

Monte Carlo 계산에 의한 액체섬광계수기의 베타선 스펙트럼 Simulation

이철영 · 전재식

충남대학교

요 약

액체섬광 계수기에 대한 ^3H , ^{14}C , ^{36}Cl 의 베타선 스펙트럼의 시뮬레이션을 Monte Carlo 법으로 수행하였다. 베타선의 손실에너지는 'continuous slowing down approximation(CSDA)' 모형으로부터 구하였다. 순 베타방출 핵종이 균일하게 용해되어 있는 섬광용액은 1.25cm×3.5cm의 원통형 geome try로 가정하였다. ^{14}C , ^{36}Cl 에 대한 계산결과는 계수효율의 경우 실험값과 2%의 범위 내에서 잘 일치하였으나 ^3H 에 대해서는 상당한 편차를 나타내었다. 이는 저 에너지 베타선에 대한 섬광용액 자체의 quenching 효과에 기인하는 것으로 판단된다.

서 론

액체섬광계수기(liquid scintillation counter, 이하 LSC)는 ^3H , ^{14}C , ^{32}P , ^{35}S , ^{36}Cl , ^{147}Pm 등과 같은 순 베타방출 핵종의방사능 측정에 매우 효과적이며 β , γ 동시방출핵종 및 전자포획핵종의 측정에도 사용되고 있고 또한 계수장치의 진보로 액체섬광계수법에 의한 분광분석도 핵종에 따라 가능한 상태이다. 액체섬광계수법에 의한 응용이 ^3H 와 ^{14}C 및 luminescence를 주로 취급하는 의학, 생물학, 약학, 병리학 등 각 분야에서 행해지고 있으며 이에 따라 LSC도 실험용 및 상업용으로 널리 보급되어 있다.

액체섬광계수기를 이용한 측정 방법으로는 일반적으로 내부표준법, 외부표준채널비법, 시료채

널비법, 효율추적법 등의 quenching 보정법으로 방사능을 결정하는 방법이 개발되어 사용되고 있으며 이 방법들을 이용하여 측정을 하기 위해서는 quenching 되지 않은 표준선원 set와 quenching된 표준선원 set가 필요하다. 아울러, 저 준위 방사선 환경시료를 액체섬광 계수법으로 측정할 경우 시료 조제시 첨가되는 화학물질과 시료중의 불순물에 기인한 quenching 효과 및 luminescence 등에 의해 그 스펙트럼은 상당부분 왜곡되어 나타나므로 background를 최소화 하기 위한 channel의 선택 및 정확한 계수를 위해 상시 재현성이 뚜렷한 핵종별 스펙트럼의 확보는 중요한 문제이다.

본 연구에서는 ^3H , ^{14}C 및 ^{36}Cl 의 베타선 스펙트럼에 대한 시뮬레이션을 Monte Carlo법으로

수행하였다. 베타선의 손실에너지는 ‘continuous slowing down approximation(CSDA)’ 모형[1]으로부터 구하였고 섬광용액의 표면으로 탈출하는 베타선의 시뮬레이션에 유의하였다. 일반적인 액체 섬광계수기의 검출 하한 에너지는 0.3keV 정도이므로 0.3keV 이상의 베타선에 대해 시뮬레이션을 행하였다.

이 론

1) 베타선의 발생

베타선원과 섬광용액이 균일하게 혼합되어 있다면 베타선이 발생할 확률은 용액 내 어느 곳에서나 일정하므로 베타선 발생점을 Fig. 1의 vial geometry 내에서 random number에 따라 임의로 결정하였다.

