Printed in the Republic of Korea
ANALYTICAL SCIENCE & TECHNOLOGY
Vol. 24, No. 6, 414-420, 2011
http://dx.doi.org/10.5806/AST.2011.24.6.414

방사선 측정기의 품질관리 기법에 대한 고찰

송병철★ · 김영복 · 오세진 · 한선호 · 이명호 · 송규석
한국원자력연구원
(2011. 9. 29. 접수, 2011. 11. 28. 수정, 2011. 12. 6. 승인)

Investigation on the techniques of quality control for radiation counting systems

Byoung Chul Song★, Young Bok Kim, Sun Ho Han, Se Jin Oh, Myung Ho Lee and Kyuseok Song
Korea Atomic Energy Research Institute, Daedeokdaero 1045, Yuseong-gu, Daejeon
(Received September 29, 2011; Revised November 28, 2011; Accepted December 6, 2011)

요 약: 본 연구에서는 알파선, 베타선 및 감마선 방출 핵종에 대한 검출기를 선정하여, 방사성 시료의 핵종분석을 위한 방사선 측정 시스템을 연구하고 구성하였다. 그리고 알파, 베타 및 감마 측정 시스템에 대한 검출효율을 교정하였다. 방사선 검출기에 대한 안정도를 확보하기 위해 품질관리 프로그램이 확립되었다. 또한 분석결과에 대한 신뢰도를 확보하기 위해 시료유형에 따른 최소검출방사능을 구하였다.

Abstract: In this study, radiation measurement system has been investigated to set up for the radioisotopes analysis in the radioactive waste samples after selecting the radiation counters of alpha beta and gamma nuclides. The counting efficiencies for alpha, beta and gamma measurement systems were calibrated. To obtain stability of the radiation detectors, quality control program has been established. Also, minimum detectable activities (MDAs) depending on the type of samples were calculated for increasing the confidence level for analytical result.

Key words : radiation counter, quality control, radioactivity measurement

1. 서 론

방사성 시료에 함유하고 있는 방사성 핵종들로부터 방출되는 α, β 및 γ선의 세기를 측정하기 위하여 표면장벽 검출기, 이온비례계수기, 액체섬광계수기, 고체섬광계수기 및 반도체 검출기 등이 사용된다. 핵종에 따라 방출되는 방사선의 종류나 에너지 그리고 시료의 물리적 형태에 따라 측정 방법이 달라질 수 있으며, 시료에서 방출되는 방사능을 측정하기 위한 각 측정기들의 측정 한계는 시스템의 기하학적 구조, 측정시간, 백그라운드, 검출기의 분해능 및 핵종들의 특성에 따라 달라질 수 있다.[1]

시료에서 방출되는 감마선을 측정하기 위한 감마선 분광분석기는 순수 게르마늄 검출기, 전치 증폭기, 주증폭기 및 다중채널분석기로 구성 된다. 순수 게르마늄 검출기는 반도체 검출기로서 p형과 n형이 있으며,

★ Corresponding author
Phone : +82-(0)42-868-4704 Fax : +82-(0)42-868-8148
E-mail : nbcsong@kaeri.re.kr

www.kci.go.kr

이 검출기에서 전자 정공 쌍을 만드는데 필요한 에너지는 2.9 eV (Ge)로 기체검출기에 대한 이온화 에너지 약 30 eV 보다 10 배 정도 작고, 밀도는 1,000 배 정도 크므로 기체 검출기 보다 방사선의 검출효율이 우수하다. 전치 증폭기는 검출기 신호 전압을 1차 증폭시켜주고, 주 증폭기와의 임피던스를 정합(matching)하고, 출력펄스를 짧은 펄스로 변화시킨다. 주 증폭기는 검출기 신호를 계수기에서 검출하기에 적합한 크기로 증폭하고, 신호 펄스를 정형화한다. 다중채널분석기는 선형증폭기로부터 출력되는 펄스 신호를 펄스의 높이별로 분류하여 수집하고 베타선의 세기를 측정하기 위하여 low background 알파/베타 계수기가 사용되며, 검출기로 사용되는 비례계수관은 이온함보다 높은 전압이 인가되기 때문에 관내에서 가스 증배가 발생하여 상대적으로 큰 펄스가 생성된다. 알파선과 베타선을 동시 계수하는 경우, 인가전압에 따른 계수관의 특성이 달라서 서로 다른 구간에서 플라토우를 형성하므로 베타선과 분리하여 알파선만을 계수할 수 있다.

