

감마선에 조사된 중합체의 열자극 전류

추 성 실

(연세대학교 의과대학 방사선과학교실)

요 약

유기중합체의 열자극전류는 방사선량측정기로서 사용가능한 특성을 갖고있으며 중합체의 구성성분이 생체조직과 등가성분이므로 의학 및 생물학분야에서 효과적인 방사선 측정기구로 이용할 수 있었다. 포리에틸렌 등 중합체에 방사선을 조사한후 10~100V의 전압과 실온에서 100°C까지의 온도에 따라 열자극 전류를 측정하고 분석함으로써 물질의 에너지상수(0.8~1.0eV)와 방사선피폭량(수Krad)에 따른 열자극 전류(10^{-2} ~ 10^{-4} μA)의 상호관계를 예측할 수 있었다.

1. 서 론

방사선 치료 및 방어등 방사선과 인간은 밀접한 관계를 갖고 있으며 방사선이 인체에 미치는 영향을 연구하기 위한 모든 수단을 동원하고 있다. 그중에서도 가장 중요한 것이 인체내에서의 방사선 분포와 정확한 측정이며 이를 위해 여러가지 측정기구가 사용되어 왔고 열형광 방사선량 측정기(TLD: Thermoluminescent Dosimeter)의 개발은 의학적인 면에서 크게 각광을 받고 있다.

TLD는 우리나라에서도 이미 수년전에 보급되어 방사선 치료를 위한 선량측정이나 방사선 동위원소의 추적 및 방사선 종사자의 개인 피폭관리에 널리 사용되고 있다. TLD는 그 종류에 따라 선량측정 범위가 10^{-4} rad에서 10^3 rad에 이르며 선량과의 직선성과 에너지에 대한 근소한 의존성, 그리고 열처리(annealing)로서 재생가능한 점이 특히 주목 할만하다.

지금까지 방사선 측정에 사용하던 TLD는 주로 TLD-100(LiF)으로 이루어졌지만 그외에도 CaSO₄(Dy), LiF(Mg), Al₂O₃, CaF₂(Mn), CaF₂, BaSO₄ 등 많은 화합물들이 실용단계에 들어섰고 테프론, PVC, 포리에틸렌 등 유기물질의 일부가 이와 같은 TL(Thermoluminescence) 또는 TSC(Thermally Stimulated Current)의 특성을 가지고 있음이 밝혀졌다.²⁾ 특히 이와같은 유기물질은 국내에서 저렴한 가격으로 다량구입이 가

능하며 인체조직과 등가물질이고 수십 마이크로메타(얇은 종이두께 정도)의 두께로서도 충분히 고선량을 측정할 수 있으므로 인체피부 및 장내선량 등의 측정이 가능하다.³⁾

저자는 이와같은 점에 관심을 두고 25~50마이크로메타의 두께를 가진 포리에틸렌을 사용하여 우선 이들에게 Co-60의 감마선을 조사하고 투여된 선량과 방사선의 종류 및 에너지에 따른 열자극전류(TSC: Thermally Stimulated Currents)를 측정하였으며 고감도 광전관을 이용하여 이들의 의학적 이용가치를 검토한 후 실제 조직등가인 Mix D phantom에 삽입하여 다른 측정기와 비교 검토하였다.

2. 열형광과 열자극 전류

완전 결정화된 고체는 완전 절연체라고 할 수 있으며 여기에 미량의 불순물을 첨가하면 결정체의 격자결함(Lattice Defect)이 생기며 에너지대 모형(Energy band model)에서 trap으로 표시하고 있다. 에너지대 모형에서 낮은 에너지를 갖는 전자들은 가전자대(Valence band)에 묶여 있다가 방사선을 조사하면 에너지를 얻어서 전도대(Conduction band)로 이동하면서 불순물에 의해 생긴 전자트랩(Electron trap)에 포획된다.^{2,4,5,6)}

다시 열을 가하면 Trap에 갇혀 있던 전자들이 에너지를 얻어 움직이게 되는데 이 전류를 열자극 전류

(TSC: Thermally Stimulated Currents)라고 하며 이 전자들이 다시 가진자대로 떨어질 때 이 에너지에 해당하는 냉광을 발산시키는데 이를 열형광(TL: Thermoluminescence)이라고 한다.

