

# 방사성제논 탐지를 위한 베타-감마 동시 계측시스템의 측정시간 최적화

변종인, 박홍모, 최희열, 송명한, 윤주용  
한국원자력안전기술원

2015년 5월 19일 접수 / 2015년 6월 25일 1차 수정 / 2015년 7월 15일 2차 수정 / 2015년 8월 15일 3차 수정 / 2015년 9월 8일 채택

방사성 제논 탐지는 공기 중  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$  및  $^{135}\text{Xe}$ 를 저준위 백그라운드 계측 시스템으로 검출하여 지하 핵 실험 여부를 규명하는 핵심기술 중 하나이다. 방사성 제논 감시는 공기 포집, 제논 추출, 측정 및 분석을 통해 수행되며,  $^{135}\text{Xe}$ 의 최소검출가능농도는 비교적 짧은 반감기로 인해 포집, 추출 및 측정시간에 따라 큰 차이를 보이게 된다. 본 연구에서는 방사성 제논 계측 시스템의 정해진 시료 포집 및 전처리 조건에서 최적의 방사성 제논 측정시간을 도출하기 위해 이론적 접근 및 SAUNA 시스템을 이용한 실험을 통해 최소의 MDC를 보이는 측정시간을 결정하고 이론적 계산과 실험결과에 대하여 비교·평가하였다.

중심어 : 방사성 제논, 최소검출가능농도, 베타-감마 동시 계측 시스템

## 1. 서론

제논은 불활성 기체로서 지하 핵실험 시 입자성 핵종과는 달리 환경으로 누출될 확률이 높으며, 우라늄 또는 플루토늄 핵분열 시, 20개 이상의 제논 동위원소가 방출된다. 그중 핵무기 실험 감시를 위한 관심 제논 동위원소는  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$ , 및  $^{135}\text{Xe}$ 로서, 비교적 긴 반감기와 탐지할 수 있을 정도의 충분한 농도가 생성되므로 원거리에서도 탐지가 가능할 수 있다. 현재 핵실험 감시를 위해 SAUNA (Swedish Automatic Unit for Noble Gas Acquisition, Sweden), ARSA (Automated Radioxenon Sampler/Analyzer, USA), ARIX (Analyzer of Xenon Radioisotopes, Russia) 및 SPALAX (Système de Prélèvement Automatique en Ligne avec l'Analyse du Xénon atmosphérique, France)와 같은 방사성 제논 탐지 시스템이 널리 활용되고 있으며, CTBTO (Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization)의 권고 기준인  $^{135}\text{Xe}$ 에 대하여  $1 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ 의 최소검출가능농도 (minimum detectable concentration; MDC)를 만족하고 있다 [1-4]. 방사성 제논은 원자력발전소, 원자력병원 및 사용 후 핵연료 재처리 시설 등에서도 생성될 수 있으나, 핵실험 시 발생하는 것과는 제논 동위원소비의 특성에 의해 생성 원이 구분될 수 있다. 그러므로 더욱 명확한 핵실험 감증을 위해서는  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$ , 및  $^{135}\text{Xe}$ 의 검출이 요구된다. 검출확률은 MDC

로 평가될 수 있으며, 시료 포집량, 추출 및 순수분리 시간, 검출효율 및 백그라운드 계수(background count)와 같은 시스템 특성에 따라 다를 수 있으며, 정해진 시스템 조건에서는 핵종 고유의 반감기 특성으로 인해 측정시간에 따라 MDC가 변할 수 있으므로 최소 MDC를 얻기 위해서는 적합한 측정시간이 결정되어야 한다.

본 연구는 방사성 제논 탐지 시스템의 효율적인 운용과 검출 확률을 높이는 방법으로서 최적의 측정시간 결정을 위해 수행되었으며, 본 논문에서는 이론적 접근과 SAUNA 시스템을 이용한 실험을 통해 측정시간에 따른 MDC 변화와 최적의 측정시간에 대하여 논의하였다.

