

Doppler 확장된 ^{10}B 즉발 감마선 피크 분석

Analysis of the Doppler-Broadened ^{10}B Prompt Gamma-ray Peak

변수현, 선광민, 박창수, 최희동

서울대학교
서울특별시 관악구 신림동 산56-1

요 약

즉발 감마선 스펙트럼에서 Doppler 확장된 ^{10}B 피크를 분석하였다. 단순한 방법 또는 fitting 방법에 의해 ^{10}B 피크의 순면적을 결정하였다. Fitting 기법은 ^{23}Na 피크와 간섭된 경우에 대해 적용하였다. 폭이 확장된 피크를 fitting하기 위해 정상적인 감마선 피크 형태에 Doppler 효과를 포함함으로써 피크 형태 함수를 유도하였다. 최종 fitting 함수는 두 개의 error 함수간의 차의 형태로 단순화되었다. Spinach(SRM 1570a) 표준 물질의 즉발 감마선 스펙트럼에 대해 fitting 기법을 시도하였다. ^{10}B 피크와 ^{23}Na 피크는 성공적으로 분리되었으며, fitting 결과는 측정 스펙트럼과 잘 일치하였다. 본 연구의 결과는 생체 시료내 붕소 농도 분석에 활용될 예정이다.

Abstract

Doppler-broadened boron peaks were analyzed in prompt gamma-ray spectra. The net area of a ^{10}B peak was determined by simple method or fitting method. The fitting method was applied for the interference case with ^{23}Na peak. In order to fit a broadened peak, the peak shape function was derived by including the Doppler effect in a normal gamma-ray peak shape. The final fitting function was simplified to a form of difference between two error functions. The fitting method was tried for the prompt gamma-ray spectrum of Spinach(SRM 1570a) reference material. ^{10}B and ^{23}Na peaks were successfully decomposed and the fitting result showed a good consistency with the measured spectrum. The result of this study will be utilized for the analyses of boron concentrations in biological samples.

1. 서 론

즉발 감마 방사화 분석법(Prompt Gamma Activation Analysis, PGAA)은 시료를 중성자에 조사시킬 때 중성자 포획 후 방출되는 즉발 감마선을 계측함으로써 시료내 성분 핵종의 농도를 분

석하는 방법이다[1]. 이 분석법은 재료과학, 생물학, 환경과학 등의 분야에서 많은 분석이 요구되면서도 일반적인 방사화 분석법에 의해 분석이 불가능한 B, Cd, Sm, Gd 등의 분석에 특히 유용하며, 분석 빈도가 증가하는 추세에 있다. 국내에서도 한국원자력연구소의 하나로에 SNU-KAERI PGAA 장치가 개발 완료되어 2001년 5월부터 가동이 시작되었다[2-5]. 본 장치는 기존의 PGAA 장치에서 시도되지 않은 회절 다색 열중성자빔을 이용하고 있으며, 기존의 PGAA 장치와 성능을 비교할 때 시료 위치에서의 중성자빔 특성, 붕소 검출민감도 등의 주요 성능이 우수한 것으로 평가되었다[3,4].

