

Feasibility about the Direct Measurement of ^{226}Ra Using the Gamma-Ray Spectrometry

감마분광분석을 이용한 ^{226}Ra 의 직접 측정방법에 대한 적용성 평가

Young-Yong Ji^{1*}, Kun Ho Chung¹, Jong-Myoung Lim¹, Change-Jong Kim¹, Mee Jang¹, Mun Ja Kang¹, Sang Tae Park², Zuhee Woo³, Boncheol Koo³, and Bokyun Seo³

¹ Korea Atomic Energy Research Institute, 111 Daedeok-daero 989, Yuseong-Gu, Daejeon, Korea

² Kongju National University, Gongjudaehak-ro 56, Kongju, Korea

³ Korea Institute of Nuclear Safety, Gwahak-ro 62, Yuseong-Gu, Daejeon, Korea

지영용^{1*}, 정근호¹, 임종명¹, 김창중¹, 장미¹, 강문자¹, 박상태², 우주희³, 구본철³, 서보균³

¹ 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

² 공주대학교, 충청남도 공주시 공주대학교로 56번길

³ 한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 62번길

(Received June 16, 2014 / Revised June 26, 2014 / Approved June 27, 2014)

In the case of the direct measurement of ^{226}Ra using a HPGe gamma-ray spectrometer, the interference between gamma-rays with 186.21 keV of ^{226}Ra and 185.7 keV of ^{235}U should be corrected to calculate the net peak area in the energy spectrum. In general, it is very difficult to conduct peaks stripping with difference of about 0.5 keV, although a HPGe with the superior resolution is applied and the maximum channels is applied to the spectrometer. In this study, several interference correction techniques in the direct measurement were surveyed to evaluate the feasibility for the measurement of ^{226}Ra using the gamma-ray spectrometry. Applying the interference corrections to the analysis of raw materials and by-products, the method validation for the direct measurement of ^{226}Ra was conducted by evaluating the measurement uncertainty, linearity, and range. As a result, the optimum method of the interference correction was selected by comparing with the indirect measurement of which progenies of ^{226}Ra , such as ^{214}Pb and ^{214}Bi , were analyzed in the secular equilibrium state.

Keywords: ^{226}Ra , Gamma-ray spectrometry, Interference correction, HPGe detector

HPGe 감마선 검출기를 이용하여 ^{226}Ra 의 방사능을 직접 측정방법의 경우, ^{226}Ra 의 186.21 keV 감마선이 ^{235}U 에서 방출되는 185.7 keV 감마선에 의한 간섭을 받기 때문에 피크면적의 계산에서 반드시 보정이 필요하다. 비록 분해능이 아주 우수한 HPGe 검출기를 사용한다 하더라도 그리고 분광시스템의 채널수를 최대로 늘린다고 할지라도 약 0.5 keV 차이의 두 감마선 피크를 분리해 내기란 현실적으로 어려운 일이다. 본 연구에서는 감마분광분석을 이용한 ^{226}Ra 의 직접 측정방법에 대한 적용성을 평가하기 위하여, 여러 가지 간섭피크 보정들을 이용한 직접 측정방법을 조사하였다. 이를 원료물질 및 공정부산물 시료들에 적용함으로써 직접 측정방법들에서 그 측정 불확도, 직선성 및 적용범위 등을 평가하였다. 최종적으로 방사평형 관계를 이용하여 ^{226}Ra 의 방사능을 측정하는 간접 측정방법으로부터 얻은 ^{214}Pb 및 ^{214}Bi 의 결과를 직접 측정방법의 결과와 비교함으로써 최적의 측정방법을 유도하였다.

중심단어: ^{226}Ra , 감마분광분석, 간섭피크 보정, HPGe 검출기

*Corresponding Author.

Young-Yong Ji, Korea Atomic Energy Research Institute, E-mail: yyji@kaeri.re.kr, Tel: +82-42-868-4958

1. 서론

원료물질 또는 공정부산물 중의 천연방사성핵종에 대한 방사능 분석은 주로 질량분석기, 알파핵종분석기 및 액체섬광계수기를 이용한 분석법이 활용되고 있지만, 감마핵종분석법 또한 분석시료의 전처리를 최소화할 수 있고 비교적 많은 양의 시료를 한 번에 분석할 수 있어, 시간 비용 측면에서의 장점 때문에 여전히 유효한 분석법으로 인식되고 있다. 천연방사성핵종들 중에서 붕괴계열을 이루는 것들로는 ²³⁸U을 기원으로 하는 우라늄계열, ²³²Th를 기원으로 하는 토륨계열, ²³⁵U를 기원으로 하는 악티늄계열 그리고 ²³⁷Np을 기원으로 하는 넵티늄계열에 속하는 핵종들로 나눌 수 있다. 그러나 넵티늄계열은 지구 생성 기원에 비해 이 계열의 핵종들이 가지는 상대적으로 짧은 반감기로 인해 현재까지 남아 있는 천연방사성핵종은 ²⁰⁹Bi와 ²⁰⁵Tl 뿐이다. 우라늄계열의 딸핵종들 중에서 ²²⁶Ra은 암석과 토양 등에 함유되어 다양한 농도분포를 보이고 있으며 특히 ²²⁶Ra과 그 딸핵종들은 자연방사선 중에서 인간이 받게 되는 유효선량의 많은 부분을 차지하기 때문에, 원료물질과 공정부산물 중의 천연방사능을 평가하는데 중요한 핵종 중의 하나이다[1, 2].

