한국원자력학회
2021년 춘계 학술대회

A Study on the Uranium Enrichment Determination using Standard-less Gamma Spectrometry Technique

김 우 진

2021. 05. 13.

KOREA INSTITUTE OF NUCLEAR NONPROLIFERATION AND CONTROL

목 차

KINAC KOREA INSTITUTE OF NUCLEAR NONPROLIFERATION AND CONTROL
한국원자력통제기술원

1. 개요

KINAC
KOREA INSTITUTE OF NUCLEAR NONPROLIFERATION AND CONTROL
한국원자력통제기술원

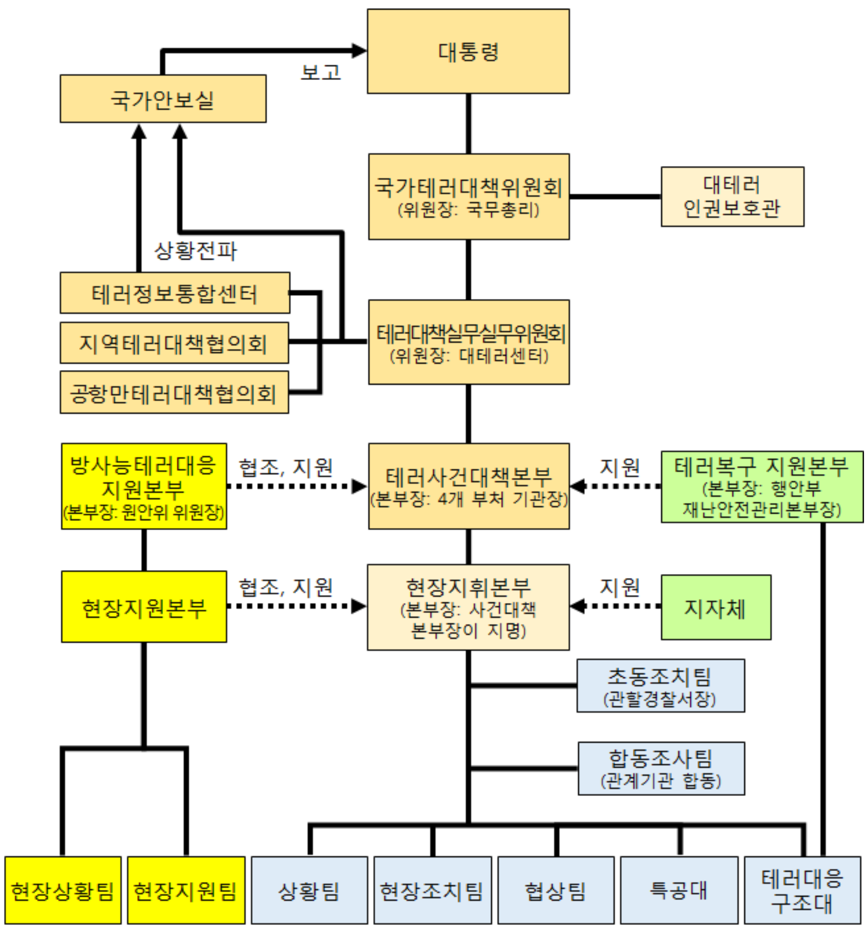
1. 개요 : 우라늄 농축도 측정 필요성

◆ 시나리오 : 핵물질 밀수/도난 등의 불법행위 의심 상황 발생

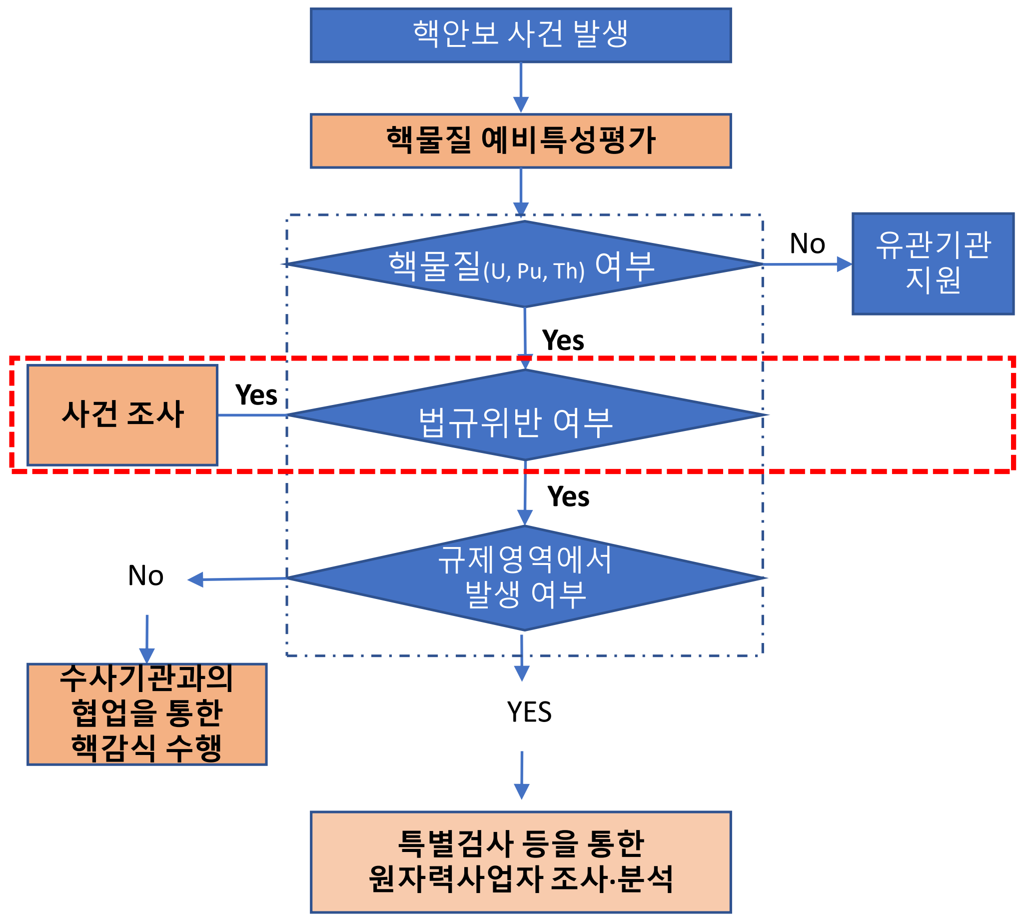
출처 : ITWG CMX4 & Galaxy Serpent Exercises