액체섬광계수기는 용액 형태의 시료를 직접 사용할 수 있고, 검출효율이 뛰어나며, 다수의 시료를 동시에 알파선 및 베타선 핵종에 대하여 측정할 수 있다는 장점으로 인하여 널리 사용되고 있다.

실제 채취된 시료는 회화, 산 분해, 침출 등 전처리 과정을 통하여 용해되고, 각각의 핵종에 따라서 이온교환수지법, 침전법 및 용매추출법등을 사용하여 핵종별로 복잡한 화학적 분리 과정을 거치고 나서, 핵종에 따라 선정된 방사선 측정기에 의해 방사능이 측정된다. 따라서 시료의 유형과 시료에서 방출되는 방사선의 종류 및 에너지에 의존하여 측정기 선정이 이루어져야 하며, 분석방법 및 측정기를 선정할 때 핵종의 수, 방사선의 종류와 에너지 등 물리적 성질, 시료의 화학조성 및 물리적 형태, 모 핵종과 딸핵종의 붕괴사슬과 대상핵종의 반감기 및 방사능 준위 등이 고려되어야 한다.

본 연구에서는 알파, 베타 및 감마 방출 핵종에 대하여 측정 가능한 측정기를 선정하였으며, 각각의 방사성 핵종분석을 위하여 방사능 측정 시스템을 구성하였고, 방사능 측정 시스템의 바탕값 및 검출효율을 주기적으로 측정하고 품질관리를 위한 관리도를 작성하여, 측정기의 안전성을 확보하고 분석결과에 대한 신뢰도를 향상시키고자 하였다. 또한 각 측정기의 바탕값 및 검출효율로부터 측정기의 최소검출방사능 농도를 설정하였다.

2. 실 험

2.1. 방사성 표준선원

감마선 분광분석기의 바탕값 및 검출효율을 교정하기 위하여 방사성 표준선원으로 실린더 형 혼합선원(01-Apr-2010, 10MIX414, KRISS)을 사용하였으며, 액체섬광계수기의 바탕값 및 검출효율을 교정하기 위한 방사성 표준선원으로는 PerkinElmer에서 시판되는 background standard (Jan-2009, PPN 6008511, PPN 6008511, PerkinElmer), unquenched ^{3}H standard (274,000 dpm, 20-Oct-2009, PPN 6008500) 및 unquenched ^{14}C standard (127,200 dpm, 20-Oct-2009, PPN 6008500)를 사용하였다.

또한 low background 알파/베타 계수기의 검출효율을 교정하기 위하여 방사성표준 선원으로 An Eckert & Ziegler Co.에서 시판되고 있는 ^{210}Po 2" planchet 알파선원(631 Bq, 01-Jan-2009, GG472) 및 ^{90}Sr 2" planchet 베타선원 (506 Bq, 15-Dec-2008, S-134)을 이용하였다.

2.2. 방사능 측정 시스템

2.2.1. 감마선분광분석기

방사성 시료의 감마 방출 핵종을 분석하기 위한 감마선분광분석기는 p형 반도체 검출기(GEM-30185-P, EG & G), 주 증폭기(672, EG & G) 및 다중채널파고분석기(919, EG & G)로 구성되었다. 또한 감마선 스펙트럼 측정 시 누설 전류를 방지하기 위하여 검출기 외부에 설치한 대용량 액체질소 통(180 L)을 스테인리스 스틸 관으로 연결하였다.

감마선분광분석기(HPGe, EG&G ORTEC)의 전원을 켜고, 검출기의 전압을 검출기의 특성에 따라 3500 V로 천천히 올렸다. 방사선원을 검출기 위에 올려 놓고 검출기에서 나오는 신호를 다중채널파고기에 의하여 확인하고 신호의 크기 및 에너지를 다중채널파고기의 증폭기 이득을 조절하여 coarse gain 50 그리고 Fine gain을 0.9로 조절하였다.[4]

