

## A Practical and Simple Method of Self-absorption Correction for Environmental Samples

Wanno Lee · Haeng Pil Lee\* · Kun-Ho Chung · Young Hyun Cho ·  
Geun Sik Choi · Chang Woo Lee · Hyung-Wook Chung\*\* ·  
Eun Ju Lee\*\* · You Sup Sho\*\* · Jong Ok Lee\*\*

Nuclear Environment Research Division, Korea Atomic Energy Research Institute

\*Water & Sediment Analysis Team, Korea Institute of Coastal Ecology, Inc

\*\*Department of Food Evaluation, Korea Food and Drug Administration

### 실용적이고 간단한 환경시료의 감마핵종 자체흡수보정 방법

이완로 · 이행필\* · 정근호 · 최근식 · 조영현 ·  
이창우 · 정형욱\*\* · 이은주\*\* · 소유섭\*\* · 이종욱\*\*

한국원자력연구소 원자력환경연구부

\*한국연안환경생태연구소 수질·퇴적물 분석팀

\*\*식품의약품안전청 식품평가부

(2005년 1월 12일 접수, 2006년 2월 20일 채택)

**Abstract** - A self-absorption correction is important issue for the exact radioactivity determination of gamma emitting radionuclides in environmental samples which have the range of apparent density from 0.3 g/cm<sup>3</sup> up to 1.5 g/cm<sup>3</sup>. In this paper, a practical and simple method without radioactive standard solutions having various densities is proposed for the self-absorption correction of environmental samples by a developed outside beaker surrounding Marinelli beaker. For the densities of 0.8, 1.0, 1.3 g/cm<sup>3</sup>, the corrected efficiencies by the new method and the measured those by radioactive standard solutions of the three densities showed good agreement within 4 %.

**Key words** : self-absorption correction, Marinelli geometry, radioactivity, environmental sample.

**요약** - 0.3 g/cm<sup>3</sup> 에서 1.5 g/cm<sup>3</sup>까지 다양한 겉보기 밀도를 갖는 감마방출핵종 환경시료의 정확한 방사능 분석을 위해서 자체흡수보정(self-absorption correction)은 중요한 문제이다. 방사선 표준선원을 밀도별로 제작할 필요없이 마리넬리 비커를 감싸는 외부용기를 새롭게 제작하여 실용적이면서 간단한 자체흡수보정방법을 본 논문에서 제시하였다. 밀도 0.8, 1.0, 1.3 g/cm<sup>3</sup> 대해서 새로운 방법을 이용하여 자체흡수보정을 한 효율들과 밀도별로 직접 표준선원용액을 만들어 측정 한 효율값이 4 % 이내에서 일치하였다.

**중심어** : 자체흡수보정, 마리넬리 구조, 방사능, 환경시료

### 서 론

고순도 게르마늄 감마분광분석기(HPGe gamma spectroscopy)를 이용한 환경방사능 분석시 시료의

밀도에 따른 자체흡수보정은 검출기의 효율을 정확히 구하는 데 중요한 문제이다. 정확한 효율을 구하기 위하여 교정용 표준시료와 측정하고자 하는 실제시료가 물리적 및 화학적으로 동일해야 하는

데 현실적으로 이것은 불가능하다. 특히 겉보기 밀도가 0.3 g/cm<sup>3</sup>에서 1.5 g/cm<sup>3</sup>까지의 다양한 범위를 갖는 환경시료에서 각각의 밀도에 대해 표준시료를 만든다는 것은 대단히 어려울 뿐만 아니라 경제적, 시간적으로 제약이 많이 따른다. 따라서 오래전부터 많은 연구자들은 몬테칼로 시뮬레이션이나 한정된 수의 밀도가 다른 표준시료를 이용하여 자체흡수보정 값을 구한 후 이를 외삽해서 밀도 차이에 대한 효율을 보정하였다[1-4]. 그러나 위에서 언급한 방법 또한 너무나 전문적이고 조금이라도 시료구조가 다른 경우에는 복잡한 시뮬레이션을 통해서 보정값을 다시 구해야하기 때문에 현실적으로 이를 적용하기는 상당히 어려웠다. 현재 감마방사능 분석에 사용하는 방법은 밀도 1.0 g/cm<sup>3</sup>인 수용액 혹은 고체상태의 표준시료를 이용하여 측정된 효율값을 다양한 밀도를 갖는 환경시료에 그대로 적용하고 있다. 따라서 표준시료와 측정시료의 밀도 차이로 자체흡수가 다르고 그 효과는 고 에너지보다 저 에너지에서 크게 나타난다.

