

Research on Measurement Condition Establishment of a Liquid Scintillation Counter System

Eung-seop Park · Sang-Jun Han · Seung-Jin Lee ·
Hee-Gang Kim · Na-Young Lee · Ji-Yeon Mun

Yeong-Gwang N.P.P Supervisory Center for Environment Radiation & Safety

액체섬광계수기 장비의 계측조건 확립에 관한 연구

박응섭 · 한상준 · 이승진 · 김희강 · 이나영 · 문지연

영광원전 환경·안전 감시센터

(2006년 8월 2일 접수, 2006년 8월 29일 채택)

Abstract - It is judged that there could be certainty in every process of analyzing environmental samples using Liquid Scintillation Counter. Therefore, this study focuses on quantitative evaluation on uncertainty in an effort to analyze comparatively accurately environmental samples. For this, after parameters which can have an effect on uncertainty was derived, the evaluation on each parameter was carried out. The results of analysis of each parameter showed that the effect according to the weight difference of Teflon vial did not appear, and that standard deviations of SQP(E) averages reached saturation point at 75~90 sec at the result of making increases step by step the irradiation time of External standard, and that values measured by repeat method produces good results compared with replicate. Also, conclusion was derived that analysis on sample after it is left in cold and dark room at least above 1,000 minutes have to be carried out, and the result of carrying out verification on results measured as well as equipment itself using radioactivity-error-analysis and chi-square test, resonable result was derived.

Key words : Liquid Scintillation Counter, Quenching correction, Sensitivity Index, Uncertainty, Chi-square test

요약 - 액체섬광계수기를 이용하여 환경시료를 분석하는 모든 과정에서 계측 조건 및 방법론 차이에 의한 불확실성이 존재할 수 있을 것으로 판단하여 본 연구에서는 이에 대한 평가를 정량적으로 수행함으로써 비교적 정확하게 환경시료를 분석하고자 하였다. 이를 위해 결과에 영향을 미칠 수 있는 변수를 도출한 후 각 변수에 대한 영향을 평가한 결과, 분석시료를 제조하는 과정에서의 인적 및 물리적인 불확실성은 무시할 정도로 미미하였고, 측정용기의 무게 차이에 따른 영향은 나타나지 않았다. 외부선원의 조사시간을 단계적으로 증가시킨 결과 시간이 증가함에 따라 데이터의 분산 정도는 감소하면서 75~90 sec에서 포화상태에 도달하였고, Repeat 방법이 Replicate 방법에 비해 데이터의 신뢰성이 높게 나타났다. 또한 방치시간에 따른 영향을 평가한 결과 분석 냉암소에서 약 1,000 min 이상 방치시킨 후 시료에 대한 분석을 수행해야만 잔상 및 이상 유동에 의한 영향은 거의 없는 것을 알 수 있었고, 결과에 대한 검증을 수행하기 위해 방사능 오차분석과 함께 Chi-square test를 수행한 결과 신뢰성 있는 결과를 보여주었으며 이러한 분석 및 검증 결과에 근거하여 계측 결과에 대한 오차 및 불확실성을 감소시킬 수 있었다.

중심어 : 액체섬광계수기, 소광보정, 민감도변수, 불확실성, Chi-square test

서론

액체섬광계수기(LSC : Liquid Scintillation Counter)를 이용하여 원전주변의 환경시료 내에 존재하는 ^3H 의 방사능농도를 계측하는 과정에서 소광(Quenching)이 발생하는데, 발생된 소광현상을 물리적 타당성에 근거하여 보정해줌으로써 환경시료를 비교적 정확하게 분석 평가할 수 있다. 환경시료를 분석하기에 앞서 일반적으로 장비에 대한 교정을 수행하는 과정에서 소광현상을 보정하게 되는데 교정을 수행하기 위해서는 먼저 선원, 소광물질, 섬광체의 혼합비에 따라 시료를 조제한 후 계측을 수행하고, 그 결과에 근거하여 소광보정곡선(Quenching Correction Curve)을 작성함으로써 교정을 수행하고 있다[1].

그러나 교정을 수행할 때와 실제 환경시료를 측정할 때와의 근본적인 차이가 발생하는데 그 차이는 Geometry 및 Activity와, 계측 조건 및 방법론 등이 다르고, 이로 인해 환경시료를 분석하는 과정에서 불확실성(Uncertainty)이 존재할 수 있기 때문에 본 연구에서는 Geometry 및 Activity 차이에 따른 영향을 평가하기 이전에 계측 조건 및 방법론 차이에 따른 영향을 평가하고자 하였다.

이를 위해 Wallac Company의 Quantulus 1220 (Ultra Low Level Liquid Scintillation Spectrometry) 장비를 이용하여 정량적인 분석 및 평가를 수행하였다.

연구 내용

액체섬광계수기의 기본 원리에 의하면 생성된 베타선의 운동에너지는 섬광체 물질(Scintillation cocktail)에 의해 광자로 변환이 되고, 변환된 광자들은 PMT(Photo Multiplier Tube)에서 다시 광전자로 변환된 후 증폭 과정을 통해 저에너지 베타선이 계측된다[2]. 액체섬광계수기는 측정 용기인 Vial 내부에 시료와 섬광체가 균일하게 혼합됨으로 어떠한 방향으로 베타선이 방출되더라도 계측이 가능하다는 장점이 있는 반면, 생성된 빛이 PMT까지 가는 경로에는 빛의 세기, 즉 photon의 수를 감소시키는 여러 형태의 소광현상이 발생하기 때문에 액체섬광계수기를 이용하여 환경시료 내에 존재하는 방사능 농도를 측정하려면 먼저 계측시료의 소광 정도와 계측 효율간의 상관관계에 대한 분석 및 평가가 선행되어야 한

다. 이러한 소광현상과 계측 효율간의 상관관계를 구하기 위해 본 연구에서는 외부표준법을 사용하였다.

