

Factors Affecting the Minimum Detectable Activity of Radioactive Noble Gases

방사성 노블가스 측정을 위한 최소검출방사능 산출의 조절인자

Ji-young Park, Young Gun Ko, Hyuncheol Kim, Jong-Myoung Lim, and Wannoo Lee*

Korea Atomic Energy Research Institute, 989-111 Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon, Republic of Korea

박지영, 고영건, 김현철, 임종명, 이완로*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로989번길 111

(Received March 19, 2018 / Revised June 22, 2018 / Approved August 8, 2018)

Anthropogenic radioactive noble gases formed by nuclear fission are significant indicators used to monitor the nuclear activity of neighboring countries. In particular, radioactive xenon, owing to its abundant generation and short half-life, can be used to detect nuclear testing, and radioactive krypton has been used as a tracer to monitor the reprocessing of nuclear fuels. Released radioactive noble gases are in the atmosphere at infinitesimal amounts due to their dilution in the air and their short half-life decay. Therefore, to obtain reliable and significant data when performing measurement of noble gases in the atmosphere, the minimum detectable activity (MDA) for noble gases should be defined as low as possible. In this study, the MDA values for radioactive xenon and krypton were theoretically obtained based on the BfS-IAR system by collecting both noble gases simultaneously. In addition, various MDA methods, confidence level and analysis conditions were suggested to reduce and optimize MDA with an assessment of the factors affecting MDA. The current investigation indicated that maximizing the pretreatment efficiency and performance maintenance of the counter were the most important aspects for Xe. In the case of Kr, since sample activities are much higher than those of Xe, it is possible to change the target MDA or to simplification of the analysis system.

Keywords: ^{85}Kr , ^{133}Xe , Radioactive noble gas, Minimum detectable activity (MDA), Nuclear detection

*Corresponding Author.

Wannoo Lee, Korea Atomic Energy Research Institute, E-mail: peter@kaeri.re.kr, Tel: +82-42-868-2324

ORCID

Ji-young Park <http://orcid.org/0000-0001-9672-8685>

Hyuncheol Kim <http://orcid.org/0000-0002-1396-6563>

Wannoo Lee <http://orcid.org/0000-0002-0408-7006>

Young Gun Ko <http://orcid.org/0000-0002-1277-9555>

Jong-Myoung Lim <http://orcid.org/0000-0003-2434-699X>

핵분열로 인해 생성되는 방사성 노블가스는 주변국의 핵활동을 감시할 수 있는 중요한 지표 핵종이다. 특히 제논은 생성량이 많고 반감기가 짧아 핵실험 탐지에 적합하며 크립톤은 핵연료 재처리 탐지의 추적자로 활용되고 있다. 방출된 방사성 노블가스는 막대한 대기에 희석되어 농도가 감소하고 일부는 시간에 따라 방사능이 감쇠하기 때문에 대기 중에는 매우 극미량으로 존재하게 된다. 따라서 측정을 통해 의미 있는 데이터를 얻기 위해서는 가능한 낮은 수준의 MDA를 설정하는 것이 중요하다. 본 연구에서는 방사성 제논과 크립톤을 동시 포집할 수 있는 장비인 BFS-IAR시스템을 활용하여 이론을 통해 MDA를 산출하였다. 또한 MDA 산출방식의 변화, 신뢰수준의 정도는 물론 계측 조건의 변화에 따른 영향을 확인하고 MDA를 저감하기 위한 방안들을 모색하였다. 그 결과 배경농도가 극미량인 제논의 경우 전처리과정의 효율화와 안정적인 계측 성능 유지가 가장 중요한 요소로 판단되었으며, 크립톤의 경우 제논과 달리 시료의 방사능이 높기 때문에 MDA 재설정을 통한 분석조건이나 시스템 최적화를 통해 효율적인 분석을 수행할 수 있을 것으로 판단된다.

중심단어: 크립톤-85, 제논-133, 방사성 노블가스, 최소검출방사능, 핵탐지

1. 서론

핵 활동 시 대기 중으로 방출될 수 있는 방사성핵종은 크게 비활성 기체와 입자의 형태로 나눌 수 있다. 최근에는 핵 활동이 지하에서 소규모로 이루어지기 때문에 입자성 핵종은 외부에서 탐지가 불가능하며 대신 비활성의 노블가스만 일부 대기 중으로 유출될 수 있다. 우라늄 핵분열로 인해 발생하는 전체 생성 기체 중 비활성 기체는 10% 수준으로 그 중 대부분인 약 90%가 제논 동위원소이며 이외에도 크립톤이 함께 생성된다. 그 중 방사성 제논은 반감기가 짧아 대기 중에 축적되지 않으며 강수 등에 의해 씻겨나가지 않으므로 핵실험 감시에 적합한 핵종이다. 2000년대부터 International Noble Gas Experiment (INGE)의 주도로 방사성 제논 탐지기술이 개발되었으며 Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization (CTBTO)의 International Monitoring System (IMS)에서 그 기술을 도입하여 운영하고 있다[1-5].