PGAA에서 가장 활발하게 분석되는 원소인 붕소는 일반적인 감마선 분광에서 접하기 힘든 특성이 있다. ^{10}B 의 즉발 감마선 피크는 일반적인 감마선 피크보다 폭이 크게 확장되어 사다리꼴 형태를 이룬다. 이와 같은 현상은 ^{10}B 이 중성자를 흡수하여 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}^*$ 반응이 일어났을 때 여기상태의 $^7\text{Li}^*$ 이 에너지를 모두 상실하기 이전에 기저상태로 천이하면서 즉발 감마선을 방출하기 때문이다. 즉 $^7\text{Li}^*$ 이 이동하고 있는 상태에서 감마선을 방출하기 때문에 Doppler 효과가 유발된다. 따라서 ^{10}B 즉발 감마선 피크는 일반적인 감마선 스펙트럼 분석에 활용되는 피크 분석 프로그램을 그대로 적용하기 곤란하다. 이러한 Doppler 확장 피크의 분석 방법은 피크 영역의 적분 면적에서 단순하게 background 면적을 제거하는 방법, 스펙트럼 형태를 묘사하는 적절한 fitting 함수를 선정하여 직접 fitting하는 방법 등 대표적으로 두 가지 방법이 가능하다. 붕소 피크에 간섭되는 피크가 없는 경우에는 단순한 면적 결정 방법을 적용하더라도 피크 분석에 그다지 지장이 없다. 그러나 붕소 피크와 간섭되는 피크가 존재하여 두 개 또는 세 개 이상의 피크가 중첩되고 있는 상태에서는 단순한 방법을 적용했을 때 분석의 신뢰성을 보장하기가 어렵다. 즉발감마선 스펙트럼에서는 일반적인 감마선 분광에 비해 피크의 개수가 훨씬 많을 뿐만 아니라 붕소 피크의 폭이 크게 확장된 상태에 있기 때문에 간섭 문제의 발생 가능성은 매우 높다. PGAA에서 ^{10}B 의 478 keV 피크와 간섭을 일으키는 피크는 주로 ^{23}Na 의 472 keV 피크이며, Na가 생물 시료, 광물 시료 등에 광범위하게 포함되어 있으므로 Na 피크와의 간섭은 불가피하다고 볼 수 있다. 따라서 이러한 간섭 상황에서 ^{10}B 피크의 순면적을 결정하기 위한 신뢰성 높은 피크 분석법 구축이 요구된다. PGAA 관련 연구를 지속적으로 활발하게 진행하고 있는 일본 원자력연구소[6], Kyoto 대학[7], 스위스 PSI(Paul Scherrer Institute)[8] 등의 연구진은 최근에 ^{10}B 피크 분석에 관한 심도있는 연구를 수행하였다. 본 연구에서는 이러한 연구 결과와 유사한 방법을 적용하여 즉발 감마선 스펙트럼에서 Doppler 확장된 ^{10}B 피크를 분석하였다.

2. ^{10}B 즉발 감마선의 Doppler 효과

^{10}B 이 중성자와 $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ 반응을 일으키면 α 입자와 ^7Li 이 방출된다. ^7Li 은 기저상태 및 여기상태가 모두 형성될 수 있으며 여기상태가 형성될 확률이 93.7%로서 월등히 높다. 여기상태의 $^7\text{Li}^*$ 은 다시 에너지가 478 keV인 즉발 감마선을 방출하면서 기저상태로 천이한다. 이 때 반감기가 약 10^{-13} 초이기 때문에 $^7\text{Li}^*$ 이 에너지를 잃는 과정에서 즉발 감마선이 방출되어 Doppler 효과가

유발된다. Doppler 효과에 의한 감마선 에너지 변동은 감마선 방출 직전 ${}^7\text{Li}^*$ 의 속력과 ${}^7\text{Li}^*$ 의 진행 방향에 의존한다. ${}^7\text{Li}^*$ 이 방출된 직후의 초속도 v_0 는 ${}^{10}\text{B}(n,\alpha)$ 반응 전후의 운동량 보존과 에너지 보존으로부터

$$v_0 = \sqrt{\frac{2M_a Q}{(M_{\text{Li}} + M_a)M_{\text{Li}}}} = 4.8 \times 10^6 \text{ m/s} \quad (1)$$

로 결정된다. (1) 식에서 M_a , M_{Li} 은 각각 α 입자와 ${}^7\text{Li}$ 의 질량이며, Q 는 ${}^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}^*$ 반응에서의 Q-value이다. 방출 후 ${}^7\text{Li}^*$ 은 매질내에서 연속적으로 에너지를 상실한다. 그림 1과 같이 즉발 감마선의 방출 방향이 ${}^7\text{Li}^*$ 의 운동 방향과 θ 의 각도를 이루고 있고 즉발 감마선 방출 직전 ${}^7\text{Li}^*$ 의 속력이 v 인 상태일 때 방출된 감마선의 에너지는