2.2.2. Low background 알파/베타 계수기

알파선 및 베타선을 방출하는 핵종의 방사능 세기를 측정하기 위하여 기체비례계수기를 사용하였으며 low background 알파/베타 계수기의 동작전압을 설정하기 위하여 알파선원을 이용하여 인가 전압을 0~1,200 V까지 30 V씩 올리면서 계수율을 측정하여 알파 플라토우 그라프를 그리고 슬로프가 2.5% 이하인 지점을 알파 측정의 인가 전압으로 설정하였다. 또

www.kci.go.kr

한 베타선원을 이용하여 인가 전압을 600~1,620 V까지 30 V씩 올리면서 계수율을 측정하여 베타 플라토우 그라프를 그리고 슬로프가 2.5% 이하인 지점을 베타 측정의 인가 전압으로 설정하였다. 또한 바탕값 및 검출효율을 측정하여 시스템을 최적화하였다.[5,6]

2.2.3. 액체섬광계수기

알파 및 베타 방출 핵종 분석을 위한 액체섬광계수기는 두개의 광전자 증배관과 동시계수 회로로 구성되어 있다. 액체섬광계수기의 전원을 켜고 background 표준물, unquenched ^{3}H 및 ^{14}C 표준물을 이용하여 SNC (self normalization counting)을 실행하여 광전자 증배관의 전압을 조절하였다. 본 연구에서는 계수영역, vial의 크기와 형태, cocktail의 선택, 측정시간, 바탕값 등에 대하여 최적의 조건을 확립하여 액체섬광계수기 시스템을 최적화하였다.

2.3. 방사능 측정기의 바탕값 측정

감마선 분광분석기의 바탕값 측정을 하기 위하여 감마분광분석기(HPGe, EG&G ORTEC)의 전원을 켜고 검출기가 정상 작동하는지 확인하고 납 차폐체안에 시료가 없는 상태에서 일정시간(10,000 sec) 동안 감마선 스펙트럼을 측정하여 다중채널파고기의 전 채널에 대한 바탕값을 얻었다.

Low background 알파/베타 계수기의 동작전압을 알파모드에서 690 V, 알파/베타 동시 모드에서 1,470 V로 설정하였고, 알파 및 알파/베타 동시모드에서의 각각 50분씩 10회 측정하여 평균 바탕값을 구하였다.

또한 액체섬광계수기의 바탕값 측정을 위하여 background 표준물(PPN 6008511, PACKARD)을 이용하여 ^{3}H은 0~18.6 keV, ^{14}C은 0~156 keV 영역에서 각각의 바탕값을 얻었다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 방사능 측정기의 교정

3.1.1. 감마선분광분석기의 검출효율

측정하려는 시료와 같은 기하학적 구조를 갖는 혼합감마선 표준용액을 검출기에 올리고 일정시간 동안 측정하여 감마선 스펙트럼을 얻었다. 표준선원의 감마선 스펙트럼을 이용하여 다중채널파고기의 채널에 따른 에너지 교정곡선을 *Fig.* 1에 나타내었고, 저 에너지 및 고에너지에 따른 검출효율 교정곡선을 *Fig.* 2에 나타내었다.

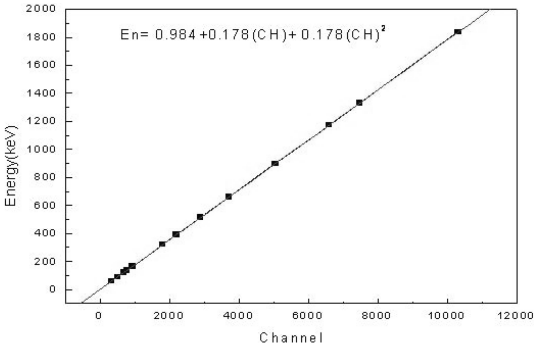

Fig. 1. Energy calibration curve measured with mixed gamma standard source.

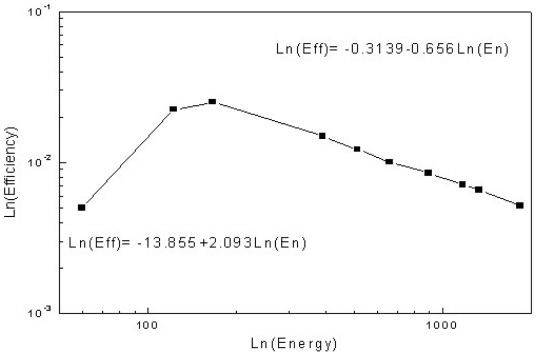

Fig. 2. Efficiency calibration curve measured with mixed gamma standard source.

