

원거리 대기핵종 감시시스템의 최적시료붕괴시간 설정에 관한 연구

최중서, 이원근

경희대학교

김중수, 윤석철, 신장수

한국원자력연구소

요 약

'96년 중반 포괄적 핵실험 금지조약(Comprehensive Test Ban Treaty:CTBT)의 체결이후 전세계적으로 핵실험 감시장치망을 구축하고 있는데, 이에 대응하여 한국원자력연구소에서는 국제기술사양에 만족하는 원거리 대기핵종 감시 시스템을 개발하였다. 본 시스템은 원거리에서 날라온 공기중 부유입자를 포집하여, 핵실험시 누출될 수 있는 방사성 핵종의 농도를 측정하는 장치이다. 그 운용을 위해서는 포집 및 분석능력의 척도라고 할 수 있는 시스템의 최소검출 방사능농도(minimum detectable concentration:MDC)의 결정이 필요하다. 따라서 본 연구에서는 최적화된 시료붕괴시간(decay time)에서의 MDC값을 결정하기 위하여 sampling time을 48시간, counting time을 6시간으로 하고, 6가지의 다른 decay time에 따라 실험을 수행하였다. 국제기술사양에서 요구하는 13개 핵종에 대해 decay time에 따른 각각의 MDC값을 구하였으며, 국제기술사양 권고치와 비교하였다. 비교 결과 decay time이 12시간일 때 가장 국제기술사양 권고치를 만족한다는 것을 확인하였다.

1. 서론

포괄적 핵실험 금지조약의 체결이후 전세계적으로 핵실험 감시장치망을 구축하고 있는데, 이는 비밀리에 핵실험이 수행되었을 때 역추적기술을 이용하여 핵실험 장소를 파악하려는 것이다[1]. 상기의 핵실험 감시망은 수증음향분석, 초저음파분석, 지진파분석, 대기핵종분석 등의 방법에 의해서 핵실험 수행여부에 대한 일차적인 정보를 수집하게 된다. 원거리 대기핵종 감시 시스템은 공기중을 부유하는 핵실험 관련 인공핵종의 존재 및 농도를 파악하는 장치로서, 핵실험 여부에 대한 일차적인 정보를 독자적으로 획득하는 역할을 한다.

시스템을 운용하는데 필요한 국제기술사양에 따르면, flow rate는 500m³/hr이상, 시료채취 필터의 0.1~0.5 μ m크기 입자에 대한 포집율은 80%이상, 포집 및 분석에 소요되는 최소시간은 24시간, 포집 및 분석에 소요되는 최대시간은 72시간, 검출감도(detection sensitivity)는 1~60 μ Bq/m³을

요구하고 있다[2][3][4]. 이러한 사양들을 기준으로 최근에 한국원자력연구소에서는 핵활동 감시를 위한 원거리 대기핵종감시 시스템을 개발하였다[4]. 본 원거리 대기핵종 감시 시스템의 운용을 위해서는 포집 및 분석능력의 척도라고 할 수 있는 시스템의 MDC 결정이 요구된다. 원거리 대기핵종 감시 시스템의 MDC는 흡입율(flow rate), 포집시간(sampling time), 시료 붕괴시간(decay time) 및 계측시간(counting time)에 따라 변하며, 이 값들을 적절히 조절함으로써 최적화된 운용이 가능하다.

본 연구에서는 최적화된 decay time에 따른 MDC값을 결정하기 위하여 sampling time을 48시간, counting time을 6시간으로 하고, 6가지의 다른 decay time에 따라 실험을 수행하였다.

