

# FRAM을 이용한 우라늄 농축도 분석의 신뢰성 평가 연구

엄성호\*, 정혜균†, 박준식\*, 박세환\*, 신희성\*

\*한국원자력연구원, †한국과학기술원

2011년 2월 1일 접수 / 2011년 3월 23일 1차수정 / 2011년 3월 24일 채택

보다 정확한 우라늄 농축도 분석은 핵물질 관리를 위하여 중요하다. 본 연구에서는 감마선을 이용한 우라늄 농축도 분석에서 시료와 검출기 사이에 차폐체가 있는 경우와 측정시간 변화에 따른 분석결과에 대한 정확성 평가 및 오차 분석을 수행하였다. 우라늄 농축도를 분석하기 위하여 FRAM (Fixed energy Response function Analysis with Multiple efficiencies)을 이용하였다. FRAM에 의한 분석결과와 화학 분석 결과와의 비교를 통해 평가되었다. 연구결과 선원과 검출기 사이에 차폐체가 존재할 경우 차폐체의 두께변화에 따른 감마선의 세기는 지수함수 형태로 감소하며 감마선에너지 피크의 반치폭 (FWHM : Full Width at Half Maximum)은 차폐체의 두께에 영향을 거의 받지 않는 것을 보였다. 따라서 시료와 검출기 사이에 차폐체가 있는 경우의 우라늄 농축도 분석에서 FRAM을 이용한 감마선분광 분석은 유용하게 활용될 수 있다. 본 연구 결과는 차폐체 안에 우라늄이 있는 경우 핵물질 분석에 기여할 수 있을 것이 기대된다.

중심어: FRAM, uranium, enrichment

## 1. 서론

핵연료에 포함된 핵물질 양을 정확하게 계량하는 기술은 핵연료 관련된 산업 및 연구의 핵투명성 확보를 위하여 대단히 중요한 기술이다. 우라늄에 포함된 핵분열 물질을 분석할 수 있는 기술 중 하나는 감마선 측정을 이용하는 방식이다. 즉, 감마선 에너지 스펙트럼을 측정하고 이를 이용하여 우라늄에 포함된 핵분열 물질,  $^{235}\text{U}$ 의 비를 구하는 방식이다. 우라늄 농축도를 구하는 일반적인 방식으로 Infinite Thickness 법을 들 수 있다 [1]. 이 방식에서는 검출기와 우라늄 시료 사이에 콜리메이터를 두고  $^{235}\text{U}$ 에서 방출되는 186 keV 감마선을 측정한다. 이때 검출기는 콜리메이터를 통하여 186 keV 감마선의 평균 이동 거리에 비하여 충분히 두꺼운 우라늄 시료에서 발생하는 감마선을 측정하게 된다.

감마선 에너지 스펙트럼을 이용하여 우라늄 농축도를 구하는 방식으로 방식 중 하나는 분석 코드인 FRAM (Fixed energy Response function Analysis with Multiple efficiencies)를 이용하는 것이다 [2].

FRAM은 미국의 LANL (Los Alamos National Laboratory)에서 개발된 핵물질 분석을 위한 감마선 분석용 프로그램이다. 우라늄이나 플루토늄을 분석을 위하여

쓰이는 감마선 분석코드로는 FRAM과 더불어 LLNL (Lawrence Livermore National Laboratory)에서 개발한 MGA (Multi Group Analysis)를 들 수 있다 [3]. FRAM 분석에서는 감마선 피크 영역 분석을 위하여 별도의 감마선 선원을 이용하지 않고 우라늄이나 플루토늄에서 발생하는 감마선을 이용하여 검출 효율 분석을 수행한다. FRAM에서 검출 효율을 결정하는 방식에는 물리적 모델 방식과 실험적 모델 방식 두 가지가 있다. 분석 프로그램은 에너지가 근접한 여러 개의 감마선이 겹친 경우 이를 효율적으로 구분하여 각각의 감마선 피크의 크기를 결정할 수 있다. 또한 시료의 핵물질 성분비가 균일하지 않을 경우에도 FRAM을 이용하여 분석할 수 있다. FRAM 분석에서는 MGA와는 달리 사용자가 분석에 필요한 변수를 지정할 수 있으므로 보다 다양한 경우에 효과적인 분석이 가능하다는 장점이 있다.

