

^{133}Ba 용액의 방사능 절대측정의 국제비교

박태순 · 오필제 · 황선태

한국표준연구원 · 방사선표준연구원

= 초 록 =

전자포획 핵종인 ^{133}Ba 용액의 방사능 측정이 β - γ 동시계수 방법에 의하여 수행되었다. 4π 비례계수기와 두개의 NaI(Tl) 섬광검출기를 사용하여 베타, 감마 및 동시계수 채널에서 계수율을 측정하였다. 효율의삽법으로 산출된 용액의 비 방사능은 기준시간(1984년 3월 15일 0시, UT)에 대하여 $(1151.01 \pm 2.99) \text{ kBq} \cdot \text{g}^{-1}$ 이었다. 국제도량형국이 주관한 방사능 측정의 국제비교에 의하면, 이 결과는 그 비교에서 얻어진 평균값에 대하여 약 0.84%의 차이를 나타냈다.

1. 서 론

베타, 감마선 방출 핵종들의 붕괴율을 가장 정확히 측정할 수 있는 동시계수 방법의 원리와 측정방법은 여러 논문에서 잘 소개되어 있다¹⁻³⁾.

본 실험에서 사용된 ^{133}Ba 은 전자포획핵종으로서 감마선 검출기의 효율 교정등에 널리 사용되고 있는 핵종이다. 그러나 ^{133}Ba 의 방사능 측정은 간단하지가 않다. 그 이유는 ^{133}Ba 핵종의 K-원자각 또는 L-, M-, N-원자각으로부터 전자포획으로 인한 저에너지의 X선과 Auger 전자를 방출하게 되므로 동시계수 장치의 베타 검출기로 사용되는 4π 비례계수기에서 이들에 대한 검출효율이 베타입자에 대한 효율보다 상당히 낮아지기 때문이다. 따라서 비례계수기에서는 내부 전환에 의한 전환전자나 직접 감마선을 검출할 수 있으므로 감마선 천이로부터의 보정은 베타 방출핵종보다 전자포획 핵종에 대하여 더욱 중요한 인자가 될 수 있다. 내부 전환계수에 대한 값과 전환전자와 감마선에 대한 비례계수기의 검출효율을 정확히 알 수 없는 상태에서 이들의 보정은 이론적 계산에 의해 결정하지 않고 효율의삽법을 적용함으로써 해결하였다.

효율의삽법에 의해 산출된 ^{133}Ba 핵종의 비 방사능 값은 국제도량형국에서 주관하는 국제상호비교에 참가하여 각국 표준기관에서 측정한 결과와 비교되어 졌으며 실험방법 및 결과에 대한 오차를 비교분석하였다.

2. 실험

2-1. 측정선원

본 실험에 사용된 ^{133}Ba 측정선원은 국제상호 비교용으로 미국국립표준국(NBS)에서 국제도량형국(BIPM)을 통하여 공급한 것으로 그 물리적 형태는 표준 앰플병속에 액체 상태로 들어 있으며 ^{133}Ba 용액분배시 정확한 질량이 측정되어 있어 감마선 전리함에 의한 비교 측정이 가능토록 되어있다. 화학적 상태는 $60 \mu\text{g/g}$ 의 BaCl_2 가 1 mol/cm^3 의 HCl 에 혼합된 수용액으로 되어 있으며 밀도는 20°C 에서 1.016 g/cm^3 이다. 이 ^{133}Ba 용액속의 불순물 검사는 NBS에서 감마선 분광 분석에 의해 수행한 결과 ^{134}Cs 핵종만이 검출되었으며 그 함유량은 ^{133}Ba 핵종에 대한 상대비가 $(1.1 \pm 0.5) \times 10^{-5}$ 정도로서 무시될 수 있는 양이었다.