사용 후 핵연료의 경우는 냉각기간 중 대부분의 제논이 붕괴, 소멸되기 때문에 연료 내에는 다량의 방사성 크립톤(⁸⁵Kr)이 남는다. 이 양은 전체 비활성 기체의 90% 수준이며 플루토늄 추출을 위해 핵연료를 절단, 용해하는 과정에서 외부로 방출된다. 따라서 대기 중의 방사성 크립톤은 핵연료 재처리 활동의 강력한 증거로서 유일한 원격 탐지 수단이다. 일부 원자력 및 동위원소 이용시설, 병원 등의 산업시설에서도 방사성 노블가스가 방출되므로 제논 탐지의 경우 이들에 의한 영향이 고려되어야 한다. 하지만 크립톤의 경우 재처리

시설에 의해서 방출되는 양에 비하면 매우 미미한 수준이기 때문에 크게 고려할 필요가 없다. 이렇게 발생된 노블가스 중 방사성 제논은 반감기가 매우 짧아[2] (¹³³Xe의 경우 5.3일) 빠르게 붕괴, 소멸되거나 일부 방출원 주변에서 매우 낮은 백그라운드를 만들지만 크립톤의 반감기는 10.7년[3]으로 비교적 길기 때문에 대기 중에 축적되어 일정한 백그라운드를 형성하게 된다. 따라서 방사성 노블가스 감시를 통해 국내외 핵 활동을 탐지하기 위해서는 대상 핵종의 지속적인 모니터링이 중요하며 이를 통해 백그라운드 농도 범위에 대한 정보를 축적하고 인위적인 핵 활동의 여부를 판단할 수 있다[6-9].

방사성 노블가스의 측정기술 중 제논의 경우는 가장 일찍 기술개발이 이루어졌으며 총 4개의 자동감시 장치가 있다. 러시아 Khlopin Radium Institute의 Automatic Radioanalyzer for Isotopic Xenon (ARIX), 미국 Pacific Northwest National Laboratory (PNNL)의 Automated Radioxenon Sampler-Analyzer (ARSA), 스웨덴 Forsvarets forskningsinstitut (FOI)의 Swedish Automatic Unit for Noble Gas Acquisition (SAUNA), 그리고 프랑스 Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA)의 Système de Prélèvement Automatique en Ligne avec l'Analyse du Xénon (SPALAX)로 IMS에서 2015년 기준, 전 세계 24개 지점에 설치하여 운영하고 있으며 그 중 SAUNA와 SPALAX는 상용화에 성공하였다[10-12].

이 외에도 독일 Bundesamt für Strahlenschutz (BfS)에서 개발한 Bundesamt für Strahlenschutz-Institute of Atmospheric Radioactivity (BFS-IAR) 분석법이 있다. 독일은 핵실험 보다는

주변국가의 원자력 이용 및 재처리시설 모니터링을 위해 약 30 여년간 자체적으로 제논과 크립톤을 분석해왔으며 이 기술은 우리나라는 물론 일본 및 오스트리아에서도 도입하여 활용하고 있다. BFS-IAR 장비는 다른 자동화 기기와 달리 기체 포집과 분석이 개별적으로 이루어지는 수동 분석 장비로 총 제논의 농도만 측정할 수 있다. 비록 주요 제논 동위원소(^{131m}Xe , ^{133}Xe , ^{133m}Xe , ^{135}Xe)를 구별할 수 없으나 서로 다른 반감기를 이용하여 ^{131m}Xe 과 ^{133}Xe 의 비를 추정할 수 있다. 일반적으로 의료시설 등에서 발생하는 제논은 ^{131m}Xe 이 대부분이기 때문에 제논 농도의 시간에 따른 변화량을 측정하면 ^{131m}Xe 과 ^{133}Xe 중 어느 핵종의 양이 많은지 추정할 수 있어 의료시설 등에 의한 영향을 배제할 수 있다[13]. 그럼에도 불구하고 이 분석법의 가장 큰 장점은 제논과 동시에 크립톤을 분석할 수 있는 유일한 장비라는 것이다. 현재까지 상용화에 성공한 ^{85}Kr 분석 장비가 없고 외부에 공개된 기술로는 이 방식이 유일하다. BFS-IAR 방식은 활성탄을 이용한 흡탈착을 통해 공기시료를 포집하며 가스 크로마토그래피와 극저준위 비례계수기를 이용한 분리와 분석 단계로 구성된다. 대기 중에는 매우 적은 양의 방사성 크립톤과 제논이 존재하기 때문에 다량의 공기 구성 성분 중에서 두 핵종만 농축하는 것이 중요하며 복잡한 분리 절차가 필요하다[14-16].

방사능 측정 시에는 항상 백그라운드 방사능이 존재하는데 그 영향은 시료의 방사능 결정에도 미친다. 특히 낮은 농도의 방사능 측정 시에는 백그라운드 요동으로부터 방사능 신호를 분리하는 것이 중요하며 이를 위해 가장 중요한 평가 인자는 Minimum detectable activity (MDA)이다. MDA는 계측기 성능, 시료 포집량, 백그라운드와 측정시간 등에 따라 달라지므로 각 파라미터들의 적합한 설정이 중요하다. 본 연구에서는 BFS-IAR 방식을 이용한 노블가스 측정에서 이론을 통한 MDA를 산출하고 각 인자들이 미치는 영향을 평가하였다. 그리고 이를 바탕으로 MDA를 저감하고 시스템을 최적화하는 방안에 대해 고찰하였다.