## 2. 이론적 접근

방사성 제논 탐지를 위한 핵종별 최적의 측정시간은 최소 MDC를 보이는 시간으로 결정될 수 있다. Currie는  $k_a$ 와  $k_b$ 가 각각 제1종과오( $\alpha$ )와 제2종과오( $\beta$ )를 범하지 않을 확률에 부합하는 표준정규분포의 “Z-score”를 나타낼 때, 임계준위 (critical level,  $L_C$ ) 및 검출한계 (detection limit,  $L_D$ )을 아래와 같이 정의하였다 [5].

$$L_C = k_a \sigma_0, \tag{1}$$

$$L_D = 2L_C + k^2 (if, k_a = k_\beta = k) \tag{2}$$

책임저자 : 변종인, komuzul@hotmail.com  
대전광역시 유성구 과학로 62 한국원자력안전기술원 방사능분석센터

이때,  $\sigma_0$ 는 백그라운드 계수의 표준편차이다. 여기에서 베타-감마 동시 계측시스템의 검출기 효율, 붕괴에 따른 감마선 및 베타선 방출률, 측정시간, 분석대상시료의 질량 및 보정인자를 고려하고 제1종과오 및 제2종과오를 동일하게 5%로 가정할 경우,  $k = 1.645$ 가 되며, 이때의 MDC는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$MDC = \frac{L_D}{\epsilon_\beta \epsilon_\gamma I_\beta I_\gamma C_1 C_2 C_3} = \frac{2.71 + 3.29 \sigma_0}{\epsilon_\beta \epsilon_\gamma I_\beta I_\gamma C_1 C_2 C_3} \frac{t_e \lambda^2}{(1 - e^{-\lambda t_e}) e^{-\lambda t_c} (1 - e^{-\lambda t_p})} \quad (3)$$

이때,  $\epsilon_\beta$ : 베타선 검출 효율,  $\epsilon_\gamma$ : 감마선 검출 효율,  $I_\beta$ : 베타선 방출률,  $I_\gamma$ : 감마선 방출률,  $V$ : 시료량,  $t_a$ : 측정시간,  $t_c$ : 시료 채집 시간,  $t_p$ : 추출 및 순수분리 시간,  $C_1$ : 포집시간에 대한 붕괴보정 인자,  $C_2$ : 제논 전처리 시간에 대한 붕괴보정 인자,  $C_3$ : 측정시간에 대한 붕괴보정 인자.

식 (3)에서  $\sigma_0$ 는 관심 에너지 영역의 검출기 백그라운드 계수율( $\dot{\mu}_D$ )과 잔류 라돈 자핵종, 시료 내의 라돈 자핵종 및 방사성 제논 동위원소에 의한 백그라운드의 계수율( $\dot{\mu}_I$ )을 고려하고 측정시간이 경과함에 따른 백그라운드 계수율( $\dot{\mu}_B$ )이 일정하다고 가정하면 아래와 같이 나타낼 수 있다 [6].

$$\sigma_0 = \sqrt{t_a(2\dot{\mu}_D + \dot{\mu}_I)} = \sqrt{t_a \dot{\mu}_B} \quad (4)$$

또한, 식 (3)의 MDC 산출식에서 계측시간에 따른 MDC만을 고려하고 식 (4)를 적용하면 아래와 같은 비례관계가 성립된다.

$$MDC \propto \frac{(2.71 + 3.29 \sqrt{t_a \dot{\mu}_B}) \lambda}{1 - e^{-\lambda t_a}} \quad (5)$$