$$E(\theta) = \frac{c}{c - v \cos \theta} E_0 \quad (2)$$

와 같이 나타낼 수 있다[7]. 여기서 c 는 광속이며, E_0 는 ${}^7\text{Li}^*$ 이 정지된 상태에서 방출한 감마선 에너지, 즉 Doppler 효과가 없는 경우의 감마선 에너지이다. (2) 식으로부터 Doppler 효과에 의한 에너지 변동량 ΔE 는

$$\begin{aligned} \Delta E &= E(\theta) - E_0 \\ &= E_0 \left(\frac{c}{c - v \cos \theta} - 1 \right) \\ &\simeq k \cos \theta \quad (k = E_0 \frac{v}{c}) \end{aligned} \quad (3)$$

로 간단히 된다. 따라서 Doppler 효과로 인한 에너지 변동량은 감마선 방출 직전 ${}^7\text{Li}^*$ 의 속력과 광속의 비, 각도 θ 에 의존한다. 여기서 감마선 방출 직전 ${}^7\text{Li}^*$ 의 속력은 ${}^7\text{Li}$ 이온이 방출된 후 감마선을 방출하기 직전까지 손실한 에너지량에 의해 결정되므로 ${}^7\text{Li}$ 이온에 대한 시료 매질의 저지능 (stopping power)에 따라 ΔE 값이 차이를 보이게 된다. 한편 ${}^7\text{Li}^*$ 은 등방적으로 방출되므로 ${}^7\text{Li}^*$ 운동 방향이 감마선 진행 방향에 대해 이루는 각도가 $(\theta, \theta + d\theta)$ 영역에 존재할 확률은

$$\frac{2\pi \sin \theta}{4\pi} d\theta = \frac{\sin \theta}{2} d\theta \quad (4)$$

가 된다. 따라서 (3) 식의 에너지 변동량과 (4) 식의 각도 분포를 이용하여 Doppler 효과로 인한 감마선 피크폭 확대 현상에 대해 정량적으로 접근할 수 있다.

일반적으로 감마선 피크의 상세한 형태는 Gaussian 함수 이외에 short term tail, long term tail 등이 포함되어 있지만, 이와같이 복잡한 형태의 함수에 Doppler 효과까지 포함하면 피크 분석이 매우 어려워진다. 따라서 본 연구에서는 단일 에너지 감마선 피크의 형태를

$$f(E) = \frac{A}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(E - E_0)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (5)$$

와 같이 단순한 Gaussian 함수로 설정하였다. 여기서 A 는 감마선 피크의 면적, σ 는 Gaussian 분

포의 표준편차를 각각 나타낸다. (5) 식에 Doppler 효과를 포함하면 에너지 변동량과 에너지 변동량의 각도 의존성이 반영되어

$$f_B(E) = \frac{A}{\sigma\sqrt{2\pi}} \int_0^\pi \exp\left(-\frac{(E-E_0+k\cos\theta)^2}{2\sigma^2}\right) \frac{\sin\theta}{2} d\theta \quad (6)$$

와 같이 Doppler 확장된 감마선 피크의 형태가 결정된다[7,8]. (6) 식은 감마선 스펙트럼에 직접 fitting하기가 곤란한 상태이기 때문에 보다 단순한 형태로 변형해야 한다. (6) 식에서 적분항을 간단히 하면 Doppler 확장된 감마선 피크의 형태는 최종적으로

$$f_B(E) = \frac{A}{4k} \left[\operatorname{erf}\left(\frac{E-E_0+k}{\sqrt{2}\sigma}\right) - \operatorname{erf}\left(\frac{E-E_0-k}{\sqrt{2}\sigma}\right) \right] \quad (7)$$

로 귀결된다[8]. 여기서 erf는 error 함수를 나타낸다. 따라서 피크 면적, 에너지 E_0 , σ , Doppler 확장 상수 k 등 4 개의 fitting 변수를 이용하여 ^{10}B 478 keV 피크를 분석하게 된다.

