

## Dosimetric Properties of LiF:Mg,Cu,Na,Si TL pellets

Young-Mi Nam, Jang-Lyul Kim, Si-Young Chang

Korea Atomic Energy Research Institute

### LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자의 선량계적 특성

남영미 · 김장렬 · 장시영

한국원자력연구소

(2000년 11월 13일 접수, 2001년 3월 16일 채택)

**Abstract** - Sintered LiF:Mg,Cu,Na,Si thermoluminescence (TL) pellets were developed for application in radiation dosimetry. In the present study, the TL dosimetric properties of LiF:Mg,Cu,Na,Si TL pellets have been investigated for emission spectrum, dose response, energy response, and fading characteristics. LiF:Mg,Cu,Na,Si TL pellets were made by using a sintering process, that is, pressing and heat treatment from TL powders. Photon irradiations for the experiments were carried out using X-ray beams and a  $^{137}\text{Cs}$  gamma source at the Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI). The average energies and the dose were in the range of 20 - 662 keV and  $10^{-6}$  -  $10^2$  Gy, respectively. The glow curves were measured with a manual type TLD reader (System 310, Teledyne) at a constant nitrogen flux and a linear heating rate. For a constant heating rate of  $5\text{ }^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ , the main dosimetric peak of glow curve appeared at  $234\text{ }^\circ\text{C}$ , the activation energy was 2.34 eV and frequency factor was  $1.00\times 10^{23}$ . TL emission spectrum is appeared at the blue region centered at 410 nm. A linearity of photon dose response was maintained up to 100 Gy. The photon energy responses relative to  $^{137}\text{Cs}$  response were within  $\pm 20\%$  at overall photon energy region. The fading of TL sensitivity of the pellets stored at the room temperature was not found for one year.

**Key words** : TL, dosimetry, thermoluminescence, LiF, energy response, fading

**요약** - 최근 개발된 방사선량 측정용 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자의 글로우 곡선, 방출스펙트럼, 광자에 대한 선량의존성, 에너지의존성 및 페이딩 등과 같은 물리적 및 선량계적 특성들을 연구하였다. LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자는 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 분말에 압력을 가한 후 소결하는 방법으로 제조되었다. 방사선에 대한 특성을 알아보기 위하여 광자선 조사는 한국원자력연구소의 X선 발생 장치 및  $^{137}\text{Cs}$   $\gamma$  선 원격조사장치를 이용하였으며, 사용된 광자선 에너지 범위는 20 - 662 keV, 선량 범위는  $10^{-6}$  -  $10^2$  Gy이었다. 글로우 곡선은 수동형의 TLD 판독장치 (System 310, Teledyne)로 질소를 흘리면서 선형적인 가열률로 측정하였으며, TL 강도는 글로우 곡선을 전체 적분한 면적으로 평가하였다.  $5\text{ }^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ 의 선형적인 가열률로 측정된 글로우 곡선은 5개의 피크들로 분리되었으며,  $234\text{ }^\circ\text{C}$ 에 나타나는 주피크의 활성화에너지는 2.34 eV, 진동수인자는  $1.00\times 10^{23}$ 이고, 방출스펙트럼은 410 nm를 중심으로한 단일한 분포로 나타났다. 선량의존성은 100 Gy 이상까지 선형성을 나타내었으며,  $^{137}\text{Cs}$ 에 대한 저에너지 광자의 상대적인 에너지 반응값은 20% 범위 이내였다. 또한 실온에서 1년간 보관하였을 때, 시간 경과에 따른 TL 감도의 감소가 거의 없는 좋은 페이딩 특성을 보였다.

**중심어** : TL, 선량평가, 열형광, LiF, 에너지 반응, 페이딩

## 서론

TL 선량계는 다른 선량계에 비해 크기가 작으면서 방사선에 대한 감도가 높고 재사용이 가능한 누적선량 측정용 선량계로서 개인 및 환경방사선량 측정뿐만 아니라 원자로 환경, 우주선 측정, 연대측정 등의 다양한 분야에서 이용되고 있다. 이 중 LiF 계열 TL 선량계는 유효원자번호가 인체조직과 유사한 조직등가물질로서 광자에너지에 대한 반응특성이 인체와 유사하기 때문에 특히 개인 피폭선량 및 의료용 피폭선량 측정에 많이 사용되고 연구되어왔다.