본 연구에서는 마리넬리 비커를 이용하여 저준위환경시료의 방사능을 분석할 때 중요한 밀도에 따른 자체흡수보정 방법을 개발하였다. 개발된 방법을 이용하여 간단하고 실용적이면서 보정된 효율을 구할 수 있었다. 마지막으로 실제 환경시료에 적용하여 밀도에 따른 효율을 보정하였고 그 값을 밀도별로 제작된 표준시료로부터 구한 효율값과 비교하여 제시된 방법의 타당성을 입증하였다.

재료 및 방법

밀도에 따른 효율변화 측정

환경시료의 겉보기 밀도를 살펴보면, 커피가 0.3 g/cm<sup>3</sup> 근처를 보이고, 소금 1.4 g/cm<sup>3</sup>, 모래 1.5 g/cm<sup>3</sup> 등으로 다양하게 존재한다. 표 1에서 주로 환경시료 중 일부 식품시료의 겉보기 밀도를 보여주고 있다. 여기에서 오이, 대구곤, 홍합은 생체를 분쇄한 것이고, 배추, 오징어, 감자는 건조 분쇄한 것이며, 나머지 시료들은 시중에 일반적으로 판매되는 상태를 분쇄 및 균질화한 것이다.

이렇게 다양한 밀도를 갖는 환경시료의 효율보정을 위해 방사능을 알고 있는 방사성 용액을 사용하여, 밀도 1.0 g/cm<sup>3</sup>의 표준선원용액을 제작하였다. 밀도에 따른 효율변화 효과를 실험적으로 알아보기 위해서 450 ml 마리넬리 비커(PE)에 겉보기 밀도 0.3 g/cm<sup>3</sup>부터 1.5 g/cm<sup>3</sup>까지의 환경시

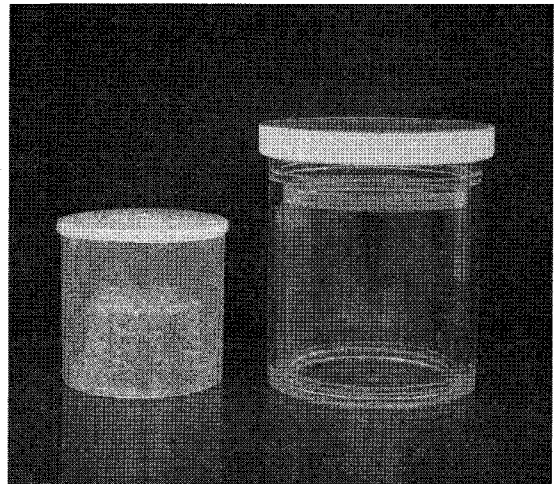
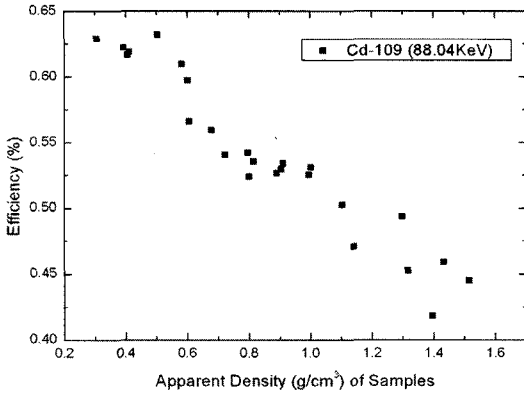


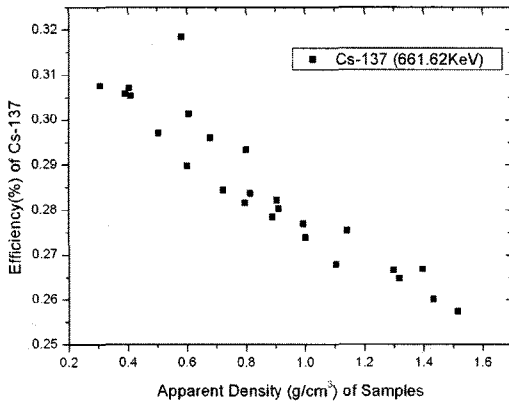
Fig. 1. Marinelli and outer beaker for the efficiency correction.

