

Al₂O₃ 熱螢光 特性을 利用한 감마線의 測定 및 臨床應用

延世大學校 醫科大學 放射線科學敎室

秋 成 實 · 朴 昌 潤

緒 論

熱螢光 特性을 利用한 放射線 測定은 高線量 測定이 可能하며 에너지의 依存性이 적고 線量에 대한 螢光反應이 線型的인 長點을 갖고 있으므로 널리 使用하고 있다.

특히 크기가 小型이므로 大部分이 有機物質이기 때문에 人體 線量測定에 많은 好評을 받고 있다.

산화알루미늄(Al₂O₃)은 熱螢光 物質로서 化學的인 不活性和 高溫에서 安定한 螢光 最大値를 얻을 수 있기 때문에 높은 溫度 內部에서나 化學物質에서도 安全한 線量을 測定할 수 있다.

著者는 Al₂O₃ 單結晶에 감마선을 照射한 후 結晶內에 形成된 電子陷沒(electronic trap)의 에너지와 形態를 熱螢光 曲線으로 調査評價하였으며, 감마선의 線量變化에 따른 熱螢光量을 測定함으로써 間接적으로 감마선 線量測定の 可能性을 檢討하였다.

電子陷沒(electronic trap)의 activation energy는 熱螢光的 peak shape法, Initial rise法, Various heating rate法, Isothermal decay法 등이 있으며 그 중에서도 分析이 簡單한 Initial rise法을 利用하여 計算하였다. 감마선의 Flux dependence는 감마선량에 대한 熱螢光量으로 測定하였고, 常溫과 高溫, 그리고 紫外線에 대한 減衰比率를 觀察하였으며, 現在까지 많이 使用되고 있는 TLD 100, Li₂B₄O₇等 熱螢光 物質과 比較檢討하였다.

純粹한 Al₂O₃ 單結晶의 熱螢光 最大點은 100~236°C 內에서 가장 컸으며 P, Si, Ti等 不純物을 注入시킨 것은 250~625°C內에서 가장 큰 熱螢光 最大點이 記錄되었으며 수 mR에서 수 MR까지 線形的인 熱螢光 反應을 나타내었다.

이와 같이 감마선에 의한 熱螢光 反應을 가진 Al₂O₃로 人體內的 放射線 被曝線量을 測定分析한 結果 人體 또는 環境 放射能 測定器로서 利用 可能性을 示唆하였다.

實驗材料 및 裝置

1. 實驗材料와 감마선원

本 實驗에 使用한 산화 알루미늄(Al₂O₃)는 純度가 높은 商品用(Adolf Mellor Co, U.S.A.)으로서 6mmφ×1mm의 圓板型 크기로 分離한 후 鹽酸에 約 1時間 담근 후 蒸溜水로 洗滌하였으며 紫外線으로 乾燥시켰다. 洗滌된 Al₂O₃ pellet를 水晶유리판에 附着시켜 電氣爐에 넣고 700°C에서 1時間 annealing 시켰으며 各 各 1.2cm크기의 비닐봉지에 넣어 外部物質과 遮斷시켰다.

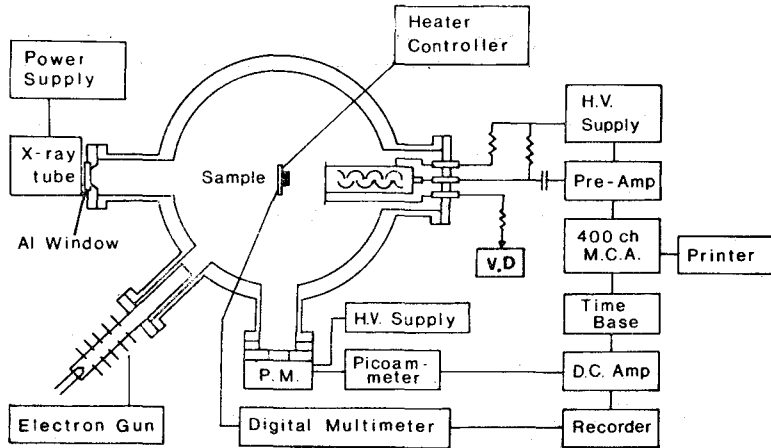
放射線을 照射하기 위한 감마선원은 容量이 4000Ci인 Co-60(CGR Alcyon 60)으로서 線源에서 1m距離에 分當 約 100R의 線量率로 照射될 수 있으며 照射面과 距離를 任意로 調節할 수 있도록 되어 있다.

