

Evaluation of Applicability of Perovskite Dosimeter based on CsPbBr₃ Material to Quality Assurance in Radiation Therapy

Seung-Woo Yang¹, Sung-Kwang Park^{2,*}

¹Department of Radiation Oncology, Collage of Medicine, Inje University

²Department of Radiation Oncology, Busan Paik Hospital, Inje University

Received: March 28, 2022. Revised: May 25, 2022. Accepted: June 30, 2022.

ABSTRACT

In radiation therapy, accurate Quality Assurance (QA) is required to irradiate tumor tissue while minimizing damage to normal tissue. Therefore, a dosimeter that can accurately measure radiation is needed. The purpose of this study is to develop a highly efficient radiation dosimeter with high sensitivity by applying a particle in binder method that can reduce manufacturing costs and simplify processes to perovskite materials that are cheaper and simpler to manufacture. By evaluating the response characteristics to high-energy photon, the applicability of QA dosimeter to radiation therapy was evaluated. As a result of reproducibility evaluation, RSD at 6 MV energy was presented as 1.178% and 15 MV energy was presented as 1.141%. As a result of linearity evaluation according to linear regression analysis, R² values of 0.9999 were presented under each condition of 6 MV and 15 MV energy. It was found that the CsPbBr₃ dosimeter manufactured based on the results of reproducibility and linearity evaluation is highly applicable as a QA dosimeter in the field of therapeutic radiation. The CsPbBr₃ dosimeter manufactured in this study presented more than the standard performance in the evaluation of reproducibility and linearity, and it can be used as a radiotherapy QA dosimeter through improvement.

Keywords: Radiotherapy, Dosimeter, Quality assurance, Perovskite, CsPbBr₃

I. INTRODUCTION

방사선치료는 종양조직에 방사선을 조사하여 종양의 증식을 억제하고 죽이는 치료방법이다. 이러한 방사선치료에서는 정상조직에 대한 피해를 최소화하면서도 종양조직을 죽이기 위하여 정확한 정도관리 품질 보증이 요구된다. 이를 위해서는 치료 방사선을 정확하게 측정할 수 있는 선량계가 요구되며, 임상에서는 정확한 측정을 위하여 이온챔버와 다이오드 검출기 등이 사용되고 있다.

최근에는 복잡한 측정 절차를 간소화하고 더 정확한 선량을 측정하기 위하여 턴스텐산칼슘(CaWO₄), 터븀(Tb)이 도핑된 가돌륨옥시설파이드(Gd₂O₂S:Tb, GOS)등을 증감지로 활용하는 간접측정

방식의 검출기와 텔루르화 카드뮴(CdTe), CZT(Cd_{1-x}Zn_xTe) 화합물, 실리콘(Si), 요오드화수은(HgI₂), 요오드화납(PbI₂), 브롬화탈륨(TlBr)등을 활용한 직접방식 검출기들이 선량계로 연구되어 지고 있지만 고가의 원자재, 복잡한 제조공정, 높은 제조단가 등의 문제들이 남아있는 실정이다^[1-5].

근래에 연구되고 있는 물질 중 페로브스카이트는 기존 사용되는 물질보다 비교적 저렴하고 제조공정이 간단하여 기존 물질들을 대체할 수 있기 때문에 다각적인 연구가 이루어지고 있는 물질이다. 이러한 페로브스카이트는 ABX₃의 구조체로 되어 있는 물질들을 말하며 A는 유기 양이온, B는 금속 양이온, X는 할로겐화물 또는 산화물로 이루어지며, 높은 광전효율로 인해 태양 전지에서 활발히

* Corresponding Author: Sung-Kwang Park E-mail: Physicist@paik.ac.kr

Tel: *** - **** - ****

연구되고 있다. 연구에 활발히 이용되는 물질로는 각각 A는 Cs, MA(메틸 암모늄 이온), FA(포르마미디늄 이온) 등이 B는 Pb, Sn 등이 X는 I, Br, Cl 등이 사용된다^[5,6].

