



저작자표시-비영리-변경금지 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

- 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:



저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.



비영리. 귀하는 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 없습니다.



변경금지. 귀하는 이 저작물을 개작, 변형 또는 가공할 수 없습니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 [이용허락규약\(Legal Code\)](#)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

[Disclaimer](#)

LSC 검교정시 불확실성  
평가에 관한 연구

An Evaluation on Uncertainty in LSC  
Calibration and Verification

2012년 2월 24일

조선대학교 대학원

원자력공학과

염 유 선

# LSC 검교정시 불확실성 평가에 관한 연구

지도교수 金 崧 平

이 논문을 공학박사학위신청 논문으로  
제출함.

2011년 10월

조선대학교 대학원

원자력공학과

염 유 선

# 염유선의 박사학위논문을 인준함

위원장 조선대학교 교수 나 만 균 (인)

위원 조선대학교 교수 김 송 평 (인)

위원 조선대학교 교수 김 진 원 (인)

위원 한국방폐물관리공단 실장 김 창 락 (인)

위원 한국방사선기술연구소 대표 조용우 (인)

2011년 12월

조선대학교 대학원

# 목 차

제1장 서 론 .....	1
제2장 연구 내용 .....	3
제1절 $^3H$ 의 특성 .....	3
1. 물리·화학적 특성 .....	3
2. 생물학적 특성 .....	5
3. 생성 특성 .....	7
가. 자연생성 .....	7
나. 핵실험에 의한 생성 .....	8
다. 원자로에서의 의한 생성 .....	9
4. 환경에서의 거동 특성 .....	11
제2절 LSC의 원리 및 특성 .....	14
1. LSC 원리 .....	14
2. LSC 특성 .....	17
3. Quantulus 1220 계수기 .....	18
제3절 불확실성 요인 분석 .....	21
1. Geometry 및 Activity 차이 분석 .....	21
2. 기존의 계측 조건 및 방법론 분석 .....	22
제4절 검증방법론 분석 .....	24
1. Chi-square test( $\chi^2$ -test) .....	24
2. 방사능오차분석법 .....	26
제3장 연구 방법 .....	28
제1절 시료설계 및 제작 .....	28

<b>제2절 예비 실험</b> .....	<b>29</b>
1. Performance test .....	29
2. 액·고상 선원의 불확실성 분석 .....	30
3. 시료 제작시의 불확실성 분석 .....	30
가. 시료 무게 측정시의 불확실성 분석 .....	30
나. 전자저울과 측정용기에 대한 불확실성 분석 .....	31
4. 측정용기와 혼합비 선정 .....	31
5. 민감도분석 수행 .....	31
가. 측정용기 무게차이 .....	32
나. 시료의 방치시간 .....	32
다. 측정방법 .....	33
라. 외부선원의 조사시간 .....	33
마. 계측시간 .....	34
<b>제3절 본 실험 수행</b> .....	<b>35</b>
1. Geometry 차이에 대한 영향 평가 .....	35
가. 교정 .....	35
나. 검증 .....	40
다. Geometry 차이에 대한 영향 평가 .....	45
2. Activity 차이에 대한 영향 평가 .....	45
<b>제4장 연구 결과</b> .....	<b>47</b>
<b>제1절 예비실험 결과</b> .....	<b>47</b>
1. Performance test 결과 .....	47
2. 액·고상 선원에 대한 불확실성 평가 결과 .....	48
3. 시료 제작시의 불확실성 평가 결과 .....	49
가. 측정용기 및 혼합비의 선정 .....	49
나. 시료 제작시의 인적실수 .....	50

다. 전자저울 자체의 불확실성 .....	51
4. 민감도분석 결과 .....	52
가. 측정용기 무게 차이에 의한 영향 .....	52
나. 시료의 방치시간에 의한 영향 .....	54
다. 측정방법 차이에 의한 영향 .....	55
라. 외부선원의 조사시간에 의한 영향 .....	55
마. 계측시간에 의한 영향 .....	58
<b>제2절 본 실험 결과 .....</b>	<b>60</b>
1. 결과 검증 .....	60
가. $\chi^2$ -test 결과 .....	60
나. 방사능오차 분석 결과 .....	63
2. Geometry 차이에 대한 평가 결과 .....	63
가. 교정 결과 .....	63
나. 검증 결과 .....	64
다. MCNP Code Simulation 결과 .....	69
3. Activity 차이에 대한 평가 결과 .....	82
가. 교정 결과 .....	82
나. 검증 결과 .....	84
4. Activity 및 Geometry 차이에 대한 종합결과 .....	89
<b>제5장 결 론 .....</b>	<b>93</b>

참고문헌

## 표 목 차

[표 2.1] $^3H$ 생성 핵반응식과 반응 단면적 .....	3
[표 2.2] 수소 및 수소동위원소 .....	4
[표 2.3] 수소동위원소의 열역학적 특성 .....	4
[표 2.4] 수소동위원소의 물성 .....	5
[표 2.5] $^3H$ 의 Fission yield .....	9
[표 4.1] Performance test 결과 .....	47
[표 4.2] 사용된 $^3H$ 표준선원의 오차 .....	48
[표 4.3] 측정용기 측정결과 .....	49
[표 4.4] Syringe 및 Dispenser에 대한 오차 .....	51
[표 4.5] 전자저울 자체의 불확도 .....	52
[표 4.6] 측정용기 무게 측정 결과 .....	52
[표 4.7] 측정용기 무게 차이에 따른 SQP(E) 및 CPM 변화 .....	53
[표 4.8] 측정용기 무게 차이에 따른 CPM 경향 .....	54
[표 4.9] SQP(E) 기준의 $\chi^2$ Probability(%) .....	60
[표 4.10] Geometry 차이에 따른 SQP(E) 및 효율 비교 .....	64
[표 4.11] 소광보정곡선 검증 결과 .....	65
[표 4.12] 액상선원으로 작성한 소광보정곡선 검증 결과 .....	85
[표 4.13] 낮은 Activity 농도에서 소광보정곡선 검증 결과 .....	88
[표 4.14] 4개 기관의 계측치에 대한 검증 결과 .....	91



## 그림 목차

[그림 2.1] 표준인에 대한 물의 체내 대사 .....	6
[그림 2.2] 에너지 전달 과정 .....	15
[그림 2.3] 광전자 증배관 기본구조 .....	16
[그림 2.4] 광전자 증배관 검출원리 .....	16
[그림 2.5] 액체섬광계수기 .....	18
[그림 2.6] 액체섬광계수기 구성도 .....	19
[그림 2.7] 고상선원 사진 .....	22
[그림 2.8] 측정치와 통계모델과의 일치 유·무 점검 .....	24
[그림 3.1] 제작된 측정 및 교정용 .....	28
[그림 3.2] Unquenched Standard Source .....	29
[그림 3.3] 기존방법을 적용할 경우의 교정절차 .....	37
[그림 3.4] 제안한 방법을 적용할 경우의 교정절차 .....	39
[그림 3.5] 교정용 시료를 재 측정할 경우의 검증절차(기존 방법) .....	42
[그림 3.6] 교정용 시료를 재 측정할 경우의 검증절차(제안한 방법 적용) .....	44
[그림 4.1] 혼합비별 Total count 경향 .....	50
[그림 4.2] 방치시간 증가에 따른 Counts 경향 .....	54
[그림 4.3] 측정방법 차이에 따른 SQP(E) 평균값 변화 .....	56
[그림 4.4] 측정방법 차이에 따른 SQP(E) 표준편차 경향 .....	56
[그림 4.5] 조사시간 증가에 따른 SQP(E) 분포 경향 .....	57
[그림 4.6] 측정시간 증가에 따른 CPM 표준편차 경향 .....	59

[그림 4.7] 계측시간 증가에 따른 LLD 경향 .....	59
[그림 4.8] 혼합비별 SQP(E)와 효율과의 관계 .....	61
[그림 4.9] 12시간 동안 냉암소에 방치한 후의 시료상태 .....	62
[그림 4.10] 계측 후 12시간이 경과한 시료상태 .....	62
[그림 4.11] 계측 후 24시간이 경과한 시료상태 .....	62
[그림 4.12] 고상 20만 DPM으로 작성한 소광보정곡선 .....	65
[그림 4.13] 방사능오차 분석 결과 .....	67
[그림 4.14] 플라스틱이 없는 경우 .....	77
[그림 4.15] 플라스틱 존재형태(Top open) .....	77
[그림 4.16] 플라스틱 존재형태(Bottom open) .....	78
[그림 4.17] 플라스틱 존재형태(Side open) .....	78
[그림 4.18] MCNP Simulation 결과(Photon Energy : 18.6 KeV) .....	81
[그림 4.19] MCNP Simulation 결과(Photon Energy : 5.69 KeV) .....	81
[그림 4.20] 액상선원으로 작성한 소광보정곡선(1/2) .....	83
[그림 4.21] 액상선원으로 작성한 소광보정곡선(2/2) .....	83
[그림 4.22] 액상선원으로 작성한 소광보정곡선 검증결과(기존방법 적용) .....	86
[그림 4.23] 액상선원으로 작성한 소광보정곡선 검증결과(제안방법 적용) .....	86
[그림 4.24] 검증용 시료를 제작한 후 검증한 결과 .....	88
[그림 4.25] 제안한 보정곡선 .....	90

# Abstract

## An Evaluation on Uncertainty in LSC Calibration and Verification

By : Yeom Yu-sun

Advisor : Prof. Kim Soong-Pyung, Ph.D.

Department of Nuclear Engineering

Graduate School of Chosun University

When the calibration on Liquid Scintillation Counter by using a Solid  $^3H$  Standard Source of 200,000 DPM(Disintegration Per Minute) is carried out, an uncertainty and error due to an activity and geometry difference with environmental samples can exist. However, an investigation on this was not conducted so far. Therefore, this paper intends to evaluate environmental samples comparatively accurately by decreasing the uncertainty and error which can exist in the process of a calibration on LSC(Liquid Scintillation Counter) instrument through lots of experiments and measurements.

For this, after variables that can have an effect on a measurement result were came up with, a sensitivity study was performed. And then, based on a sensitivity study result, an optimal counting condition on an counting instrument was deducted, and the effect by a geometry and activity difference was evaluated quantitatively. Also, in case that the effect by each item described above is represented, the basic cause was examined closely through an additional experiment.

In this paper, Radioactivity Error Analysis Method was used for the purpose of verifying calibration results. According to the result of sensitivity study, in case of using the external source exposure time of 75sec and Repeat method, the measuring accuracy and precision of about 1~3% was increased in comparison with the existing method. Also, by measurement and analysis result, the effect due to an activity difference did not appear, and a plastic cell existing into Teflon vial made a role as reflector. The more activity is high, the less the effect of a plastic cell is decreased, and the effect of it can be neglected at the activity of 200,000 DPM. According to the result of sensitivity study by MCNP code, Similarly, in measuring, plastic cells played a role as reflector.

From above verification and analysis result, it is judged that there is matter at Solid  $^3H$  Standard Source itself, and that the effect by geometry difference does appear largely due to this problem. Also, it was derived that the Liquid  $^3H$  Standard Source of more than 1,000 DPM had to be used when the calibration and verification about LSC Instrument were executed(The correlation and correction equation for compensating the effect by geometry difference is presented in the text).

The effect by Uncertainty and Error is included at above equation, and measuring accuracy is nearly equal to the accuracy of Liquid  $^3H$  Standard Source. Therefore, it is judged that there won't be problem even if equation above represented is used, when the calibration on Liquid Scintillation Counter by using a Solid  $^3H$  Standard Source of 200,000 DPM is carried out.

# 제1장 서론

$^3H$ (삼중수소)이나  $^{14}C$ (방사성 탄소)와 같이 낮은 에너지의 베타선을 방출하는 방사성동위원소를 검출하기 위해 국내·외에서 널리 사용되고 있는 액체섬광계수기(Liquid Scintillation Counter : LSC)는 시료를 액상의 섬광체와 균일하게 혼합한 후 계측을 수행함으로써 시료 내에 존재하는  $^3H$ 이나  $^{14}C$  농도를 평가하고 있다.

이러한 환경시료 내에 존재하는  $^3H$  방사능 농도를 비교적 정확하게 평가하기 위해서는 먼저, 계측장비에 대한 검·교정을 수행할 때 존재할 수 있는 불확실성을 최소화시킬 필요가 있으며, 또한 이러한 검·교정 후 발생하는 고농도의 방사성폐기물을 감소시킬 필요가 있다.

국내의 많은 분석기관들은 Activity가 20만 DPM(Disintegration Per Minute)인 고상  $^3H$  선원과 농도가 유사한 액상 선원을 사용하여 검·교정을 수행하고 있기 때문에 실제 원전 주변의 환경시료를 계측할 때와는 Geometry 및 Activity 차이에 의한 불확실성이 존재하고, 각 분석기관마다 계측조건 차이로 인한 불확실성을 유발할 수 있지만 이에 대한 체계적인 실험 및 연구 결과가 없다.

따라서 본 논문에서는 실험 및 계측을 통해 검·교정을 수행할 때 존재할 수 있는 Geometry 및 Activity 차이와 계측조건 차이에 의한 불확실성 경향을 정량적으로 평가함으로써  $^3H$  분석 결과에 대한 신뢰성을 확보하고자 하였다. 그리고 검·교정이 가능한 최저 Activity 농도를 제시함으로써 고농도 방사성폐기물 발생을 방지할 수 있는 방안을 제시하고자 하였다.

이를 위해 본 실험을 수행하기 전에 예비실험을 통해 검·교정용 시료를 제작하는 과정에서 발생할 수 있는 불확실성 항목을 도출한 후 분석을 수행하였고, 또한 Performance test 수행함으로써 장비 성능을 파악하였다.

Performance test 후 계측 결과에 영향을 미칠 수 있는 변수를 도출한 후 민감도 분석을 수행함으로써 계측 정밀도 및 정확도를 향상시켰고, 도출된 최적조건

및 민감도분석 결과에 근거하여 Geometry 및 Activity 차이에 의한 영향을 정량적으로 평가하였다.

Geometry 및 Activity 차이에 의한 영향을 평가하기 위해 Activity가 20만 DPM인 고상선원과 Activity가 20만/10만/3만/1만/3천/1천/5백/1백 DPM인 액상선원을 이용하여 시료(선원+초순수 또는 증류수)와 섬광체를 1:19~10:10의 비율로 혼합함으로써 총 90개의 교정용 시료를 제작하였고, 계측 결과에 대한 검증을 수행하기 위해 약 50개 정도의 검증용 시료를 제작하였다.

Geometry 차이에 의한 영향이 나타날 경우 이를 규명하기 위한 추가 실험을 수행하였고, 추가 실험 결과를 검증하기 위해 MCNP Code를 이용한 Simulation을 수행하였다.

이렇게 혼합비별로 제작한 검·교정용 시료를 Quantulus 1220 장비를 이용하여 31회씩 계측하였고, 계측결과들 중 Chi-square test와 신뢰도분석에 통과한 Data만을 이용하여 교정 곡선을 작성한 후 방사능오차분석법을 활용하여 교정곡선에 대한 검증을 수행함과 동시에 원인을 규명하기 위한 실험을 추가적으로 수행하였다. 또한, 교정 및 검증 결과에 근거하여 Geometry 및 Activity 차이에 의한 영향을 평가한 후 관련 상관식 및 보정상수를 제시하였고, 교정이 가능한 최저 Activity 농도를 제시하였다.

## 제2장 연구 내용

### 제1절 $^3H$ 의 특성

#### 1. 물리·화학적 특성

$^3H$ 는 1939년 Alvarez와 Cornog에 의해 투과력이 매우 약하고, 반감기가 긴 핵종이라는 것을 최초로 발견되었다.

$^3H$ 는 12.3년의 반감기를 가지 순수베타 방출핵종으로 자연 붕괴하여 18.6keV의 베타선을 방출하면서 안정 동위원소인  $^3He$ 으로 변환되는 수소동위원소로 화학적 성질은 수소와 유사하지만 동위원소 사이의 상대적인 질량차이로 인해 일반 수소 반응과는 차이가 있다. 그리고 원자로에서  $^3H$ 의 주요 생성원은 핵분열 반응과 중성자 포획반응에 의한 것이다[1,2].

이와 관련하여 [표 2.1]에  $^3H$  생성 핵반응식과 반응단면적을 나타내었고, [표 2.2]에 수소와 수소동위원소에 대해 나타내었다.

[표 2.1]  $^3H$  생성 핵반응식과 반응 단면적

구분	핵반응	발열량(MeV)	핵반응 단면적(barns)
1	$^2H(n, \gamma)^3H$	6.258	$5.3 \times 10^{-4}$
2	$^3He(n, p)^3H$	0.765	$5.3 \times 10^3$
3	$^6Li(n, \alpha)^3H$	4.794	$9.5 \times 10^2$
4	$^7Li(n, \alpha)^3H$	- 2.465	$8.6 \times 10^{-2}$

[표 2.1]에서 보듯이 1번에서 생성된 에너지가 가장 크고, 핵반응단면적의 경우는  $^3He$ ,  $^6Li$ 이 가장 큰 것을 확인할 수가 있다. 따라서 이러한 특성으로 인해 인공적으로  $^3H$ 를 제작할 때  $^3He$ ,  $^6Li$ 이 많이 이용되고 있으며,  $^3H$ 의 중성자 포획단

면적은 6 $\mu$  barns 이하로 매우 낮아 1g의  $^3H$ 는 약 9,600Ci 정도의 방사능을 가지고 있는 것으로 알려져 있다.

[표 2.2] 수소 및 수소동위원소

구분	수소	중수소	삼중수소
기호	$H$ 또는 $^1H$	D 또는 $^2H$	T 또는 $^3H$
이름	Protium	Deuterium	Tritium
질량(amu)	1.00783	2.01410	3.01605
존재비(%)	99.985	0.015	$\sim 10^{-16}$
중성자포획 반응단면적(barn)	0.33	$5.1 \times 10^{-4}$	
방사성 붕괴	-	-	베타선

그리고  $^3H$ 는 산소와 반응하여 삼중수소화된 물(HTO ; Tritiated Water)을 형성하고, 유기화합물의 수소와 교환이 가능하다. 또한  $T_2O$ , HTO 등의  $^3H$  화합물은  $H_2O$ 에 비해 Specific gravity와 Boiling point가 더 크지만 확산속도와 화학반응속도는 상대적으로 느린 것으로 알려져 있다.  $^3H$ 와 그 동위원소의 열역학적 특성과 물성을 [표 2.3]과 [표 2.4]에 나타내었다.

[표 2.3] 수소동위원소의 열역학적 특성

특성	$H_2O$	$D_2O$	$T_2O$
끓는점	100.00	101.42	101.51
삼중점 온도(°C)	0.010	3.82	4.49
삼중점 압력(mmHg)	4.58	5.02	4.87
기화열(kcal/mole)	9.72	9.9	10.1



[표 2.4] 수소동위원소의 물성

특성	$H_2$	$D_2$	$T_2$	$H_2O$	$D_2O$	$T_2O$
분자량	2	4	6	18	20	22
비등점(°C)	-252.8	-249.5	-248.1	100.00	101.42	101.51
빙점(°C)	-259.2	-254.4	-252.5	0.010	3.82	4.49
밀도(kg/m <sup>3</sup> )	0.084	0.168	0.251	1,000	1,105	1,215
천연함량(%)	99.985	0.015	0.000	99.985	0.015	0.000

$^3H$ 가 인체조직에서 투과할 수 있는 거리는  $8\mu m$ 로 매우 작기 때문에 종이 두께 정도의 차폐물질을 통과하지 못하지만 호흡 및 섭취를 통해 물이나 수증기 상태로 체내에 유입되면 전체 방사선 에너지가 체내에 흡수되어 방사선 장해를 가져올 수도 있다. 그리고 기체 형태로 체내에 유입된  $^3H$ 는 인체 내에서 거의 용해되지 않고 배출이 되고, 호흡을 통해 한번 흡입된 기체형태의  $^3H$  중 약 0.004% 이하만이 흡수되지만 삼중수소화된 물(HTO)이 증발된 후 공기 중에서 4~5분간 호흡을 통해 인체에 유입되면 98~99% 정도가 인체에 흡수되는 것으로 알려져 있다[1,3,4].

중수소에서  $^3H$ 는 분자구조가 oxide 형태인 DTO 상태로 환경에 방출되어 거의 99%가 증기상태로 존재하며, 붕괴될 때까지 대기 중에 존재한다. 대기 중의  $^3H$ 는 증기입자와 같이 존재하므로 Molecular Sieve Silica Gel 등과 같은 흡착재로 제거할 수 있다.

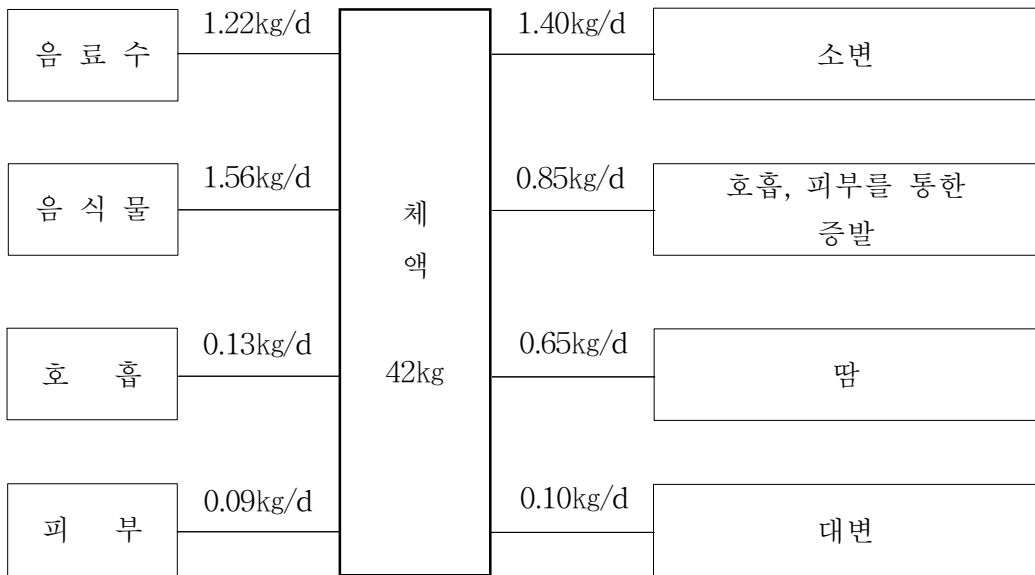
## 2. 생물학적 특성

수소원소는 세포 및 생체의 구성 성분 중 가장 기본이 되는 원소이기 때문에 대부분의 생물체는 수소의 동위원소인  $^3H$ 를 함유하게 된다.

원전으로부터 주변 환경으로 방출된  $^3H$ 는 주로 HTO 형태로서 환경에서 일반 물과 거의 동일한 거동을 보이고, 인간은 항상 물을 이용하고 있기 때문에 음식물

섭취나 호흡을 통해 직·간접적으로  $^3H$ 에 피폭될 가능성이 있다. 그러나  $^3H$ 를 일반 물에서 분리해내기가 어려워 상수 공급시  $^3H$ 에 오염된 물을 제거할 때 시설을 대규모로 만들기가 어렵다는 단점을 보유하고 있다.

ICRP Pub.23에 의하면 체중이 70kg인 표준인은 42kg 정도가 체액으로 구성되어 있고, 그 중 44%가 세포 외액에 나머지 56%가 세포 내액에 존재한다고 보고하였다. 이와 관련하여 [그림 2.1]에 체중이 70kg인 표준인을 대상으로 인체 내에서 물의 대사를 나타내었다.



[그림 2.1] 표준인에 대한 물의 체내 대사

체액 중  $^3H$ 의 일부는 각종 과정을 통해 조직 결합성 OBT(Organically Bound Tritium)가 되는데, 유기 성분으로 들어가는 속도는 간이나 소화관 등에서는 빠르고, 근육이나 뇌 등은 비교적 느리며, 지방조직으로 들어가는 속도는 매우 느린  $^3H$ 는 체내에서 붕괴함으로써 내부피폭을 일으킨다.

또한  $^3H$ 는 DNA 합성시 DNA를 구성하고 있는 수소와 치환되어 C-H-3의 결

합 상태가 되고, 방사성 붕괴를 하여 C-He-3 상태로 되는데, 이 결합은 매우 약해 탄소이온과 헬륨원자로 분리되고, 탄소이온이 DNA 내의 위치변동에 따라 생리적, 유전적 장애를 유발 할 수도 있다.

수분은 인체에 쉽게 흡수된다. 따라서  $^3H$ 의 산화물은 수소분자 형태일 때에 비해 10,000~20,000배 인체에 유해하다.

일단 인체에 수분의 형태로 흡수된  $^3H$ 는 4~18일의 생물학적 반감기를 가지고 체류한 후 배출되게 되는데 흡수된  $^3H$  중 일부는 체내 유기화합물과 화학교환 반응을 일으킨다. 실제 90% 이상의 피폭은 체내수 형태의  $^3H$ 에 기인하며, 유기화합물 형태는 피폭이 10% 이하로 영향을 미친다. 체내수의 반감기는 하루에 물을 2.7 L 마실 때 10.2일, 12L 마실 때 2.4일 정도이다. 따라서  $^3H$  피폭을 줄이기 위해서는 물을 많이 마시는 것이 매우 중요함을 알 수 있다.

그리고 유기화합물 형태로 치환된 체내  $^3H$ 의 생물학적 반감기는 대개 한달 내외이나 DNA 등에 치환된  $^3H$ 의 생물학적 반감기는 수백 일에 달한다.

### 3. 생성 특성

#### 가. 자연생성

자연에서의  $^3H$  생성은 지상의 물질이나 바다에서도 소량의  $^3H$ 가 생성되지만 거의 무시할 수 있는 양이고, 자연적으로 생성되는  $^3H$ 의 대부분은 Cosmic Ray의 양자나 중성자가 대기 중의 산소, 질소 원소와의 충돌에 의해 생성되며, 반응식은 다음과 같다.



위의 반응에 의해 자연적으로 생성된  $^3H$ 는 초기에는 성층권과 대류권에서 Gas

형태로 존재하다가 산화되어 대류권 저층으로 이동한 후 비와 눈의 형태로 지구 표면에 도달한 후 침적되거나 대기 중에 수분 형태로 존재하게 된다.

