

## Quality Control of Radiation Counting Systems and Measurement of Minimum Detectable Activity

### 방사선 계측기의 품질관리 및 최소검출방사능 측정

Byoung-Chul Song, Sung-Sim Han, Young-Bok Kim, Kwang-yong Jee, and Se-Chul Sohn  
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-ku, Daejeon

송병철, 한성심, 김영복, 지광용, 손세철  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

#### Abstract

Various radiation counters have been using to determine radioactivity of radwastes for disposal. A radiation counting system was set up using a radiation detector chosen in this study and its stability was investigated through the periodic determination of background and counting efficiencies in accordance with a quality control program to increase the confidence level. The average background level for the  $\gamma$ -spectrometer was 1.59 cps and the average counting level for the standard sample was 45248 dps within 2  $\sigma$  confidence levels. The average alpha background level for the low background  $\alpha/\beta$  counting system was 0.31 cpm and the efficiency for alpha counting was 34.38 %. The average beta background level for the  $\alpha/\beta$  counting system was 1.30 cpm and the efficiency for beta counting was 46.5 %. The background level in the region of  $^3\text{H}$  and  $^{14}\text{C}$  for the liquid scintillation counting system was 2.52 and 3.31 cpm and the efficiency for alpha counting was 58.5 and 95.6%, respectively. The minimum detectable activity for the  $\gamma$ -spectrometer was found to be 3.2 Bq/mL and 3.8 Bq/mL for the liquid scintillation counter, and 20.5 and 23.0 Bq/mL, respectively for the  $\alpha$  and  $\beta$  counting system,

**Key Words** : Quality Control, Minimum Detectable Activity, Radiation Counter.

#### 요약

방사성 폐기물 중에 함유된 핵종 및 방사능을 측정하기 위해서는 여러 가지 방사선 계측기가 이용되고 있다. 본 연구에서는 각각의 핵종에 대하여 측정 가능한 검출기를 선정하고 원전 방사성폐기물 중 방사능을 측정 하기위한 시스템을 구성하였다. 그리고 그 계측 시스템의 바탕 값 및 계측효율을 주기적으로 측정하고 품질관리를 위한 관리도를 작성하여 계측기의 안전성을 확보하고 분석결과에 대한 신뢰도를 향상시키고자 하였다. Gamma spectrometer의 바탕 값 평균은

1.59 cps이었으며 표준 시료에 대한 평균값은 45,248 dps로 거의 대부분의 측정값이  $2\sigma$  이내에서 크게 벗어나지 않음을 나타냈다. Low background  $\alpha/\beta$  counting 시스템의 알파 바탕 값 평균은 0.31 cpm이고 알파선 계측효율은 34.38% 이었으며, 베타 바탕 값은 1.3 cpm이고 베타선 계측효율 46.5% 이었다. 또한 액체섬광계수기는 3H 영역에서 바탕 값이 2.52 cpm, 계측효율 58.5% 이었으며, 14C 영역에서의 바탕 값은 3.31 cpm 이었고 계측효율은 95.6% 이었다. 본 연구에서는 바탕 값 및 계측효율로부터 최소검출방사능을 설정함으로써 시료의 측정 가능한 범위를 구하였다. 측정결과, gamma spectrometer의 최소검출방사능은 3.2 Bq/mL이었으며,  $\alpha/\beta$  counting 시스템의 경우는 알파 및 베타 영역에서 각각 20.5 Bq/mL, 23.0 Bq/mL이고 liquid scintillation counter의 경우는 3.8 Bq/mL로 나타났다.

**중심단어 :** 품질관리, 최소검출 방사능, 방사선 계측기.

## I. 서 론

원자력 발전소에서 발생하는 방사성 핵종 및 폐기물의 종류는 매우 다양하다. 이러한 핵종들이 원자로 내에서 어떻게 생성되고 폐기물 내에 어떤 형태로 존재하는지에 따라서 방사성 핵종의 종류 및 농도가 달라 질 수 있으며 폐기물의 종류에 따라서도 많은 차이를 나타낸다. 원전 공정에 따라 채취된 시료는 전처리 과정 및 핵종분리 과정을 거치고 나서 여러 가지 방사선 계측기에 의해 방사능이 측정된다. 각 시료의 유형과 시료에서 방출되는 방사선의 종류 및 에너지에 따라서 계측기 선정이 이루어져야 하며 분석방법 및 계측기를 선정할 때 핵종의 수, 방사선의 종류와 에너지 등 물리적 성질, 시료의 화학조성 및 물리적 형태, 모 핵종과 딸핵종의 붕괴사슬과 대상핵종의 반감기 및 방사능 준위 등이 고려되어야 한다. 본 연구에서는 대상핵종에 대한 핵자료와 측정 가능한 계측기를 선정하였으며 각각의 방사성 핵종분석을 위하여 방사능 측정 시스템을 구성하였다. 그리고 바탕 값 및 계측효율을 주기적으로 측정하고 품질관리를 위한 관리도를 작성하여 계측기의 안전성을 확보하고 분석결과에 대한 신뢰도를 향상시키고자 하였다. 또한 각 계측기의 바탕 값 및 계측효율로부터 계측기의 최소검출방사능을 설정하였다.

