

<Review>

TLD의 특성과 最近動向

陸 鍾 激*

漢陽大學校 工科大学 原子力工學科

Characteristics of TLD and Their Recent Trend

Chong Chul Yook*

Dept. of Nuclear Eng., College of Eng., Hanyang University, Seoul, Korea

1. 序 論

1977年 6月 19日은 우리나라 最初로 建立된 原子力發電所의 原子爐 臨界日이 되고 1977年 6月 30日 10%의 核電力을 生産했으며 1978年 4月에 商用電力을 供給하여 오늘날에 이르렀다. 特히 80% 効率로 現在까지 大事故없이 運轉되고 있음은 우리 모두가 慶祝할 일이고 核電力을 供給하고 있는 韓國電力會社 原子力 擔當任職員 및 技術者여러분에게 對하여 深甚한 感謝를 드리는 바이다. 다만 核發電에서 가장 重要視되는 것은 放射線被曝線量에 對한 安全管理 問題와 環境管理問題라고 본다. 왜냐하면 從事者의 人命과 住民의 人命이 가장 尊重視되고 貴하기 때문이다. 따라서 放射線에 대한 個人防護用 monitor의 重要性이 強調된다. 뿐만 아니라 最近發足한 核燃料加工工場을 爲始하여 放射線同位元素(R.I.)와 X-線 裝置를 利用한 各種關聯産業 從事者(非破壞檢査從事者包含)와 原子力研究所의 放射線取扱 및 作業從事者는 勿論 各病院의 X-線 取扱者와 醫科用 RI 取扱者等 모든 放射線取扱 및 從事者는 自己自身을 爲하고 直系家族을 爲하여서도 放射線被曝管理問題는 大端히 重且大하다. 나아가서 國民全體의 有意遺傳線量 管理問題와도 直結된다고 함을 此際에 더

욱 強調한다. 따라서 放射線從事者에 對한 障害防禦를 爲해서 其適正한 個人 monitor인 被曝線量測定器의 重要性이 여기서 明確히 認識될 處로 믿는다.

在來使用해 오던 film badge 및 pocket chamber (電離函檢出器)와 같은 個人 monitor用 線量計(dosimeter)로는 低線量被曝 檢出器로서는 不適當한 事實이 國際적으로 이미 잘 알려져 있는 實情이며 이를 補充 開發된 것이 TLD(Thermoluminescent Dosimeter) personnel dosimeter고 現在 우리나라 原子力發電所의 放射線 從事者들은 모두 이 TLD를 film badge 代身에 善用하여 個人被曝線量を 檢出管理하고 있음은 大端히 多幸한 處事라고 하겠다.

核發電所 뿐만 아니라 放射線診斷, 放射線治療 및 放射線加工等に 從事하는 放射線被曝者들은 今後 必히 TLD를 着用하여 自己自身을 放射線被曝으로부터 防護해야 함은 再言이 不必要하다고 하겠다.

最近 γ -X線에 對한 個人被曝線量計로서는 CaSO_4 (Dy), LiF(Mg), LiF-Mg(Na), Al_2O_3 및 CaF_2 (Dy), 및 CaF_2 (Mn) 등이 film badge와 代置되어 널리 使用되며 TL-dosimeter는 computer로 判讀하게 되어 多量의 badge를 短時間에 處理하고 있는 實情인 것이 美國, 英國, 佛蘭西, 日本等 先進國들이다. 한 예로 badge type LiF-Mg(Na)에 $20\text{mg}/\text{cm}^2$ 의 polyethylene 被覆으로 skin dose를 測定하고 $320\text{mg}/\text{cm}^2$ 의 plastic 피복으로 body dose를 測定하며 Cu-1mm, Pb-1mm 의 피복으로 X-ray dose, ^6LiF 로 熱中性子線量を 測定하며 computer 處理때 其速度는 10 dosimeter/min. 最少線量の 測定 精密度는 $10\text{mrad} \pm 3\text{mrad}$, 最大線量の 測定은 1,000rad다. Computer cartridge서 card의 處理速度는 60card/hr로 判讀하며 이때 其 background

* 大韓放射線 防禦學會 會長(工博)
(President of the Korean Asst. for Radiation Protection)
國際 放射線防禦學會(IRPA) 極東地域代表
(J.C. Representative of the Far East Asia, IRPA)
美國保健物理學會 顧問
(Member of the Advisory Board, Health Physics Society, U.S.A.)

線量은 500 μ R이니 現存 dosimeter로서는 가장 最低 background線量인 것이고 film badge나 pocket chamber로서는 絶對不可能한 數值인 것을 알 수 있다.

放射線區域別로 實用測定 範圍는 다음과 같이 大別할 수 있다. 即,

- (1) 環境放射線 Level : $10^{-6} \sim 10^{-3}$ rad, rad/hr.
- (2) 放射線防護 Level : $10^{-3} \sim 10^{-1}$ rad, rad/hr.
- (3) 放射線診斷 Level : $10^{-1} \sim 10^2$ rad, rad/hr.
- (4) 放射線治療 Level : $10^2 \sim 10^4$ rad, rad/hr.
- (5) 放射線加工 Level : $10^4 \sim 10^8$ rad, rad/hr.

위와 같은 高低線量の 全領域을 TL-dosimeter로 堪當할 수 있으니 理想的인 線量計라고 할 수 있으나 現實的으로 單一 TLD로서는 期待할 수 없고 亦是 低, 中, 高 線量測定別로 TLD의 種類選擇이 要望된다.

Phosphor glass-dosimeter도 約 10mR程度의 低線量 測定에 使用되며 其 成分은 다음과 같다.

- LiPO₃ : 50
- Al(PQ₃)₃ : 50
- AgPO₃ : 7
- B₂O₃ : 3

이 dosimeter는 一名 磷酸鹽glass(Ag)라고도 하며 1mm ϕ ×6mm크기의 小型으로 體內照射線量도 測定할 수 있다.

또한 μ R程度 低線量測定에 TSEE(Thermally Stimulated Exoelectron Emission) dosimeter도 開發途上에 있으며 單純한 badge用이 아니며 G-M Counter의 Tube內에 TSEE를 放出하는 材料인 LiF, BeO, CaSO₄, CaF₂, BaSO₄, Li₂B₄O₇ 및 SrSO₄ 등을 插入해야 하고 同時에 加熱, 冷却, 溫度制禦裝置가 必要함이 多少 不便하다고 하겠으며 personnel monitor로서는 不適當하다.

이 線量計는 發光機構에 있어서 TLD와 類似하여 EED(Exoelectron Emission Dosimeter)라고 稱하며 TLD와 EED의 原理를 다음과 같이 簡易하게 說明하기로 한다.

2-(1) TLD와 EED의 原理

그림 1은 絶緣物의 electron energy band model이며 放射線 固體檢出器(solidstate detector)의 一般의 energy band-model이기도 하다. TLD나 EED 素材物質에 不純物(Impurity)인 活性劑 即 CaF₂ 內의 Dy, CaF₂內의 Mn, CaSO₄內의 Dy等等 微少量을 添加(眞空蒸着, 擴散法) 導入하고 이 物質을 熱處理하면 物質內에 生成되는 格子欠陷(Lattice Defect)으로 因하여 充

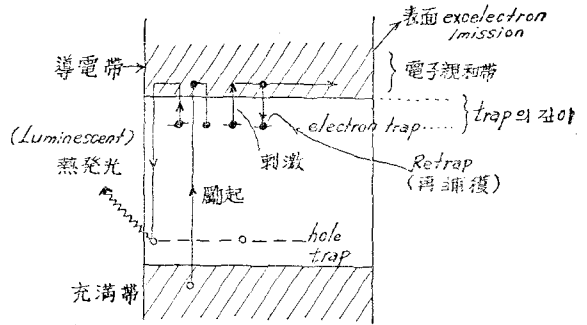


그림 1. 熱發光과 exoelectron放出機構

滿帶(Filled band)에서 電子가 勵起되어 導電帶로 移動하여 電子親和帶內서 自由로 運動한다. 其 energy를 放出하면서 어떤 level에서 electron trap(電子捕獲)이 되고 이때 ○表는 hole, ●表는 electron으로 圖示하였으며 hole trap때 熱發光 또는 Luminescenter를 形成한다. electron-hole pair는 放射線照射로 因해서 생기며 어떤 電子는 Retrap(再捕獲)되기도 하고 electron과 hole이 再結合(Recombination)이 되기도 하며 固體의 電子 親和力 보다 더큰 energy를 가진 어떤 電子는 이 固體에서 離脫 하게 된다.

電子 trap 中心에 trap된 電子는 照射後에도 變位는 안되며 이 trap 電子數가 放射線照射線量에 比例한다. 다만 照射線의 energy, 線質 및 固體素子の 放射線 吸收特性等に 依해서도 trap電子數는 變化한다.

TLD 開發은 最初 Randall과 Wilkins가 1940年 "phosphorescent and electron traps"란 論文을 發表함으로써 luminescence(螢光)의 發光原理 및 其熱發光 機構가 明確하게 되었다.

2-(2) Thermoluminescence glow:

螢光을 放出할 수 있는 溫度와 其 最大光強度는 螢光物質의 종류에 따라 다르나 이 螢光發光을 glow라고 하며 其 強度는 加熱溫度에 따라서 다르고 이 溫度와 強度의 相關 曲線을 glow-curve라고 하여 매우 重要한 特性을 가진다.

Glow는 電子 trap level에서 電子가 다시 勵起(加熱)되어 導電帶(conduction band)로 上昇 되었다가 充滿帶(그림 1) 또는 基低狀態(ground state)로 내려오면서 電子가 가진 energy를 放出 하고 hole trap level에서 trap 될 때 glow가 생긴다. Glow curve의 모양으로 trap의 깊이 即 energy 準位分布를 짐작할 수 있다. Glow curve의 한 例로 ZnS-Cu phosphor에 대하여 其特性을 表示하면 다음과 같은 그림 2가 된다.

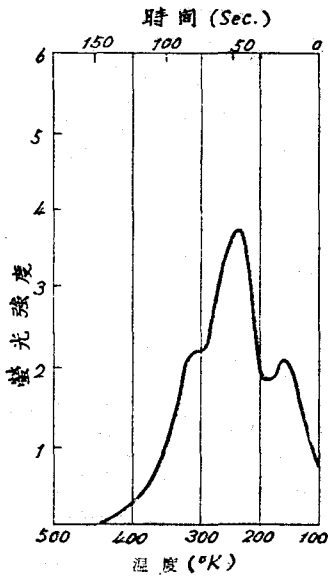


그림 2. ZnS-Cu에 대한 glow curve

이 그림에서 보는 바와 같이 240°k, 50秒 때 螢光強度가 最大임을 알 수 있다. 一般的으로 glow curve의 形成 理論과 trapped electrons의 特性을 살펴보면 다음과 같다.

2-(3) Glow Curve의 理論

Trapped electron의 energy level을 E eV라하면 導電帶 energy보다 낮으며 trap level에서 電子가 脫出하려면 最少限 E eV를 吸收해야 한다는 것이고 energy E를 trap depth(捕獲深部)라 稱한다.

Trap된 電子들의 分布는 熱 energy에 依해서 Maxwell分布를 形成하며 溫度 T에서 trap depth E로부터 脫出할 수 있는 確率을 P라고 하면

$$P = S \exp(-E/kT) \dots\dots\dots(1)$$

여기서는 k는 Boltzmann constant, S는 溫度와 같이 徐徐히 變化하는 常數이나 trap level을 하나의 potential box(電位상자)라고 假定한다면 電子가 이 상자의 側面과 부딪쳐서 反射되는 反射係數(Mott와 Gurney에 의한 값²⁾)와 振動周波數와 같은 값이나 結晶體의 振動周波數인 $1 \sim 2 \times 10^{12} \text{sec}^{-1}$ 보다 낮은 값이며 phosphor에서는 $S \approx 10^8 \text{sec}^{-1}$ 정도라고 한다.

實驗으로 얻은 glow curve는 traps과 depth 即 어떨던 depth에 electron trap가 一定한 溫度에 어떻게 分布되는가 하는 것을 알아내기 爲한 方法이라고 하겠다.