3. ^{10}B 즉발 감마선 피크 분석

^{10}B 즉발 감마선 피크와 간섭되는 다른 피크가 존재하지 않는 경우에 피크 면적을 단순한 방법으로 분석한 예는 그림 2와 같다. 그림은 붕소 검출민감도 검정용 붕산 시료의 즉발 감마선 스펙트럼이다. 그림에서 ^{10}B 피크의 순면적은 피크 영역을 적분한 값에서 background 면적을 제거함으로써 결정된다. Background 면적은 피크 좌우측의 평균 background 높이를 각각 결정한 후 그림의 빗금 영역과 같이 직선으로 연결함으로써 결정된다.

붕소 피크에 ^{23}Na 간섭 피크가 중첩된 예는 그림 3과 같다. 이 즉발 감마선 스펙트럼은 Spinach[9] 표준 물질(SRM 1570a)에 대해 측정되었으며, 그림 2와 달리 사다리꼴 형태인 ^{10}B 피크의 low energy edge에 ^{23}Na 피크가 중첩된 상태이기 때문에 그림 2에서 적용한 단순한 방법의 의해 ^{10}B 피크만의 순면적을 구하기는 곤란하다. 따라서 이러한 간섭 상태에서는 fitting 방법을 적용하여 ^{10}B 피크의 순면적을 구하였다. Fitting에 앞서 먼저 그림 2와 동일한 방법으로 background를 제거함으로써 피크 부근 영역에서의 순계수 스펙트럼을 구하였다. 두 피크의 fitting 함수는 ^{23}Na 피크의 경우 (5) 식의 단순한 Gaussian으로, ^{10}B 피크는 (7) 식의 형태로 각각 설정하였다. ^{10}B 피크의 Doppler 효과를 무시한다면 두 피크의 σ 값은 동일하다고 간주할 수 있으므로 실제 fitting에서 두 피크의 σ 값은 단일한 값으로 설정하였다. Fitting 프로그램은 실험자료 통계 분석용으로 널리 활용되고 있는 Origin 6.0을 사용하였다. 피크 분석을 완료한 후 ^{23}Na 피크, ^{10}B 피크 및 직선 형태의 background를 측정 스펙트럼과 함께 나타낸 결과는 그림 4와 같다. ^{10}B 피크와 background를 합한 결과는 측정 스펙트럼에서 ^{10}B 피크의 top 영역 및 high energy edge 영역을 잘 따라가고 있다. 또한 ^{10}B 피크, ^{23}Na 피크 및 background를 합한 결과도 ^{10}B 피크의 low energy 영역과 잘 일치하고 있다. 측정 스펙트럼과 fitting 결과의 차이는 $\pm 3\%$ 이내로 일치한다. 따라서 fitting 기법에 의해 간섭 상태에서의 두 피크가 신뢰성 있게 분리된다고 평가할 수 있다.

4. 결 론

SNU-KAERI PGAA 장치로 측정된 즉발 감마선 스펙트럼에서 Doppler 확장된 ^{10}B 피크를 분석하였다. ^{23}Na 간섭 피크가 존재하는 경우에 대해 각각의 피크 함수 형태를 설정하여 fitting 기법으로 ^{10}B 피크의 면적을 구하였다. Spinach 표준 물질의 즉발 감마선 스펙트럼에 적용한 결과 신뢰성 높은 분석 결과를 얻었으며, 향후 SNU-KAERI PGAA 장치에서 주로 측정될 생체 시료내 붕소 농도 분석에 활용될 예정이다.

참고문헌

1. M.P. Failey, D.L. Anderson, W.H. Zoller, G.E. Gordon and R.M. Lindstrom, *Anal. Chem.* 51 (1979) 2209.
2. S.H. Byun and H.D. Choi, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 244 (2000) 413.
3. S.H. Byun, G.M. Sun and H.D. Choi, *J. Korean Nucl. Soc.* 34 (2002) 30.
4. S.H. Byun, G.M. Sun and H.D. Choi, *Nucl. Instr. and Meth. A* 487 (2002) 521.
5. S.H. Byun, G.M. Sun and H.D. Choi, *Nucl. Instr. and Meth. A*, in press.
6. M. Magara and C. Yonezawa, *Nucl. Instr. Meth. A* 411 (1998) 130.
7. M. Ishikawa, T. Kobayashi and K. Kanda, *Nucl. Instr. Meth. A* 453 (2000) 614.
8. S. Baechler, P. Kudejova, J. Jolie, J.-L. Schenker and N. Stritt, *Nucl. Instr. and Meth. A* 488 (2002) 410.
9. Certificate of Analysis, SRM 1570a, Spinach (1996) NIST, Gaithersburg, USA.

