

방사능 측정시 Minimum Detectable Activity

김희령, 강문자, 이완로, 이창우, 정근호, 조영현, 최근식

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

kimhr@kaeri.re.kr

1. 서론

환경준위 수준의 방사능을 가지는 시료의 농도를 계측할 때 백그라운드의 통계적 fluctuation 때문에 방사능의 존재를 식별하기가 어려운 경우가 발생할 수 있다. 이때, 시료의 방사능 존재 유무를 판단하기 위하여 통계학에 기초한 검출 하한 (Lower Limits of Detection, LLD)의 개념을 사용한다^[1]. 검출하한은 백그라운드 계수, 계수시간 및 시료의 계수시간 등 계측기 자체의 검출 능력을 평가 하는 지침으로 사용된다. 즉, 환경방사능 분석에서 일반적으로 언급되는 방사능 농도 (Bq/g)를 직접 평가하기에는 적절하지 못하다. 실제로, 환경 방사능 분석에서는 계수 또는 계수율로 주어지는 Detection limits (검출한계) 보다는 시료의 방사능 존재 유무를 신뢰성 있게 판단하기 위하여 최소검출방사능 (Minimum Detectable Activity, MDA)을 흔히 사용한다^{[2] [3]}. 특히, 원자력발전소로부터 발생되는 폐기를 시료의 자체처분 인허가 기준 등에서는 시료의 방사능 농도를 기준으로 하고 있다. 따라서, 본 논문에서는 검출하한의 개념을 바탕으로 시료에 대한 최소검출방사능을 도출하고 ¹⁴C 농도 계측시 MDA를 만족시키는 최소계측시간 등 실제 방사능 분석에 적용해보자 한다.

2. 검출하한의 이론적 고찰

2.1 기본 개념^[1]

그림 1에서 시료의 순방사능이 0일 때 통계적 요동으로 인하여 가짜 peak를 진짜 peak로 판정하는 오류 (Error of the 1st kind)를 범할 확률이 α 이상이 되지 않도록 하는 할 수 있는 존재 판단의 경계가 되는 peak의 면적 (Critical level, L_c)은 식 (1)로 나타난다.

$$L_c = k_\alpha \sigma_0 \quad \dots \quad (1)$$

즉, 시료의 측정값이 L_c 이상일 때 유의 수준 α (신뢰도 $1 - \alpha$)에서 백그라운드와 비교하여 유의할 만한 차이가 있게 되므로 방사능이 존재하는 것으로 판정된다. 다만, 검출의 증거는 미약하다.

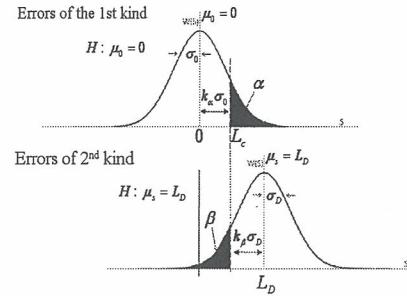


Fig. 1. Hypothesis testing (Errors of 1st and 2nd kinds)

따라서, 그림 1에서와 같이, 측정값이 L_c 를 넘어서, 진짜 peak인에도 백그라운드의 통계적 요동으로 간주하여 가짜 peak로 판정하는 오류 (Error of 2nd kind)를 범할 확률이 β 이상이 되지 않도록 할 수 있는 판단의 경계가 되는 peak의 면적 (Detection limit, L_D)만큼 추가로 측정값이 나온다면 비로소 방사능의 존재 및 검출을 확신할 수 있다[1]. 이를 식 (2)에 나타내었다.

$$L_D = L_c + k_\beta \sigma_D = k_\alpha \sigma_0 + k_\beta \sigma_D \quad \dots \quad (2)$$

2.2 방사능에 대한 적용

방사성 물질의 붕괴는 Binary process를 따르며 반감기가 수시간 이상인 핵종의 경우 Poisson 분포를 따른다^[4]. 따라서 측정 계수의 표준편차는 측정 계수 평균값의 제곱근으로 나타난다. 즉, $N \pm \sqrt{N}$ 으로 주어진다. ¹⁴C는 반감기가 약 5,730년으로 Poisson 분포를 따르며, 오차의 전파 법칙^[4]을 적용하여 식 (1)과 식 (2)에서 L_c 와 L_D 를 수학적으로 유도하면 식 (3)과 식(4)와 같이 나타난다.

$$L_c = k_\alpha \sqrt{\mu_B \left(\frac{t_{\text{S}}}{t_B} + \frac{1}{n} \right)} \quad \dots \quad (3)$$

$$L_D = \frac{1}{2} \left\{ k_\beta^2 + 2k_\alpha \sqrt{\mu_B \left(\frac{t_{\text{S}}}{t_B} + \frac{1}{n} \right)} + \sqrt{k_\beta^4 + 4k_\alpha k_\beta^2 \sqrt{\mu_B \left(\frac{t_{\text{S}}}{t_B} + \frac{1}{n} \right)} + 4k_\beta^2 \mu_B \left(\frac{t_{\text{S}}}{t_B} + \frac{1}{n} \right)} \right\} \quad (4)$$

