

논문 98-7-5-03

## LiF:Mg,Cu,P TLD의 잠상퇴행과 열처리 특성

도시홍\*, 이우교\*, 유명진\*\*, 강희동\*\*\*, 김도성\*\*\*\*

## Thermal Annealing and Fading Characteristics of LiF:Mg,Cu,P TLD

Sih-Hong Doh\*, Woo-Gyo Lee\*, Myung-Jin Yoo\*\*, Hee-Dong Kang\*\*\*,

Do-Sung Kim\*\*\*\*

## 요 약

LiF에 Mg, Cu, P를 활성화제로 첨가한 고감도의 LiF:Mg,Cu,P TLD를 제작하고, 잠상퇴행과 열처리조건에 따른 열형광 특성의 변화와 재사용성을 조사하였다. 제작한 LiF:Mg,Cu,P TLD는 시판중인 TLD-700(Harshaw Chemical Co.)에 비해 25.3배 열형광 강도가 높았으며, 실온에서 1개월간 보관했을 때는 주 peak의 잠상퇴행이 나타나지 않았고, 100°C에서는 7일 경과 후 50% 정도 열형광강도가 감소하였다. 또한 260 ~ 320°C의 온도 영역에서 열처리에 따른 열형광 특성 변화를 조사하였으며, TLD가 초기의 열형광 강도를 회복하여 재사용이 가능한 열처리 온도와 시간을 각각 280°C, 10분으로 정하였다.

## Abstract

The thermal annealing, reusability and fading characteristics of the highly sensitive LiF:Mg,Cu,P TLDs are investigated. Thermoluminescent sensitivity of the fabricated LiF:Mg,Cu,P TLD is 25.3 times higher than the commercial dosimeter TLD-700(Harshaw Chemical Co.). The main dosimetric peak shows no fading for 1 month at room temperature and 50% for 7 days at 100°C. The thermal annealing characteristics is examined in the temperature range from 260°C to 320°C. For annealing the TLD at 280°C for 10 minutes, TLDs can be reusable by recovering the initial sensitivity.

## 1. 서 론

방사선 작업종사자의 개인피폭선량을 측정하기 위하

여 개인피폭선량계(pocket dosimeter), film badge 및 열형광선량계(thermoluminescent dosimeter, TLD)등이 보편적으로 사용되고 있다. 특히 TLD는<sup>[1,2]</sup> 종래에 가장 많이 사용되어온 film badge를 점차적으로 대체해 가고 있다.

\* 부경대학교 물리학과 (Dept. of Physics, Pukyong National University)

\*\* 고신대학교 의예과 (Dept. of Premedical Science, Kosin University)

\*\*\* 경북대학교 물리학과 (Dept. of Physics, Kyungpook National University)

\*\*\*\* 대구대학교 물리교육과 (Dept. of Physics Education, Taegu University)

<접수일자 : 1998년 8월 5일>

TLD용의 열형광체로서는 유효원자번호가 생체조직과 등가인 LiF, Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, BeO, MgB<sub>4</sub>O<sub>7</sub> 등과 뼈조직과 등가인 CaSO<sub>4</sub>와 BaSO<sub>4</sub>, CaF<sub>2</sub> 등이 많이 연구되고 있으며, 지금까지 개발된 열형광체중에서 TLD로 사용하기 위해 가장 많이 연구되고 사용된 물질은 LiF 계열이다.<sup>[3-6]</sup> LiF를 모체로 한 열형광체는 생체등가 물질이

며 화학적으로 안정하고 다른 생체등가 물질에 비해 잠상퇴행이 매우 적다. 특히 LiF:Mg,Ti(TLD-100, Harshaw Co.)는 방사선에 대한 감도는 비교적 낮으나 조직등가이고 잠상퇴행이 매우 적어 표준 TLD로 가장 오랫동안 사용되고 있다<sup>[7]</sup>. 그러나 LiF 계열은 생체비등가 물질에 비해 열형광감도가 낮아 이를 개선하기 위한 연구가 진행되고 있다. 특히 Nakajima 등<sup>[8]</sup>은 LiF:Mg,Cu에 B, Si 및 P를 활성제로 첨가한 열형광선량계를 제작하였는데, <sup>60</sup>Co  $\gamma$ 선에 대한 열형광감도는 TLD-700에 비해 LiF:Mg,Cu,B와 LiF:Mg,Cu,Si는 약 5~6배, LiF:Mg,Cu,P는 약 23배정도 높았다. 그리고 Shoushan<sup>[9]</sup>은 불순물 Mg, Cu, P의 농도변화에 대한 glow 곡선의 모양을 조사하였고, Zha Ziyang 등<sup>[10]</sup>은 극히 낮은 미약 방사선량 측정에 사용하였으며, 도 등<sup>[11]</sup>은 LiF:Mg,Cu,P 단결정을 제작하여 특성을 조사한 바 있으며, 임 등<sup>[12]</sup>은 LiF:Mg,Cu,P를 테프론으로 고정된 TLD를 제작한 바 있다.

