



방사능의 표준과 트레이서빌리티

檜野 良穂

Yoshio Hino

日本 電總研 양자방사부 방사능표준연구소 판독관

1991년의 계량법 개정시에 정령(政令)으로 정하는 「물질상태의 양」에 Bq을 방사능의 단위로 채택하게 되었지만, 저반(諸般) 사정에 의하여 트레이서빌리티 제도의 정비가 지연되어, 시급한 특정 표준기 제정과 인정 사업자의 육성 등 트레이서빌리티 제도에 따른 표준 공급체제의 확립이 요구되고 있다. 다행히도 일본 아이소토프협회를 비롯하여 각 관계 각위의 협력을 얻어, 특정 오차 표준기에 알맞는 기기의 정비가 착실히 진행되고 있다. 이러한 방사능 표준의 현상과 트레이서빌리티에 관한 개요를 소개한다.

1. 방사능 단위와 계량법

방사능의 단위는 방사능의 발견 후 얼마 되지 아니한 1910년에, 라듐의 무게에 비례하고 또한 물리적 의미가 있는 양으로써 「1그램의 라듐과 평형에 있는 라돈의 양」이 채택되어 라듐의 발견자인 마리 큐리의 이름을 따서 Ci(큐리)라는 단위가 정해졌다. 그 후의 측정으로 1Ci정도의 봉괴수가 3.7×10^{10} 정도의 수치에 귀결된다는 것에서 1951년에

ICRU(국제방사선단위위원회)에 의해 1Ci는 3.7×10^{10} 봉괴/초를 표시하는 단위로 다시 정해졌다. 그 후 SI단위계로 옮아감에 따라 봉괴/초 (s^{-1})를 표시하는 단위로써 1985년 이래 Ci와 대체된 Bq(베크렐)이 SI단위계에 편입되었다. 계량법에 있어서도 1991년의 개정에 따라 정령이 정하는 「물질상태의 양」에 이 Bq이 방사능단위로 채용되고 있다. 또한 관련 단위규칙(성령(省令))에 α , β 중성자 등의 입자플루엔스(율) $\text{m}^{-2} (\text{s}^{-1})$, 방사능 면밀도 Bq/m^2 , 방사능 농도 Bq/m^3 , Bq/kg 이 각각 정해져 있다. 그리고 1991년의 개정으로 정령에 받아들여진 방사선 관련의 여러 양은 중성자 방출율, 방사능, 흡수선량(율), 카마(율), 조사선량(율), 선량당량(율)이다. 이 가운데 방호 레벨의 γ 선, 중경X선에 대한 선량 관련의 여러 양이 전총연(電總研)에 있는 평행 평판형의 전리상과 그라파이트의 공동 전리상을 특정표준기로서 트레이서빌리티 제도 하에 공급이 실시되고 있다. 방사능에 있어서도 특정표준기의 제도와 인정사업자 등의 육성에 의해 트레이서빌리티 제도에 따른 표준 공급체제의 확립이 요망되고 있다.

2. 방사능의 1차 표준

일본의 방사능 표준은 계량법에 의해 전총연에서 유지·공급되고 있지만, 전총연에서의 1차 표준을 위한 측정 방법은, $4\pi\beta\gamma$ 동시 측정법이 기본으로 되어 있다. 이 수법은, ^{60}Co 나 ^{241}Am 과 같은 핵종은 붕괴와 더부러 α 또는 β 입자와 동시에 γ 선도 방출된다는 것에 착안한 것이다. 측정시에는, 방사성의 용액을 약 $20\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 정도의 매우 얇은 막 위에 적은 양을 적하·건조 시킨 시료를 가스플로형의 $4\pi\beta$ 비례계수관으로 β 선의 계수율 N_β 를 측정한다. 이 비례계수관의 바로 가까이에 Fig. 1에 있는 바와 같이 γ 선 검출기를 배치하여, γ 선의 계수율 N_γ 를 측정한다. 또한 β 선이 $1\mu\text{s}$ 정도의 시간내에 동시에 검출되는 동시 계수율 N_c 를 측정한다. 이 세 개의 계수율 N_β , N_γ , N_c 를 독립적으로 구할 수 있으면, 검출기의 효율을 각각 ϵ_β , ϵ_γ 로 한다면,

