

着色 PVA 필름 線量計

鄭雲赫

釜山大學校

I. 序 論

필름선량계는 전자선 또는 ^{60}Co γ 선 용으로 가장 널리 이용되고 있는 실용선량계이다. 선량계의 재료로서는 여러 가지 투명 혹은 반투명한 고분자물질이 쓰여지고, 照射에 의해서 近紫外 혹은 可視部에서 변화하는 필름의 吸光度를 분광광도계 (spectrophotometer) 등으로 측정하는 방법이 택해지고 있다. 플라스틱 素材 그대로의 것과 照射에 의해서 着色 혹은 脫色하는 染料라든지 그 밖의 첨가물을 가한 것이 있다.

지금까지 여러 가지 것들이 시도되었으나, 三 酞酸 cellulose(CTA) 線量計[1], radiochromic 선량계[2], blue cellophane 선량계[3]가 잘 알려져 있다. 그 밖의 필름狀의 선량계로서는 고분자재료로 성형된 alanine[4], 薄膜狀의 熱 luminescence 선량계(TLD)가 있다. 이상의 선량계들은 각기 照射 용도에 따라 장단점을 갖고 있다.

본 연구에서는, polyvinyl alcohol(PVA)에 染料 물질은 methylene blue, methyl orange, congo red 등을 첨가하여 얇은 필름상으로 만들어 ^{60}Co γ 선 및 電子線照射조건, 필름제조과정, 線量測定 및 線量計로서의 效用性에 관해서 자세히 논하고자 한다.

II. 放射線源의 에너지 및 線量校正

1. ^{60}Co γ 線과 電子線

低에너지의 전자선과 γ 선은 흡수물질 내에서 양쪽 모두 주로 전자들 사이의 상호작용을 통해서 물질에 영향을 미치기 때문에 (전자선의 경우에는 입사전자가 직접 물질에 상호작용하고, γ 선의 경우에는 광전효과, compton 효과, 쌍생성을 통해서 간접 직접으로 생성된 전자들이 물질과 상호작용을 한다), 그들의 흡수선량에 대해서는 대체로 동일한 선량 교정곡선이 사용된다. 그러나, 보통 전자선의 선량률이 γ 선에 비해서 훨씬 높기 때문에, 동일한 흡수선량에 대해서 전자선의 照射 시간이 감마선보다 훨씬 작게 된다. 또, 그들에 의해서 물질내에서 발생한 자유 라디칼과 주위 공기중의 산소와의 화학반응을 일으킬 기회가 상이하다. 이것이 照射에 있어서 전자선과 γ 선과의 주된 상이점이고, 진공의 분위기에서는 양자의 照射효과는 대체로 동일하다고 간주된다.

2. 電子加速器의 에너지 校正

전자가속기에서 나오는 전자선의 에너지를 측정하는 방법은 몇가지가 있으나, 그 중에서 가장 잘 쓰이고 신빙성 있는 방법의 하나인 光核反應法을 소개하고자 한다. 이 방법은, 그림 1에서와 같이, 가속기에서 나온 전자선을 stainless steel 표적(X선 발생계)에 충격시켜, 거기서 발생한 제 동복사선(γ 선)을 또다시 제2의 표적(Be)에 입사

표 1. 전자선(e)과 감마선(γ) 照射의 비교

	e	γ
투과도	작다	
투과도의 가변성	○	크다
on-off	○	×
beam 강도 조절	beam 선속, 거리	×
照射방향성	1 방향	선원강도, 거리
	beam 走査	등방적
	conveyer照射	conveyer照射
field 넓이	좁다	넓다
被照射物중 선량을 변동	크다	작다

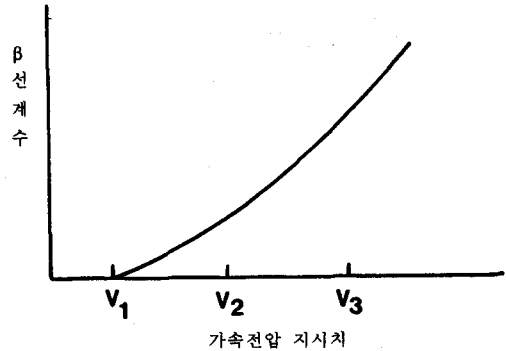


그림 2. 전자가속기의 에너지교정을 위한 문턱에너지의 결정

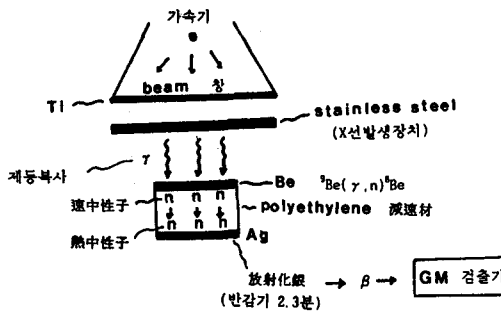


그림 1. 전자선가속기의 에너지교정을 위한 光核反應法

시키므로써 야기되는 (γ, n)의 문턱반응을 관측하는 것이다.

$E_e \leq 5$ MeV에서 光核反應 ${}^9\text{Be}(\gamma, n){}^8\text{Be}$ 의 문턱에너지는 1.67 MeV으로 알려져 있다. 이 광핵반응에서 나온 速中性子를 減速材(polyethylene)를 써서 熱中性子로 만든다. 이 열중성자를 제3의 표적(Ag)에 흡수시키면 열중성자 반응을 통해서 銀은 방사화된다. 이렇게 해서 얻어진 放射化銀은 半感期 2.3분으로 β^- 을 방출한다. 가속기의 가속전압(입사전자선의 가속에너지의 대응)을 여러 가지로 변화시켜 가면서, GM검출기로 방출된 β^-

를 검출하면, 계동복사선의 최대에너지가 바로 입사전자선의 에너지이므로, β 선이 검출되기 시작할 때의 가속전압이 바로 문턱값 1.67 MeV의 전자에너지에 대응하게 된다(그림 2).