TSC 나 TL의 양은 입사 방사선량과 에너지에 따라 변화하기 때문에 방사선량 측정방법에 이용되며 TSC와 TL의 에너지와 파장은 결정체인 물질에 따라 다르다.

저자는 인체 등가물질인 포리에틸렌 등 유기물질이 갖고 있는 이와같은 성질을 이용하여 선량계로 개발하기 위해서 우선 이들의 TSC 성질을 측정하여 보았다.

열자극 전류(TSC)에 대한 이론은 Poole-Frenkel의 전자 재결합 TSC에 근거를 두었으며 그는 일정한 전자의 이동과 전하의 보존법칙을 근거로한 Poisson 방정식을 이용했다.²⁾ 이때 절대온도의 변화에 따른 열자극 전류를 $I(t)$ 라고 하면 다음과 같다.

$$I(T) = senrvF_{\rho} \exp\left\{ \frac{H_0 - \beta F^{1/2}}{KT} - \frac{\nu}{\rho} \int_{T_0}^{T_1} \exp\left(-\frac{H_0 - \beta F^{1/2}}{KT}\right) dT \right\} \quad (1)$$

윗식에서 $T_1 \approx T_0$ 일 때 적분항은 없어지고 이 식을 간단히 정리하면

$$I(T) = C \exp\left(\frac{H_0 - \beta F^{1/2}}{KT}\right) \quad (2)$$

이다. 여기서 $I(T)$ 는 TSC 강도이고 C 는 상수치이며 H_0 는 물질 에너지 상수(Trap depth)이고 $F = V/L$ 는 양면에 가한 전장의 크기이며 β 는 길이에 해당하는 상수이다. 물질의 활성화에너지 H 는 다음과 같이 주어진다.

$$H = H_0 - \beta F^{1/2} \quad (3)$$

식 (2)식에서 TSC의 대수치와 절대온도 T 의 역수와의 관계식에서 H 는 기울기에 해당하며 이 기울기를 양면에 가한 전압 V 에 따라 도시하면 바로 물질의 에너지 상수를 구할 수가 있다.

3. 실험장치

포리에틸렌, 테프론 등 유기화합 물질은 무기화합 물질에 비하여 유연성이 크며 주위 기후조건에 따라 그 성질이 상당히 변화한다.

특히 온도에 대한 감도가 커서 변이온도는 대부분이 100°C 이하이므로 지금까지 사용하고 있던 LiF, CaF₂ 등의 측정전용 Harshaw-3000, TLD Reader를 이용할 수 없었다.

저자는 그림 1과 같이 실험실에서 간단한 장치를 제작하였으며 장치의 구성은 작은 크기의 니크롬선으

로 시료관의 온도를 0°C에서 100°C로 변화시키는 동시에 시료양면에 전압을 0에서 500볼트까지 가변시키면서 이 양단에 흐르는 전류, 즉 TSC를 그림 2와 같이 측정하고 이것으로 입사 방사선량과의 관계를 측정하였다.

방사선 조사는 그림 3과 같이 4000Ci 용량의 Co-60 원격조사 장치를 사용하여 감마선을 분당 10rads에서 500rads씩 가변시키면서 전체선량 1000rads에서 25만 rads씩 조사하였고 흡수된 방사선량은 아래에 설치된 방사선량 측정기에 의해서 사전 측정하였다.

사용한 시료(Sample)는 시중에서 구입한 저밀도 포리에틸렌(LDPE: Low density polyethylene) 필름으로서 두께가 30마이크로미터이며 용융도가 110°C, 밀도가 0.98g/cm³이고 결정화가 약 50%였으며 이를 직경 2cmφ로 절단하고 한면은 알미늄으로 진공증착시켜 전극으로 사용하였다.

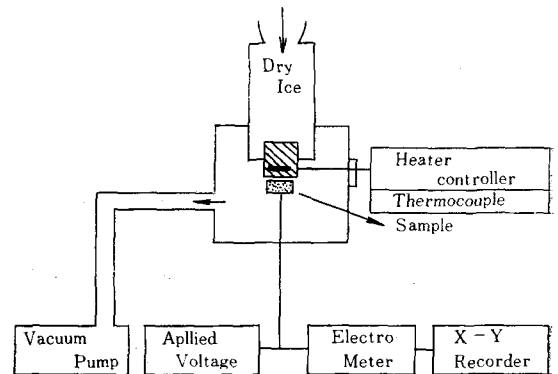


Fig. 1. Block diagram of apparatus for TSC measurement.

