

高分解能 Ge(Li) 檢出器를 이용한

Uranium 試料內의 U^{235}/U^{238} 含有量의 迅速測定

鄭 汝 奎 · 趙 星 遠 · 徐 斗 煥

原子力研究所 物理學研究室

(1969. 7. 10 접수)

A RAPID DETERMINATION OF U^{235} CONTENTS OF URANIUM SAMPLES UTILIZING HIGH RESOLUTION Ge(Li) DETECTOR

M.K. Chung, S.W. Cho and D.W. Suh

Physics Division, Atomic Energy Research Institute, Seoul, Korea

ABSTRACT

Determinations of the isotopic contents of U^{235} and U^{238} in ten uranium samples containing 0.72 - 89.70 at % U^{235} were carried out in two ways utilizing high resolution Ge (Li) gamma-ray spectrometer. One method is based upon the fact that the intensity of 185.5 keV gamma-ray vary linearly with U^{235} content for a given geometry. Another method applied for the direct determination of the U^{235}/U^{238} isotopic ratios is the precision gamma-ray spectrometric analysis of reactor irradiated uranium samples after allowing a fixed cooling time for one hour. The results obtained by both methods well agree with the values calculated from the isotopic contents of highly enriched original uranium samples measured by mass spectrometer. The precision obtained was well below 5% for most of the isotopic ratios investigated.

§ 1. 序 論

Uranium 核燃料의 U^{235} 濃縮度 測定이라든가 核燃料의 消耗量 測定 등은 原子爐稼動에서나 또는 核燃料 精製過程에서 不可缺한 것이나 그의 精密測定에는 巨大한 mass spectrometer를 使用하거나 또는 매우 複雜한 化學的 操作을 거쳐야만 하는 것이 通例였다. 上述한 方法들은 精密한 測定을 可能케 하기는 하나 裝置의 大規模化, 긴 測定時間의 所要, 測定操作의 複雜性 등으로 어디서나 할 수 있는 簡便한 方法은 아니었던 까닭으로 精度를 좀 犧牲하드

라도 簡便한 方法을 開發하려는 研究가 繼續되어 왔다. 여기서는 Ge(Li) γ 線 檢出器(Lithium drifted Germanium detector)가 高分解能을 가진을 利用하여 U^{235} 로 부터의 γ 線 spectrum 이나 fission product 의 γ 線 spectrum 을 分析하여 U^{235} 含有量이나 U^{235}/U^{238} 含有量比를 매우 簡便 迅速하고 또한 非破壞的으로 決定하여 주는 一聯의 實驗 測定結果를 報告한다.

§ 2. 原 理

Uranium 試料의 同位元素 含有量比를 決定하는方

法中 近來에 여러 곳에서 試圖되어 온 것으로는 半導體檢出器를 利用한 Uranium 試料로부터의 α -spectrometry⁽¹⁾, γ -spectrometry⁽²⁾,⁽³⁾나, reactor neutron activation analysis⁽⁴⁾ 등이 있다. Uranium 試料의 α 나 γ 線 spectrum은 複雜하여 在來의 分解能이 낮은 scintillation counter로서는 peak의 分離가 不可能하거나 不正確하여 精密한 同位元素 含有量比를 決定하여 주기 어려웠으나 分解能이 越等히 優秀한 半導體檢出器를 使用함으로써 明確하게 特定 同位元素의 peak가 分離될 수 있어 測定精度的 向上을 期할 수 있게 되었다는 것이 近來에 이러한 方法들이 同位元素 含有量比 決定에 利用되기 始作한 理由라 하겠다.

上述한 세가지 radiation spectrometry에 의한 方法中 Uranium 試料의 α -spectrometry에 의한 方法은 試料內에서의 α -粒子的 自己吸收을 防止하기 위하여 試料의 두께를 아주 얇고 均一하게 만들어야 하기 때문에 試料製作이 쉽지 않아 그리 簡便한 方法은 못 된다고 생각되어 이번 實驗에서는 다음과 같은 原理에 立脚한 두 方法을 採擇하였다. 즉,

(1) Uranium 試料中の U^{235} 에서 나오는 γ 線을 分光하여 보면 Fig. (1)에서 보는 바와 같이 185.5KeV peak가 가장 γ 線 強度가 強하며 餘他 γ -line과 定