$$N_\beta = N_0 \times \epsilon_\beta \quad (1)$$

$$N_\gamma = N_0 \times \epsilon_\gamma \quad (2)$$

$$N_c = N_0 \times \epsilon_\beta \times \epsilon_\gamma \quad (3)$$

이므로 구하는 방사능 N_0 는

$$N_0 = N_\beta \times N_\gamma / N_c \quad (4)$$

이며, 핵 데이타 등의 다른 정보에 의존하지 않고 독립적으로 값을 매길 수 있다. 이 수법은 방사능의 절대측정법이라 불리워지며 1차 표준 측정에 널리 사용되고 있다. 그러나 모든 핵종이 α , β 붕괴와 동시에 γ 선을 방출하는 것은 아니다. 이를테면 ^{137}Cs 는 β 붕괴 후 잠시 시간을 두고 γ 선을 방출한다. ^{89}Sr 는 β 선 뿐으로 γ 선을 방출하지 않는다. 또한 핵종에 따라서는 ^{86}Kr 나 ^{133}Xe , ^{222}Rn 처럼 애초 기체로 밖에 존재하지 않는 것과 같이 핵종마다 특징이 있어 보통 수단으로는 값을 좀처럼 매길수가 없는 현상이다. 그러므로 여러가지 측정이 고안되고 있지만, 기본적으로는 앞에 말한 $4\pi\beta\gamma$ 동시측정을 기초로 한 것이 많고 그밖에는 특정 핵종에게만 적용되는 수법이다. Table 1에 지금까지 전총연에서 값을 구한 핵종과 측정법을 제시한다.

3. 방사능 표준의 트레이서빌리티 제도

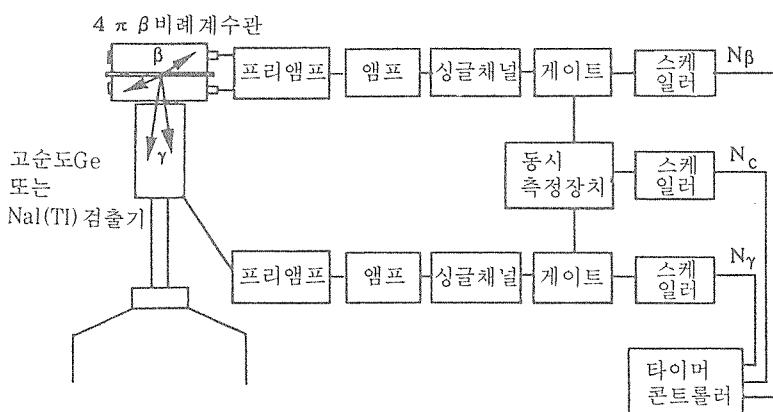


Fig. 1 전총연의 $4\pi\beta\gamma$ 동시 시스템 구성도

전총연에서는 이렇게 정량된 용액을 유리앰플 등에 봉입하여 표준용액으로 국제 비교를 실시하는 한편, 국내적으로는 일본 동위원소협회나 대학 등의 연구기관에 제공하고 있다. 이것은 의뢰 시험제도를 통하여 수시로 실시되어 왔으나, 금후 이것을 Fig. 2에 표시된 바와 같은 계량법의 트레이서빌리티 제도에 따른 시스템으로 확립할 필요가

