

# 한 · 독 Swipe 시료 내 입자분석 결과 평가를 위한 기술 네트워크 구축

Cooperation on the Network Establishment  
between Korea and Germany for the Particle Analysis  
Data Evaluation of the Swipe Samples

연구 기관

한국원자력연구소

과 학 기 술 부

# 제 출 문

## 과 학 기 술 부 장 관 귀하

본 보고서를 원자력 국제협력 기반조성 사업으로 수행된 “한·독 Swipe 시료 내 입자 분석 결과 평가를 위한 기술 네트워크 구축” 과제의 최종보고서로 제출합니다.

2002. 12. .

연 구 기 관 명 : 한국원자력연구소

연 구 책 임 자 : 신 장 수

연 구 원 : 안 진 수

연 구 원 : 박 일 진

연 구 원 : 소 동 섭

# 요 약 문

## I. 제 목

한·독 Swipe 시료 내 입자분석 결과 평가를 위한 기술 네트워크 구축

## II. 연구개발의 목적 및 필요성

국제원자력기구의 안전조치 강화 방안 중에 포함되어 있는 swipe 시료에 대한 입자분석 기술은 신고 원자력 활동의 검증이나 미신고 핵활동을 추적해 내는데 있어 매우 효과적이고 효율적인 기술임이 이미 현장시험을 통해 밝혀져 있다. 따라서 국제원자력기구는 '96-'98년 사이에 주로 농축시설과 hot cell 시설을 대상으로 기초자료를 확보해 놓았으며, '99년 초부터는 정기사찰에 도입되었다. 우리나라는 '94년부터 국제원자력기구의 현장시험에 참가하여 왔으며, 한국원자력연구소에 있는 조사후시험시설, 조사재시험시설 등 제반 원자력 시설들에서 국제원자력기구 사찰관들에 의해 많은 swipe 시료들이 채취되었고, 매년 열리는 '한-IAEA 안전조치 검토회의'시 국제원자력기구의 분석결과에 대해 상호 토의를 갖고 의문점을 해소해 나가고 있다. 이 과정에서 우리는 입자분석에 대한 기술적인 이해와 분석결과에 대한 정확한 이해가 필수적임을 느껴오고 있다.

전 세계적으로 5개의 연구기관이 입자분석을 할 수 있는 능력이 있는 것으로 파악되고 있다. 이들 연구기관은 상업계약에 의해 국제원자력기구 swipe 사찰시료를 분석하고 있다. 이들 기관을 NWAL(NetWork Analytical Lab.)이라 부르며, 이에는 미국 DOE 산하 연구소 및 공군산하 AFTAC, 영국의 Aldermaston, 러시아의 Microparticle Analysis Lab., 독일의 Institute for Transuranium Elements(ITU) 등이 속한다. 이들 중 유럽연합 Joint Research Center(JRC) 중의 하나인 독일 Karlsruhe 소재 ITU 연구소를 제외하고는 군사목적 또는 국가 안전보장 상 필요한 기술이라는 등의 이유로 민간인의 접근이 제한되고 있다. 따라서, 우리는 KAERI 시설에 대한 swipe 시료 분석 수요와 분석결과를 평가할 수 있는 기술 배양을 위해 ITU와의 협력관계 유지가 필요함을 인식하였다. 이 기술에 대

한 국제협력 채널의 구축은 국제원자력기구의 안전조치 강화에 대한 국가 대응력을 높이고, 또한 장래 있게 될 남북상호사찰에 대한 기술력 확보로서도 중요한 의미를 가질 것이다.

### III. 연구개발의 내용 및 범위

#### ○ ITU와의 기술 협력 네트워크 구성

- ITU와의 시료분석 용역계약에 따른 연구소 원자력시설 내 채취 Swipe 시료 분석
- 시료분석 ITU 실험실 현장 참여를 통한 일련의 분석과정 파악
  - 청정실험실에서의 시료 전처리 과정
  - Scanning Electron Microscopy(SEM)에 의한 입자 내 원소 구별
  - Secondary Ion Mass Spectrometry(SIMS)를 이용한 입자 내 U, Pu 동위원소 비 측정

#### ○ ITU와의 기술 협력을 통한 분석결과 평가능력 배양

- ITU 전문가 초청 활용
- Swipe 시료의 채취/운반 기술 배양
  - 극미량 분석용 시료의 채취/운반 특성
  - 시설별 시료 채취/운반 도구 특성
- 시료 분석결과와 원자력 활동과의 연계 관계 파악
  - 우라늄 동위원소 비와 원자력 활동과의 관계
  - 플루토늄 동위원소 비와 원자력 활동과의 관계
  - U, Pu 함량 및 동위원소 비와 fission product 들과의 관계

#### IV. 연구개발 결과

원자력 시설에서의 과거 원자력 활동을 추적해 내는 데 결정적인 단서를 제공하는 핵물질의 입자 분석 기술은 청정실험실 및 고감도질량분석기를 운용하여야 하는 등 많은 투자와 고도의 기술 수준을 요하는 첨단 기술로서, 세계적으로도 미국, 영국, 러시아, 독일 등 극히 제한된 국가 연구기관에서만 보유하고 있는 핵심 기술이다. 우리 입장에서는 국제원자력기구의 사찰 강화에 대한 효율적 대응 및 향후 있을 수 있는 남북 상호사찰에 대비하여 필수적으로 갖추어야 할 기술이나 지속적인 분석 수요를 창출하기 어렵기 때문에 해외 관련 기관과의 국제협력이 필요하다.

따라서 본 과제를 통하여 Swipe 시료 내 핵물질 입자 분석기술을 보유하고 있는 기관 중의 하나인 독일의 ITU 연구소로부터 전문가를 초청하여 관련 기술내용에 대한 기술 세미나를 개최하였고, 또한 우리 측 시료를 ITU에서 분석하고 분석과정에도 직접 참여하였으며, 아울러 분석결과에 대한 자료해석 기술을 상호 공유함으로써 시료분석 및 결과 평가를 위한 채널을 구축하였다. 또한 연구소 내 관련 분야 종사자들의 이 분야에 대한 기술적 이해를 돕기 위하여 자체 세미나를 개최하였으며, 아울러 국내 전문가 2명을 초빙하여 이 분야의 기술 및 산업적 활용에 대한 이해를 증진하였다.

향후에도 ITU와의 기술협력 채널을 지속적으로 유지하기 위하여 기술 분야는 기존의 KAERI-ITU 상호협력협정 개정('03년)시 반영하기로 하고, 시료분석 분야는 상업적인 분석용역 계약에 의해 지속적으로 진행해 나가기로 하였다.

#### V. 연구개발결과의 활용계획

##### ○ 활용방안

- 국내 환경시료에 대한 국제원자력기구 분석결과 평가 능력 배양
- 미래의 남북상호사찰에 대비한 국내 원자력 시설의 baseline 자료 축적

##### ○ 향후조치

- 기존 KAERI-ITU 기술협력협정 개정시 반영할 협력 item 도출

# SUMMARY

## I. Project Title

Cooperation on the Network Establishment between Korea and Germany for the Particle Analysis Data Evaluation of the Swipe Samples

## II. Objectives and Importance

The particle analysis of swipe samples, one of the technologies for the IAEA's strengthened safeguards system, was identified to be one of the powerful technologies for verification of declared nuclear activities or monitoring the clandestine nuclear activities. The effectiveness and the efficiency of the technology have been tested and proved through the field trials. The IAEA had performed baseline campaigns for various types of nuclear facilities, especially enrichment plant and reprocessing/or hot-cell facilities, from early 1996 to 1998. And now, the IAEA adapted the particle analysis as a routine inspection method from early 1999. In Korea, we joined the IAEA's field trial from 1994. Many swipe samples have been taken by the IAEA inspectors at the various nuclear facilities including Post-Irradiation Examination Facility(PIEF) and Irradiated Material Examination Facility(IMEF) at KAERI. The analytical results reviewed during the "Joint Annual Review Meeting" between Korea and the IAEA every year. We have been feeling that we have to improve our capabilities to interpret the analytical results exactly.

There are 5 institutions which have commercial contract with the IAEA for nuclear material particle analysis in swipe sample. They are named as NWAL(NetWork Analytical Lab.) of the IAEA which includes the DOE labs, AFTAC in US Air Force, Aldermaston in UK, Microparticle Analysis Lab. in Russia and the the Institute for Transuranium Elements(ITU) in Germany. The institutions except the ITU are all restricted to contact due to their military use or national security. Only the ITU which is one of the Joint

Research Center of European Commission is available for the private commercial use. In this regard, we tried to establish an international cooperation network with the ITU for analyzing the swipe samples taken at KAERI facilities and for improving the capability to interpret the particle analysis results. We think that these activities are necessary for coping with the IAEA's strengthened safeguards system, and for a preparation to the expected mutual nuclear inspections between South and North Korea in the future.

### III. Contents and Scopes

- To Build Technical Cooperation Network with the ITU
  - analytical service contract with the ITU for analyzing swipe samples taken at KAERI nuclear facilities.
  - participation in the analytical procedure at the ITU for clear understanding of the particle analysis
    - smear paper treatment in the clean lab.
    - element analysis by Scanning Electron Microscopy(SEM)
    - isotope ratio measurement of U, Pu isotopes by Secondary Ion Mass Spectrometry(SIMS)
- To Improve Evaluation Technology for Particle Analysis Result
  - technical consultation with a specialist invited from the ITU
  - for improving the technologies of sample taking and transportation
    - handling of trace particle samples
    - characteristic tools for sample taking and transportation in specific nuclear facilities
  - correlation between nuclear activities and analytical results
    - nuclear activities and uranium isotope ratios
    - nuclear activities and plutonium isotope ratios
    - U, Pu contents, isotope ratios and fission products

#### **IV. Results**

On our review, the particle analysis technology needs very high initial investment to set up the clean lab. and high quality equipments such as high sensitivity mass spectrometers and scanning electron microscope, etc. Also it needs several hundreds of Korean Won as an operation fee every year. So we concluded that it is more economically efficient to make a channel abroad to cover our national needs than to build our own laboratory for the particle analysis. Among 5 institutions proved to have particle analysis capabilities, we tried to make a cooperation channel with the ITU, which is the only one available for private commercial use now. For the cooperation, we have two seminars and technical consultations with a specialist, Dr. Tamborini, invited from the ITU in August. One of TCNC staff visited the ITU in November to participate in the whole procedure of the particle analysis as an observer. We think that the participation in the analytical procedure improved our capability for much clearer evaluation of the particle analysis results. Both sides concluded to cooperate further step by step and case by case. For examples, the cooperation needed to technical development will be proceeded under the existing KAERI-ITU cooperation arrangement which was signed in 1998 and scheduled to be amended next year. And the ITU will give analytical services for KAERI swipe samples through analytical service contract each year and give chances to the TCNC staff to participate in the analytical procedure.

#### **V. Proposal for Application**

- development of evaluation technology for the IAEA's analytical results of Korean swipe samples
- database of the analytical results on the KAERI nuclear facilities for South-North mutual nuclear inspection
- development of technical cooperation items for swipe sample analysis with the ITU under existing KAERI-ITU cooperation arrangement.



# CONTENTS

Chapter 1	Introduction .....	1
Chapter 2	The State of the Art .....	5
Section 1	Technical Status of the Nuclear Particle Analysis .....	5
1.	Overview of the Technologies .....	5
2.	Sample Taking and Analysis .....	7
가.	Sample Taking .....	7
나.	Evaluation of the Analytical Results .....	9
(1)	Analytical Results for Enrichment Facility Samples .....	9
(2)	Analytical Results for Hot Cell Samples .....	10
Section 2	U Particle Analysis Using SIMS .....	12
1.	Sample Preparation of Swipe Samples .....	12
2.	Measurement of Isotope Ratios in U Particles .....	12
Section 3	Particle Analysis related Status in the ITU .....	13
Section 4	Comparison of the Technical Levels Between National and International Status .....	15
Chapter 3	Research Scope and Results .....	17
Section 1	Invitation of the Specialist from the ITU .....	17
1.	Personal Resume of the Invitee .....	17
2.	Activities of the Invitee .....	17
가.	Seminars .....	17
나.	Technical Consultation .....	17
다.	Discussion on Future Cooperation .....	17
Section 2	Participation in the Sample Analysis Procedure in the ITU .....	18
1.	Sample Preparation .....	18
가.	Particles in U-only Sample .....	18

1. Particles in U, Pu coexisting Sample .....	20
2. Measurement of U, Pu Isotope Ratios Using SIMS .....	20
3. Analytical Results of the KAERI Samples .....	21
Section 3 Seminars by the Specialists in Domestic .....	22
Chapter 4 Accomplishment of Research Goals and Contribution .....	23
Chapter 5 Application Plan of Research Results .....	23
Chapter 6 References .....	25
Chapter 7 Appendices .....	27
<Appendix 1> Seminar Material of Dr. Tamborini .....	29
<Appendix 2> Meeting Minutes (with Dr. Tamborini) .....	69
<Appendix 3> Technical Report(for KAERI's Swipe Sample Analysis) .....	75
<Appendix 4> Seminar Materials (by Dr. K. J. Kim, Dr. S. J. Koo) .....	109

## TABLE CONTENTS

<Table 1> Methods and Characteristics of the Swipe Sample Analysis .....	6
<Table 2> Pu Isotope Ratios in the Spent Nuclear Fuels .....	11

## FIGURE CONTENTS

<Figure 1> Sampling Kit for Non-radioactive Swipe Samples .....	8
<Figure 2> Sampling Tools for Hot Cell Swipe Samples .....	8
<Figure 3> Particle Analysis Results for the Sample in U Enrichment Plants .....	10

## 목 차

제 1 장 개 요 .....	1
제 2 장 기술개발 현황 분석 .....	5
제 1 절 핵물질 입자 분석의 국제적 동향 .....	5
1. 분석기술 내용 .....	5
2. 시료채취 및 분석 .....	7
가. 시료 채취 .....	7
나. 분석자료 평가 .....	9
(1) 농축시설 시료의 분석결과 평가 .....	9
(2) Hot Cell 시료의 분석결과 평가 .....	10
제 2 절 SIMS을 이용한 U 입자 분석 기술 현황 .....	12
1. Swipe 시료의 전처리 .....	12
2. 입자내 U 동위원소 비 분석 .....	12
제 3 절 ITU의 입자분석관련 현황 .....	13
제 4 절 국내 현황 및 국제 수준과의 기술 비교 .....	15
제 3 장 연구수행 내용 및 결과 .....	17
제 1 절 ITU 전문가 초청 활용 .....	17
1. 전문가 인적사항 .....	17
2. 활용 내용 .....	17
가. 세미나 .....	17
나. 기술 자문 .....	17
다. 향후 협력 방안 .....	17
제 2 절 ITU 입자분석 현장 참여 및 KAERI swipe 시료분석 .....	18
1. Swipe 시료의 전처리 .....	18
가. U 입자들만 발견된 시료 .....	18
나. U, Pu 입자가 함께 발견된 시료 .....	20

2. SIMS에 의한 입자 내 U, Pu 동위원소 비 분석 .....	20
3. 연구소 시료의 분석 내용 .....	21
제 3 절  국내 전문가 초청 세미나 .....	22
제 4 장  연구목표 달성도 및 기여도 .....	23
제 5 장  연구개발결과의 활용계획 .....	23
제 6 장  참 고 문 헌 .....	25
제 7 장  부  록 .....	27
<부록 1> Tamborini 세미나 자료 .....	29
<부록 2> Meeting Minutes (Dr. Tamborini 방문 시) .....	69
<부록 3> Technical Report (KAERI Swipe 시료에 대한 ITU 분석결과) .....	75
<부록 4> 국내 전문가 세미나 자료 (김경중 박사, 구수진 박사) .....	109

## 표 목 차

<표 1> Swipe 시료 분석 방법 및 특성 .....	6
<표 2> Pu 동위원소 성분비와 핵연료 특성 .....	11

## 그 림 목 차

<그림 1> 국제원자력기구가 사용하는 Swipe 시료채취 Kit .....	8
<그림 2> Hot Cell 내부에서 사용하는 Swipe 시료 채취 도구 .....	8
<그림 3> 농축시설의 Swipe 시료 내 우라늄 입자분석 결과 .....	10

## 제 1 장 개 요

### 제 1 절 국제적 동향

걸프전 직후 실시된 이라크에 대한 UN의 무기사찰 결과 미신고 원자력 활동이 존재하고 있음을 확인함에 따라, 국제원자력기구는 기존의 안전조치체제(INFCIRC/153 type)가 핵확산을 방지하는데 미흡하다는 것을 인식하게 되었고, 따라서 기존 안전조치체제를 강화하여야 할 필요성이 제기되었다. 기존 안전조치체제를 강화할 수 있는 방안을 도출하기 위해 "Programme 93+2"라는 과제가 수행되었으며, 이 과정에서 환경시료의 채취/분석이 원자력 활동의 추적에 매우 유용한 수단임이 입증되었고, 이로 인해 환경시료의 채취/분석 기술이 안전조치 강화 방안에 포함되게 되었다.

환경시료의 채취/분석이 미신고 원자력 활동 추적에 유용한 것은 모든 원자력 활동 중에서는 아무리 시설이나 장치를 누출 없게 운영한다 하더라도 결국은 극미량이나마 물질(핵물질 또는 공정에 투입되는 유기용제 등의 물질)이 공정 외부로 누출될 수밖에 없음에 근거하고 있다. 이와 같이 누출된 물질은 건물 내 장비나 여타 설비들의 표면에 쌓이고, 또한 여러 경로를 통해 시설 외부로 유출되어 식물체나 흙 등에 쌓이거나 물에 의해 원거리까지 운반된다. 물론 이와 같이 누출된 핵물질의 양은 매우 적기 때문에 주민의 안전에는 문제가 되지 않는 수준이다. 그러나 분석기술의 발달에 힘입어 극미량의 누출도 검출이 가능하게 되었으며, 검출 결과는 누출 공정의 공정 특성을 반영하고 있으므로 원자력 시설에서의 과거 또는 현재의 원자력 활동을 추적할 수 있게 한다. 안전조치 목적으로 채취/분석되는 환경시료로는 공정시설 내 장비 또는 설비 표면에서의 swipe, 시설 주변의 토양, 식물체, 물 등의 시료가 있다.

국제원자력기구는 걸프전 이후 이라크의 의심지역 또는 시설들에서 채취한 환경시료의 분석 결과와 회원국들의 원자력 시설에서 시설별 특성에 따라 채취/분석한 현장시험 분석 결과를 통하여, 환경시료 분석이 그 시설에서의 원자력 활동을 잘 반영하고 있다는 결론을 얻었다. 특히 swipe 시료 내에 입자로 존재하는 U, Pu 입자의 원소별 동위원소 비 분석은 그 시설에서의 현재 또는 과거의 원자

력 활동을 추적하는데 결정적인 증거를 제공하는 것으로 판명되었다. 이를 근거로 '95년에는 기존의 안전조치 협정 하에서 접근이 가능한 시설들에 대해 설계정보 검증 시 또는 사찰 시 환경시료 채취를 부분적으로 적용하기 시작하였으며, '96년 초에는 국제원자력기구 이사회에서 본 기술을 새로운 안전조치 기술로 공식 인정하였다. 환경시료 채취 초창기에는 주로 농축시설과 hot cell 시설에서의 swipe 시료 채취에 초점이 맞추어졌다.

## 제 2 절 국내 현황 및 연구의 필요성

한국은 국제원자력기구가 '94년부터 시행한 현장시험 단계부터 적극 참여하여 왔고, '99년부터는 조사후시험시설 및 관련 분석시설과 조사재시험시설 등에서 정기사찰 시에 swipe 시료가 채취되고 있으며, 매년 개최하고 있는 한-IAEA 안전조치 검토회의에서 분석 결과를 평가하고 있다.

그러나 swipe 시료 내의 U, Pu 입자의 원소별 동위원소 비 분석은 청정실험실 및 고감도의 질량분석기를 필요로 하는 등 50억원 이상의 많은 초기 투자와 연간 15~20억원의 운영비가 소요되는 등 지속적인 분석 수요가 없는 한 우리나라의 입장에서 설비를 직접 갖추기에는 경제적이지 못한 면이 있다. 그러나 국제원자력기구의 swipe 시료 채취/분석에 대한 국가적 대응능력 배양과 앞으로 예상되는 남북상호사찰에 대한 사전 준비는 꼭 필요한 사안이므로 국제적으로 인증된 분석기관과의 국제협력을 통해 본 분야에 대한 국내적 필요성을 충족해 나가고자 하였다.

이러한 환경시료 입자분석 기술은 미국 등 일부 선진국들만이 보유하고 있는 첨단기술이다. 국제원자력기구는 다음 5개 실험실과 Net-work Analytical Lab. (NWAL) 계약을 맺고, 국제원자력기구 사찰관들이 채취한 swipe 시료들을 의뢰하여 분석하고 있다. 이들 연구소는 미국 공군산하 Air Force Technical Applications Center(AFTAC) Lab, DOE 산하 연구소, 영국 공군산하 Aldermaston, 러시아 Microparticle Analysis Lab. 및 독일 Karlsruhe에 있는 유럽연합 산하 Institute for Transuranium Elements(ITU) 등이다. 이들 중 ITU를 제외한 다른 기관들은 국사목적의 기관이거나 또는 국가 안보 상 본 기술에 대한



접근을 허락하고 있지 않은 상황이므로 유일하게 민간 접촉이 가능한 ITU와의 협력 채널 구축을 모색하였다.

여 백

## 제 2 장 기술개발 현황

### 제 1 절 핵물질 입자 분석기술의 국제적 동향

#### 1. 분석기술 내용

swipe 시료는 공정설비의 연결부위나 창틀 또는 출입문 뒤 등 오랜 기간동안 핵물질이 쌓여 잘 보존되어 있음직한 곳에서 paper(filter paper의 한 종류) 또는 형겔지로 일정 부위를 문질러 채취하며, 채취된 시료는 필요에 따라 시료 전체를 대상으로 분석하기도 하고, 시료 표면에 붙어 있는  $\mu\text{m}$  직경 수준의 작은 입자들을 개별 분석하기도 한다. swipe 시료 전체를 분석하는 것을 총량분석(bulk analysis)이라 하고, 입자 각각을 분석하는 것은 입자분석(particle analysis)이라 부르며, 측정방법으로는 일반적으로 감마선 방출 핵종을 분석하는 고감도 감마선 분광분석, 우라늄 또는 플루토늄의 동위원소 구성비 및 U/Pu 원소 비를 측정하는 질량분석 등이 있다.

총량분석의 경우 시료 전체를 대상으로 분석하는 것이므로 분석 결과는 시료에 포함되어 있는 물질들의 평균 특성만을 반영한다고 볼 수 있다. 반면에 입자분석은 시료에 포함되어 있는 개개 입자들에 대한 분석이므로 시료 채취지점에 존재하는 다양한 형태의 핵물질 특성을 반영한다. 따라서 이러한 핵물질의 성분 및 동위원소 비를 측정함으로써 그 지점에서 행해진 과거 또는 현재의 원자력 활동을 추적해 낼 수 있다.

재처리 시설에서 채취한 시료에서는 U/Pu, Pu-240/Pu-239, Pu-240/Pu 등을 측정하여 그 시설에서 취급한 사용후핵연료의 연소도를 추정하고, Am-241/Pu-241 비를 측정하여 재처리의 시기 및 횟수를 추정한다. 우라늄 농축시설에서는 우라늄 입자 각각에서 U-235 동위원소 함량 비를 측정함으로써 그동안 생산된 핵물질의 농축도 추정이 가능하다. 농축시설에서는 농축 각 단계별 연결 부위에서 시료를 채취함으로써 각 단계별 농축도를 알 수 있고, 또한 그 시설에서 과거에 농축했던 최고치의 농축도도 알아낼 수 있으므로 설계상의 농축도를 계속 유지하며 운영을 하였는지를 확인할 수 있다.

입자에서의 핵물질 동위원소 비 분석에는 2가지 질량분석 방법이 활용되는데, fission track 검출(Lexan이용)을 거쳐 Thermal Ionization Mass Spectrometry (TIMS)를 이용하는 방법과 Scanning Electron Microscope(SEM)을 이용하여 대상 원소를 검출한 후 Secondary Ion Mass Spectrometer(SIMS)를 활용하여 U 또는 Pu의 동위원소 비를 측정하는 방법이 있으며, 전자는 미국 공군산하 AFTAC Lab.에서 후자는 유럽연합의 ITU에서 사용하고 있다. 분석을 위해서는  $10^{-15}$ g 이하를 측정할 수 있는 고감도 질량분석기가 필요하며[1], SIMS를 이용하는 경우 입자 크기가  $1\mu\text{m}$  이상은 되어야 하므로  $0.1\mu\text{m}$ 의 입자 크기까지 측정할 수 있는 TIMS에서 보다 측정 입자의 크기가 커야하는 단점이 있으나, 시료의 전처리가 간단하여 분석비용을 절감할 수 있고, 상대측정오차도 1~5% 정도인 것으로 알려져 있다.[2] 국제원자력기구가 swipe 시료 분석에 적용하고 있는 분석법들의 특성을 <표 1>에 나타내었다.

<표 1> Swipe 시료 분석 방법 및 특성[2]

Method	Analyte	Measurement
Low-Background High-Resolution Gamma Spectrometry (HRGS)	Cs-134, Cs-137, Ru-106 etc.	Concentration Detection Limit = 1-5mBq/sample( $10^3$ sec. count)
	Am-241, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241	Am-241/Pu-241 ratio for age determination
Thermal Ionization Mass Spectrometry (TIMS)	U, Pu	Concentration Detection Limit = pico gram
	U isotopes	Abundance (ratios)
	Pu isotopes	Abundance (ratios)
Secondary Ion (or Ion Microprobe) Mass Spectrometry (SIMS)	U, Pu	Concentration in particles with diameter $> 1\mu\text{m}$
	U isotopes	Abundance (ratios) in particles
	Pu isotopes	Abundance (ratios) in particles
Particle Analysis (with Lexan and TIMS)	U, Pu	Presence of fissile isotopes in particles with diameter $> 0.1\mu\text{m}$
	U isotopes	Abundance (ratios) in particles
	Pu isotopes	Abundance (ratios) in particles
Alpha Spectrometry	U-234, U-238, Pu-238 Pu-239, Pu-240	Concentration and Isotopic ratios

## 2. 시료채취 및 분석[3]

"Programme 93+2"의 일환으로 국제원자력기구가 추진한 환경시료 채취/분석은 국제원자력기구 이사회의 승인을 거쳐 '96년 초부터 재처리 관련 시설과 우라늄 농축시설에 대해 적용을 시작하였다. 국제원자력기구에서 수행하고 있는 환경시료의 채취/분석은 다음과 같은 내용으로 이루어진다.

### 가. 시료 채취

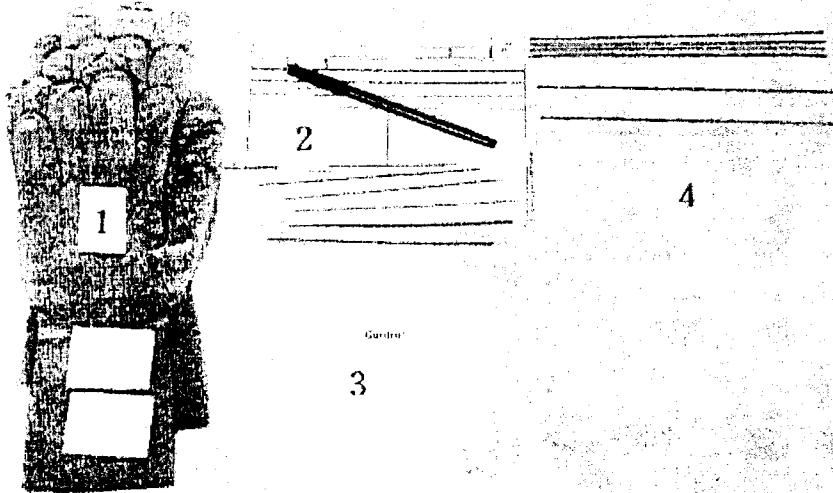
환경시료 채취 목적이 그 시설에서의 미신고 원자력 활동 부재에 대한 신뢰성 증진에 있음에 비추어, 이 목적을 만족시키기 위해서는 시설의 설계 특성과 운영 정보를 바탕으로 시료를 채취하여야 한다. 예를 들어 농축시설의 경우에는 미신고 물질의 사용 여부 및 신고된 농축도 이상으로의 운전 여부를 확인하는 것이므로, 이를 위해 농축시설 내 cascade hall 내부, 농축 핵물질의 반입/반출 지역 등에서 시료를 채취하여야 하고, hot cell의 경우는 Pu 생산을 위한 재처리 작업, 고농축 우라늄의 취급, 특정 종류나 형태의 조사후핵연료 취급,  $\alpha$ -선 방출 동위원소의 추출, 운영 정지된 시설의 가동 여부 등을 확인하는 것이므로 물질의 이동점, hot cell 내부 및 작업 구역 등에서 시료를 채취하여야 한다.

시료 채취는 시설 별로 수립된 시료 채취 절차에 따라 표준화된 시료채취 도구를 이용하여 훈련된 사찰관에 의해 수행된다. 국제원자력기구는 시설 특성에 맞게 <그림 1> 및 <그림 2>와 같은 채취 도구를 개발하여 사용하고 있다.[4]

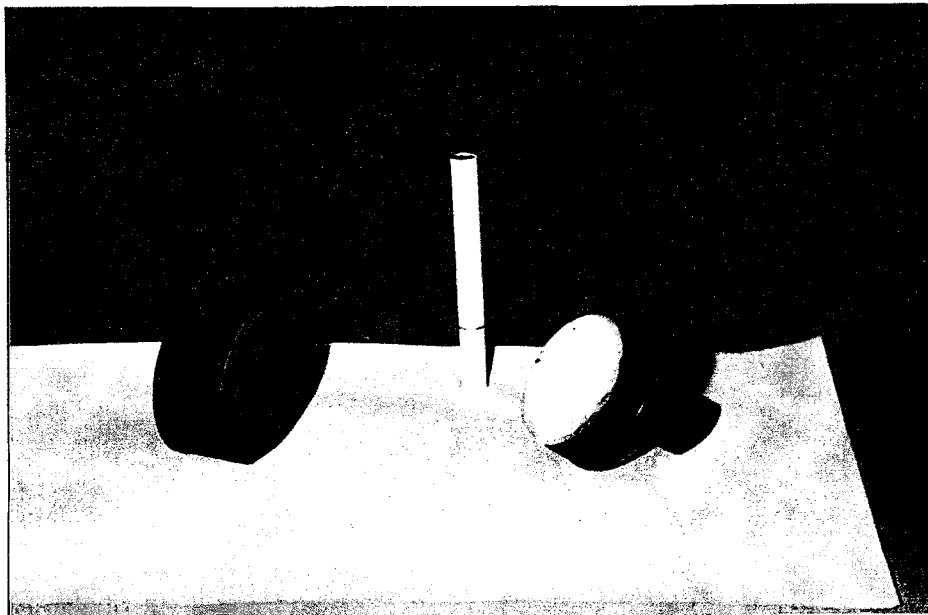
시료채취 도구는 오스트리아 비엔나 근처의 Seibersdorf에 있는 국제원자력기구 분석실험실의 class-100 청정실험실에서 준비되어 사찰관에게 지급되며, 원 시료 뿐만 아니라 background 및 교차오염을 확인할 수 있도록 채취자의 손을 닦은 control 시료도 준비한다. 시료는 Seibersdorf 실험실에서  $\gamma$ -선 측정을 통해 방사능 정도를 확인하고 안전조치 목적에 따라 분석 방안이 강구되며, 필요에 따라 NWAL에 분석 의뢰된다. 최종 분석실에 도착할 때까지 시료간 교차오염을 방지하기 위해 철저히 밀봉되어 취급되고 있다.

국제원자력기구는 '99년에 5개 회원국의 8개 농축시설과 19개 회원국의 28개 재처리 또는 hot cell 시설에서 총 511개의 swipe 시료를 채취하였다. '97년 585개, '98년 497개였던 것을 감안하면 대략 연간 500개 정도의 swipe 시료를 채취/

분석하는 것으로 보여진다.[5] 이 분석이 시료 당 약 \$1,000 정도의 비용이 소요 되기 때문에 예산상 시료 채취량을 급격히 확대하기는 어려울 것이다.



<그림 1> 국제원자력기구가 사용하는 Swipe 시료채취 Kit [4]  
 (1: 고무 glove 2 set, 2: 시료채취 기록지 및 pen,  
 3: Cotton Swipe 및 작은 비닐백 (7개), 4: 큰 비닐백 )



<그림 2> Hot Cell 내부에서 사용하는 Swipe 시료 채취 도구[4]

## 나. 분석자료 평가

Seibersdorf 실험실 또는 NWAL에서 보내온 시료 분석 결과는 국제원자력기구 안전조치부(Department of Safeguards)로 보내지며, 채취된 시설의 신고된 원자력 활동에 따른 예상 검출신호와 실제 분석 결과를 비교하여 종합적으로 평가를 한다. 만일 실제 분석 결과가 예상치와 다르게 나타나게 되면 재 측정, 시료의 재 채취 및 시설 운영자로부터의 별도 정보 수집 등이 이루어지며, 안전조치 활동을 통해 얻은 여타 정보들을 검토하여 종합적인 재 평가를 하게 된다. 재 측정을 위해서는 처음 채취한 시료 set 중 보관해 놓은 시료를 다른 분석기관에 의뢰하여 처음과는 다른 분석 방법으로 분석할 수도 있다.

