

A Suitability Study on the Indicator Isotopes for Graphite Isotope Ratio Method (GIRM)

흑연 동위원소 비율법의 지표 동위 원소 적합성 연구

Jinseok Han, Junkyung Jang, and Hyun Chul Lee*

Pusan National University, 2, Busandaehak-ro 63 beon-gil, Geumjeong-gu, Busan, Republic of Korea

한진석, 장준경, 이현철*

부산대학교, 부산광역시 금정구 부산대학로63번길 2

(Received December 24, 2019 / Revised March 12, 2020 / Approved March 19, 2020)

The Graphite Isotope Ratio Method (GIRM) can verify non-proliferation of nuclear weapon by estimating the total plutonium production in a graphite-moderated reactor. Using the reactor, plutonium is generated and accumulated through the ^{238}U neutron capture reaction, and impurities in the graphite are converted to nuclides due to the nuclear reaction. Therefore, the amount of plutonium production and concentration of the impurities are correlated. However, the plutonium production cannot be predicted using only the absolute concentration of the impurities. It can only be predicted when the initial concentration of the impurities is obtained because the concentration, at a certain time, depends on it. Nevertheless, the ratios of the isotopes in an element are known regardless of the impurity of an element in the graphite moderator. Thus, the correlation between the isotope ratio and amount of plutonium produced helps predict plutonium production in a graphite-moderated reactor. Boron, Lithium, Chlorine, Titanium, and Uranium are known as indicator elements in the GIRM. To assess whether the correlation between the indicator isotope and amount of plutonium produced is independent of the initial concentration of the impurities, four different impurity compositions of graphite were used. $^{10}\text{B}/^{11}\text{B}$, $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$, $^{48}\text{Ti}/^{49}\text{Ti}$, and $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ had a consistent correlation with the cumulative plutonium production, regardless of the initial impurity concentration of the graphite, because these isotopes were not generated through the nuclear reaction of other elements. On the other hand, the correlation between $^6\text{Li}/^7\text{Li}$ and plutonium production depended on the initial concentration of the impurities in graphite. Although ^7Li can be produced through the neutron capture reaction of ^6Li , the (n, α) reaction of ^{10}B was the major source of ^7Li . Therefore, the initial concentration of ^{10}B affected the production of ^7Li , making Li unsuitable as an indicator element for the GIRM.

Keywords: Indicator isotope, Graphite Isotope Ratio Method (GIRM), Prediction of plutonium production, Graphite-moderated reactor, Non-proliferation

*Corresponding Author.

Hyun Chul Lee, Pusan National University, E-mail: hyunchul.lee@pusan.ac.kr, Tel: +82-51-510-2318

ORCID

Jinseok Han

<http://orcid.org/0000-0002-0189-8663>

Junkyung Jang

<http://orcid.org/0000-0002-4368-8293>

Hyun Chul Lee

<http://orcid.org/0000-0003-3136-0810>

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited

흑연 동위원소 비율법(GIRM)은 비핵화 검증 도구로써 흑연감속로의 플루토늄 생산량을 예측하는데 사용된다. 원자료가 가동되면 ^{238}U 의 중성자 포획 반응에 의해 플루토늄이 생성되어 축적되고 동시에 흑연 내 불순물도 핵반응을 통해 다른 핵종으로 바뀌기 때문에 플루토늄의 생성량과 불순물의 농도는 일정한 상관 관계를 갖는다. 이러한 상관관계에도 불구하고 어느 특정 시점에서의 불순물의 농도는 불순물의 초기 농도에 의존하기 때문에 불순물의 초기 농도가 알려지지 않으면 불순물의 절대 농도만으로 플루토늄 생산량을 예측하는 것은 불가능하다. 그러나 불순물의 초기 동위원소 비율은 초기 불순물 농도에 상관없이 알려져 있기 때문에 불순물의 동위원소 비율과 플루토늄 생산량의 관계는 흑연감속로에서 플루토늄 생성량을 예측하는 유용한 도구가 될 수 있다. 흑연동위원소 비율법의 지표 원소로 Boron, Lithium, Chlorine, Titanium, Uranium 등이 이용되는 것으로 알려져 있다. 위 지표원소의 동위원소 비와 플루토늄 생성량 사이의 상관 관계가 초기 불순물 농도에 의존하지 않는지를 네 가지 다른 흑연 불순물 조성을 이용하여 평가하였다. $^{10}\text{B}/^{11}\text{B}$, $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$, $^{48}\text{Ti}/^{49}\text{Ti}$, $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 은 흑연의 초기 불순물 농도에 상관없이 누적 플루토늄 생성량과 일관된 상관 관계를 갖는다. 이러한 원소들은 다른 원소의 핵반응에 의해 해당 원소의 동위원소가 생성되지 않기 때문이다. 반면 $^6\text{Li}/^7\text{Li}$ 과 플루토늄 생성량의 상관관계는 흑연 내 불순물의 초기 농도에 의존한다. ^7Li 은 ^6Li 의 중성자 포획 반응에 의해서 생성되기도 하지만 ^{10}B 의 (n, α)반응으로도 생성되는 것이 더 지배적이기 때문에 ^{10}B 의 초기 농도가 ^7Li 의 생성량에 영향을 미치는 것이다. 따라서 Lithium은 흑연 동위원소 비율법을 위한 지표 원소로 적절하지 않음을 알 수 있다.