이는 E가 一定하다하고 溫度 T는 一定率로 上昇 시킬때 glow curve의 모양을 算出함은 다음과 같이 (1)

式을 展開한다. 即 $N = \text{時間 } t \text{ 때 trap內의 電子數}$ 라하면 (1)式은 다음과 같이 쓸수 있다.

$$\frac{dn}{dt} = -nS \cdot \exp(-E/kT) \dots\dots\dots(2)$$

(2)式은 再捕獲(retrapping)이 없다는 假定下에 成立한다. 大體로 trap에서 脫出된 電子는 luminescence center(熱發光中心)로 恒常 떨어지게 되지 다른 trap으로는 떨어지지 않는다. 따라서 發光強度 I는 luminescence center에 電子가 얼마나 많은率로 떨어지느냐에 따라서 달라진다. 이 原理를 數式化 하면 다음과 같다.

$$I = Cdn/dt = -C \cdot n \cdot S \exp(-E/kT) \dots\dots(3)$$

(2)式을 變換하면 $dn/n = -S \cdot \exp(-E/kT) dt$ 여기서 $dT = \beta \cdot dt$ 라 하면 β 는 溫度의 加溫率이 되고 이를 積分하면 다음과 같다.

$$\log n/n_0 = -\int_0^T 1/\beta \cdot S \exp(-E/kT) dT$$

$$n = n_0 \exp[-\int_0^T 1/\beta \cdot S \cdot \exp(-E/kT) dT]$$

따라서

$$I = C \cdot dn/dt = n_0 C \exp[-\int_0^T 1/\beta \cdot S \cdot \exp(-E/kT) dT] \cdot S \cdot \exp(-E/kT) \dots\dots\dots(4)$$

(4)式은 phosphor에 대한 glow curve強度를 表現하며 한箇의 depth에 電子 trap을 가지고 있는 경우가 된다. curve 表現式 (4式)에서 $S = 2.9 \times 10^8 \text{sec}^{-1}$, $E = 0.67 \text{eV}$, $\beta = 2.5^\circ/\text{sec}$, $0.5^\circ/\text{sec}$. $T = 356^\circ \text{K}$ 일때 다음과 같은 2箇의 curve가 생기며 이는 加溫率인 β 에 두가지 값을 適用 했기 때문이다(그림 3).

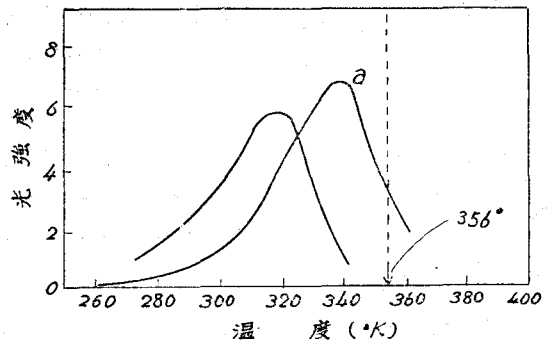


그림 3. 單一trap depth와 (a), (b) 두가지 加溫率일 때의 理論的 glow curve

그림 3에서 curve(a)는 $2.5^\circ/\text{sec}$. (b)는 $0.5^\circ/\text{sec}$. 의 加溫率일 때이고 trapped electron의 減衰時間은 1秒다. (a), (b) 두 曲線의 指數的 上昇이 低溫에서 생기며 이는 (3)式的 指數項에 起因하고 光放出이 當分

間 持續하다가 (3)式的 n 인 trapped electron數는 最大로 되었다가 次次 減少하게 되고 trap된 電子의 放出이 끝나면 零(強度)이 된다.

Glow curve의 最高點은 電子가 trap로 부터 脫出하는 確率이 1個/sec. 때 생기며 그림 3에서 356°K때 其 確率이 1個/sec.니까

$$S \cdot \exp[-E/kT_g \{1+f(S, \beta)\}] = 1$$

여기서 T_g =最大 glow가 생기는 溫度고 $f(S, \beta)$ 는 1보다 적은 값이다. 또한 위식을 다음과 같이 變更시킨다.

$$E = T_g \{1+f(S, \beta)\} k \log S \dots \dots \dots (5)$$

(5)式에서 trap depth(E)는 溫度(T_g)와 直接 比較할 수 있고 計算結果(그림 3) 340°K때 $E=0.67$ eV인 것이다. 따라서 50°K는 0.1eV에 該當하고 trap depth는 約 25kT가 되며 加熱度에 따라서 curve는 多少 다르나 加熱度가 減少하면 (b) curve와 같이 低溫側으로 多少 移動한다.

實際로는 E 인 trap depth의 값은 單一值가 아니고 여러個의 값을 가질 수 있으며 그림 2의 경우로써 이를 立證하고 單一曲線이 아니고 3個의 E 값으로 因한 3個 curve의 重疊 같이 되어 있다.

(4)式的 trap depth E 는 (5)式으로 表現 했으니 이는 glow를 發生시키는 溫度와 關係되며 phosphorescence가 萬一 一定한 溫度에서 생긴다면 電子가 trap內서 머무르는 平均時間 t 는 電子의 脫出確率 P 의 逆比가 되어 (1)式은 다음과 같이 된다.

$$t = \frac{1}{P} = S^{-1} \exp(E/kT)$$

故로 $\log t = \frac{E}{kT} - \log S$

위식에 (5)式的 E 값을 代入하면

$$\log t = \log S \cdot \frac{T_g \{1+f(S, \beta)\} - T}{T} \dots \dots \dots (6)$$

(6)式的 T_g 는 glow temperature(發光溫度)고 t 를 phosphorescence의 減衰時間(decay time)이라 하면 t 와 發光溫度(T_g)사이에 比例關係가 成立함을 알 수 있고 이때 T 는 一定한 溫度라고 한다.

Phosphor로써는 $Zn_2SiO_4(0.5\%Mn)$, $ZnBeSiO_4(2\%Mn)$, $ZnS(1\%Mn)$ 等等이 있으나 活性劑(activator) Mn 의 添加量(%)에 따라서 其 glow curve의 最大値가 다르고 이때의 加熱溫度도 다르다. 上記 3種에서는 $Zn_2SiO_4(0.5\%Mn)$ 이 $Zn_2SiO_4(1\%Mn)$ 때보다 glow peak가 더 높고 glow peak가 생기는 溫度는 各 各 240°K, 270°K로 된다.

그림 3에서도 glow curve a, b는 各 各 340°K, 320°K때 最高光度를 가지며 이는 trap depth E 가 單一值일 때의 理論的曲線이나 實際로는 trap depth level이

여러個있는 材料가 많다.

Bünger와 Flechsig, Seitz와 Hilsch等도 일찌기 1940年代에 $KCl(Tl)$ 에 對한 phosphorescence를 研究하였으며 單一 E -값과 S 값을 求했고 室溫近方에서 (22°C~35°C) glow curve의 減衰는 指數法則으로 됨을 確認했으며 其 表現式은

$$I = I_0 \exp[-S \cdot \exp(-E/kT)]$$

로 되고 I 는 phosphorescence의 強度, E 는 活性 energy(activation energy)로 0.67eV가 되어 Randall-Wilkins에 依한 그림 3에서 얻은 $E=0.67$ eV과 같고 또한 常數인 $S=2.9 \times 10^9 \text{sec}^{-1}$ 로 同一한 값을 얻었다. $KCl(Tl)$ 結晶體片에 對한 decay curve(減衰曲線)을 溫度變化에 따라 半對數座表로 表示하면 다음의 그림 4와 같으며 勵起源은 mercury arc였다.

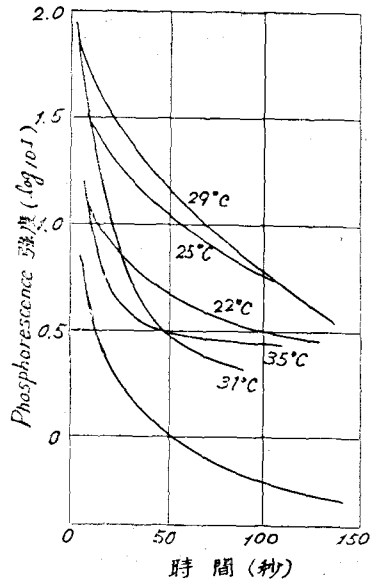


그림 4. $KCl-Tl$ 의 phosphorescence 減衰曲線

(4)式的 加熱率 β 를 1.3°C/sec.로 하면 (6)式에서 다음과 같이 된다.

$$\log_{10} t = 9.5(T_g \times 1.08 - T)/T$$

但 위식은 어떤 溫度 T 때의 phosphorescence 減衰時間이 t 가 되며 $S=10^{9.5} \text{sec}^{-1}$ 의 값을 代入한 結果式이다.

(6)式的 $\log S$ 에서 S 의 값은 다음과 같이 求한다. 即 glow curve의 T_g 와 $\log t$ 와는 (6)式에서 直線이 되어 T 가 一定溫 일때 $T_g=0$ 인 때의 $\log t$ 軸에 만나는 點의 값이 S 의 값이 된다. 또한 어떤 溫度 T_1 點은 (6)式的 T_g 와 같이 되며 $\log t=0$ 가 되어 $f(S, \beta) = \frac{T - T_1}{T_1}$ 이 되어 $f(S, \beta)$ 는 溫度變化의 값으로 表示된다.

2-(4) Trap分布에 따른 Phosphorescence 强度變化

(i) 單-trap depth때 :

2-(3)의 (3)式에서 trap depth E 때의 電子數 n , 어떤溫度 T 때 E 에 의한 phosphorescence 强度 I 는 $I = dn/dt = \ominus n \cdot s \cdot \exp(-E/kT)$ 가 이를 積分하면

$$I = -n_0 S \cdot \exp(-E/kT) \exp \times \{-S \cdot t \cdot \exp[-E/kT]\} \dots \dots \dots (7)$$

과 같고 또는 $I_t = I_0 \exp[-S \cdot t \exp(-E/kT)]$ 로 表現할 수 있다. 이 (7)式은 單-trap level로 인한 phosphorescence의 强度를 表示하는 式이며 KCl(Tl) 때 表示한 式과 같다.

(ii) Trap level의 均一分布때

大體로 phosphor 材料들은 여러個의 trap depth를 가지고 있는 것이 普通이다.

depth E 와 $E+dE$ 사이에 trap의 數를 N_E 라고 하면 t 時間 때 其强度 I_t 는 (1)式으로 부터 다음과 같이 表現한다.

$$I_t = \int_0^\infty N_E \cdot S \cdot \exp(-E/kT) \exp[-S \cdot t \cdot \exp(-E/kT)] dE$$

이 式을 積分하면 $I_t = n \cdot kT/t [1 - \exp(-S \cdot t)]$ 가 되고 $S \cdot t \gg 1$ 일 때 即 microsecond(μ sec.)後에 $e^{-S \cdot t} \approx 0$ 가 되고

$$I_t = nkT/t \dots \dots \dots (8)$$

과 같이 簡單한 式이 된다.

(2)式에서 보는 바와 같이 其强度는 어떤 depth의 trap로부터 電子의 放出로 因하여 생기며 그들 trap로부터 電子의 放出率에 比例함도 알 수 있다. 또한 이率은 電子가 trap level에서 머무는데 所要된 平均時間과 逆比한다. 따라서 trap level이 깊을 때 電子放出은 늦어진다.

均一-trap分布 때 $I \cdot t = \text{constant}$ 가 되어 强度 I 는 $1/t$ 에 比例하고 $I \cdot t \propto N_t$ 의 形式으로 結論 지을 수 있으며 이때 N_t 는 電子가 trap內서 消費하는 平均時間 t 때의 trap의 數다.

이 N_t 와 E 사이의 關係를 그려보면 이 trap分布曲線도 glow curve와 近似한 形態가 된다.

(iii) 指數型 trap分布 :

ZnS-phosphor들의 trap分布는 指數型이고 이를 數式으로 表現하면

$$N_E = A \exp(-\alpha E) dE$$

가 되고 이를 利用하면 (ii)의 I_t 는 다음과 같이 展開 된다.

$$I_t = \int_0^\infty A \cdot S \cdot \exp[-S \cdot t \exp(-E/kT)] \exp$$

$$[-E/kT - \alpha E] dE$$

이 式에서 $\xi = S \cdot t \exp(-E/kT)$ 라고 놓으면 上式은

$$I_t = (S \cdot t)^{-\alpha kT} \frac{A \cdot S \cdot kT}{t} \int_0^{S \cdot t} \exp(-\xi) \xi^{\alpha kT} \cdot d\xi$$

가 된다. 여기의 $(S \cdot t)$ 는 10^9 보다 크고 따라서

$$I_t \approx (S \cdot t)^{-\alpha kT} \frac{A \cdot S \cdot kT}{t} \int_0^\infty \exp(-\xi) \xi^{\alpha kT} d\xi,$$

$$I_t \approx f(S \cdot kT) B t^{-(\alpha kT+1)} \dots \dots \dots (9)$$

式 (8), (9)에서 phosphorescence의 減衰法則은 trap depth分布가 溫度에 크게 依存하지 않고 있음을 알 수 있다. 그러나 여러個의 depth(E)의 trap으로 因한 發光은 溫度와 相關 關係에 있다.