2. MDC 결정이론

대기중 부유물질에 어떤 방사성핵종이 존재하는가를 분석하기 위해서 air sampling을 하면, 필터내에는 핵실험시 누출될 수 있는 핵분열 생성물(fission product)외에 자연부유핵종 (natural airborne radioactivity:NAR)이 함께 포집된다. 이들 자연부유핵종에는 지각에서 생성되는 라돈계열 및 토론계열과 우주선이 지구대기에서 반응하여 생성되는 ^7Be 이 있다. 라돈계열(팔호안은 핵종의 반감기)에서는 ^{218}Po (3min), ^{214}Pb (26.8min), ^{214}Bi (19.7min), 토론계열에서는 ^{212}Pb (10.6hr), ^{212}Bi (60.6min), ^{308}Tl (3min)이 주요 핵종이다. 이와같은 핵종들은 계열내에서 상대적으로 짧은 반감기로 인해, 계측시 Compton continuum에 의해 생성되는 스펙트럼의 baseline에 변동을 준다는 점에서 중요하다[5].

방사능 계측기의 최소검출한도(lower limit of detection:LLD)는 의미있는 방사능을 내는 가장 작은 카운트수로서 정의되는 방사능의 임계준위(critical level)에 의해 정해진다. 이는 미리 선택된 Type I error(시료내에 실제로는 방사능이 없으나 있다고 계측되는 오차), Type II error(방사능이 있으나 없는 것으로 계측되는 오차)와 같은 통계학적인 오차에 의해서 정해진다[6][7].

최소검출 방사능(minimum detectable activity:MDA)은 LLD계측수를 activity로 변환한 것으로, 다음식으로 표현된다[5].

$$MDA = \frac{LLD}{\frac{\epsilon \gamma k}{\lambda_{FP}} (1 - e^{-\lambda_{FP} \mu}) e^{-\lambda_{FP} \phi}} \quad (1)$$

여기서, ϵ 는 해당핵종의 감마 에너지에 대한 검출 효율, γ 는 해당핵종의 감마선 방출율, λ_{FP} 는 해당핵종의 붕괴상수, k 는 단위변환상수(3600 sec/hour), μ 는 counting time, ϕ 는 decay time이다. 그림 1에는 대기핵종 포집 및 계측관련 시간변수의 정의를 나타내었다.

식(1)로부터 해당핵종의 농도가 sampling time동안 일정하다고 가정하면, 아래와 같은 MDC식을 얻는다[5].

$$MDC = \frac{MDA}{\frac{\epsilon F}{\lambda_{FP}} (1 - e^{-\lambda_{FP} \tau}) e^{-\lambda_{FP} \phi}} \quad (2)$$

여기서, ξ 는 필터의 포집효율, F는 flow rate이다. φ, ρ 는 각각 dwell time, depart time이며, sampling time이 긴 경우 대기중 핵종의 농도가 공기포집을 하는 동안 일정하다고 볼 수 없을 때 사용하는 시간변수이다.

3. 시스템 구성 및 실험

본 실험에 사용된 장치는 한국원자력연구소에서 개발한 원거리 대기핵종 감시 시스템을 이용하였다. 사용한 감시 시스템의 구성도는 그림 2에 보는바와 같이 대기입자 포집장치, 여과지 압축기, 계측 및 결과 처리장치로 구성되어 있다.

대기입자 포집장치는 공기를 흡입하여 대기입자의 방사능을 필터에 포집하기 위한 장치이다. $0.1\mu\text{m}$ 크기의 입자에 대한 포집율이 95%인 glass fiber filter를 사용하였고, 면적은 $57.5\text{cm} \times 57.5\text{cm}$ 이다. Blower motor의 공기 흡입율은 $200\text{m}^3/\text{hr}$ 에서 $1400\text{m}^3/\text{hr}$ 까지 흡입할 수 있으며, $1000\text{m}^3/\text{hr}$ 로 설정하여 사용하였다. 흡입율은 입자포집시의 습도등에 영향을 받았으며, 부착된 flow meter를 이용하여 매시간별 흡입율의 변동을 측정하여 이 값들의 평균값($913\text{m}^3/\text{hr}$)을 취하여 계산하였다. 공기포집은 48시간동안 하였다.