HPGe 감마선 검출기를 이용하여 ²²⁶Ra의 방사능을 분석하는 방법으로는 ²²⁶Ra 자신이 방출시키는 186.21 keV 감마선을 직접 측정하는 방법[3, 4]과 붕괴계열에서 방사평형을 이룬 뒤, 감마분석이 용이한 ²¹⁴Pb 및 ²¹⁴Bi 등의 딸핵종을 ²²⁶Ra의 지표핵종(indicator)로 분석하는 간접 측정방법[5, 6]이 있다. 직접 측정방법의 경우, ²²⁶Ra의 186.21 keV 감마선이 ²³⁵U에서 방출되는 185.7 keV 감마선에 의한 간섭(interference)을 받아, 서로 다른 두 감마선 피크가 분광시스템에서 하나의 피크로 인지되기 때문에 이에 대한 고려가 반드시 필요하다. 비록 분해능이 아주 우수한 HPGe 검출기를 사용한다 하더라도 그리고 분광시스템의 채널수를 최대로 늘린 다할지라도 약 0.5 keV 차이의 두 감마선 피크를 분리해 내기란 현실적으로 어려운 일이다. 그리고 간접 측정방법의 경우에는 방사평형을 만족시키기 위한 시간과 건전성이 만족되어야 한다. 즉, ²²⁶Ra의 딸핵종인 ²²²Rn는 불활성 기체로서 물질 내외의 압력과 온도 차이에 의한 확산 및 대류과정에 의하여 대기 중으로 방출되기 때문에 시료용기의 밀봉과 시료 제작 후, 충분한 시간동안의 보관이 필요하다. 따라서 방사평형을 위한 시료용기로는 라돈 가스가 침투할 수 없는 알

루미늄 등의 용기가 권장된다.

본 연구에서는 HPGe 감마선 검출기를 이용한 ²²⁶Ra의 직접 측정방법에 대한 적용성(feasibility)을 평가하기 위하여, 여러 가지 간섭피크 보정들에 의한 직접 측정방법을 조사하였다. 그리고 원료물질 또는 공정부산물 중, 총 13 개의 시료를 준비하여 직접 측정방법들에서 그 측정 불확도, 직선성(linearity) 및 적용범위(range) 등을 평가하였다. 최종적으로 ²²⁶Ra의 간접 측정방법으로 ²¹⁴Pb 및 ²¹⁴Bi를 분석하여 직접 측정방법의 결과와 비교함으로써 최적의 직접 측정방법을 유도하였다.

2. 감마분광분석에 의한 ²²⁶Ra의 직접 분석 방법

감마분광분석으로 ²²⁶Ra을 직접 분석하는 것은 방사평형이 필요 없어 시간단축과 시료 용기의 건전성 확보 측면에서 유리한 방법이다. 그러나 이를 위해서는 ²²⁶Ra으로부터 방출되는 186.21 keV의 감마선 피크를 분석해야하며, 이 에너지 피크는 Table 1과 같이 악티늄계열의 ²³⁵U에서 방출하는 주 에너지 피크인 185.72 keV의 감마선과 간섭을 일으켜 과대평가된다. 감마핵종분석시 두 피크는 실제 다중피크(multiplet)이나 에너지 차이가 작아 서로 분리되지 못하고 약 186 keV에서 하나의 단일피크(singlet)으로 인지되어 이 간섭피크에 대한 적절한 보정이 필요하게 된다.

Table 1에서 보듯이 ²³⁵U는 여러 에너지의 감마선을 방출하며, 각 에너지의 감마선 피크면적으로부터 계산된 ²³⁵U의 방사능은 서로 같아야하기 때문에 143.77 keV, 163.36 keV, 205.32 keV 등을 참조피크로 선정하여 식 (1)과 같이 이들의 피크면적으로부터 ²³⁵U의 185.72 keV에 해당하는 피크면적

Table 1. The gamma-ray energy and intensity for ²²⁶Ra and ²³⁵U

Nuclide	Energy (keV)	Intensity (%)
²²⁶ Ra	186.21	3.555
	185.72	57.10
	143.77	10.94
	163.36	5.08
²³⁵ U	205.32	5.02
	105.60	2.06
	109.19	1.66
	202.12	1.08

을 계산할 수 있다. 뿐만 아니라, ²³⁸U과 ²³⁵U의 존재비가 일정하고 ²³⁸U과 그 딸핵종인 ²³⁴Th이 서로 영속평형관계에 있다면, 식 (2)로부터 ²³⁴Th의 63.3 keV 감마선 피크면적으로부터 ²³⁵U의 185.72 keV 피크면적을 계산할 수도 있다. 따라서 186 keV의 혼합피크에서 185.72 keV 피크 기여분을 뺀 값이 순수한 ²²⁶Ra 186.21 keV의 피크면적이 되며, 이로부터 ²²⁶Ra의 방사능을 계산하는 것이 간접피크 보정을 이용한 직접 측정 방법에 해당한다.

$$N_{185.7} = N_{ref} \times \frac{(\gamma\epsilon)_{185.7}}{(\gamma\epsilon)_{ref}} \quad (1)$$

$$N_{185.7}^{235U} = N_{63.3}^{234Th} \times \frac{(\gamma\epsilon)_{185.7}}{(\gamma\epsilon)_{63.3}} \times \frac{(\theta\lambda)^{235U}}{(\theta\lambda)^{234Th}} \quad (2)$$

여기서, N은 피크면적, γ 는 감마선 방출률, ϵ 은 계수효율, θ 는 존재비, 그리고 λ 는 붕괴상수를 의미하며, 아래첨자는 감마선 에너지 그리고 위첨자는 핵종을 각각 의미한다.

먼저 ²³⁵U의 여러 감마선 피크들 중에서 참조피크로 활용되는 것으로는 감마선 방출률을 고려하여 측정이 용이한 143.77 keV 피크가 있지만 Table 2에서 보듯이, 해당 피크 에너지에서 우라늄계열의 ²³⁰Th과 악티늄계열의 ²²³Ra의 감마선 피크들과 간섭이 존재한다는 단점이 있다. 그리고 간접피크가 없어 장점이 있는 ²³⁵U의 205.32 keV 감마선 피크를 참조피크로 이용하는 방법은 자신의 방출률이 약 5% 정도로 낮아 측정이 쉽지 않으며, 이로 인해 불확도가 큰 단점이 있다. 본 연구에서는 205.32 keV를 참조피크로 활용하는 경우를 “Method 1” 그리고 143.77 keV를 이용하는 경우를 “Method 2”로 구분하였다.

