Journal of RADIATION INDUSTRY
Vol. 18, No. 4, pp. 267-273, 2024
https://doi.org/10.23042/radin.2024.18.4.267

Original article

극저준위 액체섬광계수기를 이용한 소광보정곡선 최적화 및 성능검사용 시료의 삼중수소 방사능 측정 평가

계용욱[1,*] · 서윤재[2]

[1]동남권원자력의학원 연구센터, [2]동아대학교 물리학과

Measurement Assessment for Tritium Radioactivity of Performance Test Sample and Optimizing the Quenching Curve Using an Ultra Low-Level Liquid Scintillation Counter

Yong Uk Kye[1,*] and Yun Jae Seo[2]

[1]Dongnam Institute of Radiological & Medical Sciences, research center, Jwadong-gil 40, Jangan-eup, Gijang-gun, Busan 46033, Republic of Korea
[2]Dong-A University, department of physics, 37, Nakdong-daero 550beon-gil, Saha-gu, Busan 49315, Republic of Korea

ABSTRACT Continuous monitoring of tritium (^{3}H) in the environment is essential for sustaining our daily life. To accurately measure tritium radioactivity and improve reliability, we calculated a quenching curve through periodic calibration using an ultra low-level liquid scintillation counter conducted two blind test-type performance evaluations for checking the validity of the quenching curve. In the first performance test, the measurement efficiency using the quenching curve was 30.43%, the radioactivity concentration was 174.6 Bq kg^{-1}, with a 4.1% uncertainty (confidence level about 95%, $k=2$), and the minimum detectable activity (MDA) was 2.00 Bq kg^{-1}. In the case of the second performance test, they were calculated as 28.60%, 313.2 Bq kg^{-1}, 3.7% (confidence level about 95%, $k=2$), and 1.87 Bq kg^{-1}, respectively. The z'—*value* was evaluated as –0.37 and –1.07, respectively, which were within the satisfactory range ($z'<2$) and showed a very close radioactivity concentration when compared to the set value of the performance test. In addition, the validity of the measurement technology was secured through the E_n—*value* evaluation method within the period during which the calibration of the measurement equipment was maintained, all results showed a high level with values below 1. Based on these results, the validity of reliability and uncertainty in the measurement technology of tritium samples, that is, the measurement reliability of the measurement system, was secured.

Key words: Tritium, Ultra low-level liquid scintillation counter, Quenching curve, Uncertainty

1. 서 론

삼중수소는 수소원자보다 3배 무거운 수소의 동위원소로서 1개의 양성자와 2개의 중성자로 이루어져있는 순수베타 방출핵종으로 원자로의 핵분열과정 또는 중성자포획에 의해 발생된다. 주로 HTO, T2O의 형태로 존재하며 액체, 기체 및 유기결합삼중수소 등의 형태로도 존재한다[1,2]. 또한 삼중수소는 대기 중의 질소 또는 산소원자가 중성자와 같은 우주방사선과 반응하여 자연적으로 생성되며 현재 국내 원전의 가압중수로에서 감속재와 냉각재로 중수를 사용하고 있기 때문에 중성자 조사에 의해 생성된 삼중수소의 양이 가압경수로에 비해 절대적으로 많은 양을 배출하고 있으며 중성자와 반응을 통해 삼중수소를 생성하며 삼중수소를 발생시키는 주요 핵반응 단면적을 Fig. 1에 나타내었다[3,4].

원자로의 핵분열과정에서 직접 또는 중성자포획에 의해 발생하는 삼중수소는 핵융합발전에 사용되는 귀중한 연료이다. 하지만 삼중수소가 환경으로 누설되어 인체에 흡수되는 경우 내부피폭을 야기할 수 있어 각국에서 섭취허용한도를 엄격히 관리하고 있다. 최근에는 후쿠시마 원전 사고 이후 발전소의 오염수 방류를 시작하였고 오염수 중 삼중수소 농도가 리터당 200 Bq 이

ISSN 1976-2402 **http://www.ksri.kr/**

Copyright© 2024 by Korean Society of Radiation Industry

***Corresponding author:** Yong Uk Kye
Tel: +82-51-720-5769, Fax: +82-51-720-5826, E-mail: kyu0610@dirams.re.kr

Received 9 September 2024 **Revised** 2 December 2024 **Accepted** 16 December 2024