페로브스카이트는 밴드갭 조절이 용이하고 높은 전하 캐리어 밀도를 가지고 있으며, 압전성, 초전도성, 강유전성, 큰 자기저항을 가지며, 동일한 조성의 모체물질이라도 결정구조나 전자구조 그리고 입자의 기하학적인 형태에 따라 광학적 특성이 변화하고 중금속과 할로겐화물 이온들이 포함되어 있기 때문에 고에너지 방사선을 효율적으로 흡수할 수 있어 이상적인 X-선 광전도체로서의 역할을 수행할 수 있다^[5].

본 연구에서는 위와 같이 다양한 특성을 보이는 페로브스카이트 물질에 제조단가를 낮출 수 있고 공정을 간소화 시킬 수 있는 particle in binder (PIB) 방법을 적용하여 고효율의 방사선 선량계를 개발하고자 하였으며, 고에너지 광자선에 대한 반응특성을 평가함으로써 방사선치료분야에 정도관리 품질 보증 선량계로 적용 가능한지 적용가능성을 평가하였다.

II. MATERIAL AND METHODS

1. Fabrication

본 연구에서는 실제 X선 검출기 연구에 활용되고 있는 페로브스카이트 물질인 CsPbBr₃을 실험에 사용하였으며, PIB 방법에 적용하기 위하여 분말 형태로 제작하였다. CsPbBr₃ 분말을 제작하기 위하여 페로브스카이트 전구체용 CsBr (Merck, Sigma-Aldrich, 독일)와 PbBr₂ (TCL, Tokyo Chemical Industry Co., Japan) 물질을 다이메틸설폭사이드(Dimethyl sulfoxide; DMSO) 용액에 각각 용해하여 0.1 mol의 용액을 생성하였다. 생성된 각각의 0.1 mol 용액을 2시간 동안 교반시켜 주며 양금이 생성되도록 하였다. 잘 교반된 혼합물을 150도의 판에 떨어뜨리고 용액을 증발시켜가며 CsPbBr₃ 분말을 생성하였다. Fig. 1은 CsPbBr₃ 선량계 제작 모식도이다.

방사선흡수층을 제작하기 위하여 CsPbBr₃ 분말에 폴리머 바인더를 중량비 1:1로 혼합하여 PIB 방

법을 적용하였습니다. 이후, Three roll mill 공정을 수행하여 고르게 혼합된 겔로 제작하였습니다.

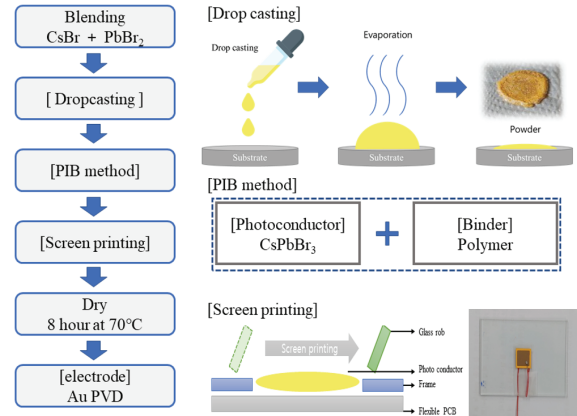


Fig. 1. CsPbBr₃ dosimeter manufacturing schematic.

혼합된 겔을 1 cm × 1 cm의 틀을 형성된 하부전극 ITO (Indium Tin Iodide) 유리에 screen printing 방법으로 도포하고 70°C 온도에서 8시간동안 건조하여 방사선 흡수층을 형성하였다. 마지막으로 상부전극을 형성하기 위해 99.999% 순도의 금(Sigma Aldrich Inc. U.S.A.)을 물리적 기상 증착 공정 (Physical vapor deposition; PVD)을 통하여 증착하였다. 본 연구는 기초 연구단계로써 제작 공정 재현성의 차이를 보일 수 있다. 그러므로 동일하게 제작된 5개의 샘플에서 잡음 대비 신호가 우수한 1개의 센서를 채택하여 측정을 진행하였다.

2. Experimental Set-up

제작된 페로브스카이트 선량계의 치료 방사선 선량계 적용 가능성을 평가하고자 선형가속기 (RapidArc, Varian, USA)에서 생성되는 6 MV, 15MV 에너지에서의 반응특성을 평가하였다.