핵물질을 포함한 시료가 차폐체에 싸여 있는 경우 핵물질을 분석하고 분석 오차에 대하여 얻는 것은 대단히 중요하다. 감마선의 경우 원자번호가 높은 차폐체에 의하여 쉽게 감소되기 때문에 시료 주변에 차폐체가 있는 경우 측정되는 감마선 스펙트럼의 변화가 생길 수 있으며, 정확한 분석을 위하여 이러한 변화에 의한 분석 결과의 오차에 대한 정보를 필요로 한다.

본 연구에서는 측정 시간을 달리하며 우라늄 시료의 감마선 에너지 스펙트럼을 측정하고 핵분열성 우라늄 동위원소 비를 분석하고 이를 화학 분석으로 얻은 결과와

책임저자 : 박세환, ex-spark@kaeri.re.kr  
대전시 유성구 대덕대로 1045 한국원자력연구원 원자력융합기술개발부

비교하였다. 또한 차폐물의 두께를 달리하면서 감마선의 세기 및 반치폭 (FWHM : Full Width at Half Maximum)의 변화를 알아보았다. 이를 통하여 우라늄이 차폐체에 쌓인 경우 감마선 분석의 오차 변화에 대하여 고찰하였다.

## 2. 실험 및 분석

### 1) FRAM을 이용한 우라늄 농축도 결정 오차 분석

본 실험에서 방사선원은 천연 우라늄과 저농축우라늄을 이용하였으며, 검출기로는 게르마늄 감마선 검출기를 이용하였다. 저농축 우라늄을 이용하여 분석 시간을 달리 하며 감마선 에너지 스펙트럼을 측정하고 각 실험 데이터에 대하여 우라늄 농축도를 분석하였다. 실험에 이용된 시료는 농축도 2.4 ~ 4.4 사이의 저농축 우라늄 (LEU : Low Enriched Uranium) 3가지 시료이며, 각 시료의 무게는 300 g, 펠렛 형태 (지름 : 8.24 mm, 길이 : 10.16 mm)로 플라스틱 시료병 안에 보관된 상태이다. 우라늄에서 발생하는 감마선 측정에 쓰인 검출기로는 HPGe (High Purity Germanium Detector, ORTEC GC2518) 검출기이며, 측정시 감마선 검출기에 +3000 V를 인가한다. 일반적으로 우라늄 시료 농축도를 결정하기 위해서는 감마선 검출기와 시료 사이에 콜리메이터를 두어서 감마선을 측정하였다. 그러나, FRAM을 이용할 경우 농축도 결정을 위하여 콜리메이터를 이용할 필요가 없으므로 본 실험에서 감마선 검출기와 우라늄 시료 사이에 콜리메이터

를 두지 않았다. 감마선 검출기는 검출기가 위방향을 향하도록 위치하였으며, 감마선 검출기를 INVS (INVENTORY Sample neutron coincidence counter) 아래에서 중앙의 시료 장착용 홀에 위치하도록 하였다. INVS는 미국의 LANL에서 개발된 핵물질 계량 장비로써 주로 플루토늄에서 발생하는 중성자를 동시 계수법으로 결정하여 핵물질량을 계량하는 장비이다 [4]. 시료는 INVS의 중앙에 위치하였으며, 시료에서 발생하는 감마선을 HPGe 검출기를 이용하여 측정하였다. INVS와 HPGe 검출기를 결합하여 설치한 이유는 시료에서 발생하는 중성자와 감마선을 동시에 측정함으로써 보다 정확한 핵물질 계량을 위해서이다. 감마선과 중성자 동시 측정에 의한 결과는 추후 발표할 예정이다.

