Journal of RADIATION INDUSTRY
Vol. 20, No. 1, pp. 1-15, 2026
https://doi.org/10.23042/radin.2026.20.1.1

Original article

액체섬광계수기를 이용한 저준위 ^{99}Tc 검출한계 평가

김춘성[1] · 최지은[1] · 안선우[1] · 윤옥범[1] · 강상묵[1,*]

[1](주)오르비텍, 분석센터

Assessment of Detection Limits for Low-Level ^{99}Tc Using Liquid Scintillation Counting

Chun-seong Kim[1], Ji-eun Choi[1], Sun-woo An[1], Ok-beum Yoon[1], and Sang-mook Kang[1,*]

Ulsan Radioactivity Analysis Center, Orbitech Co., Ltd., 17-19, Dowang-ro 22 beon-gil, Nam-gu, Ulsan 44774, Republic of Korea

ABSTRACT Accurate quantification of low-level beta-emitting radionuclides is essential for regulatory clearance and acceptance of radioactive waste in Korea. This study evaluates the low-level detection capability of liquid scintillation counter (LSC) for ^{99}Tc using reference material based low activity samples, with experimental detection limits compared to theoretical limits calculated by Currie's method and measurement reliability independently assessed through total count evaluation within the region of interest (ROI) and Pearson correlation based analysis of channel-wise spectral distributions within the ROI, followed by cross-validation. The results demonstrate that reliable quantification is achieved at and above 0.1009 Bq, confirming the applicability of LSC to regulatory radiological characterization of radioactive waste.

Key words: Liquid Scintillation Counter (LSC), Tri-Carb 5110TR, Detection Limit (Ld), Minimum Detectable Activity (MDA), Activity Measurement

1. 서 론

원자력발전소 및 방사성동위원소를 취급하는 기관들은 운영 과정에서 방사성폐기물을 발생시키며, 이를 처분하기 위한 방법으로는 국내 규제기관의 지침인 방사성폐기물 자체처분 제도와 중·저준위 방사성폐기물 인도방법 등이 있다. 방사성폐기물 자체처분은 「방사성폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정」 [1]에서 제시하는 허용농도를 만족할 경우 규제 대상에서 제외되어 일반 폐기물과 동일하게 처리할 수 있도록 하는 제도이다. 중·저준위 방사성폐기물 인도방법은 「중·저준위 방사성폐기물 인도규정」 [2]에 따라 방사성폐기물을 농도에 따라 구분하고, 그에 따른 처분 절차를 적용하는 방식이다.

이러한 제도를 적용하기 위해서는 방사성폐기물의 방사선학적 특성평가가 필요하며, 특성평가는 시료채취, 전처리, 계측의 세 단계로 구성된다. 이 중 계측 단계는 방사성폐기물의 방사능 농도를 최종적으로 수치화하는 과정으로, 만약 계측에서 오류가 발생할 경우 이전 단계(시료채취·전처리)에서 수행된 모든 절차가 오류로 간주될 수 있기 때문에 높은 신뢰도 확보가 요구된다.

방사선 계측방법으로는 감마분광분석기와 액체섬광계수기(liquid scintillation counter, 이하 'LSC') 등이 있으며, 본 연구에서는 LSC의 계측 특성을 평가하고자 하였다. 연구 대상 핵종은 「중·저준위 방사성폐기물 인도규정」 [2]에 명시된 규명 대상 핵종 (^{3}H, ^{14}C, ^{55}Fe, ^{58}Co, ^{60}Co, ^{59}Ni, ^{63}Ni, ^{90}Sr, ^{94}Nb, ^{99}Tc, ^{129}I, ^{137}Cs, ^{144}Ce, 전알파) 중에서 LSC를 이용한 계측이 가능한 ^{99}Tc 로 선정하였다. ^{99}Tc의 자체처분 기준값은 1 Bq/g [1] 이하이지만, 방사성폐기물 발생기관의 분석 의뢰 기준인 최소검출농도(minimum detectable activity, 이하 'MDA')는 0.0050 Bq/g으로 규제 기준보다 낮은 수준이 요구된다.

본 연구의 목적은 LSC를 이용한 미량의 방사능 농도 계측에 대한 신뢰도를 체계적으로 평가하기 위한 방법론이 충분히 정립되어 있지 않다는 점에 착안하여, 배경계수(background, 이하 'BKG') 및 미량 방사능 농도의 계측시료를 사용하여 이론적 검출한계와 실제 LSC 측정을 통해 도출된 검출한계의 차이를 확인하고, 정확도(accuracy) 및 정밀도(precision), 감도(sensitivity)

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

Copyright© 2026 by Korean Society of Radiation Industry

***Corresponding author:** Sang-mook Kang
Tel: +82-2-6250-2253, E-mail: smkang@orbitech.co.kr

Received 21 November 2025 **Revised** 31 March 2026 **Accepted** 31 March 2026

기반으로 평가하였다. 실험에 사용된 ^{99}Tc는 참조물질(reference material, 이하 'RM')을 사용하고, Revvity 사의 LSC 5110TR 모델을 이용하여 계측 실험을 수행하였다. 실험의 계측시료는 BKG와 0.0010, 0.0050, 0.0100, 0.0500, 0.1000, 1.0000 Bq의 방사능 농도를 조제하였다. 실험 결과로 이론적으로 산출되는 검출한계(detection limit, 이하 'Ld') [3]와 실제 측정 결과를 비교하여 신뢰성이 확보되는 검출 가능한 농도 범위를 확인하고 검증하였다.

2. 재료 및 방법

본 연구는 방사성폐기물 규명 핵종 중 ^{99}Tc 핵종을 대상으로 미량의 방사성 농도 영역에 대한 LSC 계측 유효성을 검토하기 위하여 수행하였으며, ^{99}Tc 핵종의 특성은 Table 1에 표기하였다.

연구 절차는 교정용 소광선원 세트(quenched calibration source set (5EA vial), 이하 '교정선원세트') 조제(preparation) 후 교정검증(verification)하였으며, 교정선원세트 유효성 확보하였다. 이에 따라서 방사성 농도의 계측시료(measurement sample) 조제 및 계측시료 유효성 검증 후, 미량의 방사능 농도와 Ld 평가를 위하여 측정시간에 따른 계측, 산출식 기반의 데이터 해석으로 순서로 수행하였다. 이 순서를 Fig. 1에 나타내었다.

연구 절차에 따른 결과물을 평가하기 위한 결과의 적합여부는 참조물질 및 교정 등의 불확도(uncertainty)를 활용하였으며, 교정선원 조제 및 교정 검증에는 χ^2검정(chi-square test)을 하였다. 계측시료 검증은 이론적 산술값과 실험적 측정값을 비교하였으며, 최종적으로 미량의 계측시료 평가는 상대오차(relative error) 및 상대표준편차(relative standard deviation, 이하 'RSD'), Ld 등을 활용하여 정확도 및 정밀도, 감도를 평가하였다. 이 순서를 Fig. 2에 요약하였다.

2.1. 재료

2.1.1. 계측 장비

^{99}Tc 핵종을 대상으로 미량의 방사성 농도 영역에 대한 측정을 위해, Revvity사의 Tri-Carb 5110TR를 사용하였으며, 본 장비는 외부표준(^{133}Ba)을 이용한 자동 효율 제어(AEC: automatic efficiency control) 기능 및 소광 보정(tSIE: transformed spectral index of external standard) 기능을 갖추고 있다. 이는 교정선원세트에 화학적 소광도가 다른 5개 교정선원에 따라 각각의 소광지표(tSIE/AEC)를 나타낼 수 있으며, 이에 따라 교정선원세트의 방사능 농도값에 따라 자동적으로 효율값을 산술하여 Fig. 3과 같이 소광곡선(quenching curve)이 추출된다.

Table 1. Radionuclide information [4]

Radionuclide	Half-life (years)	Decay mode	Energy (keV)	Intensity (%)
^{99}Tc	2.115×10^{5}	β	293.8	100

Process	Description
Preparation of calibration sources	Preparation of radionuclide calibration soureces using nitromethane and Ulitma Gold LLT
Calibration verification	Calibration verification using Ultima Gold LLT-based soureces supplied by Eckert & Ziegler Aanlytics
Preparation of measurement samples with various concentrations	Preparation of Ultima Gold LLT-based sources by dilution of reference materials(RM sources)
Verification of prepared measurement samples	Verification performed using a 1 Bq reference sample with relatively high activity
Evaluation of measurement results by concentration	Evaluation of 5 repeated measurements with a counting time of 60 minutes
Evaluation of measurement results by counting time	Evaluation based on counting time of 60, 240, and 960 minutes

