JOURNAL OF RADIATION INDUSTRY

Original article

17(4) : 345-357 (2023)
https://doi.org/10.23042/radin.2023.17.4.345

# 핵물질 연대측정을 위한 불확도 추정 알고리즘 연구

박재찬[1,2], 전태훈[1], 송정호[1], 주민수[1], 정진영[1], 권기남[1], 최우철[1], 정재학[2]*

[1]주식회사 비알앤씨, [2]경희대학교 원자력공학과

# Uncertainty Calculation Algorithm for the Estimation of the Radiochronometry of Nuclear Material

JaeChan Park[1,2], TaeHoon Jeon[1], JungHo Song[1], MinSu Ju[1], JinYoung Chung[1], KiNam Kwon[1], WooChul Choi[1] and JaeHak Cheong[2,*]

[1]BRNC Inc.
[2]Department of Nuclear Engineering, Kyung Hee University, 1732 Deokyoungdae-ro, Giheoung-gu, Yongin-si, Gyeonggi-do 17104, Republic of Korea

**Abstract** Nuclear forensics has been understood as a mendatory component in the international society for nuclear material control and non-proliferation verification. Radiochronometry of nuclear activities for nuclear forensics are decay series characteristics of nuclear materials and the Bateman equation to estimate when nuclear materials were purified and produced. Radiochronometry values have uncertainty of measurement due to the uncertainty factors in the estimation process. These uncertainties should be calculated using appropriate evaluation methods that are representative of the accuracy and reliability. The IAEA, US, and EU have been researched on radiochronometry and uncertainty of measurement, although the uncertainty calculation method using the Bateman equation is limited by the underestimation of the decay constant and the impossibility of estimating the age of more than one generation, so it is necessary to conduct uncertainty calculation research using computer simulation such as Monte Carlo method. This highlights the need for research using computational simulations, such as the Monte Carlo method, to overcome these limitations. In this study, we have analyzed mathematical models and the LHS (Latin Hypercube Sampling) methods to enhance the reliability of radiochronometry which is to develop an uncertainty algorithm for nuclear material radiochronometry using Bateman Equation. We analyzed the LHS method, which can obtain effective statistical results with a small number of samples, and applied it to algorithms that are Monte Carlo methods for uncertainty calculation by computer simulation. This was implemented through the MATLAB computational software. The uncertainty calculation model using mathematical models demonstrated characteristics based on the relationship between sensitivity coefficients and radiative equilibrium. Computational simulation random sampling showed characteristics dependent on random sampling methods, sampling iteration counts, and the probability distribution of uncertainty factors. For validation, we compared models from various international organizations, mathematical models, and the Monte Carlo method. The developed algorithm was found to perform calculations at an equivalent level of accuracy compared to overseas institutions and mathematical model-based methods. To enhance usability, future research and comparisons · validations need to incorporate more complex decay chains and non-homogeneous

http://www.ksri.kr/

Copyright © 2023 by
Korean Society of Radiation Industry

***Corresponding author.** JaeHak Cheong
Tel. +82-31-201-3689 Fax. +82-31-204-8106 E-mail. jhcheong@khu.ac.kr

**Received** 6 October 2023 **Revised** 27 November 2023 **Accepted** 11 December 2023

conditions. The results of this study can serve as foundational technology in the nuclear forensics field, providing tools for the identification of signature nuclides and aiding in the research, development, comparison, and validation of related technologies.

**Key words:** Nuclear forensics, Nuclear material, Radiochronometry, Decay chain, Uncertainty

## 1. 서 론

Nuclear Forensics (이하, 핵감식)은 국제사회에서 핵비확산 검증 분야에 필수적인 부분으로 인식되고 있으며, IAEA를 중심으로 미국, EU의 주도로 개발되고 있다. 미국 LLNL (Lawrence Livermore National Laboratory)과 국제 협력기구인 ITWG (Nuclear Forensics International Technical Working Group)에서도 핵물질 또는 샘플의 생산시기와 연대측정 관계를 정립하여 핵감식 분야에 활용하도록 제안하고 있으나, 초기 핵물질은 자핵종이 존재하지 않는 등 특정 조건에서만 추정 가능한 한계가 있다.

핵활동 연대측정은 시험, 실험, 분석 등을 통해 도출된 불확도를 가지는 인자들을 사용하여 수행되며, 핵활동 연대측정을 통해 도출된 결과 또한 불확도를 포함하고 도출된 결과의 신뢰도에 영향을 미친다. 따라서, 핵활동 연대측정의 불확도는 연대측정 결과의 정확도와 신뢰성을 대표하는 값으로 과대, 과소평가되지 않은 적절한 계산이 요구되나, LLNL 등을 통해 제안된 불확도 추정을 위한 계산방법은 모핵종과 자핵종의 방사능비 불확도에 지배되어 붕괴상수 및 초기핵종 등의 불확도가 과소평가되며, 베이트만 방정식 (Bateman Equation)을 통한 핵활동 연대측정 불확도 추정을 위한 계산 방법은 복잡한 수식으로 인해 모핵종과 자핵종 관계인 1단계 관계에서만 불확도 추정이 가능하다. 때문에, 불확도와 관련하여 연대측정 결과의 신뢰성 및 다양한 표지핵종을 선택할 수 없는 문제가 있다. 베이트만 방정식 기반 불확도 추정을 위한 계산의 한계인 불확도 인자에 대한 과소평가 극복 및 모핵종과 자손핵종 같은 2단계 이상 붕괴계열 내 표지핵종 관계에서도 불확도 추정을 하기 위해서 LLNL은 Monte Carlo 방법을 활용한 불확도 추정 알고리즘 개발이 붕괴상수 및 기타 불확도 요소를 포함하는 불확실성 계산에 유일한 접근 방식임을 제안하였다[1,2].

본 연구는 전산모사 방법을 활용하여 연대측정 계산의 불확도 인자가 과소평가되지 않도록 하며, 표지핵종 선택 시 붕괴계열 내에서 2단계 이상의 관계를 선택할 경우에도 불확도 추정이 가능한 알고리즘 개발을 위하여 베이트만 방정식 기반 불확도 추정을 위한 계산 및 전산모사 방법을 연구하였으며, 검증을 위해 개발된 전산모사 방법과 기존의 베이트만 방정식을 통한 연대측정 계산 결과와 비교분석하였다. 개발된 연대측정 불확도 추정 알고리즘은 핵물질 통제역량 강화기술로써 전 세계적인 핵비확산 역량을 높이는 핵감식 기반 기술로 활용될 수 있다.

## 2. 재료 및 방법

불확도는 사용된 정보를 기초로 하여, 측정량에 대한 측정값의 분산 특성을 나타내는 음이 아닌 파라미터이다[3]. 불확도를 평가하는 방법에 따라 두 가지 종류로 분류되며, A형 불확도와 B형 불확도라고 한다. A형 불확도의 정의는 관측값을 통계적으로 분석하여 계산된 불확도, B형 불확도의 정의는 관측값의 통계적인 분석이 아닌 다른 방법으로 계산된 불확도를 뜻한다[3]. 종래의 베이트만 방정식에 기반한 연대측정 불확도 추정은 B형 불확도로 수학적 방법을 통한 산술적 표준합성불확도에 의해 계산된다. 하지만, 베이트만 방정식 기반의 방법은 1세대 관계까지만 불확도 도출이 가능하며 붕괴인자의 과소평가에 대한 한계가 있다. 따라서, 통계적 분석을 통해 도출되는 A형 불확도를 계산하는 방법의 연구성이 대두되었다. 본 연구에서는 B형 불확도인 베이트만 방정식 기반 수학적 방법을 분석하고, A형 불확도 추정을 위한 전산모사 방법에 대해 연구하였다.

### 2.1. 수학적 모델식에 의한 불확도 추정

본 연구에서는 베이트만 방정식에 기반한 수학적 모델식을 통한 불확도 추정 방법을 분석하기 위해 불확도 전파 모델 및 영향인자를 분석하고 수학적 모델식과 영향인자들을 활용한 불확도 추정 알고리즘을 도출하였다.