그러나 TLD의 glow 곡선을 구성하는 개개 glow peak의 잠상퇴행은 체계적으로 조사되지 않았고, 특히 TLD의 가장 큰 특징중의 하나인 재사용을 위한 열처리 조건이 명확히 확립되어 있지 않아 이에 대한 연구가 필요하다. 따라서 본 연구에서는 본 연구진에 의해 개발된<sup>[11,12,13]</sup> LiF:Mg,Cu,P TLD의 기본적인 선량계 특성을 조사하고,  $\gamma$ 선을 조사한 후 자외선 조사에 의한 광감수성을 측정하였다. 그리고 실온과 여러 온도에서 열형광 강도가 시간에 따라 변화하는 잠상퇴행과 열처리 조건에 따른 열형광 특성의 변화를 조사하여 TLD를 재사용하기 위한 열처리 조건을 조사하였다.

## II. 실험장치 및 방법

### 1. LiF:Mg,Cu,P 열형광체의 제작

본 실험에 사용한 LiF:Mg,Cu,P 열형광체는 다음과 같이 제작하였다<sup>[11,12,13]</sup>. 먼저 LiF에 활성제로 MgCl<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O를 0.8mol%, CuCl<sub>2</sub>를 0.05mol% 그리고 NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>의 농도를 2.5mol%로 첨가하여 80℃의 이온교환수에 넣고 3시간 동안 혼합하여 건조시켰다. 이 혼합물을 백금도가니에 넣고 200℃에서 2시간 열처리한 후 860℃의 질소분위기에서 30분간 열처리하여 급냉하였다. 이것을 수정 mortar로 분쇄하고 200 mesh의 분말로 만들어 염산과 이온교환수로 충분히 세척한 후 80℃의 건조기에서 2시간 동안 건조시켜 분말형태의

LiF:Mg,Cu,P TLD를 제조하였다.

### 2. $\gamma$ 선 조사 및 측정장치

제작한 LiF:Mg,Cu,P 열형광체에  $\gamma$ 선 조사를 조사하기 위하여 <sup>60</sup>Co 원격조사장치(Buchluer Co.)를 사용하였으며, 그리고 국립보건원에서 교정한 조사선량률계(Capintec, Model 192A)와 전리함(Capintec, Model PS033 및 PR-06C)을 사용하여 IAEA 보고서 No. 277의<sup>[14]</sup> 절차에 따라 선량율을 측정하여 시료에 조사된 방사선의 선량을 측정하였다.

한편, 열형광은 다음과 같이 측정하였다<sup>[11,12,13]</sup>. 백금 planchet에 담은 TLD를 세라믹 열판으로 가열하고 이때 방출되는 TL을 광전증배관(Hamamatsu Co., Model R268)으로 검출하였다. 광전증배관과 시료사이에는 수정필터를 두어 세라믹 열판으로 부터 나오는 열선이 광전증배관에 영향을 주지 않도록 하였다. TL분석기(Top Electronics, Model 2001S)는 광전증배관에 전원을 공급하며 광전증배관으로 부터의 TL신호를 증폭 측정한다. 또한 단위 시간당의 전압증가가 일정한 기울기를 갖는 직류전원을 세라믹 열판에 공급하여 가온율을 조절하고, 열전대(Chromel-Alumel)로부터의 온도신호를 증폭하여 열판의 온도를 측정한다. TL분석기로부터의 온도신호를 X축, TL강도 신호를 Y축으로 하여 X-Y기록기로 glow 곡선을 측정하였으며, 동시에 A/D 변환기를 내장한 개인용 컴퓨터로 glow 곡선을 측정하여 분석하였다.