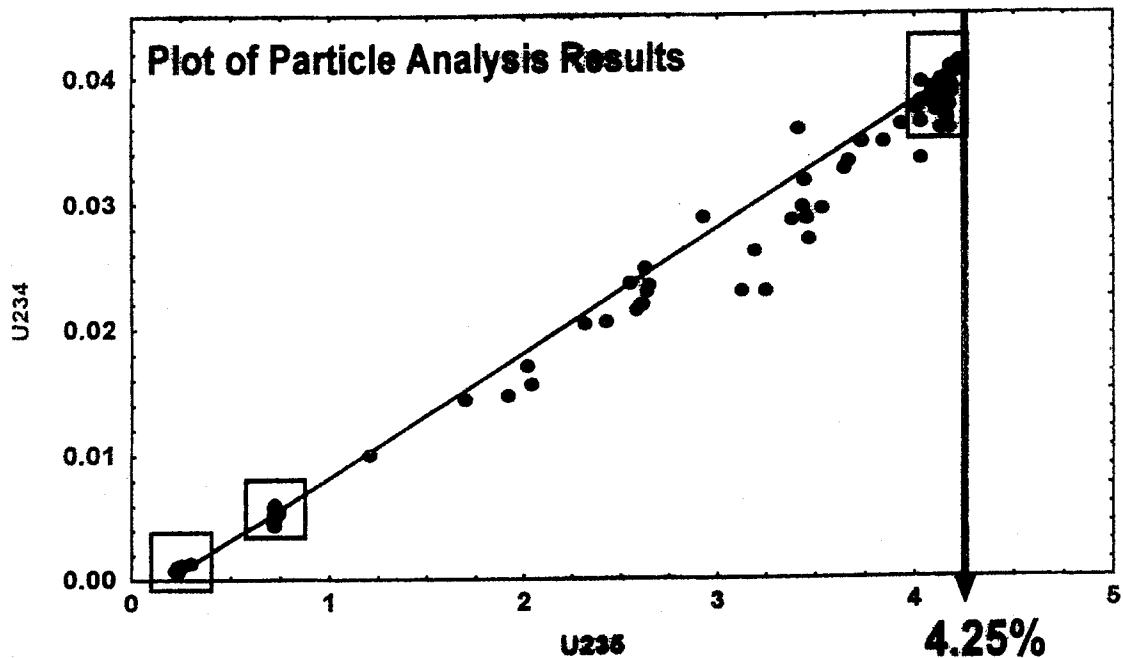
분석 결과는 장기적인 평가 자료로 활용하기 위하여 data base 화하고 있다. 모아진 자료들은 농축, 원자로 형태, 원자로 운전특성 등에 따라 나타날 수 있는 핵 주기 상의 특성 별로 평가되어 새로운 시설에서의 예상 신호를 예측하는 기본 자료로 활용된다.

### (1) 농축시설 시료의 분석결과 평가[6]

우라늄 농축시설에서 채취한 swipe 시료 내 입자들은 TIMS 또는 SIMS 방법에 의해 우라늄 동위원소 비가 측정되며, 동위원소 비는 U-235 함량 비, U-235/U-234 및 U-235/U-236으로 도표를 그리고, 도표 상에 나타난 이들의 함량 비 분포를 통해 원자력 활동을 평가하게 된다.

시료를 총량분석하면 U-235 농축과정 중의 단계별 농축도들이 평균적으로 나타나게 되어 원료물질(주로 천연우라늄, U-235; 0.726 atom%)의 농축도와 유사한 농축도를 보이게 된다. 따라서 총량분석을 통해서만은 유효한 정보를 얻기가 어렵다. 그러나 입자들을 분석하여 U-235 함량 비를 측정하면 취급된 농축도 분포를 알 수 있고, 일련의 공정을 통해 만들어지는 중간단계의 농축 생성물과 tail 들의 농축도를 U-234에 대해 도표화하면 도표 상에 일직선으로 놓이게 되는데, 이를 통해 농축 방법을 추정할 수 있다. 일반적인 상업용 농축시설의 경우 tail의 U-235 함량 비는 0.3% 정도이나 Calutron을 사용한 Electromagnetic Isotope Separation(EMIS) 방법에서는 0.2% 보다도 더 낮은 것으로 알려져 있다.[7] 또한 U-234 함량 비는 원료물질의 원산지를 추정할 수 있게 한다. 즉, U-234는 U-238

이 Th-234를 거쳐 생성된 붕괴 생성물이기 때문에 Th와 U과의 서로 다른 화학적 특성으로 인해 지역별로 52~54 ppm 정도의 서로 다른 함량 분포를 보이는 것으로 알려져 있다. 한편 UF<sub>6</sub>를 사용하는 시설에서는 UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 입자가 발견되는데 만약 금속화 공정(핵무기는 우라늄 금속이므로)을 거쳤다면 UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 이외의 다른 화학종도 발견될 것이다.[7] U-236의 경우 천연에는 U-238에 대해 겨우 5.6x10<sup>-10</sup> 정도 존재하므로[8], 이의 발견은 이 공정에서 사용후핵연료를 재처리하여 얻은 우라늄이 재 순환되어 사용되었음을 추정케 한다. <그림 3>은 한 상업용 농축시설에서 채취한 시료에 대해 입자분석한 결과이다. 이 시설에서는 최고 농축도 4.25%의 U-235를 생산하고 있다.



<그림 3> 농축시설의 Swipe 시료 내 우라늄 입자분석 결과[9]

(2) Hot Cell 시료의 분석결과 평가[6]

hot cell 시설의 경우는 방사능이 매우 높은 hot cell 내부에서 채취된 시료와 hot cell 외부에서 채취된 낮은 방사능의 시료가 있다. hot cell 외부에서 채취한 시료는 입자분석이 가능하지만 hot cell 내부에서 채취한 시료는 방사능이 매우



높을 수 있으므로 총량분석만 수행하는 것을 원칙으로 하고 있다. 그러나 최근에는 hot cell 내부 시료의 경우에도 시료를 분할하는 방법으로 방사능을 낮춘 후 입자분석할 수 있는 방안을 모색하고 있다.

입자분석에서는 U, Pu 입자에 대해 원소별 동위원소 비를 측정하며, 분석 결과는 U-235/U-234, U-235/U-236, U-236/Pu-240의 그래프로 나타내어 취급된 사용후핵연료의 연소도 및 연료의 종류 등을 추정한다. 총량분석에서는 U/Pu 비 및 핵분열 생성물들의 성분 비를 측정하여 핵연료의 연소도 및 종류를 추정하고, Am-241 또는 핵분열 생성물들을 분석하여 hot cell 내부에서 사용후핵연료가 취급된 시기를 추정한다. 순수 Pu 입자나 예상보다 U/Pu 비가 낮은 입자들이 발견되면 이는 Pu 추출 실험이 수행되었음을 나타낸다. <표 2>는 사용후핵연료 별로 나타낼 수 있는 Pu 동위원소 함량 비를 보여주고 있다. 이와 같은 함량 비를 실제의 분석 결과와 비교하여 취급된 사용후핵연료의 특성을 파악할 수 있다.

<표 2> Pu 동위원소 성분비와 핵연료 특성[9]

Pu 동위원소 성분비 (wt %)*				
동위원소	Very low Burn-up	Low Burn-up	High Burn-up	MOX High BU**
	0.4 GWD/TU	3 GWD/TU	40 GWD/TU	40 GWD/TU
Pu-238	<<	0.05	2.1	2.4
Pu-239	99.2	94.1	53.6	33.3
Pu-240	0.8	5.2	23.5	33.9
Pu-241	0.004	0.7	13.9	17.3
Pu-242	<0.001	0.02	6.9	13.1
U/Pu	4800	680	95	21

\* Irradiation of 3.5% U-235 fuel in PWR  
 \*\* MOX fuel with natural U and U/Pu = 16

## 제 2 절 SIMS을 이용한 U 입자 분석기술 현황

### 1. Swipe 시료의 전처리

채취/운반된 swipe 시료는 알파 및 감마 측정기를 사용하여 시료에 대한 방사능 정도를 측정한 후 이를 청정실험실로 옮겨 시료간 교차오염이 발생하지 않도록 세심한 주의를 기울여 전처리를 행한다. 청정실험실의 청정도는 실험실 전체를 class 100 정도로 유지하면서 실제 작업이 이루어지는 chemical hood나 clean chamber 지역은 class 10으로 유지하고 있다.

실험 table 위에 비치한 비닐 glove bag에 시료를 넣고 입자가 많이 붙어 있을 만한 형겔 부위에서 약 1cm x 1cm 크기로 수 개의 조각을 자른 후 이를 직경 약 1.5cm 높이 약 10cm 크기의 n-Heptan이 담겨져 있는 유리 vial에 넣고, 초음파 세척기를 이용하여 형겔 조각에 붙어있는 입자들이 n-Heptan에 효율적으로 떨어져 나가도록 수 분 동안 진동시킨다. 유리 vial에 들어 있는 n-Heptan 용액은 잠시 방치해 둔 후 pipett을 사용하여 부유되어 있는 입자를 조심스럽게 취하여 chemical hood 내 hot plate 위에서 미리 가열해 둔 직경 1", 두께 약 3mm의 graphite plate 위에 소량씩 옮겨 n-Heptan이 잘 마르기를 기다린다. 이 과정을 10여 회 반복하여 n-Heptan 용액 중에 들어있는 입자들이 graphite plate 위에 골고루 분포하여 정착되도록 한다. 이후 200도 이상으로 가열하여 graphite plate 위에 남아 있는 n-Heptan을 제거한다.

graphite plate는 일반 실험실에 있는 SEM에 넣어 밤새 U 입자를 scanning 하여 U 입자의 위치와 수를 파악한다.

### 2. 입자내 U 동위원소 비 분석

입자가 정착된 graphie plate를 SIMS에 옮겨 250 $\mu$ m x 250 $\mu$ m 크기로 U-238에 대해 defocusing 한 primary ion(O<sub>2</sub><sup>+</sup>) beam을 조사하여 ion image 방식으로 mass scanning을 하여 유효한 우라늄 입자를 찾아낸다. 이어 primary ion beam을 입자에 focusing하여 발생하는 secondary 이온을 질량분석함으로써 동위원소 비를 측정한다.

매 측정 전후에 U 표준입자 시료를 이용하여 검정을 하며, U 표준입자 시료는 미국 NIST의 1%, 3%, 10% U-235 농축 질산용액을 표준물질로 하여 ITU에서 자체 제조한 것을 사용하고 있다. 표준입자 시료는 표준 질산용액을 주사기로 분사한 후 3단계에 걸친 고온 furnace를 거쳐 graphite plate에 접촉시키는 방법을 사용하고 있다. 만들어진 입자의 모양과 크기 등은 용액을 주사시킨 량 및 속도, 용액 입자가 통과하는 3개의 중간 furnace 온도 등에 민감하게 의존한다.

### 제 3 절 ITU의 입자분석관련 현황

ITU는 독일의 Karlsruhe 중앙연구센터(FZK)에 소재하며, European Commission 산하 7개 Joint Research Center(JRC) 중의 하나이다. 참고로 JRC 소속 연구기관을 소개하면 다음과 같다. 즉,

- The Institute for Transuranium Elements (ITU) : Karlsruhe, Germany
- The Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM)  
: Geel, Belgium
- The Institute for Energy (IE) : Petten, Netherlands
- The Institute for Prospective Technological Studies (IPTS) : Seville, Spain
- The Institute for the Protection and the Security of the Citizen (IPSC)  
: Ispra, Italy
- The Institute for Environment and Sustainability (IES) : Ispra, Italy
- The Institute for Health and Consumer Protection (IHCP) : Ispra, Italy

Karlsruhe 중앙연구센터 내에는 독일 정부에서 운영하는 10여 개의 다른 연구기관들도 있는데, 이 연구소들 중 ITU는 원자력 분야의 연구가 계속되고 있는 연구소이다. 연구소는 부소장급인 Scientific Coordinator를 비롯하여 Management Support, Hot Cell Technology, Material Research, Nuclear Fuels, Nuclear Chemistry, Actinides Research, Nuclear Safety and Infrastructure 및

Conventional Safety 등 7개의 division들로 나뉘어 있고, swipe 시료 분석과 관련된 부서는 Nuclear Chemistry Division 내의 Analytical Service Department와 Analytical Chemistry Department이다. 연구소는 정규직이 약 250명이며 그 외에 용역직, Post-Doctor 등 총 300명 정도로 구성되어 있다.

ITU에서는 SIMS 기술에 의한 입자분석을 '93년 'IAEA 93+2 Programme'이 시작되면서부터 연구하기 시작했으며, EURATOM 의 "High Performance Trace Analysis(HPTA) Project"를 지원하는 프로그램 형태로 진행되어 왔다. '95년 1월에 처음으로 관련 설비를 설치하여 swipe 시료에서의 U 입자분석에 성공함으로써 이 분야의 기술 수준을 인정받게 되었다.

swipe 시료 분석과 관련된 정규 직원은 7명이며 청정실험실에서의 작업, SEM 운용, SIMS인 프랑스 Cameca IMS 4f 및 6f 운용 등에 종사하고 있고, 시료는 국제원자력기구에서 약 50개/년, EURATOM에서 50개/년 및 기타 개별 계약에 의한 시료 50개/년 등 연간 약 150개 정도의 시료를 처리하고 있다.

swipe 시료 내 핵물질 입자분석에 사용하는 Cameca 사의 SIMS 질량분석기는 대당 약 \$140만 정도이며, electronic part를 필요에 맞게 구성하는데 약 \$100만이 추가로 소요된다. Cameca IMS 4f, 6f model이 각각 1대씩이 있고 4f는 U 입자분석에 사용하고 6f는 U, Pu 입자분석에 사용하고 있다. 또한, 시료 전처리를 위한 청정실험실 구성에 \$50만, SEM 장비비 \$20만 및 표준입자 시료제조를 위한 Aerosol Particle Production System 구성에 \$30만 등 기초 설비 구성에만도 약 \$380만이 소요되며, 인건비로 연간 약 \$35만 및 기타경비 약 \$100만 등을 사용하고 있다.

#### 제 4 절 국내 기술 현황 및 국제 수준과의 비교

기술 내용	국 내	국 외
- Swipe 시료 채취/운반	- 그동안 진행된 IAEA 시료채취 과정에 참여한 바 있으므로 시료채취 위치 선정, 채취도구 취급 방법 등 일부에 대한 수행 능력 확보	o 미국 DOE Lab., 공군 AFTAC Lab., 영국의 Altermaston, 러시아 Microparticle Analysis Lab., 독일 ITU 등이 본 기술 분야를 독점하고 있으며, IAEA의 사찰시료, EURATOM의 사찰시료들이 이곳에 의뢰되어 분석되고 있음.
- 시료 분석	- 시료 분석을 위한 시설 및 장비는 없으나 KAERI의 원자력 화학연구부를 중심으로 중장기 연구계획에 의해 기술 확보를 추진 중인. 그러나 초기 투자비만도 50억 이상 필요하고, 지속적인 분석 수요 창출이 어려워 당분간은 시설/기술 확보가 매우 불투명함.	o 프랑스의 BIII DAM, 핀란드의 VTT Chemical Technology 등이 기술 확보를 위해 노력하고 있으며, IAEA의 기술 인증을 추진 중임.  o 일본의 경우 2003년에 Clean Lab.을 완성하여 이 분야 기술 확보을 해 나갈 예정임.
- 분석 결과의 해석 능력	- IAEA에서 통보해 온 분석 결과에 대해 해석할 수 있는 능력이 아직 부족한 상황임.	
- 분석결과와 핵활동과의 연계관계 파악 기술	- 국내 원자력 활동과의 연계 파악뿐만 아니라 여타 원자력 시설에서의 활동과의 관계도 평가할 수 있어야 하나 아직 기술이 확립되지 못하였음.	

여 백

## 제 3 장 연구수행 내용 및 결과

### 제 1 절 ITU 전문가 초청 활용

#### 1. 전문가 인적사항

- 성 명 : Gabriele Mario Tamborini (Mr.)
- 국 적 : 이탈리아
- 소 속 : Nuclear Chemistry Division, ITU, JRC, EC
- 학 위 : 박사, University of Paris-Sud, France
- 초청기간 : 2002년 8월 26-30일

#### 2. 활용 내용 : 세미나 개최 및 자문

##### 가. 세미나 개최 : 2회 <부록 1>

- "Overview of SIMS and correlated analytical methods for particle analysis"
- "How to deduce nuclear parameters from the results of particle analysis"

##### 나. 기술 자문

- 레이저 팀 방문  
: 레이저를 이용한 입자분석
- 원자력화학연구팀 방문  
: consultation on the KAERI's capabilities for the environmental sample analysis  
: 핵물질 입자분석에 국내시설 활용 가능성에 대한 기술 자문

##### 다. 향후 협력 방안 협의 : Meeting Minutes<부록 2> 참조

쌍방은 입자분석과 관련하여 KAERI의 swipe 시료 분석은 상업적 계약에 따라

ITU에서 계속 분석하기로 하였고, 분석 결과에 대한 평가 정보를 상호 공유함으로써 KAERI의 평가기술 향상에 기여하기로 하였으며, 입자분석 기술은 KAERI의 요청이 있을 경우 기존의 KAERI-ITU 협력협정 개정 시('03년 예정) 이를 반영하여 기술협력을 추진해 나가기로 합의하였다. TCNC는 내년부터 hot cell 내부에서 채취한 방사성 swipe 시료를 분석할 계획을 추진하고 있는 바, 이러한 시료의 채취 및 운반에 필요한 기술 및 정보를 ITU가 제공해 주기로 하였다. 자세한 내용은 <부록 2>의 Meeting Minutes에 수록하였다.

## 제 2 절 ITU 입자분석 현장 참여 및 KAERI swipe 시료분석

U, Pu의 입자분석 기술에 대한 폭넓은 이해와 실험 결과의 정확한 평가기술 확보를 위하여 '96년 국제원자력기구 사찰관이 조사후시험시설(PIEF)에서 시료를 채취한 후 연구소에 남겨 놓은 2개의 swipe 시료를 ITU에 보내어 분석하였고(5월), 관련 기술의 확보와 기술협력의 기반조성을 위해 또 다른 2개의 시료를 TCNC 전문가가 ITU로 운반하여(11월) 당 시료에 대한 입자분석 전체 과정에 직접 참여하였다. 다음은 입자분석 과정에 대해 요약한 것이다.

### 1. Swipe 시료의 전처리

#### 가. U 입자들만 발견된 시료

- 시료에 대한 activity screening 결과 5 counts/min. 이하 정도이면 시료를 청정실험실에서 전처리한다.
- 청정실험실은 약 4평 정도이며, 실내는 class 100, chemical hood 및 clean chamber는 class 10으로 유지되고 있다.
- 시료는 청정실험실내 실험 table에 미리 설치해 둔 비닐로 된 glove bag에 넣고 U 입자가 많이 붙어 있을 만한 곳에서 약 1cm x 1cm 크기로 수 개(6개 정도)의 형겅 조각으로 자른 후 이를 시료 운반용 캡슐에 넣는다. glove bag에는 손 작업이 용이하도록 미리 설치되어 있는 단자를 통해 질소를 불어넣어 부풀려 사용하며, 준비된 시료 운반용 캡슐은 glove bag 내의 돌출 부분으로 보내고, 이 부분을 고주파 비닐 sealing 장치로 가열하여



분리 절단 한 후 보관한다. bag의 하단 입구를 역시 sealing 한 후 bag 처리용 hood로 보내어 처리한다.

직경 약 1.5cm 높이 약 10cm 정도 되는 유리 vial에 약 2ml 정도의 n-Heptan을 넣고, 이를 초음파 세척기에 넣는다. 여기에 절단된 시료 1개를 넣어 약 2분 30초 세척하여 부착된 입자들이 n-Heptan으로 떨어져 나오게 한다. 이와 같은 작업을 준비한 모든 조각(6개 정도)에 대하여 1개씩 반복한다.

n-Heptan 용액은 잠시 방치해 둔 후 30 $\mu$ l 정도씩 밀어낼 수 있는 반자동 pippett에 옮기고, 이 pippett을 clean hood 내에서 표면온도가 60~70도로 가열되어 있는 graphite plate의 윗쪽에 설치한다. 이때 pippett 끝이 plate와 거의 닿을 정도로 가깝게 하여 pippett 끝에 매달린 액이 plate에 닿을 수 있게 한다.

액이 plate에 닿으면 증발이 일어나므로 pippett 스위치를 눌러 약 30 $\mu$ l의 액이 흘러나오게 한다. 액이 적시는 범위가 1cm 정도가 되도록 하고, 증발이 이루어지면 pippett 스위치를 눌러 계속 액을 공급한다. 이와 같이 하여 적당한 정도의 입자가 plate에 접촉되면 plate를 교체하며, 시료에 따라서는 1개의 swipe 시료에 대하여 여러 개의 plate가 만들어지기도 한다.

U 입자들이 접촉된 graphite plate는 남아 있는 유기물들을 제거하기 위해 200도 이상으로 가열한다. 이때 너무 빨리 온도를 올리면 유기물이 빨리 분해되면서 연무를 발생시키므로 주의해야 한다. 이러한 연무가 발생되면 plate 주위가 오염되므로 제염작업을 수행하여야 한다.

\*\* 실제로 시료 처리 시 작업자의 순간 부주의로 연무가 발생하였으며, 주위 제염을 위해 HF를 사용하고 있었다. 또한 연무 발생 시 육안으로 보기에는 발생한 연무가 모두 바닥 배기구로 흘러가는 것이 보였는데도 약 3m 정도 떨어진 위치에 있는 입자측정장치는 평소 4~5정도의 수치를 나타내다가도 순간적으로 계측치가 4,000까지 치솟으며 경보음을 내었다. 극히 미세한 입자 상당수가 전체 실내에 퍼진 것이다. 담당자의 설명으로는 이 정도 미세입자는 분석에 영향을 주지 않는 것이라

하나, 좀더 대형 입자가 분출된다면 실험실 전체가 오염될 수도 있으니 극히 조심해야 한다고 했다.

- 청정실험실에서 시료 plate 준비 작업이 끝나면 이를 일반 실험실에 있는 SEM에 넣어 밤새 U 입자의 위치와 수를 scanning하며, 이는 다시 SIMS IMS-4f에 옮겨 각 입자별로 U 동위원소 비를 측정한다.
- SEM에 의한 각 입자 중의 원소분석은 1회에  $250\mu\text{m} \times 250\mu\text{m}$  씩 scanning 하면서 자동 분석할 수 있으나 SIMS에 의한 입자 내 U 동위원소 비 분석은 사람이 일일이 입자를 찾아 하나씩 분석하므로 매우 시간이 걸리는 작업이다.
- 청정실험실에서는 노트, 볼펜 등 청정실험실용으로 제작된 물건만 사용하며, 시료 절단 등에서 사용한 일체의 펜셀, 칼(수술용), 장갑, 및 남은 swipe 시료 조각 등은 glove bag에 넣어 둔 채 열을 이용한 밀봉장치로 밀봉하여 폐기한다.

#### 나. U, Pu 입자가 함께 발견된 시료

- screening 과정에서 count 수가 5 counts/min. 이상이면 오염된 시료로 분류하여 청정실험실에서 취급하지 않고 일반 실험실내에 설치되어 있는 glove box에서 처리한다.
- glove box 내에서는 swipe 시료 일부분에 ethanol을 떨어뜨리고 여기를 직경 1" graphite plate로 문질러 particle을 옮기거나 또는 전기전도성 접착 carbon tape를 한쪽 면에 부착한 직경 1" aluminum plate를 swipe 표면과 접촉하여 입자들을 옮기는 방식을 이용한다.
- 입자들이 접착된 plate는 U 만 있는 입자 plate와는 달리 SEM에 걸지는 않으며, 직접 SIMS IMS 6f에 걸어 위치에 따라 scanning하여 U, Pu 입자를 구별한 후 입자가 발견되면 여기에 primary ion을 조사시켜 U, Pu 동위원소 비를 분석한다.

## 2. SIMS에 의한 입자 내 U, Pu 동위원소 비 분석

- 입자가 접착된 graphite plate는  $250\mu\text{m} \times 250\mu\text{m}$  크기로 U-238에 대해

mass scanning 한 후 유효한 입자를 찾아내어(ion image) primary ion beam( $Cs^+$ ,  $O_2^+$ )을 focusing하여 동위원소 비를 분석한다.

\*\* B, O, Li, C 등의 light element 에는  $Cs^+$  이온을 primary 이온으로 사용하며, U, Pu, Th, Pb 등 heavy element 에는  $O_2^+$  이온을 primary 이온으로 사용한다.

- SIMS 분석에 사용할 표준입자 시료를 ITU 자체에서 제조하여 사용하며, 표준물질로는 미국 NIST의 1%, 3%, 10% U-235 농축 nitrate solution을 주사기로 분사한 후 3단에 걸친 고온 furnace를 거쳐 graphite plate에 접착시키는 design을 사용하고 있다. 만들어진 입자의 모양/크기 등은 용액을 주사시킨 량 및 속도, 중간 furnace의 온도 등에 민감하게 의존한다.
- SIMS 방법에 의한 swipe 시료의 입자 내 원소 및 동위원소 비 분석
  - 농축공정의 종류 : U-234/U-235  
(mass 차이를 이용하는 gas diffusion 및 centrifuge 와 ionization efficiency 차이를 이용하는 electromagnetic 및 laser 법은 서로 다른 동위원소 비를 나타냄.)
  - neutron spectrum hardness : isotopic ratio of fission products  
(the abundance of Xe-136 can give an estimation of the neutron flux level. In fact, Xe-135 has a very high capture cross section and depending on the neutron flux, it branches either to Xe-136 by neutron capture or decays to Cs-135)
  - burn-up : Pu isotope ratio  
(초기 U 농축도와 flux hardness 에 따라 변화가 나타남.)
  - reactor type : U, Pu isotope ratio  
(Pu-239/U-235 isotope ratios in relation to Kr isotope ratios)

### 3. 연구소 시료의 분석 내용

- ITU에 보내 분석한 연구소 swipe 시료 2개는 '96년 5월 국제원자력기구가 baseline campaign을 위하여 연구소 조사후시험시설에서 채취할 때 같이 채취한 시료이며, TCNC-17(IAEA ID 8948-17, PIEF chemistry room

equipment)와 TCNC-21(IAEA ID 8948-21, PIEF Room 9301&9302 waste storage tank) 이었다.

- 시료를 분석할 때는 수시로 표준입자 시료를 사용하여 해당 질량의 위치를 calibration하였으며, 입자 크기가 너무 작으면 통계적으로 의미가 있을 만큼 신호를 얻기 어려우므로 이렇게 작은 입자들의 경우는 분석이 불가능하였다.
- 시료 분석 결과는 Technical Report 형태로 우리 측에 제공되었으며, 제공 받은 Technical Report를 <부록 3>에 수록하였다. 분석 결과는 그동안 조사후시험시설에서 사용한 U의 농축도 범위를 잘 보여 주었으며, Pu 입자는 발견되지 않았다.

### 제 3 절 국내 전문가 초청 세미나

TCNC 및 KAERI 내 안전조치 또는 입자분석 관련자들에 대한 이 분야 이해를 돕기 위하여 2002년 6월 14일 국내 전문가 2명을 초청하여 세미나를 개최하였으며, 관련 자료를 <부록 4>에 수록하였다.

#### ○ 초청 전문가 및 세미나 내용

- 김 경 중 박사 : 한국표준과학원 나노표면분석팀 책임연구원  
"Secondary Ion Mass Spectrometry"
- 구 수 진 박사 : K-MAC 주식회사 표면분석팀장  
"SIMS : Analysis and Applications"

## 제 4 장 연구목표 달성도 및 기여도

당초 계획한 모든 내용을 수행하였으며, 기술 자체를 개발한 것은 아니므로 파급효과를 정량적으로 기술하기는 어려우나, 국제원자력기구의 사찰 강화나 또는 예상되는 남북상호사찰에 대한 국내 대응 전략 수립에 기여할 것임.

## 제 5 장 연구개발결과의 활용계획

### ○ 활용방안

- 국내 환경시료에 대한 국제원자력기구 분석결과 평가 능력 배양
- 미래의 남북상호사찰에 대비한 국내 원자력 시설의 baseline 자료 축적

### ○ 향후조치 : 국내 관련기술 정착을 위한 접근 방안

- 단기적 분석 수요에 대한 대응 전략
  - IAEA는 국내 원자력 시설에서 정기사찰 시 Swipe 시료를 채취하고 있으며, 분석결과는 매년 외교채널을 통해 통보해 오고, 특히 사항들은 한/IAEA 연례 검토회의 시 상호 토의를 통해 해결하고 있음.
  - 이와 같은 상황에 능동적으로 대처하기 위해서는 분석결과에 대한 기술적 해석 능력을 갖추어야 하며, 이를 위해서 ITU와 같은 경험있는 연구소와의 기술협력 채널을 유지해야 할 것임.
  - 남북 상호사찰과 같이 시기를 예측하기 어려운 상황에 대처하기 위해서는 국내 관련 기술 확보 시까지 기다릴 수만은 없는 것이며, 따라서 긴급 상황에 능동적으로 대처하기 위해서도 ITU와 같은 연구소와의 협력이 필수적임.
  - ITU와의 상호 협력체제를 지속적으로 유지하고, 또한 KAERI 원자력 시설들에 대한 입자분석 자료의 baseline data를 확보해 나가기 위해 매년 일정량의 시료를 분석용역 계약에 의해 ITU에서 분석할 필요가 있음.

#### 중/장기적 기술 확보 방안

- 기존 KAERI-ITU 기술협력협정이 핵주기 관련 기술의 상호 협력에 초점이 맞추어져 있으나, '03년에 새로 개정될 예정이므로 개정시 본 입자 분석 관련 기술 내용도 포함시켜 기술 확보를 도모하여야 함.
- 국내에 SIMS 장비를 운영하고 있는 표준과학원 또는 전문 분석 용역회사인 K-MAC과의 협력을 강화하여 이들이 보유하고 있는 장비를 활용할 수 있도록 장비의 개선과 표준물질들의 공급을 지원하여야 할 것임. 이 경우 시료의 전처리 과정 상 필요한 청정실험실 등은 KAERI가 설치 운용하여야 할 것으로 판단됨.
- 본 기술은 현재로서는 핵활동 탐지 등의 안전조치 목적에 국한하여 활용되고 있으므로 국내만에서의 분석 수요 창출에는 한계가 있음. 따라서 국제적 기술 인증이 필수적일 뿐만 아니라 여타의 산업분야에 대해서도 활용이 가능하도록 핵물질 입자 이외의 타 원소 입자들도 분석해 낼 수 있는 기술력의 확대가 필요할 것임.

## 제 6 장 참 고 문 헌

- [1] J.N. Cooley, E. Kuhn, and D.L. Donohue, "The IAEA Environmental Sampling Programme", Symposium on International Safeguards, IAEA-SM-351/182, 6, 1997.
- [2] D.L. Donohue, "Analytical Method", IAEA Inspector Training Course Material on Environmental Sampling, 1997.
- [3] J.N. Cooley, E. Kuhn, and M. Ryjinski, "Environmental Sampling for IAEA Safeguards-Status Report", Proc. of INMM 39th Annual Meeting, Florida, July 1998.
- [4] 신장수, 안진수, "국제원자력기구의 안전조치 환경시료 분석체제와 한국 환경시료의 분석결과에 대한 검토", 2001년 춘계학술발표회 논문집, 한국원자력학회, 2001년 5월 24-25일, 제주대학교.
- [5] IAEA Annual Report, 89-97, 1999.
- [6] D.L. Donohue, "Strengthening IAEA Safeguards through Environmental Sampling and Analysis", J. of Alloys and Compounds 271-273, 11-18, 1998.
- [7] "Environmental Monitoring for Nuclear Safeguards", US Congress Report, Office of Technology Assessment, 1996(?).
- [8] X.L. Zhao, M.J. Nadeau, L.R. Kilius, and A.E. Litherland, "Detection of Naturally Occurring U-236 in Uranium Ore", Earth and Planetary Science Letters 124, 241-244, 1994.
- [9] "Environmental Sampling for IAEA Safeguards-Status as of 1999", IAEA presentation document, Department of Safeguards, IAEA, Dec. 1999.

여 백



## 제 7 장 부 록

- <부록 1> Dr. Tamborini 세미나
- <부록 2> Dr. Tamborini와의 Meeting Minutes
- <부록 3> 독일 ITU에서의 Swipe 시료 분석결과
- <부록 4> 국내 전문가 초청 세미나 자료 (김경중박사, 구수진박사)

# 여 백

< 부 록 1 >

Dr. Tamborini 세미나 자료

여 백



## "Overview of SIMS and correlated analytical methods for particle analysis"



by Gabriele Tamborini

G. Tamborini - August 2002



## Detection of clandestine activities by High Performance Trace Analysis (HPTA)

- ☞ Nuclear verification, disarmament and the prevention of illicit trafficking are fundamental issues for international security.
- ☞ In the aftermath of the Gulf war there has been the need to implement analytical techniques able to detect ongoing nuclear activities.

G. Tamborini - August 2002



## Detection of clandestine activities by High Performance Trace Analysis (HPTA)

- ☞ Since 1993, ITU has been actively collaborating on the implementation of techniques able to detect nuclear activities in support to IAEA's 93+2 program and EURATOM's HPTA program.
- ☞ Development of the Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS) method for analysis of uranium and plutonium in particles sampled in a broad range of nuclear safeguards contexts. ITU, in '95 First civil Laboratory using SIMS for radioactive micro-particle analysis.