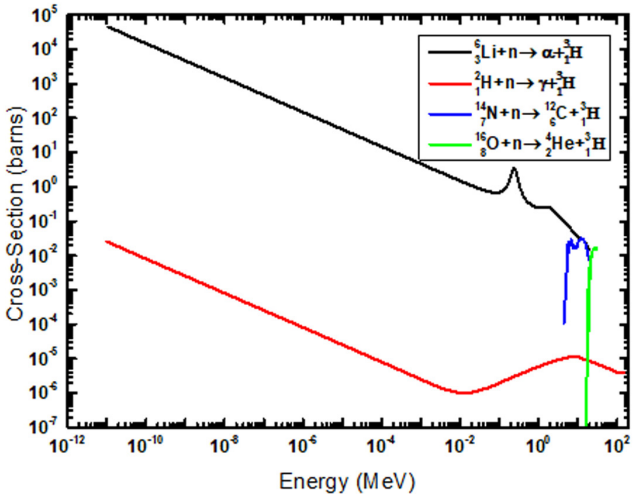

Fig. 1. Neutron total cross section for available generating tritium from ^{6}Li, ^{2}H, ^{14}N, and ^{16}O

라고 발표하였으나 해수를 통해 전 세계적으로 희석되어도 지속적으로 삼중수소 농도의 축적 우려로 환경 중 삼중수소의 지속적인 모니터링은 필수적이다. 내부피폭을 일으킬 수 있는 환경 중 삼중수소의 지속적이고 정밀한 측정은 필수적인 요소로 측정의 신뢰성 제고를 위하여 본 연구에서는 삼중수소 방사능의 정밀측정에 대하여 서술한다[3-8].

삼중수소 방사능의 정밀 측정을 위하여 극 저준위 액체섬광계수기인 Quantulus 1220를 사용하였고 인증표준물질(Certified Reference Material, CRM)을 활용하여 측정장비의 교정을 진행하였다. 교정 시 사용하는 인증표준물질 측정을 통하여 얻은 소광정도에 따른 계측효율을 평가하여 소광보정곡선을 산출하고 삼중수소시료의 방사능 농도 계산에 활용하였다. 액체섬광계수기의 소광보정곡선 및 삼중수소시료의 방사능 대한 측정결과는 통계적인 요인과 기타 불확정성 요인들을 포함하고 있으므로 측정불확도 요소를 분류하여 평가를 진행하고 이를 통해 삼중수소 시료의 측정기술에 있어서 신뢰성과 결과값 및 불확도의 타당성을 확보하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 액체섬광계수기의 소광보정곡선 산출

삼중수소의 방사능 측정을 위하여 PerkinElmer 社의 극 저준위 액체섬광계수기인 Quantulus 1220을 이용하였다. Quantulus 1220는 검출기 신호의 분석 한계로 인한 자연방사선 측정 및 자연방사선 차폐로 저준위 방사능 분석을 위해 7-11 cm 두께의 납과 납에서 발생되는 저에너지 x-ray의 차폐체인 구리로 측정 시스템이 수동차폐가 되어있다. 저준위의 방사능을 측정하기 위해 수동차폐 뿐만 아니라 수평 방향으로 섬광계수기를 위치시킨 후 신호가 동시에 동일한 전하가 수집되면 하전입자로 인한 신호로 인식이 되도록 하는 coincidence 방식으로 능동차폐가 되어 있다. Coincidence 방식은 검출기의 기하학적 배치로 시료에서 방출 하는 방사선 외의 노이즈는 양측의 검출기에 동시에 들어와도 신호차이에 의한 분류가 가능하다. 능동 차폐 후 측정된 신호는 증폭기 및 신호성형기의 신호성형을 거쳐 Pulse Shape Analysis (PSA) 방법을 통해 α입자 및 β입자의 신호를 분리한다[9-12].

인증표준물질이란 공인된 기구에서 발급된 문서를 동반하는 유효한 절차를 사용하여 한 개 이상의 명시된 특성 값과 연계 불확도, 소급성을 제공하는 표준물질을 의미한다. 이는 방사능은 동일하지만 소광정도가 다른 여러 개의 표준물질로 이루어져있고 측정을 통해 각 인증표준물질에 대한 계수효율을 산출할 수 있다. PerkinElmer 社에서 제공하는 삼중수소 방사능 농도에 소광정도가 다른 8개의 인증표준물질(105 980 dpm, 상대확장불확도 3.2%, 신뢰수준 약 95%, $k=2$)을 사용하였으며 인증표준물질의 소광정도(External Standard Spectral Quench Parameter, SQP(E))를 측정하여 인증표준물질별 계수효율과 소광정도로 효율을 산출하며 식 (1)을 이용하여 소광보정곡선을 산출하였다[13].

$$y=a_1x^5+a_2x^4+a_3x^3+a_4x^2+a_5x+a_6 \quad (1)$$

a_n은 소광보정곡선식의 상수, x인 SQP(E)는 측정 시료의 소광정도이며 산출된 값들을 대입하여 소광정도에 따라 5차 선형회귀곡선으로 소광보정곡선을 산출하였다[14-16].