그리고 우라늄계열의 ²³⁴Th에서 방출되는 63.30 keV 감마선 피크를 이용하는 “Method 3”의 경우에는 ²³⁸U과 ²³⁵U의 존재비가 천연상태로 일정하고 ²³⁸U과 그 딸핵종인 ²³⁴Th가

Table 2. The gamma-ray energy and intensity for ²³⁰Th and ²²³Ra

Nuclide	Energy (keV)	Intensity (%)
²³⁰ Th	67.67	0.38
	143.87	0.049
²²³ Ra	144.27	3.36
	154.21	5.84
	323.87	4.06
	338.28	2.85

Table 3. The gamma-ray energy and intensity for ²³⁴Th and ²³²Th

Nuclide	Energy (keV)	Intensity (%)
²³⁴ Th	62.88	0.0164
	63.30	3.75
	92.38	2.18
	92.80	2.15
²³² Th	63.81	0.259

서로 영속평형관계에 있다는 가정이 필요하다. 이 방법의 장점으로는 63.30 keV 감마선의 방출률이 약 3.75%로 크지는 않으나 n-type의 HPGe 방사선 검출기를 사용할 경우, 이 에너지 영역에서의 계수효율이 거의 최대이기 때문에 피크가 뚜렷하고 불확도가 낮아 ²²⁶Ra의 분석결과에서 아주 낮은 불확도를 얻을 수 있다는 것이다. 그러나 Table 3에서 보듯이, ²³⁴Th의 63.30 keV 감마선 피크는 자신의 62.88 keV 감마선과 토륨계열의 ²³²Th으로부터 방출되는 63.81 keV와 간섭을 일으키는 단점이 있다. 덧붙여, ²³⁴Th의 92 keV 영역의 두 감마선 피크를 참조피크로 활용할 수도 있으나, 이 에너지 영역은 여러 천연방사성핵종들로부터 방출되는 X-선의 영향이 크므로 참조피크로 활용하기에는 바람직하지 않다.

3. 재료 및 방법

3.1 시료준비

원료물질 또는 공정부산물 중의 천연방사성핵종을 분석하기 위한 시료는 화력발전소의 석탄회(coal fly/bottom ash), 모나자이트(monazite), 질석(vermiculite), 벤토나이트(bentonite), 철반석(bauxite) 및 지르콘 샌드(zircon sand) 등 총 13 종을 선정하였다. 이 시료들을 공극 및 수분이 없도록 균일한 입자 크기로 전처리한 후, Fig. 1과 같이 알루미늄 용기에 밀봉하여 약 4 주간 라돈 가스의 누출을 차단함으로써 ²²⁶Ra부터 ²¹⁴Pb까지 영속평형에 도달하도록 하였다. 그 후, 직·간접 측정방법에 의한 ²²⁶Ra의 정량분석을 수행하였다.

3.2 ²²⁶Ra의 간접 측정방법

라돈 가스의 누출을 막은 후, 약 4 주 동안(통상적으로



Fig. 1. Sample preparations for the gamma-ray spectrometry.

²²²Rn의 7 반감기) 시료를 방치하면 영속평형관계가 성립하여 ²²⁶Ra과 딸핵종들 중에서 ²¹⁴Pb 및 ²¹⁴Bi의 방사능이 같아진다. 일반적으로 두 핵종은 여러 에너지의 감마선을 방출시키며 그 방출률 또한 높아 감마분광시스템에서 분석이 용이한 핵종들 로써, 방사평형 관계를 이용하여 ²²⁶Ra의 정량분석에 우수한 결과를 제공할 수 있다. 그러나 시료 준비에서 측정까지 4주 이상의 시간이 소요된다는 단점이 있으며, 방사평형 도달을 위한 시료용기의 건전성이 보증되어야 한다. 뿐만 아니라, 두 핵종은 여러 에너지의 감마선들을 축차붕괴(cascade decay)에 의해 방출시키며, 이로 인해 감마분광시스템에서는 동시합산(coincidence summing) 효과에 의해 분석결과의 과소평가가 일어날 수 있다. 이 영향은 고효율과 n-type 검출기에서 두드러지며, 이에 대한 보정으로 사용한 45% n-type HPGe 감마분광시스템의 동시합산 보정인자(COI)를 두 핵종의 분석 결과에 각각 적용하였으며, 이때 해당 분광시스템에서 ²¹⁴Pb의 351.9 keV 감마선에 대한 보정인자는 약 0.934로 ²¹⁴Bi의 609.3 keV 감마선에 대해서는 약 0.862로 각각 평가되었다.

Fig. 2에 ²²⁶Ra의 간접 측정방법에 ²¹⁴Pb 및 ²¹⁴Bi의 방사능 분석 결과를 나타내었다. 두 결과의 비교를 용이하게 표현하기 위하여 두 핵종의 방사능 비(x축)에 따른 각 핵종의 방사능 값(y축)으로 도식하였다. 여기서 y축 값이 간접 측정방법에 의한 ²²⁶Ra의 방사능 값에 해당된다. 그림에서 알 수 있듯이, 동시합산 보정의 결과로 대부분의 경우 ²¹⁴Pb와 ²¹⁴Bi의 방사능 비는 약 8% 이내로 일치하였다. 이로부터 간접 측정방법의 유효성을 확인할 수 있었으며, 이렇게 얻은 값들을 ²²⁶Ra의 직접 측정방법의 적용성 평가를 위한 비교 데이터로 활용하였다.

4. 결과 및 고찰

HPGe 감마선 검출기를 이용한 ²²⁶Ra의 직접 측정방법

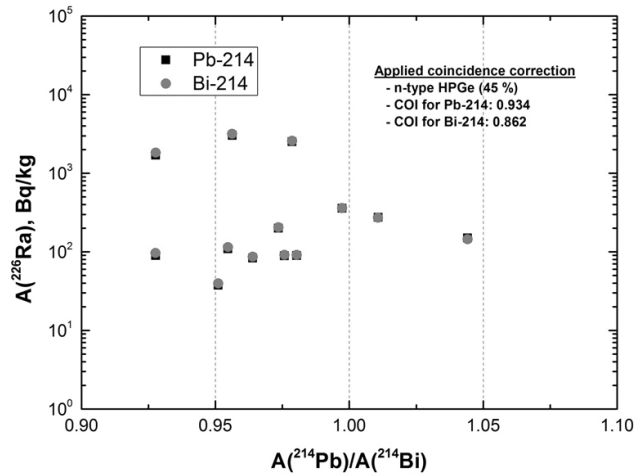


Fig. 2. Activity distributions of ²²⁶Ra through the indirect measurement.

