2003 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

TLD-700 선량계를 이용한 하나로 BNCT 조사 장치의 감마선량 측정

Measurements of Gamma-ray Dose at the HANARO BNCT Facility Using TLD-700 Dosimeter

김명섭 · 전병진

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

이동한 · 서소희

원자력의학원
서울특별시 노원구 공릉동 215-4

요 약

하나로 BNCT 조사 장치에서 TLD-700 선량계를 이용하여 감마선량을 측정하였다. 중성자와 감마선이 섞여 있는 혼합장에서 측정된 TLD 선량 측정값으로부터 중성자 선량을 제거하여 감마선량을 결정하였다. 방사선 여과 장치가 상온일 때와 액체질소로 냉각되어 있을 때 조사 장치에서 인출되는 감마선의 선량 및 팬텀 내부 감마선량 분포를 측정하였다. 측정된 감마선량은 팬텀 내부 2 mm 깊이에서 최대값을 나타낸 후 급격히 감소하였으며, 측정된 최대 선량율은 14.2 Gy/hr였다. 팬텀 표면에서 22 mm 깊이에서의 측정값이 최대값의 약 1/2 정도였다. 여과 장치를 냉각하면 감마선량이 약 60% 증가하였다. 선량에 기여하는 감마선의 대부분은 팬텀에서 중성자에 의해 발생된 이차 감마선이었다.

Abstract

The gamma-ray dose is measured at the HANARO BNCT irradiation facility using the TLD-700 dosimeter. The gamma-ray dose is determined by eliminating the neutron dose from the TLD dose measurements in the mixed field of neutron and gamma-ray. The free gamma-ray dose and in-phantom dose distribution are measured at the exit of the beam collimator with variation of LN_2 cooling condition of radiation filter. Measured in-phantom gamma-ray dose has the maximum value at the depth of 2 mm in phantom, and then decreases rapidly, and the maximum dose rate is 14.2 Gy/hr. The measured value at the depth of 22 mm in phantom is about a half of the maximum value. When the radiation filter is cooled by LN_2, the gamma-ray dose is about 60% larger than that without cooling. The major contribution of gamma-ray dose is the secondary gamma-ray generated in the phantom by the incident neutrons.

1. 서 론

붕소 중성자 포획 암 치료(BNCT: Boron Neutron Capture Therapy)는 암 세포에 선별적으로 모이는 붕소 화합물을 투여한 뒤에 중성자를 쪼여서 암 세포를 선별적으로 죽이는 원리적으로 매우 유망한 암 치료법이다[1]. 하나로에서는 수년 전부터 이러한 BNCT를 구현할 수 있는 중성자 조사 장치의 개발에 대해 연구해 왔으며, 2001년 중성자 조사 장치의 설치를 완료하였고, 성능 시험을 수행하여, 조사 장치의 절대 중성자속 및 중성자속 분포, Cd 비 등을 측정한 바 있다[2].

국부 조사 BNCT 조사 장치의 빔 특성은 크게 열중성자속 및 분포, 고속 중성자속, 감마선량으로 구분할 수 있다. 그리고, 이전에 중성자빔 특성에 대한 측정이 완료되었으므로 감마선량을 측정하면 하나로 BNCT 조사 장치의 빔 특성에 대한 측정은 마무리 된다고 볼 수 있다. 따라서 본 연구에서는 하나로 BNCT 장치의 감마선량을 측정하여 BNCT 장치의 빔 특성을 확정하였다. 일반적인 원자로 조사 실험이 모두 중성자와 감마선 혼합장에서의 조사 실험이지만 BNCT 조사는 다른 조사 실험과는 달리 인체에 대한 조사가 시행되므로 감마선량에 대한 매우 정확한 정보를 요구한다. 이러한 혼합장에서의 감마선량 측정은 중성자에 의한 이차 감마선의 발생과 측정 기기의 중성자 감도 때문에 정확한 측정이 어렵다. 따라서 본 연구에서는 중성자 감도가 낮은 TLD 소자를 이용하여 조사 장치의 감마선량을 측정하였으며, 이 측정값에서 중성자 성분을 제거하는 방법론을 제시하였다.