중심단어: 지표 동위원소, 흑연 동위원소 비율법(GIRM), 플루토늄 생성량 예측, 흑연 감속로, 비확산

1. 서론

북한은 영변에 있는 Magnox 흑연 감속 원자로에서 핵무기용 플루토늄을 생산하였다. 북한의 비핵화 검증 과정에서 북한이 원자료를 이용하여 생산한 플루토늄 양을 정확히 추정하는 것은 북한이 보유한 플루토늄 핵무기의 기수를 추정하는데 결정적인 지표이기 때문에 필수적으로 요구된다. 북한이 원자로 운전 이력을 투명하게 공개하면 생산된 플루토늄 양을 계산을 통해 추정할 수 있다. 그러나 이를 신뢰할 수 없을 경우 계산 결과 또한 신뢰하기 어렵다.

원자료가 가동되면 ^{238}U 의 중성자 포획 반응에 의해 핵연료 안에 플루토늄이 생성되어 축적된다. 동시에 흑연 감속재 내 불순물도 핵반응을 통해 다른 핵종으로 바뀌기 때문에 플루토늄의 생성량과 불순물의 농도는 일정한 상관 관계를 갖는다. 따라서 불순물의 초기 농도를 정확히 알고 있다면 이러한 상관관계를 이용하여 불순물의 농도를 측정함으로써 생산된 플루토늄의 양을 추정할 수 있다. 그러나 원자료가 오랜 기간 동안 운전이 된 상황에서 이러한 불순물의 초기 농도를 정확히 알아낼 수 없기 때문에 현시점에서의 불순물 농도를 측정하여 생산된 플루토늄의 양을 추정하는 것은 불가능하다.

그러나 원자료를 가동함에 따라 불순물 원소의 동위원소 비율도 달라지며 이 비율은 생산된 플루토늄의 양과 일정한 상관 관계를 갖는다. 게다가 이러한 불순물 원소의 동위원소 비율의 초기 값은 초기 불순물 농도에 상관없이 알려져 있기 때문에 불순물 원소의 동위원소 비율과 플루토늄 생산량의 관계는 흑연감속로에서 플루토늄 생성량을 예측하는 유용한 도구가 될 수 있다. 이와 같이 흑연감속로에서 흑연 감속재 불순물 원소의 동위원소 비율과 플루토늄 축적량과의 상관관계를 이용하여 흑연감속로에서 생산된 플루토늄 양을 추정하는 기술을 흑연 동위원소 비율법(Graphite Isotope Ratio Method; GIRM)이라 한다. 흑연 동위원소 비율법은 1990년대 중반 미국 PNNL (Pacific Northwest National Lab.)에서 개발되었다[1-4].

PNNL에서 개발된 흑연 동위원소 비율법은 그 과정에 대한 상세 내용 없이 기본 원리와 결과 위주로 간단히 보고되었다. 따라서 북한의 비핵화 검증의 도구로 본 기술을 이용하기 위해서 국내 기술 개발 차원의 연구가 수행되었다. 본 연구에서는 흑연 동위원소 비율법에 관한 다양한 선행연구에서 제시하고 있는 Boron, Lithium, Chlorine, Titanium, Uranium 등 다양한 지표 원소에 대해 그 적합성을 연구하였다.