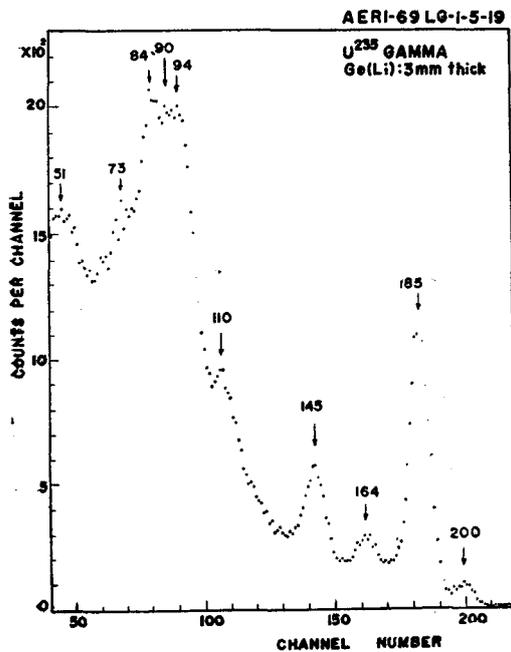


FIG. 1. Gamma-ray spectrum for U^{235} (89.7 %) as observed with a Ge(Li) spectrometer.

確하게 分離될 뿐 아니라 이 peak의 intensity가 바로 U^{235} 의 含有量에 比例한다는 事實로부터 만일 Uranium 試料의 量과 detector-source system의 geometry를 一定하게 한다면 U^{235} 의 相對的인 含有量을 測定할 수 있으며 U^{235} 의 絕對含有量이 알려져 있는 同一한 크기와 量의 標準試料가 하나만 있으면 全試料의 U^{235} 의 絕對含有量까지도 測定할 수가 있다. 또한 Uranium 試料內의 U^{234} , U^{236} 의 含有量은 一般的으로 極히 작으므로 Uranium 試料의 全 Uranium 量과 U^{235} 의 含有量을 알면 곧 U^{235}/U^{238} 含有量比를 알 수가 있다.

(2) 두번째 方法은 Uranium 試料를 原子爐中中性子로 activation시키는 方法으로서 Uranium 試料中 U^{238} 은 中性子を 吸收하여 半減期가 23.5min인 U^{239} 가 되고 U^{235} 은 fission을 일으켜 半減期가 짧고 긴 여러가지 fission products를 生成시킨다. fission products의 半減期中 너무 짧은 것은 測定에 利用할 수 없고, 너무 긴 것은 相當히 긴 cooling time을 經過시켜 short half life nuclide의 寄與分을 除去하여야만 하므로 역시 迅速한 U^{235} 의 相對含有量 測定에는 不適當하다. 따라서 우리들은 다음 세가지 條件 즉, (i) Ge(Li) 檢出器의 計數效率이 낮기 때문에 分析에 利用하려는 γ 線의 energy가 U^{235} 의 Fission γ 線이나 U^{238} 의 中性子 吸收에 依한 U^{239} 의 γ 線이나 다 같이 low energy 領域에 있어야 하며, (ii) reactor irradiation後 1~2時間內에 測定 可能하여야 하며, (iii) 두 γ 線의 線源核의 半減期가 거의 비슷하여야 한다는 條件을 滿足시키는 것으로서 U^{239} ($T_{1/2}=23.5min.$)의 74Kev γ 線 peak와 fission products中 Te^{131} ($T_{1/2}=25min.$)의 147keV γ 線 peak를 U^{235}/U^{238} 含有量比 決定에 使用하기로 하였고, 測定 開始時間은 irradiation 終了後 正確히 60分 經過後에 實施하였다. Fig (2)와 Fig (3)에 cooling time의 經過에 따르는 fission products에서 나오는 γ 線 spectrum의 變化模樣을 圖示한 것이며 cooling time이 60分일 때 U^{239} 의 74 Kev γ 線 peak와 Te^{131} 의 147 keV γ 線 peak가 明瞭하게 나타나 있음을 알 수 있다. U^{239} -74 keV γ 線 peak의 peak area內의 total count數를 y라 하고 Te^{131} 147 keV γ 線 peak의 그것을 x라 하면 $(y-kx)/x$ 는 U^{238}/U^{235} 에 比例할 것이며 U^{238}/U^{235} 比가 알려진 標準試料가 있으면 他試料의 U^{238}/U^{235} 比를 測定할 수가 있다. 위의 K는 fission products에서 나오는 여러 γ 線의 U^{239} -74 keV peak에의 寄與度를 나타내는 比例定數로서 y/x 에 對한 U^{238}/U^{235} 比의 plot에서 實驗的으로 그 값

