

<원저>

몬테카를로 시뮬레이션에서의 다양한 환경 샘플에 대한 Marinelli 비이커 측정 및 자기 흡수 보정과 적용

- Marinelli Beaker Measurement and Self Absorption Correction and Application for Various Environmental Samples in Monte Carlo Simulation -

¹⁾부산대학교 핵과학연구소·²⁾전북대학교병원 방사선종양학과
³⁾전북대학교 의과대학 방사선종양학과·⁴⁾전북대학교병원 의생명연구소

장은성¹⁾·김양수²⁾·이선영^{3,4)}

— 국문초록 —

검출기의 구조를 PENELOPE의 코드를 사용하여 전산모사 하였다. 표준혼합시료(450, 1,000 ml)를 사용하여 다양한 밀도와 높이에 따른 저에너지(59.54 keV)부터 고 에너지(1,836.05)에 대한 측정효율과 PENELOPE 전산모사에서 구한 효율을 비교하였으며, 또한 자체흡수에 대한 효율을 보정하여 다양한 환경시료에 적용하여 검출하한치를 알아보고자 한다. 표준혼합시료의 전체에너지 피크효율 값을 적용하여 높이에 따른 효율변화를 측정치와 PENELOPE의 전산모사 값과 비교하였다. 여기서 구한 값들을 자체흡수 보정하여 구한 효율을 실제 환경시료에 적용하여 검출하한치 값들을 구하였다. 밀도보정인자는 밀도가 0.4 g/cm³에서 241Am(59.54 keV)의 밀도보정인자는 1.15, PENELOPE 전산모사에서는 1.153, 137CS(661.66 keV)에서는 1.06 g/cm³, PENELOPE 전산모사에서는 1.064, 88Y(1,836.04 keV)에 대한 밀도보정인자는 1.03, PENELOPE 전산모사에서는 1.033으로 불확도는 1% 이내에서 잘 일치함을 확인하였다. 환경 시료의 밀도에 따른 방사능 농도는 시료량이 많을수록, 측정시간이 증가할수록 MDA(Minimum Detectable Activity) 값이 감소함을 확인할 수 있었다.

중심 단어: 자체흡수보정, 몬테카를로 시뮬레이션, 고순도 게르마늄검출기, 환경시료, 최소검출방사능

1. 서 론

감마선 분광분석법은 환경 시료에서 자연 및 인공 방사성 핵종의 농도를 결정하는 데 가장 널리 사용되는 절차 중 하나입니다. 환경 시료의 방사능농도를 측정하기 위해서는 알려진 표준 source를 사용하여 얻은 시스템 검출 효율을 알아야 한다. 교정 표준 source는 분석 될 샘플과 비슷한 물리적 치수, 화학 조성 및 밀도를 가져야 측정 농도의 편차가 최소화 된다. 반대로, 샘플 자체 내의 광자 감쇠는 측정 시

료 및 교정 source에 대해 매우 다를 수 있습니다. 이러한 이유로 감마선 분광분석법에서 필요한 자기 흡수 보정을 평가하기 위한 몇 가지 절차가 개발 되었다. 특히 교정용 표준 시료의 밀도는 1 g/cm³로 일정하나 환경시료는 0.4 g/cm³부터 1.4 g/cm³까지 다양한 범위의 밀도를 가진 환경시료에 적용하기 Sanchez, F은 Petri vial과 Marinelli beaker에서 Monte Carlo 계산을 이용하여 자체흡수 효과를 계산하였고, Debertain K 과 Dryak, P는 Marinelli beaker에서의 자체흡수 효과를 연구하였다[1-3]. 따라서 많은 연구자들은

Corresponding author: SUN-YOUNG LEE, Department of Radiation Oncology, Institute for Medical Sciences, Chonbuk National University Medical School, 20, Geonji-ro, Deokjin-gu, Jeonju-si, Jeollabuk-do, 54907, Korea / Tel: +82-10-6455-5101 / E-mail: sylee78@jbnu.ac.kr

Received 03 November 2017; Revised 18 December 2017; Accepted 26 December 2017

Monte Carlo 시뮬레이션이나 한정된 수의 밀도가 다른 표준시료를 이용하여 자체흡수보정 값을 구한 후 이를 외삽해서 밀도 차이에 대한 효율을 보정하였다[4-5].