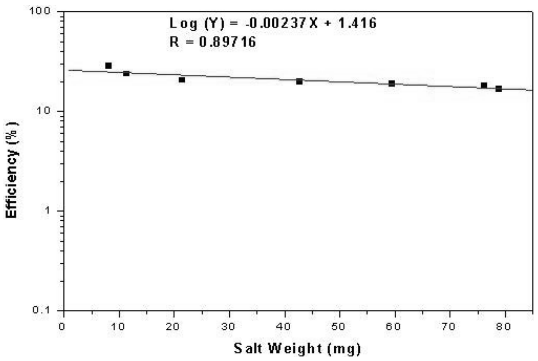

Fig. 3. Efficiency calibration curve of gross alpha with salt weight.

3.1.2. Low background 알파/베타 계수기의 검출효율

^{210}Po 및 ^{90}Sr 방사선원을 이용하여 low background 알파/베타 계수기의 염의 무게에 따른 검출효율을 *Fig.* 3 및 *Fig.* 4에 나타내었다.

3.1.3. 액체섬광계수기의 검출효율

소광 효과에 따른 검출효율을 교정하기 위하여 10

www.kci.go.kr

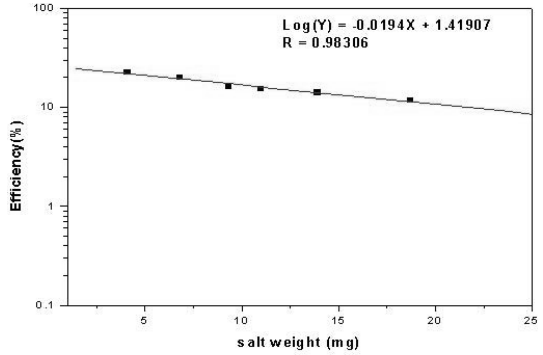

Fig. 4. Efficiency calibration curve of gross beta with salt weight.

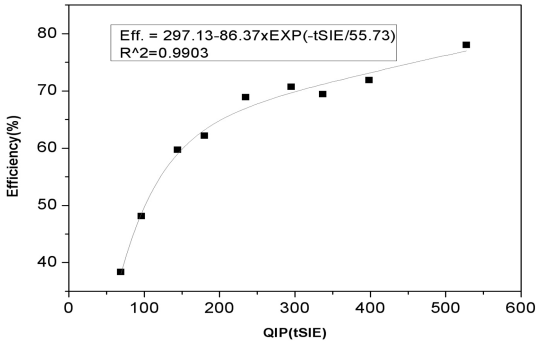

Fig. 6. Efficiency calibration curve for 14C with quenching effect.

개의 20 mL 바이알에 섬광체로서 ultima gold XR 15 mL를 넣고, ^{3}H 방사성 표준물(285,200 dpm, 06-Jun-2009)을 일정하게 넣은 후 소광체로서 니트로메탄을 점진적으로 증가시켜 ^{3}H 소광 표준물을 제조하였다. 또한 ^{14}C 소광표준물 역시 10개의 20 mL 바이알에 섬광체로서 permafluore 10 mL와 carbasorb 10 mL를 넣고, ^{14}C 방사성 표준물(128,200 dpm, 03-Jul-2009)을 넣은 후 소광체로서 니트로메탄을 점진적으로 증가시켜 ^{14}C 소광 표준물을 제조 하였다. ^{3}H 및 ^{14}C 소광 표준물을 이용하여 ^{3}H (0~18.6 keV), ^{14}C (0~156 keV) 영역에서 각각의 소광 정도에 따른 검출효율을 *Fig.* 5 및 *Fig.* 6에 나타내었다.