최소 MDC를 보이는 계측시간은 핵종의 에너지별로 상대적인 MDC에 의해 결정될 수 있으므로 일정한 백그라운드 변화를 고려한다면 식 (5)에서  $\dot{\mu}_B$ 는 무시될 수 있다. Fig. 1은 식 (5)를 이용하여 계산된 측정시간에 따른 방사성 제논의 MDC 변화율을 보여주며,  $\dot{\mu}_B$ 를 1로 가정하였을 때의 1시간 측정시간에 대한 상대 값을 나타낸다. 이때 계산에 사용된 각 방사성 제논의 반감기는  $^{131m}\text{Xe}$ : 11.84일,  $^{133}\text{Xe}$ : 5.243일,  $^{133m}\text{Xe}$ : 2.19일 및  $^{135}\text{Xe}$ : 9.14시간이다 [7]. 1시간 단위로 누적되는 측정시간에 대하여  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$  및  $^{135}\text{Xe}$ 의 최소 MDC는 각각 21.5일, 9.5일, 4.0일 및 17시간으로서 반감기의 약 1.8배의 측정시간에서 결정되었다. 이처럼 MDC가 최소치를 갖는 측정 시점을 기준으로 증감되는 현상은 식 (5)의 비례관계에 따라 계측시간이 지나면서 백그라운드 계수가 증가하고 Xe 동위원소의 붕괴상수에 따라 방사능이 지수함수형으로 감소하기 때문이다. 그러므로  $^{135}\text{Xe}$  동위원소의 MDC 변화는 다른 제논 동위원소에 비해 반감기가 매우 짧으므로 짧은 계측시간 내에서도 비교적 큰 변화율을 보인다.

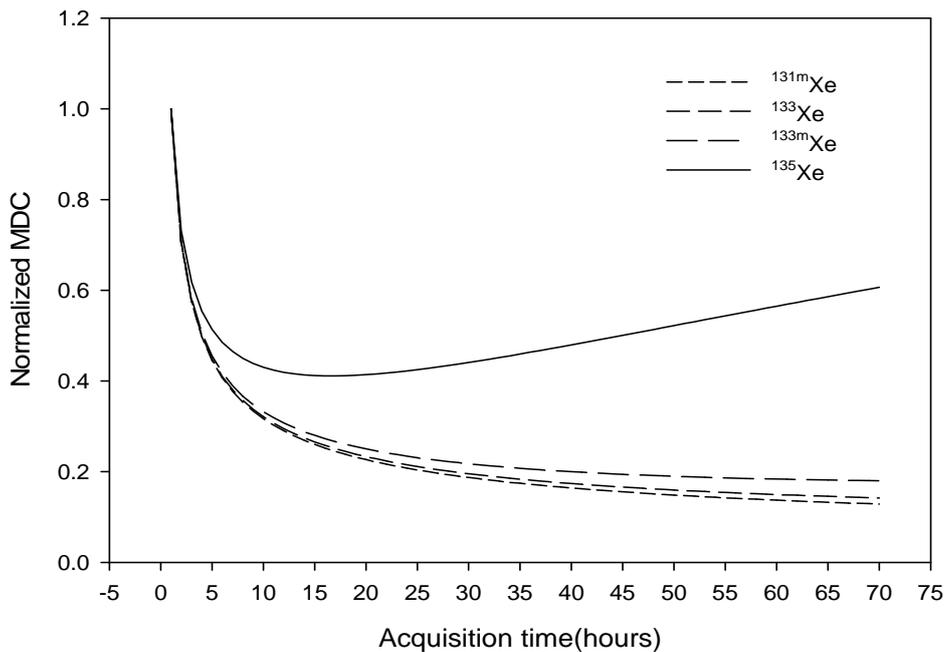


Fig. 1.  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$  MDCs normalized by 1 hour MDC at each acquisition time.