외부표준법은 방사능 농도가 동일하면서 소광 정도가 다른 일련의 표준시료를 만들어 아래의 [그림 1]과 같이 Quenching parameter와 계측 효율간의 curve를 작성한 다음 이 curve를 이용하여 실제 환경시료의 소광 계수로부터 계측효율을 구하여 시료의 방사능을 계산하는 방법으로 소광 보정곡선을 한번 작성하면 시료를 매번 측정할 때마다 표준시료를 만들지 않아도 된다는 장점 때문에 전 세계적으로 가장 많이 사용되고 있는 방법이다.

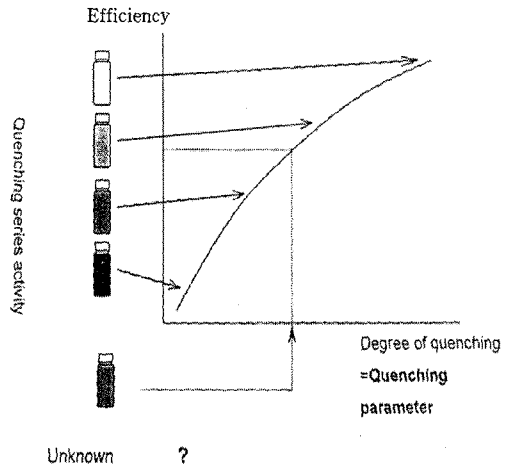


Fig. 1. A Quenching Curve of External Standard Method [3].

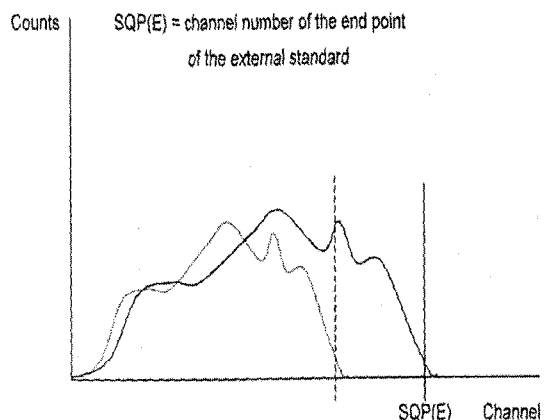


Fig. 2. SQP(E) definition[3].

현재 전 세계에서 상업적으로 판매되고 있는 대부분의 액체섬광계수기는 Quenching Correction 및 계측 효율을 구하기 위해 액체섬광계수기 내부에 External Standard Quench Correction System을 가지고 있다[4].

본 연구에서는 Wallac Company의 Quantulus 1220 장비를 사용하였기 때문에 이 장비에서 Quenching 정도를 보정하기 위해 사용하고 있는 인자인 SQP(E)를 사용하였다. SQP(E) 정의는 Compton Electron에 의해 생성된 Scintillation Spectrum의 Total Intensity 중 1%인 지점에서의 Channel Number로 시료를 계측하기 전에 장비 내부에 장착된 감마표준선원(External standard capsule)으로부터 나오는 감마선을 시료에 주어진 시간동안 조사시켜 발생하는 Compton Electron의 Scintillation Spectrum으로부터 SQP(E)를 계산하고 있으며, 본 연구에서 사용한 External standard source는 ^{152}Eu 이다[5].

외부선원표준법을 이용하여 환경시료를 분석하기 위해서는 장비에 대한 교정이 먼저 선행되어야 하는데 장비에 대한 교정을 수행할 때와 실제 환경시료를 측정할 때와는 근본적인 차이는 Geometry 및 Activity와, 계측 조건 및 방법론이 분석 및 연구 기관마다 다르기 때문에 환경시료 내에 존재하는 방사능농도를 예측하는데 영향을 줄 수 있다는 것이다. 따라서 본 연구에서는 계측 조건 및 방법론 차이에 따른 영향을 평가한 후 Geometry 및 Activity 차이에 따른 영향을 평가하는 것이 타당할 것으로 판단하여 계측 조건 및 방법론을 달리함으로써 결과에 미치는 영향을 먼저 평가하고자 하였다.

이를 위해 교정용 시료를 조제하는 단계에서부터 실제 환경시료를 계측하는 전 과정에서 결과에 영향을 미칠 수 있는 변수를 파악 및 도출한 후 민감도분석을 수행하였고, 각 변수에 대한 민감도분석 결과 그 영향이 나타날 경우 각 변수들의 상대적인 중요도를 파악하였으며, 민감도분석 결과에 근거하여 본 실험 항목인 Geometry 및 Activity 차이에 따른 영향을 평가할 계획이다. 본 연구에서 도출한 계측조건 및 방법론에 대한 변수는 시료 조제시 발생한 Human&Mechanical error, 시료의 방치시간, 외부 선원인 ^{152}Eu 조사시간, 측정방법, 측정용기인 Vial 무게로 총 5개 변수로서 이들 변수의 물리적 의미와 민감도 변수로 선정한 배경은 다음과 같다.

1) Human&Mechanical error는 장비에 대한 교정을 수행하기 위해 교정용 시료를 조제하는 과

정에서 발생할 수 있는 불확실성을 평가하기 위한 것으로 시료를 조제하는 과정에 사용된 Micro pipette, Dispenser 및 Syringe 등을 처리하는 과정에서 발생하는 Human error와 조제된 시료를 측정하는데 사용된 전자저울 자체가 가지고 있는 Mechanical error에 대한 불확실성을 정량화하기 위한 것이다.

