

<Technical Report>

제4기 지질연대 측정을 위한 감마선 측정 시스템의 특성 비교

최한우¹ · 김진철^{1,‡} · 이평구² · 이승렬¹

¹한국지질자원연구원 국토지질연구본부

²한국지질자원연구원 지질환경연구본부

요 약

신생대 제4기 퇴적층의 절대연대 측정은 OSL, ¹⁴C, ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs 등의 방법이 있으며, OSL, ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs 연대 측정을 위해서는 감마선 측정이 매우 중요한 기술이다. 한국지질자원연구원에서는 두 종류의 감마선 측정 시스템이 설치 운영되고 있다. SEGe (Standard Electrode Coaxial Ge Detector, 모델명: GC3020) 감마선 검출기는 OSL의 연간선량을 측정하기 위하여 설치되었으나, 100 keV 이내의 낮은 에너지, 저선량의 감마선 검출에는 적합하지 않아서 ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs 분석법에 활용이 어려웠다. ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs 연대분석을 위하여 BEGe (Broad Energy Germanium Detector, 모델명: BE6530) 타입의 검출기를 신규로 도입하여 감마선 검출 특성을 조사하였으며, OSL, ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs 연대측정에 최적의 검출효율과 에너지 분해능을 갖고 있음을 확인하였다. 또한 기존 SEGe 검출기의 경우 백그라운드 배경이 일정하지 않고 변화가 심하여 일반적인 연간선량 측정에 있어서 5% 정도의 오차를 야기하였다. 이러한 문제들은 냉각을 위한 액체질소 수위의 변화와 이에 따른 감마선 감쇄 영향의 변화에 의하여 일어남을 확인하였다. 이는 액체질소 통 아래에 5 cm 납 차폐를 두어 백그라운드 변화에 의한 영향을 1.7% 이내로 감소시킬 수 있었다.

주요어: 감마선 검출기, OSL, ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs

Hanwoo Choi, Jin Cheul Kim, Pyeong-Koo Lee and Seung Ryeol Lee, 2019, Comparison of characteristics of gamma-ray spectrometers for Quaternary age dating. Journal of the Geological Society of Korea. v. 55, no. 4, p. 473-479

ABSTRACT: Radiocarbon, OSL, ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb age dating methods are the main tools for the Quaternary geochronology. And for OSL, ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs age dating, gamma-ray measurement is the essential technique. Two gamma-ray spectrometers systems are operated in KIGAM. The SEGe (Standard Electrode Coaxial Ge Detector, model: GC3020) gamma-ray system was installed to measure the annual dose for OSL. Because this detector has poor detection efficiency and energy resolution in the lower energy less than 100 keV, it is not proper to measure ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs. A newly prepared BEGe (Broad Energy Germanium Detector, model: BE6530) type gamma-ray detector was confirmed very good efficiency and energy resolution for OSL, ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs age dating. The SEGe gamma-ray detector system had some problems of the background counting. High background variation was detected, and it was influenced to more than 5% error to normal annual dose for OSL dating. The level change of the liquid-nitrogen and attenuation of the gamma-ray caused the problem. To overcome the problems of background counting effect, 5 cm Pb blocks were installed under the liquid nitrogen dewar, and, as a result, the error was reduced less than 1.7%.

Key words: Gamma-ray detector, OSL, ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs

(Hanwoo Choi, Jin Cheul Kim and Seung Ryeol Lee, Geology division, Korea Institute of geoscience and mineral resources, Daejeon 34132, Republic of Korea; Pyeong-Koo Lee, Geologic environment division, Korea Institute of geoscience and mineral resources, Daejeon 34132, Republic of Korea)