현재 감마방사능 분석에 사용하는 방법은 밀도 1.0 g/cm³인 표준시료를 이용하여 얻은 효율 값을 다양한 밀도를 갖는 환경시료에 그대로 적용하고 있다.

본 연구에서는 실제 검출기의 구조를 PENetration and Energy Loss of positrons and Electrons; PENELOPE의 코드를 사용하여 전산 모사하였다[5]. 표준혼합시료(450, 1,000 ml)를 사용하여 다양한 밀도와 높이에 따른 각각의 에너지에 대한 측정효율과 PENELOPE 전산모사에서 구한 효율을 비교하였으며, 또한 자체흡수에 대한 효율을 보정하여 다양한 환경시료에 적용하여 검출하한치를 알아보려고 한다.

II. 대상 및 방법

1. 연구대상

HPGe 검출기는 Marinelli beaker(450 ml) 표준선원을 이용하여 측정하였고, 검출기와 측정용기의 기하학적 배치는 Fig. 1과 같다. 표준선원의 매질은 한천(agar)이며, 밀도는 1.0 g/cm³이다. 실험 및 Simulation에 사용한 검출기는 EG&G ORTEC사의 동축형 HPGe 검출기(GEM 30185)이다 [Fig. 1].

⁶⁰Co의 1,332 keV 감마선의 에너지 분해능은 1.78 keV, 상대효율은 30%, Peak-to-Compton 비는 58:1을 가진다. 또한 HPGe 검출기는 영인과학(분석기기, 서울, 한국)에서 교정하였다.

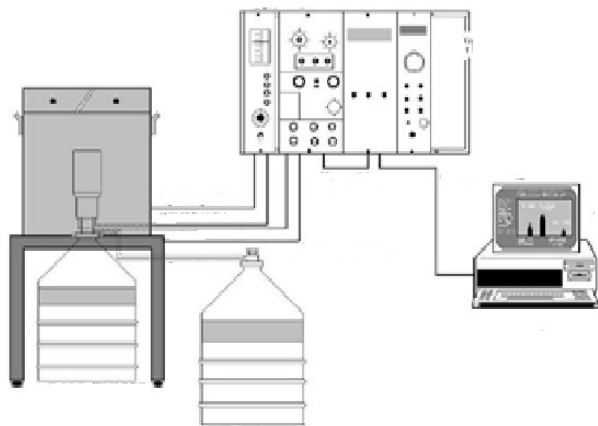


Fig. 1 High Purity Germanium (HPGe) Gamma-ray Spectroscopy System

2. 연구방법

1) PENELOPE of Simulation

PENELOPE란 "PENetration and Energy Loss of positrons and Electrons"에서 파생되었다. PENELOPE의 알고리즘은 100 eV~1 GeV 사이의 에너지를 가진 전자와 양전자에 적용 가능한 산란 및 충돌 단면적 데이터베이스와 상호작용 모델을 채용하고 있다^[6].

PENELOPE는 측면변위와 경계면 통과과정을 유효 적절히 처리하여 에너지요동에 일과성이 있다. PENELOPE는 Monte Carlo 방법에 따라 검출기의 특성을 전산모사 하도록 구성되어 있는데, Monte Carlo 방법이란 시뮬레이션 technic의 일종으로 많은 수의 실험을 바탕으로 통계 자료를 얻어 그 자료로부터 역산하여 어떤 특정한 수치나 확률분포를 구하는 방법이다^[6]. 통계자료가 많을수록, 입력 값의 분포가 고를수록 결과의 정밀성이 보장되는 특성이 있다. 검출기 구조는 크리스털의 길이, 직경 및 깊이 등 다양한 기하학적 구성요소들^[7]. 제조사에서 제공한 데이터 값(Table 1)들을 시뮬레이션에 적용하였다 [Fig. 2].

