

添加奈米/微米金微粒之碘化鉀/碘酸鉀劑量計於 γ 光子劑量量測之應用

*林群智¹ 吳坤隆² 劉威忠³ 黃玉芬¹

¹南華大學自然生物科技系 自然醫學研究所

²元培科技大學 放射技術研究所

³慈濟技術學院 放射技術系

摘要

本研究旨在探討 KI/KIO₃ 劑量計在不同 KI 濃度及添加微米金和奈米金微粒後，其各吸收峰對 γ 光子吸收劑量之回應，並觀察其線性表現以及 G 值的變化，並進而探討添加微米金及奈米金微粒後對於 KI/KIO₃ 劑量計性能的影響。研究結果顯示，KI/KIO₃ 溶液在 352、400、426 及 450 nm 處可找到吸收峰。未添加金微粒時，I₃⁻ 在 352 nm 處之吸收度均隨吸收劑量 (0–20 Gy) 增加而成線性增加，且低劑量量測以配製 1.0 M KI 並使用 352 nm 處之吸收峰為佳，且在低劑量 (≤ 20 Gy) 下，劑量愈低 G 值愈高。在較高劑量 (> 20 Gy) 時，各吸收峰之吸收度與吸收劑量之間存在對數線性關係，且在波長較長處之吸收峰可用於量測更高之劑量，線性範圍廣闊，其中，在 352 nm 處之吸收峰適於量測 100 Gy 以下之 γ 光子劑量，而 450 nm 處之吸收峰適於量測 100–1000 Gy 之 γ 光子劑量。添加微米金微粒後，吸收度與吸收劑量不再呈現對數線性，較低劑量 (500 Gy 以下)，以 352 nm 處吸收度之線性較佳，且其線性範圍可延伸至 500 Gy。在 400 nm 處之吸收值存在 50–200 Gy 及 200–500 Gy 兩個線性範圍。而在較長之吸收波長 (426 及 450 nm) 處，當劑量低於 500 Gy 時線性較差，在高劑量時則線性隨著波長增加且範圍隨之增廣，顯示添加微米金微粒之 KI/KIO₃ 化學劑量計適合以較長之波長 (426 及 450 nm) 量測較高劑量，在 352 及 450 nm 處之吸收之 G 值各在 500 Gy 及 200 Gy 時最高，而後緩慢降低。添加奈米金微粒後，KI(1.0 M)/KIO₃ 化學劑量計在 352 nm 處對於 γ 光子劑量之回應與未添加奈米金微粒前相近 (> 2.0)，但吸收度變化很小，不適於量測。在較長之吸收波長 (400、426、450 nm) 處，其靈敏度降低但線性範圍隨之增加，顯示添加奈米金微粒之 KI/KIO₃ 化學劑量計適合以較長之波長 (450 nm) 量測劑量；其中，400 nm 處之吸收波長適合量測 200 Gy 以下之吸收劑量，426 及 450 nm 處之吸收波長均適合量測 500 Gy 以下之吸收劑量，且後者之線性範圍則可向更高劑量延伸。此外，在 352 及 450 nm 處之 G 值均隨劑量增加而提高，各在 500 Gy 及 1000 Gy 時達最大值。