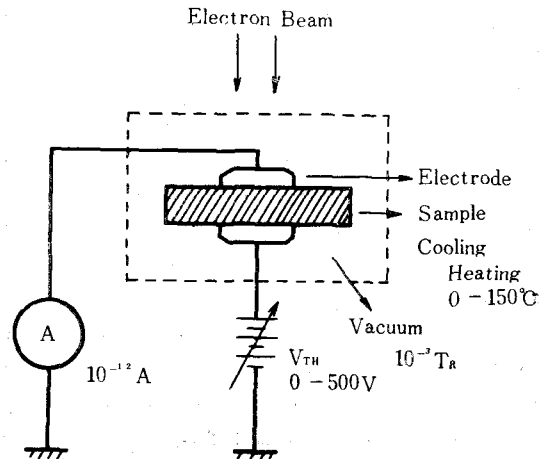


Fig. 2. Experimental circuits for TSC measurement.

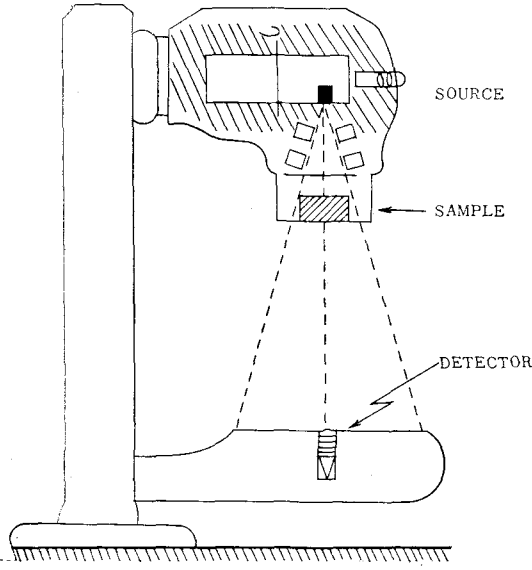


Fig. 3. Irradiation method of gamma ray with Co-60 teletherapy units.

4. 실험 결과

시료의 불순물을 제거하기 위해서 유기물질인 안트라센과 핵산 등으로 처리하였으며 처리된 시료들의 열형광을 측정할 결과 안트라센으로 처리한 것이 방사선