Table 1 Detector dimensions as specified by the manufacturer, measurement and as optimised by Monte Carlo simulations

Miscellaneous Detector Assembly Dimensions		
Detector parameter	Dimension	Optimised
Detector length	94 mm	108 mm
Detector diameter	56 mm	56 mm
Detector radius	8 mm	8 mm
Hole diameter	9.1 mm	9 mm
Hole depth	60.4 mm	60.4 mm
End cap window	1.3 mm	2 mm
Mount cup base	3.2 mm	3.2 mm
Insulator/shield	0.03/ 0.03 mm	0.03/0.03 mm

Note: PENELOPE: PENetration and Energy Loss of Positrons and Electrons



(a) 450 ml CRM source

(b) 1,000 ml CRM source

Fig. 2 Schematic diagram of 450 ml, 1,000 ml Marinelli beakers used for the simulation

2) 표준혼합선원의 전체에너지 피크효율 비교

감마선원의 부피에 의한 기하학적 효과와 선원과 주변 물질에 의한 감쇠효과를 반영하여 한국표준과학연구원서 제작 및 인증한 표준부피선원(CRM)을 측정된 효율과 PENELOPE를 이용하여 계산한 효율값을 비교하였다. 표준부피선원의 정보는 Table 2에 나타내었다.

Table 2 Information of the voluminous certified reference material (450 ml, 1,000 ml CRM) γ -ray sources

Nuclides	Photon energy(keV)
241Am	59.54
109Cd	88.03
57Co	122.06
	136.47
139Ce	165.85
113Sn	391.69
85Sr	514.01
137Cs	661.66
88Y	898.04
60Co	1,173.24
	1,332.49
88Y	1,836.05

3) 높이 변화에 따른 효율

표준부피선원을 1 cm 간격으로 변화를 주어 5 cm 측정하여 PENELOPE와 비교하였다[Fig. 3]. 측정 표준 P_j (높이 H_j 및 질량 m_j 를 가짐)의 방출 E_i 에 대한 카운트 D_{ij} 는 식(1)로 나타낸다.

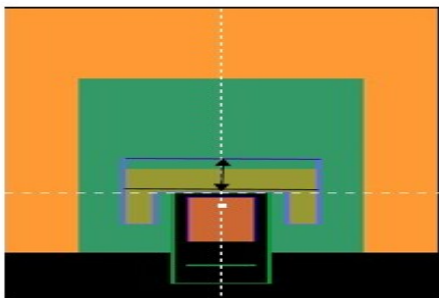


Fig. 3 450 CRM source with different height

$$D_{ij} = \epsilon_{ij} \cdot a_{\pi} \cdot m_j \cdot Y_i \cdot t_j \tag{1}$$

에너지 및 시료높이의 효율은 식(2) 같다[7-10].

$$\epsilon = \frac{D_{ij}}{a_{\pi} \cdot m_j \cdot Y_i \cdot t_j} \tag{2}$$

따라서 측정된 피크 면적 D_{ij} (높이를 이용한 시료 측정의 에너지)과 알려진 나머지 매개 변수를 사용하여 효율 값 ϵ_{ij} 을 결정할 수 있다.

4) 자체흡수 보정 및 효율 비교

채취한 시료와 밀도 1.0 g/cm^3 인 표준부피선원을 이용하여 효율을 측정한다. 밀도가 보정된 효율($\epsilon_0 (\rho = x, E)$)값을 구하면 식(3)과 같이 표현된다[11].

$$\epsilon_{sa}(\rho = x, E) \approx R(\rho = 1, E) \times \epsilon_0(\rho = x, E) \tag{3}$$

여기서 sa 는 자체흡수(self-absorption)를 나타내고 있다. 식(3)을 이용하여 다양한 밀도를 갖는 환경시료에 적용하였다.

5) 시료의 전처리

원전부지 주변에서 채취한 시료 토양, 쌀, 솔잎, 무, 배추는 그늘진 곳에서 바람에 말린다. 육상시료(토양)는 축적 경향, 지표생물(솔잎), 농산물시료(무, 배추)는 내부피복의 대상이기 때문에 시료를 선별적으로 택하였다. 바람에 말리면서 불순물 등과 같은 이물질들을 제거한다. 건조 중에 덩어리가 된 부분은 잘게 부수고, 건조 후 2 mm 이상의 이물질들을 제거한다. 체로 거른 시료의 무게를 재고 측정용 Marinelli beaker에 충전 한 다음 측정시료의 무게를 재었다[13]. 각각의 시료마다 밀도 0.4 g/cm^3 에서 1.6 g/cm^3 까지 나타냈다. 또한 전 처리의 목적은 원 시료가 갖고 있는 방사성핵종의 손실 없이, 균질하게 농축하여 원 시료의 부피를 줄이는 것이다.