우주선속과  $^3H$  생성을 유발하는 반응단면적 등에 의해 계산된 지구표면적당  $^3H$ 의 생성률은 0.2~0.25 Triton/cm<sup>2</sup>.sec 정도이고, 첫 핵실험이 수행되기 이전에 오염되지 않은 물, 포도주 시료 등에서  $^3H$ 를 측정된 후 지구화학적 균형을 고려하여 외삽한 결과에 근거한  $^3H$  생성률은 0.14~2.0 Triton/cm<sup>2</sup>.sec 인 것으로 알려져 있다. 그리고 현재까지 가장 근접하게 평가된  $^3H$ 의 생성률은  $0.5 \pm 0.3$  Triton/cm<sup>2</sup>.sec인 것으로 알려져 있다[1,4].

이렇게 자연적으로 생성된  $^3H$  양은 연간  $7.2 \times 10^{-4}$  TBq 정도이고, 정상적인 상태에서 생물권 내에서 존재하는 양은 약  $1.04 \times 10^{-6}$  TBq 정도인 것으로 추정되고 있다.

#### 나. 핵실험에 의한 생성

대부분의 핵실험은 핵분열과 핵융합 반응을 이용하게 되는데 핵분열 반응을 이용할 경우  $^3H$ 는 주로 Neutron activation reaction에 의해 생성되고, 핵융합 반응을 이용할 경우에는 Fusion yield에 의해  $^3H$ 가 생성된다.

이 두 반응을 이용한  $^3H$  생성률은 핵분열에 의한 경우 약  $7.2 \times 10^3$  TBq/MT 정도이고, 핵융합 반응을 이용한 경우에는 약  $7.4 \times 10^5$  TBq/MT 정도인 것으로 알려져 있다[1,4].

또한 핵융합반응의 원료로 이용되기 때문에 1952년 이후 수없이 실시된 원자수소폭탄 실험의 결과 3,000 MCi에 달하는  $^3H$ 가 대기권 상층부에 주입되었으며, 1963년에는 강수속의  $^3H$  농도가 천연농도의 1,000~1만 배에 달했으나 그 후 서서히 감소하여 현재는 지표수에서 3~5배 정도이다.

1970년 이전까지 핵실험에 의하여 환경에 방출된  $^3H$ 의 총량은  $1.3 \times 10^8 \sim$

$1.7 \times 10^8 \text{ TBq}$  정도로 추정하고 있고, 핵실험에 의해 환경 및 대기로 방출된  $^3\text{H}$ 는 성층권에 유입된 후 대류권으로 이동하게 되며, 비나 눈에 의해 대기 중에 존재하는  $^3\text{H}$ 는 급격히 제거됨으로써 최종적으로 바닷물이나 지표수에서 검출된다.

#### 다. 원자로에서의 생성

경수로에서  $^3\text{H}$ 는 핵연료와 제어봉, 중성자 흡수제인 가연성 독물질(Burnable poison), 냉각수 등에서 생성되는데, 생성원은 크게 핵분열에 의한 것과  $B$ ,  $Li$  등의 원소들이 중성자를 포획함으로써 생성된다.

그리고 핵분열에 의해 생성되는  $^3\text{H}$  생성량을 파악하기 위해서는 핵연료 물질당 Thermal fission yield를 [표 2.5]에 나타내었다.

[표 2.5]  $^3\text{H}$ 의 Fission yield

핵종	Fission yield(triton/fission)
$^{233}\text{U}$	$0.68 \times 10^{-4} \sim 1.11 \times 10^{-4}$
$^{235}\text{U}$	$0.80 \times 10^{-4} \sim 1.44 \times 10^{-4}$
$^{239}\text{Pu}$	$1.34 \times 10^{-4} \sim 1.75 \times 10^{-4}$

중성자방사화 반응에 의해 생성되는  $^3\text{H}$ 는 가연성 독물질(Burnable poison) 내부에 존재하는  $^{10}\text{B}$ 와 일차냉각재 계통의 pH 조절을 위해 냉각수에 첨가하는  $\text{LiOH}$ , 일차냉각재 계통에 녹아 있는 붕소, 냉각수 내부에 존재하고 있는 중수소 등에 기인한 것으로 이들의 반응식은 다음과 같다.



제어봉에서 생성되는  $^3H$ 의 양은 평균 약  $0.35 \text{ TBq} / \text{MWe.yr}$ 이고 BWR(Boiling Water Reactor)과 PWR(Pressurized Water Reactor)발전소에서 Boron curtain로부터 생성되는  $^3H$ 의 양은 각각  $0.074 \text{ TBq} / \text{MWe.yr}$ (reactivity control),  $0.029 \text{ TBq} / \text{MWe.yr}$  (burnable poison)정도이다. 또한 BWR과 PWR 발전소의 냉각수에서 생성되는 양은 각각  $0.00044 \text{ TBq} / \text{MWe.yr}$ ,  $0.026 \sim 0.023 \text{ TBq} / \text{MWe.yr}$  정도인 것으로 알려져 있다[1,4]. 따라서 경수로에서 생성되는  $^3H$ 의 총량은  $0.44 \sim 1.3 \text{ TBq} / \text{MWe.yr}$  정도임을 알 수 있다.

핵연료 내에서 생성된  $^3H$ 는 핵연료를 감싸고 있는 피복재의 재질과 일차냉각재 계통의 온도 함수에 의해 핵연료봉 외부로 누출될 수 있다.

피복재 재료로 Stainless steel을 사용할 경우 1~80% 정도가 핵연료 밖으로 누출되는 반면, Zircaloy를 사용할 경우에는 Stainless steel 재질에 비해 작은 양인 0.013~1.0% 정도만이 일차냉각재 계통 내부로 누출되는 것으로 알려져 있다.

따라서 이러한 메카니즘에 의해 핵연료봉 외부로 누출된  $^3H$ 는 일차냉각재와 같이 유동하면서 결국 외부 환경으로 누출된다. 그러므로 원전주변의 환경시료나 주민들에게 방사선학적인 영향을 줄 수 있다.

BWR에서 사용되고 있는 Boron-steel curtain과 Boron control rod로부터 방출되는  $^3H$ 의 방출량 자료는 없는 반면 국내 원전의 주된 로형인 PWR 발전소의  $B_2O_3$  Burnable poison에서는 30~80%가 방출되는 것으로 계산되고 있다.

경수로에서 생성된  $^3H$ 는 주로 HTO 증기 또는 HTO 액체상이며, 생성된 총량 중 증기나 가스형태로 대기 중으로 방출되는 양은 BWR에서의 40~44%인 반면, PWR의 경우 4~13% 정도로 PWR 발전소에서 방출되는 비율은 BWR 발전소에서 보다 훨씬 작음에도 불구하고 방출량이 많은 것은 Soluble boron chemical shim이나 Burnable poison 등으로 생성되는  $^3H$ 가 더 많기 때문인 것으로 알려져 있다 [1,4].

중수로에서는 감속재와 냉각재로 중수를 사용하고 있기 때문에 중성자 조사에 의해 생성된  $^3H$ 의 양은  $88.8 TBq/MWe.yr$ 로 경수로에 비해 절대적으로 많은 반면, 핵분열에 의해 생성되는  $^3H$ 의 양은 약  $0.74 TBq/MWe.yr$ 로 중성자 조사에 의해 생성되는 양에 비해 작으며, 경수로에서 비중을 차지하던  $^6Li$ ,  $^{10}B$ 에 의한  $^3H$ 의 생성량은 무시할 수 있을 정도로 작은 것으로 알려져 있다.

그리고 중수로에서 생성된  $^3H$ 의 누출 경로는 냉각재관에서 Moderator tank로의 누출, 열교환기 벽체를 통한 2차측으로의 누출, 냉각재 누출, 복수기 물로의 확산, blow down 등의 과정을 통해 누출이 되는 것으로 알려져 있다. 중수로에서 감속재와 냉각재는 모두 중수를 사용하고 있지만 일반적으로 분리되어 있고, 감속재는 냉각재보다 상대적으로 온도 및 압력이 낮기 때문에 냉각재에서 감속재로  $^3H$ 가 누출될 수 있다.

이러한 원인으로 감속재속의  $^3H$  농도가 점점 증가함에 따라 운전원에게 방사선학적 영향을 줄 수 있기 때문에 Pickering A 발전소에서는  $D_2O$  준위가  $0.74 TBq/kg$  이상이 되면 원자로를 정지하고 있고, Ontario Hydro 발전소의 경우에는  $^3H$ 의 제한치를  $0.19 TBq/kg D_2O$ 로 설정하고 있다. 또한  $^3H$  extraction system을 설치하여 연간  $3.0 \times 10^5 TBq$  정도의  $^3H$ 를 제거하고 있다.

따라서 중수로에서 생성된  $^3H$ 는 경수로에서와 유사한 경로를 거쳐 대기 중으로 방출되며, 그 양은  $0.89 TBq/MWe.yr$  정도인 것으로 추정하고 있다.

#### 4. 환경에서의 거동 특성

자연적으로 생성되는  $^3H$  중 2/3 이상이 성층권에서 생성되고, 생성된  $^3H$ 는 대류권으로 유입된 후 비나 눈에 의해 지표면에 도달하거나 대기 중에 수분의 형태로 존재하게 된다[3,4].

핵실험에 의해 생성된  $^3H$ 의 거동은 핵실험 실시 위치에 따라 조금씩 서로 다른 양상을 보인다. 저위도에서 핵실험으로 생성된  $^3H$ 는 권궤면이 Cold trap으로 작용

하여  $^3H$ 를 포함한 수증기가 성층권으로 진입하는 것을 막고 얼음조각으로 형성되어 빠르게 대류권으로 유입된다.

반면 극지방에서는 공기 중 수증기의 함유율이 비교적 낮아 핵실험에 의해 생성된  $^3H$  중 많은 양은 성층권으로 돌아가고, 이들이 대류권으로 진입하기 전에 저위도로 많이 이동한다. 성층권의  $^3H$ 는 서서히 대류권으로 이동하고, 대류권에서는 강수로 인하여 수증기 속에 함유된  $^3H$ 는 급속히 제거되며, 성층권에서  $^3H$ 가 평균적으로 머무는 시간(Resistance time)은 1~10년인 것으로 추정하고 있다.

따라서 핵실험과 자연적으로 생성된  $^3H$ 는 지구의 전 범위에 영향을 미치게 되지만 현재 그 영향은 미미한 것으로 평가하고 있는 반면, 원자력발전소로부터 주변 환경으로 방출된  $^3H$ 의 경우 풍향, 풍속, 대기 안정도 등의 기상조건과 지형조건, 수문학적 특성에 의해 영향을 받으면서 이동, 확산, 침적이 된다.

원전으로부터 방출된  $^3H$ 의 대부분은 대류권 내로 유입되고, 대류권내에서의 수평 확산은 성층권에 비해 제한적이기 때문에 방출되는 지역을 크게 벗어나 영향을 미치지 않으며, 지표면에 직접 방출되는 지표면 방출일 경우 그 영향은 더욱 국한된다.

영향을 미치는 범위가 좁다는 것은 그만큼 대류권 내로 방출된  $^3H$ 가 확산이 잘 되지 않는다는 것을 의미하기 때문에 방출 주변지역에 미치는 방사선학적인 영향은 클 수 밖에 없다.

그리고 바다는 육지에 비해 강수량이 많고,  $^3H$ 를 함유한 수증기가 바닷물과 직접 교환을 하기 때문에  $^3H$ 는 육지보다 바다에서 침적이 더 잘 되며, 육지에 침적되는  $^3H$ 는 대부분 강수에 의한 것이지만 국지적으로 원자력발전소의 Stack을 통해 방출된  $^3H$  플룸이 강수로 침적되기 전에 지표면으로 확산되어 지표면에 도달하는 경우도 있다.

지표면에 도달한  $^3H$ 의 이동은 강수에 의해 강이나 바다로 유입되거나 식물체 표면에서의 직접 증발, 호수나 지표면에서의 증발에 의한 이동이 큰 비중을 차지하고, 나머지는 지하로 침투하여 지하수와 함께 존재하게 된다. 지하수는 중력에



의해 지하 깊은 곳으로 이동하고, 일부는 토양의 표면장력에 의해 토립자에 흡착되어 잔류하거나 식물체에 흡수되기도 한다.

중력에 의해 이동한 토양수는 지하수면에 도달한 후 기존 지하수에 희석되어 다시 지하수의 흐름에 따라 이동하게 되는데, 기존의 조사결과에 의하면 지하수로 들어간 물은 약 10년 정도 지하수 중에 머물고, 지하수에 머무는 시간과 물리적 반감기를 고려하여  $^3H$ 의 지하수 내 유효반감기를 5.7년으로 계산하고 있다.

이와 같이 대류권으로 방출된  $^3H$ 는 대부분 강수에 의해 지표면에 도달한 후 일반 물과 동일하게 환경 내에서 거동하면서 수계 순환에 따라 대류권으로 증발되었다가 다시 지상으로 침적되는 과정을 되풀이 하게 된다.

원자력시설로부터 방출되는  $^3H$ 는 대부분 HT(Tritiated Hydrogen Gas)나 HTO(Tritiated water) 형태로 방출되는데, 이중 HTO는 일반 물과 거의 동일한 거동을 하기 때문에 식물체의 기공을 통해 잘 흡수되지만 HT는 환경 중에서 HTO로 전환되기 전에는 거의 흡수되지 않는 것으로 알려져 있다[1,4,5].

식물체에 흡수된 HTO 중 일부는 식물체의 대사 작용에 의해 OBT(Organically Bound Tritium)로 된 후 가식부위에 축적되고, 나머지는 증산 작용에 의해 외부로 배출되거나 TFWT(Tissue Free Water Tritium)로 식물체 내에 존재한다.

## 제2절 LSC의 원리 및 특성

### 1. LSC 원리

섬광체는 방사선과 같은 외부의 에너지를 흡수하여 빛을 방출하는 물질로써 섬광체를 사용하여 방사선을 검출하는 기기를 섬광검출기(Scintillation Detector)라 한다[6,7,8].

사용되는 섬광체는 유기섬광체와 무기섬광체로 구분할 수 있다. 유기물의 섬광과정은 단일 분자의 에너지 준위 사이의 전이에 의해서 생기고, 분자의 결정구조에 따라서 결정되므로 그 물리적인 형태와는 무관하다.

섬광체에 방사선의 에너지가 흡수되면 기저상태에 있는 분자는 Excited Level로 여기가 된 후 내부전환(Internal conversion), 형광방출(Fluorescence), 계간교차(Inter-system crossing), 인광방출(Phosphorescence) 등의 여러 현상을 통해 기저 준위로 다시 되돌아온다.

내부전환은 들뜬 준위의 분자가 형광방출을 하지 않고 최적 여기준위나 기저준위로 전자 천이가 일어나는 현상을 말하고, 단일(Singlet) 상태인 전자가 계간교차라 불리는 천이에 의해 삼중(Triplet) 상태로 바뀌는 경우가 있는데, 여기서 다시 더 낮은 삼중 상태로 떨어지면서 빛을 방출하는 과정을 인광방출이라 한다.

유기 섬광체에는 순수 유기 결정체와 액체 유기액(Liquid organic solutions), 플라스틱 섬광체, 박막 섬광체, 혼합된 유기 섬광체 등이 있다. 이 중 액체 유기액은 용해될 수 있는 방사선원을 계수할 때 주로 사용된다.

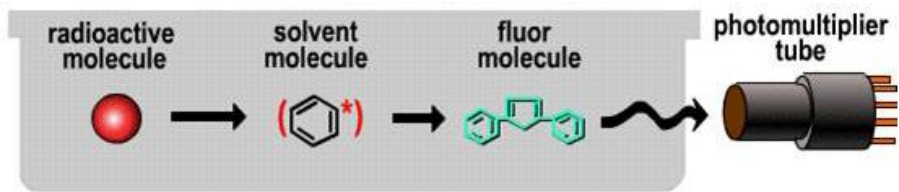
즉, 유기 섬광체를 용매에 용해시켜서 제작하기 때문에 방사선원으로부터 등방성으로 나오는 모든 방사선을 계측할 수 있다는 장점 때문에 액체섬광계수기는 주로 낮은 에너지의  $\beta$ 선을 방출하는  $^3H$ ,  $^{14}C$  등의 핵종을 계측할 때 많이 사용되고 있다.

그리고 물에서 100keV의 에너지를 가진 베타선이 이동하는 거리는 1mm 정도이고, 1MeV 에너지를 가진 베타선의 이동거리는 약 4mm 정도로 베타 입자는 자기흡

수가 없기 때문에 섬광체와 반응하여 충분히 측정 가능할 정도의 섬광현상을 일으킬 수 있다.

베타 입자가 용매를 여기시키면 여기된 용매가 섬광체 분자에게 에너지를 전달함으로써 섬광체 분자를 여기시키고, 여기된 섬광체 분자는 빛의 형태로 에너지를 방출한다.

이 빛이 광전자증배관(PMT ; Photo Multiplier Tube)에서 감시되어 전기신호로 변환 후 증폭되어 최종적으로 방사능 붕괴를 계수한다. 이와 관련하여 [그림 2.2]에 에너지 전달 과정을 나타내었다.



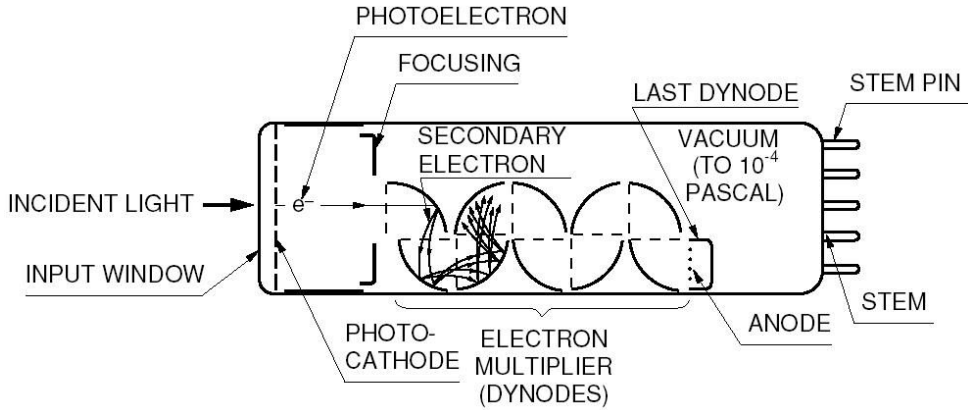
[그림 2.2] 에너지 전달 과정

섬광체에서 방출되는 광신호를 전기신호로 바꾸는 장치인 광전자증배관은 빛을 전류로 변환하여 주는 광음극(Photocathode)과 미약한 전류를 증폭하는 2차 전자 증배관으로 구성되어 있으며, 그 기본적인 구조와 원리를 [그림 2.3]과 [그림 2.4]에 나타내었다.

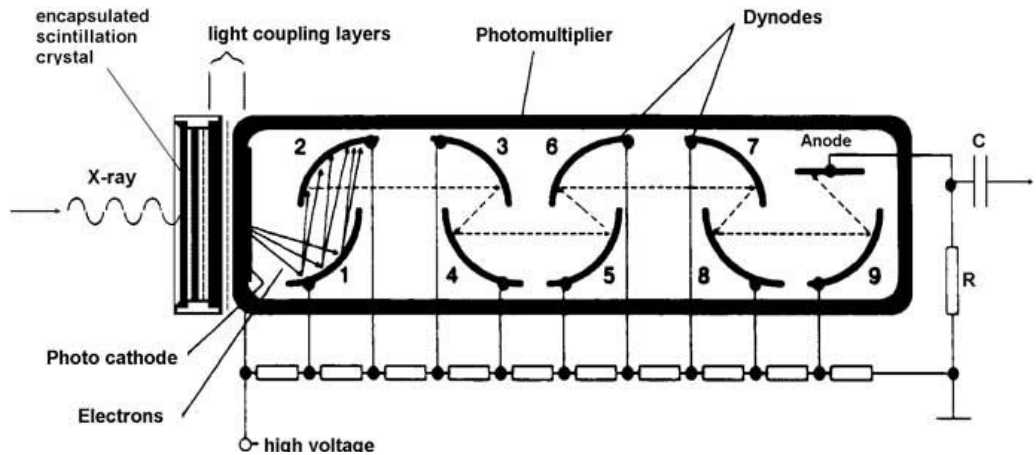
[그림 2.4]에서와 같이 광음극에 조사된 후 광전효과에 의해 전자를 발생시키고, 발생된 전자들은 PMT 내에 연속적으로 배열된 전자증배기들(Dynodes)에 수집되면서 2차 전자들을 방출하게 되는데 이러한 과정을 거치면서 증배가 일어난다.

섬광체에 생성된 빛의 파장은 약 350~400nm로 방출되는 빛이 PMT의 특성과 항상 일치하지 않기 때문에 Secondary scintillator를 사용하기도 하는데, Secondary scintillator는 방출되는 빛을 흡수하여 PMT 반응에 적절한 빛의 파장으로 다시 방출하는 역할을 한다.

그리고 계측장치에 들어 있는 광전자증배관은 누설자기장에 의한 영향이 최소화 되도록 투과율이 높은 재료인  $\mu$ -metal로 자기 차폐되어 있고, 증배관 양단에 약 5kV의 전압이 인가되었을 때 이득은 약  $10^7 \sim 10^8$  정도인 것으로 알려져 있다 [9,10].



[그림 2.3] 광전자 증배관 기본구조



[그림 2.4] 광전자 증배관 검출원리

## 2. LSC 특성

액체섬광계수기(LSC)는 시료 내에서 베타 입자와 섬광체간의 상호작용으로 발생한 섬광을 측정하여 시료 중의 방사능 농도를 측정하고 있다.

일반적으로 사용되고 있는 방사능 측정기는 검출기와 선원간의 이루는 각도 안으로 방사선이 들어왔을 때만 감지하지만 LSC의 경우는 방사능 핵종이 Vial 내의 Cocktail에 모두 녹아 있고, Cocktail이 검출기 역할을 하기 때문에 어떠한 방향으로 베타선이 방출되더라도 측정이 가능하다[11]. 또한 베타선에 의하여 발생한 섬광펄스는 수백  $10^{-9}$ 초 수명의 즉발형광(Prompt fluorescence)인 반면에 알파선에 의하여 발생한 섬광펄스는 수백  $10^{-9}$ 초 수명의 지발형광(Delayed fluorescence)으로 베타선과 알파선에서 발생하는 섬광의 수명 차이를 이용하여 알파선과 베타선의 동시측정이 가능하다는 장점이 있다.

베타선 입자의 에너지가 클수록 섬광체에 전달되는 에너지가 크고, 이에 따라 섬광이 세게 발생하기 때문에 섬광의 세기를 측정함으로써 베타선의 에너지를 측정할 수 있지만 베타선의 에너지가 연속적이므로 시료에 여러 종류의 핵종이 혼합되어 있으면 핵종간의 구별은 어렵다. 따라서 측정하고자 하는 핵종을 가능한 화학적으로 순수하게 분리해야 하는 단점 때문에 전처리를 수행해야 한다.

또한 섬광체에서 발생한 빛이 PMT까지 가는 경로에서 Absorption, Scattering 등의 현상으로 빛의 세기가 감소하는 물리적 소광이 발생하거나 베타선이 용매와 반응하기 전에 시료의 불순물이 전자의 에너지를 흡수하여 베타선의 에너지가 섬광체에 모두 전달되지 못하는 Chemical quenching 즉, 소광(Quenching) 현상이 일어날 수 있기 때문에 LSC로 방사능 농도를 측정하려면 먼저 측정시료의 소광정도와 측정효율간의 상관관계에 대한 정량·정성적 분석이 필요하다.

LSC는 Gas proportional  $\alpha/\beta$  counter나  $\alpha$  spectrometry에 비해 측정시료의 제작이 간단하고, 측정효율이 높은 장점이 있는 반면 PMT 자체의 noise, PMT 표면의 유리에 의한 체렌코프(Cerenkov) 현상, 정전기, 시료와 Cocktail간의 화학반응 등의 영향으로 Gas proportional  $\alpha/\beta$  counter나  $\alpha$  spectrometry보다 Background에 대한 계수율이 높은 단점이 있다.

LSC는 일반적으로  $^3H$ ,  $^{14}C$ ,  $^{226}Ra$ ,  $^{222}Rn$  등의 핵종분석에 많이 사용되고 있으며, 특히 베타선 에너지가 매우 낮은  $^3H$  계측에 가장 많이 사용되고 있고, LSC를 이용하여 방사능을 계측하는 방법에는 Queue Counting Mode와 PC 화면에서 사용자가 기기를 직접 조정하여 계측할 수 있는 cpm/dpm Counting Mode 두 가지가 있다[7,8].

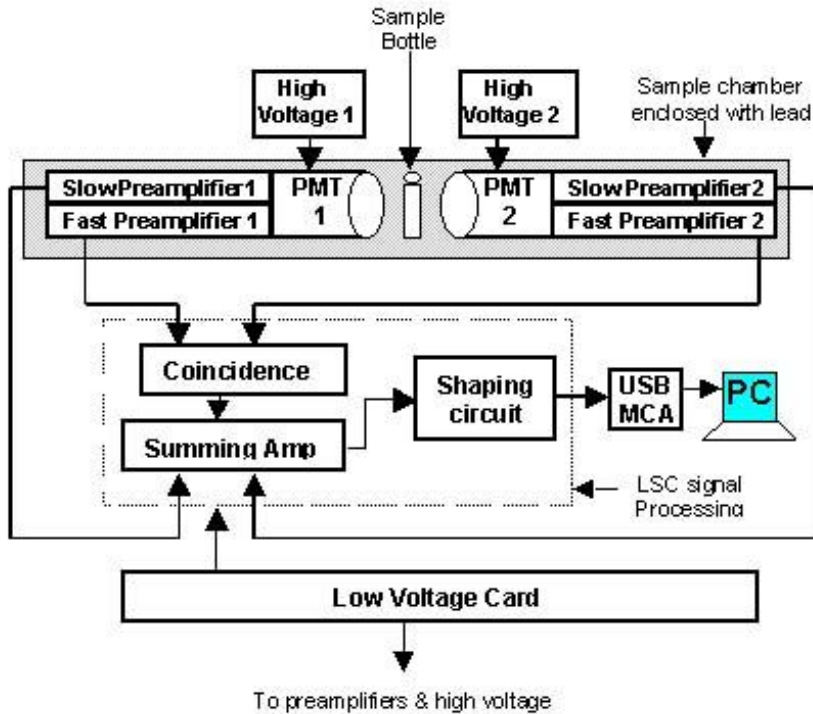
Queue Counting Mode는 계측된 베타선의 Spectrum을 표준시료와 Blank 시료 베타선 Spectrum과 비교분석하여 시료 중의 방사능을 구하는 방법이고, cpm/dpm Counting Mode는 소광정도를 나타내는 SQP(Spectral Quencher Parameter)와 효율간의 상관관계를 계측장비 안에 저장하여 계측을 완료한 후 시료 중의 방사능 농도를 계산하는 방법으로 시료 중에 방사능 농도가 높고, 시료의 양이 많은 경우에는 cpm/dpm Counting Mode로 계측하는 것이 편리하다.