2) 방치시간의 경우 시료와 섬광액을 균일하게 혼합시킴으로써 교정용 시료를 조제하기 때문에 조제한 시료를 냉암소에서 일정 시간동안 방치해 두지 않으면 잔상이 존재할 수 있고, 이로 인해 측정 결과에 영향을 줄 수 있을 것으로 판단하여 방치시간을 민감도 변수로 선정하여 이에 따른 영향을 파악하였다.

3) Quantulus 1220 장비[5]에서 사용하고 있는 측정 방법은 Replicate와 Repeat 방법이 있는데, Replicate에 의한 측정 방법은 조제된 각 시료를 1회씩 독립적으로 측정하는 방법으로서, 조제된 시료는 Rack에 장착되어 매회 계측을 수행하게 되는데 Rack에 장착된 시료는 기계 및 전기적 작동에 의해 계측 위치로 옮겨진 후 다시 Rack으로 복귀하게 된다.

Replicate 방법은 위의 절차에 따라 사용자가 지정한 횟수만큼 반복하면서 시료를 계측하는 방식으로 기계 및 전기적 작동에 의한 noise가 많이 발생할 수 있는 반면, Repeat 방법은 Rack에 장착된 시료를 계측할 때 기계적 작동에 의해 측정 위치로 옮겨진 시료를 사용자가 지정한 횟수만큼 계측을 완료한 후, 다시 Rack으로 복귀하는 방식으로 시료를 고정시켜 놓고 계측을 연속적으로 수행하기 때문에 독립적으로 계측하는 Replicate 방식에 비해 기계적 및 전기적 작동이 상대적으로 적어 Noise 현상을 줄일 수 있을 것으로 판단하여 이에 대한 영향을 평가하였다.

4) Quantulus 1220 장비에서는 시료를 계측하기 전에 장비 내부에 장착된 External Standard Source인 ^{152}Eu 로부터 나오는 감마선을 주어진 시간동안 조사시킴으로써 발생하는 Compton Electron의 Scintillation Spectrum을 기준으로 SQP(E) 값을 계산하고 있는데[5], 이러한 개념은 방사선과 물질과의 상호작용을 확률적 관점에서 평가하는 것으로 외부선원 조사시간의 변화에 따라 SQP(E) 값에 미치는 영향을 평가할 필요가 있을 것으로 판단된다. 따라서 본 연구에서는 외부선원인 ^{152}Eu 의 조사시간을 장비공급사에서 권장하는 15 sec를 기준으로 단계적으로 증가시키면서 결과에 미치는 영향을 평가하였다.

5) 또한, 본 연구에서 사용하고 있는 측정용기인 Teflon vial의 재질은 플라스틱으로 Steel 재질에 비해 무게와 두께가 일정하지 않고, 무게가 동일하더라도 부피 및 두께가 일정하지 않을 수 있기 때문에 측정용기의 무게 변화에 따른 영향을 SQP(E)와 CPM(Counts Per Minute)을 기준으로 평가하였다.

실험 방법 및 절차

계측조건 및 방법론에 따른 민감도분석을 수행함에 있어 Human&Mechanical error에 대한 정량화 및 방사능 오차분석에 대한 검증은 방사능 농도가 20만 dpm인 고체선원을 사용하였고, 그 외 변수인 방치시간, 조사시간, 측정방법, Vial 무게에 대한 민감도분석은 백그라운드 시료를 사용하였다. 그리고 Chi-square test에 대한 검증은 각각 시료에 대해 모두 적용하여 정량화를 수행함으로써 상대적인 중요도를 파악하였다.

계측조건 및 방법론 차이에 따라 교정결과에 영향을 줄 수 있는 변수를 파악 및 도출한 후 정량적 및 확률적인 방법으로 민감도분석을 수행하였으며, 도출한 민감도 변수에 대한 영향을 평가하기 위한 구체적인 방법 및 절차는 [표 1] 및 아래와 같다.

1) 계측조건 및 방법론 차이에 따라 교정결과에 영향을 미칠 수 있는 민감도 변수를 도출하였으며 도출된 민감도 변수는 시료의 방치시간, 외부선원 조사시간, 측정 방법, Vial 무게, 계측시간 각각에 대해 0 min, 15 sec, Replicate, 최소 무게, 10 min을 선정하였고, 각 변수의 최대 변화량으로는 각각에 대해 2,000 min, 90 sec, Repeat, 최대 무게, 90 min을 선정하였다.

2) 민감도 분석을 위해 도출된 각 변수의 기준 값으로 방치시간, 외부선원의 조사시간, 측정 방법, Vial 무게, 계측시간 각각에 대해 0 min, 15 sec, Replicate, 최소 무게, 10 min을 선정하였고, 각 변수의 최대 변화량으로는 각각에 대해 2,000 min, 90 sec, Repeat, 최대 무게, 90 min을 선정하였다.

3) 선정된 각 변수에 대한 민감도 분석을 수행하기 위해서는 평가할 대상 시료와 평가 기준이 선정되어야 하는데 본 연구에서는 Background시료와 Quantulus 1220 장비에서 display해주는 CPM 및 SQP(E)를 평가 대상 시료와 평가 기준으로 각각 설정하였다.

4) 민감도 변수와 변수 변화량, 평가 대상을 선정 후 물리적 타당성에 근거하여 평가 목적을 설정하였으며 이에 대한 상세 사항 및 내용을

[표 1]에 나타내었다.