베타 검출기로 사용된 4π 비례계수기에서는 제작된 측정선원이 검출기 내부에 위치하기 때문에 기하학적 조건에 의한 영향이 크지 않으므로 측정시료의 크기에 의한 보정은 무시될 수 있다. 또한 ^{133}Ba 핵종은 전자포획으로 인한 X선 또는 Auger 전자들을 방출하므로 비례계수기에서의 검출효율은 베타 방출핵종과는 달리 상당히 낮다. 따라서 측정선원의 두께에 대한 영향이 더욱 커지게 되므로 선원의 두께는 가능한 한 얇게 제작되어야 하며 두께 변화에 의한 효율변화를 방지하기 위해 일정한 두께를 유지하여야 한다.

실험에 사용된 박막의 재질은 collodion 용액으로서 증류수 위에서 고화시켜 박막을 제작하였으며 그 두께

Table 1. Source preparation of ^{60}Co solution

Source ID	Reading Value	Measured Mass	Corrected Mass
	7.074086		
A-1	7.056268	0.017818	0.017836
A-2	7.039509	0.016759	0.016776
A-3	7.022418	0.017091	0.017108
A-4	7.005444	0.016974	0.016991
	6.970510		
B-1	6.952240	0.018270	0.018281
B-2	6.935083	0.017157	0.017174
B-3	6.918351	0.016732	0.016749
B-4	6.900506	0.017845	0.017863
B-5	6.885122	0.015384	0.015400
B-6	6.867427	0.017695	0.017713
B-7	6.849463	0.017964	0.017982
B-8	6.831129	0.018334	0.018353

Before Sampling Temp. = 21.8°C, RH = 56%

Pressure = 753.7 mmHg

After Sampling Temp. = 21.9°C, RH = 56%

Pressure = 753.6 mmHg

는 미세저울로 측정한 결과 $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 정도이었다.

또한 비례계수기 내의 인가전압에 의한 전장의 왜곡 현상을 막기 위하여 collodion 박막위에 화학적으로 가장 안정한 금을 진공증착하여 전기전도도를 좋게하였다. 전체박막 두께는 $25\sim 30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 정도이었다.

다음 측정시료의 제작은 pycnometer 를 사용한 gravimetric 방법으로 수행하였으며 금이 증착된 박막면 위에 떨어뜨린 용액의 무게는 10^{-6}g 까지 측정이 가능한 미세 저울을 사용하여 각각의 측정시료에 대하여 측정하였다⁶⁾. Fig. 1은 준비된 ^{133}Ba 측정시료의 측면도이다.

측정된 용액의 무게는 기압, 온도, 습도 그리고 밀도에 대한 buoyancy 보정을 하여 각 선원에 대한 실제 무게를 Table 1과 같이 산출하였다⁷⁾. 측정선원의 시료

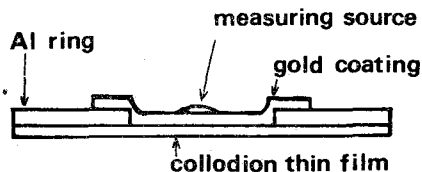


Fig. 1. Lateral view of a measuring sample.