(9)式에서 $\alpha=0$ 인 경우가 均一-trap分布를 나타내며 (8)과 같이 (9)式의 I_t 도 t 에 대한 逆比關係가 있다. $\alpha kT=1$ 이면 (9)式은 逆自乘法則에 該當하고 勵起된 電子는 化學反應의 雙分子 때와 같이 luminescence中心이 空乏(empty)된 때 電子再結合이 생기고 이 경우에 위法則이 잘 適用된다. 再結合이 생기는 時間은 10^{-5} 秒 以內고 decay time이 이보다 큰 값을 가지는 것은 電子가 trap된 時間이 있기 때문이다.

(9)式은 一般的으로 $I \propto t^{-x}$ 로 表現하면 x 의 값은 phosphorescence curve에서 얻어지고 $S=10^8 \text{sec}^{-1}$ 로 주어 질 때 各種 phosphor에 對한 x 의 實測值과 計算値는 다음表 1과 같다.

표 1. ZnS-phosphors의 減衰法則

Phosphor	$I \propto t^{-x}$ (實測值)	glow curve 에 依한 計算值
ZnS—Cu(1)	1.50	1.57
ZnS—Cu(2)	1.38	1.31
ZnS—Cu(3)	1.50	1.51
ZnS—Cu, Ag	1.32	1.30
ZnS·CdS—Cu	1.65	1.57
ZnS—Cu(4)	2.0	2.0

2-(5) 再捕獲(Retrapping)理論

그림 1에서와 같이 하나의 trap에서 하나의 電子를 脫出시켜 空乏冷光中心(empty luminescence center) 또는 hole trap에 捕獲되면 發光하니까 再捕獲은 생기지 않는다. 1次로 trap된 電子가 다시 刺戟을 받아 導電帶(conduction band)內에 移動 하다가 다시 電子 trap level까지 내려와서 捕獲되어 再捕獲이 되고 이는 empty traps의 相對的인 數와 empty luminescence center(hole trap)數에 關係된다.

(i) Fluorescence 成長과 時間

한 phosphor에서 모든 luminescence center가 充滿되어 있고 trap가 모두 비어 있다 하고 또한 luminescence center數가 trap數 보다 많다고 하자.

이때 이 phosphor가 一定한 放射線 또는 熱로 勵起될 때 最初에는 empty luminescence centers가 없고 모든 電子는(勵起電子) traps에 依해 捕獲된다. 이들 traps가 充滿되고나면 luminescence center들은 비어 있기 때문에 電子를 받아들일 수 있게 된다. 이때 fluorescence가 發生하게 되고 이 fluorescence(螢光)強度는 時間에 따라 增加하다가 곧 平衡狀態로 되는데 이는 모든 trap들이 充滿된때가 된다.

螢光的 成長과 時間사이의 關係를 理論化하면 다음과 같다.

n = 單位부피當 trap의 數

a = 勵起시키는 光의 強度(勵起源)

N = 單位부피當 導電帶內의 電子數

n_1 = 單位부피當 empty luminescence center의 數

라고 하면 電子들은 a 에 比例하는 率로 導電帶로 들어가고 여기서 이들은 empty trap라 empty luminescence center에 捕獲되니까 이를 數式化하면 다음과 같다.

$$\frac{dN}{dt} = a - A_2 = (n - n_1 + N)N - A_1n_1N$$

여기서 A_1, A_2 는 empty trap와 empty luminescence center에 依한 電子捕獲確率인 常數가 된다. 萬若에 自由電子들의 trap와 luminescence center에서 再結合하는 時間이 짧으면 N 은 n 와 n_1 에 比해 無視하게 되어 $\frac{dN}{dt} = 0$ 고 N 은 다음과 같다.

$$N = \frac{a}{A_1n_1 + A_2(n - n_1)} \dots\dots\dots(10)$$

또한 電子들이 trap에서 充滿되는 率은

$$\frac{d(n - n_1 + N)}{dt} = NA_2 = (n - n_1 + N)$$

이의 近似式을

$$\frac{dn_1}{dt} = -NA_2(n - n_1) \dots\dots\dots(11)$$

(10)과 (11)式을 結合하면

$$\frac{dn_1}{dt} = aA_2(n - n_1) / A_1n_1 + A_2(n - n_1)$$

이 式의 積分은

$$\begin{aligned} (I - A_1/A_2)n_1 - A_1/A_2 \cdot n \log(n - n_1/n) \\ = a \cdot t \dots\dots\dots(12) \end{aligned}$$

(12)式은 主로 n_1 은 時間 t 에 따라 變化함을 表現한다고 할수있다. Fluorescence의 強度 $I = A_1Nn_1$ 이니까 (10)式에서

$$I = \frac{a}{I - A_2/A_1(1 - n/n_1)} \dots\dots\dots(13)$$

上記式에서 n_1 이 적을때 $n_1 = at$ 라고 놓으면

$$I = A_1Nn_1 = A_1/A_2 \cdot a^2t/n \dots\dots\dots(14)$$

여기서 $I-t$ curve가 생기며 slope = $A_1/A_2 \cdot a^2/n$ 가 되고 直線이 된다. $n_1 \rightarrow n$ 일때는

$$(n - n_1) \propto \exp(-a \cdot A_2t/A_1n) \dots\dots\dots(15)$$

(15)式은 fluorescence의 強度가 平衡近方에서는 指數曲線을 나타낸다고 表現하고 있다. 또한 (14)式, (15)式으로부터 A_1/A_2 의 常數값을 求하게 된다. 實際로는 ZnS-Cu phosphor와 같은 phosphor 材料를 mercury arc로 加熱하여 생긴 glow curve에서도 求하며 curve 始初에서는 $A_1/A_2 = 1.3$ 이고 平衡일 때는 $A_1/A_2 = 2.2$ 가 된다.

3. Thermoluminescence

3-(1) 基礎理論

1950年代 Schulman, Garlick와 Gibson, Furst, Kallman, Claffy 및 Daniel⁹⁾에 依하여 純粹한 Alkali halide에 대한 Ag ion같은 添加物質(活性劑)을 添加하고 ultraviolet를 照射시킴으로써 發光現象이 생기고 그림 5와 같은 放出機構가 있음을 實驗과 理論으로 發表했으나 이는 亦是 材料의 差만 있지 1940年代 Randall-Wilkins에 依한 것(1, 2章)과 大同小異 하고 Randall-Wilkins의 理論에 根據하여 發展시켰음은 注目할 事實이다. Luminescence도 phosphorescence 때와 近似한 發光機構가 되고 그림 1과 같으나 再次 其 機構를 圖示하면 다음의 그림 5와 같다.

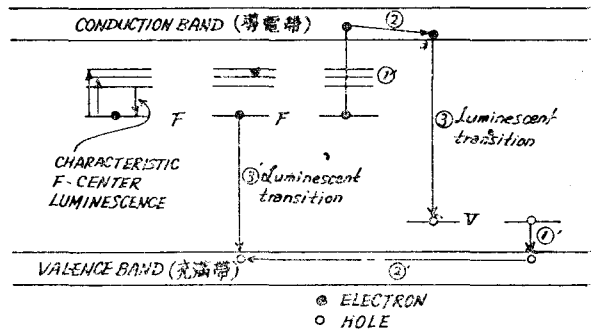


그림 5. Thermoluminescence의 發光機構

그림 5는 特히 Alkali halide(NaCl, LiF 등)에 대한 것이고 trapped-electron center(F. center)와 trapped-hole center(V center)가 外部載載에 依해서 생기고 F. center의 電子가 外部에서 光量子나 熱로 結晶體內의 ion의 振動을 일으키고 電子를 脫出 시킬수 있는 trap depth E 는 $0.3\text{eV} \sim 1.0\text{eV}$ 며 F. center에서 電子는 脫出(1)하여 導電帶(conduction band)內에서 彷徨 하다가(2) 電子의 energy를 放出 하면서 trap된

hole과 재결합할때(③) 放出하는 빛이 發光 또는 luminescence라고하며 結晶體에 加熱로 생기면 熱發光이라고도 한다.

그림 5의 ① 過程이 光吸收로 생기면 이 現象은 光刺戟의 luminescence가 되고 熱刺戟으로 이 過程이 생기면 phosphorescence가 된다. 前記한 phosphorescence (1, 2章)는 바로 이것이고 여기에 結晶體에 熱을 加한 것, 即 phosphorescence에 熱刺戟이 加해지면 thermoluminescence라고 한다.

①, ②, ③의 過程과 近似한 過程이 ①', ②', ③' 過程이 되나, ①'는 hole이 刺戟에 依해 充滿帶(valance band)內에 ②'過程을 通하여 F. center에서 ③'과 정으로 trap된 電子와 free hole(①')이 再結合 할 때 도 luminescence가 생긴다.

TLD는 一般의으로 LiF, CaF₂, CaSO₄等 母體 結晶體에 Mg, Mn, Pb, Ti, Eu等의 活性體(activator)를 添加하여 各種色의 luminescence를 發生시킨다. 따라서 이 活性體를 luminescent ion이라고도 하며 添加 方法은 眞空蒸着 및 擴散, 混合法等이 있고 doping한다고 하며 活性體 添加量의 %에 따라서 其色도 變하고 發光強度도 달라짐은 2-(3)에서 記述한 바와 같다. 活性體는 不純物(impurity)이라고도 하며 하나의 例로 alkali halide의 Mn²⁺, Ag⁺不純物에 依한 thermoluminescence 過程을 다음과 같은 그림. 6으로 表示한다.

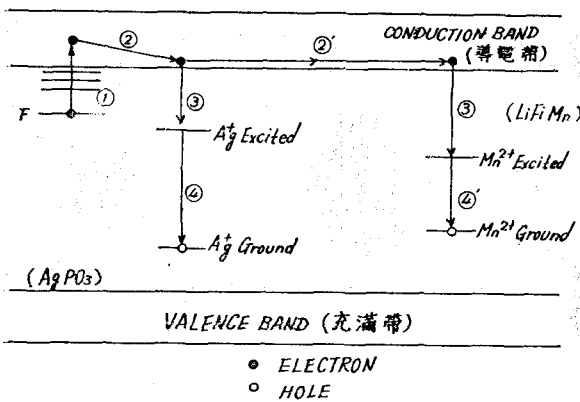


그림 6. Alkali halide內不純物인 活性體(Ag, Mn)에 依한 Thermoluminescence過程

그림 6에서 Ag⁺와 Mn²⁺가 各各 不純物인 活性體로 作用함을 보여 주며 Ag-luminescence는 UV나 blue 色을 Mn²⁺-luminescence는 green-orange 色을 各各 發光한다. 外部刺戟으로 因해서 그림 1, 그림 5와 같이 F center에서 trap된 電子가 導電帶를 通하여 Ag⁺ ion 또는 Mn²⁺ion에 依해서 hole에 trap되어 再結合될

때 luminescence가 發光된다.

3-(2) LiF의 照射線量(R)과 Luminescence關係

Cameron은 1963年 LiF(TLD 100)의 熱發光體가 照射線量(Roentgen)에 따라서 變化하는 것을 觀測하고 數學的 model로 其過程을 說明하였다. 即 Thermoluminescence強度 TL와 R의 比 TL/R가 R와 比例하며 約 3,000R까지는 이 比例가 成立함을 實證하였고 이 model은 다음과 같다.

N=充滿 또는 非充滿 trap의 數
L=어떤 R값에서 充滿된 trap의 數
이며 다음과 같은 式이 成立한다.

$$\frac{dN}{dR} = \alpha(N_F - N)$$

$$\frac{dL}{dR} = \beta(N - L)$$

위 式의 α는 traps形成確率로 定數고, β도 traps充滿確率로 定數며, N_F는 traps 數의 最高值다. 위 式의 解는

$$N = N_0 \exp(-\alpha R) + N_F [1 - \exp(-\alpha R)] \dots\dots\dots (16)$$

$$L = \frac{N_0 \beta}{\alpha - \beta} [\exp(-\beta R) - \exp(-\alpha R)] + \frac{N_F}{\alpha - \beta} \alpha [1 - \exp(-\beta R)] - \beta [1 - \exp(-\alpha R)] \dots\dots\dots (17)$$

(16)式 (17)式에서 N₀는 最初 생긴 trap의 總數고 (17)式의 L가 TL의 값을 나타내며 TL인 Thermoluminescence 強度는 N₀에 가장 크게 比例하고 있음도 알 수 있다.