2. TLD-700의 중성자 감도

하나로 BNCT 조사 장치에서 감마선량을 측정하기 위해서 열형광소자(TLD, Themoluminescent Dosimeter)를 사용하였다. 일반적으로 BNCT 조사 장치의 경우

빔 포트에서 중성자와 감마선이 동시에 인출되어 혼합장(mixed field)을 형성한다. 따라서 순수한 감마선량을 측정하기 위해서는 TLD 물질 가운데 중성자와의 반응율이 낮은 물질로 구성되어 있는 TLD를 선택하는 것이 바람직하다. 이에 따라 감마선량 측정을 위한 TLD로 rod 형태의 TLD-700(Harshaw)을 선택하였다. TLD-700 소자는 열중성자의 감도를 낮추기 위해 Li-7의 함량을 크게 높인 소자이며, 보통 이 소자내의 Li-6의 함량은 0.01% 이하이다. 그러나 이 TLD 내부에 미량 존재하는 Li-6는 $Li^6(n,\alpha)H^3$ 반응을 유발시키며, 이때 발생되는 α, H-3는 모두 선형 에너지 전달량(LET, Linear Energy Transfer)이 감마선보다 매우 크기 때문에 선량 기여도가 크다. 또한 Li-6의 2200 m/sec 열중성자 단면적은 940 barn(Li-7의 경우 1.1 barn)으로 매우 크기 때문에 미량의 Li-6가 존재하더라도 열중성자 감도는 크게 된다. 그러므로 정확한 감마선량 측정을 위해서 TLD-700의 열중성자 감도를 파악해야 한다.

중성자와 감마선이 혼합되어 있는 방사선장에서 선량계의 응답은 아래식과 같이 쓸 수 있다[3].

$$R'_{n,\gamma} = kD_n + hD_\gamma \qquad (1)$$

여기서, $R'_{n,\gamma}$은 중성자와 감마선 혼합장에서의 선량계 총응답 $R_{n,\gamma}$을 선량계 검정에 사용한 감마선에 대한 선량계의 감도로 나눈 값이다. 일반적으로 선량계 검정에는 Co-60을 사용한다. D_n과 D_γ는 각각 중성자와 감마선으로부터 세포에 흡수된 흡수 선량으로 정의된다. k는 혼합장에서 중성자에 대한 선량계 감도와 검정에 사용된 감마선에 대한 선량계 감도의 비이며, h는 마찬가지로 광자에 대한 선량계 감도와 검정에 사용된 감마선에 대한 선량계 감도의 비이다.

혼합장에서 중성자 감도를 나타내는 k값에 대한 연구는 여러 가지 선량계에 대해 많은 연구가 진행되어 왔는데, 그 중 TLD-700에 대해서 열중성자 감도를 분석한 결과를 정리하면 표 1과 같다[4 16].

문헌에서 선량을 조사 선량 R로 나타낸 경우도 있었으나 공기에서의 조사 선량 R과 인체 조직에서의 흡수 선량 rad를 등가한 것으로 가정하였다[17]. 표에서 알 수 있는 바와 같이 TLD-700의 열중성자 감도는 0.5 2.5 $rad/10^{10}n/cm^2$로 매우 넓은 영역에 걸쳐 나타났는데, 이는 측정 방법, Li-6의 함량 등 여러 요인에 기인한다[18]. 본 연구에서는 이러한 여러 결과 중 최근의 분석 결과이면서 본 연구와 같은 BNCT 연구에 TLD-700을 사용한 경우이고, 상대적으로 신뢰성이 높다고 평가된 Raaijmakers 등의 결과를 이용하여 k값을 1.43으로 정하였다.

표 1. 각 문헌에서 제시한 TLD-700의 중성자 응답.

Literature	Thermal neutron response in rad per 10^{10} n per cm^2
Simpson 1967	0.7
Reddy 1969	0.87 0.96
Scarpa 1970	1.0
Dua 1971	2.5
MAjborn 1972	1.3
Ayyangar 1974	0.96
Ayyangar 1974	1.1
Horowitz 1977	0.19
Horowitz 1978	1.6
Henaish 1980	1.34
Raaijmakers 1996	1.43
Liu 2002	1.09

3. 실 험

본 연구에 사용된 TLD-700의 제원은 표 2와 같다.