G. Tamborini - August 2002



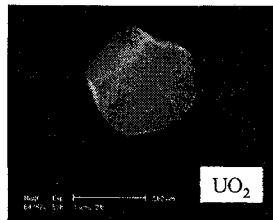
## Analysis of Radioactive Micro-particles

- Aims of this work
  - ☞ to increase the probability to identify radioactive particles in the environment
  - ☞ to improve the detection of undeclared nuclear activities
  - ☞ to reduce measurement uncertainty (safeguarding of bulk handling facilities)
  - ☞ to develop an accurate and cost effective technique (missing of data/methods)

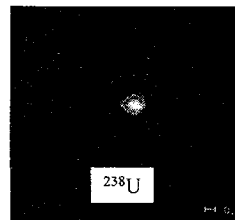
G. Tamborini - August 2002



## Analysis of Radioactive Micro-particles



Scanning Electron Microscopy (SEM)

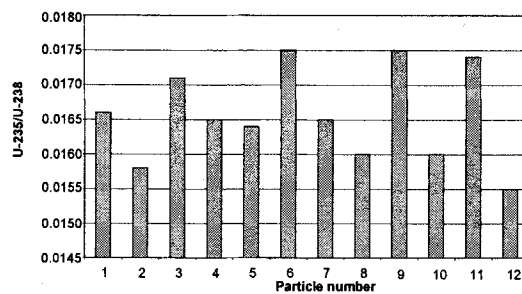


SIMS imaging analysis

G. Tamborini - August 2002



## Analysis of Radioactive Micro-particles



Enrichment of  $^{235}\text{U}$  in few Chernobyl particles. This result is also confirmed in Lefèvre O., *Mikrochim. Acta [suppl]*, 13, (1996), 399-408..

G. Tamborini - August 2002

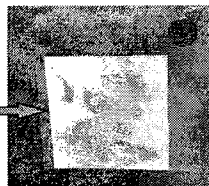


**Find a Needle in the Hay Stack**

"swipe" sample: billions of dust particles

amongst them

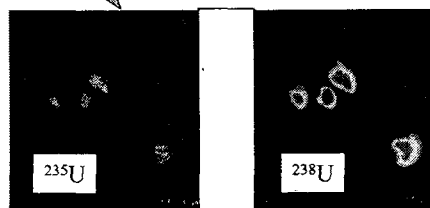
low enriched uranium particles



Natural U, 0.72 wt % of 235

Nuclear power production, 0.72-5 wt% of 235

Weapons grade U, 20-90 wt % of 235



U-235 SIMS image

U-238 SIMS image

G. Tamborini - August 2002



## Analytical Techniques and Facilities at ITU

*A Clean room laboratory class 10-100*

### *Techniques for particle analysis*

- ☞ Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray (SEM-EDX)  
*morphology, dimension, elemental composition*
- ☞ Fission Track-Thermal Ionisation Mass Spectrometry (FT-TIMS),  
Nuclear tracks:  $\alpha$ -tracks,  $\beta$ -autoradiography  
*hot spots related to particles*
- ☞ Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS)
  - *Elemental Analysis*
  - *Isotopic Composition*
  - *Imaging Systems*
  - *Line Scan and Depth Profile*
  - *Mass and Energy Resolution*

G. Tamborini - August 2002





## Analytical Techniques and Facilities at ITU

Analysis of Radioisotope Traces for the Identification of Nuclear Activities  
100-10 Clean Laboratory (ARTINA)

### Activities performed

- ☞ chemical treatments
- ☞ preparation of samples
- ☞ preparation and certification of the cleanliness of sampling materials

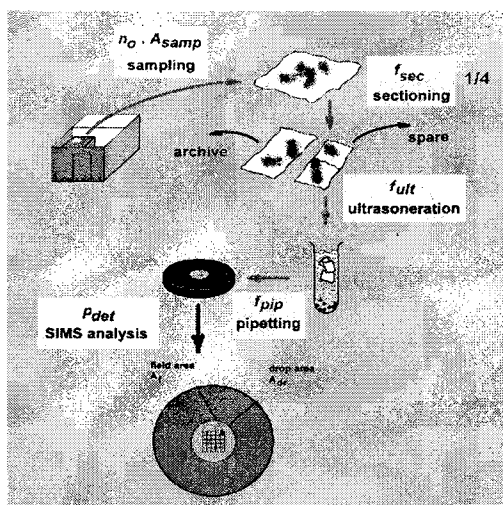
### Characteristics

- ☞ Lab. Environment: class 100
- ☞ working bench: class 10

G. Tamborini - August 2002



## From sampling to SIMS analysis



G. Tamborini - August 2002



## Study on the recovery of particles from swipes for SIMS analysis

- ☛ Use of standard particles produced in house
- ☛ Use of the automatic SEM for counting standard particles on substrates
- ☛ Use of a high energy ultrasonic process to suspend particles in solvent
- ☛ Deposition strategy improved, particles in 2-3 mm<sup>2</sup> area
- ☛ Counting of particles after deposition on substrates by automatic SEM

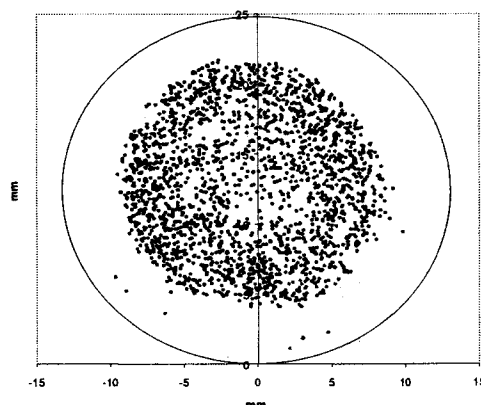
Method	Classic before 2000	Classic today	Plasma asher
Recovery	≤ 3%	40-60%	≥ 15%

Results on the recovery of particles from swipes

G. Tamborini - August 2002



## Automatic SEM

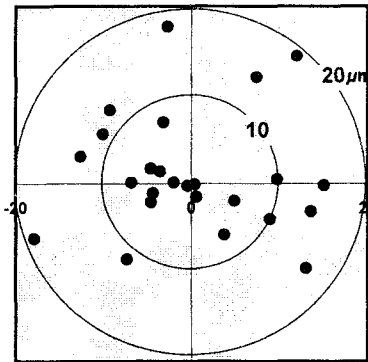
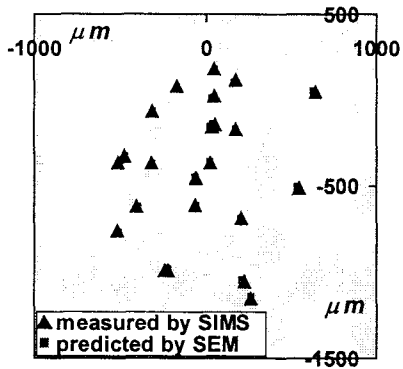


- ☛ Useful for particle counting and environmental samples
- ☛ Measurement of lighter elements possible
- ☛ Fast for particle re-location, i.e. by SIMS (the coordinates of the individual particles are stored) and low-cost

G. Tamborini - August 2002



### From SEM to SIMS



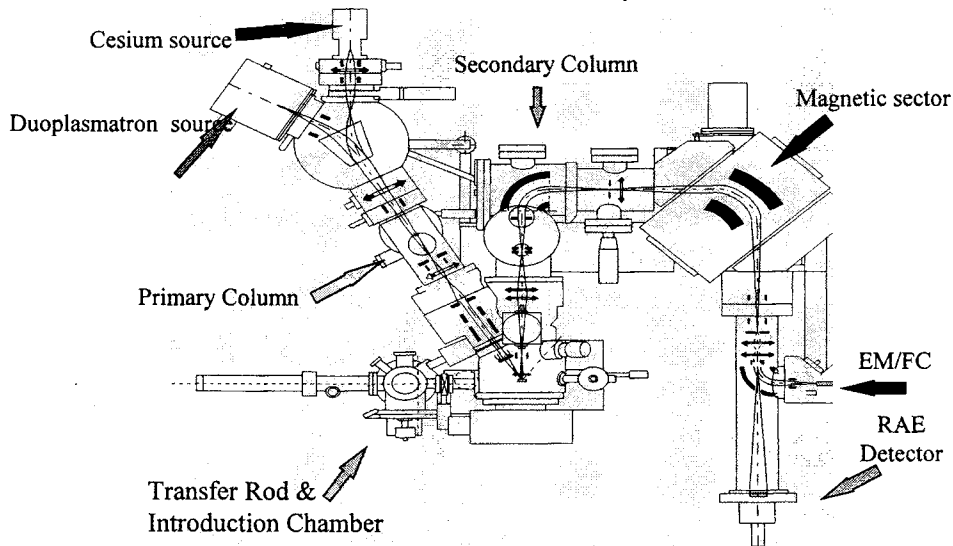
*POI distribution map  
In SIMS stage coordinates*

*Deviation of actual from predicted  
locations in the SIMS*

G. Tamborini - August 2002



### SIMS IMS6f



G. Tamborini - August 2002



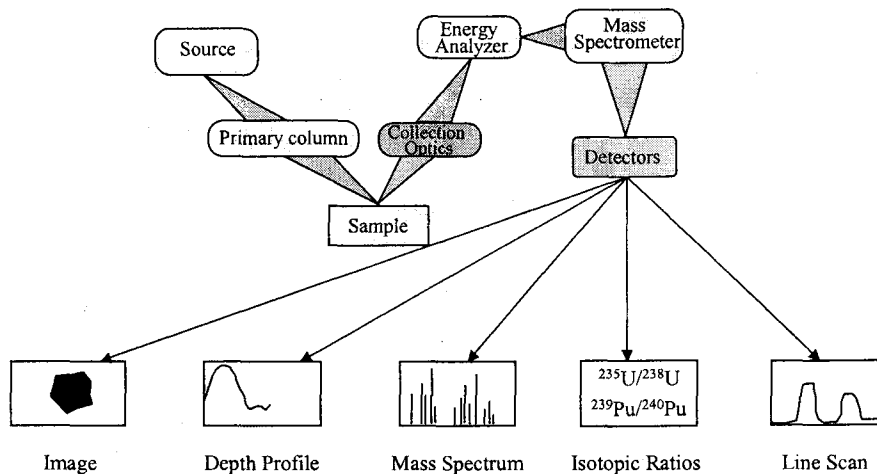
## SIMS Technique

- ☞ Sample surface is bombarded with a beam of primary ions
  - $O_2^+$ : 0.6  $\mu\text{m}$  to 200  $\mu\text{m}$ , 0.5 to 17.5 keV
  - $Cs^+$ : 0.3  $\mu\text{m}$  to 100  $\mu\text{m}$ , 1.6 to 20 keV
- ☞ Sample ejected particles are:
  - Electrons
  - Neutral atoms
  - Positive and negative ions
- ☞ Ions are mass analysed in a double focusing mass spectrometer  
Mass resolution  $M/\Delta M$ : from 300 to 15000
- ☞ Ion currents are representative of sample composition and detected by an Electron Multiplier, Faraday cup or 3 different imaging systems.

G. Tamborini - August 2002



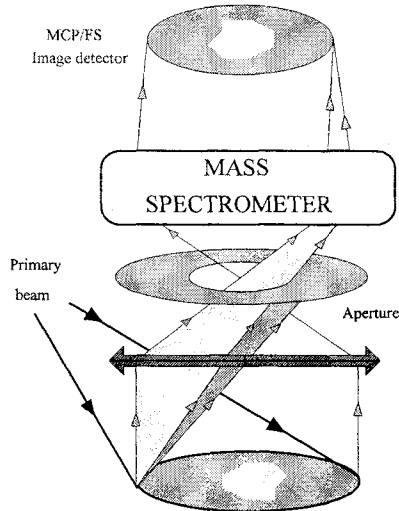
## SIMS Technique



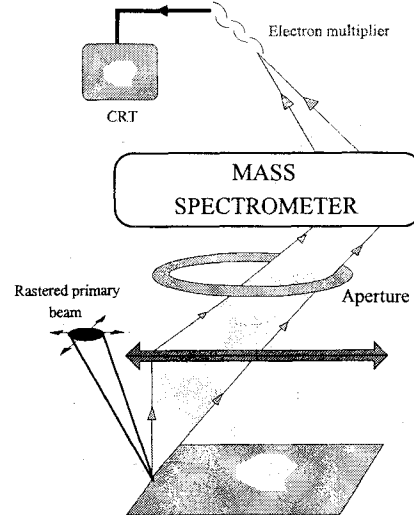
G. Tamborini - August 2002



### MICROSCOPE MODE



### MICROPROBE MODE



G. Tamborini - August 2002



## SIMS Technique

- ☞  $O_2^+$  primary beam (15KeV, 0.5-50nA current)
- ☞ Mapping particles (250 $\mu$ m diameter, 250X250 $\mu$ m<sup>2</sup> area)
- ☞ Individual particle analysis (typical 0.5-3 $\mu$ m diameter)
- ☞ EM: dead time 25ns: counting range  $5 \cdot 10^6$  c/s-0 c/s
- ☞ Detection limits:  $\sim 5 \cdot 10^9$  atoms of U, ng range

G. Tamborini - August 2002



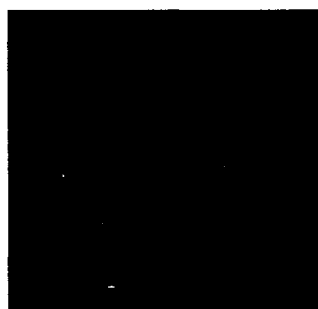
## SIMS Technique

- ☞ Microprobe mode at a mass resolution of 1000. Flat top peaks improve accuracy;
- ☞ Interferences resulted from organics or carbon coating: 40 V offset at the sample surface;
- ☞ Detector background levels: less than 0.1 c/s;
- ☞ Calibration of U isotopes: in house produced particles. Plutonium reference material;
- ☞ Isotopic ratios  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ : 3 cycles (9 measurements);
- ☞ Total uncertainty: 0.5-10% (for  $^{235}\text{U}$  and  $^{234}\text{U}$ )

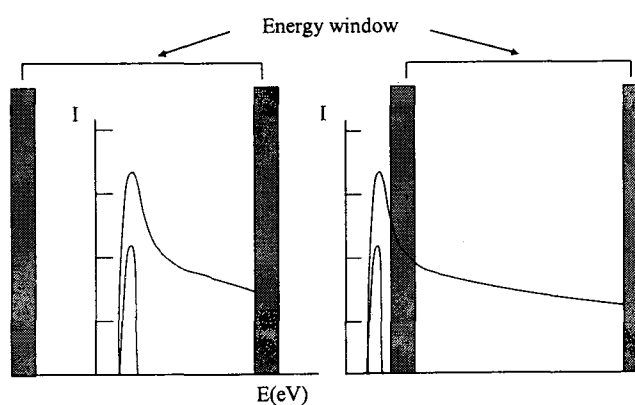
G. Tamborini - August 2002



## SIMS Technique



Ion energy distribution

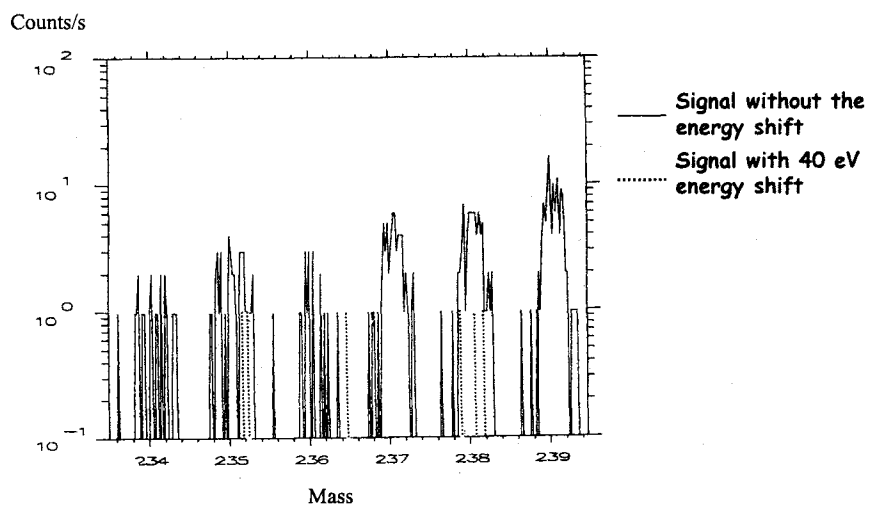


Centring and displacement of the energy window

G. Tamborini - August 2002



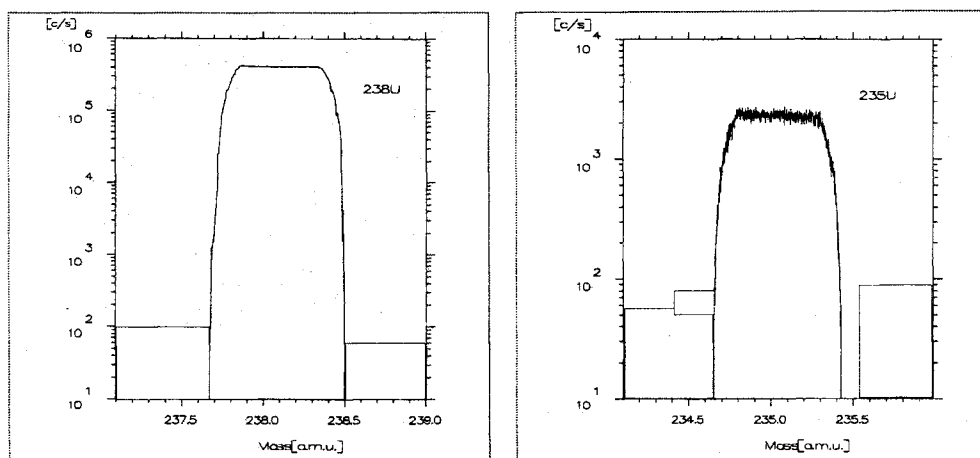
## SIMS Technique



G. Tamborini - August 2002



## SIMS Technique



G. Tamborini - August 2002



## SIMS Technique

Mapping of the particles

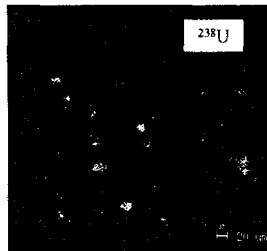


Fig.1 Distribution of particles over a large area with the scanning system  
Rastered  $O_2^+$  primary beam:  
- diameter of the scanning  $250 \mu m$   
- intensity  $50 nA$   
[2] Tamborini G. in 'Development of the SIMS technique for the analysis of radioactive particles', 1998, PhD thesis.

Individual analysis

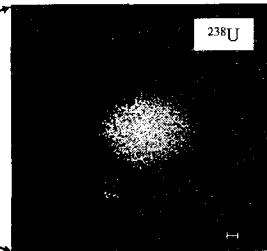


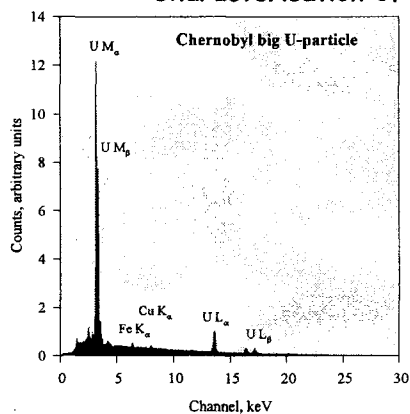
Fig.2 The use of the microprobe mode for the analysis of individual particles.  
Focused  $O_2^+$  primary beam:  
- diameter  $1-2 \mu m$   
- intensity  $0.5-1 nA$   
- use of the scanning system

G. Tamborini - August 2002

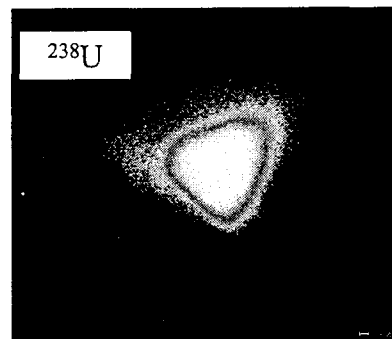


## SIMS Technique for particle analysis

Characterisation of the Chernobyl particles



Large uranium oxide particle as detected by SEM-EDX



Large uranium particle by SIMS

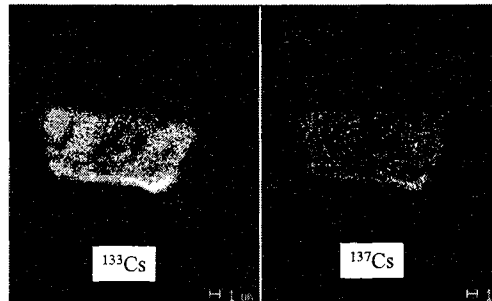
G. Tamborini - August 2002





## SIMS Technique for particle analysis

### ENVIRONMENTAL SAMPLES



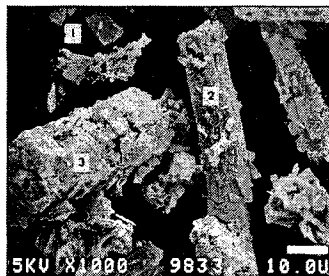
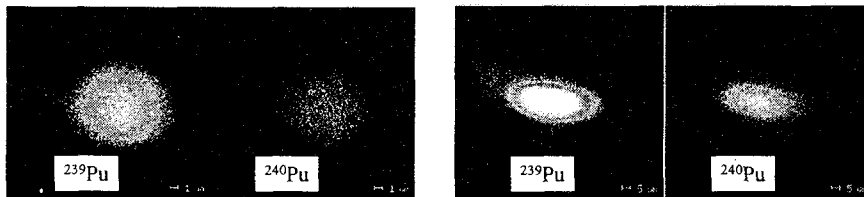
Cesium particle in soil sample (Chernobyl)

G. Tamborini - August 2002



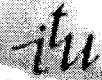
## SIMS Technique for particle analysis

### Particles of Pu

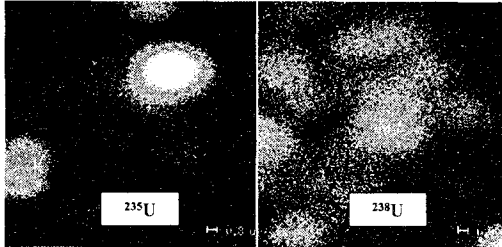


- (1) platelets of  $\text{PuO}_2$
- (2) fibrous rods of  $\text{PuO}_2$
- (3) rods of  $\text{U}_3\text{O}_8$

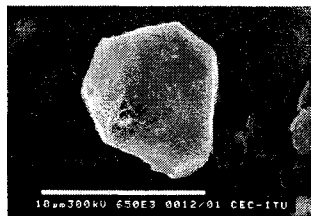
G. Tamborini - August 2002



## SIMS Technique for particle analysis

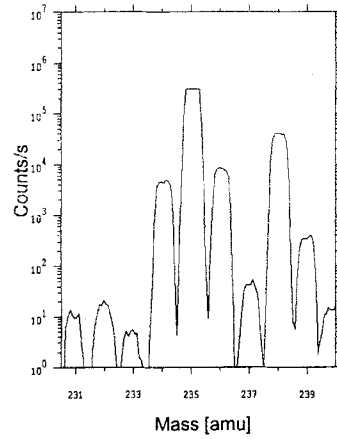


UO<sub>2</sub> enriched up to 90% in U-235



UO<sub>2</sub> enriched particle by SEM

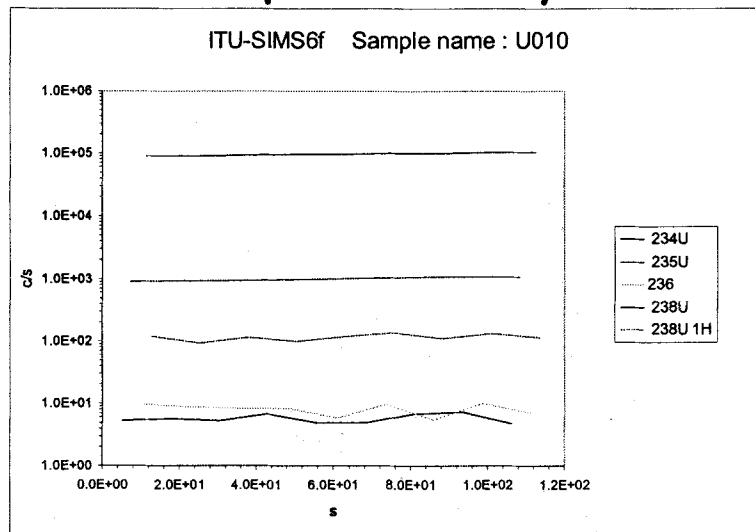
Highly enriched U particle



G. Tamborini - August 2002



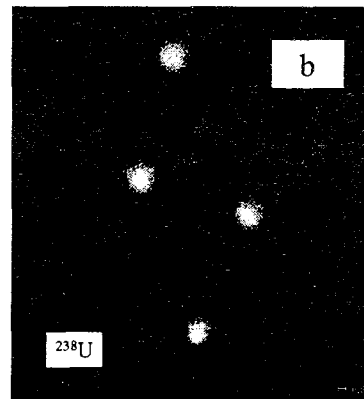
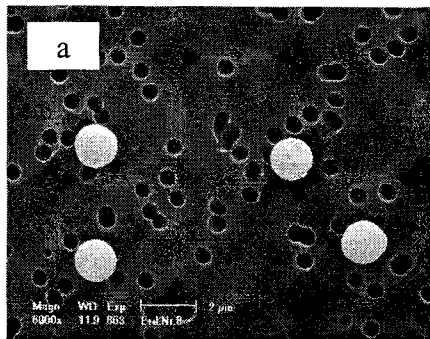
## Isotopic ratio analysis



G. Tamborini - August 2002

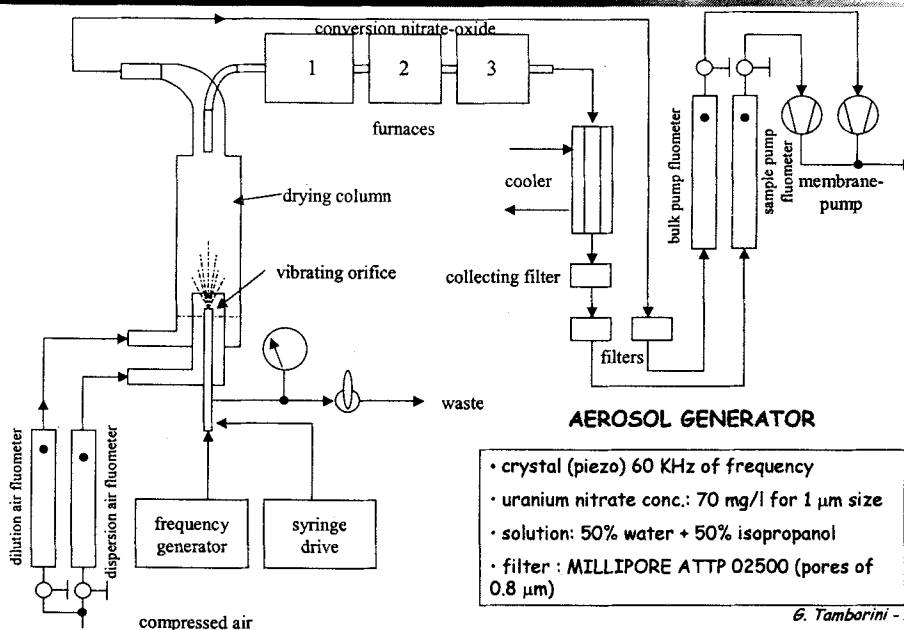
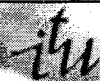


## Particle production and SIMS calibration



(a) SEM and (b) SIMS images of the uranium standard particles

G. Tamborini - August 2002



G. Tamborini - August 2002



### UO<sub>2</sub> standard particles production

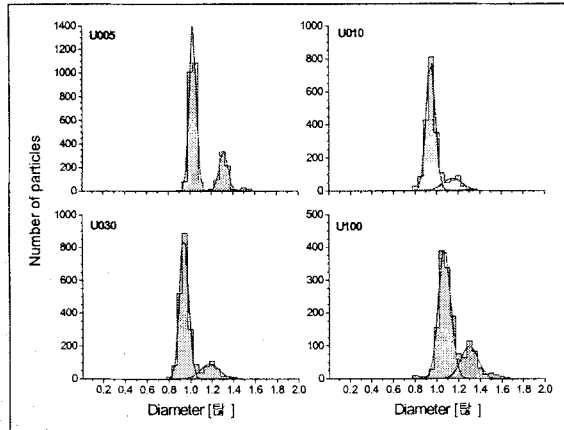
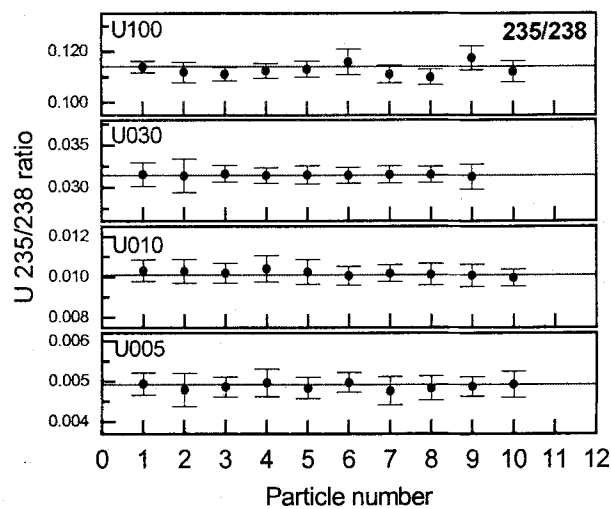


Fig.3 Size distribution of monodisperse UO<sub>2</sub> particles of different <sup>235</sup>U enrichment

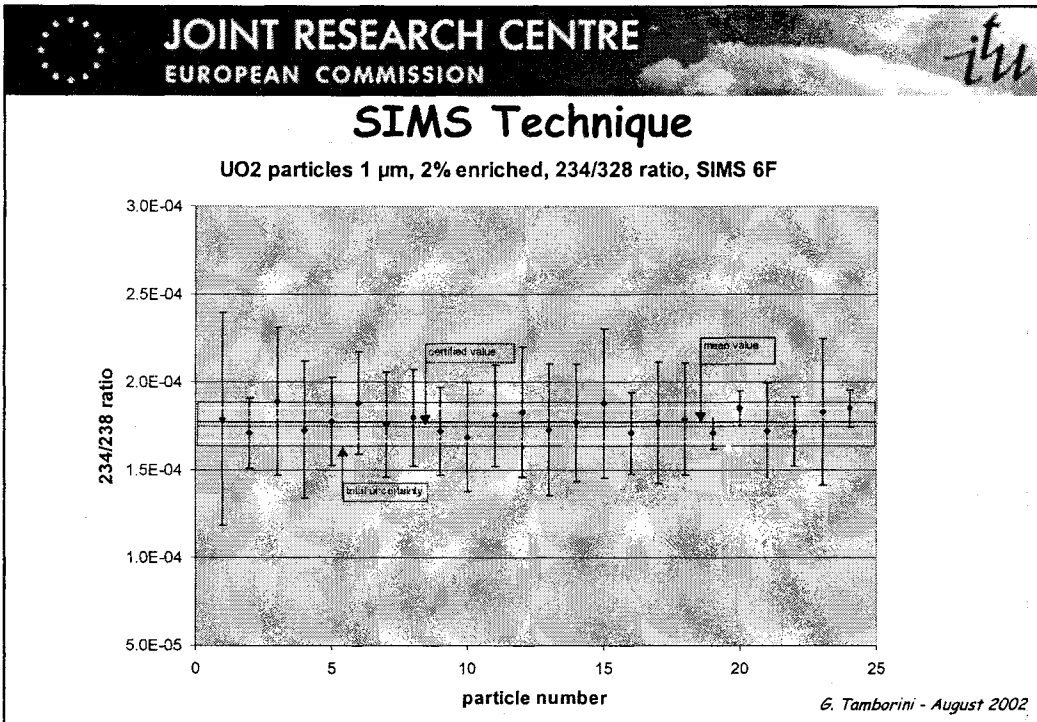
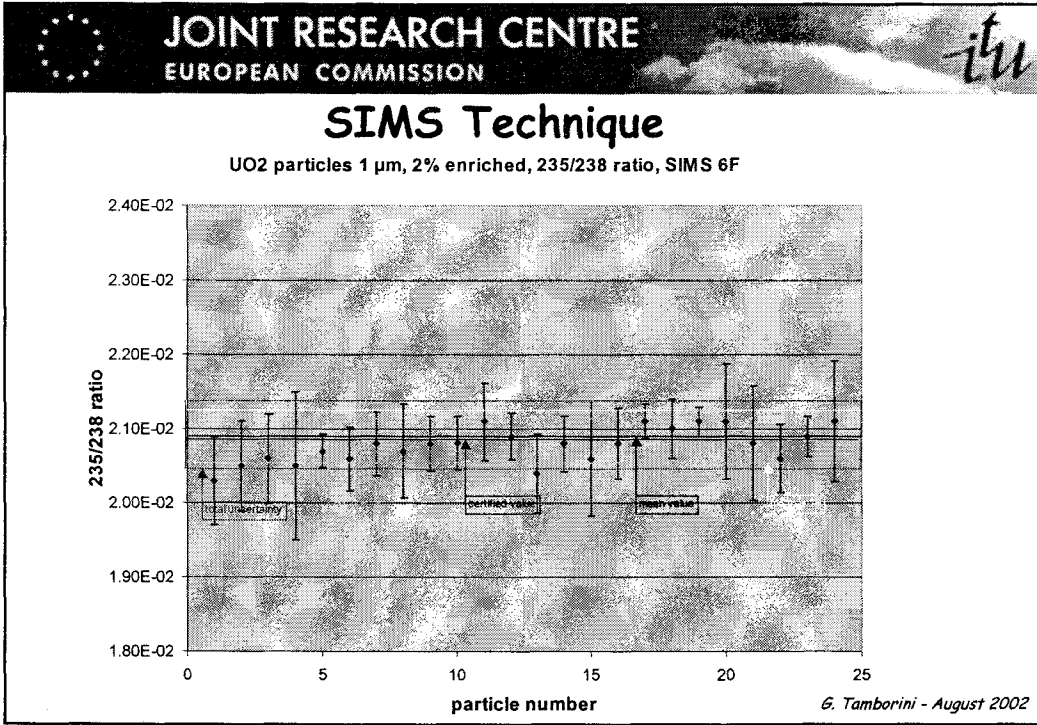
- ☛ Production of particles with 7 different enrichments (0.5, 1, 2, 3, 10, 50 and 90%)
- ☛ Diameter distribution: 2 populations, the second is formed from 2 droplets of solution (theoretical double mass = diameter ratio of  $\sqrt[3]{2} = 1.26$ ) *G. Tamborini - August 2002*



