

Radioassay of Multiple Beta-Labeled Mixtures using Least-Square Method

Kwang-II Seon, Uk-Won Nam, Kyoung-Nam Kong,
Chang-Kyu Kim*, Dong-Myung Lee*, Sang-Kook Lee*

Korea Astronomy Observatory, *Korea Institute of Nuclear Safety

최소자승법을 이용한 다수 베타 방출 핵종 혼합물의 방사능 분석

선광일 · 남옥원 · 공경남 · 김창규* · 이동명* · 이상국*

한국천문연구원, *한국원자력안전기술원

(2001년 4월 20일 접수, 2001년 9월 28일 채택)

Abstract - It is possible to count and perform quench correction on two β -label samples so long as the maximum β -energies are sufficiently different. However, when the conventional technique is applied to the radioassay of a mixture of more than three nuclides, the reliability of the activities determined is considerably reduced, resulting from the large overlapping of liquid scintillation pulse height distributions of each nuclide. A technique that allows the activities of multiple β -labeled samples to be radioassayed was proposed by using the least square method. The technique was applied to mixture samples of ^3H , ^{14}C , ^{36}Cl , and ^{90}Sr . The analytical values were in good agreement with the reference values within 7% relative error.

Key words : Radioassay, Multiple beta-labeled samples, Least Square Method, Quenching correction, Liquid scintillator

요약 - 베타선 스펙트럼의 최대 에너지가 확실하게 구별되는 2개의 핵종만을 포함하는 혼합시료의 경우에는 최대 에너지가 다르다는 점을 이용하여 손쉽게 각 핵종의 방사능값을 측정할 수 있다. 그러나 3개 이상의 베타 방출 핵종이 포함된 혼합물에 대해서는 각 핵종의 스펙트럼이 서로 겹치기 때문에 이러한 방법으로 구해진 방사능값은 신뢰도가 떨어지게 된다. 따라서, 본 연구에서는 최소자승법을 이용하여 혼합물의 중첩된 베타선 스펙트럼을 각각 분리 정량분석할 수 있는 방법을 제시하였다. 또한, 실제로 4개의 베타 방출 핵종(^3H , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{90}Sr)이 혼합된 시료를 조작하여 본 분석법을 검증한 결과 참고치(Reference value)와 분석치가 7% 이내에서 잘 일치함을 보였다.

중심어 : 핵종분석, 이중 베타 방출 핵종 혼합물, 최소자승법, 소광보정, 액체 섬광계수기

서 론

최근, 산업 발전과 더불어 의료, 산업 및 학문 연구 분야에서 방사성동위원소의 활용이 증대됨에 따라 방사성동위원소의 안전관리의 중요성이 강조되고 있다. 의료 진단 및 학문 연구를 목적으로 가장 많이 사용되고 있는 방사성핵종은 대부분 베타 방출 핵종들이다. 따라서, 방사성동위원

소 사용 시설 내에서의 방사성핵종의 안전한 취급 관리도 중요하며, 환경보전 측면에서 당해 시설로부터의 배출물 관리 역시 중요한 사안이다. 현재, 일반적으로 방사성동위원소 사용시설에서 배출물 감시는 배출물 저장탱크의 시료를 일시적으로 채취하여 분석하는 방법이다. 그러나 이러한 기존의 방법은 배출물에 대한 상시 감시가 곤란하며, 매번 시료를 채취하는 번거로움이 있다. 또

한, 여러 종류의 베타 방출 핵종이 혼재되어 있는 배출물을 액체섬광계수기를 이용하여 측정하는 기존방법에서는 시료로부터 얻어지는 베타선의 연속스펙트럼이 서로 중첩되기 때문에 핵종별로 별도로 화학분리해서 각각의 핵종을 정량 분석해야 하는 단점이 있다. 따라서, 이와 같은 기존의 방사성동위원소 배출물 감시방법의 단점을 보완하고 효율화하기 위하여 배출물 감시를 실시간 연속 및 자동으로 감시할 수 있는 배수모니터 시스템의 개발이 필요하다.

본 연구에서는 배수모니터 시스템의 개발의 초기단계로서 우선 여러 종류의 베타 방출 핵종이 혼재되어 있는 배출물을 액체섬광계수기를 이용하여 정량 분석하는 경우, 나타나는 혼합 베타선 스펙트럼으로부터 베타 방출 핵종을 개별 정량 분석할 수 있는 알고리즘을 개발하고자 하였다.