표 2. 실험에 사용된 TLD-700 제원.

Parameters	**Figures**
Type	TLD-700
Materials	Lithium Fluoride (Li-7 isotope) LiF:Mg,Ti
applications	Gamma, Beta
Z_{eff}	8.2
TL emission spectra	3500-6000 Angstrom
Sensitivity at Co-60 relative to LiF	1.0
Energy Response 30 keV/ Co-60	1.25
Useful Range	10 μGy - 10 Gy
Fading	5%/ yr at 20 ℃
Diameter	1 mm
Length	6 mm

조사 장치의 감마선량 측정 실험은 여과 장치가 상온일 경우와 액체질소로 냉각된 상태에 대해 수행하였으며, 팬텀 내부에서의 선량 분포를 측정하기 위해 판형 팬텀의 각 판 사이에 TLD를 설치하고 실험을 수행하였다. 실험에 사용된 팬텀은 크기가 300×300 mm^2인 사각형 고체 판형 팬텀(solid slab phantom)으로 제원은 중성자속 측정 실험에 사용된 팬텀과 동일하다[2].

TLD-700의 판독에는 미국 Harshaw사의 Model 3500 수동 판독기를 사용하였다. 실험에 사용된 각 소자들은 Co-60 선원을 이용하여 3회의 검교정 작업을 실시하여 오차 범위 2% 이내의 소자들만을 선별하였고, 각 소자별로 소자 보정 계수를 산출하여 감도를 보정하였다.

먼저 여과 장치가 액체질소로 냉각되어 있지 않은 상태에서 TLD가 설치된 팬텀을 collimator 전단에 위치시키고 중성자와 감마선을 조사시켰다. 또한, 여과 장치가 액체질소로 냉각된 상태에서 팬텀이 없을 때의 감마선량을 측정하기 위하여 조사 장치 빔 collimator 전면에 TLD를 설치하고 조사 실험을 수행하였다. 이 때 중성자속을 함께 측정하기 위해 TLD 소자 옆에 Au 박막을 설치하였으며, 빔 포트 주변에서의 감마선량을 측정하기 위해 빔 collimator 위치와 빔 포트 중심에서 10 cm 위치에 TLD를 설치하였다.

또한, 팬텀이 있는 경우의 감마선량을 측정하기 위하여 TLD 소자가 설치된 판형 팬텀을 조사 장치 빔 collimator 전단에 설치하고 빔을 조사하였다. 감마선량의 평면적 분포를 확인하기 위해 팬텀 내부 26 mm 깊이에 상하좌우 각각 20, 40 mm 위치에 TLD를 설치하였다.

각 실험 조건에서 감마선량 측정을 위한 조사 시간과 Au 박막 방사화 실험으로 측정된 중성자속 및 중성자 조사량은 표 3과 같다.

표 3. 감마선량 측정을 위한 조사 조건.

Condition		Irradiation time [sec]	Neutron flux [n/cm^2·sec]	Neutron fluence [n/cm^2]
without LN_2 cooling	with phantom	1760	8.14×10^{8}	1.43×10^{12}
with LN_2 cooling	without phantom	3130	1.15×10^{9}	2.52×10^{12}
	with phantom	2168	·	·

4. 분석 및 결과

각 실험에서 측정된 감마선량은 표 4 7과 같다. 각 표에서 팬텀 내부에서의 중성자속은 이전의 팬텀 내부에서의 중성자속 분포 측정 실험과 감마선량 측정 실험 직전 수행된 중성자속 측정 실험에서 측정된 절대 중성자속을 이용하여 구하였다.

열중성자 선량은 아래 식과 같이 제거하였다.

$$D\,[\mathrm{cCy}] = M - 1.43 \times \phi \times t \times 10^{-10} \qquad (2)$$

여기서, D는 감마선량이고, M은 TLD reader에서의 선량 측정값이며, ϕ는 중성자속, t는 조사 시간이다.