ICRP 60 권고[1]에서는 선형무발단 (linear non-threshold) 선량 가설에 바탕을 둔 확률적 영향 (stochastic effects)의 발생을 제한하기 위하여, 합리적으로 달성할 수 있는 한 충분히 낮게 (as low as reasonably achievable: ALARA) 선량을 유지하는 것을 요구하고 있다. ALARA 선량을 유지하기 위해서는 저선량 영역인  $10^{-4}$  -  $10^{-1}$  mGy 선량 영역에서 보다 정밀하고 정확한 선량평가를 필요로 하며, 기존의 선량계에 비해 감도가 높은 선량평가 시스템이나 고감도 TL 물질로써 이러한 목적을 달성할 수 있다. LiF 계열 중 가장 먼저 개발된 물질인 LiF:Mg,Ti[2]는 TLD-100으로 상용화되어 낮은 열형광감도에도 불구하고 현재까지 지속적으로 사용되고 있지만, 고감도 TL 물질을 개발하기 위한 노력은 계속되었다. 1978년 Nakajima 등에 의해 TLD-100보다 열형광감도가 약 20배 이상 높은 LiF:Mg,Cu,P[3] TL 물질이 개발되었고, 이 물질을 소자화하여 상용화한 GR-200 (Beijing Radiation Detector Works, 중국), MCP-N (Henry Niewodniczanski Institute of Nuclear Physics, 폴란드) 및 TLD-100H (Bicron/NE, USA) 등이 개발되어, 현재 가장 각광받는 TL 소자로 많은 연구가 진행 중이다[4].

국내에서는 고감도 TLD를 개발하기 위한 꾸준한 노력으로 1989년에 LiF:Mg,Cu,P 물질보다 TL 감도가 높은 새로운 TL 물질인 LiF:Mg,Cu,Na,Si가 개발되었다[5]. 분말형태의 TL물질은 그 자체로도 사용가능하지만, TLD 배지 등의 다양한 용도로 사용하기 위해서는 고형화된 소자로 만드는 것이 필요하다. 최근 한국원자력연구소에서는 분말형태인 이 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 물질을 접착물질의 혼합없이 순수한 TL물질만으로 압축하여 소결하는 소결공정 방법을 사용하여 고형화된 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자를 개발하였다[6]. TL 소자는 소결공정을 거치면서 그 물질구조와 선량

계적 특성이 TL 분말과는 완전히 다른 상태로 변하기 때문에, TL분말과는 독립적으로 TL 소자의 물리적 선량계적 특성 연구가 반드시 수행되어야 한다.

본 연구에서는 한국원자력연구소에서 개발한 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자들의 특성을 연구하였다. 국내에서 개발한 피크분석 프로그램으로 글로우 곡선을 분리하고 주피크에 해당되는 활성화에너지 (activation energy)와 진동수인자 (frequency factor)를 계산하였다. 또 가열온도와 파장을 동시에 변화시키면서 온도와 파장에 대한 3차원 TL 방출스펙트럼을 측정하였다. 그리고 선량측정에 적용하기 위하여 20 - 662 keV 에너지 영역에서 광자선에 대한 에너지의존성과  $10^6$  -  $10^2$  Gy 영역의 광자선 선량에 대한 선량의존성 및 1년에 걸친 저장기간에 따른 페이딩 특성과 같은 선량계적 특성을 조사하여 실제 선량 측정에 적용하기 위한 가능성을 알아보았다.