2.2. 삼중수소시료의 전처리

인증표준물질을 이용하여 산출한 소광보정곡선은 삼중수소의 존재여부를 파악하기 위해 다양한 액체 시료측정에 활용할 수 있다. 본 실험에서는 염기성 용액 즉 0.1 M NaOH 내에 포함되어있는 삼중수소의 방사능 측정을 위하여 화학적 전처리 과정을 수행하였다. 시료 내에 존재하는 유기물과 염분을 제거하기 위해서 과망간산칼륨($KMnO_4$)과 과산화나트륨(Na_2O_2) 시약을 삼중수소시료가 담긴 비커에 첨가하고 충분히 혼합시킨다. 혼합된 삼중수소시료는 둥근 플라스크로 옮기고 맨틀히터에 넣어 고정하며 리비히 냉각기가 연결된 가지형 증류 관의 가지와 잘 연결한 후 맨틀히터의 온도를 90~100°C 정도로 조절한다. 가지형 증류 관 내벽의 세척을 위해 소량의 증류액이 모이면 다른 용기에 부어서 버려주고 그 후에 모이는 증류액은 측정시료로 사용한다. 가지형 증류 관에 모인 증류액을 유리바이알에 옮겨 담은 후 질산은($AgNO_3$)을 첨가 후 혼합시켜 백탁현상의 유무를 확인한다. 가지형 증류 관에 증류액이 충분히 모이면 증류액을 비커에 옮겨 담고 충분히 식혀준다. 또한 추후 삼중수소시료의 정확한 측정을 위하여 삼중수소시료와 같은 양의 증류수(Distilled water)를 이용하여 동일한 과정을 반복한 백그라운드 시료를 제

작한다. 액체섬광계수기를 이용한 삼중수소시료 측정 시 액체섬광체(Ultima Gold LLT, PerkinElmer, US)를 증류액과 혼합비율(시료 8 mL: 칵테일 12 mL)로 혼합하여 최종 시료를 제작하였다.

2.3. 삼중수소시료의 측정

액체섬광계수기를 이용한 시료의 측정 시 바이알 내부 공기방울로 인해 발생되는 화학발광 (Chemiluminescence) 등의 현상으로도 오차가 발생할 수 있으므로 이를 최소화하기 위하여 장비 내부 tray에 장전시킨 후 12시간 이상 냉각하여 시료가 안정된 후에 300 분간 측정을 진행하였다[15].

삼중수소의 측정효율(ε) 및 소광정도(SQP(E))는 각 시료 마다 다른 값을 가지며 앞서 언급한 인증표준물질을 사용하여 소광정도에 따라 산출된 소광보정곡선으로 계산한다. 시료의 측정 시 얻어진 SQP(E) 값을 소광보정곡선 식에 대입하면 각 시료의 측정효율을 계산할 수 있고 시료마다 각 효율을 대입하여 시료 내 삼중수소 방사능 평가에 사용한다.