[‡] Corresponding author: +82-42-868-3137, E-mail: kjc76@kigam.re.kr

1. 서 론

OSL (optically stimulated luminescence)과 방사성탄소(^{14}C) 연대측정법은 제4기 지질연대 측정을 위한 가장 중요한 방법이다. 또한 100년 이내의 지질연대 측정을 위해서는 ^{210}Pb , ^{137}Cs 연대측정 방법들이 이용되고 있다. 이 중에서 OSL 연대 측정을 위해서는 시료에 피폭된 자연방사선의 연간선량을 정확하게 알아야 하며, 연간선량은 원소 분석법이나 감마선 분광 분석법을 이용하여 측정할 수 있다. 원소 분석법은 K, U, Th 등의 방사성 원소들의 함량을 ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer) 등의 분석방법으로 측정하고 변환테이블을 이용하여 연간선량을 구하는 방법이다(Bailey *et al.*, 2003). 감마선 분광 분석법은 ^{40}K 이나 U, Th 붕괴 사슬에 있는 몇 가지 방사성 핵종들을 감마선 측정 시스템으로 직접 측정하여 연간 선량을 구하는 방법이다(Olley *et al.*, 1996). 원소 분석법은 사용 시료의 양이 수 그램 이하로 적어서 시료의 균질성과 대표성에서 문제가 될 수 있고 분석 절차가 복잡하여, 상대적으로 분석방법이 단순한 감마선 분광 분석법이 요즘은 더 많이 이용되고 있다. 감마선 분광 분석법을 사용하기 위해서는 고감도의 감마선 측정 시스템이 필수적이며, 검출기의 감도, 에너지 분해능 및 백그라운드 피크 등의 특성들이 연간선량 측정을 위한 소요시간 및 측정 오차를 결정짓는 요소가 된다. 그러므로 감마선 측정 시스템의 특성을 정확하게 파악하는 것이 중요하다.

^{210}Pb 연대 측정을 위해서 이전에는 ICP-MS를 이용하여 ^{210}Pb 의 함량을 주로 측정하여 왔으나, 저백그라운드 감마선 측정 시스템이 발달하면서 감마선 측정

으로 ^{210}Pb 의 함량을 측정할 수 있게 되었다(Appleby *et al.*, 1986; Joshi, 1987; Dulinski and Dominik, 1992). 또한 감마선 분광 분석법은 ^{210}Pb 와 동시에 ^{137}Cs 를 측정하여 연대측정에 활용할 수 있는 장점이 있다. ^{210}Pb 를 측정하기 위해서는 46.5 keV의 저에너지 감마선을 측정하여야 하므로, 100 keV 이하에서 높은 감도와 에너지 분해능을 갖는 검출기가 필수적이다.

한국지질자원연구원 국토지질연구본부에서는 SEGe 감마선 측정 시스템(GC3020, Canberra, USA)을 보유하고 있으나, 낮은 검출한계와 높은 백그라운드 피크로 인하여 연간선량이 낮은 시료의 측정에 어려움이 있으며, 백그라운드 값이 일정하지 않고 수시로 변화하는 문제점을 갖고 있다. 또한 저에너지(<100 keV)에서 효율이 좋지 않아서 ^{210}Pb 의 측정이 불가능하다. 이러한 문제점을 해결하기 위하여 BEGe 검출기(BE6530, Canberra, USA)를 도입하여 설치하였으며, SEGe 검출기와의 다양한 비교 검증을 실시하였다.

2. 실험장치 및 실험

검출기의 구조와 스펙은 표 1과 같다.

2.1 검출 효율 및 에너지 분해능

퇴적물에서의 감마선 측정은 저선량의 감마선을 검출하여야 하므로 많은 시간이 소요된다. 그러므로 감마선 검출 효율은 시간적인 면에서 매우 중요하다. 에너지 분해능도 검출 한계(Limit of Detection)에 영향을 주는 요인으로 높은 분해능을 갖는 경우 상대적으로 적은 시간으로도 필요한 수치를 얻을 수 있다.

그림 1에서는 SEGe 검출기와 BEGe 검출기의 검

Table 1. Mechanical informations of SEGe (GC3020) and BEGe (BE6530) gamma-ray spectrometer systems.