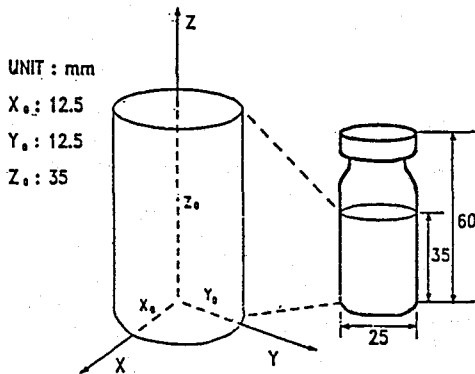


Fig. 1. Geometry of scintillator solution used for Monte Carlo simulation

발생된 베타선의 에너지를 결정하기 위하여 Fermi 이론으로 주어지는 허용된 베타선 스펙트럼을 이용하였다. 베타선의 최대단점 에너지가 W_0 인 베타선원에서 방출되는 에너지가 $W \sim W + dW$ 인 베타선의 수 $N(W)dW$ 는 다음과 같이 주어진다 [2].

$$N(W)dW = \text{const.} (W^2 - 1)^{-1/2} (W_0 - W)^2 f(Z, W) dW \dots \dots \dots (1)$$

여기서 Z : 베타 선원의 원자번호
 $f(Z, W)$: Fermi beta 분포함수
 이다.

$f(Z, W)$ 의 값은 Longmire 등이 제공한 아래식 [3]으로부터 결정하였다.

$$f(Z, W) = (W^2 - 1) \left\{ \frac{2\pi y}{1 - \text{EXP}(-2\pi y)} \right\} \left\{ \frac{W^2(1 + 4y^2) - 1}{4} \right\}^s \dots \dots \dots (2)$$

여기서 W = 베타선의 에너지
 $\gamma = Z/137$
 $S = (1 - \gamma)^{1/2} - 1$
 $y = \gamma W / (W^2 - 1)^{1/2}$
 이다.

베타선 에너지는 (1) 식을 정규화한 확률밀도 함수(probability density function)에 따라 결정하였다.

2) 베타선의 저지

매질에 입사된 저 에너지 전자는 경로 근처의 원자가 전자 또는 핵과 Coulomb 상호작용을 통해 에너지를 잃고 저지된다. 이러한 상호작용을 통해 한번에 잃는 에너지는 입사전자의 에너지에 비해 극히 미세하기 때문에 전자는 저지되기 전까지 수많은 충돌을 경험하게 된다. 따라서 전자의 실제 경로를 하나 하나 추적한다는 것은 거의 불가능하다.

위의 사실을 고려하여 본 연구에서는 CSDA 모형을 사용하여 전자의 저지를 추적하였다.

① 섬광용액(scintillator solution)

일반적으로 쓰이는 섬광용액은 툴루엔을 용매로 PPO(2,5-Diphenyl-1,3-oxazole)를 용질로 사용한

toluene base 섬광용액이다. 이 섬광용액의 경우 형광체로 쓰인 PPO의 양은 톨루엔 1ℓ당 5g 이하로써 섬광용액 조성의 1% 미만이다.

본 연구에서는 toluene base 섬광용액을 섬광체로 택하여 시뮬레이션을 행하였으며 이 과정에서 형광체인 PPO의 농도에 비추어 전자가 그 에너지를 직접 PPO에 주고 저지될 확률은 극히 미약하므로 PPO에 기인한 전자의 저지는 생략하였다.

② 전자의 에너지와 비정사이의 관계

전자의 비정은 Tabata등[4]이 제공한 반 실험적 외삽비정을 사용하였다. Tabata등은 매질과의 충돌 및 복사에너지 손실을 CSDA 모형에 따라 고려한 후 많은 실험 data를 fitting하여 전자의 에너지와 비정 사이의 관계식을 산출해 냈으며 이 식은 실험 data와 수 %의 범위 내에서 잘 일치한다. 이들이 제공한 식은 다음과 같다.

$$R = a_1 \left[\left(\frac{1}{a_2} \right) \ln(1 + a_2 \tau) - \frac{a_3 \tau}{(1 + a_4 \tau)^{a_5}} \right]$$

$$\tau = c_1 \left[\exp\{R[c_2 + c_3/(1 + c_4 R^{c_5})]\} / c_1 - 1 \right]$$

..... (3)

여기서 R : 전자의 외삽비정

a_i : 매질에 의존하는 상수

c_i : 매질에 의존하는 상수

τ : 전자의 kinetic 에너지

이다.