3.2. 방사능 측정기의 품질관리

3.2.1. 감마선분광분석기

감마선분광분석기의 품질관리를 위하여 감마선 혼합선원(^{241}Am/^{137}Cs/^{60}Co)을 이용하여 계수율, 반치폭(FWHM, full width half maximum) 및 실제 피크와 라이브러리 에너지 사이의 차이 등을 측정하였으며 이를 이용하여 관리도를 작성하고 1σ, 2σ 및 평균값을 표시하였다. 이때 *Fig.* 7에서 보인 바와 같이 바탕값의 평균은 2.59±0.11 cps 이었으며, 표준시료에 대한 평균 방사능은 $1.63\times10^{6}\pm2.40\times10^{4}$ Bq로 대부분의 측정값이 2σ 이내에서 크게 벗어나지 않음을 나타냈다. 또한 분해능의 지표인 FWHM 비는 0.99±0.03로 거의 일정함을 나타내었다.

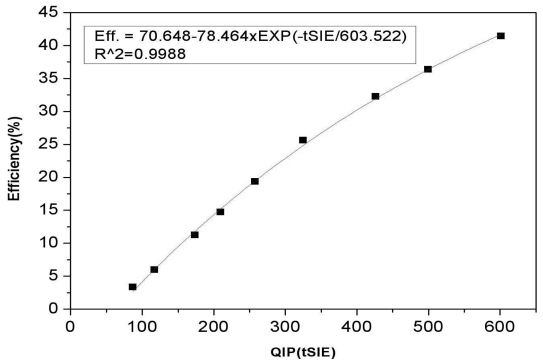

Fig. 5. Efficiency calibration curve for 3H with quenching effect.

3.2.2. Low background 알파/베타 계수기

Low background 알파/베타 계수기의 품질 관리를 위하여 low background 알파/베타 계수기를 동시 모드에서 동작 전압을 1,500 V로 설정하고 바탕값을 50분씩 측정하였으며, 이 측정값을 이용하여 *Fig.* 8에서 나타낸 바와 같이 관리도를 작성하고 1σ, 2σ 및 평균값을 표시하였다. 이때 알파 바탕값의 평균은 0.16±0.09 cpm 이었고, 알파선 검출효율은 39.3±0.95% 이었으며 베타 바탕값은 0.90±0.23 cpm 이었으며, 베타선 검출효율 46.5±1.08% 이었다.

3.2.3. 액체섬광계수기

액체섬광계수기에 의한 ^{3}H 및 ^{14}C에 대한 관리도를 작성하기 위하여 unquenched 표준물(^{3}H, ^{14}C 및 BKG series, PerkinElmer)를 이용하여 ^{3}H 및 ^{14}C 영역에서의 바탕값, 검출효율, FOM (figure of merit) 및 χ(Chi-Square) 값을 구하여 *Fig.* 9 및 *Fig.* 10에 보인 바와 같이 관리도를 작성하고 1σ, 2σ 및 평균값을 나타내었다. 이때 ^{3}H 영역에서의 바탕값은 2.85±0.37 cpm 이고 검출효율은 58.5±0.49% 이었으며 ^{14}C영역에서의 바탕값은 3.72±0.39 cpm 이었고 검출효율은 95.3±0.29% 이었다.