	SEGe detector	BEGe detector
Model	GC3020 (Canberra, USA)	BE6530 (Canberra, USA)
Type	SEGe (Standard Electrode Coaxial Ge Detector)	BEGe (Broad Energy Germanium Detector)
Energy range	40 keV ~ 10 MeV	3 keV ~ 3 MeV
Typical relative efficiency	30% at 1332 keV	60 % at 1332 keV
Resolution (FWHM)	1.20 keV (at 122 keV), 2.0 keV (at 1.3 MeV)	0.50 keV (at 5.9 keV), 0.75 keV (at 122 keV), 2.0 keV (at 1.3 MeV)
Shield	Model HPLBS1 (Low-background lead shield), Oretec	Model 777 (Ultra low-background shield), Canberra

출 효율을 나타내었다. BEGe 검출기는 150 keV 이상의 에너지 영역에서는 검출 효율이 기존 SEGe 검출기와 비슷한 경향을 보여주며, BEGe 검출기가 SEGe 검출기의 약 2배의 검출 효율을 갖는 것을 확인하였다. 150 keV 이하의 에너지 영역에서는 BEGe 검출기의 검출 효율이 현저히 증가함을 알 수 있었으며, 59.5 keV에서는 약 10배 이상의 검출 효율이 증가함을 확인하였다.

그림 2에서는 에너지에 따른 에너지 분해능을 각 검출기 별로 측정하여 나타내었다. 에너지 분해능의 경우, OSL에 가장 영향을 많이 미치는 ^{40}K 의 1460 keV에서는 두 검출기가 크게 차이가 나지 않았으며, 약 2 keV 정도의 분해능을 보여주었다. 하지만, 700 keV보다 낮은 에너지 영역에서는 BEGe 검출기의 분

해능이 현저히 향상됨을 알 수 있었다.

이러한 검출기 특성들을 분석하면, OSL 분석을 위해서는 두 검출기 모두 적합한 성능을 보여주었으며, 특히 BEGe 검출기의 경우 낮은 에너지에서의 뛰어난 효율과 분해능을 보여주었다. 이러한 특성은 ^{210}Pb (46.5 keV) 분석에 있어서 기존 SEGe 검출기보다 뛰어난 검출한계의 향상을 보여준다. 일반적인 퇴적물 시료로 80,000초 감마선 측정을 한 경우 기존 검출기의 경우 24 Bq, 신형 검출기의 경우 0.75 Bq의 ^{210}Pb 의 검출한계를 갖는 것을 확인하였다.

2.2 백그라운드

각 검출기는 각각 다른 감마선 차폐체를 사용하고 있으며, 백그라운드 측정 결과는 그림 3과 같이

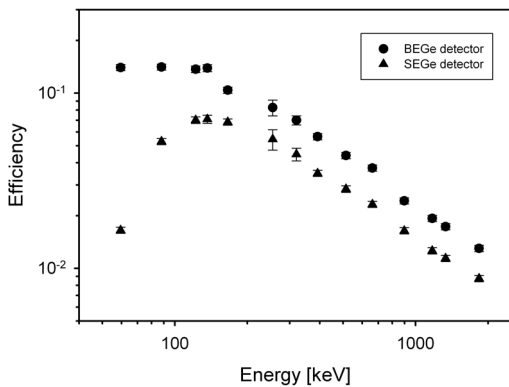


Fig. 1. Detector efficiencies of SEGe (GC3020) and BEGe (BE6530).

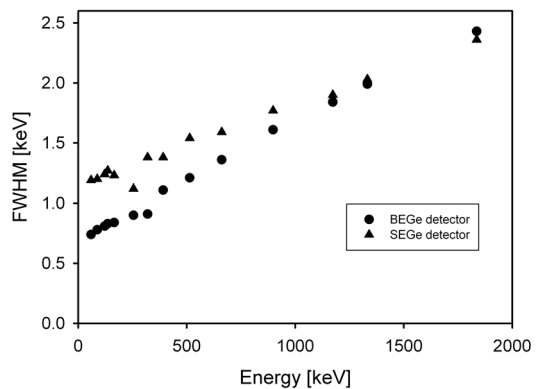


Fig. 2. Energy resolutions of SEGe (GC3020) and BEGe (BE6530).