$$A(t) = \frac{C_{sample} - C_{bkg}}{\varepsilon \times k_t} \quad (2)$$

삼중수소의 방사능 농도 ($A(t)$)는 삼중수소시료의 계수율(C_{sample})에서 백그라운드 계수율(C_{bkg})을 제거한 값에서 소광보정곡선을 이용하여 얻은 삼중수소시료의 측정효율(ε), 측정일을 기준으로 계산한 방사성 붕괴보정인자(k_t)를 나누어 식 (2)를 통해 얻을 수 있다. 삼중수소시료의 측정효율은 측정 시 얻은 SQP(E)값을 소광보정곡선에 대입하여 계산하였다. 방사성 붕괴보정인자의 경우에는 방사능의 기준일 이후 측정시점까지의 경과된 시간(t)과 삼중수소의 반감기($T_{1/2}$)를 이용하여 산출한다. 계산된 효율 값을 이용하여 각각의 미지의 시료 측정에 측정효율을 대입하여 최종 삼중수소 방사능 농도값을 계산한다. 측정된 SQP(E) 값에 의한 측정효율(ε), 방사성동위원소의 방사능 보정인자(k_t), 측정시료의 순계수율(C_{net})을 이용하여 1차, 2차 성능검사의 삼중수소 방사능 농도값을 계산하였다. 성능검사의 검사결과 여부는 ISO-13528:2015(E) 에 근거하여 z'—*value*값을 계산한 후 평가하며 z'—*value*의 값에 따라 결정된다. z'—*value*값이 2 이하일 때 만족이며, 2 초과 3 이하일 때는 재측정 혹은 검토가 필요하고, 3 이상 일 경우 불만족으로 평가한다.

2.4. 측정불확도 산출

소광보정곡선의 불확도 요인은 인증표준물질의 순계수율 상대표준불확도($u(C_{net})$), 측정시점에서 인증표준물질의 방사능 상대표준불확도($u(A_s)$), 베타선 방출확률의 상대표준불확도($u(P_\beta)$), 인증표준물질의 방사성 붕괴보정인자의 상대표준불확도($u(k_t)$), 소광보정곡선 선형회귀에 따른 보정인자의 상대표준불확도($u(k_{QIP})$), 소광보정곡선 선형회귀의 계통적 효과에 따른 보정인자의 상대표준불확도($u(k_B)$)을 적용하여 평가하였다. 성능검사용 삼중수소시료 측정의 불확도 요인은 시료의 순계수율 상대표준불확도($_u(C_{net})$), 시료 측정효율의 상대표준불확도($u(\varepsilon)$) 시료의 방사성 붕괴보정인자의 상대표준불확도($u(k_t)$)를 고려하여 평가하였다. 불확도의 전파법칙에 따라 상대합성표준불확도는 식 (3), (4)와 같이 주어지며 각 항목들은 상호 독립적이다. 측정의 수학적 모델에 따라 감도계수는 1로 간주한다. 인증표준물질을 측정한 소광보정곡선 측정효율의 경우 합성표준불확도 계산식은 식 (3)과 같다[14,15].

$$u_c(\varepsilon) = \sqrt{u^2(C_{net}) + u^2(A_s) + u^2(P_\beta) + u^2(k_t) + u^2(k_{QIP}) + u^2(k_B)} \quad (3)$$

삼중수소시료 측정의 경우 방사능 농도의 합성표준불확도는 식 (4)와 같이 평가한다.

$$u_c(A) = \sqrt{u^2(C_{net}) + u^2(\varepsilon) + u^2(k_t)} \quad (4)$$

위의 요인에 따라 각 요소별 상대표준불확도를 산출한 후 식 (3)과 (4)를 이용하여 상대합성표준불확도를 구한다. 이를 상대확장불확도로 전환하고 각 불확도 성분의 자유도로부터 유효자유도(effective degree of freedom: v_{eff})를 산출한다. 신뢰도 및 유효자유도에 따라 포함인자가 주어지므로 유효자유도가 10 이상이면 확률분포를 정규분포로 추정하며, 이 때 유효자유도가 ∞임으로 포함인자 k=2를 적용하여 상대확장불확도를 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 액체섬광계수기의 소광보정곡선 산출결과

방사능 농도는 동일하고 소광정도가 다른 표준인증물질 시료 8개를 액체섬광계수기 내부에 위치시키고 얻은 SQP(E)값을 이용하여 선형회귀 곡선을 통해 평가한 액체섬광계수기의 소광보정곡선을 1년 단위로 산출하였고 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 소광보정곡선의 산출 기간의 6개월이 도달한 기간마다 E_n—*value*를 평가하여 측정의 신뢰성을 확인하였고 각각 1이하의 값인 0.86, 0.34의 값을 나타내었다.