### 3. Quantulus 1220 계수기

$^3H$ 의 농도를 측정하기 위하여 0.5cpm까지 계측할 수 있는 저준위 액체섬광계수기(Ultra Low Level Liquid Scintillation Counter)인 Quantulus 1220을 이용하였다. 이와 관련하여 [그림 2.5]에 LSC 사진과 개략적인 구조를 [그림 2.6]에 나타내었다.



[그림 2.5] 액체섬광계수기



[그림 2.6] 액체섬광계수기 구성도

[그림 2.6]에서 보듯이 Sample vial(그림의 Sample Bottle)은 두 개의 PMT 사이에 위치하며, 이 두 개의 PMT는 Vial에서 나오는 형광을 동시에 감지하여 독립적이면서 동시에 전기적 펄스를 생성한다. 이 펄스들이 Coincidence circuit를 거쳐 Linear amplifier와 Discriminator circuit를 거친다.

Coincidence circuit(20nsec 이내)는 두 개의 PMT에서 동시에 생성된 신호만 Scaler로 보낸다. 이 회로는 개별적으로 PMT에서 생성된 신호(PMT의 전기적 잡음)는 걸러내어 결과적으로 Background count를 낮추는 역할을 한다.

일반적으로 PMT의 전기적 잡음은 양쪽에서 동시에 발생하지 않는 것으로 알려져 있다[12,13,14].

Quantulus 1220 장비는 우주선 및 기기 외부로부터 유입될 수 있는 감마선에 의한 영향 등을 줄일 수 있도록 납을 주성분으로 한 수동 차폐체(Passive shield)와 미네랄 오일(Mineral oil)과 섬광체를 섞은 능동 차폐체(Active shield)를 이용하여

이중 차폐가 되어 있다.

수동 차폐체는 시료가 계측되는 위치를 기준으로 두께가 20cm이며, 전체 질량이 640kg에 달하는 비대칭 형태로 구성되어 있고, 능동 차폐체는 주계수관을 원통형으로 감싸고 있어 우주선이 들어올 때 주계수기와 능동 차폐체 외부에 설치되어 있는 Guard 계수기에 동시에 계측되면 시료 계측에 의한 신호가 아니라 판단하여 주계수기 신호에서 우주선에 의한 신호를 제거하고 있다[7,8].



## 제3절 불확실성 요인 분석

### 1. Geometry 및 Activity 차이 분석

환경시료 내에 존재하는  $^3H$ 의 농도를 비교적 정확하게 분석하기 위해서는 계측하기 전 계측장비에 대한 검·교정을 수행해야 하는데, 검·교정을 수행하는 과정에서 각 분석기관마다 계측 조건 및 방법이 다를 수 있고, Activity와 Geometry 차이 등과 같은 불확실성이 존재할 수 있다.

국내 많은 기관에서는 장비에 대한 교정을 수행할 때 Activity가 20만 DPM인 고상 형태의  $^3H$  선원을 사용하고 있기 때문에 실제 환경시료를 계측할 때와는 물리적 및 기하학적인 조건이 서로 다르다.

즉, 환경시료의 경우 시료와 섬광체가 측정용기 내부에서 균일하게 혼합된 상태로 계측되고, Activity 또한 낮지만 Activity가 높은 고상 형태의  $^3H$  선원을 사용하여 장비에 대한 교정을 수행할 경우 실제 환경시료 계측 조건과는 Activity와 Geometry 차이가 존재한다는 것이다.

고상  $^3H$  표준선원의 형상을 제시한 [그림 2.7]을 통해 볼 수 있듯이 수용성인 고상  $^3H$  선원은 비수용성인 플라스틱 용기 내부에 Coating된 형태로 존재하고 있고[15], 플라스틱 용기 상부를 밀봉함으로써  $^3H$  선원이 주위 환경으로 휘발되는 것을 방지하고 있다.

따라서 고상  $^3H$  선원을 이용하여 교정용 시료를 제작할 때에는 용기 상부의 밀봉 부위를 제거한 후, 선원을 측정용기 내부에 삽입하여 섬광체 및 증류수와 혼합을 시키게 된다.

Cylinder 형태의 플라스틱 용기 내부에 Coating된 고상선원은 수용성이기 때문에 증류수에 쉽게 녹지만 비수용성인 플라스틱 용기는 계측이 완료될 때까지 측정용기인 Vial 내부에 존재하기 때문에 이러한 플라스틱 용기가 측정 결과에 영향을 미칠 수 있을 것으로 판단되고, 또한, 원전주변의 환경시료 내부에 존재하는  $^3H$

농도는 MDA(Minimum Detectable Activity)~수십 Bq/ℓ로 상당히 낮았고, 규제 기관의 교차분석에 사용되는 농도 역시 300~400 Bq/ℓ 정도[16]이기 때문에 Activity가 20만 DPM인 고상형태의  $^3H$  선원을 이용하여 교정을 수행할 경우 환경시료의 Activity와는 상당한 차이가 있게 되고, 이로 인해 환경시료 내부에 존재하는  $^3H$  농도를 비교적 정확하게 파악하는데 영향을 미칠 수 있을 것으로 판단되지만 판단할 수 있는 근거자료가 없다.



[그림 2.7] 고상선원 사진

## 2. 기존의 계측 조건 및 방법론 분석

자료 조사[10,15,17]에 의하면  $^3H$ 를 분석하는 대부분의 분석기관에서는 장비에 대한 교정을 수행할 때는 외부선원의 조사시간과 측정방법으로 장비공급사에서 권장하고 있는 15초와 Replicate 방법을 적용하여 소광보정 및 교정곡선을 작성하는 반면, 환경시료를 계측할 때는 각각 15초와 Repeat 방법을 사용하고 있기 때문에 측정방법에 있어서 차이점이 존재하였다.

위에서 거론한 Replicate 방법은 시료를 1회씩 독립적으로 측정하는 방법으로써 Rack에 장착된 시료는 기계적 작동에 의해 계측 위치로 옮겨진 후 계측이 되고, 계측이 끝난 시료는 기계적 작동에 의해 다시 Rack으로 복귀하게 된다. 위의 방법에 의해 시료를 1회씩만 계측할 경우 매회 계측을 수행할 때마다 기계 및 전기적

작동에 의한 Noise가 많이 발생할 수 있을 것으로 판단된다.

반면, Repeat 방법은 Rack에 장착된 시료를 계측할 때 기계적 작동에 의해 측정 위치로 옮겨진 시료를 사용자가 지정한 횟수만큼 계측을 완료한 후 다시 Rack으로 복귀하는 방식이다. 즉, 시료에 대한 계측을 연속적으로 수행하기 때문에 독립적으로 계측하는 Replicate 방식에 비해 기계적 및 전기적 작동이 상대적으로 적기 때문에 Noise 현상을 줄일 수 있을 것으로 판단되지만 이에 대해 정량화된 결과가 없다.

그리고 Quantulus 1220 장비는 계측하기 전에 LSC 기기 내부에 장착된 감마표준선원(External standard source)인  $^{152}\text{Eu}$  (Europium-152)로부터 나오는 감마선을 시료에 주어진 시간동안 조사시킴으로써 시료 내부에 존재하는 소광정도를 파악하고 있으며, 외부선원의 조사시간을 증가시킬수록 방사선과 물질과의 반응확률은 증가하고 이로 인해 계측 정확도 및 정밀도는 증가할 것으로 판단되지만 대부분의 분석기관에서는 장비에 대한 검·교정뿐만 아니라 환경시료를 계측할 때도 장비공급사에서 권장하고 있는 15초를 사용하고 있다.

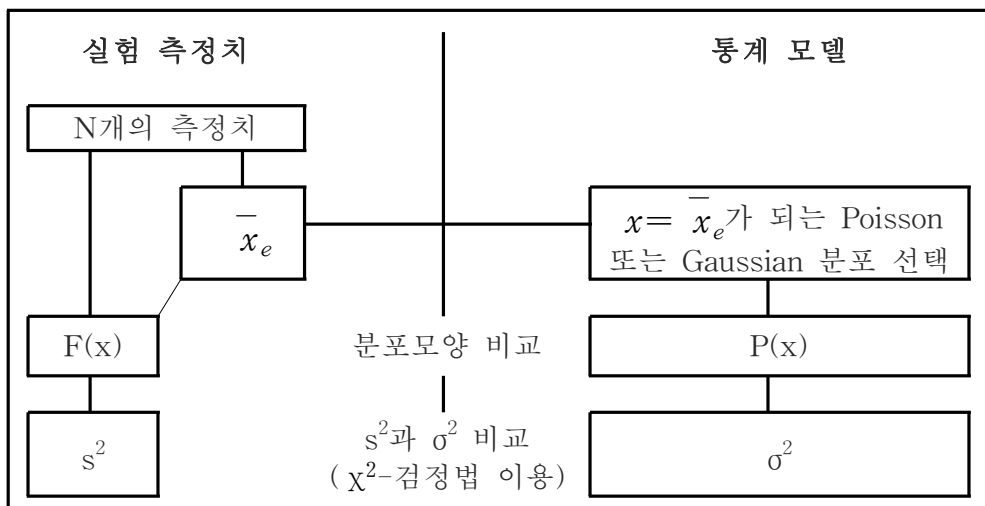
## 제4절 검증방법론 분석

계측 장비를 이용하여 실험 및 계측을 수행한 후 그 결과를 분석하기 전에 계측 결과에 대한 검증을 필수적으로 수행해야 하는데, 본 논문에서는 계측 결과를 검증하기 위해 Chi-square test와 방사능오차분석법을 적용하였다.

### 1. Chi-square test( $\chi^2$ -test)

$\chi^2$ -test는 측정치의 분산과 통계모델에 의해 계산된 분산을 비교 분석함으로써 계측장비의 정상작동 여부를 정량적으로 검증하는데 사용되고 있는 일반적인 방법이다[9,10,18].

즉, 이 방법은 품질관리 일환으로 계측장치의 정상적인 동작을 확인하려고 할 때 측정 장치의 실험조건을 일정하게 유지한 상태에서 20~50회 정도 반복해서 측정을 한 후 측정값들의 요동이 통계적으로 예측되는 요동과 비교하여 비정상적으로 큰 요동이 관측될 때 계측기에 이상이 있다고 판단하는 검증 방법으로서  $\chi^2$ -test를 이용한 검증 방법 및 절차를 [그림 2.8]에 도식화하였다.



[그림 2.8] 측정치와 통계모델과의 일치 유·무 점검

계측장비를 이용하여 시료를 반복적으로 계측하였을 때 [그림 2.8]에서와 같이 통계모델을 이용하여 계측장비의 정상유무를 점검하는 절차는 다음과 같다.

- 가. 측정값의 도수분포함수{F(x)}, 실험평균( $\bar{X}_e$ ), 표본분산( $s^2$ )을 구함.
- 나. 측정치의 평균 크기에 따라 통계모형인 Poisson distribution이나 Gaussian distribution을 선택함.
- 다.  $\bar{X} = \bar{X}_e$ 로 놓고 선택한 통계분포{P(x)}와 실험에서 얻은 F(x)와 모양 및 크기를 정성적으로 비교.
- 라. 측정치의 분산( $s^2$ )과 통계모델의 분산( $\sigma^2$ )을 정량적으로 비교하고, 비교할 때  $\chi^2$ -test 이용.

위의 절차에서  $\chi^2$ -test는

$$\chi^2 = \frac{1}{x_e} \sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x}_e)^2 \quad (2.7)$$

로 정의되고, 위의 식(2.7)에서  $x_i$ 와  $\bar{x}_e$ 는 각각 측정값과 실험평균이며, 위의 식(2.7)을 표본분산으로 표현하면

$$\chi^2 = \frac{(N-1)s^2}{x_e} \quad (2.8)$$

이 되고, 식(2.8)은 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$\frac{s^2}{x_e} = \frac{\chi^2}{(N-1)} \quad (2.9)$$

위의 식(2.9)에서 측정치의 분포가 Poisson 분포와 비슷하다면  $s^2 \cong \sigma^2 = \bar{x}$ 이 되고, 일반적으로  $\bar{x} = \bar{x}_e$ 가 되도록 선택을 하기 때문에 결국 식(2.9)은 아래와 같이 된다.

$$\frac{s^2}{x_e} \cong \frac{s^2}{\sigma^2} \quad (2.10)$$

따라서 측정치의 표본분산이 예측분산과 일치한다면 식(2.10)의 오른쪽은 1이 되는데, 이는 결국  $\chi^2$ 가 (N-1)보다 얼마만큼 다른가에 따라 측정치의 표본분산이 예측분산에서 얼마나 벗어나는가를 알 수 있게 해주고, (N-1)은  $\chi^2$ 의 값을 얻기 위해 이용된 측정횟수 N보다 1만큼 작은 값인 통계자유도  $\nu$ 을 의미한다.

일반적으로  $X^2/\nu$  분포는 통계자유도( $\nu$ )와 확률(P)의 함수로 표로 제시되는데, 식(2.8)에 의해  $X^2/\nu$ 을 계산한 다음 표를 이용하여 자유도( $\nu=N-1$ )와  $X^2/\nu$ 값에 해당하는 확률을 구한다.

구해진 확률이 매우 낮으면( $P<0.02$ ) 비정상적으로 큰 요동이 발생했음을 나타내는 것이고, 확률이 매우 높으면( $P>0.98$ ) 측정치가 너무 규칙적이어서 비정상적으로 작은 요동이 발생하였음을 보여주는 것으로 측정치가 완벽하게 Poisson 분포와 일치할 때 확률 P는 0.5에 수렴하게 된다.

여기서 P는 Poisson 분포로부터 얻은 임의의 표본이 표에 제시된 특정한 값보다 더 큰  $X^2/\nu$ 의 값을 가질 확률로 정의된다.

$\chi^2$ -test는 위에서 기술한 방법 및 절차에 따라 계측 장비의 정상작동 여부를 통계적으로 검증하는 방법으로써 계측 결과에 대한 직접적인 검증 수단으로 사용하기에는 무리가 있을 것으로 판단하여 본 논문에서는  $\chi^2$ -test를 계측 결과에 대한 간접적인 검증수단으로만 활용하였고, 직접적인 검증방법으로 방사능오차분석법을 활용하였다.

## 2. 방사능오차분석법

장비에 대한 검·교정을 수행할 때와 환경시료를 계측할 때 존재하는 Geometry 및 Activity 차이에 의한 영향을 평가하기 위해서 구입한  $^3H$  표준선원을 이용하여 혼합비별로 교정용 시료를 제작한 후 계측을 수행하게 되는데, 본 논문에서는 계측 결과를 검증하기 위해 측정 데이터에 대한  $\chi^2$ -test를 수행함으로써 장비의

정상작동 여부를 파악한 후  $\chi^2$ -test를 통과한 데이터만을 이용하여 방사능오차분석을 수행하였다.

방사능오차분석법은 교정용 시료를 제작하는 과정에서 알고 있거나 제시되어 있는 Activity와 측정결과에 의해 제시된 Activity를 비교 분석함으로써 측정 결과를 직접적으로 검증하는 방법으로써 본 논문에서는 혼합비가 3:17, 5:15, 8:12인 시료를 검증 대상 시료로 선정하여 검증을 수행하였으며 구체적인 방법 및 절차는 다음 절에서 상세히 기술하였다.

## 제3장 연구 방법

### 제1절 시료설계 및 제작

Geometry 및 Activity 차이에 의한 영향을 평가하기 위해 Activity가 20만 DPM인 고상  $^3H$  선원 1종류와 Activity가 20만/10만/3만/1만/3천/1천/5백/1백 DPM인 액상  $^3H$  선원 8종류를 이용하여 시료(선원+초순수 또는 증류수)와 섬광체를 일정한 비율로 혼합함으로써 총 90개 시료를 제작하였고, 본 논문에서 설계 및 제작한 시료의 혼합비 범위는 1:19~10:10으로 총 10개 Series를 1개 set로 선정하여 총 9 set 시료에 대한 계측을 수행하였다.

이러한 계측 후 교정 곡선에 대한 검증을 수행하기 위해 고상 20만 DPM과 액상 20만/10만/3만/1만/3천/1천/5백/1백 DPM 선원을 이용하여 총 50개 정도의 검증용 시료를 제작하였다.

또한 본 실험을 수행하기 전에 예비실험을 통해 실험 결과에 영향을 미칠 수 있는 변수를 도출한 후 각 변수에 대한 영향을 파악함과 동시에 최적의 변수 조건을 도출하기 위해 예비실험용으로 약 100개 시료를 제작하였다.

이와 관련된 측정 및 교정용 시료는 [그림 3.1]에 나타내었다.



[그림 3.1] 제작된 측정 및 교정용 시료



## 제2절 예비실험

예비 실험을 통해 계측 및 측정 결과에 영향을 미칠 수 있는 변수를 도출한 후 정량적인 방법으로 민감도 분석을 수행하였고, 그 결과에 근거하여 본 실험을 수행하였으며, 계측 결과를 검증하기 위해 Chi-square test와 방사능 오차분석법을 활용하였다.

### 1. Performance test

Quantulus 1220 액체섬광계수기를 이용하여 Geometry 및 Activity 차이에 따른 영향을 평가하기 이전에 이 장비에 대한 Performance test를 수행할 필요가 있을 것으로 판단하여 장비 구입시 장비공급사로부터 공급받은 소광물질이 들어 있지 않은 표준 시료인 LSC-Unquenched Standard Source를 사용하여 계측기의 성능을 평가할 수 있는 Performance test를 수행함으로써 장비 성능에 대한 신뢰성을 확인하였다. 이와 관련하여 Unquenched Standard Source를 [그림 3.2]에 나타내었다.



그림 3.2 Unquenched Standard Source

## 2. 액·고상 선원의 불확실성 분석

본 논문의 궁극적인 목적은 액·고상 형태의  $^3H$  선원을 이용하여 장비에 대한 검·교정을 수행하는 단계부터 원전주변의 환경시료를 분석하는 과정에 이르기까지 발생할 수 있는 오차 및 불확실성을 최소화하기 위한 것이고, 검·교정이 가능한 최저 Activity 농도를 제시함으로써 고농도 방사성폐기물 발생량을 저감화할 수 있는 방안을 제시하기 위한 것이다.

따라서 본 실험을 수행하기 전에 사용된 선원자체에 대한 불확실성 평가가 선행되어야 할 것으로 판단하여 사용된  $^3H$  선원에 대한 불확실성 분석을 수행하였다.

## 3. 시료 제작시의 불확실성 분석

실험을 수행하기 위해서는 필요한 기자재를 이용하여 적정량의 시료를 분취한 후 섬광 용액과 일정한 비율로 혼합함으로써 최종적으로 검·교정 및 분석용 시료를 제작하게 되는데, 이때 Syringe, Dispenser 및 전자저울 등을 사용하는 과정에서 인적실수에 의한 불확실성이 발생할 수 있고, 측정 용기인 Teflon vial의 무게와 전자저울 자체의 정밀도 등의 물리적 요인에 의한 불확실성이 발생할 수 있을 것으로 판단하여 이에 대한 정량적인 평가를 수행하였다.

### 가. 시료 무게 측정시의 불확실성 분석

Syringe는 검·교정용 시료를 제작하기 위해 구입한 선원으로부터 일정량을 뽑아내기 위해 사용되는 주사기이고, Dispenser는 섬광 용액을 분배할 때 사용되는 기자재이다. 그러므로 시료 무게 측정에 따른 불확실성은 전자저울 자체의 불확실성과 시료에 대한 전처리 수행과 샘플링 과정에서 사용되는 Dispenser, Syringe 등을 사용하는 과정에서 발생하는 인적요인에 의한 불확실성을 의미한다.

이러한 불확실성을 정량화하기 위해 인증된 분동을 이용하여 전자저울 자체의 불확실성을 측정하였고, 위의 기기 및 기자재를 사용하는 과정마다 전자저울을 사

용하여 인적요인에 대한 오차를 측정함으로써 불확실성을 정량화하였다.

### 나. 전자저울과 측정용기에 대한 불확실성 분석

인적 요인에 의한 불확실성은 실험자의 능력에 따라서 줄일 수 있는 반면에 물리적 요인에 의한 불확실성은 실험자의 능력이나 환경에 지배 받지 않는 시스템 자체가 가지는 불확실성이라는 관점에서 중요하다. 따라서 전자저울이 가지고 있는 불확실성을 정량화하기 위하여 인증된 분동(10.0000g)을 이용하였다.

## 4. 측정용기와 혼합비 선정

국내·외 분석기관에서 사용하고 있는 측정용기인 Vial 종류로는 Teflon vial, Teflon coating vial, Plastic vial, Glass vial 등이 있다.

조사한 자료[19]에 의하면 Glass vial은 천연핵종인  $^{40}K$ 에 의한 영향을 많이 받기 때문에 거의 사용을 하지 않는 반면 대단위 분석을 수행할 경우에는 Plastic vial을, 환경용 시료와 같은 극저준위 시료는 Teflon coating vial 또는 Teflon vial을 일반적으로 많이 사용하고 있다.

따라서 본 논문에서는 일반적으로 널리 사용되고 있는 4종류의 Vial을 구입한 후 계측 및 분석을 수행함으로써 최적이라고 판단되는 용기를 선정하였다.

그리고 민감도 분석을 통해 각 변수들의 상대적인 중요도를 파악함과 동시에 최적의 계측 조건을 도출하고, 계측 결과에 대한 검증을 비교적 정확하게 수행하기 위해서 평가대상 혼합비를 선정하였다.

## 5. 민감도분석 수행

국내 분석기관에서는 검·교정을 수행할 때 측정방법으로 Replicate 방법을 적용하고 있는 반면, 환경시료를 계측할 때는 Repeat 방법을 사용하고 있기 때문에 계측 조건 및 방법에 차이점이 존재하고, 이러한 차이점으로 계측결과에 영향을 미칠 수 있을 것으로 판단된다. 또한, 외부선원의 조사시간으로 장비공급사에서 권장

하는 15초를 사용하고 있지만 조사시간을 증가시킬수록 방사선과 물질과의 반응확률이 증가하고 이로 인해 계측 정밀도 및 정확도에 영향을 줄 수 있을 것으로 판단되지만 이에 대한 실험 및 평가 결과가 없다.

따라서 본 논문에서는 측정방법과 외부선원 조사시간 외에 계측 결과에 영향을 미칠 수 있는 다른 변수를 도출한 후 민감도 분석을 통해 각 변수를 단계적으로 증·감시키거나 변수 조건을 달리함으로써 측정 결과인 SQP(E){Spectral Quench Parameter of the Energy}나 Counts에 미치는 영향을 파악함은 물론 계측 결과의 정밀도 및 정확도를 높이기 위한 최적의 변수 조건을 도출한 후 그 결과에 근거하여 본 실험을 수행하였다.

이를 위해 본 논문에서 도출한 민감도 변수는 측정용기의 무게, 시료의 방치시간, 측정방법, 외부선원의 조사시간, 계측시간으로 도출한 변수에 대한 민감도분석을 위해 8:12의 혼합비와 Background 시료를 이용하였고, Chi-square test를 수행하였다.

각 항목에 대한 상세한 내용은 아래에 기술하였다.

### 가. 측정용기 무게차이

본 논문에서 사용하고 있는 Teflon vial의 재질은 플라스틱으로 무게가 일정하지 않고, 무게가 동일하더라도 부피 및 두께가 일정하지 않을 수 있기 때문에 이에 대한 영향, 즉 무게 차이에 따라 SQP(E)와 Counts에 미치는 영향을 평가하였다.

측정용기의 무게 차이에 의한 영향을 평가하기 위해 Teflon vial 20개를 무작위로 추출한 후 그 무게를 모두 측정하였고, 측정한 무게 중 최소와 최대인 Vial을 포함하여 총 4개를 추출한 후 Quantulus 1220 장비를 이용하여 계측하였다.

### 나. 시료의 방치시간

방치시간에 따른 영향을 평가하는 목적은 제작한 시료를 냉암소에 보관했을 때 시료가 안정화되는 시간을 도출하기 위한 것이다. 따라서 장비에 대한 교정을 수행할 때 시료와 섬광체를 일정한 비율로 균일하게 혼합시킴으로써 교정용 시료를

제작한 후 냉암소에서 일정 시간동안 방치해 두지 않으면 잔상이 존재할 수 있고, 이로 인해 측정 결과에 영향을 줄 수 있을 것으로 판단하여 논 논문에서는 방치시간을 민감도 변수로 선정하여 이에 대한 영향을 평가하였다.

### 다. 측정방법

측정 방법에 대한 민감도 분석의 목적은 시료의 측정 방법을 달리함으로써 장비 자체에 전기적 및 기계적 잡음이 발생하는 정도를 평가하기 위한 것으로 본 연구에서 고려한 변수는 **Replicate**와 **Repeat**이다.

대부분의 분석기관에서 Replicate 방법을 적용하여 장비에 대한 교정을 수행한 후 Repeat 방법으로 환경시료를 계측하고 있기 때문에 검·교정과 환경시료에 대한 계측을 수행할 때 측정조건이 일치하지 않고, 이에 대한 정량적인 평가 결과가 없다. 따라서 본 논문에서는 측정 방법을 달리함에 따라 기계적 및 전기적 Noise가 어느 정도 되는지를 파악함과 동시에 측정 정밀도 및 정확도를 증가시킬 수 있는 방법을 제시하고자 하였고, 이를 위해 SQP(E) 값의 표준편차를 기준으로 전기적 Noise에 의한 영향과 경향을 평가하였다.

### 라. 외부선원의 조사시간

SQP(E)는 Compton Electron에 의해 생성된 Scintillation Spectrum의 Total Intensity 중 1%인 지점에서의 Channel Number로 정의하고 있다.

즉, Quantulus 1220 장비에서는 시료를 계측하기 전에 LSC 기기 내부에 장착된 감마표준선원(External standard source)인  $^{152}\text{Eu}$ 로부터 나오는 감마선을 시료에 주어진 시간동안 조사시켜 발생하는 Compton Electron의 Scintillation Spectrum을 기준으로 SQP(E)를 계산하고 있다[20,21,22].