## II. 실 험

### 1. 방사성 표준선원

#### 1.1 감마분광분석기의 바탕 값 및 계측효율 보정용 방사성 표준선원

- Cylindrical type mixed source 20 mL 감마선 표준물 (01-Nov-2003, 03MIX414, KRISS)

#### 1.2 액체섬광계수기의 바탕 값 및 계측효율 보정용 방사성 표준선원

- Background standard (Jan-2003, PPN 6008511, PPN 6008511, PACKARD)
- Unquenched 3H standard (278,200 dpm, 29-Jan-2002, PPN 6008511, PACKARD)
- Unquenched 14C standard (134,900 dpm, 29-Jan-2002, PPN 6008511, PACKARD)

#### 1.3 전알파/베타 계측효율 보정용 방사성 표준선원

- $^{210}\text{Po}$  2" planchet 선원 (506.5 Bq, 01-Apr-1996, GG472, OXFORD, NIST traceable)
- $^{90}\text{Sr}$  2" planchet 선원 (592 Bq, 01-Mar-1992, S-134, TENNELEC, NIST traceable)

### 2. 방사능 측정 시스템 구성

#### 2.1 Gamma spectroscopy 시스템 구성

원전 방사성폐기물의 핵종분석을 위한 gamma spectroscopy 시스템을 새로이 구성하였다. 이 시스템은 HPGe 검출기(GEM-30185-P, EG&G)와 주 증폭기(672, EG&G) 및 MCB(919, EG&G)로 구성하였으며 액체질소 공급을 원활히 하기 위하여 외부에 설치한 대용량 액체질소 통(180 L)과 검출기에 부착된 액체질소 통(30 L)을 보온재에 싸여진 stainless steel 관으로 연결하였다.

## 2.2 Low background $\alpha/\beta$ counting 시스템 구성

전알파 및 전베타 또는 개별 분리된 핵종들을 측정하기 위해서는 가스비례계수기가 사용되며 원전 방사성폐기물 핵종분석을 위하여 방사선 구역 내로 이전 설치하고 시스템 성능 검증을 위하여 바탕 값 및 계측효율을 측정하였다.

## 2.3 액체섬광계수기의 구성

액체섬광계수기는 두개의 광전자 증배관과 동시계수 회로로 이루어져 있으며 용액 형태의 시료를 직접 사용할 수 있고 계측효율이 뛰어나며 다수의 시료를 알파선 핵종과 베타선 핵종에 대하여 측정할 수 있다는 장점으로 인하여 널리 사용되고 있다. 이러한 베타 핵종 및 알파 핵종들의 정확한 분석을 위해서는 액체섬광계수기를 최적화할 필요가 있으며 계수영역, vial의 크기와 형태, cocktail의 선택, 계측시간, 바탕 값 등에 대하여 최적의 조건을 확립하였다.

## 3. 방사능 계측기의 바탕 값 측정

### 3.1 감마선 분광기의 바탕값 측정

- 전원을 켜고 감마분광분석기(HPGe, EG&G ORTEC)를 작동시킨 다음 검출기의 전압을 검출기의 특성에 따라 조절하였다. (LN2 확인)

- 시료가 없는 상태에서 일정시간(10,000 sec)동안 감마선 스펙트럼을 얻고 감마 스펙트럼으로부터 MCA의 전 채널에 대한 바탕 값을 얻었다.

### 3.2 전알파/베타 측정 시스템의 바탕 값 측정

- 알파 모드 및 알파/베타 모드에 동작전압을 설정하고 알파 및 베타 영역에서 각각 50분씩 10회 측정하여 바탕 값을 얻었다.