액체 섬광계수기를 사용하여 다중 베타 방출 핵종을 정량 분석하는 기존의 방법에서는 베타 방출 핵종마다 베타선의 최대에너지가 서로 다르다는 점과 혼합 스펙트럼의 면적이 핵종별 면적의 합과 같다는 점에 착안하여 각 핵종별 베타선 스펙트럼의 모양이 분리되도록 채널을 설정함으로써, 간단한 1차 연립방정식으로부터 핵종별 방사능 값을 구하였다. 이러한 방법은 많은 연구 분야에서 중요하게 등장하는 ${}^3\text{H}$ - ${}^{14}\text{C}$, ${}^{14}\text{C}$ - ${}^{32}\text{P}$, ${}^3\text{H}$ - ${}^{35}\text{S}$, ${}^3\text{H}$ - ${}^{36}\text{Cl}$ 등의 핵종을 포함하는 혼합시료에 대해 폭넓게 적용되어왔으며[1-5]. 그밖에도 ${}^3\text{H}$ - ${}^{125}\text{I}$, ${}^{51}\text{Cr}$ - ${}^{14}\text{C}$ 등의 베타 방출 핵종을 포함하는 시료에 대해서도 연구가 수행되었다[6-7]. 그러나, 3개 이상의 핵종이 섞인 경우에는 그리 많은 적용 예가 없으며, 3개 이상의 베타 방출 핵종이 혼재하는 시료의 경우 액체 섬광계수기의 스펙트럼 분포가 많이 겹치기 때문에 기존의 방법으로 방사능을 정량 분석하는 경우 매우 큰 오차를 유발할 수 있다[8-10].

본 논문에서는 액체섬광계수기를 이용하여 3개 이상의 베타 방출 핵종이 혼재되어 있는 시료를 높은 신뢰성을 가지고 정량분석하기 위하여 최소자승법을 적용하여 혼합시료중에 존재하는 핵종을 각각 판별하여 핵종별로 방사능 값을 결정할 수 있는 알고리즘을 제시하였다. 또한, 본 연구에서 개발한 알고리즘의 신뢰성을 검증하기 위하여 3개 이상의 베타 방출핵종을 혼합한 표준시료를 조제하여 핵종별 방사능 값을 정량 분석한 다음 표준시료중의 각 핵종별 농도값과 비교 평가하였다.

베타 방출 핵종 분석 알고리즘

최소자승법을 이용한 알고리즘을 적용하기 위해서는 분석에 포함되는 핵종의 종류보다 측정되는 채널의 개수가 더 많아야 한다. 개별 채널에서의 계수율(count rate)은 액체 섬광계수기에 부착되어있는 다중 파고 분석기를 이용하여 측정할 수 있다.

채널의 개수를 m ($m >$ 핵종의 수)이라 하고 각 채널에서 예측되는 시료의 계수율을 \bar{n}_i ($i=1, \dots, m$)이라 할 때, 각 채널에서 예측되는 계수율은 다음의 방정식에 의해 정의된다.

$$\bar{n}_i = \sum_a A_a e_{ai} \quad \text{for } i=1, \dots, m \quad (1)$$

여기서 A_a 는 a -번째 핵종의 방사능 값(activity), e_{ai} 는 a -번째 핵종의 i -번째 채널에서의 계수 효율(counting efficiency)이다. 이때, 계수효율은 준비된 표준시료로부터 소광보정곡선(quenching correction curve)을 작성한 후, 혼합시료의 소광정도(quenching level)에 대응하는 각 핵종별 계수효율을 소광보정(quenching correction)을 통해 얻는다.

기존의 일반적인 방법은 분석을 통해 예측되는 계수율과 실제 측정되는 계수율이 같다고 놓고 각 핵종별 베타선 스펙트럼의 최대 에너지가 서로 분리되도록, 핵종의 개수만큼의 채널을 택하면 식(1)이 선형연립방정식이 되므로 식(1)의 역을 취함으로써 핵종별 방사능 값을 계산하였다. 그러나 이러한 방법으로는 핵종별로 스펙트럼 분리가 잘 될 때는 정확한 값을 얻을 수가 있으나, 그렇지 못한 경우 정확한 값을 얻을 수가 없는 경우가 많다.

최소자승법에서는 예측되는 계수율과 측정된 계수율을 같다고 놓지 않고 두 값의 차이의 자승의 합이 최소가 되도록 핵종별 방사능 값을 계산하는 것이다. 각 채널에서 측정된 계수율을 n_i ($i=1, \dots, m$)이라 하면, 예측치와 측정치가 얼마나 잘 맞는가를 나타내는 척도인 Goodness-of-fit parameter인 χ^2 값은 다음과 같이 정의된다.

