2003 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

중성자 방사화분석을 위한 원통형 시료에 대한 계측효율의 보정

The Correction of Counting Efficiency on Cylindrical Samples for Neutron Activation Analysis

문종화, 김선하, 백성열, 정용삼, 김영진
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

감마선 방출 표준점선원과 시료의 매질 및 기하학적 형태의 차이는 방사능 측정시의 주요한 계통오차중의 하나로서 직접법에 의한 중성자 방사화분석시의 정확한 분석를 위하여 보정이 필수적이다. 본 연구에서는 실제 시료에 대한 감마선 감쇄율의 측정과 Eu-152 용액을 사용한 간편한 보정법을 확립하고자 하였다. 이의 타당성을 검증하기 위하여, 물 매질에서의 실험 결과값과 SOLANG의 계산값을 비교한 결과, 측정 불확도의 범위내에서 일치하였다. 또한 원통형의 두 가지 다른 기하학적 형태의 NIST SRM 2711, Montana Soil 시료를 분석하여 결과값을 평가하였다.

Abstract

The difference between standard point source emitting gamma-rays and the matrix as well as the geometry of sample is one of the systematic errors in neutron activation analysis using absolute quantitative method and additional correction is indispensible for accurate analysis. This study is to establish methodology for simple correction by the evaluation of gamma-ray attenuation ratio in practical sample and by solution of Eu-152. To validate this method, the results between experimental values in water matrix and calculated value by SOLANG program are compared and coincided within the measurement uncertainty. In addition, NIST SRM 2711, Montana Soil with two different geometry are analyzed and the results are evaluated.

1. 서 론

중성자 방사화분석법에 의한 시료중의 성분원소의 정량은 주로 비교법에 의하여 손쉽게

이루어질 수 있다. 그러나 이 방법은 시료의 매질과 유사한 보증값이 있는 표준물질이 필수적으로 사용되어야 하는 단점 때문에 최근에는 k_0 정량법이 전 세계적으로 널리 수용되고 있으며, 특히 이 방법은 카드뮴비가 작은 조사공을 사용하는 경우에는 열외 중성자에 의한 계통적 오차요인을 줄이는 데 효과적이다[1]. 현재 한국원자력연구소의 방사화분석 실험실에서 사용하고 있는 중성자 조사공인 NAA #1의 Au-198 핵종에 대한 카드뮴비는 80 정도로서 열외중성자에 의한 분석시의 간섭이 적으므로 절대분석법의 적용이 용이하다. 그러나 절대분석법의 정확도를 향상시키기 위해서는 시료 조사시의 열 중성자속, 사용한 반응 단면적, 계측효율 등과 같은 주요한 계통적 오차요인을 제거 또는 감소시켜야만 한다.

본 연구에서는 측정시료의 매질 및 기하학적 형태의 차이에 따른 계측효율의 보정[2]을 위하여 실험적인 방법론을 확립하고자 하였다. 즉 시료매질에 따른 감마선 감쇄율을 실험적으로 측정하여 총질량감쇄계수를 계산할 수 있는 XCOM 프로그램[3]의 계산결과와 비교하였다. 또한 매질과 기하학적 형태의 변화에 따른 보정법의 확립을 위하여 실험적으로 측정된 계측효율의 보정값과 L. Moens에 의하여 고안된 SOLANG 프로그램[4]의 계산결과와 비교하였으며 최종적으로 NIST의 표준시료에 대한 절대분석에 적용하여 보았다.

2. 실 험 및 계 산

2.1 감쇄율의 측정 및 계산

감마선 에너지와 시료두께에 따른 감쇄율의 측정을 위하여 총질량감쇄계수가 잘 알려진 물과 주성분 원소에 대한 보증값이 있는 NIST SRM 2711, Montana Soil을 선택하였다. 감쇄율의 측정을 위하여 직경 4 cm의 pyrex beaker에 1 cm 높이로 채워 시료를 준비하였다. 감마선의 측정은 Isotope Product Laboratory 사의 표준선원(ML 7500 series)과 EG & G ORTEC 사의 GEM35185 동축형 검출기를 사용하였다. 표준선원은 검출기 Cap의 상단으로부터 13.7 cm 떨어진 지점에서 40,000 초 동안 3회 반복측정하였다. 또한 시료의 주 매질에 대한 함량비를 입력하여 XCOM 프로그램에 의하여 coherent scattering이 제외된 총질량감쇄계수를 계산한 후 시료의 비중을 고려한 선형감쇄계수를 산출하고 이를 바탕으로 감쇄율을 이론적으로 계산하였다. NIST SRM 2711, Montana Soil의 밀도는 약 0.65로 측정되었다.