### 3.3 액체섬광계수기의 바탕값 측정

- Background standard (PPN 6008511 PACKARD)를 이용하여 3H(0~18.6 keV), 14C(0~156 keV) 영역에서 각각의 바탕 값을 얻었다.

## 4. 방사능 계측기의 계측효율 보정

### 4.1 감마선 분광분석기의 에너지에 따른 계측효율 측정

- 전원을 켜고 감마분광분석기 (HPGe, EG&G ORTEC)를 작동시킨 다음 검출기의 전압을 검출기의 특성에 따라 조절하였다. (LN2 확인)

- 측정하려는 시료와 같은 기하학적 구조를 갖는 혼합감마선 표준용액(20 mL)을 검출기에 올리고 일정시간(5,000 sec)동안 감마선 스펙트럼을 얻었다. 표준선원의 감마스펙트럼을 이용하여 MCA의 채널에 따른 에너지 보정곡선을 얻었다.

- 표준선원의 감마스펙트럼을 이용하여 에너지에 따른 검출기의 계측효율 보정곡선을 얻었다.

### 4.2 전알파/베타 측정 시스템의 계측효율 측정

- 시스템의 전원을 켜고 가스량을 주 밸브에서 8 psi, 기기에 부착된 밸브에서 0.2 SCH로 조절하고 동작 전압을 설정하기 위하여 210Po, 90Sr 표준물을 이용하여 알파 및 베타 영역에서 각각 플토우를 그린 다음 동작전압을 설정하였다. (알파 영역 : 900 V, 베타 영역 : 1,500 V)

- 210Po, 90Sr 표준 방사선원을 저준위 기체비례계수기에 넣고 10분 동안 3회 측정하여 계수 값을 측정하였다. 표준선원의 방사능 세기를 계측날짜로 방사붕괴 보정을 한 후 다음 식에

의해 계측효율을 측정하였다.

$$Efficiency = \frac{cpm}{dpm}$$

#### 4.3 액체섬광계수기의 계측효율 측정

- Unquenched 3H, 14C standard (PPN 6008512, 6008513 PACKARD)를 이용하여 3H (0 ~ 18.6 keV), 14C(0 ~ 156 keV) 영역에서 각각의 계측효율을 얻었다.

### III. 결과 및 고찰

#### 1. 방사능 계측기의 품질관리

##### 1.1 Gamma spectrometer의 관리도

감마선원(152Eu, 500 mL cylindrical bottle)을 이용하여 바탕 값, 표준시료, FWHM 및 실제 피크와 라이브러리 에너지 사이의 차이 등을 측정하였으며 이를 이용하여 관리도를 작성하고 1σ, 2σ 및 평균값을 표시하였다. 이때 바탕 값의 평균은 1.59 cps 이었으며 표준시료에 대한 평균은 45,248 cps로 대부분의 측정값이 2σ 이내에서 크게 벗어나지 않음을 나타냈다. 또한 분해능의 지표인 FWHM 비는 0.997로 거의 일정함을 나타냈다.

##### 1.2 α/β counting system의 관리도

전알파/베타 계측기를 동시 모드에서 동작 전압을 1,500V로 설정하고 바탕 값을 50분씩 11회 측정하였으며 이를 이용하여 관리도를 작성하고 1σ, 2σ 및 평균값을 표시하였다. 이때 알파 바탕 값의 평균은 0.31 cpm 이고 알파선 계측효율은 34.38% 이었으며 베타 바탕 값은 1.3 cpm 이고 베타선 계측효율 46.5% 이었다. 여기서 알파 바탕 값이 평균 0.32 cpm과 비교하여 최근에 상당히 낮은 바탕 값(1.9 cpm)을 나타낸 것은 low background α/β counting 시스템에 대한 해체 및 소지한 결과로 추측되며 향후 측정값의 경향은 계속 검토해야 할 것으로 판단된다.

##### 1.3 액체섬광계수기에 의한 3H 및 14C에 대한 관리도

Unquenched 표준물(H-3, C-14 및 BKG series, PACKARD)를 이용하여 3H 및 14C 영역에서의 바탕 값, 계측효율, figure of merit 및 Chi-Square 값을 구하여 관리도를 작성하고 1σ, 2σ 및 평균값을 나타내었다. 이때 3H 영역에서의 바탕 값은 2.52 cpm 이고 계측효율은 58.5% 이었으며 14C영역에서의 바탕 값은 3.31 cpm 이었고 계측 효율은 95.6% 이었다.