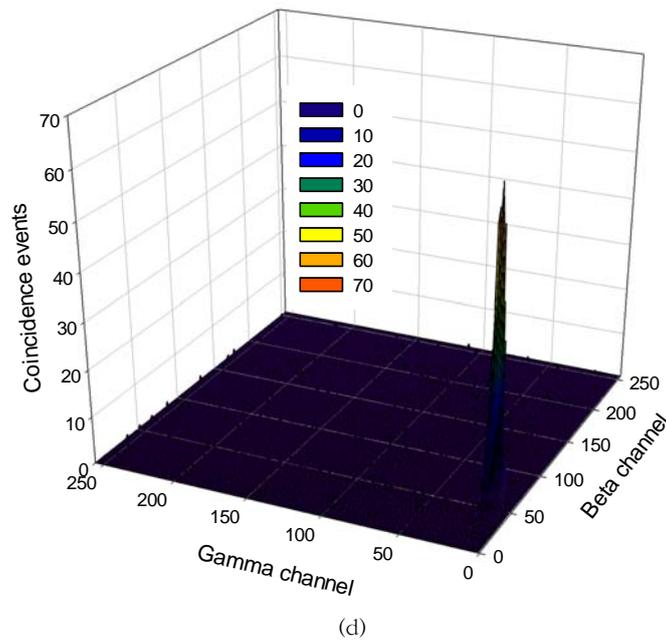
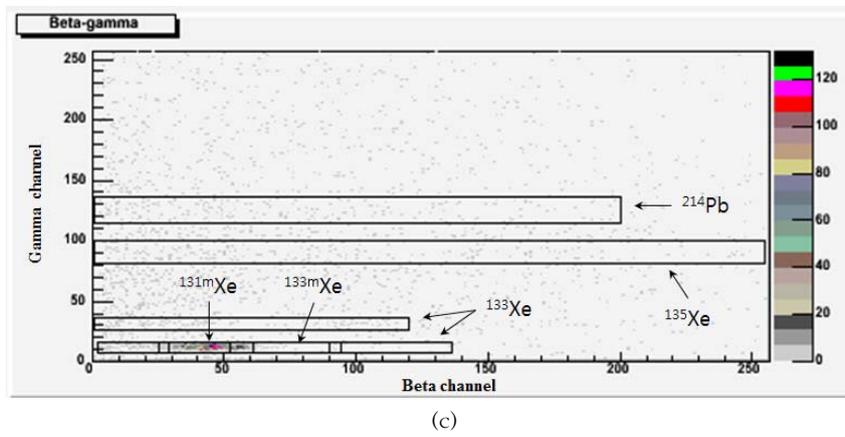
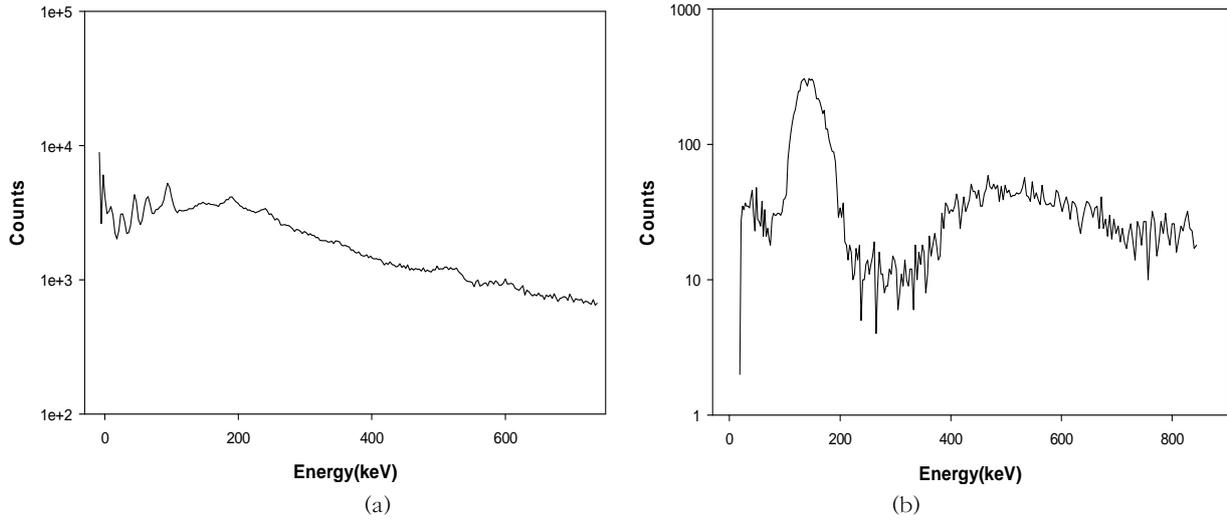