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^m \frac{1}{\sigma_i^2} [n_i - \sum_a A_a e_{ai}]^2 \quad (2)$$

여기서 σ_i^2 는 배경잡음(background)등을 제거한 후, 배경잡음에 의한 오차 및 측정값 n_i 의 통계적인 표준편차를 모두 포함하는 오차 값이다. χ^2 의 값이 최소가 되도록 하기 위해서는 각 핵종별 방사능 값 A_α 에 대한 편미분값이 영(zero)이 되도록 하여야 한다.

$$\frac{\partial \chi^2}{\partial A_\alpha} = \sum_{i=1}^m \frac{2}{\sigma_i^2} [n_i - \sum_{\beta} A_\beta e_{\beta i}] (-e_{\alpha i}) = 0 \quad (3)$$

이 결과는 다음과 같은 A_α 에 대한 선형 연립방정식이 된다.

$$\sum_{\beta} P_{\alpha\beta} A_\beta = Q_\alpha \quad (4)$$

$$P_{\alpha\beta} \equiv \sum_i e_{\alpha i} e_{\beta i} \quad (5)$$

$$Q_\alpha \equiv \sum_i \frac{e_{\alpha i} n_i}{\sigma_i^2} \quad (6)$$

따라서, 핵종별 방사능 값은 소광보정을 통하여 계수효율을 구하고 구해진 계수효율 및 측정치를 이용하여 식(5)와 식(6)에 대입하여 $P_{\alpha\beta}$ 와 Q_α 을 구한 후, 식(4)의 역을 취함으로써 쉽게 얻어질 수 있다.

최소자승법을 이용할 때 $P_{\alpha\beta}$ 행렬의 역수가 바로 오차행렬 (error matrix)이므로 오차행렬의 대각선 원소에 의해 각 핵종별 방사능 값의 오차 값이 결정된다[11]. 그러나, 이 값은 소광보정을 통하여 계수효율을 계산할 때 오차 없이 계수효율이 정확히 계산되었을 때의 오차 값이다. 따라서 계수효율을 결정할 때 생기는 오차까지 고려하면 각 핵종별 방사능 값의 오차는 다음과 같이 계산될 수 있다.

$$\sigma_{A_\alpha} = \sqrt{P_{\alpha\alpha}^{-1} + \sigma_{\text{counting efficiency}}^2}$$

백그라운드와 시료 측정의 통계적 특성에 의해 좌우되는 오차는 백그라운드가 충분히 낮고 충분한 시간동안 여러 번에 걸쳐 시료를 측정한다면 오차를 줄일 수 있다. 따라서, 최종 결과의 신뢰성은 주로 소광 표준 시료 (quenching standard

sample)를 측정하여 작성된 소광보정곡선의 정밀도 및 소광보정곡선에 의해 결정된 계수효율의 정밀도에 의존한다. 따라서 표준시료를 충분한 시간동안 측정하여 정밀한 소광보정곡선을 작성하여야 한다.

재료 및 방법

다중핵종분석을 위한 최소자승법 알고리즘을 실제 적용 가능한지를 확인하기 위하여 표 1과 같이 4개의 핵종(^3H , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{90}Sr)을 고려하였고 각 핵종별로 5개의 소광정도를 갖는 표준시료를 조제하였으며, 1개의 백그라운드 측정을 위한 시료를 조제하였다. 또한 4개의 핵종을 표 2에 보여지는 혼합비율로 혼합하여 2개의 혼합시료를 조제하였다. 조제한 시료는 Wallac사의 1220 Quantulus, Ultra low level Liquid Scintillation Spectrometer를 사용하여 각각의 시료에 대해 3분씩 5회에 걸쳐 총 15분씩 low mode와 high mode에 대해 베타선 스펙트럼을 측정하였다. 실험을 위해 사용한 액체섬광계수기의 low mode는 주로 ^3H 를 측정하기 위해 사용하고, high mode는 주로 ^{14}C 와 같이 베타선의 에너지가 큰 핵종을 분석하기 위한 모드로 사용한다. 본 연구에서는 두 경우 모두에 대하여 최소자승법 알고리즘을 적용하였다. 측정된 베타선 스펙트럼은 총 1,024개의 채널을 갖는다. 소광정도를 구하기 위하여 감마표준선원으로부터 나오는 감마선을 시료에 조사시켜 발생하는 콤프톤 전자의 섬광 스펙트럼을 검출하였고, 감마선 섬광 스펙트럼의 총 세기의 1%에 해당하는 지점의 채널 번호를 SQP (Spectral Quenching Parameter of external standard method)값으로 정하여 사용하였다. 각각의 소광정도에 대해 5회에 걸쳐 측정된 SQP값을 low mode 및 high mode로 구분하여 평균을 취하였고 각 소광정도에 대한 평균 SQP값을 표 1과 표 2에 나타내었다.