Fig. 1. Experiment procedure flow chart

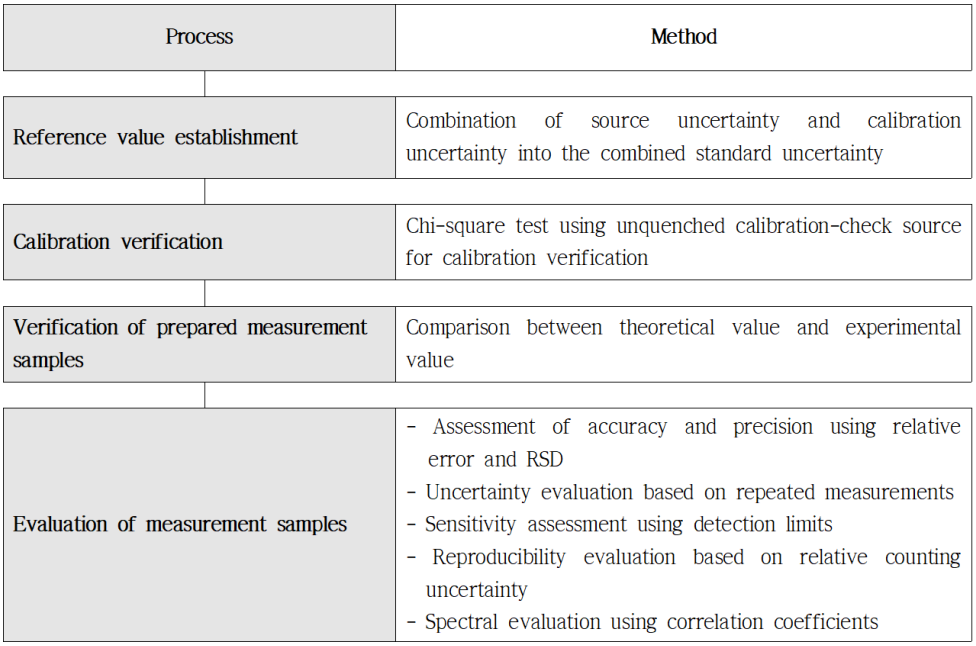

Fig. 2. Data evaluation and analysis flow chart

2.1.2. 교정선원세트 및 비소광선원

교정선원세트 조제는 소급성(traceability)을 확보하기 위하여 USNRC(United States Nuclear Regulatory Commission) Regulatory Guide 4.15에 기술된 「측정품질보증 프로그램(Measurements Assurance Program)」 및 ANSI(American National Standards Institute) N42.22 「방사선원의 소급성(traceability of radioactive sources to NIST)」을 준수하는 Eckert & Ziegler Analytics (이하 'EZA')사 RM [5, 6]을 Table 2와 같이 사용하였다. 교정선원세트에 사용되는 LSC 칵테일은 Revvity사의 Ultima Gold LLT으로 조제하였으며, 화학적 소광 물질로 니트로메탄(nitromethane)을 첨가하였다. 이는 교정선원세트의 검증을 위해 사용되는 EZA사의 교정 검증용 비소광선원(unquenched calibration check Source, 이하'비소광선원')이 Ultima Gold LLT 기반인 점을 고려하였다. 다만, 비소광선원 용어의 의미는 자체적으로 조제된 교정선원세트보다 소광지표가 높은 선원을 지칭하는 것을 의미한다.

2.1.3. 계측 시료

시료의 방사능 농도는 BKG, 0.0010, 0.0050, 0.0100, 0.0500, 0.1000, 1.0000 Bq 으로 설정하여, RM을 단계적으로 희석하여 계측시료를 Table 8와 같이 조제하였다. 모든 계측 시료에는 별도의 소광물질을 첨가하지 않아 소광에 의한 변수는 최대한 배제하였다.

2.2. 방법

실험 과정에서 발생할 수 있는 오차는 방사선학적 특성에 따른 우연오차와 계측 장비 및 환경에 따른 계통오차가 있다. 이러한 오차가 발생하기 때문에 결과값에 대한 참값의 여부를 확인하기 위해서는 값의 정확도에 대한 기준을 설정해야 한다. 이러한 기준오차를 설정하기 위한 주요 상대표준불확도(relative standard uncertainty, 이하' 상대불확도')는 Table 4와 같이 상대불확도(relative uncertainty (k=1)) 및 확장불확도(expanded uncertainty (k=2))으로 표현된 교정불확도(σ_{Calib}) 및 비소광선원불확도(σ_{UnQ}),

Table 2. Quenched and unquenched source information

Category	Manufacturer	Reference material	Cocktail
Quenched calibration source	In-house prepared	^{99}Tc (EZA)	Ultima Gold LLT (Revvity)
Unquenched verification source	EZA	^{99}Tc (EZA)	Ultima Gold LLT (Revvity)

Table 3. Measurement sample information

Category	Manufacturer	Reference material	Cocktail
Measurement sample	In-house prepared	^{99}Tc (EZA)	Ultima Gold LLT (Revvity)

Table 4. Major uncertainty components and relative uncertainty

Component	Expanded uncertainty (k=2)	Relative uncertainty (k=1)
LSC calibration (σ_{Calib})	3.0%	1.50%
Unquenched calibration check source (σ_{UnQ})	4.7%	2.35%
Reference material (σ_{RM})	3.5%	1.75%

Table 5. Error acceptance criteria

Category	Component	Expanded uncertainty (k=2)	Acceptable error limit
Calibration verification	$\sigma_{Verif} = \sqrt{\sigma_{Calib}^2 + \sigma_{UnQ}^2}$	5.6%	≤5.6%
Sample measurement	$\sigma_{meas} = \sqrt{\sigma_{Calib}^2 + \sigma_{RM}^2}$	4.6%	≤4.6%

RM 불확도(σ_{RM})가 있다. 교정불확도는 교정선원 및 소광곡선 등의 따른 우연오차와 계측오차가 포함된 자체적으로 교정을 수행하는 과정에서 산출한 불확도이다. 비소광선원 및 RM 불확도는 방사성물질 생산에 따른 우연오차와 계측오차가 포함된 EZA사의 성적서에 포함되어 있는 불확도이다.

해당 불확도에 따라서 측정된 결과값을 평가할 때 활용되는 허용 오차 제한치(accepctable error limit)는 계측 대상에 따라 Table 5과 같으며, 교정 검증(calibration verification) 불확도(σ_{Verif})와 농도별 시료 계측(sample measurement) 불확도(σ_{meas})를 구분하여 적합여부를 판단하는 기준 설정하였다. 기준값으로 활용되는 허용 오차 제한치는 상대합성표준불확도(relative combined standard uncertainty)이며 식 (1)과 같이 계산하였다.

$$\sigma_u = \sqrt{\sigma_x^2 + \sigma_y^2 + \ldots.} \quad (1)$$

σ_u: relative combined standard uncertainty (%)

$\sigma_{x,y,\ldots}$: relative standard uncertainty (%)

이에 따라 각각 교정 검증 및 농도별 측정에 따른 허용 오차 제한치는 Table 5에 표기된 각각의 허용 오차 제한치 5.6% 및 4.6% 이내에 만족하여야만 신뢰할 수 있는 값으로 판단할 수 있는 것으로 설정하였다.

2.2.1. 교정선원 검증

교정선원세트를 이용하여 각 교정선원의 소광지표에 따른 계수효율을 구하여, 확인된 소광지표 및 계수효율에 생성된 소광곡선을 확인하여야 한다. 이 소광곡선은 계측 대상이 되는 시료의 소광지표에 따라 변동되는 효율에 그래프의 fitting 함수이며, 그에 따라서 식 (2) 계수효율을 계산하였다.

$$\epsilon(q_i) = \frac{CPM(q_i)}{\overline{DPM_{Calib}}} \quad (2)$$

$\epsilon(q_i)$: efficiency as a function of quenching (%)

$CPM(q_i)$: count rate as a function of quenching (CPM)

$\overline{DPM_{Cailb}}$: mean activity of the quenched calibration source set (DPM)

교정선원세트에 의해서 생성된 소광곡선을 검증하기 위해서, 교정선원세트의 소광지표 범위를 벗어난 비소광선원을 계측하여야 한다. 비소광선원의 계측 결과값이 교정검증에 사용되는 Table 6의 통계적 검증에 만족하면, 교정선원세트에 대한 적합성을 확인할 수 있다. 적합성이라고 함은 교정선원세트의 조제 유효성 및 ^{99}Tc 핵종에 대한 소광곡선의 fitting 함수의 유효성, 비소광선원의 반복측정에 따른 계측 안전성을 의미한다. 적합성 여부를 평가하

Table 6. Parameters used for χ^2-test (Two-sided confidence limits for variance)

Parameter	Value
Type of confidence interval for σ^2	Two-sided confidence limits
Confidence level	1-α=0.95
Number of measurements	n=10
Degrees of freedom	v=n-1=9
Critical values of the χ^2 distribution	$\chi^2_{\alpha/2}(\upsilon) = \chi^2_{0.025}(9) = 2.70$ $\chi^2_{1-\alpha/2}(\upsilon) = \chi^2_{0.975}(9) = 19.02$

기 위하여 비소광선원을 이용한 검증은 10회 반복 측정한 결과를 χ^2 검정[7,8]을 수행하여, 평균 및 분산의 검정방법과 추정방법 절차를 Table 6과 같이 준용하였다. n회 반복 측정에 따른 평균 방사능 농도를 구하여 자유도에 따른 분산 및 검정통계량을 계산하여, 그 이후 최종 평가를 위하여 χ^2검정 분포표의 신뢰구간 95% 범위 내 결과값이 포함 여부를 확인하였다.