그림 1은 우라늄 핵물질 측정을 위한 측정 장비를 보여주고 있다. 측정 시간을 30 분, 1 시간, 2 시간으로 변화하며 감마선 스펙트럼을 측정하였다. 하나의 시료에 대하여 총 5회의 측정을 진행하여 우라늄 분석치의 분석 편차를 구하였다. 그림 2는 측정된 감마선 스펙트럼을 보여주고 있다.  $^{235}\text{U}$ 에서 주로 발생하는 감마선인 186 keV, 205 keV 등이 측정되었으며,  $^{238}\text{U}$ 에서 발생하는 감마선인 743 keV, 766 keV, 1001 keV 감마선을 측정되었다. 측정시 스펙트럼의 dead time은 6.3 ~ 7.5% 사이에서 변화하였다. 우라늄 농축도가 높아질수록 dead time이 약 0.4%씩 높아졌다. 일반적으로 우라늄 농축도 분석을 위하여 이용되는 감마선은 186 keV로써 그림 3는 농축도에 따른 감마선 피크 변화를 보여준다. 농축도에 따라서 피크의 크기가 변화함을 알 수 있다.



Fig. 1. Setup of gamma-ray detector.

HPGe Detector(LEU)

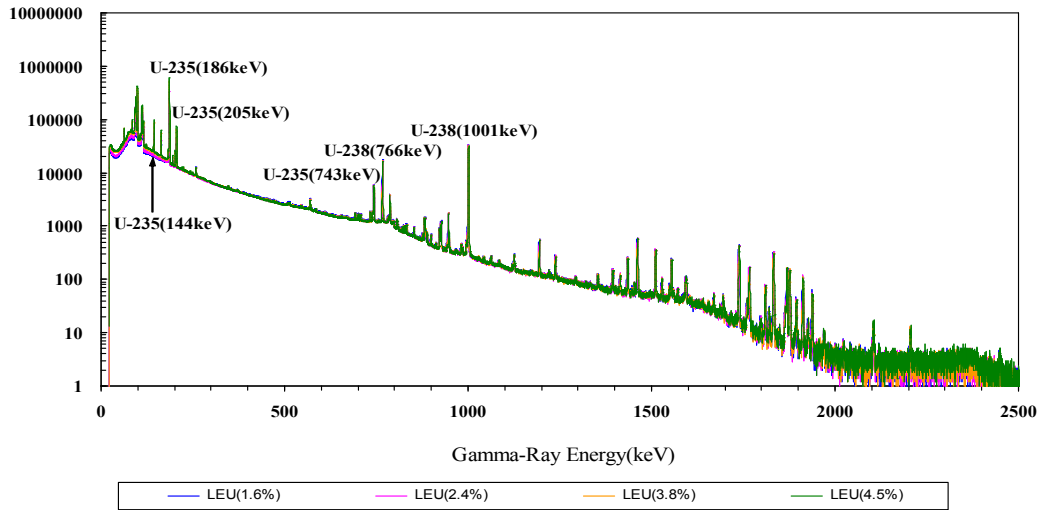


Fig. 2. Gamma-ray energy spectra of LEU (Low Enriched Uranium).

HPGe Detector(U-235)