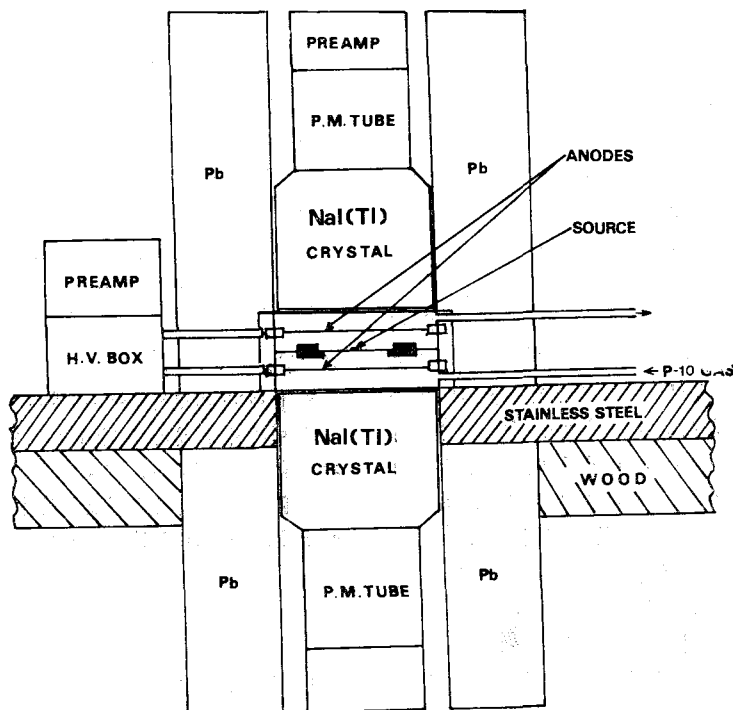


Fig. 2. Longitudinal diagram of β - γ detection unit.

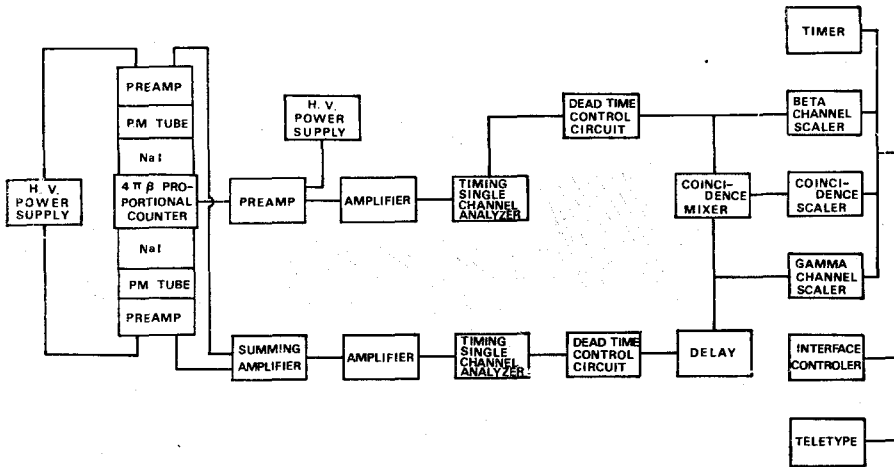


Fig. 3. Block diagram of 4π β - γ coincidence counting system.

는 fume hood 내의 건조한 공기중에서 건조시켰으며 시료상에 ^{133}Ba 용액이 균일하게 분포되도록 wetting agent로서 Ludox SM-15를 10^4 배로 희석하여 2내지 3방울씩 측정시료 위에 떨어뜨렸다. 완전히 건조된 측정시료는 검출기내에 방사성 오염을 방지하고 측정시료 상하면의 측정조건을 같게하기 위해 방사성 용액을 떨어뜨린 면위에 collodion 박막을 첨가하였다.

2-2. 실험장치

실험기기는 크게 검출장치와 계수장치로 나눌 수 있다. 검출장치는 Fig. 2와 같이 베타 검출기로 4π 비례계수기 그리고 감마선 검출기로는 NaI(Tl) 섬광검출기 (76 mm ϕ ×76 mm)를 4π 비례계수기 상하단에 설치하여 감마선에 대한 검출효율을 배가시켰다.

특히 4π 비례계수기는 입체각이 4π 이기 때문에 기하학적 구성에 의한 보정이 불필요하며 측정방사성 핵종의 각 베타분기에 대한 효율이 선형관계를 유지하고 베타검출 효율변화로 부터 단위효율로의 확장이 가능하여 동시계수 방법에 적합한 검출기이다⁸⁾. 계수장치는 Fig. 3과 같이 증폭장치, 단일파고분석기, 불감시간회로 계수기 등으로 구성되어 있으며 보조기기로서 oscilloscope와 다중파고분석기를 사용하였다.