5) 각 변수에 대한 민감도분석 결과 영향이 나타난 경우 각 변수에 의한 영향이 어느 정도인지를 파악하기 위해서는 정량화를 수행함으로써 상대적인 중요도를 파악할 필요가 있을 것으로 판단하여 정량화를 수행하였다.

Table 1. Sensitivity study method.

변수		방치 시간	조사 시간	측정 방법	Vial 무게
변수 변화량	기준	0min	15sec	R ¹⁾	12.8529g
	최대	2,000min	100sec	RPT ²⁾	14.1617g
평가 대상	기준	BKG			
	값	CPM	SQP(E)	SQP(E)	SQP(E)/CPM
평가 목적		균질성	SP ³⁾	분산성	무게 영향
정량화방법		SQP(E)&CPM 변화/변수변화량			

여기서, ¹⁾, ²⁾, ³⁾은 각각 Replicate, Repeat, Saturation point임.

본 연구는 기본적으로 Quantulus 1220 장비를 이용하여 계측 조건 및 방법론을 달리함으로써 결과에 미치는 영향을 평가하는 것이기 때문에 장비에 대한 검증 및 성능 검사를 필수적으로 수행해야 한다. 이를 위해 계측을 수행하기 전에 장비를 구입시 Wallac Company로부터 공급받은 소광물질이 들어있지 않은 Unquenched LSC-Standards를 사용하여 계측기의 효율과 Background를 평가하는 Performance test를 수행하였다.

계측 결과에 대해 검증하기 위해서는 널리 사용되고 있는 Chi-square test[3]와 계측장비 자체의 성능을 간접적으로 검증할 수 있는 방사능 오차 분석을 수행하였다. 고체 형태의 ³H 선원을 구입하여 교정용 시료를 조제하기 때문에 Activity 값은 Known value라 할 수 있는데, 방사능 오차분석은 이러한 Known value를 기준 값으로 설정한 후 계측 장비에 의해 계산된 Activity와 비교 분석을 수행함으로써 계측장비의 성능을 간접적으로 검증할 수 있는 방법이다.

반면, Chi-square test는 품질관리 일환으로 측정 장치의 실험조건을 일정하게 유지한 상태에서 20 ~ 50회 반복해서 계측한 후 계측장치의 정상적인 동작 여부를 확인하려고 할 때 일반적으로 사용되고 있는 방법으로 반복 측정에서 나타나는 측정치의 요동이 통계적으로 예측되는 요동과 비

교하여 비정상적으로 큰 요동이 관측될 때 계측 기기에 이상이 있다고 판단하고 있다. Chi-square test에 의해 구해진 probability(P)가 0.02보다 낮으면 비정상적 큰 요동이 발생했음을 나타내고, 반대로 Probability가 0.98보다 크면 측정치가 너무 규칙적이어서 비정상적으로 작은 요동이 발생했음을 보여주는 것으로 Poisson 분포와 완벽하게 일치할 때 probability는 0.50에 접근한다.

본 연구에서는 위에서 기술한 방법 및 절차에 따라 장비에 대한 교정을 수행할 때 민감도 분석을 수행함으로써 계측 조건 및 방법론 차이에 따른 영향을 평가하였고, 방사능 오차 분석과 계측 장비의 정상작동 여부를 판단하기 위한 방법으로 널리 이용되고 있는 Chi-square test를 통해 장비에 대한 검증을 수행하였으며, 선원의 형태 및 Activity 차이에 따른 영향은 민감도분석 결과에 근거하여 최적의 변수 set 설정한 후 계측 및 분석을 수행함으로써 환경시료 분석시 존재할 수 있는 불확실성을 최소화하고자 하였다.

결과 검증 및 분석

1. 결과 분석

계측 결과에 영향을 미칠 수 있는 변수를 도출한 후 이에 대한 영향을 평가함으로써 환경시료 분석시 존재할 수 있는 불확실성을 최소화하기 위해 시료와 섬광체의 혼합비가 8:12인 Background 시료를 31회씩 계측함으로써 외부선원의 조사시간, 방치시간, 계측방법, Vial 무게 차이에 따른 영향을 평가하였고, 시료를 조제하는 과정에서 발생할 수 있는 그 결과는 아래와 같다.

가) Human&Mechanical error

장비에 대한 교정을 수행하기 위해 시료를 조제하는 과정에 사용된 Micro pipette, Dispenser 및 syringe 등을 처리하는 과정에서 발생하는 Human error와 조제된 시료의 무게를 측정하는데 사용된 전자저울 자체의 Mechanical error에 대한 정량화 결과를 [표 2]와 [표 3]에 각각 도시하였다.

Syringe와 Dispenser를 사용하는 과정에서 발생하는 Human error를 도시한 [표 2]와 10g까지 측정할 수 있는 인증된 분동을 이용하여 전자저울의 Mechanical error에 대한 정량화 결과를 도시한 [표 3]을 통해 볼 수 있듯이 Human&Mechanical error의 최대 오차는 0.30%로 표준선

원에 의한 불확실성에 비해 무시할 수 있을 정도로 아주 작기 때문에 이에 따른 Uncertainty는 무시할 수 있을 것으로 판단된다.

Table 2. Error in Syringe and Dispenser Weight Measurements.