(3)식으로부터 주어진 에너지에 대한 전자의 비정과 주어진 비정에 대한 전자의 에너지를 결정할 수 있다. 톨루엔에 대한 유효원자번호 Z_{eff} 및 유효 원자질량(atomic weight) A_{eff} 은 아래와 같다[4].

$$Z_{eff} = \sum_i f_i Z_i$$

$$= 5.56245 \dots \dots \dots (4)$$

$$A_{eff} = Z_{eff} \left(\sum_i f_i Z_i / A_i \right)^{-1}$$

$$= 10.250511 \dots \dots \dots (5)$$

여기서 f_i 는 매질의 i -번째 원소에 대한 weight fraction이다. a_i 와 c_i 는 Tabata 등으로 부터 다음과 같은 관계식으로 주어진다.

$$a_1 = b_1(A_{eff}) / (Z_{eff})^{b_2}, \quad c_1 = d_1 / (Z_{eff})$$

$$a_2 = b_3(Z_{eff}), \quad c_2 = d_2 / (Z_{eff})^{d_3} / (A_{eff})$$

$$a_3 = b_4 - b_5(Z_{eff}), \quad c_3 = d_4 - d_5(Z_{eff}) \dots (6)$$

$$a_4 = b_6 - b_7(Z_{eff}), \quad c_4 = d_6 / (Z_{eff})^{d_7}$$

$$a_5 = b_8 / (Z_{eff})^{b_9}, \quad c_5 = d_8 / (Z_{eff})^{d_9}$$

여기서 b_i 와 d_i 는 Tabata 등에 의해 제공되었으며 (4), (5), (6)식으로부터 계산된 a_i 와 c_i 를 b_i, d_i 와 함께 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Values of the constants a_i, b_i, c_i and d_i

i	a_i	b_i	d_i	d_i
1	3.006×10^{-1}	2.335×10^{-1}	5.357×10^2	2.980×10^3
2	9.901×10^{-4}	1.209	3.484	6.140
3	9.874×10^{-1}	1.780×10^{-4}	2.551×10^2	1.026
4	1.402	9.891×10^{-1}	4.480×10^2	2.570×10^2
5	1.022	3.010×10^{-4}	6.511×10^{-1}	3.400×10^{-1}
6	—	1.468	—	1.470×10^3
7	—	1.180×10^{-2}	—	6.920×10^{-1}
8	—	1.232	—	9.050×10^{-1}
9	—	1.090×10^{-1}	—	1.984×10^{-1}

③ 베타선의 손실 에너지 결정

베타선의 발생점(x_0, y_0, z_0)과 에너지가 결정되면 (3)식으로부터 비정 R이 결정되며 이 베타선의 진행방향은 polar angle θ 를(0, π) 사이에서 azimuthal angle ϕ 를(0, 2π) 사이에서 random number를 사용하여 임의로 결정하였다. 베타선 발생점(x_0, y_0, z_0)과 비정 R 및 베타선 진행 방향으로부터 베타선 종점(x_e, y_e, z_e)을 구할 수 있다. 베타선의 종점이 섬광용액을 벗어나는 경우, 그 베타선의 손실에너지는 섬광용액으로부터의 베타선 탈출점(x, y, z)을 구한 다음 (x, y, z)와 (x_e, y_e, z_e) 사이의 거리(비정)에 해당하는 에너지 τ_p 를 식 (3)에 따라 구한다. 베타선의 초기 kinetic 에너지에서 τ_p 를 뺀 나머지 값이 섬광용액중에 베타선이 잃은 에너지이다.

(3)식은 전자의 ionization손실, excitation손실, radiation손실을 모두 포함하고 있다. 본 연구에서는 베타선의 ionization손실과 excitation손실은 모두 섬광용액에 흡수되는 것으로 간주하여 베타선의 에너지가 0.3keV 이하가 될때까지 그 경로를 추적하였다. 저 에너지 베타선의 경우 베타선의 radiative 충돌에 기인한 에너지 손실은 매우 미약하므로 그의 simulation은 생략하였다.