이 동시계수 장치에서 베타와 감마 채널의 불감시간 보정을 위하여 단일파고 분석기 다음에 nonextendable 불감시간 회로를 각 채널에 설치하였으며 하나의 펄스 입력에 대하여 3.15 μs 의 불감시간을 갖도록 하였다. 동시계수 채널의 분해시간은 우연동시 계수의 증가와 실제 동시계수 손실을 최소화하기 위해 1.01 μs 의 시

Table 2. Counting data for ^{133}Ba solution

(1) γ -channel window limit(keV):	325-415
(2) Typical count rates(s^{-1}) β :	12,000~13,500
γ :	1,700~2,000
C*:	1,200~1,400
(3) Background rates (s^{-1}) β :	0.7
γ :	3.2
C*:	0.008
(4) Range of efficiency parameter N_c/N_r (%):	65~70
(5) Mean measurement time for one data point (s):	600
(6) Method used for varying N_c/N_r : threshold level variation	
(7) Time of measurement:	1984. 7. 3~1984. 7. 11.

*C is coincidence count rate

간 간격을 주었다.

또한 베타 채널의 불감시간회로 출력단에 delay 회로를 연결하여 베타와 감마 채널이 펄스 delay 차이를 제거할 수 있도록 하였다.

측정은 저 에너지 문턱준위변화방법(low energy threshold level variation method)에 의해 수행하였다.

3. 결과 및 분석

본 실험에 사용된 ^{133}Ba 핵종의 측정선원은 12개를 제작하여 이들중 7개를 분석에 사용하였다. 각 측정선원에 대한 ^{133}Ba 용액의 무게는 15 mg에서 19 mg의 범

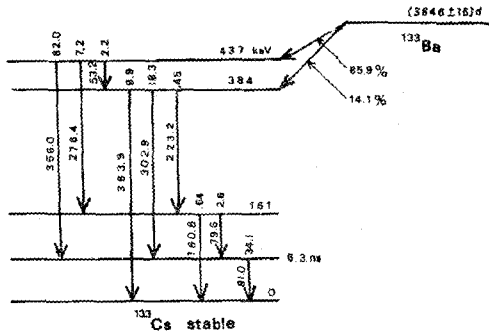


Fig. 4. Decay Scheme of ¹³³Ba.

위로 나타났으며 측정선원의 측정 전후에 background 계수율을 측정하여 나중에 background 계수에 대한 보정을 행하였다. 각 채널에서의 계수율은 Table 2에서와 같이 나타났으며 문턱준위 변화에 의한 베타 검출기의 검출효율은 최대 70%까지 올릴 수 있었다.

이 효율변화 방법은 베타 스펙트럼의 저에너지 영역을 전기적인 방법 즉, 단일파고분석기의 문턱준위 변화로부터 베타 검출기의 효율을 변화시키는 방법으로서 고압용 비례계수기를 사용할 때만 가능하여진다. 이는 고에너지 베타 입자가 비례계수기의 수감체적내에 그 에너지의 일부만을 축적시키고 계수기 밖으로 탈출하게 되는 경우 저에너지 베타스펙트럼에 영향을 주게 되므로 이를 방지하기 위하여 계수기 가스를 고압하에서 사용토록 하는 것이다.

감마 채널에서의 에너지 측정범위는 저에너지 전환 전자가 동시계수 채널에 검출되지 않도록 325 keV에서 415 keV 까지 하였으며 베타채널의 문턱준위 변화 범위는 K원자각의 X선과 Auger 전자가 검출될 수 있도록 5 keV에서 12 keV 까지 정하였다.

¹³³Ba 핵종의 붕괴 방식은 Fig. 4와 같이 두 가지의 전자포획 전이와 9가지 에너지의 감마선을 방출하여 ¹³³Ba의 안정동위원소로 된다.

