Journal of Radiation Industry 13(4) : 305~310(2019)

^{85}Kr 감시시스템 섬광검출기의 빛 변환 확률에 관한 MDA

송하진[1] · 고영건[1,*] · 이진형[1] · 박지영[1] · 임종명[1] · 이완로[1]

[1]한국원자력연구원

MDA on the Probability of Light Conversion for the Plastic Scintillator Detector of the ^{85}Kr Monitoring System

Ha-Jin Song[1], Young Gun Ko[1,*], Jin Hyung Lee[1], Ji-young Park[1], Jong-Myoung Lim[1] and Wanno Lee[1]

[1]*Department of Nuclear Energy & Environment Research Laboratory, Korea Atomic Energy Research Institute, 989-111, Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon 34057, Republic of Korea*

Abstract - A radioactive krypton analysis system has been operated to detect clandestine nuclear-activities of neighboring countries. The probability for their detection is very low due to 1 week of long sampling and analysis period. The novel analysis system with a short sampling period is required to increase the probability for the detection. The object of this study is reduction of the time with the modification of detector in the BfS-IAR system at the 24 hrs of the sampling period. In this study, the detector was designed to avoid the use of P-10 gas which inhibits the development of the archive system. To achieve the purpose, a novel detection system with a plastic scintillator was proposed for an alternative detecting system of a gas proportional counting system. MDA assessment of ^{85}Kr for the detector and the monitoring system was carried out using the Currie equation based on the simulation of a plastic scintillation system. The MDA assessment proved that a plastic scintillation system can be an alternative detecting system of a gas proportional counting system. In the future work, the detection system will be applied to determine other radioactive noble gases.

Key words : ^{85}Kr, Nuclear power plant, Nuclear reprocessing, Plastic scintillator

서 론

많은 나라들은 핵활동 탐지를 위해 Xenon (beta emitter, E_{max}: 346 keV, half-life: 5.2 days)과 Kr-85 (beta emitter, E_{max}: 687 keV, half-life: 10.76 years)를 측정한다. Xenon과 ^{85}Kr는 일반적으로 원자력 발전소나 핵 재처리에 의해 발생된다(Aoyama *et al*. 2008; Kovar *et al*. 2012; Bollhofer *et al*. 2013). 특히 원자력발전소의 사고나 핵 재처리는 핵무기를 만들 수 있으므로 세계적으로 큰 이슈가 된다. 그래서 이러한 감시가 필요하며 지속적으로 감시가 되어져야 한다. Xenon 및 ^{85}Kr의 노블가스를 측정하기 위해서는 BfS-IAR (Budesamt für Strahlenschutz-Institute of Atmospheric Radioactivity) 시스템을 사용한다(Fontaine *et al*. 2004; Schlosser *et al*. 2014). 이 시스템은 가스 비례계수기를 이용하여 대기중 노블가스를 포집하여 측정하는 기술로 가스 크

* Corresponding author: Young Gun Ko, Tel. +82-42-866-6104, Fax. +82-42-866-6104, E-mail. ygko@kaeri.re.kr

