

Manufacture of a Gamma-ray Source using the Neutron Activation and Determination of a HPGe Detector Efficiency

Bum-Kyoung Seo · Kil-Yong Lee* · Yoon-Yeol Yoon*
and Kune-Woo Lee

Korea Atomic Energy Research Institute,
*Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources

중성자 방사화법을 이용한 감마선원 제조 및 HPGe 검출기 효율 결정

서범경 · 이길용* · 윤윤열* · 이근우

한국원자력연구소, *한국지질자원연구원

(2003년 9월 5일 접수, 2004년 1월 30일 채택)

Abstract - In order to save time and money needed in the purchase commonly used gamma-ray standard sources, a new radioactive standard source was manufactured by the neutron activation of some reagent in the research reactor HANARO. The source was manufactured with an aqueous solution by mixing and dissolving the irradiated reagents. The manufactured source was compared with a commercial standard source. It was confirmed that it could be used as an efficiency calibration source. Also, in order to compare the variation of efficiency due to the volume difference for various containers used in radioactivity assay, the efficiency variation as a function of sample volume was investigated.

Key words : standard source, efficiency calibration, neutron activation, HPGe detector

요약 - HPGe 검출기를 이용한 방사능 분석 시 효율교정을 위하여 통상적으로 사용하는 상용의 감마선 표준선원을 구입하는데 따르는 금전적인 문제와 장기간의 소요시간 등의 문제를 해결하기 위하여 본 연구에서는 표준선원을 직접 제작하였다. 측정하고자 하는 에너지 영역의 감마선을 방출하는 핵종이 포함된 시약을 원자로에서 조사시켜, 방사화된 시약을 수용액 상태로 만들어 표준선원을 제조하였다. 제조한 방사선원을 상용의 표준선원과 비교하였으며, 효율교정용 선원으로 사용할 수 있다는 것을 확인하였다. 또한 일상적인 방사능 분석과정에서 발생할 수 있는 표준선원과 측정 시료의 부피 차이에 따른 측정 효율의 변화정도를 조사하기 위하여, 방사능 분석에서 사용되고 있는 다양한 측정용기에 대하여 표준선원의 부피 변화에 따른 효율의 변화정도를 조사하였다.

중심어 : 표준선원, 효율교정, 중성자 방사화, HPGe 검출기

서 론

방사능 분석에서 선행되어야 할 것 중의 하나는 측정용기와 동일한 기하학적인 모양의 표준선원을 이용하여 검출기의 정확한 효율을 결정하는

것이다. 검출기의 효율교정은 표준선원에서 방출된 감마선 당 검출기에 기록된 광전 피크의 계수인 절대 효율의 항목으로 나타내는 것이 일반적 방법이다. 검출기 효율결정에 이용하고 있는 표준선원은 측정하고자하는 전체 에너지 영역을

포함하는 단일 감마선 방출핵종들로 이루어진 다중핵종 표준선원이나[1], 몇가지 감마선을 방출하는 단일핵종 표준선원이다[2-4]. 이들 표준선원의 방사능은 불감시간 보정과 펄스중첩 및 우연동시 계수에 기인하는 오차를 줄이기 위하여 대략 계수율이 초당 2000인 것을 선택한다. 효율교정용 표준선원은 기하학적 용기의 크기와 물질의 밀도가 측정하고자 하는 시료와 동일해야 한다.

측정하고자 하는 목적에 따라 다양한 종류와 크기의 측정용기들이 있다. 이들 중에서 가장 일반적으로 사용되고 있는 것은 원통형과 Marinelli 비커형이다. 그러나 실제 측정에 이용할 경우 가장 적합한 용기는 사용 가능한 시료량, 시료 밀도, 관심 에너지 그리고 시료를 계측하는데 사용될 Ge 검출기의 크기와 모양 등 여러 가지를 고려하여야 한다. 또한 Ge 검출기도 다양한 크기와 모양이 있다. 심지어 같은 상대효율을 가지는 검출기라고 하여도 실제적인 모양은 다르다. 상대효율은 ANSI/IEEE Std. 325-1986에 따라 모든 Ge 검출기 제작자에 의해 계산된다[5-6]. 그러나 이 값은 정확한 검출기 모양을 정의하지는 않는다. 왜냐하면, 상대효율은 같은 에너지의 선원과 기하학적 배치에 대한 가상의 3×3 in. NaI(Tl) 검출기 끝단면으로부터 25 cm에 위치한 축 상의 ^{60}Co 점선원 1332.5 keV 감마선에 대한 효율을 나타내기 때문이다.