3. 電子線의 線量測定

전자가속기에서 나오는 전자선을 물질에 흡수시킬 때 흡수된 선량을 측정하는 방법은 여러 가지가 있다. 현재 널리 사용되고 있는 방법중의 하나가 calorimeter법이다. calorimeter는 열적으로 격리된 단위질량의 물질중에 방사선 에너지가 흡수되어 축적된 열량이 흡수선량을 주는 것을 이용한 선량측정법이다. 핵반응이나 방사선 화학반응에 의한 발열 혹은 흡열이 무시될 경우에는, 물질에 흡수된 방사선 에너지의 거의 대부분은 최종적으로 열에너지의 형태로 축적되는 것으로 calorimeter는 가장 직접적인 흡수선량의 측정수단이 된다.

흡수체로는 흑연, 물 등이 사용된다. 흡수체의 온도상승의 측정에는 열용량이 작은 感熱 sensor로서 thermister 혹은 thermocouple이 사용되고 있다. 검출용의 도선에 관해서는 전도에 의한 방열도 고려해서 직경 0.1mm 이하의 것이 사용된다.

준단열형의 간이 calorimeter에는 흡수체의 두께를 전자飛程보다 작게 취한 부분흡수형과, 그보다 크게 취한 전흡수형이 있다. 비교적 높은 전자에너지에서는 부분흡수형[5]이 사용된다. 부분흡수형 calorimeter의 전형적인 예로서 미국의 국립표준기술연구소(NIST) 및 덴마크의 Risoe 국립연구소에서 사용되고 있는 4~10 MeV 전자선용의 흑연 calorimeter를 그림 3에 보인다. 그림 3에서 보는 바와 같이, 흡수물질인 흑연은 얇은 polyethylene으로 둘러싸여 있고 그 속에는 온도상승을 측정하기 위한 thermister가 꽂혀 있다. 또 calorimeter계 전체가 단열재인 polystyrene foam으로 둘러싸여 있다. 전자선을 쬐이기 전에 온도를 재고, 쬐인 후에 온도를 재서, 온도차로써 온도상승을 알아내도록 되어 있다. 상승온도를 알면, 흡수물질의 열용량을 써서 흡수된 열량 또는 에너지를 계산할 수 있다.

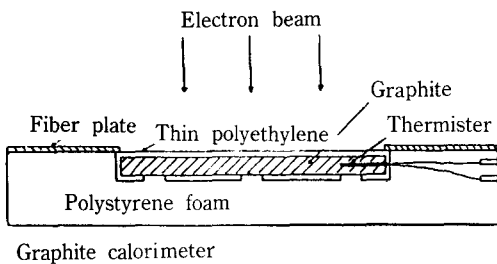


그림 3. 전자선 선량교정을 위한 calorimeter

4. ⁶⁰Co γ 線의 線量測定

방사선에 의한 화학변화가 흡수선량에 대해서 비례관계에 있다는 것을 이용한 것이 化學線量計에 의한 선량측정이다. Fricke 선량계는 화학선량계 중에서 가장 널리 인정받는 것으로, FeSO₄ 용액에 γ선을 쬐었을 때, Fe²⁺ 이온이 Fe³⁺ 이온으로 변화하는데, 흡수에너지 100 eV 당 발생된 Fe³⁺ 이온수로서 G라는 양의 값을 정의한다. 즉,

Fricke 선량계에 대해서는

$$G(\text{Fe}^{3+}) = 15.6 \text{ 이온}/100 \text{ eV}$$

이다. 그러면, 시료용액의 두께 d, 밀도 ρ 및 照射 照射 후의 흡광도(OD_i 및 OD_f)를 측정하면, 흡수선량(D)은 rad의 단위로 다음과 같이 주어진다[6].

$$D(\text{rad}) = \frac{0.965 \times 10^9 (OD_i - OD_f)}{\epsilon d \rho G(\text{Fe}^{3+})} \dots\dots (1)$$

여기서 ε는 분자 extinction 계수이다. 그림 4는 ⁶⁰Co γ선, Fricke 용액, 흡수파장 304 nm에 대한 흡광도 대 照射시간 곡선을 나타낸다. 이 곡선의 기울기로 부터 ⁶⁰Co γ선원의 선량률을 구할 수 있다.

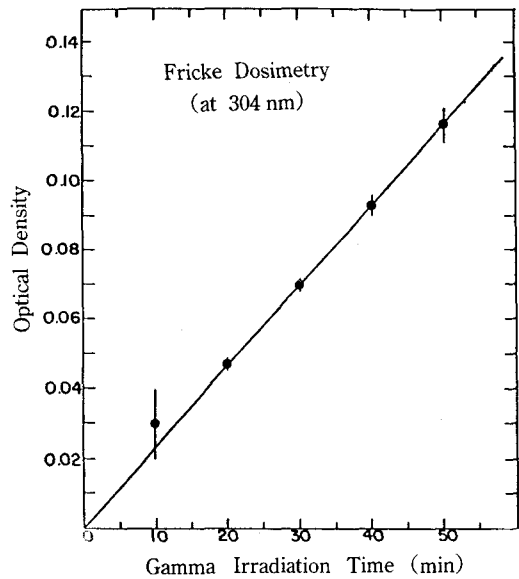


그림 4. Fricke 선량곡선

III. 深度線量分布

필름선량계로써 심도선량분포(depth-dose distribution)를 측정하는 방법은 다음과 같이 여러

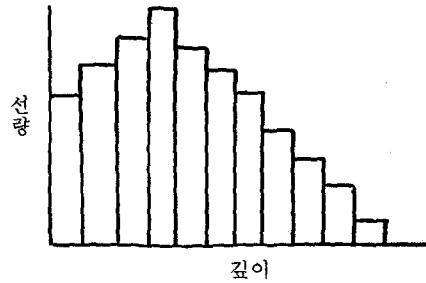
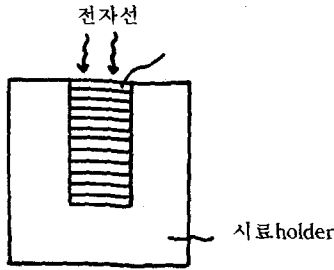


그림 5. 單純積層法에 의한 深度線量分布

가지가 있다.