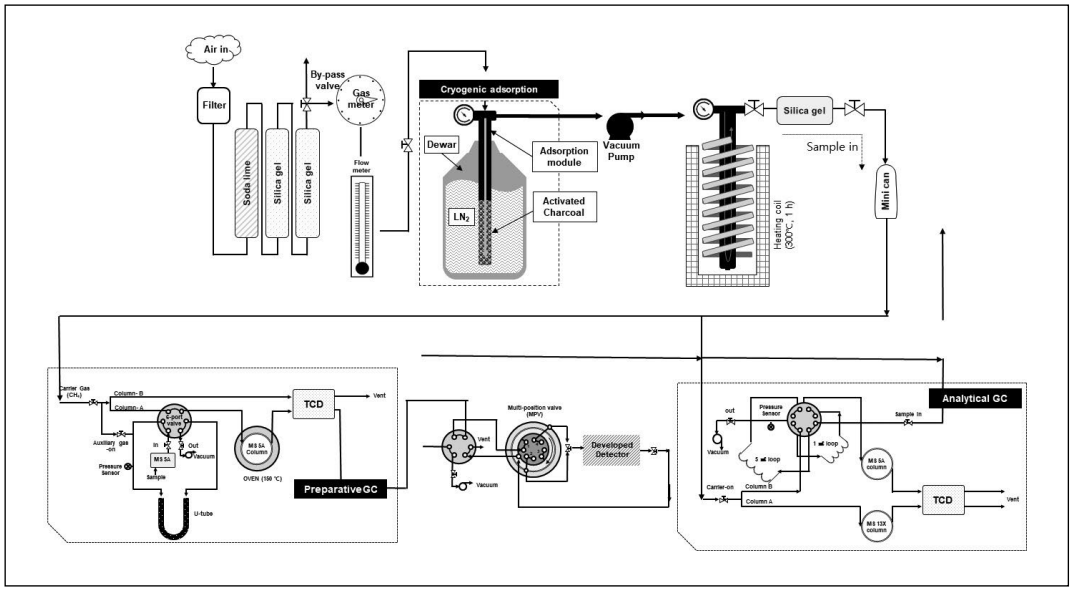

Fig. 1. Schematic of sampling and detection system.

로마토그래피를 이용하여 노블가스를 분리한다. 현재 세계적으로 가장 많이 쓰이는 기술이며 효율이 70%로 가장 좋은 장점을 가지고 있다(Ross *et al*. 2010; Schlosser *et al*. 2014). 그러나 가스비례계수기의 경우 측정할 때 P-10 가스를 주입해야 하는 단점이 있으며 지속적으로 교체를 해야 된다. 이 경우 부수적인 일이 생기며 인력과 유지보수가 들어간다. 그리고 측정할 때 지속적으로 캐리어 가스를 넣어줘야 되므로 확실하게 측정이 될 수 없다는 것이 단점이다. 그러므로 이 연구에서는 우리는 가스비례계수기보다 좋은 새로운 검출기를 단점을 보완하여 개발 중이다. 최근에 한국원자력연구원에서는 ^{85}Kr를 포집하는 장치를 자동화시키는 것을 하였으며 이를 바탕으로 새로운 검출기를 개발하여 전 자동 시스템으로 만들 예정이다. 먼저 ^{85}Kr의 특성으로 반감기가 Xenon의 반감기보다 길기 때문에 오랫동안 포집한 상태로 긴 반감기로 인하여 영향을 미치지 않아 오랜 시간 측정이 가능하다. 그러나 Kr-85는 짧은 비정으로 인하여 적합한 검출기를 찾기에는 어려움을 가지고 있었다. 따라서 다양한 섬광체를 Monte Carlo code MCNP 6.2.1 code로 비교하여 보았으며, 밀도가 다른 각각의 섬광체를 분석하여 본 결과 그 중 플라스틱 섬광체가 가장 적합하여 선택했다. 플라스틱 섬광체의 경우 큰 방출 빛의 강도를 나타며, 밀도가 낮아서 충분히 비정이 짧은 전자를 받아들여 플라스틱 섬광체 안에서 이온화하여 빛으로 변화된다. 그리고 플라스틱 섬광체의 경우 다양한 모양으로 변형이 가능하고 가장 저렴한 물질이다(Aoyama *et al*. 2008). ^{85}Kr의 플라스틱 비정의 두께는 0.19 cm로 이를 바탕으로 MCNP를 해본 결과 0.5 cm의 플라스틱 섬광체가 가장 좋은 흡수율을 보여주었다. 본 연구에서는 MCNP를 이용하여 적합성이 맞는지 확인하기 위해 ^{85}Kr의 포집용기의 두께를 각각 변경하여 시뮬레이션을 해보았다. 플라스틱 섬광체의 경우 두께는 0.5 cm, 직경은 5.08 cm이며, 밀도는 1.032 g·cm^{-3}이다. 포집용기는 직경 5.08 cm이며 두께를 0.5, 1, 1.5, 2, 2.5, 3 cm로 변경하면서 각각의 부피는 11.53, 23.06, 34.59, 46.12, 57.65, 69.18 cm^{3}로 시뮬레이션을 했다. 계산된 결과값을 이용하여 MDA (minimum detectable amount of activity)를 계산했다. BfS-IAR 시스템에서 사용되는 MDA 식은 샘플의 포집부터 시작해서 계측기에 들어와서 포집량을 알았을 때 이용하는 계산식인 Currie 식을 이용하였다(Currie 1968). 이 식은 저준위 시료를 계측할 경우 백그라운드 준위에 가깝기 때문에 그 계수가 단순히 백그라운드의 요동에 의한 것인지 백그라운드와 유의한 차이가 있는 것인지를 판별하는 것이 필요하다(이 등 2010). 본 연구에서는 백그라운드 및 샘플 측정시간을 같이 하였을 때를 고려하였다(Igarashi *et al*. 2000; Igarashi *et al*. 2001; Igarashi *et al*. 2002; Aregbe *et al*. 2012). 백그라운드 측정 시간이 길어지면 모든 측정 시간이 길어지고 실시간으로 확인이 안되지만 MDA 값을 낮춰주기 위해서는 동일하게 측정하는 방향이 가장 좋다. 따라서 백그라운드 경우 LSC (Liquid Scintillation Counter)와 동일하게 1 cpm으로 결정하고 MDA 값을 0.03 Bq·m^{-3}으로 설정하였다.