1. 개요 : 우라늄 농축도 측정 필요성

◆ 국가 방사능 대응 체계



국가 수준



전문기관(KINAC) 수준

1. 개요 : 우라늄 농축도 측정 필요성

◆ 미확인 핵물질 예비특성평가 개념

- 현장에서 신속하게 측정, 기준과의 비교 및 해석을 통해 법집행에 대한 의사결정에 도움을 주기 위한 과학적 기법

◆ 주요 예시

음주 단속 기준 : 도로교통법 제44조 제4항

- 운전자가 술에 취한 상태의 기준 : 혈중 알코올 농도가 0.03% 이상

휴대용 음주측정기와 경찰장비 비교/2015-01-18(한국일보)

1. 개요 : 우라늄 농축도 측정치 비교 기준

◆ 원자력안전법 제45조, 동법 시행령 71조 (핵물질 사용/소지를 위한 허가 요건)

제71조(사용허가가 필요하지 아니한 핵연료물질) 법 제45조제1항제3호에서 "대통령령으로 정하는 종류 및 수량의 핵연료물질"이란 다음 각 호의 어느 하나에 해당하는 핵연료물질을 말한다.

1. 우라늄 238에 대한 우라늄 235의 비율이 천연혼합률과 같은 우라늄 및 그 화합물의 경우에는 우라늄의 양이 300그램 이하인 것
2. 우라늄 238에 대한 우라늄 235의 비율이 천연혼합률에 미달하는 우라늄 및 그 화합물의 경우에는 우라늄의 양이 300그램 이하인 것
3. 제1호 또는 제2호의 물질이 하나 이상 함유된 물질로서 원자로의 연료로 사용되는 물질의 경우에는 우라늄의 양이 300그램 이하인 것
4. 토륨 및 그 화합물의 경우에는 토륨의 양이 900그램 이하인 것
5. 제4호의 물질이 하나 이상 함유된 물질로서 원자로의 연료로 사용되는 물질의 경우에는 토륨의 양이 900그램 이하인 것
6. 그 밖에 방사선장해 발생의 우려가 없다고 위원회가 정하여 고시하는 것

종류		수량	농도
감손우라늄		300 grams	N/A
천연우라늄		300 grams	N/A
그 외	U-235	1×10^4 Bq	1×10^1 Bq/g
	U-238	1×10^4 Bq	1×10^1 Bq/g

천연혼합률
(0.712 %)

1. 개요 : 우라늄 농축도 측정치 비교 기준

◆ 방사능방재법 제8조, 동법 시행령 15조 (물리적방호를 위한 핵물질 등급분류)

핵물질		등급		
물질	형태	등급 I	등급 II	등급 III
1. 플루토늄	미조사(未照射)	2킬로그램 이상	500그램 초과 2킬로그램 미만	15그램 초과 500그램 이하
2. 우라늄235	우라늄 235의 농축도가 20퍼센트 이상인 미조사 우라늄	5킬로그램 이상	1킬로그램 초과 5킬로그램 미만	15그램 초과 1킬로그램 이하
	우라늄 235의 농축도가 10퍼센트 이상 20퍼센트 미만인 미조사 우라늄		10킬로그램 이상	1킬로그램 초과 10킬로그램 미만
	우라늄 235의 농축도가 천연우라늄의 농축도 초과 10퍼센트 미만인 미조사 우라늄			10킬로그램 이상
3. 우라늄 233	미조사	2킬로그램 이상	500그램 초과 2킬로그램 미만	15그램 초과 500그램 이하
4. 조사(照射)된 연료			핵분열성물질 10퍼센트 미만의 감손우라늄, 천연우라늄, 토륨 또는 저농축연료	