6) MDA 계산 및 측정

최소검출방사능(Minimum Detectable Activity; MDA)는 시료의 양과 효율 및 측정시간에 의존하는 양이다[12]. Currei[13] 논문의 통계적 고찰을 통한 검출한계를 이용하여 유도하였고, 95%의 신뢰수준에서 식(4)을 통해 MDA를 구했다.

$$MDA = \frac{\frac{2.71}{t_s} + 4.65 \frac{\sqrt{BGC}}{t_B}}{E \cdot Y \cdot S} \tag{4}$$

여기서 BGC 백그라운드 계수치, t_s 는 시료 계측시간, t_b 는 백그라운드 계측시간, E 는 백그라운드 계수율, Y 는 화학수율, S 는 보정인자로 시료량과 측정중 반감기를 보정하는 인자이다.

그러므로 전 처리한 각각의 시료를 80,000 sec, 100,000 sec 측정하였다.

환경시료에 대한 각 에너지 중에서 100 keV 이상 1,400 keV이하에 해당하는 경우 효율교정은 식(5)을 이용하여 구할 수 있다.

$$\begin{aligned} \epsilon_p^*(E, H) & \quad 1 \leq H[cm] \leq 5 & \text{식(5)} \\ 122 \leq E[keV] \leq 1332, \\ E \neq 662 keV \\ \epsilon(E, H) & = \epsilon^{Cs}(H) \\ E & = 662 keV \end{aligned}$$

III. 결 과

1. 표준혼합선원의 전체에너지 피크효율 비교

환경방사능 측정에 적합한 저에너지 50 keV 부터 고에너지 2,000 keV 까지 해당하는 표준부피선원 450 ml, 1,000 ml CRM의 측정치와 PENELOPE의 계산치를 비교 한 결과, 전체에너지 피크 효율에 대한 불확도는 전반적으로 3% 이내에서 잘 일치하였음을 확인하였다[Fig. 4].

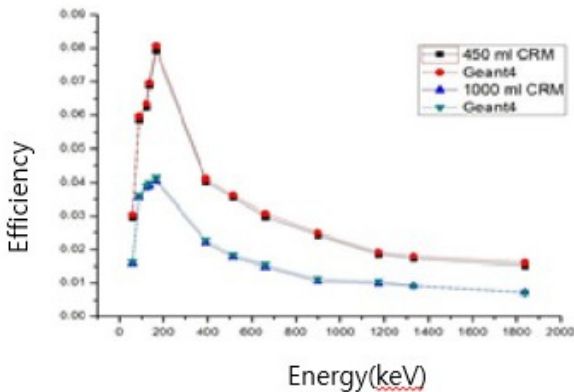


Fig. 4 Comparison between the measurement and simulation efficiencies for the 450 ml CRM source

2. 높이 변화에 따른 효율

표준부피선원을 1 cm 간격으로 변화를 주어 측정 및 PENELOPE와 비교한 결과 불확도는 3% 이내에서 잘 일치하였음을 확인하였다[Fig. 5].

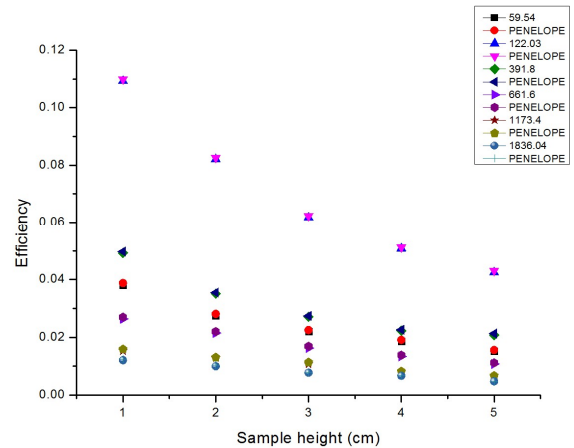


Fig. 5 Comparison between measurement and simulation in 450 ml CRM source and Changes of efficiency with density

