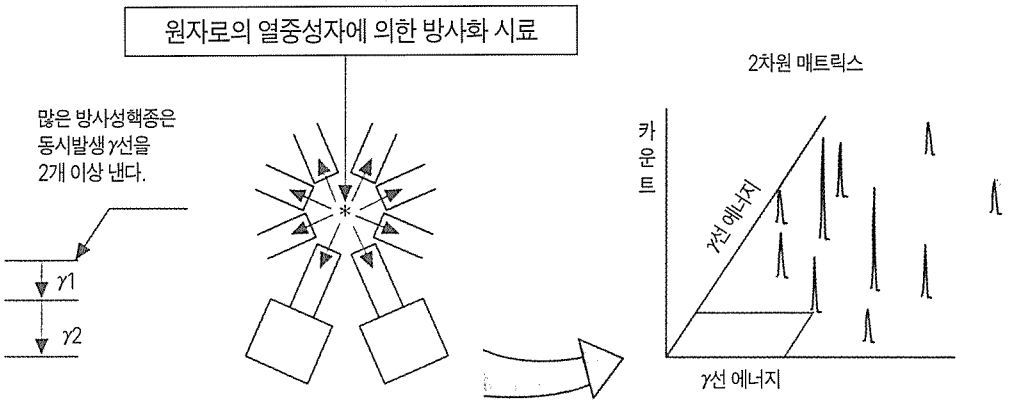
중성자 방사화법의 고도화에 의한 미량 49가지 원소의 동시정량

2차원 매트릭스에 의한 새로운 고감도핵종분석법의 응용

종래의 방사성핵종분석은 방사성핵종에서 방출된 γ선을 1대의 γ선검출기로 측정해서 얻어지는 1차원의 에너지 스펙트럼으로부터 에너지나 반감기의 정보를 바탕으로 핵종을 동정(同定)하고 있다. γ선검출기로서 통상 사용되는 Ge검출기의 분해능은 약 1/1,000이다. 방사성핵종은 평균적으로 10정도의 γ선을 방출하기 때문에, 적은 핵종을 함유한 시료에 대해서는 문제되지 않지만, 수 십핵종을 함유한 시료에서 γ선의 수는 수 백에 이르러, 이것들은 모두 분리한다는 것은 불가능하다.

특히, 약한 γ선을 정량하기 위해서는 일반적으로 화학분리 또는 핵종을 반감기별로 측정하여 나누는 방법을 취하고 있다. 그러나 화학분리에는 특수한 기술과 노고가 필요할 뿐만 아니라, 화학분리의 수율을 구해야 하며, 이 조작중에 오차가 생길 가능성이 있다. 또 장반감기 핵종을 단반감기의 것이 붕괴하는 것을 기다려서 측정하는 방법으로는 다소 시간이 걸리고 또 그 동안에 검출기계를 유지하는 일도 힘들다.

이번에, 많은 방사성핵종이 복수의 동시발생 γ선을 방출한다는 것에 착안하여, 이것들을 복수의 γ선 검출기로 구성된 다중 γ선 검출장치에 의하여, 동시계수측정하여 얻어지는 2개 γ선의 상관관계를 해석하는 방법을 고안하였다(그림 1참조), 구체적으로는 두가지의 γ선이 동시 발생한 사상(事象)을 기록하여, 2차원 매트릭스 상에 사상의 빈도분포를 만들어, 그 위의 피크높이에서 핵종의 양을 정량하는 것이다. 이 방법으로 종래의 1차원 스펙트럼에 비하여 1,000분의 1배인 100만분의 1인 분해능을 얻을 수 있게 되었다. 자연계에는 2,000 이상의 핵종이 존재한다는 것이 알려져 있는데, 예를 들어 그것들이 동시에 존재한 경우에도, γ선의 수는 대략 1만 정도이기 때문에 이것들을 완전히 분리할 수 있게 되었다. 또, 백그라운드는 2차원 매트



중성자로 방사화된 방사성 핵종의 대부분은 많은 γ선을 방출한다. 이것을 검출한 2차원 매트릭스를 해석한다.

2차원 매트릭스에는 1차원법에 비하여 1,000배의 분해능을 얻을 수 있다. 그 위의 피크를 해석함으로써, 핵종을 완전 분리 할 수 있다.