들에 대한 적용성을 평가하기 위하여, 앞선 ²²⁶Ra의 간접 측정방법으로 얻은 ²¹⁴Pb 및 ²¹⁴Bi의 분석 결과와 비교함으로써 여러 가지 간섭피크 보정들에 의한 직접 측정방법에서의 측정 불확도, 직선성(linearity) 및 적용범위(range) 등을 평가하였다.

4.1 ²³⁵U의 감마선 피크를 이용한 간섭피크 보정 방법

4.1.1 Method 1

²³⁵U의 205.32 keV 감마선은 약 5%의 낮은 방출률을 가지지만 다른 천연방사성핵종들의 감마선과 간섭을 일으키지 않기 때문에 185.72 keV의 피크면적을 계산하기 위한 참조피크로 사용하는데 유용하다. Fig. 3과 같이, ²³⁵U의 205.32 keV 감마선이 검출된 경우, 이를 참조피크로 활용하여 해당 피크면적으로부터 식 (1)과 같이 185.72 keV의 감마선 피크면적을 계한다. 따라서 일반적인 감마분광분석에서 단일피크로 측정된 약 186 keV의 피크면적에서 ²³⁵U의 기여분을 차감하여 ²²⁶Ra의 피크면적을 유도하고, 이로부터 식 (3)과 (4)로부터 방사능을 최종 계산할 수 있다.

$$A^{235U} = \frac{N_{185.7}}{\epsilon_{185.7} \times \gamma_{185.7} \times T \times W} \quad (3)$$

$$A^{226Ra} = \frac{N_{186.2}}{\epsilon_{186.2} \times \gamma_{186.2} \times T \times W} \quad (4)$$

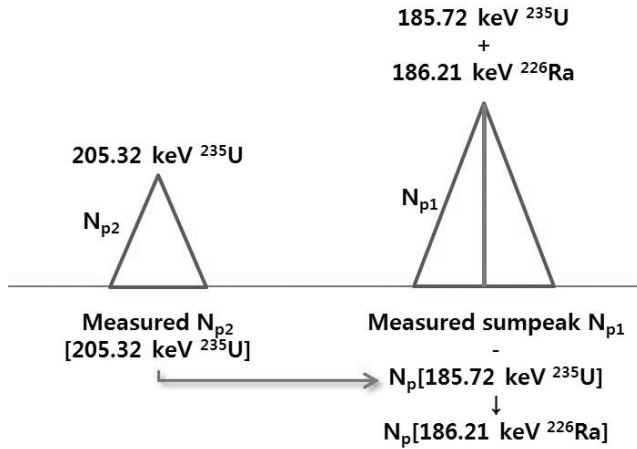


Fig. 3. Schematic diagram of "Method 1" for the interference correction on the 186 keV sumpeak.

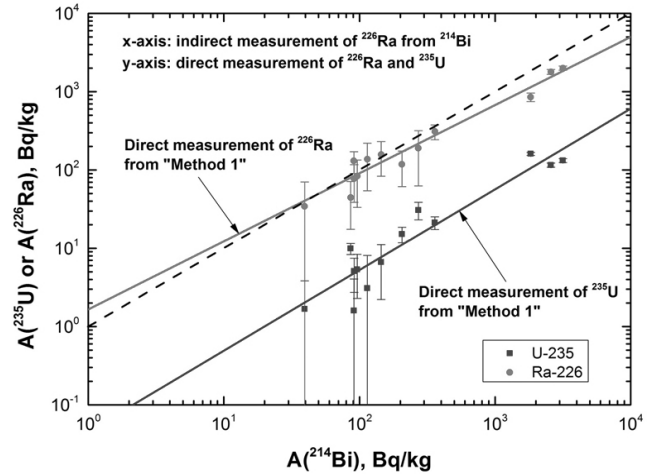


Fig. 4. Analysis results of ^{226}Ra from the direct measurement with an interference correction of "Method 1".

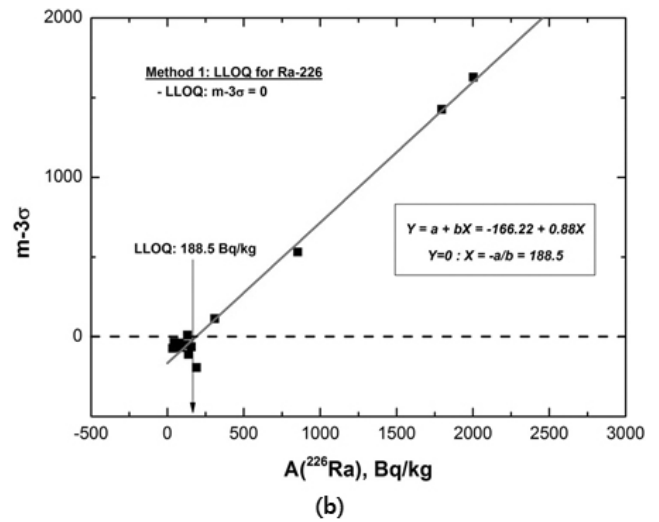
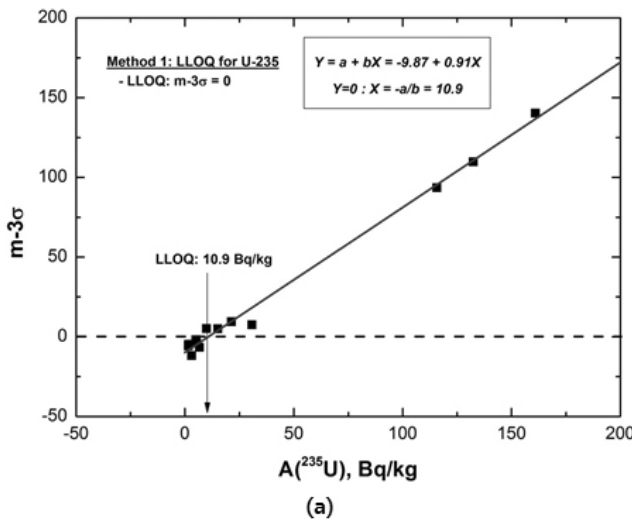


Fig. 5. LLOQ of the direct measurement of ^{235}U (a) and ^{226}Ra (b) in "Method 1".