www.kci.go.kr

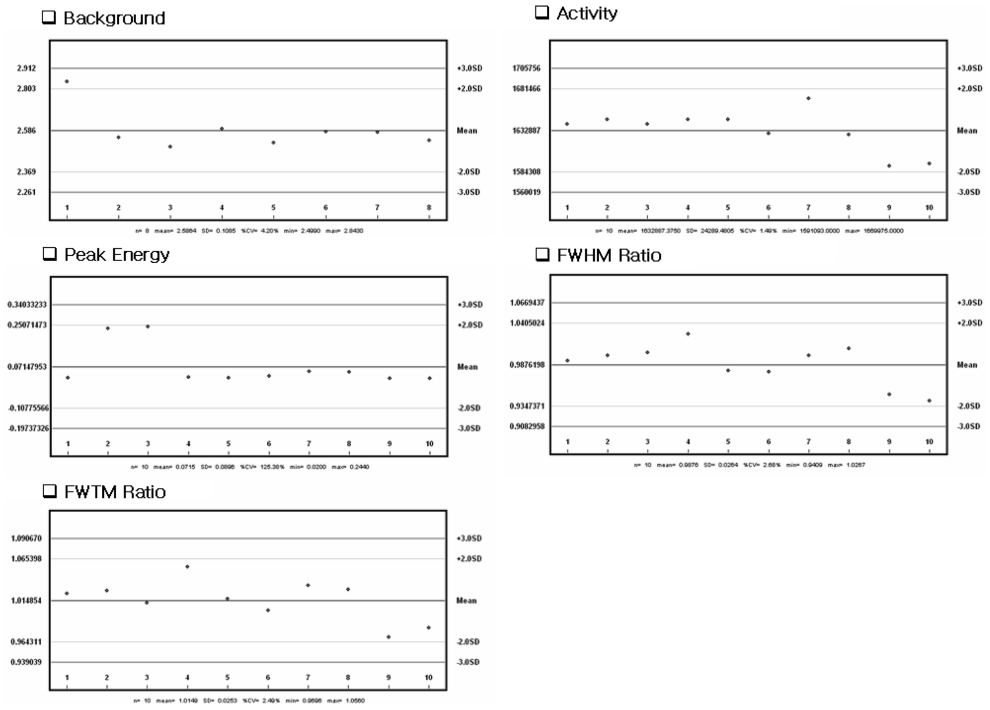

Fig. 7. Quality control charts for gamma ray spectrometer.

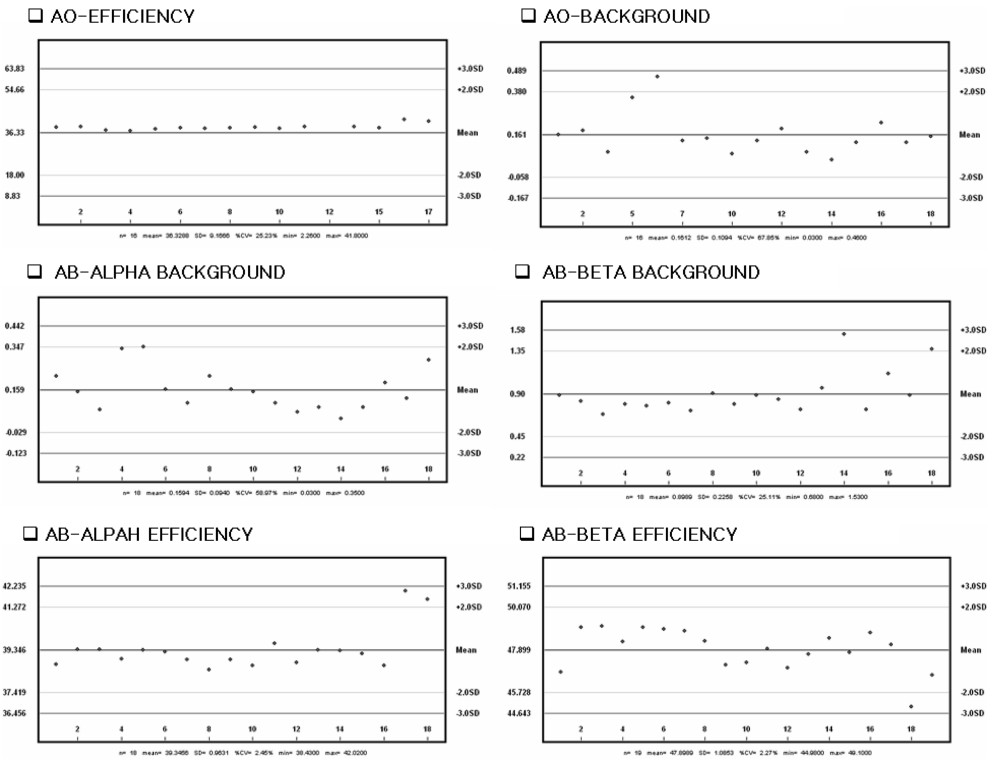

Fig. 8. Quality control charts for low background alpha/beta counting system.