## III. 결과 및 고찰

### 1. 선량계 특성

그림 1은 본 실험에서 제작한 분말형태의 LiF:Mg,Cu,P 열형광체와 분말형태의 TLD-700에 <sup>60</sup>Co  $\gamma$ 선을 조사한 후 각각 5 mg씩 정량하여 5℃/sec의 가온율로 측정된 glow 곡선으로서 실온에서 300℃ 범위 내에서 4개의 peak를 나타냈는데, 주 peak는 227℃에서, 작은 3개의 peak는 각각 126, 177, 267℃에 위치하였다. 그리고 본 실험에서 제작한 LiF:Mg,Cu,P의 주 peak의 열형광 강도는 TLD-700에 비해 약 25.3배 높았다. 또한 제작한 LiF:Mg,Cu,P는 10 mGy ~ 10 Gy의 넓은 선량범위에서 선형적인 선량의존성을 나타내었다<sup>[12]</sup>.

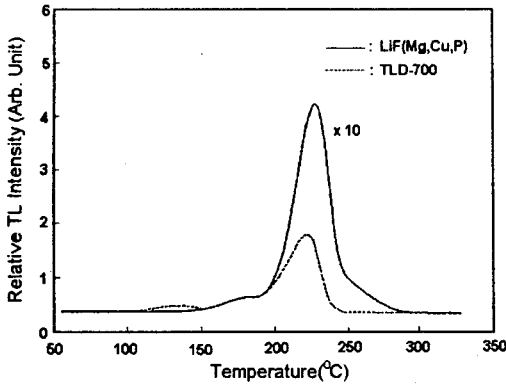


그림 1. (a) LiF:Mg,Cu,P와 (b) TLD-700의 glow 곡선  
Fig. 1. Glow curves of (a) LiF:Mg,Cu,P and (b) TLD-700 .

2. 광감수성 측정

그림 2는 <sup>60</sup>Co  $\gamma$  선을 10 mGy 조사한 LiF:Mg,Cu,P TLD에 자외선을 조사하였을 경우 빛의 영향을 측정한 결과이다. 그림에서 알 수 있듯이  $\gamma$  선을 조사한 TLD에 약 200 lux의 자외선을 조사하면 peak 2는 약 45분간 조사했을 때 완전히 사라지고, peak 3은 자외선 조사에 크게 영향을 받지 않고 약 12% peak 강도가 감소하였다. 이때 자외선 조사는 Nikon사의 Super high pressure mercury lamp를 사용하였다.

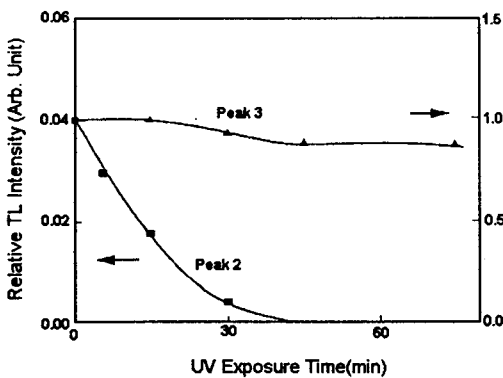


그림 2. 감마선을 조사한 LiF:Mg,Cu,P TLD의 자외선에 대한 감수성  
Fig. 2. Effect of UV light on the gamma-ray irradiated LiF:Mg,Cu,P TLD

3. 잠상퇴행 특성

그림 3은 LiF:Mg,Cu,P를 <sup>60</sup>Co  $\gamma$  선으로 조사한 직후

측정한 열형광 강도와 실온에서 일정시간 동안 저장한 후 측정된 열형광강도와의 상대적 비를 측정한 결과이다. 그림에서 알 수 있듯이 peak 1은 실온에서 10일간 보관한 경우 완전히 감소하였고, peak 2는 25일간 보관한 경우 초기 열형광 강도의 약 30%가 감소하였으며, peak 3의 열형광 강도는 30일 경과후에도 거의 변하지 않았다.

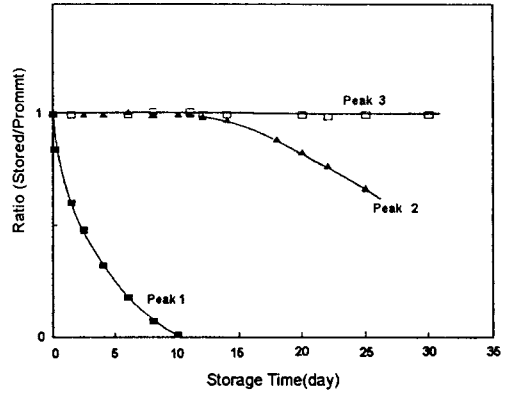


그림 3. 실온에서의 LiF:Mg,Cu,P TLD의 잠상퇴행 특성  
Fig. 3. Fading characteristics of LiF:Mg,Cu,P at room temperature.