2.2 계측효율 보정 실험 및 SOLANG 계산

시료매질의 두께에 따른 감마선의 감쇄효과와 기하학적 형태에 따른 계측효율의 보정을 위한 측정은 실험적 편이성을 위하여 시료의 매질을 물로 선택하였다. 또한 감마선원은 10 mg/mL의 농도를 갖는 NIST의 Eu 표준용액을 NAA #1 조사공에 100 초동안 조사하여 준비하였다. 조사된 용액은 약 9.3 시간의 반감기를 갖는 Eu-152m의 간섭을 제거하기 위하여 2주 이상을 냉각시킨 후 사용하였다. 현재 본 실험실에서 사용되는 원통형의 시료용 내부 캡슐은 5종으로서 이들 중 D 형태의 캡슐(내경 6.2 mm, 높이 15.7 mm)의 기하학적 형태에 대한 계측효율의 감소를 실험적으로 측정하였다. 즉 자동피펫으로 조사

된 Eu 용액 한방울을 D 캡슐의 바닥에 떨어뜨린 후 감쇄율의 측정실험과 동일한 측정위치에서 4,000 초 동안 계측한 후 동일한 캡슐을 증류수로 채워 동일한 위치에서 재 측정하였다. 채워진 증류수의 무게를 측정한 결과, 매질(물)의 두께는 14 mm로 계산되었다.

SOLANG 프로그램은 시료의 매질과 형태에 따른 유효 입체각의 변화를 계산하기 위한 것으로서 3% 정도의 범위에서 실험결과와 일치한다고 보고되어 있다[4]. 이의 계산을 위하여 제조자에게 의뢰하여 입수한 정확한 검출기의 사양과 실험적 측정조건과 동일한 계산 조건을 입력하였다. 계측효율의 보정값은 기준조건에서 계산된 유효 입체각과 물 매질 두께 14 mm인 실제시료에서의 계산된 값의 차이에 해당한다.

2.3 표준물질의 분석 및 계측효율 보정법

계측효율의 보정법에 대한 실제시료에 대한 적용을 위하여 중성자 방사화분석용 내부 캡슐인 B 형태(내경 6.2 mm, 높이 7.4 mm)와 D 형태(내경 6.2 mm, 높이 15.7 mm)를 선택하여 NIST SRM 2711, Montana Soil의 시료를 채운 후 NAA-#1 조사공에 10분간 조사하였다. 시료의 무게로부터 시료 밀도와 캡슐의 규격을 고려한 각 시료의 실제두께는 약 6 mm, 14 mm로 산출되었다. 래빗내의 조사위치에 따른 중성자속의 변동을 보정하기 위하여 시료의 위치에서 Au-wire를 동시에 조사하였다. 조사된 시료는 적정한 시간동안 냉각시킨 후 윗 실험들과 동일한 검출기와 측정위치에서 계측하였다. 측정된 스펙트럼과 중성자 방사화분석용 계산프로그램을 이용하여 100 1600 keV의 에너지 범위에 있는 목적핵종을 선택하여 원소의 함량을 결정하였다. 또한 각각의 감마선 에너지 대한 실험적인 계측효율의 보정은 아래과 같은 절차에 의하여 수행하여 보정법의 유효성을 검토하였다.

1) 감마선원을 사용하여 실험적으로 실제시료의 두께에 대한 선형감쇄계수를 구하고 시료두께에 대한 각 감마선 에너지에 대한 감쇄율은 수식(1)을 사용하여 계산한다.

$$\text{감쇄율} = [1 - \mathrm{Exp}(-\mu_{lin} \cdot t)]/(\mu_{lin} \cdot t) \quad \text{----------} \quad (1)$$

여기서 μ_{lin} 는 선형감쇄계수(cm^{-1}), t 는 시료의 두께(cm)를 나타낸다.

2) Eu-152 용액을 사용하여 기준조건과 실제시료의 조건에서 측정된 감쇄율에 대하여 지수함수로 fitting하여 각 감마선 에너지에 따른 보정계수를 구한다.
3) 2)에서 계산된 값에서 XCOM 프로그램을 사용하여 계산된 물의 감쇄인자에 의한 부분을 감하여 시료 Geometry의 변화만에 따른 계측효율값과 보정계수를 계산한다.
4) 실제시료에서는 구해진 선형감쇄계수를 사용하여 시료두께에 대한 각 감마선 에너지에 대한 감쇄율을 아래의 수식을 사용하여 계산한다.
5) 수식(1)에 의하여 계산된 감쇄율의 역수와 Geometry의 보정계수를 합하여 각 감마선 에너지별로 보정한다.