準備된 Al₂O₃ pellet를 組織等價 phantom에 놓고 이를 Co-60線源 中心에 位置하도록 調節한 후 全體 照射線量은 時間間隔과 距離에 따라 100rad에서 10⁵ rad까지 照射하였다.

2. 實驗裝置

熱螢光 測定을 위하여 Fig. 1과 같이 眞空裝置, 加溫調節裝置, 螢光 測定裝置 및 資料記錄 分析裝置를 包含하고 있는 圓筒형의 眞空分析函을 製作 使用하였다(Fig. 2).

分析函의 中心에는 試料를 固定시키기 위하여 3cmφ×2cm의 구리막대 윗쪽에 1.5cmφ×1mm 크기로 구멍을 파고 3mm 넓이의 圓型고리로 附着시켰으며 試料의 바로 아래에는 溫度를 測定하는 熱電對가 들어가도록 하였으며 內部에는 各 各 6 Ow인 2個의 총알형 히터가 直列로 連結되어 秒當 2~4°C의 比率로 增減할 수 있으며 最大 700°C까지 加熱할 수 있도록 製作하였다.



Schematic Diagram

Fig. 1. Schematic Diagram of analyzer for detection of thermoluminescence.

熱螢光을 測定하기 爲하여 2.5인치 NaI(Tl) 單結晶에 光增幅 裝置와 Multi channel analyzer가 附着된 閃光計數器를 使用하였고 眞空裝置는 4인치 油擴散 眞空펌프와 回轉 眞空펌프를 連結하여 分析函 部分의 到達眞空度가 10^{-6} Torr까지 排氣시킬 수 있으며 加速管 內의 眞空度는 電離 眞空計器로 測定하였고 모든 實驗은 眞空度 2×10^{-5} Torr에서 施行하였다.

3. 組織等價 物質

放射線에 대한 熱螢光特性을 가진 酸化알루미늄(Al_2O_3)의 體內線量分布 測定程度를 評價하기 爲하여 Fig. 3과 같이 파라핀, 송진, 콜크 등을 利用한 組織等價 phantom을 製作하고 5cm두께의 橫斷板으로 組立된 胸部內部에 Al_2O_3 熱螢光 測定器를 1cm 間隔으로 重要한 部位에 配置시킨 후 Co-60 伽馬線을 0.1~1Gy 씩 照射시켜 組織두께에 對한 線量減少 現象과 體內 放射線分布를 測定할 수 있도록 하였다.

實驗結果 및 分析

1. 伽馬線을 照射한 Al_2O_3 의 熱螢光 反應

熱螢光을 利用한 放射線 測定은 TLD-100(LiF)를 비롯하여 $CaSO_4 : Dy$, $CaF_2 : Dy$, MgO 等 많은 材料들이 開發되었으며 1978年 Mehta等은 $Al_2O_3(Si, Ti)$ 結晶體로 紫外線을 測定할 수 있는 可能性을 提示하였다. 本 實驗에서는 Al_2O_3 單結晶에 Co-60 伽馬線을 10^4 rad씩 照射한 후 熱螢光 分析函에 놓고 $0.12^\circ C/S$ 의 加溫速度를 維持하면서 熱螢光을 測定하였다.