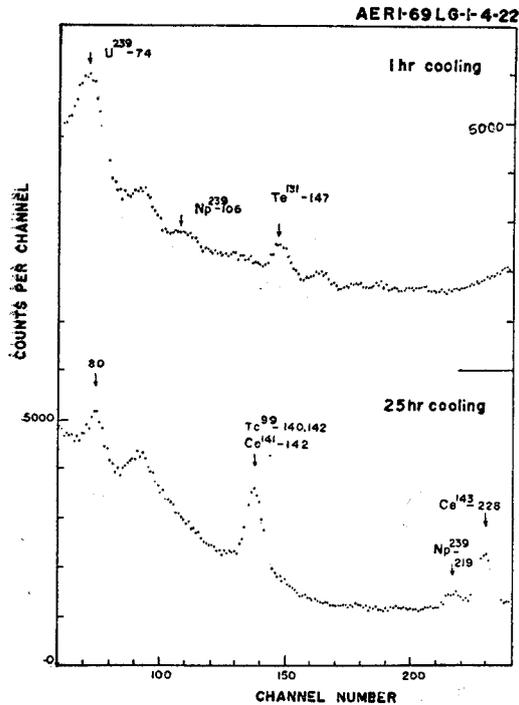


FIG 2. Variation of gamma-spectra with cooling time.

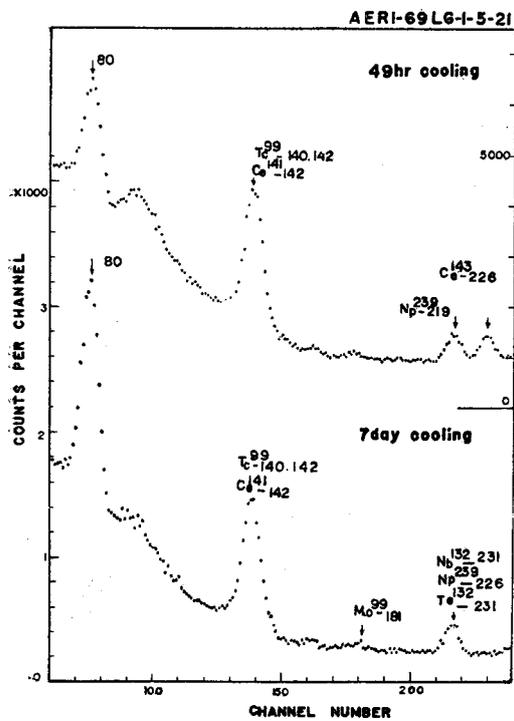


FIG 3. Variation of gamma-spectra with cooling time.

을 얻을 수가 있다. 이 방법의 有利한點은 U^{235}/U^{238} 含有量比의 決定에 있어 試料의 量이나 detector-source 的 geometry 에 無關하게 測定이 可能하다는 點이다.

§ 3. 實驗方法

(1) Uranium 試料

우리는 U^{235} 의 濃縮度를 알고 있는 試料가 必要하기 때문에 天然 uranium 로 된 $UO_2(NO_3)_2$ 結晶과 Table (1)에서 보는 바와 같은 U^{235} 가 89.70% 까지 濃縮된 Uranium 金屬으로부터 Table (2)에 表示한 바와 같은 U^{235} 濃縮度가 0.72%로 부터 89.70%에 이르기까지의 10個의 試料를 만들었다. 이 試料를 만들에 있어서는 天然 Uranium 的 경우는 U^{235} 와 U^{238} 의 存在比를 0.718%와 99,276%⁽⁵⁾로 잡았고 濃縮 Uranium 金屬의 경우는 Table(1)에 表示한 바와 같이 $\pm 0.05\%$ 精度로 mass spectrometer 로 測定한 data 를 使用하였으며 天然 Uranium 과 濃縮 Uranium 金屬을 混合시키는 方法으로는 兩者의 化學的 型態를 同一하게 하는 것이 試料製作에 있어서 簡便하며 誤差도 最少로 할 수 있으리라 생각하여 濃縮

TABLE I Mass spectrometric analysis of isotopic content of original uranium sample.

Isotope	Percentage
235	89.70
234	0.86
236	0.21
238	9.23

Precision is 0.05% relative for the above isotopic information

TABLE II Absolute Contents of U^{235} and U^{235}/U^{238} isotopic ratios of each samples.