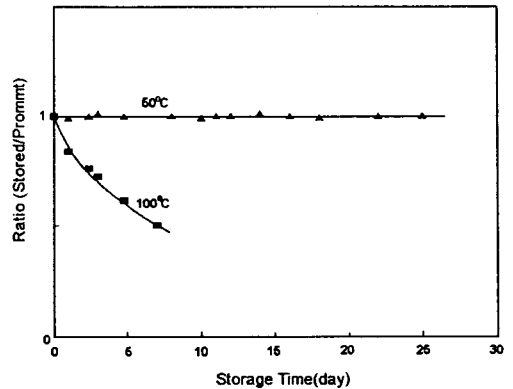


그림 4. (a) 50°C, (b) 100°C에서 측정된 LiF:Mg,Cu,P TLD 주 peak의 잠상퇴행 특성  
Fig. 4. Fading characteristics of the main peak of LiF:Mg,Cu,P TLD at (a) 50°C and (b) 100°C

또한 그림 4는 50°C와 100°C에서 TLD를 두었을 때 주 peak의 열형광 강도의 감소를 측정한 것이다. LiF:Mg,Cu,P 열형광체의 주 peak는 50°C에서 25일간 보관했을 경우에는 거의 감소하지 않았고, 100°C에서 1

주일간 보관했을 때 약 50% 감소하여, 비교적 높은 온도에서도 잠상퇴행이 적게 나타났다.

4. 열처리 특성

일반적으로 열형광선량계의 장점 중의 하나는 여러 번 재사용할 수 있다는 것이다. 그러나 열형광선량계는 열처리과정에 따라 glow 곡선의 모양이 달라진다. Nakajima 등<sup>[15]</sup>은 LiF:Mg,Cu,P 열형광체를 TL 관독장치로 읽은 후 250°C에서 10분간 열처리하면 peak의 온도와 열형광 강도가 크게 변하지만 한번 더 250°C에서 10분간 열처리하면 원래의 glow 곡선의 모양과 열형광 강도가 회복됨을 보고하였다. 그리고 Chandra 등<sup>[16]</sup>은 LiF:Mg,Cu,P 열형광체를 250°C에서 15분간 열처리하여 원래의 열형광강도를 얻었다. 그림 5는 본 실험에서 제작한 LiF:Mg,Cu,P 열형광체를 260~320°C의 온도 범위에서 10°C 간격으로 10분간 열처리했을 때 glow 곡선의 변화를 나타내며, 그림 6은 동일 온도 범위에서 peak 1, 2, 3 및 4의 높이 변화를 측정한 것이다. 그림 6에서 알 수 있듯이 열처리 온도가 증가하면 주 peak의 강도는 증가하다가 다시 감소하지만, peak 1, 2 및 4는 열처리 온도가 증가함에 따라 감소한다. 이때 주 peak가 초기의 열형광 강도를 회복하는 온도는 280°C였다.

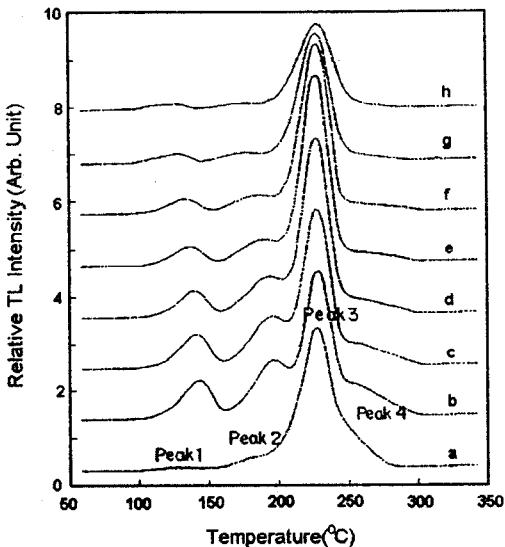


그림 5. 열처리에 따른 LiF:Mg,Cu,P TLD의 Glow 곡선의 변화

Fig. 5. Effect of annealing treatment on the glow curve structure of LiF:Mg,Cu,P TLD