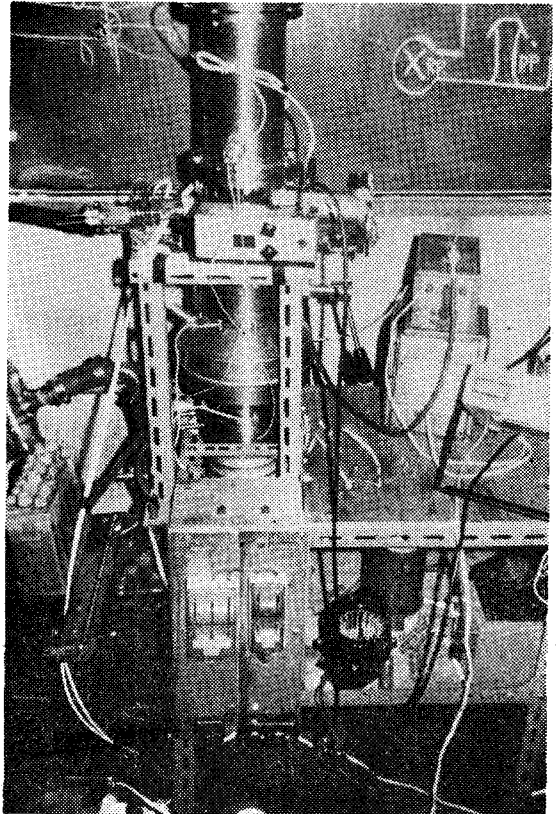


Fig. 2. Thermoluminescent analyzer.

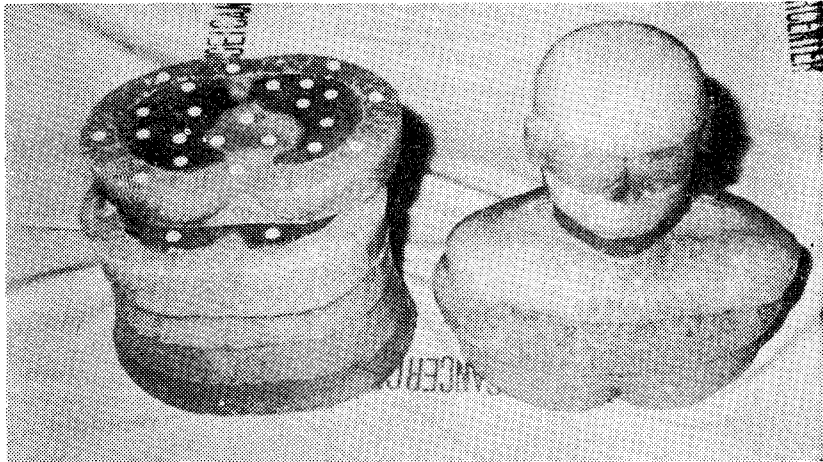


Fig. 3. Body phantom for dosimetry.

Fig. 4는 Al_2O_3 單結晶을 감마線에 $10^4 rad$ 照射한 후 加熱溫度에 따른 熱螢光量을 表示한 것으로서 $380^{\circ}K$ 와 $420^{\circ}K$ 및 $490^{\circ}K$ 에서 熱螢光 peak가 나타났으며 熱螢光 強度比率은 13 : 5 : 2였고 이는 감마線에 의한 非固有트랩 (extrinsic trap)과 固有트랩 (intrinsic trap)의 結合에 의한 것으로 알려져 있다.

熱螢光 分布에 의한 Al_2O_3 單結晶의 trap level의 活性化 에너지는 initial rising法, peak shaping法 등으로 求할 수 있으며 이중 initial rising法이 가장 近似的이기 때문에 이 方法을 使用하였다.

Initial rising法에서는 熱螢光 分布를 統計的 處理로서 activation energy를 求하고 있어서 發光되는 螢光量은 다음 式으로 주어진다.

$$I(T) = Sen_0 \nu E \mu_0 \exp\left[(-H/kT) - \frac{\nu}{\beta} \int_{T_0}^T \exp(-H/kT') dT'\right]$$

여기서 H : 活性化 에너지 (eV)

E : 電氣의 세기 (V/cm)

K : Boltzmann의 常數, 8.617×10^{-5} (eV/K)

T : 絕對溫度 (K)

ν : 離脫振動數 (sec^{-1})

β : 乘溫速度 (K/sec)

T_0 : 加熱始作時 絕對溫度 (K)

n_0 : 初期 carrier의 密度 (個數/ cm^3)

S : 電極의 넓이 (cm^2)

μ_0 : 初期 移動度 ($cm^2/V sec$)