Table 1 전총연이 공급하는 1차 표준 핵종과 측정 방법

방사선의 종류	물리·화학형	핵 종	측정방법	불확실도 (k=2)	
즉시 γ 부착 α	수용액	^{241}Am ^{226}Ra	$4\pi\alpha-\gamma$ 동시계수법 헤니슈미트 표준설원과의 비교	0.2%	
	전착선원	^{210}Po (^{210}Pb), ^{241}Am , ^{244}Cm	$2\pi\alpha$ 비례계수법	2%	
	수용액	^{32}P , ^{35}S , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{147}Pm , ^{204}Ti	효율 트레이서(비례계수판)	0.5%	
	유기용매	$^3\text{H}(\text{T})$, ^{14}C	효율 트레이서(액체 섬광계수판)	1.0%	
	물	TiO_2	효율 트레이서(액체 섬광계수판)		
	기체	Ti_2 , CT_2 , $^{14}\text{CH}_4$, $^{14}\text{CO}_2$, ^{85}Kr , ^{133}Xe	가스 카운팅법		
	수용액	^{22}Na , ^{24}Na , ^{42}K , ^{46}Sc , ^{59}Fe , ^{60}CO , ^{95}Zr , ^{99}Mo - ^{99m}Tc , ^{103}Ru - ^{103}Rh , ^{106}Ru - ^{106}Rh , ^{110m}Ag , ^{131}I , ^{134}Cs , ^{141}Ce , ^{144}Ce - ^{144}Pr , ^{181}Hf , ^{192}Ir , ^{198}Au , ^{203}Hg	$4\pi\beta-\gamma$ 동시 측정법	0.2%~0.7%	
	즉시 γ 또는 EC	수용액	^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{65}Zn , ^{67}Ga , ^{75}Se , ^{85}Sr , ^{88}Y , ^{133}Ba , ^{139}Ce , ^{153}Gd , ^{201}Tl	$4\pi X(e)-\gamma$ 동시 측정법	0.2%~0.7%
	수용액	^{125}I	Sum peak 법	1.0%	
Cascade multi γ	수용액	^{152}Eu	$4\pi\gamma$ 계수법(우물형 Nal)	1.0%	
지연 γ 부착 β	수용액	^{137}Cs	효율트레이서법(^{134}Cs)	1.0%	
지연 γ 또는 EC	수용액	^{109}Cd	내부전환전자 계수법	0.5%	
순 EC	수용액	^{56}Fe	효율 트레이서법(액체 섬광계수판)	2.0%	
순 γ (IT)	수용액	^{99m}Tc	^{99}Mo 의 측정 또는 광자 스펙트로 미터	1.0% 2.0%	

있다. 이를 위해서는 안정되고 충분한 정밀도가 기대되는 특정 2차 표준기를 규정하여 이것에 의한 2차 표준 작성수법의 확립이 필요하다. 이때 방사능은 조사선량과 같은 계측량이라기보다 표준물질에 가까운 성질이라는 점에 주의할 필요가 있다. 즉 앰플 등에

들어 있는 선원을 기기교정 등을 위하여 적게 분리한 다음 사용하면 없어지게 되며, 더 육이 일정한 반감기로 감쇠하기 때문에 대량으로 만들어 두고, 장기간 보존하는 것은 적절하지 않다. 또한 1차 표준은 펄스적으로 붕괴를 검출하는 수법이기 때문에 직접 산업용