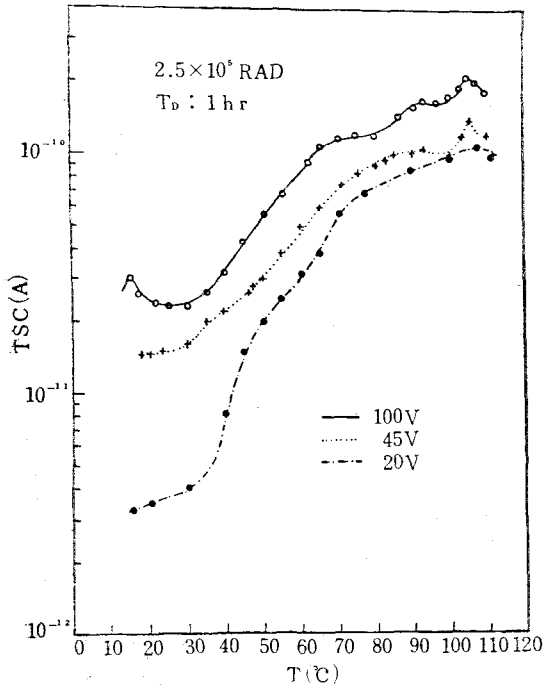


Fig. 4. TSC curve of LDPE, one hour after gamma irradiation

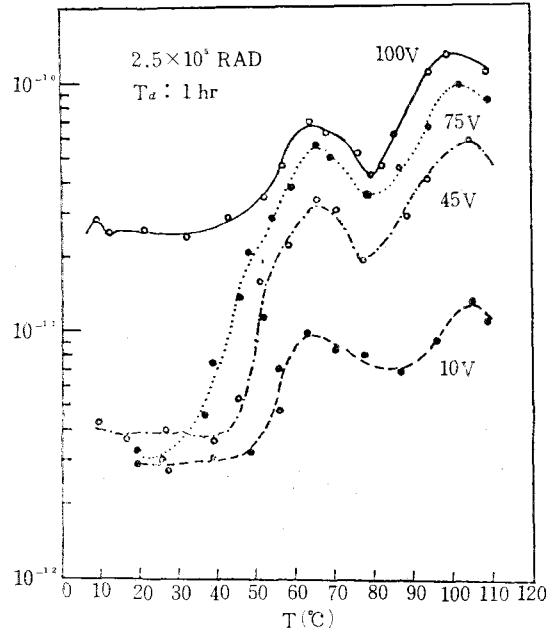


Fig. 5. TSC curve of LDPE three hours after gamma irradiation

형광감도가 양호하였다.

그림 4는 감마선량을 2.5×10^5 rads 조사한 1시간후에 양면의 전압을 각각 20, 45 및 100V로 인가했을 때 측정된 TSC로서 약 65°C와 105°C에서 최고치를 나타냈으며 이때 TSC는 평균 약 10^{-10} A이었다.

또한 Co-60에서 방출되는 감마선을 2.5×10^5 rads 조사한 약 3시간 후에 양면에 전압을 각각, 10, 45, 100V를 가했을 때의 TSC를 측정할 것이 그림 5와 같으며 열판의 온도가 약 65°C와 105°C일 때 최고치를 나타내었으며 이때 TSC는 약 10^{-10} 암페어의 약전류였다. 그림 6은 감마선을 조사한 1시간과 3시간 후의 TSC를 비교한 것인데 TSC의 차는 매우 근소하였다.

그림 7은 안트라센과 핵산을 처리한 저밀도 폴리에틸렌에 감마선을 2.5×10^5 rads 조사한 후 양면의 전압을 45V로 하였을 때 온도에 따른 열자극 전류를 측정할 것인데 안트라센을 처리한 것이 형광량이 더 많고 명백한 최고점을 얻을 수 있다.

그림 8은 상온에서 시간에 따른 TSC의 감쇄곡선을 표시한 것인데 처음 몇시간 동안은 급속히 감소하다가 차츰 감쇄속도가 늦어졌다. 시료물질에 따라 발생되는 열자극 전류의 특성을 알기 위해서는 시료물질의 에너지 상수를 측정해야 하며 이를 위해 그림 9와 같이 Co-60 감마선에 조사된 시료의 최대 전류치를 65°C와 105°C의 최대치에서 전압을 변화시키면서 도서(Plot

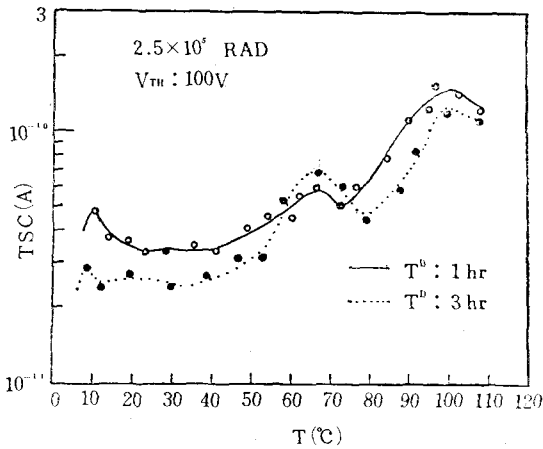


Fig. 6. Comparison of TSC curves measured one and three hours after gamma irradiation

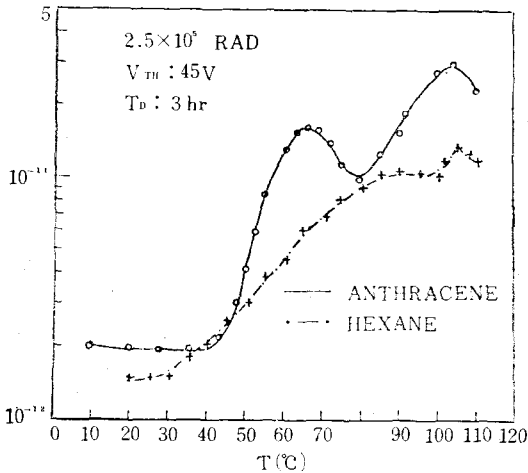


Fig. 7. Comparison of TSC curves for polyethylene that was treated by anthracene and hexane.