이러한 개념은 방사선과 물질과의 상호작용을 정량적 및 확률적 방법으로 평가하기 때문에 외부선원의 감마선 조사시간에 따른 SQP(E) 변화 추이를 평가할 필요가 있을 것으로 판단하여 혼합비율이 8:12인 시료를 선정한 후 장비 공급사의 권장 조사시간인 15초를 기준으로 단계적으로 시간을 증가시키면서 SQP(E) 값의

변화를 파악하였다. 이와 같이 조사시간을 단계적으로 증가시킴에 따라 SQP(E) 값의 변화량이 Saturation되는 Point를 찾음으로써 계측 결과의 정밀도를 높일 수 있는 조사시간을 도출하기 위한 것으로 SQP(E) 값의 변화가 거의 없는 시간을 도출하였다.

대부분의 분석기관에서는 장비공급사에서 권장하는 15초를 적용하여 검·교정 및 환경시료에 대한 계측을 수행하고 있기 때문에 민감도분석을 통해 도출한 조사시간을 적용하여 검·교정 및 환경시료에 대한 계측을 수행할 경우 계측 정밀도가 증가할 것으로 판단하여 도출한 조사시간에 근거하여 본 실험을 수행하였다.

### 마. 계측 시간

LSC는 기본적으로 방사선과 물질과의 상호작용을 이용함으로써 환경시료 내부에 존재하는  $^3H$  농도의 양을 파악하기 때문에 계측시간을 길게 할수록 방사선과 물질과의 상호작용 확률은 증가하고, 이로 인해 계측 정확도는 증가하지만 시간적·효율적·경제적 측면에서 계측 시간을 무한정 증가시킬 수 없다.

그러므로 Activity가 높은 검·교정용 선원의 경우 계측시간을 짧게 하더라도 10분 이내의 빠른 시간 안에 검·교정용 선원 내부에 존재하는 거의 대부분의  $^3H$  농도가 계측될 수 있지만 Background 시료의 경우 Activity가 낮기 때문에 검·교정용 선원에 비해 계측시간에 따라 민감한 반응을 보일 수밖에 없다.

따라서 본 논문에서는 Activity가 낮은 Background 시료를 대상으로 최적의 Counts와 MDA를 만족할 수 있는 계측시간을 도출함으로써 계측 및 분석 결과에 대한 신뢰성을 확보한 후 장비에 대한 검·교정을 수행할 때 도출된 계측시간을 적용함으로써 계측 정밀도 및 정확도를 증가시키고자 하였다.

## 제3절 본 실험 수행

### 1. Geometry 차이에 대한 영향 평가

장비에 대한 검·교정을 수행할 때와 환경시료를 계측할 때 존재하는 Geometry 차이에 의한 영향을 평가하기 위해 본 논문에서는 Activity가 20만 DPM인 고상 및 액상 형태의  $^3\text{H}$  선원을 이용하여 선원, 증류수, 섬광체를 일정한 비율로 혼합함으로써 총 20개의 교정용 시료를 제작하였다.

제작한 시료를 Quantulus 1220 장비를 이용하여 계측함으로써 소광 보정 및 교정 곡선을 작성하였고, 작성한 소광 보정 및 교정 곡선에 대한 검증을 수행하였다.

그리고 본 논문에서는 교정 단계와 검증 단계로 구분하여 실험 및 계측 방법론을 상세히 기술하였고, 각 단계마다 『기존 방법』을 적용한 경우와 민감도분석 및 예비 실험 결과를 적용한 경우로 『제안한 방법』으로 구분하여 교정 및 검증을 수행하였으며, 검·교정 결과에 근거하여 Geometry 차이에 의한 영향을 최종적으로 평가하였다.

본 논문에서 기술한 『기존 방법』은 교정을 수행할 때 외부선원의 조사시간과 측정방법으로 15초와 Replicate를 적용하고, 검증을 수행할 때는 15초와 Repeat를 적용한 경우를 의미하는 반면, 『제안한 방법』은 장비에 대한 검·교정뿐만 아니라 환경시료에 대한 계측을 수행할 때에도 외부선원의 조사시간과 측정방법으로 75초와 Repeat를 적용한 경우를 의미한다.

#### 가. 교정

본 논문에서는 교정 곡선을 작성하는 방법으로 기존의 방법론을 적용한 경우와 제안한 방법을 적용하여 작성하는 경우로 구분하였다.

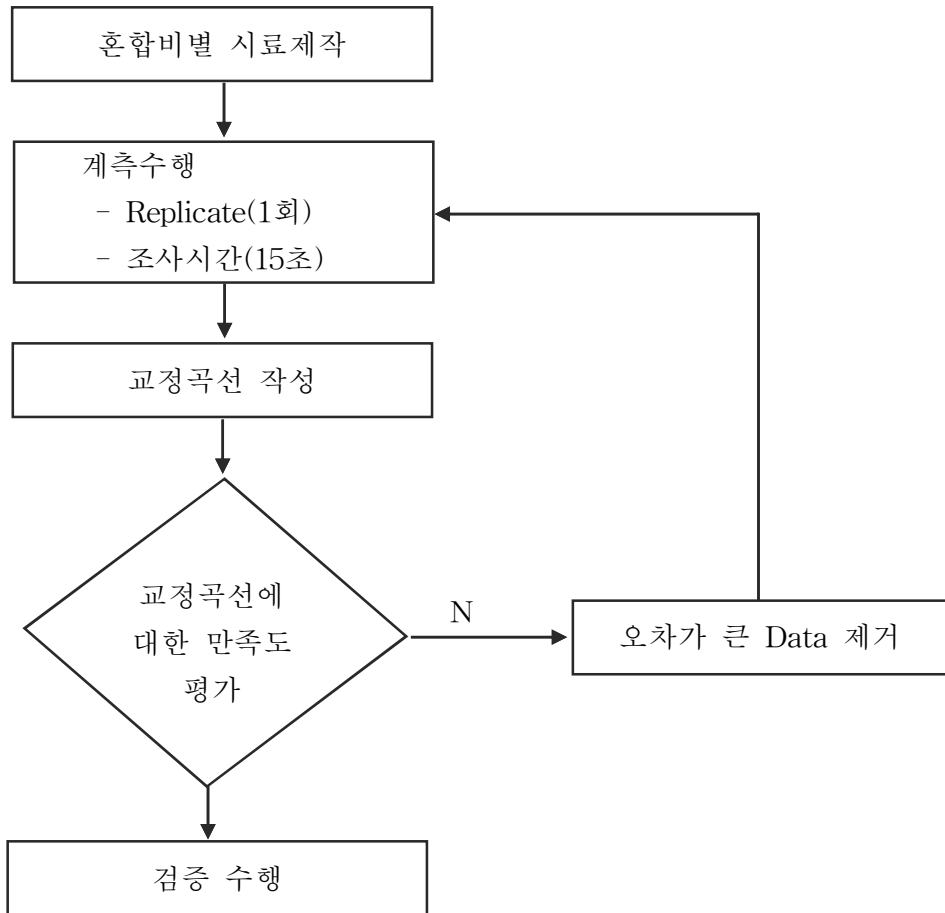
두 방법 간의 유일한 차이는 민감도분석 결과의 반영 여부에 있다. 따라서 본 논문에서는 민감도분석 결과에 근거하여 본 실험을 수행하였기 때문에 외부선원의

조사시간과 측정방법으로 각각 75초와 Repeat 방법을 적용하여 장비에 대한 검·교정뿐만 아니라 환경시료에 대한 계측을 수행하였다.

또한, 본 논문에서는 제안한 방법을 근거로 하여 교정 곡선을 작성한 후 검증을 수행하였고, 제안한 방법에 대한 타당성을 제시하기 위해 기존의 방법론을 적용하여 작성한 소광 보정 및 교정 곡선과 비교 분석을 수행했을 뿐만 아니라 검증 결과에 대한 비교 분석도 수행하였다. 기존의 교정 방법은 아래에 상세히 기술하였고, [그림 3.3]에 도식하여 나타내었다[23].

- (1) 소광보정 및 교정 곡선을 작성하기 위해 Activity가 20만 DPM인 고상 및 액상 형태의  $^3H$  표준선원을 사용하여 혼합비별로 총 20개의 교정용 시료를 제작
- (2) 제작한 시료를 계측할 때 외부선원인  $^{152}Eu$ 의 조사시간으로 장비공급사에서 권장하는 15초와 Replicate 방법을 적용
- (3) 계측 결과에 근거하여 소광보정 및 교정곡선을 작성
- (4) 작성된 소광 보정 및 교정 곡선에 대한 만족 여부 판단
- (5) 만족하지 못할 경우 오차가 높게 나타나거나 튀는 data를 제거한 후 (1)의 단계로 복귀하고, 만족할 경우 (6)의 단계로 넘어감
- (6) 소광 보정 및 교정 곡선 작성을 완료하고, 검증 단계로 넘어감

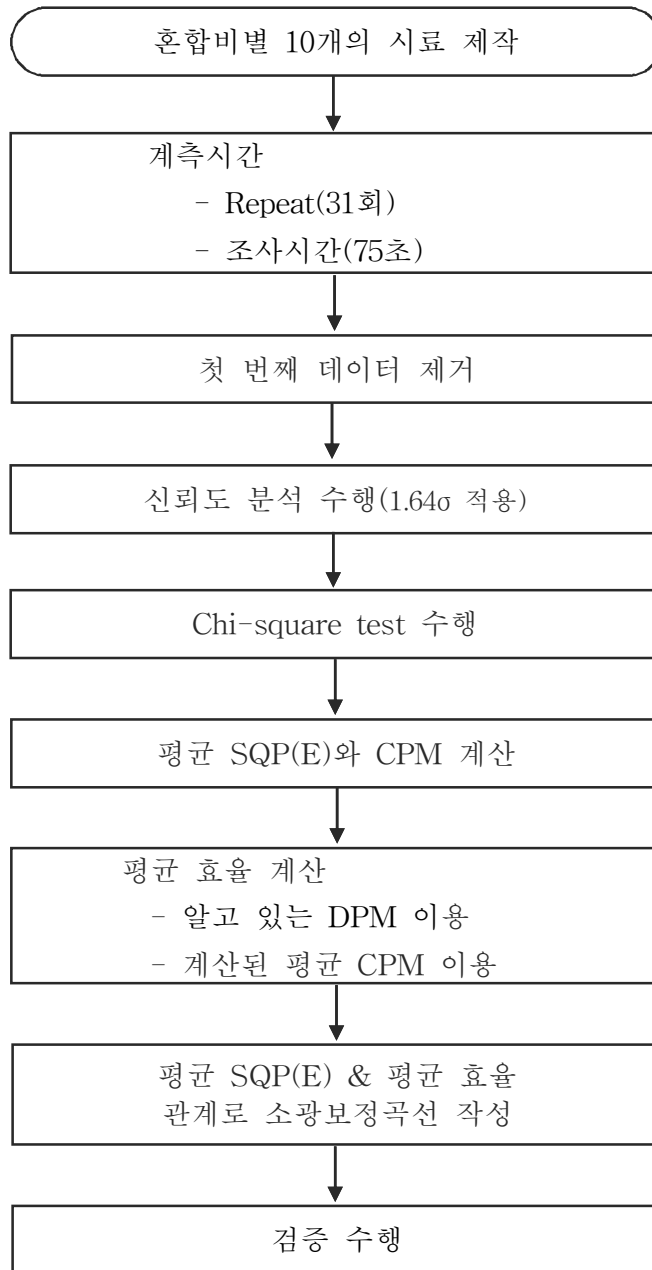




[그림 3.3] 기존 방법을 적용할 경우의 교정절차

본 논문에서 제안한 방법은 민감도 분석 결과를 최대한 반영하여 계측을 수행한 것으로 계측 결과에 대한 Chi-square test와 신뢰도 분석을 수행한 후 소광보정곡선을 작성하였으며 상세한 사항은 아래에 기술하였고, 아래에 기술한 절차를 가시화하기 위해 [그림 3.4]에 제안한 방법에 대한 변경교정 절차를 도식하였다.

- (1) Activity가 20만 DPM인 고상 및 액상 형태의  $^3H$  표준선원을 이용하여 혼합비별로 총 20개의 교정용 시료 제작
- (2) 제작한 시료는 외부선원 조사시간과 측정방법으로 각각 75초와 Repeat(31 계측)방법을 적용하여 계측
- (3) 기계 및 전기적 노이즈에 의한 영향을 최소화하기 위해 31회 계측한 결과들 중 첫 번째 데이터는 제거
- (4)  $1.64\sigma$ 를 적용하여 나머지 30개 데이터에 대한 신뢰도분석을 수행
- (5) 90% 신뢰구간에 포함된 데이터만을 이용하여 Chi square test를 수행
- (6) Chi-square test 및 신뢰도 분석 후 계산된 평균 SQP(E) 활용
- (7) 알고 있는 DPM과 계산된 평균 CPM을 이용하여 평균 효율 계산
- (8) 계산된 효율과 SQP(E)의 관계로 소광보정곡선 작성
- (9) 검증 단계로 넘어감



[그림 3.4] 제안한 방법을 적용할 경우의 교정절차

기존 방법의 경우 외부선원의 조사시간과 측정방법으로 각각 15초와 Replicate를 사용하여 1회씩 측정한 후, 교정 곡선을 작성할 때 사용자가 판단을 하기 때문에 인적 오류가 발생할 수 있고, 측정 정확도 및 정밀도가 낮을 것으로 판단된다.

반면, 제안한 방법을 적용할 경우 Cycle 방식으로 제작한 시료를 31회씩 측정하고, 외부선원의 조사시간도 기존 방법에 비해 길기 때문에 기존 방법에 비해 측정 정밀도 및 정확도를 높일 수 있을 뿐만 아니라 인적 오류에 의한 오차를 줄일 수 있을 것으로 판단된다.

## 나. 검증

교정 곡선을 작성할 때 기존 방법을 적용한 경우와 제안한 방법을 적용한 경우로 구분하여 작성하였기 때문에 교정 곡선에 대한 검증을 수행할 때도 교정 단계에서와 동일하게 기존 방법과 제안한 방법으로 검증을 수행하였다.

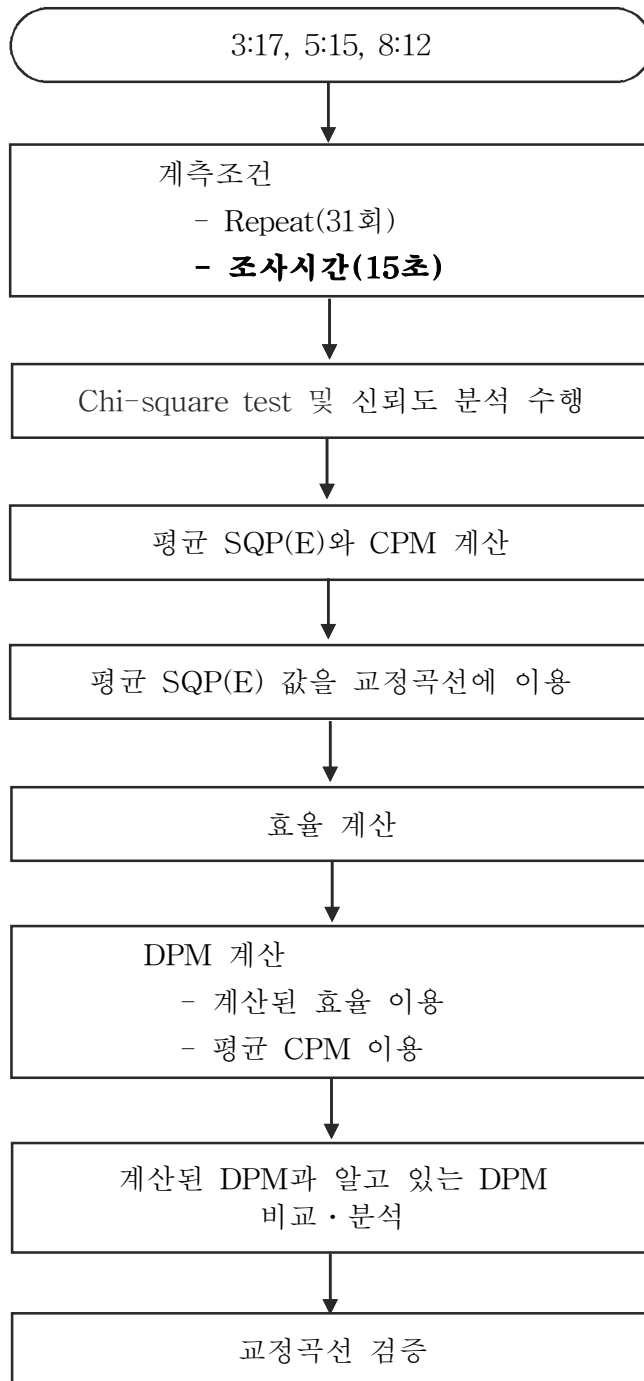
기존 방법과 제안한 방법의 유일한 차이는 민감도 분석결과의 반영여부에 있지만 이 두 방법 모두 방사능오차분석법을 이용하였다.

본 논문에서 교정 곡선을 검증하기 위해 사용된 방사능오차분석법은 교정용 시료를 제작하는 과정에서 알고 있는 Activity 농도와 측정 및 계산 결과로 나타난 Activity를 비교 분석하여 검증하는 방법으로써 혼합비가 3:17, 5:15, 8:12인 시료를 검증 대상 시료로 선정하였고, 기존 방법을 이용한 경우의 검증 방법을 아래에 자세히 기술하였고, 아래에 기술한 절차를 [그림 3.5]에 나타내었다.

- (1) 혼합비가 3:17, 5:15, 8:12인 시료에 대한 재 측정 수행
- (2) Repeat(31회 측정) 방법 적용
- (3) 외부선원의 조사시간으로 **15초 사용**
- (4) 기계 및 전기적 노이즈에 의한 영향을 최소화하기 위해 31회 측정한 결과들 중 첫 번째 데이터는 제거
- (5)  $1.64\sigma$ 를 적용하여 나머지 30개 데이터에 대한 신뢰도분석을 수행
- (6) 90% 신뢰구간에 포함된 데이터만을 이용하여 Chi square test를 수행
- (7) Chi-square test와 신뢰도분석을 수행한 후 평균 CPM, SQP(E) 계산

- (8) 계산된 SQP(E) 평균값을 교정 곡선에 적용함으로써 효율 계산
- (9) 계산된 효율과 평균 CPM을 이용하여 DPM계산
- (10) 알고 있는 DPM과 계산된 DPM을 비교함으로써 소광보정곡선에 대한 검증을 수행

위의 절차에서 (8)~(10) 과정이 방사능오차분석법으로, 본 논문에서는 이 방법을 이용하여 작성한 소광보정곡선에 대한 검증을 수행하였다.



[그림 3.5] 교정용 시료를 재 계측할 경우의 검증절차(기존 방법)

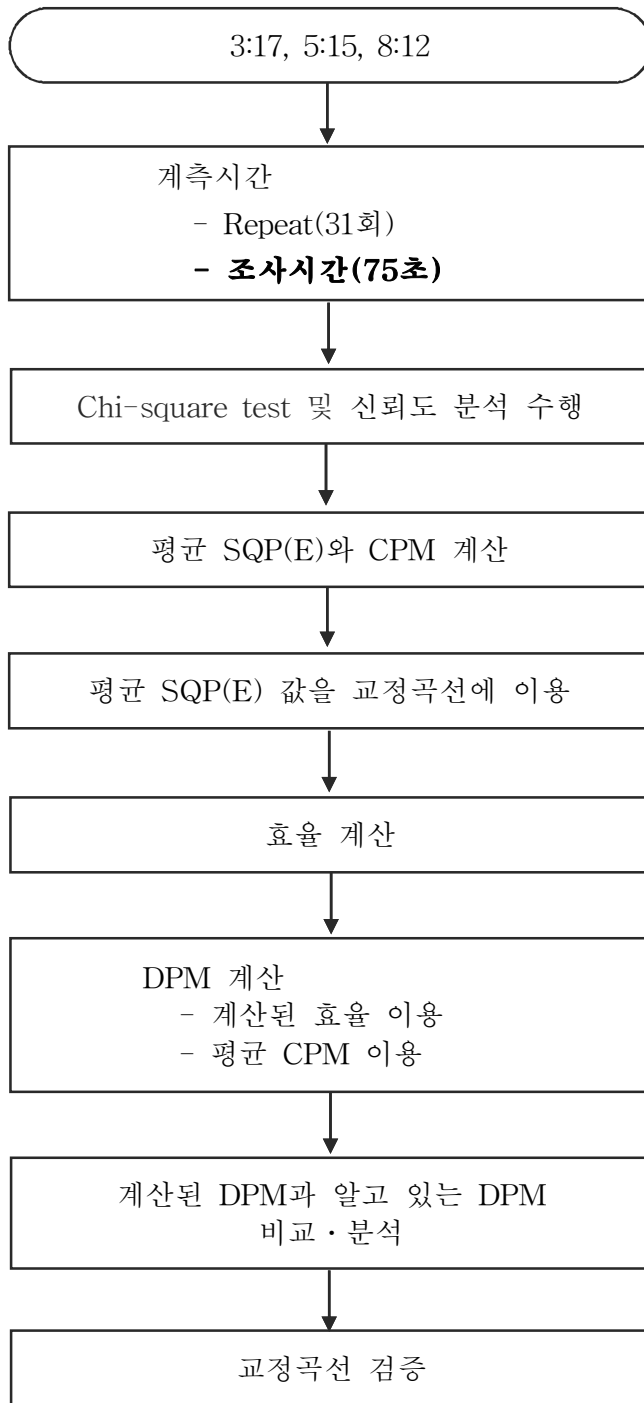
제안한 방법을 적용할 경우의 검증 방법으로 두 가지를 적용하였다.

첫 번째 방법은 혼합비별로 조제한 10개의 교정용 시료들 중 혼합비가 3:17, 5:15, 8:12인 시료를 재 계측하여 검증하는 방법이고, 두 번째 방법은 검증용 시료를 추가적으로 제작한 후 계측하는 방법이다.

두 방법의 근본적인 차이는 검증용 시료를 추가적으로 제작하였는지의 여부에 차이가 있을 뿐 나머지 방법은 실제 환경시료를 계측할 때 사용되고 있는 방법과 동일하다.

따라서 검증용 시료를 추가적으로 제작하여 검증하는 방법에 대해서는 언급 및 기술을 하지 않았고, 교정용 시료를 재 계측하여 검증하는 방법 및 절차에 대해서는 아래에 상술하였고, 아래에 기술한 절차를 [그림 3.6]에 나타내었다.

- (1) 혼합비가 3:17, 5:15, 8:12인 시료에 대한 재 계측 수행
- (2) Repeat(31회 계측) 방법 적용
- (3) 외부선원의 조사시간으로 **75초 사용**
- (4) 기계 및 전기적 노이즈에 의한 영향을 최소화하기 위해 31회 계측한 결과들 중 첫 번째 데이터는 제거
- (5)  $1.64\sigma$ 를 적용하여 나머지 30개 데이터에 대한 신뢰도분석을 수행
- (6) 90% 신뢰구간에 포함된 데이터만을 이용하여 Chi square test를 수행
- (7) 계측 결과에 대한 Chi-square test와 신뢰도분석을 수행한 후 평균 CPM과 SQP(E) 계산
- (8) 계산된 SQP(E) 평균값을 교정 곡선에 적용함으로써 효율 계산
- (9) 계산된 효율과 평균 CPM을 이용하여 DPM계산
- (10) 알고 있는 DPM과 계산된 DPM을 비교함으로써 교정곡선에 대한 검증을 수행



[그림 3.6] 교정용 시료를 재 계측할 경우의 검증절차(제안한 방법 적용)



## 다. Geometry 차이에 대한 영향 평가

검 · 교정과 실제 환경시료를 계측할 때 존재하는 Geometry 차이에 의한 영향을 평가하기 전에 먼저 예비 실험을 통해 실험적 error를 줄임으로써 본 실험을 수행하는데 걸리는 시간을 단축시키고, 인적실수를 최소화시킬 뿐만 아니라 Geometry 차이에 의한 경향을 미리 파악하였다.

예비 실험에서 Activity 20만 DPM인  $^3H$  선원을 이용하여 혼합비별로 총 20개의 교정용 시료를 제작한 후 계측을 수행하였고, 예비 실험을 수행한 후 계측 정밀도 및 정확도를 증가시킴으로써 검 · 교정을 수행하는 과정에서 존재할 수 있는 오차 및 불확실성을 감소시키기 위해 측정 결과에 영향을 미칠 수 있는 변수를 도출한 후 민감도 분석을 수행함으로써 각 변수들의 상대적인 중요도를 파악함과 동시에 최적의 계측 조건을 도출하였다.

그리고 예비 실험 및 민감도 분석 결과와 Chi-square test, 신뢰도 분석 결과를 반영하여 교정 곡선을 작성하였고, 교정 곡선에 대한 검증을 수행하기 위해 방사능오차분석법을 이용하였으며, 제안한 방법을 이용하여 장비에 대한 검 · 교정을 수행하는데 있어서 본 논문에서 제안한 방법에 대한 타당성을 제시하기 위해 기존의 방법과 비교 분석을 수행하였다.

장비에 대한 검 · 교정을 수행하고 난 후 Geometry 차이에 의한 영향을 종합적으로 평가함으로써 선원의 형태에 의한 영향과 비수용성인 플라스틱 용기의 역할에 대한 원인 규명을 수행하였다.

또한, 검 · 교정을 수행할 때와 실제 환경시료를 계측할 때에는 Geometry 차이 외에 Activity 차이가 존재하고, 이 두 변수는 독립적이 아닌 상호 영향을 미치는 변수이기 때문에 Activity 차이에 의한 영향과 병행하여 평가를 수행하였다.

## 2. Activity 차이에 대한 영향 평가

앞에서 기술한 『1. Geometry 차이에 대한 영향 평가』에서와 동일하게 Activity 차이에 의한 영향을 평가하기 전에 예비 실험을 통해 계측 정밀도 및 정확도를 증가시키고 최적의 계측 조건을 도출하기 위해 민감도 분석을 수행하였으며, 민감도

분석 결과에 근거하여 계측을 수행하였다.

Activity에 의한 영향을 평가하기 위해 Activity가 20만/10만/3만/1만/3천/1천/5백/1백 DPM인  $^3H$  표준 선원을 이용하여 시료와 섬광체의 혼합비별로 총 80개의 교정용 시료를 제작한 후 예비 실험 및 민감도 분석 결과를 반영하여 계측을 수행하였고, 계측 결과에 대한 Chi-square test와 신뢰도 분석을 수행한 후 Chi-square test를 통과한 데이터만을 이용하여 교정 및 소광보정 곡선을 작성하였다.