## 재료 및 방법

LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자들은 TL 분말에 압력을 가하여 디스크형의 분말성형체로 만든 후 소결하는 방법인 소결공정으로 제조되었고, 모양은 직경 4.5 mm, 두께 0.8 mm의 디스크형으로서 하늘색을 띄며 질량은 각각 28 mg이었다[6]. 400 개의 소자를 제조한 후  $^{137}\text{Cs}$  0.01 Gy를 쬐어서 TL 강도를 측정 한 값이 평균값에서 표준편차 5% 범위 안에 드는 TL 소자들을 선택하여 실험에 사용하였다.

LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자들의 TL 강도와 글로우 곡선의 측정은 개인용 컴퓨터로 제어되는 수동형의 TLD 판독장치 (System 310 TLD Reader: Teledyne Brown Engineering)를 사용하였고, 소자 표면의 불순물의 여기에 의한 방사선에 의하지 않은 TL 반응을 줄이기 위하여 10 psi 압력의 질소를 흘리면서  $5\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ 의 선형적인 가열률로 측정하였다.

LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자의 물리적 특성을 알아보기 위하여 시료에  $^{137}\text{Cs}$ , 0.01 Gy를 쬐인 후  $5\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ 의 선형적인 가열률로 글로우 곡선을 측정하고, 피크분석 프로그램을 사용하여 각각의 피크들로 분리한 후 주피크에 대한 활성화에너지와 진동수인자를 계산하였다. TL 방출스펙트럼 측정 장치는 Spex1681 분광기와 광전류 측정장치를 조합하여 제작한 것으로서, 시료를  $0.4\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{s}$ 의 가열률로 실온에서  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 까지 가열하면서 TL 방출스펙트럼을 가열온도와 파장에 대하여 3차원으로 측정

하였다. 이때 파장의 측정은 300 ~ 800 nm 범위에서 6 nm의 간격으로 하였다.

LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자들의 광자에 대한 에너지존성을 평가하기 위하여 가로, 세로가 10 cm인 2 mm 두께의 PMMA판 한가운데에 TL 소자 5 개씩을 배치하고 20 - 662 keV 광자에너지 영역에서 2 mGy의 선량을 쪼였다. X선 에너지 조사는 1.9 mg/cm<sup>2</sup> 두께의 폴리에틸렌 필름으로 TL 소자를 덮은 후 하였으며 <sup>137</sup>Cs에 대해서는 전자평형을 유지하기 위해서 2 mm 두께의 PMMA 판을 덮어서 조사하였다. 광자선은 한국원자력연구소의 <sup>137</sup>Cs 조사장치의 662 keV와 X선 발생장치(HF-75c 및 MG325)를 사용하여 20 - 662 keV 영역의 ISO narrow 계열 선질 8 개와 ANSI 계열 선질 2 개의 X선 에너지를 쪼였다. 광자에 대한 상대적 에너지반응도 f(E)는 식 (1)과 같이 주어진 에너지 E에 의해 부여된 공기커마인 K<sub>E</sub>로 규격화된 TL 관독값 (M<sub>E</sub>)을 기준에너지 <sup>137</sup>Cs에 의해 부여된 공기커마인 K<sub>Cs</sub>으로 규격화된 TL 관독값 (M<sub>Cs</sub>)으로 나누는 값으로 정의된 값으로 평가하였다.

$$f(E) = \frac{M_E / K_E}{M_{Cs} / K_{Cs}} \quad (1)$$

여기서 M<sub>E</sub>, M<sub>Cs</sub>는 TL 측정치이고 K<sub>E</sub>, K<sub>Cs</sub>는 조사장치에 의해 부여된 공기커마이다.

광자선에 대한 선량의존성은 3.7, 185, 3700 GBq의 <sup>137</sup>Cs 조사장치를 사용하여 각각 10<sup>-6</sup>, 10<sup>-5</sup>, 10<sup>-4</sup>, 10<sup>-3</sup>, 10<sup>-2</sup>, 10, 10, 100 Gy의 선량을 쪼여서 조사하였다. 이때 TL 소자들은 <sup>137</sup>Cs에 대한 전자평형을 고려하여 가로, 세로가 10 cm인 2 mm 두께의 PMMA판 가운데에 TL 소자 5 개씩을 배치하였다. 백그라운드 선량부터 100 Gy에 이르는 넓은 분포를 갖는 선량들의 TL 강도를 측정하기 위해서 광전자증배관에 걸어주는 고전압의 이득 (gain)을 변화시키면서 측정한 후 측정값을 이득에 대해 보정한 값으로 평가하였다.