Fig. 2. Gamma-ray energy spectrum(a), beta energy spectrum(b), 2D beta-gamma spectrum(c), and 3D beta-gamma spectrum(d).

### 3. 실험 및 방법

제2장의 이론적 접근을 통해 결정된 제논 동위원소의 반감기에 따른 최소 MDC를 실험적으로 확인하기 위해 SAUNA 시스템을 이용하여 베타-감마 동시 계측시스템의 측정시간에 따른 MDC를 산출하였다.

SAUNA (SCIENTA, Sweden)는 공기 시료 채집, 포집된 공기 시료 중 방사성 제논 추출, 제논 정량 및 방사능 계측을 무인자동으로 수행하는 시스템이다. 본 연구에서는 SAUNA 시스템의 시료채집 부분으로 구성된 이동형 포집 장치 (SAUNA mobile sampling unit)를 이용하여 한국원자력안전기술원에서 12시간 동안 공기시료를 포집한 후 SAUNA 시스템의 시료 추출 및 계측 시스템을 이용하여 시료 중 제논을 추출하고 계측하였다. 공기 포집량은 환경 중 제논의 안정동위원소가 0.087 cc · m<sup>3</sup> 존재하는 것을 이용하여 공기 포집량을 역으로 산출하였다. 이때, 제논 포집량은 SAUNA 시스템에 내장된 가스크로마토그래피(gas chromatography, GC)에 의해 결정되었다. 순수 분리된 제논은 감마선 측정을 위한 NaI(Tl) 검출기와 베타선 측정을 위한 약 6 ml 용량의 시료 체적을 갖는 원통형 플라스틱 검출기로 구성된 베타-감마 동시 측정 시스템을 이용하여 계측되었다. 베타-감마 동시 측정 스펙트럼은 매 2시간씩 누적되어 저장되었으며 총 25만 초 동안 수집되었다. 수집된 스펙트럼은 2D beta-gamma 분석 소프트웨어인 XECON에 의해 분석되었다[Ringbom A, "XECON: a tool for analysis of radioxenon data (<http://sourceforge.net/projects/xecon/>)," FOI (Swedish Defense Research Agency)].

### 4. 결과 및 토의

Fig. 2는 NaI(Tl) 검출기에 의한 감마선에너지 스펙트럼과 플라스틱 섬광검출기에 의한 베타선 에너지 스펙트럼 및 베타선과 감마선이 동시 측정된 2D beta-gamma 스펙트럼을 보여주며, Fig. 2(a)에서 보이는 것과 같이 5개의 주요 영역으로 구분된다. MDC 산출과정에서는 검출기 백그라운드, 베타 검출기 내에 잔존할 수 있는 라돈 자핵종에 의한 백그라운드, 제논 순수 분리 과정에서 제거되지 않고 측정 시료에 포함된 라돈 자핵종인 <sup>214</sup>Pb (79, 242, 295, 352 keV), <sup>214</sup>Bi (79 keV)에 의한 백그라운드 및 제논 상호 간섭에 의한 백그라운드 기여분이 포함될 수 있다 [6].