전자포획으로 인한 Auger 전자는 L원자각에서 2.6 keV-5.7 keV, K원자각에서 24 keV-36 keV 그리고 X선은 L원자각에서 3.8 keV-5.7 keV, K원자각에서 31 keV-36 keV이다. 또한 내부 전환에 의한 전환 전자는 170 keV에서 350 keV까지 17가지의 에너지로 방출되므로 베타 채널의 계수율 N_β 는 X선과 Auger 전자의 계수율 N_{xA} 로 나타낼 수 있으며 K원자각의 X선과 Auger 전자만이 검출된다고 생각할 때 $N_{xA} = N_0(a P_k^A \epsilon_{xAk} + b P_k^X \epsilon_{xAk})$ 로 된다^{9,10}. 여기서 P_k 는 K원자각에서의 포획확률이며 a와 b는 포획전자 전이확률 그리고 ϵ_{xAk} 는 K원자각에서의 X선과 Auger

Table 3. Extrapolation of efficiency function

Order of fitted polynomial: 1
Number of degrees of freedom: 8~9
Intercept, $Y(X \rightarrow 0)$, ($\text{kBq} \cdot \text{g}^{-1}$): 1151.01 (as of the reference time)
Standard deviation ($\text{kBq} \cdot \text{g}^{-1}$): 2.77
Reduced Chi square: 1.38 (for one sample)

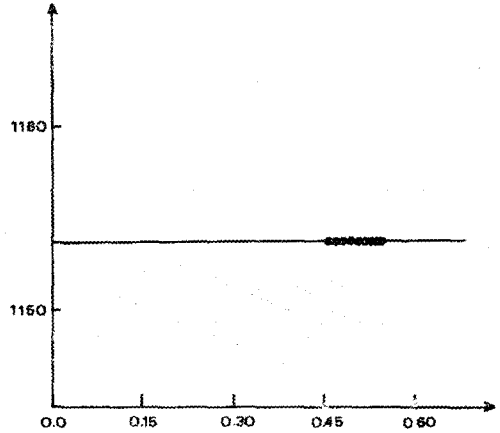


Fig. 5. Efficiency extrapolation for one sample.

전자의 검출확률이다. 실제로 내부 전환전자에 의한 영향과 L, M... 등의 원자각에서의 전자포획으로 인한 X선과 Auger 전자의 영향을 고려하면 위 식은 대단히 복잡하여진다.

그러나 실험적 방법에 있어서 감마채널의 측정에너지 범위를 250 keV 이상의 고에너지 영역으로 택하였을 때 저에너지 전환전자와의 동시계수를 방지할 수 있게 되어 기존의 효율외삽법에 의해 ¹³³Ba 핵종의 붕괴율을 산출할 수 있다^{11,12}. Y축을 $\frac{N_{xA}}{mN_C} N_r$ 로 하고 X

축을 $\frac{1 - N_C/N_r}{N_C/N_r}$ 로 하였을 때 각 data point에 대하여 외삽법에 의하여 구해진 결과를 Table 3에 정리하였으며 Fig. 5에 한개의 측정시료에 대한 효율외삽 graph를 나타내었다. 여기서 m은 측정시료의 무게이다.

각 측정시료에 대하여 효율외삽법에 의해 산출된 No 값(N_C/N 가 1일 때 Y축 절편에서의 평균값)은 기준시각에 대하여 1151.01 $\text{kBq} \cdot \text{g}^{-1}$ 이었다. 또한 각 결과치에 대한 data point와 효율함수와의 분포는 Fig. 6와 같이 1/1,000 scale로 나타내었으며 reduced Chi square 값은 1.38로서 좋은 결과를 보여주고 있다. 최종적 결과치에 대한 오차와 산출방법을 각성분별로 Table 4에 나타내었다¹³.