재료 및 방법

1. BfS-IAR 시스템

BfS-IAR 시스템은 크게 공기포집장치, 시료이송장치 마

지막으로 농축 분리 시스템으로 구성되어 있다. 공기포집장치에는 공기에 들어있는 불순물을 섬유필터를 이용하여 제거하고 ^{85}Kr를 흡착하기 위해 액체질소를 이용하여 초저온 흡착방법을 이용한다. 시료이송장치의 경우 흡착된 ^{85}Kr를 가열기인 전기오븐과 시료를 회수하기 위한 가스라인으로 구성되어 있다. 회수된 시료는 농축분리 시스템에서 정량을 위한 2대의 가스 크로마토그래피와 가스비례계수기가 구성되어 있다. 이때 가스비례계수기로 크립톤을 계수하고 이를 분석하여 공기중 ^{85}Kr의 양을 구한다. 이 논문에서는 P-10 가스를 지속적으로 사용하는 가스비례계수기 대신에 새로운 계측기를 설계하고 MDA 값에 충분한지 확인하기 위해 연구되었다.

2. MCNP

Monte Carlo code MCNP 6.2.1를 이용하여 neutron, photon, electron, coupled neutron, coupled photon, coupled electron transport를 적용할 수 있다(Polo *et al*. 2018). 플라스틱 섬광체의 구성은 직경 5.08 cm, 두께는 0.5 cm, 그리고 밀도는 1.032 g·cm^{-3}를 가지고 있다. 이때 Kr-85를 포집하는 용기의 경우 직경은 플라스틱 섬광체와 같이 구성하였고, 두께를 각각 0.5, 1, 1.5, 2, 2.5, 3 cm로 설정하였다. 그래서 포집용기의 부피는 각각 11.53, 23.06, 34.59, 46.12, 57.65, 69.18 cm^{3}를 가지고 있다. 데이터 카드의 입력은 ^{85}Kr만 분리되어 포집되었다고 가정하여 일반적으로 ^{85}Kr에 쓰이는 데이터 값만 넣었다. 그리고 ^{85}Kr의 경우 최대에너지가 000 keV여서 50 keV 이하는 노이즈라 판단되어 50 keV부터 700 keV까지 에너지를 잘라서 확인하였다. 검출기의 구성은 다음 Fig. 2와 같다.

3. Currie MDA

이 논문에서 사용되는 MDA 식은 Currie 식을 이용하였다. 저준위 시료인 ^{85}Kr를 계측할 때 백그라운드가 준위에 가깝기 때문에 이 계수가 백그라운드 요동에 의한 것인지 백그라운드와 유의한 차이가 있는 것인지 확인해야 된다. 이는 BfS-IAR 시스템에서 사용되는 MDA로 항상 쓰이고 있다. Currie 식은 두가지 방법이 있는데 첫 번째는 백그라운드 계측시간과 샘플 측정시간이 동일한 방법, 백그라운드 측정시간과 샘플링 측정시간이 다른 방법이 있다. 특히 본 연구에서는 MDA를 최대한 낮춰보기 위하여 백그라운드 측정시간과 샘플링 측정시간을 동일하게 하여 MDA 값을 나타내었다. 계측 효율은 전자가 빛으로 변하는 확률을 나타내야 되므로 각각 5, 10, 15, 25, 55, 70, 85, 100%로 나타내어 보았다. 그리고 샘플 포집량이 40%로 계산하였다. 그