페이딩 특성은 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자 100 개를 <sup>137</sup>Cs 0.1 Gy로 동시에 쪼인 후 실온에서 시료를 저장하였다. 시료들의 TL 강도는 7 개씩을 한 조로하여 저장시간 2 시간부터 약 1 년에 걸친 시간경과에 따라 측정하였다.

## 결과 및 논의

### 글로우 곡선 및 TL 감도

LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자의 글로우 곡선은

LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 분말과 비슷한 모양을 나타내며 TL 감도는 같은 질량의 분말과 유사하였다[6]. 그림 1은 5 °C·s<sup>-1</sup>의 가열률로 320 °C까지 관독한 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자의 글로우 곡선으로 TL 분석 프로그램을 사용하여 각각의 글로우 피크들로 분리한 것이다. 전체 글로우 곡선은 다섯 개의 글로우 피크들로 분리되며 각각 104 °C, 145 °C, 189 °C, 234 °C, 268 °C이다. 이 중 네 번째인 234 °C 피크가 선량평가에 사용되는 주피크이며 분석 프로그램으로 계산한 주피크의 활성화에너지는 2.34 eV, 진동수인자는 1.00×10<sup>23</sup> s<sup>-1</sup>이었다.

### TL 방출스펙트럼

그림 2는 가열온도와 파장의 함수로 나타낸 TL 소자의 3차원 TL 방출 스펙트럼으로 (a)는 TL 방출의 3차원 분포도이고 (b)는 TL 방출의 등고선 분포이다. 글로우 곡선의 주피크에 해당되는 파장은 410 nm를 중심으로 FWHM이 92 nm인 단일한 스펙트럼을 보이며, 저온피크들의 파장은 강도는 낮지만 모두 단일한 410 nm를 중심으로 하는 분포를 보였다. 이는 LiF 계열 TL 물질 중 주피크의 방출 스펙트럼이 410 ~ 460 nm 파장에서 120 ~ 160 nm의 FWHM을 갖는 LiF:Mg,Ti와 유사하고, 같은 LiF 계열이지만 주피크의 방출 스펙트럼이 활성화제 P와 관련된 파장인 370 nm에서 나타나는 LiF:Mg,Cu,P 물질과는 다소 다른 특성을 보인다[7]. LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자의 TL 방출 스펙트럼 분포는 본 실험에서 사용한 TL 관독기의 광전자증배관의 감도 특성이 350 ~ 480 nm 범위에서 민감한 것과 잘 일치하였다.

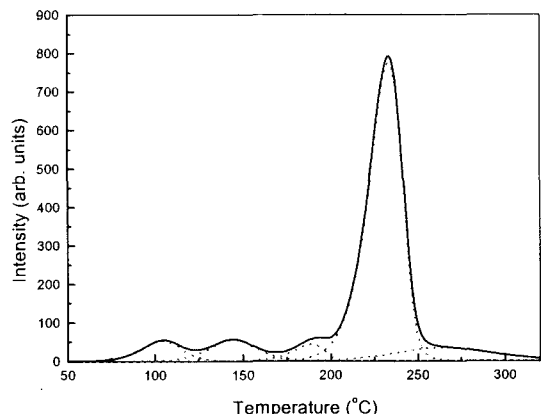


Fig. 1. The typical glow curve of LiF:Mg,Cu,Na,Si TL dosimeters. Dosimeters were readout to 320 °C using linear heating rate (5 °C·s<sup>-1</sup>).