3.2. 삼중수소시료의 방사능 측정결과

삼중수소시료의 방사능 결과값 계산을 위해 블라인드 성능검사를 2년간 2회 실시하였고 그 결과를 바탕으로 삼중수소 측정 신뢰성 확보여부를 판단하였다. 산출된 소광보정곡선에 방사능 농도값을 알 수 없는 미지의 성능검사용 시료를 전처리하여 300분 간 측정한 결과 SQP(E) 값이 748.157이 나왔으며 해당 값을 Fig. 2의 Quenching Curve #1 파라미터를 이용하여 선형회귀식에 대입해 시료의 측정효율을 계산하면 1차 성능검사의 측정효율이 30.43%로 계산된다. 1년 후 새로운 Quenching Curve #2를 도출하고 방사능 농도값을 알 수 없는 미지의 시료를 전처리하여 동일하게 300분 간 측정하였고 SQP(E) 값이 744.880로 평가되었으며 이를 Quenching Curve #2에 대입하여 2차 성능검

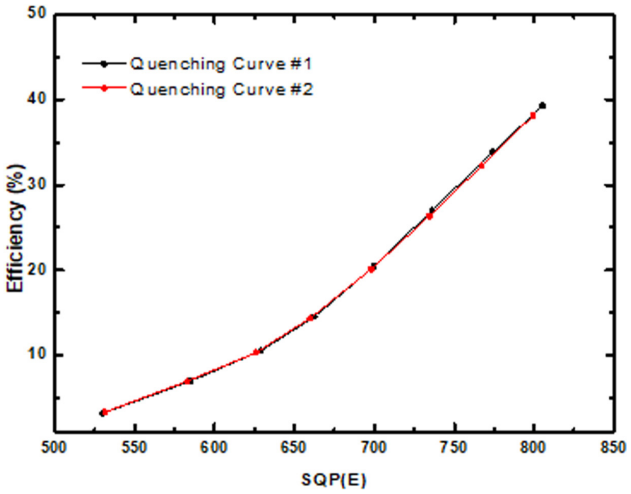

Fig. 2. Quenching curve that finally evaluated measurement efficiency

사의 측정효율은 28.60%로 평가되었다. 1차 성능검사의 결과값으로 삼중수소의 농도는 174.6 Bq kg^{-1}과 4.1% (신뢰수준 약 95%, $k=2$)의 확장불확도를 가진다. 해당 시료의 실제 삼중수소 방사능 농도는 185 Bq kg^{-1}과 5.4% (신뢰수준 약 95%, $k=2$)의 확장불확도를 가졌고, z' — *value*값은 –0.37으로 평가되었고 삼중수소 방사능 농도 차이는 5.6%로 계산되었다. 2차 성능검사의 결과값으로 삼중수소의 농도는 313.2 Bq kg^{-1}과 3.7% (신뢰수준 약 95%, $k=2$)의 확장불확도를 가졌고, 해당 시료의 실제 삼중수소 방사능 농도는 340 Bq kg^{-1}과 5.4% (신뢰수준 약 95%, $k=2$)의 확장불확도를 가진다. z' — *value*값은 –1.07으로 평가되었고 삼중수소 방사능 농도 차이는 7.9%로 1차와 마찬가지로 높은 수준의 측정결과를 얻었다. 추가로 1차, 2차 성능검사를 위한 측정에서 액체섬광계수기 측정장비의 MDA를 평가하였고 각각 2.00, 1.87 Bq kg^{-1}의 값을 얻었다.

3.3. 측정불확도 평가결과

소광정도가 다른 각각의 시료마다 상이한 측정값과 상대표준불확도를 보이며 보수적인 불확도 평가를 위해 인증표준물질 중 상대표준불확도가 가장 높은 0.245%를 적용하였다. 삼중수소의 인증표준물질은 시간이 경과함에 따라 베타붕괴를 하며 삼중수소의 베타입자 방출확률은 참고문헌의 값을 사용하였기에 B형 불확도 타입을 적용하였다[8]. 삼중수소는 붕괴를 하면서 최대 에너지 18.591 keV의 베타입자를 100%로 방출하므로 상대표준불확도는 0으로 적용하였고 붕괴상수 정보로는 반감기는 12.312년이고 불확도는 0.025 년을 적용하여 방사성붕괴 보정의 상대표준불확도는 1.6%로 산출되었다.