제작한 교정용시료 중 Activity가 1백~3천 DPM인 액상 형태의  $^3H$  선원은 1만 DPM인  $^3H$  표준선원을 증류수로 희석하여 사용하였기 때문에 인적실수가 들어갈 수 있을 것으로 판단하여 시료를 제작하는 과정에서 발생할 수 있는 인적실수를 정량화 한 후 그 결과를 적용하였다.

Activity 차이에 의한 영향평가는 사용된  $^3H$  표준선원 이외의 모든 방법 및 절차는 『1. Geometry 차이에 대한 영향 평가』에서와 동일한 방법을 적용하여 소광보정 및 교정 곡선을 작성한 후 검증을 수행하였고, 또한 검·교정 단계에서부터 원전 주변의 환경시료를 측정하는 과정에 존재하는 Activity 및 Geometry 차이는 독립적으로 영향을 미치는 것이 아니라 상호 의존적인 변수이다.

따라서 본 논문에서는 Geometry 차이에 의한 영향을 먼저 평가한 후, Activity 차이에 의한 영향을 평가함으로써 각 항목의 중요도를 정량적으로 제시하였고, 장비에 대한 검·교정을 수행하는 과정에서부터 환경시료를 계측하는 단계에 이르기까지 종합적으로 평가하는 과정에서 Activity 차이에 의한 영향이 나타날 경우 그 원인을 규명하였으며, 관련 상관식 및 보정식을 제시하였다.

## 제4장. 연구 결과

### 제1절. 예비실험 결과

#### 1. Performance test 결과

Quantulus 1220 액체섬광계수기와 장비 제조사로부터 공급받은 소광물질이 들어 있지 않은 Unquenched Standard Source를 사용하여 성능 테스트한 결과를 [표 4.1]에 나타내었다.

[표 4.1]에 보여주듯이 6개월 간격으로 3회에 걸쳐 Performance test를 수행한 결과시간이 지남에 따라 장비의 성능은 지속적으로 완만하게 감소하는 것을 볼 수 있다.

장비 성능이 선형적으로 완만하게 감소하는 것은 노후화에 의해 나타나는 기계적·물리적 현상으로써 문제는 되지 않지만 성능이 급격하게 감소하거나 튀는 경우에는 장비에 문제가 있는 것으로 봐야 한다.

그러나 본 논문에서는 성능이 급격하게 변하는 경향은 보이지 않았기 때문에 장비에는 큰 문제가 없는 것으로 판단하였다.

[표 4.1] Performance test 결과

구 분	1회	2회	3회	비고
인증값(dpm)	192,500	192,500	192,500	6개월 단위로 실시
반감기보정값(dpm)	189,229.81	183,902.47	178,642.36	
Blank (cpm)	8.9	8.3	8.3	
계측값 net (cpm)	123,298.8	119,352.7	115,317.84	
효율(%)	65.16	64.90	64.55	

## 2. 액·고상 선원에 대한 불확실성 평가 결과

본 논문에서 계측 및 실험을 위해 사용된  $^3H$  선원의 Uncertainty를 [표 4.2]에 나타내었다[23].

[표 4.2]에서 보여 주듯이 표준과학연구원(Korea Research Institute of Standard and Science : KRISS)에서 구입한 표준선원의 오차는 약 1% 내·외로 장비공급사로부터 구입한 선원에 비해 작은 것을 알 수 있다.

그리고 실험에 사용된 액상 3천/1천/5백/1백 DPM의 경우 표준과학연구원으로부터 구입한 액상 1만 DPM을 증류수로 희석하여 사용하였기 때문에 표준선원을 제작하는 과정에서 인적실수가 들어갈 수 있을 것으로 판단하여 이에 대한 정량화를 수행하였고, 정량화 방법은 교정용 시료를 제작하는 과정에서 발생한 인적실수를 정량화 방법과 동일한 방법을 적용하였다.

본 논문에서는 불확실성이 상대적으로 높은  $^3H$  표준선원을 이용하여 예비 실험과 민감도 분석을 수행하였고, 불확실성이 상대적으로 낮은 표준선원을 이용하여 본 실험을 수행하였다.

[표 4.2] 사용된  $^3H$  표준선원의 오차

구분	Activity(DPM)	오차(%)	제조사
고상 20만	204,700	0.45	Perkinelmer
	199,100	0.90	Perkinelmer
액상 20만	225,079	3.64	Perkinelmer
	190,620	0.67	KRISS
액상 10만	110,299	4.09	Perkinelmer
	108,722	4.09	Perkinelmer
	97,980	0.74	KRISS
액상 3만	29,742	0.93	KRISS
액상 1만	10,176	1.36	KRISS

### 3. 시료 제작시의 불확실성 평가 결과

#### 가. 측정용기 및 혼합비의 선정

일반적으로 널리 사용되고 있는 4종류의 Vial을 구입한 후 계측 결과는 [표 4.3]에 제시하였다.

[표 4.3] 측정용기 측정결과

Vial 종류	Total Count	SQP(E)
Teflon Vial	3,246	739.2
Teflon Coating Vial	3,186	711.3
Plastic Vial	3,030	698.9
Glass Vial	51,901	729.1

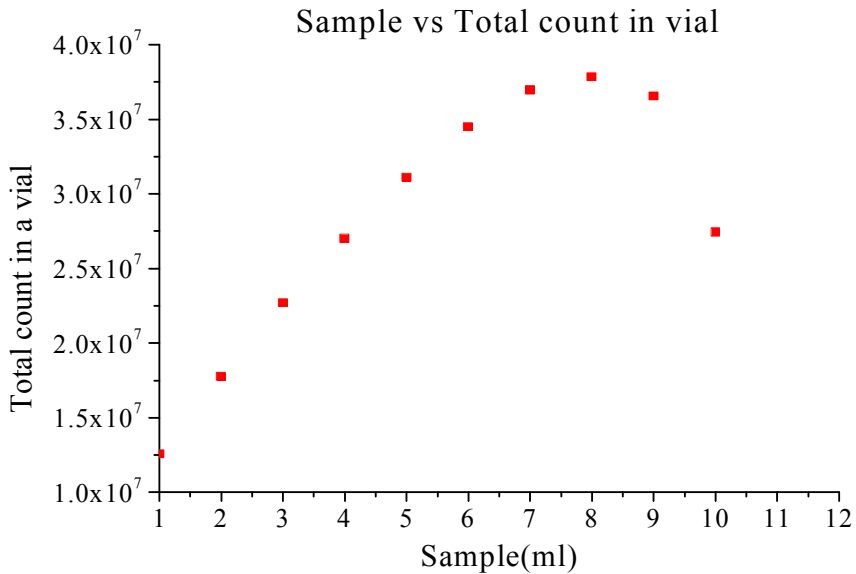
혼합비가 8:12인 Background 시료를 대상으로 계측한 결과에 의하면 Glass vial의 경우 Total count 값이 가장 높게 나타났다.

이는 천연 핵종인  $^{40}K$ 에 의한 영향이 반영된 것이라 판단되고, Plastic vial이 가장 낮게 나타났다.

기존 자료[12,24,25]에 의하면 Teflon vial은 Solvent 투과율과 Background에 의한 영향이 낮은 것으로 알려져 있으며, 현재 환경에서 주로 사용하고 있는 용기이다. 따라서 이러한 자료 분석 결과와 위의 계측 결과에 근거하여 Background를 나타내는 Total count값은 Glass vial을 제외한 모든 vial에서 비슷하지만 효율과 연관이 있는 SQP(E)가 가장 높은 Teflon vial을 측정용기로 선정하였다. 또한 현재 환경에 주로 사용하고 있기 때문에 사용하고 있는 용기의 적정성도 검토할 수 있는 기회라고 생각되어 Teflon vial을 측정 용기로 선정하였다.

또한 실험에 사용될 시료의 섬광체 혼합비는 8:12(시료 8, 섬광체 12)를 선정하였으며, 선정 근거는 아래와 같다.

- (1) 국내·외 대부분의 분석기관에서 일반적으로 널리 사용하고 있는 시료와 섬광체의 혼합비는 8:12를 사용하고 있음.
- (2) 본 연구에서는 1:19~10:10의 혼합비별로 총 10개의 시료를 조제 및 계측한 후 Total count가 최대로 나타나는 혼합비를 최적의 혼합비로 선정하였고, 계측 결과는 [그림 4.1]에 나타내었음.
- (3) 아래 [그림 4.1]의 8번 시료에서, 즉, 혼합비가 8:12인 시료에서, 동일한 비방사능에서 Total count가 가장 높게 나타난 것을 볼 수 있고, 위의 자료조사 및 분석 결과에 근거하여 본 논문에서도 8:12를 최적의 혼합비라 판단하여 민감도 분석과 계측 결과에 대한 검증을 수행함.



[그림 4.1] 혼합비별 Total count 경향

#### 나. 시료 제작시의 인적실수

검·교정용 시료를 조제하기 위해 사용된 Dispenser와 Syringe에 대한 불확도 결과를 [표 4.4]에 제시하였다.

[표 4.4] Syringe 및 Dispenser에 대한 오차

	Syringe			Dispenser		
	설정량(g)	측정량(g)	오차(%)	설정량(g)	측정량(g)	오차(%)
1	1.0000	1.0003	0.030	18.0000	18.0043	0.024
2	2.0000	2.0005	0.025	17.0000	17.0047	0.028
3	3.0000	3.0001	0.003	16.0000	16.0033	0.021
4	4.0000	4.0003	0.008	15.0000	15.0456	0.304
5	5.0000	5.0021	0.042	14.0000	14.0038	0.027
6	6.0000	6.0051	0.085	13.0000	13.0038	0.029
7	7.0000	7.0056	0.080	12.0000	12.0002	0.002
8	8.0000	8.0068	0.085	11.0000	11.0011	0.010
9	9.0000	9.0068	0.076	10.0000	10.0014	0.014
10	10.0000	10.0037	0.047	9.0000	9.0188	0.209
평균	-	-	0.047	-	-	0.067

표를 통해 알 수 있듯이 Syringe를 사용하는 과정에서 발생된 오차의 최대 및 평균값은 각각 0.085%와 0.047%로, Dispenser를 사용하는 과정에서 발생하는 인적 실수에 최대 및 평균값은 각각 0.304%와 0.067%로 나타났지만 액·고상  $^3H$  표준 선원 자체에 의한 오차에 비해 무시할 수 있을 정도로 아주 작게 나타났기 때문에 이에 의한 오차는 무시하였다.

#### 다. 전자저울 자체의 불확실성

인증된(10.0000g) 분동을 이용함으로써 실험 및 계측을 위해 사용된 전자저울의 Uncertainty 측정결과를 [표 4.5]에 나타내었다.

본 실험에 사용한 전자저울의 불확도는 0.11% 정도로 매우 낮게 나타났기 때문에 전자저울에 의한 불확실성도 무시하였다.

[표 4.5] 전자저울 자체의 불확도

	실측량 (g)	오차 (%)		실측량 (g)	오차 (%)		실측량 (g)	오차 (%)		실측량 (g)	오차 (%)
1회	9.9887	0.1130	4회	9.9887	0.1130	7회	9.9888	0.1120	10회	9.9888	0.1120
2회	9.9890	0.1100	5회	9.9887	0.1130	8회	9.9888	0.1120	평균:9.9888g(0.112%) 표준편차:9.428E-01		
3회	9.9889	0.1110	6회	9.9888	0.1120	9회	9.9888	0.1120			

#### 4. 민감도분석 결과

##### 가. 측정용기 무게차이에 의한 영향

본 논문에서 측정용기의 무게차이 정도를 파악하기 위해 Teflon vial 20개를 무작위로 추출한 후 무게를 모두 측정하였고, 그 결과를 [표 4.6]에 제시하였다.

위의 [표 4.6]에서 보여 주듯이 측정용기의 무게 범위는 12.85~14.16g으로 최소값 대비 약 10% 정도의 차이를 보이고 있었고, 평균적인 무게는 13.74g으로 나타났다. 따라서 본 논문에서는 선택한 20개의 측정용기 중 무게가 최소 및 최대인 Vial을 포함하여 총 4개 추출한 후 Vial 무게 차이에 따라 SQP(E) 및 CPM에 미치는 영향을 파악하였으며, 그 결과를 [표 4.7]에 나타내었다.

[표 4.6] 측정용기 무게 측정 결과

번호	무게(g)	번호	무게(g)	번호	무게(g)	번호	무게(g)
1	13.9856	6	13.8681	11	13.8534	16	13.8385
2	13.5348	7	13.3086	12	13.8170	17	12.9515
3	13.7248	8	13.9793	13	13.9954	18	12.8529
4	13.6011	9	13.8597	14	13.7707	19	14.1617
5	13.9534	10	13.8856	15	13.7720	20	14.0044



[표 4.7]에 나타낸 바와 같이 vial 무게 변화에 따라 SQP(E) 평균값의 변화량은 737.44~737.77로 거의 변화가 없는 반면, 표준편차의 변화량은 1.03~2.01로 SQP(E)의 변화량에 비해 약간의 차이가 나타나고 있으나 경향성은 없는 것을 알 수 있다. 이러한 현상은 Quantulus 1220에서 외부선원으로 사용하고 있는  $^{152}\text{Eu}$ 의 Activity가 Background에 비해 상당히 크기 때문에 밀도가 작은 Vial에 Activity가 큰 선원을 조사할 경우 밀도 및 무게 차이에 따른 영향이 나타나지 않은 것으로 판단된다.

[표 4.7] 측정용기 무게 차이에 따른 SQP(E) 및 CPM 변화

		Vial 무게(g)			
		12.8529	13.7248	13.7707	14.1617
SQP(E)	최대	744.19	740.29	739.63	739.24
	평균	737.77	737.44	737.44	737.45
	최소	735.84	734.14	735.78	735.14
	표준편차	2.01	1.50	1.08	1.03
cpm	최대	1.47	1.69	1.50	1.45
	평균	1.23	1.25	1.19	1.23
	최소	1.03	0.96	1.00	0.81
	표준편차	0.12	0.17	0.15	0.15

또한, [표 4.7]에서 보여 주듯이 평균 CPM(Counts per Minute)과 CPM의 표준편차 변화량은 각각 1.19~1.25와 0.12~0.17로 SQP(E) 값에 비해 상대적으로 큰 변화를 보이고 있지만 무게 차이에 따른 경향은 나타나지 않는 것을 볼 수 있다.

이러한 경향은 기존의 연구결과[19]와 일치하는 경향을 보이고 있으며, 100ml 크기의 Teflon vial과 Activity가 65,600 DPM인  $^3\text{H}$  선원을 이용하여 무게 차이에 따라 CPM에 미치는 영향을 평가한 기존의 연구결과[6,19]를 [표 4.8]에 나타내었다.

[표 4.8]을 통해 확인할 수 있듯이 Vial 무게는 최소값 대비 약 24% 정도 차이가 있지만 CPM 값은 5.2% 정도의 차이를 보이고 있으며, 무게 차이에 따른 경향은 나타나지 않는 것을 확인할 수 있다. 이러한 결과는 [표 4.7]에 제시된 결과와 일

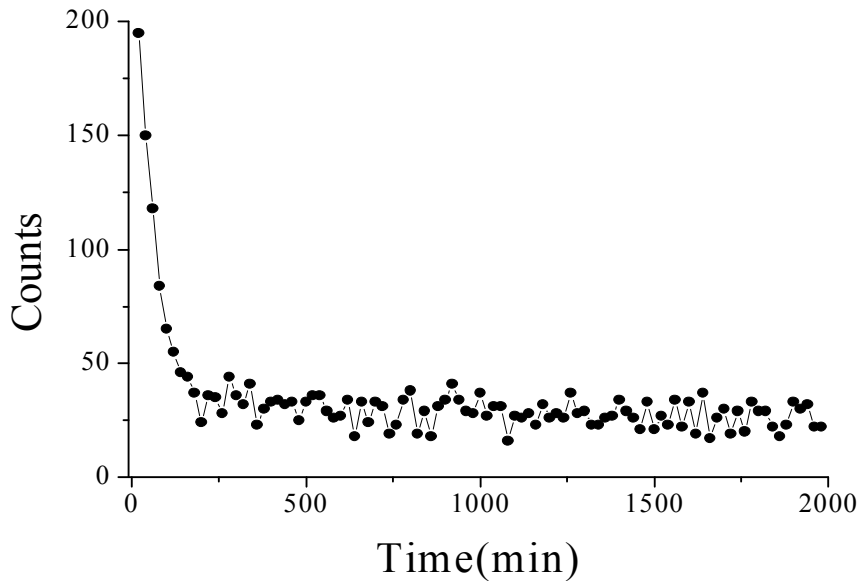
치하는 것으로 이러한 계측 및 분석 결과를 근거로 본 논문에서는 Vial 무게 차이에 의한 영향은 없는 것으로 판단하였다.

[표 4.8] 측정용기 무게 차이에 따른 CPM 경향

Vial No.	Weight(g)	Count-rate(CPM)
1	22.90	8,913 ± 19
2	26.20	8,372 ± 18
3	28.41	7,399 ± 17
4	28.40	8,449 ± 18

#### 나. 시료 방치시간에 의한 영향

시료의 방치시간에 따른 영향을 파악하기 위해 Background 시료에 대한 계측 결과를 [그림 4.2]에 나타내었다.



[그림 4.2] 방치시간 증가에 따른 Counts 경향

[그림 4.2]는 제작한 시료를 바로 계측한 후 20분 단위로 얻은 데이터를 나타낸 것으로 200분까지는 Counts가 급격하게 감소를 하다가 약 200~1,000분 사이에서는 진동을 하면서 아주 서서히 감소한 후 약 1,000분 이후에서는 거의 변화가 없는 것을 알 수 있다. 즉 시료가 안정화 되는 것을 볼 수 있는데 이러한 결과는 다른 시료에서도 유사한 경향을 보였다.

따라서 이러한 분석 결과에 근거하여 시료를 제작한 후 최소한 1,000분 이상을 냉암소에 방치한 후 계측을 수행해야 할 것으로 판단되고, 본 논문에서는 1,200분 이상을 냉암소에 방치한 후 실험을 수행하였다.

#### **다. 측정방법 차이에 의한 영향**

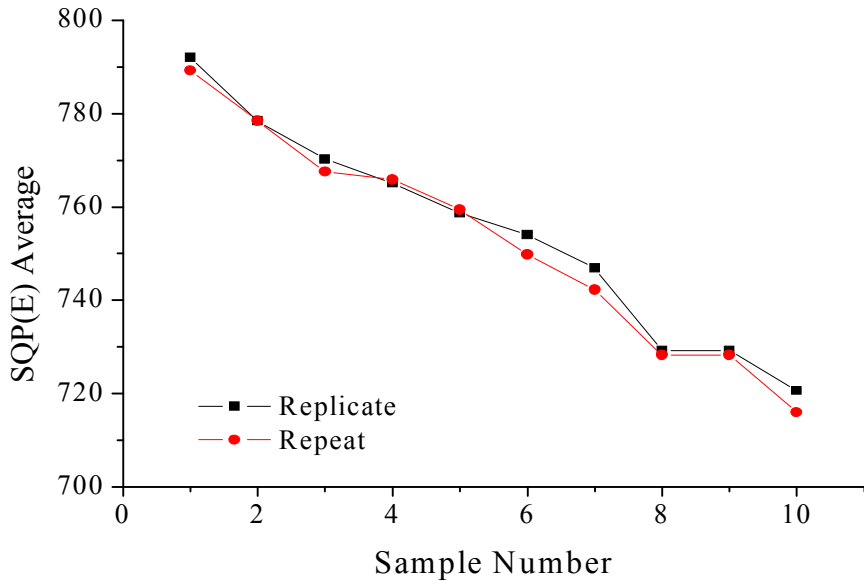
측정방법 차이에 따른 계측 결과를 [그림 4.3]과 [그림 4.4]에 나타내었다.

[그림 4.3]과 [그림 4.4]는 각각 SQP(E)의 평균값과 표준편차 경향을 나타낸 것으로 SQP(E) 평균값은 유사한 경향을 보이고 있지만 SQP(E) 표준편차의 경우 Replicate 방법이 Repeat 방법에 비해 표준편차가 높게 나타나고 있는 것을 [그림 4.4]를 통해 볼 수 있다.

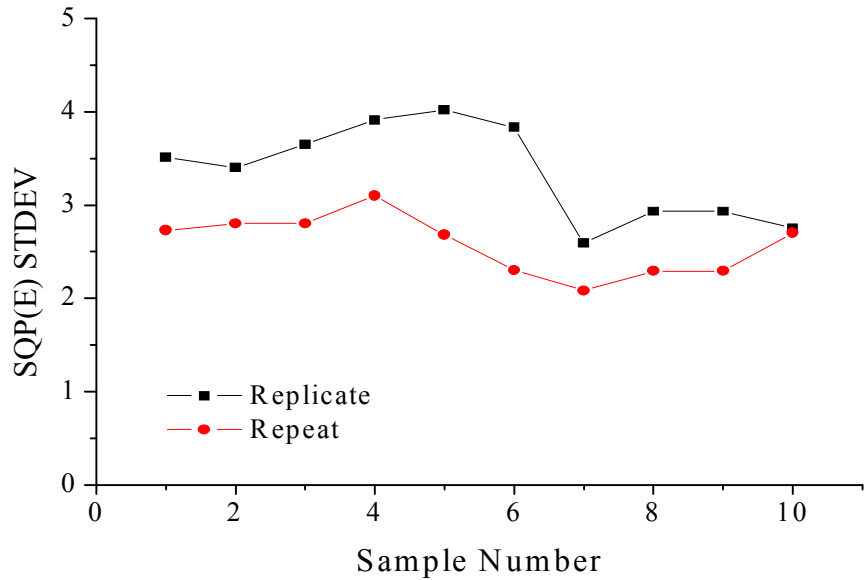
이러한 계측 및 분석결과로부터 장비에 대한 검·교정을 수행할 때와 환경시료를 계측할 때 Repeat 방법을 적용함으로써 데이터의 정밀도를 높여야 할 것으로 판단하여 본 논문에서는 Repeat 방법을 적용하여 본 실험 항목에 대한 실험 및 계측을 수행하였다.

#### **라. 외부선원 조사시간에 의한 영향**

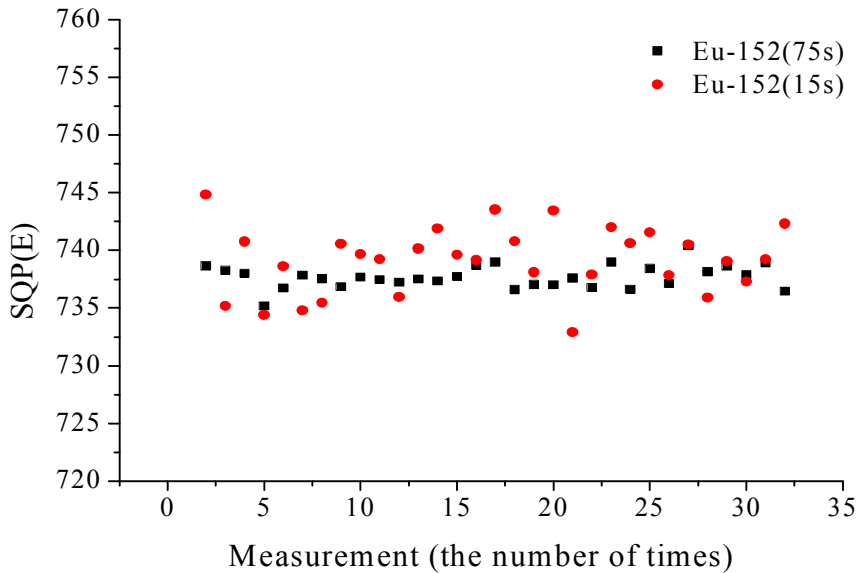
본 논문에서 외부선원의 조사시간이 증가함에 따라 데이터의 정밀도는 증가할 것으로 판단하여 시료와 섬광체의 혼합비율이 8:12인 시료와 장비 공급사의 권장 조사시간인 15초를 기준으로 단계적으로 증가시키면서 SQP(E) 값의 변화를 파악하였고, 그 결과를 [그림 4.5]에 나타내었다.



[그림 4.3] 측정방법 차이에 따른 SQP(E) 평균값 변화



[그림 4.4] 측정방법 차이에 따른 SQP(E) 표준편차 경향



[그림 4.5] 조사시간 증가에 따른 SQP(E) 분포 경향

[그림 4.5]는 외부선원의 조사시간으로 15초와 75초를 사용하여 31회씩 측정한 결과로 나타난 SQP(E) 값 전부를 나타낸 것으로 75초인 경우가 15초에 비해 SQP(E) 값의 분산정도가 낮게 나타나고 있는 것을 확인할 수 있다.

또한 이러한 정량적 측정 및 분석 결과로부터 감마선 조사시간이 증가할수록 데이터의 정밀도가 증가하다가 장비의 사용기간에 관계없이 75~90초 사이에서 SQP(E) 평균값의 표준편차는 거의 변하지 않음을 확인할 수 있기 때문에 본 논문에서는 75초 이상에서 Saturation point에 도달한 것으로 판단하였다.

이러한 경향을 보이는 것은 외부선원의 조사시간을 증가시킴에 따라 방사선과 물질과의 반응확률이 계속적으로 증가하지만 일정 시간이 지나면 Saturation point에 도달함으로써 반응확률에 거의 일정하기 때문에 나타나는 물리적인 현상이라 판단된다.

이러한 분석 결과에 근거하여 본 논문에서는 외부선원 조사시간으로 75초를 사용하여 Activity 및 Geometry 차이에 의한 영향을 평가하였다.

#### 마. 계측시간에 의한 영향

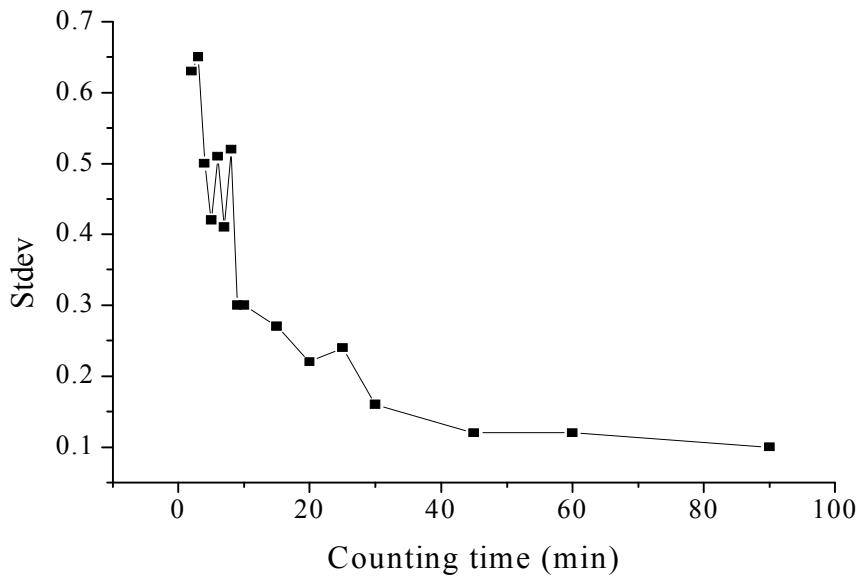
본 논문에서 계측 정밀도 및 정확도를 증가시킴과 동시에 계측 및 분석 결과에 대한 신뢰성을 확보하기 위해 Activity가 낮고, 혼합비가 8:12인 Background 시료를 대상으로 최적의 Counts와 MDA를 만족할 수 있는 계측시간을 도출하였으며, 그 결과를 [그림 4.6]과 [그림 4.7]에 나타내었다.