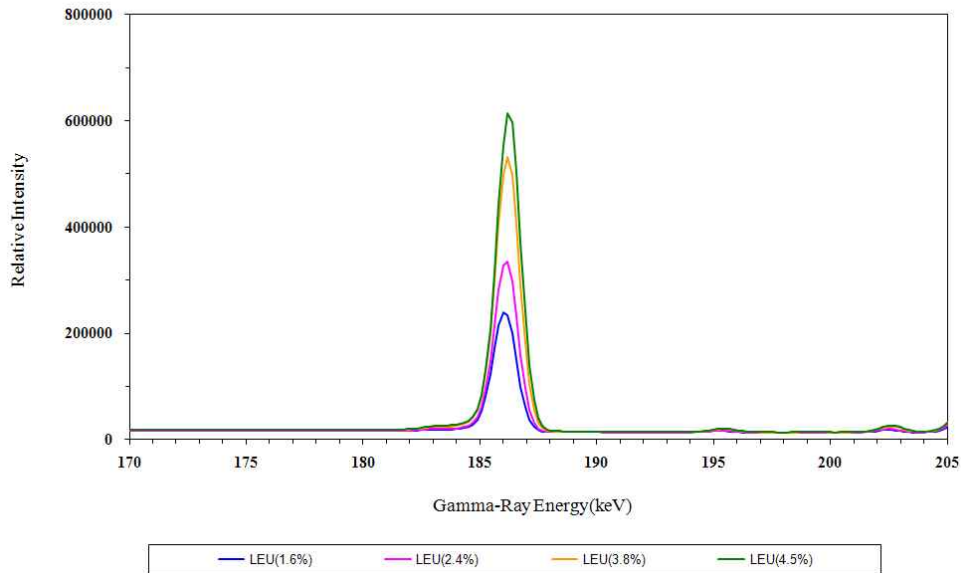


Fig. 3. 186-keV gamma-ray peaks from uranium samples. Numers inside the parentheses are uranium enrichment.

FRAM을 이용하여 각 스펙트럼의 농축도를 분석하였다. 분석에 이용된 FRAM 버전은 PC/FRAM 4.2이다. FRAM을 이용한 우라늄 농축도 분석시 분석에 필요한 감마선을 지정해 주어야 한다. 검출 효율 분석을 위하여 144 keV, 163 keV, 186 keV, 205 keV (이상 <sup>235</sup>U), 258 keV, 743 keV, 766 keV, 880 keV, 883 keV, 946 keV, 1001 keV (이상 <sup>238</sup>U) 감마선을 이용하였다 상대 검출효율을 실험적 모델을 이용하여 결정하였으며, 각 스펙트럼을 이용하여 농축도를 결정하였다.

감마선 분석에 의하여 결정된 시료의 농축도를 비교하기 위하여 시료를 화학분석하고 이를통하여 얻어진 우라

늄 농축도를 감마선 분석에 의하여 결정된 농축도와 비교하였다. 그림 4는 측정 시간에 따른 화학분석에 의하여 결정된 농축도와 감마선 분석에 의하여 결정된 농축도 사이의 관계를 보여주고 있다. 측정 시간을 길게 함으로써 감마선 분석에 의하여 얻어진 우라늄 농축도와 화학 분석에 의하여 얻어진 우라늄 농축도 사이의 차이를 줄일 수 있었다. 그림에서 보는 바와 같이 두 분석법에 의하여 얻은 농축도 차이가 0.6%에서 4.8%까지 변화하였다. 2시간 감마선을 측정할 경우 감마선으로 우라늄 농축도를 결정한 경우 화학 분석에 의한 농축도와 1.5% 미만의 차이를 가지고 우라늄 농축도를 결정할 수 있었다.

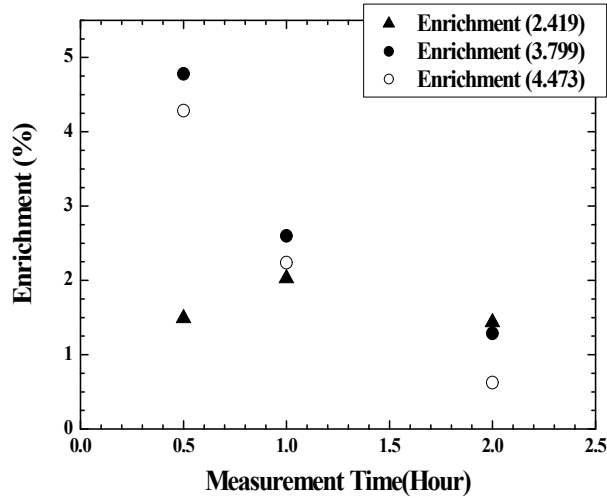


Fig. 4. Enrichments determined with FRAM analysis.

Table 1. Enrichments of Natural Uranium determined with PC/FRAM.

측정 경우	농축도 (%)	오차 (%)
1	0.6982	0.014
2	0.6594	0.014
3	0.6601	0.015
4	0.6882	0.015
평균	0.6764	

동일한 분석 변수를 이용하여 천연 우라늄의 농축도를 분석하였다. 천연 우라늄 시료는 200 g으로 동일한 측정 장치를 이용하여 시료에서 발생하는 감마선을 측정하였다. 각 측정은 2시간 동안 진행되었으며, 측정 dead time은 2.2%이다. 총 4회의 측정을 반복하였다. 측정 결과는 표 1에 표기하였다. PC/FRAM 분석에 의한 오차는 2% 정도였으며, 평균 0.7% 로 알려진 천연 우라늄의 농축도에 근접하는 결과를 얻었다.