3. 결과 및 고찰

3.1 감쇄율의 측정결과

물과 토양시료의 실험적인 감쇄율 측정결과와 XCOM의 계산결과를 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1의 측정 감마선 에너지는 59, 122, 661, 1173, 1332 kev를 나타내며 오차막대는 반복측정에 대한 표준편차로 표시하였다. 알려진 대로 감마선에너지가 증가함에 따라서 감쇄율이 떨어지는 경향을 관측할 수 있으며 계산값과의 차이는 측정오차의 범위내에서 잘 일치하고 있음을 알 수 있다. 특히 Fig. 1(b)는 NIST SRM 2711, Montana 시료에 대한 감쇄율과 실험값에 대하여 지수함수를 적용한 fitting함수를 나타내었다. 상관계수는 0.995 이상으로 신뢰성이 있음을 알 수 있다. 즉 수식(2)를 적용하여 관심 에너지에서의 감쇄율을 결정할 수 있으며 수식(3)에 의하여 토양시료의 감마선 에너지에 따른 선형감쇄계수를 계산할 수 있다.

$$I/I_0 = \mathrm{Exp}(-\mu_{lin} \cdot t) = 0.0317(\mathrm{Ln}\ x) + 0.7342 \quad \text{----------} \quad (2)$$

윗 수식에서 시료의 두께 t는 1 cm이므로 수식(3)과 같이 정리된다.

$$\therefore\ \mu_{lin} = \mathrm{Ln}\{0.0317(\mathrm{Ln}\ x) + 0.7342\} \quad \text{----------} \quad (3)$$

x는 감마선 에너지(keV)를 의미하며 수식(2)를 사용하여 구해진 각 감마선 에너지에 대한 선형감쇄계수를 사용하여 시료의 두께에 대한 실제적인 감마선 감쇄율을 수식(1)을 적용하여 계산할 수 있다.

3.2 계측효율의 보정에 대한 실험결과

물 시료와 Eu-152 용액을 사용한 실험적 측정값과 SOLANG의 계산결과를 요약, 정리하여 Fig. 2에 나타내었다. 표시된 y축 오차막대는 감마선 계측불확도(2s)를 의미한다. 778 keV와 1112 keV의 경우에는 실험값과 결과값이 약 3% 정도의 편차를 나타냈으나 감마선 계측 불확도의 범위내에서 일치하고 있으며 나머지 5개의 에너지에서는 1 2% 범위에서 잘 일치하였다. 주어진 실험조건에서의 계측효율은 고 에너지 영역에서는 10%, 저 에너지 영역에서는 15% 까지 감소함을 알 수 있었으며 보다 정확한 실험적 보정을 위해서는 감마선 계측 불확도를 감소시킬 수 있는 방법이 강구되어야 한다.

3.3 표준물질의 분석결과

일차적으로 Eu-152 용액을 사용하여 6 mm의 두께에 대한 계측효율의 감쇄를 실험적으로 측정하였다. 이를 14 mm의 결과와 함께 Fig. 3에 나타내었다. 지수함수에 의한 fitting 함수의 평균 상관계수는 0.8 정도로 나타났으며 이 수식을 적용하여 각 감마선 에너지에 대한 Eu-152와 수용액 매질에서의 계측효율의 감쇄율을 구할 수 있다. Table 1에 최종산출된 보정계수와 NIST SRM 2711, Montana Soil의 최종분석결과를 정리하였다. As, Sb, Na 및 K와 같은 보증값이 있는 원소들은 보증값의 불확도 범위에서 잘 일치하는 결과를 나타냈으며 Sm, La 및 Sc와 같은 참고값을 갖는 원소들도 보정후의 결과값이 더 작은 상대오차를 보여주고 있다. 이와 같은 결과는 적용된 보정방법이 타당함을 예증하고 있다.