본 연구에서 사용된 TLD-700 소자의 사용 영역은 10 Gy까지이지만 고 감마선량에서 과도한 응답 특성(supra-lineality)이 나타나는 것이 확인되었다. 이러한 과도한 응답 특성은 Cs-137 감마선의 경우 약 200 R이상의 조사 선량에서 무시할 수 없을 정도가 되며, 그림 1에서와 같이 선량이 커짐에 따라 급격히 증가한다[19]. 따라서 본 연구에서도 이 그림에서와 같은 응답 특성을 이용하여 감마선 측정값을 보정하였다.

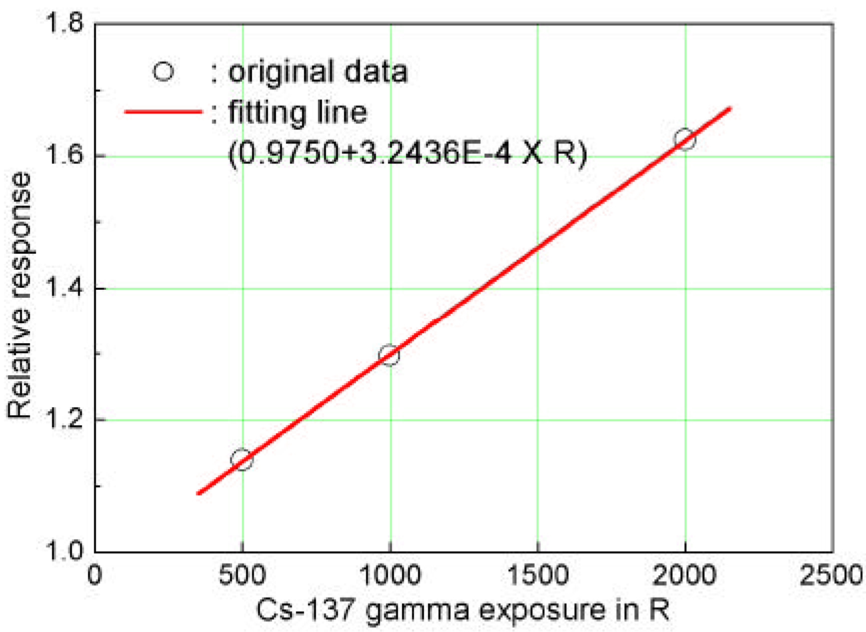

그림 1. 고 감마 조사 선량에서 나타나는 선량 응답 비.

열중성자 선량의 과도한 응답 특성은 Li-6가 95%이상 농축되어 열중성자에 매우

민감한 TLD-600 소자의 경우 10^{11} n/cm^{2}의 중성자 조사량까지는 과도한 응답 특성이 나타나지 않으므로 TLD-700에 대해서는 무시하였다[19,20]. 고속 중성자 선량은 인출되는 고속 중성자속이 매우 작으므로 무시하였다[21].

위와 같은 방법으로 감마선량을 구한 후 조사 시간을 고려하여 감마선량율을 결정하였다. 팬텀 내부의 깊이에 따라 측정된 감마선량율은 그림 2와 같다.

그림에서 알 수 있는 바와 같이 감마선량은 이전의 중성자속 측정 결과와 마찬가지로 표면에서 2 3 mm 깊이에서 최대값을 가지고 이후에 급격히 감소하는 경향을 나타내었다. 또한 중성자속 측정 결과와 마찬가지로 표면에서 22 mm 깊이에서의 측정값이 최대값의 약 1/2 정도였다. 측정된 최대 선량은 14.2 Gy/hr였다.

여과 장치가 액체질소로 냉각되어 있는 경우와 상온인 경우 팬텀 내부에서의 감마선량 변화 경향은 유사하였으며, 여과 장치를 냉각하면 감마선량이 약 60% 증가하였다.

여과 장치가 액체질소로 냉각되어 있고, 팬텀이 없을 때의 감마선량은 180.81 cGy/hr로 측정되었는데, 팬텀이 있을 때는 최대 1419 cGy/hr로서 매우 크게 증가하여 선량에 기여하는 감마선의 대부분은 팬텀에서 중성자에 의해 발생된 이차 감마선임을 알 수 있다.