반응 특성을 전기적신호로 획득하기 위하여 전위계 (6517A, Keithley, USA)와 오실로스코프 (WaveSurfer 510, Teledyne LeCroy, USA)를 페로브스카이트에 연결시키고 μm 두께당 1 V의 전압을 인가하고 오실로스코프를 통하여 방사선이 조사되었을 때의 파형 및 신호를 획득하였다. 획득한 신호는 ACQ(AcqKnowledge 4.2, Biopac, Canada) 소프트웨어 프로그램을 사용하여 누적된 전하량으로 산출하였다.

3. Dosimeter Parameter Evaluation

최적의 혼합비를 선정하고자 각각의 선량계에 6 MV, 15 MV 에너지의 선량을 1 Gy가 조사될 수 있게 SSD(Source to Surface distance) 100 cm, 조사야 $10 \times 10 \text{ cm}^2$, 각 에너지 D-max 깊이에서 100 MU씩 조사하였을 때, 생성되는 전하량을 비교하여 각 혼합비에서의 계측성능을 평가하였다. 그리고 평가된 선량계의 적용가능성을 평가하기 위하여 재현성, 선형성을 평가하였다.

재현성은 동일한 선량에서의 안정성을 나타내는 지표이며, 재현성을 평가하기 위하여 500 MU/min 선량률에서 100 MU의 에너지를 10회 반복조사하여 신호를 획득하였다. 이후 반복적인 조사에 따른 반응 특성을 평가하기 위해 첫 번째 얻은 신호를 기준으로 정규화하고 동일 선량에 따른 출력 신호의 변화량 편차를 상대표준편차(relative standard deviation; RSD)로 산출하여 평가하였다. 평가기준은 da Rosa, L.A.R. 등의 논문에서 기준으로 한 검출기의 정밀도가 95% 신뢰수준에 해당하는 RSD 1.5% 이내로 산출되는지를 평가하였다⁷⁾.

선형성은 독립변수와 종속변수의 변화가 비례함을 나타내며, 선량 변화에 따른 반응특성을 확인하기 위하여 선형회귀분석(regression analysis)을 통한 선형성을 분석하였다. 500 MU/min 선량률에서 선량을 3, 10, 50, 100, 300, 500, 1000 MU으로 점차 증가시켜가며 방사선을 조사하였으며, 반응특성을 선형회귀분석 결과로부터 나타나는 결정계수(R^2)를 통해 평가하였다. 이때 평가 기준으로는 M. J, Han 논문 등에서 제시한 0.9990 이상의 R^2 로 설정하였다⁸⁾.

III. RESULT

1. Reproducibility

Fig. 2는 6 MV와 15 MV 에너지 조건에서 100 MU의 동일선량을 조사하였을 때의 출력되는 신호를 첫 번째 신호를 기준으로 신호 변화량 편차를 보여주는 그래프이다.

첫 번째 신호를 1로 정규화하였을 때, 6 MV에서 출력신호의 크기차이는 최대 2.5%로 나타났으며,

RSD는 1.187%로 산출되었다. 15 MV에서는 출력신호의 크기차이는 최대 2.2%로 나타났으며, RSD는 1.141%로 산출되었다.

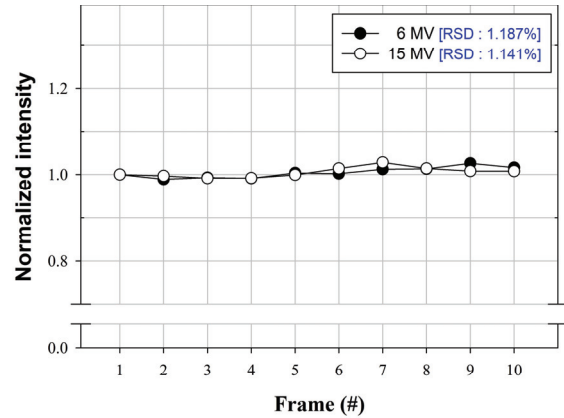


Fig. 2. Reproducibility CsPbBr₃ Dosimeter.

2. Linearity

Fig. 3은 선량 증가에 따른 CsPbBr₃ 선량계에서의 출력신호를 나타낸 그래프이다. 출력신호의 선형성을 비교하기 위하여 100 MU에서의 출력신호를 기준으로 정규화하여 나타내었다.

선형회귀분석에 따라서 선형성을 분석한 결과, 6 MV에서의 R^2 값은 0.9999로 산출되었으며, 15 MV에서도 R^2 값은 0.9999로 산출되었다.