τ : 緩和時間 (sec)

e : 電子의 電荷

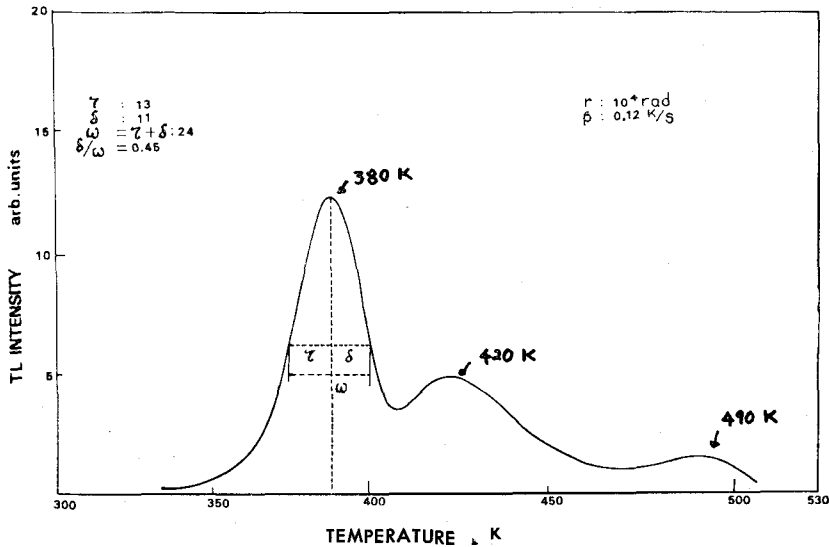


Fig. 4. Glow curve for Al_2O_3 thermoluminescent phosphor.

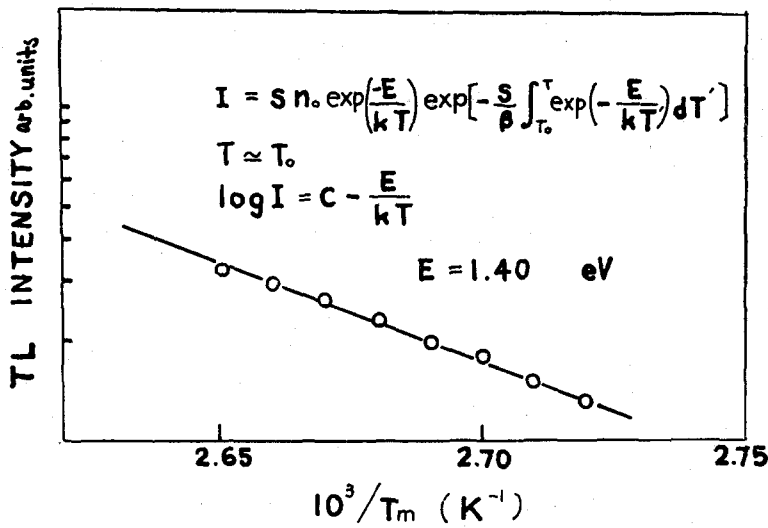


Fig. 5. Thermoluminescent intensity for inverse temperature.

熱螢光量의 크기가 最大로 되는 溫度 T_M 에서는 $dI(T_M)/dT=0$ 이므로

$$\frac{\nu}{\beta} \exp\left(-\frac{H}{KT_M}\right) = \frac{H}{KT_M^2}$$

이고, 이때 最大 螢光 I_M 는 다음과 같다. $I_M = S n_0 \nu \mu_0 E \exp\left[-\frac{H}{KT_M} - \frac{\nu}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp(-M/KT) dt\right]$

溫度에 따른 熱螢光量의 頂點에 이르는 짧은 時間 동안에는 $T \approx T_0$ 로 生覺할 수 있기 때문에 式의 오른쪽에서 積分項이 無視되며 다음과 같이 簡單한 近似式으로 表示할 수 있다.

$$I(T) = S n_0 \nu \mu_0 E \exp\left\{-\frac{H_0 - aE}{KT}\right\}$$

양변에 自然對數를 取하고 簡單히 表示하면 $\ln I(T) = -\frac{H}{KT} + \ln I_0$ 로 表示된다.

即 熱螢光量(I)의 數値와 I/T 의 關係에서 活性化 에너지 H 는 直線의 기울기에 해당한다.

Fig. 5는 Initial rising方法에 의한 Al₂O₃의 活性化 에너지를 求하기 위한 圖表로서 式(2)를 絕對溫度의 逆乘 ($10^3/T_M$)에 對한 熱螢光量의 指數로 表示하면 기울기에 해당하는 活性化 에너지 1.4 eV를 求할 수 있다.