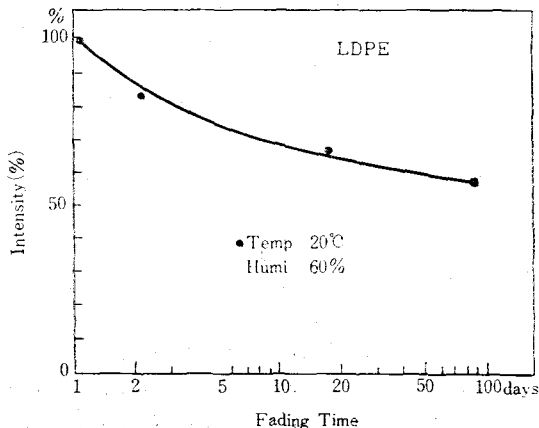


Fig. 8. Fading time for TSC of LDPE with elapsed time after irradiation.

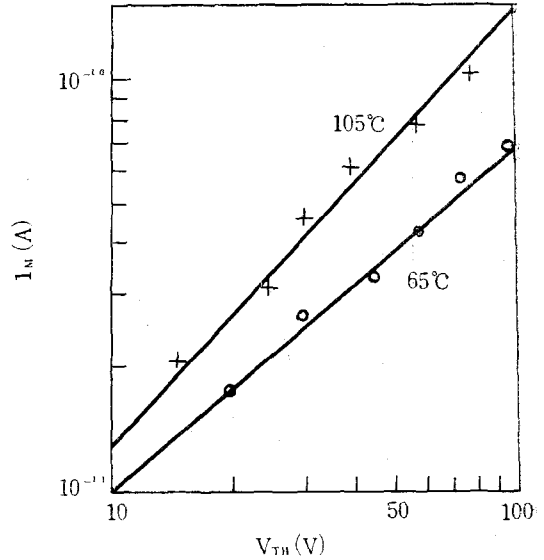


Fig. 9. Peak TSC of gamma-irradiated LDPE with applied voltage and temperature.

ting)하였다.

시료의 에너지 상수를 구하기 위해서는 식(1)을 이용할 수 있으며 온도의 변화가 짧은 초기 최대치 부근에서는 $T \approx T_0$ 이므로 이식의 제 2 항은 무시되어 식(2)와 같게 되며 이 식에서 TSC는 $\exp 1/T$ 에 비례함을 알 수 있다.

그림 10, 11은 Co-60의 감마선에 조사된 시료에서 절대온도 T 의 역수와 각각 65°C 와 105°C 의 최고치 근방에서의 TSC와의 관계를 도시하였으며 이때 기울기가 시료의 에너지 "H" 즉 식(3)과 같다. 그림 12는 Co-60 감마선에 조사된 시료에서 가해진 전압과 시료의 에너지를 표시한 것으로서 이 직선의 절편이 시료의 에너지 상수가 될 수 있고 이때 각각의 에너지 상수는 0.86eV 와 0.98eV 로 한 물질속에서도 몇 개의 trap level이 있음을 보여주고 있으며 이들은 시료로 사용한 물질의 종류와 입사방사선에 따라 다르게 나타났다.

5. 고 찰

유기물질에 대한 막연한 열형광 작용현상은 이미 발표된 바 있지만 물질자체가 물리적 동일성이 약간 결여되어 에너지 상수의 변화가 있으며 LiF 등 금속 또는 비금속 화합물에 비해 감도가 낮아서 이론학적 측정에는 크게 개발되지 못한 실정이다.

그러나 유기물질의 의학적 이용에서는 무엇보다 인체조직과 등가이기 때문에 조직내 선량측정의 정확도가 있으며 1mm 이하의 두께 또는 5mm 이하의 크기를