1. 單純積層法

이 방법에서는 선량계 필름을 전자의 비정 이상의 두께까지 쌓아 올린 것을 照射試料로 한다. 각 필름의 선량을 모두 측정해서, 필름의 두께에 상응하는 깊이의 범위내에서 평균선량을 구하고, 이것을 기초로 해서 심도선량분포를 그린다(그림 5).

이 방법의 특징은,

1) 선량계 물질중의 선량을 그대로 측정할 수 있다. 단, 선량계 물질과 등가가 아닌 물질 중의 선량분포측정에는 적합하지 않다.

2) 전자비정이 짧은 낮은 에너지 전자선의 선량측정에 적합하다. 전자비정이긴 높은 에너지

전자선에서는 많은 매수의 선량계 필름을 필요로 하기 때문에 번거롭다.

2. 交互積層法

이 방법에서는, 선량을 알고자 하는 물질 혹은 그것과 등가인 물질의 얇은 층과 필름 선량계를 교대로 쌓아올린 것을 照射試料로 한다. 선량계 필름의 흡수선량 D_i 로 부터 질량충돌저지능 비를 써서 측정하고자 하는 물질의 흡수선량 D_m 을 다음식으로 부터 구한다.

$$D_m = \frac{(S/\rho)_m}{(S/\rho)_i} D_i \dots\dots\dots (2)$$

여기서, $(S/\rho)_m$ 및 $(S/\rho)_i$ 는 각각 선량을 알고자 하는 물질과 필름선량계의 질량충돌 저지능이다. 이 경우, 선량계 필름을 교대로 삽입함에 의해서

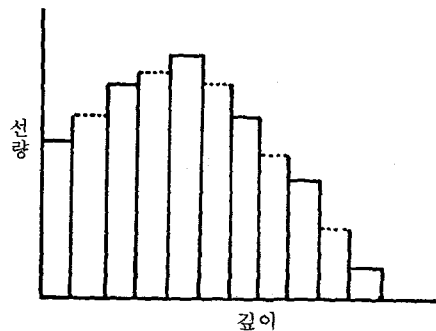
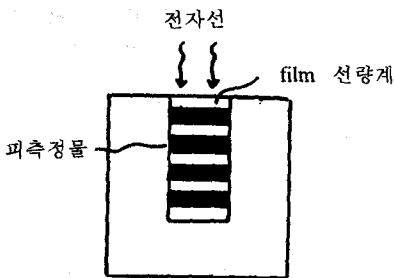


그림 6. 交互積層法에 의한 深度線量分布

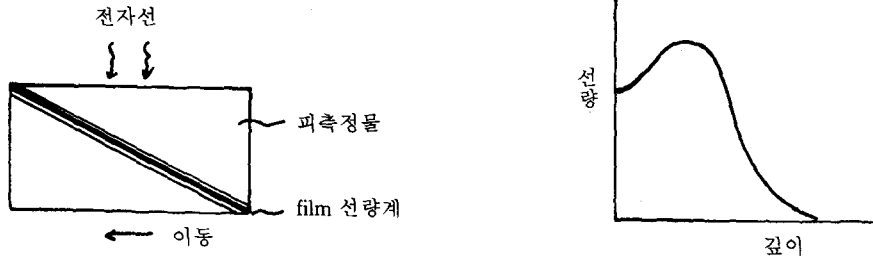


그림 7. 直選찌기법에 의한 深度線量分布

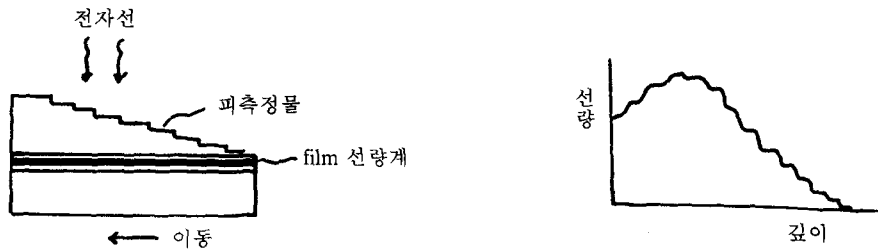


그림 8. 階段狀찌기법에 의한 深度線量分布

照射場이 변하는 것을 막기 위해서 필름의 두께는 측정하고자 하는 물질의 두께에 비해서 충분히 얇게 하고, 필름의 삽입에 의해서 照射場은 변하지 않는다고 가정한다(그림 6).

이 방법의 특징은,

- 1) 선량을 알고자 하는 물질이 선량계필름과 등가가 아니라도 선량분포가 측정될 수 있다.
- 2) 각 물질과 선량계필름의 질량충돌저지능비를 미리 구해 놓을 필요가 있다. 이 비의 값은 전자 에너지의 함수로서 주어지나, 크기는 의존하지 않는다.

3. 直選찌기法

이 방법에서는, 선량을 알고자 하는 물질, 혹은 그것과 동가인 물질로 만들어진 두 직선상의 찌기사이에 테이프상의 긴 선량계필름을 끼워 넣은 것을 照射시료로 한다(그림 7). 선량계필름에 따르는 선량분포로부터 질량충돌저지능을 써서 문

제로 되어 있는 물질의 흡수선량을 구한다(찌기는 1개라도 좋다. 또 照射面의 양쪽은 찌기가 아니고 전자비정 보다 두꺼운 평면물질이라도 괜찮다).

이 방법의 특징은,

- 1) 테이프상의 필름 1매로 심도선량분포를 측정할 수 있다. 단, 필름에 따르는 선량분포를 연속적으로 재는 장치가 필요하다.
- 2) 찌기의 전깊이에 걸쳐 균일하게 照射할 필요가 있다. conveyer를 사용한 照射에 적합하다.
- 3) 각도가 작은 찌기를 만들기가 쉽지 않다. 따라서 낮은 에너지 전자에는 적합하지 않다.
- 4) 심도선량분포에 있어서 깊이 0인 위치를 정확히 결정하기가 어렵다.