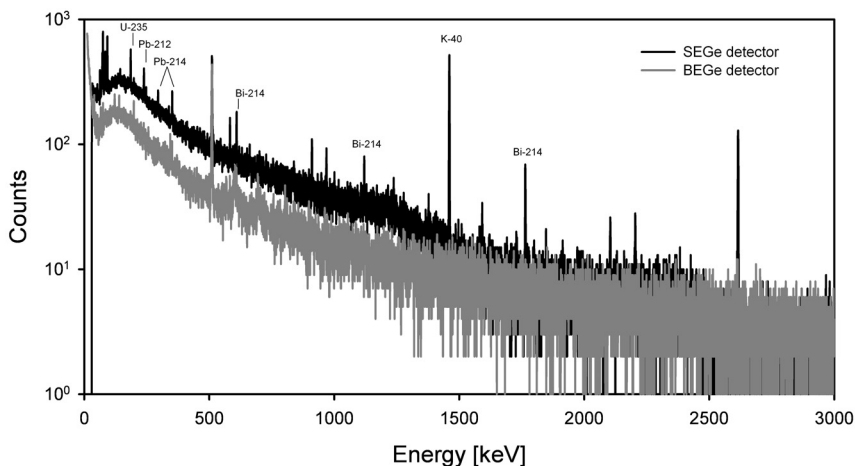


Fig. 3. Backgrounds of SEGe detector (Shield HPLBS1) and BEGe detector (Shield 777).

서로 다른 결과를 보여주었다. BEGe검출기는 특히 차폐체(Model 777, Canberra) 내부에 2.5 cm 두께의 ²¹⁰Pb 저함량(< 25 Bq/kg) 납을 사용하여 ²¹⁰Pb 측정에 특화되어 있으며, 장시간 측정하여도 특별하게 나타나는 백그라운드 핵종이 없었으나, 기존의 SEGe 검출기의 경우 백그라운드에서 ⁴⁰K, ²¹²Pb, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi의 핵종들이 검출됨을 확인할 수 있었다. 이러한 문제는 SEGe 검출기 차폐체(HPLBS1) 하부에 검출기 삽입을 위한 지름 89 mm의 구멍이 있어서 이 구멍을 통하여 외부 감마선 차폐가 완전히 이루어지지 못해서 생기는 문제점으로 보인다. ⁴⁰K의 경우 일반적인 퇴적물 시료에서 발생하는 피크의 약 1/5 정도 백그라운드가 발생되는데, 일반적인 OSL 분석에는 사용이 가능하지만 방사선 발생 핵종이 적은 시료에 있어서는 기존의 SEGe 검출기 사용은 피해야 한다.

감마선 분광 분석에서는 시료의 정확한 위치 선정을 위하여 위치 표시가 된 폴리머 필름을 사용하였다. 폴리머 필름이라고 해도 종류에 따라 일부 핵종(²¹⁴Pb)의 백그라운드를 보여주는 문제점을 확인하였으며(그림 4), 백그라운드에 영향을 주지 않는 필름(HP C2936A)을 선정하여 사용하였다.

2.3 SEGe 검출기의 문제점 해결

2.3.1 감마선 측정 결과의 불안정성

SEGe 검출기의 경우 측정 결과가 흔들리는 문제점이 발생하는데, ⁴⁰K이 약 800 Bq/kg 정도의 activity를 갖는 시료를 측정하면 약 5% 정도의 측정 오

차가 생겼다. 통계학적으로는 1% 이내의 오차가 정상적이지만 정상범위보다 큰 오차가 야기되었으며, 이러한 오차는 주로 백그라운드에 의해서 형성되었을 것으로 추정되었다. 측정된 ⁴⁰K의 백그라운드는 1190 ± 179 counts/80,000 sec 였으며, 그림 5에서 보여주듯이 검출기 냉각에 사용하는 액체질소의 수위에 따라 백그라운드 값이 변화함을 확인하였다. 이는 차폐체 하부로 나 있는 구멍으로 들어오는 백그라운드 감마선이 액체질소의 수위에 따라 감쇄되는 정도가 달라져서 전체 분석 결과의 불안정성을 야기한 것으로 생각된다. 액체질소의 수위는 최대 20 cm 정도 변화하며, 이 액체질소에 의해 감쇄되는 ⁴⁰K 감마선(1460 keV)의 감쇄값은 0.749이며, 액체질소 수위에 따른 백그라운드 값의 최대값과 최소값의 비율이 0.70이므로 백그라운드 값의 변화는 액체질소 수위변화의 영향으로 추정된다. 이러한 문제점을 근본적으로 해결하기 위하여 검출기 밑에 납벽돌을 그림 5와 같이 쌓아 하부에서 유입되는 백그라운드 감마를 차폐하였고, 차폐 후 ⁴⁰K의 백그라운드 값은 370 ± 42 counts / 80,000 sec로 감소하였다. 이와 같이 납벽돌 차폐 만을 통해 액체질소 수위에 의한 최대 영향을 80 counts/80,000 sec 이내로 줄였으며, 일반적인 퇴적물 시료에서 오차의 변화를 1.7% 이내로 줄였다.