2. 감마線量 測定

放射能이 4000Ci인 Co-60線源으로부터 80cm距離에 Al₂O₃ 單結晶 熱螢光 測定器를 놓고 照射線量을 100~10⁶rad까지 調節하며 照射하였다.

標準線量 測定은 Ionization chamber(Capintec Inc., Exposure meter Model 192, probe PR-06C)를 polystyrene phantom에 넣고 最大線量 地點의 線量

을 測定하여 矯正하였으며 비닐에 包裝된 Al₂O₃ 熱螢光 測定器를 最大線量 地點에 位置하도록 바세린 bolus를 利用하여 照射線量을 build up시켰다.

Fig. 6은 Al₂O₃ 單結晶에 감마線量을 10², 10⁴, 10⁶ rads 照射한 후 分析函內에서 서서히 加溫시키면서 熱螢光 強度를 測定한 spectrum으로서 380°K peak의 振幅이 增加하였으며 溫度에 따른 peak의 位置는 거의 變하지 않았다.

Fig. 7은 감마線量(Flux)에 따른 熱螢光強度를 log paper에 表示한 것으로서 熱螢光量은 감마線 Flux의 0.98乘에 比例($I = I_0 0.98$)의 增加함을 나타내었다.

Al₂O₃의 熱螢光 反應을 TLD-100(LiF)와 比較하기

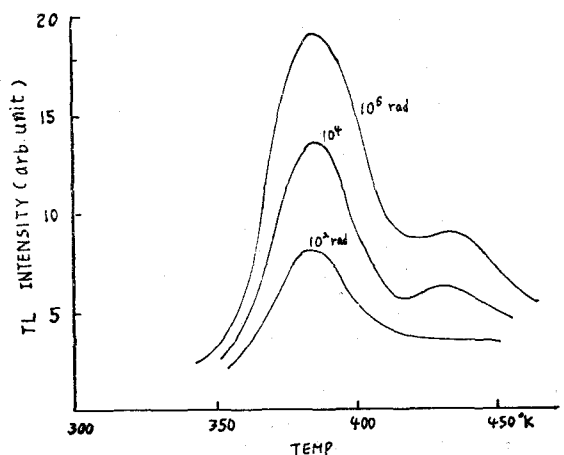


Fig. 6. Glow curves for temperature and exposure dose.

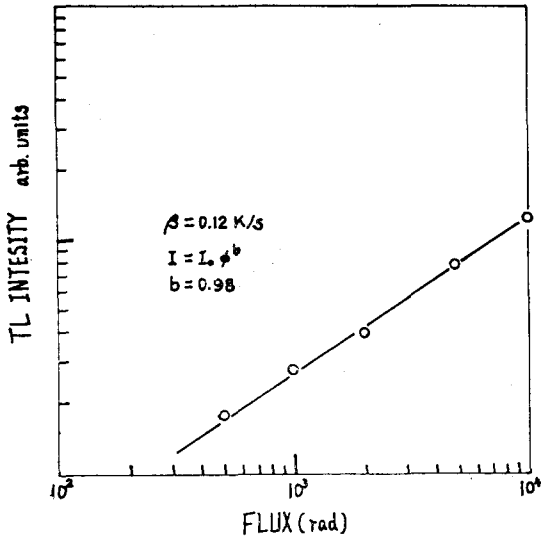


Fig. 7. TL intensity for radiation flux.

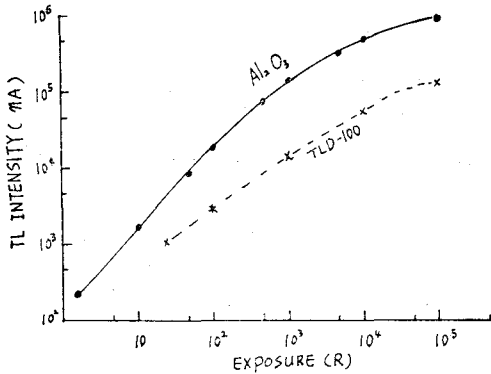


Fig. 8. TL intensity for exposure dose in gamma ray.