측정된 방사능 농도는 식 (3)과 같이 계산하였다.

$$A_{meas} = \frac{CPM_{meas}}{\epsilon_{meas}} - \frac{CPM_{BKG}}{\epsilon_{BKG}} \quad (3)$$

A_{meas}: net activity of measurement sample (Bq)
$CPM_{Samp,\,BKG}$: count rate (CPM)
$\epsilon_{Sample,\,BKG}$: efficiency of measurement (%)

측정된 평균 방사능 농도는 식 (4)와 같이 계산하였다.

$$\overline{A}_{meas} = \frac{1}{n}\sum_{n=1}^{i} A_i \quad (4)$$

$\overline{A}_{meas}$: mean measured activity (Bq)
A_i: activity in the i-th measurement (Bq)
n: total number of replicates

각 반복 측정값의 평균에 따른 비소광선원의 참조 방사능 농도값과 상대오차는 식 (5)와 같이 계산하였다.

$$\text{relative error (\%)} = \frac{\overline{A}_{meas} - A_{ref}}{A_{ref}} \times 100(\%) \quad (5)$$

A_{ref}: reference activity (Bq)

각 반복 측정값의 변동성을 평가하기 위해 식 (6)과 같이 계산하였다.

$$s^2 = \frac{\sum(A_i - \overline{A}_{meas})}{\nu} = \frac{\sum(A_i - \overline{A}_{meas})}{(n-1)} \quad (6)$$

s^2: variance
ν: degrees of freedom (n-1)

검량 통계량은 식 (7)과 같이 계산하였다.

$$\chi^2 = \frac{(n-1)s^2}{\overline{A}_{meas}} \quad (7)$$

χ^2: chi-square value (dimensionless)

χ^2에서 Table 6과 같이 95% 신뢰구간(유의수준 α: 0.05)을 적용하여 식 (8)과 같이 계산하여 통계적 검증을 통하여 교정선원 조제 및 교정의 유효성을 확인하였다.

$$\frac{\chi^2_{1-\alpha/2,\,v}}{v} \le \frac{s^2}{\overline{A}_{meas}} \le \frac{\chi^2_{\alpha/2,\,v}}{v}, \quad (v:9,\ \chi^2_{0.025,9}:2.70,\ \chi^2_{0.975,9}:19.02) \quad (8)$$

2.2.2. 교정선원세트 및 교정 검증 결과

교정선원세트를 이용한 소광곡선은 point-to-point 형태의 함수로 Fig. 3의 quenched source로 표기된 곡선과 같으며, 각 교정선원의 소광지표에 따른 효율은 Fig. 4에 quenched로 표기된 효율과 같다. 또한, 교정선원세트의 소광범위를 벗어난 비소광선원은 소광곡선 함수의 외삽값에 따라 Fig. 3의 unquenched source로 diamond marker로 표기되어있으며, 비소광선원의 효율은 Fig. 4의 unquenched에 표기된 것과 같이 효율이 적용된다.

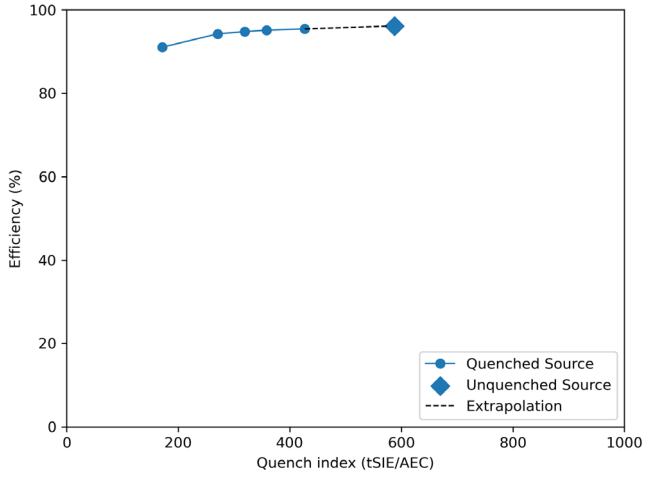

Fig. 3. Quenching curve & unquenched point

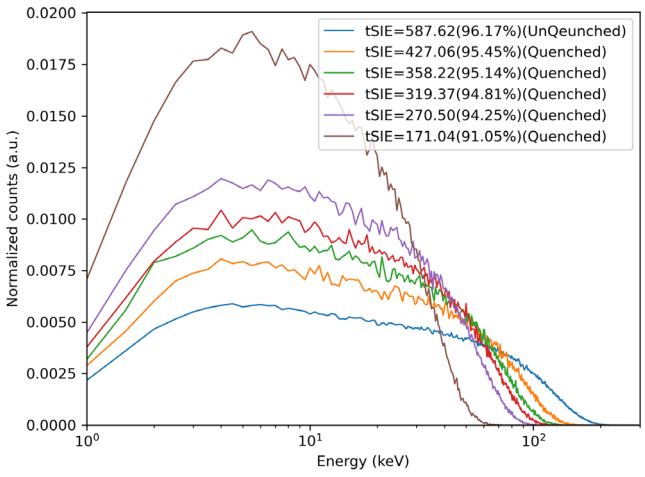

Fig. 4. Quench-dependent spectra

Table 7. Unquenched source χ^2-test

Parameter	Result
Relative error	-1.30%
n	10
v	9
$\overline{A}_{meas}$	1639.37
s^2	4.08
$\frac{s^2}{\overline{A}_{meas}}$	0.0025
Acceptable range (95%)	$0.0012 \leq \frac{s^2}{\overline{A}_{meas}} \leq 0.0083$

소광곡선은 조제한 교정선원세트의 평균 방사능 농도를 입력하여 만들어진 소광곡선 함수로 검증이 필요하며, 이를 위하여 비소광선원으로 10회 반복 측정하여 Table 7과 같이 χ^2 검정하였다.

식 (5)를 이용하여 Table 7의 상대오차를 확인하였으며, Table 5의 교정 검증의 허용 오차 제한치(5.6%)를 만족하였다. 또한, 식 (3)~(8)을 이용한 신뢰구간 95%에 대한 통계적 검증을 Table 7과 같이 만족함을 확인하였다. 소광곡선의 유효성이 검증된 것을 확인하였으며, 이에 따라 교정선원세트의 유효성도 확인되었다. 또한, 반복 측정에 따른 통계적 유효성 검증을 통하여 교정 및 장비가 실험에 적합성을 최종적으로 확인하였다. 소광지표에 따른 스펙트럼의 차이를 확인하기 위하여, Fig. 4와 같이 식 (22)을 이용하여 정규화 스펙트럼에 대한 내용을 검토하였다. 소광지표가 낮을수록 ^{99}Tc의 방출에너지인 293.8 keV보다 낮은 에너지 영역에서 계수 분포가 밀집되는 것을 확인할 수 있으며, 소광지표가 높은 비소광선원의 경우에는 전체적인 에너지 영역에서 계수분포가 균일화되는 것을 확인하였다.

2.2.3. 방사선 방출수율(disintegrations per minute, 이하 'DPM')를 이용한 계측시료 평가

DPM 평가는 LSC로 측정한 DPM과 조제 과정에 따른 계량값을 이용한 계측시료 농도의 DPM을 비교하기 위하여 예상 DPM을 식 (9)와 같이 계산하였으며, 해당 실험에서 사용하는 DPM은 ^{99}Tc가 Table 1과 같이 β 입자 단일 방출체이므로 식 (9)와 같이 표현하였다.

$$DPM_{Calc} = A_{Targ} \times 60 \times I \quad (9)$$

DPM_{Calc}: expected disintegrations per minute (DPM)

A_{Targ}: prepared measurement sample at the target activity (Bq)

I: the emission probability (%)

2.2.4. 방사능 농도를 이용한 계측시료 평가

방사능 농도 평가는 식 (10)~(12)를 이용하여 평가하였으며, 계측시료에 대한 정확도 및 정밀도, 감도를 평가하기 전 계측시료의 조제에 대한 검증을 수행하였다. 조제한 계측시료는 RM을 이용한 희석 절차 유효성을 검증하기 위하여, 희석에 따른 산술 농도값과 측정에 따른 농도값을 비교하였다. 다만, 이는 정확도 및 정밀도 평가를 위하여 수행하는 반복측정 실험의 결과값을 활용하였다. 정확도의 경우에는 식 (10)과 같이 상대오차로 계산하여, Table 5의 시료계측의 허용 오차 제한치(4.6%)를 활용하여 평가하였다. 정밀도의 경우에는 식 (12)의 RSD를 계산하였으나, 정밀도의 평가는 계수량 불확도(σ_{Counts}) 및 교정불확도(σ_{Calibs}), RM불확도(σ_{RM})을 포함한 불확도로 정확도 평가 기준보다 높아짐에 따라 보수적으로 정밀도와 동일한 허용 오차 제한치를 활용 평가하였다. 이러한 검증을 하기 위하여 사용되는 1.0000 Bq 계측시료는 60분씩 5회 측정하여, 농도별 측정에 사용되는 Table 5의 시료계측의 허용 오차 제한치(4.6%)에 포함되어 적합성을 확인하였다. 다만, 그 외 미량의 계측시료의 경우에는 본 연구의 감도평가를 위하여 조제된 시료로 적합성 평가를 직접 확인 할 수 없으므로, 1.0000 Bq 계측시료의 적합성 확인 결과로 대신하여 검증으로 판단하였다. 조제된 계측시료의 농도를 기준으로 반복 측정에 따른 상대오차는 식 (10)과 같이 계산하였다.

$$\text{relative error}\ (\%) = \frac{\overline{A}_{meas} - A_{sett}}{A_{sett}} \times 100(\%) \quad (10)$$

A_{sett}: activity of the measurement sample (Bq)

반복 측정에 따른 체계적 오차 및 확률적 오차에 대한 상대표준편차는 식 (11)~(12)와 같이 계산하였다.

$$s = \sqrt{\frac{1}{n-1}\sum_{i=1}^{n}(A_{meas,i} - \overline{A}_{meas})^2} \quad (11)$$

$$\text{relative standard deviation}\ (\%) = \frac{s}{\overline{A}_{meas}} \times 100 \quad (12)$$