[그림 4.6]과 [그림 4.7]은 각각 계측횟수를 31회씩 고정시킨 후 계측 시간을 증가시킴에 따라 나타나는 CPM 표준편차 경향과 LLD(Lower Limit of Detection) 경향을 나타낸 것이다.

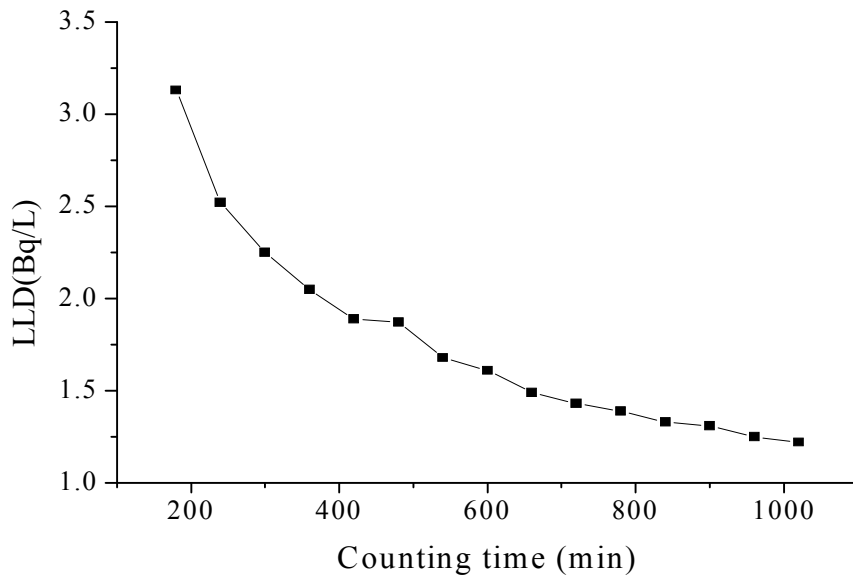
[그림 4.6]에서 보는 바와 같이 계측시간 증가에 따라 CPM 표준편차 값이 10분까지는 급격하게 감소하다가 30분 이후에는 거의 변화가 없는 것을 볼 수 있는데, 이러한 경향을 보이는 것은 계측시간이 증가함에 따라 방사선과 물질과의 반응확률이 증가하기 때문에 나타나는 물리적인 현상이라 본 논문에서는 판단하였다.

또한, [그림 4.7]에서는 계측시간이 증가함에 따라 LLD 값은 계속적으로 감소하는 것을 볼 수 있다. LLD 값이 낮을수록 계측 정확도는 증가하겠지만 경제적·시간적 측면에 비해 얻는 이득은 크지 않을 것으로 판단되기 때문에 적절한 계측시간을 도출해야 한다.

따라서 본 논문에서는 600~1,200분 정도의 계측시간을 적용하여 환경시료를 계측하면 경제적·시간적 측면에서 큰 문제는 없을 것으로 판단하였다. 그러나 현재 수행하고 있는 환경 시료의 경우 30분/1회씩 10회를 측정[26]하고 있으므로 본 논문에서 제시한 값과 LLD와 관련하여 다소 차이가 있다.



[그림 4.6] 계측시간 증가에 따른 CPM 표준편차 경향



[그림 4.7] 계측시간 증가에 따른 LLD 경향

## 제2절 본 실험 결과

### 1. 검증 결과

#### 가. $\chi^2$ -test 결과

본 논문에서 Quantulus 1220 장비와  $^3H$  표준선원을 이용하여 장비에 대한 검 · 교정을 수행할 때와 실제 환경시료를 계측할 때 존재하는 Geometry 및 Activity 차이에 의한 영향을 평가하기 전에 계측 장비의 정상작동 여부와 계측 결과에 대한 신뢰성을 확보할 필요가 있을 것으로 판단하여  $\chi^2$ -test를 수행하였고, 기존 자료[23]와 함께 그 결과를 [표 4.9]에 나타내었다.

[표 4.9] SQP(E) 기준의  $\chi^2$  Probability(%)

시료 번호	혼합비	고상 20만 (DPM)	액상(DPM)								비고
			20만	10만	3만	1만	3천	1천	5백	1백	
1	1:19	19.94	28.38	42.92	51.88	37.26	38.80	28.79	27.79	18.79	
2	2:18	26.32	27.87	38.21	35.27	18.65	11.50	19.10	29.50	19.90	
3	3:17	32.99	38.24	34.33	30.74	48.06	57.90	28.15	56.15	29.20	
4	4:16	19.07	38.97	22.16	35.14	58.99	45.02	31.40	35.30	38.40	
5	5:15	35.60	43.24	32.59	30.78	16.71	21.98	21.52	51.22	25.62	
6	6:14	128.3	168.9	82.41	55.03	39.39	91.05	39.33	39.33	146.3	
7	7:13	36.10	39.17	23.94	31.19	36.94	58.03	23.20	53.20	29.10	
8	8:12	23.19	29.19	28.05	21.50	30.88	29.65	31.09	31.09	31.45	
9	9:11	61.07	46.92	38.62	29.78	26.46	24.89	24.21	28.21	14.21	
10	10:10	831.6	1952	952.1	156.6	78.30	86.08	18.17	253.2	99.17	충분리

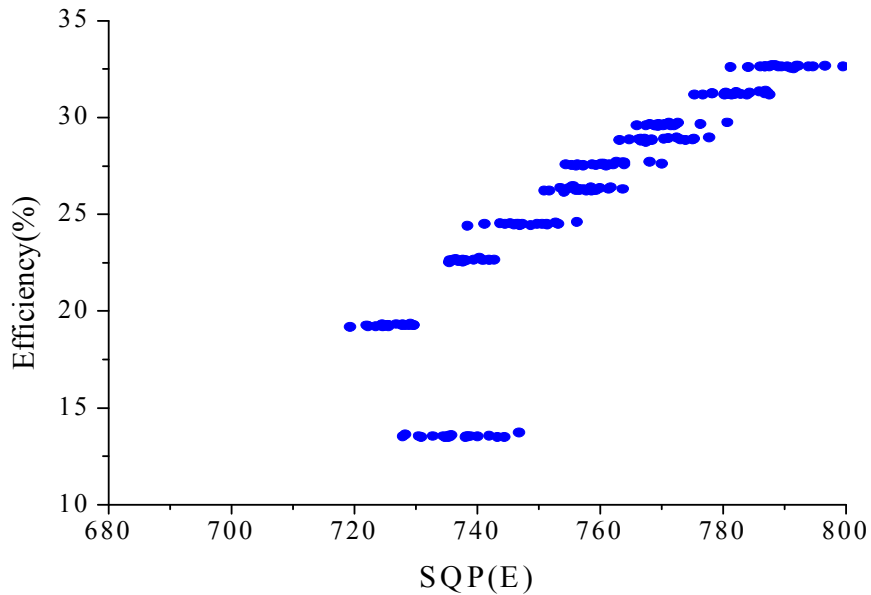
[표 4.9]에 제시된 값들은 Geometry와 Activity 차이에 의한 영향을 평가하기 위해 혼합비별로 시료를 제작한 후 계측 결과로 나타난 값들 중 SQP(E) 값을 기준으로 수행한  $\chi^2$ -test 결과를 나타낸 것으로써 총 90개의 시료들 중 9개를 제외한 81개 시료가 2~98%의  $\chi^2$  Probability range에 포함되었다. 그리고 혼합비가 10:10인



10번 시료의 경우 물리적으로 층 분리가 자주 발생한 시료로서 효율과의 관계를 [그림 4.8]에 나타내 보았다.

[그림 4.8]은 Activity가 20만 DPM인 고상 선원을 이용하여 31회씩 측정한 결과를 SQP(E)와 효율의 관계로 도시한 것으로써 SQP(E) 값이 약 740 지점의 data가 선형성에서 크게 벗어나는 것을 볼 수 있다.

이러한 경향을 보이는 것은 시료와 섬광체 혼합비가 11:9인 시료가 시간이 경과함에 따라 Vial 내부에서 층이 형성되는 것을 볼 수 있는데, 이에 기인한 것이라 판단된다. 이와 관련하여 시간경과에 따른 층분리 된 시료를 [그림 4.9]~[그림 4.11]에 나타내었다.



[그림 4.8] 혼합비별 SQP(E)와 효율과의 관계



[그림 4.9] 12시간 동안 냉암소에 방치한 후의 시료 상태



[그림 4.10] 계측 후 12시간이 경과한 시료상태



[그림 4.11] 계측 후 24시간이 경과한 시료상태

$\chi^2$ -test는 확률적인 개념에 근거하여 계측장비의 정상작동 여부를 평가하기 위해 널리 사용되고 있는 방법으로 물리적 현상에 의해 층 분리가 발생한 6개 시료를 제외한 2개 시료가  $\chi^2$  Probability range에 포함되었기 때문에 본 논문에서는 장비 및 계측 결과에 대한 신뢰성에는 문제가 없는 것으로 판단하였다.

## 나. 방사능오차 분석 결과

방사능 오차분석은 교정용 시료를 조제하는 과정에서 선원 인증서에 기재되어 알고 있는 Activity와 계측 결과에 의해 계산된 Activity를 비교 분석함으로써 결과를 검증할 수 있는 방법으로 이를 이용한 검증결과는 본 실험 항목에서 각각의 평가결과에 기술하였다.

## 2. Geometry 차이에 대한 평가 결과

### 가. 교정 결과

Geometry 차이에 의한 영향을 평가하기 위해 Activity가 20만 DPM인 액·고상  $^3H$  표준선원을 이용하여 『제3장 연구방법』에서 기술한 절차에 따라 계측한 후 SQP(E)와 효율의 관계를 [표 4.10]에 제시하였다[23].

[표 4.10]은 액·고상 20만 DPM으로 제작한 시료들 중 혼합비가 6:14와 10:10인 6번과 10번 시료를 제외한 모든 시료가  $\chi^2$  Probability에 포함된 것을 확인할 수 있는데, 10번 시료의 경우 층분리 현상이 발생함으로 인해 나타난 결과로 데이터의 신뢰성 측면에서 문제가 있는 것으로 판단하여 이 두 시료를 제외한 나머지 8개 데이터가  $\chi^2$ -test를 통과하였기 때문에 이들 8개 데이터를 이용하였으며, Activity가 20만 DPM인 액상선원으로 작성한 소광보정곡선이 고상 20만 DPM으로 작성한 곡선에 비해 약 3~5% 정도 높게 나타났다.

[표 4.10] Geometry 차이에 따른 SQP(E) 및 효율 비교

시료 번호	혼합비	고상 20만 DPM			액상 20만 DPM		
		$\chi^2$ Probability	SQP(E)	효율(%)	$\chi^2$ Probability	SQP(E)	효율(%)
1	1:19	19.94	784.95	30.58	28.38	786.14	35.31
2	2:18	26.32	773.44	28.93	27.87	776.41	34.13
3	3:17	32.99	770.71	27.67	38.24	771.79	32.85
4	4:16	19.07	766.35	27.31	38.97	763.68	31.47
5	5:15	35.60	758.95	26.13	43.24	760.70	30.41
6	6:14	128.3	749.42	24.58	168.9	751.83	29.03
7	7:13	36.10	745.56	23.80	39.17	745.79	27.28
8	8:12	23.19	737.99	22.08	29.19	738.06	25.18
9	9:11	61.07	727.08	19.46	46.92	728.61	22.89
10	10:10	831.6	706.86	14.18	1952	701.61	15.99

## 나. 검증 결과

### (1) 방사능오차분석 결과

본 논문에서는 방사능 오차분석법을 이용하여 교정 결과를 검증하기 위해 20만 DPM인 액·고상  $^3\text{H}$  표준선원을 이용하여 조제한 시료들 중 혼합비가 3:17, 5:15, 8:12인 시료를 선정한 후 검증한 결과를 [표 4.11]에 나타내었다[23].

[표 4.11]에 제시된 결과는 Activity가 20만 DPM인 고상  $^3\text{H}$  표준선원을 이용하여 『제3장 연구 방법』의 [그림 3.2]와 [그림 3.3]에 제시한 절차에 따라 소광보정 곡선을 작성한 후 [그림 3.4]와 [그림 3.5]에 제시된 절차에 의해 계산된 Activity를 Known value인 Activity와 비교 분석함으로써 오차 경향을 나타낸 것이다.

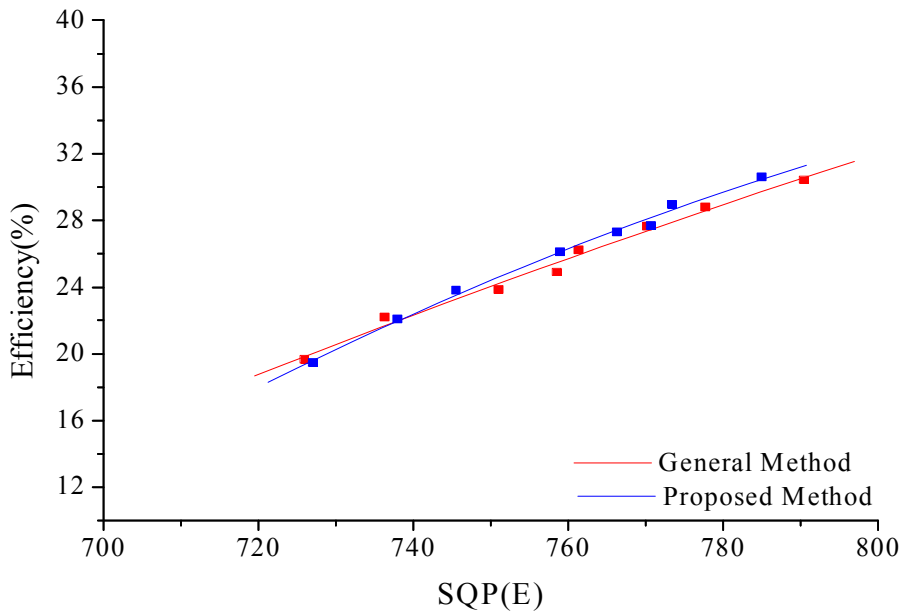
[표 4.11]에서 보여주듯이 액상 20만 DPM에서는 기존 방법과 제안한 방법 모두 오차가 1%미만으로 상당히 정확한 반면, 고상 20만 DPM의 경우 4% 이내의 오차로 액상 20만 DPM에 비해 오차가 상대적으로 큰 것을 확인할 수 있다. 이는 민감도 분석을 수행함으로써 계측 정밀도 및 정확도를 증가시킨 후 계측을 수행하였기

때문에 나타난 결과라 판단된다.

[표 4.11] 소광보정곡선 검증 결과

혼합비	고상 20만 DPM(오차)		액상 20만 DPM(오차)	
	기존 방법	제안한 방법	기존 방법	제안한 방법
3:17	1.370%	1.832%	0.907%	0.189%
5:15	3.132%	0.068%	0.867%	0.844%
8:12	1.113%	0.439%	0.232%	0.396%

따라서 오차의 정도가 크지는 않지만 작성한 교정 곡선 자체의 차이에 기인한 것이라 판단되기 때문에 이에 대한 경향을 확인하기 위해 Activity가 20만 DPM인 고상  $^3H$  선원을 이용하여 시료를 제작한 후 기존 및 제안한 방법을 적용하여 작성한 교정곡선을 [그림 4.12]에 도시하였다.



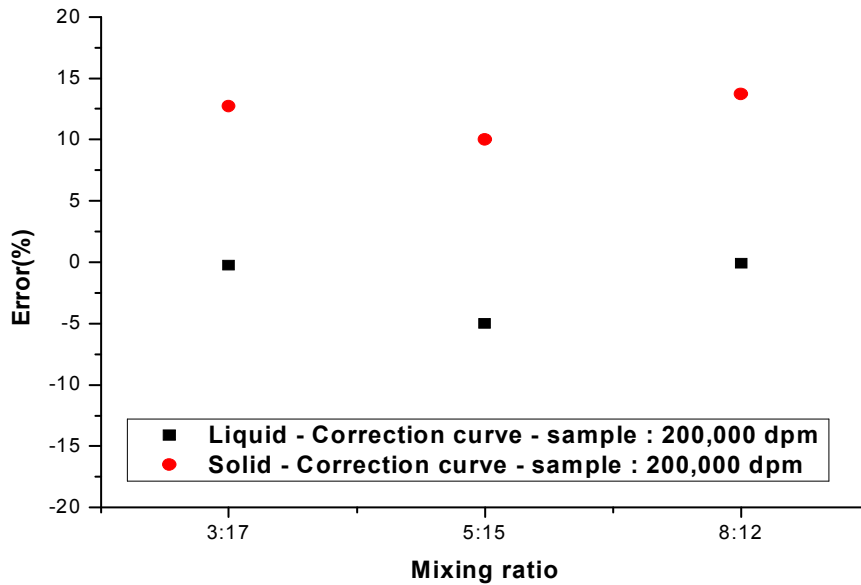
[그림 4.12] 고상 20만 DPM으로 작성한 소광보정곡선

[그림 4.12]에서 보듯이 기존 방법과 제안한 방법으로 작성한 교정곡선 모두 경향이 일치하는 것을 가시적으로 확인할 수 있고, [그림 4.12]에 제시된 교정 곡선에 대한 검증을 수행한 결과 제안한 방법을 적용한 경우가 큰 값은 아니지만 기존 방법에 비해 오차가 작게 나타났다. 이러한 원인은 민감도 분석을 수행함으로써 계측 정밀도 및 정확도를 증가시킨 후 계측을 수행하였기 때문이라 판단된다.

그리고 제작한 교정용 시료들 중 혼합비가 3:17, 5:15, 8:12인 시료와 제안한 방법을 선정하여 방사능오차분석을 수행한 결과 액·고상 모두 최대 2% 미만의 오차를 보였기 때문에 교정 곡선에 자체에 대한 신뢰성에는 문제가 없는 것으로 판단하였고, 검증된 교정곡선을 실제 환경시료의 Geometry 및 Activity level과 동일하거나 유사하게 제작된 표준검증시료에 적용한 결과에 대한 오차를 [그림 4.13]에 도식하여 나타내었다.

[그림 4.13]은 원전주변에 존재하는 환경시료의 Activity level 및 Geometry와 유사하게 검증용 시료를 제작 및 계측한 후 나타난 결과에 대해 [표 4.10]에 제시된 데이터를 사용하여 작성한 교정 곡선에 적용함으로써 계산된 오차를 도식하여 나타내었다. 즉, 혼합비가 3:17, 5:15, 8:12인 시료를 대상으로 1만 DPM인 액상  $^3H$  표준선원을 이용하여 200 Bq/l 와 1,000 Bq/l 의 검증용 시료를 제작한 후 계측을 수행하였고, 계측 결과로 나타난 SQP(E) 값을 [표 4.10]에 제시된 데이터를 사용하여 작성한 교정 곡선에 적용함으로써 효율을 도출하였고, 도출된 효율과 계측 결과로 나타난 CPM 값을 이용하여 Activity를 계산하였다.

계산된 Activity를 검증용 시료를 제작하는 과정에서 알고 있는 Activity와 비교 분석함으로써 나타난 오차를 도식한 것이다.



[그림 4.13] 방사능오차 분석 결과

위의 [그림 4.13]에서 보여 주듯이 액상 20만 DPM의 경우 최대 5% 미만의 오차를 보이고 있는 반면, 고상 20만 DPM에서의 오차범위는 10~14%로 액상 20만 DPM에 비해 상당히 높게 나타나고 있는 것을 볼 수 있다.

본 논문에서는 이에 대한 원인을 규명하기 위한 추가 실험을 수행하였고, 그 결과는 다음과 같다.

## (2) 추가 검증 결과

원전주변에 존재하는 환경시료의 Activity 및 Geometry와 동일하게 검증용 시료를 제작한 후 방사능오차분석법을 이용하여 소광보정 곡선에 대한 검증을 수행한 결과 10~14% 이상의 오차를 보였고, 본 논문에서는 이러한 차이를 보이는 것은 Activity 차이와 플라스틱, 선원형태 차이에 의한 영향이 반영된 것이라 본 논문에서는 판단하여 이에 대한 추가분석을 수행하였다.

### (가) Activity 차이에 의한 영향

Activity 차이에 의한 영향은 본 절의 『3. Activity 차이에 대한 평가 결과』에서 상세히 기술하였다.

### (나) 선원형태에 의한 영향

$^3H$  선원 자체의 차이에 의한 영향은 고상 20만 DPM 플라스틱 없는 경우와 플라스틱 있는 경우의 오차가 액상 20만에 비해 상당히 높게 나타났다. 따라서 사용된 표준선원의 Activity가 20만 DPM으로 상당히 높기 때문에 플라스틱에 의한 영향이 묻혀버린 것으로 판단된다. 또한, 고상  $^3H$  선원의 경우 액상에 비해 표준선원을 제작하는 과정에서 인위적·기계적 행동이 한 번 더 들어갈 수 있는데, 이러한 현상이 반영된 것이라 논 논문에서는 판단하였다.

### (다) 플라스틱에 의한 영향

기존 실험에 의하면 Activity가 1천, 3만, 20만 DPM에 대해 분석한 결과 플라스틱이 없을 때의 Error 값은 0.35~2.65로 낮게 나타난 반면, 플라스틱이 존재할 때의 Error는 1.21~22.86로 없을 때에 비해 상당히 높게 나타나고 있고, CPM 값의 경우 1,000 DPM과 3만 DPM에서는 플라스틱이 존재할 때의 값이 없을 때에 비해 0.8~19.9% 정도 높게 나타나고 있다. 따라서 Activity가 증가함에 따라 Error와 CPM 값의 변화량은 감소한다고 한다[23]. 즉, 20만 DPM의 경우 1,000 및 3만 DPM에 비해 Activity가 높기 때문에 플라스틱에 의한 영향이 상대적으로 무시될 수 있고, Activity가 높을수록 플라스틱에 의한 영향은 나타나지 않기 때문에 CPM 값의 변화도 적고, Error 또한 낮게 나타나는 것으로 판단하였다.

또한 플라스틱 용기의 수가 증가할수록 Error와 CPM 값은 증가하는 경향을 보이는 반면, SQP(E) 값은 감소하는 경향을 보이고 있음을 확인 할 수 있고, CPM 값의 변화량은 4.1~14.3%로 0.24~0.77% 범위인 SQP(E) 값의 변화량에 비해 상대적으로 크다[23].

이러한 계측 및 분석 결과로부터 비수용성인 플라스틱 용기는 측정용기 내부에서 Quencher로 작용하기 보다는 반사체의 역할을 하는 것으로 판단된다. 즉, 사용



된 표준선원의 Activity가 낮으면 섬광체로부터 나오는 빛의 세기 또한 작게 되어 이 빛이 PMT로 가는 과정에 플라스틱 용기를 만나게 되면 일부는 반사가 되어 반대쪽의 PMT에서 계측이 됨으로써 CPM 값이 증가하고, Activity가 증가할수록 섬광체에서 나오는 빛의 세기는 크기 때문에 플라스틱에 의해 반사되는 양도 작게 나타난 것으로 판단된다.

플라스틱 유무와 선원형태에 따른 에러율을 살펴본 결과 고상선원의 오차는 17.4~18.7%로 0.53~1.21%의 오차를 나타낸 액상선원에 비해 상당히 높고, 플라스틱에 의한 영향은 무시할 수 있을 정도로 작게 나타나고 있었다. 이러한 경향을 보이는 것은 앞에서 기술하였듯이 사용된 표준선원의 Activity가 20만 DPM으로 상당히 높기 때문에 플라스틱에 의한 영향이 묻혀버린 것으로 판단된다[23].

또한, 플라스틱이 존재하지 않은 액상선원과 고상선원을 비교한 결과 고상선의 경우가 액상선원에 비해 Error가 상당히 높게 나타났다. 이러한 현상은 고상선원을 제작하는 과정에서 문제가 있었던 것으로 판단된다. 즉, 고상  $^3\text{H}$  선원의 경우 액상에 비해 표준선원을 제작하는 과정에서 인위적·기계적 행동이 한 번 더 들어갈 수 있는데, 이러한 현상이 반영된 것이라 논 논문에서는 판단하였다.

## 다. MCNP Code Simulation 결과

위에 같이 플라스틱에 의한 영향을 고려하고, 제시된 결과에 포함된 인적실수 등의 불확실성을 검증하기 위해 MCNP Code를 이용하여 Simulation을 수행하였다.

Simulation에 사용한 제원들은 다음과 같다.