關鍵字: 劑量、劑量計、輻射分解、碘化鉀、奈米金

前言

輻射劑量之測量向來為臨床游離輻射診斷及治療中最重要的一環，在擬定治療計畫前必須確定輻射在治療部位所造成之劑量，並使正常組織所受之劑量減至最低。一般量測輻射劑量的方式可分為一級方法 [primary method; 如：游離腔偵檢器 (ion chamber; IC) 及熱卡計 (calorimeter)] 及二級方法 [secondary method; 如：熱發光偵檢器 (thermoluminescence dosimeter; TLD)、化學劑量計及生物劑量計等]。臨床上評估各部位之等值劑量多利用在假體表面或體內佈植 TLD 之方式或以 IC 偵測，進而由各部位所得之劑量修正照射方式及撿擇準直器，使其受照部位或組織之劑量最大，而鄰近部位所受劑量盡可能地降低。與化學及生物劑量計相較之下，TLD 及 IC 在使用上較為方便，然而，前者所需之計讀儀器相當昂貴，而後者則受其體積較大、形狀不易更改之限制，對於較薄之組織或器官不易得到較精確之劑量，因此，可任意改變形狀之液態化學劑量計便可彌補上述兩者之不足。液態化學劑量計具有準確及線性佳等優點，此外，一旦輻射化學產率 (radiation chemical yield; G 值) 確定，則不需校正曲線即可計算出劑量，因此，其所得之劑量可視為絕對劑量 [1]。一般最常用的輻射化學劑量計為夫瑞克化學劑量計 (Fricke chemical dosimeter)，利用游離輻射照射水溶液時產生之 $\cdot\text{OH}$ 和 $\cdot\text{H}$ 自由基，經一連串之反應後，使 Fe^{2+} 氧化為 Fe^{3+} ，藉由分光光度計讀 304 nm 之吸收度而得知此溶液之吸收劑量 [2]，而 Shcarf 和 Lee [3] 進一步以 224 nm 為計讀波長，而提高其靈敏度，使夫瑞克化學劑量計之偵測極限降低至 10-20 Gy，由於其線性範圍寬，準確度高，故 AAPM [4] 及 ICRU [5] 均推薦其為決定或校正水中吸收劑量之替代方法之一。為使化學劑量計適用之輻射劑量降低，近來之研究多利用 aromatic acids 如 trimesic acid [5]，pyromellitic acid [6] 和 phenylacetic acid [7] 但這些有機酸均具有刺激性，可對人體之呼吸系統及皮

膚造成傷害，因此無毒、便宜而低偵測極限之劑量計便受到青睞，其中，KI 劑量計便具有以上特點。

KI 劑量計之輻射化學機制主要利用 I^- 生成 $\cdot\text{I}$ 自由基，其所需劑量較之使 H_2O 生成 $\cdot\text{OH}$ 和 $\cdot\text{H}$ 自由基所需之輻射劑量低 (在 $\text{pH}>9$ 之條件下，約 1 Gy 即可生成)， I^- 可再與 $\cdot\text{I}$ 生成 I_2^- ，並進一步形成 I_3^- 錯合物 [8-11]，量測各劑量下 I_3^- 之吸收度即可得知吸收度與吸收劑量之關係。為避免水合電子與碘原子再結合，而增進碘原子轉換為 I_3^- 之效率，可使用電子消除劑 (electron scavenger; 如： IO_3^- 、 CCl_4 或 CHCl_3) 以與水合電子 (hydrated electron) 反應，此外，電子消除劑亦可與電子或其他反應物作用，生成其他氧化物，而使碘原子轉換為 I_3^- ，其中， IO_3^- 對水合電子之消除效率佳，可提高較夫瑞克化學劑量計約一個數量級之靈敏度 [1]，且非為管制藥劑，取得較容易，對臭氧層及人體也不致造成傷害 (CCl_4 或 CHCl_3 為高臭氧破壞潛能之化合物，且可致癌)。為進一步探討 KI 劑量計之特性，本研究利用 KIO_3 作為電子消除劑，改變 KI 濃度，觀察不同 KI 濃度下 I_3^- 之吸收度對 γ 光子劑量的回應，並探討添加微米及奈米金微粒後，KI/ KIO_3 劑量計之吸收度對 γ 光子劑量回應之變化情形，以提高 KI/ KIO_3 劑量計之應用價值。

材料與方法

試藥配製

將 KI 溶液配製成 0.2、0.4、0.6、0.8、1.0 M 等濃度，加入 KIO_3 使其濃度為 0.1 M，並加入 Borax 使其濃度為 0.01 M。測量所配置溶液之密度 (ρ)。奈米金粒子配製：取 1000 ppm 之奈米金溶液 (祥大科技股份有限公司)，抽取 1 mL 加入離心管 1.5 mL，以 13000 rpm 高速離心後移去上層溶液後備用。微米金粒子配製：取 0.1 g 之微米金粉末，加入 100 mL D.W.，抽取 1 mL 加入離心管 1.5 mL，以 13000 rpm 高速離心後移去上層溶液後備用。

化學劑量計對輻射劑量之回應線性範圍及 G 值的測量

將已校正過之游離腔偵檢器及所配製之 KI/KIO₃ 溶液置於固定位置，以 ⁶⁰Co 射源照射之，量測該位置之吸收劑量[D(Gy)]。測量配製溶液之吸收度 (A) 並計算吸收係數 (ϵ) 及 G 值 (G value) [12-13]。改變 KI 之濃度，量測錯合物吸收度及 G 值對 γ 射線劑量之回應。