여기서, A는 방사능, N은 피크면적, γ 는 감마선 방출률, ϵ 은 계수효율, T는 측정시간 그리고 W는 시료 무게를 의미하며, 아래첨자는 감마선 에너지 그리고 위첨자는 핵종을 각각 의미한다.

Fig. 4에 ^{235}U 의 205.32 keV 감마선 피크를 이용한 ^{226}Ra 의 직접 측정결과를 동일한 시료에서 방사평형을 이용한 간접 측정방법 중, ^{214}Bi 의 결과와 비교하여 나타내었다. 그림에서 x축은 ^{226}Ra 의 지표핵종으로 ^{214}Bi 를 분석한 값이며, y축은 동일한 시료에 대하여 직접 측정방법으로 186 keV의 간접

피크를 ^{235}U 와 ^{226}Ra 으로 분리하여 계산한 방사능 값이다. 그림에서 점선은 간접 측정법에 의한 ^{226}Ra 의 분석값과 직접 측정법에 의한 분석값이 동일함을 의미하는 지표이다. 선형 회귀분석 결과에서 보듯이 "Method 1"에서는 ^{226}Ra 의 분석값이 저농도와 고농도에서 큰 차이를 보일 수 있기 때문에 신속분석을 위한 직접 측정방법의 선택 시 문제가 될 수 있으며, 특히, 저농도로 갈수록 ^{226}Ra 과 ^{235}U 모두 직접 측정방법에서의 불확도가 커짐을 알 수 있다. 이런 원인들은 "Method 1"에서 이용하는 참조피크인 ^{235}U 의 205.32 keV 감마선의 방출률이

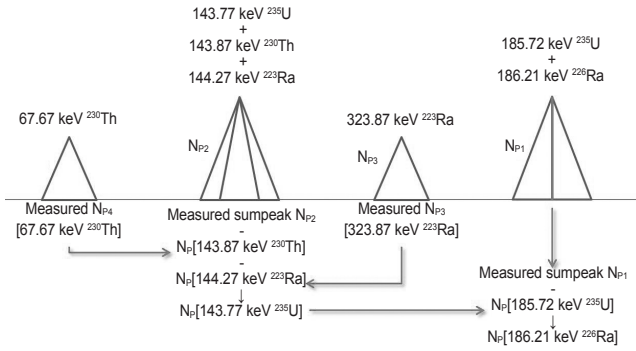


Fig. 6. Schematic diagram of “Method 2” for the interference correction on the 186 keV sumpeak.

낮아 스펙트럼에서 측정된 피크의 불확도가 크기 때문이다. 직접 분석방법으로 ²³⁵U 및 ²²⁶Ra의 방사능 값을 정량해낼 수 있는 최소정량한계(lower limit of quantification, LLOQ)를 평가하기 위하여 아래 식 (5)와 같이 통계오차(σ)의 세배가 평균값(m)과 같은 경우를 해당 Method에서의 최소정량한계로 설정하였다. 일반적으로 통계오차의 세배가 주는 의미는 평균값이 $m-3\sigma$ 보다 크고 $m+3\sigma$ 보다 작을 확률이 99.7%가 된다는 의미이다. 먼저, “Method 1”에 의한 최소정량한계를 판단하기 위하여 ²³⁵U 및 ²²⁶Ra의 직접 측정결과에 대한 $m-3\sigma$ 값을 계산하였으며, 이 값이 0으로 될 때를 조사하였다. Fig. 5에서 보듯이, 두 핵종 모두 1차식으로 회귀분석이 가능하였으며, y축이 0으로 수렴하는 값을 찾은 결과, ²³⁵U의 최소정량한계는 약 10.9 Bq/kg으로 ²²⁶Ra은 약 188.5 Bq/kg으로 결정할 수 있었다.

$$LLOQ : m - 3\sigma = 0 \tag{5}$$

4.1.2 Method 2

²³⁵U의 여러 에너지의 감마선들 중에서 방출률이 두 번째로 큰 143.77 keV의 감마선을 참조피크로 이용할 경우, “Method 1”의 단점인 저농도에서의 불확도를 줄일 수 있어 최소정량한계를 낮출 수 있을 것으로 판단된다. 그러나 이 143.77 keV의 감마선은 우라늄계열의 ²³⁰Th에서 방출되는 143.87 keV 감마선 그리고 악티늄계열의 ²²³Ra에서 방출되는 144.27 keV 감마선과 간섭을 일으켜, 약 140 keV에서 혼합된 단일 피크로 측정된다. 따라서 Fig. 6과 같은 2차의 간섭 피크 보정 절차가 필요하며, ²³⁰Th의 주 피크인 67.67 keV를

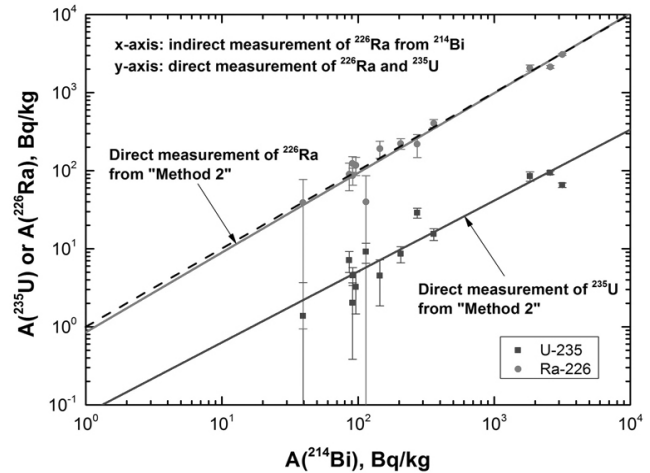


Fig. 7. Analysis results of ²²⁶Ra from the direct measurement with an interference correction of “Method 2”.