Fig. 3은 측정 시간에 따른 MDC 변화를 보여주며, <sup>135</sup>Xe의 최소 MDC는 14시간에서 결정되었다. 이론적으로 계산된 MDC와는 3시간 차이를 보였으나, 14시간을 기준으로 5% 이내의 MDC 범위는 약 10시간~22시간으로 평가되었다. 실측값과 이론값의 차이는 이론적 접근에서는  $\mu$ 가 시간에 따라 일정한 것으로 가정한 반면 실측에서는 측정시간이 경과함에 따른  $\mu$  변화 - 1) 잔류 라돈 자핵종에 의한 백그라운드 계수율의 시간에 따른 감소, 2) 시료에 존재할 수 있는 라돈 자핵종에 의한 백그라운드 계수율의 시간에 따른 증가 및 3) 제논 동위원종적 요동으로 인해 발생할 수 있다. Fig. 2에서 볼 수 있듯이 2시간 측정결과에서, <sup>135</sup>Xe와 <sup>133</sup>Xe은 다른 제논 동위원소에 의해 간섭되지 않고 다만 <sup>214</sup>Pb에 의한 간섭을 받기 때문에 Fig. 3에서 보이는 것과 같이 MDC 요동이 상대적으로 작은 것을 볼 수 있다.

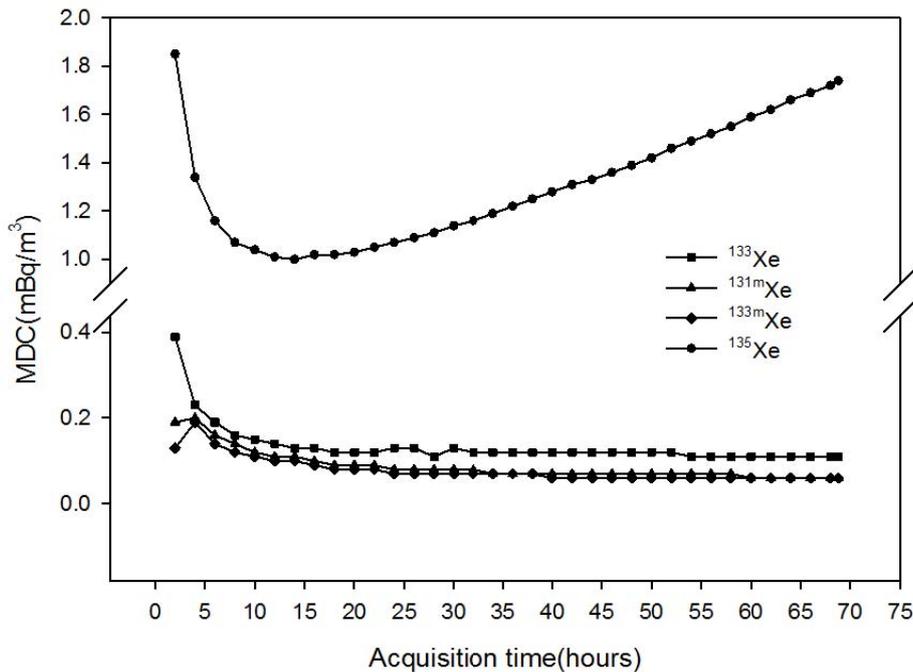


Fig. 3. MDCs for the different data acquisition time.

반면,  $^{131m}\text{Xe}$  및  $^{133m}\text{Xe}$ 은 검출기 백그라운드 및 라돈 자핵종 뿐만 아니라 다른 제논 동위원소에 의한 백그라운드 간섭으로 인해 측정시간이 짧은 시점에서는 이론적인 MDC 변화율과 다른 양상을 보이거나 측정시간이 지남에 따라 검출기 백그라운드가 충분히 반영됨으로써 MDC 변화가 이론적 계산과 유사한 경향을 보이는 것을 확인할 수 있다.