여과지 압축기는 HPGe 반도체검출기의 납차폐체 입구크기를 고려하여, 필터를 일정크기로 압축하기 위한 장치이다. 포집이 끝난 필터는 표면의 오염방지를 위해서 wax paper로 싸운뒤, 약 9000psi ($612\text{kg}/\text{cm}^2$)로 압축하여 지름 6.4cm, 높이 1.4cm의 원판형으로 만들었다.

계측 및 결과처리 장치에서 사용한 HPGe 반도체검출기(EG&G ORTEC사)의 1.33MeV (^{60}Co 감마선원)에서의 상대효율은 27%이다. HPGe 반도체검출기의 교정을 위하여 9개 핵종이 포함된 표준감마 선원을 이용하였으며, 에너지에 대한 채널, 반치폭(full width at half maximum:FWHM) 및 효율곡선을 얻었다. Counting time은 6시간으로 하였으며, decay time은 6, 12, 30, 48, 62, 86시간으로 설정하여 각각의 스펙트럼을 측정하였다. 스펙트럼 분석 소프트웨어는 MAESTRO II(EG&G ORTEC사)로서, 스펙트럼의 저장, 출력, 피크찾기, 피크의 gross 및 net counts와 핵종분석등을 할 수 있으며 이 프로그램을 이용하여 스펙트럼의 baseline counts를 구하였다.

4. 결과 및 고찰

표 1에는 decay time에 따른 핵종별 MDC값을 나타내었다. 어떠한 핵종의 MDC값도 시스템의 사양에 따라 크기에는 차이가 있지만, decay time에 따른 일반적인 특성을 보인다. 즉, 반감기가 긴 핵종의 MDC는 decay time이 증가함에 따라 점차 줄어든다. 또한 반감기가 짧은 핵종의 MDC는 초기에 감소하다가 decay time이 반감기보다 커지면서 점차 증가한다[8]. Decay time에 따른 핵종별 MDC값의 추이를 나타낸 그림 3의 결과를 보면, MDC값의 decay time에 따른 추이는 핵종의 반감기와 관련되어 변화함을 알 수 있다. ^{90}Zr 의 경우 반감기(17hr)가 비교적 짧으므로, 12시간 붕괴시켰을 때 MDC값이 가장 작고 이후엔 점차 커짐을 볼 수 있다. 반면 ^{137}Cs (30yr)이나 ^{134}Cs (2.1yr)같은 핵종은 반감기가 매우 길므로 6시간의 decay time 이후에도 계속적으로 감소함

을 볼 수 있다. 이런 추이를 볼 때 CTBT에 따른 국제기술사양(포집 및 분석소요 72시간이내)을 만족 시키기 위한 decay time의 최적화가 가능하다. 즉, 각 핵종들은 반감기를 기준으로 decay time에 따라 MDC값이 변하므로, 이 값들이 국제기술사양을 만족하는 가장 적절한 decay time을 얻을 수 있다. 표 1의 결과를 보면 decay time을 12시간으로 할 때 가장 국제기술사양 권고치를 만족한다는 것을 알 수 있었다. ^{133}I 의 경우 기준치보다 다소 낮았는데, 이는 향후 다른 시간변수들에 대한 특성실험을 통하여 권고치를 만족시킬 수 있을 것으로 사료된다.