Table 1. Apparent density of foodstuffs among environmental samples.

Sample type	Coffee	Rosemary	Powdered milk	Sage	Parsley-1
Density	0.31	0.39	0.41	0.41	0.50
Sample type	Cinnamon	Parsley-2	Chinese cabbage	Dried centipede	Seed of <i>Zizyphus jujuba</i>
Density	0.58	0.60	0.61	0.68	0.72
Sample type	Caraway	Ear mushroom	Squid	Olive oil	Cucumber
Density	0.80	0.80	0.82	0.89	0.90
Sample type	Gonad of cod	Potato	Mussel	Spaghetti sauce	Deer antler
Density	0.91	1.00	1.00	1.10	1.14
Sample type	Strawberry jam	Apricot jam	Salt	Honey	Sand
Density	1.30	1.32	1.40	1.43	1.51



(a)



(b)

Fig. 2. The efficiencies change for the various densities by (a) Cd-109 and (b) Cs-137.

료 채운 후 그림 1과 같은 구조로 비커를 감싸는 외부용기(acryl)에 방사능을 알고 있는 표준선원 용액을 넣고 3시간씩 측정하였다. 외부용기 내에 채워진 표준선원용액의 두께는 5 mm, 용액량은 250 ml였다.

그림 2에서는 다양한 밀도에 따른 에너지별 효율의 변화를 보여주고 있는데, 그림 2(a)에서는 <sup>109</sup>Cd(88.04 keV)의 효율값의 변화를 보여주고 있다. 밀도 0.3 g/cm<sup>3</sup>에서의 효율과 1.5 g/cm<sup>3</sup>에서의 효율의 상대차이는 43 % 정도였다. 그림 2(b)를 보면 특히 일반 환경시료에서 관심 핵종인 <sup>137</sup>Cs(661.62 keV)의 경우 효율은 18 %의 차이를 보여 밀도에 대한 효과가 상당히 컸다. 그림에서는 표시되지 않았지만, <sup>60</sup>Co(1332.51 keV)의 경우에서도 9 % 정도 차이를 보였다. <sup>60</sup>Co(1332.51 keV) 핵종보다 높은 에너지 영역에서는 차이가

적을 것으로 예상되나 저 에너지 영역에서는 그 차이가 크기 때문에 밀도에 대한 보정은 환경시료에서 반드시 필요함을 실험으로 확인하였다.

보정상수 결정

실험결과로 확인된 문제점을 해결하기 위해서 새로운 방법의 자체흡수에 따른 효율보정 방법을 도입하였다. 제시된 방법을 살펴보면 그림 3과 같이 마리넬리 비커를 포함하는 외부용기를 새롭게 제작하여 이를 이용하였다. 이 방법은 보정상수를 구하는 과정과 그 보정상수를 이용하여 밀도가 고려된 효율값을 구하는(자체흡수 보정) 과정으로 이루어진다.

보정상수를 구하는 것은 다시 4단계로 이루어진다. 첫 번째 그림 3(a)와 같이 마리넬리 비커에 증류수( $\rho=1 \text{ g/cm}^3$ )를 이용하여 방사선원이 포함된 표준선원용액을 제작하여 측정한다. 여기서 측정된 효율값은 에너지의 함수이며 다음과 같이 표현된다;

$$\epsilon_i(\rho=1, E),$$

여기서  $i$  는 방사선표준선원이 마리넬리 비커 내에 존재한다는 의미이다.

두 번째는 그림 3(b)와 같이 마리넬리 비커에 표준선원이 없는 증류수만으로 시료를 제작한다. 마리넬리 비커를 감싸는 외부용기에 밀도( $\rho=1 \text{ g/cm}^3$ )의 증류수를 이용해 표준선원용액을 채운 후 측정한다. 효율값은 다음과 같이 표현된다;

$$\epsilon_o(\rho=1, E),$$

여기서  $o$  는 마리넬리 비커 외부용기(outside container)에 선원이 있다는 것이다. 위의 두 효율값을 이용하여 비율값을 구하면 아래와 같이 표현된다;

$$R(\rho=1, E) = \frac{\epsilon_i(\rho=1, E)}{\epsilon_o(\rho=1, E)}. \tag{1}$$

세 번째는 그림 3(c)와 같이 밀도( $\rho=x, \rho \neq 1 \text{ g/cm}^3$ )인 표준선원용액을 마리넬리 비커에 넣고 측정하여  $\epsilon_i(\rho=x, E)$ 의 값을 구한다. 마지막으로 그림 3(d)와 같이 마리넬리 비커에 방사선원이 포함되지 않은 밀도( $\rho=x, \rho \neq 1 \text{ g/cm}^3$ )의 시료를 넣고, 외부용기에는 밀도( $\rho=1 \text{ g/cm}^3$ )인 표

