均存在一定量的噪点, 这些噪点与 LuAG:Ce,Mg 陶瓷本身的光学均匀性、石墨的均匀性以及两者粘接处硅胶中石墨粉的均匀性都有关。考虑到 X 射线平板探测器系统最终的成像质量, 从材料角度, 优化陶瓷制备工艺并结合激光级抛光保证光学均匀性, 将有利于减少成像中噪点数目。

根据 X 射线成像照片, 计算了经激光切割加工和未经激光切割加工的 LuAG:Ce,Mg 陶瓷的铅线对卡片在不同空间频率下的  $MTF$ (图 6)。在这里  $MTF$  反映了成像照片对真实线对卡片中反差的还原情况。该反差数值由调制度  $M$  决定,

$$M = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} \quad (1)$$

式中,  $I_{\max}$  和  $I_{\min}$  分别为明条纹和暗条纹的光强值。因此, 成像照片  $MTF$  值应满足以下公式:

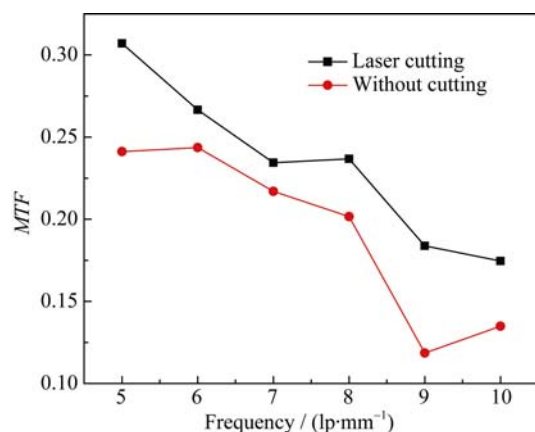


图 6 铅线对卡片测试的未经激光切割的陶瓷样品和激光切割陶瓷样品的  $MTF$  值

Fig. 6  $MTF$  value of ceramics samples with and without laser cutting by line-pair pattern method

$$MTF = \frac{M'}{M} \quad (2)$$

其中  $M'$  为像的对比度,  $M$  为线对卡的对比度(一般认为 1)。根据公式(2), 计算两块样品不同空间频率下  $MTF$  值。对比未处理的样品, 激光切割后的样品  $MTF$  得到了提高, 10 lp/mm 处可达 17.5%。

图 7 为经激光切割前和切割后陶瓷薄片的刀口 X 射线成像照片。相对于激光切割样品, 未经激光切割处理样品的刀口边缘处模糊, 界限不清晰, 锐度较差; 激光切割样品, 刀口周边界限清晰平整, 锐度高, 对比度大。为了进一步分析成像照片的质量, 计算了照片调制传递函数( $MTF$ )。图 8 为刀口法测试激光切割加工和未经激光切割加工的 LuAG:Ce,Mg 陶瓷在不同空间频率下的  $MTF$  曲线。激光切割陶瓷样品的  $MTF$  曲线明显优于未切割的陶瓷样品。从图 8 可以发现, 未激光切割的陶瓷样品在  $MTF$  为 10% 时, 空间分辨率可达 6 lp/mm; 而激光切割后的陶瓷样品空间分辨率则达到 9 lp/mm, 提高了近 50%。以上结果表明, 激光切割对于闪烁探

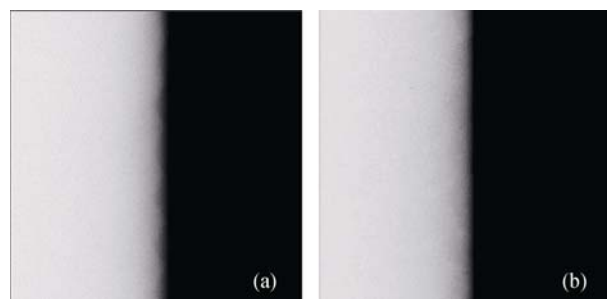


图 7 未激光切割陶瓷样品(a)和激光切割陶瓷样品(b)的刀口 X 射线成像照片

Fig. 7 X-ray imaging of knife edge by ceramic samples (a) without and (b) with cutting

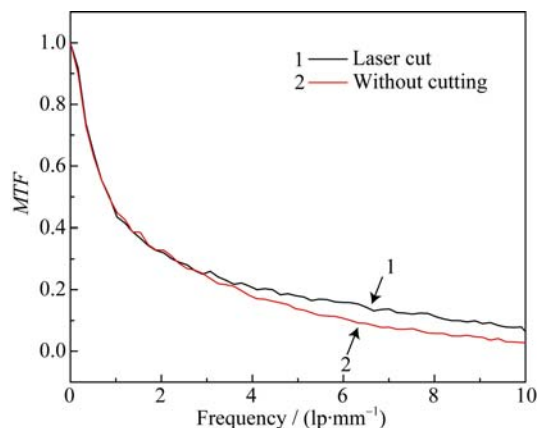


图 8 刀口法测试激光切割样品和未激光切割陶瓷样品的  $MTF$  曲线

Fig. 8  $MTF$  curve of ceramics samples with and without laser cutting measured by knife edge method