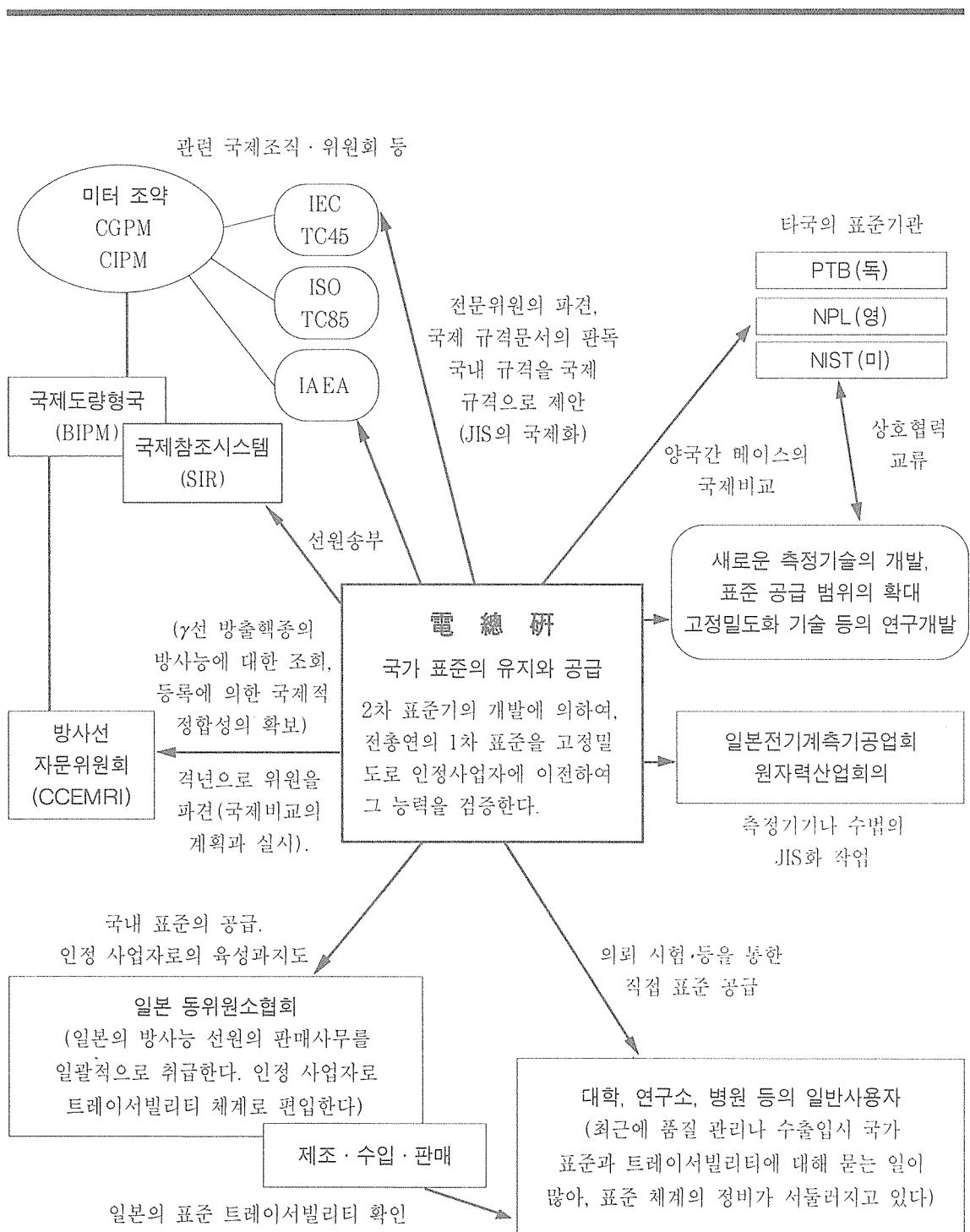


Fig. 2 방사능 표준 트레이서빌리티 체계

Table 2 2차 표준용 측정기기와 측정범위

측정대상이 되는 방사능(핵종) 및 선원형상	2차 표준용 측정기	선원의 측정가능 범위		표준선원의 불확실도 ($k=2$)
γ 선 방출핵종 · 표준용액 · 핵종밀봉소선원 (점, 면, 체적 등)	가압형 전리상	γ 선 에너지 선원강도(^{60}Co 환산) ^{주)}	20keV ~ 3MeV 10kBq ~ 200MBq	$\pm 1.0\% \sim 5.0\%$
X선, γ 선 방출율 · 밀봉소선원	γ 선 스펙트로미터 (고순도 Ge검출기), NaI(Tl) 검출기, Si(Li) 검출기 등)	γ 선 에너지 선원강도(전방사능)	2keV ~ 3MeV 0.1Bq ~ 4MBq	$\pm 2.0\% \sim 5.0\%$
순 α 순 β 핵종 · 표준용액	액체신틸레이션카운터	전에너지범위 선원강도(전방사능)	10Bq ~ 20kBq	$\pm 1.0\% \sim 5.0\%$
α , β 입자 방출율 · 전착선원 · 면선원	2π멀티 와이어 챔버 Si표면장벽형 검출기	선원강도(전방사능)	10Bq ~ 20kBq 0.01Bq ~ 500kBq	$\pm 0.5\% \sim 3.0\%$ $\pm 2.0 \sim 5.0\%$