참조피크로 설정하여 식 (1)과 같이 143.87 keV 피크 면적을 계산하였으며, 같은 방법으로 ²²³Ra의 감마 피크들 중에서 다른 천연방사성핵종과 간섭이 없는 323.87 keV를 참조피크로 설정하였다. Table 2에서 보듯이, ²²³Ra의 경우 설정된 참조 피크보다 방출률이 높은 감마선 에너지가 존재하지만 모두 토륨계열의 ²²⁸Ac과 간섭을 일으키기 때문에 또 다른 참조 피크를 설정한 3차의 보정이 필요한 단점이 있다.

²³⁵U의 143.77 keV 감마선 피크를 이용한 ²²⁶Ra의 직접 측정결과를 “Method 1”에서와 동일한 방법으로 ²¹⁴Bi의 결과와 비교하여 Fig. 7에 나타내었다. 선형회귀분석 결과에서 보듯이 “Method 2”에서는 ²²⁶Ra에 대한 직접 측정방법과 간접 측정방법의 결과가 아주 잘 일치하여 우수한 선형성을 보였으나, 여전히 저농도로 갈수록 불확도의 영향이 ²²⁶Ra과 ²³⁵U에서 모두 크게 평가되었다. 또한 “Method 2”에서의 최소정량한계를 같은 방법으로 평가하였으며, 그 결과를 Fig. 8에 나타내었다. 그림에서 보듯이, y축이 0으로 수렴하는 값을 찾은 결과, ²³⁵U의 최소정량한계는 약 6.5 Bq/kg으로 ²²⁶Ra은 약 124.5 Bq/kg으로 결정되어 “Method 1” 보다 낮은 정량한계를 보였으며, 이는 “Method 1”에서 선정한 ²³⁵U의 205.32 keV 감마선보다 143.77 keV의 방출률이 높아 계수효율이 크기 때문으로 판단된다.

4.2 ²³⁴Th의 감마선 피크를 이용한 간섭피크 보정 방법

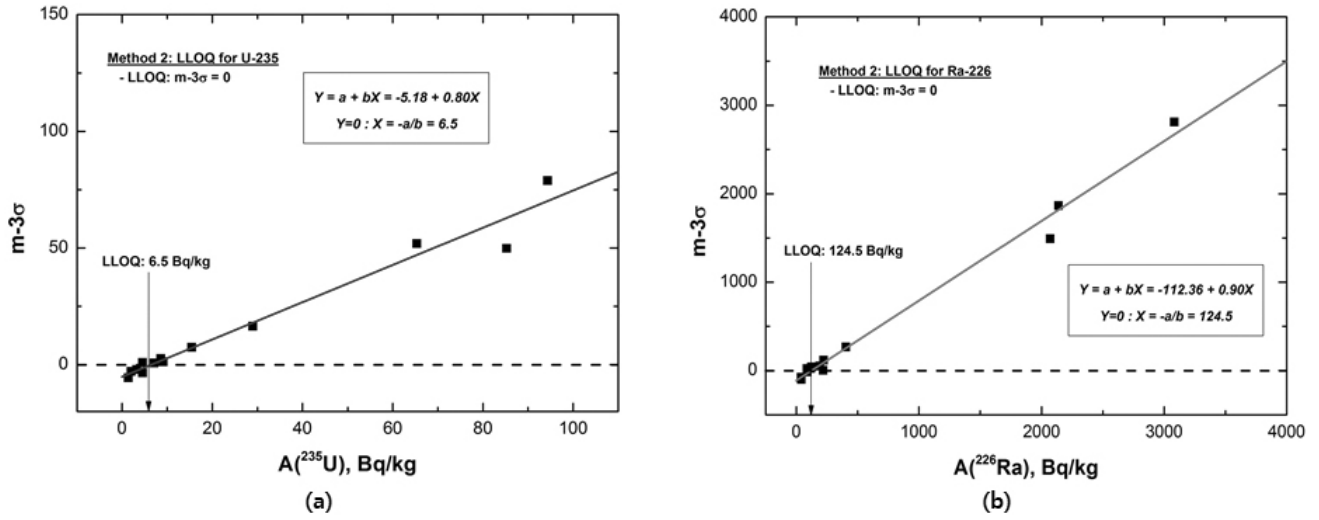


Fig. 8. LLOQ of the direct measurement of ^{235}U (a) and ^{226}Ra (b) in "Method 2".

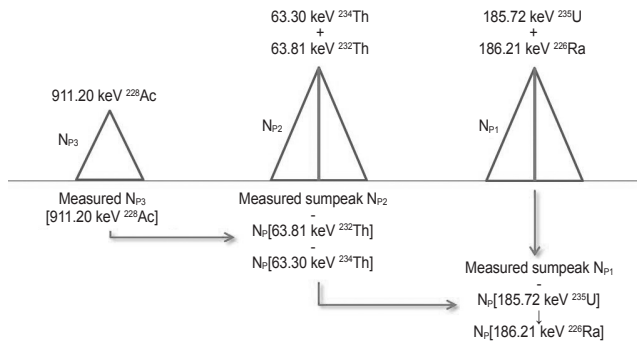


Fig. 9. Schematic diagram of "Method 3" for the interference correction on the 186 keV sumpeak.