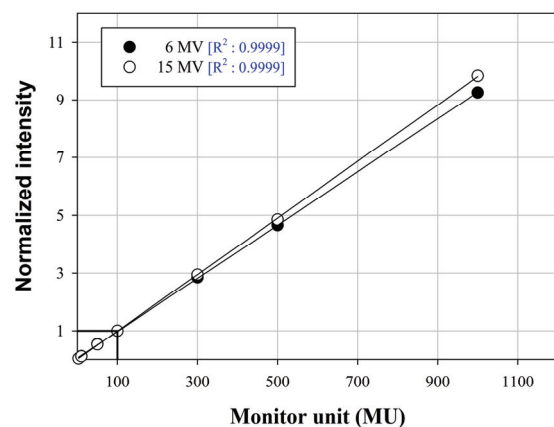


Fig. 3. Linearity of CsPbBr₃ Dosimeter.

IV. DISCUSSION

재현성 평가 결과, 6 MV 에너지에서의 RSD 1.178%로 제시되었고 15 MV에너지에서는 1.141%로 제시되었다. 이러한 결과값들은 da Rosa, L.A.R. 등의 연구에서도 제시한 평가기준 1.5% 이내를 만족하는 결과로 제조된 선량계의 동일 신호에 대한 출력안정성이 안정적인 것을 나타낸다^[7].

선형회귀분석에 따른 선형성 평가결과, 6 MV, 15 MV 에너지 각 조건에서 0.9999의 R²값을 제시하였다. 이는 M. J. Han 등의 연구에서 제시된 기준 0.9990 이상의 R²값을 만족하는 수치로 조사되는 선량의 증가만큼 출력신호가 비례적임을 나타내며, 비례되는 출력신호를 바탕으로 조사된 선량을 정확하게 산출할 수 있음을 나타낸다^[8].

재현성, 선형성 평가결과를 바탕으로 제작된 CsPbBr₃ 선량계의 치료방사선 분야에 선량계로써 적용 가능성을 제시하였다. 추후 연구로는 정도관리 품질보증 선량계로 적용하기 위해 이온챔버와 수집되는 선량 비교와 더불어 보정된 선량을 평가해야 할 것이다. 또한 에너지 의존성, 선량률의존성, 깊이선량백분율 등 평가를 통해 정도관리 품질보증 선량계로써 적용할 수 있는 가능성이 제시되어야 한다.

V. CONCLUSION

본 연구에서는 페로브스카이트 CsPbBr₃을 사용하여 선량계를 제작하였고 제작된 선량계에 대하여 재현성, 선형성을 평가하여 치료방사선 선량계에 적용 가능성에 대한 기초평가를 수행하였다.

제작된 선량계는 재현성, 선형성 평가에서 기준 이상의 성능을 제시하였으며, 이는 개선연구 및 정도관리 품질보증 평가항목 측정평가를 통하여 치료방사선 정도관리 품질보증 선량계로 제시할 수 있을 것이라 판단된다.

Acknowledgement

This work was supported by the National Research Foundation of Korea (NRF) grant funded by the Korean

government (MSIP) (NRF - 2021R1F1A1063500).