3. 자체흡수 보정 및 효율 비교

교정용 표준 부피 선원의 기준인 밀도 1 g/cm³와 비교하였을 때 밀도변화에 따른 저에너지 영역에서 효율뿐만 아니라 고에너지 영역까지 불확도는 범위 3%이내 이었기에 아주 잘 일치함을 확인하였다. 이를 이용하여 밀도보정인자는 밀도 1 g/cm³에 대한 효율의 비로 나타낼 수 있으며, 0.85~1.5 값을 가진다. 밀도가 0.4 g/cm³에서 ²⁴¹Am(59.54 keV)에 대한 밀도보정인자는 1.15, PENELOPE 전산모사에서는 1.153, ¹³⁷Cs(661.66 keV)에서는 1.06 g/cm³, PENELOPE 전산모사에서는 1.064, ⁸⁸Y(1,836.04 keV)에 대한 밀도보정인자는 1.03, PENELOPE 전산모사에서는 1.033으로 불확도는 1% 이내에서 잘 일치함을 확인하였다[Fig. 6].

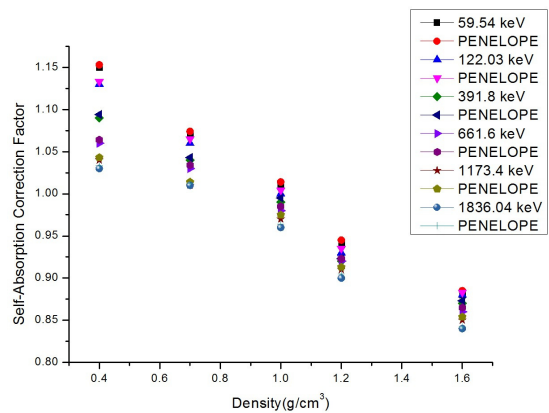


Fig. 6 Comparison between measurement and simulation in 450 ml CRM source and Changes of efficiency with sample height

4. MDA 측정

환경시료에 대한 감마동위원소 분석결과 토양에서 검출된 ¹³⁷Cs의 MDA < 0.425 ~ 1.21 Bq/kg-dry 의 범위로 검출되었다. 또한 토양에서 가장 많은 방사능을 차지하는 자연방사성 핵종인 ⁴⁰K이 351~589 Bq/kg-dry로 검출되었다.

지표생물인 솔잎에서 ¹³⁷Cs의 MDA < 0.0512, ⁹⁰Sr에서 MDA < 0.0117, ¹³¹I MDA는 < 0.0312로 나타났다. 농산물인 쌀 ¹³⁷Cs의 MDA < 0.0395 Bq/kg-fresh, ⁹⁰Sr에서 MDA < 0.00210 Bq/kg-fresh, 무에서 ¹³⁷Cs의 MDA < 0.008421 Bq/kg-fresh, ⁹⁰Sr에서 MDA < 0.00294 Bq/kg-fresh, 배추에서 ¹³⁷Cs의 MDA < 0.00723 Bq/kg-fresh, ⁹⁰Sr에서 MDA < 0.00129 Bq/kg-fresh로 모든 환경시료에 대해서 검출하한치 미만으로 나타났다. 또한, 환경 시료의 밀도에 따른 에너지 스펙트럼을 나타내었다[Fig. 7].

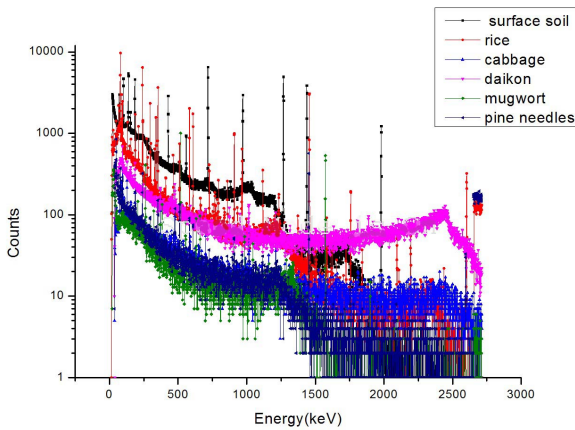


Fig. 7 Measured γ -ray energy spectrum environmental samples are compared with 80,000 sec.