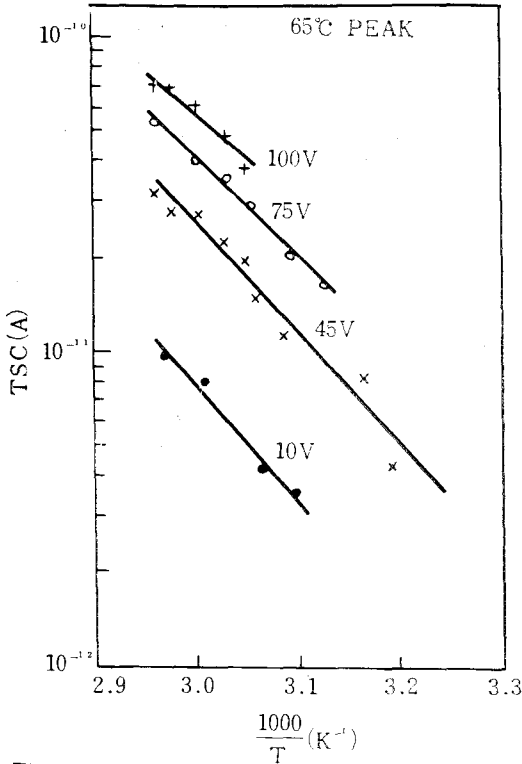


Fig. 10. TSC of gamma irradiated LDPE with reciprocal temperature at 65°C peak.

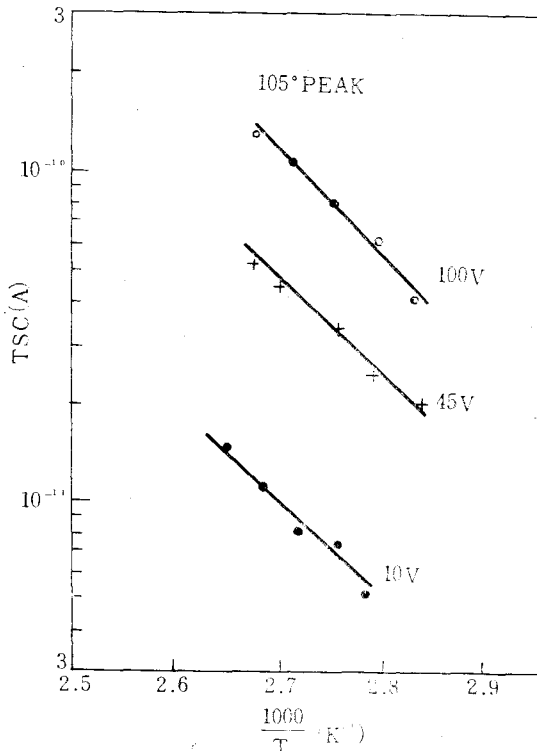


Fig. 11 TSC of gamma irradiated LDPE with reciprocal temperature at 105°C peak.

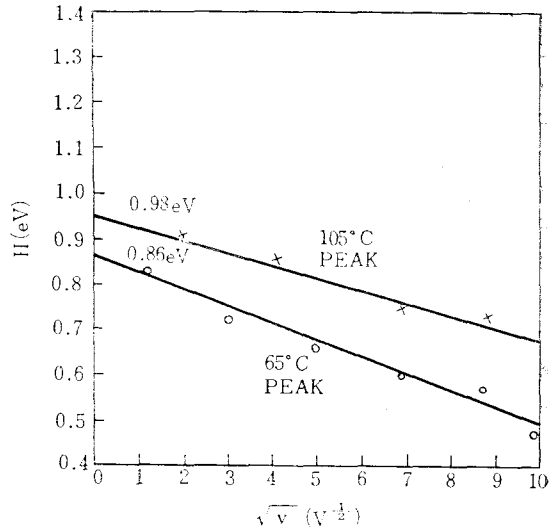


Fig. 12. Activation energy of LDPE with applied voltage.

가질 수 있으므로 인체 피부등에서의 측정이 가능하다.

또한 유기물질은 완전한 결정체로 성장시키기 힘들기 때문에 TSC와 TL의 양성이 매우 복잡하여 같은 종류와 공정을 거친 물질이라도 각각의 성질이 다소 다르므로 일일이 점검을 해야하고 주위 온도와 습도에 따라서 재결합 속도가 빨라지는 단점이 있다.^{8,9)}

저자는 인체 선량측정에 적합하고 이용이 가능한 유기물질을 선택하기 위해서 우선 결정화가 약 50%인 폴리에틸렌을 시중에서 구입하고 각 시료마다 TSC를 측정후 일정한 에너지 상수를 가진 시료만을 선택하여 사용함으로써 선량 오차의 범위를 최대한으로 줄일 수 있었다.