최소자승법을 적용하기 위하여 최초의 1,024 채널을 그대로 사용하여도 되지만 실시간 연속 및 자동으로 핵종 분석을 하기 위해서는 1,024개의 채널을 갖는 스펙트럼을 그대로 사용하기보다는 채널의 개수를 줄이는 것이 효율적이다. 채널 개수에 따라 정량분석 결과가 얼마나 달라지는지 확인하기 위하여 1,024 채널 스펙트럼을 8개, 20개, 60개의 채널을 갖는 스펙트럼으로 재구성하여 각각의 경우에 최소자승법 알고리즘을 적용하

Table 1. Standard samples used for quenching correction and their SQP (spectral quenching parameter) values

^3H	Sample	kit(ea)	$\text{H}_2\text{O}(\text{g})$	Ultimagold-LLT (ml)	total(ml)	SQP(low)	SQP(high)
	H-1	1	2	18	20	777.7	776.6
	H-2	1	3	17	20	802.4	801.7
	H-3	1	8	12	20	836.2	836.1
	H-4	1	10	10	20	844.6	846.5
	H-5	1	5	15	20	855.6	852.9
^{14}C	Sample	kit(ea)	$\text{H}_2\text{O}(\text{g})$	Ultimagold-LLT (ml)	total(ml)	SQP(low)	SQP(high)
	C-1	1	2	18	20	781.5	782.1
	C-2	1	3	17	20	801.2	799.7
	C-3	1	8	12	20	827.8	828.6
	C-4	1	10	10	20	842.6	841.6
	C-5	1	5	15	20	858.8	859.0
^{36}Cl	Sample	sol'n(g)	$\text{H}_2\text{O}(\text{g})$	Ultimagold-LLT (ml)	total(ml)	SQP(low)	SQP(high)
	Cl-1	1.0054	1	18	20	777.9	779.4
	Cl-2	0.9994	2	17	20	811.0	809.9
	Cl-3	0.9999	7	12	20	827.9	827.9
	Cl-4	1.0035	9	10	20	838.4	841.0
	Cl-5	1.0267	4	15	20	854.9	852.4
^{90}Sr	Sample	sol'n(g)	$\text{H}_2\text{O}(\text{g})$	Ultimagold-LLT (ml)	total(ml)	SQP(low)	SQP(high)
	Sr-1	0.5032	1.5	18	20	782.0	780.1
	Sr-2	0.5079	2.5	17	20	801.2	801.5
	Sr-3	0.5032	7.5	12	20	831.8	830.2
	Sr-4	0.5078	9.5	10	20	841.2	840.6
	Sr-5	0.5071	4.5	15	20	862.8	861.8
Background			5	15	20	805.6	807.2

Table 2. Mixed Samples used for application of least square method

Sample	Mixed Ratios	$\text{H}_2\text{O}(\text{g})$	Ultimagold-LLT (ml)	total (ml)	SQP(low)	SQP(high)
Mix-1	^3H kit 1ea + ^{14}C kit 1ea + ^{36}Cl 1.0108g + ^{90}Sr 0.5102g	6.5	12	20	798.5	794.9
Mix-2	^3H kit 1ea + ^{14}C kit 1ea + ^{36}Cl 1.0154g + ^{90}Sr 0.5038g	3.5	15	20	829.3	826.3

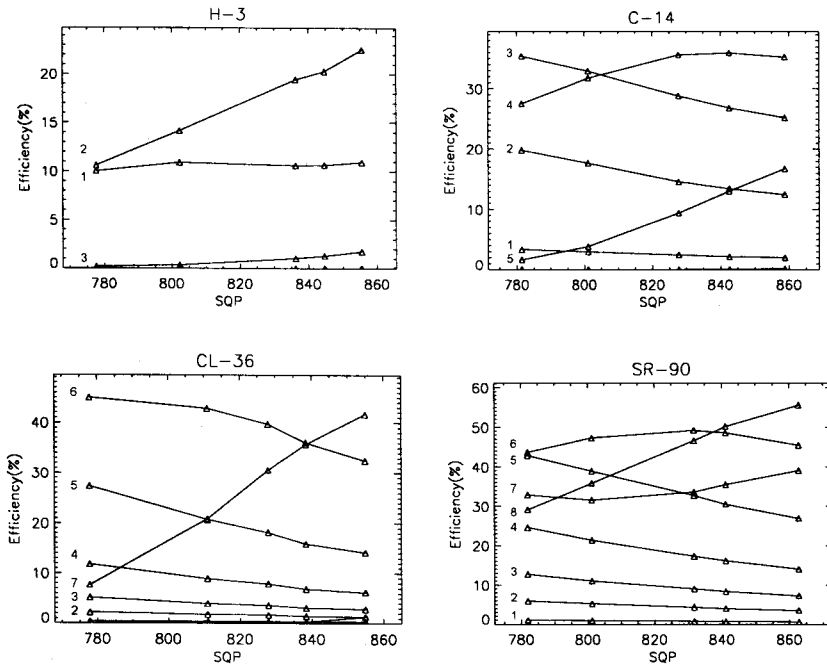


Fig. 1. External standard quenching correction curves for low mode spectra in each bin for ^3H , ^{14}C , ^{36}Cl , and ^{90}Sr , respectively. Eight pulse height channels are used, and the channel numbers are shown in the left side of corresponding curves. SQP means spectral quenching parameter of external standard method, which is used as an indicator of the quenching level of the prepared samples.