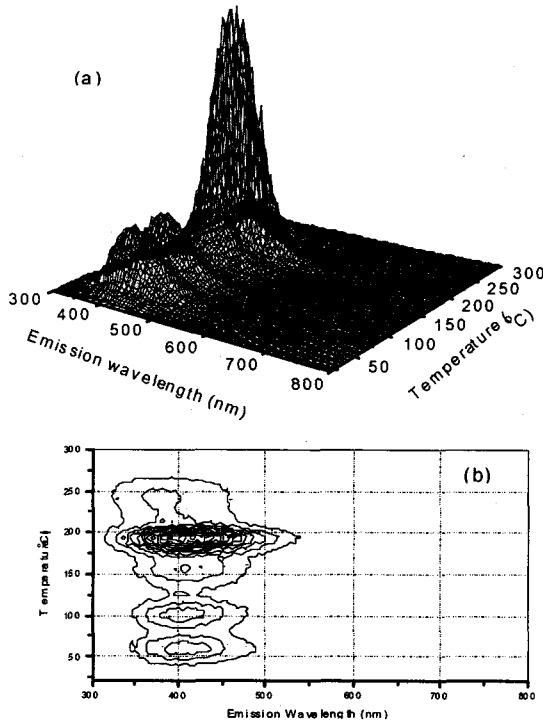


Fig. 2. TL emission spectrum for LiF:Mg,Cu,Na,Si pellets. (a) isometric plot, (b) the corresponding contour plot.

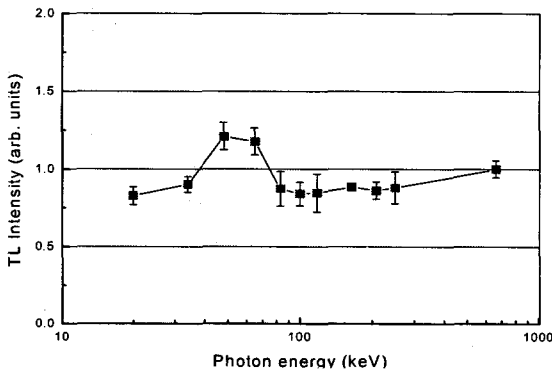


Fig. 3. Photon Energy response of LiF:Mg,Cu,Na,Si pellets.

**에너지 의존성**

그림 3과 표 1에는 <sup>137</sup>Cs 광자선에 대해 규격화한 광자선의 상대적 에너지 반응값, f(E)와 TL 측정값의 표준편차를 나타내었다. 최대값을 갖는 f(E)는 광자에너지 48 keV에서 1.20이고, 전 에너지 구간에 걸쳐서 f(E) 값은 ±20% 범위 내에 속해 있어서 거의 평탄한 분포를 이루고 있다. 따라서 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자로 TL 배지를 제작

Table 1. Relative photon energy response, f(E) for LiF:Mg,Cu,Na,Si pellets. Reference radiation was <sup>137</sup>Cs source.

Beam quality	Mean energy (keV)	f(E) of LiF:Mg,Cu,Na,Si TL pellets
M30	20	0.82±0.06
M60	34	0.90±0.05
N60	48	1.20±0.09
N80	65	1.18±0.09
N100	83	0.87±0.11
N120	100	0.84±0.08
N150	118	0.85±0.12
N200	164	0.88±0.01
N250	208	0.86±0.06
N300	250	0.88±0.10
<sup>137</sup> Cs	662	1.00±0.05

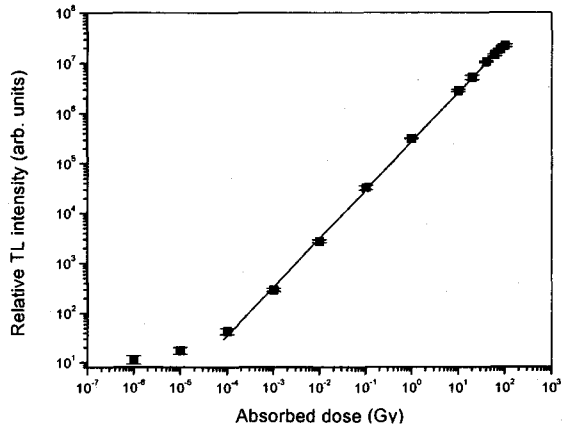


Fig. 4. Dose response for LiF:Mg,Cu,Na,Si pellets.