2.2.5. 계수율(count per minute, 이하 'CPM')을 이용한 계측시료 평가

조제된 미량의 계측시료는 BKG에 의하여 결과값에 대한 신뢰도가 부족할 수 있으며, 식 (9)을 이용한 결과값과 미량의 농도 계측시료에 대한 BKG의 영향 평가하여야 한다. 조제한 계측시료를 60분 씩 5회 반복 측정한 결과를 활용하여 식 (13)과 같이 계산하여 평가하였다.

$$CPM_{Net,Sample} = CPM_{Gross,sample} - CPM_{Gross,BKG} \quad (13)$$

$CPM_{Gross,sample}$: net count per minute (CPM)

$CPM_{Gross,sample,BKG}$: gross count per minutes (CPM)

예상 DPM과 오차를 평가하기 위하여 식 (14)와 같이 계산하였다.

$$DPM_{Net,Sample} = \frac{CPM_{Gross,sample}}{\epsilon_{Gross,sample}} - \frac{CPM_{Gross,BKG}}{\epsilon_{Gross,BKG}} \quad (14)$$

$DPM_{Net,Sample}$: disintegrations per minute (DPM)
$\epsilon_{Gross,sample,BKG}$: efficiency (%) (ε ≒ 95.60%)

반복 측정에 대한 표준불확도는 식 (15)와 같이 계산하였다.

$$\sigma_{Gross\,DPM} = \frac{s}{\sqrt{n}} \quad (15)$$

$\sigma_{Gross\,DPM}$: uncertainty of disintegrations per minute (DPM)

순계수율에 대한 확장불확도는 식 (16)과 같이 계산하였다.

$$\sigma_{Net\,DPM} = \sqrt{\sigma^2_{Gross\,DPM,sample} + \sigma^2_{Gross\,DPM,BKG}} \quad (16)$$

$\sigma_{Net\,DPM}$: uncertainty of disintegrations per minute (DPM)
$U = k \times \sigma_{Net\,DPM} (k = 2)$
U: expanded uncertainty (DPM)

2.2.6. 검출한계(Ld) 평가

미량의 방사능 농도의 계측시료를 이용한 평가는 농도에 따른 감도를 의미하며, 이는 이론적인 통계적 방법으로 식 (17)의 검출한계를 이용한 평가방법이 있다. Ld는 BKG의 계수불확도 및 통계적 신뢰수준에 따라 최종적으로 결정된다. 일반적으로 사용되는 신뢰수준 95%에 해당하는 제1종 오류(α)와 제2종 오류(β)를 각각 0.05로 설정한 통계적 가정을 기반으로 식 (17)과 같이 계산하여 평가하였다.

$$Ld = 2.71 + 4.65\sqrt{B} \quad (17)$$

Ld: detection limit
B: background Gross counts (counts)

검출한계를 활용한 판정방법은 식 (17)의 검출한계 결과값보다 계측시료의 계수량이 큰 경우에는 통계적 평가방법에서 검출로 판정하며 식 (18)~(19)와 같다.

$Gross\,counts_{sample} > Ld$일 경우 검출, (18)
$Gross\,counts_{sample} \leq Ld$일 경우 불검출(not detected (N.D)) (19)

2.2.7. 최소검출농도(MDA) 평가

Ld는 방사성핵종에서 발생하는 방사선에 의한 파장이 LSC 검출기에서 계수되는 계수값의 체계적 오차(systematic error)와 확률 오차(random error)에 대한 계수통계(counting statistic)적 개념만 포함되어 있다.

이와 달리 MDA의 경우에는 Ld의 계수통계적 개념과 시료분석의 과정에 대한 정보인 시료 및 핵종, 전처리 등에 대한 사항이 모두 반영되어 있다. 이는 실질적으로 규제기관에서 요구하는 핵종 별 MDA를 확보하기 위해서는, MDA의 계산식에 포함되는 변수를 조정하여 설정할 수 있으며 식 (20)과 같다. 다만, MDA를 이용한 평가법은 방출률(100%), 계수효율(95.60%), 질량(1 g), 보정계수(100%)으로 설정하였다.

$$MDA = \frac{Ld}{y \times e \times t \times m \times f} = \frac{2.71 + 4.65\sqrt{B}}{y \times e \times t \times m \times f} \quad (20)$$

y: yield (%)
ϵ: counting efficiency (%)
t: time (second)
m: mass (g)
f: correction factors (chemical recovery, self-asorption, ect.)

2.2.8. 상대계수불확도 평가

검출한계를 이용한 통계적 평가방법은 측정 시마다 발생하는 계수량 변동성에 대한 정보와 계수량에 따른 불확도가 포함되어 있지 않다. 이는 계수량에 따른 결과값에 대한 신뢰성을 확인할 수 있는 불확도 추정 방법 중 하나이며, 계측시료의 계수량에 따라 식 (21)과 같이 평가한다. 이 과정에서 BKG와 계측시료 간의 계수량 차이가 작아지면 작아질수록 그 불확도가 커짐에 따라 그 결과값의 재현성이 불안정함을 확인할 수 있다.

$$\sigma_{Rela} = \frac{2}{\sqrt{counts}} \quad (21)$$

σ_{Rela}: relative counting uncertainty (%) (k=2)

2.2.9. 스펙트럼 정규화 평가

정밀도 및 정확도, 감도를 이용하여 수치적으로 평가하였으나, BKG와 계측시료의 영향을 확인하기 위하여 스펙트럼으로 추가 확인하였다. 총계수량의 수치적 평가는 스펙트럼 에너지 범위에서 발생한 합산된 계수량으로 채널 당 계수량에 대한 평가가 포함되지 않으나, 계측 가능한 계측시료일 경우에는 ^{99}Tc 방출에너지에 따라서 β_{max} 에너지와 $\beta_{1/3max}$ 에너지에 해당 하는 채널 지점을 확인하여 BKG와 구분하여 평가할 수 있다. 그와 달리 계측이 모호한 농도의 계측시료는 BKG와 계측시료 간 채널 당 계수되는 계수량이 줄어드는 것을 의미하며, 총계수량과 관계없이 BKG와 계측시료 간 스펙트럼 상으로 구분이 어려울 것으로 예측할 수 있다. 이를 확인하기 위하여 1차적으로 농도 별로 스펙트럼을 정규화할 경우 유사한 스펙트럼이 되어야 하며, 식 (22)과 같이 계산하였다.

$$I_{norm}(E_i) = \frac{I(E_i)}{\sum_{j=1}^{N} I(E_j)} \quad (22)$$

$I(E_i)$: gross counts observed in each 0.5 keV energy channel E_i

$I_{norm}(E_i)$: normalized count fraction

N: total number of energy channels considered

2차적으로 각각의 정규화 스펙트럼 간의 상관관계를 평가하기 위하여, 허용 오차 제한치 범위를 만족하고 측정 정보의 신뢰도가 확보되어 있는 1.0000 Bq 계측시료의 스펙트럼을 기준으로 비교 평가하였다. 이러한 상관관계를 평가하기 위하여 적용되는 피어슨 상관계수는 무차원의 지표값으로 스펙트럼 raw data에 따른 스펙트럼의 모양 정보만을 반영하여 평가된다. 결과값이 1에 가까울수록 1.0000 Bq 계측시료인 참조 스펙트럼과 동일한 정도를 나타내며, 스펙트럼을 시각적으로만 평가하는 것이 아닌 수치적으로 평가를 할 수 있도록 식 (23)과 같이 계산하였다.

$$\rho = \frac{\sum_{i=1}^{N}(s_i - \bar{s})(r_i - \bar{r})}{\sqrt{\sum_{i=1}^{N}(s_i - \bar{s})^2}\sqrt{\sum_{i=1}^{N}(r_i - \bar{r})^2}} \quad (23)$$

ρ : pearson correlation coefficient (dimensionless)

s_i: the value of the sample spectrum at the i-ch channel

r_i: the value of the reference spectrum at the i-ch channel (1.0089 Bq in this study)

$\bar{s}, \bar{r}$: the mean values of the sample spectrum and the reference spectrum

N: the total number of channels (588 channel in this study)

3. 결 과

3.1. 계측시료 검증

계측시료는 EZA사의 RM을 단계적으로 희석하여 BKG, 0.0010, 0.0050, 0.0100, 0.0500, 0.1000, 1.0000 Bq 목표 농도(target activity)로 하였으며, Table 8과 같이 조제하여 설정농도(setting activity)를 확인하였다. 계측 시료는 별도의 소광물질은 첨가하지 않았으며 희석 비율에 따라 계산된 값으로 Table 5의 시료 계측의 허용 오차 제한치(4.6%) 이내로 조제되었다. 조제된 계측시료의 예상되는 방사선 방출수율을 식 (9)과 같이 계산 및 확인하였을 때, 설정 농도인 0.0100 Bq 이하의 계측시료에 대해서는 BKG에 의한 영향이 있을 것으로 추정하였다.

계측시료의 유효성을 검토하기 위하여, 조제된 계측 시료 중 가장 높은 1.0089 Bq 계측 시료를 60분 측정 조건에서의 5회 반복 측정한 결과는 Table 9과 같으며, 그 결과는 식 (11)~(12)인 상대오차와 RSD를 적용하여 평가하였으며 Table 5의 시료 계측의 허용 오차 제한치(4.6%) 이내임을 확인하여 계측시료 조제에 대한 검증을 확인하였다. 다만, 저농도의 계측 시료의 경우에는 1.0089 Bq 계측시료 평가를 대신하여 간접적으로 확인된 것으로 판단하였다.