Table 4. Uncertainty components of the final result(%)

Components	Uncertainty(%)	Method
Counting statistics	0.22	Standard error of mean of 7 values
Weighing	0.03	$\Delta m/m$
Dead time	0.02	} Estimated from measured uncertainty
Resolving time	0.02	
Background	0.01	$\Delta \text{Br/Nr}$
Timing	0.0005	Crystal oscillator inaccuracy
Fitting procedure	0.13	Estimated from limits of least squares fit
Radionuclidic impurities	0.001	From BIPM information
Others	0.0015	Decay correction
Combined Uncertainty	0.26	Square root of summed squares

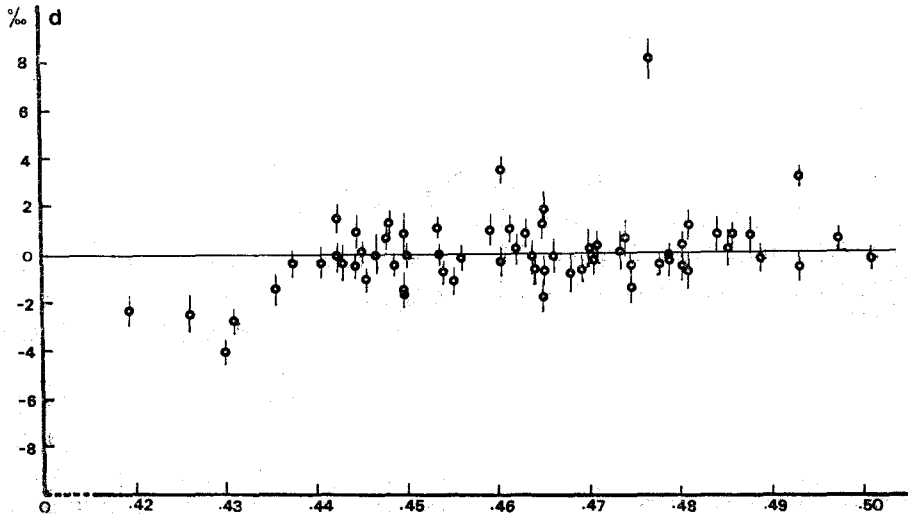


Fig. 6.

위 Table 4에서 계수 통계에 의한 오차와 효율의 삽 과정에서 발생하는 오차가 각각 0.22, 0.13으로 전체 오차의 대부분을 차지하고 있음을 볼 수 있다. 따라서 ^{133}Ba 핵종의 비 방사능은 1984년 3월 15일 0시(UT)를 기준하여 $(1151.01 \pm 2.99) \text{ kBq} \cdot \text{g}^{-1}$ 로 나타났다.

4. 결 론

본 실험에서 측정된 ^{133}Ba 핵종의 붕괴율은 국제도량형국(BIPM)에서 주관하여 국제상호 비교에 참가한 19개국의 각국 표준기관의 결과와 비교하여 보았다. 각국 표준기관에서 제출한 보고서의 결과를 Table 5에

나타내었다¹⁴⁾. 이들의 전체 평균값은 1984년 3월 15일 0시(UT)를 기준하여 $(1160.8 \pm 4.2) \text{ kBq} \cdot \text{g}^{-1}$ 이었다.

각국의 표준기관에서 사용한 측정방법은 β - γ 동시계수방법이 18개국으로 가장 많았으며 그외 역동시계수방법, 액체섬광계수방법 등 모두 6가지 방법을 사용하였다. 본 실험에서 얻은 결과와 전체평균 값과의 차이는 0.84%로 대체로 만족스러운 결과를 얻게 되었다. 각국 표준기관의 결과에 대한 전체평균값의 범위와 표준편차는 각각 1.7%, 0.36%로서 일반적으로 베타방출핵종에 대한 결과보다 다소 크게 나타나는 이유는 저에너지 방사선에 의한 영향으로 분석되어지고 있다.