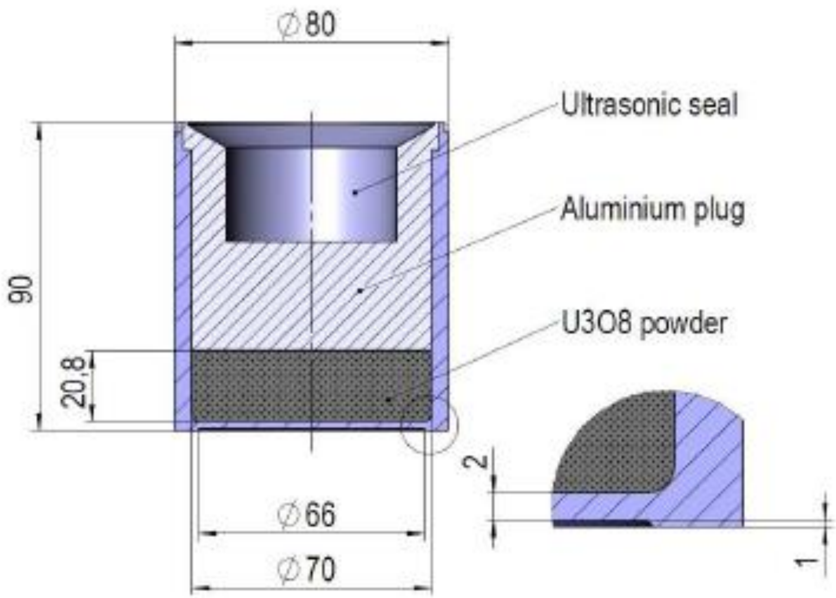
2. 물질 및 장비

KINAC
KOREA INSTITUTE OF NUCLEAR NONPROLIFERATION AND CONTROL
한국원자력통제기술원

2. 물질 및 장비

◆ CBNM Uranium Set (“EC NRM 171” or “NBS SRM 969”)

Reference material	Mass %				
	Isotope				
	^{235}U	^{232}U [Ref. 5]	^{234}U	^{236}U	^{238}U
CBNM 031	0.3166(2)	$2.1(5)x10^{-10}$	0.0020(2)	0.0146(3)	99.6669(4)
CBNM 071	0.7119(5)	$<1x10^{-11}$	0.0052(2)	<0.00002	99.2828(4)
CBNM 194	1.9420(14)	$3(3)x10^{-11}$	0.0171(2)	0.0003(1)	98.0406(18)
CBNM 295	2.9492(21)	$6(2)x10^{-11}$	0.0279(4)	0.0033(2)	97.0196(29)
CBNM 446	4.4623(32)	$3.7(3)x10^{-10}$	0.0359(3)	0.0068(2)	95.4950(32)



Can	Height	90	±	0.2
	Outer diameter	80	±	(no data)
	Edge below window	1	±	0.05
Can window	Thickness	2	±	0.02
	Deviation from flatness		±	0.1
	Diameter	66	±	0.05
U_3O_8 filling	Height for material "446"	15.8	±	0.5
	Height for other materials	20.8	±	0.5
	Diameter	70	+ / -	0.05 / 0

출처 : Collection of medium resolution gamma spectra of certified U reference materials, JRC Technical Reports, 2015

2. 물질 및 장비

◆ ORTEC Micro Detective, Electrically Cooled, HPGe Detector

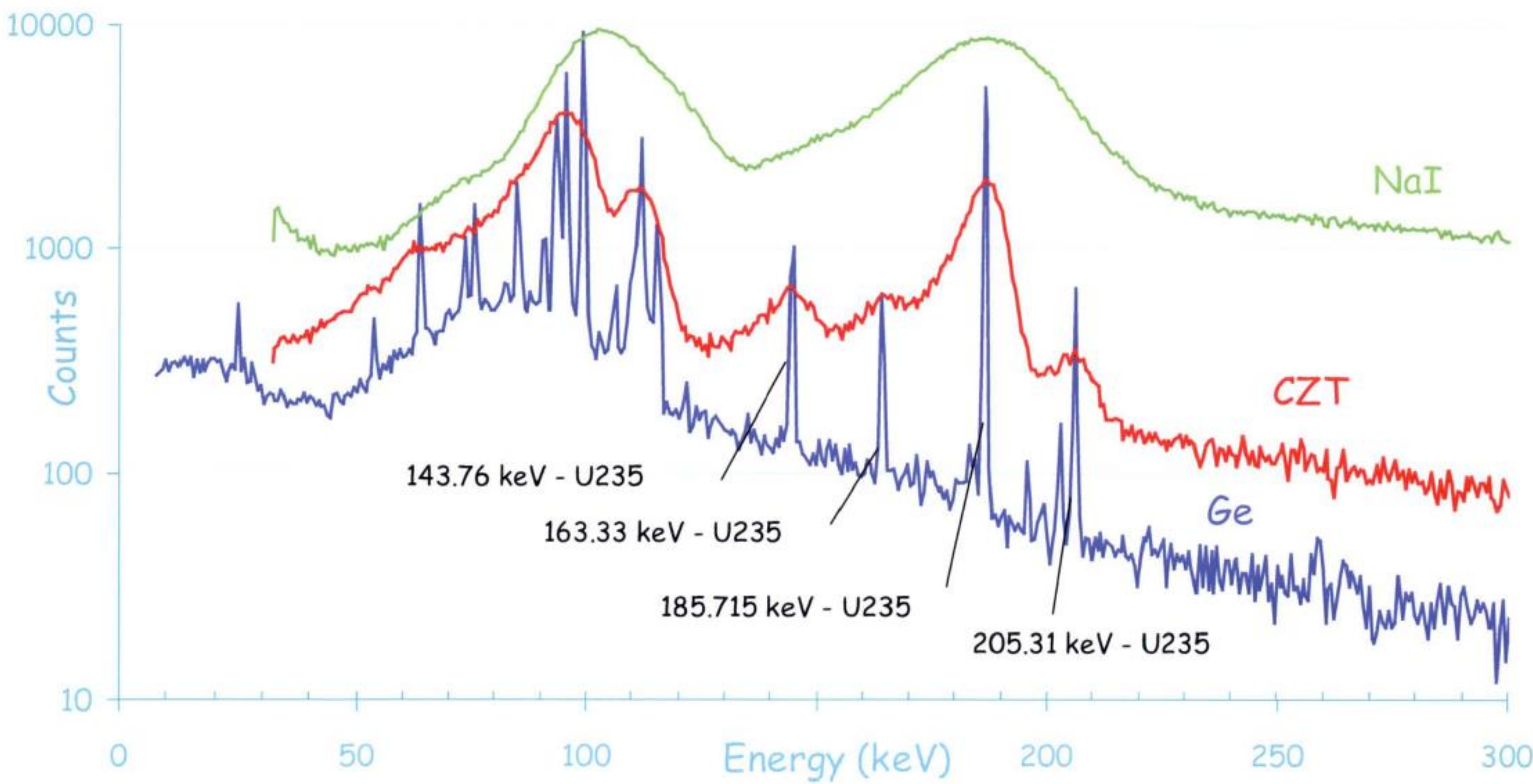
Crystal : 50mm X 30mm
Resolution : 2.0 keV at 1332 keV, 1.0 keV at 122 keV
Total MCA Channels : 8192 ch
Conversion gain : 0.36621 keV/ch