SAMPLE NO.	U^{235} (mg)	U^{238} (mg)	U^{235} (%)	U^{235}/U^{238}	U^{238}/U^{235}
1	20.53	2.11	89.70	9.73	0.103
2	18.49	4.24	80.54	4.36	0.229
3	16.46	6.58	71.48	2.50	0.400
4	14.42	8.50	62.43	1.696	0.586
5	12.39	10.63	53.48	1.165	0.858
6	10.35	12.76	44.55	0.811	1.233
7	6.28	17.02	26.88	0.369	2.710
8	4.23	19.15	18.09	0.221	4.587
9	2.21	21.28	9.40	0.104	9.629
10	0.17	23.41	0.72	0.00726	137.7

Uranium 金屬을 nitric acid 에 溶解시킨 다음 徐徐히 冷却시켜 $UO_2(NO_3)_2$ 結晶을 얻은 後 乾燥시키고 定量하여 같은 化學的 型態를 가진 같은 量만큼의 天然 Uranium 試料과 各各 別途로 다시 uranyl nitrate 溶液을 만든 後 micro-pipette 로 適切量 만큼씩 混合하여 顯하는 여러가지 U^{235}/U^{238} 含有量比를 갖는 試料을 만들었다. 試料容器는 γ 線의 back scattering 을 最少로 하기 위하여 얇은 Lucite 圓板에 直徑 10mm, 깊이 2mm 의 홈을 파서 試料의 넓이가 모두 一定하도록 만들었음을 附記하여 둔다.

(2) Ge(Li) γ 線 檢出器

Ge(Li) 檢出器는 흔히 使用되는 方法³⁾으로 製作하였으며 3mm 의 intrinsic depth 를 가진 planar 型 Ge(Li) diode 이며 77°k 에서 412 keV γ 線의 photo peak 에 對한 半幅値는 5.8 keV 였고 γ -spectrum 은 TMC-256 channel Analyzer 로 分析 記錄하였다.

(3) U^{235} 의 含有量 測定

試料과 檢出器 사이의 距離를 3cm 로 一定하게 維持하고 試料마다 3時間씩 U^{235} γ -spectrum 을 測定하여 spectrum 中 185.5 keV γ 線에 依한 photo-peak 의 peak area count 數만을 算出하였다. Fig. (4)에 圖示되어 있는 바와 같이 우선 background 를 除去한 後 Fig. (5)에 一例를 든바와 같이 Gauss paper 에 fit시켜 補正을 加하여 주었다.

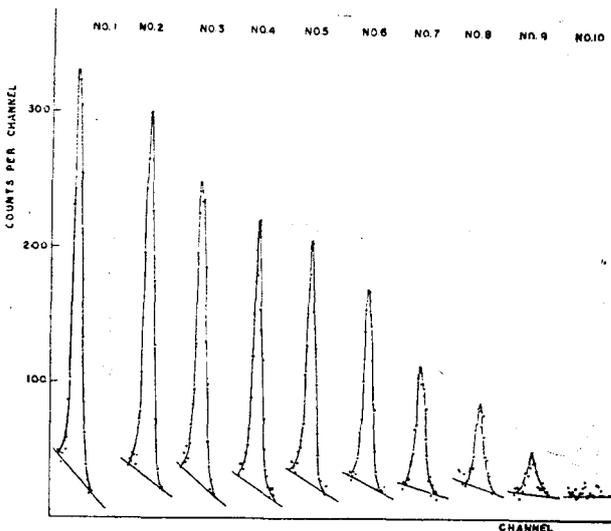


FIG 4. The shape of the 185.5 KeV photopeaks of U^{235} and its relative intensity for various U^{235}/U^{238} isotopic ratio samples.

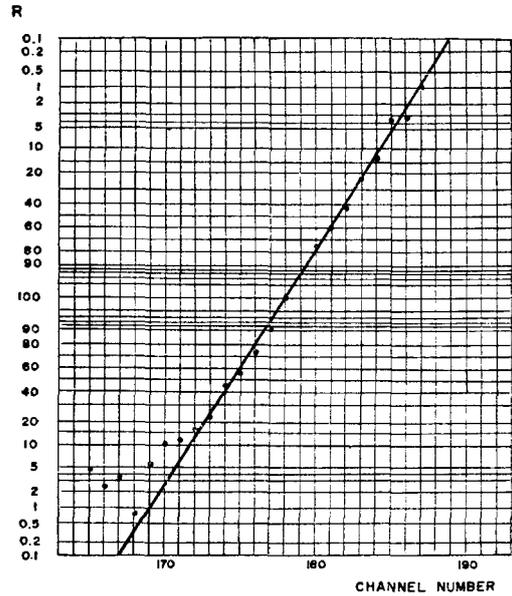


FIG 5. Gauss-fit of photopeak count by Gauss paper.