저준위 방사능 분석은 농도가 낮기 때문에 많은 양의 시료가 요구된다. 즉, 이러한 체적시료의 경우는 자체흡수 효과를 포함한 검출기의 전에너지(full energy) 피크효율을 정확히 결정하여야 하는데, 효율 교정시의 표준선원과 측정하고자 하는 시료는 기하학적 모양뿐만 아니라 물리적 및 화학적으로 동일해야 한다. 그러나, 모든 측정시료에 대하여 동일한 표준선원을 제조하여 효율을 구한다는 것은 불가능하기 때문에, 대부분의 실험실에는 수용액 상태의 표준선원을 구입하여 측정용기에 대한 효율을 산출하고, 이 측정효율을 다양한 형태와 밀도의 시료에 그대로 적용하므로써 측정의 정확도를 낮추는 원인이 되기도 한다.

일반적으로 검출기의 효율교정은 여러 가지 핵종이 포함된 상용의 방사선 표준선원을 구입하여 각 실험실의 용도에 맞게 희석하여 사용한다. 그러나 이들 표준선원은 비싼 가격으로 인하여 매번 구입하여 사용하기는 어려울 뿐만 아니라 실험목적에 따라서는 적합한 표준물질을 구하기도 어렵다. 또한 표준선원의 제조사가 모두 국외 기업이기 때문에 주문 후 실험에 사용하기까지는

상당한 시일이 요구된다.

이러한 이유로 본 연구에서는 효율교정에 적합한 핵종이 포함된 시약을 연구용 원자로(HANARO)에서 중성자로 방사화시켜 방사선원을 제작하였다. 제작한 선원을 이용하여 방사능 분석에 이용하고 있는 HPGe 검출기의 효율을 결정하였으며, 상용의 표준선원을 이용하여 측정된 효율과 비교하였다. 또한 체적시료의 경우 측정하고자 하는 시료량과 동일한 표준선원을 이용하여 효율을 교정하는데, 여기서는 원통형 측정용기에 대하여 선원의 양을 변화시키면서 부피별 계측 효율을 결정하였다. 또한 항상 일정한 시료를 담을 수 있는 Marinelli 비커에 대해서는 시료를 채우는 과정에서 발행할 수 있는 시료량의 차이로 인한 계측효율의 차이를 평가하였다.

재료 및 방법

감마선 분광기에 의하여 측정된 시료의 방사능은 다음의 식으로 주어진다.

$$A = \frac{(N - B) - (N' - B')}{T \cdot I_{\gamma} \cdot \epsilon}$$

여기서 A 는 측정시료의 방사능(단위, Bq)이고, N 은 피크 에너지 영역($E_1 < E < E_2$)에서 계수치이며, B 는 같은 에너지 영역에서 연속 백그라운드 계수치를 나타낸다. 그리고, N' 와 B' 는 시료가 없을 때, 같은 시간동안의 N 과 B 이며, T 는 측정 시간, I_{γ} 는 붕괴광자의 방출률을 나타내며, ϵ 는 광자 에너지에 대한 검출기 효율을 나타낸다.