표 4. 여과 장치가 액체질소로 냉각되어 있지 않은 상태에서의 감마선량 측정값.

팬텀 내부 깊이 [mm]	TLD reader에서의 원 측정값 [cGy]	중성자속 [n/cm^2 · sec]	중성자 선량 제거 후 측정값 [cGy]	감마선 응답 보상비	응답 보상 후 감마선량 [cGy]	감마선량율 [cGy/hr]
0	862.49	1.7444×10^{9}	418.47	1.1107	376.75	761.97
2	1029.21	2.0877×10^{9}	497.80	1.1365	438.02	885.89
4.5	917.71	1.9813×10^{9}	413.38	1.1091	372.73	753.83
11	803.51	1.5021×10^{9}	421.16	1.1116	378.88	766.26
14.5	668.86	1.3192×10^{9}	333.08	1.0830	307.54	621.00
26	492.20	8.5224×10^{8}	275.27	1.0643	258.64	523.10
47.5	222.10	3.8523×10^{8}	124.04	1.0000	124.04	250.88
99	60.71	5.4892×10^{7}	46.74	1.0000	46.74	94.53
150.5	21.16	9.3631×10^{6}	18.78	1.0000	18.78	37.98
202	11.15	9.0528×10^{5}	10.92	1.0000	10.92	22.08

표 5. 여과 장치가 액체질소로 냉각되어 있을 때의 감마선량 측정값.

팬텀 내부 깊이 [mm]	TLD reader 에서의 원 측정값 [cGy]	중성자속 [n/cm² · sec]	중성자 선량 제거 후 측정값 [cGy]	감마선 응답 보상비	응답 보상 후 감마선량 [cGy]	감마선량율 [cGy/hr]
2	1994.4	2.7154×10^{9}	1152.55	1.3488	854.48	1418.87
4.5	1886.3	2.6271×10^{9}	1071.85	1.3227	810.37	1345.64
11	1399.4	2.0454×10^{9}	765.28	1.2232	625.62	1038.86
14.5	1253.1	1.7907×10^{9}	697.94	1.2014	580.95	964.68
26	764.4	1.1452×10^{9}	409.35	1.1078	369.52	613.60
47.5	421.6	5.0425×10^{8}	265.27	1.0610	250.01	415.15
99	103.6	8.1556×10^{7}	78.32	1.0004	78.28	129.99
150.5	38.9	1.3257×10^{7}	34.79	1.0000	34.79	57.77
202	18.4	1.5951×10^{7}	13.45	1.0000	13.45	22.34

표 6. 여과 장치가 액체질소로 냉각되어 있고, 팬텀이 없을 때의 감마선량 측정값.

TLD 위치 [mm]		TLD reader 에서의 원측정값 [cGy]	중성자속 [n/cm² · sec]	중성자 선량 제거 후 측정값 [cGy]	감마선량율 [cGy/hr]
Collimator 로부터 거리	빔중심으로 부터의 거리				
0	0	669.8	1.1452×10^{9}	157.21	180.81
0	75 upper	34.8	1.9643×10^{7}	26.01	29.91
0	100 upper	5.3	1.7519×10^{6}	4.52	5.19

표 7. 팬텀 내부 26 mm에서의 감마선량 측정값.

TLD 위치 [mm]		TLD reader 에서의 원측정값 [cGy]	중성자속 [n/cm^2 · sec]	중성자 선량 제거 후 측정값 [cGy]	감마선량율 [cGy/hr]
Collimator 로부터 거리	빔중심으로 부터의 거리				
26	0	764.4	1.1452×10^{9}	409.35	613.60
26	20 upper	720.7	1.1067×10^{9}	377.58	571.30
26	40 upper	639.2	1.0307×10^{9}	319.67	492.10
26	20 lower	761.4	1.1067×10^{9}	418.28	625.36
26	40 lower	730.7	1.0307×10^{9}	411.17	616.00
26	20 right	789.4	1.1067×10^{9}	446.28	661.81
26	40 right	627.3	1.0307×10^{9}	307.77	475.48
26	20 left	718.2	1.1067×10^{9}	375.08	567.94
26	40 left	663	1.0307×10^{9}	343.47	524.98