3) 방사선 검출부분의 시뮬레이션

LSC에서 사용하는 광증배관의 photocathode는 cesium-antimony(Cs_3Sb), multialkali($CsNa_2KSb$), bialkali(K_2CsSb) 등이며 이들의 양자효율은 photon의 파장에 따른 함수이나 그 모양은 별 차이가 없다. 380~500nm 파장의 photon에 대해 위 photocathode들의 양자효율은 10~30% 정도이다. Toluene-base 섬광용액에 POPOP(1,4-Bis[2-(5-phenyl-1,3-oxazole)]-benzene) 등의 제2용질을 적절히 첨가하면(제1용질 PPO의 약 10% 미만) 발광 스펙트럼은 위의 파장영역에 잘 치우친다. 본 연구에서는 quenching이 없는 베타선 스펙트럼과 제

수효율을 얻기 위하여 photocathode의 양자효율을 발생 photon의 파장에 관계없이 28%로 가정하였다. 섬광용액은 그 고유성질로서 섬광효율(scintillation efficiency)을 가지고 있다. Toluene base 섬광용액의 섬광효율을 얻기 위하여 Horrocks가 제공한 data[5]를 아래와 같은 식으로 fitting하였으며 그 변화 모양을 Fig. 2에 나타내었다.

$$\text{섬광효율} = \sum_i f_i (\log T)^i$$

여기서 T : 베타선이 섬광용액 중에 잃은 에너지

f_i : fitting 상수

이다.

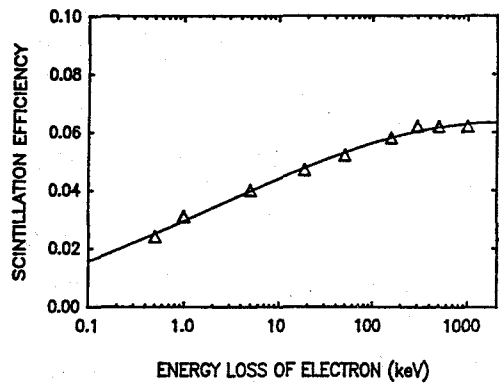


Fig. 2. Scintillation efficiency as a function of energy loss of electron.

Table 2. Probability of a scintillation event that produces a given number of detectable photoelectrons

Number of photoelectron	Probability of measurable pulse generation	Probability of nonmeasurable pulse generation
1	0.660	0.340
2	0.884	0.116
3	0.961	0.039
4	0.995	0.005
5	0.998	0.002

Photocathode에서 발생한 광전자의 수가 매우 작을 경우 검출 가능한 펄스높이를 형성치 못한다. 검출 가능한 펄스높이 생성확율을 광전자의 수에 따라 Table 2에 나타내었다[6].

대부분의 LSC는 방사선 검출에 있어 잡음이나 background를 제거하기 위해 2개의 광증배관을 사용한 동시계수방법을 이용한다. 이를 고려하여 섬광 photon의 분할 확율을 아래 식으로부터 구하였다[7].

$$\text{Probability} = 1 - 2^{(1-M)}$$

여기서 M은 광전자의 수이다.

섬광용액의 geometry를 벗어난 섬광 photon은 90% 이상이 포집되어 광증배관으로 입사한다[8]. 따라서 본 연구에서는 포집효율을 90%로 가정하였다.

4) LSC의 펄스높이

LSC의 상대적 펄스높이 응답(RPHR)은 전자의 에너지가 80keV 보다 큰 경우 선형성이 잘 유지된다. 전자의 에너지가 80keV 이하인 경우, [d

(RPHR)/dT]는 전자의 에너지가 감소함에 따라 감소하나 거의 일정한 값이며 그 값은 대략 80keV 이상의 값보다 30% 정도 작다[9]. 본 연구에서는 LSC의 펄스높이 응답에 대해 선형성을 가정하였다.