위하여 Fig. 8과 같이 감마線량을 10~10⁵R로 增加함에 따른 熱螢光 強度를 比較한 것으로서 熱螢光 感度 (sensitivity)는 Al₂O₃가 TLD-100보다 약 5倍 增加하였으며 照射線량이 10³R 以下에서는 照射線량과 熱螢光量이 거의 直線의 比例關係를 가졌고 10³R 以上에서는 多少 鈍化된 比例關係를 가졌다.

이와 같이 Al₂O₃의 熱螢光量은 감마 線量 10~10⁴R 까지 거의 一定한 比率로 增加하였으며 螢光感도가 크기 때문에 測定誤差를 줄일 수 있으며 醫療用 放射線治療機의 線量分布 및 線量比較에 適當한 測定器로 生覺된다.

Fig. 9는 Al₂O₃ 및 TL-100을 280°C에서 1時間 annealing하였을 때의 감마線 感度(sensitivity)를 比較한 것으로서 감마線量 10³~10⁴R일때 가장 큰 感度 比率를 얻을 수 있었으며 이것은 annealing으로 인한

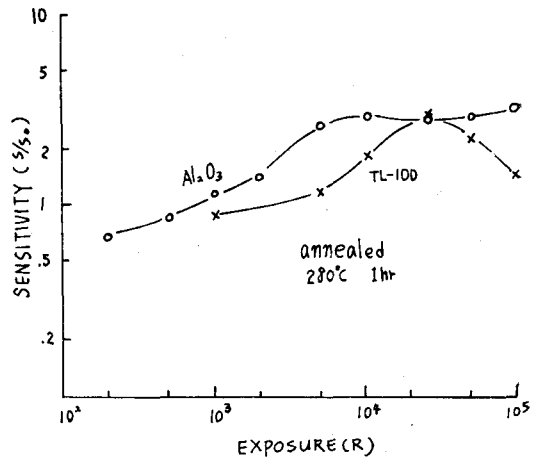


Fig. 9. TL sensitivity for gamma exposure dose.

새로운 trapping center의 再構成으로 이루어진다고 볼 수 있다.

3. Fading time 測定

熱螢光 測定器는 熱을 가함으로써 trap level에 있는 이온들이 再結合하여 螢光을 發生시키고 正常的인 單結晶體로 되돌아 가게되며 trap energy level이 낮을수록 螢光發生 頻도가 增加하며 常溫에서도 熱螢光作用이 다소 일어나기 때문에 放射線 照射直後 보다 時間이 經過한 後의 熱螢光量은 減少된다.

Fig. 10은 同一 線量을 照射한 후 時間經過에 따른 熱螢光量을 表示한 것으로서 照射後 30分까지는 急激히 螢光量이 줄어들며 그 以上에서는 서서히 줄어들고 있으며 時間에 따른 螢光量은 다음式으로 表示할 수 있다.

$$I = I_0(t + t_0)^{-p}$$

$$\log I = \log I_0 - p \log(t + t_0)$$

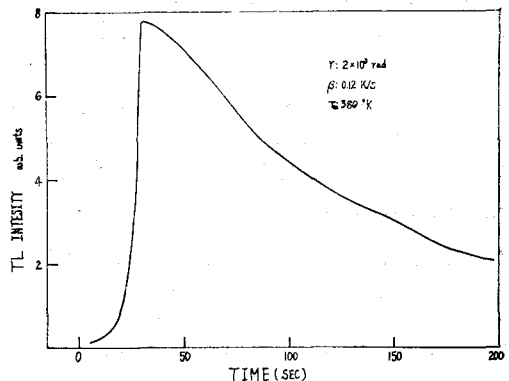


Fig. 10. Attenuation of TL intensity for time.

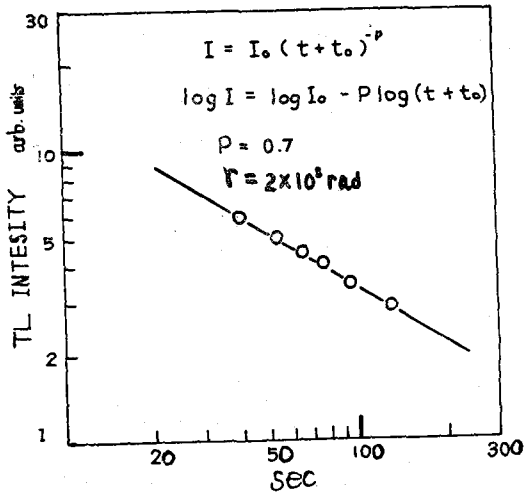


Fig. 11. TL intensity for procession time.