효율교정용으로 방사능 분석실험실에서 많이 사용되고 있는 것은 하나 또는 두 개의 감마선을 방출하는 여러 가지 핵종으로 이루어진 표준선원이다. 그러나 이들 표준선원은 가격이 비싸고 주문 후 많은 시간이 소요되기 때문에 실험 때마다 매번 구입하여 사용하기는 어려운 실정이다. 이러한 문제를 해결하기 위하여 본 연구에서는 연구용 원자로인 하나로서 중성자로 조사하여 방사화시킨 시약을 사용하여 방사선원을 제작하였다. 하나로는 한국원자력연구소의 30 MW급 고성능 다목적 연구용 원자로로서 높은 중성자속(고속중성자 2.1×10^{14} n/cm²·sec, 열중성자 5.4×10^{14} n/cm²·sec)을 가진다. 표 1에 방사화시킨 시약과 용매 등을 나타내었다. 이들 시약들은 시중에서 쉽게 구입할 수 있는 것들이며, 원자로에서 핵반

Table 1. Reagents and solvents for synthesis of the new standard source.

Nuclides	Reagent	Solvent
¹⁴⁷ Nd	Nd ₂ O ₃	Nitric acid
¹⁴¹ Ce	Ce(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	Water
¹³⁴ Cs	Cs ₂ CO ₃	Water
⁶⁰ Co	CoCl ₂	Water

응 단면적 및 중성자속 등의 실험조건 등을 고려하여 약 1분간 조사시킨 후, 용매(질산 또는 물)로 녹인 후 혼합하여 선원으로 제작하였다. 제작한 선원을 이용하여 방사능 분석에 주로 사용하고 있는 3가지 측정용기(55 mL cylindrical, 450 및 1000 mL Marinelli beaker)에 대하여 HPGe 검출기의 효율을 교정한 후, 기존의 한국표준연구원에서 제작·공급한 표준선원과 비교하였다.

또한 제작한 선원을 이용하여 측정시료의 기하학적인 조건에 따른 HPGe 검출기의 효율을 교정하였다. 부피별 효율교정을 위하여 제작한 선원을 원통형 측정용기(직경 60 mm)에 20 mL부터 60 mL까지 부피를 변화시키면서 측정하였다. 또한,

Marinelli 측정용기에 대해서도 효율을 교정하였는데, Marinelli 용기는 항상 일정한 양의 시료를 담을 수 있도록 부피가 정해져있다. 그러나, 용기에 시료를 채우는 과정에서 시료양의 차이가 날 수 있기 때문에 부피에 따른 오차를 평가하기 위하여, 450 mL 측정용기는 420 mL부터 470 mL까지 10 mL 씩 부피를 증가시키면서 효율의 변화 정도를 살펴보고, 1000 mL 측정용기는 940 mL부터 1040 mL까지 20 mL 씩 부피를 증가시키면서 효율의 변화 정도를 조사하였다.

측정시 통계오차를 1% 미만으로 줄이기 위하여 용기별로 3000초에서 10000초까지 측정하였으며, 매 측정마다 5회 반복 측정하였다.

결과 및 고찰

방사선원의 제조

효율교정용 선원으로 사용하기 위하여 하나에서 중성자로 조사시켜 방사화된 시약을 적절한 용매로 녹인 후 수용액 상태의 표준용액을 제조하였으며, 방사화된 시약의 방사능 농도를 조절하기 위하여 시약의 핵반응 단면적과 조사시간 등을 계산하여 조사시킬 시약의 무게를 결정하였다.