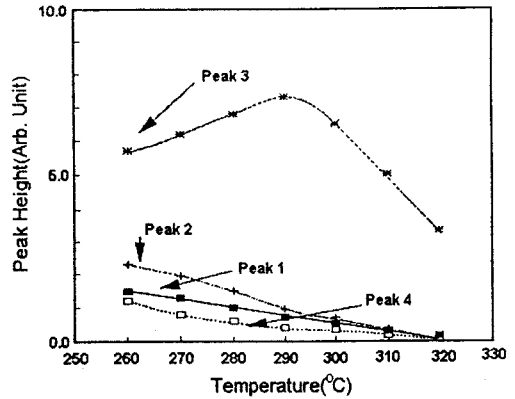


그림 6. 10분간 열처리 할 때 열처리 온도에 따른 LiF:Mg,Cu,P glow peak의 강도 변화

Fig. 6. Peak heights of LiF:Mg,Cu,P as a function of annealing temperature for a 10 min anneal.

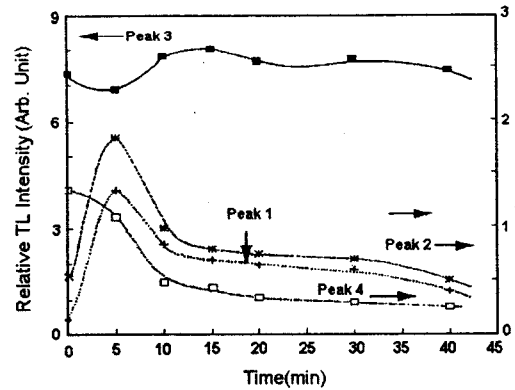


그림 7. 280°C에서 열처리할 때 열처리 시간에 따른 LiF:Mg,Cu,P glow peak의 강도변화

Fig. 7. Peak heights of LiF:Mg,Cu,P as a function of annealing time at 280°C anneal

그림 7은 280°C에서 열처리 시간을 5분에서 40분까지 변화시켰을 때 peak 1, 2, 3 및 4의 열형광 강도의 변화를 측정한 것이다. 그림에서 보는 바와 같이 peak 1, 2의 강도는 급속히 증가하다가 감소하는데 10분 이후부터는 천천히 감소한다. peak 3의 경우 열처리 시간이 증가함에 따라 열형광 강도가 감소하다가 다시 증가하는 데 열처리 시간이 15분 이상에서는 감소율이 둔화되는 경향을 나타내었다. 따라서 열형광 강도와 glow 곡선의 모양을 고려할 때 본 실험에서 제작한

LiF:Mg,Cu,P TLD를 재사용하기 위한 열처리 온도와 시간을 280°C, 10 분간으로 선정하였다.

### 5. 재사용성

그림 8은 LiF:Mg,Cu,P 열형광체의 재사용성을 나타낸 것이다. 재사용하기 위해 매회 280°C에서 10분간 열처리했을 경우 6회까지 재사용하더라도 열형광강도가 일정하였다. 그러나 6회 이후부터 열형광강도가 서서히 감소하였고, 10회 열처리 했을 경우 열형광 강도는 초기 열형광 강도의 12% 정도 감소하였다. 그러나 재사용 횟수가 증가하더라도 glow 곡선의 모양이나 시료 색깔의 변화는 나타나지 않았다.

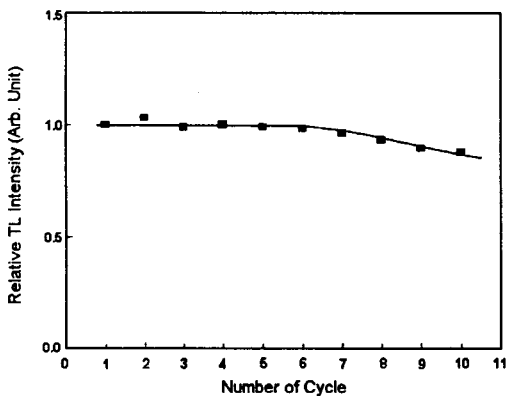


그림 8. LiF:Mg,Cu,P의 재사용성

Fig. 8. Reusability of the LiF:Mg,Cu,P TLD

## IV. 결 론

생체등가 물질인 LiF에 활성제로 Mg, Cu, P의 농도를 각각 0.8, 0.05 및 2.5mol%를 첨가하여 고감도의 LiF:Mg,Cu,P 열형광체를 제작하였는데, LiF:Mg,Cu,P TLD의 주 peak 강도는 시판중인 TLD-700에 비해 25.3배 높았으며, 10 mGy ~ 10 Gy의 선량범위에서 선형적인 선량의존성을 나타내었다.