添加金微粒之影響

添加所配製之金微粒於 KI/KIO₃ 溶液，以 X 射線照射游離腔偵檢器及 KI/KIO₃ 劑量計；由於添加金微粒將影響 KI/KIO₃ 溶液之吸收波長及吸收度，故照射完之 KI/KIO₃ 溶液先移至離心管，經高速離心使金微粒沈澱之後，吸取上清液置於石英比色槽，測量吸收度。比較添加前後之吸收度及 G 值變化。

結果與討論

[KI]/ 0.1 M KIO₃ 溶液與其密度之關係

KI/KIO₃ 化學劑量計溶液在不同 KI 濃度下之 pH 及密度如表 1 所示。結果顯示其密度隨 KI 濃度緩慢增加，而 pH 值則緩慢降低 (表 1)。

表 1 KI/0.1 M KIO₃ 溶液之物理特性

[KI] (M)	0.2	0.4	0.6	0.8	1.0
密度 (g/mL)	1.00	1.02	1.02	1.08	1.10
pH (21.0°C)	9.35	9.34	9.29	9.26	9.18

KI/KIO₃ 化學劑量計在 Co-60 照射後吸收度變化情形

A. 未添加金微粒:

KI/KIO₃ 溶液在 352 nm、400 nm、426 nm 及 450 nm 處可找到吸收峰。當 KI 濃度為 0.2 M 及 0.4 M 時，在各吸收波長處之吸收度低於偵測極限，而當 KI 濃度為 0.6 M、0.8 M 及 1.0 M 時，I₃⁻ 在 352 nm 處之吸收度均隨吸收劑量 (0-20 Gy) 增加而成線性增加，且當 KI 濃度增加時，其靈敏度隨之增加，如圖 1。

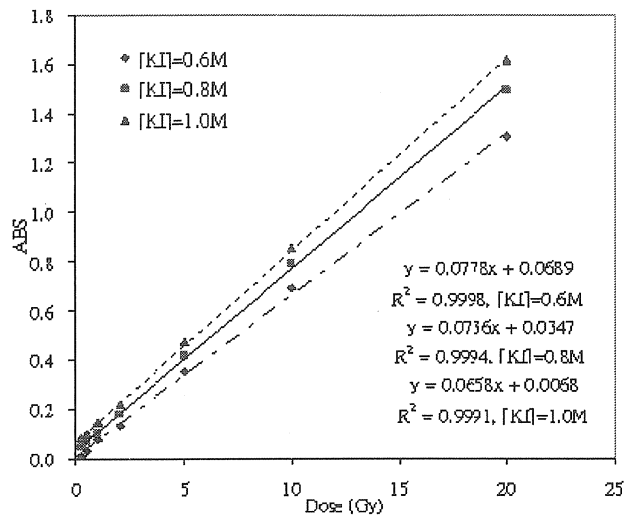


圖 1 不同濃度 KI 在低 γ 光子照射下，I₃⁻ 在 352 nm 處之吸收度隨吸收劑量變化之情形。

當延伸至更高劑量時，可發現 KI(0.6M, 1.0M)/KIO₃ 化學劑量計在 352 nm、400 nm、426 nm 及 450 nm 處之靈敏度隨波長增加而逐漸降低，但其線性範圍則逐漸增加，如圖 2。此外，在 352 nm、400 nm、426 nm 處之 I₃ 吸收度均隨吸收劑量增加而成線性增加，終而達到平衡值 [圖 2(A)-(C)]; 在 352 nm 處，KI(0.6M, 1.0M)/KIO₃ 在低劑量 (0-50 Gy) 下之線性範圍均良好，其中，當 KI 濃度為 1.0 M 時，其吸收度較其他濃度時為大，且在低劑量 (0-20 Gy) 下其線性(linearity)佳 (R²=0.9998) (圖 1-圖 2)，適合低劑量量測，然而，在其他波長之吸收，其線性則很快地降低，如圖 3，由此可見，低劑量之量測以配製 1.0 M KI 並使用 352 nm 處之吸收峰為佳。此時，其 G 值之計算結果如表 2 所示。