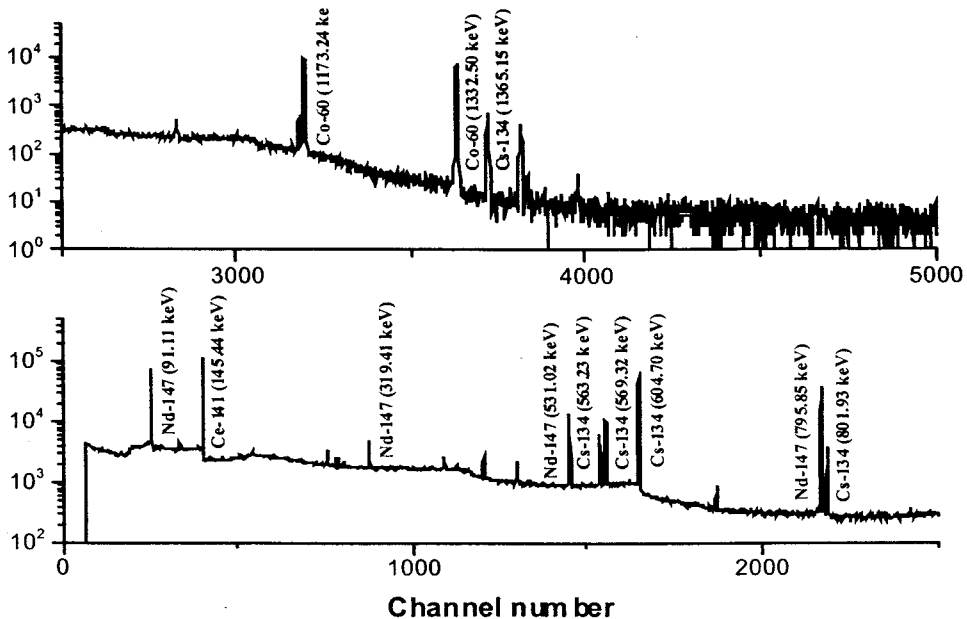


Fig. 1. γ -Ray spectrum of the newly manufactured standard source solution measured by the HPGe detector.

그림 1은 제조한 감마선 표준용액을 HPGe 검출기를 이용하여 측정된 스펙트럼을 나타낸 것이다. 일반적인 방사능 분석에서 이용되고 있는 에너지 영역에 걸쳐(<3 MeV) 다양한 감마선을 포함한다는 것을 알 수 있다. 또한 효율계산에 사용한 광전피크는 표 2에 나타내었다. 제조 표준선원은 표 2에 나타난 에너지 이외의 다른 감마선도 방출하지만, peak sum 효과와 같은 보정을 요하는 경우가 많기 때문에 효율계산에서는 제외하였다. 또한 시약 중에서 포함된 측정대상 이외의 핵종의 방사화에 의한 간섭은 이들 핵종의 반감기가 수초 이내이기 때문에 무시할 수 있었다. 제조한 방사선원의 정확한 방사능을 결정하기 위하여, 기존에 5% 오차 범위 이내로 교정된 검출기에서 방사능을 결정하였고, 제조한 방사선원의 방사능을 검정한 결과도 7% 오차범위 이내라는 것을 확인하였다.

HPGe 검출기 효율 교정용 표준선원에서 고려되어야 할 감마선으로는 측정하고자 하는 전에너지 영역에 대하여 에너지가 골고루 분포하는가와 효율교정 곡선의 knee 부분인 140 keV 에너지 영역을 포함하는 감마선이 있느냐하는 것이다. 또한 핵종들의 반감기도 충분히 긴지를 고려하여야 한다. 현재 상용 표준선원으로 많이 사용되고 있는 다중핵종 감마선 표준선원의 핵자료는 표 3에 나타내었다. 전에너지 영역에 걸쳐 다양한 감마선을 포함할 뿐만 아니라 효율곡선의 knee 영역에 대해서도 3 개의 감마선을 포함하고 있으며, 반감기도 ^{203}Hg 의 46.6 일을 제외하고는 100일 이상으로서 충분히 길다. 그러나, 본 연구에서 제조한 선원의 경우, ^{147}Nd 의 반감기가 10.98 일로서 상대적으로 짧으며, knee 부근의 에너지도 Ce-141의 145.44 keV 감마선 하나 밖에는 존재하지 않는다.

Table 2. Nuclear data of the new standard source.

Nuclides	Half-life	Photon energy (keV)	Emission rate (%)	Radioactivity (Bq/mL)
^{147}Nd	10.98 d	91.11	27.90	13.0
		531.02	13.09	
^{141}Ce	32.50 d	145.44	48.20	8.8
^{134}Cs	2.06 y	604.70	97.56	9.6
		795.85	85.44	
^{60}Co	5.27 y	1173.24	99.88	3.6
		1332.50	99.98	

Table 3. Nuclear data of a commercial standard source.