#### 2. 방사능 계측기의 최소검출방사능(Minimum Detectable Activity, MDA) 측정

방사능 계측기의 최소검출방사능은 주어진 신뢰도에서 검출될 수 있는 최소 시료 방사능을 말하며 이는 기기의 바탕 값, 계측효율, 계측시간 및 시료 량 등에 의하여 결정되고 계측기의 검출 한계를 구하는 방법에 따라서도 조금씩 달라질 수 있다. MDA를 낮출 수 있는 가장 효과적인 방법은 시료 량을 크게 하거나 계측시간을 길게 하는 방법이 있으나 실험조건에 따라서 상호보완적이어야 한다.

Decision Limit,

$$Lc = k_a (\mu_B + \sigma_B^2)^{1/2}$$

$$Lc = 1.645(2\sigma_B^2)^{1/2} = 2.33\sigma_B$$

Detection Limit,

$$L_D = k^2 + 2Lc$$

$$L_D = (1.645)^2 + 2Lc = 2.71 + 4.64 \sigma_B \quad (K=1.64, \text{ at } 95\% \text{ confidence level})$$

$$MDA = \frac{2.71 + 4.66(B)^{1/2}}{EVTY}$$

여기서, B는 바탕 값의 총 계수, E는 계측효율이며 V는 시료 량(mL) 이다. 또한 T는 계측시간(min)이고 Y는 화학적 수율이다.

### 2.1 감마선 분광분석기의 최소검출방사능

감마선 분광분석기의 최소검출방사능은 NUREG 4.16에서 정의된 방법을 사용하였다

$$P = \frac{2.71 + 4.66 \times \sigma_b}{LT} \quad \sigma_b = \sqrt{\frac{(bkg) \times (peak \ width)}{(width \ of \ low \ ave. + width \ of \ high \ ave.)}}$$

여기서, P = prak count rate,  $\sigma_b$  = error in background이다.

예로서 방사성폐기물 0.2 gram을 20 mL의 산에 용해한 후 용해용액 20 mL를 감마선 분광분석기를 이용하여 10,000 sec 동안 바탕시료에 대하여 방사능을 측정 하였을 경우에 137Cs 영역에서의 검출 한계는 3.2 Bq/g 이었다.

### 2.2 전알파/베타 측정 시스템의 최소검출방사능

전알파/베타 측정 시스템에서 바탕 값은 알파/베타 동시모드에서 50분간 측정하였을 때 알파 0.31 cpm, 베타 1.3 cpm 이었으며 계측효율은 각각 36.4 %, 46.5% 이었다. 실 예로서 방사성 폐기물 0.2 gram을 20 mL의 산에 용해한 후 1 mL를 취하여 측정 하였을 때 최소검출방사능은 알파영역에서 1.9 Bq/g 이었고 베타영역에서 3.7 Bq/g 이었다.

### 2.3 액체섬광계수기의 최소검출방사능

3H영역에서 바탕 값은 2.52 cpm 이고 계측효율은 58.5% 이었으며 방사성폐기물 0.2 gram을 20 mL의 산에 용해한 후 1 mL를 취하여 50분간 측정하였다면 최소검출방사능은 3.1 Bq/g 이었으며, 또한 14C영역에서의 바탕 값은 3.31 cpm 이었고 계측 효율이 95.6% 일때 최소검출방사능은 2.2 Bq/g 이었다.

## IV. 결 론

방사능 계측기의 품질관리를 위하여 주기적으로 바탕 값, 계측효율 등을 측정하고 관리도를 작성함으로써 계측기의 안전성을 확보하고 방사성 시료에 대한 방사능 측정 신뢰도를 향상시켰다. Gamma spectrometer의 바탕 값의 평균은 1.59 cps 이었으며 표준 시료에 대한 평균은 45,248 cps로 거의  $2\sigma$  이내에서 크게 벗어나지 않았다. Low background  $\alpha/\beta$  counting 시스템의 알파 바탕 값의 평균은 0.31 cpm 이고 알파선 계측효율은 34.38% 이었으며 베타 백그라운드는 1.3 cpm 이고 베타선 계측효율 46.5% 이었다. 또한 액체섬광계수기는 3H영역에서 바탕 값이 2.52 cpm, 계측효율 58.5% 이었으며 14C영역에서의 바탕 값은 3.31 cpm 이었고 계측 효율은 95.6% 이었다. 또한 이들로부터 각 계측기의 최소검출방사능을 결정함으로써 방사성 시료의 방사능 측정 가능 여부를 가늠할 수 있었다. Gamma spectrometer 최소검출방사능은 137Cs 영역에서 3.2 Bq/g,  $\alpha/\beta$  counting system은 알파 및 베타 영역에서 각각 1.9 Bq/g, 3.7 Bq/g 이었으며 Liquid scintillation counter는 3H영역에서 3.1 Bq/g, 14C영역에서 2.2 Bq/g로 각각 나타났다.