4.2.1 Method 3

^{234}Th 으로부터 방출되는 63.30 keV 감마선 피크를 이용한 간섭피크 보정방법으로 ^{235}U 의 185.72 keV 감마선 피크 면적을 계산하는 절차인 "Method 3"을 Fig. 9에 나타내었다. 그림에서 보듯이, 약 64 keV에서 두 개의 피크가 혼합된 단일 피크가 존재하며, 이는 ^{234}Th 의 63.30 keV와 토륨계열의 모핵종인 ^{232}Th 의 63.81 keV 감마선이 해당된다. 따라서 ^{232}Th 의 피크 면적을 계산하기 위하여 참조피크로 해당 붕괴 계열의 딸핵종인 ^{228}Ac 에서 방출되는 감마선 피크를 선정하였다. 이를 위해서는 ^{232}Th 와 ^{228}Ac 가 방사평형관계에 있다는 또 한 번의 가정이 더 추가되어야 한다. 이때 참조피크 설정시, ^{228}Ac 의 여러 감마선 에너지들 중에서 천연방사성핵종으

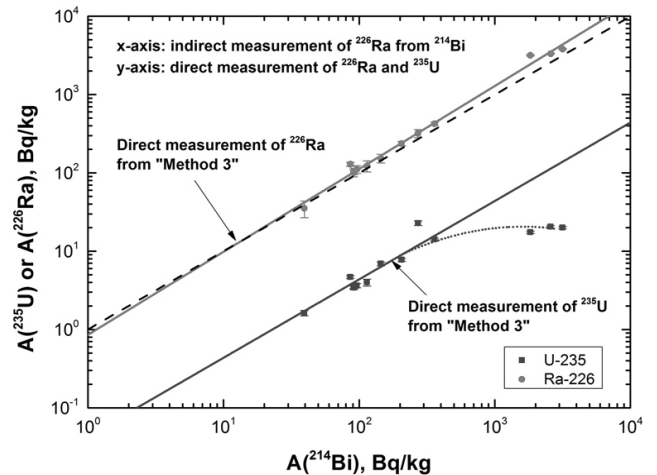


Fig. 10. Analysis results of ^{226}Ra from the direct measurement with an interference correction of "Method 3".

로부터 간섭이 없으며 방출률이 가장 높은 911.20 keV를 이용하는 것이 바람직하다.

Table 3에서 보듯이 ^{234}Th 의 경우, 63.30 keV뿐만 아니라 아주 작은 방출률로 62.88 keV 감마선이 존재하기 때문에 이에 대한 고려가 필요하며, 본 연구에서는 63.30 keV의 방출률을 두 감마선의 방출률의 합으로 계산하였다. 이는 두 감마선의 에너지 차가 거의 없어 효율이 같기 때문에 타당한 방법이라 판단된다. Fig. 10의 "Method 3"을 이용한 분석 결과에서 보듯이 본 연구에서 사용한 n-type HPGe 검출기의

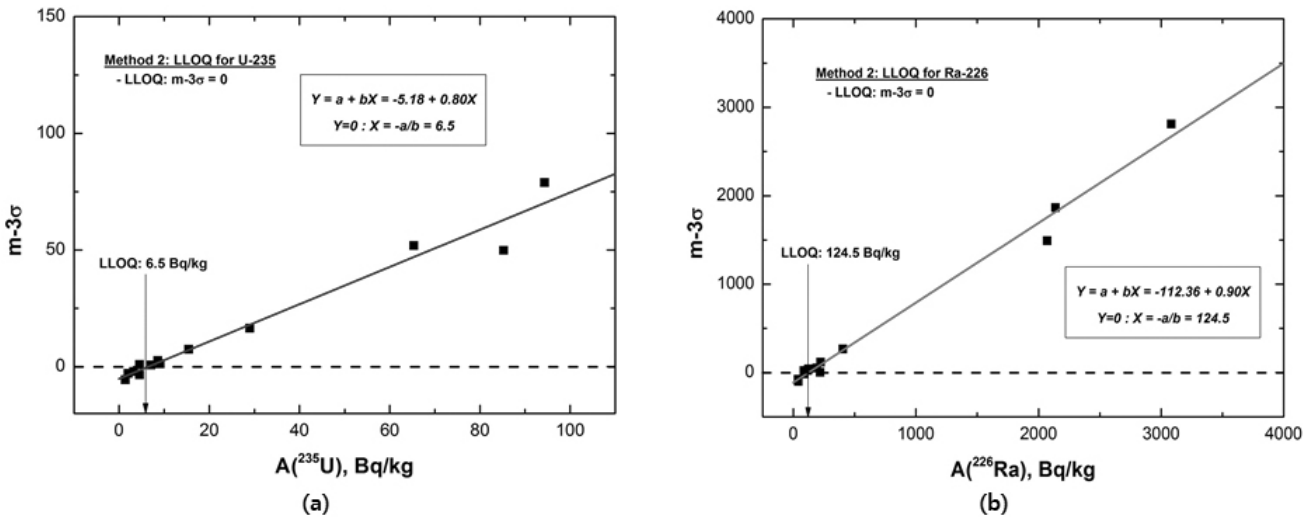


Fig. 11. LLOQ of the direct measurement of ²³⁵U (a) and ²²⁶Ra (b) in “Method 3”.

63.30 keV 감마선에 대한 우수한 계수효율 때문에 전체적으로 아주 낮은 불확도를 유지할 수 있었으며, 이는 앞선 두 방법에 비해 넓은 적용범위를 가짐을 의미한다. 그리고 ²²⁶Ra에 대한 직접 측정방법과 간접 측정방법의 결과 역시 대체적으로 일치하였지만 고농도로 갈수록 차이가 크게 발생하는 것을 알 수 있었다. 특히 약 1000 Bq/kg 이상에서는 “Method 3”을 이용한 직접법에서 ²²⁶Ra의 분석이 간접법에 비해 크게 과대평가되었으며, 이로 인해 ²³⁵U의 피크면적이 영향을 받아 방사능 값이 크게 감소된 것을 알 수 있다.