#### 2.1.1. 불확도 전파 모델 및 영향인자

핵활동 연대측정은 각 핵종의 초기 존재비율, 분기율, 붕

괴상수 등의 변수에 대한 연립 미분 방정식으로 여러 종류의 핵종이 동시에 붕괴할 때, 시간에 따른 핵종 존재비율을 나타내는 베이트만 방정식[4]을 활용하며, 식 (1)로 나타낸다.

$$N_n(t) = N_1(0) \times (\prod_{i=1}^{n-1} \lambda_i) \times \sum_{i=1}^{n} \frac{e^{-\lambda_i t}}{\prod_{j=1, j\neq i}^{n} (\lambda_j - \lambda_i)} \quad (1)$$

- $N_n = n$세대 핵종 수
- $\lambda_j$ = 모핵종 붕괴상수
- $\lambda_i$ = 자핵종 붕괴상수
- $t$ = 시간

핵활동 연대측정을 위해 초기 핵물질(모핵종)의 생산(또는 정제) 시점에서 자핵종이 섞여 있지 않은 순수한 상태라고 가정하면 모핵종과 자핵종 사이에 다음 수식이 성립한다[5].

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{(\lambda_2 - \lambda_1)} N_1(t)(1 - e^{(\lambda_1 - \lambda_2)t}) \quad (2)$$

식 (2)를 시간 t에 대해서 정리하면 조사대상 핵물질의 생산(또는 정제) 시기 등을 추정할 수 있는 아래의 식 (3)이 유도된다[6].

$$t = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} \ln \left[ \frac{N_2(t)}{N_1(t)} \frac{(\lambda_1 - \lambda_2)}{\lambda_1} \right] \quad (3)$$

식 (3)은 특정 가정하에서 핵물질의 생산(또는 정제) 시기를 추정할 수 있는 식으로 베이트만 방정식의 주요 인자(t, N 그리고 λ) 중 경과시간 t를 계산하도록 유도한 것이며, 식 (3)에서 t를 계산하기 위한 주요 영향인자는 N과 λ로 N은 핵물질 분석에 의한 불확도, λ는 붕괴상수로 반복 실험에 의해 도출된 통계의 불확도를 가진다. N의 불확도는 분석 물질 및 방법에 따라 차이가 있지만 본 연구에서 활용된 각 연구기관의 $^{234}$U, $^{230}$Th의 분석 불확도는 1% 이내의 값으로 나타났다[7]. λ의 불확도는 대부분 핵종의 경우 약 0.1%의 불확도로 N의 불확도보다 작으나, 국립핵데이터센터(National Nuclear Data Center)에서 제공하는 반감기 정보에 따르면 반감기가 짧은 $^{218}$At와 같은 핵종의 경우 약 15% 정도의 높은 불확도를 가지기 때문에 붕괴계열 특성을 활용한 연대추정에서 중요한 불확도 요소로 작용할 수 있다. 따라서, N와 λ이 불확도를 가지는 값이므로 해당 인자를 통해 도출된 연대측정 값 t는 불확도를 가진다[8].

감마분광, 알파분광, 질량분석 등을 통해 도출된 N은 모핵종과 자핵종의 핵종비인 R로 나타낼 수 있다. 감마핵종, 알파핵종, ICP-MS 분석에서 나타나는 불확도($u_{c,\gamma}$, $u_{c,\alpha}$, $u_{c,ICP-MS}$)는 R의 불확도($u_R$)로 전파되며, 붕괴상수에 의한 불확도($u_{\lambda_1}$, $u_{\lambda_2}$)와 같이 연대측정 불확도($u_t$)로 전파된다. 전파모델의 모식도를 Fig. 1과 같이 나타내었다.

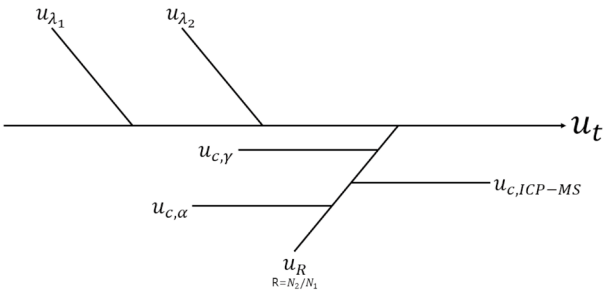


**Fig. 1.** Radiochronometry uncertainty propagation model.

### 2.1.2. 수학적 모델식에 의한 불확도 추정 방법

베이트만 방정식을 활용한 연대측정 불확도 추정을 위한 계산 방법은 2.1.1절의 식 (1)과 (2)를 통해 유도된 식 (3)을 활용해 계산되며, 불확도 추정 계산을 위한 영향인자인 λ와 R을 통해 식 (4)와 같이 나타낸다.

$$t = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} \ln \left[ R \frac{(\lambda_1 - \lambda_2)}{\lambda_1} \right] \quad (4)$$

- $R$ = 방사능비

식 (4)를 각 인자별로 편미분하여 도출된 민감도 계수와 인자별 불확도를 활용한 연대측정 불확도는 식 (5)로 계산된다.

$$u(t) = \sqrt{\left(u(\lambda_1)\frac{\partial t}{\partial \lambda_1}\right)^2 + \left(u(\lambda_2)\frac{\partial t}{\partial \lambda_2}\right)^2 + \left(u(R)\frac{\partial t}{\partial R}\right)^2} \quad (5)$$

연대측정 불확도를 계산하는 식 (5)를 도출하기 위해 식 (4)를 각 인자별로 편미분한 각 인자별 민감도 계수 산출식은 식 (6, 7, 8)로 나타나며, 식 (5)의 인자별 기여율식은 식 (9, 10, 11)로 계산한다[9].

$$\frac{\partial t}{\partial \lambda_1} = \left(\frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2}\right)\left(\frac{1}{1+\frac{R(\lambda_1-\lambda_2)}{\lambda_1}}\right)\left(\frac{\lambda_2 R}{{\lambda_1}^2}\right) - \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2}\ln\left(1 + \frac{R(\lambda_1-\lambda_2)}{\lambda_1}\right) \quad (6)$$

$$\frac{\partial t}{\partial \lambda_2} = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2}\ln\left(1 + \frac{R(\lambda_1-\lambda_2)}{\lambda_1}\right) - \frac{R}{\lambda_1(\lambda_1-\lambda_2)\left(1+\frac{R(\lambda_1-\lambda_2)}{\lambda_1}\right)} \quad (7)$$

$$\frac{\partial t}{\partial R} = \frac{1}{\lambda_1 + R(\lambda_1 - \lambda_2)} \quad (8)$$

식(6,7,8)은 연대측정 불확도에 대한 각 인자($\lambda_1$, $\lambda_2$, $R$) 별 민감도 계수이며, 각 인자의 불확도와 같이 활용하여 수학적 모델식의 연대측정 불확도 식 (5)를 도출한다.

이때, 연대측정 불확도에 대한 각 인자($\lambda_1$, $\lambda_2$, $R$)의 기여율은 식 (9, 10, 11)과 같다.

$$\text{기여율}(\lambda_1) = \frac{\left(u(\lambda_1)\frac{\partial t}{\partial \lambda_1}\right)^2}{\left(u(\lambda_1)\frac{\partial t}{\partial \lambda_1}\right)^2 + \left(u(\lambda_2)\frac{\partial t}{\partial \lambda_2}\right)^2 + \left(u(R)\frac{\partial t}{\partial R}\right)^2} \quad (9)$$

$$\text{기여율}(\lambda_2) = \frac{\left(u(\lambda_2)\frac{\partial t}{\partial \lambda_2}\right)^2}{\left(u(\lambda_1)\frac{\partial t}{\partial \lambda_1}\right)^2 + \left(u(\lambda_2)\frac{\partial t}{\partial \lambda_2}\right)^2 + \left(u(R)\frac{\partial t}{\partial R}\right)^2} \quad (10)$$

$$\text{기여율}(R) = \frac{\left(u(R)\frac{\partial t}{\partial R}\right)^2}{\left(u(\lambda_1)\frac{\partial t}{\partial \lambda_1}\right)^2 + \left(u(\lambda_2)\frac{\partial t}{\partial \lambda_2}\right)^2 + \left(u(R)\frac{\partial t}{\partial R}\right)^2} \quad (11)$$

## 2.2. 몬테카를로 방법에 의한 불확도 추정

2.1.1~2절까지 연구된 베이트만 방정식을 통한 핵활동 연대측정 불확도 추정을 위한 계산은 특정한 조건인 모핵종과 자핵종 관계에서만 유효한 방법으로 미분에 의한 복잡한 계산 때문에 자손핵종 및 그 이상의 관계의 표지핵종을 선택할 경우 적용할 수 없는 단점을 가지고 있다.