Table 1. Impurity compositions of various graphite [5,7]

Elements	Concentrations (ppm)				Elements	Concentrations (ppm)			
	Composition 1	Composition 2	Composition 3	Composition 4		Composition 1	Composition 2	Composition 3	Composition 4
Ag	0.001	0.001	-	0.003	Si	35.0	80.0	-	1
Al	1.0	7.0	5.0	9.2	Sm	0.04	0.05	0.04	0.0213
B	0.1	0.016	0.1	0.05	Sn	0.05	0.16	-	0.15
Ba	1.5	10.0	4.66	2.01	Sr	0.4	1.0	0.47	0.96
Be	0.02	0.05	-	0.02	Te	-	-	0.2	0.014
Bi	0.08	0.08	-	-	Th	-	-	0.1	0.0079
Ca	35.0	80.0	32.78	51.9	Ti	3.0	8.0	5.67	17.4
Cd	0.04	0.02	-	0.015	U	-	-	0.07	0.016
Ce	-	-	0.1	0.269	V	12.0	40.0	7.43	17.4
Cl	2.0	2.0	3.69	7.6	W	0.12	0.05	0.07	0.047
Co	0.02	0.03	0.02	0.019	Zn	0.13	0.5	0.12	0.02
Cr	0.35	2.5	-	0.6	Ar	-	-	-	0.14
Cs	-	-	0.11	0.0016	As	-	-	-	0.011
Cu	-	-	0.13	0.1	Au	-	-	-	0.00022
Dy	0.008	0.015	0.02	0.0032	Br	-	-	-	0.025
Eu	0.004	0.008	0.01	0.0026	Er	-	-	-	0.0053
Fe	10.0	25.0	3.71	18.7	Ga	-	-	-	0.01
Gd	0.005	0.008	0.01	0	Ge	-	-	-	9
In	0.05	0.05	-	0.003	Hf	-	-	-	0.0058
K	-	-	0.24	1.9	Hg	-	-	-	0.00062
La	-	-	0.19	0.15	Ho	-	-	-	0.0094
Li	0.05	0.36	0.24	0.004	I	-	-	-	0.04
Mg	0.1	3.0	0.25	7	Lu	-	-	-	0.0015
Mn	0.04	0.2	0.05	0.58	P	-	-	-	0.5
Mo	0.1	0.4	0.12	0.17	Pr	-	-	-	0.08
N	10.0	10.0	11.13	0.5	Sb	-	-	-	0.004
Na	1.0	1.0	0.96	4.64	Sc	-	-	-	0.05
Nd	-	-	0.03	0.11	Se	-	-	-	0.003
Ni	1.0	6.0	1.76	0.39	Tb	-	-	-	0.0027
Pb	0.12	3.0	-	-	Zr	-	-	-	1
S	50.0	50.0	-	5					

Table 2. GIRM Indicator Elements

Element	Key Isotope Ratios	Fluence Range
Boron	$^{10}\text{B}/^{11}\text{B}$	Low
Lithium	$^6\text{Li}/^7\text{Li}$	Low-Intermediate
Chlorine	$^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$	Intermediate
Titanium	$^{48}\text{Ti}/^{49}\text{Ti}$	Intermediate-High
Uranium	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	Low-High

Table 3. Design parameters for Fuel pin-cell of Magnox reactor

Parameter	Value
Fuel radius, cm	1.461
Clad radius, cm	2.040
Fuel material	Natural U metal
Fuel density, g/cc	17.98
Clad material	Mg (1% Al, 0.05% Be)
Clad density, g/cc	1.65
Moderator material	Graphite
Moderator density, g/cc	1.628
Coolant material	CO ₂

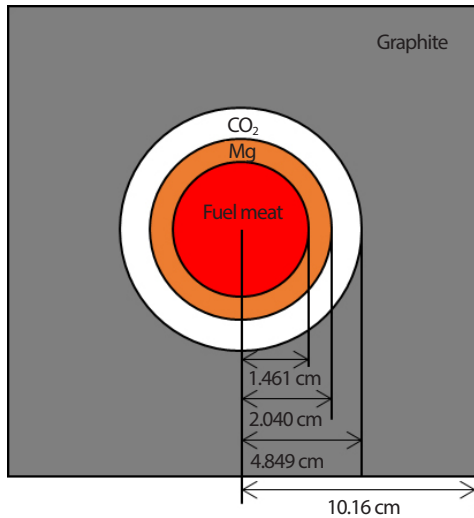


Fig. 1. Fuel pin-cell geometry of Magnox reactor.