Nuclides	Half-life	Photon energy (keV)	Emission rate (%)
^{109}Cd	436 d	88.03	3.6
^{57}Co	272.4 d	122.07	86.5
		136.43	10.6
^{139}Ce	137.7 d	165.85	79.9
^{203}Hg	46.6 d	279.17	81.5
^{113}Sn	115.1 d	391.69	64.2
^{137}Cs	30.17 y	661.66	85.2
		898.02	95.0
^{88}Y	106.7 d	1836.01	99.35
		1173.24	99.88
^{60}Co	5.27 y	1173.24	99.88
		1332.50	99.98

상용의 표준선원에 비하여 실험에 사용할 수 있는 기간이 짧다는 것과 중간 에너지 영역에서 충분한 효율 값을 주지 않는다는 단점은 있지만, 실험의 필요성에 의하여 바로 제조할 수 있다는 것과 구입비용의 절감 등 장점을 들 수 있겠다. 제조한 선원의 방사능 농도는 측정시의 불감시간 및 측정시간 등을 고려하여 각 핵종에 대하여 3.6 ~ 13 Bq/mL 정도로 조절하였다.

상용과 제조 방사선원의 비교

그림 2, 3 그리고 4는 HPGe 검출기의 전에너지 피크효율을 제조한 방사선원과 상용의 표준선원을 이용하여 측정한 결과를 비교한 것이다. 그림 2는 원통형 비커에 대한 효율을 비교한 것이고, 그림 3은 450 mL Marinelli 비커, 그리고 그림 4는 1000 mL Marinelli 측정용기에 대한 효율을 나타낸 것인데, 열린 점들은 상용의 표준선원을 이용하여 얻은 효율을 나타낸 것이며, 실선은 열린점들을 다항식 짜맞춤(fitting)한 값이다. 그림에서 닫힌 점들은 원자로에서 조사한 시약을 이용하여 제조한 방사선원을 이용하여 측정한 효율을 나타낸 것이다. 제조한 방사선원과 상용의 표준선원을 이용하여 측정한 효율은 10% 오차범위 이내에서 잘 일치하였다. 본 연구에서 제작한 방사선원을 이용하여 각 측정용기에 대한 효율을 교정하고, 교정된 효율을 상용의 다중핵종 감마선 표준선원에 적용하여 구한 방사능 값이 표준선원 인증값과 10% 이내의 오차범위로 일치한다는 것을 확인하였다. 이는 제조한 방사선원을 이용하여도 기존의 상용의 표준선원과 비교하여 큰 오차 없이 교정용 선원으로 사용할 수 있다는 것을 의미한다. 즉, 원자로에서 조사한 시약을 사용하여 교정용 선원으로 제작하여 사용한다면 경제적인 뿐만 아니라 시간적으로도 많은 이득이 있으며, 부피변화와 밀도변화와 같은 다양한 실험에 적합한 형태의 방사선원을 제조할 수 있다는 것을 알 수 있다.

방사능 분석 대상 시료의 양이 항상 측정용기에 채울 수 있을 정도로 충분한 것은 아니다. 이러한 다양한 체적시료에 대하여서 시료부피에 따른 효율을 결정하여야 한다. 여기서는 일반적으로 방사능 분석에서 가장 많이 사용되고 있는 원통형 측정용기에 대하여 부피에 따른 효율의 변화 정도를 조사하였다. 그림 5는 원통형 측정용기에서 시료량에 따른 계측효율의 변화 정도를 나타낸 것이다. 점들은 시료량에 따른 효율을 나타낸 것이고, 실선은 이들 점들을 2차 다항식으로 짜맞춤

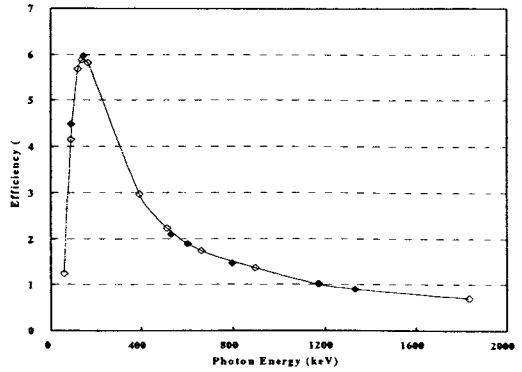


Fig. 2. Comparison of efficiency between the commonly used standard solutions(open mark) and the synthetic ones(closed mark) in the 55 mL cylindrical beaker.