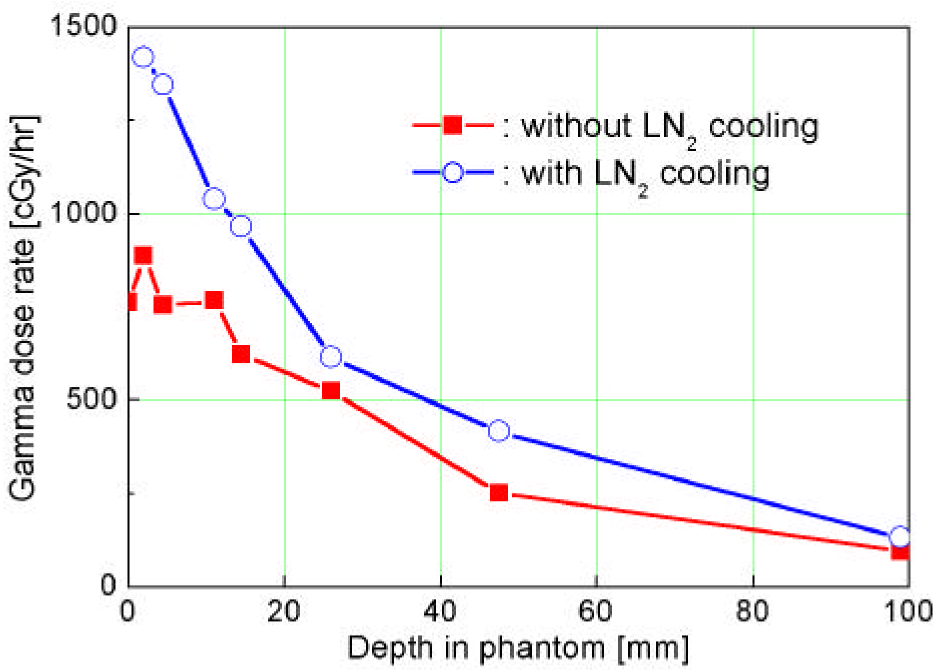

그림 2. 하나로 BNCT 조사 장치에서 측정된 감마선량.

4. 결　론

하나로 BNCT 조사 장치에서 TLD-700 선량계를 이용하여 감마선량을 측정하였다. 중성자와 감마선이 섞여 있는 혼합장에서 측정된 TLD 선량 측정값으로부터 중성자 선량을 제거하는 방법론을 확립하였다. 측정된 감마선량은 팬텀 내부 2 mm 깊이에서 최대값을 나타내었으며, 최대 선량율은 14.2 Gy/hr였다. 이와 같은 측정을 통해 하나로 BNCT 장치의 빔 특성을 확인하였으며, 환자 조사시 감마선량을 예측할 수 있다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 연구비 지원으로 수행되었다.

참 고 문 헌

1. D.N. Slatkin, "A History of Boron Neutron Capture Therapy of Brain Tumors", *Brain*, **114**, 1991, p.1609.
2. 김명섭, 박상준, 전병진, "하나로 BNCT 조사 장치에서 팬텀 내부 중성자속 분포 측정", 2003춘계학술발표회논문집, 한국원자력학회, 2003. 5.
3. F.H. Attix, "Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry", John Wiley & Sons, 1986, p.476.
4. K. Yamamoto, H. Kumada, Y. Torii, T. Kishi, T. Yamamoto and A. Matsumura, "Simple Estimation Method of Gamma-ray Dose Using Low Neutron-Sensitive TLD (UD-170LS) for Intra-Operative Boron Neutron Capture Therapy (IOBNCT)", W. Sauerwein et al. ed., Research and Development in Neutron Capture Therapy, Proceedings of the 10th International Congress on Neutron Capture Therapy, Essen, Germany, 2002, MONDUZZI EDITORE, 2002, p.499.
5. K. Ayyangar, A.R. Lakshmanan, B. Chandra and K. Ramadas, "A Comparison of Thermal Neutron and Gamma Ray Sensitivities of Common TLD Materials, Phys. Med. Biol., **19**, 1974, pp.665-676.
6. Y.S. Horowitz, "The theoretical and microdosimetric basis of thermoluminescence and applications to dosimetry", Phys. Med. Biol., **Vol.26. No.4,** 1981, pp.765-824.
7. Y.S. Horowitz, "The Thermal Neutron Sensitivity of LiF (TLD-700;Harshaw):

the Effect of Sample Size and Batch Origin", Phy. Med. Biol., **V23**, 1978, p.340.