2) 차폐체의 의한 우라늄 감마선 스펙트럼 변화 분석

우라늄 시료와 검출기 사이에 차폐체를 두고 차폐체의 두께를 변화시키면서 차폐체에 의한 우라늄 감마선 스펙트럼의 변화를 측정하였다. 측정은 천연 우라늄 2 kg 시료를 이용하여 진행하였다. 차폐물 두께별 측정 실험에서는 우라늄 시료와 검출기의 거리는 30 cm로 고정시켰다. 차폐물로는 스테인레스 강판(밀도 : 7.8 gcm<sup>-3</sup>)을 사용하였으며, 1 cm 두께의 강판을 각각 한 장, 두 장, 세 장으로 겹쳐서 총 두께가 1 cm, 2 cm, 3 cm가 되도록 한 후 실험하였다. 각각의 실험은 똑같은 조건으로 3회씩 반복하였으며 1회의 실험시 1시간 동안 감마선을 측정하였다.

검출기로부터 얻어진 데이터에서 감마선 피크의 수와 반치폭을 얻을 수 있었다. 이렇게 얻은 백그라운드를 제외한 감마선 수는 감마선의 세기에 비례하는데, 대략적으로 감마선 감쇄 이론에 따르면 다음과 같은 식으로 표기될 수 있다.

$$I = I_0 e^{-\mu t} \tag{1}$$

$I$  : the number of transmitted photons

$I_0$  : the number without an absorber

$\mu$  : attenuation coefficient

$t$  : absorber thickness in g/cm<sup>2</sup>

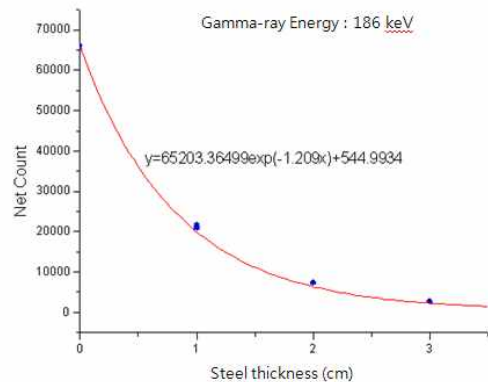


Fig. 5. Gamma-ray counts as a function of absorber thickness.

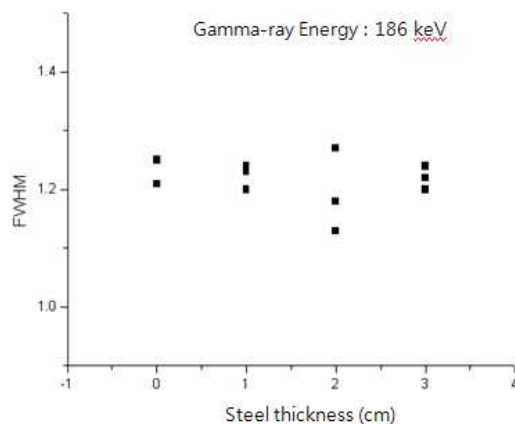


Fig. 6. FWHMs of gamma peak as a function of absorber thickness.

따라서 측정된 감마선 수는 백그라운드를 고려하여  $y = Ae^{-kx} + B$ 와 같은 분포를 만족할 것이라고 예상할 수 있다. 여기서는 Origin 7.5를 이용하여 데이터를 위와 같은 형태의 식과 비교하여  $A$ 와  $B$ 를 구하였고,  $k$ 는 스테인레스 강판의 감소 계수 (attenuation coefficient)에 밀도를 곱한 값이다.  $x$ 는 스테인레스 강판의 두께(cm)이다.