주) γ 선 핵종의 방사능 측정범위는 1봉과당의 γ 선 방출율과 그 에너지에 따라 다르기 때문에 ^{60}Co 의 방사능과 동등의 γ 선 선량에 환산한 값으로 표시하였다. 또한 선원강도의 측정가능 범위는 개개의 시료에 포함된 방사능이며, 표준용액으로 그 일부를 샘플링할 경우에는 그 샘플링 시료에 포함된 방사능이다.

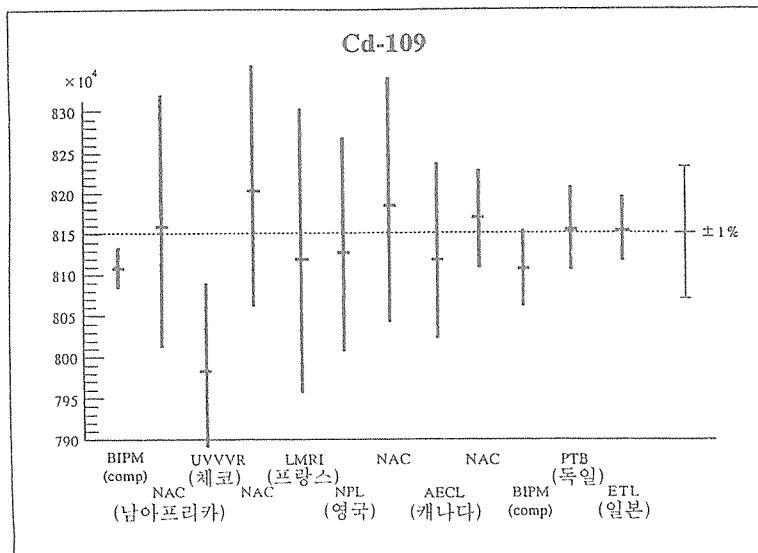


Fig. 3 Cd-109 방사능 표준의 BIPM/SIR에 있어서의 비교결과

이나 의료 현장에서 사용되는 것과 같은 강도의 표준선원을 만들기가 어렵다. 또한 환경 방사능과 같은 극미량의 방사능을 직접 측정하기에도 적합하지 않다. 이러한 점을 고려하여 현재 전총연과 일본 동위원소협회에서 서로 유사한 가압형 전리상을 설치하는 등, 특정 2차 표준기로서 적합한 충분한 정밀도와 측정범위를 가진 기기의 정비와 계량법에 따른 트레이서빌리티 체계의 정비를 전착시키고 있다. Table 2에 대표적인 2차 표준용 측정기와 대응 핵종 및 그 범위를 표시한다.

가압형 전리상은 γ 선에 의한 전리 전류를 측정하는 것이지만, 이것을 라듐(^{226}Ra , 반감기 1600년)이나 홀뮴(^{166m}Ho , 반감기 1200년)과 같은 긴 반감기를 가진 취급이 간편한 밀봉선원과의 상대치로서 교정함으로써 매우 안정된 시스템으로 할 수가 있다. 말하자면 전리상을 방사능의 천칭으로 하고, 장반감기의 밀봉선원을 분동으로 한 시스템이라고 할 수가 있다. 이러한 시스템은 널리 2차 표준용에 사용되고 있으며, 국제 도량형국(BIPM)에는 20기압의 질소가스를 붕입한 형태의 가압형 전리상이 설치되어, 각국의 표준기관에서 송부되는 1차 표준용액을 측정하고, 기준으로 삼는 라듐의 밀봉선원에 대한 상대 강도를 측정하여, 그 결과를 각국의 1차 표준 기관에게 공표하고 있다.