이 원인은 해당 시료들의 겉보기 밀도에서 비롯되었으며, 이 시료들은 표준선원과의 무게비가 2에서 3배정도 크게 차이가 남을 알 수 있었다. 즉, 저에너지인 63.30 keV 감마선은 밀도변화에 따라 감쇄되는 정도가 크므로, 밀도가 증가된 3 개의 시료들은 표준선원에 비해 더 많이 감쇄되어 피크면적이 크게 감소되었을 것으로 판단된다. 63.30 keV의 피크면적으로부터 ²³⁵U의 185.7 keV 감마선 피크 면적을 유추하기 때문에 ²³⁵U의 해당 피크 면적이 과소평가되었으며, 반대로 약 186 keV의 혼합피크에서 ²³⁵U를 차감한 결과가 ²²⁶Ra의 186.2 keV 감마선 피크 면적이므로 이는 과대평가된 결과를 얻게 되었음을 의미한다. 따라서 저농도에서 불확도를 낮게 유지할 수 있는 “Method 3”을 활용하고자 할 때에는 반드시 적절한 시료의 밀도 보정이 이루어져야 함을 알 수 있다.

“Method 3”에서의 최소정량한계를 같은 방법으로 평가하여, 그 결과를 Fig. 11에 나타내었다. 그림에서 보듯이, ²³⁵U의

최소정량한계는 약 0.4 Bq/kg으로 ²²⁶Ra은 약 44.2 Bq/kg으로 결정되어 앞선 두 방법보다 아주 낮은 최소정량한계를 보였다. 이는 본 연구에서 사용한 효율 약 45 %의 n-type HPGe 방사선 검출기일 때의 값이며, 효율이 낮거나 p-type을 사용할 경우에는 최소정량한계는 크게 증가할 것으로 판단된다.

5. 결론

감마분광분석을 이용하여 원료물질 및 공정부산물 시료 중, ²²⁶Ra의 직접 측정방법에 대한 적용성을 평가하였다. 이를 위해, 여러 가지 간섭피크 보정들에 의한 직접 측정방법들을 조사하여, 그 측정 불확도, 직선성 및 적용범위 등을 평가하였으며, 최종적으로 ²²⁶Ra의 간접 측정방법으로 ²¹⁴Pb 및 ²¹⁴Bi를 분석하여 직접 측정방법의 결과와 비교함으로써 최적의 직접 측정방법을 유도하였다. 먼저, ²³⁵U의 205.32 keV 감마선 피크를 참조피크로 이용하여 간섭피크를 보정하는 방법은 205.32 keV 감마선이 다른 천연방사성핵종과의 간섭 영향이 없어 비교적 간단히 계산된다는 장점을 가지지만 방출률이 낮기 때문에 저농도에서 ²³⁵U 및 ²²⁶Ra의 불확도가 크게 나타났다. 그리고 ²³⁵U 및 ²²⁶Ra의 최소정량한계가 10.9 Bq/kg 및 188.5 Bq/kg으로 높아, ²²⁶Ra을 분석하기 위한 직접 측정방법으로 적용하기에는 한계가 있는 것으로 판단되었다. ²³⁵U의 143.77 keV 감마선 피크를 이용하는 경우

에는 참조피크인 143.77 keV의 방출률과 감마분광시스템의 계수효율이 "Method 1"의 205.32 keV에 비해 크기 때문에 상대적으로 불확도를 줄일 수 있었다. 그러나 ^{235}U 및 ^{226}Ra 의 최소정량한계는 6.5 Bq/kg 및 124.5 Bq/kg으로 결정되어 아직 높은 수준이었으나, 고농도까지 선형성이 유지됨으로 해당 영역에서의 분석방법으로 적절할 것으로 판단되었다. 끝으로 ^{234}Th 의 감마선 피크를 이용하는 경우에는 n-type 검출기의 사용시, 63.30 keV의 높은 계수효율로 인해 불확도가 두 방법에 비해 현저히 낮게 유지됨으로써 ^{235}U 및 ^{226}Ra 의 최소정량한계가 0.4 Bq/kg 및 44.2 Bq/kg으로 낮게 유지되었다. 그리고 무엇보다도 ^{234}Th 63.30 keV의 피크면적이 계산되기 때문에, 이것으로부터 ^{238}U 의 방사능 분석이 가능하게 되는 장점이 있어, 감마분광분석을 이용한 천연방사성핵종의 분석에 가장 적합한 방법으로 판단되었다.

REFERENCES

- [1] UNSCEAR, "Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects", United nations scientific committee on the effects of atomic radiation, UNSCEAR 1982 report, New York(1982).
- [2] UNSCEAR, "Sources and Effects of Ionizing Radiation", United nations scientific committee on the effects of atomic radiation, UNSCEAR 1993 reports, New York(1993).
- [3] C.A. Papachristodoulou, P.A. Assimakopoulos, N.E. Patronis, and K.G. Ioannides, "Use of HPGe γ -ray spectrometry to assess the isotopic composition of uranium in soils", J. of Environ. Radioactivity, 64, pp. 195-203(2003).
- [4] F. De Corte, H. Umans, D. Vandenberghe, A. De wispe-laere, and P. Van den haute, "Direct gamma-spectrometric measurement of the ^{226}Ra 186.2 keV line for detecting $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ disequilibrium in determining the environmental dose rate for the luminescence dating of sediments", Appl. Radiat. Isot., 63, pp. 589-598(2005).
- [5] Huda Al-Sulaiti, N. Alkhomashi, N. Al-Dahan, M. Al-Dosari, D.A. Bradley, S. Bukhari, M. Matthews, P.H. Regan, and T. Santawamaitre, "Determination of the natural radioactivity in Qutarian building materials using high-resolution gamma-ray spectrometry", Nucl. Instr. Meth. in Physics Research A, 652, pp. 915-919(2011).
- [6] Huda Al-Sulaiti, Tabassum Nasir, K.S. Al Mugren, N. Alkhomashi, N. Al-Dahan, M. Al-Dosari, D.A Bradley, S. Bukhari, M. Matthews, P.H. Regan, T. Santawamaitre, D. Malain, A. Habib, "Determination of the natural radioactivity levels in north west of Dukhan, Qatar using high-resolution gamma-ray spectrometry", Appl. Radiat. Isot., 70, pp. 1344-1350(2012).