2. 분석 방법

2.1 흑연 불순물 및 지표 핵종

흑연 동위원소 비율법의 지표 원소로 사용될 수 있기 위해서는 해당 원소의 동위원소비와 생성된 플루토늄의 양 사이의 상관 관계가 흑연 불순물 초기 농도에 무관해야 한다. 흑연 불순물의 초기 농도가 지표 원소별 상관관계에 어떠한 영향을 미치는지 알아보기 위해 다양한 흑연 불순물 농도를 가지고 민감도 조사를 수행하였다. Table 1은 흑연감속원자로의 감속재로 사용되는 다양한 흑연의 불순물 함량에 대한 조사 자료를 나타낸다. 각각의 조성(Composition)은 서로 다른 구성의 불순물을 가진다. 이를 토대로 흑연 내 초기 불순물 농도에 따른 지표 동위원소 비율의 민감도 분석을 수행하였다.

Table 2는 PNNL에서 수행된 흑연 동위원소 비율법에 관한 선행 연구[1,4]에서 제시 핵종으로 제시되고 있는 주요 핵종들과 적용 가능한 중성자 조사량 범위를 보여준다.

2.2 Magnox 원자로 단위 핵연료 격자 모형

현재 운전 중인 여러 가지 MAGNOX 원자로 중에서 1956년에 지어져 가장 오래 된 Calder Hall 발전소를 기준으로 하여 단위 핵연료 격자 모형을 구성하였다. Calder Hall은 182MWt의 출력을 내며, 노심의 연료 채널 수는 1696개,

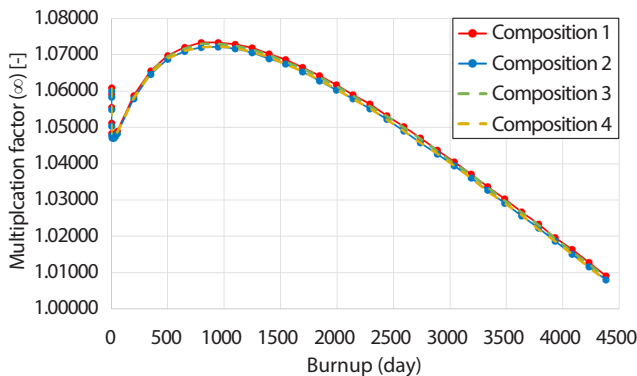


Fig. 2. Infinite multiplication factors of various Compositions.