### Mean values and statistical errors for the 235/238 U ratios



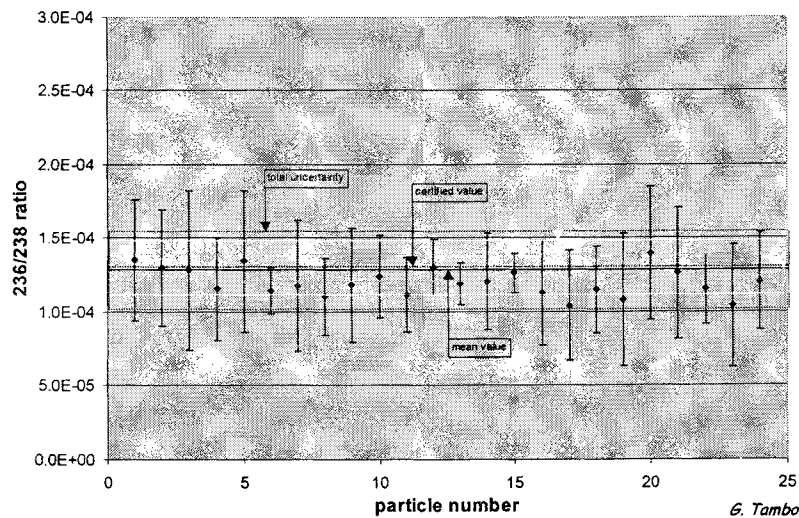
*G. Tamborini - August 2002*





### SIMS Technique

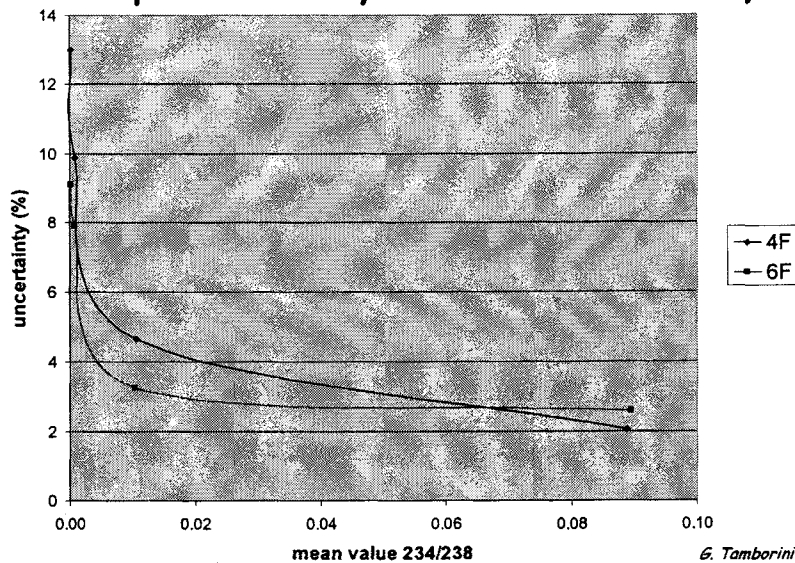
UO<sub>2</sub> particles 1 μm, 2% enriched, 236/238 ratio, SIMS 6F



G. Tamborini - August 2002



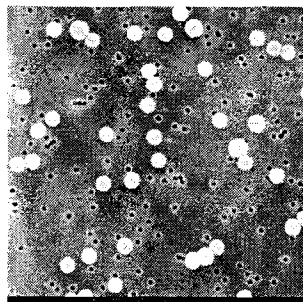
### SIMS particle analysis: total uncertainty



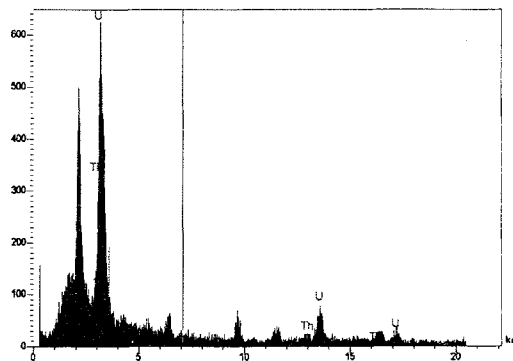
G. Tamborini - August 2002



## U/Th particles production



SEM image of particles produced from a mixture of U and Th (U:Th = 10:1)



EDX spectrum of the same particles

- ☞ SEM analysis: spherical, dense particles, as for pure U
- ☞ EDX analysis: composition  $\approx 15\%$  Th,  $\approx 85\%$  U in mixed particles

G. Tambarini - August 2002



## Software for Automatic Particle Definition and Quantitative Isotope ratio Imaging

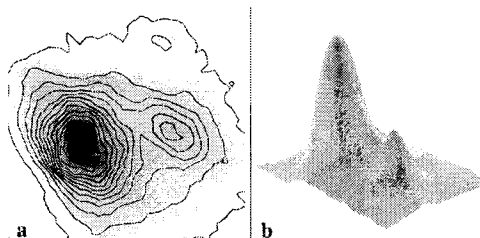
- Starting point: SIMS images ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ) of a field of uranium-bearing particles.
- Goal
  - ☞ Automated particle search and definition
  - ☞ Calculate  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  for each particle directly from the image data

G. Tambarini - August 2002



## Particle Search Program

- Particle definition algorithm
  1. Local maxima = particle centers
  2. Edge definition : the « profile-derivative » method

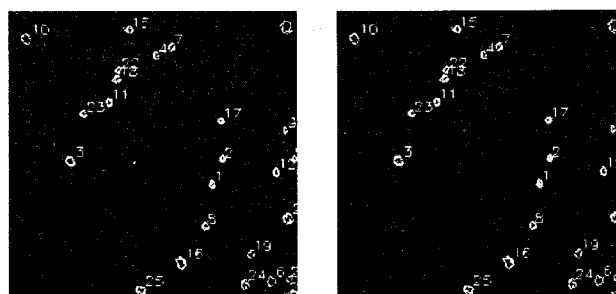


Section of an ion image containing three particles. On the left is a gray scale representation with intensity contours; on the right is a shaded surface plot

G. Tamborini - August 2002



## Quantitative isotopic-ratio imaging



Examples of processed SIMS images

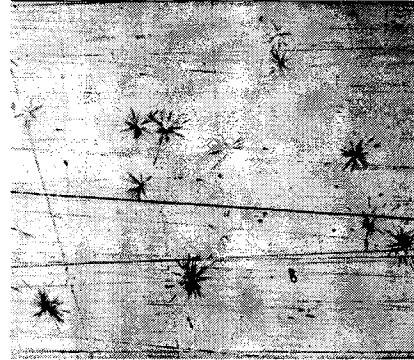
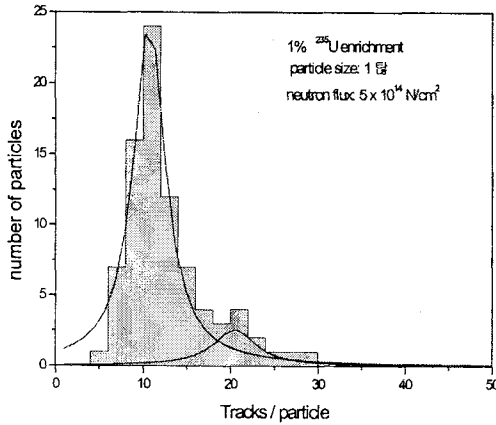
part	235/238	err
1	0.03887	0.0044
2	0.02814	0.0078
3	0.03912	0.0079
4	0.03360	0.0099
5	0.01977	0.0080
6	0.02742	0.0065
7	0.03123	0.0098
8	0.01327	0.0084
9	0.04336	0.011
10	0.03085	0.0054
11	0.02919	0.0081
12	0.03300	0.015
13	0.02548	0.0075
14	0.04942	0.015
15	0.03843	0.0092
16	0.02900	0.0061
17	0.03327	0.014
18	0.02930	0.011
19	0.03891	0.014
20	0.02538	0.026
21	0.05793	0.012
22	0.03194	0.015
23	0.03077	0.015
24	0.03732	0.016
25	0.04921	0.012
26	0.03045	0.038

G. Tamborini - August 2002





### Fission Tracks Analysis



Distribution of the number of fission tracks per particle observed for several 1% <sup>235</sup>U enriched UO<sub>2</sub> particles of 1 μm diameter

Fission tracks, observed for several 1% <sup>235</sup>U enriched UO<sub>2</sub> particles of 1 μm diameter

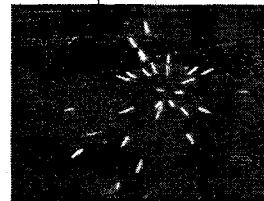
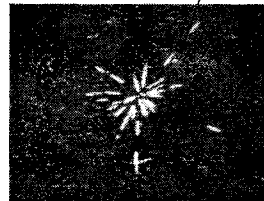
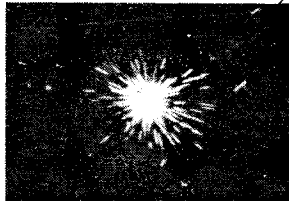
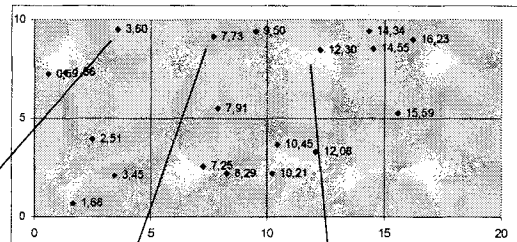
Purpose: use the produced standard particles to correlate the number of tracks per particle with the different enrichments

G. Tamborini - August 2002



### Fission Tracks Analysis. Particles from a swipe sample

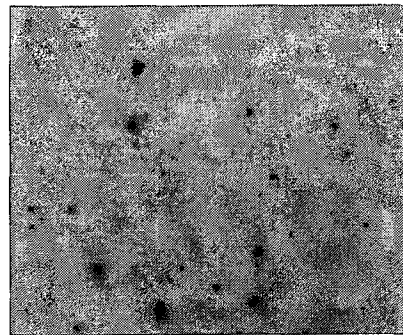
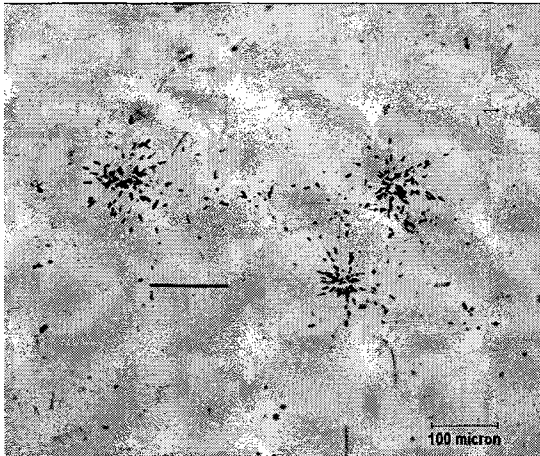
x(mm)	y(mm)	Tracks
1,68	0,66	ca.25
3,45	2,08	20
7,25	2,58	20
8,29	2,18	10 + 20
10,21	2,20	14
12,08	3,28	ca. 30
2,51	3,93	9
10,45	3,65	17
7,91	5,47	12
15,59	5,24	ca. 40
1,36	7,30	15
0,59	7,24	ca. 30
16,23	9,01	11
14,55	8,55	12
12,30	8,44	10
7,73	9,12	27
3,60	9,50	> 100
9,50	9,41	22
14,34	9,43	30



G. Tamborini - August 2002



## Determination of Hot Particles in Soil from the Chernobyl Region by $\alpha$ - and $\beta$ -Autoradiography



G. Tamborini - August 2002

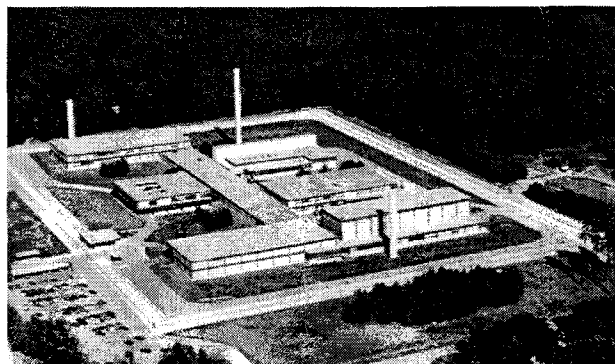


☛ CLEAN ROOM (1995)	300000 \$
☛ Instrumentation for the clean room	150000 \$
☛ Aerosol generator (particle production, 1996)	100000 \$
☛ Optical microscope	50000 \$
☛ Scanning Electron Microscope-EDX and WDX (2001)	300000 \$
☛ SIMS 6f (1995)	1000000 \$
☛ SIMS 4fE6 (1999)	500000 \$
☛ Others	50000 \$

G. Tamborini - August 2002



## "How to deduce nuclear parameters from the results of particle analysis"



by Gabriele Tamborini

G. Tamborini - August 2002



## Particle analysis - Fields of work

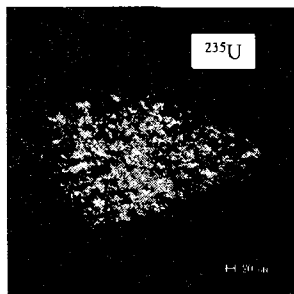
- ☞ **Environment** - Analysis of particles found in environmental samples, i.e. soil, sediment, air, to establish the nature and the origin of those particles
- ☞ **Safeguards** - Detection of undeclared nuclear activities and diverted nuclear material through the analysis of particles in swipe samples
- ☞ **Forensics** - Determination of the history of confiscated nuclear materials by the characterisation of few particles contained in the samples

G. Tamborini - August 2002

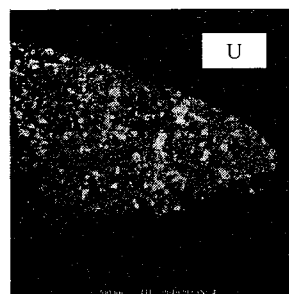


## Environment

- ☛ A big flat grain of aluminium matrix containing uranium was found at the beach
- ☛ At ITU, it was stuck to a conductive carbon adhesive tape for SEM and SIMS analysis

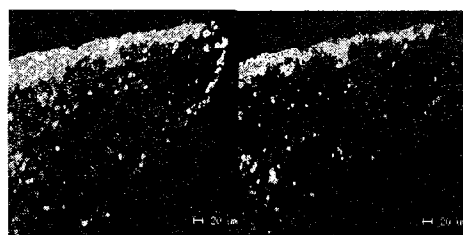


SIMS imaging analysis



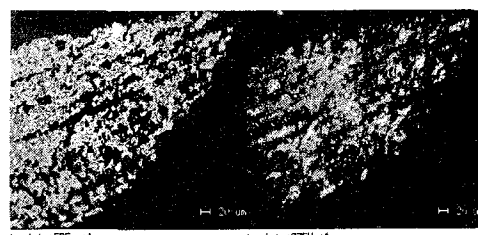
Scanning Electron Microscope (SEM) analysis

G. Tamborini - August 2002



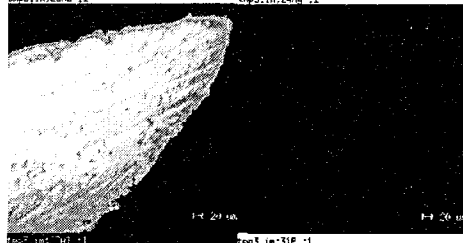
tap3.in:23Na :1

tap3.in:24Mg :1



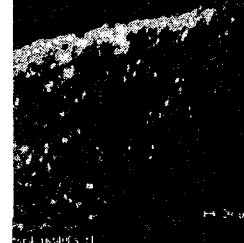
tap4.in:32S :1

tap4.in:235U :1



tap5.in:27Al :1

tap5.in:31P :1



tap2.in:35Cl :1

The SIMS imaging analysis confirms the matrix to be Al and show also that the other major elements present in the sample are not directly located with the uranium spots

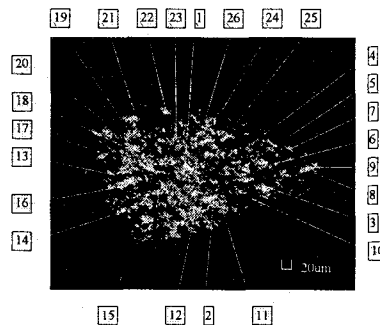
G. Tamborini - August 2002



## Environment

### Uranium isotope measurements on different particles of the grain

Particle	234U/238U		235U/238U		236/238U		238U 1H/238U	
	Mean	1 s	Mean	1 s	Mean	1 s	Mean	1 s
1	1.90E-01	7.63E-04	1.05E+01	9.23E-02	9.81E-01	9.62E-03	3.86E-02	2.48E-03
2	1.88E-01	2.38E-03	1.03E+01	8.31E-02	9.41E-01	7.86E-03	4.16E-02	1.98E-03
3	1.89E-01	3.65E-03	1.05E+01	1.70E-01	9.68E-01	1.26E-02	4.66E-02	1.73E-03
4	1.88E-01	5.36E-03	1.05E+01	1.34E-01	9.58E-01	1.13E-02	4.04E-02	3.76E-03
5	1.87E-01	3.44E-03	1.05E+01	7.17E-02	9.55E-01	5.69E-03	4.13E-02	2.06E-03
6	1.87E-01	2.80E-03	1.04E+01	1.29E-01	9.52E-01	1.30E-02	4.16E-02	2.71E-03
7	1.87E-01	1.21E-03	1.05E+01	9.20E-02	9.63E-01	1.64E-02	3.35E-02	3.48E-03
8	1.88E-01	2.27E-03	1.04E+01	7.82E-02	9.96E-01	7.41E-03	4.32E-02	2.27E-03
9	1.85E-01	2.16E-03	1.03E+01	9.02E-02	9.41E-01	7.78E-03	4.25E-02	2.57E-03
10	1.90E-01	6.71E-03	1.06E+01	1.33E-01	9.66E-01	1.63E-02	4.62E-02	2.54E-03
11	1.91E-01	5.10E-03	1.05E+01	1.61E-01	9.64E-01	1.35E-02	5.00E-02	2.74E-03
12	1.91E-01	2.58E-03	1.05E+01	1.02E-01	9.92E-01	1.66E-02	5.23E-02	1.71E-03
13	1.87E-01	3.47E-03	1.05E+01	9.59E-02	9.69E-01	1.40E-02	3.94E-02	1.08E-03
14	1.85E-01	2.86E-03	1.04E+01	1.25E-01	9.54E-01	1.02E-02	3.96E-02	1.94E-03
15	1.83E-01	3.05E-03	1.03E+01	9.77E-02	9.53E-01	8.44E-03	4.47E-02	2.29E-03
16	1.87E-01	3.07E-03	1.04E+01	1.29E-01	9.46E-01	1.20E-02	4.02E-02	1.79E-03
17	1.87E-01	2.37E-03	1.04E+01	1.53E-01	9.52E-01	1.73E-02	3.95E-02	2.73E-03
18	1.87E-01	2.12E-03	1.04E+01	1.42E-01	9.33E-01	1.06E-02	3.81E-02	1.20E-03
19	1.84E-01	3.55E-03	1.04E+01	1.23E-01	9.57E-01	7.07E-03	3.94E-02	1.96E-03
20	1.87E-01	3.59E-03	1.04E+01	1.70E-01	9.81E-01	1.56E-02	3.53E-02	2.75E-03
21	1.84E-01	3.60E-03	1.04E+01	1.62E-01	9.50E-01	2.57E-02	3.17E-02	2.72E-03
22	1.85E-01	4.61E-03	1.04E+01	1.81E-01	9.54E-01	1.39E-02	2.94E-02	2.62E-03
23	1.87E-01	2.67E-03	1.04E+01	6.82E-02	9.47E-01	4.86E-03	3.86E-02	2.56E-03
24	1.85E-01	2.86E-03	1.04E+01	3.82E-02	9.53E-01	1.60E-02	3.61E-02	1.32E-03
25	1.87E-01	4.05E-03	1.05E+01	1.23E-01	9.82E-01	1.45E-02	3.43E-02	2.81E-03
26	1.88E-01	5.16E-03	1.04E+01	1.48E-01	9.64E-01	1.66E-02	3.03E-02	2.12E-03



Uranium particles analysed by SIMS

SIMS uranium isotope ratio results

G. Tamborini - August 2002



## Environment

### Summary of the uranium, plutonium and plutonium/uranium isotope measurements

isotopes	SIMS	ICPMS
234U atom%	1.4861 +/- 1.5%	1.4910 +/- 1%
235U atom%	82.9266 +/- 1.1%	82.7453 +/- 1%
236U atom%	7.6292 +/- 2.6%	7.5610 +/- 1%
238U atom%	7.9581 +/- 2.6%	8.2027 +/- 1%

SIMS and ICP-MS results of the uranium composition in atom percent

ratio	SIMS		ICPMS	
239Pu/240Pu	6.04E+00	? 5.22%	5.89E+00	? 5%
239Pu/238U	1.51E-02	? 2.45%	1.43E-02	? 5%

SIMS and ICP-MS isotope ratio results for the plutonium and the plutonium/uranium measurements

G. Tamborini - August 2002



## Environment

The uranium and plutonium isotopic ratio results are used for the identification of the reactor and fuel type. In order to calculate the theoretical parameters, the following calculation assumptions were done:

Initial compositions of an MTR fuel:

	U234	U235	U238	Burnup
Case A	1.2%	94%	4.8%	270 GWd/t
Case B	1.2%	93%	5.8%	250 GWd/t

PARAMETER	Experimental values	Case A (HEU 94%)	Case B (HEU 93%)
U-234 atom %	1.5%	1.5%	1.4%
U-235 atom %	83.0%	83.7%	83.5%
U-236 atom %	7.6%	8.4%	7.6%
U-238 atom %	8.0%	6.4%	7.5%
Pu239/Pu240	6	6.6	7.0
Pu239/U238	0.015	0.027	0.026

On the left, the results of SCALE programme calculations of HEU fuels are presented

G. Tamborini - August 2002



## Environment

From these calculations, the following conclusions can be drawn:

- the experimental compositions is consistent with a HEU fuel (enrichment > 90%) irradiated in an MTR reactor to a burnup of 25 to 30%,
- initial enrichment of 93% seems to be the most likely, but 94% is also possible,
- all (except one) calculated parameters reproduce experimental values within calculation errors,
- the inconsistent parameter (Pu/U ratio) is generally very sensitive to the irradiation condition which are unknown.

G. Tamborini - August 2002



## Environment

Another important information supplied from the analysis of this sample is the Al/U ratio in the alloy. Al has a considerable higher ionisation efficiency than U by SIMS, the RSF of 50.36 obtained from the literature is applied for the correction of the Al/U ratio. A value of 6.9 is obtained by SIMS and this result is confirmed by ICP-MS (Al/U = 7).

- **What is this grain?** Small grain of a high burnup, highly enriched  $UAl_4$  + Al matrix material test reactor fuel.
- **How long has it been in the sea?** From the  $^{134}Cs$  to  $^{137}Cs$  ratio (by Gamma) this and many other grains were discharged some thirty to forty years ago.
- **What is likely to be their long-term behaviour?** Rather than dissolving, the grains are becoming covered with a layer of crud which is effectively protecting them from dissolution. They will probably be around for a long time.

G. Tamborini - August 2002



## Particle Analysis for Safeguards

### Safeguards objectives

#### ☞ Enrichment plants

- to provide increased assurance of the absence of undeclared operations involving enrichments higher than declared and of undeclared material

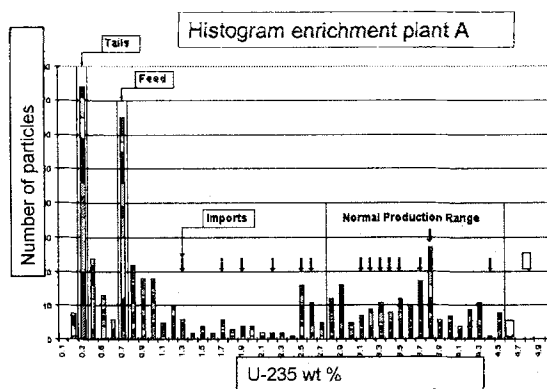
#### ☞ Hot Cell Facilities

- to provide increased assurance of the absence of undeclared operations
- depending on the declared status of the facility:
  - ? Separation of Pu or HEU
  - ? Undeclared U and Pu metallurgy

G. Tamborini - August 2002



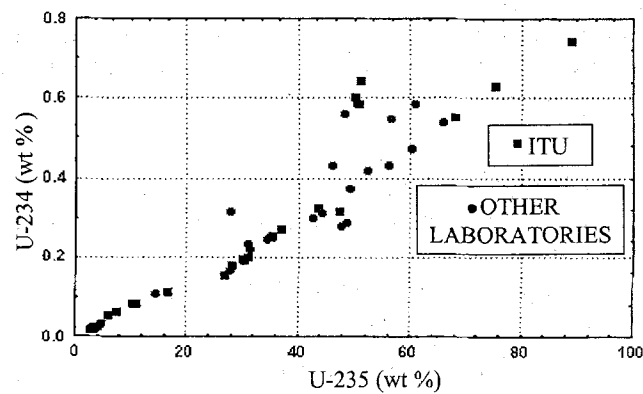
## Particle Analysis for Safeguards



G. Tambarini - August 2002



## Particle Analysis for Safeguards



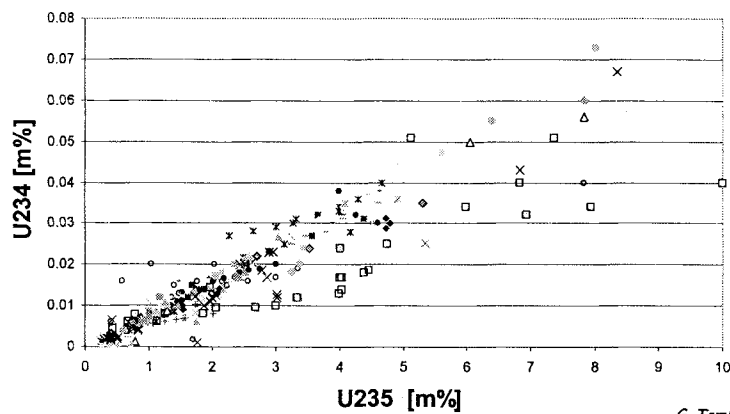
G. Tambarini - August 2002





## Particle Analysis for Safeguards

$^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$  Analysis for a Gaseous Diffusion Plant B

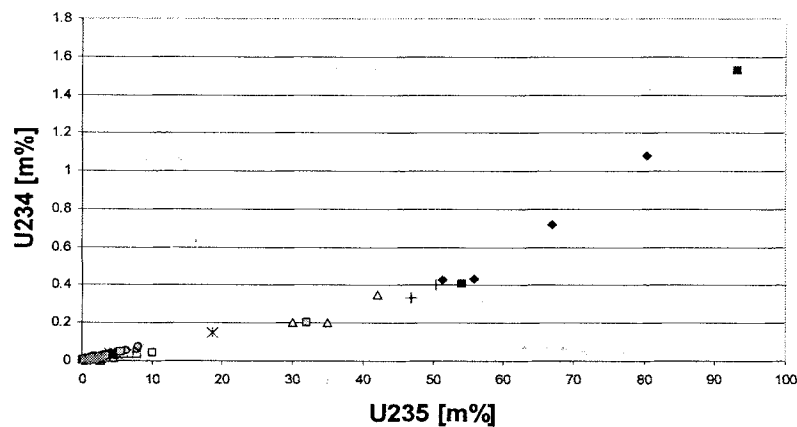


G. Tamborini - August 2002



## Particle Analysis for Safeguards

$^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$  Analysis for a Gaseous Diffusion Plant B

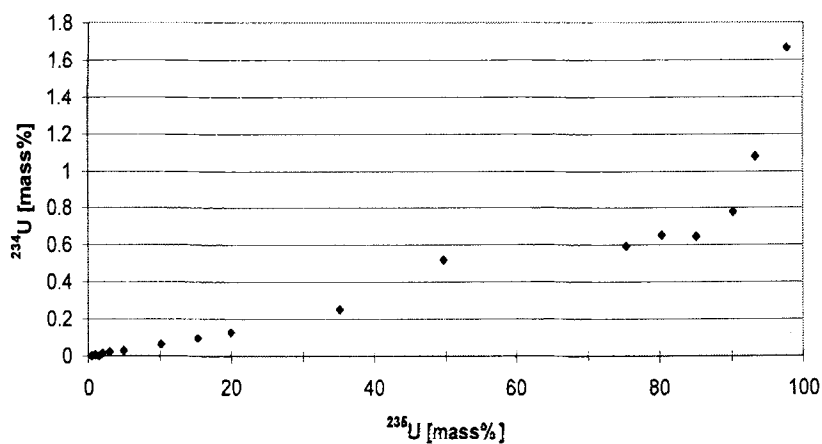


G. Tamborini - August 2002



## Particle Analysis for Safeguards

### Isotopic Correlation for a Gaseous Diffusion Plant C

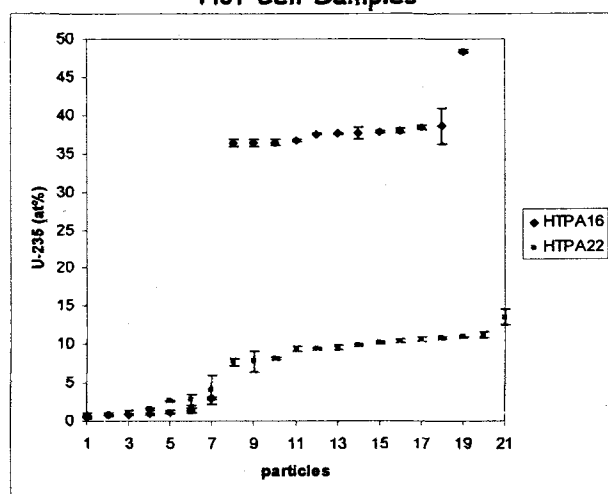


G. Tamborini - August 2002



## Particle Analysis for Safeguards

### Hot Cell Samples



G. Tamborini - August 2002



## Particle Analysis for Safeguards

### Hot Cell Samples

#### ☛ Information collected

- the installation has manipulated different enrichments
- for the sampling location 16, a mean value around 36-37% is detected
- the presence of 0.3%  $<^{236}\text{U}>$  0.4% indicates a low burnup
- the U isotopic ratio results together with the detection of Al are characteristic of few types of research reactor still used in Europe

G. Tamborini - August 2002



## Forensic Analysis

### Determination of the origin of nuclear material

- ☛ endogenous information which is self-explanatory
  - age, date of the last separation of daughter nuclides
  - production mode, reactor type
  - processing method, deduced from trace impurities
- ☛ exogenous information, comparison of the parameters with a database
  - specifications by the fuel manufacturers
  - surface roughness
  - $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$  ratio for geological location

G. Tamborini - August 2002



## Forensic Analysis

### Isotope ratios for nuclear parameters

Actinides			Fission Products and Lanthanides	
$^{232}\text{U}/^{228}\text{Th}$ (a)	$^{238}\text{Pu}/^{234}\text{U}$ (a)			
$^{233}\text{U}/^{229}\text{Th}$ (a)	$^{239}\text{Pu}/^{235}\text{U}$ (a)		$^{140}/^{142}/^{144}\text{Ce}$ (b)	
$^{234}\text{U}/^{230}\text{Th}$ (a)	$^{240}\text{Pu}/^{236}\text{U}$ (a)		$^{149}/^{152}/^{154}/^{152}\text{Sm}$ (b-c)	
$^{235}\text{U}/^{231}\text{Pa}$ (a)	$^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ (a)		$^{131}/^{132}/^{134}/^{136}\text{Xe}$ (c)	
$^{236}\text{U}/^{232}\text{Th}$ (a)	$^{242}\text{Pu}/^{238}\text{U}$ (a)		$^{143}/^{144}/^{145}/^{146}/^{148}\text{Nd}$ (c)	
$^{235}/^{236}/^{238}\text{U}$ (c)	$^{239}/^{240}/^{242}\text{Pu}$ (c)		$^{153}/^{154}\text{Eu}$ (c)	
$^{232}/^{235}/^{236}\text{U}$ (d)	$^{238}/^{239}/^{240}/^{241}/^{242}\text{Pu}$ (d)		$^{133}/^{134}/^{135}/^{137}\text{Cs}$ (a-c)	

(a) age determination

(b) processing method

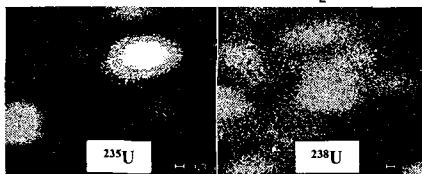
(c) neutron hardness and burnup

(d) fuel and reactor type

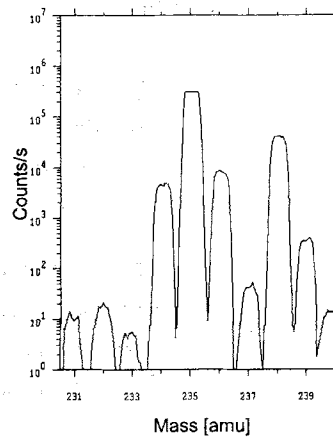
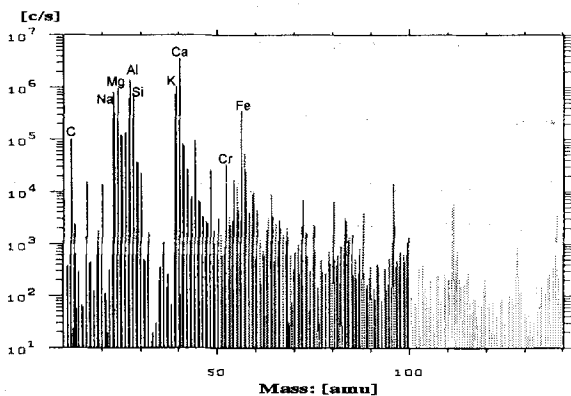
G. Tamborini - August 2002



### CASE 1 $\text{UO}_2$ enriched up to 90% in $^{235}\text{U}$



Highly enriched U particle



G. Tamborini - August 2002



## Forensic Analysis

### CASE 1 UO<sub>2</sub> enriched up to 90% in <sup>235</sup>U

☛ Enrichments found for groups of particles in the range 1.90-88.81 at % <sup>235</sup>U.