출처 : AMETEK Brochure

3. 분석 방법

3. 분석 방법

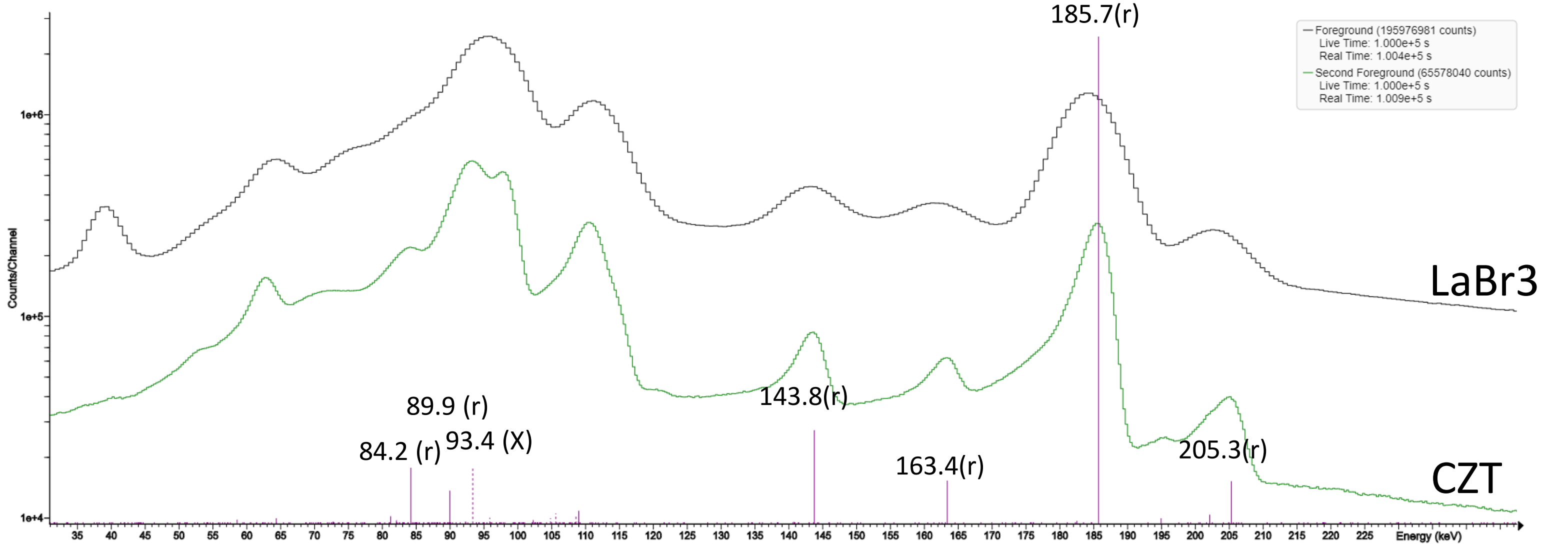
◆ Uranium Spectra (Uranium Only)