4. 階段狀 찌기法

기본적으로는 위의 직선찌기법과 동일하나, 찌기로서 계단상으로 끝이 점점 가늘어지는 시료를 쓴다(그림 8).

이 방법의 특징은,

1) 위 직선썰기법의 1), 2)는 이 방법에도 적용된다.

2) 낮은 에너지 전자선용에 적합하다.

3) 필름에 따라 연속적인 선량분포는 계단상으로 되고, 매끈한 곡선은 되지 않으나, 이것을 기초로 해서 각 깊이에서의 흡수선량을 정확히 줄 수가 있다.

그림 9는 덴마크 Risoe 국립연구소의 10 MeV 전자선에 대한 전형적인 심도선량분포를 보여준다.

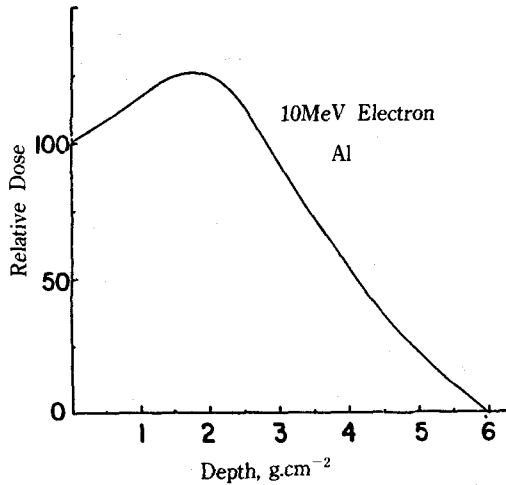


그림 9. 10 MeV 전자선에 대한 전형적인 深度線量分布

IV. 着色 PVA 필름 線量計

1. 着色 PVA 필름의 製作

3g의 PVA 분말을 200cm³ 증류수에 넣고, 서서히 가열하면서 충분히 젖어 균일하게 용해시킨다. 그런 다음, 염료를 넣고 녹인다. 본 연구에서는 염료 methylene blue, methyl orange, congored를

사용하여 3가지 종류의 착색 필름을 제작하였다. 분광광도계를 써서 흡광도를 측정하기에 알맞은 필름의 투명도를 얻기 위해서 염료의 양을 여러 가지로 시도해본 결과, methylene blue 8mg, methyl orange 40mg, congored 60mg이 적합하다는 것을 알았다. 충분히 균일하게 용해시킨 후 평활한 유리판에 부어서 자연적으로 유리판에 퍼져 나가도록 하였다. 2~3일 동안 자연상태의 실내에 놔두면 자연적으로 건조하여 아주 얇은 필름을 얻는다(~20μm). 이렇게 만들어진 필름의 유효 원자번호는 $Z_{eff}=6.3$, 유효원자량은 $A_{eff}=11.5$, 평균밀도는 $\rho=1.4g/cm^3$ 이었다.

2. 放射線照射

착색필름의 방사선照射는, 3000Ci 감마 cell의 ⁶⁰Co γ선(덴마크 Risoe 국립연구소)을 써서,
methylene blue 필름 : 100 kGy 까지
methyl orange 필름 : 300 kGy 까지
congo red 필름 : 500 kGy 까지

10 MeV 전자선형가속기(덴마크 Risoe 국립연구소)의 전자선을 써서,
methylene blue 필름 : 100 kGy 까지
methyl orange 필름 : 800 kGy 까지
congo red 필름 : 300 kGy 까지

300 KeV 전자가속기(일본원자력연구소)의 전자선을 써서,
methylene blue 필름 : 100 kGy 까지
methyl orange 필름 : 500 kGy 까지

와 같이 시행했다.

방사선의 선량교정은,

⁶⁰Co 감마 cell : dichromate 선량계 및 Fricke 선량계

10 MeV 전자가속기 : 물 calorimeter

300 keV 전자가속기 : 光核反應法

을 써서 시행했다.

照射 온도는 ^{60}Co γ 선 및 전자선 照射에 있어서 될 수 있는 대로 일정한 온도를 유지하도록 감마 cell 내에는 자동온도장치를 설치했고(23°C), 전자선 照射의 경우 시료를 calorimeter와 동일한 기하학적구조를 유지하도록 두 절연판 사이에 끼워 넣었다($25^{\circ}\text{C}\sim 45^{\circ}\text{C}$).

3. 선량測定

흡수선량의 측정은, 시료필름의 照射 後에 있어서 吸光度를 spectrophotometer(Pye Unicam

SP8-400 및 島津子起分光光度計 UV-2200)으로 측정하므로써 이루어졌다. 시료필름의 두께는 두께계(Feinprüf Millitron 및 Ozaki D-10)를 써서 측정했으며, 두께에 따른 흡광도 보정을 하였다.