测器的成像质量具有明显的优化作用,可提高成像精度和成像质量。

本工作制备的 LuAG:Ce,Mg 闪烁陶瓷具备较好的闪烁性能,且基于该陶瓷阵列的平板探测器成像锐利,最佳空间分辨率可达 9 lp/mm,说明了该闪烁陶瓷具有在平板探测器上应用的潜力。但是,该材料在光学质量和光学均匀性上还需进一步提升。在本工作制备的 LuAG:Ce,Mg 闪烁陶瓷中,没有添加传统的透明陶瓷烧结助剂 TEOS,因为研究发现<sup>[10]</sup>,TEOS 中引入的  $\text{Si}^{4+}$ ,虽然有利于促进烧结和提高光学透光率,但显著降低光产额等闪烁性能; $\text{Mg}^{2+}$ 的格位掺杂一定程度上提高了光学透过率。因此通过选用合适的烧结助剂或通过其他工艺路径来制备高光学质量高闪烁性能的 LuAG:Ce,Mg 透明陶瓷,仍是今后石榴石闪烁陶瓷研究的重点。此外,陶瓷的精细加工技术(如:激光级抛光,激光切割等)将在优化器件封装结构和提升系统成像质量中发挥重要的作用。

### 3 结论

1) 采用固相反应法结合真空烧结技术制备 LuAG: Ce,Mg 闪烁陶瓷,800 nm 处透过率达 73%,X 射线激发稳态发光效率是提拉法生长同等尺寸 BGO 单晶的 7.5 倍。

2) 陶瓷闪烁体制备的平板探测器成像清晰锐利,铅线对卡法测试激光切割样品 10 lp/mm 下 MTF 可达 17.5%。

3) 刀口法测试激光切割样品 MTF 为 10%时,分辨率可达 9 lp/mm。

研究工作显示,对闪烁陶瓷进行激光切割可以确保成像质量和精度,LuAG:Ce,Mg 闪烁陶瓷有可

能应用于平板探测器。通过提高陶瓷的光学均匀性和优化硅胶中石墨粉的分布均匀性以及选用合适的烧结助剂,有望进一步提高成像质量和精度。

### 参考文献:

- [1] EIJK C W E V. Inorganic scintillators in medical imaging. *Phys. Med. Biol.*, 2002, **47**(8): R85–R106.
- [2] NIKL M. Scintillation detectors for X-rays. *Meas. Sci. Technol.*, 2006, **17**(4):R37–R54.
- [3] ZHAO W, ROWLANDS J A. X-ray imaging using amorphous selenium feasibility of a flat-panel self- scanned detector for digital radiology. *Med. Phys.*, 1995, **22**(10):1595–1604.
- [4] KOBAYASHI M. Radiation Measurement with Scintillators. Nagoya: V2-Solution, 2014: 437–443.
- [5] MARTIN S. Flat detectors and their clinical applications. *Eur. Radiol.*, 2005, **15**(9): 1934–1947.
- [6] AKSOY M E, KAMASAK M E, AKKUR E, *et al.* Evaluation and Comparison of Image Quality for Indirect Flat Panel Systems with CsI and GOS scintillators. 7th International Symposium on Health Informatics and Bioinformatics (HIBIT), Nevsehir, 2012: 57–62.
- [7] LI H, LIU X, HUANG L. Fabrication of transparent cerium-doped lutetium aluminum garnet (LuAG:Ce) ceramics by a solid-state reaction method. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2005, **88**(11):3226–3228.
- [8] LIU S, FENG X, ZHOU Z, *et al.* Effect of  $\text{Mg}^{2+}$  co-doping on the scintillation performance of LuAG:Ce ceramics. *Phys. Status Solidi-R*, 2014, **8**(1): 105–109.
- [9] SHEN Y, SHI Y, PAN Y, *et al.* Fabrication and 2D-mapping of Pr:  $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  scintillator ceramics with high light yield and fast decay time. *J. Inorg. Mater.*, 2014, **29**(5):534–538.
- [10] SHEN Y, SHI Y, FENG X, *et al.* The harmful effects of sintering aids in Pr:LuAG optical ceramic scintillator. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2012, **95**(7):2130–2132.