식(3)에서 유추할 수 있듯이 decay time에 따라 MDC의 변동에 크게 영향을 주는 인자는 LLD와 $e^{-\lambda_{FP}\theta}$ 값으로, $MDC \propto \frac{LLD}{e^{-\lambda_{FP}\theta}}$ 의 관계가 있다. decay time에 따른 LLD의 전체적 추이를 보면 처음엔 급감하다가 천천히 감소하는데, 이는 토론계열의 점차적인 영향력 약화에 따라 일정한 값(detector/blank background 및 ^7Be 의 영향이 지배적임)으로 수렴되기 때문이다. $e^{-\lambda_{FP}\theta}$ 는 핵종의 반감기와 관련되는 값으로, 반감기가 클수록 핵종의 붕괴상수는 작아지고 반면에 $e^{-\lambda_{FP}\theta}$ 는 커진다. 따라서 반감기가 아주 긴 핵종은 거의 일정하다. ^{97}Zr 의 경우 decay time에 따라 $e^{-\lambda_{FP}\theta}$ 이 급격하게 감소하나, 이에 비해 LLD는 천천히 감소하므로 decay time이 커짐에 따라 MDC는 점차 커진다. 반면에 ^{137}Cs 은 반감기가 길어 $e^{-\lambda_{FP}\theta}$ 는 거의 일정하나, LLD는 계속 천천히 감소하므로 MDC는 점차 감소하는 곡선을 보인다.

5. 결론

Decay time에 따른 핵종들의 MDC특성 실험을 통하여 가장 적절한 decay time을 얻을 수 있었다. ^{133}I 을 제외한 다른 핵종들은 12시간의 decay time에서 얻은 MDC값들이 국제기술사양 권고치를 가장 잘 만족하였음을 확인하였다. 각 핵종들을 권고치에 만족시킴과 동시에 포집 및 분석에 소요되는 시간을 최소화 하기위해 decay time외에 sampling time, counting time에 대해서도 최적화를 고려할 필요가 있다. 따라서, 향후에는 이 두가지 인자에 따른 MDC값의 특성 실험을 수행할 예정이다.

참고문헌

1. L. Roger Mason, Network Design Analyses of a Radionuclide Monitoring System for the Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty, PSR Report 2584, 1995
2. Conference on Disarmament, Design of the CTBT Radionuclide Monitoring System, CD/NTB/WP.155 12 August, 1994
3. Conference on Disarmament, Verification-International Monitoring System, CD/NTB/WP. 224 16 March, 1995
4. 김종수, 윤석철, 함영수, 윤여창, 홍종숙, 핵활동 감시를 위한 대기입자 방사능 측정시스템 개

발, 한국원자력학회 '96 춘계학술발표회 논문집, 1996

5. William C. Evans, Model for Assessment of Surveillance Strategies, PSR Technical Note 1079, 1995
6. Lloyd A. Currie, Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination, Analytical Chemistry, Vol.40, No.3, 1968
7. Bernard Altshuler and Bernard Pasternack, Statistical Measures of the Lower Limit of Detection of a Radioactivity Counter, Health Physics Pergamon Press, vol.9, p.293-298, 1963
8. A. Leppänen, H. Toivonen, Detection of Man-made Gamma-emitting Radionuclides in the Presence of Radon Progeny Aerosols, Finnish Center for Radiation and Nuclear Safety, Helsinki, Finland, 1996