한다면 에너지의존성을 보상하기 위한 부수적인 필터의 사용없이 거의 평탄한 에너지 반응을 얻는 것이 가능하다.

**선량 의존성**

그림 4에는 <sup>137</sup>Cs 광자선으로 10<sup>-6</sup>, 10<sup>-5</sup>, 10<sup>-4</sup>, 10<sup>-3</sup>, 10<sup>-2</sup>, 10, 1, 10, 100 Gy의 선량을 쪼인 후 선량에 따른 TL 반응값인 선량 의존성을 나타내었

다.  $10^{-5}$  Gy 이하의 저선량 영역에서 글로우 곡선은 백그라운드 선량값이 높기 때문에 정확한 선량 평가를 위해서 보다 정밀한 피크 분리가 필요하다.  $10^{-4}$  - 100 Gy 영역에서 글로우 곡선의 모양은 변형없이 일정한 형태로 나타나며 선형성이 잘 유지되었다.

### 페이딩 특성

LiF:Mg,Cu,Na,Si의 페이딩 특성을 그림 5에 실온에서 보관했을 때 저장시간에 따른 상대적 TL 강도로 나타내었다. 이 시료들의 글로우곡선은 조사 후 2시간부터 저장한 시간에 따라 측정하였고, 상대적 TL 강도는 처음 측정한 값에 규격화하여 나타내었다. 그림에서 보면, 개인피폭선량 평가에 사용하는 TLD 배지 착용기간인 3개월을 기준으로 할 때 5%의 페이딩을 보이며, 시간경과 200

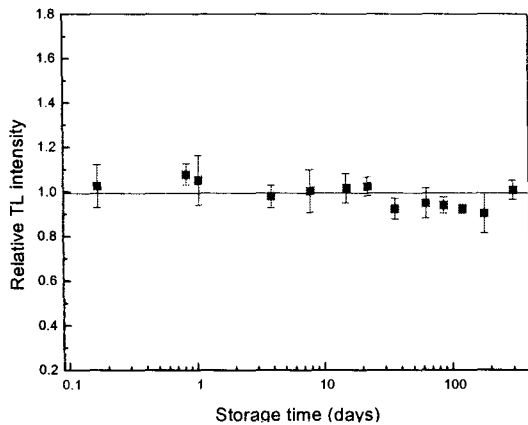


Fig. 5. Fading for LiF:Mg,Cu,Na,Si pellets as a function of storage time.

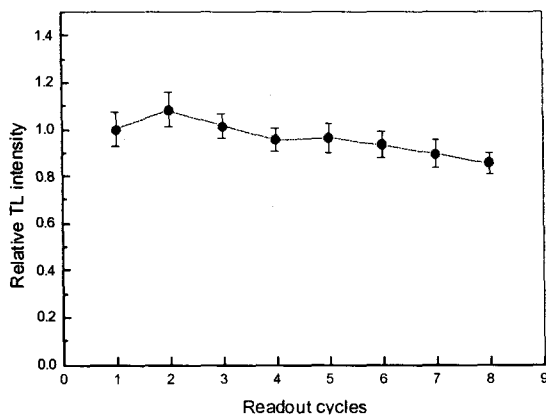


Fig. 6. Reusability of LiF:Mg,Cu,Na,Si TL pellets.

일까지는 TL 강도가 서서히 감소하였다. 그러나 1년째 되는 때의 상대적 TL 강도는 원래의 값을 유지하여 페이딩이 없는 것으로 나타났다, 이러한 결과는 TL 판독장치의 시간에 따른 불안정성에 기인한 것일 수도 있으므로 이를 보상해 줄 수 있는 시간에 따라서도 변하지 않는 기준이 되는 TL 물질이 필요하다.