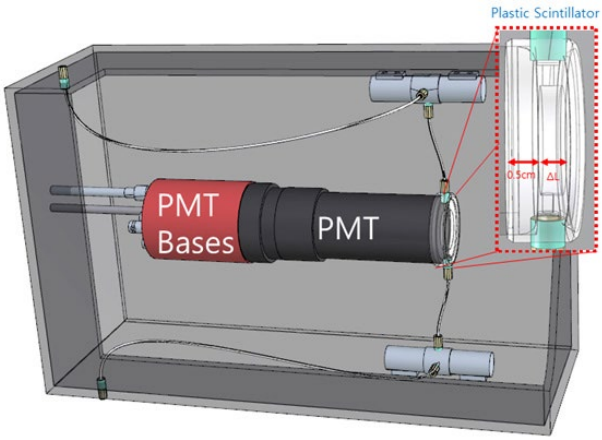

Fig. 2. Detector configuration.

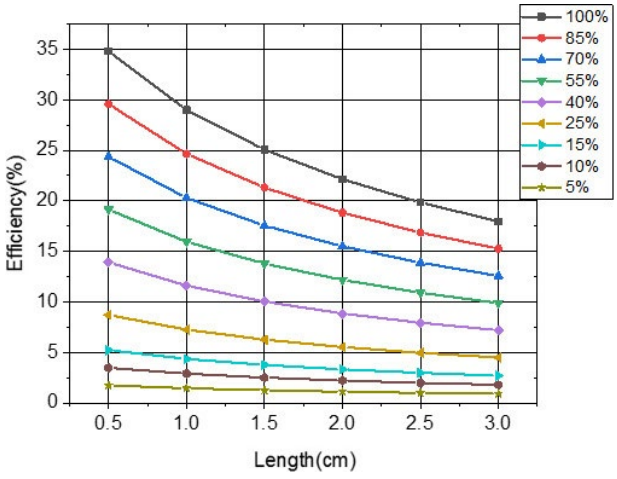

Fig. 3. Efficiency for Kr-85 radiation entering the detector using MCNP.

Table 1. Efficiency for Kr-85 radiation entering the detector using MCNP

Volume (cm^3)	Sampling Efficiency(%)								
	100%	85%	70%	55%	40%	25%	15%	10%	5%
11.53	34.80	29.58	24.36	19.14	13.92	8.70	5.22	3.48	1.74
23.06	28.99	24.64	20.30	15.95	11.60	7.25	4.35	2.90	1.45
34.59	25.07	21.31	17.55	13.79	10.03	6.27	3.76	2.51	1.25
46.12	22.14	18.82	15.49	12.17	8.85	5.53	3.32	2.21	1.11
57.65	19.84	16.86	13.88	10.91	7.93	4.96	2.98	1.98	0.99
69.18	17.96	15.27	12.57	9.88	7.19	4.49	2.69	1.80	0.90