VI. 고찰

Monte Carlo 방법에 의한 전산모사를 통하여 정확한 효율을 계산하기 위해서는 HPGe 검출기의 정확한 기하학적인 모양을 파악해야 한다. 본 연구에서는 제조사에서 제공한 데이터 값들을 시뮬레이션에 적용하였다. 적용결과 HPGe 구조와 전산모사의 구조는 Ge 불감층이었다. 이 결과는 스캐닝 방법을 이용하여 검출기의 유감 체적을 결정한 연구자들[16-18]도 이와 유사한 결과를 얻었다. 또한 다른 연구자들의 결과를 참고하여 표준부피선원 측정에 의한 측정치와 Monte Carlo 계산치를 비교하여 결정하였다. 측정 시료의 기하학적인 모양에 의하여 효율을 측정하고, 그 결과를 Monte Carlo 계산의 타당성을 확인하였다.

구조의 일치성을 기준으로 결과 값에서 알 수 있듯이 측정치와 PENELOPE 시뮬레이션 각각의 시료에 대한 효율 및 불확도는 3% 이내에서 잘 일치함을 확인하였다. 측정시료의 밀도에 따른 자체흡수 효과에 의하여 측정효율이 달라진다. 이러한 밀도 및 높이 차이에 따른 효율의 변화 정도를 조사하였다. 환경시료는 시료의 밀도뿐만 아니라 화학적 성분일 달라짐으로써 측정효율이 달라질 수 있다. 그러나 동일한 밀도 시료의 경우 화학적 성분의 차이로 인한 효율 변화는 무시할 수 있다고 보고되었다[18].

실제 방사능 분석에서 가장 어려운 한계 중의 하나는 실험실에서 사용하는 측정용기(20, 50, 80, 450, 1,000, 2,000)에 대하여 표준부피선원 및 환경시료를 이용하여 에너지 및 효율 교정을 해야 하기 때문에 시간이 많이 소요된다. 각각의 환경시료에 대하여 전처리 후 폐기물의 발생 등으로 인하여 많은 문제점이 있다.

그리고 환경시료 측정 시 MDA 값들을 얼마만큼 줄일 수 있는지에 대한 한계가 발생함을 알 수 있다.

V. 결론

자체 흡수 보정은 토양 시료와 다양한 밀도 (0.4 g/cm³ ~ 1.6 g/cm³)에 대한 정확한 방사능 분석을 보장하고 효율 교정을 위한 표준혼합소스를 확보하는 데 중요합니다.

그러므로 자체 보정한 효율의 데이터를 활용하여 표준혼합시료인 작은 크기(20 ml, 40 ml)부터 아주 큰 크기(2,000 ml, 3,000 ml) 까지 적용할 뿐만 아니라, 다양한 크기의 검출기효율에도 적용할 수 있음을 확인하였다. 또한 표준혼합시료에서 구한 자체보정효율을 다양한 환경시료에 분석결과 시료가 높이 올라 갈수록 즉, 시료량이 많을수록 효율이 감소함을 확인하였다. 또한, 시료량이 많을수록, 측정시간이 증가할수록 MDA 값이 감소함을 확인할 수 있었다.

REFERENCES

[1] Kitto, M. E. Determination of photon self-absorption correction for soil samples. *Apply. Radiation Isotope*, 1991;42(9):835-839.
 [2] Hasan, M. A simplified technique to determine the self-absorption correction for dediment samples. *Apply. Radiation Isotope*, 2002;57:915-918
 [3] Dryak, P. Corrections for the Marinelli geometry.