2.3.2 검출기 표면 결로

장마철 기간 동안 실험실 내의 높은 습도로 인하

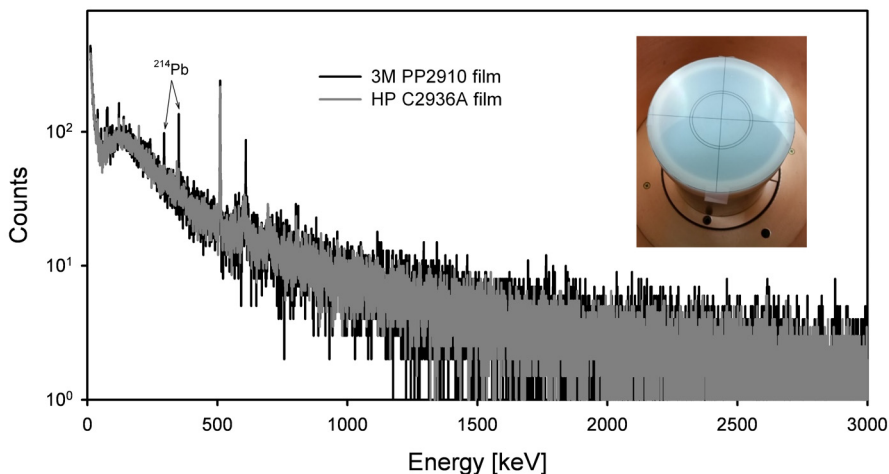


Fig. 4. Backgrounds of transparent polymer films for center point marking.

여 기존의 감마선 검출기는 표면 결로 현상이 매우 심각하여 전기 합선 등의 문제 때문에 여름 기간에는 사용이 불가능하였다. 이러한 문제점을 해결하기 위하여 그림 6과 같이 액체질소 통에서 발생하는 질소 가스를 차폐체 안 검출기 주변에 넣어주어 습기를 제거할 수 있도록 시스템을 개선하였다. 이러한 간단한 조치만으로도 검출기 표면에 결로되는 문제점을 완전히 제거하였으며, 공기 중의 라돈에 의하여 생성되는 백그라운드도 감소시킬 수 있었다.

2.4 ^{210}Pb 를 이용한 퇴적물의 연대 측정

BEGe 검출기를 이용하여 대청호에서 채집된 퇴적물 시료의 ^{210}Pb 를 측정하였다(그림 7). 시료는 $\phi 100 \times 1,000$ mm 아크릴 시료채취기를 사용하였으며, 3 ~ 33 cm 구간을 3 cm 간격으로 나누어 측정하였다. 표 2에 측정된 ^{210}Pb 의 방사능 값과 CRS (Constant Rate of Supply) 모델로 계산된 연대 및 퇴적률을 표시하였으며, 그림 8에 도표로 퇴적률을 도시하였다. 도표에서는 1977 ~ 1983년 구간에 최대 퇴적률