www.kci.go.kr

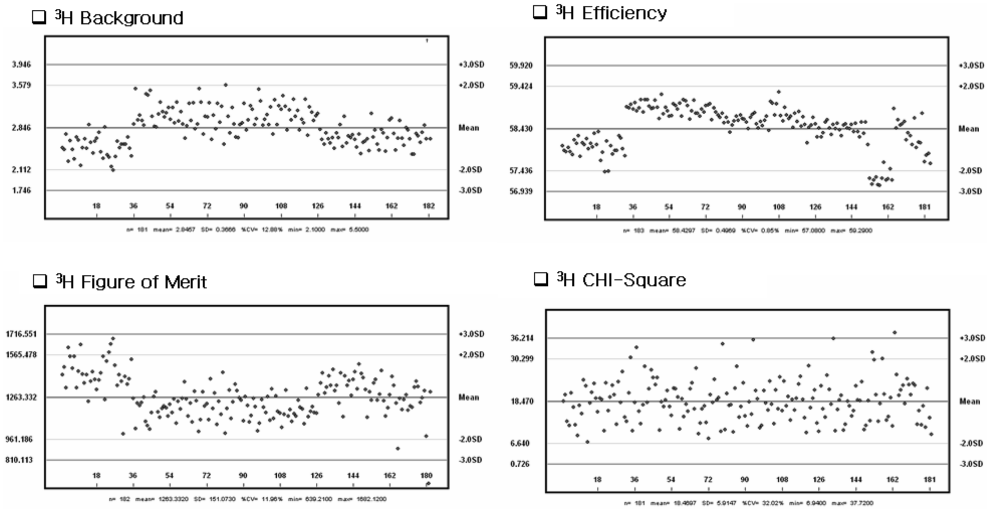

Fig. 9. Quality control charts for ^{3}H in liquid scintillation counter.

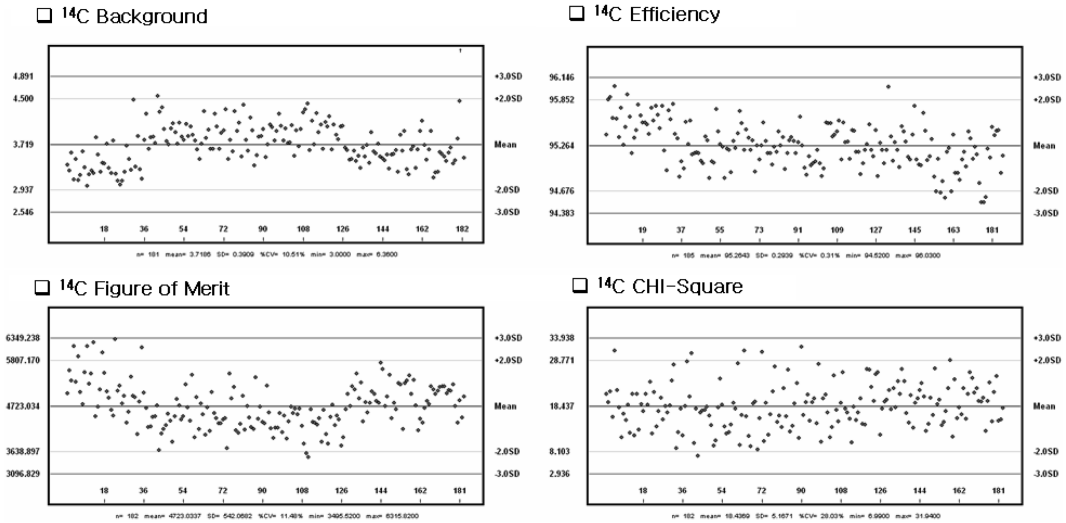

Fig. 10. Quality control charts for ^{14}C in liquid scintillation counter.

3.3. 방사능 측정기의 최소검출방사능(Minimum Detectable Activity, MDA)

감마선 분광분석기의 최소검출방사능은 NUREG 4.16에서 정의된 방법을 사용하였다.[7]

$$P = \frac{2.71 + 4.66 \times \sigma_b}{LT}$$

$$\sigma_b = \sqrt{\frac{(bkg) \times (peak width)}{(width\ of\ low\ ave. + width\ of\ high\ ave.)}}$$

여기서, P = 피크 계수율, σ_b = 배경 계수율의 오차이다.

예로서 방사성 시료 0.2 g을 20 mL의 산에 용해한 후 용해용액 20 mL를 감마선 분광분석기를 이용하여 10,000 sec 동안 바탕시료에 대하여 방사능을 측정 하였을 경우에 ^{137}Cs 영역에서의 검출 한계는 3.2 Bq/g 이었다.