2. 대기 중 ^{85}Kr 및 ^{133}Xe 의 방사능 및 MDA

2.1 대기 중 ^{85}Kr 및 ^{133}Xe 의 방사능 계산

대기 중 방사성 노블가스의 MDA를 산출하기 위해 먼저 방사능 분석방법에 대해 이해할 필요가 있다. BFS 시스템에

서는 시료의 방사능을 측정하기 위해 기체 비례계수기를 사용하므로 측정치에 기기 효율을 고려하면 쉽게 방사능을 구할 수 있다. 그러나 시료 내 방사능 농도를 계산하기 위해서는 복잡한 전처리 과정에서 소실된 시료량에 대한 고려가 필요한데 일반적인 화학실험처럼 추적자 물질을 사용하여 이를 보정하는 방법을 적용하긴 어렵다. 따라서 공기 중에 일정하게 존재하는 안정 크립톤과 제논 원소의 체적비[17]를 상수로 가정하고 실험을 통해 얻은 시료 포집량을 이용하여 전처리 과정의 회수율을 추정할 수 있으며 이를 통하여 결과 값을 보정할 수 있다. 먼저 ^{85}Kr 의 방사능을 계산하는 방법은 아래의 식 (1)과 같다.

$$A_{Kr-85} = C \times \frac{R}{\epsilon \cdot V} \quad (1)$$

이 때 A_{Kr-85} 는 공기 중 ^{85}Kr 의 방사능 농도($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)이고, R은 비례계수기의 순계수율(cps), V는 비례계수기 내 수집된 크립톤 원소의 부피(cm^3), C는 공기 중 크립톤의 체적비($1.14 \text{ cm}^3 \cdot \text{m}^{-3}$), ϵ 은 계측기 효율이다. ^{85}Kr 의 경우 반감기가 10.7년으로 전체 분석과정에 비해 매우 길어 포집과 측정과정 중 일어나는 방사능 붕괴는 무시한다. 즉 포집과 측정과정 중 일어나는 방사능 붕괴가 무시할만한 수준이다. 반면 제논 동위원소의 경우 대부분 반감기가 매우 짧다. 대표적인 제논 동위원소인 ^{133}Xe 의 반감기는 5.3일에 불과하기 때문에 식 (2)와 같이 샘플포집과 전처리 그리고 측정에 걸리는 시간에 대한 보정이 필요하다

$$A_{Xe-133} = C \times \frac{R}{\epsilon \cdot V} \times f_1 \times f_2 \times f_3 \quad (2)$$

$$f_1 = \frac{\lambda (t_m - t_p)}{1 - e^{-\lambda (t_m - t_p)}}$$

$$f_2 = e^{\lambda (t_p - t_s)}$$

$$f_3 = \frac{\lambda (t_s - t_0)}{1 - e^{-\lambda (t_s - t_0)}}$$

여기서 A_{Xe-133} 은 공기 중 ^{133}Xe 의 방사능 농도($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$), R은 비례계수기 순계수율(cps), V는 비례계수기 내 수집된 제논 원소의 부피(cm^3), C는 공기 중 Xe의 체적비($0.087 \text{ cm}^3 \cdot \text{m}^{-3}$), ϵ 은 계측기 효율, f_1 은 계측과정 중 붕괴 보정, f_2 는 전처리과정 중 붕괴 보정, f_3 는 포집 과정의 붕괴 보정, t_0 는

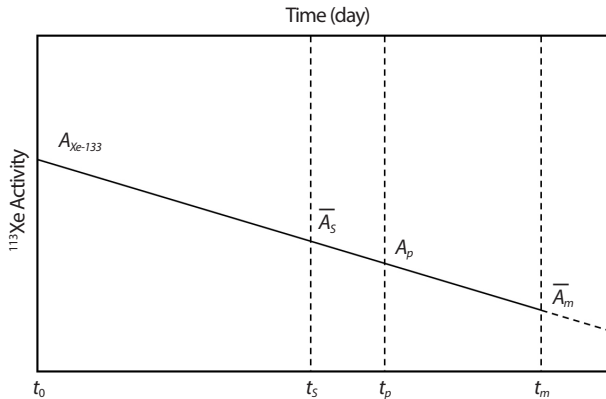


Fig. 1. Decay correction of ¹³³Xe activity for the determination procedure of radioactive xenon (Linear (x)-log (y) scale).

샘플링 시작 시간, t_s 는 샘플링 종료시간, t_p 는 전처리 종료시간, t_m 은 측정 종료시간이다. 단 이 경우 샘플링에서 전처리 및 측정 과정이 연속적으로 이루어진다고 가정하였으며 따라서 샘플링의 종료 및 전처리 시작시간이 같고, 전처리의 종료와 측정의 시작 시간이 동일하다.