Reference

- [1] B. K. Cha, J. Y. Kim, T. J. Kim, C. M. Sim, G. S. Cho, "Fabrication and Imaging Characterization of High Sensitive Csi (TI) and Gd2o2s (Tb) Scintillator Screens for X-Ray Imaging Detectors", Radiation Measurements, Vol. 45, No. 3-6, pp. 742-745, 2010 <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2009.12.025>
- [2] C. Szeles, "CdZnTe and CdTe materials for X-ray and gamma ray radiation detector applications", physica status solidi (b), Vol. 241, No. 3, pp. 783-790, 2004. <https://doi.org/10.1002/pssb.200304296>
- [3] R. A. Street, S. E. Ready, K. V. Schuylenbergh, J. Ho, J. B. Boyce, P. Nysten, "Comparison of PbI₂ and HgI₂ for Direct Detection Active Matrix X-Ray Image Sensors", Journal of applied physics, Vol. 91, No. 5, pp. 3345-3355, 2002. <https://doi.org/10.1063/1.1436298>
- [4] M. J. Han, S. W. Yang, J. H. Jung, D. H. Lee, J. Y. Kim, S. J. Cho, K. H. Kim, C. W. Mun, H. L. Cho, S. K. Park, "Development and evaluation of a thallium(I) bromide dosimeter for intracavitary radiotherapy quality assurance", Journal of Instrumentation, Vol. 17, No. 2, pp. P02010, 2022. <https://doi.org/10.1088/1748-0221/17/02/p02010>
- [5] M. Bruzzi, C. Talamonti, N. Calisi, S. Caporali, A. Vinattieri, "First proof-of-principle of inorganic perovskites clinical radiotherapy dosimeters", APL Materials, Vol. 7, No. 5, pp. 51101, 2019. <https://doi.org/10.1063/1.5083810>
- [6] W. Pan, B. Yang, G. Niu, K. H. Xue, X. Du, L. Yin, M. Zhang, H. Wu, X. S. Miao, and J. Tang, "Hot-Pressed CsPbBr₃ Quasi-Monocrystalline Film for Sensitive Direct X-ray Detection", Advanced Materials, Vol. 31, No. 44, pp. 1904405, 2019. <https://doi.org/10.1002/adma.201904405>
- [7] L. A. R. da Rosa, D. F. Regulla, U. A. Fill, "Reproducibility study of TLD-100 micro-cubes at radiotherapy dose level", Applied radiation and isotopes, Vol. 50, No. 3, pp. 573-577, 1999. [https://doi.org/10.1016/s0969-8043\(98\)00068-2](https://doi.org/10.1016/s0969-8043(98)00068-2)
- [8] M. J. Han, Y. H. Shin, J. H. Jung, S. U. Heo, K. M. Oh, K. H. Kim, J. Y. Kim, Y. K. Oh, H. L.

Cho, S. K. Park, "Development and evaluation of passive layer additive detector for stabilization in high-energy X-ray computerized tomography", Journal of Instrumentation, Vol. 14, No. 8, pp. 8015, 2019.
<https://doi.org/10.1088/1748-0221/14/08/p08015>

CsPbBr₃을 기반으로 한 Perovskite 선량계의 방사선치료 Quality Assurance에 대한 적용가능성 평가

양승우¹, 박성광^{2,*}

¹인제대학교 의과대학 방사선종양학과

²인제대학교 부산백병원 방사선종양학과

요 약

방사선치료에서는 정상조직에 대한 피해를 최소화하면서도 종양조직을 죽이기 위하여 정확한 정도관리 품질보증이 요구된다. 이를 위해서 치료 방사선을 정확하게 계측할 수 있는 선량계가 요구된다. 본 연구에서는 기존 사용되는 검출기 재료로 사용되는 물질보다 저렴하고 제조 공정이 간단하여 기존 물질들을 대체할 수 있는 페로브스카이트 물질에 제조단가를 낮출 수 있고 공정을 간소화 시킬 수 있는 **particle in binder(PIB)** 방법을 적용하여 민감도가 높은 고효율의 방사선 선량계를 개발하고자 하였다. 고에너지 광자선에 대한 반응특성을 평가함으로써 방사선치료분야에 정도관리 품질보증선량계로 적용 가능한지 적용가능성을 평가하였다. 재현성 평가 결과, 6 MV 에너지에서의 RSD 1.178%로 제시되었고 15 MV에너지에서는 1.141%로 제시되었다. 선형회귀분석에 따른 선형성 평가결과, 6 MV, 15 MV 에너지 각 조건에서 0.9999의 R² 값을 제시하였다. 재현성, 선형성 평가결과를 바탕으로 제작된 CsPbBr₃ 선량계의 치료방사선 분야에 정도관리 품질보증 선량계로의 적용가능성이 높은 것으로 나타났다. 본 연구에서 제작된 CsPbBr₃ 선량계는 재현성, 선형성 평가에서 기준이상의 성능을 제시하였으며, 개선을 통하여 치료방사선 정도관리 품질보증 선량계로 활용 가능한 것으로 판단된다.

중심단어: 방사선치료, 선량계, 정도관리, 페로브스카이트, CsPbBr₃

연구자 정보 이력

	성명	소속	직위
(제1저자)	양승우	인제대학교 의과대학 방사선종양학과	연구원
(교신저자)	박성광	인제대학교 부산백병원 방사선종양학과	교수