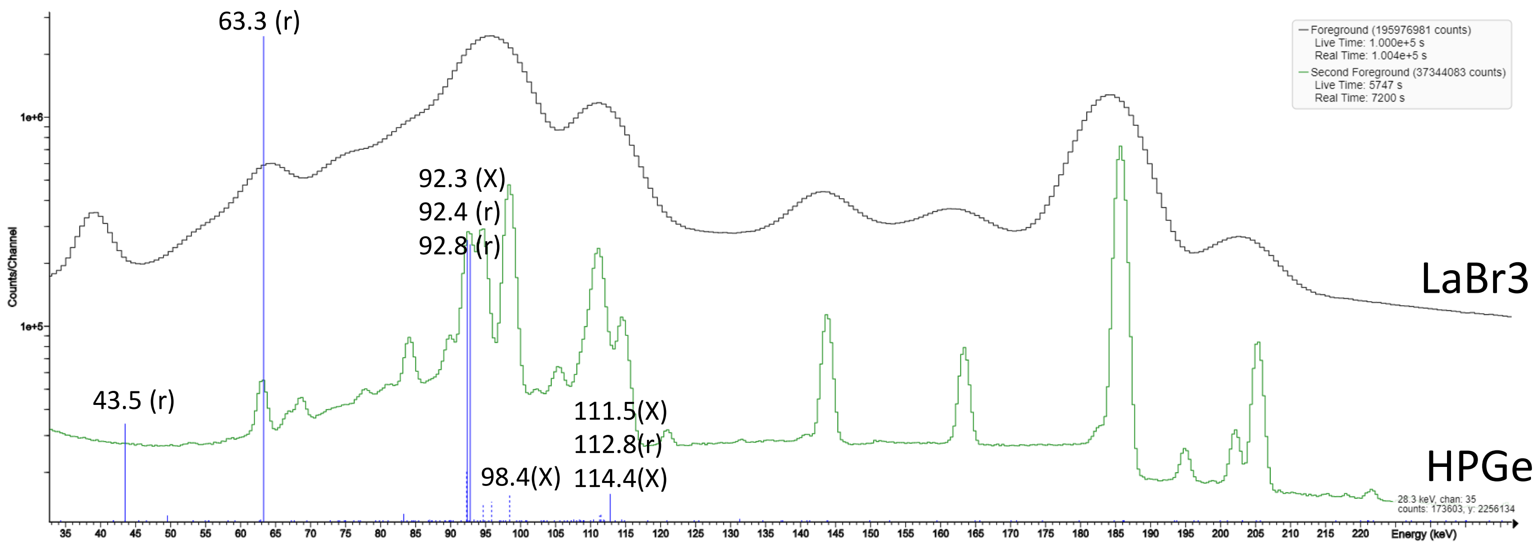


출처 : IAEA 발표 자료(Comprehensive inspection exercise at bulk handling facilities, “U-235 Enrichment measurements by gamma-ray spectroscopy”)

3. 분석 방법

◆ Uranium Spectra (2.95 w/o)





3. 분석 방법

- Peak Ratio Method

Yield Efficiency

Absolute Eff.

$$C_i(E_n) = \lambda_i N_i \xi_{i,n} \varepsilon(E_n)$$

$$C_{U235}(E_{186keV}) = \lambda_{U235} N_{U235} \xi_{U235,186keV} \varepsilon(E_{186keV})$$

$$C_{U238}(E_{766keV}) = \lambda_{U238} N_{U238} \xi_{U238,766keV} \varepsilon(E_{766keV})$$

Relative Eff. (or Intrinsic Eff.)

$$f_{238}^{235} = \frac{N_{235}}{N_{238}} = \frac{C_{235}(E_{186})}{C_{238}(E_{766})} \cdot \frac{\lambda_{238}}{\lambda_{235}} \cdot \frac{\xi_{238,766}}{\xi_{235,186}} \cdot \frac{\eta(E_{766})}{\eta(E_{186})}$$

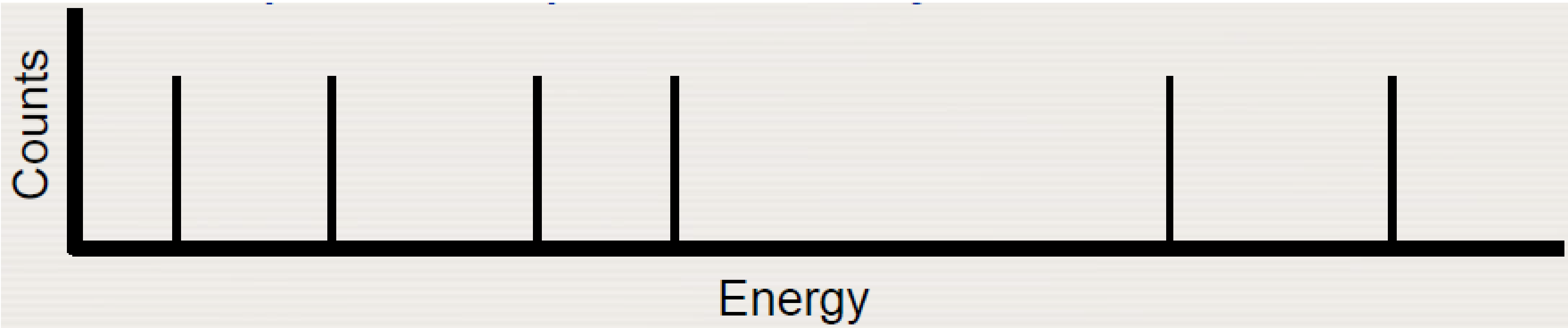
Generalization

$$f_k^i = \frac{N_i}{N_k} = \frac{C(E_i^n)}{C(E_k^m)} \cdot \frac{\lambda_k}{\lambda_i} \cdot \frac{\xi(E_k^m)}{\xi(E_i^n)} \cdot \frac{\eta(E^m)}{\eta(E^n)}$$