준선원용액을 넣고 측정하여  $\epsilon_o(\rho=x, E)$ 를 구하고 두 값을 이용하여  $R(\rho=x, E)$ 을 구하면 다음과 같이 표현된다;

$$R(\rho=x, E) = \frac{\epsilon_i(\rho=x, E)}{\epsilon_o(\rho=x, E)} \quad (2)$$

비율( $R$ )값은 밀도 및 에너지의 함수이고 본 연구에서는 밀도  $\rho=0.8, \rho=1, \rho=1.3 \text{ g/cm}^3$ 의 시료들에 대해서,

$R(\rho=0.8, E), R(\rho=1, E), R(\rho=1.3, E)$ , 값을 구한 후 비교하였다.

각각의 밀도를 갖는 표준시료는 에탄올, 증류수, 요오드화나트륨(NaI) 등 세 종류의 물질을 이용하여 다음과 같이 제작하였다;

- (1) 밀도  $1.0 \text{ g/cm}^3$ : 증류수만을 이용하여 제작,
- (2) 밀도  $0.8 \text{ g/cm}^3$ : 에탄올만을 이용하여 제작,
- (3) 밀도  $1.3 \text{ g/cm}^3$ : 증류수와 요오드화나 (NaI)을 이용하여 제작.

이렇게 제작된 시료를 이용하여 구한 밀도에 따른 비율값이 거의 일정함을 알 수 있었고 아래와 같이 표현할 수 있다;

$$R(\rho=0.8, E) = R(\rho=1, E) \approx R(\rho=1.3, E), \quad (3)$$

식 (1), (2), (3)를 이용하여 다음과 같이 표현할 수 있다;

$$R(\rho=1, E) = \frac{\epsilon_i(\rho=1, E)}{\epsilon_o(\rho=1, E)} \approx \frac{\epsilon_i(\rho=x, E)}{\epsilon_o(\rho=x, E)}, \quad (4)$$

여기서  $x$ 는  $0.8, 1.3 \text{ g/cm}^3$ 이다.

식(4)에서 구한 값을 본 논문에서는 보정상수로 사용하였다. 밀도가  $1.0 \text{ g/cm}^3$ 인 비율값을 보정상수로 정한 이유는 쉽게 표준시료를 제작할 수 있어서 경제적이고 간편하기 때문이다.