우리가 관심 있는 방사선원은  $^{235}\text{U}$ 와  $^{238}\text{U}$ 이므로, 측정하여 얻은 스펙트럼 중 이 두 동위원소에서 방출되는 감마선 에너지에 대해서 분석하였다. 분석한 감마선의 에너지는  $^{235}\text{U}$ 에 해당하는 peak 에너지인 144 keV, 163 keV, 186 keV와  $^{238}\text{U}$ 에 해당하는 258 keV, 743 keV, 766 keV, 1001 keV로 총 7개의 값에 대하여 분석하였다. 투과된 감마선수는 두께에 따라 지수함수 형태인  $y = Ae^{-kx} + B$  식으로 감소함을 알 수 있다. 한편 측정된 감마선 피크의 반치폭은 차폐물의 두께에 따라

별다른 경향성을 보이지 않는다는 것을 알 수 있었다. 차폐체 두께에 따른 감마선수와 반치폭은 각각 그림 5와 그림 6에서 확인할 수 있다.

또한 EGSnrc code를 이용하여 흡수체 두께 변화에 대한 투과 감마선속 변화에 대한 시뮬레이션을 수행하고 이를 지수함수와 비교하였다. 강판의 두께가 1 cm, 2 cm, 3 cm일 때 각각의 에너지별 지수함수 예측값과 시뮬레이션 결과 값, 두 예측치 차이에 대한 편차(deviation)를 표 2~4에 나타내었다. 두 수치를 비교한 오차(%)의 경향을 통해서 차폐물의 두께가 얇을수록, 감마선의 에너지가 클수록 시뮬레이션과 단순한 지수 함수 기술이 일치함을 알 수 있다. 본 실험과 같이 콜리메이터를 사용하지 않은 감마선 측정의 경우 높은 에너지의 감마선 및 얇은 차폐물 두께에서 감마선 투과를 기술하기 위하여 지수 함수 형태를 적용하는 것이 유용함을 알 수 있다.

Table 2. Gamma-ray Counts from Monte-Carlo Simulation and Exponential Shape Estimation. The Absorber Thickness is 1 cm.

$\gamma$ -ray Energy(keV)	지수함수 I(1cm)/I <sub>0</sub> (%)	Monte Carlo I(1cm)/I <sub>0</sub> (%)	Deviation(%)
144	20.209852	22.90384	13.33007
163	25.339646	27.28139	7.662877
186	29.849563	32.05195	7.378284
258	39.219348	39.16012	0.151009
743	58.197953	58.20896	0.018904
766	58.69944	55.91689	4.74033
1001	62.723124	63.20321	0.765412

Table 3. Gamma-ray Counts from Monte-Carlo Simulation and Exponential Shape Estimation. The Absorber Thickness is 2 cm.

$\gamma$ -ray Energy(keV)	지수함수 I(2cm)/I <sub>0</sub> (%)	Monte Carlo I(2cm)/I <sub>0</sub> (%)	Deviation (%)
144	4.084381	5.429307	32.92852
163	6.420976	7.374315	14.84725
186	8.909964	9.714286	9.027218
258	15.38157	15.80744	2.768706
743	33.87002	32.83582	3.053428
766	34.45624	32.61066	5.35631
1001	39.3419	36.33754	7.63654

Table 4. Gamma-ray Counts from Monte-Carlo Simulation and Exponential Shape Estimation. The Absorber Thickness is 3 cm.

$\gamma$ -ray Energy(keV)	지수함수 I(3cm)/I <sub>0</sub> (%)	Monte Carlo I(3cm)/I <sub>0</sub> (%)	Deviation (%)
144	0.8254473	1.242584	50.53458
163	1.6270526	1.870384	14.95532
186	2.6595852	3.493506	31.35531
258	6.0325523	6.401502	6.115984
743	19.711657	18.34943	6.910772
766	20.225621	19.55736	3.304023
1001	24.676471	23.938	2.992601