$\gamma$  선을 조사한 시료에 자외선을 조사한 경우 주 peak의 열형광강도는 약 12% 감소하였다. 그리고 실온에서 1개월간 시료를 보관했을 때 주 peak의 변화는 관측되지 않았고, 100°C에서 보관했을 때는 7일 경과 후 초기 열형광 강도의 50%정도가 감소하였다. 또한 재사용을 위한 열처리 조건을 조사하기 위하여 260 ~ 320°C에서 10분간 열처리 하였을 때 열형광 특성의 변화를 조사한 결과, 초기 열형광 강도를 회복하는 재사

용 열처리 온도와 시간을 각각 280°C, 10분으로 정하였으며, 열형광체를 10회 열처리 했을 경우 열형광강도는 12% 정도 감소하고 glow 곡선의 모양은 변화하지 않았다.

이상의 결과로 볼 때 본 실험에서 제작한 LiF:Mg,Cu,P 열형광체의 특성은 방사선량 측정, 개인 피폭 선량평가 및 환경방사선 측정 등의  $\gamma$  선 선량 측정의 기초 자료로 활용될 수 있을 것으로 사료된다.

## 참고문헌

- [1] K. Mahesh, P. S. Weng and C. Furetta, "Thermoluminescence in Solids and Its Applications" (Nucl. Tech. Pub., Ashford, 1989), Chap. 8.
- [2] A. S. Pradhan, Rad. Protec. Dosim., 1(3), 153 (1981).
- [3] S. Lorrain, J. P. David, R. Visocekas and G. Marinello, Rad. Protec. Dosim., 17, 385 (1986).
- [4] Y. S. Horowitz and S. Freeman, Nucl. Instru. Meth., 157, 393 (1978).
- [5] S. S. Glickstein, Health Phys. 44(2), 103 (1983).
- [6] G. Venkataraman, M. P. Dhairyawan and O. P. Massand, Rad. Protec. Dosim., 8(3), 181 (1984).
- [7] M. Oberhofer and A. Scharmann, "Applied Thermoluminescence Dosimetry", Adam Hilger Ltd., Bristol (1981).
- [8] T. Nakajima, Y. Murayama, T. Matsuzawa and A. Koyano, Nucl. Instrum. Meth., 157, 155 (1978).
- [9] W. Shoushan, Rad. Protec. Dosi., 25(2), 133 (1988).
- [10] Z. Ziyang, W. Shoushan, W. Fang, C. Guolong, L. Yuanfang and Z. Jianhuan, Rad. Protec. Dosi., 17, 415 (1986).
- [11] 도시홍, 손용기, 김도성, 강영호, 이동명, 새물리, 29(2), 177 (1989).
- [12] 임령화, 강희동, 김도성, 새물리, 33(5), 523 (1993).
- [13] 도시홍, 김도성, 강영호, 응용물리, 2(1), 18 (1988).
- [14] IAEA Technical Reports Series No. 277 (IAEA, Vienna, 1988).

[15] T. Nakajima, Y.Murayama and T.Matsuzawa,  
Health Phys. 36, 79 (1979)

[16] B. Chandra, A. R. Lakshmanan, R. C. Bhatt and  
K. G. Vohra, Rad. Protec. Dosi., 3(3) 161(1982).

著 者 紹 介

도시홍

『센서학회지 제3권 제2호』 논문 94-3-2-02, p11 참조  
현재 부경대학교 자연과학대학 물리학과 교수

이우교

『센서학회지 제7권 제4호』 논문 98-7-4-02, p234 참조  
현재 부경대학교 대학원 물리학과 박사과정

강희동

『센서학회지 제1권 제1호』 논문 92-07, p59 참조  
현재 경북대학교 자연과학대학 물리학과 교수

김도성

『센서학회지 제1권 제1호』 논문 92-07, p59 참조  
현재 대구대학교 사범대학 물리교육과 교수



유명진

1985년 2월 부산대학교 물리학과  
졸업

1988년 2월 부산대학교 대학원 물  
리학과 졸업(이학석사)

1992년 2월 경성대학교 대학원 물  
리학과 졸업(이학박사)

1992년 9월 - 현재 고신대학교 의예과 조교수