삼중수소시료의 측정에서 미지의 시료는 인증표준물질과 동일한 소광정도를 가지고 있지 않으므로 산출된 소광보정곡선에 시료의 소광정도를 대입하여 측정효율을 산출하였다. 이때 소광보정곡선의 선형회귀에 따른 불확도를 적용해야하며. 소광보정곡선 선형회귀의 계통적 효과에 따른 보정인자의 상대표준불확도의 경우 인증표준물질 인증서 상의 상대표준불확도가 1.6%이고 1차 소광보정곡선의 선형회귀에 따른 보정인자의 최대편차는 0.575%이고 2차 소광보정곡선의 선형회귀에 따른 보정인자의 최대편차는 1.292%이므로 계통적 효과에 대한 불확도는 무시할 수 있다. 따라서 소광보정곡선 함수의 최대편차가 인증서 불확도 이내일 경우 무시하고 정규분포로 가정한다. 위와 같은 방법으로 1, 2차의 소광보정곡선의 불확도 관련 요인을 평가하

Table 1. Uncertainty budget for quenching curve #1 using CRM

Uncertainty factor	type	Measured	Relative measurement uncertainty	Probability distribution	Sensitivity factor	uncertainty contribution	v
Net count rate of CRM, $u(C_{net})$	A	3 331.780 cpm	0.245%	t	1.0	0.245%	9
Activity at measurement moment, $u(A_s)$	B	99 652.585 dpm	1.600%	normal	1.0	1.600%	∞
Emission probability of beta particle, $u(P_\beta)$	B	1	0%	normal	1.0	0%	∞
Correction factor for radioactive decay of CRM, $u(k_t)$	B	0.940	0.013%	normal	1.0	0.013%	∞
Correction factor for linear regression of quenching curve, $u(k_{QIP})$	A	1	0.104%	normal	1.0	0.104%	7
Correction factor for statistical effect of linear regression of quenching curve, $u(k_B)$	B	1	0%	normal	1.0	0%	∞
Relative combined standard measurement uncertainty			1.622%		Effective DOF, V_{eff}		∞
Relative extended uncertainty			3.2% (confidence level about 95%, $k=2$)				

여 상대표준불확도를 계산하고 각 요인에 맞는 확률분포를 선택하고 자유도를 평가하였다. 1차 소광보정곡선의 상대확장불확도는 3.2% (신뢰수준 약 95%, $k=2$)로 2차 소광보정곡선의 경우 상대확장불확도는 3.1% (신뢰수준 약 95%, $k=2$)로 평가되었다.

최종적으로 산출된 1차 및 2차 소광보정곡선의 불확도 요인과 그에 따른 추정값, 상대표준불확도를 Table 1, 2에 나타내었다. 소광보정곡선의 불확도를 평가함에 있어 소광보정곡선산출에 사용한 인증표준물질에 의한 상대표준불확도가 지배적이었다.

삼중수소시료의 방사능에 대한 성능검사는 1, 2차로 나누어 진행하였고 방사능 농도와 최종 측정불확도를 평가하였다. 삼중수소시료의 측정효율의 상대표준불확도는 인증표준물질을 측정하여 산출한 상대합성표준불확도인 1.622%를 적용하였다. 삼중수소시료의 방사성 붕괴보정인자의 상대표준불확도는 인증표준물질의 방사성 붕괴보정인자의 상대표준불확도를 구하는 것과 동일하게 평가하였고 1차 성능검사의 경우 상대표준불확도는 0.000 06%이고 2차 성능검사의 상대표준불확도는 0.000 88%로 산출되었다. 불확도 전파식을 이용하여 상대합성표준불확도를 평가하여 Table 3, 4에 표기하였고 1차 성능검사용 삼중수소시료 방사능 농도의 상대확장불확도는 4.026% (신뢰수준 약 95%, $k=2$)로 계산되었고 2차 성능검사용 시료의 상대확장불확도는 3.710% (신뢰수준 약 95%, $k=2$)로 평가되었다.

Fig. 3에 1, 2차 성능검사용 삼중수소 시료의 방사능 농도 및 측정불확도를 표현하여 비교분석하였다. Evaluated value는 시료를 측정한 결과이고 reference value는 성능검사의 삼중수소 방사능 농도이다. 삼중수소 방사능 농도의 evaluated value 는 성능검사 결과와 각각 5.6, 7.9%의 차이로 계산되었으며 불확도 범위 내에 모두 위치하는 형태로 본 연구에서는 삼중수소 시료의 측정기술에 있어서 신뢰성, 결과값 및 불확도의 타당성을 확실하게 확보하였다고 볼 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 액체섬광계수기를 이용하여 측정한 삼중수소