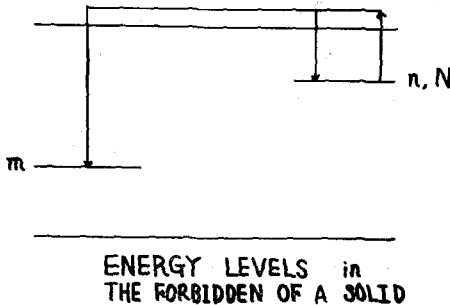


Fig. 12. Trap levels of Al₂O₃ thermoluminescent phosphor.

이 式에서 時間增加에 따른 螢光量을 Fig. 11과 같이 log-log paper에 表示하면 直線의 기울기 값을 求할 수 있으며 本 實驗에서 p 의 값이 0.7로 計算되었다.

Fig. 12는 Al₂O₃ 單結晶에 생기는 trap energy level을 m 와 n 로 表示하였으며 時間에 따라 發生되는 熱螢光量은 各 trap level의 에너지差에 依存되고 A_m , A_n 를 m 와 n level에 依한 螢光量이라면 熱螢光量의 比率 α 는 두 level의 螢光量比率로 表示되며 p 값 0.7은 Al₂O₃에서는 α 값이 Table 1에 依하여 약 1,000임을 나타내고 있다.

Table 1. The power factor p as a function on the ratio $\alpha = A_m/A_n$

p	2	1.75	1.63	1.47	1.34	1.15	1.01	0.97	0.8	0.7
α	1	2	3	5	10	25	50	100	500	1,000

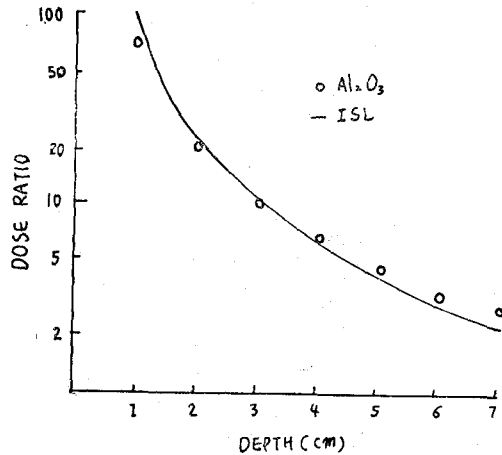


Fig. 13. Dose ratio for depth with Al₂O₃ phosphor.

4. 組織內 線量測定

熱螢光 特性을 가진 酸化 알루미늄(Al₂O₃)을 利用하여 體內線量을 測定하기 위하여 Fig. 3과 같이 파라핀, 송진, 폴크等を 使用한 組織等價 物質을 製作하고 組織間에 Al₂O₃의 작은 板을 主要部位에 놓고 外部에서 計測된 線量을 照射하였다.

Fig. 13은 1Ci의 Co-60線源으로부터 組織等價 깊이 에 따른 線量減弱을 表示한 것으로서 Al₂O₃ 測定器를 使用함으로써 理論에 依한 標準 測定量보다 다소 많은 線量反應을 나타내었으나 誤差는 $\pm 1\%$ 미만으로서 組織內 線量測定에 適合함을 나타내었다.

熱螢光 測定器인 Al₂O₃를 組織의 各部位를 測定比較하기 위하여 適當한 annealing 溫度와 時間을 結定함으로써 測定誤差를 最大로 줄일 수 있으며 通常 700°C에서 1時間 以上の annealing이 適當하였으며 Fig. 14와 같이 紫外線에 依한 annealing效果도 期待할 수 있다.