그림1. 다중 γ선 검출법

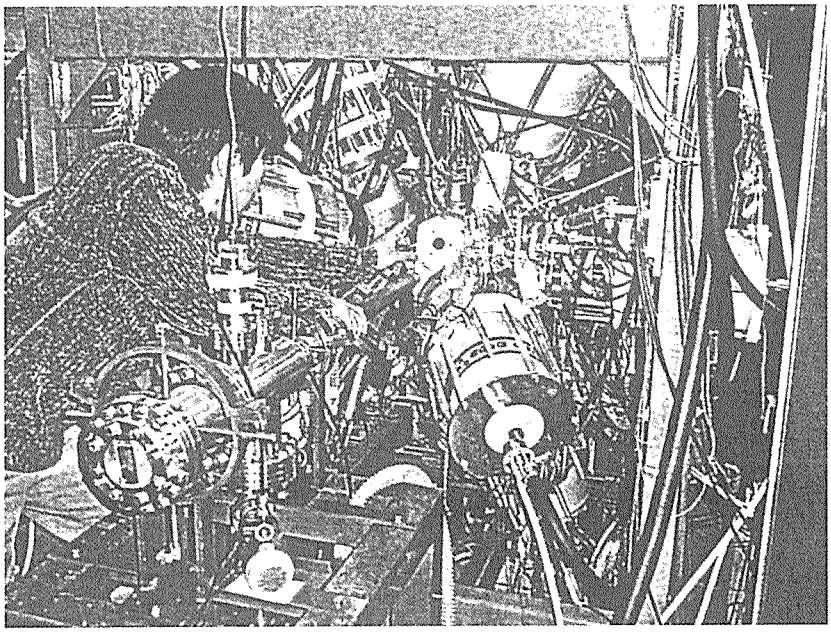


그림2. 다중 γ선 검출장치 "GEMINI"

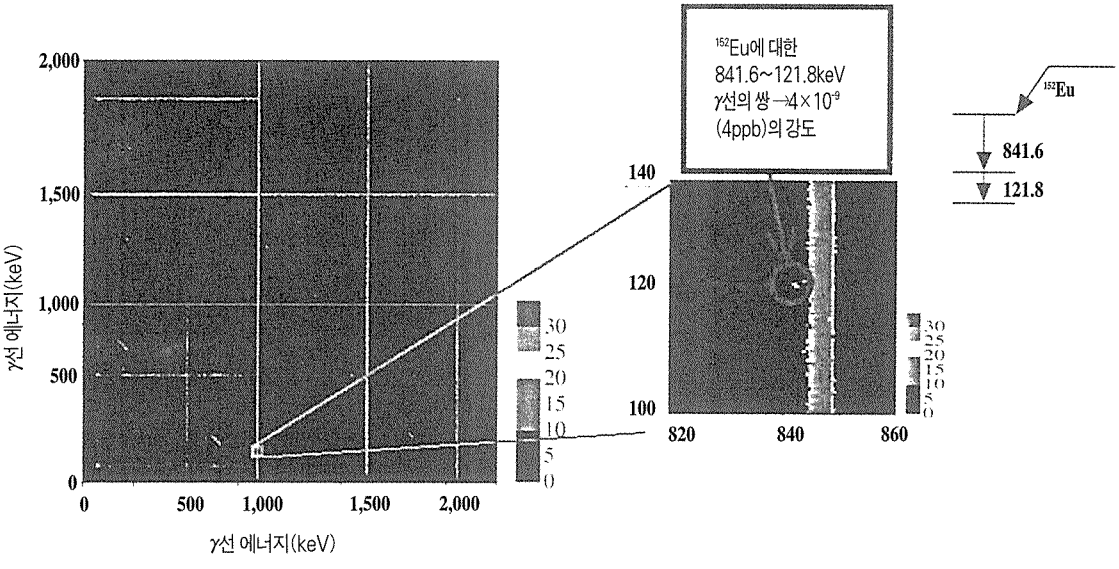


그림3. 표준 암석시료에 대한 2차원 매트릭스

릭스 상에 국재(局在)하여, 거의 모든 영역에서 수 카운트이하로 억제되기 때문에, 미약한 피크의 검출이 가능케 되고, 검출감도가 올라가는 잇점도 있다.