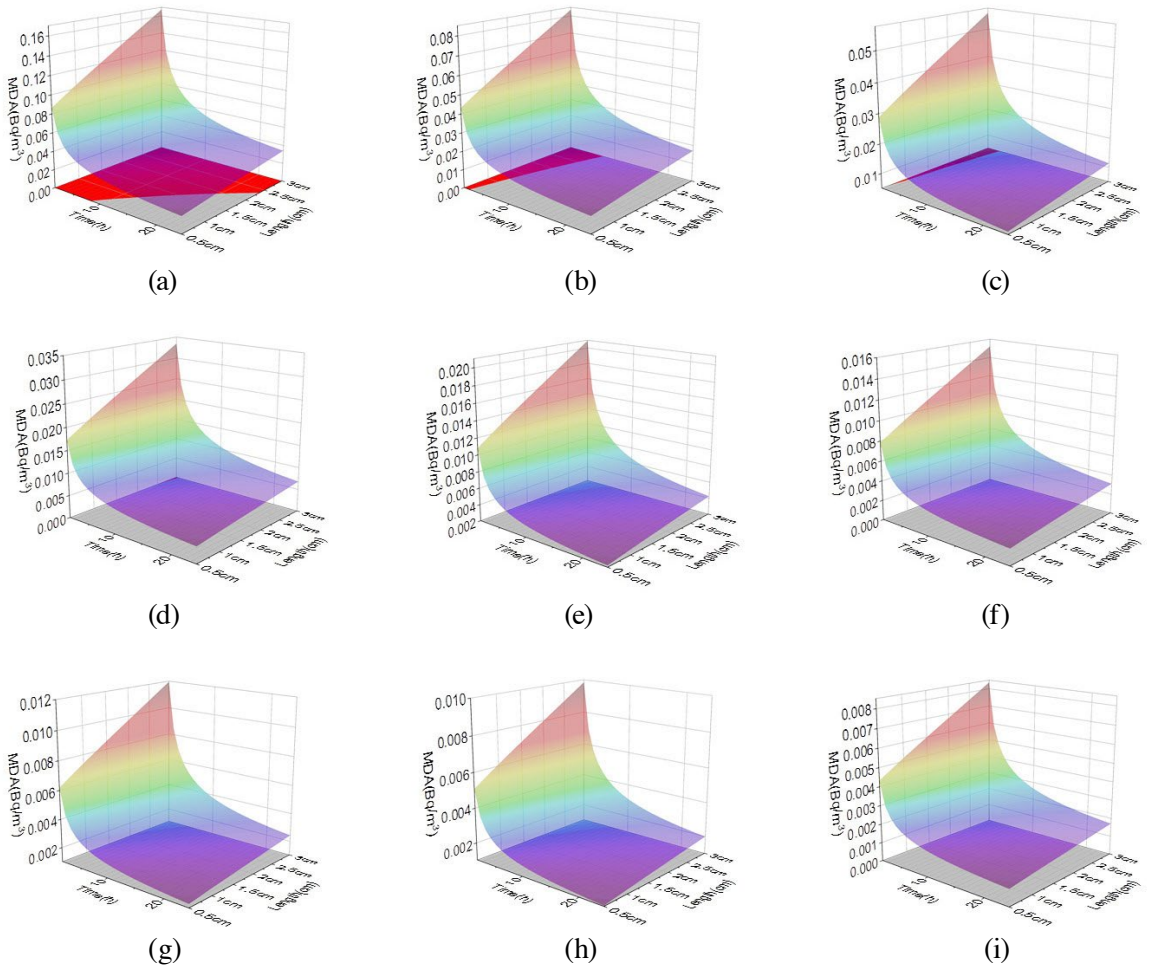

Fig. 4. MDA according to detector efficiency for 40% of ^{85}Kr in sampling system (a) 5%, (b) 10%, (c) 15%, (d) 25%, (e) 40%, (f) 55%, (g) 70%, (h) 85%, (i) 100%.

리고 이때 백그라운드 계수율을 일반적으로 LSC를 측정하였을 때 백그라운드 계수율이 1 cmp으로 이를 바탕으로 하였다(Currie 1968).

$$\mathrm{MDA} = \frac{C}{\epsilon \times V \times t_m} 2.71 + 4.65\sqrt{R_b \times t_m}$$

C = 1.14 (Amount of Kr-85 in air)

ϵ = Amount of Sample

V = Kr-85 Capture Amount Using Gas Chromatography

t_m = Kr-85 Measurement Time

결 과

1. 검출기 효율

검출기의 효율은 MCNP를 이용하여 계산된 결과값으로 Kr-85의 포집이 100% 되었다고 가정했을 때 결과를 나타내었다. 이때 빛으로 변환되는 효율을 각각 5, 10, 15, 25, 40, 55, 70, 85, 100%로 9가지 효율을 나타내었다. 이는 전자가 빛으로 변환되는 효율을 잘 모르기 때문에 각각 효율을 다르게 하여 계산하였다. 이때 가장 좋은 효율을 100% 빛으로 변환되었을 때 34.8%로의 효율로 포집용기가 0.5 cm의 두께를 가지고 있으며 부피는 11.53 cm^{3}이다. 포집용기의 두께가 점차적으로 증가할수록 효율이 떨어지는 것을 확인할 수 있고, 빛으로 변환되는 확률이 낮아지면 효율이 떨어지는 것을 확인할 수 있다(Table 1). 부피가 커질수록 효율이 떨어지는 이유는 ^{85}Kr의 비정이 짧기 때문에 충분히 플라스틱 섬광체까지 에너지가 도달하지 못했다고 생각된다.