본 연구에서는 베이트만 방정식의 수학적 모델식 방법의 불확도 추정 한계를 극복하기 위해 전산모사에 기반한 불확도 추정 방법을 연구하였다. 불확도 추정 방법 및 영향인자를 분석하고 신뢰성 높고 효율적인 전산모사를 위해 LHS 방법을 활용한 불확도 추정 알고리즘을 도출하였다.

### 2.2.1. 몬테카를로 불확도 추정 방법 및 영향인자

몬테카를로 방법은 앞서 베이트만 방정식에서 도출된 불확도 인자 λ와 R이 불확도 분포에 따른 불확도를 가지는 값이라는 특성을 활용한다. 표지핵종의 방사능비를 계산하고 분석된 R의 값에 적합한 방사능비를 추정하여 결과를 도출하기 때문에 몬테카를로 방법에서는 방사능비를 계산하기 위해 사용되는 불확도 인자 λ, 연대측정을 하기 위한 불확도 인자 R이 불확도 분포에 따라 랜덤하게 변화하도록 계산하고 반복 과정을 통해 값을 도출하여 계산된 결과에 대한 분포를 분석하면 불확도 추정이 가능하다. 하지만, 몬테카를로 방법은 적은 샘플수에서는 기존 확률분포와 다른 통계적 오류가 발생되기 때문에 높은 신뢰성을 가지기 위해서는 많은 샘플을 추출해야 하며, 샘플마다 계산을 해야 하는 반복연산에서 연대측정의 복잡한 계산과정을 무수히 진행해야 하기 때문에 연산시간 및 샘플 채취 및 분석과 관련된 효율성의 문제를 가지고 있다.

### 2.2.2. LHS (Latin Hypercube Sampling) 불확도 추정 알고리즘

평균이 $\bar{x}$인 미지의 변수에 대해 분석된 통계학적 확률분포를 알고 있을 때, 이 확률분포에서 추출한 샘플 개수 n이 작을 경우 통계적 오류를 방지하려면 변수를 추출하기 위한 효율적인 방법을 필요로 한다. Mckay, Beckman 및 Conover (1979)에 의해 고안된 LHS (Latin Hypercube Sampling) 방법은 몬테카를로 방법을 통한 전산모사를 진행할 무작위 샘플링을 통한 방법보다 적은 수의 샘플로 효과적인 통계적 결과를 얻을 수 있는 방법이다[10]. LHS는 확률분포 전체에서 샘플이 편향되어 추출되지 않도록 확률분포의 범위를 n개로 나눈 후 추출이 중복되지 않도록 다음 각 구간에서 하나씩 n개를 추출하는 방법으로 Fig. 2와 같이 균등분포일 경우, 확률밀도함수 (Probability Density Function, PDF)에서 각 구간이 균등하게 분할되고 누적분포함수 (Cumulative Distribution Function, CDF)와 같이 균등하게 분할된 구간에서 샘플이 추출된다[11].

변수가 2개인 2차원(k=2)으로 확장하면 $n^k$의 개수만큼 등확률구간으로 그리드를 나누어 각 행과 열에 한 번씩만

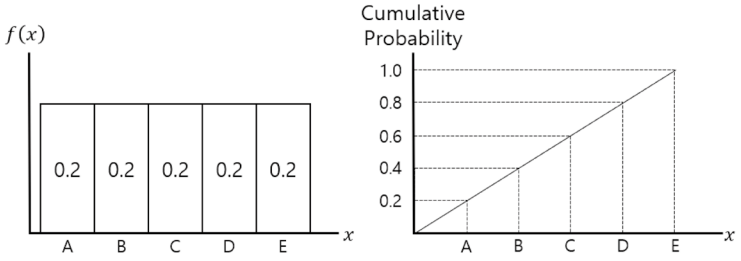


**Fig. 2.** Probability density function (left) and cumulative distribution function (right) in uniform distribution.

선택되도록 무작위 샘플링을 진행하며, 이렇게 하면 각 변수의 전체 범위를 고르게 샘플링할 수 있다. Fig. 3은 두 개의 변수가 0과 1 사이의 균일분포를 따를 때 크기가 5인 표본을 LHS로 추출할 경우, 각 변수가 1~5 사이에서 추출되어 [5, 3, 2, 1, 4]와 [1, 3, 2, 5, 4]를 얻고, 두 변수가 짝을 지을 때 각 그리드의 위치가 결정됨을 보여준다. 각 행과 열에 해당하는 구간에서 하나의 점만이 뽑혔으며, 이는 변수들의 값이 확률분포 내의 전 범위에서 같은 비율로 샘플링되었음을 의미한다.

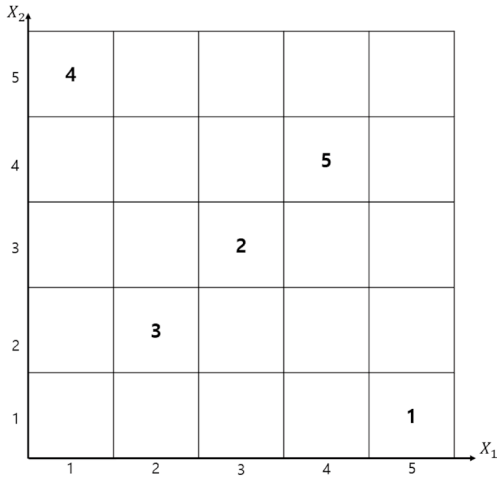


**Fig. 3.** Sampling example from LHS method.

정규분포일 때 LHS를 활용하는 방법은 정규분포의 범위를 [F, G]로 정의한 후 F와 G 사이를 n개로 나눈 후 추출이 중복되지 않도록 각 구간에서 하나씩 n개를 추출한다. Fig. 4와 같이 정규분포일 경우, 확률밀도함수에서 추출될 가능성의 총합(추출 확률)을 뜻하는 각 구간의 면적을 균등하게 분할하면 확률밀도함수의 균등한 면적은 같은 추출 확률로 확률분포범위를 나눈 것을 의미한다. 이는 누적분포함수의 y축이 확률의 누적합을 의미하기 때문에 y축을 균등하게 분할한 것과 같다. 이렇게 균등하게 분할된 확

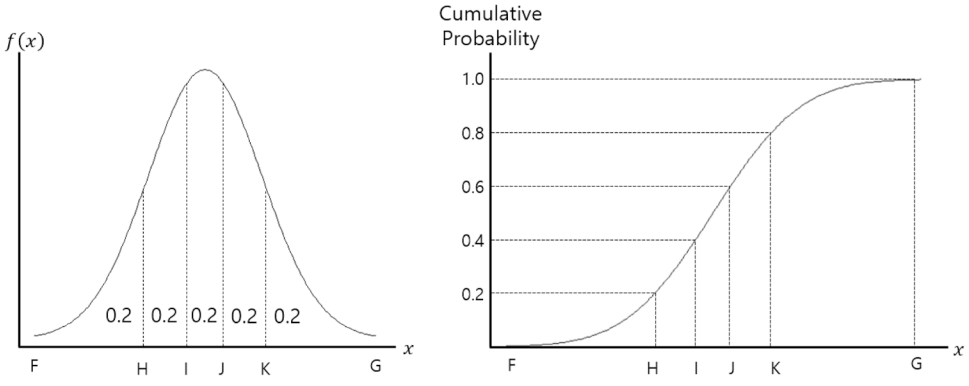


**Fig. 4.** Probability density function (left) and cumulative distribution function (right) in normal distribution.

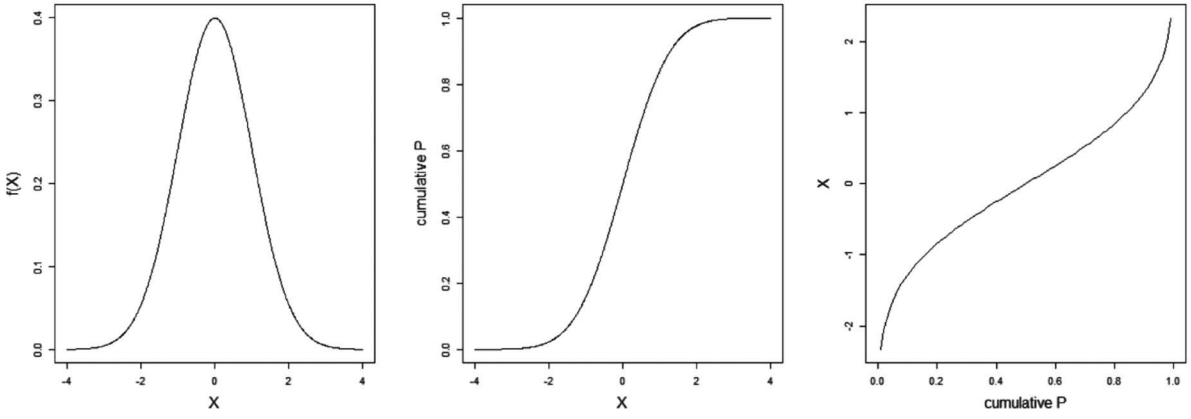


**Fig. 5.** Form of probability density function (left), cumulative distribution function (middle), and inverse cumulative distribution function (right) in normal distribution.