LiF(TLD-100)에 對한 實驗은 大略 다음과 같이 하여 N₀, N_F, β, α의 값을 決定한다. 即, LiF粉末을 400°C로 1時間 加熱한 다음 γ-線源으로 10R~500,000R 範圍에 各各 照射했으며 낮은 溫度에 대한 glow peak를 없애기 爲해서 100°C로 10分間 또 加熱한後 其 TL의 값을 읽는다. 이것이 R 對 TL(強度)의 glow curve가 되나 同一 R일 때라도 照射時間에 따라서 TL의 glow peak가 다르다. 이 glow curve는 略했으나 이 curve 內의 面積이 (17)式으로 表現되며 其 값들은 다음과 같다.

$$N_0 = 1.2 \times 10^{15} \text{traps/cm}^3, \beta = 1.1 \times 10^{-5} R^{-1}$$

$$N_F = 6.0 \times 10^{15} \text{traps/cm}^3, \alpha = 1.0 \times 10^{-4} R^{-1}$$

同一한 R때 實際 TL의 값과 (17)式에 依한 TL의 값 사이에는 別差가 없으며 其 偏差는 大略 ±0.4%~±2.7%程度다.

이 TLD는 한번 使用한 後, 即 一次 照射後는 300°C로 5分間 加熱하면 前歷이 없어지고 二次照射用으로 할

수 있다. LiF-TLD는 다른 種類의 TLD(CaF₂;Mn, CaSO₄;Mn 等)와 같이 γ -線 energy(Ca-60)에 대해서 其 response가 良好하며 0.1MeV~10MeV에서 其 response가 1.0로 大端히 좋고 0.01MeV~0.1MeV에서는 約 20% 높은 1.2(=Response)의 값을 가진다. LiF(TLD-100)과 Li₂B₄O₇; 0.1%Mn의 energy dependence curve는 다음 그림 7과 같다.

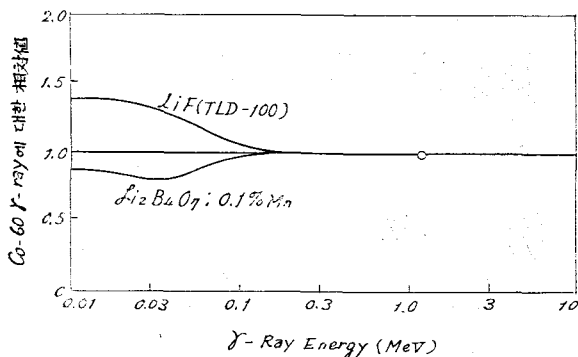


그림 7. LiF와 Li₂B₄O₇; Mn에 대한 energy response

그림 7과 같이 LiF(TLD-100)은 Li₂B₄O₇; Mn와 같이 0.1MeV 以下의 energy에 대한 response는 좋지 못함을 알수있다.

前述한 바와 같이 glow curve內의 面積을 planimeter로 測定하면 放射線照射線량을 求할수 있고 LiF-TLD는 人體被曝 障害防禦用인 Tissue dose(組織線量)을 測定할 수 있다는 長點을 가지고 있음도 1974年 美國에서 發表하였다.

LiF에는 ⁷Li, ⁶Li가 있으며 中性자와의 核反應은 速中性자에 對해서는 ⁷Li(n,an)³H反應, 熱中性자에 對해서는 ⁶Li(n, α)³H反應을 各各 일으키는 故로 速中性자 및 熱中性자의 測定에도 使用하며, 生成된 ³H(Tritium)은 β -線 放出, 0.0186MeV의 energy, 半減期는 12.33年이고 γ -線은 없다. 따라서 ⁶Li로서 熱中性자의 fluence(ϕ_n /cm²)를 tissue에 대하여 測定하여 ⁶LiF-albedo dosimeter라고 한것은 1974年 Alsmiller와 Barish(ORNL)에 依하여 始作되었으며 使用한 Tissue phantom은 直徑 30cm의 slab型이었고 slab 中央에 ⁶LiF를 polyethylene으로 一次 싸고 그위를 0.095cm 두께의 stainless steel로 被覆했고 그 表面에 熱中性자가 入射되도록 하였으며 tissue slab 表面에는 減速劑인 Cd(0.079cm 두께)를 둔 것이 特色이다. 이 tissue slab內에서 albedo- ϕ_n fluence와 dose equivalent値가 測定되며

$$\phi_A = \text{thermal albedo-}\phi_n \text{fluence}(\phi_n/\text{cm}^2),$$

$$D = \text{dose equivalent(rem)}$$

이라고 하면 $F_A = \phi_A/D$ 가 되어 F_A 는 relative response function이 되며 其單位는 $\phi_n/\text{cm}^2 \cdot \text{rem}$ 으로 表示된다. 中性子 energy가 10⁻⁷MeV~10²MeV까지 사이의 F_A 値는 中性子減速(H₂O內서)過程과 같이 階段式 減衰現象을 나타내며 F_A 値는 energy 增加에 따라 指數減衰와 같이 變한다.

4-(1) Personnel monitor用 TLD의 特性(4)

現在까지 使用되고 있는 film badge, pocket chamber dosimeter와 最近 關發된 glass dosimeter 및 TLD와의 特性을 同一 條件下에서 其特性을 比較檢討함은 大端한 實用的 價値가 있다고 본다.

따라서 다음과 같은 實驗方法으로 各種 個人被曝 線量計에 대한 特性을 實驗한 例를 들기로 한다.

가. 實驗方法

個人被曝 線量管理上 重要한 特性으로서는 ① 一定한 照射線量에 대한 線量計測定値의 變動量, ② 放射線 照射 以前의 自體線量(pre-dose), ③ TLD를 反復 使用할 때의 其 感度の 再現性(reproducibility), ④ energy依存性(energy dependency), ⑤ TLD感度の 線量에 대한 直線性(linearity), ⑥ 經時的變化量(Fading), ⑦ 入射放射線에 대한 感度の 方向性(directional sensitivity) 등에 대한 特性 實驗을 Harshaw製 TLD用 LiF單結晶, Teledyne Isotopes社製 Teflon cover LiF, 天然 CaF₂, 日本塗料製 Mg₂SiO₄(Tb), Mg₂SiO₄(Tb)+Al foil等に 대하여 同一條件 不에서 照射한 後 其線量을 各種 TLD에 대해서 測定한다. 勿論 TLD-reader를 使用하여 計測値를 比較한다. 위의 TLD 照射用線源은 (1) ¹³⁷Cs 10mCi, 100Ci, 2,000Ci(치료用 조사장치), (2) ⁶⁰Co 2,000Ci(치료용 조사장치), (3) X-線 裝置며 照射시키는 X-線은 各種 두께와 材料(Al, Cu)의 filter를 使用하고 加한 管電壓(KV)에서 半價層法(Half Value Layer Method)에 依해서 求한 實効 energy(KeV)가 實際로 TLD에 照射된 energy라고 하며 이때 較正用으로 使用된 標準線量計로서는 Victoreen condenser roentgen meter(No, 621, 633, 553)이라고 한다.

나. 實驗結果

Fluctuation(測定値의 變動量), reproducibility(再現性) 및 pre-dose는 다음과 같다. 一般의으로 測定値에 대한 信賴度는 線量計의 感度差, pre-dose의 大小에 左右되며 各 TLD에 10mR, 100mR, 1.0R을 照射했을 때 各測定値의 標準偏差(σ)를 %로 表示하면 10

mR 때는 $\pm 8.6\% \sim \pm 68\%$, 100mR 때는 $\pm 6.4\% \sim \pm 23\%$, 1R 때는 $\pm 6.0\% \sim \pm 15\%$ 로 되며 各種 TLD 일지라도 照射線이 높을 때 (1R) σ 의 값이 적어짐을 알 수 있다.

Teflon covered-LiF TLD는 組織等價用 TLD (tissue equivalent TLD)가 되고 이는 高感度用 TLD에 比較하여 低線量領域에서 其 變動量이 많다. 이는 LiF 單結晶體內的 thermoluminescence 發光中心 및 格子 欠陷(Lattice defect)의 濃度의 不均一性에서 起因한다고 본다. 高感度用 TLD로서는 $Mg_2SiO_4(Tb)$ 와 $CaSO_4(Tm)$ 의 例를 들면 10mR, 100mR, 1,000mR 照射線量에 對해서 各各 其 σ 값은 $\pm 5.8\%$, $\pm 3.1\%$, $\pm 4.5\%$ 程度로 大端히 其 變動量이 적음을 알 수 있다.

TLD는 pocket chamber dosimeter를 再充電 시켜서 再使用함과 같이 한번 使用한 後 적당한 熱處理(加 熱溫度 및 時間은 TLD의 종류에 따라서 다름)를 하 면 其 TLD 初期狀態의 感度로 還元된다.

再生處理方法에 따라서 各 TLD의 感度가 變化하며 其 再生方法은 다음 表 2로 表示하였다.

表 2. TLD再生方法

TLD種類	熱處理方法
LiF-teflon	300°C로 1時間加熱 또는 80°C로 2時間加熱
LiF-單結晶體	400°C로 1時間加熱 또는 100°C로 2時間加熱
CaF ₂	400°C로 9秒加熱
CaSO ₄ (Tm)	420°C로 30秒加熱
Mg ₂ SiO ₄ (Tb)	400°C로 30分加熱 또는 500°C로 3時間間時加熱

表 2와 같이 再生處理를 한後 各其 TLD의 感度가 照射線量에 따라서 變化하는 效果를 表 3으로 表示했다.

표 3. 各種 TLD의 再生處理後 照射線量에 대한 感度變化

TLD-No.	10mR	100mR	1,000mR
LiF-Teflon	0 25.6±9.0	96±15	1,113±98
	1 27.0±5.3	119±13	1,160±50
	2 29.6±6.3	132±13	1,210±50
	3 33.8±7.9	132±9	1,297±37
	4 30.8±10.3	130±17	1,301±56
LiF	1 16±14	59±18	390±84
	2 16±36	53±23	890±28

	3	11±24	89±17	885±28
	4	-8.2±18	67±10	882±25
CaF ₂	1	8.4±2.04	88.8±9.62	990±98
	2	8.4±1.40	90.9±10.7	1,119±96
	3	8.2±2.45	90.5±9.22	1,119±122
	4	8.3±1.95	88.4±11.4	1,115±87
CaSO ₄ (Tm)	1	10.6±0.8	92.1±2.0	911±23
	2	10.5±0.4	91.3±2.8	910±23
	3	10.3±0.4	91.1±3.7	917±25
	4	10.5±0.3	90.9±3.8	918±35
Mg ₂ SiO ₄ (Tb)	1	11.2±0.94	105±3.5	1,100±30
	2	12.6±1.26	137±5.6	1,180±50
	3	14.4±1.77	151±4.7	1,250±88
	4	14.8±1.68	129±5.2	1,400±84

表 3에서 再生한 感度는 初期(再生前)의 값과 比較하여 0.5%~7%의 範圍內에 있는 測定值라면 이 TLD는 線量計로서 再現性이 있다고 判斷할 수 있다.

萬一 熱處理가 不足하였으면 反復使用과 再生으로 其感度가 增加할 때도 있다. 이는 不充分한 再生處理로 照射前歷이 反復照射에 依한 熱螢光 發光量에 影響을 주고 있음에 起因한다고 보겠다.

表 3의 $Mg_2SiO_4(Tb)$ TLD에서 處理條件을 400°C로 30分 加熱하던 것을 500°C로 3時間 加熱 處理함으로써 더욱 좋은 再現性을 나타내며 이때 100%程度의 再現性이 可能하다. LiF-Teflon일때 Teflon 樹脂는 構成 成分上 充分한 熱處理에 難點도 있다.

一般的으로 未照射 TLD를 長期間 放置했을 때 自然放射線의 影響으로 TLD를 加熱하면 發光하고 이 영향을 除去한 狀態 即 各 TLD를 再生處理 條件에 따라 處理한 直後 各其 TLD가 나타내는 線量を pre-dose라고 한다. 이 pre-dose는 G-M counter나 ionization chamber檢出器 等の background에 該當한다.

表 4로써 各種 TLD의 background(pre-dose)의 값을 表示한다.

表 4. 各種 TLD의 Background(Pre-dose)

LiF-Teflon	LiF	CaF ₂	CaSO ₄ (Tm)	Mg ₂ SiO ₄ (Tb)
	mR	mR	mR	mR
	30±7.8	41±12	0.0	0.0
				1.56±1.88
				0.61±0.107*

* Al-foil로 피복, 500°C에서 3時間 處理할때

表 4에서 CaF₂와 CaSO₄(Tm)의 background는 無인 것이 特色이고, 高感度用 TLD인 CaF₂, CaSO₄(Tm), Mg₂SiO₄(Tb) 등의 pre-dose는 再生處理로 結局 0mR ~ 0.61mR 程度인 故로 가장 좋은 感度를 나타낸다. 따라서 ~mR의 低線量測定用 個人被曝線量計로서 勸告 하게 되는 理由中의 하나가 되겠다.