### 제반사항

#### (1) 선원 : H-3

- 반감기 : 12.33 yr(3.891052 E+08 sec)
- Atomic mass : 3.01604926605124 u
- Q-value : 0.019 MeV
- 에너지

Maximun(MeV)	Average(MeV)	Probabillity
0.018601	0.005685	1.00

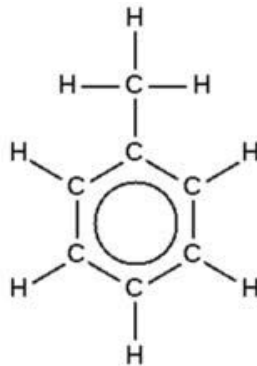
- Daughter : He-3
  - Atomic mass : 3.01602929813538 u
  - Aboundance : 1.37 E-06

## (2) 실험에 사용된 Activity 및 vial

- Activity : 20,000 DPM/g
- 사용 vial : teflon vial 20ml
- 시료량 : 8ml : 12ml(증류수 : 각테일)

## (3) Cocktail :

- Emulsifying(Aqueous), 주로 aqueous sample에 사용하며, **solvent** (aromatic)+**scintillators**(fluorescing agents)+**surfactant**(detergent)로 구성
- solvent : typically toluene, xylene, pseudodocumene or alkyl benzene
  - Toluene :  $C_7H_8$  or  $C_6H_5CH_3$

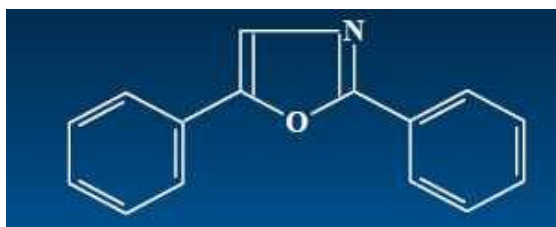


- basic properties

molecular weight	92.14 g/mol
density	0.8669 g/mL
melting point	93°C
boiling point	110.6°C
density	1.094 g/cm <sup>3</sup>
solubility in water	0.47 g/L

▫ 제1 Scintillators

- 2,5-diphenyloxazole(PPO) :  $C_{15}H_{11}NO$



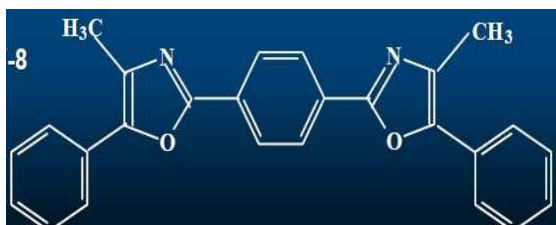
- basic properties

molecular weight	221.254 g/mol
phase	soild
melting point	73°C
boiling point	360°C
density	1.094 g/cm <sup>3</sup>
solubility	insoluble in water

▫ 제2 Scintillators

-1,4-Bis(4-methyl-5phenyl-2oxazolyl)benzene(Dimethyl POPOP)

$C_{26}H_{20}N_2O_2$

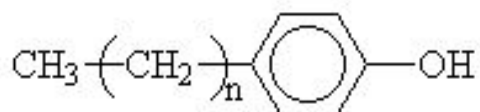


- basic properties

molecular weight	392.46 g/mol
phase	yellow-green crystalline solid
melting point	no data available
boiling point	no data available
density	no data available
solubility	soluble in toluene 10mg/mLwater

◦ surfactant(detergents)

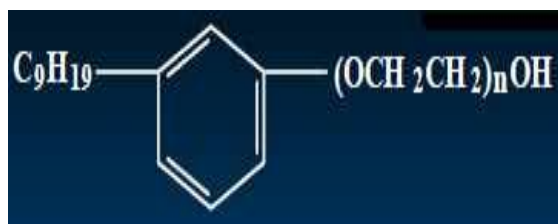
- Alkylphenol Ethoxylate



n = no. of oxy ethylene unit

R - (CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>O)<sub>n</sub> OH s- R Alky; Phenol

Where 'R' represents the alkyl group of the parent phenol and 'n' = number of molecules of ethylene oxide.



- basic properties of nonylphenol

(Nonylphenol is a family of closely related organic compounds, a subset of the alkylphenols)

molecular weight	220.35 g/mol
density	0.8669 g/mL
melting point	-8°C
boiling point	293°C
density	0.953 g/cm <sup>3</sup>
solubility in water	6 mg/L

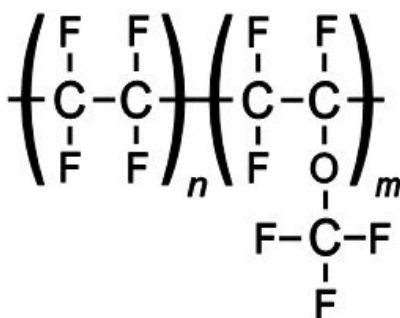
#### (4) LSC 구조

◦ [그림 2.6] 액체섬광계수기 구성도 참조

#### (5) teflon vial(PFA ; PerFluoroAlkoxy) : 불소수지 vial

◦ Perfluoroalkoxy or PFA is a type of fluoropolymer with properties similar to polytetrafluoroethylene(PTFE).

- PTFE : (C<sub>2</sub>F<sub>4</sub>)<sub>n</sub>



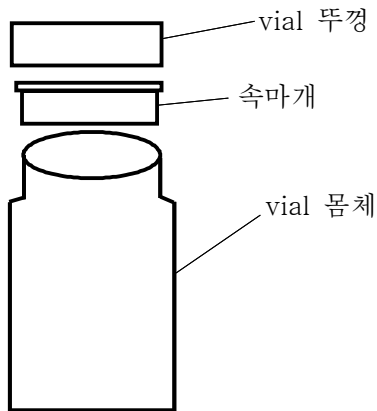
◦ 비중 : 2.12~2.17 g/cm<sup>3</sup>

- basic properties of nonylphenol

Density(g/cm <sup>3</sup> )	2.15
Water Absorption, 24 hrs (%)	< 0.03
Melting Temp (°C)	305
Max Operating Temp (°C)	260
Water absorption (ASTM)	<0.03 % after 24 hours

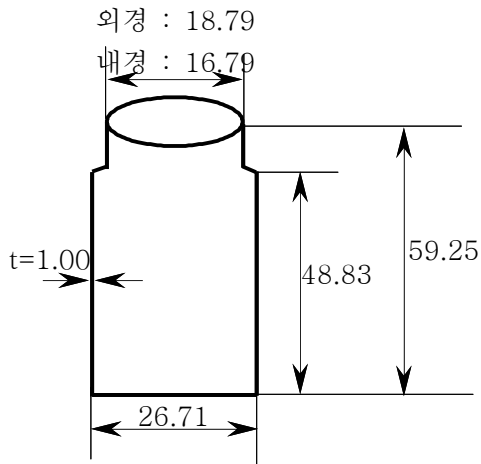
## Geometry for Simulation

### (1) 전체 구조

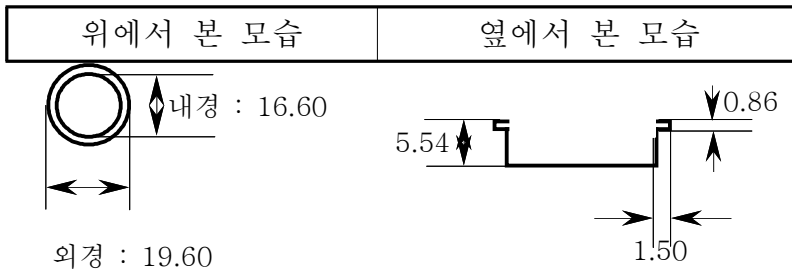


- 완제품 : 높이 62.84

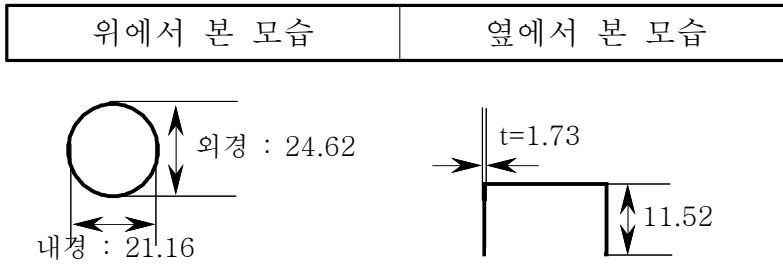
### (2) 뚜껑 제외



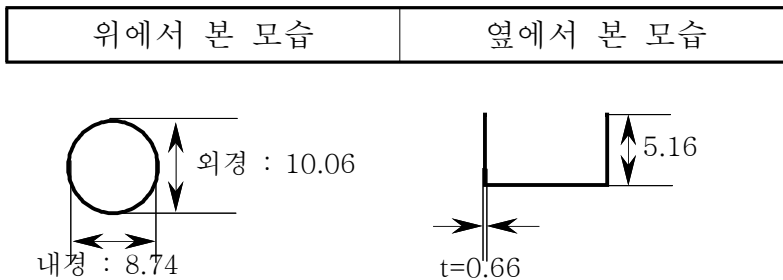
### (3) 속 마개 : 내경은 빈 공간임.



(4) 테프론 vail 뚜껑 : 내경부분은 빈 공간임.



(5) 플라스틱 : 내경부분은 빈 공간임.



### *Simulation Supposition and Method*

Simulation 분석을 위해 사용된 입력조건 및 가정과 방법은 아래와 같다.

- (1) 본 Simulation에서는 삼중수소와 각테일이 반응하여 광자가 발생된 후의 단계부터 Simulation을 수행하였다. 즉 Source term을 삼중수소가 아닌 광자 (Photon)로 정의.
- (2) 시료는 Scintillator의 밀도와 분자구조와 동일하다고 가정하였다. 즉 액체는 모두 섬광체가 차지하고 있다고 가정.
  - 즉, Source term의 구성 물질은 100% 섬광체로 구성된 것으로 가정
- (3) Source term인 Photon은 시료의 부피 중 플라스틱의 부피를 제외한 영역에서  $4\pi$  방향으로 균일하게 방출된다고 가정.
  - 플라스틱을 제외한 나머지 모든 부분은 Source term으로 간주

- (4) Source term인 Photon은 단일 에너지라고 가정하였으며, Source term 에너지는 18.6 keV(최대), 5.685 keV(평균)의 Photon만을 고려하여 2가지를 모사
- (5) 플라스틱 개수는 최대 4개까지 모사.
  - No Plastic, Top open, Bottom open, Side open 4가지
- (6) 최종 계산은 F2 tally를 사용하여 Vial 표면에서 단위 면적당 Photon의 개수 (#/cm)를 계산
- (7) 계산된 Photon의 개수(/cm)는 플라스틱이 없는 조건에서 계산한 결과를 기준으로 Normalization하였음.
- (8) 분석에 사용된 선원은 2만 DPM의 액상선원

위와 같은 입력조건 및 가정과 방법을 사용하여 Simulation 수행하였고, 그 결과를 아래의 [그림 4.14]~[그림 4.19]에 나타내었다.

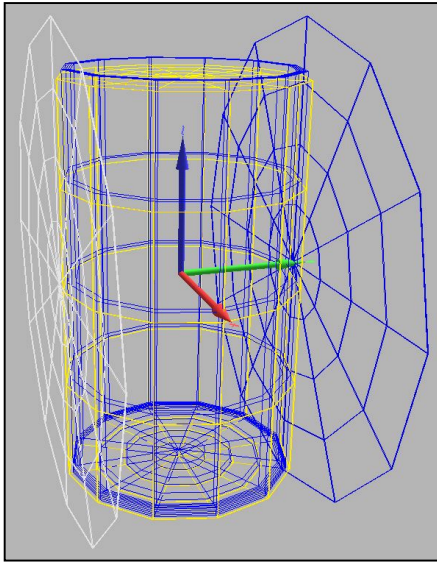
[그림 4.14]~[그림 4.17]은 플라스틱이 측정용기인 Vial 내부에 존재할 수 있는 형태를 도시한 것이고, [그림 4.18]과 [그림 4.19]는 MCNP code simulation 결과를 나타낸 것이다.

실험을 수행할 때 측정용기 내부에 선원과 섬광체, 증류수를 균일하게 혼합한 다음 최소 24시간 이후에 플라스틱을 측정용기 내부에 삽입하여 계측을 수행하였다. 따라서 본 논문에서는 2만 DPM의 선원에서 방출된 전자가 섬광체와 100% 반응하는 것으로 가정하였고, Source term으로 18.6 keV와 5.68 keV(평균에너지)의 Photon만을 고려하였다.

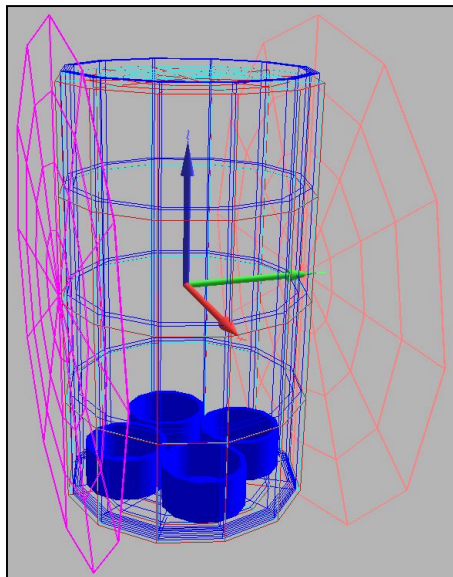
그리고 Source에서 방출된 광자는 물질의 원자번호, 즉 물질의 밀도에 크게 의존한다. 증류수와 액체상태의  $^3H$  선원, 섬광체의 밀도는 거의 1에 가깝기 때문에 Source term의 구성 물질은 100% 섬광체로 구성된 것으로 가정하여 Simulation을 수행하였다. 실험에 사용된 섬광체 밀도는  $1.094 \text{ g/cm}^3$ 이다.

따라서 이러한 물리적 타당성에 근거하여 Simulation에 사용된 위의 가정에 큰 문제는 없을 것으로 판단된다.

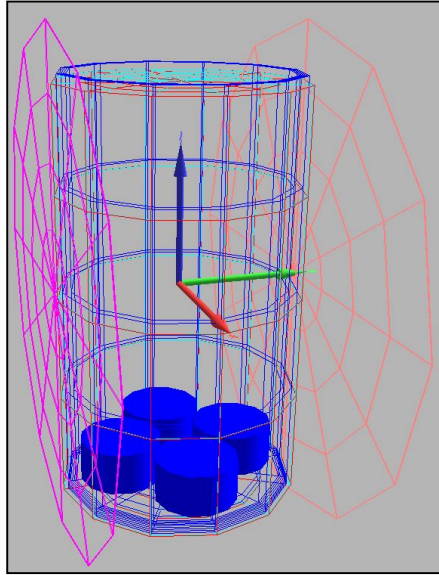




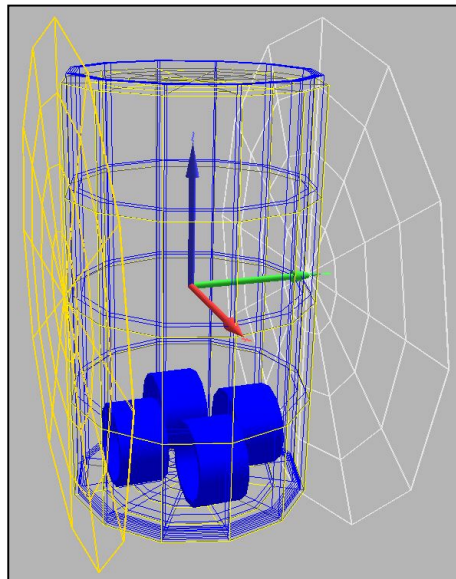
[그림 4.14] 플라스틱이 없는 경우



[그림 4.15] 플라스틱 존재 형태(Top open)



[그림 4.16] 플라스틱 존재형태(Bottom open)



[그림 4.17] 플라스틱 존재형태(Side open)

Simulation 결과 플라스틱 개수가 증가할수록 계측 효율은 18.6 keV와 5.68 keV 두 에너지 모두에서 감소하는 경향을 보였고, Side open일 때가 계측효율이 가장 낮은 것으로 모사되었다. 그리고 평균에너지인 5.68 keV일 때 Error 값 증가로 side open의 경우에 서로 상이한 경향이 보이는 것으로 Simulation 되었다.

[그림 4.18]은 18.6 keV 광자가 Source term으로부터 방출된다고 가정한 후 플라스틱 수를 증가시켰을 때 Simulation 결과로 나타난 계수 값을 플라스틱이 없을 때를 기준으로 Normalization한 것이다.

그림에서 보듯이 플라스틱의 존재형태와 상관없이 Normalized factor가 증가하는 것을 볼 수 있다.

[그림 4.18]에서 Top open인 경우의 기울기가 제일 크고, Side open 경우의 기울기가 가장 작은 것을 볼 수 있는데 이러한 경향을 보이는 것은 PMT 튜브가 계측용기의 양쪽에 위치에 있기 때문에 Source term에서 방출된 광자가 PMT 튜브로 가는 과정에 Side open인 형태로 존재할 때 가장 크게 영향을 미치기 때문이라 본 논문에서는 판단하였다.

[그림 4.19]는 5.68 keV의 에너지를 사용한 것이고, 기타 Simulation 조건은 [그림 4.18]과 같은 조건에서 Simulation한 결과를 도시한 것이다.

[그림 4.19]에 제시된 오차는 약 6% 정도로 [그림 4.20]에 비해 상당히 큰 것을 볼 수 있는데, 이는 광자의 에너지가 작아짐에 따라 플라스틱을 투과하는 비율이 감소하기 때문에 오차가 크게 나타난 것으로 판단된다.

광자의 에너지가 18.6 keV인 경우에는 Simulation error가 0.4% 이내로 비교적 작아 플라스틱 개수에 따른 결과 값도 선형적으로 나타나고 있지만 광자의 에너지가 5.685 keV인 경우에는 Simulation Error가 6% 이상으로 계산되어 플라스틱 개수가 2개 이상부터는 결과 값도 선형적으로 계산되지 않았다.

이러한 요인은 Low energy의 광자는 Simulation Error를 상승시키고 계산시간을 많이 소요시키는 요인으로 작용하기 때문에 MCNP에서는 cutoff energy가 1

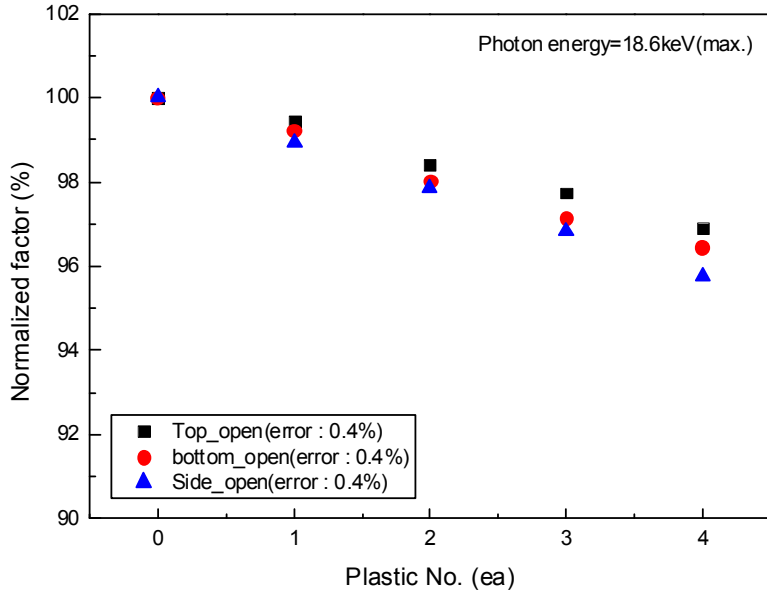
keV 이하로 제한하고 있다.

본 Simulation에서 사용된 광자의 에너지는 5.685 keV로 매우 낮아 cutoff energy를 제외하면 실제적으로 피사체와 반응하는 광자의 에너지 영역이 매우 작다. 따라서 플라스틱 개수가 증가하면(2개 이상) 피사체와 상호작용 역시 많아지기 때문에 MCNP Code에서 계산되는 결과는 Simulation Error에 따라 매우 민감하게 영향을 받은 것이라 판단된다. 그러므로 플라스틱 개수가 2개 이상 영역에서의 Simulation Error가 비슷하다고 할지라도 계산된 결과값의 경향이 비선형적으로 나타난 것이라 판단된다.

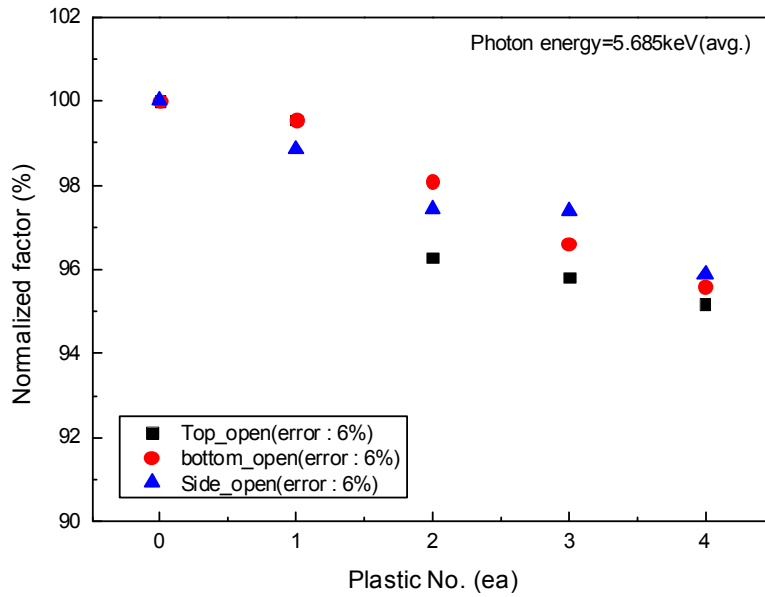
따라서 이러한 요인을 해결하기 위해서는 더 많은 random number를 발생시켜 Simulation Error를 낮춰야 하나 이를 위해서는 더 많은 계산시간을 필요로 할 것이라 판단된다.

종합적으로 플라스틱에 의한 영향을 평가하기 위해 MCNP Code를 이용해 Simulation을 수행한 결과, 플라스틱 수가 증가함에 따라 계수 값이 증가하는 경향을 보였다. 이러한 실험 및 Simulation 결과로부터 비수용성인 플라스틱 용기는 측정용기 내부에서 Quencher로 작용하기 보다는 반사체의 역할을 하는 것으로 판단된다.

즉, 사용된 표준선원의 Activity가 낮으면 섬광체로부터 나오는 빛의 세기 또한 작게 되어 이 빛이 PMT로 가는 과정에 플라스틱 용기를 만나게 되면 일부는 반사가 되어 반대쪽의 PMT에서 계측이 됨으로써 CPM 값이 증가하고, Activity가 증가할수록 섬광체에서 나오는 빛의 세기는 크기 때문에 플라스틱에 의해 반사되는 양도 작게 나타난 것으로 판단된다.



[그림 4.18] MCNP Simulation 결과(Photon Energy : 18.6 keV)



[그림 4.19] MCNP Simulation 결과(Photon Energy : 5.69 keV)

본 논문에서는 Activity가 20만 DPM인 액 · 고상  $^3H$  표준선원과 민감도분석 결과를 이용하여 검 · 교정용 시료를 제작하고, 계측을 수행한 후 계측 결과에 대한 신뢰도 분석과  $\chi^2$ -test를 수행하였다.

$\chi^2$ -test를 통과한 데이터만을 이용하여 교정 곡선을 작성하였고, 방사능오차분석법을 이용하여 작성한 교정곡선에 대한 검증을 수행한 후 Geometry 차이에 의한 영향을 평가한 결과 아래와 같은 상관식을 제시하였다[23].

$$y = -479.746 + 1.149x - 0.000636x^2 \quad (4.1)$$

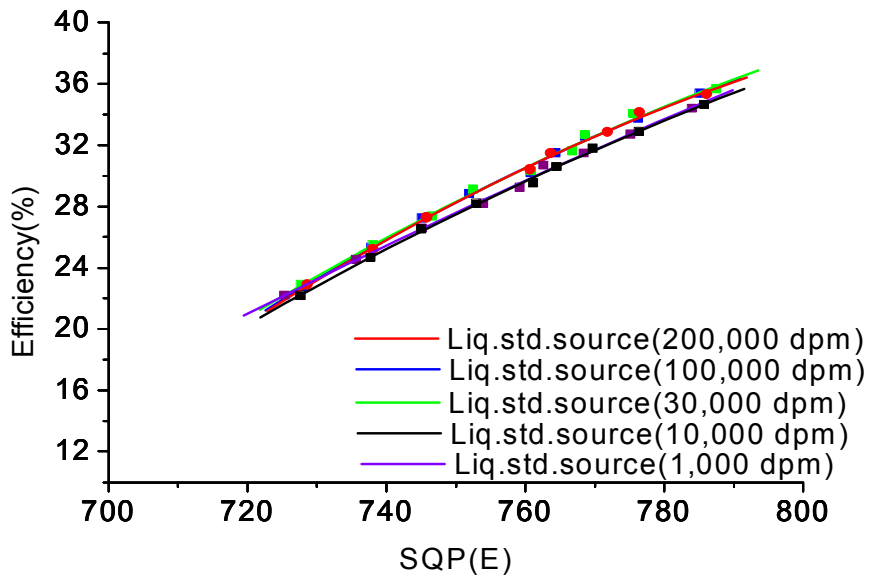
위의 식(4.1)은 Activity가 20만 DPM인 고상 표준선원을 이용하여 작성한 소광 보정 및 교정 곡선에 대한 상관식이다. Geometry 차이를 보정할 수 있는 상관식은 Activity 차이에 의한 영향을 평가한 후 그 결과에 근거하여 제시하였다.

### 3. Activity 차이에 대한 평가 결과

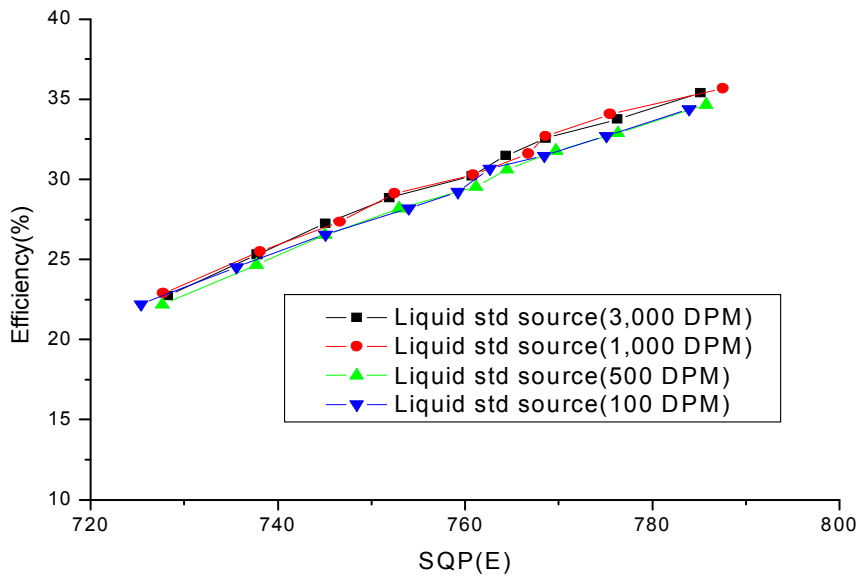
Geometry 차이에 대한 평가결과 액상 20만 DPM의 경우 최대 5% 미만의 오차와 고상 20만 DPM에서의 오차범위는 10~14%로 액상 20만DPM에 비해 상당히 높게 나타나고 있는 원인으로 판단했던 Activity 차이에 의한 영향에 대해 기술하였다.