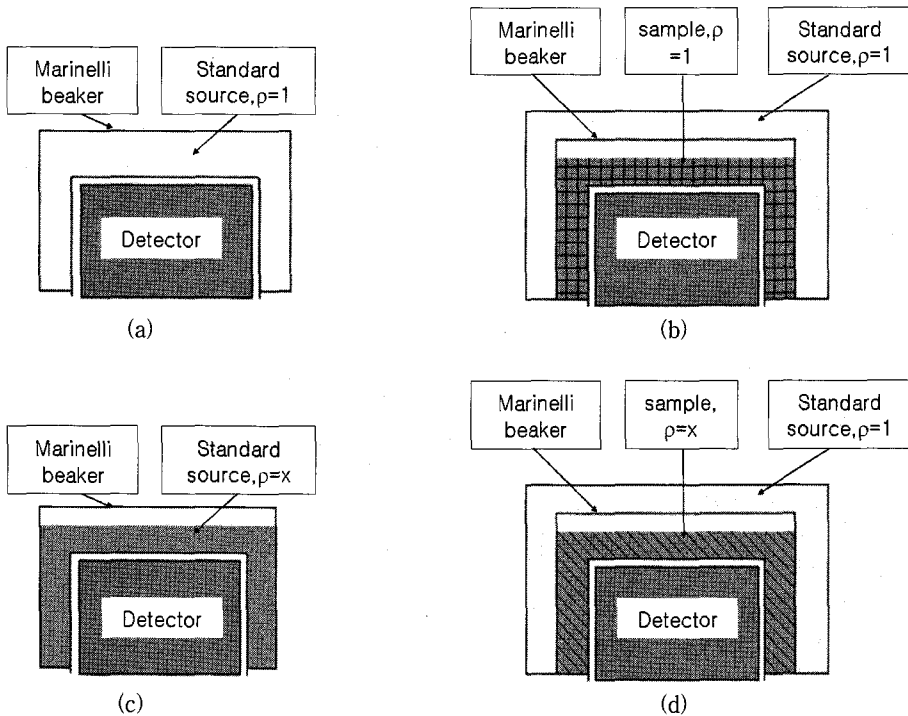


Fig. 3. The schematic diagram of the efficiency correction method for densities change; (a) measurement of internal efficiency at density  $1 \text{ g/cm}^3$ , (b) measurement of outer efficiency at density  $1 \text{ g/cm}^3$ , (c) measurement of internal efficiency at density  $x \text{ g/cm}^3$ , (d) measurement of outer efficiency at density  $x \text{ g/cm}^3$ .

효율값 보정

효율값 보정은 위에서 구한 보정상수를 이용하여 구할 수 있고 방법은 다음과 같다. 측정하고자 하는 시료와 밀도가 동일하고 방사능이 없는 바탕(blank)시료를 마리넬리 비커에 넣고, 그림 3(d)와 같이 밀도 1.0 g/cm<sup>3</sup>인 증류수를 이용하여 외부용기에 표준선원용액을 제작하여 효율 ( $\epsilon_o(\rho=x, E)$ )을 측정한다. 식(4)과 앞에서 구한 효율값을 이용하여 밀도가 보정된 효율 ( $\epsilon_{sa}(\rho=x, E)$ )값을 구하면 다음과 같이 표현된다;

$$\epsilon_{sa}(\rho=x, E) \approx R(\rho=1, E) \times \epsilon_o(\rho=x, E), \quad (5)$$

여기서  $sa$ 는 자체흡수(self-absorption)를 나타내고 있다.

위의 식(5)에서 보정된 효율값은 보정상수와 외부용기에 포함된 표준선원용액을 이용하여 측정된 효율값만으로 쉽게 구할 수 있다.

결과 및 고찰

표 2에서는 밀도에 따른 비율값을 보여주고 있는데, 세 밀도에 대한 비율값들이 거의 일정함을 알 수 있었고, 특히 밀도 0.8 g/cm<sup>3</sup>와 밀도 1.0 g/cm<sup>3</sup>의 비율값은 일치하였다. 또한 세 밀도에서 비율값의 최대 편차는 1173.23 keV에서 4.07 %였다. 이 결과를 이용하여 밀도가 보정된 효율값을 구하는 식(5)에서  $R(\rho=x, E)$ 값 대신  $R(\rho=1, E)$ 값을 사용해도 상관없음을 실험적으로 검증하였고 이 값을 보정상수로 결정했다.

Table 2. The ratios ( $R(\rho=x, E)$ ) for three densities.

Energy (keV)	Apparent density, $\rho=0.8$ (g/cm <sup>3</sup> )	Apparent density, $\rho=1.0$ (g/cm <sup>3</sup> )	Apparent density, $\rho=1.3$ (g/cm <sup>3</sup> )	relative difference, (%)
	$R(\rho=0.8, E)$	$R(\rho=1, E)$	$R(\rho=1.3, E)$	
88.04	5.71	5.71	5.90	3.22
122.07	5.72	5.72	5.67	0.88
391.71	5.51	5.51	5.39	2.23
661.62	4.91	4.91	5.00	1.80
1173.23	4.48	4.48	4.67	4.07
1332.51	4.45	4.45	4.51	1.33

Table 3. Comparison of the efficiencies by radioactive standard solutions having various densities and by the proposed method.

Energy (keV)	Apparent density, $\rho=0.8$ (g/cm <sup>3</sup> )			Apparent density, $\rho=1.0$ (g/cm <sup>3</sup> )			Apparent density, $\rho=1.3$ (g/cm <sup>3</sup> )		
	$\epsilon_i(E)$	$\epsilon_{sa}(E)$	relative difference (%)	$\epsilon_i(E)$	$\epsilon_{sa}(E)$	relative difference (%)	$\epsilon_i(E)$	$\epsilon_{sa}(E)$	relative difference (%)
88.04	3.06E-2	3.10E-2	1.21	3.00E-2	3.00E-2	0.00	2.91E-2	2.82E-2	-3.19
122.07	4.37E-2	4.41E-2	0.82	4.20E-2	4.20E-2	0.00	3.94E-2	3.98E-2	0.94
391.71	2.28E-2	2.35E-2	3.02	2.20E-2	2.20E-2	0.00	2.09E-2	2.14E-2	2.36
661.62	1.37E-2	1.38E-2	1.06	1.36E-2	1.36E-2	0.00	1.33E-2	1.31E-2	-1.80
1173.23	0.80E-2	0.81E-2	0.67	0.78E-2	0.78E-2	0.00	0.78E-2	0.75E-2	-4.00
1332.51	0.72E-2	0.72v	1.23	0.71v	0.71E-2	0.00	0.69v	0.68E-2	-1.40