此外，由圖 4 可發現，各波長吸收峰之吸收度與吸收劑量之間，在某些劑量下存在對數線性關係，且在波長較長處之吸收峰可用於量測更高之劑量；在 352 nm 處之吸收峰適於量測 100 Gy 以下之 γ 光子劑量，400 nm 處之吸收峰適於量測 100-170 Gy 之劑量，426 nm 處之吸收峰適於量測 100-400 Gy 以下之劑量，而 450 nm 處之吸收峰適於量測 100-1000 Gy 之 γ 光子劑量，線性範圍廣闊。

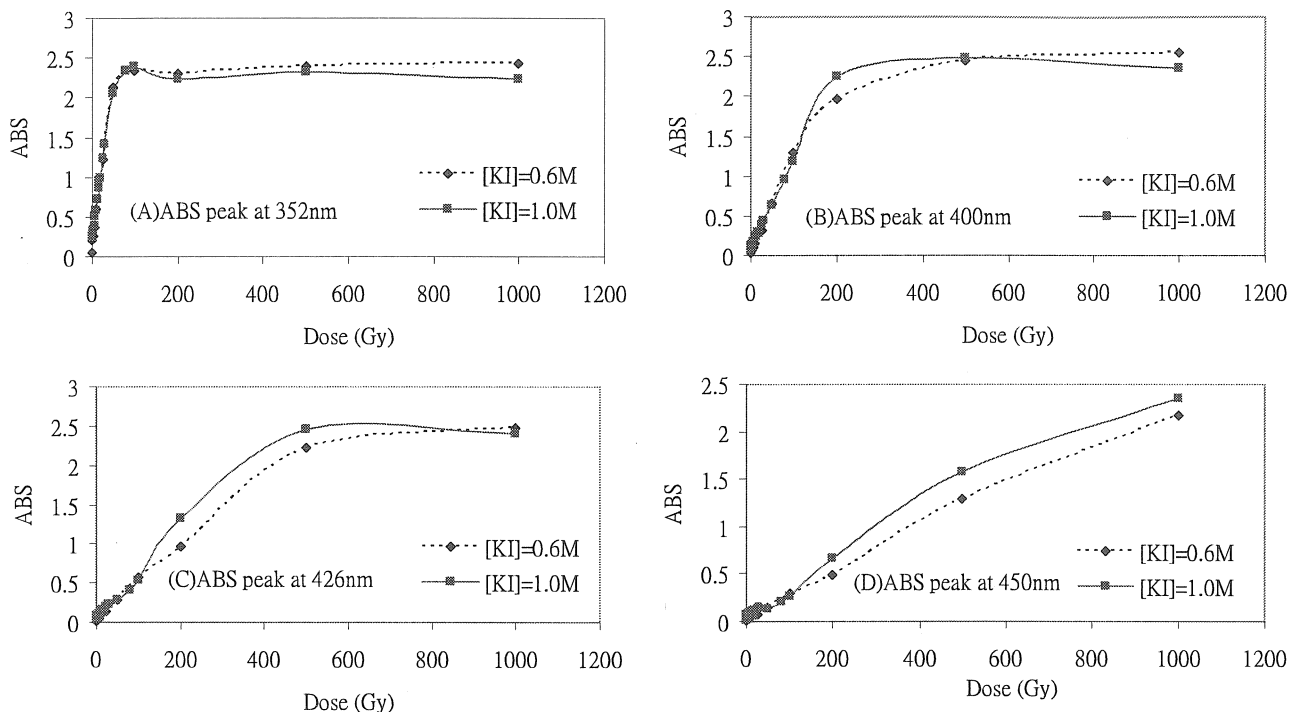


圖 2 不同 KI 濃度(0.6 M 及 1.0 M) 經 Co-60 照射後，在不同吸收峰所量測到之 I_3^- 吸收度隨吸收劑量變化之情形。

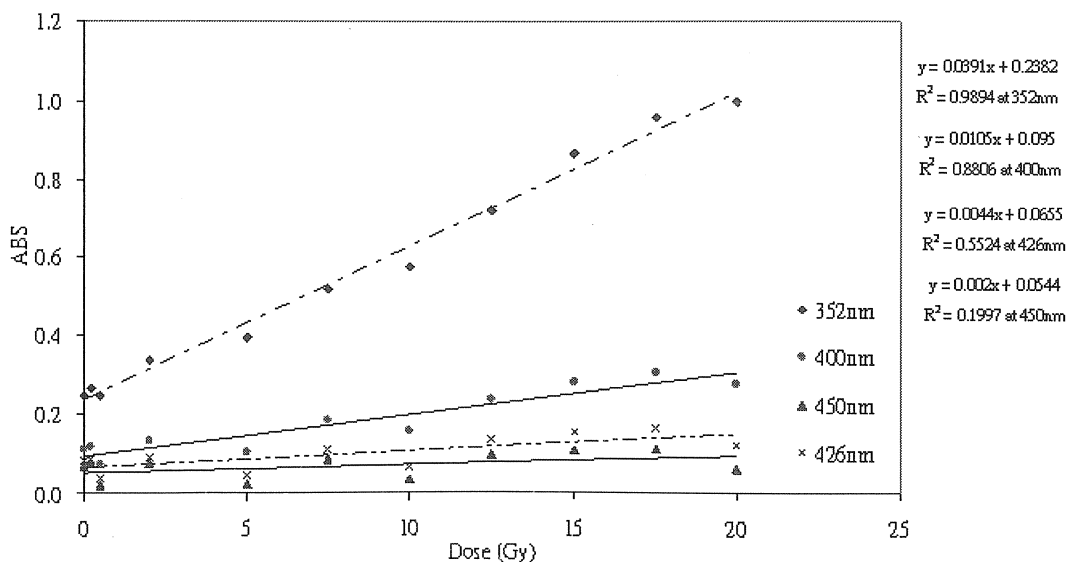


圖 3 KI 濃度為 1.0M 時，在低劑量下 I_3^- 吸收度隨吸收劑量變化之情形。

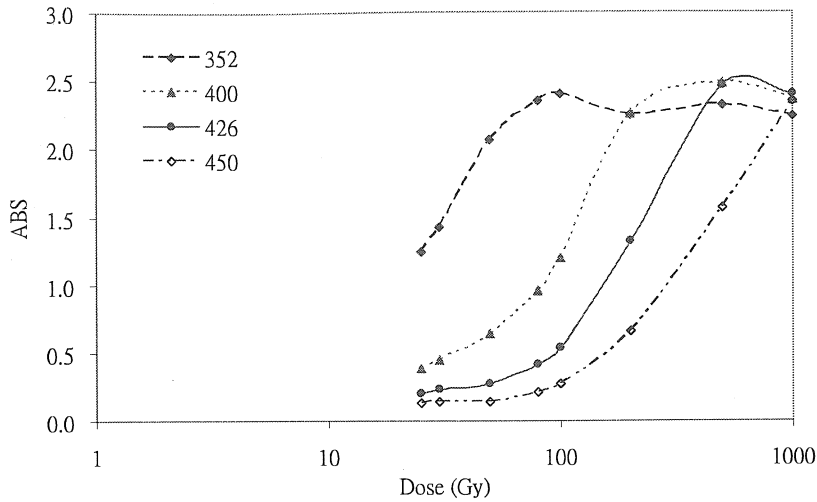


圖 4 KI 濃度為 1.0M 時，在高劑量下 I_3^- 吸收度隨吸收劑量變化之情形。

在 0.6 M KI/KIO₃ 之化學劑量計中 molar absorptivity coefficient (ϵ) 在 352 nm 處為 27600 Lmol⁻¹cm⁻¹，由式(1) 及表 1 之密度，可求得在不同劑量之 G 值 (表 2)，由其可發現在低劑量 (≤ 20 Gy) 下，劑量愈低 G 值愈高。

$$\begin{aligned}
 [I_3^-] (\text{number / kg}) &= \frac{A}{\epsilon b} (\text{mol / L}) \times \frac{6.02 \times 10^{23}}{\rho (\text{g / cm}^3) \times 10^{-3} (\text{kg / g}) \times 1000 \text{ cm}^3 / \text{L}} \\
 &= \frac{6.02 \times 10^{23} A}{\epsilon b \rho} \\
 D &= \frac{6.02 \times 10^{23} A / \epsilon b \rho (\text{number / kg})}{G (\text{number / 100 eV})} \times 1.6 \times 10^{-19} (\text{J / eV}) \\
 &= \frac{9.632 \times 10^4 A}{\epsilon b \rho G} (\text{Gy}) \\
 \therefore G &= \frac{9.632 \times 10^4 A}{\epsilon b \rho D} (\text{number / 100 eV}) \quad \text{式 (1)}
 \end{aligned}$$