일반적으로 LSC는 대수증폭 방식으로 펄스를 증폭하여 대수증폭기를 거친 펄스높이와 섬광용액에 흡수된 에너지의 대수는 여전히 선형성이 잘 유지된다. 대수증폭기를 거친 후의 펄스높이와 섬광용액에 흡수된 에너지 사이의 관계식을 얻기 위하여 Backman사가 제작한 LSC, LS 5801 기종의 operation manual로부터 data를 취하였으며 Fig. 3에 이들 data점과 fitting 직선을 나타내었다. Fig. 3의 data점은 ³H, ¹⁴C 및 ³⁶Cl에서 방출되는 베타선의 최대 단점 에너지에 대응하는 channel number(펄스높이)이다.

본 연구에서는 LSC의 에너지 분해능을 얻기 위해 방사선 검출기의 에너지 분해능식[10]을 이용하였다. 이로부터 얻은 분해능 함수는 Gaussian 함수로 주어지며 다음 식에 따라 최종 스펙트럼을 얻었다.

$$g_{ij} = M(T_j) (2\pi s^2)^{-1/2} \exp\left\{-\frac{(T_j - T_i)^2}{2s^2}\right\}$$

$$G_i = \sum_j g_{ij} \dots\dots\dots (8)$$

여기서 $T_{j,i}$: j (또는 i) 번째 channel에 대응하는 에너지 중앙값

G_i : i 번째 channel의 최종 계수치

$M(T_j)$: Monte Carlo 방식으로 계산된 j 번째 channel의 계수치

이다.

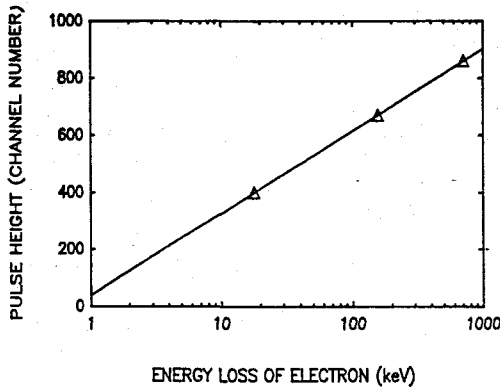


Fig. 3. Relation between output pulse height and energy loss of electron for LSC

결과 및 검토

베타선을 충분한 숫자만큼 발생시키고 이들에 대해 모든 process를 고려하여 섬광용액에 흡수된 에너지를 결정하였다. 실제 LSC 스펙트럼과 비교 가능한 스펙트럼을 얻기 위해 에너지를 그의 대수에 맞추어 등간적으로 세밀히 분할하고 이에 channel을 부여한 후 (8)식에 따라 스펙트럼을 구성하였다. 본 연구에서 계산된 스펙트럼은 Backman사가 제작한 LSC, LS 5801 기종의 펄스높이(channel)와 에너지의 fitting 관계식에 따라 구성되었으며 위 LSC로부터 얻은 실험 스펙트럼과 본 연구에서 계산된 스펙트럼을 비교하였다.

계산된 스펙트럼을 실험치와 함께 Fig. 4, 5, 6에 나타내었다.

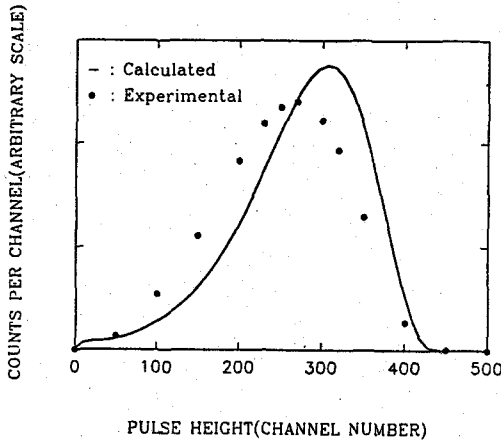


Fig. 4. Beta ray spectrum of ³H simulated and measured by liquid scintillation counting system