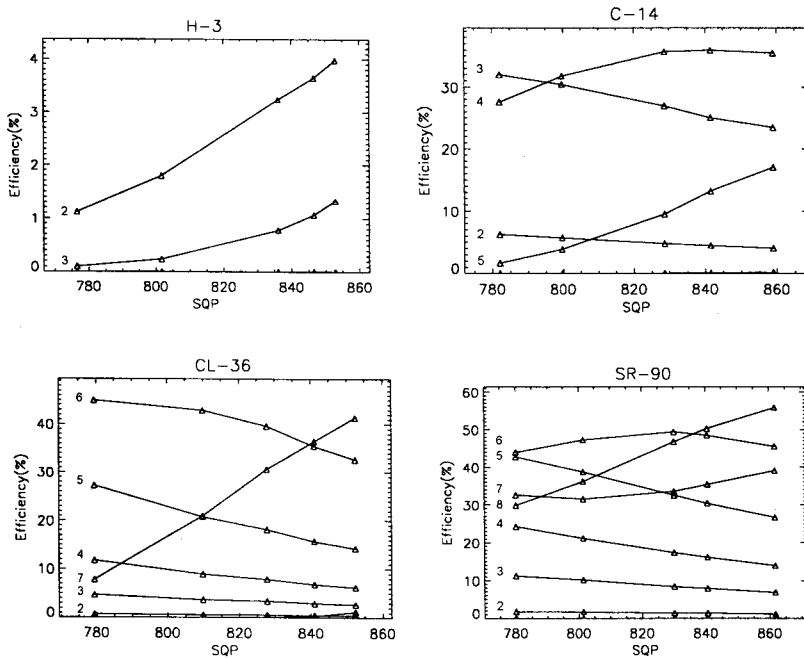


Fig. 2. External standard quenching correction curves for high mode spectra in each bin for ^3H , ^{14}C , ^{36}Cl , and ^{90}Sr , respectively. Eight pulse height channels are used, and the channel numbers are shown in the left side of corresponding curves. SQP means spectral quenching parameter of external standard method, which is used as an indicator of the quenching level of the prepared samples.

였다. 각 핵종별로 각 채널에서의 SQP값과 계수 효율의 관계를 나타내는 소광보정곡선을 표준시료에 대해 작성하였고 그림 1과 그림 2는 채널의 개수를 8개로 하였을 때의 low mode 및 high mode에 대한 소광보정곡선을 보여준다. 그림에서 각 곡선의 왼쪽에 표시된 번호는 그 곡선에 대응하는 채널 번호를 나타낸다. 채널의 개수를 20개, 60개로 하였을 경우도 동일하게 low mode와 high mode에 대하여 소광보정곡선을 작성하였다.

각각의 소광보정곡선에 대하여 다항식 함수를 이용하여 curve fitting하거나 내삽법(interpolation)

을 이용함으로써 혼합시료의 소광정도에 대응하는 각 핵종의 계수효율을 구할 수 있다. 여기서는 내삽법을 이용하여 소광보정곡선으로부터 혼합시료의 소광정도에 대응하는 각 핵종의 계수효율을 결정하고, 각 핵종의 방사능 값은 식(4)-(6)을 이용하여 계산하였다.

분석결과

최소자승법을 이용한 핵종분석방법으로 계산된 각 핵종별 방사능 값은 표 3과 표 4에 나타나 있다.

Table 3. Radioactivities calculated for mixture sample Mix-1

	# of bins	Calculated Total Counts (dpm)	Nuclides	Calculated Counts (dpm)	Error (%)
Low Mode	8	407578.6	^3H	193237.7	5.98
			^{14}C	104976.2	-3.12
			^{36}Cl	108984.5	-2.41
			^{90}Sr	82399.5	0.49
	20	407488.0	^3H	193357.2	5.92
			^{14}C	104828.7	-2.99
			^{36}Cl	108741.9	-2.19
			^{90}Sr	82530.7	0.33
	60	407077.0	^3H	191238.8	7.09
			^{14}C	105044.5	-3.19
			^{36}Cl	109288.3	-2.68
			^{90}Sr	82206.0	0.72
High Mode	8	336759.1	^3H	200036.3	2.38
			^{14}C	101493.1	0.20
			^{36}Cl	107178.5	-0.77
			^{90}Sr	84287.0	-1.76
	20	336697.4	^3H	194336.9	5.38
			^{14}C	101768.4	-0.07
			^{36}Cl	109153.9	-2.56
			^{90}Sr	83174.5	-0.45
	60	336631.5	^3H	191976.1	6.68
			^{14}C	101929.4	-0.23
			^{36}Cl	110086.5	-3.39
			^{90}Sr	82614.6	0.23