한편 組織等價(Tissue equivalent) TLD의 pre-dose는 數 10mR程度(LiF-teflon TLD)로 相當히 높고 計測值의 搖動도 커서 低線量測定 때 其誤差가 많다는것을 留意해야 한다.

다. Energy依存性和 線量率 및 線量依存性

照射하는 photon energy에 對한 TLD의 感度を 보면 그림 8과 같다.

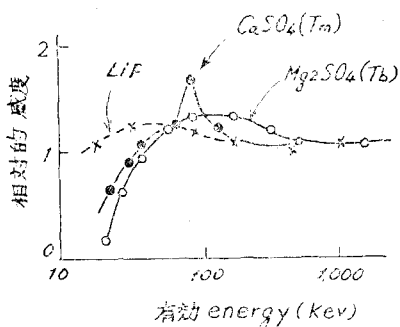


그림 8. 몇가지 TLD에 대한 energy response

그림 8에서 較正用 線源은 ⁶⁰Co- γ 線源으로서 各 TLD에 대한 energy response를 알수 있으며 約 0.1mR의 低線量測定도 可能한 Mg₂SiO₄(Tb)-TLD는 낮은 有效energy인 30KeV 때도 感度가 나타남을 알수 있고 LiF-

TLD는 이보다 感度가 數倍나 높고, teflon을 cover 함으로서 tissue-dose 測定이 可能하며 β , γ -X線 測用뿐만 아니라 ⁶LiF는 熱中性子 測定用이 되고 ⁷LiF는 速中性子 測定用이 된다.

또한 α -粒子 測定用으로 可能하며 30KeV에서 1,000 KeV까지는 其 energy response가 다른 TLD보다 平坦하여 良好함을 그림 8로써 보여 주며 感度の 變化는 標準值인 1에서 1±0.5範圍內에 있다.

高感度用 線量計로 使用할 때는 holder case에 넣지 않으며 LiF만으로서 ⁶⁰Co- γ 線에 對한 感度は 30KeV近方에서 大端히 높다. 또한 그림 8은 filter를 붙임으로써 energy依存性이 높아진다는 것도 알수 있다.

放射線被曝에서 線量率의 高低는 使用場所와 用途에 따라서 다를것이고 낮게는 自然放射能에 依한 線量率에서 높게는 核臨界事故, 核燃料再處理工場等에 對한 여러가지 線量率에 있을것이나 여기서는 이 線量率變化에 依한 感度の 依存性을 10mR/sec.와 1 R/sec. 일 때에 對한 各種 TLD의 感度變化를 調査하던 다음 表 5와 같다.

表 5의 數値는 10mR/sec 때의 感度로서 標準化(Normalization)한 것이고 各 TLD의 誤差는 ±0.02~±0.085 範圍內에 있고 其 感度變化가 極少함을 알수 있다. 이는 電離現象을 利用한 G-M tube 檢出器나 pocket chamber dosimeter와 같이 放射線에 依해 生成된 lon의 再結合으로 因한 線量率依存性 變化와 相異하여 固體 TLD인 故로 放射線照射로 因한 生成된 hole-electron pair의 再結合損失은 적어서 線量率依存性은 거의 無關하다고 하겠다. 따라서 線量率이 다른 場所 및 作業場에서 個人防禦用 線量率測定器로 使用함에 適合함을 알수 있다.

表 5. 各種 TLD의 線量率 依存性

線 量 率	LiF-Teflon	LiF	CaF ₂	CaSO ₄ (Tm)	Mg ₂ SiO ₄ (Tb)
10mR/sec	1.00±0.05	1.00±0.027	1.00±0.085	1.00±0.02	1.00±0.045
1R/sec	0.98±0.04	0.96±0.04	0.96±0.04	0.99±0.061	1.03±0.029

表 6. 各種 TLD에 대한 線量依存性

線 量	LiF-Teflon	LiF	CaF ₂	CaSO ₄ (Tm)	Mg ₂ SiO ₄ (Tb)
10mR	2.31±0.081		0.93±0.031	1.13±0.05	1.00±0.044
100mR	0.86±0.135	0.80±0.178	0.96±0.129	1.01±0.033	0.93±0.045
1R	1.00±0.09	1.00±0.0355	1.00±0.09	1.00±0.030	1.00±0.048
10R	0.89±0.0459	1.06±0.020		1.01±0.033	0.96±0.043
100R	0.92±0.0594	1.05±0.020			1.10±0.063

表 7. 各種 TLD의 退化現象

TLD	1h ₂	1day	2days	10days	20days
LiF-Teflon	0.84±0.058	0.83±0.041	0.83±0.041	0.84±0.074	0.84±0.033
LiF	1.00±0.010	0.98±0.019	0.98±0.019	0.96±0.021	0.95±0.034
CaF ₂	0.967±0.011	1.01±0.158	1.01±0.158	0.98±0.013	1.00±0.156
CaSO ₄ (Tm)	0.967±0.011	0.93±0.020	0.92±0.020	0.92±0.013	0.92±0.11
Mg ₂ SiO ₄ (Tb)	0.99±0.055	1.05±0.042	1.07±0.052	1.13±0.07	1.03±0.03

TLD가 個人被曝線量管理에 適合함을 보여주기 爲한 實驗으로서 10mR~100R을 被曝管理範圍라고 假定하여 이 範圍의 線量에 대한 各種 TLD의 感度變化를 求한 結果는 表 6과 같다.

表 6에서 보는 바와 같이 LiF-Teflon 以外는 照射線量이 增加함으로써 其 感度の 變化는 매우 적고 특히 Mg₂SiO₄(Tb)와 CaSO₄(Tm)는 全照射線量範圍에서 平均 ±5%程度의 誤差로 大體히 적은 값이니 低線量測定 및 個人被曝線量計로서 適合함을 알수 있고 組織等價用 TLD인 LiF-Teflon은 低線量(~10mR~100mR) 線量計로서는 不適當함도 表 6에서 알수 있다. 이는 predose가 높기 때문이라고 解釋된다.

라. 經時的變化 및 方向依存性

個人防禦用(被曝線量管理) Dosimeter로서 其 作業性質에 따라서는 長期間에 걸쳐 被曝線量を 測定해야 할 境遇도 있다. 이때의 線量計感度は 計測值의 經時的變化에 關係되고 退化現象이 된다. 이 現象은 energy 및 方向依存性과 相異한 發光體 固有의 特性이 되며 이는 表 7과 같이 TLD 種類에 따라서 時間經過과 더불어 其 計測值가 增加 또는 減少한다.

上記表 7과 같이 Mg₂SiO₄(Tb)와 CaF₂는 時間이 經過됨에 따라 測定值의 增加를 볼수있고 LiF,와 CaSO₄(Tm)는 反對로 時間經過에 따라 減少했음을 알수 있다. 그러나 어느 線量計든 照射直後의 感度を 比較하면 10%程度 其 測定值의 增減이 있으므로 이들 線量計는 一定한 期間동안 照射시킨 直後 其 線量を 測定判讀함이 좋다. 但 LiF系線量計는 被曝後 一時間以內에서 80% 程度의 原計測值가 되나 其後 時間經過에는 別變化가 없이 거의 一定值를 維持함도 特色이 있다고 하겠다.

TLD에 對한 照射時의 溫度特性으로서 Mg₂SiO₄(Tb)와 CaSO₄(Tm)-TLD는 照射時의 溫度 0°C~50°C 사이에서는 其感度が 別로 變하지 않는 것도 特色이라고 하겠다. 一般적으로 放射線이 우리 人體에 被曝될 때 大部分은 放射線의 入射方向이 未知일 때가 많다. 따

라서 個人被曝線量計로서는 方向性(Direction dependance)이 적은 것이 要望된다. 勿論 球形線量計로 하면 되겠지만 實用上 球形 TLD는 困難하다. 따라서 몇가지 TLD에 대한 水平方向 및 垂直方向에 대한 方向依存性を 보면 表 8, 9와 같다.

表 8. 各種 TLD의 水平方向感度

角度	LiF-Teflon	LiF	CaF ₂	CaSO ₄ (Tm)	Mg ₂ SiO ₄ (Tb)
0°	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
30°	1.00	0.96	1.00	1.03	0.73
60°	0.93	0.88	1.00	0.97	0.46
90°	0.84	0.77	1.00	1.03	0.69

表 9. 各種 TLD의 垂直方向感度

角度	LiF-Teflon	LiF	CaF ₂	CaSO ₄ (Tm)	Mg ₂ SiO ₄ (Tb)
0°	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
30°	1.00	0.96	0.99	1.12	1.06
60°	0.93	0.88	1.26	2.41	1.00
90°	0.84	0.77	2.06	3.74	1.03

表 8과 같이 Mg₂SiO₄-TLD는 水平方向에서 入射方向의 變化로 其 感度が 顯著하게 變化하나 反面 其他 TLD에 對한 方向依存성은 거의 없음을 알수 있다. 한편 表 9와 같이 Mg₂SiO₄(Tb)-TLD는 垂直方向의 方向依存성은 極少하나 CaF₂와 CaSO₄(Tm)-TLD의 方向依存성은 大端히 甚하다는 것을 알수 있다. 따라서 이들 TLD를 個人防禦用으로 使用할 때 各 TLD에 對한 方向特性을 事前에 測定해야 하겠고 또한 case에 넣어 着用할 때도 入射方向 即 被曝方向을 考慮하여 着用함이 切實히 要求된다.

다. TLD와 他線量計와의 特性比較

個人被曝線量計를 選擇함에 있어서 現在까지 使用해오던 film-badge 및 pocket chamber(X-ray, r-ray

用)와 glass dosimeter 및 TLD(現在 使用)와의 相互 特性을 比較함은 大端히 有益하며 比較의 對象은 主로 pre-dose, energy 依存性, 方向依存性 및 線量率依存性에 對한 感度變化와 同時에 經時的 感度變化에 對해서도 몇가지 TLD와 比較하기로 한다. 表 10은 pre-dose에 對한 比較 結果值이다.

表 10. Personnel monitor에 對한 Pre-dose

Dosimeter	Pre-dose	試料의 數(個)
Film badge (X-ray用)	22 ± 7mR	60
Film badge (γ-ray用)	59 ± 30mR	60
Pocket chamber	5.2mR/5日	25
Glass dosimeter (FD-p8-3)	243 ± 45mR	70
TLD	0.61 ± 0.107mR	10

表 10에서 보는 바와 같이 TLD에 比하여 其他線量計의 Pre-dose는 36倍에서 400倍程度나 높아서 個人防禦用 低線量測定用으로 TLD以外는 모두 不適當함을 如實히 나타내고 있다. 따라서 筆者가 現在까지 TLD着用을 勸告해온 根據中의 하나이며 IRPA(International Radiation Protection Association)에서 開催한 國際學術會에서도 積極 勸誘하고 있는 所致라고 본다. 國內에서는 古里原子力發電所(核發電所) 從事者들에게 TLD線量計를 着用하여 個人 放射線防禦用으로 하고 있음은 多幸한 일이며 其他 各種放射線 施設에 從事하는 被曝者에게도 TLD使用은 當然之事라고 하겠다.

다음은 線量計의 energy 依存性 問題이며 그림 9로서 film badge(Cd-filter 피복), pocket chamber 및 glass dosimeter(Sn-filter 피복)에 對한 energy 感度曲線을 表示했다.

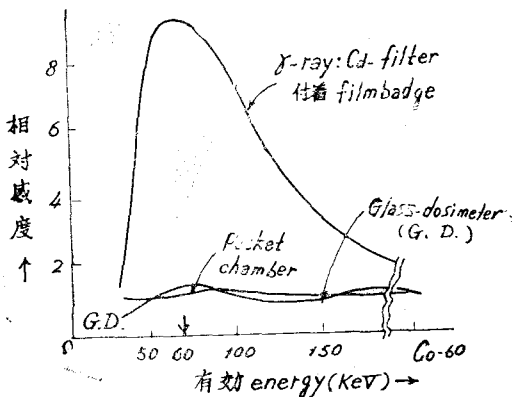


그림 9. Energy 依存性

그림 9에서 pocket chamber dosimeter는 空氣電離를 利用함으로 其 energy 依存性은 別로 나타나지 않음을 알수 있고 또한 glass dosimeter(PD-No-3)-Sn-filter 附着으로 energy 依存曲線이 平坦하며 TLD와 近似하다.