선량응답곡선의 측정은,

methylene blue 필름 : ^{60}Co γ 선, 10 MeV 전자선, 300 keV 전자선

methyl orange 필름 : ^{60}Co γ 선, 10 MeV 전자선, 300 keV 전자선

congo red 필름 : ^{60}Co γ 선, 10 MeV 전자선

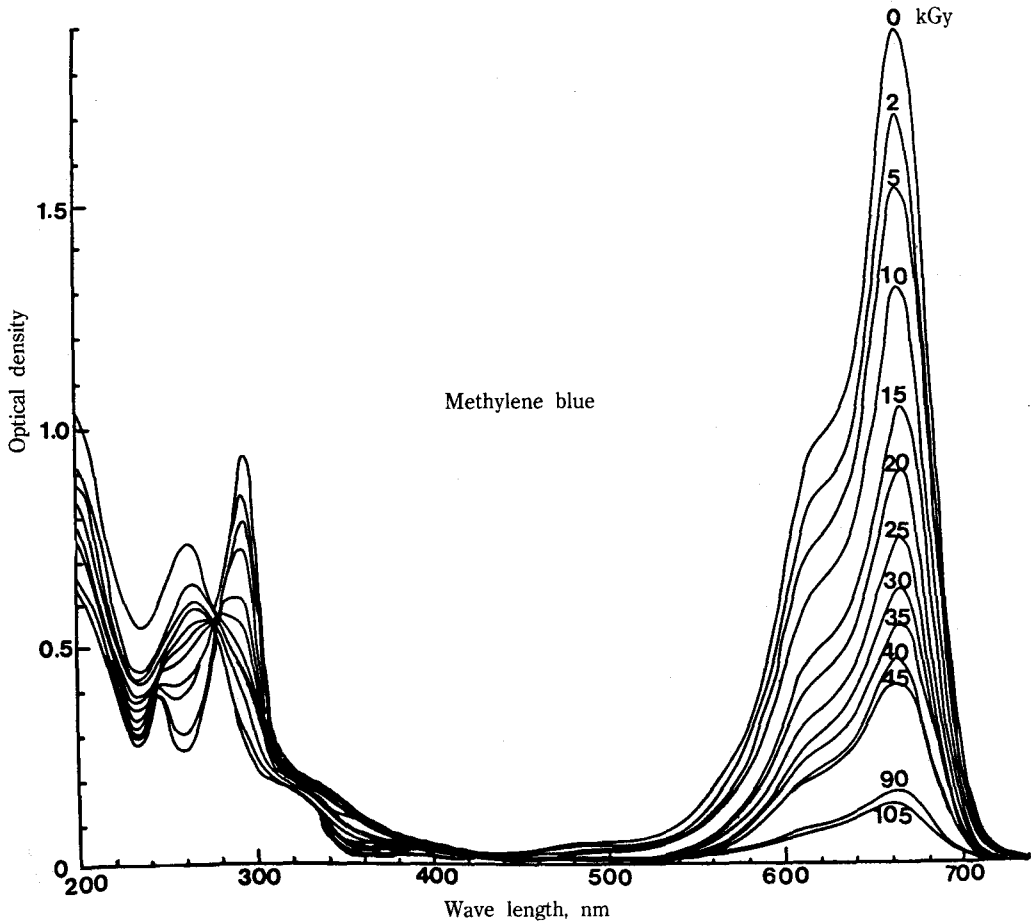


그림 10. methylene blue 필름에 대한 γ 선 照射 흡수스펙트럼

에 대해서 행했고, 심도선량분포곡선의 측정은,
 methylene blue 필름 : 전자선 20 kGy 에서 150
 -300 keV
 methyl orange 필름 : 전자선 200 kGy 에서 150
 -300 keV
 에 대해서 행했다.

4. 測定結果

着色 PVA 필름을 방사선 照射하면 색깔이 표

백된다. 따라서 방사선 照射에 의해서 색깔이 얼
 마나 변했는가를 알면 흡수선량을 결정할 수 있게
 된다. 색깔이 변한 정도는 spectrophotometer를
 써서 흡광도(optical density)를 측정하면 알 수
 있다.

역사적으로 더듬어 보면, 일찍이 methylene
 blue는 Lavrentovich 등[7]에 의해서 원자로의 γ 선
 및 중성자선을 측정하기 위해서 사용된 바 있다.