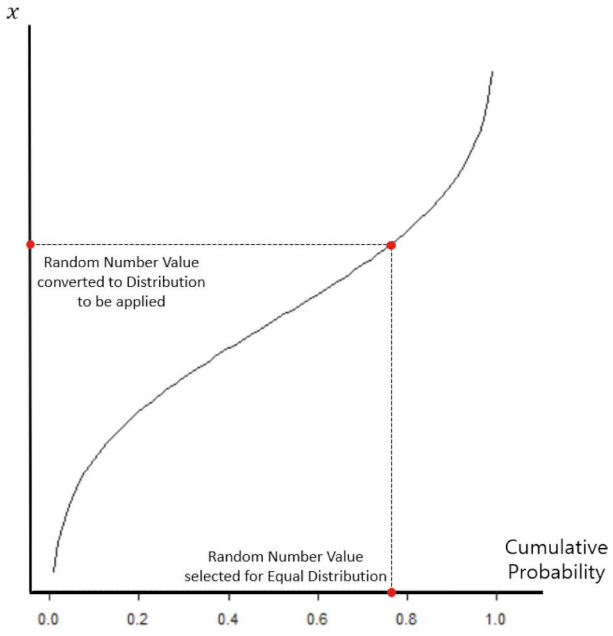


**Fig. 6.** Transform using inverse cumulative distribution function.

률구간에서 y축을 추출하고 누적분포함수에서 추출된 y축에 대응하는 x축을 찾으면 정규분포를 가지는 LHS 샘플추출이 가능하다.

대부분의 컴퓨터 프로그램에서 사용하는 난수 생성기는 균등분포의 난수를 생성하는 것이 상대적으로 간단하고 효율적이기 때문에 우선 균등분포를 따르는 난수를 생성하며, 상기의 역변환 과정을 통한 확률 분포 변환을 수행하여 균등분포 외의 확률분포에서 난수를 추출하게 된다. 이 변환과정이 Inverse Transformation Method로 균일분포에서 생성된 난수를 다른 확률분포로 변환하기 위해 누적분포함수를 역변환한 역누적분포함수를 사용하여 원하는 확률분포의 난수를 생성한다. 따라서, 프로그램에서 LHS을 활용해 확률분포를 변화시키기 위해서는 Fig. 6에서 같이 역누적분포함수의 가로축에 0과 1 사이를 동일한 폭 n개로 구분하여 각 간격마다 난수를 추출한 다음 역누적분포 함수를 통해 각각을 y축과 페어링하여 적용하고자 하는 확률분포로 변환된 추출 샘플값을 획득할 수 있다[12].

본 연구에서는 몬테카를로 방법의 특성상 랜덤한 샘플링을 위한 전산모사를 위해 LHS (Latin Hypercube Sampling) 방법을 이용한 알고리즘을 Matlab 전산 소프트웨어(미국, MathWorks社, R2023a Update2) [13]로 구현하였다. 프로그램에서의 연대측정 알고리즘은 Fig. 7과 같은 순서로 진행되며, 크게 방사능 계산과 연대측정 계산과 같이

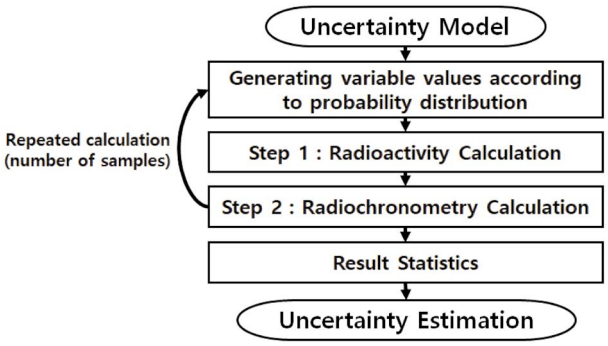


**Fig. 7.** Computer simulation uncertainty estimation process.

크게 2가지 단계로 구분된다. 우선, 베이트만 방정식을 기반으로 도출된 식 (1)에서 불확도를 가지는 값은 상수 λ로 샘플 1세트를 계산할 때마다 불확도 범위 내의 λ값을 LHS 방법을 통해 랜덤 샘플링하여 기존 상수였던 λ값을 대체하여 표지핵종으로 선택된 2가지 핵종의 시간에 따른 방사능비를 계산한다. 다음, 연대측정은 선택된 표지핵종을 분석한 방사능비 R을 가지고 Matlab 내에서 입력된 값을 이용해 주어진 계산식에서 근사해를 찾는 'vpasolve ()' 함수[14]를 활용하여 입력받은 방사능비 R과 맞는 시간 t를 추정하였다. 이때, 방사능비 R 또한 불확도를 가지는 값으로 샘플 1세트를 계산할 때마다 불확도 범위 내의 R값을 LHS 방법을 통해 랜덤 샘플링하여 연대측정한 후 설정된 샘플세트 수에 맞는 연대측정 결과값을 수집해 통계 분석하여 새로운 표준편차와 분산을 계산해 불확도를 도출하였다.

## 3. 핵물질 연대측정 불확도 분석 결과 및 고찰

### 3.1. 불확도 모델 분석

본 연구에서는 2절에서 연구된 수학적 모델, 몬테카를로 및 LHS 방법을 활용한 불확도 추정 모델 및 알고리즘을 통한 불확도 추정 결과에 대해 분석하였다.

#### 3.1.1. 수학적 모델식 불확도 모델 분석

베이트만 방정식에 기반한 불확도 추정을 위한 계산의 민감도를 분석하였다. 민감도 계산식 (6, 7, 8)을 분석한 결과 Fig. 8과 같이 각 민감도 계수는 민감도 인자에 따라 고유의 변화가 나타나며, 공통적인 요소로는 방사평형을 이루는 구간에서 민감도 계수가 무한하게 증가하였다. 각 인