表 2 1.0M KI/KIO₃ 化學劑量計在不同劑量下 (線性範圍內) 之 G 值 (由 352 nm 處之 $\epsilon=27600$ L mole⁻¹ cm⁻¹，450 nm 處之 $\epsilon=16561$ L mole⁻¹ cm⁻¹ 求出)

劑量 (Gy)	0.2	0.5	2.0	5.0	7.5	10	12.5	15	17.5	20
G 值 352 nm	703.2	265.4	89.6	42.0	36.7	30.5	30.6	30.5	28.9	26.3
450 nm	120.6	13.9	12.2	NA	3.7	1.1	2.5	2.3	2.1	1.0

B. 添加微米金微粒後:

KI(1.0M)/KIO₃ 化學劑量計添加微米金微粒後對於 Co-60 劑量之回應如圖 6 所示，在線性範圍內，吸收度與吸收劑量不再呈現對數線性關係。在 352 nm 處之吸收值在較低劑量 (500 Gy 以下)，其線性較佳，適於量測較低劑量，且其線性範圍可延伸至 500 Gy，劑量大於 500 Gy 後，吸收值變化趨於穩定。在 400 nm 處之吸收值存在兩個線性範圍，分別為 50-200 Gy 及 200-500 Gy，其中，前者之吸收度較高，後者則較低，靈敏度亦以後者較佳。而在較長之吸收波長 (426 及 450 nm) 處，當劑量低於 500 Gy 時，其吸收值線性較差，但隨著波長增加，在高劑量之線性隨之增加，且線性範圍隨之增廣，但靈敏度則降低，顯示添加微米金微粒之 KI/KIO₃ 化學劑量計適合以較長之波長 (426 及 450 nm) 量測較高劑量。KI(1.0M)/KIO₃ 化學劑量計添加微米金微粒後在 352 及 450 nm 處之吸收之 G 值如表 3 所示，顯示在 352 nm 處之 G 值在 500 Gy 時最高，在 1000 Gy 時仍無明顯變化；而在 450 nm 處之 G 值以 200 Gy 時最高，而後緩慢降低。

$\epsilon=16561 \text{ L mole}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ 求出)

劑量 (Gy)	50	100	200	500	1000
G 值 352nm	0.125	0.265	0.700	2.12	2.11
450nm	0.888	0.857	1.055	0.996	0.746

C. 添加奈米金微粒後:

添加奈米金微粒後之 KI(1.0 M)/KIO₃ 化學劑量計對於 Co-60 劑量之回應如圖 7 所示；在 352 nm 處之吸收度與未添加奈米金微粒前相近 (>2.0)，但在所有劑量下其吸收度變化很小，不適合用於量測吸收劑量。而在較長之吸收波長 (400、426、450 nm) 處，當劑量增加時，其吸收度漸漸增加，終而達穩定值，且隨著波長增加，其靈敏度降低但線性範圍隨之增加，顯示添加奈米金微粒之 KI/KIO₃ 化學劑量計適合以較長之波長 (450 nm) 量測劑量；其中，400 nm 處之吸收波長適合量測 200 Gy 以下之吸收劑量，426 及 450 nm 處之吸收波長均適合量測 500 Gy 以下之吸收劑量，但前者之靈敏度較高，而後者之線性範圍則可向更高劑量延伸。添加奈米金微粒後之 KI(1.0 M)/KIO₃ 化學劑量計在 352 nm 處之 G 值如表 4 所示，顯示在 352 及 450 nm 處之 G 值均隨劑量增加而提高，而前者之 G 值在 500 Gy 時最高，在 1000 Gy 時稍微降低；而在 450 nm 處之 G 值以 1000 Gy 時最高。