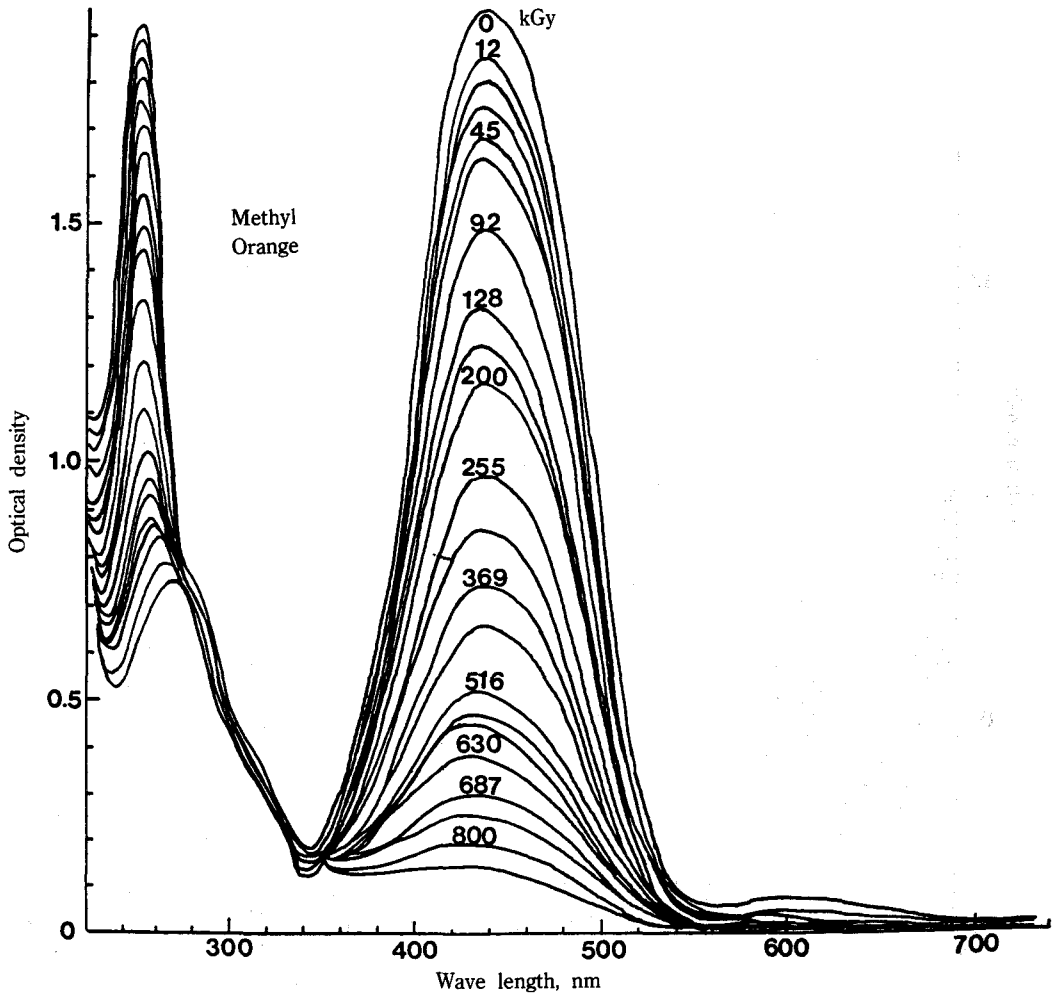


그림 11. methyl orange 필름에 대한 전자선 照射 흡수스펙트럼

그 때, 그들은 0.1-10 kGy 선량범위 내에서 직 선성을 얻었다. 그 후, Chung 등[8]은, methylene blue-PVA 필름을 제작해서 X선의 낮은 선량에 대해서 연구하였다. 또 한편, methylene orange-PVA 필름은 Hübner[9]에 의해서 ^{60}Co γ 선 및 기타 방사선에 대해서 30 kGy까지 照射되었다. 그 때, 그는 흡수스펙트럼의 主 peak가 520 nm, 제 2 peak가 270 nm에 있다고 보고하였다. 그러나, 이 peak 위치들은 본 연구의 결과와 상이하다. 본

연구에서는, methyl orange 필름의 주 peak는 434 nm에 있고, 제 2 peak는 256 nm에 있음을 발견 하였다.

본 연구에서는, ^{60}Co γ 선 照射에 있어서 照射 온도(24°C 및 50°C), 照射습도(34% 및 55%)의 영향을 methylene blue와 methyl orange 필름에 대해서 비교하였다. 또, 3가지 필름 모두에 대해서 fading 효과와 태양직사광선 효과도 관찰해 보았다. 그림 10-12는 각각 methylene blue, methyl

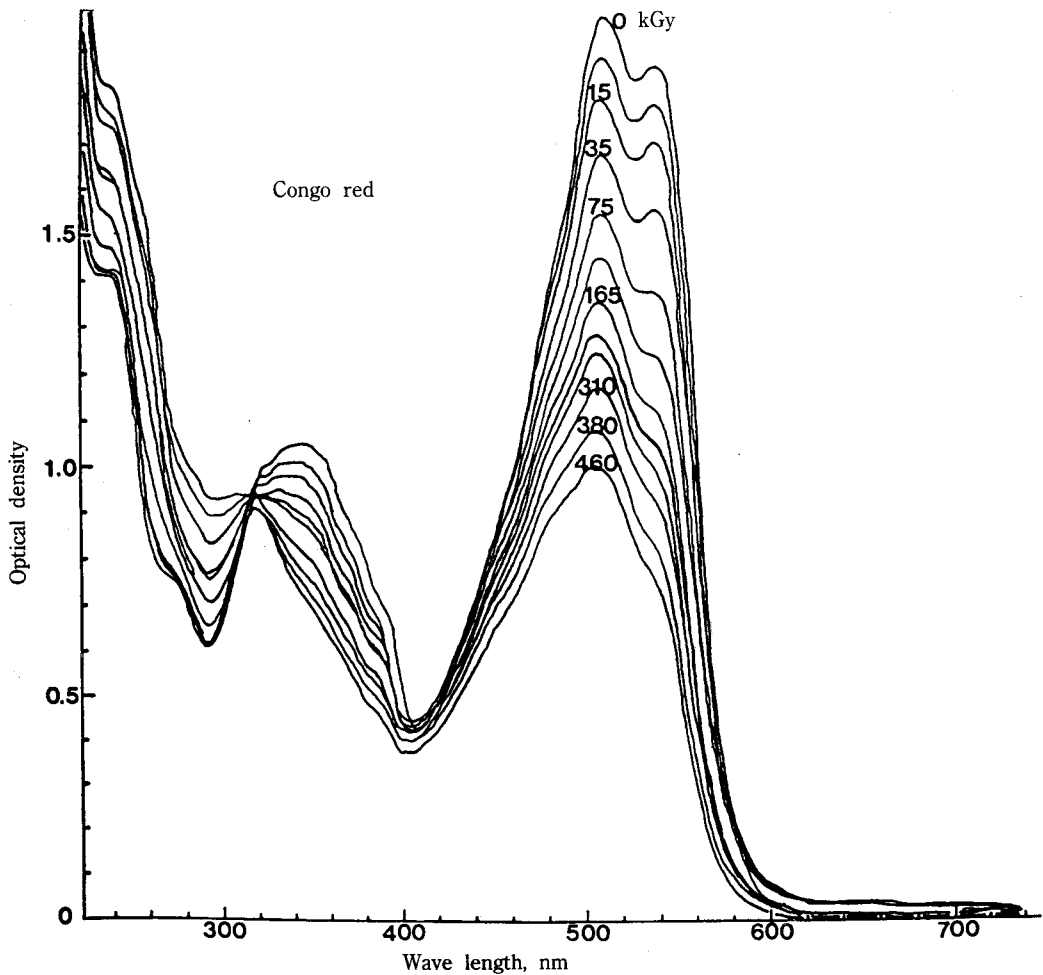


그림 12. congo red 필름에 대한 γ 선 照射 흡수스펙트럼

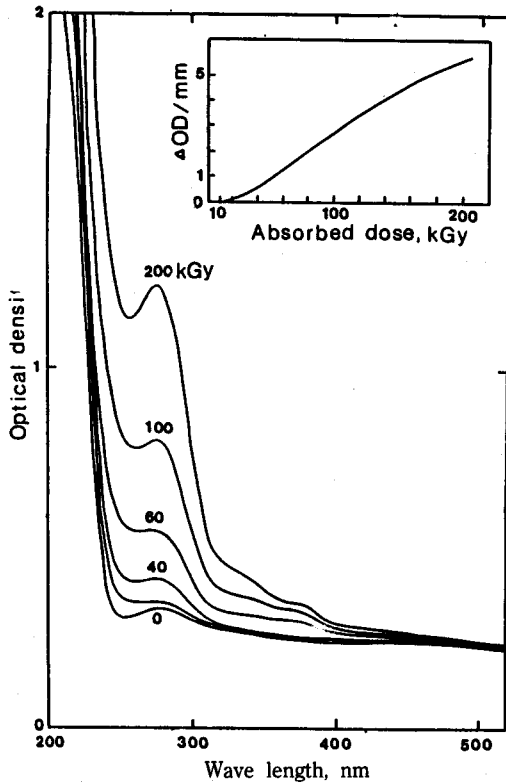


그림 13. 착색되지 않은 순수한 PVA 필름에 대한 γ 선 照射 흡수스펙트럼

orange 및 congo red의 흡수 spectrum을 보여준다.