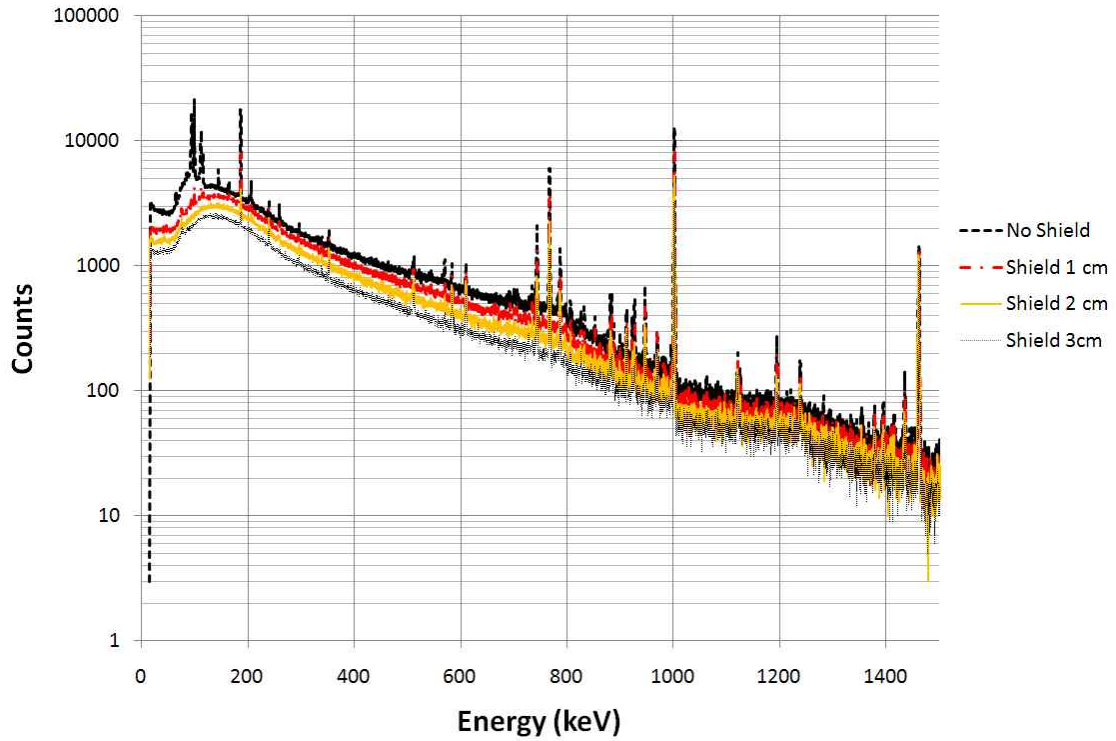


Fig. 7. Gamma-ray spectra measured with variuos absorbers.

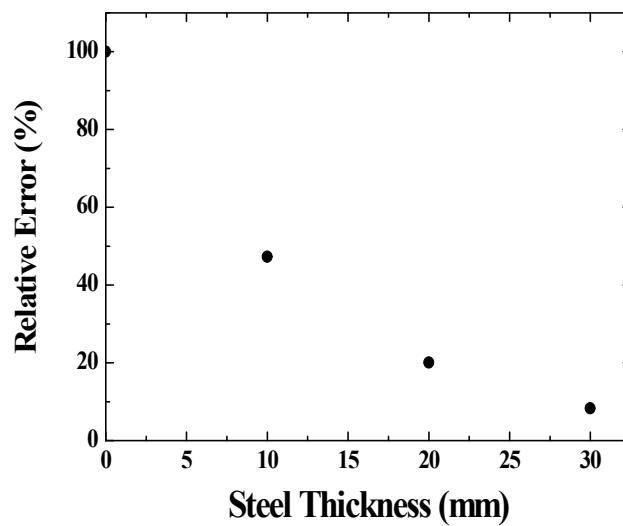


Fig. 8. Deviation of uranium enrichment at various absorber thickness.