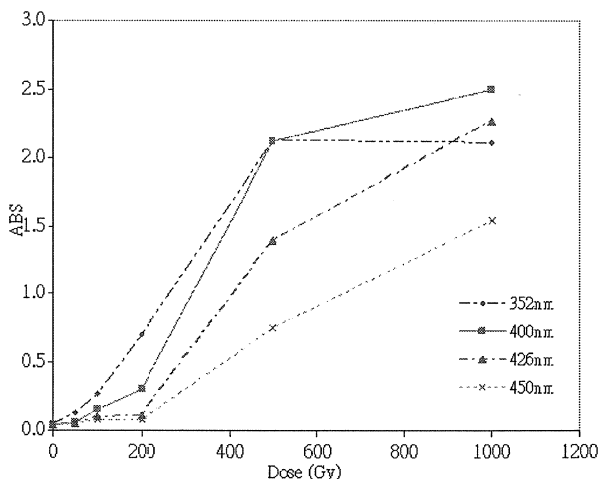


圖 6 添加微米金微粒之 KI(1.0M)/KIO₃ 化學劑量計經 Co-60 照射後，I₃ 吸收度隨吸收劑量變化之情形。

表 3 添加微米金微粒之 KI(1.0M)/KIO₃ 化學劑量計後經 Co-60 照射後在不同劑量下 (線性範圍內) 之 G 值 (由 352nm 處之 $\epsilon=27,600 \text{ L mole}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ ，450nm 處之

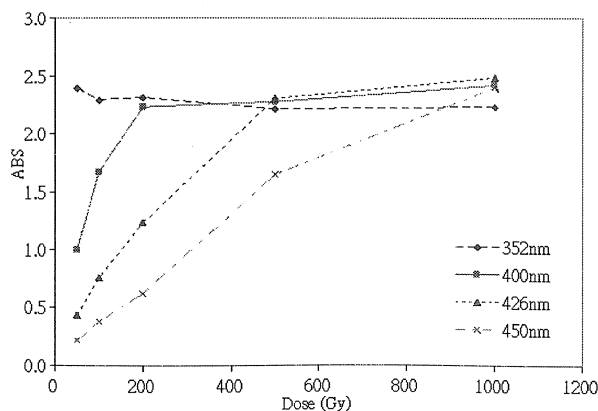


圖 7 添加奈米金微粒之 KI(1.0M)/KIO₃ 化學劑量計經 Co-60 照射後，I₃ 吸收度隨吸收劑量變化之情形。

表4 KI(1.0M)/KIO₃化學劑量計添加奈米金微粒後在不同劑量下(線性範圍內)之G值(由352 nm處之 $\epsilon=27,600 \text{ L mole}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ 求出)

劑量 (Gy)	50	100	200	500	1000
G 值 352nm	1.33	1.40	1.85	2.25	2.11
450nm	0.055	0.077	0.076	0.753	1.54

結論

KI/KIO₃劑量計有無毒性、易取得、便宜、線性範圍佳之優點，添加微米金微粒後，可增廣其線性範圍，而添加奈米金微粒後，KI/KIO₃化學劑量計適合以較長之波長(450 nm)量測劑量，且隨著波長增加，其靈敏度降低但線性範圍增廣，使KI/KIO₃劑量計可配合添加微米或奈米金微粒而延伸其應用之劑量範圍。

參考文獻

- Rahn, O.R., Gerstenberg, H.M., Vavrina, G.A., 2002. Dosimetry of ionizing radiation using an iodide/iodate aqueous solution. *Appl. Radiat. Isot.* 56, 525-534.
- Fricke, H., Morse, S., 1927. Ferric dosimeter for measuring radiation dose. *Am. J. Roentgenol. Radium Ther. Nucl. Med.* 18, 430-432.
- Sharf, K., Lee, R.M., 1962. Investigation of the spectrophotometric method of measuring the ferric ion yield in the ferrous sulfate dosimeter. *Radiat. Res.* 16, 115-124
- AAPM (1983). A protocol for the determination of absorbed dose from high-energy photon and electron beams. *Med. Phys.* 10, 741.
- ICRU (1984). *Radiation Dosimetry: Electron Beams with Energies Between 1 and 50 MeV*. ICRU Report 35, International Commission on Radiation Units and Measurements, Bethesda, MD, USA.
- Matthews, R.W., Wilson, J.G., 1981. Chemical dosimetry at less than 1000 rad: aqueous trimesic acid solution. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 32, 295-301.
- Kahn, H.M., McLaughlin, W.L., 1992. Gamma-ray dosimetry by spectrometry of phenylacetic acid solution. *Radiat. Phys. Chem.* 29(3), 243-249.
- Sellers, R.M., 1977. A view of the radiation chemistry of iodine compounds in aqueous solution. Central Electricity Generating Board, Berkeley, UK, Berkeley Nuclear Labs, June 1977, pp. 1-28.
- Lin, C., 1980. Chemical effects of gamma radiation on iodine in aqueous solutions. *J. Inorg. Nucl. Chem.* 42, 1101-1107.
- Ishigure K., Shiraishi, H., Okuda, H., Fujita, N., 1986. Effect of radiation on chemical forms of iodine species in relation to n nuclear reactor accidents. *Radiat. Phys. Chem.* 28(5,6), 601-610.
- Ishigure, K., 1988. The effect of radiolysis on the chemical forms of iodinespecies in relation to nuclear reactor accidents. In: Fielden, E.M., Fowler, J.F., Hendry, J.H., Scott, D. (Eds.), *Radiation Research 2*. Taylor and Francis, London, pp. 205-211.
- Randolph, M. L., 1969. Measurement and properties of ionizing radiation. In; *Physical Techniques in Biological Research*, Vol. II. Academic Press Inc., N.Y., pp. 1-115.
- Johns, H. E.,Cunningham, J. R., 1983. Chemical dosimetry. In: *the Physics of Radiology*, 4th Edition. Thomas, Springfield, IL, pp. 320-323.