본 연구에서는 검출 한계를 낮추고자 저준위 측정 시스템을 도입 하였으며 이를 이용하여 향후 시료의 량 및 측정시간을 적정 분배하고 주위의 바탕 값을 낮추고자 하는 실험을 계속 진행할 계획이다.

## V. 참고 문헌

1. Michael F. L'Annunziata, A Handbook of Radioactivity Analysis, pp. 316-318, Academic press, San Diego(1998).
2. C. W. Thomas, V. W. Thomas, D. E. Robertson, Radioanalytical Technology for 10 CFR Part 61 and Other Selected Radionuclides, U. S. Nuclear Regulatory Commission NUREG/CR-6230
3. J. A. Cooper, Factors Determining the Ultimate Detection Sensitivity of Ge(Li) Gamma-Ray Spectrometers, pp. 273-277, North Holland Publishing Co.(1970).

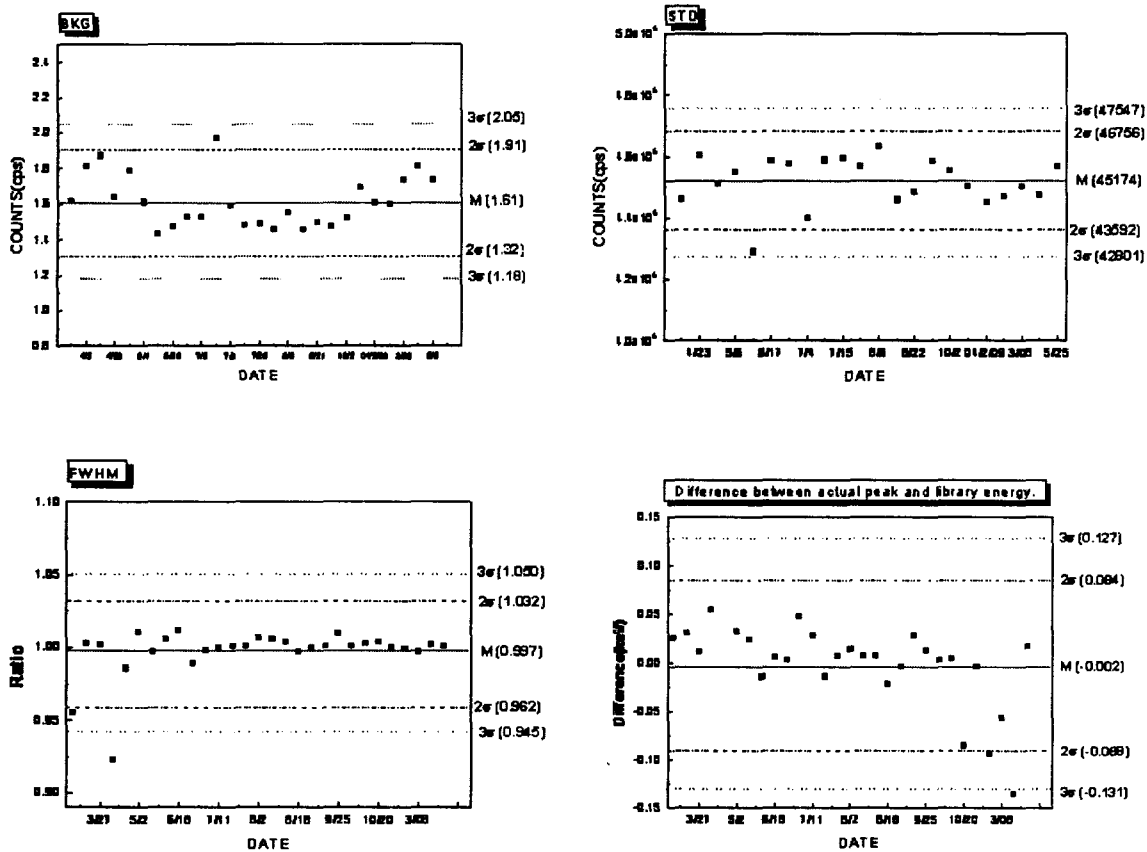


그림 1. 감마분광분석기의 품질관리를 위한 관리도