전체 분석 과정에서 ¹³³Xe의 방사능 농도 변화를 Fig. 1에 나타내었다. A_{Xe-133} 는 샘플링 시작 시 최초 방사능이며, \bar{A}_s 는 전처리 시작 단계의 방사능, A_p 는 전처리 종료 시의 방사능, 그리고 측정 종료 시에는 방사능 \bar{A}_m 이 되므로 이를 보정하여 최종적으로 공기 중 ¹³³Xe의 농도를 결정하게 된다.

2.2 대기 중 노블가스 측정을 위한 MDA 산출

MDA를 계산하는 방법은 여러 가지가 있으며 유도된 검출 한계치(LLD)의 종류나 신뢰수준의 설정 등에 따라 그 값이 달라질 수 있다. 그러므로 MDA를 평가할 때 같은 방식의 MDA를 이용해야만 올바른 비교와 판단이 가능하다. 그 중 가장 대표적인 방법으로는 Currie에 의해 확립된 검출한계이다[18]. 이 방식은 가장 초기에 제시되어 확립된 방법으로 현재 대부분의 주요 방사능 분석 기관에서 활용되고 있다[19]. 통일된 MDA를 이용하는 것이 의사소통 및 데이터의 상호 비교 측면에서 유리하기 때문에 본 연구의 노블가스 MDA 산출에 Currie법을 적용하였다. 또한 연구에 사용된 Bfs 장비의 제조국인 독일의 표준 매뉴얼 Deutsches Institute fuer Nahrung (DIN) 방식 또한 함께 고려하여 비교하였다. Bfs는 독일에서 개발되어 30년 이상 운영되었는데 MDA는 독일 및 유럽표준인 DIN

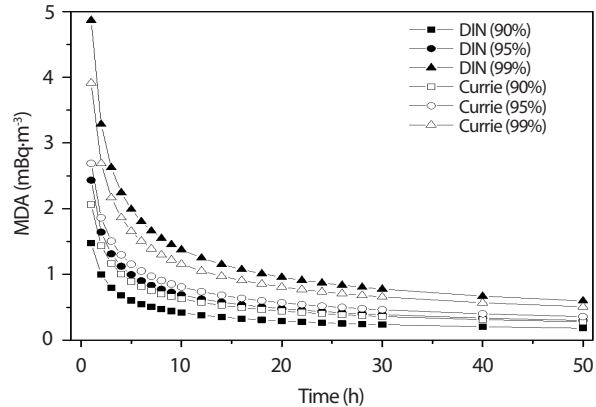


Fig. 2. MDA obtained from Currie and DIN equations at various confidence level.

방식 (DIN 25482)으로 산출하고 있다. 따라서 Bfs 시스템을 이용하여 국가간 교차분석이나 상호 데이터 검증 시에는 서로 다른 방법으로 MDA가 산출되었음을 이해할 필요가 있기 때문에 Currie 식과 함께 비교하였다.

$k_a = k_\beta = k$ 로 가정하면 Currie 식을 이용한 MDA는 식 (3)으로 독일의 DIN 방식을 이용한 MDA는 식 (4)와 같이 표현된다.

$$MDA_{Currie} = \frac{c}{\epsilon \cdot V} \left\{ \frac{k^2}{t_m} + 2k \left(\sqrt{R_b \times \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_b} \right)} \right) \right\} \quad (3)$$

$$MDA_{DIN} = \frac{c}{\epsilon \cdot V} \left\{ k^2 \sqrt{R_b \times \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_b} \right)} + \left(\frac{2k^2}{4} \times \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_b} \right) \right) \right\} \quad (4)$$

여기서 R_b 는 백그라운드 계수율을, t_m 은 시료 측정시간, t_b 는 백그라운드의 측정시간을 나타낸다.

3. 대기 중 ⁸⁵Kr 및 ¹³³Xe의 MDA의 저감 및 최적화 방안

MDA에서 신뢰수준을 나타내는 k_a , k_β 값의 α 와 β 는 각각 통계학에서의 제 1종 및 2종 과오를 뜻하며 이 값이 작을수록 오차의 발생확률이 낮아진다[20]. 따라서 신뢰수준(k)을 어떻게 설정하느냐에 따라 MDA는 고정된 값이 아닌 변화하는 값을 갖는다. 또한 어떠한 식을 이용하는가에 따라 MDA 값은 달라진다. Fig. 2에 각각 다른 신뢰수준(k)을 이용한 Currie 및 DIN 식의 MDA 값을 측정시간에 따라 나타내었다. 단, 계측