이 방법은 여러 가지의 응용을 생각할 수 있는데, 이번에는 중성자 방사화 분석에 응용한 예를 소개한다. 많은 원소를 함유한 의료에는 고감도의 핵종정량기술이 필요하다. 실증 예로는, 일본의 통상성 공업기술원 지질조사소가 발행하고 있는 표준암석시료 JB-1a 및 JP-1 각각 약 100mg 시료에 원자력연구소의 JRR-4에서 중성자를 10분간 조사하여 방사화시켰다. 이 시료는 비파괴로(화학분리등의 처리없이) 탄덤가속기시설의 다중 γ선 검출장치 "GEMINI"(그림 2)에서 1일 및 4일간, 다중γ선을 측정하였다. 그 결과, 그림 3의 매트릭스를 얻어서 27가지 핵종의 원소를 동시에 정량하였다. 측정된 원소는 γ선의 강도에서 그 함유량을 계산하면, 지금까지 얻어진 문헌의 값과 오차범위내에서 일치하였다. 또 같은 수법으로 49가지 원소의 동시정량이 가능하다는 것을 명백하게 하였다. 2차원 매트릭스에서는 백그라운드가 대폭적으로 저감하기 때문에, 미약한 피크의 검출이 가능하게 되어, 실로 존재비 10^{-9}(10억분의 1) 정도의 핵종을 정량할 수 있게 되었다.

새로운 검출법을 적용할 수 있는 원소로 동시발생하는 2개 이상의 γ선이 있어야 한다는 것, 또 반감기는 조사후 γ선을 측정하는데 까지 요하는 시간 (10분 정도) 이상이어야 한다는 제약으로

Ag, As, Ba, Br, Ca, Cd, Ce, Cl, Co, Cs, Er,

Eu, Fe, Ga, Gd, Ge, Hf, Hg, I, In, Ir, K, La, Lu, Mn, Mo, Na, Nd, Ne, Ni, Os, Pt, Ra, Rb, Re, Ru, Sb, Sc, Se, Sm, Sn, Ta, Tb, Th, Ti, U, W, Yb, Zn

의 49가지 원소가 가능하며, 그 검출한계는 10^{-6} ~10^{-9}(중량비)이다.

이번에 사용한 다중γ선검출장치 "GEMINI"는, BGO컴프턴서프레서와 Ge검출기로 구성된 저백그라운드, 고 분해능의 역컴프턴γ선 분석기 16대를 중심에 놓은 선원으로부터의 γ선을 효율성 있게 검출할 수 있도록 구상으로 배치한 장치이다. 갖가지의 핵반응에 의하여 미지의 원자핵을 합성하여, 여기상태로부터의 γ선을 측정하여, 그것들의 내부구조를 조사하는 목적으로 1998년 7월에 완성하였다. 원자력연구소 탄덤가속기시설의 중이온빔을 사용한 핵분광실험에서 많은 실적을 올리고 있다. 이번에 그 새로운 응용방향을 열게되었다.

이 새로운 수단에서는 화학분리 등의 인위적인 조작이 필요하지 않기 때문에, 계산기에 의한 온라인화가 가능하다. 즉, 시료를 측정하면서 2차원 매트릭스를 만들어 동시에 계산기에 내장한 핵종별의 핵데이터를 참조하여, 매트릭스상의 피크강도로부터 핵종을 정량하여, 실시간으로 결과를 나타낼 수 있게 되었다. 이 온라인 프로그램은 현재 개발중에 있다. 이것이 실현되면, 조사시료를 검출기의 중앙에 놓은 것만으로, 수시간후에는 수 10가지 원소의 정량결과가 시시각각으로 디스플레이 상에 표시된다.

또, 미리 무게에 의하여 정량한 복수의 원소시료를 섞은 혼합표준시료를 만들어 놓고, 측정하려는 시료와 동일조건에서 중성자 방사화시켜 다중γ선의 강도비에서 정량하는 비교법으로, 지금까지 없었던 고정밀도의 정량을 할 수 있다고 생각된다. 종래의 1차원법으로는 스펙트럼이 복잡하여 많은 원소시료를 동시에 정량할 수는 없었지만, 이번의 2차원 매트릭크스법으로 충분히 가능하게 되었다.

앞으로, 이 기술을 개발하여, 핵종분석이나 원소미량분석에 있어서 더욱 대폭적인 응용을 할 수 있게 할 것이다. KRIA