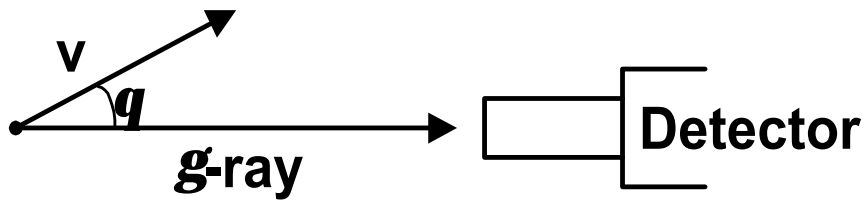


Fig. 1. Schematic illustration of the Doppler

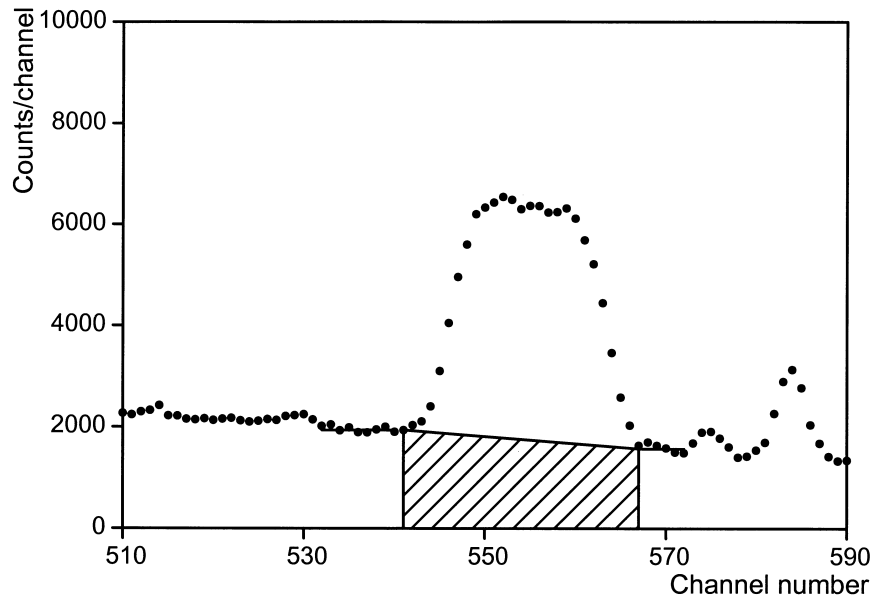


Fig. 2. Analysis of a Doppler-broadened boron peak by a simple

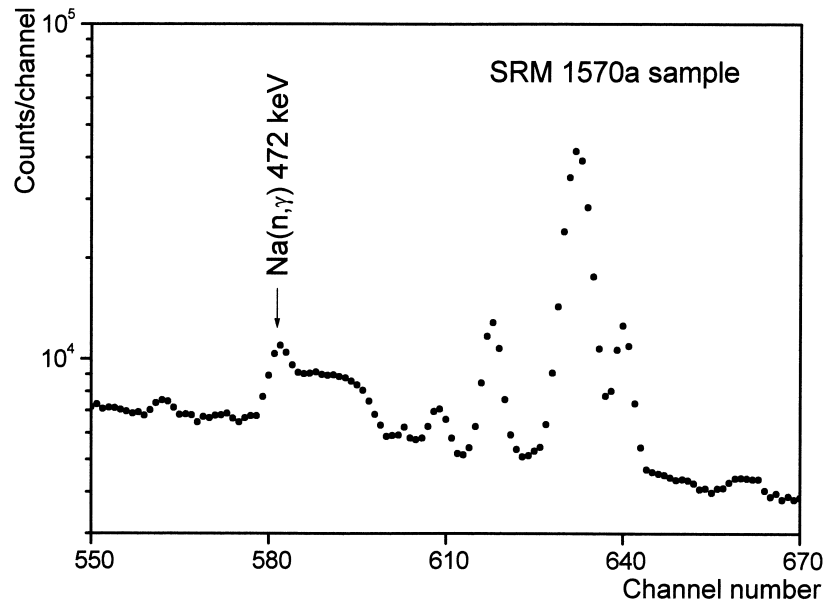