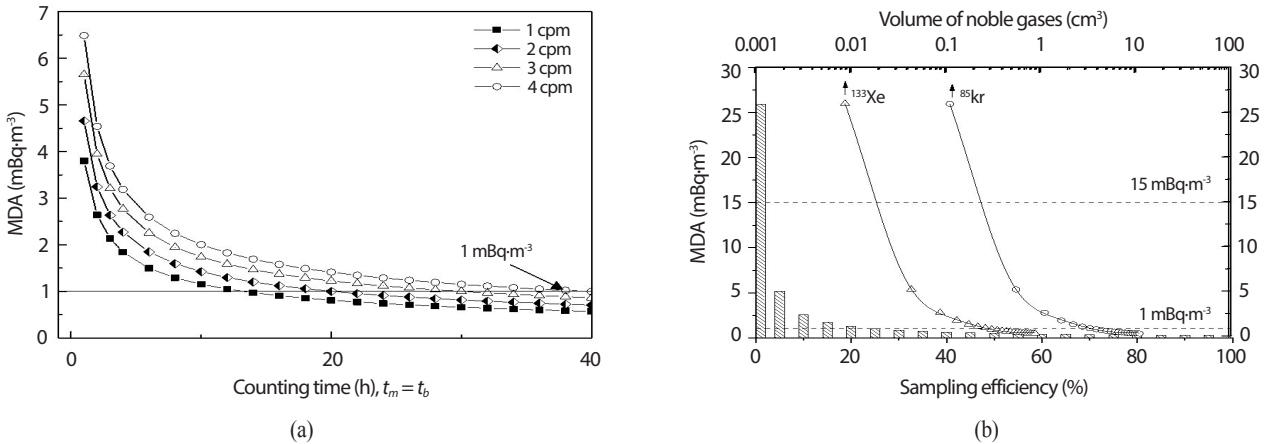


Fig. 3. MDA obtained at (a) various counting times and background count rates, (b) various air sampling efficiency and volume of noble gases (counting efficiency, $\epsilon = 80\%$).

효율, 백그라운드 계수율 및 시료 포집량은 모두 동일하게 가정하였으며 측정 중 반감기에 의한 감쇠는 무시하였다. 그리고 k_α, k_β 는 동일하게 설정하였다. 두 식은 다른 통계적인 기법을 이용하여 유도되었으며[18, 21] Fig. 2의 결과를 보면 두 식 모두 신뢰수준이 증가할수록 높은 MDA값을 나타내었다. k 값에 대한 MDA의 변화 정도는 DIN 식이 더 컸으며 신뢰수준 90%와 95%에서는 DIN 식이 Currie 식에 비해 약 30%에서 15% 정도 더 낮은 값을 보였다. 반면 신뢰수준 99%의 경우 DIN 식이 Currie 식에 비해 약 20% 정도 높은 MDA를 가졌다. 즉, 어떠한 MDA 식을 사용하느냐에 따라, 혹은 동일한 식을 사용하더라도 어느 정도의 신뢰 수준을 설정하느냐에 따라 각각의 MDA 값은 큰 차이를 보임을 알 수 있다. 이 때, 반드시 MDA가 낮거나 높다고 해서 좋은 것은 아니며 어떤 식과 어느 정도의 신뢰수준을 갖느냐에 따라 변화하는 것을 이해하고 적용하는 것이 중요하다.

실제 저준위 방사능 분석에서는 신뢰수준 95% ($k = 1.645$) 수준을 이용한 Currie 식이 가장 일반적으로 활용된다[22]. 따라서 해당 조건을 이용하여 노블가스 측정 조건에 따른 검출한계의 특성을 확인해보았다. Fig. 3에 백그라운드 계수율과 측정시간, 그리고 수집한 노블가스의 기체 부피에 따라 MDA가 어떻게 변화하는지를 나타내었다. 여기에서, 제논과 크립톤의 공기 중 체적비가 상이하여 수집되는 기체의 부피(V)도 서로 다르다. 따라서 비교를 용이하게 하기 위해 포집공기 내 존재하는 노블가스의 부피 중 수집된 각각의 기체부피를 백분율로 표현하여 포집율(Sampling efficiency)이라고 정의

하였다. 일반적으로 사용되는 공기 포집량인 10 m^3 를 기준으로 하였으며 100% 포집율에 해당하는 수집량은 크립톤이 11.4 cm^3 , 제논이 0.87 cm^3 가 된다.

계산을 위해 사용된 비례계수기의 효율은 80%로 설정하였고 Fig. 3(a)에서는 40%의 포집율을 기준으로 측정시간과 백그라운드 계수율에 따른 MDA를 구하였으며 Fig. 3(b)는 백그라운드 계수율 1 cpm과 24시간의 측정시간을 기준으로 MDA의 변화를 나타내었다. 단, 이 때 백그라운드 측정시간은 측정시간과 동일하게 설정하였다.