#### 가. 교정 결과

Activity 차이에 의한 영향을 평가하기 위해서는 Activity가 20만/10만/3만/1만/3천/1천/5백/1백 DPM인 액상  $^3H$  표준선원을 이용하여 혼합비별로 총 80개의 교정용 시료를 조제하여 계측을 수행한 후 『제3장 연구 방법』에서 기술한 방법 및 절차에 소광보정곡선을 작성하였고, 그 결과를 [그림 4.20]과 [그림 4.21]에 제시하였다.



[그림 4.20] 액상선원으로 작성한 소광보정곡선(1/2)



[그림 4.21] 액상선원으로 작성한 소광보정곡선(2/2)

[그림 4.20]과 [그림 4.21]은 [표 4.9]에 제시된 결과들 중 2~98%의  $\chi^2$  Probability에 포함된 데이터만을 이용하여 소광 보정 및 교정 곡선을 작성한 것이다.

[그림 4.20]은 액상 20만/10만/3만/1만/1천 DPM인 표준선원을 이용하여 Activity 차이에 의한 영향을 파악하기 위해 작성하였고, [그림 4.21]은 액상 3천/1천/5백/1백 DPM인 선원을 이용하여 교정이 가능한 최저 Activity level를 제기하기 위해 나타낸 것이다. [그림 4.20]과 [그림 4.21]에서 보여 주듯이 Activity 차이에 의한 영향은 나타나지 않는 것을 볼 수 있고, 작성한 소광보정곡선에 대한 검증은 다음 절에서 기술하였다.

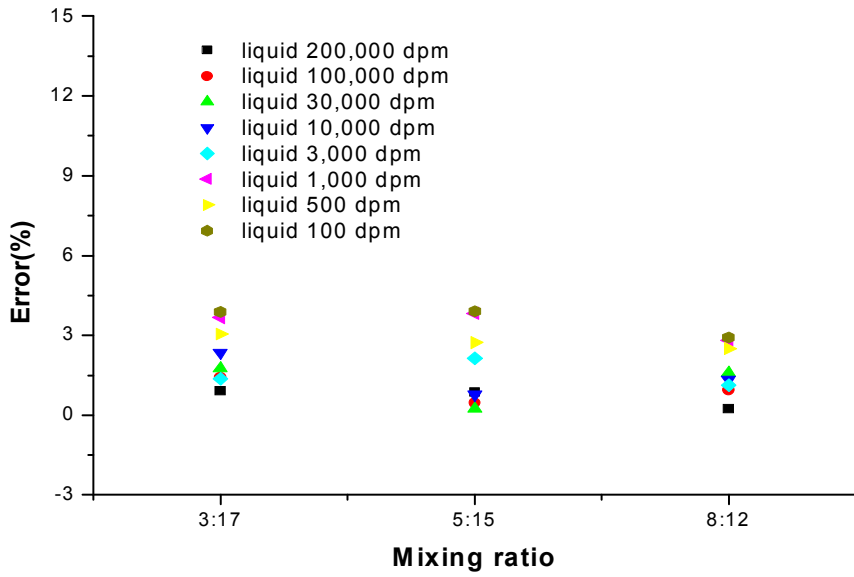
## 나. 검증 결과

혼합비별로 제작한 10개의 교정용 시료들 중 혼합비가 3:17, 5:15, 8:12인 시료를 선정하였다. 선정된 시료는 『제3장 연구 방법』의 [그림 3.3]와 [그림 3.4]에 제시된 절차에 따라 소광보정곡선을 작성한 후 [그림 3.5]와 [그림 3.6]에서 제시한 절차에 따라 검증을 수행하였고, 그 결과를 [표 4.12]~[표 4.13]과 [그림 4.22]~[그림 4.20]에 나타내었다.

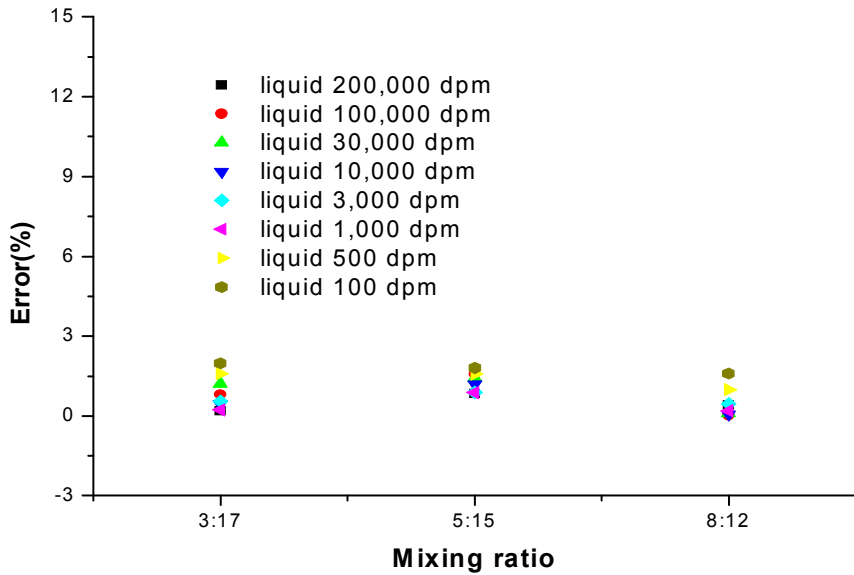


[표 4.12] 액상선원으로 작성한 소광보정곡선 검증 결과

선원 (dpm)	교정방법	혼합비별 오차(%)		
		3:17	5:15	8:12
액상 20만	기존 방법	0.907	0.867	0.232
	제안 방법	0.189	0.844	0.396
액상 10만	기존 방법	1.412	0.454	0.942
	제안 방법	0.799	1.571	0.028
액상 3만	기존 방법	1.749	0.242	1.593
	제안 방법	1.212	1.412	0.086
액상 1만	기존 방법	2.338	0.767	1.328
	제안 방법	0.445	1.202	0.057
액상 3천	기존 방법	1.370	2.135	1.113
	제안 방법	0.535	0.891	0.439
액상 1천	기존 방법	3.662	3.830	2.814
	제안 방법	0.227	0.872	0.195
액상 5백	기존 방법	3.042	2.730	2.502
	제안 방법	1.585	1.572	0.985
액상 1백	기존 방법	3.875	3.912	2.924
	제안 방법	1.987	1.802	1.595



[그림 4.22] 액상선원으로 작성한 소광보정곡선 검증결과(기존방법 적용)



[그림 4.23] 액상선원으로 작성한 소광보정곡선 검증결과(제안방법 적용)

[표 4.12]는 제작한 교정용 시료를 재 계측한 결과이고, [표 4.13]은 실제 환경시료의 Geometry와 동일하게 하고, 환경시료의 Activity 농도에 근접하게 검증용 시료를 제작한 후 계측한 결과를 도시한 것이다.

[그림 4.22]와 [그림 4.23]은 [표 4.12]와 [표 4.13]에 제시된 결과를 가시적으로 파악하기 나타낸 것이다.

[표 4.12]에서 보여 주듯이 기존 방법과 제안한 방법을 적용하여 소광보정곡선을 작성할 경우의 오차 범위는 각각 0.232~3.912%와 0.086~1.987 %로 제안한 방법이 기존 방법에 비해 오차가 낮게 나타났는데, 이러한 경향을 보이는 것은 민감도 분석 결과를 반영함으로써 데이터의 정확도 및 정밀도가 증가하였기 때문이라 판단된다.

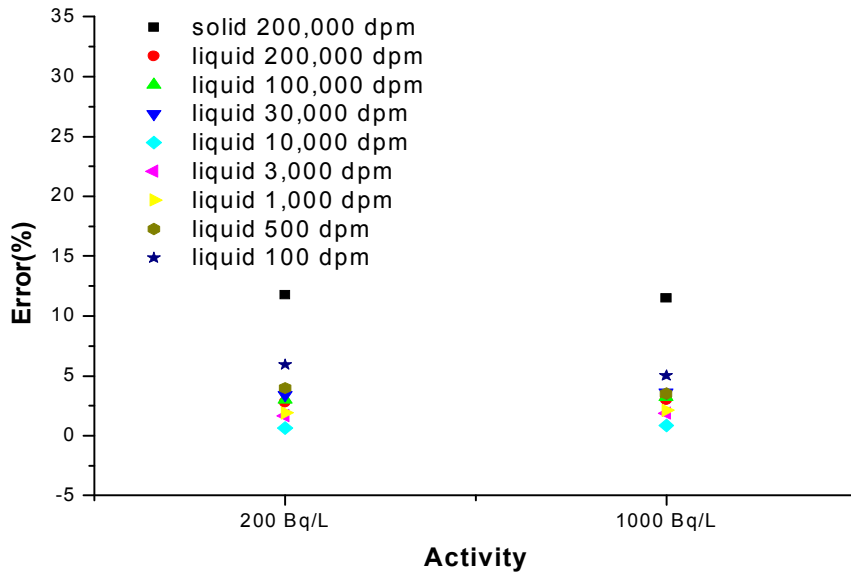
또한, [그림 4.22]와 [그림 4.23]에서 보여 주듯이 제안한 방법을 적용할 경우 3% 이내의 Error 범위 내에서 데이터들이 집중되는 경향을 보이는 반면, 기존 방법을 적용할 경우에는 데이터들이 3%이상의 Error를 보이고 있고, 분산정도 또한 제안한 방법을 적용한 경우에 비해 높게 나타나고 있는 것을 알 수 있다.

[표 4.13]은 실제 환경시료의 Activity 및 Geometry와 동일하게 제작한 시료를 계측한 후 계측 결과인 SQP(E) 값을 작성한 소광보정곡선에 적용함으로써 효율을 계산하였고, 계산된 효율과 계측 결과인 CPM 값을 이용하여 Activity를 계산함으로써 Known value인 Activity와 계산된 Activity 값을 비교 분석한 결과이다.

[표 4.13]과 [그림 4.24]를 통해 확인할 수 있듯이 Activity가 낮아짐에 따라 오차가 점점 커지고 있는 것을 볼 수 있다. 즉, 액상 500 DPM으로 제작한 시료의 오차는 3.51~3.98%로 액상 1백 DPM으로 제작한 시료의 오차인 5.01~5.95%에 비해 낮게 나타나고 있고, 1,000 Bq/l에 비해 200 Bq/l에서 오차가 더 크게 나타나고 있는 것을 확인 할 수 있다. 이러한 경향을 보이는 것은 사용된 선원의 Activity가 낮을수록 background에 의한 영향이 크게 반영되었기 때문이라 본 논문에서는 판단하였다.

[표 4.13] 낮은 Activity 농도에서 소광보정곡선 검증 결과

교정곡선 (DPM)	Activity별 오차(%)		비고
	200 Bq/ℓ	1,000 Bq/ℓ	
고상 20만	11.74	11.51	8:12의 혼합비 사용
액상 20만	2.79	2.99	상동
액상 10만	3.01	3.21	상동
액상 3만	3.42	3.62	상동
액상 1만	0.66	0.87	상동
액상 3천	1.66	1.87	상동
액상 1천	1.89	2.10	상동
액상 5백	3.98	3.51	상동
액상 1백	5.95	5.01	상동



[그림 4.24] 검증용 시료를 제작한 후 검증한 결과

본 논문에서는 이러한 계측 및 분석 결과에 근거하여 기존 연구에서 제시한 바와 같이 최소 1천 DPM 이상의 액상  $^3H$  standard source를 사용하여 교정을 수행해야 할 것으로 판단하였고, 액체 형태의  $^3H$  선원을 사용하여 LSC 장비에 대한 교정을 수행할 경우 교정이 가능한 최저 Activity level로 1천 DPM 이상을 제시하였으며, 아래와 같은 상관식을 나타내었다.

$$y = -472.16903 + 1.11053x - 0.00059244x^2 \quad (4.2)$$

위의 식(4.2)은 Activity 차이에 의한 영향은 나타나지 않았기 때문에 Activity가 20만/10만/3만/1만/3천/1천/5백/1백 DPM인 액상선원으로 작성한 교정곡선들 중 오차가 가장 낮게 나타난 1만 DPM으로 작성한 소광보정곡선이고, Activity 차이에 의한 영향이 없었기 때문에 보정식은 제시하지 않았다.

#### 4. Activity 및 Geometry 차이에 대한 종합 결과

본 논문에서 민감도분석 결과를 반영하여 Activity가 20만 DPM인 액·고상 형태의  $^3H$  선원을 이용하여 Geometry 차이에 의한 영향을 평가한 결과 Geometry 차이에 의한 영향은 나타났다.

반면, Activity 차이에 의한 영향은 나타나지 않았지만 1천 DPM 이하의 Activity에서는 Activity가 낮을수록 오차가 증가하는 경향을 보였는데, 이는 Activity가 낮을수록 Background나 Noise 등에 의한 영향이 반영됨으로써 나타난 것이라 본 논문에서는 판단하였다.

이러한 계측 및 분석 결과에 근거하여 본 논문에서는 장비에 대한 검·교정을 수행할 때 최소 1천 DPM 이상의 액상 표준선원과 민감도분석 결과를 반영함으로써 교정을 수행해야 할 것으로 판단되고, Geometry 차이에 의한 영향이 나타났기 때문에 이를 보상해주기 위해서는 보정식 및 상수를 제시하였다.

본 논문에서는 평균 SQP(E) 값을 기준으로 상관관계를 도출하였으며 상세한 방

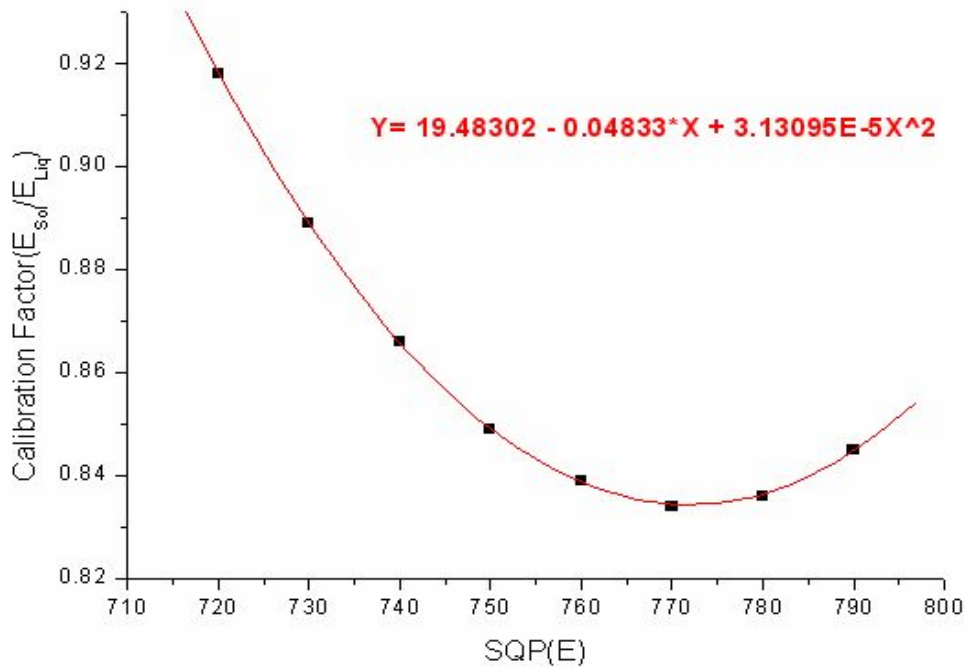
법은 아래와 같다.

- (1) 동일 SQP(E) 값을 식(4.1)과 식(4.2)에 적용한 후 효율 계산한 후
- (2) 식(4.2)에 의해 계산된 효율을 식(4.1)에 의해 계산된 효율로 나누어 줌으로써 보정상수를 계산하였고,
- (3) 계산된 보정상수와 SQP(E) 값의 관계로 보정식을 제시하였다.

위의 방법 및 절차에 따라 계산된 보정식은

$$y = 19.48302 - 0.04833x + 0.0000313x^2 \quad (4.3)$$

로서 위의 식(4.3)에서  $x$ 와  $y$ 는 각각 평균 SQP(E) 값과 효율을 나타내고, 위의 식(4.3)을 가시적으로 표현한 결과를 [그림 4.25]에 나타내었다.



[그림 4.25] 제안한 보정곡선

위의 보정식에는 장비에 대한 검·교정을 수행할 때 존재하는 Error 및 Uncertainty가 포함되었기 때문에 위의 식(4.3)을 적용할 경우 고상 20만 DPM으로 교정을 수행하더라도 액상선원으로 교정한 결과와 동일한 정확도와 정밀도를 보장할 수 있을 것으로 판단된다.

다만 위의 식(4.3)을 이용하여 다른 장비에 대한 검·교정을 수행할 경우 장비 노후화 정도에 따라 SQP(E)와 CPM(E) 값이 다르기 때문에 장비의 건전성뿐만 아니라 시간경과에 따른 노후화 정도를 고려해야 할 것으로 판단된다.

이러한 LSC 장비 노후화와 관련하여 장비가 노후화됨에 따라 나타나는 물리적 현상으로 장비가 노후화 되더라도 계측 정확도 및 정밀도에 차이가 없다면 검·교정뿐만 아니라 환경시료 내에 존재하는  $^3H$  농도를 계측하는데 문제가 없을 것으로 판단되어, Quantulus 1220 장비의 노후화 정도를 상대적으로 평가하기 위해 4개 기관을 선정한 후 이에 대한 평가결과를 [표 4.14]에 제시하였다.

[표 4.14]는 Activity가 20만 DPM인 액상선원을 이용하여 8:12의 혼합비로 검증용 시료를 제작하여 계측을 수행한 후 계측 결과에 의해 제시된 비방사능 값과 검증용 시료를 제작할 때 알고 있는 비방사능 값을 비교 분석한 결과를 제시한 것이다.

[표 4.14] 4개 기관의 계측치에 대한 검증 결과

기관	인증 값(dpm)	계측 값(dpm)	Error(%)	효율(%)
A	183,756.7	183,757.06	0.10	26.19
B	182,845.5	179,740.9	1.70	30.81
C	183,331.7	181,287.0	1.12	31.79
D	182,936.0	182,021.1	0.50	34.43

위의 [표 4.14]에서 보여 주듯이 4개 기관의 장비에서 나타난 오차 범위는 0.10~1.70%로 무시할 수 있을 정도로 낮은 것을 볼 수 있다.

이러한 계측 및 검증 결과로부터 각 기관의 장비별로 교정곡선에는 차이가 발생할 수 있지만 정확도에는 큰 차이가 없었기 때문에 어느 장비를 사용하더라도 환경시료를 분석하는데 큰 문제는 없을 것으로 판단되었다.

참고적으로 장비사용 기간과 총 계측 시간과는 비례관계가 성립한다고는 할 수 없지만, 총 계측시간과 첫 사용일을 기준으로 효율의 감소 경향을 파악한 결과 효율은 각각 0.9/month, 1.5/yr 정도 감소하는 것으로 계산되었다.

따라서 보다 심층적인 장비의 노후화 정도를 정량적으로 평가한 후 적용해야 할 것으로 판단된다.



## 제5장 결 론

본 논문에서 Activity 및 Geometry 차이와 계측 차이에 의한 영향을 평가하기 전에 민감도분석을 수행한 결과 외부선원의 조사시간과 측정방법으로 75초와 Repeat를 적용하여 검·교정을 수행한 결과 기존 방법에 비해 약 1~2%정도 정확도가 증가하였고, 민감도분석 결과를 반영하여 Geometry 및 Activity 차이에 의한 영향을 평가한 결과 다음과 같은 결론을 도출하였다.

Activity가 20만 DPM인 액·고상 형태의  $^3H$  선원을 이용하여 Geometry 차이에 의한 영향을 평가한 결과 Geometry 차이에 의한 크게 나타나 이에 대한 원인을 규명하기 위한 추가 시험 및 MCNP Code를 이용한 Simulation 수행결과 비수용성인 플라스틱 용기는 측정용기 내부에서 반사체의 역할을 하였지만 Activity가 증가함에 따라 플라스틱 용기에 의한 영향은 감소하는 경향을 보였고, 20만 DPM의 Activity에서는 거의 나타나지 않았다.

20만 DPM의 Activity에서 플라스틱 용기에 의한 영향이 나타나지 않았거나 무시할 수 있을 정도로 작았기 때문에 본 연구에서는 고상 표준선원을 제작하는 과정에서 문제가 있었고, 이로 인해 Error가 크게 나타난 것으로 판단하였다.

Activity가 20만/10만/3만/1만/3천/1천/5백/1백 DPM인 액상  $^3H$  선원을 이용하여 Activity 차이에 의한 영향을 평가한 결과 Activity 차이에 의한 영향은 나타나지 않았지만 1천 DPM 이하의 Activity에서는 Activity가 낮을수록 오차가 증가하는 경향을 보였는데, 이러한 경향은 Activity가 낮을수록 Background나 Noise 등에 의한 영향이 반영됨으로써 나타난 것이라 본 논문에서는 판단하였다.

이러한 계측 및 분석 결과에 근거하여 본 논문에서는 장비에 대한 검·교정을 수행할 때 최소 1천 DPM 이상의 액상 표준선원과 민감도분석 결과를 반영함으로써 교정 결과에 대한 신뢰성을 확보한 후 환경시료를 계측해야 할 것으로 판단되고, Geometry 차이에 의한 영향을 보상하기 위한 식을 제시하였으며, 제시한 식은

아래와 같다.

$$y = 19.3 - 0.048x + 0.000031x^2$$

위의 식에서  $x$ 와  $y$ 는 각각 평균 SQP(E)와 효율이다. 위의 식에는 검·교정을 수행할 때 존재할 수 있는 Uncertainty가 포함되었기 때문에 위의 식을 적용할 경우 고상 20만 DPM으로 교정을 수행하더라도 Activity가 1천 DPM 이상인 액상선 원으로 교정한 결과와 동일한 정확도 및 정밀도를 보장할 수 있을 것으로 판단된다.

그러나 위의 식을 다른 장비에 적용할 경우 장비 노후화에 따라 SQP(E)와 CPM 값이 다르기 때문에 장비 노후화에 대한 영향을 평가한 후 적용해야 할 것으로 판단된다.

## 참고 문헌

- [1] 한국원자력안전기술원, “삼중수소의 생성과 그 영향평가에 관한 연구”, KINS /AR-310-87, 1994.
- [2] Geoscience Advisory Unit, National Oceanography Centre Southampton, Analysis of total tritium and C-14 in solid samples, GAU/RC/2022, 2005.
- [3] 전력연구원, “삼중수소 및 C-14 선량평가 기술교류회”, 2000.
- [4] 한국원자력안전기술원, “환경으로 방출된 삼중수소의 환경내 거동에 관한 연구”, KINS/AR-384, 1995.
- [5] 한국원자력연구소, “방사선 환경 방호기술 개발 : 육상생태계 사고영향 평가기술 개발”, KAERI/RR-2035/99.
- [6] Michael F. L'Annunziata, Handbook of Radioactivity Analysis, 2nd Edition, Academic press, 2003.
- [7] PerkinElmer, “Quantulus 1220 Liquid Scintillation Counter Instrument Manual”, 2004.
- [8] Wallac Company, “1220 Quantulus Liquid Scintillation Counter, Instrument Manual”, 1995.
- [9] 강희동의 3인, “감마선 핵종 분석”, 도서출판 일일사, 2002.
- [10] 경북대학교 방사선과학연구소, “방사능 분석법”, 2005.
- [11] KINS. Manual of standard procedures for Environmental sampling and radioactivity analysis. Korea Institute of Nuclear Safety, KINS/G-009.
- [12] 한국표준과학연구원, “액체섬광측정법”
- [13] 한국표준과학연구원, “저에너지 순베타입자 방출핵종의 방사능 측정 표준화”, KSRI -91-55-IR, 1991.
- [14] Knoll GF. “섬광검출기의 원리”, In: 이수용. “Radiation Detection and Measurement”, 1997.
- [15] 영광원전 환경안전·감시센터, “환경시료 분석을 위한 LSC(액체섬광계수기)용 표준선원의 개발 및 보정에 관한 연구”, 전력산업연구개발 1차년도 진도보고

- 서, 2005.
- [16] 한국원자력안전기술원, “국내 방사능 교차분석결과 보고서”, KINS/AR-590, Vol.9. 2006~2009년.
- [17] 한국전력공사, “환경방사능 분석법 연구”, KRC-90C-JO2, 1992.
- [18] A Canberra Company. Science and Technology, Liquid Scintillation Analysis.
- [19] N. Momoshima, et al. “Vial Effect and Background Subtraction Method in Low-Level Tritium Measurement by Liquid Scintillation Counter”, Int. J. Appl. Radiat. Isot. Vol. 34, No. 12, 1983.
- [20] Yukata Kobayashi et al, “Laboratory Manual for Liquid Scintillation Counting”, 1988.
- [21] Carmen Varlam, et al, “Comparative Study Between External Standard Method and Internal Standard Method for Low-Level Tritium Measurements”, International Conference Nuclear Energy in Central Europe 2001.
- [22] Packard Instrument Company, “Laboratory Manual for Liquid Scintillation Counting”, 1988.
- [23] 한상준 외 4, “LSC장비를 이용한 교정시 Activity 및 Geometry 차이에 의한 영향 평가”, 대한방사선방어학회, 2008.
- [24] RADIOCARBON, “Liquid Scintillation Spectrometry”, 1994.
- [25] RADIOCARBON, “Advances in Liquid Scintillation Spectrometry”, 2001.
- [26] 한국수력원자력(주), “원자력발전소 주변 환경방사선조사보고서”, 2003~2009년도 연보.
- [27] 한국수력원자력(주) 원자력환경기술원, “C-14 추적 및 선량평가 기술개발“, 최종연구보고서, 2005.5
- [28] 한국원자력안전기술원, “방사능 방재 환경 규제기술 개발 : 주민피폭선량 평가 지침 및 INDAC 사용자지침서”, KINS/GR-199.
- [29] Lee, H. N. et al. “Determination of C-14 and H-3 in Radioactive Wastes by Oxidation Method”, Korean Nuclear Society, 2004.

- [30] 과학기술부고시 제2004-17, “원자력이용시설 주변의 방사선환경조사 및 방사선환경영향평가에 관한 규정”, 2004.
- [31] Mobius S, Noakes JE, Schonhofer F. Advances in Liquid Scintillation Spectrometry. LSC 2001.
- [32] AECL Research Chalk River Laboratories, “Dose from Organically Bound Tritium After an Acute Tritiated Water Intake in Humans”, AECSB Project No.7.155.1, 1995.
- [33] 보건복지부, “국민건강/영양조사”, 2009.