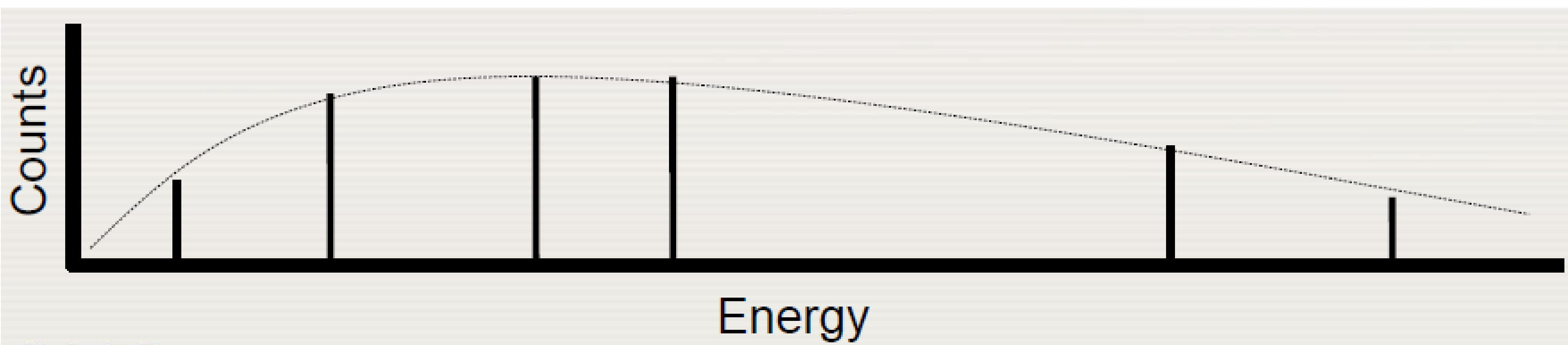
3. 분석 방법

◆ Relative Efficiency Curve

- Assume : Same branching ratio, 100% efficient detector

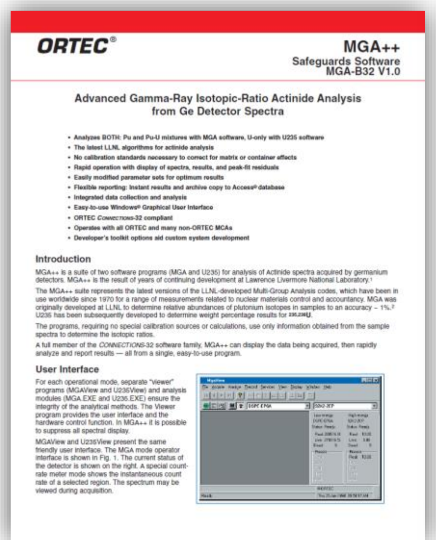


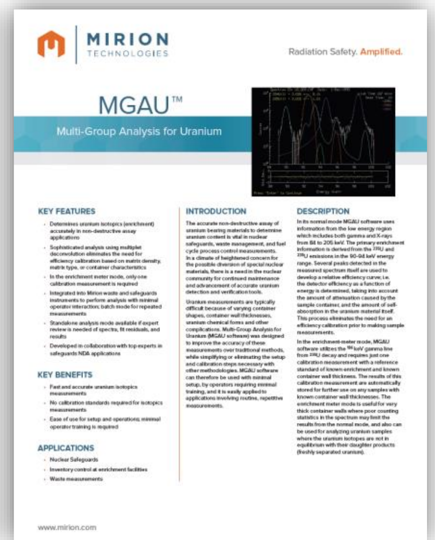
- Real : different branching ratio by isotopes, different efficient detector by energy

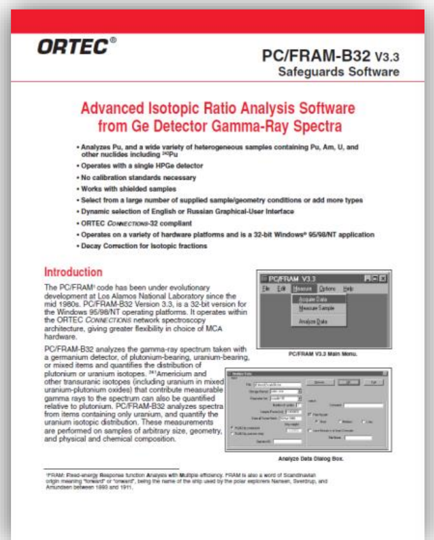


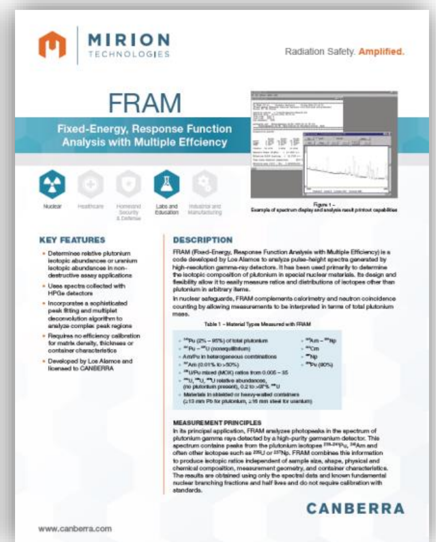
◆ Comparisons of the commercially utilizing analysis software

구분	MGA	FRAM
전체명칭	Multi Group Analysis	Fixed energy Response functions Analysis with Multiple efficiency
개발기관	Lawrence Livermore National Laboratory	Los Alamos National Laboratory
판매사	ORTEC MGA++ V1.06 (MGA ~ 100 keV, U235 < 300 keV, MGAHI : 200-1,000 keV)	ORTEC FRAM v5.2
	CANBERRA MGA v4.2	CANBERRA PC/FRAM v4.4