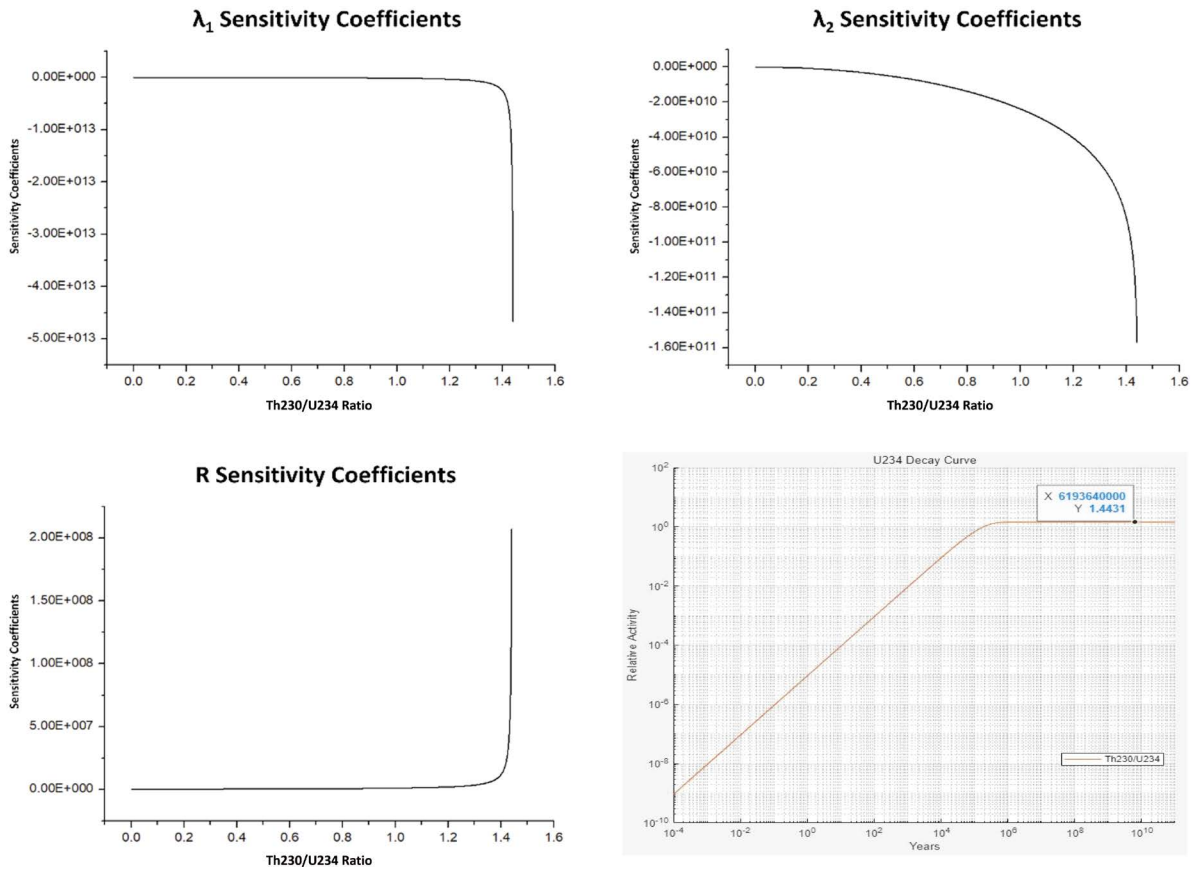


**Fig. 8.** Sensitivity coefficient and radial equilibrium graph.

**Table 1.** Contribution rate by radiochronometry uncertainty factor ($^{230}$Th/$^{234}$U)

| Time (year) | $\lambda_1$ Contribution rate | $\lambda_2$ Contribution rate | $R$ Contribution rate |
|---|---|---|---|
| 1 | 52.8660% | 0.0000% | 47.1339% |
| 10 | 52.8653% | 0.0000% | 47.1346% |
| 100 | 52.8590% | 0.0000% | 47.1409% |
| 1,000 | 52.7956% | 0.0000% | 47.2043% |
| 10,000 | 52.1491% | 0.0011% | 47.8497% |
| 100,000 | 44.2086% | 1.1389% | 54.6524% |
| 1,000,000 | 0.8120% | 0.0000% | 99.1878% |

자($\lambda_1$, $\lambda_2$, $R$)별 불확도가 1%라고 가정하였을 때, 식 (9, 10, 11)을 활용해 기여율 변화를 분석한 결과, Table 1과 같이 인자별 기여율은 초기에는 $\lambda_1$의 불확도 기여도가 50% 정도로 높게 나타났으나, 이후 시간이 경과함에 따라 핵종비인 $R$의 불확도 기여율이 지배적인 것을 확인하였다. 모핵종의 붕괴상수가 자핵종보다 영향이 크며, 시간에 따라 $R$의 기여율이 증가하였다. Table 1의 100,000년에서 $\lambda_2$의 일시적인 상승이 나타나는 이유는 Fig. 8에서와 같이 방사평형 구간으로 갈 때 각 인자의 민감도 계수가 증가하게 되는데 $\lambda_1$, $R$의 경우 평형구간 방사능비에 근접한 후 급격한 변화를 나타내는 양상을 보이는 반면, $\lambda_2$의 경우 상대적으로 완만하게 증가하기 때문에 민감도 증가 선행효과에 의해 일시적인 상승이 나타나는 것으로 판단된다. Table 1의 100,000년에서 1,000,000년으로 바꿀 때 $\lambda_1$, $R$에 급격한 변

화가 나타나는 이유는 Fig. 8에서와 같이 방사평형 구간으로 갈수록 민감도 계수가 무한하게 증가하는데 $R$의 증가율이 상대적으로 더 높아지기 때문에, 베이트만 방정식 기반의 불확도 추정 계산에서 오차 합성 시 오차가 큰 인자에 수렴하는 합성불확도 특성에 의해 붕괴상수가 과소평가되기 때문으로 판단된다. 일반적으로 붕괴상수의 불확도가 1% 이하이며, 고정된 분석값임을 고려할 때, 실제 분석을 통한 표지핵종의 핵종비 $R$의 불확도가 연대측정 불확도 결정에 중요한 요소로 판단된다.

식 (5)에 따른 연대측정 불확도는 표지핵종 선택과 관련하여 선택된 두 핵종의 방사평형 특성에 따라 방사평형에 오랜 시간이 걸리는 핵종은 장기간 낮은 불확도를 유지하는 데 반해 방사평형이 빨리 나타나는 핵종은 단기간에 불확도가 급증하는 특징을 나타낸다. Fig. 9의 왼쪽 그래프는 $^{228}$Th/$^{232}$U를 표지핵종으로 선택한 불확도 변화로 방사평형이 빨리 나타나기 때문에 20년 이하의 시점에서 불확도가 50% 초과하는 데 반해, $^{230}$Th/$^{234}$U를 표지핵종으로 선택한 경우 약 10만 년 이상 불확도가 10% 이하로 나타난다.

표지핵종에 따라 핵종의 반감기 불확도 인자 특성 및 방사평형 특성에 차이가 나기 때문에 연대측정 불확도 추정에 있어 불확도 추정 기여 인자별 민감도, 기여율 및 연대측정 범위에 대한 부분을 고려해야 할 것으로 판단된다.