Application of γ -photon Dose Measurement with KI/KIO₃ Dosimeter Added with Nano/Micro Gold Particles

*Chun-Chih Lin¹ Kun-Long Wu² Wei-Chung Liu³ Yu-Fen Huang¹

¹Department of Natural Biotechnology/Institute of Natural Healing Sciences, Nanhua University

² Department of Radiological Technology, Yuanpei University

³Department of Radiological Technology, Tzu-Chi College of Technology

Abstract

This research aimed to investigate the response of absorbance of KI/KIO₃ dosimeter irradiated by γ rays before and after adding micro/nano gold particles. The variation of linearity and G values were also investigated to probe the effect of micro/nano gold particles on characteristics of KI/KIO₃ dosimeter. The results indicated that the KI/KIO₃ solution has absorption peaks at 352, 400, 426 and 450 nm. Before added with gold particles, the absorption of I₃⁻ at 352 nm increased linearly with absorbed dose (0–20 Gy). Absorption at 352 nm was relatively better in measuring lower dose (≤ 20 Gy) when 1.0 M KI was prepared for the dosimeter. The G values decreased with dose (≤ 20 Gy) at 352 nm peak. At measuring higher dose (> 20 Gy), the absorbance increased with dose in a logarithm relationship. Peaks at longer wavelengths were suitable for higher dose measurement, and the linear range was wide. Among them, the peak at 352 nm could be used to estimate γ -ray dose lower than 100 Gy, while that at 450 nm was adequate for 100–1000 Gy. After micro gold particles were added, the relationship between absorption and dose was no longer logarithmic. At dose lower than 500 Gy, the linearity was better at 352 nm, and the range could be extended to 500 Gy. Two linear ranges existed in 50–200 Gy and 200–500 Gy. At longer absorption wavelengths (426 and 450 nm), the linearity promoted with dose and the linear range extended with wavelength, indicating that longer wavelength (450 nm) was fitting for higher dose survey with KI/KIO₃ dosimeter added with micro gold particles. Among the wavelengths, 400 nm was suitable for dose less than 200 Gy, while 426 and 450 nm were fitting for that lower than 500 Gy; the linear range for the later could be extended to higher doses. The G values at 352 and 450 nm were maximum at 500 and 1000 Gy, respectively, and then decreased slightly. The response of KI(1.0 M)/KIO₃ dosimeter added with nano gold particles to γ photons was similar to original KI(1.0 M)/KIO₃ solution at 352 nm (> 2.0); however, the absorbance variation was too slight to be used for measurement. At longer absorption wavelengths (400, 426 and 450 nm), the sensitivity lowered while the linear range increased, indicating that the KI(1.0 M)/KIO₃ dosimeter added with nano gold particles was suitable for dose measurement with longer wavelength (i.e., 450 nm). Among the wavelengths, 400 nm was suitable for measuring dose less than 200 Gy, while 426 and 450 nm were fitting for that lower than 500 Gy; the linear range of the latter could be extended to higher doses. Moreover, the G values at 352 and 450 nm increased with doses and reached the maximum respectively at 500 and 1000 Gy.

Keyword: dose, dosimeter, radiolysis, potassium iodide, nano gold