	Syringe			Dispenser		
	설정량 (g)	실제량 (g)	오차 (%)	설정량 (g)	실제량 (g)	오차 (%)
1	1.0000	1.0003	0.030	18.0000	18.0043	0.024
2	2.0000	2.0005	0.025	17.0000	17.0047	0.028
3	3.0000	3.0001	0.003	16.0000	16.0033	0.021
4	4.0000	4.0003	0.008	15.0000	15.0456	0.304
5	5.0000	5.0021	0.042	14.0000	14.0038	0.027
6	6.0000	6.0051	0.085	13.0000	13.0038	0.029
7	7.0000	7.0056	0.080	12.0000	12.0002	0.002
8	8.0000	8.0068	0.085	11.0000	11.0011	0.010
9	9.0000	9.0068	0.076	10.0000	10.0014	0.014
10	10.0000	10.0037	0.047	9.0000	9.0188	0.209
평균 오차	0.047(%)			0.067(%)		

Table 3. Error of electronic balance itself.

No.	설정량(g)	실측량(g)	오차(%)	비고
1	10	9.9887	0.1130	실측량평균 9.9888g
2		9.9890	0.1100	
3		9.9889	0.1110	
4		9.9887	0.1130	
5		9.9887	0.1130	오차평균 0.1120%
6		9.9888	0.1120	
7		9.9888	0.1120	표준편차 0.9428
8		9.9888	0.1120	
9		9.9888	0.1120	
10		9.9888	0.1120	

나) 시료의 방치시간

시료와 섬광액을 균일하게 혼합시킴으로써 교정용 시료를 조제하기 때문에 냉암소에서 일정 시간동안 방치해 두지 않으면 잔상이 존재하여

시료 안정화와 측정 결과에 영향을 줄 수 있을 것으로 판단하여 방치시간에 따른 영향을 파악하기 위해 각기 다른 시료 3개를 제조하여 계측을 수행하였고, 그 결과를 [그림 3]에 나타내었다.

[그림 3]은 조제된 시료를 바로 계측한 후 20 min 단위로 얻은 데이터를 도시한 것으로 자세히 분석해 보면 200 min까지는 Counts가 급격하게 감소를 하다가 약 200 ~ 1,000 min 사이에서는 진동을 하면서 아주 서서히 감소한 후 약 1,000 min 이후에서는 거의 변화가 없는 것을, 즉 시료가 안정화 되는 것을, 볼 수 있는데, 이러한 결과는 다른 2개의 시료에서도 거의 유사한 경향을 보였다. 위의 분석 결과에 근거하여 본 과제에서는 시료를 조제한 후 최소한 1,000 min 이상을 방치한 후 계측을 수행해야 할 것으로 판단된다.

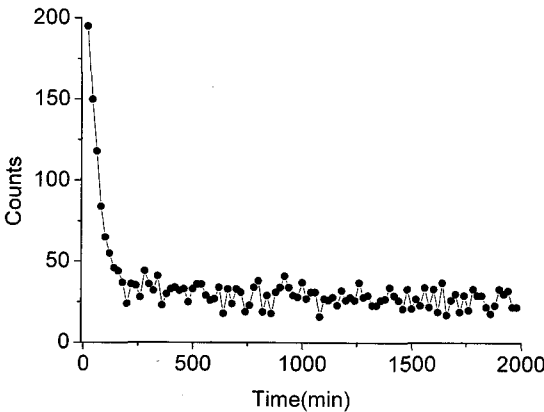


Fig. 3. Counts as a Function of Time.

다) 외부선원의 조사시간

Quantulus 1220 장비의 사용기간을 고려하여 외부선원의 조사시간 변화에 따라 SQP(E)에 미치는 영향에 대한 평가 결과를 [그림 4]와 [표 4]에 도시하였다. [표 4]는 구입한지 1년 이내인 장비와 본 연구에서 사용하고 있는 7년째인 장비를 이용하여 계측한 결과인 SQP(E) 평균값의 변위와 표준편차 경향을 도시한 것이고, [그림 4]는 [표 4]에 제시된 SQP(E) 평균값의 표준편차 경향을 비교적 상세하게 파악하기 위해 가시화한 것이다.

[표 4]에서 보여주듯이 구입한지 1년 미만인 장비의 SQP(E) 평균값은 7년째인 장비에 비해 약 20~25 정도 높게 나타난 볼 수 있는데 이러한 경향을 보이는 것은 장비의 노후화에 따른 영향이 반영된 것이라 판단된다. 조사시간 증가에 따

라 SQP(E) 평균값에 미치는 영향을 파악한 결과 [표 4]에서 보여 주듯이 그 영향은 나타나지 않았고, SQP(E)의 표준편차는 완만하게 감소하는 것을 [표 4]와 [그림 4]를 통해 확인 할 수 있는데 이러한 경향은 보이는 것은 외부선원의 조사시간을 증가시킴에 따라 방사선과 물질과의 반응확률이 증가하고 이로 인해 정규분포에 근접하면서 표준편차는 감소하는 것으로 판단된다.

Table 4. SQP(E) trend in case of radiation time of external source being increased step by step from 15 sec to 90 sec.

time (sec)	SQP(E) 평균			SQP(E) SD(%)		
	1yr	case1	case2	1yr	case1	case2
15	761.2	739.2	736.6	1.37	2.32	2.20
30	759.3	736.3	736.0	1.27	1.98	1.35
45	762.0	739.3	735.5	1.08	1.31	1.19
60	759.5	739.8	735.9	1.01	1.17	1.29
75	759.4	737.6	735.1	0.78	0.77	0.82
90	757.1	738.0	735.3	0.79	0.77	0.79

여기서, 1yr는 구입한지 1년 미만인 장비이고, case1과 case2는 구입한지 7년 미만인 장비이며, SD는 Standard deviation임.