Table 5. Final results reported

Participating laboratory	Specific activity	Combined uncertainty		Deviation from mean (%)
		kBq·g ⁻¹	(%)	
AAEC, Australia	1162.7	4.4	0.38	+0.17
AECL, Canada	1163.7	19.4	1.7	+0.25
ASMW, DRG	1161.7	2.2	0.19	+0.08
BCMNI, Belgium	1163.1	1.6	0.14	+0.20
BIPM, France	1159.0	1.3	0.11	-0.15
ETL, Japan	1160.6	5.2	0.45	-0.01
IER, Switzerland	1162.7	2.1	0.18	+0.17
IMM, USSR	1170	4	0.34	+0.83
IPEN, Brazil	1157.3	1.9	0.16	-0.30
IRK, Austria	1157.5	3.5	0.30	-0.28
KSRI, ROK	1151.0	3.0	0.26	-0.84
LMRI, France	4π(Na)γ 1160.1	0.7	0.06	-0.06
	4π(PPC)γ 1160.1	0.8	0.07	-0.06
NAC, South Africa	1162.8	3.7	0.32	+0.18
NBC, USA	1158.4	2.5	0.21	-0.20
NPL, UK	4π(LS)γ 1146.3	10.4	0.91	-1.24
	4π(PC)γ 1133	24	2.1	-2.39
NPL, UK	4π(PC)γ 1194	24	2.0	+2.86
NRC, Canada	1159.0	1.3	0.11	-0.07
OMH, Hungary	1160.6	1.4	0.12	-0.01
PTB, FRG	1157.7	1.2	0.10	-0.26
UVVVR, CSSR	1167.4	0.8	0.07	+0.57

참 고 문 헌

- 1) P.J. Campion, Int. J. Appl. Radiat. Isot. **4**, 232(1959).
- 2) J. Bryant, Int. J. Appl. Radiat. Isot. **14**, 143 (1963).
- 3) A.P. Baerg, Metrologia **2**, 23(1966).
- 4) A.P. Baerg, Nucl. Instr. Meth. **112**, 143(1973)
- 5) 박태순, 오필제, 황선태, **24**, 426 새물리 (1984).
- 6) J.S. Merrit, Nucl. Instr. Meth. **112**, 325(1973).
- 7) R.H. Schoonover and F.E. Jones, Anal. Chem., **53**, 900(1981).
- 8) A.P. Baerg, Nucl. Instr. Meth. **112**, 95(1973).
- 9) E. Funck and A.N. Larsen, Int. J. Appl. Radiat. Isot. **34**, 565(1983).
- 10) J.P. Pérolat, Nucl. Instr. Meth. **112**, 179(1973).
- 11) M.E. Troughton, *Standardization of Radionuclides*, IAEA-79/17(1967).
- 12) J.S. Eldridge, *Standardization of Radionuclides*, IAEA-79/19(1967).
- 13) P. Giacomo, Metrologia **17**, 69(1981).
- 14) A. Rytz, *International comparison of activity measurements of a solution of ¹³³Ba*, Rapport BIPM-85/1(1985).

International Comparison of Absolute Activity Measurement of ^{133}Ba Solution

Tae Soon Park, Pil Jae Oh, Sun Tae Hwang

Radiation Standards Laboratory, Korea Standards Research Institute

= Abstract =

The activity measurement of a solution of ^{133}Ba which is an electron capture nuclide was carried out by the β - γ coincidence method. The counting rates at the β -, γ -, and coincidence-channels were measured using a 4π proportional counter and two NaI(Tl) scintillation detectors. The specific activity of the solution calculated by the efficiency extrapolation was $(1151.01 \pm 2.99) \text{ kBqg}^{-1}$ at the reference time (00h UT, 03-15-84). According to an international comparison of activity measurements organized by the Bureau International des Poids et Mesures, this result showed the difference of 0.94% to the mean value derived from the comparison.