### 3) 차폐체의 의한 FRAM 우라늄 농축도 분석 결과 분석

차폐체의 두께를 달리하며 측정된 감마선 에너지 스펙트럼을 측정하고 이에 대하여 FRAM 분석을 수행하였다. 차폐체 두께에 의한 스펙트럼 변화는 그림 7에 나타내었다. 동일한 농축도의 우라늄을 측정할 경우 분석치 변화에 대하여 연구하였다. FRAM 분석에 이용된 변수는 앞 절에서 이용된 분석 변수를 이용하였다. FRAM을 이용하여 얻어진 농축도 변화는 그림 8에 표기하였다. 차폐체 없는 경우 농축도에 대하여 상대 농축도 변화를 표시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 10 mm 이상의 강철 차폐체에 대하여 농축도 오차가 크게 변화함을 알 수 있다. 일반적으로 수 mm 두께의 차폐체에 대하여 FRAM을 이용하여 농축도를 분석한 경우 오차가 크지 않다고 알려져 있다. <sup>235</sup>U에서 발생하는 감마선은 주로 200 keV 이하에 집중되어 있으며, 일반적으로 100 keV 영역의 감마선 분석 시 적절한 두께 10~12 mm 정도가 감마선 분석의 한계로 알려져 있다 [5]. 본 실험과 같이 수 cm 두께의 스페인레스 차폐체가 우라늄 시료와 검출기 사이에 놓일 경우 오차는 차폐체의 두께에 따라 크게 증가함을 알 수 있다.

### 3. 결론

핵물질이 포함된 시료의 핵물질 성분비를 구할 수 있는 방법 중 하나는 감마선 스펙트럼을 측정함으로써이다. 즉 핵물질은 특정한 에너지의 감마선을 방출하고 감마선을 측정함으로써 분석이 가능하다. 본 연구에서는 우라늄 시료와 검출기 사이에 차폐체가 있을 경우 FRAM을 이용한 감마선 분석 및 에너지 스펙트럼 변화에 대한 실험 및 시뮬레이션을 수행하였다. 연구 결과 차폐체가 있을 경우 감마선의 에너지 스펙트럼 반치폭은 차폐체에 영향을 거의 받지 않음을 알 수 있다. 또한 차폐체를 통과한 감마선의 세기는 지수함수 형태로 쉽게 예상할 수 있으며, 감마선의 에너지가 높을수록 지수함수로 기술한 경우 오차가 감소함을 알 수 있었다. 스페인레스 차폐체의 두께가 10 mm 이상인 경우 FRAM을 이용한 우라늄 농축도를 결정할 경우 오차는 증가함을 알 수 있었다. 본 연

구 결과는 차폐체 안에 있는 우라늄의 핵물질 분석시 유용하게 이용될 것이 기대된다.

### 감사의 글

본 연구는 원자력중장기 연구 개발 사업 및 2009년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제(과제번호 : 2009T100100650)의 일환으로 수행되었습니다.

### 참고문헌

1. Sprinkler JK. Low-resolution gamma-ray measurements of uranium enrichment. *Appl. Radiat. Isot.* 1997;48:1525-1528.
2. Sampson TE. Gamma-ray isotopic analysis development at Los Alamos. LA-13667-MS. 1999.
3. Gunnink R. MGA: A gamma-ray spectrum analysis code for determining plutonium isotopic abundances, Vol. 1: methods and algorithms. UCRL-LR-103220. 1990.
4. Miller MC, Menlove HO, Russo PA. A high-efficiency neutron coincidence counter for small samples. LA-UR-91-3081. 1991.
5. Sampson TE. Plutonium Isotopic Analysis using PC/FRAM. *Passive Nondestructive Assay Addendum*. 2007.

## Uranium Enrichment Analysis with Gamma-ray Spectroscopy

Sung-Ho Eom\*, Hye Kyun Jeong†, Jun-SiC Park\*, Se-Hwan Park\*, and Hee-Sung Shin\*

\*Korea Atomic Energy Research Institute,

†Korea Advanced Institute of Science and Technology

**Abstract** - Accurate measurement of uranium enrichment is very important in nuclear material accountability. The analysis uncertainty of the uranium enrichment measurement with gamma-ray analysis was studied in the present work.

FRAM (Fixed energy Response function Analysis with Multiple efficiencies) code was used to determine the uranium enrichment. If the shield materials were placed between the detector and the sample, the error was measured and analyzed. Measurement time was varied and the dependency of the analysis uncertainty on the measurement time was studied. Transmitted gamma-ray intensities and FWHMs of the peaks in the energy spectrum were measured as the shield thickness was varied. The transmitted gamma-ray intensity follows shape of the exponential function, and the FWHM was almost independent of the shield thickness. The uncertainty of FRAM

analysis was studied when the thick shield material was placed between the detector and the sample. Our work could be helpful in analysis of the fissile material in uranium sample.

**Keywords** : FRAM, uranium, enrichment