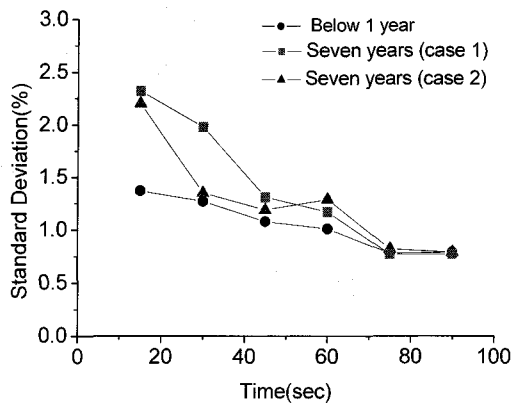


Fig. 4. Trend of SQP(E) standard deviation according to variation of radiation time of external standard source.

위의 [그림 4]를 통해 볼 수 있듯이 본 연구에서 사용하고 있는 장비의 경우 SQP(E) 평균값의 표준편차는 oscillation하면서 감소하고 있는 반면, 1년 미만인 장비의 표준편차는 완만하게 감소하는 것을 확인할 수 있고, 또한 장비의 사

용기간에 관계없이 75~90 sec 사이에서 SQP(E) 평균값의 표준편차는 거의 변하지 않는 것을 확인할 수 있다.

이러한 정량적 계측 및 분석 결과로부터 감마선 조사시간이 증가할수록 데이터의 분산 정도가 감소하다가 75 sec 이상의 조사시간에서는 SQP(E) 값이 거의 일정하게 나타났기 때문에 Saturation point에 도달한 것으로 판단하여 75 sec를 외부선 원 조사시간으로 설정한 후 계측을 수행해야 할 것으로 판단된다.

라) 측정 방법

측정 방법을 달리함으로써 장비 자체에 전기적 및 기계적 잡음이 발생할 수 있는데 이에 대한 평가를 수행하기 위해 본 연구에서 고려한 방법은 Replicate와 Repeat 이고, 그 결과를 [표 5]에 도시하였다. [표 5]는 시료와 섬광체의 혼합비가 서로 다른 10개의 시료들 중에 층분리 현상이 확연하게 나타난 시료 대 섬광체의 비율이 11:9 인 시료를 제외한 총 9개 시료에 대해 측정방법을 달리하여 계측한 결과를 도시한 것으로 혼합비별로 SQP(E) 값과 표준편차의 결과를 수록한 것이다.

Table 5. SQP(E) comparison according to measurement method.

번호	혼합비 (S+C) ¹⁾	Replicate		Repeat	
		평균	SD ²⁾	평균	SD ²⁾
1	2:18	791.98	3.51	789.25	2.73
2	3:17	778.41	3.40	778.43	2.80
3	4:16	770.19	3.65	767.58	2.80
4	5:15	765.09	3.91	765.81	3.10
5	6:14	758.60	4.02	759.39	2.68
6	7:13	754.02	3.83	749.72	2.30
7	8:12	746.86	2.59	742.20	2.08
8	9:11	729.21	2.93	728.17	2.29
9	10:10	720.62	2.75	715.93	2.70

위의 표에서 ¹⁾은 Sample 대 Cocktail의 비이고 ²⁾는 Standard Deviation임.

[표 5]에 제시된 SQP(E) 값의 표준편차를 비교해 보면 Replicate 방법으로 측정된 표준편차가

Repeat 방법을 적용하여 계측한 결과보다 높게 나타나는 것을 수치적으로 확인할 수 있다. Replicate의 방법을 적용하여 시료를 측정할 경우 매회 측정할 때마다 측정 위치로 옮겨지는 과정에서 전기적인 잡음에 의해 Noise가 발생할 수 있는데, Noise에 의한 영향으로 SQP(E) 값의 표준편차가 Repeat 방법에 비해 다소 높게 나타나고 있는 것을 표를 통해 확인할 수 있다.

이러한 계측 및 분석 결과로부터 장비에 대한 교정을 수행할 때뿐만 아니라 실제 환경시료를 계측할 때도 Repeat 방법을 적용함으로써 불확실성을 최소화할 수 있을 것으로 판단된다.

마) 측정용기 무게

본 연구에서 사용하고 있는 Teflon vial의 재질은 플라스틱으로 Steel 재질에 비해 무게와 두께가 일정하지 않고, 또한 무게가 동일하더라도 부피 및 두께가 일정하지 않을 수 있기 때문에 이로 인한 영향을, 즉 무게 차이에 따라 SQP(E) 및 CPM에 미치는 영향을, 파악하였다. Teflon vial 무게 차이에 따른 영향을 평가하기 위해 Teflon vial 20개를 무작위로 추출한 후 그 무게를 모두 측정하였고, 이 중 무게가 최소 및 최대인 vial을 포함하여 총 3개를 추출한 후 vial 무게 차이에 따라 SQP(E) 및 CPM에 미치는 영향을 파악하였고, 그 결과를 아래의 [표 6]에 제시하였다.

Table 6. SQP(E)&CPM value according to vial weight.

		Vial 무게(g)			
		12.8529	13.7248	13.7707	14.1617
SQP(E)	최대	744.19	740.29	739.63	739.24
	평균	737.77	737.44	737.44	737.45
	최소	735.84	734.14	735.78	735.14
	SD ¹⁾	2.01	1.50	1.08	1.03
cpm	최대	1.47	1.69	1.50	1.45
	평균	1.23	1.25	1.19	1.23
	최소	1.03	0.96	1.00	0.81
	SD ¹⁾	0.12	0.17	0.15	0.15

위의 표에서 ¹⁾은 Standard Deviation임.