☛ Presence of the isotopes <sup>230</sup>Th and <sup>231</sup>Pa which are used to calculate the age of the material.

☛ The SIMS analysis of these particles revealed also impurities typical of a pyrochemical process.

☛ The burnup is calculated applying the relation for enrichments higher than 20 at % <sup>235</sup>U shown above.

$$^{236}\text{U}(\text{at}\%) = m \cdot \text{burnup}(\text{at}\%) + c$$

$$0.66 \cdot ^{236}\text{U}(\text{at}\%) \leftrightarrow 3.0 \cdot \text{burnup}(\text{at}\%) \Rightarrow m = 0.22$$

<sup>235</sup> U (at %)	<sup>236</sup> U (at %)	Burnup (at %)
34,30	0,20	0,90
41,00	0,31	1,40
61,10	0,51	2,30
80,00	0,67	3,02

G. Tamborini - August 2002



## Forensic Analysis

### CASE 2 Analysis of plutonium particles

☛ Age: dating, i.e. time interval elapsed after the last separation from daughter products

- ☛ in illicit trafficking, limits the number of reprocessing plants
- ☛ in nuclear safeguards, controls that all the countries respect the cut-off convention

☛ Measurements problem

- ☛ legal limitation on the sample surface activity
- ☛ different ionization efficiencies for U and Pu

G. Tamborini - August 2002

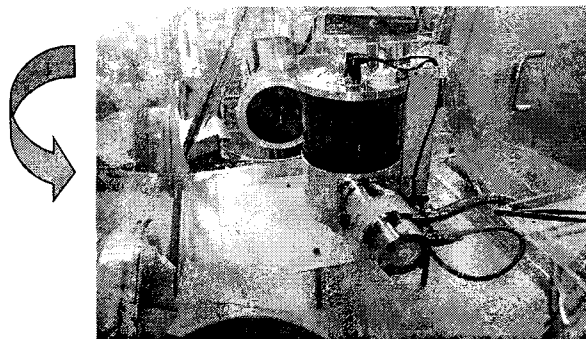


## Forensic Analysis

### CASE 2 Analysis of plutonium particles

#### Solution of the problem

- ☞ Few drops of solvents containing plutonium particles are dried on the SIMS planchet in order to get activity less than 5 c/s.
- ☞ The activity is immobilized by coating the particles with a special carbon deposition system installed in glove box.



G. Tamborini - August 2002



### CASE 2 Analysis of plutonium particles

#### Ionization efficiency factor Pu/U

- ☞ Ionization efficiency factor of Pu >> U

U-Pu clay microsphere <i>Stoffels et al. 1994</i>	Pu efficiency	U efficiency	Pu/U RSF
SIMS	8.5 ± 0.8%	2.9 ± 0.3%	2.9
TIMS	4.8 ± 1.6%	0.83 ± 0.27%	5.7

Literature information on ionization efficiencies for U and Pu

- ☞ Analysis of two PuO<sub>2</sub> reference materials by SIMS at ITU

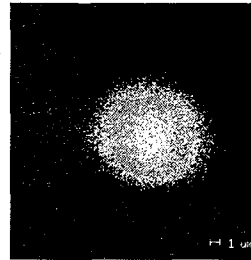
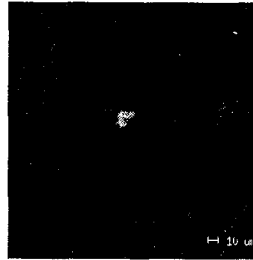
Sample	Pu/U Relative Sensitivity Factor
RR-I RR-II	2.41 ± 0.04%

Pu/U RSF by SIMS calculated from PuO<sub>2</sub> reference material

G. Tamborini - August 2002



CASE 2 Analysis of the plutonium particles in the « F-19 » sample



Rods shaped broken (left) and small platelets (right) of PuO<sub>2</sub>

- ☛ Isotopic ratio measurements performed by SIMS
  - ☛ Pu ratios: 238/239, 240/239, 241/239 and 242/239
  - ☛ Pu/U ratios: 238/234, 239/235 and 240/236
  - ☛ U ratios (on the U particles present on the same sample)

G. Tamborini - August 2002



## Forensic Analysis

CASE 2 Analysis of the plutonium particles in the « F-19 » sample

- ☛ Ionization efficiency factor 2.41 used to correct the difference in sensitivity between Pu and U

Sample	Assumed age	<sup>238</sup> Pu/ <sup>234</sup> U	<sup>239</sup> Pu/ <sup>235</sup> U	<sup>240</sup> Pu/ <sup>236</sup> U
RR-I	2.3	2.30 ± 0.09	4.75 ± 0.24	2.46 ± 0.04
RR-II		2.34 ± 0.07	2.65 ± 0.14	2.28 ± 0.04
F19 I	20.6	- *	- *	21.4 ± 0.6
F19 II		- *	- *	19.8 ± 0.3

Results of age determination (age in years ± 2σ) for the 4 samples corrected to February 2000.

\* Results affected by uranium contamination.

G. Tamborini - August 2002

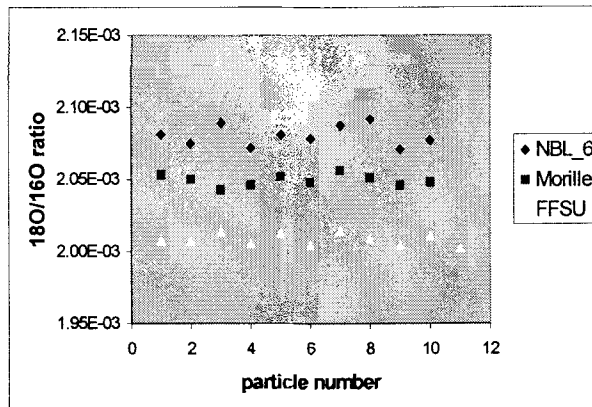


## Forensic Analysis

### CASE 3 $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ in $\text{UO}_2$ for geological location assignment

The  $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$  ratio by SIMS is a potential indicator of the place of fabrication

- $\text{Cs}^+$  beam bombards the sample
- measured ions  $\text{O}^-$
- compared ratios in samples having three different known origins



$^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$  ratios for different  $\text{UO}_2$  samples

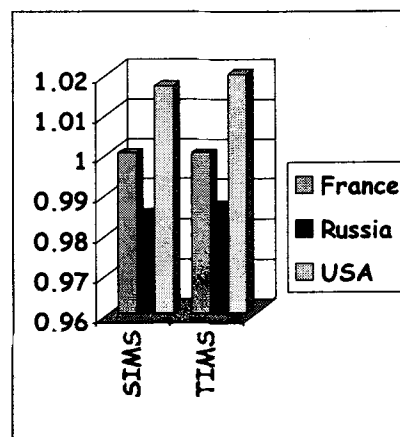
G. Tamborini - August 2002



## Forensic Analysis

### CASE 3 $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ in $\text{UO}_2$ for geological location assignment

- normalized values compared with those obtained by TIMS agree well



G. Tamborini - August 2002





## Others Application of the Particle Analysis

### ☛ industrial sector

- Examination of metal surface prior to painting enables the detection and identification of particles and common oil based contaminants
- Rapid identification of the common contaminants (surface particles) that arise during processing of semiconductor wafers
- Corrosion inhibition of oil and gas wells, petrochemical plants, steel reinforced cement, water cooling systems
- Evaluation of thin film composition and stoichiometry, nitrides, oxides, silicides

G. Tamborini - August 2002



## Others Application of the Particle Analysis

### ☛ Pollution detection

- The analysis of individual aerosol particles is a key task of environmental policy such as pollutant transport prediction, risk assessments and recognition of pollutant sources. The SIMS technique is used to identify sources of aerosol particles and to quantify their contributions to particulate emission (i.e., particles  $< 1 \mu\text{m}$  consist mainly of C, N, O and S; the particles  $> 1 \mu\text{m}$  contain in addition elements as Na, Al, Si, Mg, K and Fe)

### ☛ Interstellar dust particles and geochemistry

- The oxygen and magnesium isotopic compositions of meteorites particles measured by SIMS strongly contribute to the study of the evolution of the extraterrestrial material
- The capability of the technique to measure isotope ratios and mapping out the distributions of isotope fractions in certain rocks, leads to build up the thermal history of the rocks. This data can indicate geological events such as earthquakes

G. Tamborini - August 2002



## Others Application of the Particle Analysis

### ☛ Drug smuggling

– The detection and quantification of drugs (cocaine, morphine, scopolamine, LSD and buprenorphine) with a minimal work-up of the specimens is an important advance. This kind of technique permits the extraction of spectra from defined regions within the images allowing the chemical identification of the drug materials in-situ to a spatial resolution of 1  $\mu\text{m}$

### ☛ Cell imaging in biology

– The SIMS is a unique technique for studying subcellular elemental distribution, ion transport and drug localization. The technique can detect isotopic distribution with high sensitivity, produce single cell images with subcellular details and analyze a cell in three dimensions (providing sequential, multi-isotopic distributions at various cell depths, which reveal intracellular locations of chemicals). Ion microscopy can be used in application with stable isotope tracers for localizing the transport of ionic or isotopically labeled molecules.

*G. Tamborini - August 2002*



## Conclusion

### ☛ Key benefit of using SIMS for particles at ITU

- Excellent detection limit,  $\sim 10^9$  atoms of U per 1  $\mu\text{m}$  particle
- Excellent depth resolution, sub nm
- Full periodic table coverage
- High precision, few ‰ for O and C, few % for U and Pu isotope ratios
- Fully quantitative, using standards
- Rapid ion image acquisition capabilities
- Excellent complementary technique to bulk methods as TIMS and ICPMS

The SIMS method developed at ITU has become a powerful instrumental approach for the identification and determination of the composition of micro-particles stemming from different nuclear activities for safeguards.

*G. Tamborini - August 2002*

< 부 록 2 >

Dr. Tamborini와의 Meeting Minutes

여 백

**Meeting Minutes for  
The Visit of Dr. Tamborini  
to TCNC/KAERI**

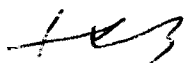
1. Dr. G. M. Tamborini from the ITU, JRC, EC was invited to the TCNC/KAERI by Dr. Jang Soo Shin as one of the activities for promoting international cooperation on particle analysis related subjects between TCNC/KAERI and ITU from Aug. 25 to Aug. 31, 2002.
2. For the invitation of Dr. Tamborini, TCNC/KAERI covered his 7 day-per diems, 4 day-consultant fees and round trip economy class air fares from Frankfurt to Incheon.
3. Dr. Tamborini made 2 presentations, one topic was "Overview of SIMS and correlated analytical methods for particle analysis" and the other was "How to deduce nuclear parameters from the results of particle analysis".
4. About 25 researchers from TCNC, Nuclear Chemistry Research Team, Laser Application Research Group and others were participated in each presentation.
5. Dr. Tamborini had technical visits to the laser application research group (guided by Dr. K.S. Song) and the nuclear chemistry research group (guided by Dr. K.Y. Jee) on Wednesday, and had many technical discussions about the laser and TIMS applications to particle analysis.
6. Dr. Tamborini gave many characteristic informations related to SIMS and TIMS methods for particle analysis, and explained ITU's on going progress on establishing the FT-TIMS method which is believed to be more direct for nuclear particle selection.

7. Dr. Tamborini gave the informations about the particle analysis in the industrial fields. He explained the application of particle analysis in the car companies, semi-conductor companies and others for detecting and identifying the contaminants on the material surfaces. In addition, he said that the informations about the application in metallurgy will be given soon to Dr. Shin.
8. On answering to the question about the analysis of U/Pu ratio measurement in single particle, Dr. Tamborini said that it would be measured by SEM WDS(wavelength dispersive spectroscopy). But, for more clear information, he would like to check it again, and give clear answer.
9. Dr. Shin explained the TCNC's plan for particle analysis in ITU, and requested the informations about the transportation of hot swipe samples. Dr. So added the IAEA's problems currently facing on the transportation of hot samples by airplane from Korea to Vienna. Dr. Tamborini will check the current situation in Europe/or ITU and give the related information soon.
10. Dr. Shin explained the inconvenience of the current 1-year contract for the analysis of korean swipes, and asked the possibilities of 3-year contract. Dr. Tamborini will give the answer soon. In addition, he recommended that it would be more convenient way to add this item to the existing cooperation agreement between KAERI and ITU.
11. In relation to the long term collaboration for the particle analysis, Dr. Shin insisted his intention to support KAERI's research groups, one is Dr. Song's laser application group and the other is Dr. Jee's TIMS application group, through keeping intimate relations with ITU. Dr. Tamborini agreed the Dr. Shin's intention. Both agreed to make action items through the discussions with KAERI's related research groups.

12. Dr. Shin asked standard U/Pu particle samples on graphite planchets. And Dr. Tamborini answered there would be no problem to include this item in the possible future joint research collaboration between TCNC/KAERI and ITU.
13. Dr. Shin asked to join one TCNC staff to the next particle analysis procedure of the korean swipe samples in November, and Dr. Tamborini agreed to arrange it.

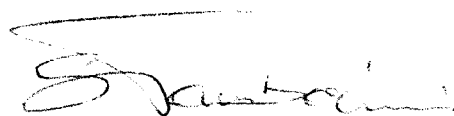
Both sides confirmed the above and agreed to promote the correlations with goodwill and warm heart.

Aug. 30, 2002



---

Dr. Jang Soo Shin  
Project Manager,  
TCNC/KAERI



---

Dr. G. M. Tamborini  
Visiting Scientist  
ITU, JRC, EC

여 백



## < 부 록 3 >

독일 ITU에서의 Swipe 시료 분석 결과

여 백



EUROPEAN COMMISSION  
DIRECTORATE-GENERAL JRC  
JOINT RESEARCH CENTRE  
Institute for Transuranium Elements  
Unit:

Date: 25.07.2002

Project Nr.: 1751

Copies: 1

Title **Determination of Isotopic Abundances in Uranium and Plutonium Particles from Swipe Samples using Secondary Ionisation Mass Spectrometry.**

Author(s) **G. Tamborini, C. Charpentier, O. Bildstein**

Classification: Confidential

Type of report: **Summary results**

	Name	Date	Signature
reviewed by the project coordinator / or main author	G. Tamborini	27.07.2002	

Legal notice / disclaimer

*Neither the European Commission nor any person acting on behalf of the Commission is responsible for the use which might be made of the information contained in this document.*

Certified by DQS according to DIN EN ISO 9001 Reg. Nr. 059429 QM

Postfach 2340, D-76125 Karlsruhe - Germany  
Telephone: direct line (+49-7247)951-XXX, switchboard 951-0. Fax: 951--XXX  
Internet: E-mail: XXX; WWW: <http://www.jrc.cec.eu.int>

# TABLE OF CONTENTS

## I- Introduction

## II- Identification and characterisation of Uranium particles by Automatic Scanning Electron Microscope.

### 2. Experimental

#### 2.1. Instrumentation

#### 2.2. Sample preparation

#### 2.3. Instrumental analysis

## III- Determination of isotopic abundances in Uranium particles from swipe samples using Secondary Ionisation Mass Spectrometry (SIMS).

### 3. Experimental

#### 3.1. Instrumentation

#### 3.2. Sample preparation

#### 3.3. Instrumental analysis

## IV- Results

### 4.1. Quality control for U particles

### 4.2. Samples

### 4.3. Plutonium search

## Annexes

## **I- INTRODUCTION**

This final report concerns the results obtained on 2 sets of samples analysed in compliance with order n° TCNC-ST-1/2002 dated 08.05.2002. This order is part of the contract between KAERI and JRC-ITU KA-12/2002 whereby ITU performs particulate analysis of U and Pu on swipes collected and sent by KAERI.

The samples were taken by smearing at the working and service area in some KAERI nuclear facility. The 2 samples (the first taken in a chemical room and from an equipment surface, code TCNC-17, the second sampled on a chemical waste tank and in a storage room, code TCNC-21) arrived at ITU during the first week of June 2002. Both sample batches were brought to the class 100-10 clean for the processing of the swipes.

## II– Identification and characterisation of Uranium particles by Automatic Scanning Electron Microscope.

### 2. Experimental

#### 2.1. Instrumentation

The samples were analysed using an automatic Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive X-ray (SEM-EDX) system of RJL Micro&Analytics GmbH company (R.J. Lee “Personal SEM<sup>®</sup>”).

#### 2.2. Sample preparation

Due to their low activity, the samples TCNC-17 and TCNC-21 were prepared in a class 100-10 clean room placed outside the controlled area. One swipe for each sample was introduced in a disposable glove bag and opened. 6 squares of 1 cm<sup>2</sup> were cut out from each of the swipe using a disposable scalpel. The 6 sub-samples were one after the other extracted under laminar flow with 2-3 ml suprapure **heptane** in 12ml tube posed in an ultrasonic bath. After each extraction the supernatant solution (500 µl of the **heptane**) was pipetted stepwise (using 20µl for each deposition) onto a pre-cleaned high purity carbon support (Fullam Inc., grade A carbon planchets No. 17680) and dried on a hot plate using a surface temperature on the carbon support of 70°C.

In addition, a blank of the clean room was also prepared at the same time.

### **2.3. Instrumental analysis**

To search for uranium containing particles the samples were scanned automatically by SEM using the backscattered mode. The applied voltage was 30 kV. The contrast was set so, that only particles containing elements with high atomic number (Z) were detected. They appear as bright spots against an otherwise dark background signal. Whenever such a signal is received from the sample, a particle is identified and the system analyses it by taking the X-ray spectrum with the EDX detector during 3s. The U particles only with a content of uranium more than 20% are recorded. The obtained energy spectrum is automatically evaluated by comparing the peaks in the spectrum with known peaks in the source library. From these analyses, the number of uranium particles deposited on the planchet, together with their elemental composition and their coordinates are obtained. The distribution of the particles on the planchet and the results of the analyses for the different samples are presented in the Annex 1.

### **III- Determination of isotopic abundances in Uranium particles found in swipe samples using Secondary Ionisation Mass Spectrometry (SIMS).**

#### **3. Experimental**

##### **3.1. Instrumentation**

The analyses were performed on a CAMECA SIMS 4fE6 and on a CAMECA 6f secondary ionisation mass spectrometer (CAMECA, Courbevoie, France).

### **3.2. Sample preparation**

The same planchets of the samples TCNC-17 and TCNC-21 prepared for the SEM measurements were used for SIMS analysis (cfr. chapter 2.2).

### **3.3. Instrumental analysis**

The dried support was brought to the SIMS mass spectrometer, mounted in a sample holder and introduced into the mass spectrometer. Before analysis the mass spectrometer was aligned and calibrated according to the CAMECA operation manual.

Each analysis consisted of scanning the surface of the support at either mass numbers 235 and 238. When a particle was detected the intensity ratios  $234/238$ ,  $235/238$ ,  $236/238$  and  $239/238$  were recorded using magnetic peak jumping (9 measurements of 4 seconds per minor isotope). The scanning of the surface then continued until the next particle was detected. The ratios of all particles found were imported in a spreadsheet and evaluated. The same procedure was followed for the analysis of Pu particles. In this case, when a plutonium particle was detected only the ratio Pu-239/Pu-240 was obtained.

## **IV. Results**

### **4.1. Quality control for U particles (Annex 2)**

Every day at least one standard sample was measured from a support containing  $1\mu\text{m}$  particles produced from certified reference material (CRM U-100 and CRM U-020 National Bureau of Standards, Washington, USA).

During the preparation of the two samples, a blank has been prepared in the clean lab in the same conditions as the real sample and has been measured by SEM and SIMS to confirm the absence of cross-contamination.



## 4.2. Samples

### Sample TCNC-17

The automatic SEM analysis on a small portion of the sample TCNC-17 performed during 73 minutes found only 5 uranium particles. The particle distribution at the surface of the sample is shown on Annex 1. 4 of these particles have a mean diameter centred between 1 and 2  $\mu\text{m}$ . Only one particle has an average diameter of more than 5  $\mu\text{m}$ .

More than 50 particles were analysed by SIMS (see Annex 3), but it was possible only for 26 particles to perform a complete measurement. In fact, many of the particles were very small and were sputtered rapidly after few seconds of analysis. Following the dimension and the density of the particles, the counting rates are quite different from particle to particle.

Basically, one population of uranium particles centred on the natural enrichment of uranium was found. Between them, only 1 uranium particle 3% enriched was identified in the same sample.

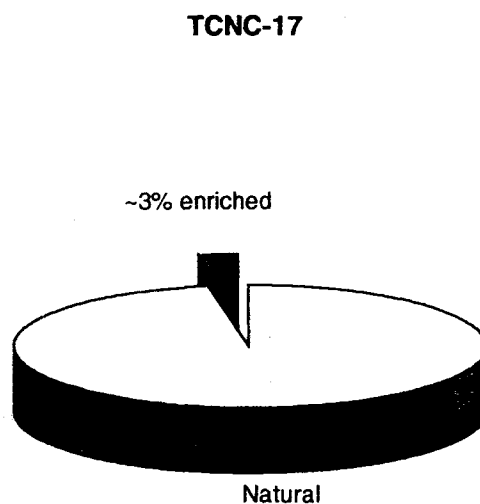


Fig.1 Pie chart giving the distribution of the uranium particles enrichment of in the sample TCNC-17.

### Sample TCNC-21

The major problem encountered during the analysis of this sample is the interference given by the presence in the sample of many lead particles detected by SIMS. Their oxides interfere on the isotope masses of uranium and plutonium (Annex 4). A lot of very small and not dense particles were also analysed. In many cases their signal was so small that the analysis could not be finished. Consequently, in some cases, the results of the minor isotopes are also not given due to the bad statistic.

The automatic SEM analysis (Annex 1) identified 18 uranium particles during 3 and half-hours. Almost all these particles were found and analysed by SIMS (see Annex 3). In few cases, a good quality of the results for the minor isotopes ( $^{234}\text{U}$  and  $^{236}\text{U}$ ) was obtained. On the basis of  $^{234}\text{U}$  and  $^{235}\text{U}$  results a graph showing the enrichment line could be constructed (Fig.3). Nevertheless, also in this sample the background contribution due to the presence of lead and mercury particles in the sample is quite important. As a consequence, for many particles the results of the minor isotopes are not given. This sample contains a majority of uranium particles of 4 to 5% enriched, few depleted ones and only a couple of natural uranium particles.

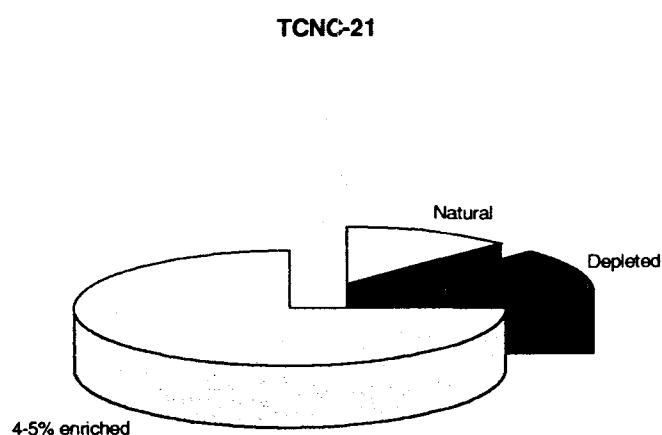


Fig.2 Distribution of the uranium enrichments in the sample TCNC-21.

### TCNC-21

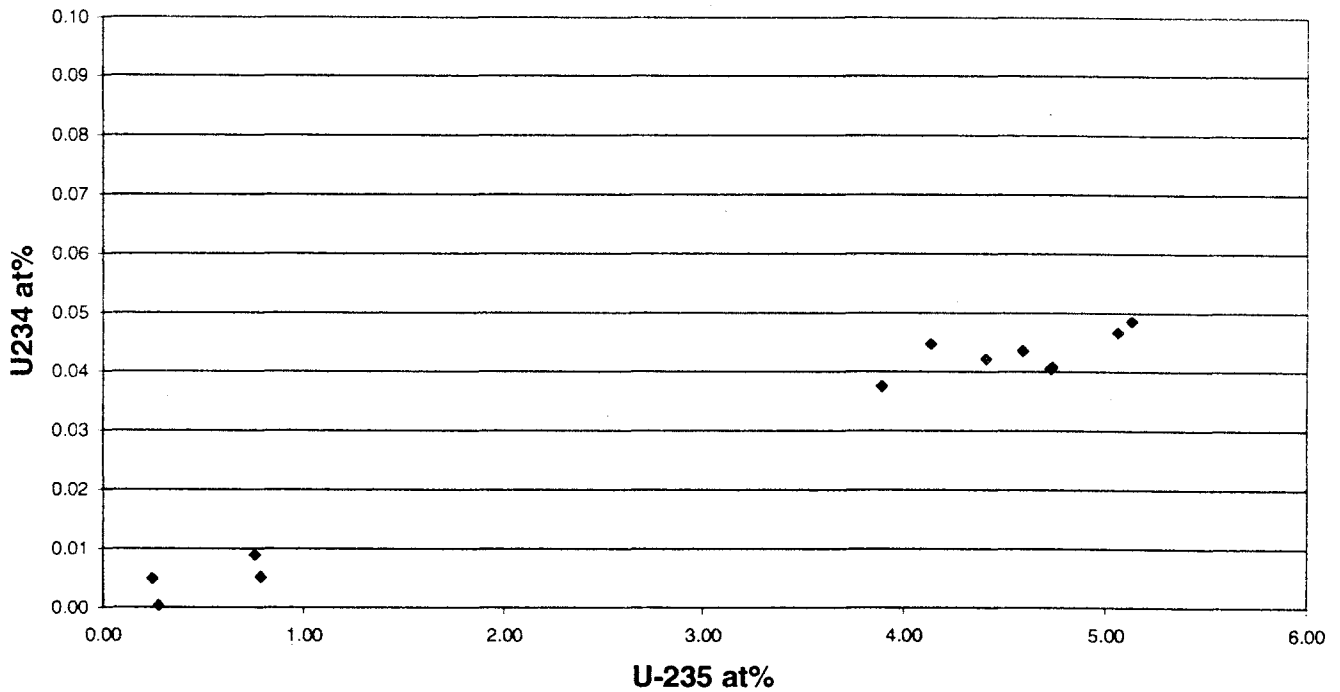


Fig.3 Enrichment linearity graph for the sample TCNC-21.

### 4.3. Plutonium search (Annex 4)

In order to calibrate the SIMS instrument for Pu particle analysis, PuO<sub>2</sub> particle sample very well characterised at ITU was used. Once the instrument calibrated for the plutonium masses, the research for Pu particles in the 2 TCNC samples could start.

Some very small particles were analysed. In all the cases their signals were poor and unstable so that only a qualitatively analysis could be done due to a very bad counting statistic. The analysis of these particles could not be validated due to the presence in both samples of a huge amount of lead particles, whose oxides (<sup>207</sup>PbO<sub>2</sub> and <sup>208</sup>PbO<sub>2</sub>) interfere on the plutonium isotopes 239 and 240. Some scanning ion images by SIMS of these nice lead

particles are presented in the Annex 4. During this kind of analysis, the lead oxide interference was shown recording also the signal for the mass 239.

### **Conclusion**

In general the requirements of the contract have been met. Unforeseeable problems have occurred due to the presence of Pb particles giving isobaric interferences above all on the Pu masses.

# **Annex**

- 1. SEM raw data results for the samples TCNC-17 and TCNC-21.**
- 2. SIMS quality control results on standard NBS U020.**
- 3. SIMS results for the samples TCNC-17 and TCNC-21.**
- 4. SIMS scanning ion images of many lead particles in both samples.**

# **Annex 1**

# Analysis Data

**User\_Mashead** ITU-Nuclear Chemistry

**Client\_Name** KAERI-  
**Client\_Number** TCNC  
**Project Name** KW36/01  
**Sample\_Number** TCNC-17  
**Comment** HEPTANE  
**Description** HEPTANE  
**Analysis\_Date** 37428  
**Operator** Bildstein  
**Instrument** Personal SEM  
**FileID** 00225\_AA  
**Run\_parm\_file** c:\zpdata\rpts\URAN.RPF  
**VEC\_file** c:\zpdata\vecs\URAN.VEC  
**Rule\_file** c:\zpdata\rules\URAN.ZRR

Area	Mag	Fields	Time	Min	Max	Grid	Particles
49	420	1,088	73	0.5	30.0	0.4	5

Classes	Number	Number%	Area%	Mass%
Uranium	5	100.0	100.0	100
Totals	5	100.0	100.0	100

**Mass Distribution (%) by Average Diameter(µm)**

Classes	Mass%	Min	Max	0.0	0.5	1.0	1.5	2.0	2.5	3.0	3.5	4.0	10.0
Uranium	100	0.0	0.0	0	0	1	1	0	14	0	0	83	0
Totals	100	0.0	0.0	0	0	1	1	0	14	0	0	83	0

# Analysis Data

## Length Distribution (µm)

Classes	Number	Min	Max	0.0	0.5	1.0	1.5	2.0	2.5	3.0	3.5	4.0	10.0
Uranium	5	1.2	5.8	0	0	2	1	0	1	0	0	1	0
Totals	5	1.2	5.8	0	0	2	1	0	1	0	0	1	0

## Aspect Ratio = Dmax/Dmin

Classes	Number	Min	Max	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Uranium	5	1.1	2.1	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0
Totals	5	1.1	2.1	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0

## Average Composition (WT%)

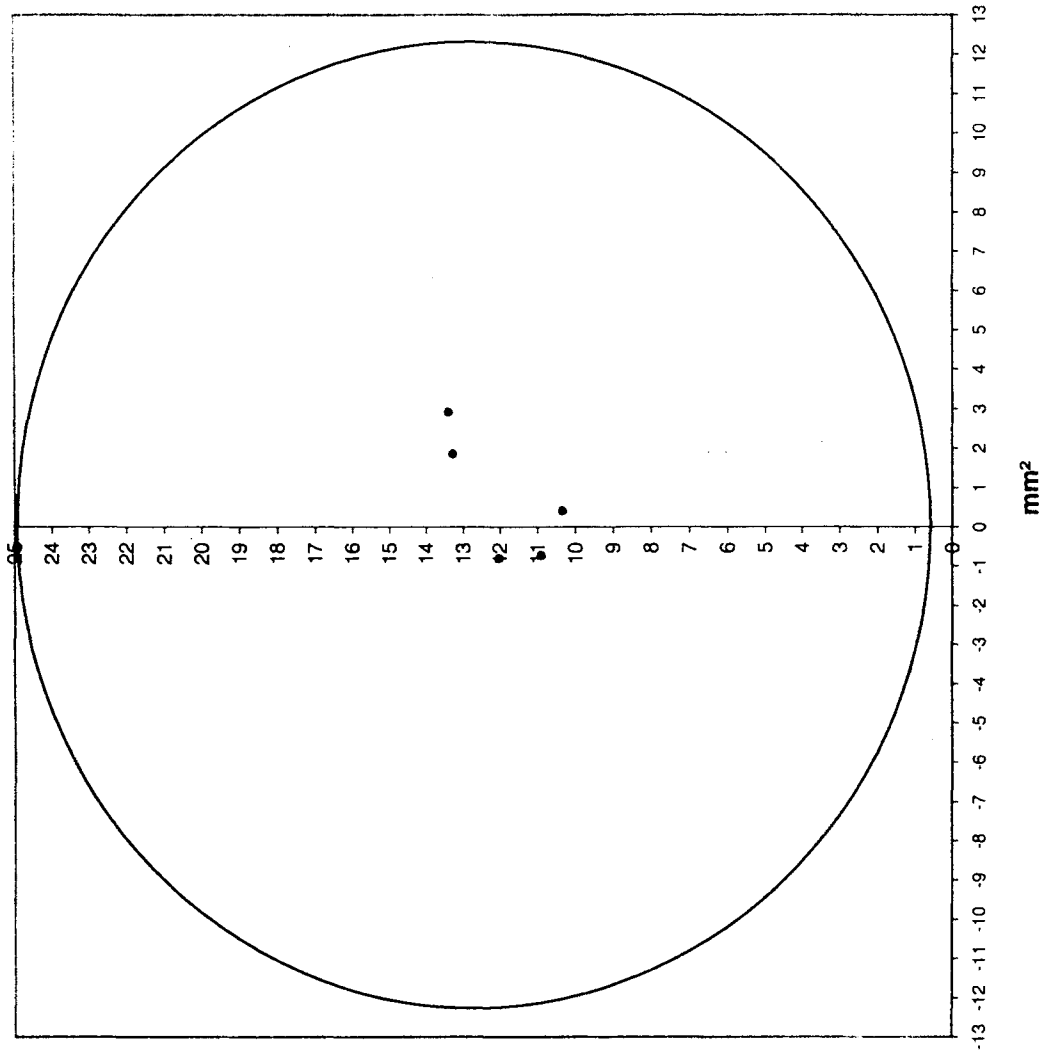
Classes	Number	F	Al	Si	S	Cl	K	Ca	Ti	Cr	Fe	Ni	Cu	Zn	Zr	Mo	Ag	Cd	In	Sn	Cs	Ba	La	Ce	W	Au	Pb	Th	U	
Uranium	5	0.0	0	0	3	4	0	0	0	0	11	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	25	9	48
Totals	5	0.0	0	0	3	4	0	0	0	0	11	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	25	9	48	