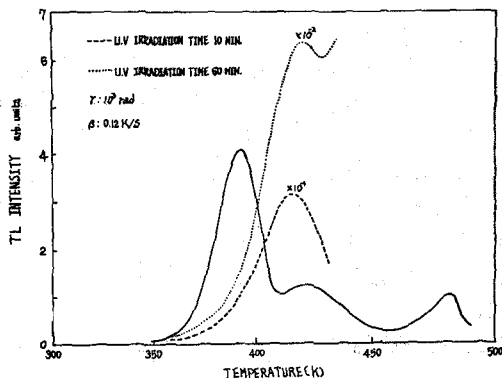


Fig. 14. Annealing temperature and U. V. irradiation.

結 論

酸化 알루미늄(Al_2O_3)은 熱螢光 物質로서 體溫以上에서 螢光 最大値를 求할 수 있으며, 不活性 分子로서 化學反應에 關係없이 一定한 熱螢光 反應을 維持함으로, 生體 組織內 放射線量 測定에 適當한 測定器의 一種으로 生覺되었으며 放射線 治療에 널리 使用되고 있는 Co-60 감마線에 對한 熱螢光 反應을 다음과 같이 測定하였다.

- 1) Al_2O_3 의 熱螢光 最大値는 380K, 420K, 490K에서 나타났다.
- 2) Al_2O_3 의 活性에너지는 熱螢光 曲線의 最初 時間 測定法에 의하여 1.4 eV로 測定되었다.
- 3) Co-60 감마線量에 의한 Al_2O_3 의 熱螢光量은 線型的 關係를 가졌다.
- 4) Al_2O_3 의 熱螢光에 대한 감마線의 感度比率은 $10^3 \sim 10^4 R$ 일때 가장 큰 感度を 얻을 수 있었다.
- 5) 감마線을 照射後 감마線量的 減弱은 照射後 30分까지는 急激히 減少했으나 그후 부터는 每時間 5%의 減弱을 보였다.
- 6) Al_2O_3 에 의한 組織內 線量測定은 標準測定에 比하여 2%미만의 誤差를 가졌다.
- 7) Al_2O_3 의 annealing 溫도와 時間은 $700^\circ C$ 에 1時間이 適當하였다.

이상과 같이 Al_2O_3 는 組織內 線量測定器로 適當하지 만 다만 Fading time이 빠르기 때문에 좀 더 研究開

發하면 훌륭한 生體 測定器가 될 수 있을 것으로 思慮된다.

REFERENCES

- 1) Gabrysh A. F., Kennedy J. M., and Johnson V. R.: Effects of high pressure on the thermoluminescence of γ -irradiated Al_2O_3 single crystals. *Physical Review* **131**, 1543, 1963.
- 2) Mehta S. K., and Se Ngupta S.: Gamma dosimetry with Al_2O_3 thermoluminescent phosphor, *Phys. Med Biol*, **21**, 955, 1976.
- 3) Rieke J. K. and Daniels F.: Thermoluminescence of various crystal phases of polycrystalline aluminum oxide. *J. Phys. Chem.* **61**, 629, 1957.
- 4) Hunt R. A. and Schuler R. H.: Saturation limits and annealing temperature of the gamma ray induced coloration, defects and their effect on the optical properties of Al_2O_3 . *Physics Review* **89**, 664, 1953.
- 5) Bonfiglioli G. and Cortese. C.: Thermoluminescence and F-center. *Phys. Review* **114**, 951, 1959.
- 6) Doppke K. P. and Cameron, J. R.: Radiation damage in LiF(TLD-100). *Phys. Med. Biol.*, **11**, 624, 1966.

**Gamma Dosimetry and Clinical Application with
 Al_2O_3 Thermoluminescent Dosimeter**

Seong Sil Chu, PhD., Chang Yoon Park, M.D.

Department of Radiology, College of Medicine, Yonsei University

=Abstract=

The properties of Al_2O_3 thermoluminescent phosphor have been observed to apply for gamma dosimetry in vivo.

Glow peaks at 380, 420, 490 kelvin temperature with emission in the blue region have been detected and calculated as 1.4 eV the activation energy by means of heat response rising time method.

Sensitization and supralinearity in Al_2O_3 phosphor could be consistently explained by the deep trap model.

Studies of the thermoluminescence growth rate with gamma ray exposure showed linearly to 10^4 Roentgen and then supralinear rate detected 1.2 power of exposure dose sensitization of Al_2O_3 is described five times more than TLD-100 and the fading time is shorter and then tried to apply for gamma dosimetry in vivo.