- Radiation Nuclear Chemistry, 1989;135(4):281-292.
- [4] Sanchez .F, Navarro, E, J, Ferrero, L, Moreno, A, Roldan, C, Baeza, A and Paniagua, J. A Monte Carlo based method of including gamma self-absorption for the analysis of environmental samples. Nuclear Instruments and Methods, 1991;B61:535-540.
- [5] Debertain K and Jianping, R. Measurement of the activity of radioactive samples in Marinelli beakers. Nuclear Instruments and Methods, 1989;A278:541-549.
- [6] Bar'ó Juie, J. Sempau, Ja .Mack, Fern'andez-Varea and F. Salvat. PENELOPE: an algorithm for Monte Carlo simulation of the penetration and energy loss of electrons and positrons in matter. Nuclear, Instrument, Methods, 1995;B 100:31-46.
- [7] Jang, Eun, Sung, Chang, Bo, Seok, A Germanium Detector Structure PENELOPE Characteristic Analysis by Computer Simulation, Jour of Korea Society of Radiology, 2015;2:73-77.
- [8] Wainio, K, M and Knoll, G, F. Calculated gamma ray response characteristics of semiconductor detectors. Nuclear Instruments and Methods, 1966;44:213-223.
- [9] B. Lal and K, V, K, lyengar, Monte Carlo calculations of gamma ray response characteristics of cylindrical Ge(li) detectors. Nuclear Instruments and Methods, 1970;79:19-28.
- [10] Gaggero, G. Monte Carlo calculations for the photo fractions and energy loss spectra of Ge(li) semiconductor detectors. Nuclear Instruments and Methods, 1971;94:481-492.
- [11] Meixner, Ch. A Monte Carlo program for the calculation of gamma-ray spectra for germanium detectors. Nuclear Instruments and Methods, 1974;119:521-526.
- [12] Nakamura, T. Monte Carlo calculation of reak efficiencies and response functions of coaxial-type Ge(li) detectors for disk gamma-ray sources. Nuclear Instruments and Methods, 1975;131:521-527.
- [13] Moss, C, E, Moss and Street man, J, R. Comparison of calculated and measured response functions for germanium detectors. Nuclear Instruments and Methods, 1990;A299:98-101
- [14] Abbas, M,I. HPGe detector photo-peak efficiency calculation including self-absorption and coincidence corrections for Marinelli beaker sources using compact analytical expressions. Applied Radiation Isotope, 2001;54:761-768.
- [15] Saegusa, Jun, Katsuya Kawasaki, Akira Mihara, Mitsuo Ito, Makoto Yoshida, Determination of detection efficiency curves of HPGe detectors on radioactivity measurement of volume samples. Applied Radiation and Isotopes, 2004;61:1383.
- [16] Debertain K, and Grosswendt B. Efficiency calibration of semiconductor detectors by primary standard sources and Monte Carlo calculations. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1982;203:343-353
- [17] Nakamura T, uzuki T, Monte Carlo calculation of peak efficiencies of Ge(Li) and pure Ge detectors to voluminal sources and comparison with environmental radioactivity measurement. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1983;205:211-218
- [18] Birattari C, Salomone A. Please edit your search query to find results. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1900;174:391

•Abstract

Marinelli Beaker Measurement and Self Absorption Correction and Application for Various Environmental Samples in Monte Carlo Simulation

Eun-Sung Jang¹⁾·Yang-Soo Gim²⁾·Sun-Young Lee^{3,4)}

¹⁾*Dept. of Nuclear physics and Radiation Technology Research Center, Pusan National University*

²⁾*Dept. of Radiation Oncology, Chonbuk National University Hospital*

³⁾*Department of Radiation Oncology, Institute for Medical Sciences, Chonbuk National University Medical School*

⁴⁾*Institute of Clinical Medicine, Chonbuk National University-Biomedical Research Institute, Chonbuk National University Hospital*

The structure of the actual detector was computed using the code of the PENELOPE. Using the standard mixed sources (450, 1,000 ml), compare the effectiveness of each energy according to various densities and height of the PENELOPE computer simulation, and calculate the effectiveness of the various environmental specimens and apply them to various environmental specimens to determine the lower limit. The values obtained by the obtained value were obtained by applying the obtained efficiency to the actual environmental specimens and obtaining the lower limit values. The density correction factor is 1.155 g of the density correction factor of 0.4 g/cm³ (59.54 keV), 1.153 (661 keV), 1.06 g/cm³ 1.064 (1,836.04 keV), 1.03, and 1.033. It was confirmed that the radioactivity concentration of environmental samples decreased as the amount of specimen was measured increases, and the MDA value decreased as time measured increases.

Key Words : Self-absorption correction, PENELOPE, HPGe detector, environmental samples, Minimum Detector Activity(MDA)