## Particles Data

Part#	X_abs	Y_abs	Dave	Dmax	Dmin	Area	U	F	W	Th	Pb	Type(4et)#
1	1.88	13.26	1.26	1.74	0.91	1.3	32	0	0	14	0	Fe- U-Th
2	2.94	13.37	1.04	1.46	0.65	0.95	35	0	0	0	52	Pb- U- S
3	-0.79	12.03	1.12	1.24	1.02	0.99	39	0	0	17	35	U-Pb-Th-C
4	-0.71	10.91	5.08	5.81	4.44	20.41	43	0	0	16	30	U-Pb-Th-C
5	0.42	10.34	2.6	3	2.19	5.39	92	0	0	0	8	U-Pb

# Uranium Particles Distribution Sample Diagram



# Particles Data

User\_Masthead ITU-Nuclear Chemistry

Client\_Name KAERI  
 Client\_Number TCNC  
 Project\_Name KW36/01  
 Sample\_Number TCNC-21  
 Comment HEPTANE  
 Description HEPTANE  
 Analysis\_Date 37426  
 Operator Bildstein  
 Instrument Personal SEM  
 FileID 00223\_AA  
 Run\_parm\_file c:\zopdata\pfs\URAN.RPF  
 VEC\_file c:\zopdata\vecs\URAN.VEC  
 Rule\_file c:\zopdata\rules\URAN.ZRR

Area	Mag	Fields	Time	Min	Max	Grid	Particles
64	420	1,424	205	0.5	30.0	0.4	18

Classes	Number	Number%	Area%	Mass%
Uranium	18	100.0	100.0	100
Totals	18	100.0	100.0	100

Mass Distribution (%) by Average Diameter(µm)

Classes	Mass%	Min	Max	0.0	0.5	1.0	1.5	2.0	2.5	3.0	3.5	4.0	10.0
Uranium	100	0.0	0.0	1	1	2	3	6	0	0	27	61	0
Totals	100	0.0	0.0	1	1	2	3	6	0	0	27	61	0

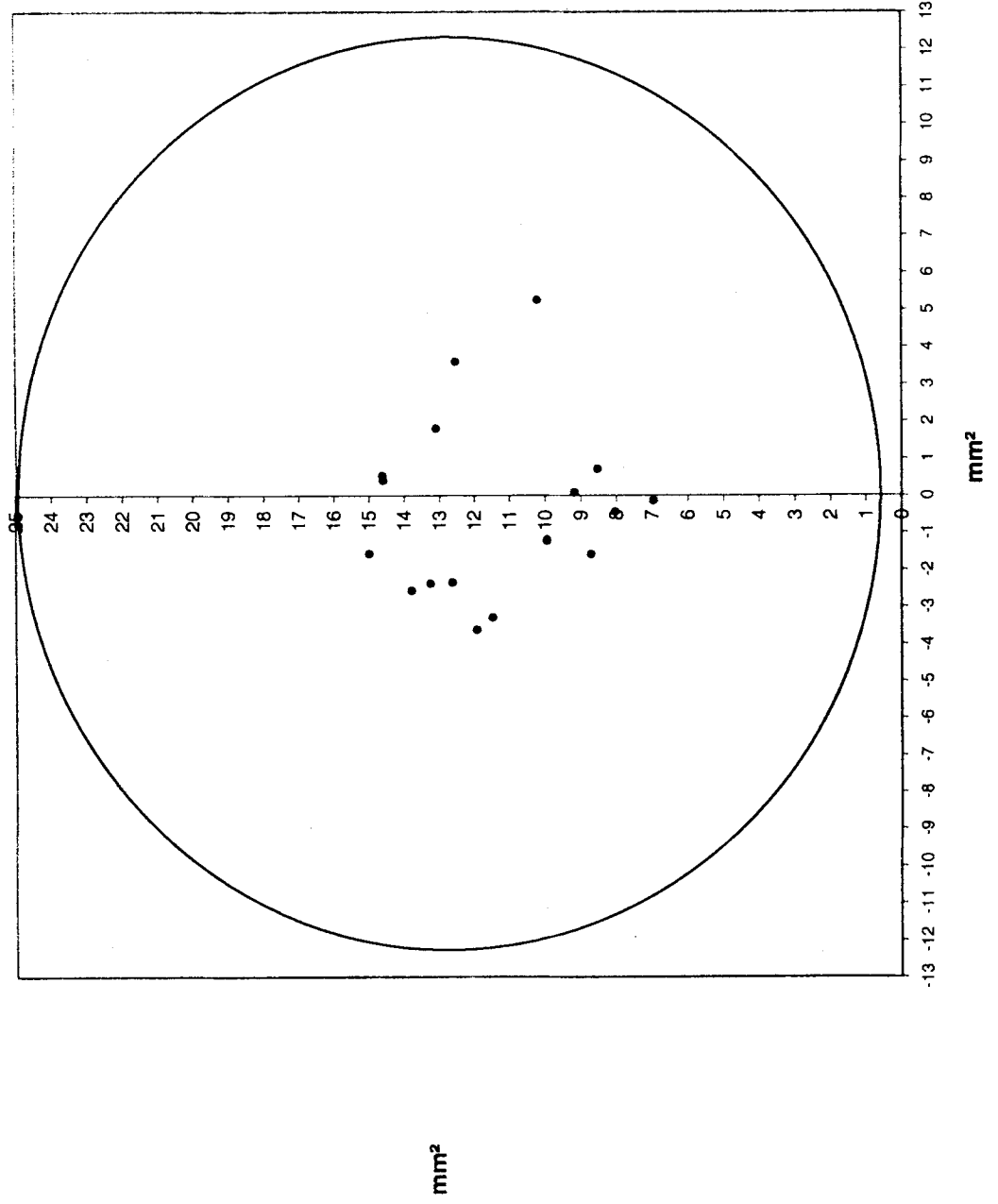
# Particles Data

Length Distribution (µm)																														
Classes	Number	Min	Max	0.0	0.5	1.0	1.5	2.0	2.5	3.0	3.5	4.0	10.0																	
Uranium	18	0.7	6.3	0	6	6	2	1	0	0	1	2	0																	
Totals	18	0.7	6.3	0	6	6	2	1	0	0	1	2	0																	
Aspect Ratio = Dmax/Dmin																														
Classes	Number	Min	Max	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10																	
Uranium	18	1.1	3.0	2	3	4	5	6	7	8	9	10	>>>																	
Totals	18	1.1	3.0	2	3	4	5	6	7	8	9	10	>>>																	
Average Composition (Wt%)																														
Classes	Number	F	Al	Si	S	Cl	K	Ca	Ti	Cr	Fe	Ni	Cu	Zn	Zr	Mo	Ag	Cd	In	Sn	Cs	Ba	La	Ce	W	Au	Pb	Th	U	
Uranium	18	0.0	0	0	5	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	32	14	45
Totals	18	0.0	0	0	5	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	32	14	45

## Particles Data

Part#	X_abs	Y_abs	Dave	Dmax	Dmin	Area	U	F	W	Th	Pb	Type(4et)#
1	0.55	14.62	0.93	1.09	0.83	0.71	66	0	0	0	10	U- S-Pb-Ca
2	0.43	14.59	0.54	0.82	0.31	0.32	37	0	0	20	33	U-Pb-Th- S
3	-1.56	14.98	1.16	1.52	0.88	1.11	33	0	0	22	36	Pb- U-Th- S
4	-2.55	13.77	0.77	1.05	0.58	0.5	40	0	0	12	36	U-Pb-CI-Th
5	1.81	13.08	3.52	3.75	3.22	9.69	38	0	0	15	47	Pb- U-Th
6	-2.37	13.25	3.88	4.05	3.75	11.82	54	0	0	36	10	U-Th-Pb
7	-2.34	12.61	0.89	1.09	0.65	0.65	39	0	0	20	41	Pb- U-Th
8	-3.62	11.92	1.31	1.54	1.14	1.36	100	0	0	0	0	U
9	3.61	12.51	0.91	1.14	0.65	0.67	39	0	0	10	34	U-Pb- S-Th
10	-3.28	11.47	0.54	0.72	0.37	0.26	37	0	0	19	44	Pb- U-Th
11	5.27	10.18	0.66	0.94	0.37	0.4	41	0	0	14	33	U-Pb-Th- S
12	-1.18	9.93	0.67	0.8	0.5	0.36	43	0	0	12	36	U-Pb-Th- S
13	-1.22	9.94	0.71	0.94	0.51	0.4	48	0	0	27	25	U-Th-Pb
14	-1.58	8.7	0.92	1.29	0.65	0.73	50	0	0	0	50	Pb- U
15	0.09	9.16	0.81	0.97	0.51	0.59	35	0	0	13	36	Pb- U- S-Th
16	0.73	8.52	0.82	1.02	0.59	0.55	32	0	0	9	37	Pb- U-Cd-CI
17	-0.43	8.02	2.23	2.48	1.9	3.99	42	0	0	14	32	U-Pb-Th-CI
18	-0.12	6.94	3.43	6.3	2.05	10.47	45	0	0	13	42	U-Pb-Th

Uranium Particles Distribution Sample Diagram



## **Annex 2**

**Measurement of certified reference material by SIMS (Cameca 4FE6).  
NBS U020.**

	234/238	235/238	236/238	239/238	236/238 corrected for <sup>235</sup> U <sup>1</sup> H contribution
<b>Certified value:</b>	<b>7.5359E-04</b>	<b>1.1360E-01</b>	4.2250E-04		4.2250E-04
<b>Measured value: Mean</b>	<b>7.5436E-04</b>	<b>1.1432E-01</b>	5.9207E-04	1.4329E-03	<b>4.2834E-04</b>
<b>s</b>	<b>2.1568E-05</b>	<b>6.3243E-04</b>	3.6368E-05	3.0537E-04	<b>2.5060E-05</b>
<b>s<sub>rel</sub> (%)</b>	<b>2.86%</b>	<b>0.55%</b>	6.14%	21.31%	<b>5.85%</b>
<b>bias (%)</b>	<b>0.10%</b>	<b>0.63%</b>	40.14%		<b>1.38%</b>
<b>relative uncertainty (1s)</b>	<b>2.86%</b>	<b>0.84%</b>			<b>6.01%</b>
8-Apr-02	7.567E-04	1.146E-01	5.768E-04	1.260E-03	4.324E-04
8-Apr-02	7.719E-04	1.151E-01	5.733E-04	1.100E-03	4.467E-04
8-Apr-02	7.770E-04	1.149E-01	6.220E-04	1.195E-03	4.847E-04
8-Apr-02	7.457E-04	1.134E-01	5.517E-04	1.196E-03	4.161E-04
8-Apr-02	7.699E-04	1.131E-01	6.332E-04	1.850E-03	4.240E-04
8-Apr-02	7.946E-04	1.150E-01	5.303E-04	1.211E-03	3.910E-04
12-Apr-02	7.742E-04	1.143E-01	5.982E-04	1.746E-03	3.986E-04
12-Apr-02	7.389E-04	1.143E-01	6.040E-04	1.532E-03	4.289E-04
12-Apr-02	7.665E-04	1.143E-01	5.685E-04	1.061E-03	4.472E-04
12-Apr-02	7.318E-04	1.141E-01	5.969E-04	1.229E-03	4.567E-04
12-Apr-02	7.531E-04	1.143E-01	6.132E-04	1.699E-03	4.190E-04
12-Apr-02	7.281E-04	1.137E-01	6.211E-04	1.685E-03	4.295E-04
12-Apr-02	7.579E-04	1.139E-01	6.515E-04	1.797E-03	4.468E-04
12-Apr-02	7.579E-04	1.139E-01	6.515E-04	1.797E-03	4.468E-04
12-Apr-02	7.523E-04	1.148E-01	6.084E-04	1.423E-03	4.450E-04
16-Apr-02	7.170E-04	1.142E-01	6.338E-04	1.679E-03	4.421E-04
17-Apr-02	7.748E-04	1.144E-01	5.564E-04	1.028E-03	4.388E-04
21-May-02	7.465E-04	1.145E-01	5.504E-04	1.443E-03	3.852E-04
21-May-02	7.399E-04	1.143E-01	5.887E-04	1.569E-03	4.094E-04
22-May-02	7.252E-04	1.138E-01	5.927E-04	1.335E-03	4.408E-04
23-May-02	7.578E-04	1.150E-01	5.835E-04	1.459E-03	4.157E-04
23-May-02	7.765E-04	1.152E-01	5.439E-04	1.348E-03	3.886E-04
24-May-02	7.611E-04	1.148E-01	5.620E-04	1.300E-03	4.128E-04
5-Jun-02	7.896E-04	1.150E-01	6.125E-04	1.619E-03	4.263E-04
5-Jun-02	7.425E-04	1.145E-01	5.560E-04	1.325E-03	4.043E-04
7-Jun-02	7.504E-04	1.139E-01	6.780E-04	2.168E-03	4.311E-04
7-Jun-02	7.492E-04	1.141E-01	6.414E-04	1.645E-03	4.537E-04
10-Jun-02	7.488E-04	1.145E-01	5.525E-04	8.823E-04	4.515E-04
11-Jun-02	7.558E-04	1.141E-01	5.690E-04	1.289E-03	4.219E-04
11-Jun-02	7.590E-04	1.147E-01	6.502E-04	1.492E-03	4.791E-04
12-Jun-02	7.811E-04	1.146E-01	6.079E-04	1.474E-03	4.390E-04
12-Jun-02	7.747E-04	1.153E-01	5.395E-04	6.614E-04	4.632E-04
13-Jun-02	7.334E-04	1.144E-01	5.462E-04	1.389E-03	3.873E-04
13-Jun-02	7.464E-04	1.124E-01	5.728E-04	1.435E-03	4.115E-04
17-Jun-02	7.761E-04	1.152E-01	6.146E-04	1.437E-03	4.491E-04
17-Jun-02	7.045E-04	1.133E-01	5.861E-04	1.412E-03	4.261E-04
19-Jun-02	7.635E-04	1.140E-01	5.717E-04	1.561E-03	3.937E-04
19-Jun-02	7.467E-04	1.138E-01	6.313E-04	2.227E-03	3.779E-04
20-Jun-02	7.461E-04	1.142E-01	5.860E-04	1.374E-03	4.291E-04
20-Jun-02	8.010E-04	1.147E-01	5.340E-04	8.494E-04	4.366E-04
21-Jun-02	7.644E-04	1.144E-01	5.988E-04	1.565E-03	4.198E-04
24-Jun-02	7.458E-04	1.156E-01	6.325E-04	1.444E-03	4.656E-04
27-Jun-02	7.016E-04	1.137E-01	5.931E-04	1.411E-03	4.327E-04
27-Jun-02	7.360E-04	1.136E-01	5.651E-04	1.446E-03	4.008E-04



## **Annex 3**

### Sample: TCNC-17

Particle no	U234 atom %	U234% 1 $\sigma$	U235 atom %	U235% 1 $\sigma$	U236 atom %	U236% 1 $\sigma$
1	0.0061	0.0030	0.7384	0.0565		
2	0.0301	0.0074	2.9371	0.2449	0.0022	0.0002
3	0.0046	0.0042	0.7690	0.0627		
4	0.0047	0.0027	0.7877	0.0617		
5	0.0095	0.0046	0.7394	0.0245		
6	0.0062	0.0035	0.6980	0.0359		
7	0.0054	0.0023	0.7207	0.0369		
8	0.0072	0.0018	0.7089	0.0292		
9	0.0061	0.0016	0.7059	0.0371		
10	0.0055	0.0016	0.7345	0.0519		
11	0.0041	0.0040	0.7946	0.0833		
12	0.0049	0.0029	0.7326	0.0726		
13	0.0023	0.0018	0.7286	0.0468		
14	0.0092	0.0039	0.7355	0.0280		
15			0.7491	0.0782		
16	0.0054	0.0027	0.7611	0.0260		
17	0.0045	0.0019	0.7217	0.0355		
18	0.0067	0.0025	0.7187	0.0271		
19	0.0054	0.0016	0.7207	0.0456		
20	0.0081	0.0054	0.7276	0.0511		
21	0.0043	0.0013	0.7404	0.0597		
22			0.7393	0.0564		
23	0.0100	0.0051	0.7473	0.0610		
24			0.7372	0.0425		
25	0.0080	0.0037	0.7601	0.0369		
26	0.0098	0.0024	0.7206	0.0629		

NB.: 236U results have been corrected for isobaric interference.

### Sample: TCNC-21

Particle no	U234 atom %	U234% 1 $\sigma$	U235 atom %	U235% 1 $\sigma$	U236 atom %	U236% 1 $\sigma$
1	0.0022	0.0021	0.7861	0.2231	0.0069	0.0029
2			5.0866	0.6075		
3			4.5206	0.1101		
4	0.0422	0.0061	4.4048	0.3855	0.0035	0.0068
5	0.0090	0.0065	0.7598	0.1251	0.0059	0.0043
6	0.0486	0.0241	5.1266	0.8405	0.0098	0.0084
7	0.0468	0.0268	5.0579	0.4739		
8	0.0436	0.0140	4.5873	0.3358		
9	0.0376	0.0118	3.8895	0.3460	0.0119	0.0078
10	0.0409	0.0354	4.7328	0.8237		
11	0.0447	0.0077	4.1324	0.2278	0.0100	0.0040
12	0.0004	0.0006	0.2761	0.0136	0.0079	0.0039
13	0.0405	0.0006	4.7258	0.4988	0.0128	0.0022
14			4.8697	0.7338		
15			5.0927	0.5209		
16	0.0050	0.0009	0.2438	0.0252		

NB.: 236U results have been corrected for isobaric interference.

## **Annex 4**

2D Process

File...

Scale...

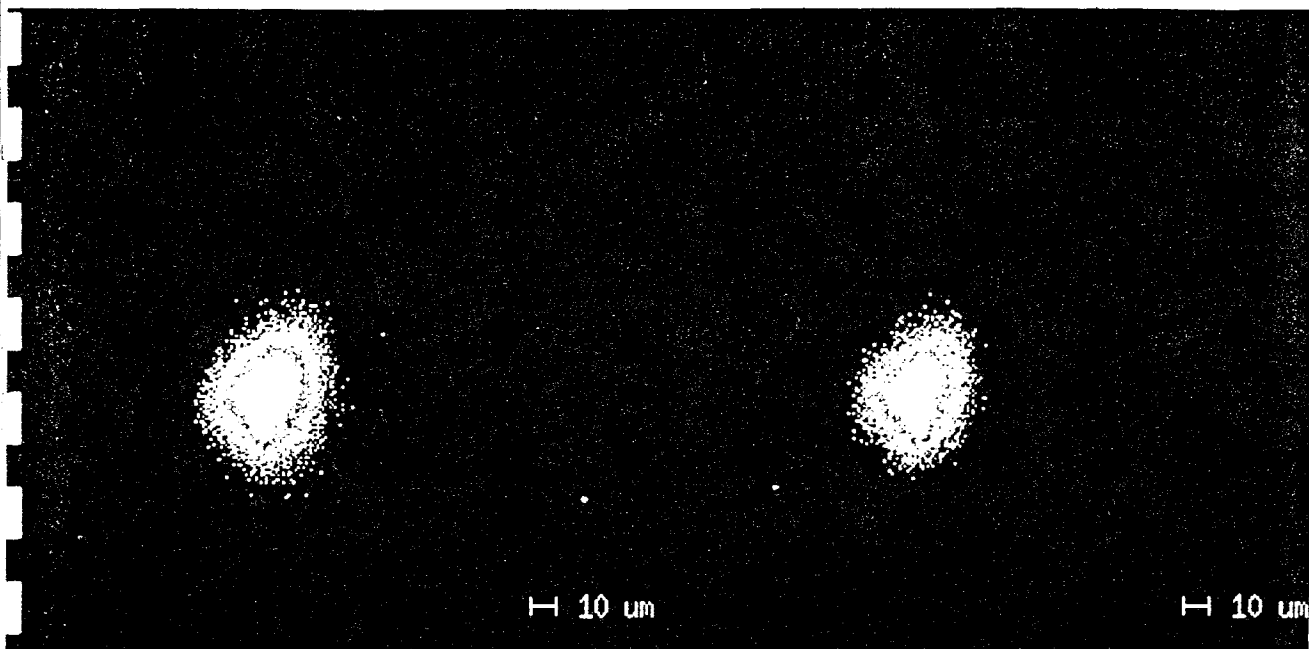
Image ▾

Compute ▾

Print...

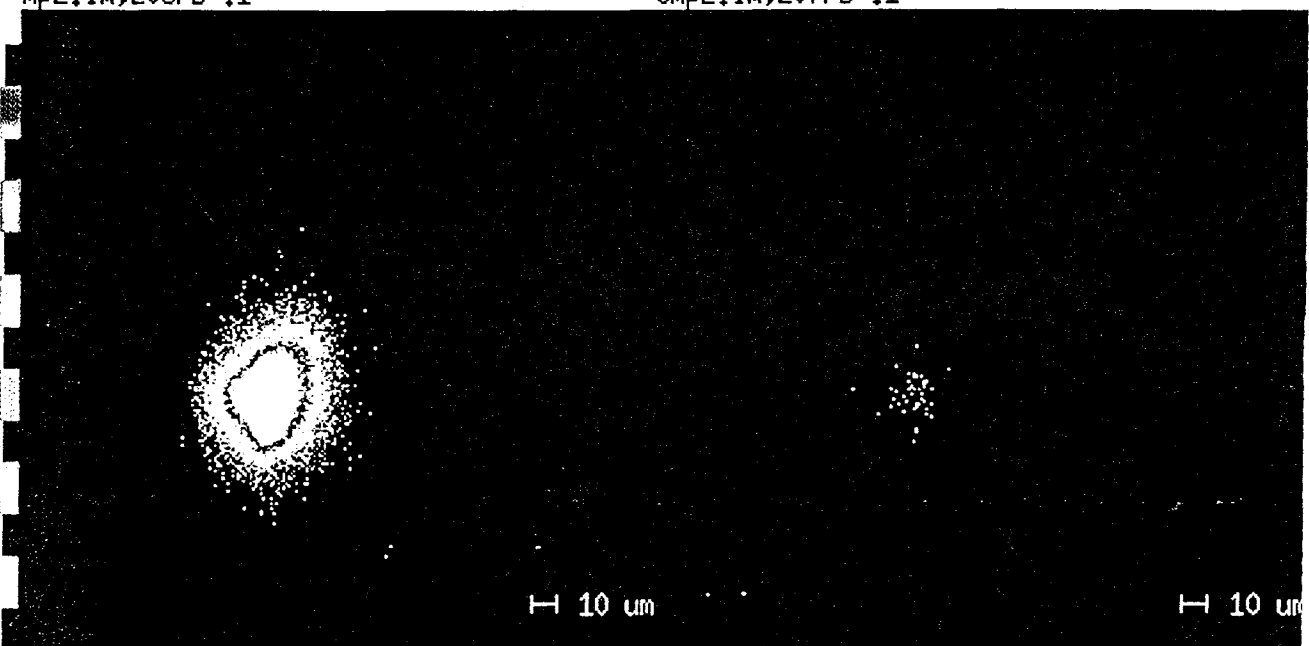
Grid ▾

4 x 256



mp2.im;206Pb :1

tmp2.im;207Pb :1



mp2.im;208Pb :1

tmp2.im;239:1

2D Process

File...

Scale...

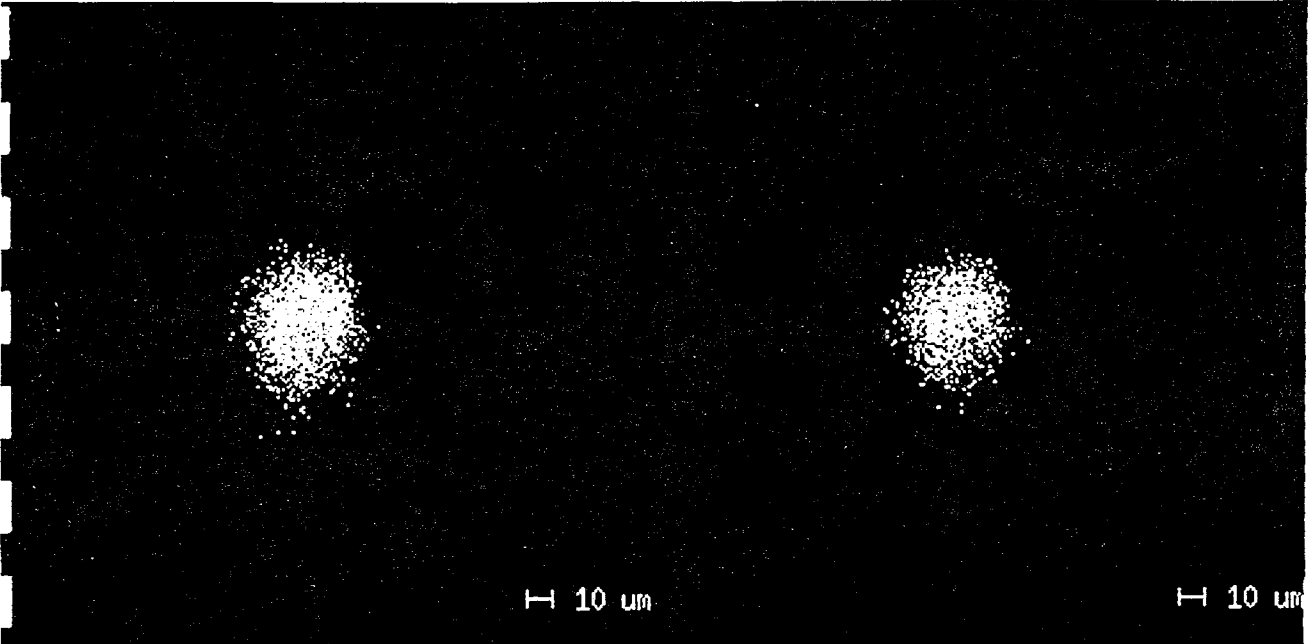
Image ▾

Compute ▾

Print...

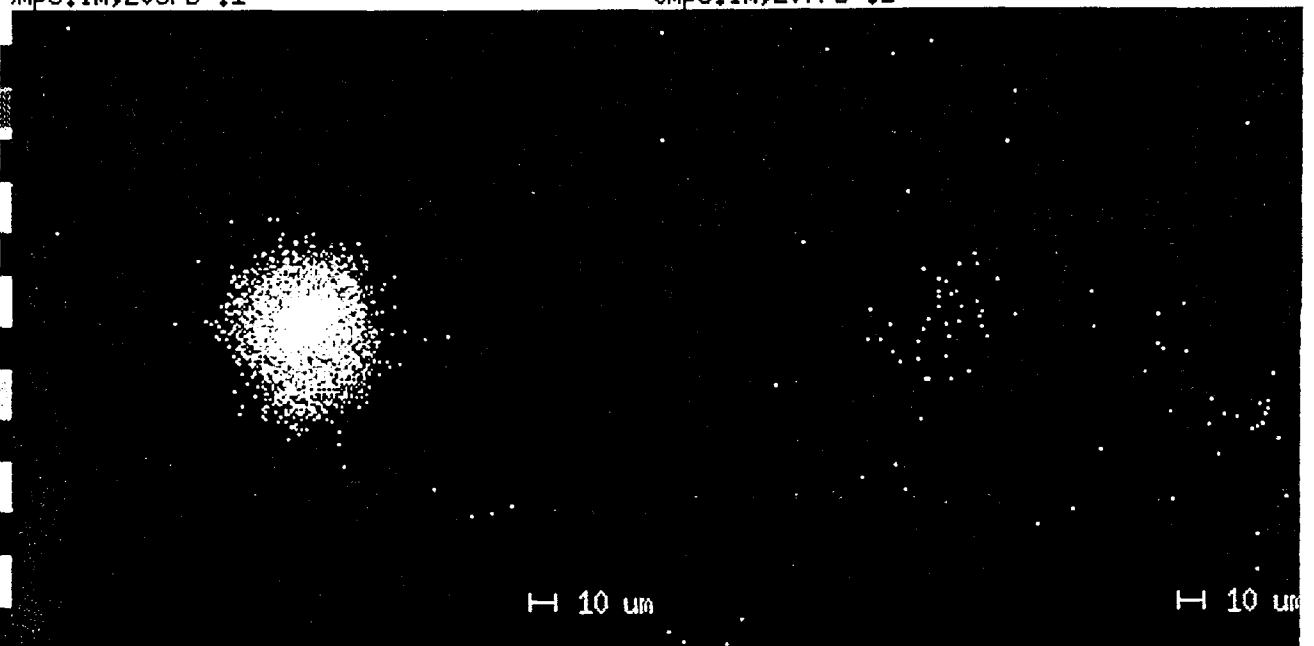
Grid ▾

4 x 256



tmp5.im;206Pb :1

tmp5.im;207Pb :1



tmp5.im;208Pb :1

tmp5.im;239:1

2D Process

File...

Scale...

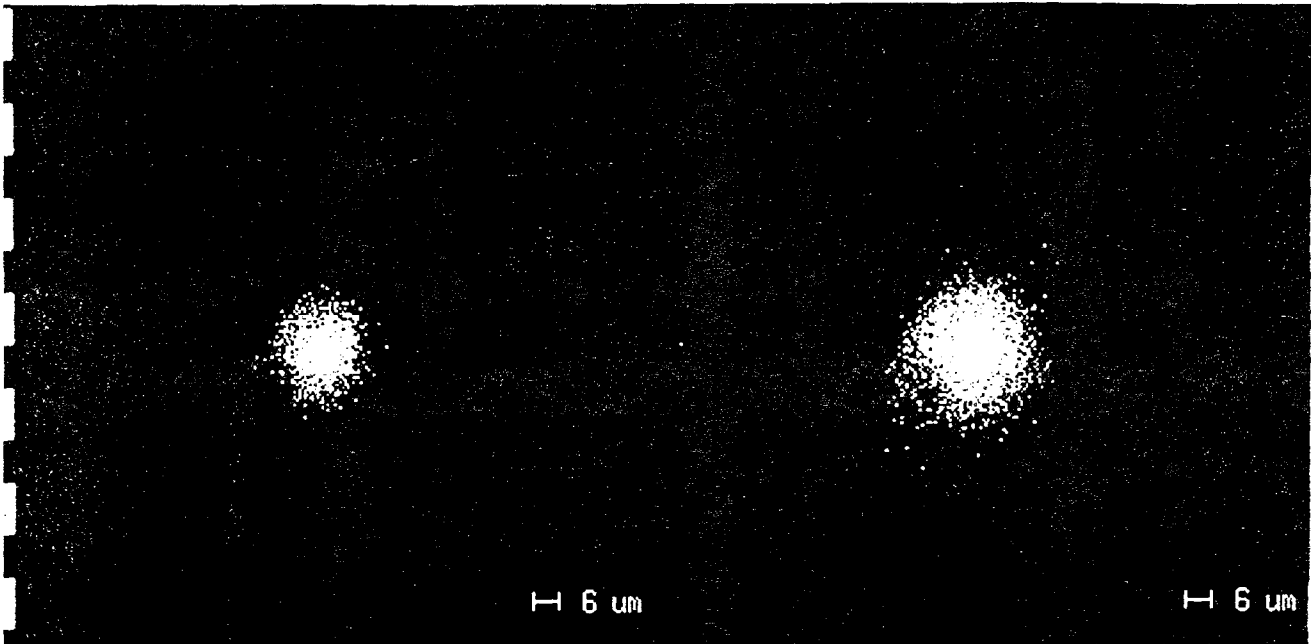
Image ▾

Compute ▾

Print...

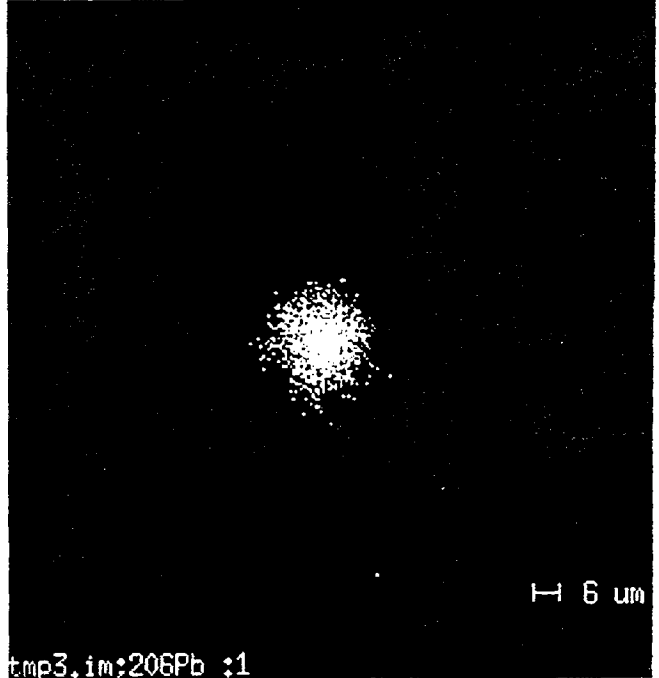
Grid ▾

4 x 256



tmp3.im;207Pb :1

tmp3.im;208Pb :1



tmp3.im;206Pb :1

2D Process

File...

Scale...