전술한 바와 같이 그림 10을 보면 methylene blue 필름의 흡수스펙트럼에서 주 peak는 662 nm에, 어깨 peak는 620 nm, 제 3 peak는 294 nm에 나타나 있는데, 이들은 모두 선량과 함께 peak 높이가 감소함을 보여준다. 한편, 260 nm에 있는 제4의 peak는 이들과는 달리 선량에 따라 오히려 증가함을 나타낸다. Lavrentovich 등[9]은 이것을 methylene blue의 leuco base의 형성 때문이라고 생각했는데, 본 저자는 그것이 아니라 PVA 자체에서 야기되는 peak임을 발견했다. 그림 13의 착색되지 않은 PVA의 흡수스펙트럼을 보면, 바로 그 위치에 작은 peak가 나타나 있음을 알 수 있다.

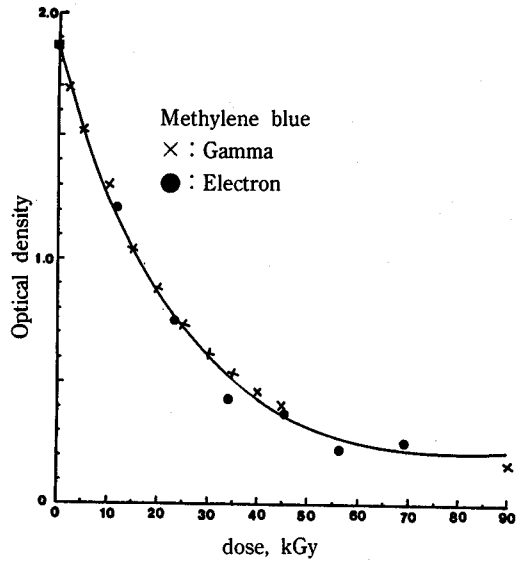


그림 14. methylene blue 필름에 대한 662 nm에서의 γ 선 및 10 MeV 전자선 照射선량응답곡선

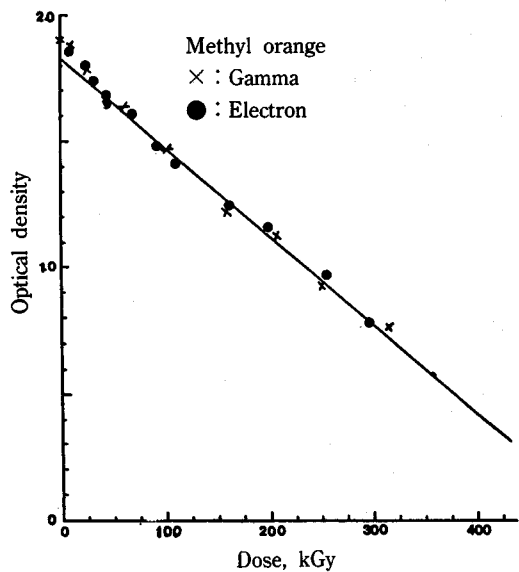


그림 15 methyl orange 필름에 대한 434 nm에서의 γ 선 및 10 MeV 전자선 照射선량응답곡선

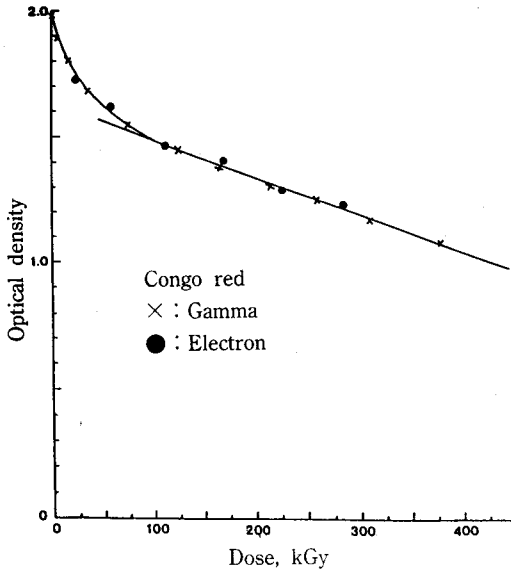


그림 16. congo red 필름에 대한 506 nm에서의 γ 선 및 10 MeV 전자선 照射선량응답곡선

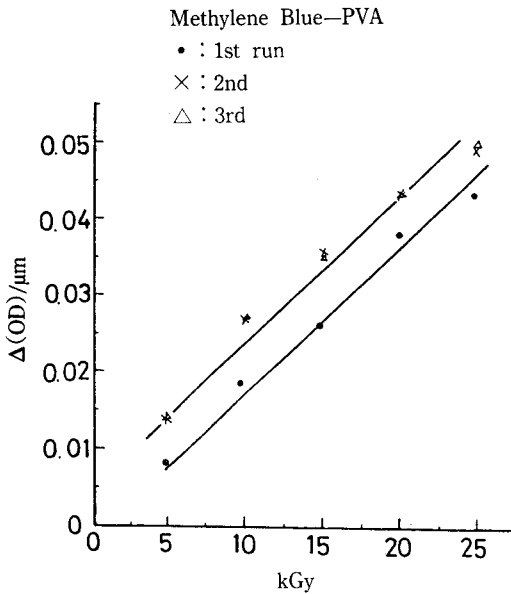


그림 17. methylene blue에 대한 300 keV 전자선 照射선량응답곡선

그림 14-16은 각각 methylene blue[10], methyl orange[10] 및 congo red[11] 필름에 대한 선량 응답곡선을 나타낸다. 그림에서 보는 바와 같이, methylene blue 필름의 662 nm peak에 대한 선량 응답은 40 kGy까지 직선성을 보이고, methyl orange 필름의 434 nm peak에 대한 선량응답은 거의 500 kGy까지 직선성을 보이며, congo red 필름의 506 nm peak는 100 kGy와 500 kGy 사이에서 직선성을 보인다.