이 시스템은 국제 γ 선 핵종 방사능측정참조 시스템(International Reference System for Activity Measurements of Gamma-ray Emitting Nuclides;SIR)로서 1978년에 국제 도량형국에 설치되어 그 이후 약 50핵종, 500샘플이 보내어져 전 리스트가 공표되고 있다. 전총연에서도 정기적으로 핵종을 선택하여 이 SIR

에 시료를 송부해 왔다. Fig. 3에 96년도에 송부한 ^{109}Cd 의 예를 표시한다. 이 도표에 나타난 측정결과는 모두가 1978년 이후 수시로 각국의 표준기관으로부터 송부된 시료를 SIR/BIPM의 전리상으로 측정한 것이다. 앞으로 SIR/BIPM은 국제적 방사능표준의 키컴퍼리슨(각국의 표준 정합성을 확인하는 비교시험)에 있어 중요한 역할을 할 것으로 기대되고 있다. 이미 전총연은 BIPM에 선원을 송부함과 동시에 이웃 아시아 여러나라의 표준연구를 실시하고 있는 기관에도 선원을 송부하여 자주적인 국제 비교를 실시하고 있다. Table 3에 최근의 결과를 표시한다. γ 선방출 핵종에 관해서는 이러한 가압형 전리상과 고체의 전리상이라 할 수 있는 고순도 Ge검출기에 의해 의료용에서 환경용까지 대략 필요한 범위가 커버될 수 있으리라 생각된다.

한편, γ 선을 방출하지 않는 순 γ 핵종이나 저에너지 X선 핵종에 대해서는 액체실틸레이션 카운터가 2차 표준기로 적당하다고 생각된다. 최근 국제 도량형국에서는 신틸레이터와 시료의 화학적 조건을 일정하게 한 다음, 각국의 선원을 측정하는 시도를 시작하였다. 전총연도 이것에 참가하여 ^{90}Sr 의 시료를 송부하는 한편 ^{204}TI 의 국제 비교를 실시하고 있다. 장래에는 이 액체실틸레이션 카운터 시스템이 현재의 SIR과 같은 것으로 발전되는 것이 기대되고 있다. 국내적으로는 지금까지 비교적 에너지가 높은 ^{90}Sr 이나 ^{204}TI 등은 $4\pi\beta\gamma$ 의 효과 트레이서법으로 값이 매겨졌지만, 앞으로는 액체실틸레이션 카운터에 의한 수법으로 통일되어 갈 예정이다. 저에너지의 순 β 에 대해서는 이미 액체실틸레이션 카운터에서 값이 정해진 ^3H 와 ^{14}C 가 일본 동위원소협

Table 3 BIPM/SIR 및 이웃 아시아 여러나라와의 국제 비교결과

실시년, 월	핵 종	참 가 기 관 명	BIPM/SIR의 평균치와의 차이
1993년 9월	²² Na	ETL	+0.2(%)
		INER(대만)	-0.1
		PSPKL(인도네시아)	-1.4
	⁵¹ Cr	ETL	-0.7
		INER(대만)	+7.2
		PSPKL(인도네시아)	+5.1
	⁵⁴ Mn	ETL	+0.1
		INER(대만)	-1.4
		PSPKL(인도네시아)	+1.7
1994년 10월	⁶⁵ Zn	ETL	+0.3
		INER(대만)	-3.6
		NIM(중국, 계량연(計量研))	+0.6
		CIAE(중국, 북경)	+0.1
	⁸⁵ Sr	ETL	-0.6
		INER(대만)	+0.3
		NIM(중국)	-1.3
		CIAE(중국)	+1.1
	¹³⁷ Cs	ETL	+0.7
		INER(대만)	-5.9
		NIM(중국)	-0.5
		CIAE(중국)	+0.9
1996년 3월	⁵⁷ Co	ETL	-0.6
		INER(대만)	-0.1
		PSPKL(인도네시아)	-0.2
		NIM(중국)	+1.3
		CIAE(중국)	+1.7
		NINT(중국, 서안(西安))	-0.6
	¹⁰⁹ Cd	ETL	+0.1
		INER(대만)	-1.2
		PSPKL(인도네시아)	-5.5
		NIM(중국)	-0.8

회에 공급되어 있어 실질적인 변경을 필요로 하는 것은 아니지만, 트레이서빌리티체계 정비를 위해서는 앞으로 국내에 있어서도 액체 시스템의 정비가 필요할 것이라 생각된다.