2. 백그라운드 및 측정시간 동일 MDA

위 결과를 바탕으로 백그라운드 측정시간과 샘플 측정시간을 동일하게 하여 Currie 식을 사용하였을 경우 Fig. 4와

같다. 이때 MDA 값은 기존의 BfS-IAR 시스템에서 사용되는 MDA 값이 0.03 Bq·cm^{-3}으로 이와 같이 설정하였다. 그리고 Fig. 4는 BfS-IAR 시스템의 대기중 ^{85}Kr의 포집효율이 40%라고 설정하였고 최소 1시간에서 최대 24시간 측정 결과값을 나타내고 있다. 먼저 (a) 그림의 경우 전자가 빛으로 변하는 확률이 5%로 0.5 cm의 두께를 가질 경우 9시간 이상 측정해야 되며, 1 cm 두께의 경우 12시간 이상, 1.5 cm 두께의 경우 16시간 이상, 2 cm 두께의 경우 21시간 이상 마지막으로 2.5 cm 및 3 cm 두께의 경우 24시간 측정해도 MDA 값이 성립하지 않는다. (b) 그림의 경우 전자가 빛으로 변하는 확률이 10% 변하는 확률의 경우 0.5 cm 및 1 cm 두께를 가질 경우 3시간 이상 측정해야 되며, 1.5 cm 두께의 경우 5시간 이상, 2 cm 두께의 경우 6시간 이상, 2.5 cm 두께의 경우 7시간 이상 마지막으로 3 cm 두께의 경우 8시간 이상 측정해야 MDA 값이 성립한다. (c) 그림의 경우 전자가 빛으로 변하는 확률이 15% 변하는 확률의 경우 0.5 cm 두께를 가질 경우 항상 성립하고, 1 cm 및 1.5 cm 두께의 경우 2시간 이상, 2 cm 및 2.5 cm 두께의 경우 3시간 이상 마지막으로 3 cm 두께의 경우 4시간 이상 측정해야 MDA 값이 성립한다. (d) 그림의 경우 전자가 빛으로 변하는 확률이 25 % 변하는 확률의 경우 2.5 cm 및 3 cm 두께에서만 2시간 이상 측정해야 MDA 값이 성립한다. (e)~(i) 그림의 경우 각각 전자가 빛으로 변하는 확률이 40, 55, 70, 85, 100%로 MDA 값이 충분히 성립한다.

고 찰

BfS-IAR 시스템에서는 Currie 식을 이용하여 두가지 방법을 제시한다. 첫 번째 백그라운드 측정시간과 샘플링 측정시간을 동일하게 설정하여 측정하는 방법이 있고, 두 번째 백그라운드 측정시간과 샘플링 측정시간이 각각 다르게 설정하여 측정하는 방법이 있다. MDA의 경우 백그라운드 측정시간의 증가에 따라 크게 차이가 나므로 두 가지 방법 중 하나를 고르기는 어렵다. 그러나 이전에 했던 연구에서 백그라운드 측정시간과 샘플링 측정시간을 동일하게 하여 실험을 진행한 결과가 있어서 이 논문에서도 결과를 구하기 위해 동일하게 값을 주고 설정하였다. 그 결과 포집량과 포집용기의 부피에 따라 계측기의 효율이 다르다는 것을 확인할 수 있으며 포집용기의 부피가 커지면 효율이 떨어지는 것을 확인할 수 있다. 이는 베타선인 Kr-85의 비정거리가 짧기 때문에 아무리 많이 용기에 포집되어 있더라도 플라스틱 섬광체까지 충분히 도달하지 못한다고 판단된다. 그래서 아무리 부피를 증가시켜도 충분한 효율을 기대하지는 못하지만 MDA 값은 만족된다고 본다. 그러나 이 결과는 단지 실측이 아니라 오직 시뮬레이션 결과를 이용하였으며 정확하지는 않을 수 있지만 이 논문에서 보고자 하는 것은 플라스틱 섬광체가 가능한지를 보고자 하는 것이다.