[표 6]을 상세히 분석해보면 vial 무게 변화에 따라 SQP(E) 평균값의 변화량은 737.44~737.45

로 거의 변화가 없는 반면, 표준편차의 변화량은 1.03~2.01로 SQP(E)의 변화량에 비해 약간이 차이가 나타나고 있지만 경향성은 없는 것을 볼 수 있는데 이러한 현상을 다음과 같이 설명할 수 있다. Quantulus 1220에서 외부선원으로 사용하고 있는 ¹⁵²Eu의 Activity가 Background에 비해 상당히 크기 때문에 밀도가 작은 vial에 Activity가 큰 선원을 조사할 경우 밀도 및 무게 차이에 따른 영향이 나타나지 않은 것으로 판단된다.

위의 [표 6]에서 보여 주듯이 평균 CPM과 표준편차 변화량은 각각 1.19~1.25와 0.12~0.17로 SQP(E) 값에 비해 상대적으로 크지만 무게 차이에 따른 경향은 나타나지 않는 것을 볼 수 있는데 이러한 경향은 기존의 연구결과와 비슷한 경향을 보이고 있다.

100 mL 크기의 Teflon vial과 Activity가 65,600 dpm인 ³H선원을 이용하여 무게 차이에 따라 CPM에 미치는 영향을 평가한 기존의 연구결과[6-8]를 [표 7]에 제시하였다. [표 7]에서 보여 주듯이 Vial 무게는 최소값 대비 약 24% 정도 차이가 있지만 CPM 값은 5.2% 정도의 차이를 보이고 있으며 무게 차이에 따른 경향은 나타나지 않는 것을 수치적으로 확인할 수 있다. 이러한 계측 및 분석 결과를 근거로 본 연구에서는 Vial 무게 차이에 따른 영향은 없는 것으로 판단하였다.

Table 7. Count-rate according to vial weight.

Vial No.	Weight(g)	Count-rate(CPM)
1	22.90	8913 ± 19
2	26.20	8372 ± 18
3	28.41	7399 ± 17
4	28.40	8449 ± 18

2. 결과 검증

Quantulus 1220 장비를 사용하여 계측을 수행하기 전에 장비 성능을 테스트하기 위해 장비 구입시 공급사로부터 공급받은 소광물질이 들어있지 않은 Unquenched LSC-standards를 사용하여 계측기의 성능을 평가한 결과 장비 공급사에서 기기의 건전성을 보장하는 65%의 효율보다 높은 65.5%로 나타났기 때문에 장비의 성능에는 이상이 없는 것으로 판단하였고, 장비의 건전성 및 계측 결과를 검증하기 위해 방사능 오차 분석과 Chi-square test를 수행하였으며, 이에 대한 결과

는 아래와 같다.

가) 방사능 오차 분석

[그림 5]와 [그림 6]은 Quantulus 1220 장비에서 계산된 방사능 값과 구입한 고체형태 ³H 선원의 방사능 값과 비교함으로써 계측 결과에 대한 검증을 수행하기 위해 도시한 것이다. 계측장비에 의해 계산된 방사능 오차를 검증하기 위해 본 과제에서 구입한 고체 ³H 선원의 Activity를 기준값으로 사용하였다.

방사능 오차를 검증하기 위해 시료와 섬광체의 혼합비가 3:17, 5:15, 8:12, 10:10인 시료를 임의로 선정하였고, 선정된 시료를 측정하여 SQP(E)과 CPM 값을 구한 후 [그림 5]를 이용하여 효율을 구하고, 구해진 효율과 CPM 값을 적용하여 방사능을 계산하였다.

[그림 6]은 위의 절차에 따라 계산된 Activity와 기준값으로 설정한 Activity를 비교한 것으로 기준이 되는 Activity의 Error는 0이고, 기준값 대비 계산된 Activity의 최대 오차는 약 5% 정도로 높게 나타나고 있는 것을 볼 수 있는데, 이러한 경향을 보이는 것은 다음과 같이 설명할 수 있다.

시료와 섬광체의 혼합비가 11:9인 시료에서는 확연하게 층분리 현상이 발생하였고[9], 이러한 층분리에 의한 이상유동 현상은 10:10인 시료에서도 어느 정도 나타나고 있으며, 이상유동 현상에 의해 방사능 오차는 약 5% 정도로 크게 나타나고 있는 것이다. 따라서 10:10인 시료를 제외한 방사능 오차의 최대값은 3:17인 시료에서 2%미만으로 낮게 나타났기 때문에 계측 장비 및 결과의 신뢰성에는 문제가 없는 것으로 판단하였다.

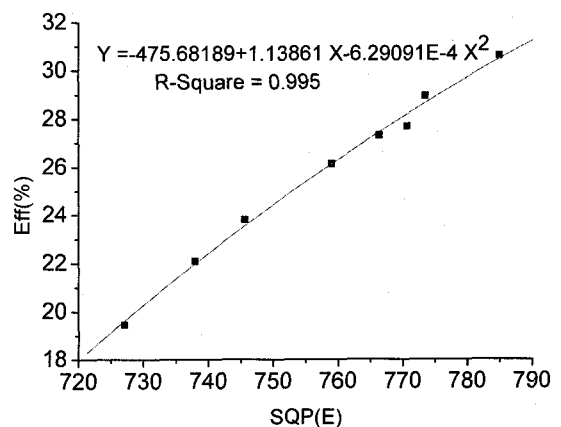


Fig. 5. Quenching correction curve.