4. 결 론

감마선 측정뿐 아니라 중성자 방사화분석을 위하여 측정시료의 매질과 기하학적 차이를 보정하기 위한 많은 계산 프로그램[5]이 개발되어 왔으나 정확한 계산을 위해서는 검출기와 시료매질에 대한 정확한 정보가 필수적이다. 현재 절대측정의 강점을 갖고 있는 중성자 방사화분석법은 기준방법(Referee method)으로서 주성분 및 미량성분에 대한 정보가 없는 상태의 미지시료의 분석에 중추적인 역할을 하고 있으므로 정확한 분석을 위해서는 시료의 매질, 형태 및 크기에 따른 실험적인 보정방법의 확립이 필수적임을 알았다.

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

[1] F. De Corte, ""The k_0-Standardization Method - a Move to the Optimization of NAA"", Rijksuniversiteit Gent, 1987.

[2] K. Debertin, R.G. Helmer, "Gamm- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors" Elsevier Science Publishers B. V., 1988.

[3] M.J. Berger, "Photon Cross Sections Database NIST Standard Reference Database 8(XGAM)" March 1998, Last Update, Nov. 1999.

[4] L. Moens, J. De Donder, LIN Xi-lei, F. De Corte, A. De Wiselaere, A. Simonits, J. Hoste, "Calculation of the Absolute Peak Efficiency of Gamma-ray Detectors for Different Counting Geometries" Nucl. Instr. and Meth. 187, 451-472, (1981)

[5] F. L. Bronson, "Validation of the Accuracy of the LabSOCS Software for Mathematical Efficiency Calibration of Ge Detectors for Typical Laboratory Samples" JRNC, 255(1), 137-141, (2003).

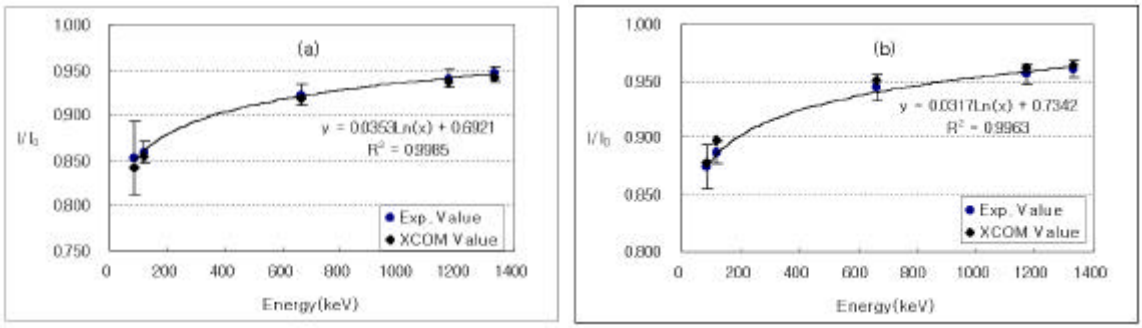

Fig. 1. Attenuation ratio for 1 cm thick sample matrix, (a) water (b) NIST SRM 2711, Montana Soil