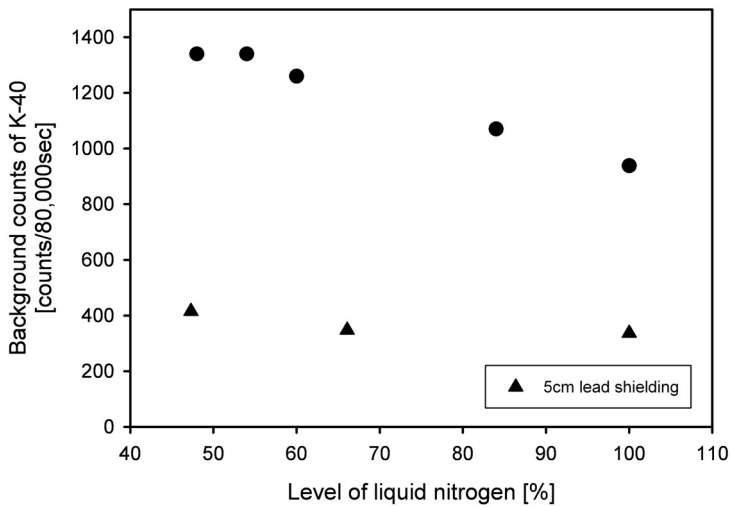


Fig. 5. Background of ^{40}K versus LN_2 level.

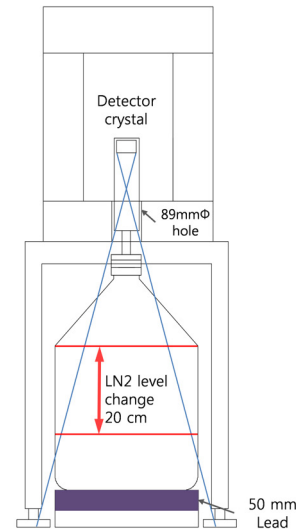
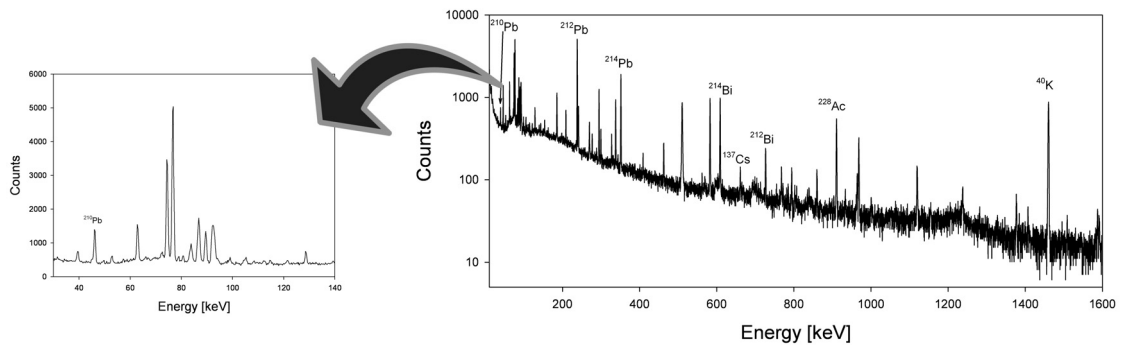
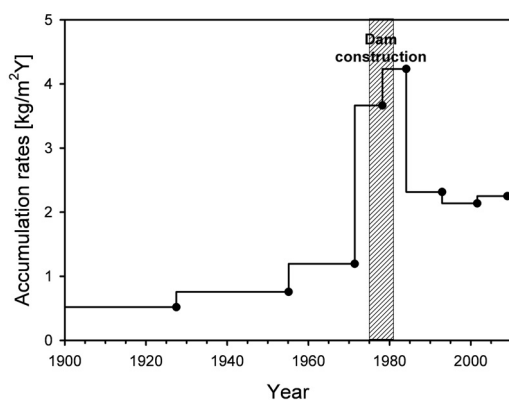


Fig. 6. N_2 gas purging by liquid nitrogen to eliminate moisture.

Table 2. Data of ^{210}Pb activity, age dating and accumulatiuon rates.