Table 2. Uncertainty budget for quenching curve #2 using CRM

Uncertainty factor	type	Measured	Relative measurement uncertainty	Probability distribution	Sensitivity factor	uncertainty contribution	v
Net count rate of CRM, $u(C_{net})$	A	3 315.944 cpm	0.246%	t	1.0	0.246%	9
Activity at measurement moment, $u(A_s)$	B	100 398.608 dpm	1.500%	normal	1.0	1.500%	∞
Emission probability of beta particle, $u(P_\beta)$	B	1	0%	normal	1.0	0%	∞
Correction factor for radioactive decay of CRM, $u(k_t)$	B	0.947	0.011%	normal	1.0	0.011%	∞
Correction factor for linear regression of quenching curve, $u(k_{QIR})$	A	1	0.354%	normal	1.0	0.354%	7
Correction factor for statistical effect of linear regression of quenching curve, $u(k_B)$	B	1	0%	normal	1.0	0%	∞
Relative combined standard measurement uncertainty			1.561%		Effective DOF, v_{eff}		∞
Relative extended uncertainty			3.1% (confidence level about 95%, $k=2$)				

Table 3. Uncertainty budget for performance test radioactivity of tritium sample #1

Uncertainty factor	type	Measured	Relative measurement uncertainty	Probability distribution	Sensitivity factor	uncertainty contribution	v
Net count rate of tritium sample, $u(C_{net})$	A	25.495 cpm	1.192%	t	1.0	1.192%	9
Measurement efficiency of tritium sample, $u(\varepsilon)$	B	30.430%	1.622%	normal	1.0	1.622%	∞
Correction factor for radioactive decay of tritium sample, $u(k_t)$	B	1.000	0.000 06%	normal	1.0	0.000 1%	∞
Relative combined standard measurement uncertainty			2.013%		Effective DOF		∞
Relative extended uncertainty			4.026% (confidence level about 95%, $k=2$)				

Table 4. Uncertainty budget for performance test radioactivity of tritium sample #2

Uncertainty factor	type	Measured	Relative measurement uncertainty	Probability distribution	Sensitivity factor	uncertainty contribution	v
Net count rate of tritium sample, $u(C_{net})$	A	42.805 cpm	0.900%	t	1.0	0.900%	9
Measurement efficiency of tritium sample, $u(\varepsilon)$	B	28.594%	1.622%	normal	1.0	1.622%	∞
Correction factor for radioactive decay of tritium sample, $u(k_t)$	B	0.996	0.000 88%	normal	1.0	0.001%	∞
Relative combined standard measurement uncertainty			1.855%		Effective DOF		∞
Relative extended uncertainty			3.710% (confidence level about 95%, $k=2$)				

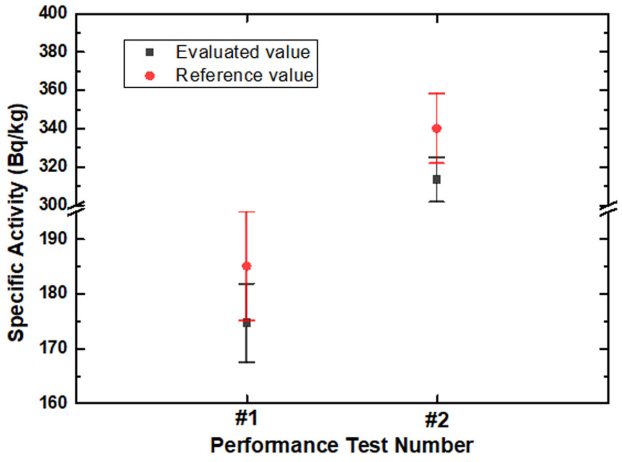

Fig. 3. Comparison of tritium radioactivity results in performance test #1 and #2

의 방사능 결과값에 대한 신뢰성 확보를 위하여 인증표준물질을 이용한 측정장비의 주기적인 교정 및 blind test 형식의 성능검사를 동시에 진행하였다. 인증표준물질의 경우 유효기간경과로 인하여 방사능 농도는 유사하나 불확도가 기존의 불확도인 3.2%보다 낮은 3.0%로 산정된 인증표준물질을 사용하였음에도 이전에 산출한 소광보정곡선의 산출값과 비교하였을 때 큰 변동이 없음을 확인할 수 있었다. 이는 측정효율 값에 대한 신뢰성이 확보됨을 보여주었고 삼중수소시료의 방사능 정밀 측정을 시행하기에 적합하였다.