저에너지(88.04 keV)에서 3.22 %로 비교적 편차가 큰 이유는 일반적으로 고순도게르마늄 감마분광분석기의 경우 저에너지에서 밀도에 따른 자체흡수효과가 크기 때문인 것으로 판단된다. 또한  $^{60}\text{Co}$  (1173.23 keV)의 경우는 동시에 두 에너지(1173.23, 1332.51 keV)에서 감마선이 방출되어 거의 동시에 2505.74 keV에서 동시합성효과가 나타나는데 그에 대한 보정이 필요할 것으로 생각된다.

표 3에서는 보정상수를 이용하여 보정된 효율값과 직접 밀도별로 표준시료를 제작하여 측정된 값을 비교하고 있다. 표 3에서 보면 전 에너지 범위의 겉보기 밀도 0.8, 1.0, 1.3 g/cm<sup>3</sup>에서 보정상수를 이용한 값과 표준시료를 직접 제작하여 구한 값이 거의 일치함을 알 수 있었다. 밀도 1.3 g/cm<sup>3</sup>에서 두 값의 차이를 보면 보정상수의 편차와 거의 비슷한 경향을 보이는 것을 알 수 있는데 이는 역시 저에너지에서 검출기가 민감하게 반응하는 것과 동시합성효과에 의하여  $^{60}\text{Co}$ 의 1173.23 keV 에너지에서 편차가 비교적 큰 것으로 판단된다. 현재는 세 가지 종류의 밀도에 대해서만 실험하여 검증하였기 때문에, 앞으로는 전 밀도영역(0.3~1.5 g/cm<sup>3</sup>)에 대해서 실험적으로 검증해야 할 뿐만 아니라, 몬테칼로 방법 등을 이용한 이론적인 검증이 필요하다. 또한 지금까지는 일정한 방사능에 대해서 모든 실험을 진행했는데 앞으로 방사능의 변화에 따른 선형성을 테스트하여 제시된 방법이 적용 가능한 방사능 범위를 정해야 할 것이다.

## 결 론

표 2를 보면 세 가지 밀도에 대한 비율값 ( $R(\rho=x, E)$ )들은 전 에너지 범위에서 4.17 % 이내로 잘 일치함을 알 수 있었다. 이를 토대로 밀도 1.0 g/cm<sup>3</sup>에서의 비율값을 보정상수로 결정해서 새롭고 간단하면서 실용적인 자체흡수보정을 하였다. 제시된 방법의 장점은 밀도가 1.0 g/cm<sup>3</sup>이 아닌 시료의 효율값을, 그 밀도에 맞는 표준시료 제작없이 간편하게 구할 수 있다는 점이다. 세 가지 밀도에 대하여 각각의 밀도를 갖는 표준시료를 이용하여 구한 효율값과 본 논문에서 제시된 방법으로 구한 효율값이 4.0 % 이내에서 일치하였다. 따라서 본 논문에서 제시된 방법을 이용하여 자체흡수 보정을 간단하면서 쉽게 할 수 있을 것이다.

## 참고문헌

1. M.E. Kitto, "Determination of photon self-absorption corrections for soil samples", *Appl. Radiat. Isot.* Vol. 42, No. 9, pp. 835-839, 1991.
2. M. Hasan et al., "A simplified technique to determine the self-absorption correction for sediment samples", *Appl. Radiat. Isot.* Vol. 57, pp. 915-918, 2002.
3. P. Dryak et al., "Corrections for the Marinelli geometry", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Vol. 135, No. 4, pp. 281-292, 1989.
4. T.S. Park, T.Y. Kim, H.Y. Hwang and Y.S. Lee, "Radioactivity measurement of cylindrical sources by gamma-ray spectrometry", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Vol. 215, No. 2, pp. 305-309, 1997.