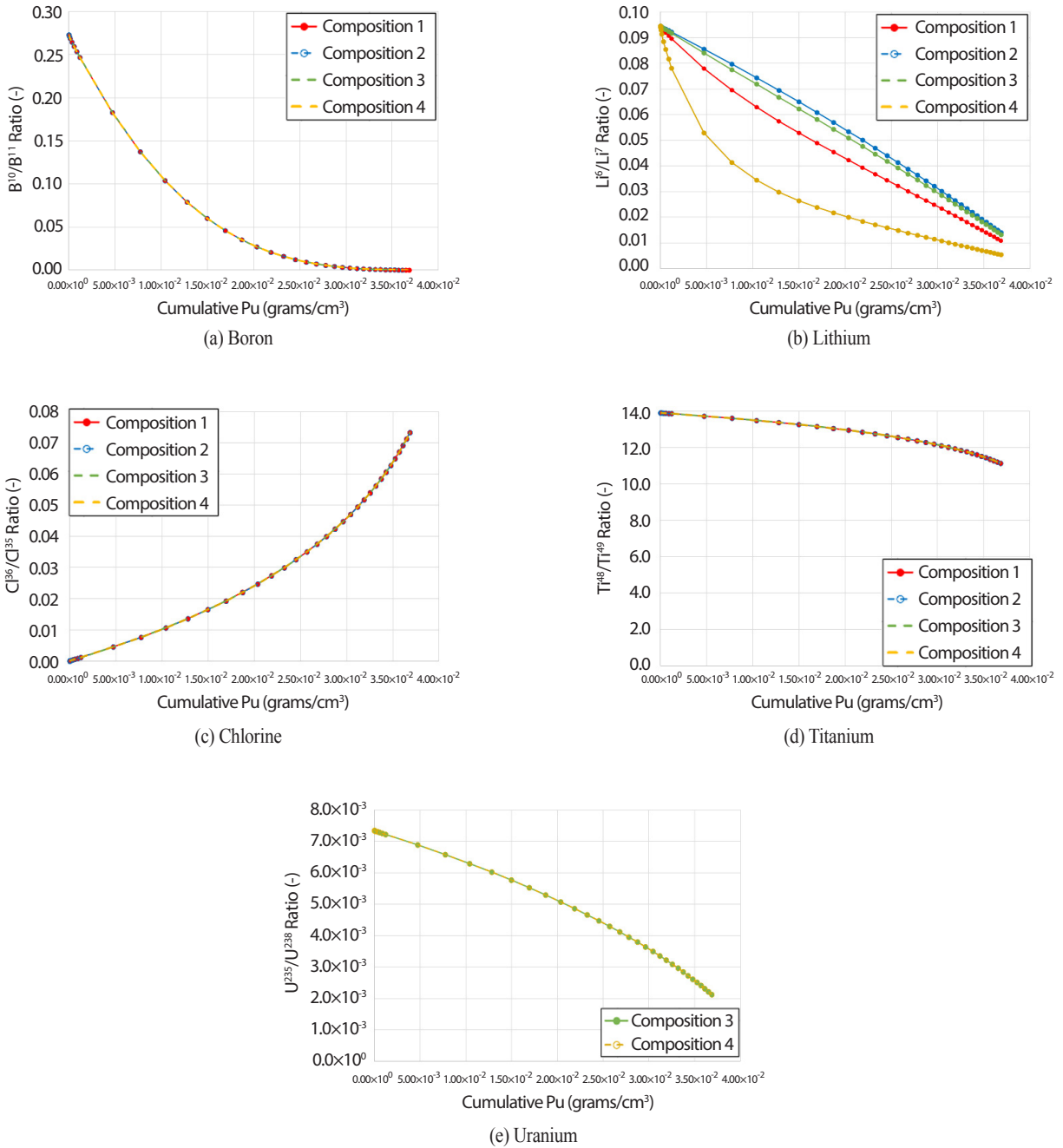


Fig. 3. Correlation between plutonium production and isotope ratios.

유효 노심 높이는 6.4 m이다.

2차원 단위 핵연료 격자 모델은 Fig. 1과 같이 구성되어 있으며, 설계 변수들은 아래의 Table 3에 나타내었다[6]. 연료는 천연우라늄을 사용하였으며, 연료 피복은 Magnox를

이용하였다. 감속재인 흑연이 일정 간격을 두고 피복을 둘러싸고 있다. 흑연과 피복 사이에는 냉각재로 이산화탄소가 흐른다.

McCARD코드를 이용하여 모델링 및 계산을 수행하였다.