(4) neutron activation 에 依한 U^{235}/U^{238} 測定

Neutron irradiation 은 100 kw 運轉時의 TRIGA MARK II reactor 의 rotary specimen rack 에서 60 秒 照射 시켰으며 이 때의 試料은 前記한 (3)에 서 使用한 試料을 그대로 使用하였으며 γ -spectrum 測定은 irradiation 이 끝난 후 正確히 한時間후에 施行하였고 U^{239} 74 keV 와 Te^{131} 147 keV γ 線의 photo-peak 의 peak area count 數는 역시 Gauss paper 로 補正을 加하여 주었다. Fig. (6)에는 이들 10個의 試料에서 Te^{131} 147keV, U^{239} 74 keV의 photo-peak 에 對한 U^{235}/U^{238} 比 變化에 따르는 spectrum 變化를 關示한 것이다. fission product 에서의 γ 線의 U^{238} 74 keV photo-peak 에의 寄與度 k 는 y/x 에 對한 U^{238}/U^{235} 比의 plot 에서 $K=3.016$ 을 얻었다.

§ 4. 結果와 論議

U^{235} 185.5 keV γ 線에 의한 U^{235} 含有量 測定의 結果는 Fig. (7)에 圖示한 바와 같이 U^{235} 濃縮度가 0.72%~89.70% 라는 實驗範圍 全體에 걸쳐 直線의이며 誤差는 平均 2% 未滿이라는 좋은 結果를 얻었으며 neutron activation 에 의한 U^{235}/U^{238} 含有量比 決定實驗의 結果는 Fig. (8)에 圖示된 바와 같이 역

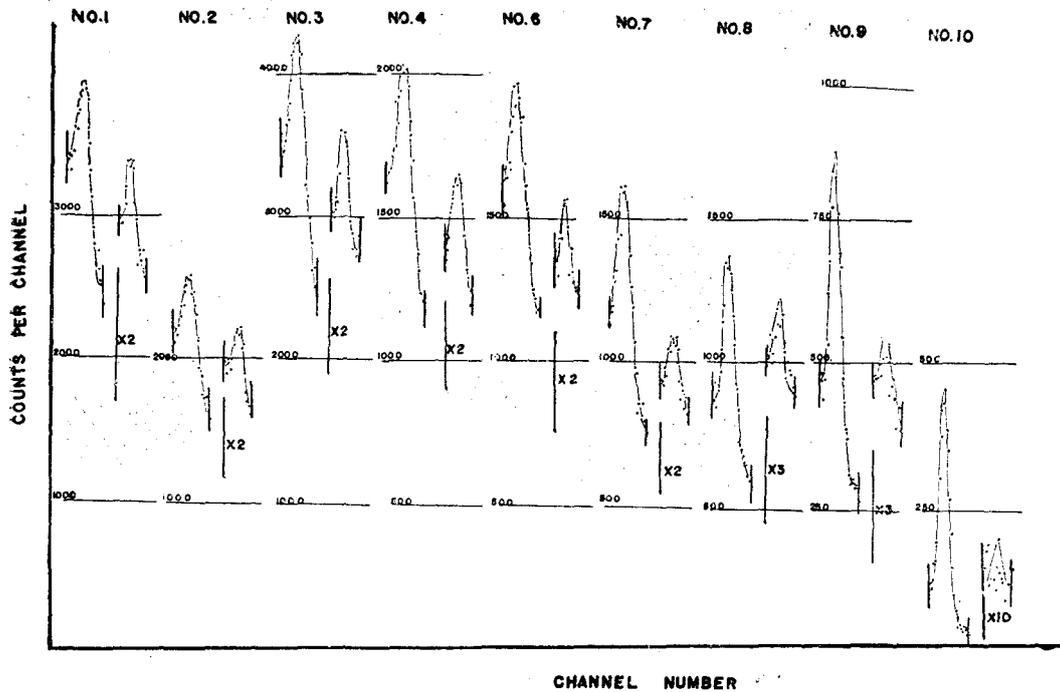


FIG 6. The effect of interference on the shape of the 74 keV photopeak of U^{239} and its relative intensity to that of the Te^{131} photopeak at 147 keV for various U^{235}/U^{238} isotopic ratio samples.