### 3.1.2. 몬테카를로 및 LHS 방법 불확도 모델 분석

몬테카를로 방법과 라틴하이퍼큐브 방법의 신뢰도를 비교하기 위하여 확률분포가 정규분포일 때, 각 방법의 샘플

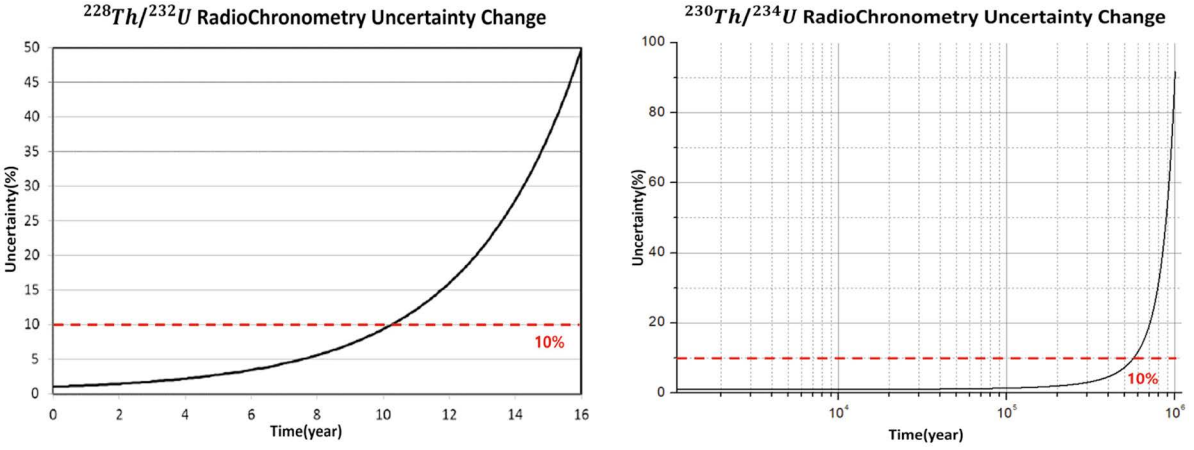


**Fig. 9.** Uncertainty change graph according to signature nuclides.

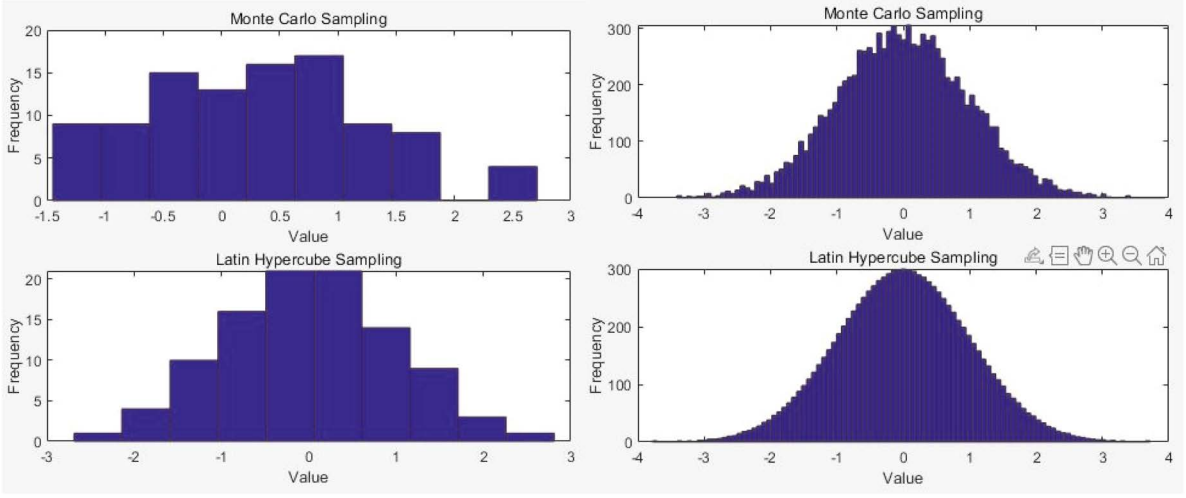


**Fig. 10.** Comparison of convergence between MC and LHS methods in normal distribution (100 samples left and 10,000 samples right).

**Table 2.** Standard deviation of uncertainty results according to the number of repetitions

| Number of samples | 1st | 2nd | 3rd | 4th | 5th | Average | Standard deviation |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 10 | 21.2052 | 21.4863 | 25.9773 | 19.3803 | 24.1953 | 22.4490 | 2.6166 |
| 20 | 20.9790 | 22.9221 | 21.5892 | 21.0399 | 21.9855 | 21.7032 | 0.7974 |
| 50 | 21.6114 | 21.6126 | 22.8168 | 21.5376 | 21.7095 | 21.8577 | 0.5397 |
| 100 | 21.8445 | 22.8954 | 21.8475 | 21.6177 | 22.1115 | 22.0632 | 0.4968 |
| 200 | 21.9144 | 22.1652 | 21.8286 | 21.8574 | 21.8760 | 21.9282 | 0.1359 |

추출 시 기존 분포에 대한 수렴을 Fig. 10과 같이 비교하였다[15-17]. Fig. 10의 좌측은 샘플 100개 추출 시 몬테카를로 및 LHS 방법을 비교한 것으로 몬테카를로 방법의 경우 샘플수가 적을 때 기존 분포를 알아볼 수 없을 정도로 기존 분포에 대한 수렴도가 낮았다. 우측은 샘플 10,000개 추출 시 몬테카를로 및 LHS 방법을 비교한 것으로 두 방법 모두 정규분포의 형태를 띠고 있으나 LHS의 경우 상대적으로 몬테카를로보다 정규분포에 수렴된 형태를 나타내었다. 몬테카를로 방법과 LHS 방법의 수렴율은 샘플 크기가 증가함에 따라 이론적으로 기존 분포에 접근하지만, 연구된 바에 따르면 몬테카를로 방법을 사용하여 LHS 방법에 정확도를 얻기 위해서는 LHS 방법의 샘플수(n)의 제곱 수($n^2$)가 필요하다[18].

전산모사 방법의 샘플수(반복횟수) 증가에 따른 분포 수렴을 확인하기 위해 LHS 방법의 샘플수(반복횟수)가 많아짐에 따른 불확도 추정 결과의 표준편차를 분석하였다. Table 2는 LHS 방법을 활용하여 연대측정을 진행해 반복횟수(샘플수)의 변화에 따라 도출된 연대측정 결과 및 결과값의 표준편차를 나타내었다. 연대측정을 위해 표지핵종 $^{230}Th/^{234}U$, 방사능비 0.001, $^{230}Th$ 및 $^{234}U$의 핵종분석 불확도 각 10%, 연대측정 결과 109.208년으로 설정하였다. Table 2와 같이 샘플수가 증가함에 따라 결과값이 표준편차가 작은 균일한 값에 가까운 값들이 도출되며, 이것을 Fig. 11과 같이 나타내면 반복횟수가 증가함에 따라 표준편차가 로그함수적으로 감소하는 것으로 나타난다. 표준편차가 급격히 감소하는 구간에서는 반복횟수의 증가가 정확도에 큰 영향을 주지만, 이후 구간에서는 영향이 감소한다. 샘플수(반복횟수)가 증가하면 계산시간이 증가하기 때문에 효율적인 불확도 추정을 위해서 적절한 반복횟수를 설정해야 한다.

3.1.1절에서 수학적 모델식의 경우 표지핵종의 방사능비가 방사평형에 접근하면 불확도가 무한하게 증가하는 것과 같이 전산모사 랜덤 샘플링을 이용한 방법에서도 시간에 따른 불확도 변화가 동일한 경향성이 나타나는지 분석하였다[6]. Fig. 12는 LHS 방법 및 수학적 모델식 방법을 활용하여 연대측정을 진행해 방사능비의 변화에 따라 도출된 연대측정 결과의 불확도 변화곡선을 그래프로 나타내었다. 연대측정을 위해 표지핵종 $^{230}Th/^{234}U$, $^{230}Th$ 및 $^{234}U$의 핵종분석 불확도 각 1%, 샘플수 200회로 설정하였다. Fig. 12와 같이 LHS 방법 및 수학적 모델식 방법 모두 연대측정 과정에서 사용되는 수식과 알고리즘이 동일하기 때문에 동일한 경향성이 나타났다. 또한, 방사평형비가 증가해 방사평형에 가까워질수록 LHS 방법의 불확도가 수학적 모델식 방법과 비교하여 상대적으로 높아지는 것으로 나타났다. 이는 앞서 수학적 모델식 방법에서 과소평가되었던 붕괴상수의 불확도 영향이 적절히 불확도에 반영된 것으로 판단된다. 다만, 표지핵종 $^{230}Th/^{234}U$의 방사평형의 최대 방사능비는 1.44 이상으로 수학적 모델식으로는

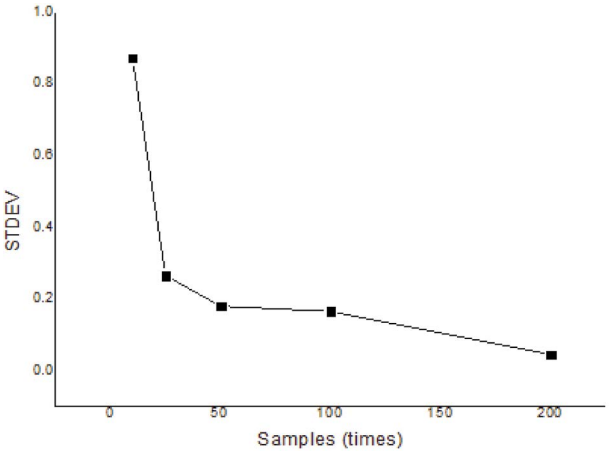


**Fig. 11.** Variation of standard deviation according to the number of repetitions.

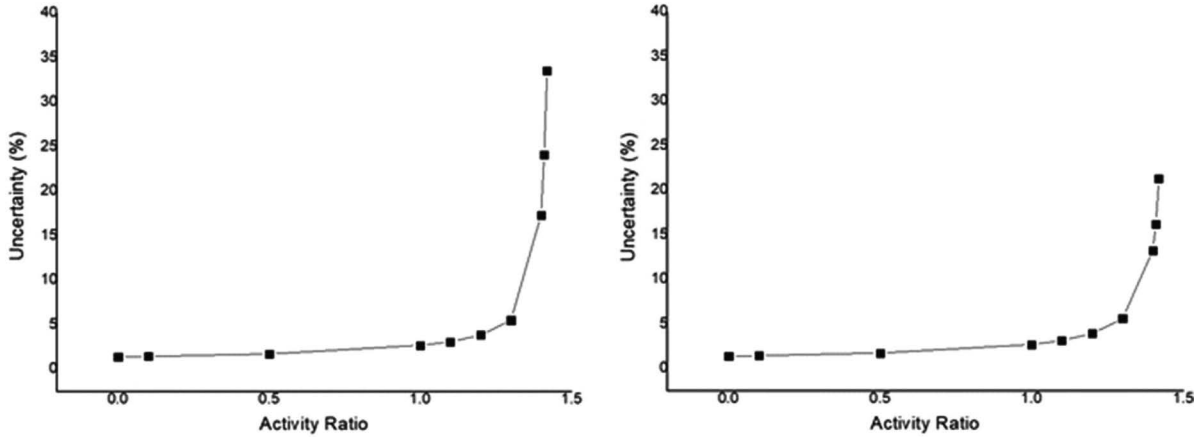


**Fig. 12.** Uncertainty changes according to changes in radioactivity ratio of LHS method (left) and mathematical model method (right).