이때, Blank 시료^[1]의 계측시간과 시료의 계측시간이 같고 유의 수준을 동일하게 취하면 Detection limit (L_D)는 식 (5)와 같다.

$$L_D = k^2 + 2k \sqrt{\mu_B' t_S \left(\frac{t_S}{t_B} + \frac{1}{n} \right)} \quad [\text{counts}] \quad \dots\dots\dots (5)$$

한편, Detection limit는 계수 대신 계수율로도 흔히 표현되는데 계수율에 대한 Detection limit, L'_D 는 식 (6)으로 나타난다.

$$L'_D = \frac{1}{t_S} \left\{ k^2 + 2k \sqrt{\mu_B' t_S \left(\frac{t_S}{t_B} + \frac{1}{n} \right)} \right\} \quad [\text{counts/sec}] \quad \dots\dots\dots (6)$$

또한, L'_D 와 L_D 의 관계를 유도하면 식 (7)과 같다.

$$L'_D = \frac{1}{\sqrt{t_B}} \left\{ L_D - k^2 \left(1 - \frac{\sqrt{t_B}}{\sqrt{t_S}} \right) \right\} \quad \dots\dots\dots (7)$$

식 (7)에서 계수율에 대한 Detection limit는 계수에 대한 Detection limit를 단순히 시료계측시간으로 나누어진 것으로 나타나지 않는다. 대신 시료계측시간과 백그라운드 계측시간의 기하평균과 비율의 제곱근이 인자로서 포함됨을 알 수 있다. 시료계측시간과 백그라운드 계측시간이 같으면 계수에 대한 Detection limit를 시료계측시간으로 나누어 계수율에 대한 Detection limit를 구할 수 있다.

2.3 최소검출방사능 농도 및 최소 계측시간

시료의 방사능 측정에 있어서 통계학적 요동뿐만 아니라 측정과정이나 계측기 자체의 오차 등이 수반된다. 따라서, 시료와 계측장치의 정보를 고려하여 계수 또는 계수율로부터 방사능에 대한 최소검출하한의 개념인 최소검출방사능 농도(Minimum Detectable Activity)를 사용한다. 이를 식 (8)에 나타내었다.

$$MDA = \frac{k^2 + 2k \sqrt{\mu_B' t_S \left(\frac{t_S}{t_B} + \frac{1}{n} \right)}}{t_S \epsilon R m f} \quad [Bq/g] \quad \dots\dots\dots (8)$$

시료의 백그라운드 계수율, 측정 효율과 회수율은 일정하고 반감기가 긴 핵종의 경우 MDA는 시료량에 반비례하고 시료 및 백그라운드 계측시간의 제곱근에 반비례한다. 실제 발전소에서 발생하는 폐활성탄 시료의 ¹⁴C의 자체처분 인허가 기준인 0.1 Bq/g

에 해당되는 최소계측시간을 식 (8)을 사용하여 계산할 수 있다. 시료는 고온연소로에서 산화되는데 최대 0.5 g 정도 연소시킬 수 있으며, 회수율은 0.95, 측정효율은 58%로서 거의 일정하다. 따라서, 시료와 백그라운드의 계측시간을 동일하게 할 경우 95% 신뢰도에서 최소 계측 시간은 약 150분으로 계산된다.

3. 결과 및 결론

Poisson 분포를 따르는 방사성 물질에 대한 검출하한을 통계학적으로 유도하고 MDA를 도출하였다. MDA는 계측시간 보다는 시료의 양에 대하여 더욱 빨리 감소함을 알 수 있었다. 실제 방사능 분석시에 있어서는 통계학적 요동뿐만 아니라 측정과정상의 오차와 계통오차 등이 포함되므로 준위가 낮은 환경 시료의 방사능 검출 판정에 있어서 LLD나 MDA에 대한 합리적인 적용이 요구된다.

Nomenclature

f : 반감기 등 기타 보정인자

k_α , k_β : 유의수준 α, β 에서의 z값 (정규분포)

m : 시료량 [g]

R : 연소로의 회수율

t_B : Background의 계측시간 [sec]

t_s : 시료의 계측시간 [sec]

t_{s0} : Blank 시료의 계측시간 [sec]

ϵ : 측정효율

μ_0 : Blank 시료의 측정계수의 참평균 [counts]

μ_B : 백그라운드 측정계수의 참평균 [counts]

μ_B' : 백그라운드 측정계수율의 참평균 [counts/sec]

μ_s : 시료의 측정계수의 참평균 [counts]

σ_0 : Blank 시료 측정계수의 표준편차

σ_D : 시료 측정계수의 표준편차

4. 참고문헌

- [1] Lloyd A. Currie, Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination, Analytical Chemistry, 40 (3), pp. 586-593, 1968.
- [2] 이명호 외, 환경시료 중 Pu 측정에서 최소검출방사능 농도 산출에 대한 연구, Analytical Science & Technology, 14 (1), pp.64-71, 2001.
- [3] 이재기, “환경방사능 감시 워샵:환경방사능 검출 한계에 대한 고찰”, KINS, 1996.
- [4] Nicholas Tsoulfanidis, Measurement and Detection of Radiation, Hemisphere Publishing Corporation, 1983.