그림 17은 methylene blue 필름[12]의 300 keV 전자선에 대한 선량응답곡선을 보여준다. 그림에서 보는 바와 같이, 시료필름은 제조품에 따라 다른 응답성을 보인다. 그러나, 그들 사이에 비례성은 여전히 성립하고 있음을 알 수 있다. methyl orange 필름[12]에 대해서도 비슷한 결과를 얻었다.

그림 18과 19는 각각 methylene blue(20 kGy에서) 및 methyl orange(200 kGy에서) 필름[12]에 대한 전자선 에너지 150 keV~300 keV의 심도선량곡선을 보여준다. 이것은 얇은 필름선량계에서 기대되는 전형적인 분포형을 나타내며, methylene blue 쪽이 비교적 선량분포분산이 적음을 보여준다.

5. 結論

본 연구에서 시료필름들의 fading을 조사해 본 결과, 照射 후 1년 동안 책상 설함에 보관해 두어도 거의 변함없이 일정하게 유지되는 것을 발견하였다. 또 γ 선 照射를 24°C와 50°C의 두 온도에서 실시해 본 결과, 50°C에서의 흡광도가 24°C에서 보다 methylene blue(20 kGy에서)에 대해서는 약 20% 만큼 증가하고, methyl orange(150 kGy에서)에 대해서는 약 2% 만큼 감소하는 것으로 나타났다.

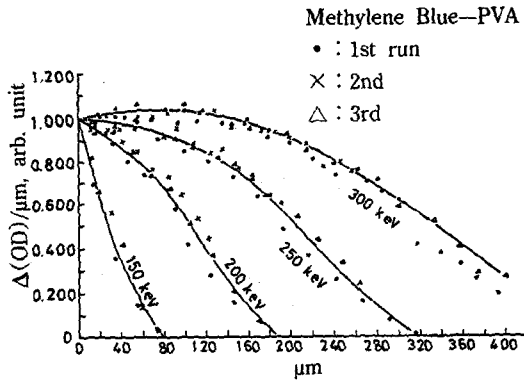


그림 18. methylene blue 필름의 20 kGy 전자선
照射에 대한 150~300 keV 深度線量分布

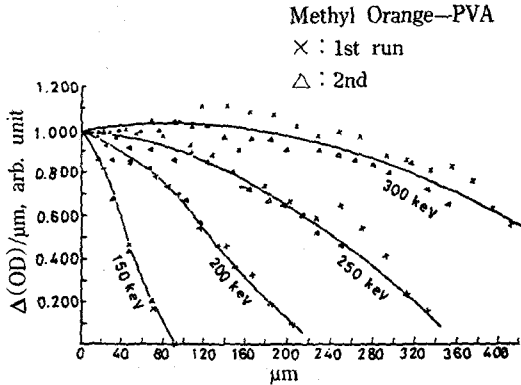


그림 19. methyl orange 필름의 200 kGy 전자선
照射에 대한 150~300 keV 深度線量分布

또 methylene blue(20 kGy에서) 및 methyl orange(150 kGy에서)의 照射 습도영향은 34%와 55%의 두 값에서 조사 비교하였다. 55%에서의 흡광도가 34%에서 보다 methylene blue에 대해서는 7%만큼 감소하였고, methyl orange에 대해서는 4% 만큼 감소하였다.

따라서 위의 결과들을 종합해 보면, 본 연구에서 개발한 착색 PVA 필름 선량계는 다른 필름 선량계와 비교하여 볼 때 비교적 안정성이 있으며, 상당히 넓은 범위에 걸쳐서 직선성을 보이는 것

으로, 실용화하기에 충분한 조건들을 갖추었다고 생각된다. 다만, 필름제조 batch에 따라 재현성에 다소 어려움이 있다는 것이 문제점으로 남는다. 하기는, 제조 batch에 따르는 재현성 문제는 다른 모든 필름 선량계들에도 개재하는 공통적인 난점에 속한다.

끝으로, 공동연구자로서 부분적으로 참여하여 많은 도움을 준, 덴마크 Risoe 국립연구소의 A. Miller, 일본원자력연구소의 小嶋拓治, 부산침례병원 치료방사선과의 金賢姉 제위께, 또 본 연구의 재정적 지원을 해준 국제원자력기구(IAEA)에 심심한 감사를 드리는 바이다.

참고문헌

1. R. Tanaka, S. Mitomo and N. Tamura, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **35**, No. 9, 875 (1984).
2. K. C. Humpherys and A. D. Kantz, *Radiat. Phys. Chem.* **9**, 737 (1977).
3. E. J. Henley and D. Richman, *Analyt. Chem.* **28**, No. 10, 1580 (1956).
4. T. Kojima et al., JAERI-M, 86-137 (1986).
5. A. Miller and A. Kovacs, *Nucl. Inst. Methods B10*, 994 (1985).
6. J. W. T. Spinks and R. J. Woods, *An Introduction to Radiation Chemistry*, John Wiley & Sons (1964).
7. Y. L. Lavrentovich et al., *Soviet Atomic Energy* **19**, 1189 (1965).
8. 정운혁, 김학수, 김현자, 정희태, *대한방사선방어학회지*, **10**, 64 (1985).
9. K. Hübner, *Isotopenpraxis* **7**, 439 (1971).
10. W. H. Chung and A. Miller, *Nuclear Technology* (American Nuclear Society), in press, May, 1994.

11. W. H. Chung, Nuclear Technology (American Nuclear Society), in press, March, 1994.
12. 鄭雲赫, 小嶋拓治, 岡本次朗, Radioisotopes(日本放射性同位元素協會), 掲載中, 1994.