계수효율의 실험값을 얻기 위해 quenching 되지 않은 선원을 이용하였으며 이들의 방사능 uncertainty는 1989년 7월 1일 현재 ³H의 경우 ±4%, ¹⁴C의 경우 ±1.5%이고 ³⁶Cl의 경우 ±0.82%이다. 이들 3개의 핵종, 7개의 sample을 계수오차 0.2%

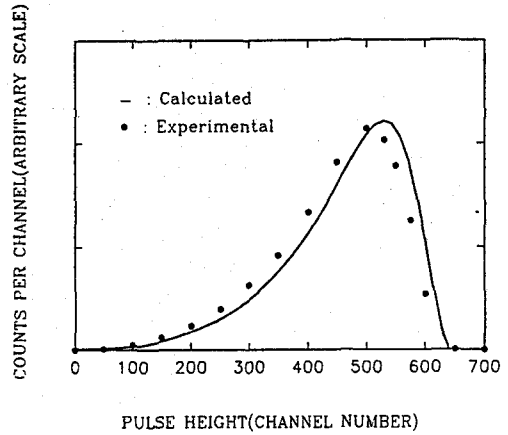


Fig. 5. Beta ray spectrum of ¹⁴C simulated and measured by liquid scintillation counting system

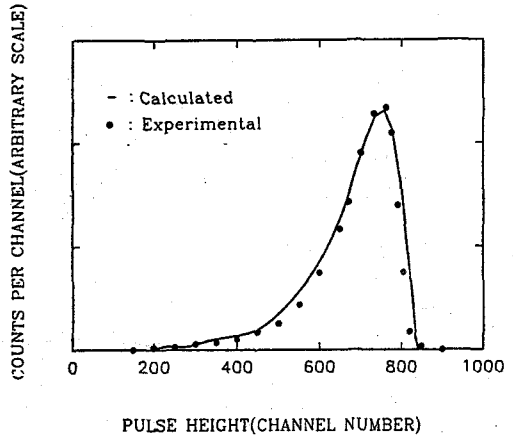


Fig. 6. Beta ray spectrum of ³⁶Cl simulated and measured by liquid scintillation counting system

미만으로 측정하였다. 모든 측정을 Backman사의 LS 5801 기종으로 1~960channel에 대해 행하였다. Table 3에 본 연구에서 계산된 계수효율과 실험을 통해 얻은 계수효율을 함께 나타내었다. Table 3에서 실험값의 uncertainty는 방사능의 un-

Table 3. Counting efficiency and count rate of ³H, ¹⁴C and ³⁶Cl

Nuclide	Sample No.	Activity (dpm)	Average count rate (cpm)	Background (cpm)	Counting efficiency(%)		
					measured	calculated	
³ H	1	388336	245539	100 ± 2		63.20 ± 4.00	67.8
¹⁴ C	1	38769	36141		92.96	92.96 ± 1.50	94.1
	2	38411	35786		92.91		
	3	39002	36375		93.01		
³⁶ Cl	1	10873	10588		96.46	96.36 ± 0.83	96.6
	2	12218	11851		96.23		
	3	12919	12553		96.39		

certainty 및 계수효율 측정과정의 uncertainty를 모두 포함시킨 값(제곱합산평균)이다.

³H의 경우 계산된 계수효율과 실험을 통해 얻은 계수효율의 차이는 ³H의 베타선의 에너지가 매우 낮는데 기인한 섬광용액 자체의 quenching효과 때문인 것으로 판단된다.

결론

Monte Carlo 법을 사용하여 ³H($E_{max} : 0.0186$ MeV), ¹⁴C($E_{max} : 0.156$ MeV) 및 ³⁶Cl($E_{max} : 0.709$ MeV) 베타입자 방출선원에 대한 LSC에서의 출력 스펙트럼을 시뮬레이션 하고 동 선원들의 베타선 스펙트럼을 LSC로 직접 측정하여 비교 검토하였는 바, 계수효율은 ³H를 제외하면 실험값과 2% 오차의 범위 내에서 시뮬레이션으로 예측할 수 있었다. 다만 Fig. 4, 5, 6에서 볼 수 있는 바와 같이 베타 입자의 최대 단점 에너지가 적어지면 실험을 통해 얻은 스펙트럼은 계산을 통해 얻은 스펙트럼보다 저에너지쪽으로 치우쳐지는 것을 볼 수 있는데 이것은 섬광용액 자체의 quenching에 기인하는 것으로 판단된다. 이 섬광용액 자체의 quenching에 기인한 계수효율의 저하를