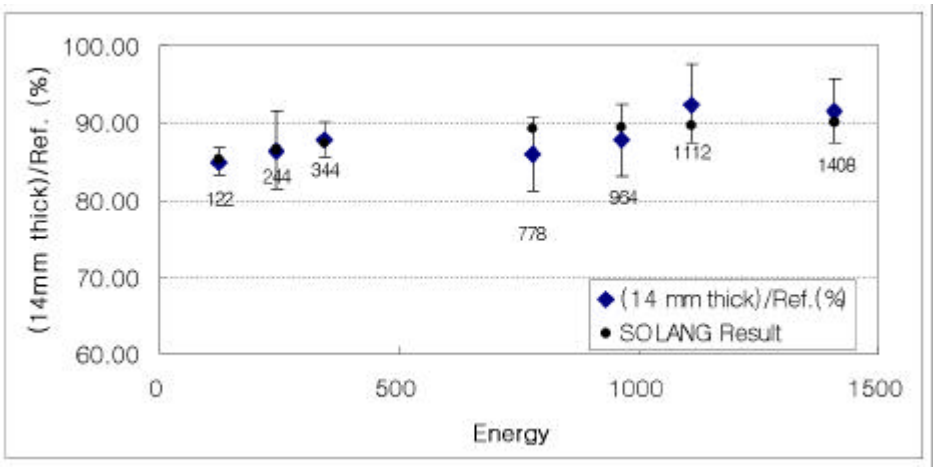

Fig. 2. Comparison between measured and calculated value by SOLANG

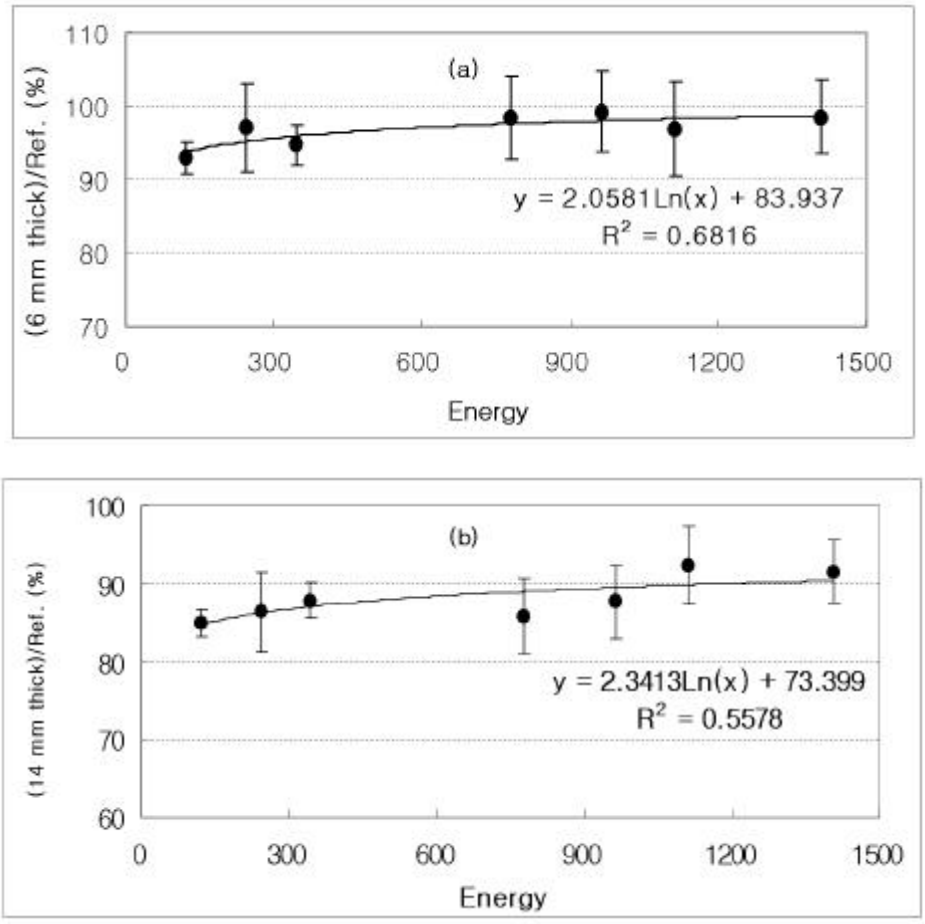

Fig. 3. Results of counting efficiency variation using water and Eu-152

Table 1. The analytical results of NIST SRM 2711, Montana Soil, including counting efficiency correction(unit : mg/kg)

Element	Nuclide	Certified Value	6 mm thick			14 mm thick		
			analytical value	Correction factor	corrected value	analytical value	Correction Factor	corrected value
Sm	Sm-153	(5.9)	5.66 ± 0.15	1.06	5.99 ± 0.16	4.94 ± 0.16	1.16	5.71 ± 0.18
La(487keV)	La-140	(40)	37.0 ± 1.11	1.03	38.0 ± 1.1	33.4 ± 0.5	1.12	37.3 ± 0.5
As	As-76	105 ± 8	105 ± 4	1.02	107 ± 4	94.3 ± 5.1	1.11	105 ± 6
Sb	Sb-122	19.4 ± 1.8	19.9 ± 1.1	1.02	20.4 ± 1.1	17.7 ± 0.5	1.11	19.7 ± 0.5
Sc	Sc-46	(9)	9.17 ± 0.39	1.01	9.30 ± 0.39	8.04 ± 0.16	1.09	8.86 ± 0.18
Na(%)	Na-24	1.14 ± 0.03	1.15 ± 0.03	1.01	1.16 ± 0.03	1.02 ± 0.03	1.09	1.12 ± 0.03
K(%)	K-42	2.45 ± 0.08	2.40 ± 0.07	1.00	2.41 ± 0.07	2.16 ± 0.13	1.09	2.35 ± 0.15
La(1596keV)	La-140	(40)	38.2 ± 1.3	1.00	38.3 ± 1.3	34.5 ± 0.8	1.08	37.4 ± 0.9

* Values in parenthesis stand for reference value