Table 4. Radioactivities calculated for mixture sample Mix-2

	# of bins	Calculated Total Counts (dpm)	Nuclides	Calculated Counts (dpm)	Error (%)
Low Mode	8	419228.3	³ H	194689.3	5.19
			¹⁴ C	104791.6	-2.95
			³⁶ Cl	104979.1	1.31
			⁹⁰ Sr	82327.8	0.58
	20	419174.4	³ H	194356.6	5.37
			¹⁴ C	104758.8	-2.92
			³⁶ Cl	105757.6	0.57
			⁹⁰ Sr	81956.6	1.03
	60	418667.5	³ H	192224.8	6.54
			¹⁴ C	104908.3	-3.06
			³⁶ Cl	105461.1	0.85
			⁹⁰ Sr	82110.1	0.84
High Mode	8	346572.6	³ H	202159.4	1.31
			¹⁴ C	101500.4	0.20
			³⁶ Cl	106086.1	0.26
			⁹⁰ Sr	82523.8	0.34
	20	346553.9	³ H	199449.8	2.68
			¹⁴ C	101711.6	-0.01
			³⁶ Cl	105880.6	0.45
			⁹⁰ Sr	82586.7	0.26
	60	346520.6	³ H	198723.7	3.06
			¹⁴ C	101772.5	-0.07
			³⁶ Cl	105995.3	0.34
			⁹⁰ Sr	82497.0	0.37

표 3은 혼합시료 Mix-1에 대한 분석결과를 보여주고 있으며, 표 4는 혼합시료 Mix-2에 대한 분석결과를 보여준다. 표에 나타난 오차는 최소자승법 알고리즘에 의해 계산된 값이 미리 알려진 참고치로부터 몇 %의 차이가 있는지를 나타낸다. 표로부터 최소자승법 알고리즘을 이용하여 방사능 값을 정량 분석할 때 전체 스펙트럼의 채널을 8개, 20개 및 60개로 등분함에 따라 큰 차이 없이 7% 이내에서 잘 일치함을 볼 수 있다.

그림 3은 혼합시료의 측정 스펙트럼과 최소자승법으로 계산된 스펙트럼을 보여준다. 그림에서 혼합시료 Mix-1 과 Mix-2의 측정 스펙트럼은 각

각 삼각형 및 사각형 모양의 기호로 나타냈으며 최소자승법에 의해 계산된 각각의 혼합시료에 대한 스펙트럼은 실선과 점선 히스토그램으로 나타내었다. 특히, 60개의 채널을 사용한 경우에 대해서는 각 핵종별로 계산된 스펙트럼을 연속 실선 및 점선으로 표시하였으며, 각 핵종의 베타선 스펙트럼이 혼합시료의 스펙트럼에 어떻게 포함되어 있는지 잘 보여준다.

실험을 위해 사용된 액체섬광계수기는 핵종분석의 편의성을 위하여 low mode와 high mode로 나누어서 측정하도록 되어있다. 특히, high mode에서는 그림 3의 60채널에 대한 결과에서 알 수

있듯이 ^3H 의 베타선 스펙트럼에 대한 검출효율이 매우 작지만, 최소자승법을 이용하여 low mode에서 얻은 값과 오차 내에서 동일한 값을 얻을 수 있었다. 이 사실로부터 상대적으로 검출효율이 낮은 에너지에서 최대 값을 갖는 핵종에도 최소자승법이 잘 적용됨을 알 수 있다. 그러나, 혼합시료의 계수율이 매우 작을 때는 모든 핵종에 대한

검출효율이 균등하도록 액체섬광계수기의 검출모드를 선정하는 것이 유리할 것이다. 구하고자 하는 핵종의 개수와 베타선 스펙트럼의 채널개수가 같게 되면 기존의 방법과 동일한 방법이 되지만 채널의 개수를 핵종의 개수보다 많게 하여 최소자승법을 적용함으로써 ^{36}Cl 및 ^{90}Sr 과 같이 베타선 스펙트럼의 모양이 비슷한 핵종의 혼합물에