삼중수소시료는 1, 2차로 분석이 진행되었으며 미지의 시료를 전처리하여 그에 해당하는 Quenching Curve를 활용하였다. 1차 성능검사의 경우 측정효율이 30.43%, 2차 성능검사의 경우 28.60%로 산출되었다. 산출된 효율 값을 이용하여 각 미지의 시료 내에 존재하는 삼중수소의 방사능 농도값을 계산하고 각 불확도 요인들에 대해 평가한 결과 1차 성능검사의 경우 174.6 Bq kg^{-1}, 4.1% (신뢰수준 약 95%, $k=2$), 2차 성능검사의 경우 313.2 Bq kg^{-1}, 3.7%(신뢰수준 약 95%, $k=2$)라는 측정결과를 얻었다. 이를 z' — *value*로 평가한 결과 각각 –0.37, –1.07으로 평가되어 높은 수준의 측정결과를 얻었음을 확인하였다. 또한 성능검사를 위한 측정에서 액체섬광계수기 측정장비에 대한 MDA를 동시에 평가한 결과 각각 2.00 Bq kg^{-1}, 1.87 Bq kg^{-1}으로 능동 및 수동 차폐와 정밀한 측정기술로 저준위의 삼중수소 방사능을 측정할 수 있음을 확인하였다. 인증표준물질을 이용하여 산출한 소광보정곡선을 활용하여 얻은 1, 2차 성능검사 결과를 성능검사의 설정값과 비교한 결과 매우 근접한 방사능 농도가 계산되었으며 모두 불확도 범위 내에 위치함을 확인하였다. 이러한 결과를 토대로 삼중수소시료의 측정기술에 있어서 신뢰성 및 불확도의 타당성 즉 측정시스템의 측정신뢰성을 확보하였다.

사 사

본 연구는 과학기술정보통신부의 재원으로 동남권원자력의학원의 지원을 받아 수행된 연구(No. 50491-2024)입니다.

참고문헌

1. Yeon YS. 2012. An evaluation on uncertainty in LSC calibration and verification, Doctoral thesis.
2. Korea Institute of Nucelar Safety. 1994. A study on the production of tritium and effect assessment, KINS/AR-310-87.
3. David A. Brown et al. 2018. ENDF/B-VIII.0: The 8th major release of the Nuclear reaction data library with CIELO-project cross sections, New Standards and Thermal Scattering Data. *Nuclear Data Sheets* **148**:1-142. https://www.oecd-nea.org/janis/.
4. Han SJ, Lee KJ, Yeom JM and Shin DT. 2015. A study and analysis on tritium radioactivity and envoronmental behavior in domestic NPPs. *Journal of Radiation Protection and Research* **40**:267-276. http://dx.doi.org/10.14407/jrp.2015.40.4.267.
5. Kim KO, Kim H and Suh K-S. 2023. Simulation of contaminated water release at fukushima NPP, 2023, Korean Society of Hazard Mitigation, 422.
6. Rho BHand Lee KJ. 1998. Development and validation of atmospheric disperson: Computer program using tritium air concentra-

tions in the enviroment sround heavy water reactor power plants. *Annals of Nuclear Energy* **25**(14):1119-1132. https://doi.org/10.1016/S0306-4549(97)00103-5.
7. Bujoreanu D, Iordache M and Bujoreanu L. 2007. Analysis of total tritium and C-14 in solid samples from Cernavoda NPP. *International Symposium, on Nuclear Energy*, Romania.
8. Be MM. et al., 2006. Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides. **3**:1-210.
9. Glenn F. Knoll, 2020. Radiation detection and measurement, 4th ed., 2020, John Wiley and Sons, Inc., New York. USA.
10. John R. Lamarsh and Anthony J. Baratta, 2020. Introduction to Nuclear Engineering, 4th ed., Pearson, USA.
11. Herman Cember and Thomas E. Johnson 2018. Introduction to Health Physics, 5th Ed, McGraw-Hill Education, USA.
12. National Nuclear Data Center NUDAT 3.0., Brookhaven national laboratory, https://www.nndc.bnl.gov.
13. Instrument manual (Quantulus 1220). 2002. Ultra low level liquid scintillation spectrometer, PerkinElmer.
14. Korea Research Institute of Standards and Science, Guide to the expression of uncertainty in Measurement, 2010, KRISS/SP-2010-105.
15. Korea Association of Standards and Testing Organizations, Standard calibration of liquid scintillation counter, 2018, KASTO/18-80213-367.
16. International Organization for Standardization. 2013. Practice for calibration of routine dosimetry systems for radiation processing; ISO ASTM 51261:2013, Geneva.