Table 8. Preparation concentrations of measurement samples

Target Activity (Bq)	Setting Activity (Bq)	Calculated DPM (DPM)
0.0010	0.0010	0.06
0.0050	0.0050	0.30
0.0100	0.0099	0.60
0.0500	0.0513	3.08
0.1000	0.1009	6.06
1.0000	1.0089	60.53

Table 9. Measurement results of 1 Bq samples

Setting Activity (Bq)	Mean (n = 5)	Relative error	RSD
1.0089	1.0130	0.41%	3.60%

3.2. 농도 별 60분 측정 조건에서의 5회 반복측정 평가

60분 측정 조건에서의 5회 반복 측정한 계측시료 결과는 Table 10와 같다. 다만, 기하학적 구조가 거의 동일하게 조제한 계측시료로 계수효율이 95.60% 수준으로 각각에 명시하는 것은 생략하였으며, Table 10에 표기된 총계수율(gross count rate) 평가는 농도와 관계없이 계측시료의 반복측정에 따른 재현성을 확인할 수 있다.

예상 계수율값과 측정 계수율간의 차이를 확인하기 위하여 식 (14)을 적용하여, 측정에 따른 방사선 방출수율과 Table 8에 표기한 방사선 방출수율을 비교하였다. 계측시료의 농도가 높아짐에 따라 Table 11과 같이 예상했던 방사선 방출수율과 일치하는 것을 확인하였다. 그와 달리 농도가 낮아짐에 따라 BKG에 의한 영향이 큰 것을 확인하였다.

최종적으로 Table 10을 기반으로 재현성이 확보된 반복된 데이터를 식 (15)~(16)에 따라 불확도를 평가하여, Table 12와 같이 미량의 농도에서는 상대표준불확도가 커짐에 따라 측정시 마다 신뢰하기 어려운 것을 확인하였다.

BKG 수준의 미량의 농도에 대한 평가를 수치적으로 검토하기 위하여, 식 (17)과 같이 계산하여 Table 13와 같이 Ld값을 확인하였다. 이를 식 (18)~(19)를 적용하여 Table 14에 검출 여부를 표기하였다.

최종적으로 Table 10의 결과값을 식 (10)~(13)과 같이 계산하여 Table 14에 방사능 농도 및 그 평가값을 표기하였다. 0.1009 Bq 계측시료는 Ld 만족과 상대오차가 Table 7의 시료 계측의 허

Table 10. Gross count rate (CPM) from repeated measurements

Setting Activity (Bq)	1st	2nd	3rd	4th	5th	Mean (CPM)	Stdev (CPM)	RSD
BKG	30.40	28.45	29.52	30.77	29.28	29.68	0.92	3.11%
0.0010	29.59	30.11	30.88	30.63	30.39	30.32	0.50	1.64%
0.0050	29.88	31.02	29.86	31.46	29.75	30.39	0.79	2.60%
0.0099	29.33	31.10	30.43	31.06	30.44	30.47	0.72	2.35%
0.0513	32.60	31.11	31.90	32.58	32.54	32.15	0.65	2.02%
0.1009	35.85	36.62	35.78	34.50	35.17	35.58	0.80	2.23%
1.0089	87.23	87.60	87.63	86.26	90.20	87.78	1.46	1.66%

Table 11. Net disintegrations rate (DPM) from repeated measurements

Setting Activity (Bq)	Sample mean (DPM)	BKG mean (DPM)	Net* (DPM)	Calculated DPM (DPM)	Relative error
0.0010	31.71	31.05	0.66	0.06	>±100%
0.0050	31.80		0.75	0.30	>±100%
0.0099	31.88		0.83	0.60	37.98%
0.0513	33.63		2.58	3.08	-16.15%
0.1009	37.23		6.18	6.06	1.91%
1.0089	91.83		60.78	60.53	0.42%

Table 12. Evaluation of measurement uncertainty based on repeated measurements

Setting Activity (Bq)	Sample (DPM)		BKG (DPM)		Result (DPM)	Relative standard uncertainty*
	Mean	$\sigma_{\text{Gross DPM}}$ (k=1)	Mean	$\sigma_{\text{Gross DPM}}$ (k=1)		
0.0010	31.71	0.10	31.05	0.19	0.66±0.42	63.17%
0.0050	31.80	0.17			0.75±0.50	66.53%
0.0099	31.88	0.15			0.83±0.48	57.98%
0.0513	33.63	0.14			2.58±0.48	18.59%
0.1009	37.23	0.17			6.18±0.50	8.10%
1.0089	91.83	0.31			60.78±0.72	1.18%

*Values are expressed as mean±expanded uncertainty (k=2). relative uncertainties (%) are shown in parentheses

Table 13. Detection limit from repeated BKG measurements

Setting Activity (Bq)	Limit detection (counts)					Mean	Stdev	RSD
	1st	2nd	3rd	4th	5th			
BKG	201	195	199	203	198	199	3	1.52%

용 오차 제한치(4.6%) 이내로 만족하였으나, RSD가 4.6% 이상으로 재현성에 대한 부분은 만족하지 못하는 것으로 확인하였다. 이는 Ld는 검출여부를 판정은 가능하나 값에 대한 신뢰도 확보가 부족한 것을 확인하였다.

3.3. 계측시료 시간 별 평가

60분 측정 조건에서의 반복측정에서 Ld 검출여부 판정에 만족함에도 불구하고, 값의 신뢰도 확보가 부족한 것을 확인하였다. BKG의 대비 미량의 방사능 농도의 계수량이 부족하여 BKG에 의한 영향으로 추정하여, 측정시간을 60분, 240분, 960분 측정 조건으로 수행하였다. 각 측정시간에 따른 Ld와 그에 따르는 MDA는 자체처분 허용농도의 1/10인 0.1 Bq/g 보다 낮은 수준으로 Table 15와 같다.

측정시간과 관계없이 BKG 영향이 적은 1.0089 Bq 계측 시료

Table 14. Measurement results based on repeated measurements

Setting Activity (Bq)	Sample net activity (Bq)					Mean (Bq)	Relative error	RSD
	1st	2nd	3rd	4th	5th			
0.0010	-0.0142†	0.0289†	0.0237†	-0.0025†	0.0194†	0.0111	>±100%	>±100%
0.0050	-0.0090†	0.0449†	0.0060†	0.0121†	0.0084†	0.0125	>±100%	>±100%
0.0099	-0.0187†	0.0463†	0.0159†	0.0051†	0.0203†	0.0138	38.84%	>±100%
0.0513	0.0385†	0.0464†	0.0416†	0.0317†	0.0570†	0.0430	-16.22%	21.97%
0.1009	0.0951	0.1424	0.1091	0.0651	0.1027	0.1029	1.94%	27.03%
1.0089	0.9909	1.0313	1.0132	0.9676	1.0622	1.0130	0.41%	3.60%

†Not detected (below detection limit (Ld)

Table 15. Detection limit (Ld) and minimum detectable activity (MDA) as a function of counting time, determined from background measurements

Measurement time (min)	Gross count rate (CPM)	Gross Count (Count)	Ld (Count)	MDA (Bq/g)
60	29.38	1763	198	0.0575
240	29.90	7176	397	0.0288
960	29.55	28368	786	0.0143

Table 16. Measurement results as a function of counting time

Set Activity (Bq)	60 minutes		240 minutes		960 minutes	
	Sample net activity	Relative error	Sample net activity	Relative error	Sample net activity	Relative error
0.0010	0.0077†	>±100%	-0.0035†	>±100%	-0.0019†	>±100%
0.0050	0.0034†	-31.43%	-0.0019†	>±100%	0.0089†	78.94%
0.0099	0.0051†	-48.49%	0.0139†	40.60%	0.0093†	-5.74%
0.0513	0.0618	20.43%	0.0571	11.27%	**0.0500**	**-2.63%**
0.1009	0.1058	4.79%	**0.0996**	**-1.32%**	**0.0972**	**-3.68%**
1.0089	**1.0273**	**1.83%**	**1.0122**	**0.33%**	**1.0116**	**0.27%**

†Not detected (below detection limit (Ld)

의 결과값은 Table 5의 시료 계측의 허용 오차 제한치(4.6%)를 만족하였으며, 측정시간이 늘어남에 따라 960분 측정시간에서는 0.0513 Bq 계측 시료의 결과값은 허용 오차 제한치(4.6%) 이내로 만족함을 확인하였다. 다만, 0.0513 Bq 계측시료의 60분 및 240분 측정결과는 Ld를 만족함에도 불구하고 허용 오차 제한치(4.6%)를 초과하였으며, 충분한 시간동안 측정한 960분 측정에서만 허용 오차 제한치(4.6%) 이내로 만족하였다. 이는 Table 14의 결과인 0.1009 Bq 계측시료 반복 측정에서 확인되었던 것과 유사한 결과로 신뢰도가 부족한 것을 확인하였다. 추가적으로, 960분 측정에서의 경우에는 0.0099 Bq 계측시료의 값이 허용 오차 제한치(4.6%)과 큰 차이가 없는 것을 확인되었으나, 이는 Ld에 따라 검출되지 않은 데이터로 판단하여 평가에서 배제하였다.