시 이 範圍內에서 直線의이나 誤差는 平均 5% 未滿이며 U^{238}/U^{235} 比가 極端의으로 작을 때나 또는 클 때는 10~20%의 誤差를 隨伴한다는 사실도 밝혀졌다. 試料 No. 4의 data는 實驗 結果 試料製作時의 定量 錯誤가 있었음이 밝혀져 이들을 無視하였기에 Fig. (7)과 Fig. (8)에는 記入되어 있지 않다.

위의 두 方法을 比較實驗한 結果,

(1) U^{235} 의 含有量 決定을 위하여는 §2 (1)의 方法이 더 正確度가 크며 그 理由가 實驗 誤差의 原因이 거의 計數 統計 誤差에 基因하는 것이므로 試料量을 增加시켜 計數值를 크게 하면 1% 未滿의 測定도 可能하다고 생각되며,

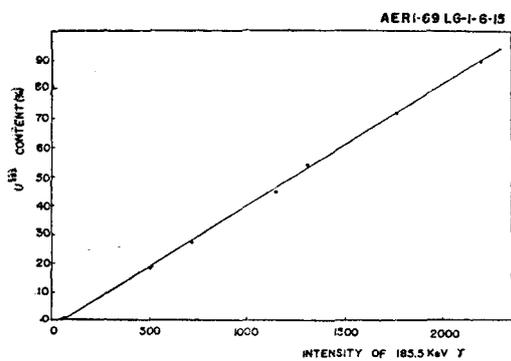


FIG 7. Linear dependence of intensity of 185.5 keV gamma-ray on percent U^{235} .

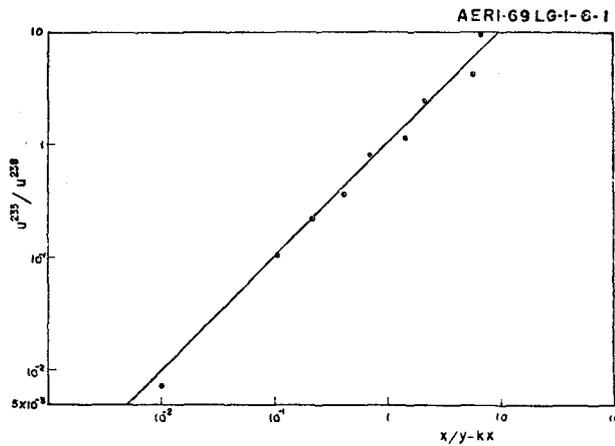


FIG 8. Calculated U^{235}/U^{238} isotopic ratio vs gamma-spectrometric peak ratios.

- (2) 使用된 核燃料 消耗量을 測定하려고 하는 경우에는 U^{235}/U^{238} 含有量比의 測定은 §2의 (2) 方法을 쓸 수 밖에는 없으나 이는 複雜한 fission products γ 線의 影響으로 測定精度는 若干 낮아진다.
- (3) 위에 한 實驗의 試料製作時의 micro pipette 에 依한 定量에 있어서의 誤差는 없는 것으로 假定하였던 것이니 이러한 誤差의 影響까지 考慮한다면 activation 에 依한 U^{235}/U^{238} 含有量比 決定은 좀더 精度를 높일 수 있는 餘地를 남기고 있는 것이라 하겠다. 또한 reactor 에 의한 irradiation 時間을 좀더 길게 잡으면 irradiation time 의 不均一에서 오는 誤差도 줄일 수 있어 測定精度는 더욱 좋아질 것으로 생각되어 方法 (2)에 의한 實驗精

度는 全體적으로 2~3% 未滿의 線까지 向上 시킬 수 있을 것으로 推測된다.

References

- (1) H. Kunzendorf :Nucl. Instr. & Methods, 63, pp. 152-156 (1968).
- (2) H. M. Mann et al. :IEEE Trans. NS-13, No. 3, p. 341 (1966).
- (3) M. K. Chung: J. of Nucl. Sci., 7(2), pp. 1 28 (1968).
- (4) J. Turkstra, W.M. Sten and W.J. Dewet: Nucl. Instr. & Methods 63, pp. 269-273 (1968)
- (5) Tables of Isotope: Rev. Mod. Phys. (1958).