Fig. 3의 특성결과를 바탕으로 목표 MDA를 위한 각각 파라미터들의 최적의 값을 확인해보았다. 먼저 각 핵종별 필요한 목표 MDA에 대한 기준이 필요하며 이를 판단하기 위해서는 주요 노블가스의 환경 중 배경농도를 알아야 한다. 제논의 경우, 짧은 반감기로 인해 대기에 잘 축적되지 않으며 위도와 기류, 계절에 의한 영향에 큰 영향을 받는다. 알려진 시설의 방출량을 근거로 수행한 모델링 연구에서는 방출시설이 밀집한 유럽 일부 지역의 경우 $0.5 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ 수준을 보일 것으로 평가되었다[22]. 이처럼 낮은 방사능의 탐지를 위해서는 MDA를 가능한 낮게 유지하는 것이 중요하다. 현재 CTBTO에서는 제논 감시장비의 인증을 위해 ^{133}Xe 을 기준으로 측정시간 24시간 이하에서 검출한계 $1 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ 을 넘지 않을 것을 요구하고 있다[24]. 본 실험에서 설정된 조건에서 이 기준을 만족하기 위해서는 백그라운드 계수율을 2.4 cpm 이하로 유지하거나 노블가스의 포집량을 25% 이상 얻어야 한다. 그리고 측정시간을 늘릴 수도 있다. 하지만 백그라운드 계수율은 기기

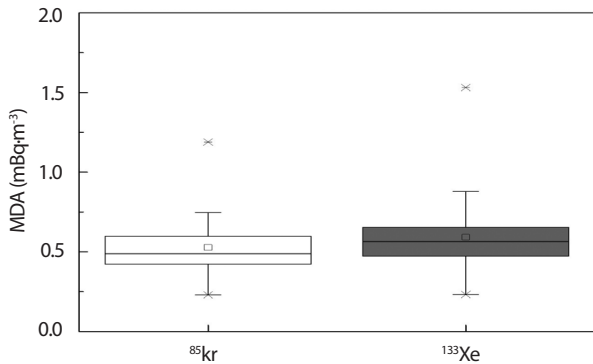


Fig. 4. MDA box chart plots of ⁸⁵Kr and ¹³³Xe prepared by data collected for 1 year.

자체의 성능과 관련이 있는데 현재 능동 및 수동 차폐를 모두 이용한 극저준위 시스템에서는 약 1 cpm 을 넘지 않는다. 또한 제논의 빠른 붕괴속도를 감안할 때 측정시간 또한 무한히 늘릴 수도 없으므로 계측효율을 높이거나 샘플 자체의 포집량을 늘이는 것이 가장 현실적인 방법이다. 포집량은 흡착제의 성능, 전처리과정의 효율성, 그리고 전체 공기포집량과 관련이 있으므로 이 부분의 개선을 통해서 MDA를 낮출 수 있을 것이다. 특히 아직 제논 포집량 중 절반 이상이 전처리 과정에서 손실 되므로 복잡한 전처리 과정의 효율화를 통하여 MDA를 낮출 수 있을 것이다.

크립톤의 경우는 비교적 긴 반감기(10.7년)으로 인해 대기 중에 존재하는 배경농도가 제논에 비해 현저히 높다. 현재 북반구를 기준으로 약 1.5 Bq·m⁻³ 수준으로 존재하는 것으로 알려져 있으며[7, 25, 26] 배경농도의 1%에 해당하는 방사능 농도를 MDA 목표로 정하면 15 mBq·m⁻³ 이 된다. 배경농도에 비해 매우 낮은 MDA 수준을 설정하였음에도 앞서 CTBTO에서 제시한 ¹³³Xe 기준에 비해 15배나 높은 값이다. 따라서 크립톤 경우는 24시간 측정을 기준으로 백그라운드 계수율이 550 cpm 이상 높아도 무방하며, 현재 장비성능 수준인 1 cpm 정도의 백그라운드 값을 갖는다면 기체 포집량을 2.1% 줄이거나 혹은 측정시간을 5분 이내로 줄여도 목표 MDA를 만족할 수 있다. 따라서 현재 시스템을 크립톤 단독 분석용으로 이용할 경우 지나치게 낮은 MDA를 적절한 수준으로 최적화 함으로써 공기 포집시간 또는 계측시간을 크게 단축시키거나, 검출기의 역동시 회로나 무거운 차폐체를 제거하여 기기를 단순화 할 수 있을 것이다. 현재 BFS 시스템의 경우 제논과 크립톤을 동시 포집하는 목적으로 활용

되고 있다. 즉 다른 의미에서는 제논의 낮은 MDA를 만족하기 위해서 크립톤이 과도하게 포집, 측정되고 있다는 의미가 된다. 이처럼 두 핵종을 감시하기 위한 성능조건에는 큰 차이가 있기 때문에 동시포집보다는 크립톤 단독 감시를 목적으로 장비를 활용한다면 여러 장점이 있을 것으로 보인다.