**Table 3.** Comparison of the calculation results of Radiochronometry uncertainty using $^{230}$Th and $^{234}$U

| Uranium CRM radioactivity ratio and Radiochronometry uncertainty | | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Institution | Sample | Radioactivity ratio ($^{230}$Th/$^{234}$U) | Measurement relative uncertainty (%) | | Institutional uncertainty | Mathematical model method uncertainty | LHS method uncertainty |
| | | | $^{234}$U | $^{230}$Th | | | |
| CEA | NBS050 1 | $5.133 \times 10^{-4}$ | 0.5416 | 1.0304 | 0.65 | 0.653 | 0.654 |
| | NBS050 2 | $5.150 \times 10^{-4}$ | 0.5517 | 0.9782 | 0.65 | 0.632 | 0.642 |
| | NBS050 3 | $5.163 \times 10^{-4}$ | 0.5455 | 0.9554 | 0.65 | 0.621 | 0.627 |
| JAEA | Sample 1 | $5.091 \times 10^{-4}$ | 0.1182 | 0.3071 | 0.30 | 0.300 | 0.296 |
| | Sample 2 | $5.075 \times 10^{-4}$ | 0.0313 | 0.2874 | | | |
| | Sample 3 | $5.040 \times 10^{-4}$ | 0.0686 | 0.3656 | | | |
| | Average | $5.069 \times 10^{-4}$ | 0.3140 | 0.4391 | | | |
| LLNL | U050-1A | $5.124 \times 10^{-4}$ | 0.2733 | 0.2549 | 0.22 | 0.217 | 0.216 |
| | U050-1B | $5.145 \times 10^{-4}$ | 0.2733 | 0.2582 | 0.22 | 0.218 | 0.229 |
| | U050-1C | $5.157 \times 10^{-4}$ | 0.2733 | 0.2490 | 0.22 | 0.217 | 0.211 |
| | U050-1D | $5.160 \times 10^{-4}$ | 0.2733 | 0.2531 | 0.22 | 0.217 | 0.222 |
| | U050-2A | $5.138 \times 10^{-4}$ | 0.2438 | 0.2562 | 0.21 | 0.206 | 0.205 |
| | U050-2B | $5.146 \times 10^{-4}$ | 0.2438 | 0.2686 | 0.21 | 0.212 | 0.219 |
| | U050-2C | $5.155 \times 10^{-4}$ | 0.2438 | 0.2490 | 0.21 | 0.204 | 0.217 |
| | U050-2D | $5.160 \times 10^{-4}$ | 0.2438 | 0.2487 | 0.21 | 0.204 | 0.216 |
| LANL | U050-1 | $5.157 \times 10^{-4}$ | 0.1983 | 0.8211 | 0.50 | 0.478 | 0.488 |
| | U050-2 | $5.223 \times 10^{-4}$ | 0.1578 | 0.7832 | 0.49 | 0.458 | 0.461 |
| | U050-3 | $5.209 \times 10^{-4}$ | 0.1948 | 0.7890 | 0.50 | 0.464 | 0.475 |

1) Half-life using mathematical model and LHS methods: $\lambda_{234_U} = 2.8234 \times 10^{-6}$ year$^{-1}$, $\lambda_{230_{Th}} = 9.1954 \times 10^{-6}$ year$^{-1}$ [8]
2) Half-life of use by institution: $\lambda_{234_U} = 2.8263 \times 10^{-6}$ year$^{-1}$, $\lambda_{230_{Th}} = 9.1580 \times 10^{-6}$ year$^{-1}$
3) CEA's Radiochronometry estimation uncertainty is expressed up to the first decimal place
4) JAEA's Radiochronometry estimation uncertainty is expressed as an average value
5) Number of repeated LHS methods (number of samples): 200
6) Comparative data: Table 1 of Reference [7] [Appendix 1]

**Table 4.** Uncertainty of radiochronometry of 2 generations or more

| Signature nuclides | Generation | $^{234}$U to radioactive ratio | Radiochronometry estimate | Uncertainty (years) |
|---|---|---|---|---|
| $^{226}$Ra | 1$^{st}$ | 0.00195244% | | 0.73626 |
| $^{222}$Rn | 2$^{nd}$ | 0.00195184% | 100 year | 0.74999 |
| $^{218}$Po | 3$^{rd}$ | 0.00195184% | | 0.75828 |

평형의 근사값까지 불확도 추정이 가능했으나, LHS 방법의 경우 1.42 이상은 알고리즘 오류가 발생되었다. 오류의 원인은 방사능비 R이 불확도를 가지는 값으로 1.42 이상의 값을 입력했을 때 불확도 분포에 따라 샘플링을 하는 과정에서 1.44 이상의 값이 샘플링되면 선택된 표지핵종의 최대 방사능비를 벗어나 해를 찾을 수 없는 문제가 발생되는 것으로 판단되며, 향후 문제점 해결을 위한 추가연구가 필요하다.

### 3.2. 불확도 추정 결과 검증

본 연구에서는 전산모사 랜덤 샘플링 방법을 통한 불확도 추정 결과를 검증하기 위해 수학적 모델 및 해외기관별 연대측정 불확도 추정 결과와 LHS 방법을 통한 불확도 추정 결과를 비교하였으며, 2세대 이상 관계의 표지핵종 선택에 대한 불확도 추정 결과를 분석하였다.

#### 3.2.1. 불확도 추정 결과 비교 분석

연대측정 불확도의 계산 결과를 비교평가하기 위하여 $^{234}$U와 $^{230}$Th의 정보를 가지고 Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL, USA), Los Alamos National Laboratory (LANL, USA), Japan Atomic Energy Agency (JAEA, Japan), Commissariat a l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives (CEA, France) 총 4개 기관의 결과와 수학적 모델 및 LHS 방법을 통해 계산된 연대측정 불확도 추정 결과를 비교하여 Table 3에 나타내었다[7]. $^{234}$U와 $^{230}$Th의 측정 불확도는 각 기관별로 분석된 $^{234}$U와 $^{230}$Th의 측정 불확도 및 분석 결과를 활용하여 계산하였다. 비교 결과 Table 3과 같이 각 기관의 연대측정 결과와 수학적 모델식 및 LHS 방법으로 구현된 불확도 추정의 결과가 근사한 값으로 나타났으며, 예상되는 차이의 원인으로는 소수점 자릿수 처리에 따른 차이, 기관별 계산에 적용된 핵종의 고유값인 붕괴상수 및 붕괴상수의 불확도[19]의 차이에 따른 것으로 판단된다.

#### 3.2.2. 2세대 이상 불확도 추정 결과 분석

본 연구에서는 LHS 방법을 통해 수학적 모델식에서는 계산이 어려운 붕괴계열 내 2세대 이상의 차이가 나는 표지핵종을 선택하여 연대측정할 경우 불확도 변화에 대해 분석하였다. Table 4는 $^{234}$U 붕괴계열 내 2세대 이상 차이 나는 표지핵종($^{226}$Ra, $^{222}$Rn, $^{218}$Po)을 선택하여 연대측정 약 100년이 되는 방사능비를 입력해 각 세대별 불확도 변화를 나타내었다. 연대측정을 위해 $^{234}$U 붕괴계열, $^{234}$U 및 선택핵종의 핵종분석 불확도 각 1%, 샘플수(n) 500회로 설정하였다. Table 4와 같이 관계 세대가 증가할수록 연산과정의 반감기 불확도가 반영되기 때문에 같은 연대측정 t에 대해 각 세대의 불확도 결과가 세대가 증가함에 따라 증가하는 것을 확인하였다. 하지만, 2세대 이상의 불확도 추정은 현재 비교검증 자료 부족으로 추후 유효성을 검증하기 위한 추가연구가 필요하다.