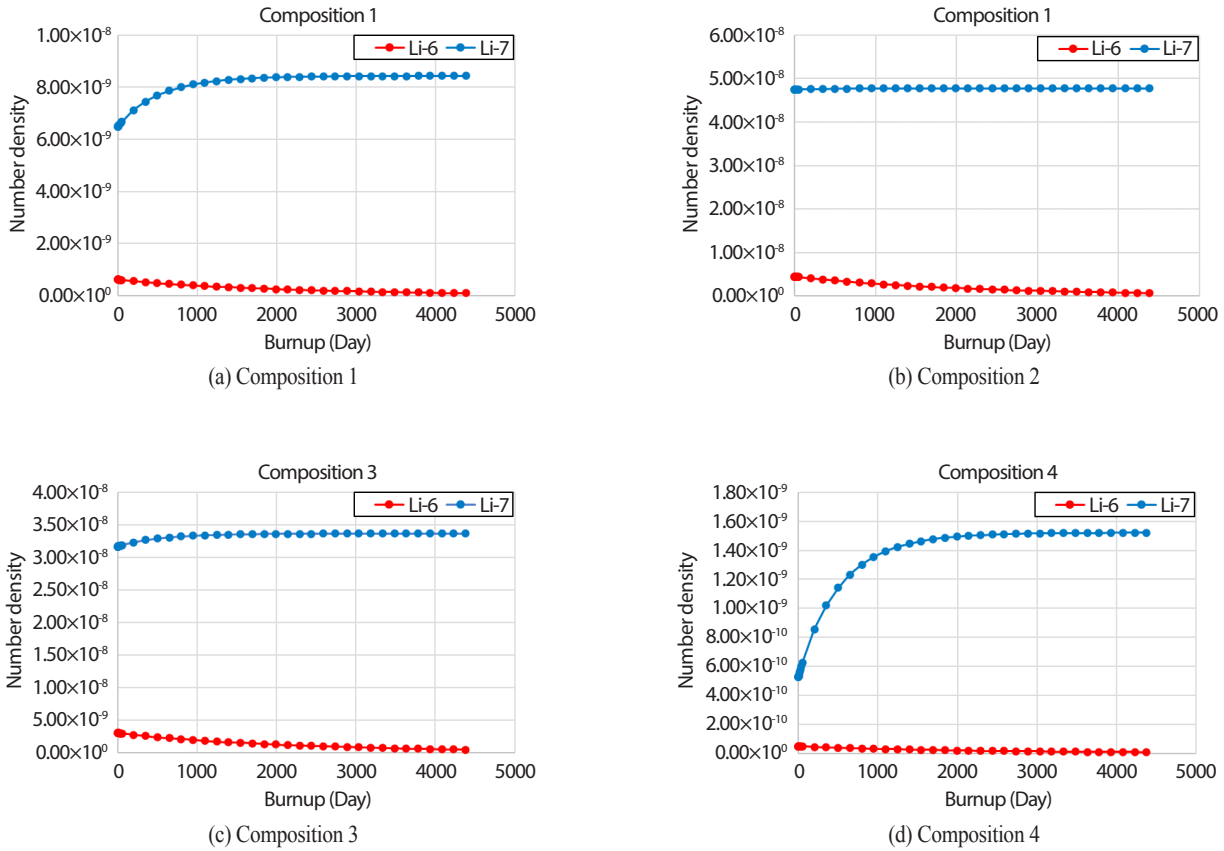


Fig. 4. Comparison of Li isotopes conversion for various Compositions.

단위 핵연료 격자 모델의 축 방향 높이는 1 cm이다. 출력은 167.6W로 12년간 40단계로 연소시켰다. 핵단면적 자료는 ENDF/B-VII.1을 사용하였다. 핵연료의 온도는 800 K, 피복재의 온도는 700 K, 흑연 감속재와 냉각재의 온도는 모두 650 K으로 설정하였다.

3. 분석 결과

먼저, 흑연의 불순물 구성에 따른 2차원 단위 핵연료 격자 모형의 무한증배계수를 Fig. 2에 나타내었다. 구성에 따라 흑연의 초기 불순물 양이 달라지고 이에 따라 무한 증배계수값의 차이가 160 pcm 이내로 발생하였다.

Fig. 3은 누적 플루토늄 생성량과 지표원소의 동위원소 비 관계를 나타낸다. Boron, Chlorine, Titanium, Uranium 에서는 불순물 구성에 상관없이 같은 상관 관계를 나타낸다.

반면 Lithium 에서는 ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ 비와 플루토늄 생성량의 상관 관계가 불순물 구성에 따라 달라짐을 확인할 수 있다.

${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ 비율이 불순물 농도의 변화에 따라 차이가 나는 구체적인 원인을 파악하기 위해 흑연의 불순물 구성에 따른 ${}^6\text{Li}$ 와 ${}^7\text{Li}$ 의 수밀도 변화를 Fig. 4에 비교하였다. 초기 Li의 농도가 다르기 때문에 규모는 다르지만, 각 조성의 ${}^6\text{Li}$ 을 비교하였을 때, 비슷한 거동을 보이는 것을 알 수 있다. 그러나 ${}^7\text{Li}$ 의 경우 조성2에서는 거의 일정한 반면, 조성1, 조성2 그리고 조성4의 경우 연소가 진행 됨에 따라 증가하여 수렴하는 거동을 보인다.