실제 한 해 동안 장비를 운영하면서 얻은 약 45개의 노블 가스 분석 샘플의 MDA 분포특성을 Fig. 4에 나타내었다. 제논의 경우 평균 MDA가 약 0.59 mBq·m⁻³로 CTBTO 기준인 1 mBq·m⁻³을 만족하였으나 일부 시료에서 검출기 불안정으로 인한 백그라운드 카운트 증가, 제논 포집량 감소로 인해 기준치를 넘기기도 했다. 즉, 계측기의 건전성이나 시료 전처리 과정에 주의를 하지 않으면 목표하는 MDA를 맞출 수 없으므로 제논 검출을 위해서는 분석자의 세심한 노력이 필요하다. 여기서 MDA가 0.59 mBq·m⁻³이라는 뜻은 그 이상의 방사능은 검출이 가능하다는 의미이다. 하지만 확률은 낮더라도 백그라운드 요동에 의한 신호일 가능성을 배제해서는 안된다. 만약 백그라운드 계수율이 1 cpm 일 때 24시간을 측정하면 총 1440 개의 신호가 수집된다. 즉 방사능이 없어도 자연신호만 1440 개를 얻게 된다는 뜻이며, 이 때 MDA 목표치인 1 mBq·m⁻³의 방사능을 측정하면 시료의 순 계수율은 약 70 여개 정도가 된다. 시료의 계수치가 백그라운드의 약 5%인 셈이다. 이 정도는 백그라운드 불확도가 95% 신뢰구간에서 5% 라는 뜻으로 백그라운드 수준의 요동에 의한 값 일수도 있다는 의미가 된다. 따라서 MDA 수준의 저준위 방사능을 검출 할 때는 보다 신중한 해석이 필요하며 신뢰성 있는 결과를 얻기 위해서는 가능한 낮은 MDA의 유지가 필요하다. 한편 크립톤의 경우 전체적인 포집량이 제논보다 높았기 때문에 평균 MDA가 약 10% 정도 더 낮은 0.525 mBq·m⁻³ 였으며 제논과 유사한 수준의 MDA 분포를 보였다. 참고로 이 값은 크립톤 배경 방사능 농도의 1/3000에 해당하는 매우 낮은 수치이다.

4. 결론

대기 중 극미량으로 존재하는 방사성 노블가스의 의미있는 분석값을 얻기 위해서는 가능한 낮은 수준의 MDA를 설정하는 것이 중요하다. 이를 위해 본 연구에서는 제논과 크립톤 분석을 위한 MDA를 이론을 통해 산출하였으며 MDA를 저감하기 위한 각 파라미터들의 영향을 살펴보았다. 특히 제논의

경우 대기 중에 존재 할 수 있는 배경농도가 검출한계 수준의 아주 극미량이어서 낮은 MDA를 유지하는 것이 매우 중요하다. 하지만 백그라운드를 줄이거나 측정시간을 늘리는데는 한계가 있기 때문에 측정 효율을 높이거나 시료 포집량을 최대한 늘리는 것이 가장 효과적일 것이다. 현재는 분석자의 세심한 노력을 통한 전처리 과정의 효율화와 안정적인 측정기 성능 유지가 가장 중요한 요소가 될 것으로 판단되며 향후 기술개발을 통한 흡착제 개발, 전처리 효율화를 통한 포집량 개선으로 보완할 수 있을 것이다. 크립톤의 경우 백그라운드의 용동보다 시료의 방사능이 매우 크기 때문에 현재의 포집량, 측정시간 최적화를 통해 효율적인 분석을 수행 할 수 있을 것이다. 특히 제논 동시 분석이 아닌 크립톤 단독 분석 용도로 사용 시에는 포집 및 측정시간 단축, MDA 재설정을 통한 시스템 구조 단순화가 가능 할 것으로 보여 새로운 방식으로 장비를 응용할 수 있을 것으로 기대한다.

감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회의 재원으로 한국원자력안전재단의 지원을 받아 수행한 원자력안전연구사업의 연구결과입니다. (No. 1705007)

REFERENCES

- [1] J.M. Shin, J.J. Park, M.S. Yang, S.Y. Joo, and S.W. Shin, "A State of the Art Report on Treatment Technology of Kr/Xe", Korea Atomic Energy Institute Report, 4-14, KAERI/AR-667/2003 (2003).
- [2] D.A. Atwood, "Radionuclides in the Environment", 1st ed., 179-189, Wiley & Sons, New York (2013).
- [3] W.N. Lee, Y.Y. Ji, S. Choi, Y.H. Cho, J.M. Lim, H.B. Kang, H. Lee, M.J. Kang, and G.S. Choi, "Operation and Technology Development of Radioactive Xenon and Krypton Detection Equipment", Korea Atomic Energy Institute Report, 3-15, KAERI/RR-3581/2012 (2013).
- [4] D.K. Keum, H.S. Lee, H.J. Choi, H.S. Kang, W.N. Lee, and C.W. Lee, "Development of Atmospheric Kr-85 Analysis Technology", Korea Atomic Energy Institute Report, 1-7, KAERI/RR-2468/2004 (2004).
- [5] P.R.J. Saey, A. Becker, L.E. De Geer, and G. Wotawa, "Radioxenon Isotopes: Created in an Underground Nuclear Explosion - Measured in a Verification Detector", Proc. Of Europe European Geosciences Union Assembly, Vol. 9, 09773, Vienna (2007).
- [6] A. Janssens, J. Buysse, and E. Cottens, "The Measurement of Low-Level Atmospheric Krypton-85", Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 234(2), 335-343 (1985).
- [7] J.O. Roß, "Simulation of Atmospheric Krypton-85 Transport to Assess the Detectability of Clandestine Nuclear Reprocessing", Ph.D. Thesis, Universität Hamburg (2010).
- [8] P.R.J. Saey, A. Ringbom, T.W. Bowyer, M. Zähringer, M. Auer, A. Faanhof, C. Labuschagne, M.S. Al-Rashidi, U. Tippawan, and B. Verboomen, "Worldwide Measurements of Radioxenon Background Near Isotope Production Facilities, a Nuclear Power Plant and at Remote Sites: the "EU/JA-II" Project", J. Radioanal. Nucl. Chem., 296(2), 1133-1142 (2013).
- [9] C.G. Doll, C.M. Sorensen, T.W. Bowyer, J.I. Friese, J.C. Hayes, E. Hmann, and R. Kephart., "Abatement of Xenon and Iodine Emissions from Medical Isotope Production Facilities", J. Environ. Radioact., 130, 33-43 (2014).
- [10] Annual Report, Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization Report, 11-15, CTBT/ES/2015/5 (2015).
- [11] S.A. Czyz, A.T. Farsoni, and L. Ranjbar, "A Prototype Detection System for Atmospheric Monitoring of Xenon Radioisotopes", Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 884, 64-69 (2018).
- [12] C.B. Sivals, J.I. McIntyre, T.W. Bowyer, M.B. Kalinowski, and S.A. Pozzil. "A Review of the Developments of Radioxenon Detectors for Nuclear Explosion Monitoring", J. Radioanal. Nucl. Chem., 314(2), 829-841 (2017).
- [13] W.N. Lee, S.D. Choi, H.R. Kim, G.H. Chung, Y.H.