4. 고 찰

반복 측정 및 측정 시간에 따른 평가에서 Ld를 만족함에 불구하고 결과값이 기준값으로 설정되는 허용 오차 제한치를 초과하는 경우를 확인하였으며, 허용 오차 제한치는 계측시료 및 교정에 따른 불확도를 합성한 오차범위이다. 이는 BKG와 미량의 시료 간의 총계수량에 차이가 BKG 계수불확도에 의하여 영향받는 것으로 추정되며, 이에 따라 측정 시간에 따른 결과에 대한 실험결과를 활용하여 원인 파악 및 결과 평가를 하였으며, 최종적으로 이 결과를 활용한 MDA의 설정 및 활용의 적절성을 확인하였다.

첫 번째, 60분 및 240분, 960분 계측시료 간 총계수량 및 순계수량의 영향으로 추정되는 상대계수불확도를 확인하여, 측정시간

에 따른 계수량의 영향을 평가하였다. 두 번째, 960분 계측시료의 농도 간 총계수량 및 순계수량의 영향으로 추정되는 스펙트럼의 채널 당 계수량을 확인하여, 채널 당 계수량의 영향 및 스펙트럼의 상관관계를 평가하였다. 세 번째, 상위 평가에 따라 실제 계측상의 검출가능한 ^{99}Tc 핵종 자체처분 허용농도(1 Bq/g)의 1/10 수준 이하 MDA 설정 방법에 대하여 평가하였다.

4.1. 계수량에 따른 영향 평가

계측시료의 계수에 따른 계수불확도를 총계수량 및 순계수량을 Table 17, 18과 같이 확인하였다. 상대계수불확도(k=2)는 식(20)에 따라 계산하여 Fig. 5과 같이 계수량에 따른 불확도 변화를 알 수 있으며, Table 5의 시료 계측의 허용 오차 제한치(4.6%)와 유사한 4.42%의 2048 count 이상이 되어야만 결과값의 신뢰도를 확보할 수 있는 계수량으로 확인하였다. 이러한 점을 고려하면 Table 17에 나타낸 총계수량에서는 Ld와 관계없이 BKG를 포함한 총계수량으로 상대계수불확도가 안정적인 것으로 판단할 수 있다.

하지만, 실제 계측시료의 방사능 농도로부터 계수되는 순계수량은 BKG를 소거함에 따라 Table 18과 같이 상대계수불확도가 커지는 것을 확인하였으며, 순계수량이 2048 count 이상인 시료에서는 경우에는 Table 16의 방사능 농도 결과값과 교차 검토하였다. 검토 결과로 상대계수불확도가 낮아짐에 따라 결과값의 신뢰도를 확보되는 것을 확인하였으며, Ld를 만족하더라도 순계수량을 낮을 경우에는 결과값의 신뢰도가 떨어지는 것을 원인은 순계수량이 부족하여 상대계수불확도에 의하여 재현성이 부족한 것을 확인하였다.

4.2. 농도별 스펙트럼 평가

순계수량의 평가는 측정대상의 에너지 범위에서 발생하는 모든 계수값에 의한 결과를 평가한 것이다. 이는 순계수량이 상대계수불확도를 만족하여도, 에너지 범위에 따라 채널(Channel) 당 계수되는 계수량의 변화에 대해서는 확인할 수 없다. 즉, 변화량을 확인하기 위해서는 총계수량을 채널 당 계수되는 계수량으로 평가하는 것이 필요하다. 이는 에너지 범위가 커질 경우에는 계수량이 많더라도 채널 당 계수되는 계수량은 줄어드는 것을 의미하며, 채널 당 계수되는 순계수량이 BKG 수준에 가까워질수록 BKG에 의한 영향이 커질 것으로 추정된다. 이에 대한 평가를 위하여 960분 측정에 대한 스펙트럼을 확인하여 계수량에 의한 영향을 평가하였다. 스펙트럼의 원시 데이터(Raw data)는 1채널 당 0.5 keV의 에너지 범위를 가지며, 총 588 채널에 계수된 데이터는

Table 17. Relative counting uncertainty of gross counts

Set Activity (Bq)	60 minutes		240 minutes		960 minutes	
	Gross count	Relative counting uncertainty	Gross count	Relative counting uncertainty	Gross count	Relative counting uncertainty
BKG	1763	4.76%	7176	2.36%	28368	1.19%
0.0010	1789†	4.73%	7128†	2.37%	28262†	1.19%
0.0050	1774†	4.75%	7150†	2.37%	28848†	1.18%
0.0099	1780†	4.74%	7368†	2.33%	28886†	1.18%
0.0513	1975	4.50%	7961	2.24%	31104	1.13%
0.1009	2126	4.34%	8546	2.16%	33696	1.09%
1.0089	5297	2.75%	21110	1.38%	83798	0.69%

†Not detected (below detection limit (Ld)

Table 18. Relative counting uncertainty of net counts

Set Activity (Bq)	60 minutes		240 minutes		960 minutes	
	Net count	Relative counting uncertainty	Net count	Relative counting uncertainty	Net count	Relative counting uncertainty
0.0010	26†	38.92%	-48†	-	-106†	19.46%
0.0050	11†	59.23%	-26†	-	480†	9.13%
0.0099	17†	47.95%	192†	14.43%	518†	8.78%
0.0513	212	13.72%	785	7.14%	**2736**	**3.82%**
0.1009	364	10.49%	1370	5.40%	**5328**	**2.74%**
1.0089	**3535**	**3.36%**	**13934**	**1.69%**	**55430**	**0.85%**

†Not detected (below detection limit (Ld)

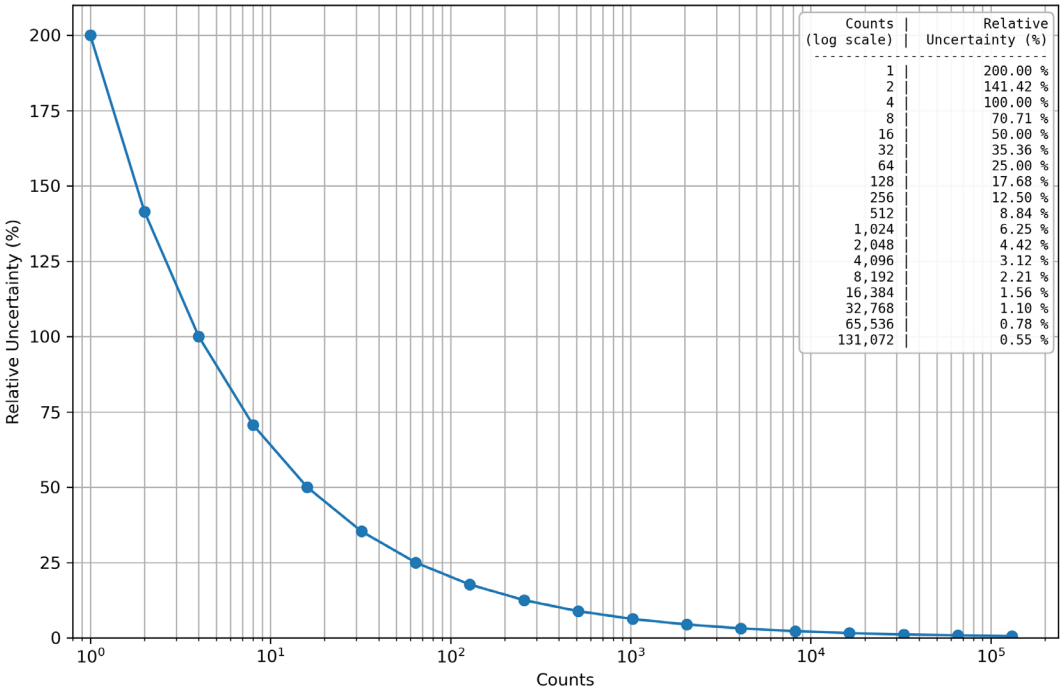

Fig. 5. Relative uncertainty versus counts

Table 19. Evaluation of counts per channel in the spectrum

Set Activity (Bq)	Sum count (0.5~294 keV)		mean (counts/ch)		median (counts/ch)		minimum (counts/ch)		maximum (counts/ch)	
	Gross	Net	Gross	Net	Gross	Net	Gross	Net	Gross	Net
BKG	33234		57		25		5		931	
0.0010	32977	-257	56	0	25	0	4	-45	942	57
0.0050	33583	349	57	1	24	-1	6	-43	915	102
0.0099	33676	442	57	1	24	0	5	-39	931	41
0.0513	35921	**2687**	61	**5**	25	**2**	4	-25	933	62
0.1009	38438	**5204**	65	**9**	25	**4**	5	-28	953	96
1.0089	88727	**55493**	151	**94**	31	**11**	5	-14	1260	473

Table 19과 같다. Table 16 및 Table 18에 따른 결과값을 기반으로 스펙트럼을 해석할 경우에는 평균값은 채널당 약 5 counts 이상이 되어야하며, 중위값은 약 2 counts 이상이 되어야 값의 정량화가 가능한 것으로 확인하였다.