8. B.A. HENAISH, A.M. SAYED and S.M. MORSY, "FAST AND THERMAL NEUTRON RESPONSE OF BeO AND $Li_2B_4O_7$:Mn IN COMPARISON WITH LiF AND CaF_2", Nucl. Instr. & Med., **178**, 1980, pp.395-399.
9. C.P. Raaijmakers, et al., "The Neutron Sensitivity of Dosimeters Applied to Boron Neutron Capture Therapy", Med. Phys., **23 (9)**, 1996, pp.1581-1589.
10. S.W. Martsolf, et al., "Practical Considerations for TLD-400/700-Based Gamma Ray Dosimetry for BNCT Applications in a High Thermal Neutron Fluence", Health Physics, 1995, pp.966-970.
11. Y.S. Horowitz, I. Fraier, and J. Kalef-Ezra, "TL light Self-absorbtion Implications for Studies on the Relative TL Efficiency as a Function of Linear Energy Transfer, Phys. Med. Biol., **24**, 1979, pp.832-834.
12. J.A. Douglas, "Applications of TL Materials in Neutron Dosimetry", Oberhofer and Scharmann ed., Applied Thermoluminescent Dosimetry, Bristol: Adam Hilger, 1981, pp.229-258.
13. A.R. Reddy, K. Ayyangar and G.L. Brownell, "Thermoluminescence Response of LiF to Reactor Neutrons", Radiat. Res., **40**, 1969, pp. 552-562.
14. B. Majborn, P. Botter-Jenson and P. Christensen, "Thermoluminescence Dosimetry Applied to Areas with Mixed Neutron and Gamma Radiation Fields", Dosimetry in Agriculture, Industry, Biology and Medicine, STI/PUB/311, Vienna:IAEA, 1972, pp.169-177.
15. R.E. Simpson, "Response of Lithium Fluoride to Reactor Neutrons", Proc. 1st Int. Conf. on Luminescence Dosimetry, Stanford, USAEC-CONF-650637, 1967, pp.457-466.
16. H.M. Liu and P.C. Hsu, "Limitation of TLD-700 Used for Gamma Dose Measurement in Mixed (n,γ) Fields", W. Sauerwein et al. ed., Research and Development in Neutron Capture Therapy, Proceedings of the 10^{th} International Congress on Neutron Capture Therapy, Essen, Germany, 2002, MONDUZZI EDITORE, 2002, p.449.
17. H. Cember, "Introduction to Health Physics", Pergamon Press, New York, 1983, p.142.
18. K.R. Herminghuysen, T.E. Blue, "Development and evaluation of a neutron-gamma mixed-field dosimetry system based on a single

thermoluminescence dosimeter", Nucl. Instr. & Med. **A353**, 1994, pp.420-424.

19. G. GAMBARINI and M. SINHA ROY, "Dependence of TLD Thermoluminescence Yield on Absorbed Dose in a Thermal Neutron Field", Appl. Radiat. Isot., **Vol. 48, No.10-12**, 1997, pp.1467-1475.
20. G. Gambarini, M. Sinha Roy, A. Scacco and A.E. Sichirollo, "Thermoluminescent dosimeters in high fluxes of thermal neutrons", B. Larsson et al. ed., Advances in Neutron Capture Therapy Volume I, Medicine and Physics, ELSEVIER, 1997, p.212.
21. B. Mukherjee, "Glow curve analysis of TLD-700 dosimeters exposed to fast neutrons and gamma rays from isotopic sources", Nucl. Instr. & Med., **A385**, 1997, pp.179-182.