이와 反對로 film badge는 Cd-filter를 附着시켜도 energy 依存性은 改善되지 못하고 約 60KeV에서 Co-60 γ-線에 對한 感度の 約 9배나 높은 感度高 最高 最低로 其 感度が energy 變化에 따라서 甚함을 如實히 나타낸다. 但 Sn(0.8mm)+Pb(0.5mm)-filter를 使用하면 이 現象은 없어진다.

線量率依存性은 그림 10과 같다.

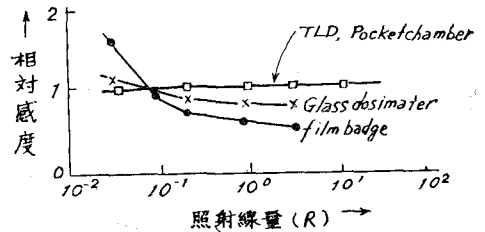


그림 10. Personnel monitor用 各種 Dosimeter의 線量依存性

그림 10에서 TLD는 10⁻²R~100R까지 其 感度の 變化가 없이 거의 一定한 感度임을 알수 있고 Pocket chamber dosimeter도 이와 近似한 線量依存性이나 0.1R以下에서는 TLD보다 感도가 不良하며 個人防禦用 低線量과 이의 集積線量 및 低線量率 測定에는 不適當하며 앞에서도 指適된 바 있다. 特히 film badge는 30 mR 때와 1R 때와의 感度比는 3.5로 他線量計에 比하여 線量에 對한 感度變化가 甚함을 보여주고 있다. 따라서 film badge는 energy別(그림 9 참조) 線量別로 이에 맞는 film badge를 各各 着用해야만 하는 不便이 있다.

結局 TLD로서 energy 依存性이 적고 廣範圍의 線量 및 線量率計로 着用함이 個人被曝線量計로서 現在 가

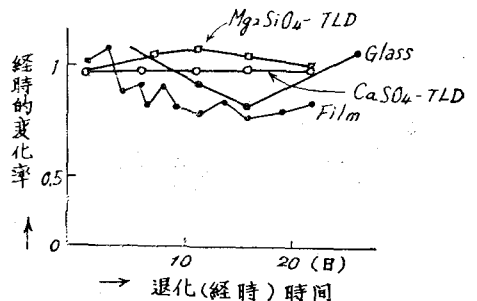


그림 11 各種線量計의 經時的變化率

장 適合함을 알 수 있다.

各種線量計에 對한 經時的變化를 比較함도 重要하며 이에 대한 比較曲線은 그림 11로 表示할 수 있다.

그림 11에서 film badge와 glass dosimeter의 經時的變化率이 가장 顯著함을 보여 주며 測定值의 信賴度가 低下되고 1週日間 또는 1個月間 film badge를 着用 被曝線量을 測定할 때 其 誤差가 가장 많다.

方向依存性도 personnel monitor로서는 重要한 要素의 하나며 放射線의 入射方向이 未知일때 이 問題가 台頭된다. 따라서 前述한 film badge, pocket chamber 및 glass dosimeter(FD-P6-3, 球型 Sn-filter 附着)에 대한 方向依存性을 比較하면 그림 12와 같다.

即 film badge는 入射X線이 90度 일때만 其 感도가 1이 되고 其他 入射角에서는 不良함을 알 수 있고 高感度用 TLD는 이보다 良好함을 알 수 있다.

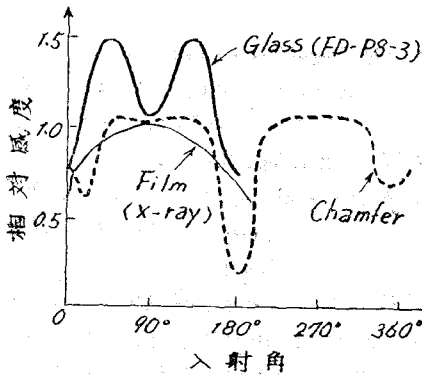


그림 12. Film, Glass dosimeter 및 Pocket Chamber의 方向依存性

5. TLD의 最近動向

環境放射線量測定 및 X線診斷用 低線量測定으로 個人被曝線量을 評價함은 매우 重要하며 LiF(TLD-100), $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ (TLD-200) 및 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (0.1%~0.5%) Dosimeter로 mrad 範圍의 低線量을 測定하며 單結晶體인 TLD-100과 200은 $6.35 \times 6.35 \times 0.9\text{mm}^3$ 의 크기를 가지고 있다. 특히 TLD-200과 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ dosimeter의 線量에 대한 感도는 近似하고 線量 對 感도는 直線性이며 0.01mR에서 1,000mR(1R)까지 良好한 測定結果를 나타내고⁵⁾ 이를 그림 13으로 表示한다.

Energy에 대한 response도 TLD-200은 TLD-100보다 良好하며 10KeV에서 1,500KeV 範圍까지 TLD-100 일때는 其 相對感도가 約 1로서 變化가 없는데 反하여 TLD-200은 40KeV에서 其 最高感도를 나타내고 10KeV 때 1, 200KeV때도 1이 된다. 이 energy response는

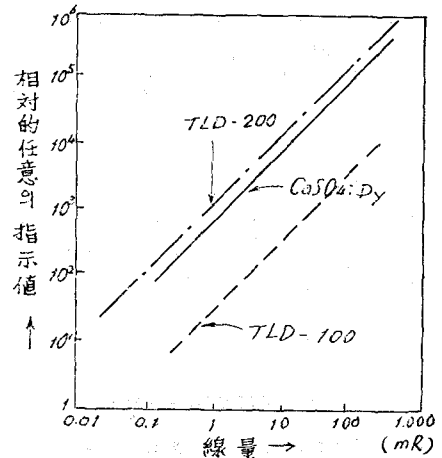


그림 13. TLD의 相對的感도

Van de Graaff 加速器를 利用하여 測定했고 C_0-60 , $\text{Cs}-137$ 의 1.25KeV와 662KeV의 energy source도 使用되었다. 較正된 TLD-200은 自然放射線測定에 使用하고 6時間 自然環境에 放置하여 $11 \pm 1.5 \mu\text{R}/\text{h}$ 의 값을 얻었다고 한다.

Benkó, et al.⁵⁾ 등은 LiF와 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 에 대한 Beta (β)線感도 및 $\beta-\gamma$ 線感도를 測定했으며 β -energy 200 KeV에서 2,000KeV範圍에 대한 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, LiF 및 $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ 의 相對的 感도를 %로 表示했다. 即 200KeV β -energy에 대한 感도는 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}=70\%$, LiF(0.6 mm)=20%, LiF Chip(0.76mm) 및 $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ Chip(0.76mm)=5% 였으나 2,000KeV때는 모두 約 90% 程度로 同一值를 나타냈다.

TL Response/mrad—Beta energy (KeV)의 값은 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 이 LiF에 比하여 越等히 優秀하며 β -200KeV 때 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}=0.5$, LiF=0.002고 β -2,000 KeV 때 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}=1$, LiF=0.1로 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 의 energy response/mrad가 優秀함을 보여준다. 勿論 β -Source는 Pm-147, Tl-204. 및 Sr-90-Y-90를 使用했을 때이며 方向依存性도 $0^\circ \sim 90^\circ$ 에서 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 이 LiF보다 多少 良好하나 各 β 線源의 核種에 따라서 其 感도는 다르며 Pm-147일때 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 의 相對感도는 約 1.25(energy =1,250KeV)고 LiF은 Sr-90-Y-90 β 線 1,250KeV 때 平均 約 1.1의 相對感도를 나타낸다.

結果의 由로 低 energy때의 線量測定이 正確치 못하며 今後의 開發이 要望되며 특히 LiF dosimeter는 50 KeV 以下에 대한 γ -線의 感도(response/mr)가 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 에 比해 낮으며 最下 0.3~2.5 程度고 CaSO_4 는 8. 程度다. 또한 $\beta-\gamma$ 混合放射線에 純 β 線만의 測定에는 Three-element dosimeter라하여 1個의 perplex case內

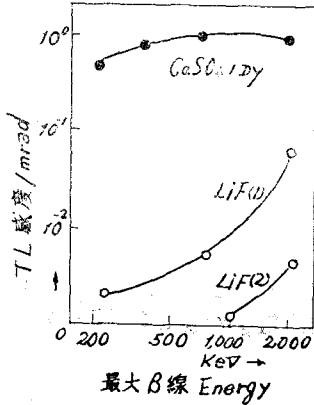


그림 14. Three-element dosimeter의 β-線感도

에 Al disc-CaSO₄:Dy, Al차폐 (1.5mm); LiF(1) 및 Pb차폐 (0.5mm), LiF(2)의 順位로 Sandwich型의 構造로 만들어 β線 energy에 대한 TL response/mrad를 測定하는 不便한 點이 있다. Three-element dosimeter를 利用하여 β線を 測定한 結果는 그림 14와 같다.

Ettinger, Takavar, Mallard 및 Buchan氏⁶⁾ 등은 人體內部被曝 線量測定과 生化學的 線量測定을 爲한 低線量 線量計(10mrad 以內도 可)를 開發했으며 이는 Luminol의 使用이 基本螢光 發光體가 되며 이 構成은 5-Amino-2, 3 dihydro-1, 4-phthalazinedion이며 放射線被曝에 依한 發光機構은 尙今 完全하게 究明되어 있지 않다. Luminol과 恰似한 Lucigenin도 있고 이는 N, N-dimethyl-9, 9-biacridinium dinitrate로 構成되어 Luminol과 같이 一種의 Sensitizer라고 稱하고 이들을 蒸溜水(solvent)에 混合하여 scintillator로 使用한다. Luminol의 濃度(mg/gH₂O)에 따라서 light out는 變하며 ~10⁻⁶—10⁻²mg/gH₂O까지는 直線性(10krad 照射 때)이 維持된다. 放射線照射로 H₂O는 H⁺, OH⁻의 free radical도 生기고 OH+OH→H₂O₂(Hydrogen peroxide)의 有毒性 物質도 生成되며 O₂(dissolved oxygen)도 生成됨은 既知의 事實이며 O₂-pressure(mmHg)에 따라서 luminol solution의 light out-put 또는 light yield(任意의 單位)는 變하며 兩者 사이에 있어서 O₂-pressuer=3×10¹~1.1×10³(mmHg)때 light yield=2~5.8이 된다.

Luminol solution內에 Trehalose·2H₂O를 混合하여 濃도를 2.31×10⁻³mole/ml, pH=11.5로 하여 8rad~10³rad 吸收線量에 대한 light yield/mg은 10³~10⁶으로 거의 直線性을 나타내며 이를 그림 15로 表示했다.

最近 TLD開發過程을 보면 첫째는 發光體 自體素材와 其 特性研究이며 둘째는 TLD와 結合한 計測裝置의

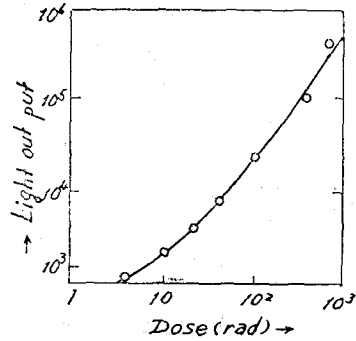


그림 15. Luminol solution에 대한 線量計 lightoutput

開發이라고 볼 수 있고 셋째는 TLD의 應用으로 醫學分野, 環境放射線과 放射線管理分野가 된다.

5-(1) 發光體研究

TLD 發光體의 開發研究는 大體로 두가지 方向이 있다. 그 첫째는 低原子番號發光體의 高感도化고 둘째는 高原子番號發光體의 새로운 開發이며 아울러 應用面에 適合한 素子의 形態도 開發하고 있다.

低原子番號 素子의 하나는 이미 널리 알려진 LiF-TLD가 있다. 이는 高原子番號 素子인 CaSO₄(Tm), Mg₂SiO₄(Tb)素子와 比較하면 其 感도는 1/20~1/40이였으나 LiF에 Mg, Cu이온 外에 磷酸암모니아를 添加하면 CaSO₄(Tm)과 其 感도가 同一하게 되고 Mg SiO₄(Tb)와 比하면 2/3程度의 感도가 된다. 特히 LiF系보다 軟組織體에 가까운 原子番號인 Li₂B₄O₇에 Cu와 Ag를 添加하면 在來 使用해 오던 Li₂B₄O₇(Mn)의 感도보다 約 3倍의 感도가 된다고 報告하고 있다^{7,8)}.