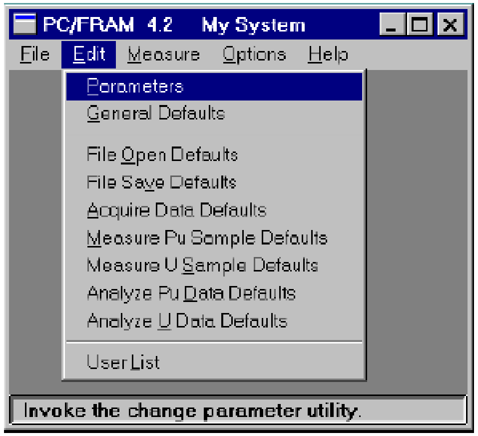






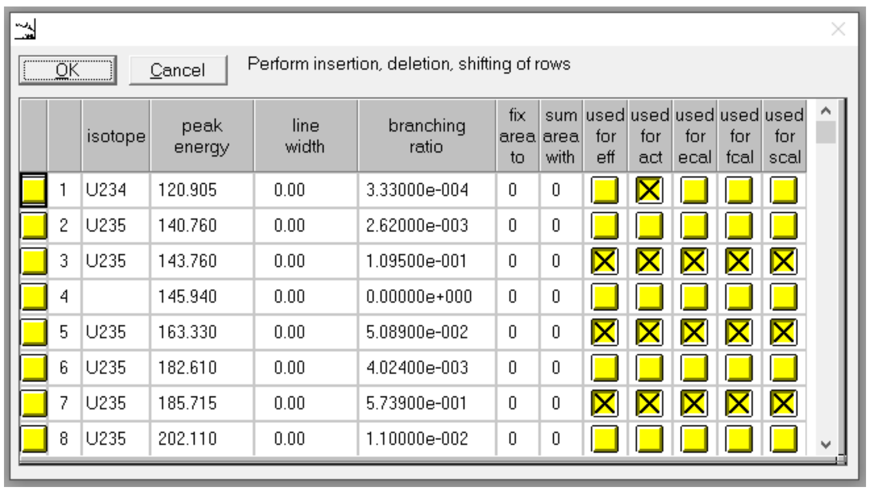
3. 분석 방법

◆ Parameter Set (Analysis Method)



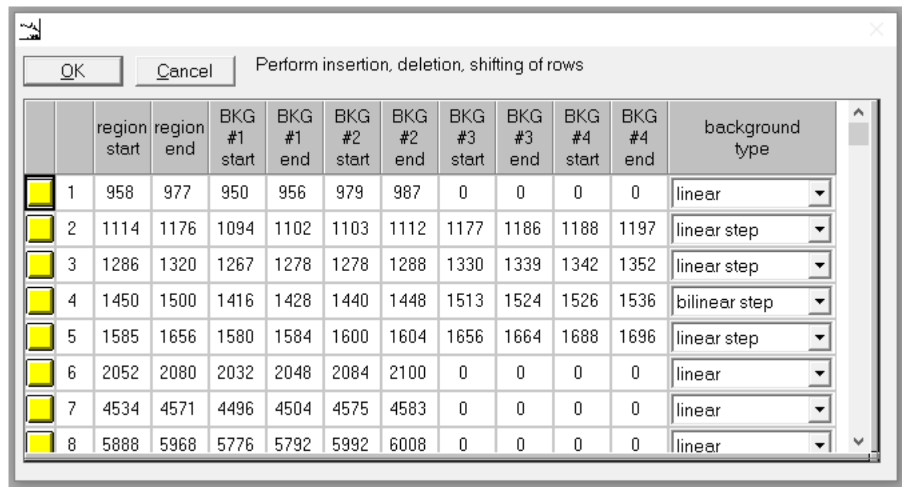
Parameter List

Name	Descriptions
U100keVLEU	Planar, E<=10%, 100keV
U100keVHEU	Planar, E>=2%, 100keV
ULow121_1001Cx	Coaxial, E<70%, 121-1001keV
UHi121_1001Cx	Coaxial, E>10%, 121-1001keV
ULowENR	Coaxial, E<=50%, 1-1024keV
UHiENR	Coaxial, E>20%, 1-1024keV



	isotope	peak energy	line width	branching ratio	fix area to	sum area with	used for eff	used for act	used for ecal	used for fcal	used for scal
1	U234	120.905	0.00	3.33000e-004	0	0		X			
2	U235	140.760	0.00	2.62000e-003	0	0					
3	U235	143.760	0.00	1.09500e-001	0	0	X	X	X	X	X
4		145.940	0.00	0.00000e+000	0	0					
5	U235	163.330	0.00	5.08900e-002	0	0	X	X	X	X	X
6	U235	182.610	0.00	4.02400e-003	0	0					
7	U235	185.715	0.00	5.73900e-001	0	0	X	X	X	X	X
8	U235	202.110	0.00	1.10000e-002	0	0					

Peaks to be used in an analysis



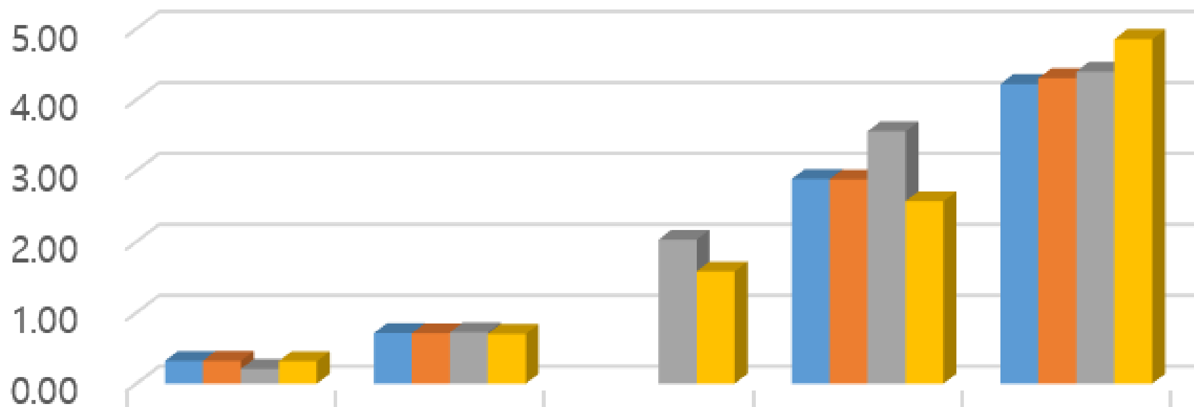
	region start	region end	BKG #1 start	BKG #1 end	BKG #2 start	BKG #2 end	BKG #3 start	BKG #3 end	BKG #4 start	BKG #4 end	background type
1	958	977	950	956	979	987	0	0	0	0	linear
2	1114	1176	1094	1102	1103	1112	1177	1186	1188	1197	linear step
3	1286	1320	1267	1278	1278	1288	1330	1339	1342	1352	linear step
4	1450	1500	1416	1428	1440	1448	1513	1524	1526	1536	bilinear step
5	1585	1656	1580	1584	1600	1604	1656	1664	1688	1696	linear step
6	2052	2080	2032	2048	2084	2100	0	0	0	0	linear
7	4534	4571	4496	4504	4575	4583	0	0	0	0	linear
8	5888	5968	5776	5792	5992	6008	0	0	0	0	linear