다만, Table 16과 Table 18는 수치적으로는 0.0513 Bq 계측시료까지 결과값에 신뢰도가 있다면, Fig. 4와 같은 교정선원 스펙트럼과 유사한 형태로 구분이 되어야 한다. Fig. 6은 LSC 장비에서도 확인가능한 스펙트럼이며, 1.0089 Bq 계측 시료를 제외한 대부분 시료의 경우에는 BKG 수준으로 스펙트럼으로 구분하기 어려운 수준으로 확인되었다. BKG와의 스펙트럼 간의 구분을 위하여 스펙트럼 원시 데이터를 식 (22)을 이용하여 정규화 스펙트럼으로 후처리하여 Fig. 7와 같이 비교하였다. 해당 스펙트럼에서 결과값의 신뢰도가 높은 계측시료 일수록, Fig. 4의 비소광선원의 스펙트럼과 유사하게 고에너지 구간에 계수량이 높아짐에 따라 저에너지 계수량이 상대적으로 적어지며, 이에 따라서 BKG와 구분이 되는 것을 확인할 수 있다.

Fig. 6과 Fig. 7 스펙트럼은 총계수량을 이용한 스펙트럼으로, BKG에 의한 영향을 판단하기 어려운 점이 있으므로, BKG를 소거한 스펙트럼의 원시 데이터 정규화 후처리하여 Fig. 8과 Fig. 9으로 비교하였다. Fig. 8은 계측시료의 전체 농도범위에 해당하는 스펙트럼이며, Fig. 9은 결과값이 Table 5의 시료 계측의 허용 오차 제한치(4.6%) 이내에 만족하는 대상의 스펙트럼이다. 최종적으로 스펙트럼에 대하여 평가는 Table 20 및 Fig. 6, 7에서 유효성 확보가 확인된 1.0089 Bq 계측시료를 참조 스펙트럼으로 설정하

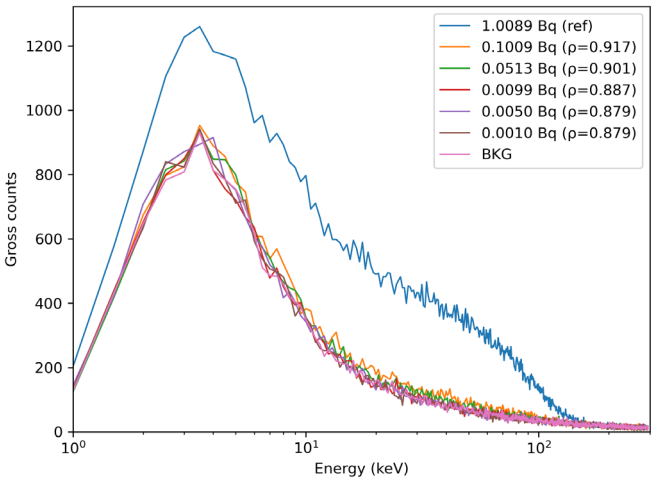

Fig. 6. Gross count spectrum

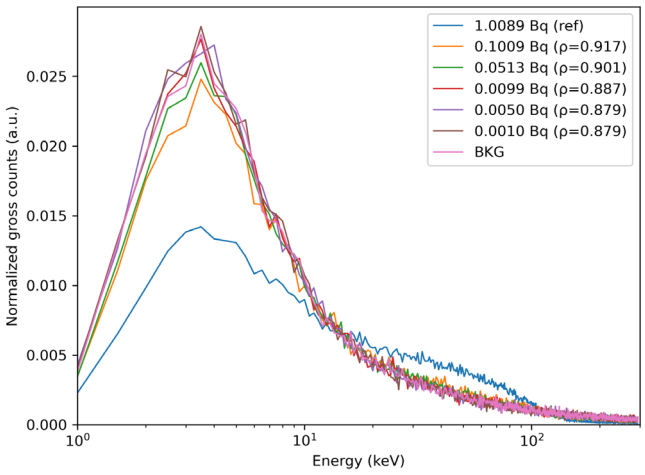

Fig. 7. Normalized gross count spectrum

여, 그 외 계측시료의 스펙트럼을 식(23)를 이용하여 비교하였다. Fig. 8 및 Fig. 9과 같이 1.0089 Bq 계측시료의 스펙트럼을 기준으로한 상관계수 결과값은 Table 20와 같으며, BKG와 유사한 농도 수준이 될수록 0 또는 음의 값으로 수렴하는 것을 확인하였다.

이는 0.0099 Bq 이하는 BKG와 식별이 불가능한 잡음(noise) 수준의 스펙트럼으로, Ld와 관계없이 결과값의 신뢰도가 떨어짐을 알 수 있다. 이러한 결과는 Table 18에 표기된 순계수량이 상대계측불확도를 만족하는 수준이 되어도, Table 19에 표기된 에너지 범위에 따른 채널 당 순계수량의 평균값 및 중위값이 충분하지 않으면 BKG에 의한 불확도로 인하여 결과값의 정확도 및 정밀도, 재현성이 떨어질 가능성이 높은점을 시사한다.

Table 20. Pearson correlation coefficient

Set Activity (Bq)	Correlation coefficient
0.0010	-0.056
0.0050	0.159
0.0099	0.161
0.0513	0.595
0.1009	0.793
1.0089	reference

4.3. MDA 설정 방법 평가

4.1에서는 측정시간 변화에 따른 총 계수량과 4.2에서는 농도에 따른 스펙트럼 채널 당 계수량에 따른 계수통계적 특성을 평가하였으며, 0.1009 Bq 수준까지는 계수통계적으로 Ld를 만족함을 확인하였다. 이는 해당 농도 수준까지의 계측 결과는 정량 평가로 검증되었으며, 이를 활용하여 계측시간 변화에 따른 MDA 설정 방법을 평가하였다. MDA 설정 방법을 평가하기 위하여, 960분 계측 조건에서 확보된 CPM을 기준으로 계측시간에 따른 MDA 변화를

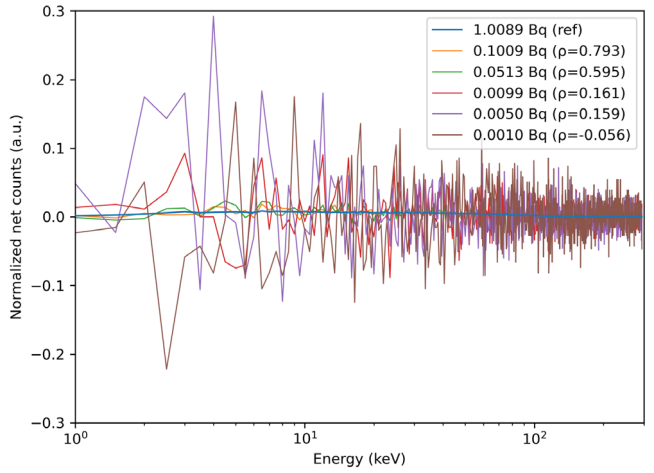

Fig. 8. Normalized net count spectrum (1)

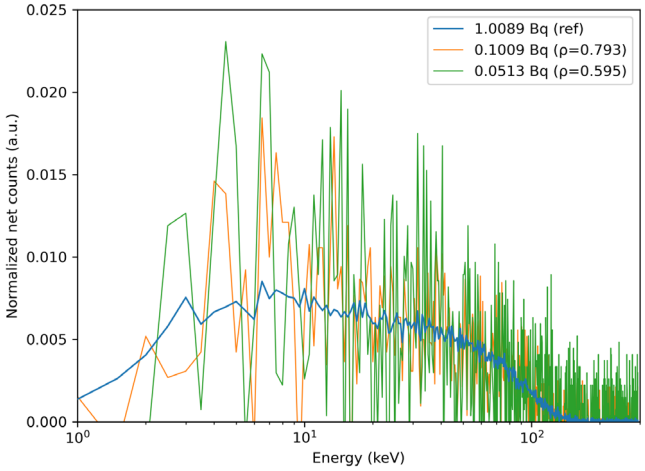

Fig. 9. Normalized net count spectrum (2)