## 4. 결 론

본 연구에서는 핵활동 연대측정의 신뢰성과 정확도를 높이기 위하여 연대측정 과정 중 고려해야 할 불확도를 추정하기 위해 수학적 모델식과 LHS 방법을 활용하여 핵물질 및 핵활동 연대측정 불확도 추정 방법을 연구하였다. 우라늄 또는 사용후핵연료 등의 핵물질 붕괴계열을 활용한 연대측정 불확도 추정을 위해 베이트만 방정식 기반인 수학적 모델식 방법을 분석하고 1세대 이상의 관계에서 연대측정이 불가능한 한계를 극복하기 위해 랜덤 샘플링을 통해 전산모사하는 몬테카를로 방법에 기반한 LHS 방법을 개발하였다.

연구 결과로 베이트만 방정식 기반 수학적 모델의 불확도 추정을 위한 계산식 및 민감도 계수에 대한 특성을 도출하였다. 수학적 모델의 각 불확도 요소는 시간에 따라 계수가 증가하였으며, 방사평형 구간에 근접하면 무한으로

발산하였다. 방사평형에 도달하는 시간은 핵종에 따라 다르기 때문에 연대추정 시 핵물질 조건에 따라 적절한 표지핵종을 선택할 필요성이 있다. 또한, 모핵종의 붕괴상수와 표지핵종 핵종비의 불확도가 연대측정 불확도에 가장 영향있는 요소이며, 특히 핵종비의 불확도는 시간이 증가함에 따라 기여율도 증가하였다. 전산모사 샘플링 방법의 경우, 몬테카를로 방법과 LHS 방법을 비교하여 LHS 방법의 효용성 및 특성을 도출하였다. LHS 방법은 몬테카를로 방법에 비해 적은 수의 샘플로 높은 신뢰도를 가지며, LHS 방법 또한 몬테카를로 방법에 기반하기 때문에 샘플수가 증가할수록 표준편차가 로그함수적으로 낮아졌다. LHS 방법 또한 수학적 모델식과 동일하게 방사평형 구간에서 불확도가 급증하였다.

연대측정 계산 결과를 비교하기 위해 LLNL, LANL, JAEA, CEA 4개 기관의 계산 결과와 수학적 모델식 및 LHS 방법의 결과를 비교해 동등 수준으로 연대측정 불확도 추정을 수행할 수 있음을 확인하였으며, 2세대 이상의 표지핵종 관계에서도 불확도를 도출하였다. 다만, 입력값의 정확도 및 출력값의 소수점 처리에 따른 차이 외에도 다른 요인이 존재하는 것으로 보이며, 활용도를 높이기 위해 향후 복잡한 Decay Chain 및 Non-Homogenous 조건 등을 반영한 계산 결과와 비교·검증, 연산 알고리즘의 최적화, 오차의 원인을 분석하는 등의 후속 연구가 필요하다.

본 연구의 결과물은 핵감식 분야의 표지핵종 확인 및 관련 기술개발을 위한 연구개발 Tool로 활용될 수 있으며, 향후 사용후핵연료 관리를 위한 독립검증 시 사업자의 계산 결과를 비교·검증할 수 있는 도구로 활용할 수 있을 것으로 판단된다. 최종적으로 국내 원자력시설 핵물질 통제 역량 강화 및 주변국 핵비확산 검증에 자주적이고 능동적 참여를 위한 핵감식 분야 기반기술로써 활용될 수 있다.

## 사 사

본 연구는 원자력안전위원회의 재원으로 한국원자력안전재단의 지원을 받아 수행한 원자력안전규제기술개발 사업의 연구 결과입니다(No. 2004025).

## 참고문헌

1. Williams R, Gaffney A and Kristo M. 2016. Radiochronometry Guidance. LLNL-TR-701379.
2. ITWG. 2016. ITWG Guideline on Age Dating (Production Date Determination). ITWG-INFL-APDP-v1.
3. Korean Agency for Technology and Standards. 2020. Guidance for Estimating and Expressing Uncertainty of Measurement Results, KOLAS-G-002.
4. Bateman H. 1910. Solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations. *Proc. Camb. Philos. Soc.* **15**:423-427.
5. Kristo MJ, Gaffney AM, Marks N, Knight K, Cassata WS and Hutcheon ID. 2016. Nuclear Forensic Science: Analysis of Nuclear Material Out of Regulatory Control. *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.* **44**:555-579. https://doi.org/10.1146/annurev-earth-060115-012309.
6. Williams R, Gaffney A and Kristo M. 2016. Radiochronometry Guidance. LLNL-TR-701379.
7. Gaffney AM, Hubert A, Kinman WS, Magara M, Okubo A, Pointurier F, Schorzman KC, Steiner RE and Williams RW. 2015. Round-robin 230Th-234U age dating of bulk uranium for nuclear forensics. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **307**:2055-2060. https://doi.org/10.1007/s10967-015-4334-8.
8. Brookhaven National Laboratory. National Nuclear Data Center. https://www.nndc.bnl.gov/.
9. Pomme S, Jerome SM and Venchiarutti C. 2014. Uncertainty propagation in nuclear forensics. *Appl. Radiat. Isot.* **89**:58-64. https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2014.02.005.
10. McKay MD, Beckman RJ and Conover WJ. 1979. Comparison of Three Methods for Selecting Values of Input Variables in the Analysis of Output from a Computer Code. *Technometrics* **21**(2):239-245.
11. Hwang H-S. 1996. A Study on Latin-Hypercube Experimental Design, Chonnam National University.
12. Iman RL and Shortencarier MJ. 1984. A FORTRAN 77 Program and User's Guide for the Generation of Latin Hypercube and Random Sampies for Use With Computer Modeis, Sandia National Laboratories, New Mexico.
13. The Math Works, Matlab program, R2023a Update 2.
14. MathWorks. 1994-2021. vpasolve (Solve equations numerically) Function Reference. https://kr.mathworks.com/help/symbolic/sym.vpasolve.html.
15. Vose D. 2014. The pros and cons of Latin Hypercube sampling, Linked In posting, 8 July 2014.
16. Lom W-L. 1995. On the convergence rate to normality of Latin Hypercube Sampling U-statistics, Purdue University Tech Report #95-2.
17. Manteufel RD. 2000. Evaluating the convergence of Latin Hypercube Sampling, American Institute of Aeronautics and Astronautics, AIAA-2000-1636.
18. Matala A. 2008. Sample Size Requierement for Monte Carlo - simulations using Latin Hypercube Sampling. HELSINKI UNIVERSITY OF TECHNOLOGY, Mat-2.4108 Independent Research Projects in Applied Mathematics.

19. Cheng H, Edwards RL, Shen C-C, Polyak VJ, Asmerom Y, Woodhead J, Hellstrom J, Wang Y, Kong X, Spötl C, Wang X and Alexander Jr. EC. 2013. Improvements in $^{230}$Th dating, $^{230}$Th and $^{234}$U half-life values and U-Th isotopic measurements by multi-collector inductively coupled plasma mass spectrometry. *Earth Planet. Sc. Lett.* **371-372**:82-91.
20. Laboratoire National Henri Becquere. 2022. Atomic and Nuclear data. Retrieved from http://www.lnhb.fr/nuclear-data/nuclear-data-table/.
21. Helton JC and Davis FJ. 2002. Latin Hypercube Sampling and the Propagation of Uncertainty in Analyses of Complex Systems. Sandia National Laboratories, New Mexico.
22. Pereira A and Broed R. 2006. Methods for Uncertainty and Sensitivity Analysis. Review and recommendations for implementation in Ecolego. AlbaNova University Center. Stockholm.
23. Im MJ, Kwon WJ and Lee JH. 1995. Two - Stage Latin Hypercube Sampling and Its Application. *The Korean Journal of applied Statistics (KJAS)* **8**(2):99-108.
24. Stein M. 1987. Large Sample Propertieso f Simulations Using LatinH ypercubeS ampling. TECHNOMETRICS, MAY 1987, **29**(2).
25. Iman RL and Helton JC. 1987. An Investigation of Uncertainty and Sensitivity Analysis Techniques for Computer Models. *Risk Analysis* **8**(1):71-90.
26. Manteufel RD. 2000. EVALUATING THE CONVERGENCE OF LATIN HYPERCUBE SAMPLING. American Institute of Aeronautics Astronautics, AIA-2000-1636.
27. Owen AB. 1994. Controlling Correlations in Latin Hypercube Samples. *J. Am. Stat. Assoc.* **89**(428):1517-1522.