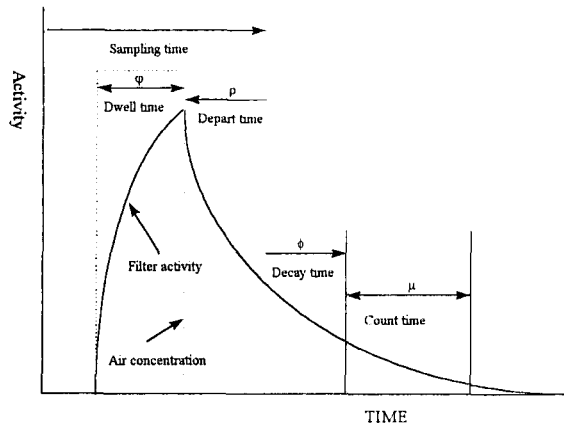


그림 1. 시간변수의 정의

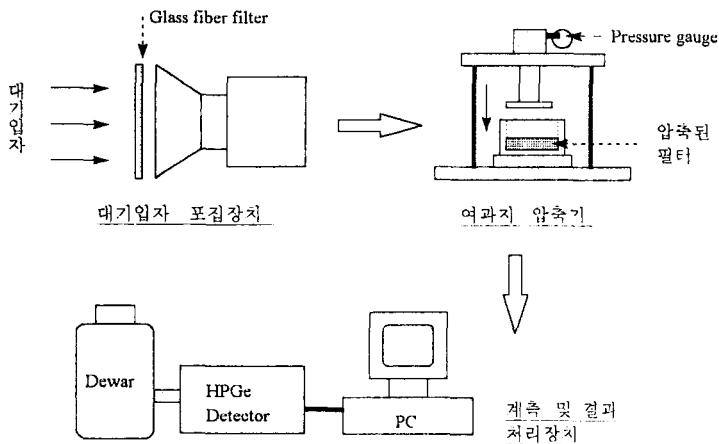


그림 2. 대기핵종 감시 시스템의 구성도

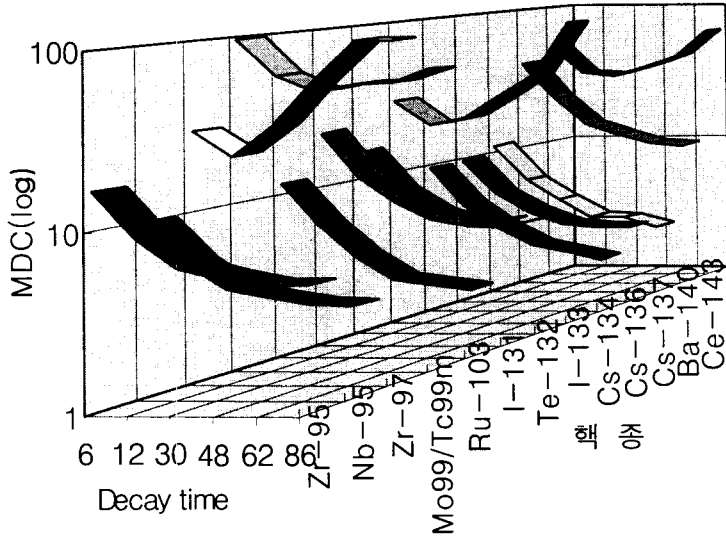


그림 3. Decay time에 따른 핵종별 MDC값의 추이

핵종	반감기	Decay time(hr)에 따른 MDC($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)						국제기술사양 권고치
		6	12	30	48	62	86	
Zr ⁹⁵	64d	16.44	9.30	6.36	5.56	5.10	5.10	3-10
Nb ⁹⁵	35d	9.95	5.74	4.12	3.72	3.41	3.36	5-15
Zr ⁹⁷	17h	29.33	29.00	31.44	57.09	94.22	232.63	20-60
Mo ⁹⁹ /Tc ^{99m}	2.75d	96.54	58.66	47.28	51.90	53.22	63.83	20-60
Ru ¹⁰⁶	39d	11.67	6.40	4.05	3.01	2.79	2.58	3-10
I ¹³¹	8d	21.72	11.45	8.01	6.15	5.62	5.99	>5
Te ¹³²	3.3d	14.77	8.10	6.02	4.97	4.82	5.50	5-15
I ¹³⁵	20h	30.02	20.33	23.10	31.95	44.79	98.91	>30
Cs ¹³⁴	2.1yr	9.40	5.29	3.63	2.80	2.52	2.24	3-10
Cs ¹³⁶	13.2d	9.59	5.57	4.15	3.47	3.25	3.30	3-10
Cs ¹³⁷	30yr	10.97	6.22	4.54	3.36	3.35	2.88	3-10
Ba ¹⁴⁰	12.8d	40.40	22.46	14.45	12.01	10.40	10.10	10-30
Ce ¹⁴³	1.4d	51.46	32.14	30.88	35.75	43.32	66.60	15-50

표 1. Decay time에 따른 핵종별 MDC값