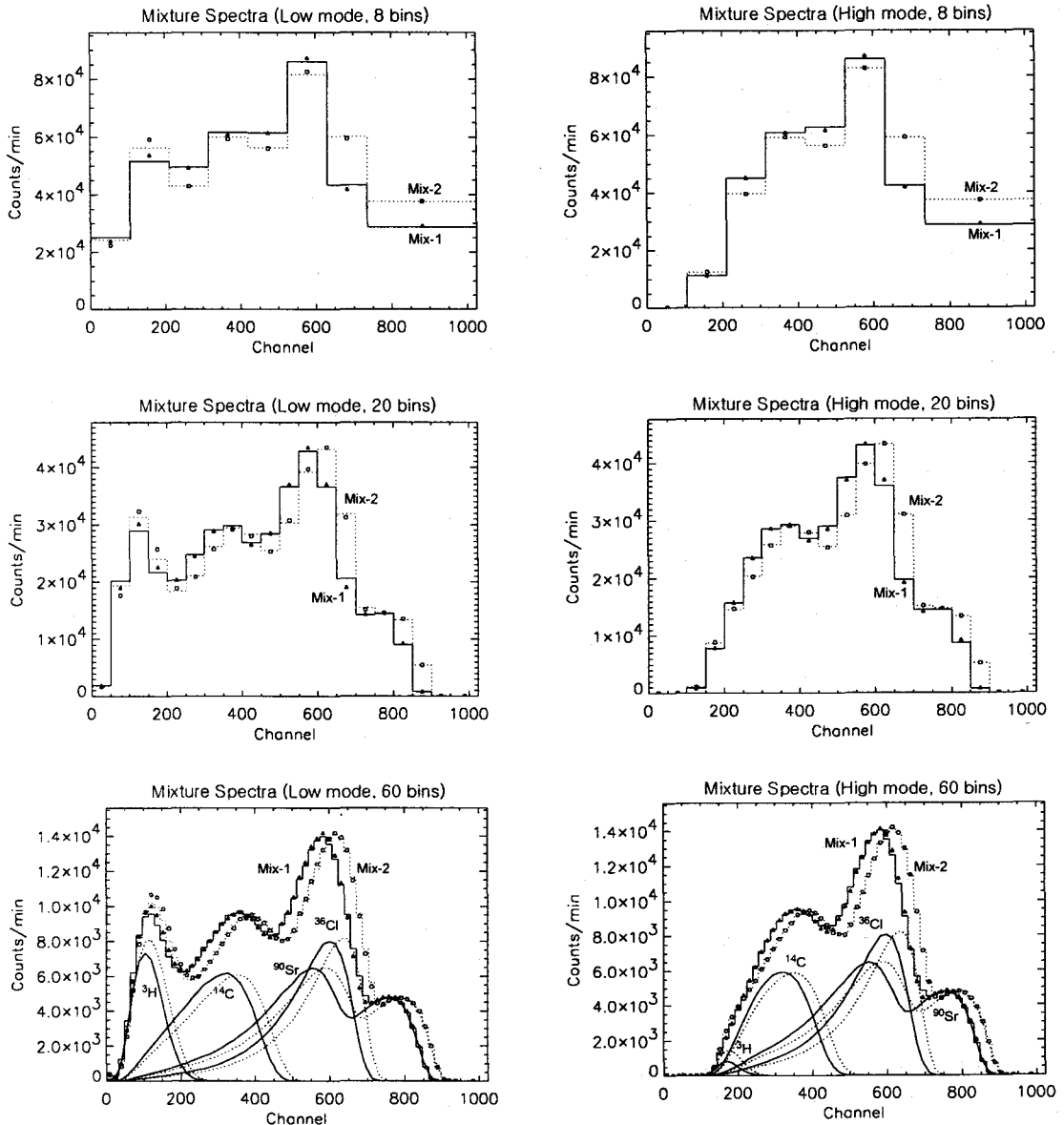


Fig. 3. Liquid scintillation pulse height distributions for mixture samples. Triangular and rectangular symbols represent measured data from Mix-1 and Mix-2 samples, respectively. Estimated data using least square method are shown as solid and dotted histograms for Mix-1 and Mix-2 samples, respectively. Estimated pulse height spectra of each nuclides are shown for the cases, in which 60 channels are used for radioassay.

대해서도 핵종 분석이 가능함을 보였다.

채널의 개수와 핵종의 개수를 갖게 설정하거나, 채널의 개수를 너무 적게 설정하면 여러 핵종의 최대 에너지가 한 채널에 중복되어 나타나게 되므로 정확한 핵종분석이 어려워진다. 채널의 개수가 핵종의 개수에 비해 지나치게 많은 경우는 각 채널의 계수율이 작아지므로 혼합시료 뿐만 아니라 표준시료의 각 채널에서의 통계적 특성이 좋지 못하게 된다. 이 경우 혼합시료의 통계적 오차가 커지게 될 뿐만 아니라 계수효율 계산에도 큰 오차가 포함되게 된다. 또한 분석 시에 많은 메모리와 시간을 필요로 하므로 실시간 자동 분석이 어려워진다. 그러나, 본 연구의 결과로부터 알 수 있듯이 시료의 통계적 특성이 나쁘지만 않다면 스펙트럼의 채널 개수와는 무관함을 알 수 있다. 이러한 사실은 식(4)에 채널에 대한 항들이 바깥으로 드러나지 않고 핵종에 대한 항만이 나타나 있다는 것으로부터 유추할 수 있다. 결론적으로 여러 핵종의 최대 에너지가 한 채널에 중복되지 않는 한도 내에서 채널의 개수를 줄이게 되면 충분한 신뢰도를 유지하면서도 효율적인 베타 방출 핵종의 정량분석을 수행할 수 있을 것으로 기대된다.