Low background 알파/베타 계수기에서 알파/베타 동시모드에서 50분간 측정하였을 때, 알파와 베타의 바탕값은 0.2 cpm, 베타 0.9 cpm 이었으며, 전알파와 전 베타의 검출효율은 각각 36.4%, 46.5% 이었다. 방사성 시료 0.2 g을 20 mL의 산에 용해한 후 1 mL를 취하여 측정 하였을 때 최소검출방사능은 알파영역에서 1.9 Bq/g 이었고 베타영역에서 3.7 Bq/g 이었다.[8]

액체섬광계수기의 최소검출방사능을 구하기 위하여

www.kci.go.kr

바탕값을 측정 하였을 때, ^{3}H 영역에서 바탕값은 2.5 cpm 이고 검출효율은 58.5% 이었으며 방사성폐기물 0.2 g을 20 mL의 산에 용해한 후 1 mL를 취하여 50 분간 측정하였다면 최소검출방사능은 3.1 Bq/g 이었으며, 또한 ^{14}C영역에서의 바탕값은 3.7 cpm 이었고 검출효율이 95.3% 일때 최소검출방사능은 2.2 Bq/g 이었다.

4. 결 론

방사능 측정기의 품질관리를 위하여 주기적으로 바탕값, 검출효율 등을 측정하고 관리도를 작성함으로써 측정기의 안전성을 확보하였고, 방사성 시료에 대한 방사능 측정 신뢰도를 향상시켰다. 감마선분광분석기의 바탕값의 평균은 2.59±0.11 cps 이었으며, 표준 시료에 대한 평균은 $1.63\times10^{6}\pm2.40\times10^{4}$ Bq로 거의 2σ 이내에서 크게 벗어나지 않았다. low background α/β 계수기의 알파 바탕값의 평균은 0.16±0.09 cpm이고 알파선 검출효율은 39.3±0.95% 이었으며 베타 바탕값은 0.90±0.23 cpm 이고 베타선 검출효율 47.9±1.08% 이었다. 또한 액체섬광계수기는 ^{3}H영역에서 바탕값이 2.85±0.37 cpm, 검출효율 58.5±0.49% 이었으며 ^{14}C영역에서의 바탕값은 3.72±0.39 cpm 이었고 검출효율은 95.3±0.29% 이었다. 또한 이들로부터 각 측정기의 최소검출방사능을 결정함으로써 방사성 시료의 방사능 측정 가능 여부를 가늠할 수 있었다. 감마선분광분석기의 최소검출방사능은 ^{137}Cs 영역에서 3.2 Bq/g, low background 알파/베타 계수기는 알파 및 베타 영역에서 각각 1.9 Bq/g, 3.7 Bq/g 이었으며 액체섬광계수기는 ^{3}H영역에서 3.1 Bq/g, ^{14}C영역에서 2.2 Bq/g로 각각 나타났다. 본 연구에서는 검출 한계를 낮추고자 저준위 측정 시스템을 도입 하였으며 이를 이용하여 향후 시료량 및 측정시간을 적정 분배하고 주위의 바탕값을 가능한 한 낮추어 최소검출방사능을 낮게 설정함으로써 시료의 측정 가능한 범위를 확대하는 실험을 계속 진행할 계획이다.

참고문헌

1. Michael F. L'Annunziata, A Handbook of Radioactivity Analysis, 1st Ed., pp. 316-318, Academic press, San Diego, 1998.
2. J. A. Cooper, Factors Determining the Ultimate Detection Sensitivity of Ge(Li) Gamma-Ray Spectrometers, North Holland Publishing Co, 273-277 (1970).
3. ASTM D: 3648-03, “Standard Practices for the Measurement of Radioactivity”.
4. ASTM D: 3649-98a, “Standard Practices for High Resolution Gamma Ray Spectroscopy of Water”.
5. ASTM D: 1943-96, “Standard Test Method for Alpha particles Radioactivity of Water”.
6. ASTM D: 1890-96, “Standard Test Method for Beta particle Radioactivity of Water”.
7. C. W. Thomas, V. W. Thomas and D. E. Robertson, Radioanalytical Technology for 10 CFR Part 61 and Other Selected Radionuclides, U. S. Nuclear Regulatory Commission NUREG/CR-6230, 1998.
8. M. H. Lee, Y. H. Cho, G. S. Choi, C. W. Lee and H. S. Shin, *Anal. Sci. Technol.*, **14**, 64-71 (2001).

www.kci.go.kr