붕소 농도에 대한 ${}^7\text{Li}$ 의 민감도를 조사하기 위해, 조성1에서 붕소의 농도를 0 ppm으로 설정한 경우(Case1)와 조성1에서 붕소의 농도를 0.05 ppm으로 설정한 경우(Case2)를 조성1에서 붕소 농도를 그대로(0.1 ppm) 사용한 경우(Case3)와 비교하였다. Fig. 5는 각 경우에서 ${}^6\text{Li}$ 와 ${}^7\text{Li}$ 의 수밀도를 비교한 것이다. ${}^6\text{Li}$ 는 Boron의 농도변화에 상관없이 세 경우

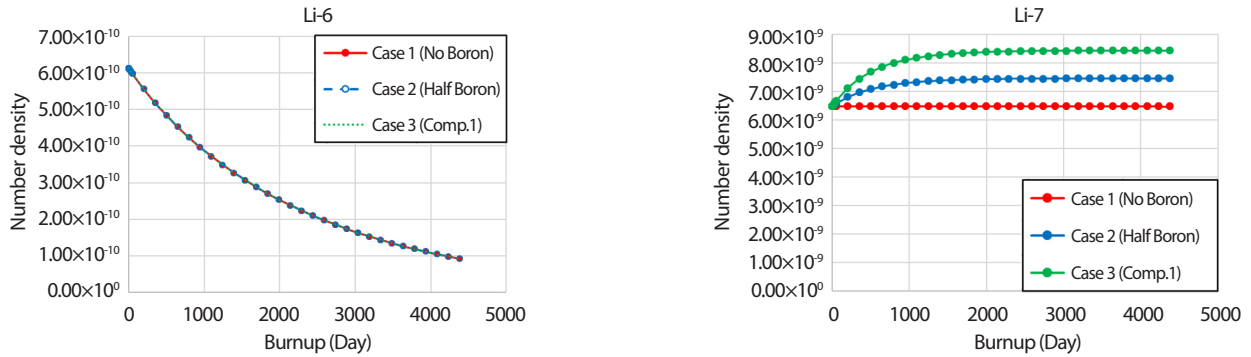


Fig. 5. Boron sensitivity test of Composition 1.

모두 같은 결과를 보인다. 특히 Case1의 경우에는 Boron의 초기 농도가 0 ppm으로 영향이 없다면, ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ 의 비율은 ${}^6\text{Li}$ 의 변화에 기인한다. ${}^7\text{Li}$ 의 경우에는 Boron의 초기 농도에 따라서 거동이 달라지는 것을 확인할 수 있다. 이러한 현상은 ${}^{10}\text{B}$ 이 열중성자에 대해 약 3400barns의 (n, α) 반응 단면적을 가지고 ${}^7\text{Li}$ 으로 변환되기 때문이다.

4. 토의 및 결론

흑연 동위원소 비율법은 흑연감속로에서 생산한 플루토늄 양을 정확히 예측함으로써 비핵화 검증에 이용되는 기술이다. 흑연 감속제 안의 불순물 원소의 동위원소 비와 플루토늄 생성량 사이에는 일정한 상관관계를 가지며 흑연 동위원소 비율법에서는 흑연 불순물 원소의 동위원소 비를 측정함으로써 해당 원자로에서 생산한 플루토늄 양을 추정한다. 흑연 동위원소 비율법에서는 적절한 지표 원소의 선정이 중요하며 지표 원소로 사용될 수 있기 위해서는 해당 원소의 동위원소 비율과 플루토늄 생성량 사이의 상관 관계가 흑연 불순물 조성에 영향을 받지 않아야 한다. 본 연구에서는 Boron, Lithium, Chlorine, Titanium, Uranium과 같은 지표 원소의 동위원소 비율과 플루토늄 생성량의 상관관계에 불순물 조성이 어떠한 영향을 주는지를 확인하였다.