## 5. 결론

본 연구에서는 방사성 제논 탐지를 위한 최적의 측정시간은 최소 MDC를 갖는 시간으로 결정할 수 있으며, 이를 위해 이론적인 접근과 SAUNA 시스템을 이용한 계측을 통해 시간에 따른 MDC를 평가하였다. 그 결과  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$  및  $^{135}\text{Xe}$ 의 최소 MDC를 얻기 위한 측정시간은 이론적으로 각 핵종이 갖는 반감기의 약 1.8배로 평가되었으며, 실험결과는  $^{135}\text{Xe}$ 에 대하여 5%의 MDC 변화율 범위 내에서 이론적 계산 결과와 일치하였다. 본 연구에서 사용된 계측 시스템의 경우 최소 MDC를 얻기 위해서는 측정 시료마다 다를 수 있는 라돈 자핵종 및 방사성 제논 간섭에 의한 백그라운드 계수율의 요동을 고려하여 10~22시간에 해당하는 측정시간이 적합하지만,  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$ 의 경우 이론적 계산에 의해 약 1.8 배에 해당되는 시간이 4일 이상이므로 장비 운용의 효율성을 고려하여 관심 핵종의 검출 여부에 따라 최적화 실험을 통해 적절한 측정시간을 조절해야 할 것이다. 본 연구결과는 방사성 제논 탐지 시스템의 효율적인 운용 및 감시 결과의 신뢰성 향상을 위해 활용될 수 있을 것이다.

## 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회가 시행한 원자력안전연구 사업의 “방사성핵종을 이용한 원거리 핵활동 탐지기 기술 개발(2014-2015)”의 일환으로 수행되었습니다.

## REFERENCES

1. Fausto M, Bernd W, Tuomas V. "Collection efficiency of particulate and xenon sampling in the international monitoring system of the comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty." *Appl Radiat Iosotopes* 2004;61: 219-224.
2. Ringbom A, Larson T, Axelsson A, Elmgren K, Johansson C. "SAUNA-a system for automatic sampling, processing, and analysis of radioactive xenon." *Nucl Instrum Meth A* 2003;508: 542-554.
3. Johansson C, "High-sensitivity radioactive xenon monitoring and high-accuracy neutron-proton scattering measurements." *Comprehensive Summaries of Uppsala Dissertations from the Faculty of Science and Technology* 984, 2004.
4. Schulze J, Auer M, Werzi R. "Low level radioactivity measurement in support of the CTBTO." *Appl Radiat Iosotopes*. 2000;53: 23-30.
5. Lloyd A, Currie. Limits for qualitative detection and quantitative determination: application to radiochemistry. *Anal Chem*. 1968;40: 586-593.
6. McIntyre JI, Bowyer TW, Reeder PL. Calculation of minimum detectable concentration levels of radionuclide isotopes using PNNL ARSA system. PNNL (Pacific Northwest National Laboratory)-13102, 2006.
7. Firestone R. Table of isotopes, 8th ed. New York; Wiley, 1996.

# Optimization of Acquisition Time of Beta-Gamma Coincidence Counting System for Radioxenon Measurement

Jong-In Byun, Hong-Mo Park, Hee-Yeoul Choi, Myeong-Han Song, and Ju-Yong Yun  
Korea Institute of Nuclear Safety

**Abstract** - Measurement of xenon radioisotopes from nuclear fission is a key element for monitoring underground nuclear weapon tests.  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$  in the air can be detected via low background systems such as a beta-gamma coincidence counting system. Radioxenon monitoring is performed through air sampling, xenon extraction, measurement and spectrum analysis. The minimum detectable concentration of  $^{135}\text{Xe}$  can be significantly variable depending on the sampling time, extraction time and data acquisition time due to its short half-life. In order to optimize the acquisition time with respect to certain experimental parameters such as sampling and xenon extraction, theoretical approach and experiment using SAUNA system were performed to determine the time to minimize the minimum detectable concentration, which the results were discussed.

**Keywords** : Radioxenon, Minimum detectable concentration, Beta-gamma coincidence counting system