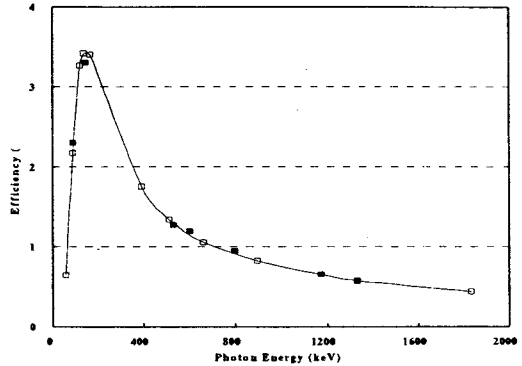


Fig. 3. Comparison of efficiency between the commonly used standard solutions(open mark) and the synthetic ones(closed mark) in the 450 mL Marinelli beaker.

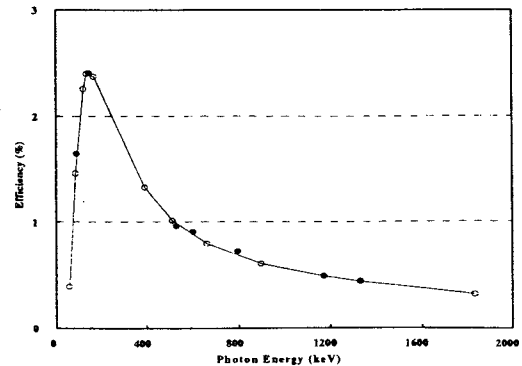


Fig. 4. Comparison of efficiency between the commonly used standard solutions(open mark) and the synthetic ones(closed mark) in the 1000 mL Marinelli beaker.

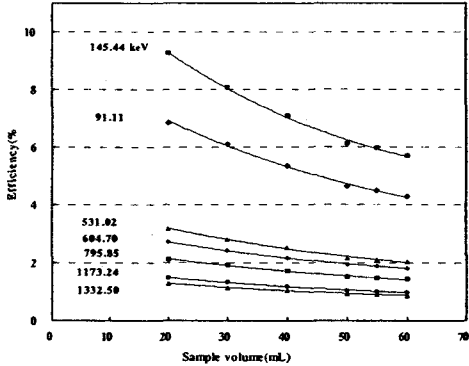


Fig. 5. Efficiency variation with sample volume in the cylindrical container.

(fitting)한 것이다. 전에너지 영역에 대하여 시료량이 증가할수록 효율은 감소하는 것을 볼 수가 있다. 직경 2" 원통형 용기에 표준선원을 채워서 부피에 따른 효율의 변화정도를 살펴본 결과, 에너지 영역에 따라서 효율의 감소정도는 차이가 나지만 시료량이 10 mL 정도(높이는 ~ 3.5 mm) 증가하므로써 효율은 대략 10%정도 감소하였다. 즉, 원통형 측정용기를 이용하여 방사능을 결정하고자 할 경우에는 각 측정시료의 부피에 대한 정확한 효율을 결정하여야 한다.

Marinelli 측정용기는 시료가 검출기를 둘러쌀 수 있는 기하학적인 구조이면서, 항상 일정한 양의 시료를 담을 수 있도록 만들어졌다. 그러나 시료 전처리 과정이나 용기에 채운 후에 시료량의 변화로 인하여 정해진 부피와 차이가 날 수도 있다. 또한 통상적인 측정업무를 수행하는 과정에서 정확한 시료량을 측정하지 않고 Marinelli 비커의 지시선까지 시료를 채우므로써 어느 정도의 오차는 불가피하다. 즉, Marinelli 비커에서 시료량의 차이로 인한 효율의 변화정도를 조사하였다. 먼저, 450 mL Marinelli 비커에 대해서는 420 mL에서 470 mL까지 10 mL(높이는 1 mm) 간격으로 부피를 변화시키면서 측정하였고, 1000 mL Marinelli 비커에 대해서는 940 mL부터 1040 mL까지 20 mL(높이는 1.3 mm) 간격으로 변화시키면서 측정하였다.