에너지 상수(Trap depth)는 가장 신빙성이 있는 제 2절에서 표시한 Poole-Frenkel의 Trap 전자 재결합 이론에 근거를 두고 측정 제한하였다.^{6,10,11)}

6. 결 론

테프론, 폴리에틸렌 등의 유기물질은 어느 정도의 열형광 작용을 하고 있지만 거의 비정질이고 용융도가 낮아서 금속화합물의 고용용 결정체에 비해 열형광 효율이 저하되고 오차가 많아질 확율이 높기 때문에 이들을 이용한 방사선 측정기의 제작은 거의 무관심해 왔다.

그러나 실험결과와 같이 폴리에틸렌 등 유기물질은 TSC 효과가 있으며 방사선량에 따라 측정전류가 비례하고 감쇄폭선도 거의 완만하여 방사선 탐지기로서의 기능을 하고 있다.

또한 시료를 안트라센 등으로 화학처리함으로써 TSC 효율을 높일 수 있었고 물질상수를 계산하여 균일한 비율의 결정질을 가진 시료만을 선택함으로써 오차내의 정밀 측정이 가능하였다.

그리고 밀도와 구성원소가 인체조직과 같은 유기물질이므로 전신조사 또는 멘틀조사등에 대해 체내 각 부위에 동시 측정이 가능하고 물질성질에 따른 상호보상이 불필요하며 크기를 최소한으로 줄일 수 있기 때문에 피부면 또는 강내 삽입측정이 용이하다.

그러므로 이들의 특성을 계속 실험 연구개발 한다면 생물체에 대한 방사선 측정기로서 상당한 가치가 있으리라고 확신한다.

REFERENCES

1. Cameron J.R. and Kenny G.N.: *Thermoluminescent radiation dosimeter utilizing LiF. Health Phys.* **10**, 1964.
2. Fowler J.F.: *Solid state dosimetry, Phys. Med. Biol.* **8**, 1963.
3. Jacobson L.F. and Knauer I.S.: *Correction factors for tumor dose in the chest cavity due to diminished absorption and scatter in lung tissue. Radiology,* **67**, 863 (1956).
4. Jahnert B.: *The response of TLD-700 thermoluminescent dosimeters to proton and alpha particles. Health Phys.* **23**, 112(1972).

5. Lasky J.B. and Moran P.R.: *Thermoluminescent response of LiF (^{TL}D-100) to 0.1-5KeV electrons. J. Appl. Phys.* **50**, 4951-4957(1979).
6. Law J.: *The dosimetry of low energy X-rays using LiF. Phys. Med. Biol.* **18**, 38(1973).
7. Maeta S.Y. and Sakaguchi K.: *On the determination of trap depth from thermally stimulated currents. J. Appl. Phys.* **19**, 519-526 (1980).
8. Miller A.A.: *Radiation chemistry of polyvinyl chloride. J. Phys. Chem.* **63**, 1755(1967).
9. Nakajima T. and Murayama Y.: *Development of a new highly sensitive LiF-TLD and its applications. J. Rad. Isot.* **28**, 14(1979).
10. Nash A.R. and Attix F.H.: *Proceedings of the third international conference on luminescence dosimetry. Danish Atomic Energy Commission.* 1122(1971).
11. Ruden B.I.: *Evaluation of the clinical use of TLD. Acta Radiol. ther. phys. biol.* **15**, 447-464(1976).
12. Yook C.C.: *Characteristics of TLD and their recent trend. J.K. Asso. Rad. Protect.* **4**, 31-54(1979).

Thermally Stimulated Currents in Gamma Irradiated Polymer

Sung Sil Chu,

Department of radiology and nuclear medicine, College of medicine, Yonsei university, Seoul Korea.

-Abstract-

Thermally stimulated currents of polymers have some properties as radiation dosimetry, especially polymer could be made as a good dosimeter in biological fields because of tissue equivalent material.

We experimented the radiation response of polymers and attempted to apply it in clinical use.

Polymers have the properties of thermoluminescence and thermally stimulated currents which are due to several kinds of charged particles such as dipoles, electronic trapped charges

and mobile ions.

Several peaks are detected in the thermally stimulated currents in polyethylene under bias field V , by heating from room temperature to 100°C shortly after irradiation.

As V increases, both the peak temperature T_m and the activation energy H decreases, while the peak current I_m increases.

We plotted the $T_m - V$ and $I_m - V$ curves and calculated the electron trap depth with the recombination operative TSC theory and compared the peak TSC with radiation doses.