Depth [cm]	Weight [g]	Total ^{210}Pb [Bq/kg]	Excess ^{210}Pb [Bq/kg]	Mass flux [kg/m^2]	Inventory Excess ^{210}Pb [Bq/m^2]	Age [year]	Date	Accumulation rates [$\text{kg}/\text{m}^2/\text{y}$]
3-6	12.5	227±34	156	17	2602	0	2008	2.3
6-9	13.9	199±30	128	19	2374	7	2000	2.1
9-12	15.3	161±23	90	20	1838	16	1991	2.3
12-15	18.7	110±16	39	25	975	25	1983	4.2
15-18	18.7	108±16	37	25	925	31	1977	3.7
18-21	14.6	151±22	80	19	1559	38	1968	1.2
21-24	15.7	136±20	65	21	1363	54	1948	0.76
24-27	20.9	100±15	29	28	811	82	1908	0.52
27-30	22.6	77±11	6	30	187	135	1874	
30-33	23	71±11	0	31	0			

**Fig. 7.** Gamma-ray spectrum of the Daecheon-lake sediment.**Fig. 8.** Accumulation rates of Daechong-lake measured by ^{210}Pb age dating.

을 보이는데, 대청댐의 1975~1981년 건설 시기와 잘 일치하였다. 또한 퇴적물이 댐 건설 이전과 이후 약 2배의 차이가 남을 알 수 있었다.

3. 결과 및 토의

이번 연구 결과, BEGe 검출기와 SEGe 검출기 모두 검출효율 및 백그라운드에 있어서 OSL용 연간신량 측정에 매우 효율적임을 확인하였다. 특히 BEGe 검출기를 사용하여 ^{210}Pb (46.5 keV)의 검출한계를 24 Bq에서 0.75 Bq로 낮출 수 있어서 기존의 SEGe 검출기로는 검출이 불가능하였던 ^{210}Pb 의 분석이 가능하였다. BEGe 검출기에 사용된 차폐체도 ^{210}Pb 의 백그라운드가 낮아 ^{210}Pb 분석에 최적의 시스템임을 확인할 수 있었다. 대청호에서 채집된 퇴적물 시료를 대상으로 ^{210}Pb 측정을 시범적으로 수행하여 퇴적 연대를 얻을 수 있었으며, 퇴적 연대로 계산된 퇴적률과 대청댐의 건설 시기를 통하여 ^{210}Pb 연대측정법의 정확성을 검증하였다.

기존 SEGe 검출기의 경우 백그라운드의 흔들림 문제를 근본적으로 해결함으로써 1.7% 오차 이내로 OSL

용 연간선량 측정이 가능하였으며, 결로현상에 의한 여름철 사용이 불가한 문제를 해결함으로써 BEGe 검출기와 함께 OSL 시료 분석의 효율 극대화가 가능하였다. 하지만 액체질소통 밑의 납차폐만으로는 구조적으로 백그라운드의 100% 차단이 어려우며 일부 백그라운드 피크가 잡히는 문제점이 남아있으므로, 추후 검출시스템의 구조를 변경하여 이러한 문제점을 해결할 필요가 있다.

감사의 글

이 연구는 한국지질자원연구원 R&D 과제인 “국토 대단층계(양산단층 중부지역) 위험요소 평가연구(NP2018-017)”에 의해 수행되었습니다. 유익한 심사를 해주신 윤윤열 박사님과 익명의 심사위원님께 깊은 감사를 드립니다.

REFERENCES

Appleby, P.G., Nolan, P.J., Gifford, D.W., Godfrey, M.J.,

Oldfield, F., Anderson, N.J. and Battarbee, R.W., 1986, ^{210}Pb dating by low background gamma counting. *Hydrobiologia*, 143, 21-27.

Bailey, R.M., Stokes, S. and Bray, H., 2003, Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS) for dose rate determination: some guidelines for sample preparation and analysis. *Ancient TL*, 21, 11-15.

Dulinski, M. and Dominik, J., 1992, Density corrections in gamma spectrometry of lake sediments. *Nuclear Geophysics*, 6, 237-242.

Joshi, S.R., 1987, Nondestructive determination of lead-210 and radium-226 in sediments by direct photon analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 116, 169-182.

Olley, J.M., Murray, A. and Roberts, R.G., 1996, The effect of disequilibrium in the uranium and thorium decay chains on burial dose rates in fluvial sediments. *Quaternary Science Reviews*, 15, 751-760.

Received : April 5, 2018

Revised : August 24, 2019

Accepted : August 26, 2019