그 결과 450 mL Marinelli 비커의 경우는 측정시료의 양이 10 mL 정도 차이가 나면(전체시료량의 약 2%) 전에너지 영역에 대하여 효율의 변화정도는 대략 2% 미만이었으며, 1000 mL Marinelli 비커의 경우도 20 mL 정도의 시료량의 변화(2%)에 대한 효율의 변화정도도 마찬가지로

2% 미만이었다. 즉, 450과 1000 mL Marinelli 비커에서 시료량은 지시선까지 채워서 사용하기 때문에 시료량에 큰 차이는 없겠지만, 시료를 채우는 과정에서 발생할 수 있는 시료량의 차이로 인한 효율의 변화정도는 오차범위 이내의 값으로서 무시할 수 있을 정도이다.

결론

기존의 방사능 분석실험실에서 주로 사용하는 상용의 다중핵종 감마선 표준선원은 가격이 비쌌 뿐만 아니라 구입 절차와 장기간의 소요시간과 같은 많은 어려움이 있기 때문에, 본 연구에서는 원자로에서 중성자로 조사시킨 시약을 용매로 녹인 후 수용액 상태로 만들어 방사선원을 제작하였다. 측정 대상 이외의 핵종에 의한 간섭은 짧은 반감기로 무시할 수 있었으며, 방사능 농도는 핵자료와 조사시간 등을 고려하여 시료의 무게를 조절하여 결정하였다. 제조한 방사선원의 방사능 농도는 이미 교정된 검출기에서 결정하였으며, 자체 검증을 통하여 7% 오차범위 이내인 것을 확인하였다. 제작한 방사선원은 측정하고자 하는 전에너지 영역에 걸쳐 다양한 감마선을 포함하며, 실험의 필요에 맞도록 제조하여 사용할 수 있다는 것과 비용절감 등의 장점이 있다.

제작한 방사선원과 상용 표준선원의 HPGe 검출기에 대한 효율을 비교한 결과 10% 오차범위 이내라는 것을 확인하였다. 즉, 제조 방사선원을 이용하여 효율교정 후, 상용의 표준선원에 효율을 적용하여 구한 방사능 값은 인증값과 10% 오차범위 이내의 값이었다. 본 연구에서 제작한 방사선원을 사용하여 효율 계산에 이용하여도 상용의 표준선원과 비교하여 큰 차이가 없다는 것을 확인하였다.

제작한 표준선원을 이용하여 원통형 측정용기에 대해서는 시료부피별 효율을 결정하였으며, 시료량의 차이로 인한 효율의 변화 정도를 조사하였는데, 직경 2"의 원통형 용기에서 약 10 mL 시료량의 증가에 따라 효율의 감소 정도는 전에너지 영역에 대하여 약 10% 정도였다. 또한, Marinelli 측정용기의 경우는 지시선까지 시료를 채워서 측정하기 때문에 매 측정시마다 시료량에 큰 차이는 없겠지만, 약 2% 정도의 부피차이로 인한 효율의 변화정도는 2% 미만이었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. L. Moens and J. Hoste, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 34, 1085 (1983)
2. N. Navi, *Nucl. Instr. Meth.*, 116, 457 (1974)
3. R.J. Gehrke, R.G. Helmer, and R.C. Greenwood, *Nucl. Instr. Meth.*, 147, 405 (1977)
4. R.C. Greenwood, R.G. Helmer, and R.J. Gehrke, *Nucl. Instr. Meth.*, 159, 465 (1979)
5. EG&G ORTEC, "Modular Pulse-Processing Electronics and Semiconductor Radiation Detector", Oak Ridge (1998)
6. ANSI/IEEE std. 325-1986, "IEEE Standard Test Procedures for Germanium Gamma-Ray Detectors", IEEE (1986)