한편 高原子番號素子로서 X線의 實効에너지를 測定함에 必要한 SrSO₄:Dy, 및 BaSO₄:Dy도 開發되어 其 特性으로 Fading은 照射後 熱處理가 適切하면 10日間 5±1% 感少하며 Harshaw-CaSO₄:Dy와 比較하여 感도는 各各 90%와 27%가 된다. 또한 energy依存性은 ⁶⁰Co X-線에 比하여 50KeV에서 各各 80倍, 100倍가 되나 SrSO₄:Dy는 TLD目的에 適合한 發光體라고 할수 있다.

Regulla⁹⁾는 非結晶質인 메타磷酸 glass에 Mn이온을 添加하여 10mR에서 10⁶R까지 廣範圍의 線量을 測定하는 TLD를 開發했고 其 精密度는 Harshaw製 LiF보다 높고 再次 使用할때 再生 熱處理가 不必要하다는 特徵을 가지고 있다. 또한 이는 任意의 形態로 만들수 있어서 球形 TLD로 하여 放射線의 入射方向에 대한 情報도 얻을 수 있다. 勿論 Mn含有量에 따라서 反復使用時 其 測定值의 標準偏差의 값이 달라지나 大略

±3.5%以內의 變動을 나타낸다. in vivo用 TLD는 低原子番號素子라야 하고 體內에 投入할 수 있다. 但 LiF는 물에 可溶性이고 生體에는 毒性이 있다. 따라서 生體用 TLD-LiF는 不溶性物質의 被膜을 하여야 한다. 이 方法은 SnCl₄-smoke(煙氣)속에 LiF를 두었다가 其後 加熱하여 LiF表面에 透明한 SnO₂를 만들어 保護膜인 被膜을 만든다. 特殊한 材料로서 核實驗에 被曝된 地域의 線量 測定에 適用을 使用 할수도 있다고도 한다. 이와 같은 異常被曝時의 線量測定을 爲한 材料中 하나는 時計속에 들어있는 Ruby(Al₂O₃:Mn)도 利用된다. 이 Ruby의 發光은 Mn 添加物濃도가 增加함에 따라 생기는 trap數의 增加와 再結合中心의 數가 增加하는데 달려있다.

5-(2) 粒子線, 紫外線에 대한 感度

各種 發光體 即 Li₂B₄O₇(Mn), TLD-100-LiF, TL D-700-LiF 및 CaSO₄(Dy)에 대한 alpha粒子線 energy (MeV)對 感度を 表示하면 다음 表 11과 같다.

表 11. Alpha粒子線 energy에 대한 TLD感度變化

Alpha線 energy (MeV)	Alpha線에 대한 상대감도			
	Li ₂ B ₄ O ₇ (Mn)	TLD-100 LiF	TLD-700 LiF	CaSO ₄ (Dy)
²¹⁰ Po-α線 (5.3MeV)	37			29
4.7	30.9±2.9		21.1±1.2	
4.48		23.4±1.0		
3.86		24.5±1.0		
3.8	31.3±2.1		21.9±0.9	
2.85		20.9±1.0		
2.8	29.1±2.4		18.3±0.9	
1.7	19.5±2.7		15.4±1.1	
1.68		13.0±2.0		

表 11에서 相對感도란 ⁶⁰Co γ線에 대한 感도를 100으로 한 값이고 各發光體의 感도는 α-粒子의 energy가 低下 됨에 따라 減少하는 傾向을 나타내고 있다. 따라서 今後에는 이를 補正하는 方法이나 TLD의 開發이 要求되는 것이다.

紫外線에 대한 生物體의 影響을 調査함에 其 紫外線 強度를 TLD로 測定하기 始作 했으며 各種 TLD에 대한 紫外線感도는 表 12와 같다.

表 12에서 γ線感도가 높은 TLD가 紫外線에 대해서 는 낮은 것도 있다.

紫外線波長에 따라서도 其 感도는 變하며 이는 TLD

表 12. 紫外線 253.7mm에 대한 TLD의 相對感도¹⁰⁾

TLD	製作社	조사 전 열처리조건	상대 TLD 감도
Mg ₂ SiO ₄ :Tb	大日本塗料	500°C-1h	100
Al ₂ O ₃ :S:T	"	500°C-1h	11.5
CaSO ₄ :Tm	"	500°C-1h	3.2
CaSO ₄ :Dy	"	500°C-1h	0.09
LiF TLD-100	Harshaw U.S.A.	400°C-1h & 89°C-24h	0.009
Li ₂ B ₄ O ₇ iMn	"	300°C-30min	0.007

發光體內的 光物性的 特性에 크게 起因된다고 하겠다. 紫外線에 대한 感도를 向上시키기 爲하여 光刺戟誘導 熱發光(photostimulated thermoluminescence)法이 開發되고 있다. 이 方法은 高溫에서 放射線에 照射하든지 室溫에서 照射하든지 然後 적절한 온도로 열처리를 하여 發光體內的 電子를 capture한 trap를 만들게 하고 이를 發光體에 光 또는 放射線을 照射한 경우 未處理 發光體의 感도 보다 處理發光體의 感도가 높은 點을 利用한 것이다. Mehta¹¹⁾ 등은 10⁴rad를 照射하여 처리한 Al₂O₃(Si,Ti) 素子에 대한 紫外線照射는 未處理 TLD=500~5×10⁴mJ/cm²인데 反하여 處理 TLD=0.01~100mJ/cm²가 된다고 報告 하였다. 이와 恰似하게 TLD-100-LiF에 대하여서도 5×10⁵R 조사하여 300°C로 1分間處理한 LiF는 6×10³μJ/cm²까지 直線的으로 熱發光量이 增加하고 0.1~50μJ/cm²/sec의 照射光에 대해서는 其 光量의 影響은 없다고 한다.

紫外線의 照射量과 發光 光量 사이에는 γ線인 경우와 같이 非直線性이 있다. 現在까지 TLD發光體의 放射線에 대한 特性研究는 對象이 主로 X, γ, 中性子線 및 高energy 電子線이었고 β線, α線에 대한 特性研究는 적었다.

表 11에서 LiF-100은 7.5%의 ⁶Li, LiF-700은 0.09%의 ⁶Li가 各各 包含된 phosphors며 ⁶Li에 대한 熱中性子 斷面積 σ=945barns으로 原子爐內的 熱中性子測定에 使用되고 其 反應은 ⁶Li(n,α)³H고 速中性子測定用으로는 ⁷Li(n,an)³H의 反應을 利用하게 된다. LiF의 感도와 阻止能(Stopping Power)사이의 關係는 單一 또는 二重 trap-model을 假定하여 計算한 結果의 對比를 取하며 LET_d(KeV/μm)對 相對 TLD感도 曲線을 위의 trap-model을 근거로 하여 α-線(²¹⁰Po), ⁶⁰Co-γ線, 陽子 및 電子線에 대하여 Jahnert가 理論的으로 計算하여 圖示한 것이 있으며 各放射線에 대해 두가지 理論值 사이에 別差異가 없음이 밝혀졌다. 中性子用 TLD開發로 CaSO₄+Dy₂O₃+KCl의 pellet形으

로 하고 Dy가 熱中性子斷面積이 큰 것을 利用(${}^6\text{LiF}$ 와 같음)하여, 熱中性子測定은 K를 利用하여 中速中性子測定을 한다. 이 方法으로 10^5n/cm^2 의 熱中性자와 10^{10}n/cm^2 의 中速中性자에 대한 檢出이 可能하여 겠고 在來의 CaF_2 素子에 Recoil proton 發生材인 砂糖과 포리에티렌을 使用하여 中速中性子를 檢出한다. Albedo-dosimeter도 1970年 以後부터 많이 研究되어 왔고 組織體(Tissue)의 成分을 正確히 導入하여 電子計算機에 依한 多群中性子 energy에 대한 線量當量의 값을 求해 왔다.

5-(3) 線量率과 感度

近來 TLD의 基本特性中 가장 問題視 되는 것은 感度の 線量率依存性이 된다. 이 線量率依存性은 發光體에 따라서 差異가 있고 TLD-100 LiF 로서는 1.2×10^{11} R/sec. 以上에서 其 感度が 顯著하게 떨어진다. $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ (Harshaw), $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$, $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (Harshaw), ${}^7\text{LiF}$ (Harshaw) 등에 대하여 線量率의 範圍 $12\text{mR/min} \sim 0.04\text{mR/min}$ 사이의 相對 TLD 感度は $30 \sim 1,200$ 까지 變하고 있으며 感도가 높은 順位로 表示하면 線量率 2mR/min 에서 $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ (Harshaw) > $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 및 $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ > $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (Harshaw) > ${}^7\text{LiF}$ (Harshaw)의 順으로 된다. 위의 TLD들은 大體로 12mR/min 에서 2mR/min 까지는 直線性이 있고 2mR/min 以上에서는 多少 感도가 떨어져서 非直線이 나타난다.

또한 TLD의 諸特性 即 感度, 直線性의 LET依存性 照射時의 溫度依存性, γ -線 energy依存性, 增感因子와 關係되는 照射線量效果, glow curve에 대한 LET 및 吸收線量의 影響과 感度の 線量率依存性 등에 대한 研究와 說明은 아직까지 不充分하다고 보나 1960年代에 Cameron의 Competing trap model, Attix 등의 track model 및 Katz 등의 Biological model로 이들 諸特性을 部分的이나 解明해 왔다. 1970年代에는 TLD感度に 關한 諸現象을 單一model로 하여 說明하였으며 이 model에 依하면 不純物(活性體)이나 格子欠陷 등으로 因하여 生기는 몇個의 捕獲準位(Capture level)의 trap과 放射線照射로 生긴 擔體사이의 捕獲過程을 不可逆 逐次反應이라고 假定하여 其 反應溫度는 照射時의 溫度와 放射線에 依해 生기는 thermal spike 등에 따라서 生기는 發熱溫度의 合이 되고 各準位에 Capture되는 擔體數는 放射線 照射에 依해 生긴 擔體數로 制約된다고 說明하고 있다. 이 새로운 model로서 同一한 母體 結晶體를 가진 TLD發光體라도 添加하는 不純物의 種類와 其量 또는 處理條件에 따라서 其感度は 變하고

非直線性의 特性도 變하며 其他 特性도 定性的으로 解明하게 된것은 大端한 發展이라고 하겠다. 以外에 理論的 研究에서 n - γ 線 mixed radiation에 대한 LiF -TLD의 感度は 高溫에서의 glow peak는 高線量이나 高 LET의 粒子線에 依해 生긴 擔體와 關聯되는 捕獲中心에 依함이라고 假定하는 model로 說明하기 始作했고 한편 Pender¹²⁾ 등은 活性化 energy가 Quasi-continuous distribution의 모양을 取하고 TL은 1次反應이라고 假定하여 TLD의 glow curve 熱消光(Thermal quenching) 등에 대하여 數值的 解折을 하였다. 또한 以外에 電算機를 利用하여 glow-curve를 解折하는 方法도 研究가 進行되고 있다.

5-(4) TLD의 應用

① 醫學分野

X線照射의 被曝線量, RI診斷 및 電子加速器利用 治療 등에서 低線量 高感度用 TLD가 要望됨은 勿論이고 LiF -TLD와 $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ 와의 組合으로 二素子法을 使用하여 低energy, 低線量測定을 하며 齒科用 X線診斷촬영時도 使用하고 있으며 이때의 問題인 散亂線도 各位置에서 測定하여 患者는 勿論 醫師, 技士들의 방사선장해 방어에 萬全을 期할수 있게 되었다. 最近 高 energy X線, 高 energy 電子線($2\text{MeV} \sim 35\text{MeV}$)에 대한 TLD의 相對感도와 ${}^{60}\text{Co}$ - γ 線에 대한 相對感度を LiF -200-MgS, LiF -200-Ti80T에 대한 其 energy 依存性에 대하여 報告되어 있으며 研究者에 따라서 其 값들이 많은 差異를 나타내고 있는 實情이며 今後에도 많은 實驗과 理論的 究明이 要한다.

② 環境monitor

TLD의 personnel monitor用은 이미 잘 알려져 있는 實情이며 環境 monitor用 TLD도 많이 開發되었다. 이 分野에는 LiF -TLD가 使用되어 왔고 以外에 $\text{CaF}_2(\text{Dy})$, $\text{CaF}_2(\text{Mn})$ 및 $\text{CaSO}_4(\text{Dy})$ 등도 使用하고 있다. 特히 fading문제 感度面에서 環境 monitor用 TLD는 $\text{CaSO}_4(\text{Dy})$ 가 適合하다. 이 環境 monitor用은 一般用 TLD와 달리 長時間동안 低線量에 被曝되고 있음을 고려하여 감도, fading은 勿論, 發光體自體의 自己被曝, 發光體의 包裝材에 依한 피폭, 大氣環境의 氣溫變動에 因한 fading의 變化, 感度の 方向依存性等 各種 條件을 고려하여 TLD를 선택하여야 하겠다. 10mR/y 程度의 低線量도 測定하였다고 Toombs¹³⁾는 報告 하였고 $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ 는 $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ 보다 10배나 其 感도가 높다고 한다. 이 測定은 大氣中 뿐만 아니라 水中 核施設物 등에 대하여 한 것이다.