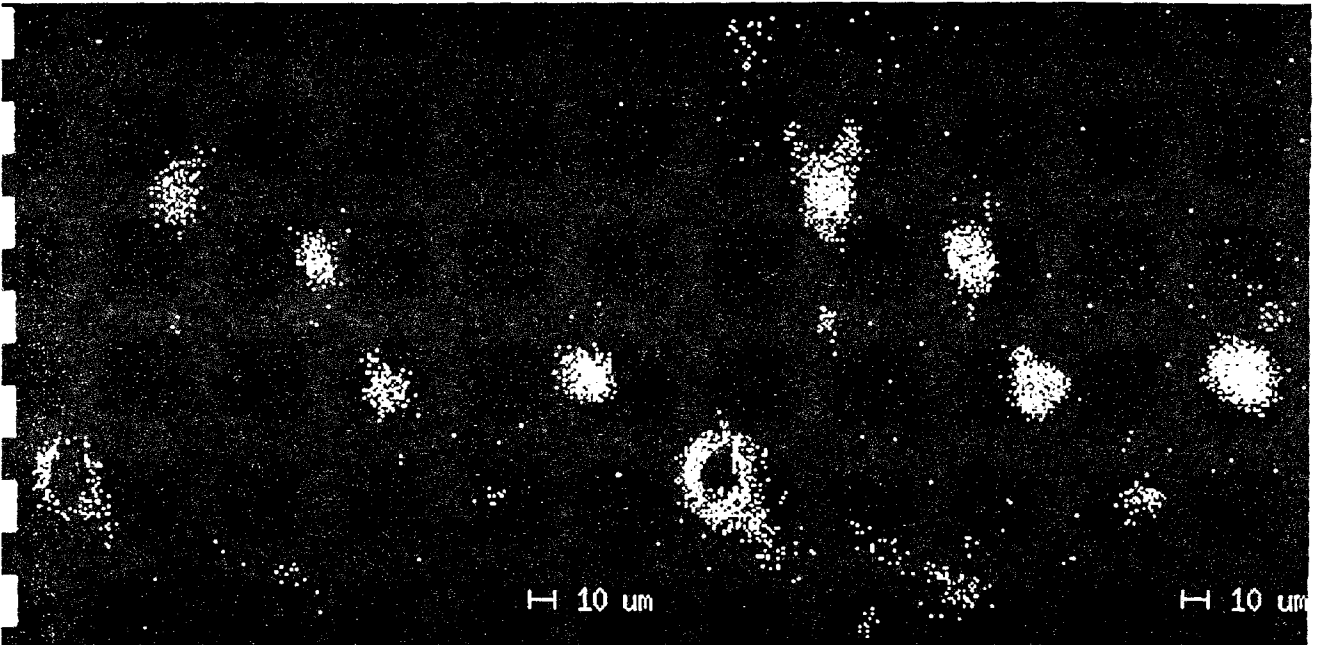
Image ▾

Compute ▾

Print...

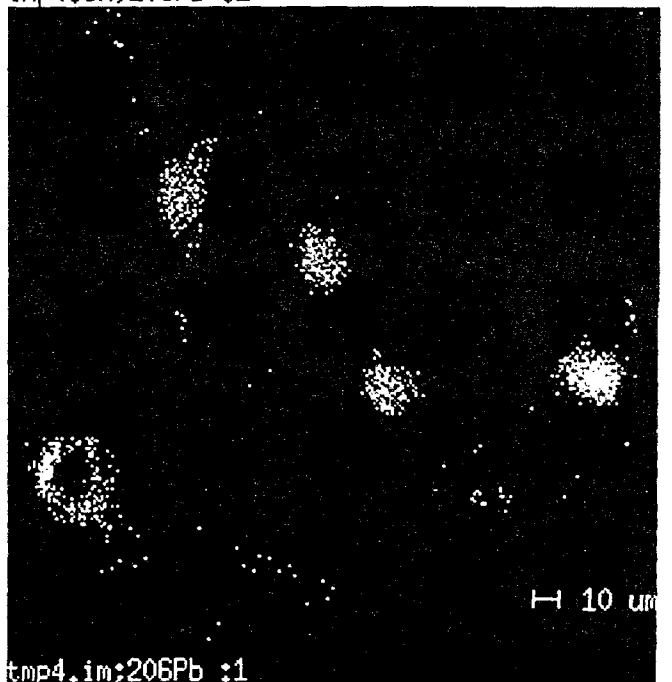
Grid ▾

4 x 256



tmp4.im;207Pb :1

tmp4.im;208Pb :1



tmp4.im;206Pb :1



2D Process

File...

Scale...

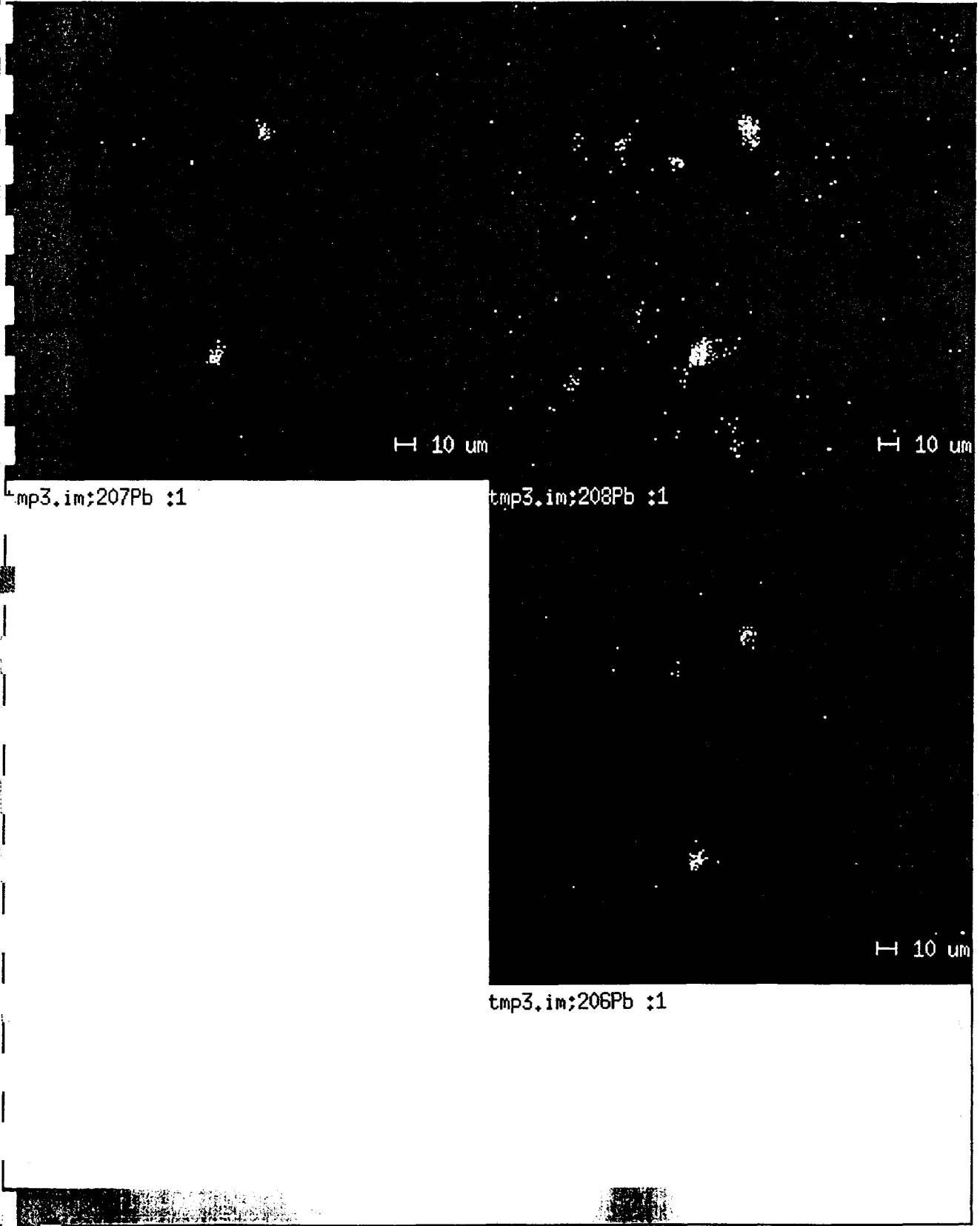
Image ▾

Compute ▾

Print...

Grid ▾

4 x 256



2D Process

File...

Scale...

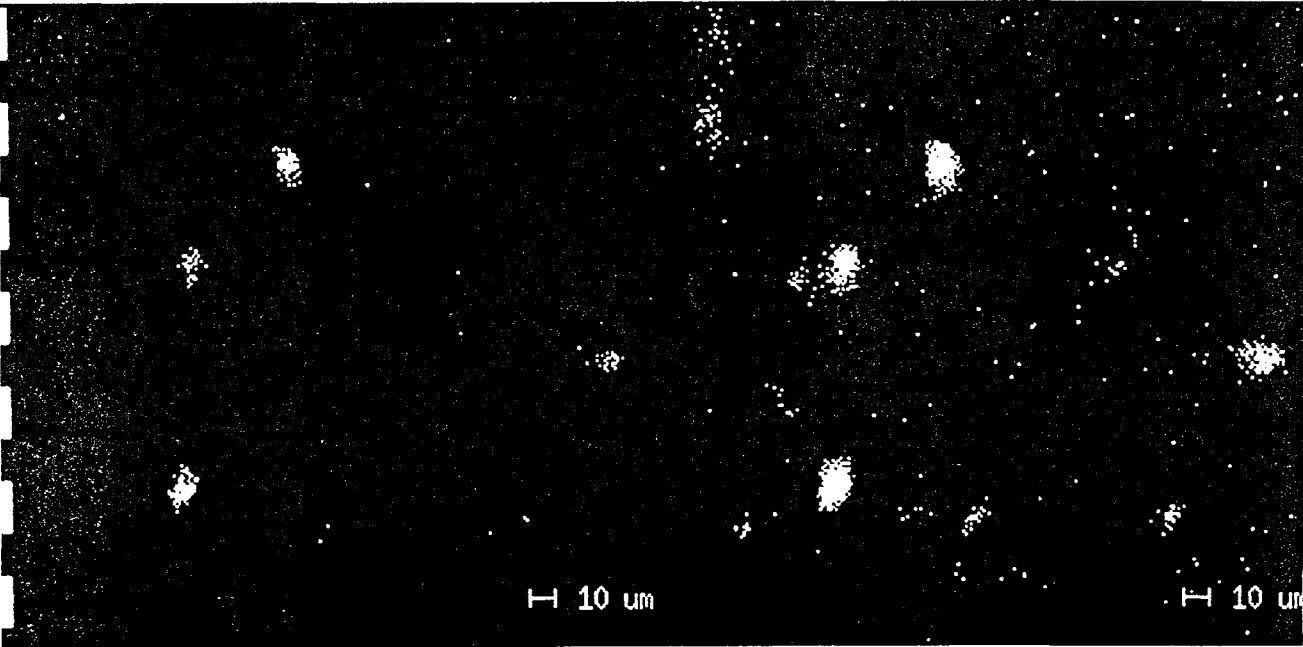
Image ▾

Compute ▾

Print...

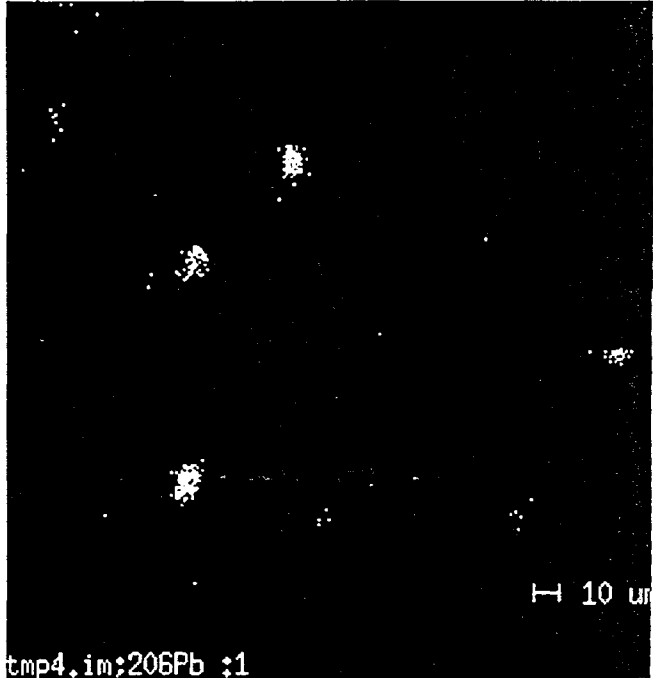
Grid ▾

4 x 256



tmp4.im;207Pb :1

tmp4.im;208Pb :1



tmp4.im;206Pb :1

< 부 록 4 >

국내 전문가 초청 세미나 자료

여 백

---

# 이차이온질량분석법

## Secondary Ion Mass Spectrometry

김경중  
한국 표준과학 연구원  
나노표면그룹

Nano Surface Group



---

## Contents

### Introduction

- Surface Analysis
- Principle of SIMS

### Instrumentation

- Ion Sources
- Mass Analyzer
- Ion Detector

### Theory

- Sputtering Effect
- Ionization and Sputtering Yield

### Applications

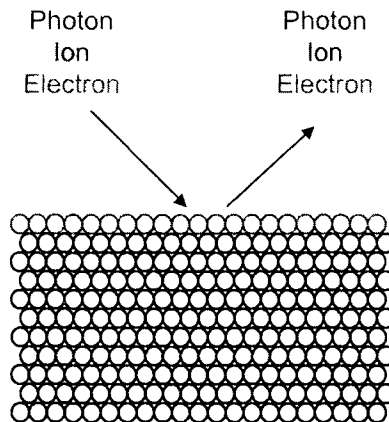
- Mass Analysis
- Depth Profiling
- Quantitative Analysis
- Ion Imaging

Nano Surface Group



# Introduction

## Surface Analysis



Nano Surface Group



# Introduction

## Surface Analysis

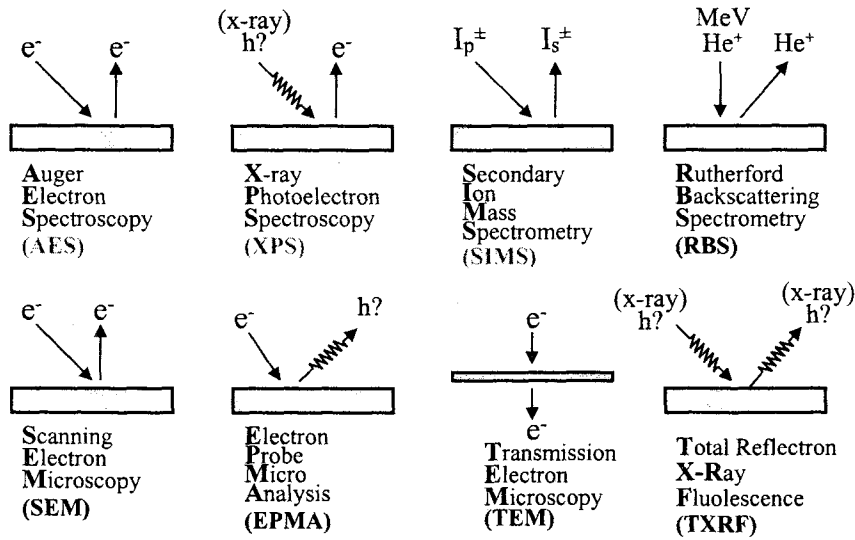
Input Signal	output Signal		
	Photon	Ion	Electron
Photon	XRF, TXRF XRD	LIMS	XPS, UPS
Ion	PIXE	SIMS, ISS RBS	INS
Electron	EPMA EDS	ESD	AES, SEM LEED, TEM

XPS : X-ray Photoelectron Spectroscopy  
 SIMS : Secondary Ion Mass Spectrometry  
 AES : Auger Electron Spectroscopy

Nano Surface Group



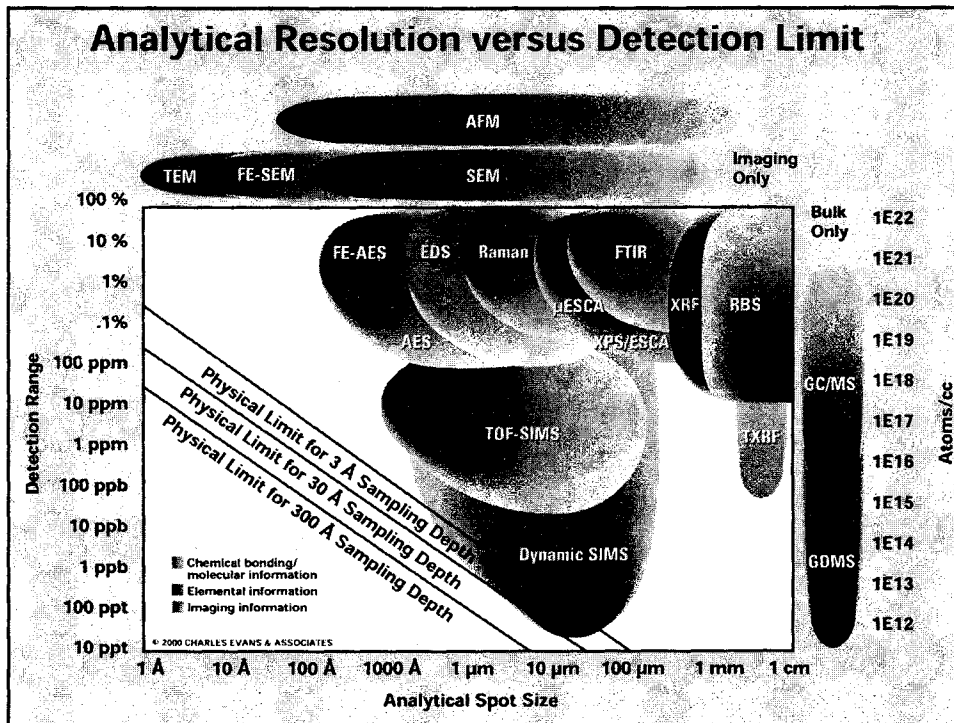
# Introduction



Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

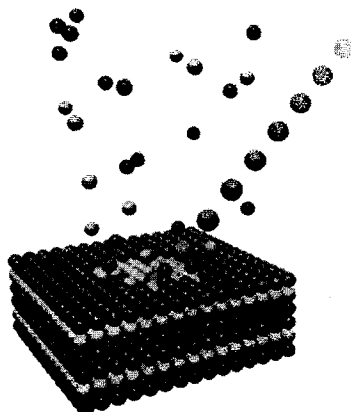
# Analytical Resolution versus Detection Limit



# Introduction

## Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS)

Secondary Ion                      Primary Ion

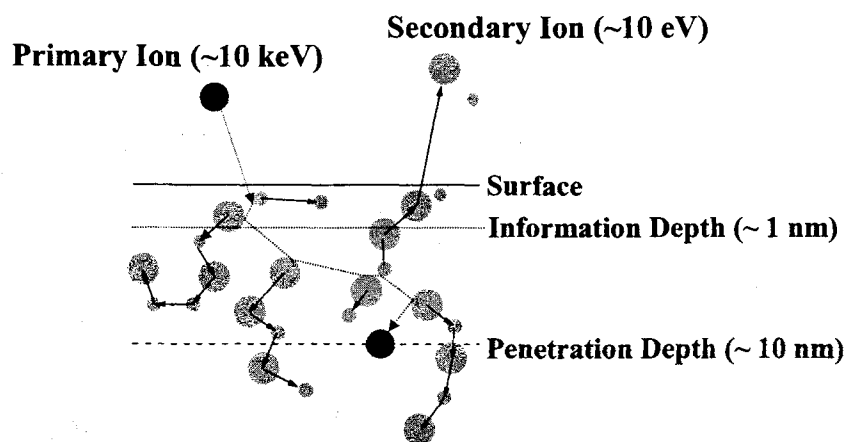


Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Introduction

## Principle of SIMS



Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE



## Application

---

### Characteristics of SIMS

#### Special Features

- High Sensitivity(ppm-ppb)
- Analysis of all Elements with Isotopes
- Rapid Analysis
- High Depth Resolution
- Microanalysis with Focused Ion Beam
- Chemical Information

#### Problems

- Severe Artifacts
- Matrix Effect (Poor Quantification)
- Destructive

Nano Surface Group



## Introduction

---

### Main Applications of SIMS

#### Semi-conductor industry

- Concentration depth profile of dopants
- Detection of contaminants
- Impurities bulk analysis

#### Metallurgy and Material sciences

- Corrosion process studies
- Oxide identification
- Quantitative trace analysis
- Localization and identification of precipitates

#### Geology:

- Isotopic measurements and trace analysis

#### Biology:

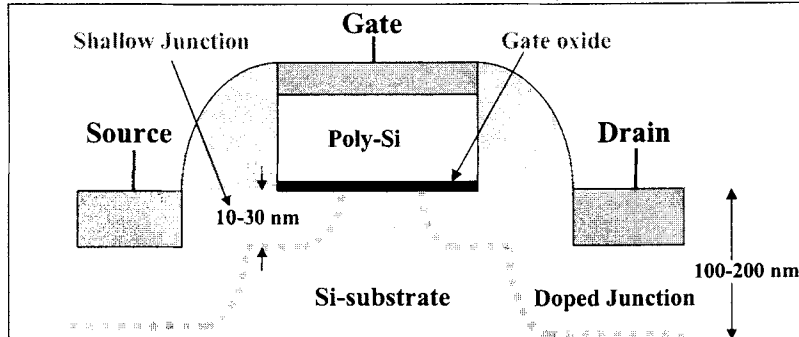
- Image of elements in cells and tissues

Nano Surface Group



# Introduction

## Schematic Diagram of MOSFET



### International Technology Roadmap for Semiconductors : 1999

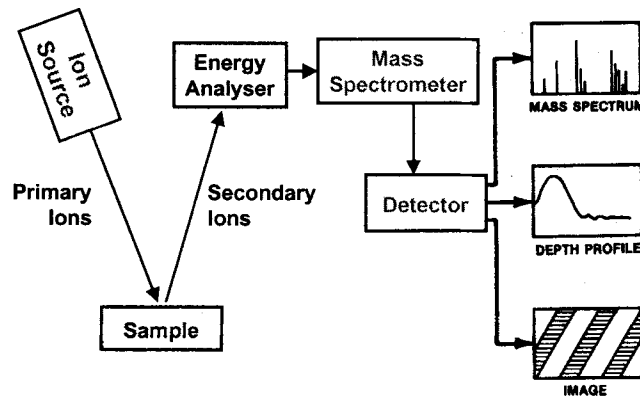
Tech. Node	: 180nm (‘99; 1G)	> 130nm (‘02; 4G)	> 100nm (‘05; 16G)	> 50nm (‘11; 64G)
Gate Oxide $T_{eq}$ Logic	: 1.9nm	1.5nm	1.0nm	0.6 nm
2& 3D dopant profile	: 3 nm	2nm	1.5nm	0.8nm
Precision	: 4%	4%	4%	4%

Nano Surface Group



# Instrumentation

## Schematic Diagram of SIMS Instrument



Nano Surface Group



## Instrumentation

---

### Ion Source

- Electron Impact (inert gas)
- Duoplasmatron (Gases, e.g. O, Ar)
- Surface Ionization (Cs)
- Electron Beam (Cs)
- Liquid Metal (Ga, Cs)

Nano Surface Group



## Instrumentation

---

### Primary Ions

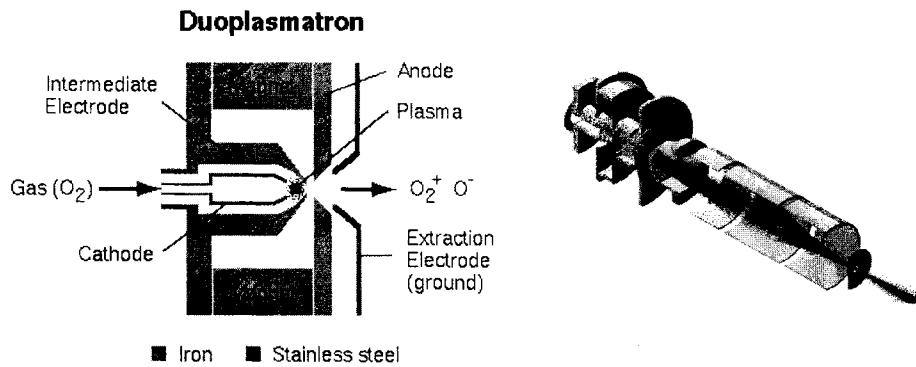
- Argon : sputtering, surface cleaning (ion milling)  
AES, XPS sputter depth profiling
- Oxygen : positive SIMS  
Enhanced ion yield for electropositive elements
- Cesium : negative SIMS  
Enhanced ion yield for electronegative elements
- Liquid metal : Small beam size (50 nm)  
FIB technology , Microprobe mode

Nano Surface Group



## Instrumentation

Ion Gun I : Duoplasmatron Ion gun ( $\text{Ar}^+$ ,  $\text{O}_2^+$ )



Nano Surface Group

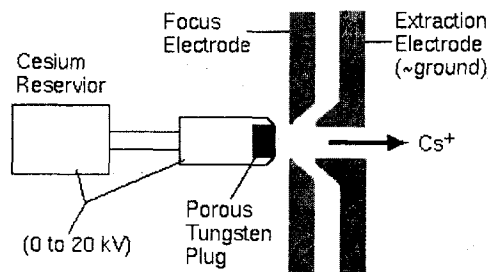
한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

## Instrumentation

Ion Gun II : Cesium Ion Gun ( $\text{Cs}^+$ )

- Enhance ion yield for electronegative elements

**Cesium Surface Ionization Source**



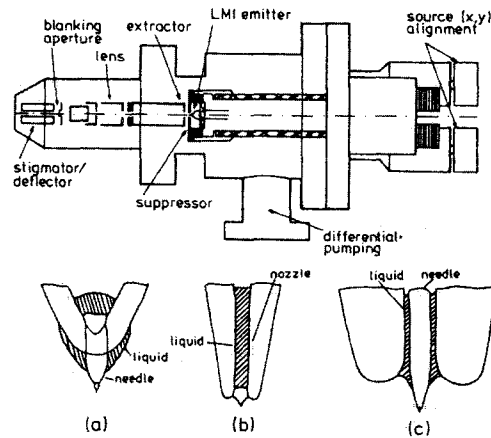
Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

## Instrumentation

### Ion Gun III : Liquid Metal Ion Source

- FIB technology , Small beam size (50nm)



Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

## Instrumentation

### Mass Analyser

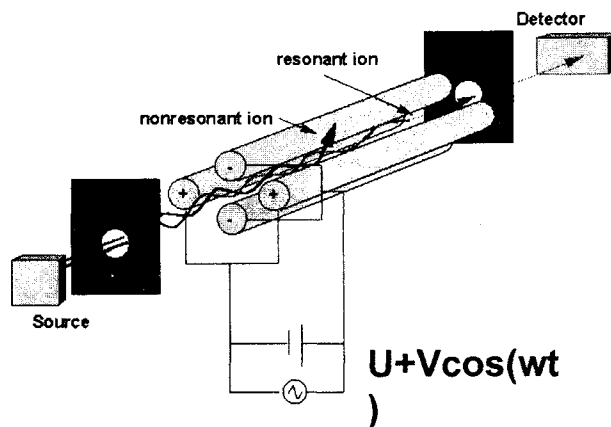
- **Quadrupole :**
  - Relatively inexpensive
  - Fast switching
  - Control of incidence angle : ultra high depth resolution
- **Double Focusing Electrostatic/ Magnetic Sector:**
  - High transmission : ultimate detection limit
  - High mass resolution : no mass interference
- **Time-of-Flight :**
  - High molecular weight determination
  - Rapid survey
  - Ultra low dose: surface contamination analysis

Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Instrumentation

## Quadrupole Mass Analyser

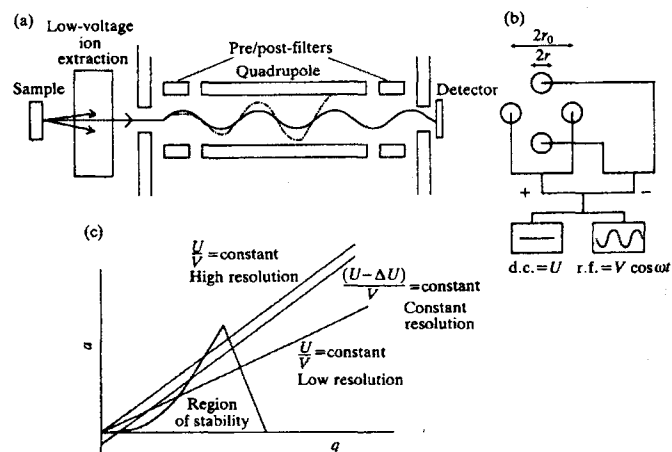


Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Instrumentation

## Quadrupole Mass Analyser

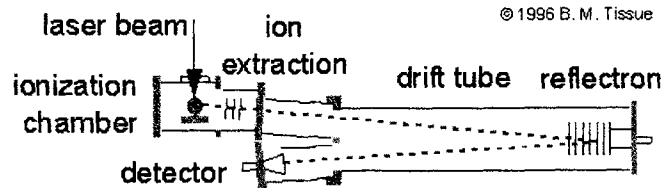


Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Instrumentation

## Time-of-Flight Mass Spectrometer



$$\text{K.E.} = qV = \frac{1}{2} mv^2$$

$$v = (2qV/m)^{1/2}$$

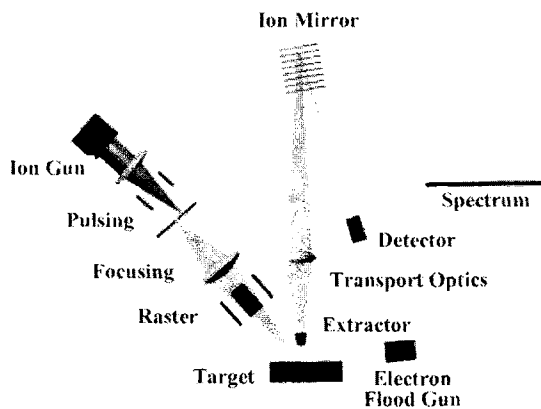
$$t = L / (2V/m/q)^{1/2}$$

Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Instrumentation

## Time-of-Flight Mass Spectrometer



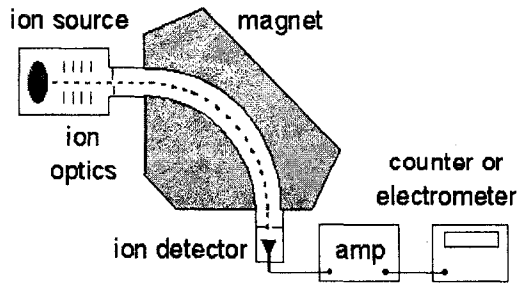
- **High Sensitivity**  
high transmission  
parallel mass detection
- **High Mass Resolution**  
> 10,000
- **High Mass Accuracy**  
( 1 – 10 ppm)
- **High Lateral Resolution**  
<100 nm at low mass resolu.  
< 500 nm at high mass resolu.
- **High Mass Range**  
up to 10,000u

Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Instrumentation

## Magnetic Sector Mass Analyser



$$\text{K.E.} = 0.5 mv^2 = eV$$

$$mv^2 / r = Hev$$

$$r = \frac{mv}{eH} = \frac{1}{H} \sqrt{2V \frac{m}{e}}$$

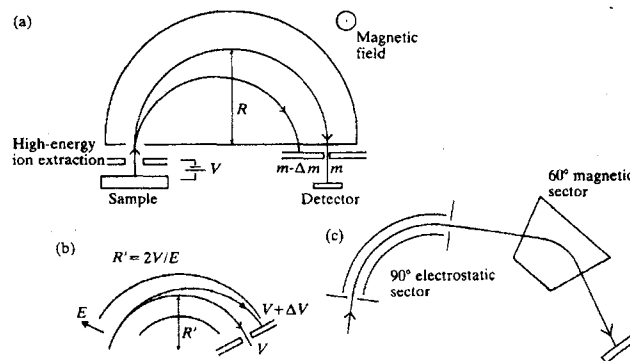
$$\frac{m}{e} = \frac{H^2 r^2}{2V}$$

Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Instrumentation

## Magnetic Sector Mass Analyser



- Single Focusing analysers : (a), (b)
- Double Focusing analysers : + electrostatic analyser : (c)
- separate particles with difference in K.E.

Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE



# Instrumentation

## Comparison of Mass Spectrometer

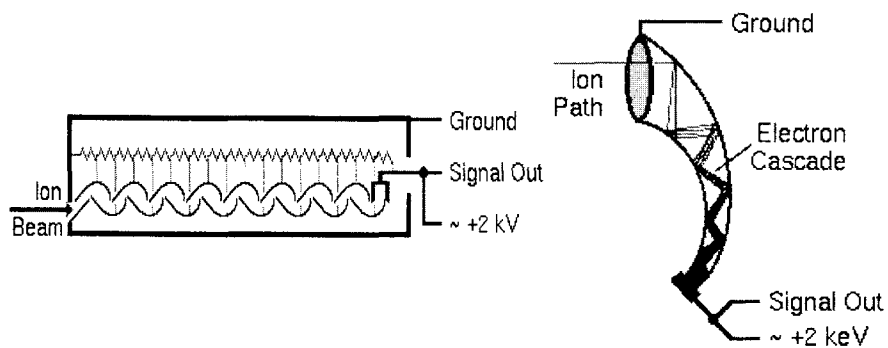
	Resolution	Mass Range	Transmission	Relative Sensitivity
Quadrupole	$10^2 - 10^3$	$< 10^3$	0.01 – 0.1	1
Magnetic Sector	$10^4$	$> 10^4$	0.1 – 0.5	10
Time-of-Flight	$> 10^3$	$10^3 - 10^4$	0.5 - 1.0	$10^4$

Nano Surface Group



# Instrumentation

## Electron Multipliers

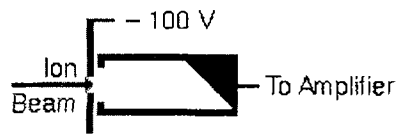


Nano Surface Group



# Instrumentation

## Faraday Cups

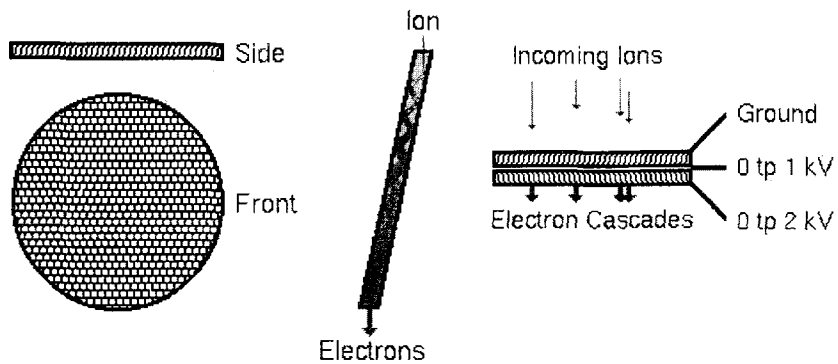


Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Instrumentation

## Ion Image Detectors



Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

## Instrumentation

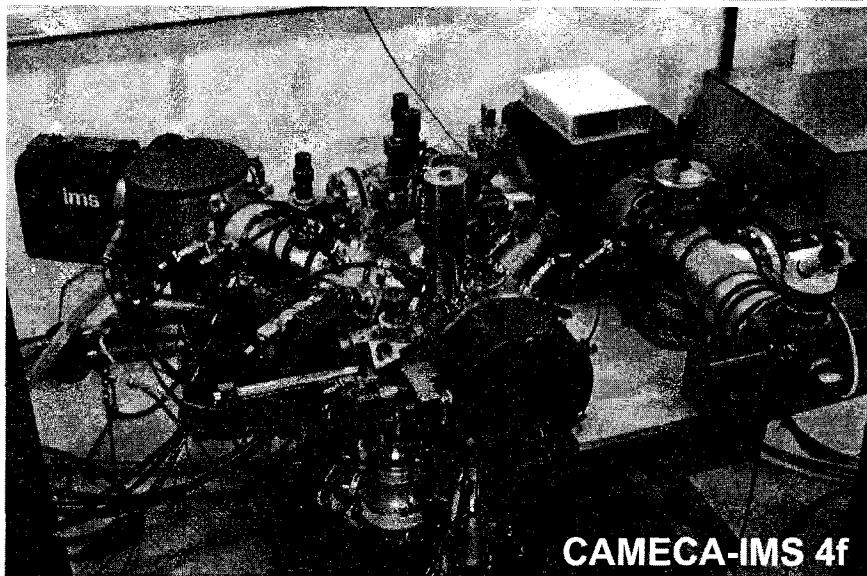
### 국내 SIMS 현황

Model	Analyser	보유기관
IMS-4f	Sector	K-mac, KRISS, 삼성전자, 하이닉스
IMS-6f	Sector	RIST, 삼성중기원, 동부전자
IMS-6f	Sector	삼성전자(2), 하이닉스(2), 동국대학교
VG	Quad	삼성중기원
VSW	Quad	KRISS
PHI	Quad	LG중기원, 하이닉스
Cameca	ION-TOF	LG중기원, 삼성전자
PHI	TOF	KIST, 삼성전자

Nano Surface Group


**한국표준과학연구원**  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

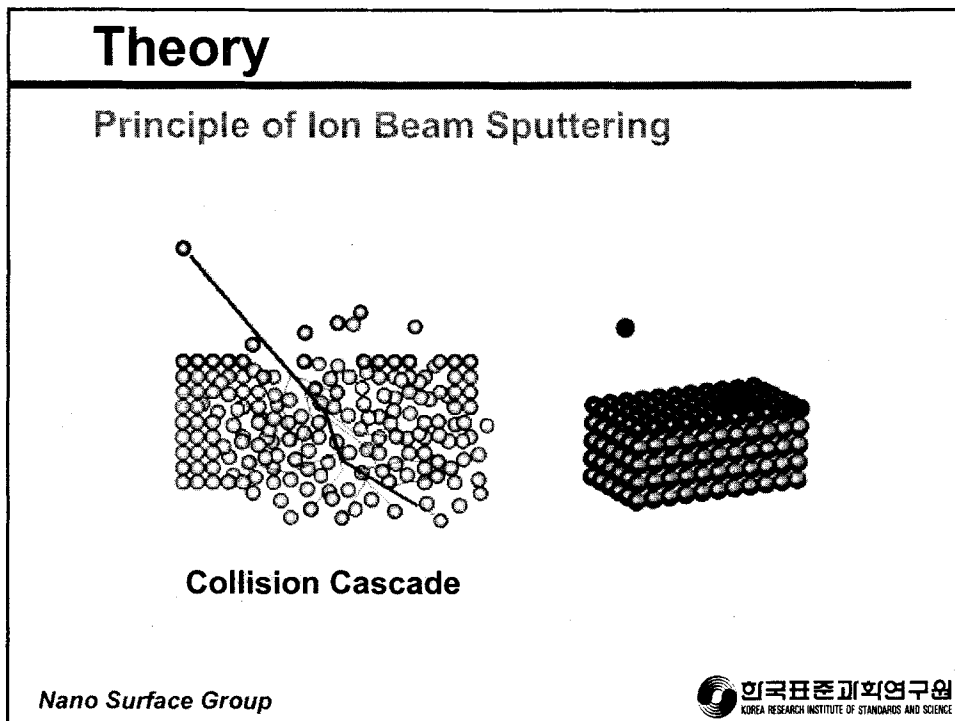
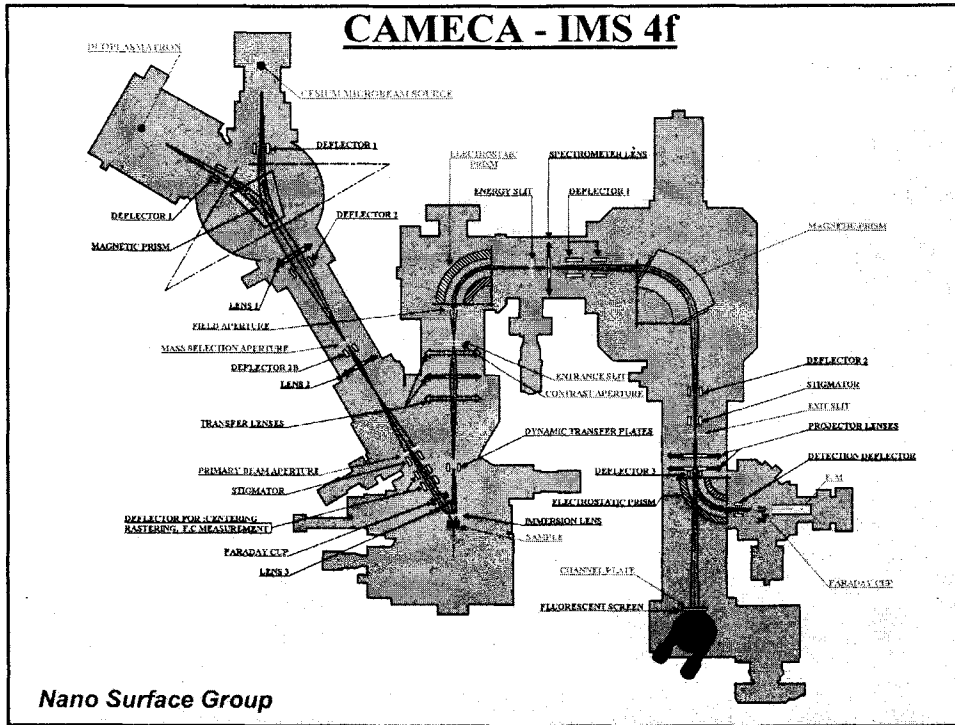
## Instrumentation



**CAMECA-IMS 4f**

Nano Surface Group


**한국표준과학연구원**  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE



# Theory

## Applications of Ion Beam Sputtering

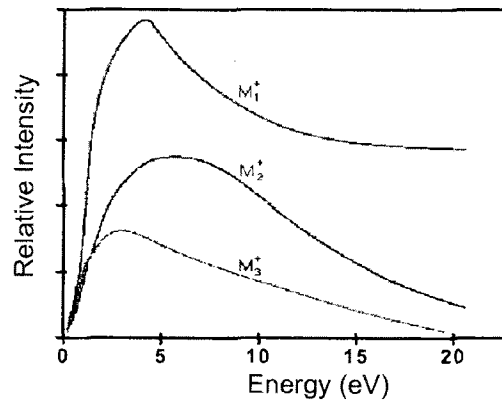
- 1. Microsectioning for Sputter Depth Profiling**
  - controlled removal of materials
- 2. Surface Cleaning Source.**
  - removal of surface contaminants
- 3. Sputter Source for Thin Film Deposition**
  - controlled deposition of sputtered materials
- 4. Micromachining**
  - desired surface topography
  - etching for desired surface patterns

Nano Surface Group



# Theory

## Secondary Ion Energy Distributions

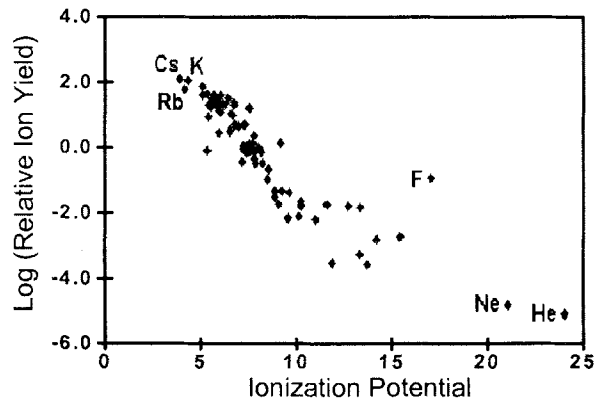


Nano Surface Group



# Theory

## Secondary Ion Yields – Positive Ions

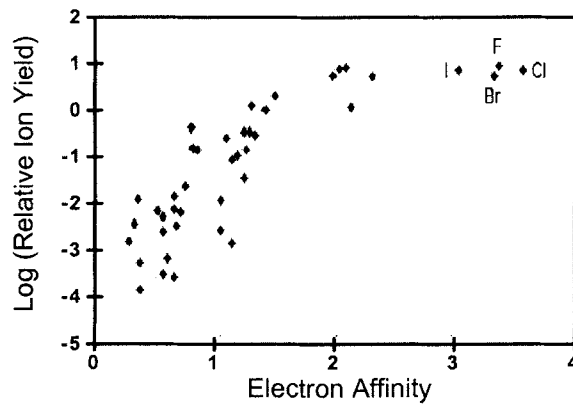


Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Theory

## Secondary Ion Yields – Negative Ions



Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE



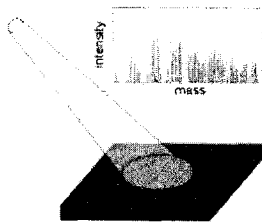




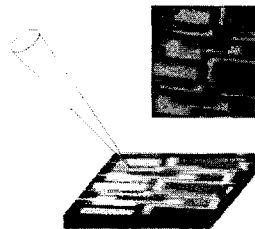
## Application

### SIMS Operation Modes

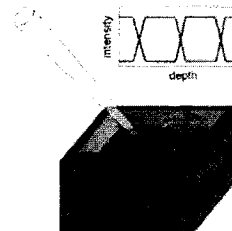
#### Surface Spectroscopy



#### Surface Imaging



#### Depth Profiling



Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

## Application

### Main Applications of SIMS

#### Mass Analysis

- Trace Analysis
- High Mass Resolution

#### Depth Profiling

- Depth Resolution

#### Quantitative Analysis

- Relative Sensitivity Factor

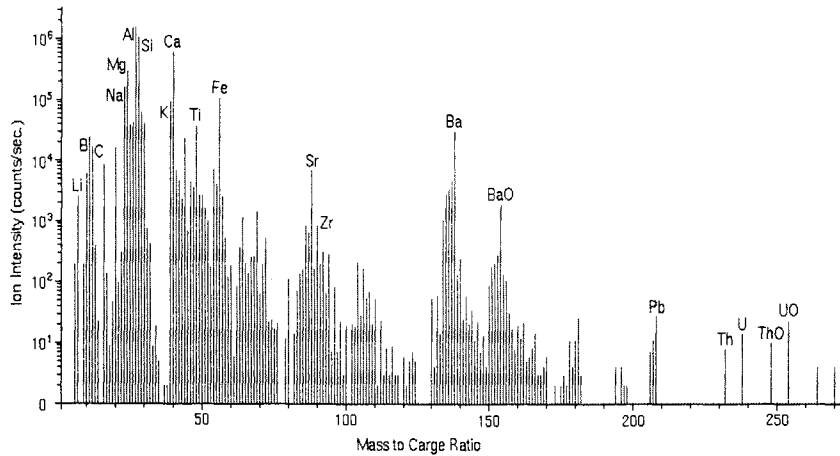
#### Ion Imaging

Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Application

## Survey Mass Spectrum



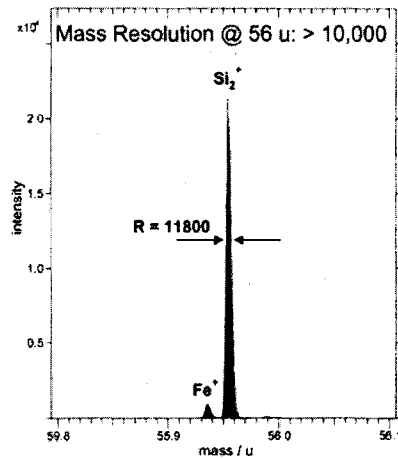
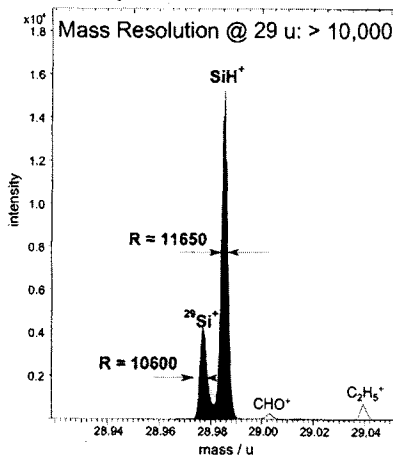
Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Application

## High Mass Resolution

$$R = m/\Delta m$$

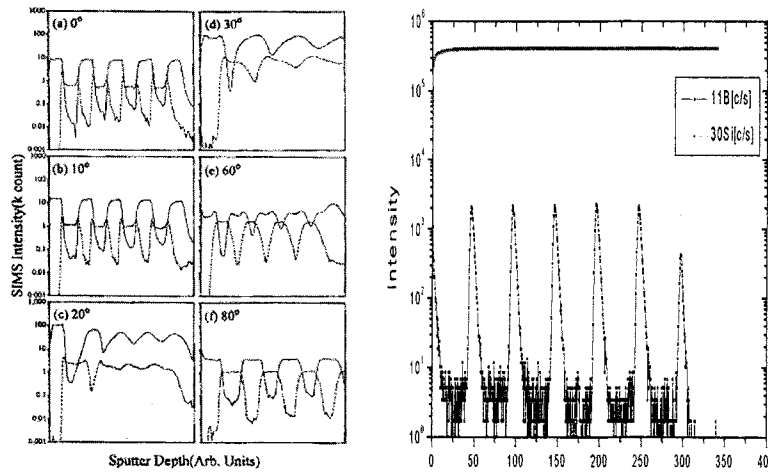


Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Application

## SIMS Depth Profiling

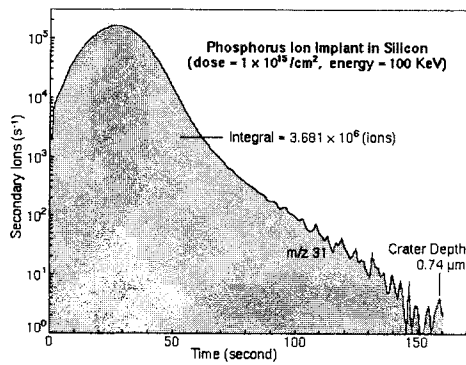


Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Application

## SIMS Quantification



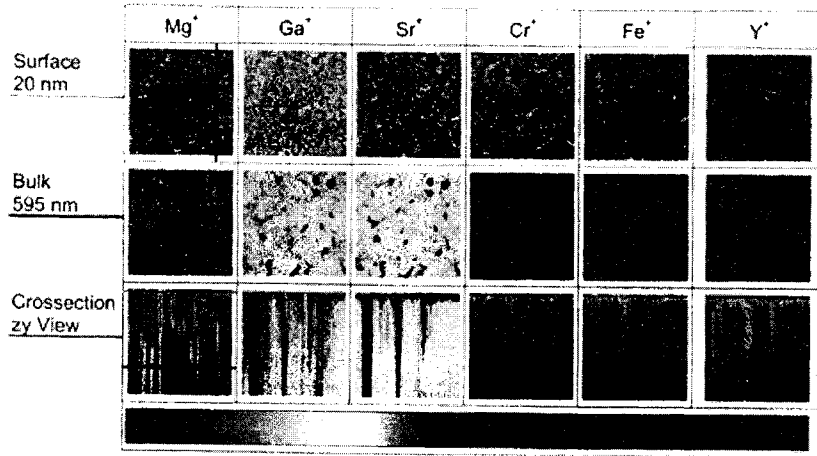
$$C_I = \frac{\text{Dose}}{\text{Crater Depth}} \quad \text{RSF} = C_I \cdot \frac{I_M}{I_I}$$

Nano Surface Group

한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

# Application

## Secondary Ion Imaging



Nano Surface Group

 한국표준과학연구원  
KOREA RESEARCH INSTITUTE OF STANDARDS AND SCIENCE

---

---

# **SIMS : Analysis and Applications**

- KMAC (주) 구 수 진 -

---

*K-MAC*

---

---

■ **CONTENTS**

**I. Surface Analysis**

**II. SIMS Analysis and Applications**

**III. Introduction to K-MAC**

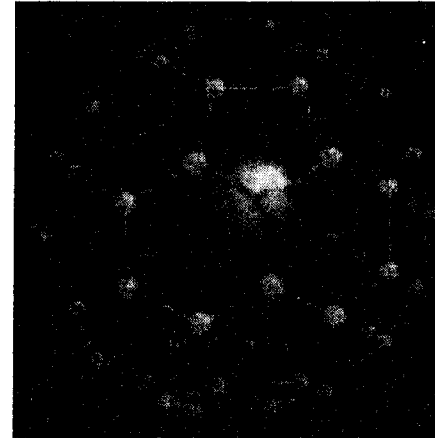
---

*K-MAC*

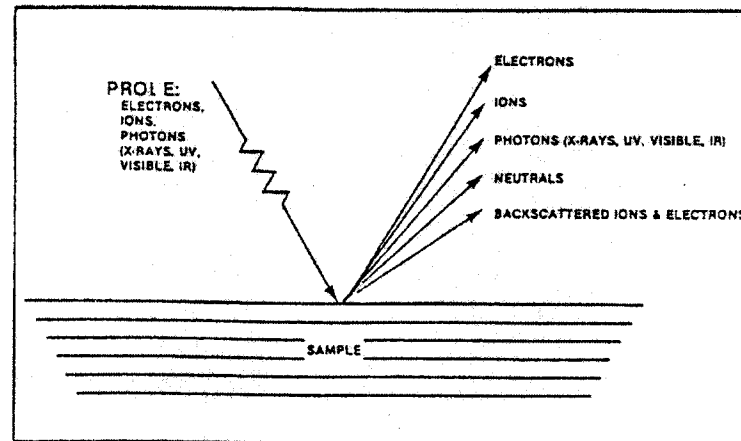
# Principle of Surface Analysis

## ■ Surface ?

- Physical and chemical interface
- Energetically unstable
- Chemical reaction begin
- Normally 2~5 nm from interface to bulk
- For X-ray, surface range extends to few  $\mu\text{m}$ s



## ■ Incident beam and Signal beam

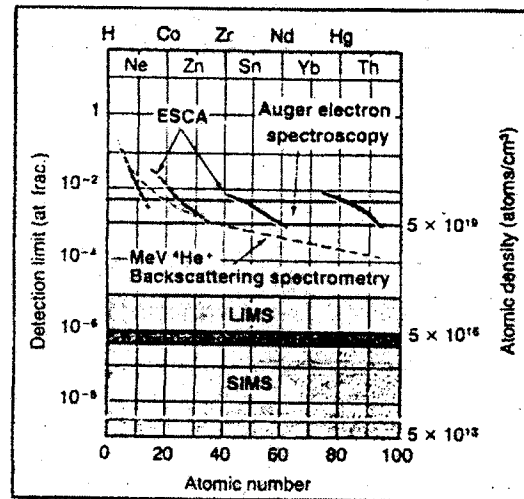


**K-MAC**

# Principle of Surface Analysis

## ■ Detection limit or Composition resolution

- Minimum amount of the elements required for identification
- Detection limit normally depends on emission yield
- Qualitative and Quantitative analysis
  - Quantitative : standard specimen and calibration





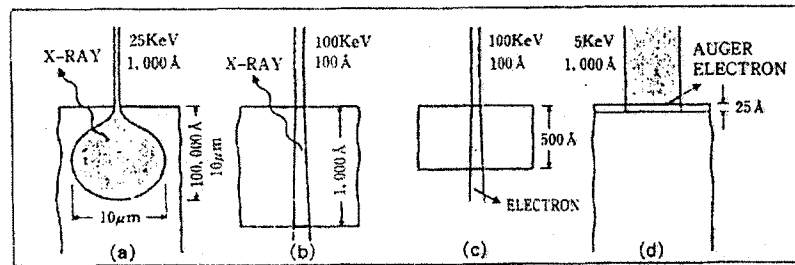
# Principle of Surface Analysis

## ■ Spatial resolution

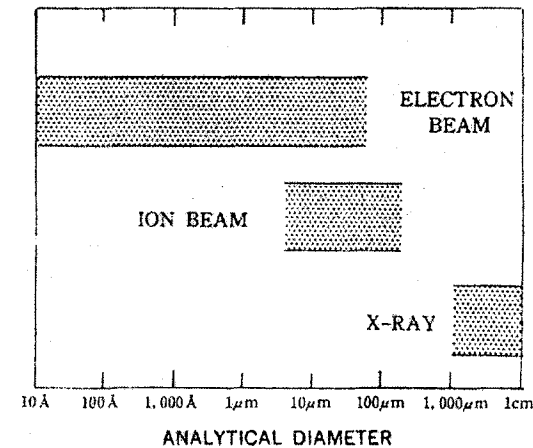
### ● Incident beam diameter

- E-beam : focusing by electrostatic or magnetic lens
- Ion beam : partly focusing
- X-ray : no focusing

### ● Interactive volume : depends on energy , mass, incident angle....



고체시편과 전자선의 상호작용에 의하여 결정되는 각 분석 기법들의 분석면적 : (a) 전자선 미세분석 (b) 주사형 투과전자현미경 (c) 전자에너지 손실분광 (d) Auger 분광



## Comparison Table of Surface Analysis

Analytical Parameter	Technique					
	AES	ESCA	SIMS	SEM/EDX/WDX	RBS	LIMS
Probe particle	Electrons	X-rays	Ions	Electrons	Ions	Photons (laser)
Detected entity	Electrons	Electrons	Ions	Electrons/X-rays	Ions	Ions
Detectable elements	All > helium	All but hydrogen	All	All < beryllium	All > helium	All
Diameter for routine small-area analysis ( $\mu\text{m}$ )	Sub $\mu\text{m}$	150-300*	Sub $\mu\text{m}$ to several $\mu\text{m}$	1-3 (EDX/WDX): 0.01 (SEM)	~1000	~1
Surface sensitivity (nm)	~1-4	~4	~0.3-1	>1000 (EDX/WDX)	Depth resolution is 2.5-20	LD-adsorbed material Li ~100
Routine detection limit (atom%)	0.3-1	0.1-1	$10^{-1}$ - $10^{-2}$	1 (EDX) $10^{-2}$ (WDX)	0.01-10	$10^{-4}$ - $10^{-5}$
Routine survey (data-acquisition) analysis time (min)	5	5	5	2 (EDX): 30 (WDX)	15	< seconds

# SIMS Analytical Outputs

---

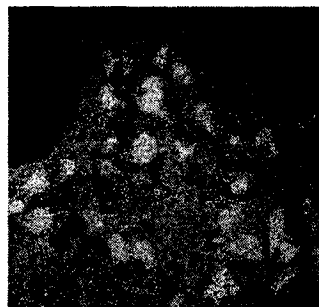
---

- Survey Mass Spectrum
- Depth Profiling
- Secondary Ion Imaging
- Line Scan

# A wide range of output

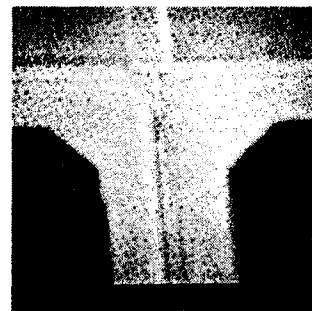
## ■ SCANNING ION IMAGE

Distribution of CN<sup>-</sup> in a biological specimen  
(60X60μm)



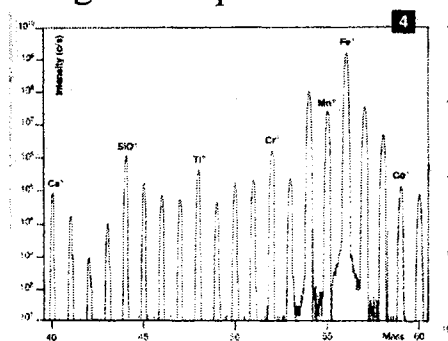
## ■ SCANNING ELECTRON IMAGE

Ion induced secondary electron image of an integrated circuit (40X40 μm)



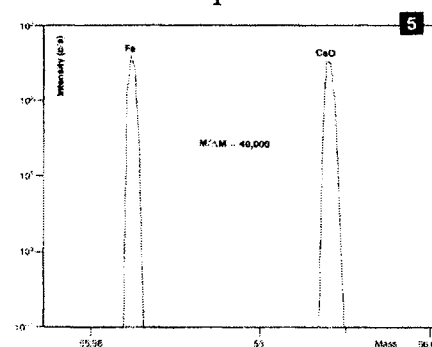
## ■ MASS SPECTRUM

Low mass resolution spectrum recorded in a metallurgical sample.



## ■ HIGH MASS RESOLUTION SPECTRUM

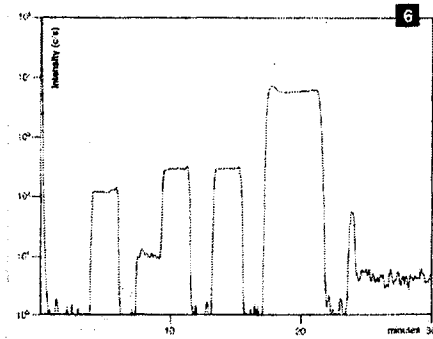
Spectrum recorded at a mass resolution of 40,000 showing the Fe and CaO peaks interfering on mass 56



# A wide range of output

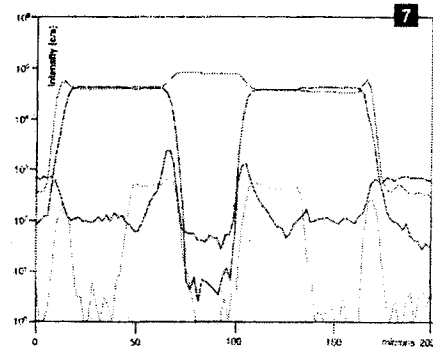
## ■ DEPTH PROFILE

Depth profile of silicon in a GaAs multilayer specimen



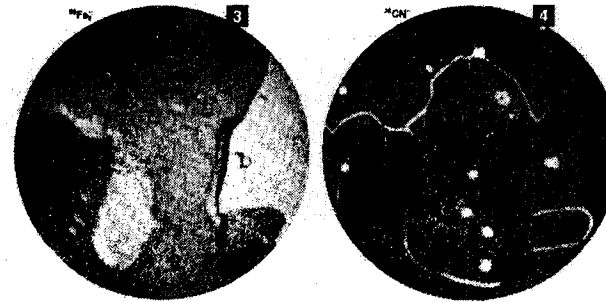
## ■ LINE SCAN

Line scan was recorded across a fiber of SiC



## ■ DIRECT ION IMAGE

Elemental distribution of K in Au/Cu sandwich.  
The thinnest bar is 0.11  $\mu\text{m}$  wide.



*K-MAC*

## Characteristics of CAMECA IMS 4F

---

---

<b>Primary Ions</b>	O <sub>2</sub> <sup>+</sup> , Ar <sup>+</sup> , O <sup>-</sup> , Cs <sup>+</sup>
<b>Acceleration Potential</b>	5kV to 17.5 kV
<b>Primary Ion Net Energy</b>	0.5 to 13 KeV
<b>Beam Diameter Cs source</b>	0.2 μm to 100 μm
<b>Beam Diameter Duoplasmatron</b>	0.3 μm to 200 μm
<b>X Y Rastering</b>	From 0 to 500 μm
<b>Mass Range</b>	1-280 AMU
<b>Mass Resolution</b>	200-25000
<b>Lateral Resolution</b>	
<b>Ion Microscope</b>	0.5 μm - 1 μm
<b>Ion Microprobe</b>	Up to 1000 Å
<b>Depth Resolution</b>	Up to 25 Å

# Main Fields of Applications

---

---

## ■ Characterisation of semiconductor materials

- Dopant depth profiles
- Measurement of Junction depths
- Identification of contaminants
- Base impurity levels in bulk materials

## ■ Metallurgy

- Identification of grain boundary segregants in metals
- Oxidation and corrosion studies
- Trace impurity Analysis

## ■ Glasses

- Alkali Metal Distributions

## ■ Geology

- Isotopic Ratio Measurements
- Trace element analysis

## ■ Biology

- Images of elements within cells and tissues

**서 지 정 보 양 식**

수행기관 보고서 번호	위탁기관 보고서 번호	준 보고서 번호	INIS 주제코드		
KAERI/RR-2279/2002					
제 목 / 부 제	한·독 Swipe 시료 내 입자분석결과 평가를 위한 기술네트워크 구축				
연구책임자 및 부서명	신 장 수 (원자력통제기술센터 통제기술개발실)				
연구자 및 부서명	안진수(통제기술센터), 박일진("), 소동섭(핵물질보장조치실)				
발 행 지	대 전	발행기관	한국원자력연구소	발행일	2002. 12.
페 이 지		도 표	유(√) 무( )	크 기	26 cm
참고사항	'02년도 원자력국제협력기반조성과제 최종연구보고서				
비밀여부	공개(√), 대외비( ), 비밀급( )		보고서 종류	연구보고서	
연구위탁기관	과학기술부		계약 번호		
<b>초록(300 단어 내외)</b>					
<p>원자력 시설에서의 과거 원자력 활동을 추적해 내는 데 결정적인 단서를 제공하는 핵물질의 입자 분석 기술은 청정실험실 및 고감도질량분석기를 운용하여야 하는 등 많은 투자와 고도의 기술 수준을 요하는 첨단 기술로서, 세계적으로도 미국, 영국, 러시아, 독일 등 극히 제한된 국가 연구기관에서만 보유하고 있는 핵심기술이다. 우리 입장에서는 국제원자력기구의 사찰 강화에 대한 효율적 대응 및 향후 있을 수 있는 남북 상호사찰에 대비하여 필수적으로 갖추어야 할 기술이나 지속적인 분석 수요를 창출하기 어렵기 때문에 해외 관련 기관과의 국제협력이 필요하다. 따라서 본 과제를 통하여 Swipe 시료 내 핵물질 입자 분석기술을 보유하고 있는 기관 중의 하나인 독일의 ITU 연구소로부터 전문가를 초청하여 관련 기술내용에 대한 기술 세미나를 개최하였고, 또한 우리 측 시료를 ITU에서 분석하고 분석과정에도 직접 참여하였으며, 아울러 분석 결과에 대한 자료해석 기술을 상호 공유함으로써 시료분석 및 결과 평가를 위한 채널을 구축하였다.</p>					
<b>주제명 키워드(10단어 내외)</b>					
Swipe 시료, 핵물질 입자분석, ITU					



BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET					
Performing Org. Report No.		Sponsoring Org. Report No.		Standard Report No.	INIS Subject Code
KAERI/RR-2279/2002					
Title/Subtitle		Cooperation on the Network Establishment between Korea and Germany for the Particle Analysis Data Evaluation of the Swipe Samples			
Project Manager and Dept.		Jang Soo Shin (Safeguards Technology Department, TCNC)			
Researcher and Dept.		J.S. An, I.J. Park, D.S. So.			
Pub. Place	Deajeon	Pub. Org.	KAERI	Pub. Date	2002. 12.
Page	135	Fig. and Tab.	Yes(✓), No( )	Size	26 cm
Note					
Classified	Open(✓), Outside( ), Class( )		Report type	Research Report	
Sponsoring org.	Ministry of Science and Technology		Contact No.		
<b><u>Abstract(About 300 Words)</u></b>					
<p>On our review, the particle analysis technology needs very high initial investment to set up the clean lab. and high quality equipments such as high sensitivity mass spectrometers and scanning electron microscope, etc. Also it needs several hundreds of Korean Won as an operation fee every year. So we concluded that it is more economically efficient to make a channel abroad to cover our national needs than to build our own laboratory for the particle analysis. Among 5 institutions proved to have particle analysis capabilities, we tried to make a cooperation channel with the ITU, which is the only one available for private commercial use now. For the cooperation, we have two seminars and technical consultations with a specialist, Dr. Tamborini, invited from the ITU in August. One of TCNC staff visited the ITU in November to participate in the whole procedure of the particle analysis as an observer. We think that the participation in the analytical procedure improved our capability for much clearer evaluation of the particle analysis results. Both sides concluded to cooperate further step by step and case by case. For examples, the cooperation needed to technical development will be proceeded under the existing KAERI-ITU cooperation arrangement which was signed in 1998 and scheduled to be amended next year. And the ITU will give analytical services for KAERI swipe samples through analytical service contract each year and give chances to the TCNC staff to participate in the analytical procedure.</p>					
<b><u>Subject Keywords(About 10 Words)</u></b>					
Swipe Samples, Nuclear Particle Analysis, ITU					