소광정도가 크게 변하는 많은 수의 시료를 자동으로 분석하기 위해서는 소광정도를 더욱 많이 변화시켜가며 소광보정곡선을 구하여야 하므로 내삽법을 이용하는 것보다 다항식 함수를 이용하여 미리 계수를 기억해 놓은 다음 소광보정을 수행하는 편이 좀 더 적은 메모리를 차지하면서 빠른 계산을 수행할 수 있다. 다항식 함수를 이용하는 경우는 소광보정곡선의 모양에 굴곡이 많지 않기 때문에 3차항 까지만 고려하면 충분하다.

결론 및 토의

액체섬광계수기를 이용하여 3개 이상의 베타 방출 핵종이 혼합되어 있는 시료를 각 핵종별로 분별 정량분석하기 위하여 최소자승법을 적용하였다. 그 결과 본 연구에서 개발한 알고리즘을 이용하여 방사능 값을 정량 분석할 때 전체스펙트럼의 채널을 어떻게 나누는가에 관계없이 매우 잘 일치함을 보였다. 또한, 액체섬광계수기의 핵종분석 편의성을 위하여 구분된 low mode와 high mode의 측정모드에 관계없이 잘 일치하는 결과를 얻었다.

기존의 분석법은 혼합시료에 포함된 각 핵종의 베타선 스펙트럼이 잘 분리되고, 각 채널의 총 계

수율이 각 핵종별 계수율의 총 합과 같다는 가정으로부터 핵종별 방사능 값을 계산한다. 그러나, 최소자승법에 의한 분석법은 각 핵종의 베타선 스펙트럼이 잘 분리되지 않고 겹치더라도, 혼합시료의 베타선 스펙트럼과 가장 가까운 모양을 만들어주는 핵종별 방사능 값을 통계적인 방법에 의해 찾아준다. 이와 같은 점이 본 연구를 통해 개발된 최소자승법을 이용한 핵종분석법과 기존의 분석법의 가장 큰 차이점이라고 할 수 있다.

본 연구에서 제시된 최소자승법을 이용한 알고리즘은 기존의 통상적인 방법과는 달리 3개 이상의 베타 방출 핵종이 혼재하여 각 핵종의 베타선 스펙트럼 모양이 비슷한 경우에도 베타 방출 핵종 정량분석을 위해 사용될 수 있다. 기존의 통상적인 방법은 각 핵종의 베타선 스펙트럼 분포가 많이 겹치게 되면 베타 방출 핵종 정량분석의 신뢰도가 떨어질 수 밖에 없지만, 최소자승법을 이용함으로써 충분한 시간동안 스펙트럼을 측정한다면 원리적으로 어떤 핵종의 혼합시료에 대해서도 핵종 분석이 가능하다.

참고문헌

1. D. S. Glass, Int. J. Appl. Radiat. and Isot. 21 531.(1970).
2. M. B. Snipes and F. W. Lengemann, Int. J. Appl. Radiat. and Isot. 22 513.(1971).
3. Abrams, D. N., McQuarrie, S. A. and Ediss, C. J. Radioanal. Chem., 65, 331(1981).
4. Carroll, C. O. and Houser T. J. Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 21, 261(1970).
5. Elbrink, J. Advances in Scintillation Counting, edited by S. A. McQuarrie, C. Ediss and L. I. Wiebe, pp. 132-137, Univ. of Alberta Printing Services, Edmonton(1983).
6. De Filippis, S. J. and Everett, L. J. Trans. Amer. Nucl. Soc., 39, 21.(1981).
7. Sheppard, G. and Marlow, C. G. Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 22, 125(1971).
8. H. Veen, Int. J. Appl. Radiat. and Isot. 25 355(1974).
9. W. L. Oller and P. Plato, Int. J. Appl. Radiat. and Isot. 23 481(1972).
10. P. Plato and W. L. Oller, Nucl. Instr. and

Meth. 125 177(1975).

11. P. R. Bevington and D. K. Robinson, Data Reduction and Error Analysis for The Physical Sciences, 2nd ed., pp115-140, McGraw-Hill, Inc., New York(1992).