③ 核臨界用 TLD(Criticality TL-Dosimeter)

一般的인 核臨界 事故時에 있어서 速中性子線量測定은 國內에서도 陸一魯¹⁴⁾等에 依하여 發表되었고 Han-kins¹⁵⁾等에 依하여 各種 核臨界施設에 있어서의 中性子-Spectrum을 測定함에 開發한 特殊 film badge (Cyclocac badge-Dupont 545 film packet)와 Vacuum tube形 CaF₂-dosimeter를 同時에 使用하여, 核臨界나 事故時에 放出되는 7對 neutron의 線量比를 測定하였으며 被曝物은 人體와 類似한 plastic phantom을 利用했고 結果的으로 TLD指示 값보다 film badge는 ±35% 即 約 1/3밖에 안됨이 實證되었다.

이 核事故時는 主로 7-neutron인 故로 個人防禦用 TLD도 考慮해야 하겠다. 即 7-線用 TLD는 CaSO₄:Dy, ⁷LiF:Mg, natural LiF:Mg, Al₂O₃等에서 同一-photon energy (KeV)에서 CaF₂는 LiF보다 其 感度가 훨씬 높다는 點을 留意해야 하고 反對로 LiF:Mg를 badge type로 할때 有利한 點은 여기에 20mg/cm²의 Polyethylene을 被覆하면 skin dose測定이 되고, 320mg/cm²의 plastic를 피복하면 body dose가 되고 1mm의 Cu, 또는 1mm의 Pb를 피복하면 X線 線量測定이 되며 勿論 ⁷LiF는 中性子 測定이 된다. LiF-TLD로서 7線測定時 其 感度 또는 感應(Response)는 phantom內(類似人體)에서 其 媒質(phantom)에 따라서 다르다.

即 TLD감도는 周圍媒質과 關係되고 TLD와 媒質接觸部分에서 所謂 Cavity(空洞)가 生기고 吸收線量分布의 不連續性이 나타난다. 媒質內의 energy分布의 不平衡은 一般的으로 Continuous Slowing down Approximation model로 또는 Spencer-Attix의 Two Group model로나, 最近에는 Burlin의 Quasi Diffusion Theory에 依하여 解析되고 陸一河¹⁶⁾等에 依하여 LiF-TLD의 感應은 入射 energy는 勿論 cavity(空洞)의 크기에 依存함을 理論的 및 實驗的으로 밝혔으며 personnel monitor로 使用하기 쉬운 LiF-polyethylene TLD에서 7-線energy 0.1MeV 近傍에서 其 response가 peak를 이루어 最高値가 되고 0.01MeV에서 0.1MeV까지는 急激한 上昇(0.25~1.7) response를 나타내고 0.1MeV以上 10MeV까지는 別로 큰 差異가 없음을 實證 하였다.

④ TLD의 比較

各種 TLD로 同一 放射線을 測定한 計測值의 相互比較가 또한 大端히 重要하다. 이는 各國間에 國際的으로 統一 되어야 함은 再言이 不必要하여 이는 Intercomparison method라고도 한다. 現在 IAEA가 이 業務

를 主導하고 있으며 標準線源에 대한 標準線量 測定值가 發表되어 있다¹⁷⁾.

이는 特別히 우리들 周邊에서 가장 많이 利用하는 X線線量을 相互比較하고 照射法, 測定方法等を 統一 시키기 爲한 評價를 하였다. 따라서 가) 測定結果의 平均値는 ±5%以內일것, 나) 이 값이 ±5%~±10%일 때는 不一致나 使用不能, 다) ±10%以上은 X線 線量計의 校正 또는 代替가 要望 된다고 勸告 하고 있다. 이 點으로 볼때 우리나라의 放射線 施設, 核施設物에 대한 被曝線量測定의 國際的 標準化는 時急한 問題의 하나이다.

⑤ TLD-Reader

TLD는 保健物理分野 및 環境放射能-monitor分野 등에서 先進國은 이미 1960年 부터 愛用해 왔으며 이 TLD-Reader도 Computer化 되어 있는 實情이다. 即 在來에는 100個의 TLD를 測定하는데 2時間이 所要되었는데 Computer化로 其 時間이 短縮되고 自動計測과 記錄으로 便利하게 되었다. 現在 1分間에 約 10個의 TLD를 처리하니 10분이면 100個가 처리되는 셈이다. 따라서 放射線從事者數가 많은 機關에서는 個人被曝管理에 絶對로 必要하게 되었다. 勿論 自動化라 함은 線量計測, 再生처리, 再封入, data記錄 까지를 말하며 其 操作에 所要되는 時間은 TLD 1個當 約 22秒가 걸린다고 한다. 따라서 測定의 個人誤差도 없어진다. TLD-Reader의 性能은 제작사(Harshaw-2271, Studsvik-

表 13. TLD-Reader의 性能比較

제 작 사	Harshaw 2271	Studsvik 1314A	Teledyne 9106
가 열 기 구		진열가열-N가스	一定온도와 가열판
교정용 광원	있음 수동	무(없음)	있음 자동
TLD	LiF	LiF+Li ₂ B ₄ O ₇ :Mn	CaSO ₄ :Dy
계량제당소자 수	2	4	4+4
표준제측소자 수	2	3	4
계 측 시 간	10sec	12sec	10sec
제 생 처 지 (개인피복용)	80°C 22hr	300°C, 20min	270°C, 60min.
7-선에 대한 재현성(δ:%) :	LiF	LiF, Li ₂ B ₄ O ₇ :Mn	CaSO ₄ :Dy
20mR	14.5	8.3 13.7	4.7
100mR	10.6	6.8 8.4	5.6
1000mR	13.7	5.1 5.9	4.6

1314A, Teledyne-9100)에 따라서 多少間의 差異는 있다. 끝으로 TLD-Reader에 對한 製作者別로 몇가지例를 表 12로 表示하였다.

6. 結 論

以上과 같이 TLD의 發展過程과 其 發光現象에 對한 機構를 理論的으로 및 實驗的으로 解釋해 보았고 또한 TLD의 再生法, 感度, background(pre-dose), energy-依存性, 線量依存性, 退化現象(Fading phenomena), 方向依存性等 및 各種 TLD들에 對한 相互特性比較도 하였으며 特히 在來式 film badge, pocket chamber dosimeter等과도 其 特性을 比較하여 personnel monitor用으로 어느 것이 좋은가의 適否를 讀者 여러 분에게 其 判斷을 맡기기로 하였다.

大體로 TLD使用은 X線被曝 線量測定을 爲始하여 모든 放射線發生의 施設物에서 放出되는 各種放射線測定을 正確하고 신속하게 하여 終局에는 放射線從事者의 피폭선량은 물론 住民피폭선량을 許容선량 以下로 恒常 維持하고자 함에 가장 큰 目的이 있다. 이는 結局 放射線被曝個人管理, 環境放射線管理 및 國民全體의 遺傳線量管理가 되기때문에 우리들 個個人과 우리들 家族 우리들 後系 나아가서는 全世界人間과 其後孫을 爲하여 各國은 모두 이 問題에 心血을 기울이고 있는 實情이며 국제기구로서 IAEA를 爲主로 하여 IRPA(International Radiation Protection Association)가 있고 美國自體로는 Health Physics Society가 있으며 이 學會 會員도 自動으로 IRPA의 會員이 된다. 各國의 방사선 防禦學會가 또한 IRPA에 加盟되어 있으며 KARP(Korean Association for Radiation Protection)도 IRPA에 韓國을 代表한 加盟會員國이 되어 있음을 볼때 必야호로 世界全人類는 合心合力하여 共同의 利器이며 同時에 共同의 障害物인 放射線 安全管理에 힘쓰고 있음을 如實히 實證하고 있다. 核發電施設物을 先頭로 하여 모든 방사선 발생 시설물에서 우리는 事故를 未然에 防止하여야 하며 지난날(3月 28日) 發生한 美國의 TMI事故는 地球上에서 再發되지 않도록 함이 우리들의 所望이다. 最近 ICRP Publication 26에 依하면 radiation risk와 其 risk factor가 문제시되며 年경 neutron risk factor=16~20cases/y/10⁶ man-rad, Kerma dose로서 Kr=349.6rad, Kn=119.7 rad일때 其 factor는 各各 1,277cases/10⁵/man-y와 42.8cases/10⁶/man-y가 되며 中性子에 對한 Leukemia risk factor는 600cases/10⁵man-rad라고 할때 其 線量測定의 精確度가 문제시 됨은 當然하다.

또한 effective dose equivalent(實効線量當量), depth dose equivalent index(深部線量當指數)等을 決定할때도 其 測定器機斗 方法, 線量率換算因子의 決定, 中性子 및 γ 線의 感應函數決定等 今後에도 많은 課題가 남아 있다고 보며 核發電所에서의 氣體 및 液體의 汚染度測定과 其 monitor문제에서 부터 低線量의 繼續的 被曝에 對한 正確한 測定, 內部被曝으로 因한 體內汚染 測定 및 monitor에 이르기 까지, 모두 線量測定문제가 가장 重要하다고 보며 이문제 解決로서 放射線安全管理 問題가 解決되리라고 믿는다.

우리나라에서도 이제 本格的으로 放射線防禦에 對한 開發研究와 事故防止를 爲한 對策을 徹底히 하여 後患이 없도록 다같이 努力해야 하겠다.

References

1. J.T. Randall & M.H.F. Wilkins : *Phosphorescence and electron traps. Proc. Roy. Soc. A.* 184, 347(1945)
2. N.F. Mott & R.W. Gurney : *Electronic processes in Ionic crystals. Oxford Univ. Press.*(1940)
3. J.H. Schulman et al. : *Proc. of International Conference on Lum. Dosimetry. June 21-23(1965)*
4. T. Nakajima et al. : *Characteristics of TL-Dosimeter on personnel monitor. Jour. of the Atomic Energy Society of Japan, Vol. 14, No. 5* (1972)
5. L. Benkó, Gy. Uchrin & T. Biró : *Proceedings of 4th International Congress on Radiation Protection, Paris, Vol. 4*(1977)
6. N. Vana, H. Aiginger, W. Erath & G. Buchan : *Proc. of 4th Int. Congress on Radiation Protection, Paris, Vol. 4*(1977)
7. T. Nakajima & y. Murayama : *Development of a new highly sensitive LiF-TLD and its applications: J. of RADIOISOTOPES, Vol. 28, No. 4* (1979)
8. M. Takenaga et al. : *A new TLD phosphor based on Li₂B₄O₇. Proc. of 5th Intern. Conf. on Lumin. Dosimetry, 148,*(1977)
9. D.F. Regulla : *Interpretation and discrimination of the predose phenomenon in phosphate glass dosimetry. Proc. of 5th Intern. Conf. on Lumin. Dosimetry, 103*(1977)
10. A.R. Lokshmanan et al. : *Ultraviolet-induced*

- TL and phosphor in Mg₂SiO₄ (Tb). Phys. Med. Biol.*, 23, 952(1978)
11. S.K. Mehta and S. Sengupta : *Photostimulated TL of Al₂O₃(Si,Ti) & its application to UV, Rad. dosimetry, ibid*, 23, 471(1978)
 12. L.F. Pender et al. : *Numerical analysis of TL Dosimeter for a Quasi Continuous activation energy distribution, Jour. of phys. C(solid state phys.) Vol.* 10, 1561. (1977)
 13. G.L. Toombs : *Comparative response of TL-Dosimeter in Environmental monitoring situation, Proc. of 4th Inter. congress on Radiation Protection, Paris, Vol.* 2(1977)
 14. C.C. Yook & S.G. Rho : *Fast neutron dosimetry in nuclear criticality accidents. Proc. of 4th Inter. Congress on Radiation Protection, Paris, Vol. I*(1977)
 15. D.E. Hankins : *A study of selected criticality dosimetry method. Los Alamos Scientific Lab. of the Univ. of California, LA-3910, Health and Safety, June 14*(1968)
 16. C.C. Yook & C.W. Ha : *Response of LiF-TLD to γ -rays as a cavity detector, Jour. of the Korean Association for Radiation Protection (KARP) Vol.* 1, No. 1(1976)
 17. K.J. Puite & D.L.J.M. Crebolder : *Experience with X-ray dose intercomparison Projects, IAEA Tech. Reports Series No.* 182, 71(1978)