- Cho, M.J. Kang, G.S. Choi, and C.W. Lee, "Study on the Estimation of Minimum Detectable Activity (MDA) in Atmospheric Radionuclides" Proc. Of the Korean Radioactive Waste Society Conference, Vol. 17, Incheon, 399-400 (2010).
- [14] H. Stockburger, H. Sartorius, and A. Sittkus, "Measurement of the Krypton-85 and xenon-133 activity in the atmosphere", *Zeitschrift für Naturforschung A*, 32(11), 1249-1253 (1977).
- [15] Y. Igarashi, H. Sartorius, T. Miyao, W. Weiss, K. Fushimi, M. Aoyama, K. Hirose, and H.Y. Inoue, "⁸⁵Kr and ¹³³Xe Monitoring at MRI, Tsukuba and Its Importance", *J. Environ. Radioact.*, 48(2), 191-202 (2000).
- [16] D.K. Keum, G.S. Choi, G.H. Chung, W.N. Lee, Y.H. Cho, and C.W. Lee, "Build up of Radioactive Krypton and Xenon Analysis System", Korea Atomic Energy Institute Report, 1-14, KAERI/RR-2933/2007 (2007).
- [17] P. Häussinger, R. Glatthaar, W. Rhode, H. Kick, C. Benkmann, J. Weber, H.J. Wunschel, V. Stenke, E. Leicht, and H. Stenger, "Noble Gases", *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*, 24, 391-394, John Wiley and Sons, New York (2003).
- [18] L. A. Currie, "Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination", *Anal. Chem.*, 40(3), 586-593 (1968).
- [19] M.H Lee, H.S. Lee, G.H. Hong, Y.H. Cho, and C.W. Lee, "Determination of Minimum Detectable Activity in Environmental Samples", *J. Korean Asso. Radiat. Prot.*, 24(3), 171-184 (1999).
- [20] B.S. Pasternack and N.H. Harley, "Detectable Limits for Radionuclides in the Analysis of Multi-component Gamma ray Spectrometer Data", *Nucl. Instr. And Meth.*, 91(3), 533-540 (1971).
- [21] K. Weise, K. Hübel, E. Rose, M. Schläger, D. Schrammel, M. Täschne, and R. Michel. "Bayesian Decision Threshold, Detection Limit and Confidence Limits in Ionizing-Radiation Measurement", *Radiat Prot Dosimetry.*, 121(1), 52-63 (2006).
- [22] J.M. Kirkpatrick, R. Venkataraman, and B.M. Young, "Minimum Detectable Activity, Systematic Uncertainties, and the ISO 11929 Standard", *J. Radioanal Nucl. Chem.*, 296(2), 1005-1010 (2013).
- [23] S. Generoso, P. Achim, M. Morin, P. Gross, G. Le Petit, and C. Moulin, "Seasonal Variability of Xe-133 Global Atmospheric Background: Characterization and Implications for the International Monitoring System of the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty", *J. Geophys. Res. Atmos.*, 123(3), 1865-1882 (2018).
- [24] J. Schulze, M. Auer, and R. Werzi, "Low Level Radioactivity Measurement in Support of the CTBTO", *Appl. Radiat. Isot.*, 53(1-2), 23-30 (2000).
- [25] J. Bieringer, C. Schlosser, H. Sartorius, and S. Schmid, "Trace Analysis of Aerosol Bound Particulates and Noble Gases at the BFS in Germany", *Appl. Radiat. Isot.*, 67(5), 672-677 (2009).
- [26] C. Schlosser, M. Konrad and S. Schmid, "⁸⁵Kr Activity Determination in Tropospheric Air", International Foundation of the High Altitude Research Stations Jungfraujoch and Gornergrat (HFSJG), Activity Report 2016, 78-79 (2017).