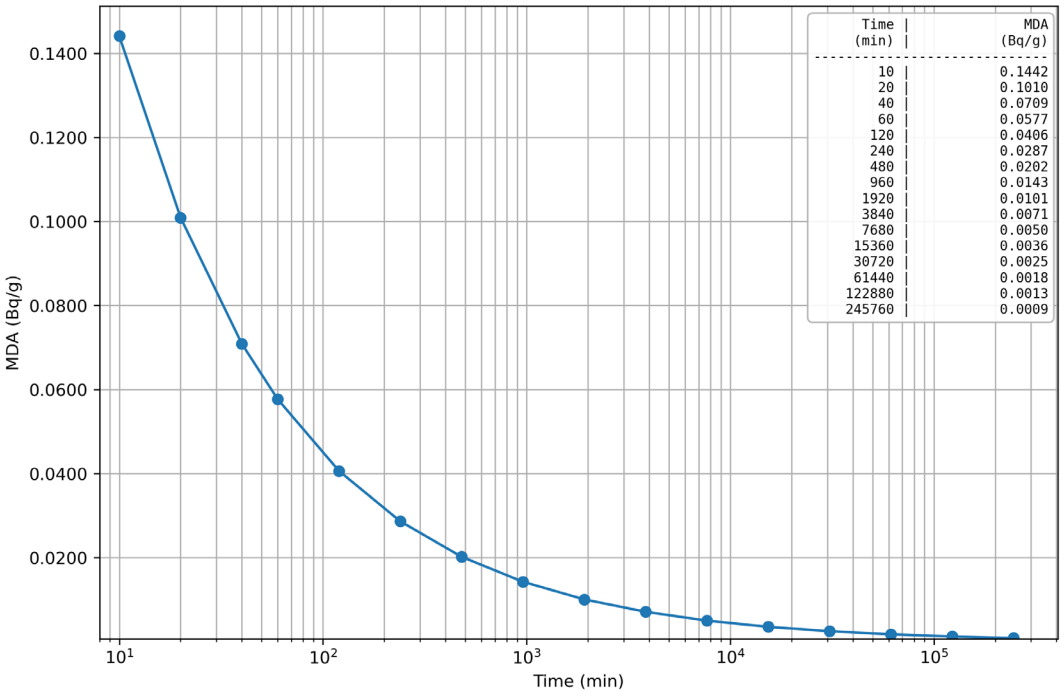

Fig. 10. MDA versus counting time

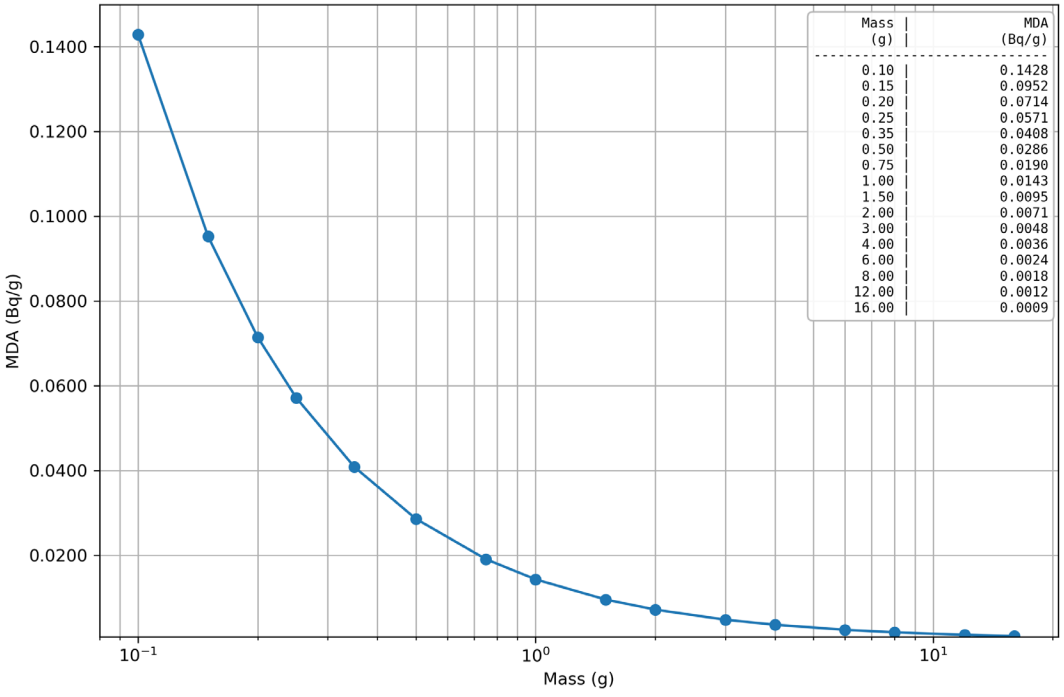

Fig. 11. MDA versus sample mass

Fig. 10와 같으며 960분에서의 MDA는 0.0143 Bq/g이다.

목표 MDA가 자체처분 허용농도 1 Bq/g의 1/10인 수준인 0.1 Bq/g 수준인 경우 60분 이내의 계측시간으로도 가능한 것을 확인하였으며, 이는 규제 기준 충족 여부 판단만을 목적으로 할 경우에는 불필요하게 장시간 계측을 수행할 필요가 없음을 의미한다. 다만, 목표 MDA가 분석의뢰 기관에서 요구하는 0.0050 Bq/g 이하 수준으로 설정되는 경우에는 계측시간을 7,680분으로 8배 이상 증가시켜야만 도달가능 한 것으로 확인하였으나, 이러한 계

측시간은 현실적인 적용이 어려운 점이 있다. 이러한 원인은 계측시간이 증가함에 따라 Ld 및 MDA 산술에 적용되는 BKG의 총계수량도 같이 증가하므로 MDA를 낮추는데에는 한계치가 존재한다. 이러한 한계를 보완하기 위해서는 MDA 산술식의 주요 변수인 시료량에 따른 MDA 변화를 Fig. 11과 같다.

이는 계측시간과 달리 0.0050 Bq/g 이하 수준으로 설정하기 위하여 시료량을 3 g으로 3배 이상 증가시켜야 도달 가능하는 것을 확인하였다. 이는 계측시간 증가와 달리 BKG 계수 증가의 영향을 상대적으로 받지 않으면서, MDA를 효과적으로 낮출 수 있는 방법임을 알 수 있다.

5. 결 론

본 연구에서는 LSC를 이용하여 저준위 ^{99}Tc의 계측 가능 범위와 검출 신뢰도를 정량적으로 평가하였다. 비소광선원을 통한 소광곡선 검증과 교정 유효성을 확인한 후, 다양한 농도와 측정시간 조건에서 실험을 수행하여 정확도, 정밀도, 감도 및 재현성을 종합적으로 분석하였다.

첫 번째, 이론적 Ld를 만족하더라도 저농도 영역에서는 결과값의 신뢰도가 확보되지 않는 구간이 존재함을 확인하였다. 특히 0.0513 Bq 이하의 농도에서는 순계수량이 부족하여 상대계수불확도가 크게 증가하였고, 반복측정의 재현성이 현저히 떨어졌다.

두 번째, 0.1009 Bq 및 1.0089 Bq 계측시료에서는 상대오차와 RSD가 허용 오차 제한치(4.6%) 이내로 유지되어 정량적 신뢰성이 확보되었다. 이는 해당 농도 이상에서는 LSC의 순계수량이 충분하며, 계수통계적 불확도가 안정적으로 감소함에 따라 정확도 및 정밀도, 재현성의 유효성 확보를 의미한다.

세 번째, 측정시간(60, 240, 960분)을 증가시키면 검출한계는 개선되지만, 저농도 시료의 정량도는 측정시간 증가만으로는 충분히 확보되지 않았다. 특히 0.0099 Bq 이하 시료는 장시간 측정에서도 BKG 영향이 커짐에 따라 정량화가 어려운 것으로 확인되었다.

네 번째, 스펙트럼 기반 분석에서도 동일한 경향을 확인하였다. 총계수 스펙트럼 및 정규화 스펙트럼 모두에서 저농도 시료는 BKG와 유의미한 스펙트럼 차이를 보이지 않았으며, 피어슨 상관계수 또한 0에 수렴하여 스펙트럼 수준에서도 구분이 어려웠다. 반면, 0.1009 Bq 이상에서는 고에너지 영역 비율이 증가하며 BKG와 차이를 확인하였다.

다섯 번째, 목표하고자하는 MDA를 설정할 때에는 계측시간 증가와 시료량 조절하여 적절하게 활용이 필요함을 확인하였다. 계측시간을 증가함에 따라 계수량을 확보하는 장점은 있으나, 계측시간이 증가함에 따라 BKG의 계수량도 증가하여 MDA 감소율의 한계치가 있었다. 이러한 한계치를 개선 및 보완하기 위하여 시료량을 증가하면 MDA가 비례적으로 감소하는 것을 확인하였다.

결론적으로, 검출 가능 여부는 Ld로 판단할 수 있으나, 정량 가능 여부는 순계수량, 상대계수불확도, 스펙트럼 평가가 필수적이며, 미량의 ^{99}Tc 신뢰할 수 있는 정량 하한은 약 0.1009 Bq 수준으로 판단된다.

따라서 규제기관 또는 발생기관이 요구하는 MDA를 만족하기 위해서는 본문에서 다뤘듯이 계측시간 증가 및 시료량 증량과 같이 MDA에 적용되는 변수를 조정하여야 하며, 그 외로 고효율 계측조건 확보, BKG 최소화, 회수율 향상 등의 변수에 대해서 사전에 검토하는 것이 필요하다. 본 연구는 LSC 기반 ^{99}Tc 분석 시 저준위 영역에서 발생하는 계수통계적 한계를 정량적으로 확인하였으며, 향후 방사성폐기물 특성평가의 신뢰도 향상 및 분석 방법, 절차 개선에 기여할 수 있을 것으로 기대된다.

사 사

본 연구는 기후에너지환경부(MCEE)와 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다. (No. RS-2023-00234176)

참고문헌

1. Nuclear Safety and Security Commission. 2023. Regulation on the classification of radioactive waste and criteria for self-disposal NSSC Notice No. 2023-7.
2. Nuclear Safety and Security Commission. 2024. Acceptance criteria for low and intermediate level radioactive waste NSSC Notice No. 2024-13.
3. Currie LA. 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination: Application to radiochemistry. *Analytical Chemistry* **40**(3):586-593.
4. Laboratoire National Henri Becquerel / Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives. 2024. Atomic and Nuclear Data (Tables de Radionucléides). LNE-LNHB/CEA, France. Available at: http://www.lnhb.fr/nuclides/.
5. Eckert & Ziegler Isotope Products. 2025. Traceability. Retrieved November 20, 2025, from https://www.ezag.com/products/isotope-products/isotrak-calibration-sources/general-technical-information/traceability/.
6. Eckert & Ziegler Analytics. 2024. Certificate of Calibration for Tc-99 Standard Reference Source SRS No. 131449. Eckert & Ziegler Analytics.
7. Korean Standards Association. 2023. Statistical interpretation of data-Techniques of estimation and tests relating to means and variances KS A ISO 2854:2023.
8. Choi KH. 2020. Understanding on the counting statistics in radiological science. Research Institute of Health Statistics, Jeonju University.