Fig. 3. Prompt γ -ray spectrum measured for the SRM 1570a Spinach sample.

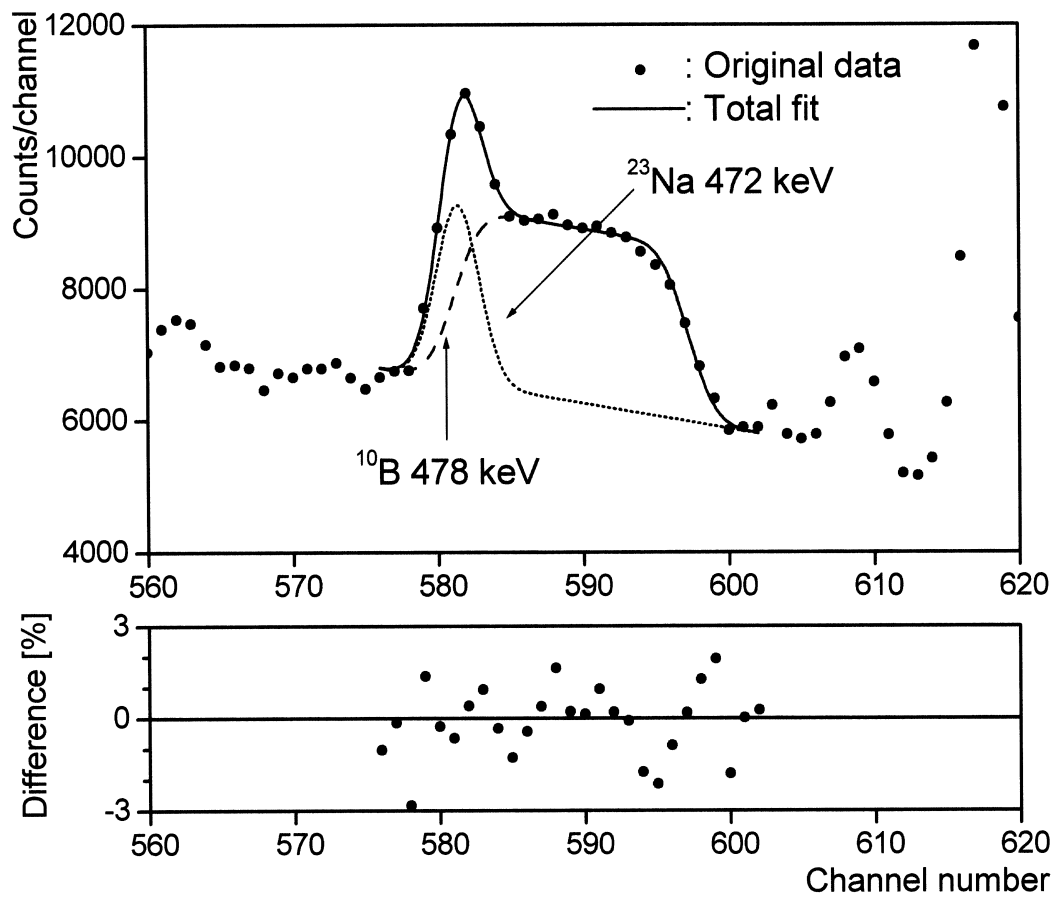


Fig. 4. Decomposition of Doppler-broadened ^{10}B peak and ^{23}Na peak by the fitting method.