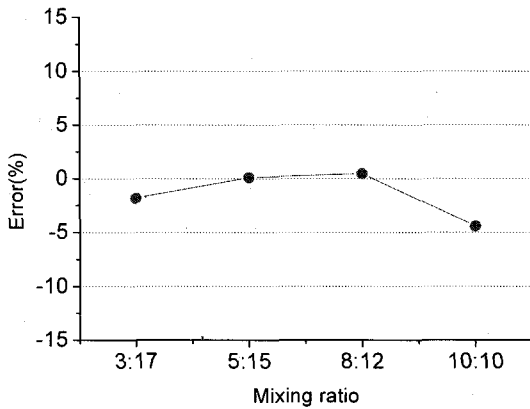


Fig. 6. Result of radioactivity error analysis.

나) Chi-Square Test

계측 결과에 대한 검증을 수행하기 위해 널리 사용되고 있는 Chi-square test는 측정 장치의 실험조건을 일정하게 유지한 상태에서 20 ~ 50회 반복해서 계측한 후 측정치의 요동을 통계적·확률적으로 예측되는 요동과 비교하여 비정상적으로 큰 요동이 관측될 때 계측기에 이상이 있다고 판단하는 방법으로 본 연구에서는 각 민감도 변수별로 31회씩 계측을 수행 한 후 그 결과를 [표 8]에 도시하였다.

Table 8. Chi-square test result.

변수	변화량	χ^2 -test(%)	비고
vial 무게	13.7248g	8.9	
	13.7707g	4.6	
	12.8529g	15.8	
	14.1617g	4.2	
조사시간	15sec	30 (31.4)	¹¹ 1회(2회)
	30sec	23 (15.6)	상동
	45sec	7.5 (8.2)	상동
	60sec	8.9 (7.7)	상동
	75sec	4.0 (5.9)	상동
	90sec	4.2 (4.8)	상동
측정방법	Replicate	-	
	Repeat	31.61	

위의 표에서 ¹¹는 7년 미만의 장비를 이용하여 1, 2회 측정한 결과 값임.

[표 8]에 제시된 Chi-square test는 Chi-square probability로 계측된 확률 값인 p가 2% 이하면 비정상적으로 큰 요동이 발생했음을 나타내고, 반대로 p가 98% 이상이면 비정상적으로 작은 요동이 발생했음을 보여주는 것으로 본 연구의 모든 결과 값이 2~98%에 포함되는 것을 볼 수 있으며, 이러한 결과에 근거하여 계측 장비 및 data의 신뢰성에는 문제가 없는 것으로 판단하였다.

결 론

Quantulus 1220 액체섬광계수기를 이용하여 장비에 대한 교정과 환경시료를 분석하는 모든 과정에서 결과에 영향을 미칠 수 있는 변수를 도출한 후 이에 대한 영향을 확률론적으로 평가한 결과 다음과 같은 결론을 도출하였다.

장비 및 계측 결과에 대한 검증을 수행하기 위해 방사능 오차 분석과 Chi-square test를 수행한 결과 합리적인 결과를 보여주었기 때문에 데이터의 신뢰성에는 문제가 없는 것으로 판단하였다.

시료를 조제하는 과정에서 발생한 인적 및 기계적 오차는 매우 작기 때문에 이에 따른 영향은 무시할 수 있었고, 조제한 시료를 안정화시키기 위해서는 냉암소에서 최소한 1,000 min 이상을 방치해야 할 것으로 판단되며, vial 무게 차이에 따른 영향은 나타나지 않았다. 외부선원 조사시간을 증가시킴에 따라 데이터의 분산 정도가 점점 감소하다가 75~90 sec에서 Saturation point에 도달하였고, Repeat 방법이 Replicate 방법에 비해 데이터의 신뢰성이 더 높게 나타났다.

정량적인 방법을 이용하여 액체섬광계수기의 계측조건 및 방법론 차이에 따른 영향을 분석한 본 연구는 기존의 분석기법에 비해 능동적인 방법으로써 본 논문에서 제시한 민감도분석 결과에 근거하여 주요 평가 항목인 Geometry 및 Activity 차이에 따른 영향을 평가함으로써 불확실성을 최소화하고자 할 계획이다.

감사의 글

본 연구는 산업자원부의 전력산업연구개발사업의 지원에 의해 수행되었습니다.

참고문헌

1. KINS. Manual of standard procedures for

- Environmental sampling and radioactivity analysis. Korea Institute of Nuclear Safety, KINS/G-009.
2. Knoll GF. 섬광검출기의 원리. In: 이수용. Radiation Detection and Measurement. 1997: 327-422.
 3. 경북대학교 방사선과학연구소. 방사능 분석법. 2005:162-166.
 4. Kobayashi Y et al. Laboratory Manual for Liquid Scintillation Counting. Packard Instrument Corporation. 1988.
 5. Wallac Company. 1220 Quantulus Liquid Scintillation Counter (Instrument Manual). 1995.
 6. Momoshima N, Nakamura Y and Takashima Y. Vial Effect and Background Subtraction Method in Low-level Tritium Measurement by Liquid Scintillation Counter. Appl. Radiat. Isot. 1983;34(12):1623-1626.
 7. Elbaradei M, Burkart W. Handbook of Radioactivity Analysis. 2nd ed. ACADEMIC PRESS, 538-597, 656-715.
 8. Mobius S, Noakes JE, Schonhofer F. Advances in Liquid Scintillation Spectrometry. LSC 2001.
 9. 영광원전환경·안전감시센터. 환경시료 분석을 위한 액체섬광계수기용 표준선원의 개발 및 보정에 관한 연구. 전력산업연구개발 1차년도 진도보고서. 2005.