방사능 면밀도에 관해서는 전총연과 일본 동위원회소협회가 서로 비슷한 2π 멀티 와이어 챔버를 보유하여, 지금까지 10cm×10cm의 산화 우란을 얇게 도포한 선원 등을 주로 하여, 필요에 따라 의뢰시험에 의해 값이 매겨졌다. 이 경우의 값은 선원표면에서의 α 또는 β 의 입자방출율이지만, 실제에 표면오염 상황을 검사하는 측정기기를 교정할 때에는 표면 방출율의 값을 정확하게 정하는 것이 중요하기 때문에 이 수법이 가장 적당한 것이라 말할 수 있다. 방사선 면밀도 그 자체는 소면적(직경 2~5cm 정도)의 전리선원일 경우 Si 표면장벽형검출기의 정입체각법이나 $2\pi\alpha-\gamma$ 측정에 의해 값을 구할 수 있다. 그러나 여지와 같은 종이 등에 스며든 큰 면적 선원의 경우에는 값을 구하기 어렵고, 사전에 방울져 떨어지는 용액의 방사능을 정확히 구하여, 적하(滴下)량과 면적에서 계산에 의해 구할 필요가 있다.

4. 방사능 표준의 전망

현재 방사능 표준선원은 아며샴, LMRI, 그리고 일본 동위원회소협회 등에서 여러 형상·강도의 것이 작성, 판매되고 있다. 구체적으로는, 여러 핵종이 표준용액의 형태로 공급되고 있을 뿐 아니라, 기기 교정용의 밀봉선원으로서 α , β 핵종의 경우에는 주로 금속판에 선원핵종을 전착한 것, 여지 등에 침투시켜

표면에 얇은 커버를 한 형태 등의 선원이 제조되고 있다. γ 선 핵종의 경우에는 Ge검출기 등의 스펙트럼 측정장치의 교정용이나 의료용 단반감기 핵종의 목업(실물크기의 모형) 선원이 판매되고 있다.

표준선원으로 판매되고 있는 외국 제품의 대부분은 제조국의 1차 표준기관과 트레이서빌리티가 확보되고 있다는 취지의 증명서나, 희망하면 공공기관에서 교정이 실시되었다는 결과 증명이 첨부된다. 현재 일본에서도 늦은 감이 있지만 인정 사업자 등의 트레이서빌리티체계 정비가 진행되고 있으며, 앞에도 말한 바와 같이 특정 2차 표준기에 알맞은 기기의 정비가 착실히 진행되고 있다. 계량의 트레이서빌리티를 확보한다는 것은 품질보증의 면에서 중요성이 더해가고 있으며, 국산의 표준선원에도 외국 제품과 같은 증명서가 조속히 발행될 수 있고, 또한 일반 수요자로부터의 교정 의뢰에도 올바르게 대응할 수 있는 체계를 정비하는 것이 필요하다.

이상, 방사능 표준의 현황과 트레이서빌리티의 개요를 살렸지만, 한마디로 방사능이라 하여도 3000핵종이나 있어, 또한 이용되는 강도 범위도 환경 레벨의 μBq 레벨에서 암치료 등의 GBq레벨까지 매우 폭이 넓어, 공급 가능한 범위는 한정된 것이 될 수밖에 없지만, Table 2에 제시한 2차 표준기에 의해 적어도 현재 일본에서 제작하여 공급하고 있는 표준선원의 대부분이 커버될 수 있으리라 생각된다. 관계자 여러분의 지도, 협조에 의해 방사능 표준에 있어서의 트레이서빌리티 제도의 확립을 도모하고 싶다.