Regions by Channel

4. Results

4. Results

◆ Calculated U-235 Values



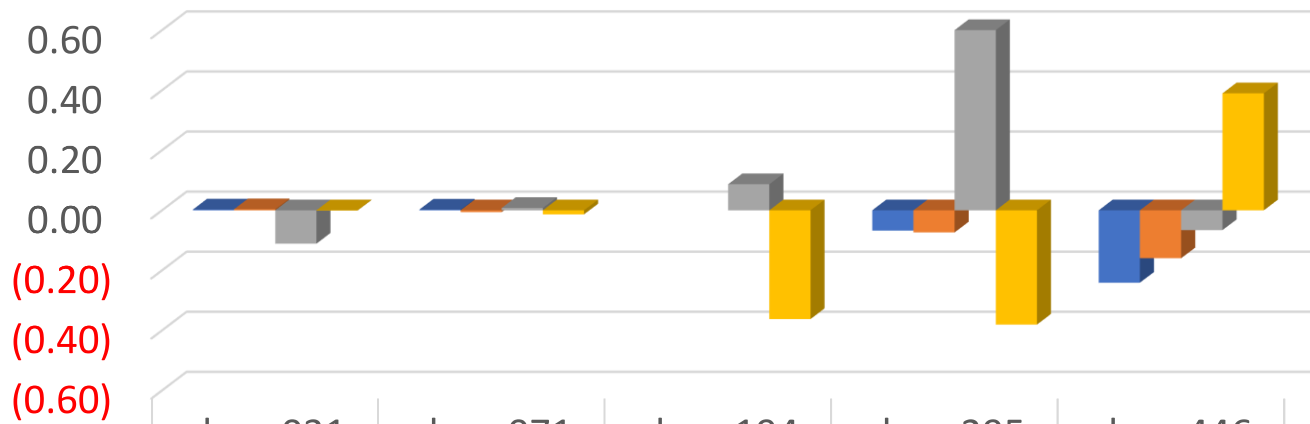
	cbnm031	cbnm071	cbnm194	cbnm295	cbnm446
Case1	0.3192	0.7096	N/A	2.8816	4.2212
Case2	0.3202	0.7060	N/A	2.8757	4.3028
Case3	0.2054	0.7198	2.0289	3.5531	4.3963
Case4	0.3157	0.6983	1.5798	2.5686	4.8519

Case1 Case2 Case3 Case4

	Source to Detector Distance	Measuring time
Case 1	10 cm	16 hours
Case 2	2 cm	16 hours
Case 3	10 cm	5 minutes
Case 4	2cm	5 minutes

4. Results

◆ Relative Deviations (Mea - Ref)



	cbnm031	cbnm071	cbnm194	cbnm295	cbnm446
Case1	0.00	0.00	N/A	(0.07)	(0.24)
Case2	0.00	(0.01)	N/A	(0.07)	(0.16)
Case3	(0.11)	0.01	0.09	0.60	(0.07)
Case4	(0.00)	(0.01)	(0.36)	(0.38)	0.39

Case1 Case2 Case3 Case4

	Source to Detector Distance	Measuring time
Case 1	10 cm	16 hours
Case 2	2 cm	16 hours
Case 3	10 cm	5 minutes
Case 4	2cm	5 minutes

5. Conclusions

KINAC
KOREA INSTITUTE OF NUCLEAR NONPROLIFERATION AND CONTROL
한국원자력통제기술원

5. Conclusion

◆ **천연 우라늄 이하의 농축도에서는 측정조건에 관계없이 농축도 예측 정확도가 높음**

◆ Case 3**와** 4**는 계측시간이 충분하지 않은 것이 예측 오차를 크게 만든 이유로 판단됨**

<참조값과의 차이>

- Case3의 CBNM031에서 약 - 0.11 w/o,
  CBNM295에서 약 + 0.60 w/o
- Case4의 CBNM194에서 약 - 0.36 w/o
  CBNM446에서 약 - 0.38 w/o
  CBNM446에서 약 + 0.39 w/o

◆ **특히, 가장 불리한 계측조건**(Case3, 10 cm, 5 minutes)**에서도**
Ref 2.95w/o**에서** 0.6w/o **차이 존재**.

- 현장에서 신속하게 불법여부를 판정하는데 미치는 영향은 없다고 볼 수 있음. 다만, 천연우라늄 부근(0.712 ∓ 0.6)에서는 동 방법이 판정에 어려움이 있을 수 있음.

- 충분한 계측시간과 가까운 거리를 확보할 수록 예측 정확도를 높일 수 있음.

감사합니다

Q&A