Table 3으로부터 평가할 수 있으며 베타선의 최대 단점 에너지가 156keV 이상인 경우 계수효율의 저하는 약 2% 이하이다. 본 연구를 통해 LSC에 대한 섬광용액 자체의 quenching이 없는 베타선 스펙트럼 및 그에 따른 계수효율을 얻을 수 있었으며 충분한 검증을 거친다면 앞에서 언급한 LSC의 측정방법에 따라 본 연구에 이용된 계산 프로그램이 다음과 같이 실제측정에 이용될 수 있을 것이다.

즉, 효율추적법으로 ³H의 방사능을 측정하는 경우 효율추적자로서 ¹⁴C 스펙트럼과 quenching된 ³⁶Cl 스펙트럼이 쓰이나 본 프로그램을 이용하여 적당한 에너지의 스펙트럼을 생성할 수 있다. 또한, 베타선이 섬광용액 중에 잃은 에너지를 일정 량씩(또는 일정 비율씩) 빼주는 등의 방식으로 quenching의 모사가 가능하며 이로부터 실제 시료중의 베타방출핵종이 나타내는 스펙트럼 모양을 일정한 오차의 범위 내로 계산하고 이와 동시에 계산된 계수효율로부터 시료 중의 핵종의 농도를 역 추산 할 수 있을 것이다.

References

1. F. H. Attix and W. C. Roesch, *Radiation Dosimetry*, pp. 31–34, Academic Press, New York (1968).
2. R. D. Evans, *The Atomic Nucleus*, pp. 558, McGraw-Hill, New York(1955).
3. C. Longmire and H. Brown, "Screening and Relativistic Effect on Beta-Spectra", *Phys. Rev.* **75**, 267(1949).
4. T. Tabata, R. Ito and S. Okabe, "Generalized Semiempirical Equations for the Extrapolated Range of Electrons", *Nucl. Instr. Meth.* **103**, 85(1972).
5. P. E. Stanley and B. A. Scoggins, *Liquid Scintillation Counting*, p. 12, Academic Press, New York(1974).
6. R. K. Swank, *Liquid Scintillation Counting*, p. 23, Pergamon Press, Oxford(1958).
7. D. L. Horrocks, *Applications of Liquid Scintillation Counting*, p. 30, Academic Press, New York(1974).
8. *LS-100 Liquid Scintillation System*, Beckman Instruments Inc.(1967).
9. D. L. Horrocks, *Applications of Liquid Scintillation Counting*, p. 92, Academic Press, New York(1974).
10. W. B. Mann, R. L. Ayres and S. B. Garfinkel, *Radioactivity and Its Measurement*, p. 253, Pergamon Press, Oxford(1980).

Simulation of Beta Ray Spectra in Liquid Scintillation Counting System by means of Monte Carlo Method

Chul-Young Yi and Jae-Shik Jun

Department of Physics, Chungnam National University

ABSTRACT

Beta ray spectra of ^3H , ^{14}C and ^{36}Cl in liquid scintillation counting system have been calculated using the Monte Carlo method by which physical behaviors of particle transport in medium were simulated.

The calculations have been carried out on the basis of beta rays being slowing down according to the continuous slowing down approximation(CSDA) model. Beta rays generated in simulation geometry were traced until they lost their energy below 0.3 keV that is known to be the detection limit in the liquid scintillation counter.

Scintillator solution in which pure beta emitting radionuclides were dissolved uniformly was assumed to be bottled in the shape of right circular cylinder with 12.5mm in radius and 35mm in height.

The comparison of the calculated and measured results showed satisfactory agreement between those two, with slight discrepancy due to self quenching in the case of lower energy of emitted beta particles in the solution.