### 재사용 특성

열처리하지 않은 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자 5개를 임의로 선택하여  $^{137}\text{Cs}$  선원으로 10 mGy를 조사한 후 TL 강도를 측정하는 과정을 반복했을 때 TL 강도의 변화를 조사하여 그림 6에 나타내었다. TL 강도의 측정은  $5\text{ }^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ 의 가열률로 280  $^\circ\text{C}$ 까지 판독하고, 상대적 TL 강도는 첫 번째 측정된 TL 강도에 대해 규격화하여 나타내었다. 첫 번째 측정과 같은 방법으로 방사선 조사와 판독을 8회까지 반복 사용한 TL 소자들의 감도는 약 10% 감소하였다. 개인선량 측정용 TLD 시스템의 PTB 기준에 의하면 20회 재사용시 TL 반응값은 평균값의  $\pm 5\%$  이내여야 한다[8]. 따라서 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자가 이 기준을 만족하는 좋은 재사용 특성을 갖기 위해서는 더 많은 실험을 통해서 좋은 재사용성 특성을 갖는 적절한 열처리 조건과 판독조건을 찾는 노력이 필요하다.

## 결론

LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 분말에 압력을 가한 후 고온 열처리하는 소결공정에 의해 제조된 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자의 글로우 곡선, 방출스펙트럼, 광자에 대한 선량의존성, 에너지의존성 및 페이딩 등과 같은 물리적 및 선량계적 특성들을 연구하였다. 글로우 곡선은 5개의 피크들로 분리되며 234 $^\circ\text{C}$ 에 나타나는 주피크의 활성화에너지는 2.34 eV이며 진동수인자는  $1.00 \times 10^{23}$ 이었고, TL 방출스펙트럼은 410 nm를 중심으로하는 넓게 나타났다. 선량에 대해 선형적인 영역은  $10^{-4}$  Gy부터 100 Gy이며,  $^{137}\text{Cs}$   $\gamma$ 선 에너지에 상대적인 에너지 반응값은 모든 광자에너지에서 20% 범위 이내였다. 실온에서 1년간 저장하였을 때, 시간경과에 따른 TL 소자 감도의 감소가 거의 없는 좋은 페이딩 특성을 보였다. 따라서 본 연구결과로 볼 때 우수한 선량계 특성을 나타내는 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자는 충분히 선량계로서 적용가능하지만 아직 미비한 재사용 특성에 대한 심화된 연구를 필요로 한다.

## 참 고 문 헌

1. ICRP, *1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection*, ICRP Publication 60, Pergamon Press, Oxford, New York(1990).
2. J. R. Cameron, N. Suntharalingam and G. N. Kenney, *Thermoluminescent Dosimetry* University of Wisconsin Press, Madison, Wisconsin(1968).
3. T. Nakajima, Y. Murauama, T. Matsuzawa and A. Koyano, "Development of a New Highly Sensitive LiF Thermoluminescence Dosimeter and Its Applications", *Nucl. Instru. and Methods.* **157** 155-162(1978).
4. D. R. Vij, *Thermoluminescent Materials*, pp. 142-179, PTR Prentice-Hall, New Jersey (1993).
5. 도시홍, 추민철, 정운혁, 김현자, 김도성, 강영호, "LiF(Mg,Cu,Na,Si) 형광체의 제작 및 열형광 특성", *응용물리* **2**(4) 425-431(1989).
6. 남영미, 김장렬, 장시영, 도시홍, "소결공정에 의한 LiF:Mg,Cu,Na,Si TL 소자의 제조", *새물리*, **40**(3) 189-193(2000).
7. S.W.S. McKeever, M. Moscovitch and P. D. Townsend, *Thermoluminescence Dosimetry Materials: Properties and Uses*, pp. 59-61, Nuclear Technology Publishing, England(1995).
8. M. Oberhofer and A. Scharmann, *Applied Thermoluminescence Dosimetry*, pp. 173-175, Adam Hilger Ltd., Bristol(1981).