${}^{10}\text{B}/{}^{11}\text{B}$, ${}^{36}\text{Cl}/{}^{35}\text{Cl}$, ${}^{48}\text{Ti}/{}^{49}\text{Ti}$, ${}^{235}\text{U}/{}^{238}\text{U}$ 비율은 흑연의 초기 불순물 농도에 상관없이 누적 플루토늄 생성량과 일관된 상관 관계를 보여 Boron, Chlorine, Titanium, Uranium은 지표 원소로 사용될 수 있음을 확인하였다. ${}^{10}\text{B}/{}^{11}\text{B}$ 비의 주된 변화 요인은 (n, α) 반응에 의한 ${}^{10}\text{B}$ 의 감소이며 ${}^{36}\text{Cl}/{}^{35}\text{Cl}$

비의 주된 변화 요인은 ${}^{35}\text{Cl}$ 의 중성자 포획반응에 의한 ${}^{36}\text{Cl}$ 으로의 변환이다. ${}^{48}\text{Ti}/{}^{49}\text{Ti}$ 비의 주된 변화 요인은 ${}^{48}\text{Ti}$ 의 중성자 포획반응에 의한 ${}^{49}\text{Ti}$ 으로의 변환이며 ${}^{235}\text{U}/{}^{238}\text{U}$ 비의 주된 변화 요인은 핵분열 반응에 의한 ${}^{235}\text{U}$ 의 감소이다. 반면 ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ 비율과 플루토늄 생성량의 상관관계는 불순물 원소의 초기 농도에 따라 달라진다. 이는 ${}^7\text{Li}$ 이 ${}^6\text{Li}$ 의 중성자 포획 반응으로도 생성되지만 ${}^{10}\text{B}$ 의 (n, α) 반응으로 생성되는 것이 더 지배적이므로 ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ 비가 불순물 중 Boron의 양에 매우 의존하기 때문이다.

흑연 동위원소 비율법에서 지표원소로 사용되기 위해서는 해당 원소의 동위원소 비가 흑연 불순물의 초기 농도에 영향을 받지 않아야 한다. Boron, Chlorine, Titanium, Uranium의 경우 그 동위원소의 비가 다른 원소의 농도에 영향을 받지 않기 때문에 지표 원소로 사용될 수 있다. 그러나 Lithium의 경우 그 동위원소의 비가 Boron의 초기 농도에 민감하게 영향을 받기 때문에 Lithium은 지표원소로 적합하지 않다.

감사의 글

이 논문은 부산대학교 기본연구지원사업(2년)에 의하여 연구되었음.

REFERENCES

[1] J.P. McNeece, B.D. Reid, and T.W. Wood, "The Graphite Isotope Ratio Method (GIRM): A Plutonium

- Production Verification Tool”, PNNL-12095, Pacific Northwest National Lab (1999).
- [2] B.D. Reid, W.C. Morgan, E.F. Love, Jr, D.C. Gerlach, S.L. Petersen, J.V. Livingston, L.R. Greenwood and J.P. McNeece, “Graphite Isotope Ratio Method Development Report: Irradiation Test Demonstration of Uranium as a Low Fluence Indicator”, PNNL-13056, Pacific Northwest National Lab (1999).
- [3] T.W. Wood, D.C. Gerlach, B.D. Reid, and W.C. Morgan, “Feasibility of Isotopic Measurements: Graphite Isotope Ratio Method”, PNNL-13488, Pacific Northwest National Lab (2001).
- [4] C.J. Gesh, “A Graphite Isotope Ratio Method Primer-A Method for Estimating Plutonium Production in Graphite Moderated Reactors”, PNNL-14568, Pacific Northwest National Lab (2004).
- [5] Greg Black, “IRRADIATED GRAPHITE WASTE-Analysis and Modelling of Radionuclide Production with a View to Long Term Disposal”, Dissertation, The University of Manchester (2014).
- [6] B. D. Murphy, “ORIGEN-ARP Cross-Section Libraries for Magnox, Advanced Gas-Cooled, and VVER Reactor Designs”, ORNL/TM-2003/263, Oak Ridge National Laboratory (2004).
- [7] D. Ancius, D. Ridikas, V. Remeikis, A. Plukis, R. Plukiene, and M. Cometto, “Evaluation of the activity of irradiated graphite in the Ignalina Nuclear Power Plant RBMK-1500 reactor”, NUKLEONIKA., 50(3), 113-120 (2005).