결 론

이 논문에서는 모델링을 통하여 BfS-IAR 시스템의 시료의 포집부터 측정까지를 하여 Kr-85의 포집량이 40%라고 가정하여 간접적인 MDA 결과값을 나타내었다. 먼저 효율면에서는 플라스틱 섬광체가 가스비례계수기보다 낮다. 그러나 MCNP 시뮬레이션을 구현하였을 때 충분히 플라스틱 섬광체로 Kr-85를 측정하는 데 문제가 없다고 판단된다. 그리고 기존 BfS-IAR 시스템의 포집량의 효율이 40%를 설정하여 Currie 식을 이용하였으며, 이때 백그라운드 계측시간과 샘플 측정시간을 동일하게 하여 계측기의 효율에 따라서 MDA 값을 계산하였다. 계측기의 효율이 낮을수록 MDA 값이 성립하지 않는 부분이 많다. 그러나 계측기의 효율은 아직 정확한 것이 아니라 실제 검출기를 제작하고 실험해야 한다. 따라서 제작할 때 부피가 작을수록 좋지만 0.5 cm의 두께를 가지는 포집용기는 너무 부피가 작다고 생각되어 충분히 더 크게 만들어도 된다고 생각된다. 종합적으로 판단했을 때 빛이 없는 어두운 방에서 충분히 MDA가 성립하는 검출기를 만들 수 있으며 이를 바탕으로 다른 베타검출기도 만들 수 있다고 판단된다.

사 사

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

참 고 문 헌

이완로, 최상도, 전 인, 이창우, 최근식, 조영현. 2010. 대기 중 노블가스 측정에서 최소검출농도(MDA) 산출에 관한 연구, 한국원자력연구원, 대한민국.

Aoyama M, Fujii K, Hirose K, Igarashi Y, Isogai K, Nitta W, Sartorius H, Schlosser C, Weiss W. 2008. Establishment of a Cold Charcoal Trap-Gas Chromatography-Gas Counting System for ^{85}Kr Measurements in Japan and Results from 1995 to 2006, Technical Reports of the Meteorogical Research Institute No.54, Meteorogical Research Institue, Japan.

Aregbe Y, Mayer K, Valkiers S and Bievre PDE. 1997. Detection of Reprocessing activities through stable isotope

measurements of atmosphereic noble gas. *J. Anal. Chem.* **358**:533-535.

Bollhofer A, Schlosser C, Ross JO, Sartorius H and Schmid S. 2013. Variability of atmospheric krypton-85 activity concentrations observed close to the ITCZ in the southern hemisphere. *J. Environ. Radioact.* **127**:111-118.

CTBTO. 2012. CTBT/PTS/INF.96/Rev.9, Appendix II.

Currie L. 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination. *Anal. Chem.* **40**:586.

Fontaine J-P, Pointurier F, Blanchard X and Taffary T. 2004. Atmospheric xenon radioactive isotope monitoring. *J. Environ. Radioact.* **72**:129-135.

Glenn F Knoll. 2010. Radiation Detection and Measurement, fourth ed. John Wiley & Sons Inc., New York, pp. 96-98.

Igarashi Y, Miyao T, Aoyama Mi, Hirose K, Sartorius H and Weiss W. 2000. Radioactive noble gases in surface air monitored at MRI, Tsukuba, before and after the JCO accident. *J. Environ. Radioact.* **50**:107-118.

Igarashi Y, Aoyama M, Nemoto K, Hirose K, Miyao T, Fushimi K, Suzuki M, Yasui S, Asai Y, Aoki I, Fujii K, Yamamoto S, Sartorius H and Weiss W. 2001. ^{85}Kr measurment system for continuous monitoring at the Meteorological Research Institute, Japan. *J. Environ. Monit.* **3**:688-696.

Igarashi Y, Sartorius H, Miyao T, Weiss W, Fushimi K, Aoyama M, Hirose K and Inoue HY. 2002. ^{85}Kr and 133Xe monitoring at MRI, Tsukuba and its importance. *J. Environ. Radioact.* **48**:191-202.

Kovar P, Dryak P, Suran J and Gudelis A. 2012. Calibration of stack monitors for measurement of noble gases in nuclear facilities. *Appl. Radiat. Isot.* **70**:2127-2129.

Polo IO, Souza WS and Caldas LVE. 2018. Determination of correction factors in beta radiation beams using Monte Carlo method. *Appl. Radiat. Isot.* **140**:50-54.

Ross O, Ahlswede J, Rast S, Schlunzen KH and Kalinowski MB. 2010. Simulations of atmospheric krypton-85 to assess the detectability of clandestine nuclear reprocessing, International Atomic Energy Agency, IAEA-CN-184.

Schlosser C and Klingberg F. 2014. Krypton-85 monitoring at BfS in Germany and technical solution for safeguard, In: Symposium on International safeguard, International Atomic Energy Agency, IAEA-CN-200.

Received: 18 August 2019
Revised: 13 September 2019
Revision accepted: 30 September 2019