

JAERI-M

82-053

濃縮度測定用ウラン同位体標準試料  
JAERI-U5  
—製作と表示値決定—

1982年6月

(編) 田村 修三・橋谷 博\*

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）  
あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城  
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division  
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,  
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1982

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 山田軽印刷所

濃縮度測定用ウラン同位体標準試料 JAERI-U5

- 製作と表示値決定 -

日本原子力研究所核燃料・炉材料等分析委員会

(編) 田村 修三<sup>+</sup>・橋谷 博\*

(1982年5月12日受理)

1978年、核燃料・炉材料等分析委員会は濃縮度測定用ウラン同位体標準試料(JAERI-U3の後継) JAERI-U5の製作を計画した。この標準試料系列は0.2~4.5 wt.%<sup>235</sup>Uの範囲の6試料から成り、各試料0.5 kgの規模で製作された。均一性を保証するために混合は溶液で行い、沈殿、乾燥、強熱して八酸化三ウランとした。表示値は、経験の深い原研と動燃の質量分析による共同分析により決定した。NBSの市販標準試料に準拠しているので、3次標準試料と呼ぶべきであろう。JAERI-U5は非破壊分析法であるガンマ線スペクトロメトリーにおける使用を考慮して、低カリウム含量の小型ガラスびんに各2グラムずつ詰められ、1セット当たり14万円で頒布されている。

+ ) 原子炉化学部

\* ) 現 島根大学

Preparation and certification of a uranium isotope  
certified reference material JAERI-U5

(Ed.) Shuzo TAMURA<sup>+</sup> and Hiroshi HASHITANI\*

The Committee on Analytical Chemistry of  
Nuclear Fuels and Reactor Materials, JAERI

(Received May 12, 1982)

The Committee on Analytical Chemistry of Nuclear Fuels and Reactor Materials, JAERI had planned to prepare a new reference material, JAERI-U5 for uranium isotopic measurement since 1978.

The reference material is composed of 6 samples of different enrichment in the range of 0.2 to 4.5 wt. percents of  $^{235}\text{U}$ . The preparation includes dissolution of raw materials, blending of solutions, precipitation of ammonium diuranate, drying and ignition to  $\text{U}_3\text{O}_8$ .

A mass-spectrometric collaborative analysis was carried out by well-trained two laboratories in this country, JAERI and PNC.

The certified values were decided from the result of the collaborative work. As the measurements were based on NBS SRM's, JAERI-U5 should be called tertiary standard. The materials are packed in bottles of low-potassium-content glass for a possible use in non-destructive gamma-rays spectrometry.

The reference material has been distributing from JAERI with a price of ¥ 140,000 per set (6 samples of 2 g of each) since 1979.

Keywords: JAERI-U5, Uranium Isotope, Certified Reference Material,  
Preparation, Certification

+ ) Division of Chemistry, Tokai Research Establishment, JAERI

\* ) Shimane University

## 目 次

1. まえがき	1
2. 製 作	2
2.1 製作過程	2
2.2 不 純 物	3
2.3 均 一 性	4
3. 表示値決定のための共同分析	4
3.1 計 画	4
3.2 結果と評価	4
3.3 表 示 値	5
4. 表示値決定に用いたウラン濃縮度測定法	5
4.1 質量分析法（原研分析センター）	6
4.2 質量分析法（動燃分析課）	8
5. あとがき	10
参考文献	11
図 表	12

## contents

1. Preface .....	1
2. Preparation .....	2
2. 1 Preparation Process .....	2
2. 2 Impurities .....	3
2. 3 Homogeneity .....	4
3. Collaborative measurement for certification .....	4
3. 1 Collaborative work .....	4
3. 2 Results and discussion .....	4
3. 3 Certified value .....	5
4. Measurement procedures used in the certification .....	5
4. 1 Mass spectrometry in JAERI .....	6
4. 2 Mass spectrometry in PNC .....	8
5. Postscript .....	10
References .....	11
Tables and figures .....	12

## 核燃料・炉材料等分析委員会（1982.3）

(順不同・敬称略)

## 委員長

多田 格三（東芝セラミックス）

## 委 員

宗宮 尚行（東大名誉教授）

中井 敏夫（明星大学）

平野 四藏（東大名誉教授）

西村 耕一（横沢金属工業）

小田 仲彬（日本曹達）

本島 健次（日立製作所エネルギー研究所）

水池 敦（名古屋大学工学部）

須藤恵美子（新日鉄基礎研究所）

吉森 孝良（東京理科大学工学部）

西谷 隆夫（動力炉・核燃料開発事業団）

夏目 晴夫（日本原子力研究所）

小森 卓二（ 同 上 ）

## 幹 事

橋谷 博（日本原子力研究所）

中島篤之助（ 同 上 ）

星野 昭（ 同 上 ）

## 元委員長

辻村 重男（日本原子力研究所）（1974.7～1980.5）

## 1. まえがき

- 1.1** 我が国では種々の濃縮度の核燃料物質が製造加工され使用されている。核燃料メーカーでは、原料の受入れ、製造工程、製品の納入の各段階において、ウラン濃縮度のチェックが不可欠である。特に高濃縮ウランや試験開発のための核燃料ウランの使用の場合には、 $^{235}\text{U}$ のみならず他のウラン同位体比の測定も必要である。近年、商業発電炉の増加に加えてウラン濃縮、燃料再処理が始まり、更に保障措置協定に伴う査察分析の問題が生じ、ウラン同位体比測定の必要性は核燃料サイクル全般にわたり飛躍的に増大している。
- 1.2** 初期においては核燃料メーカーに測定態勢がなく、研究炉用燃料の場合はユーザーである日本原子力研究所（以下原研と略記）あるいは動力炉・核燃料開発事業団（以下動燃と略記）が、輸入原料と納入される製品について質量分析によるウラン濃縮度のチェックを行っていた。1964年には動燃にウラン濃縮度測定の受託制度ができ民間の依頼に応ずるようになったが、増大する要求に次第に応じきれなくなり、1979年この制度は廃止された。原研、動燃以外の濃縮度測定は核燃料メーカーの工程管理分析に始まり、ガンマ線スペクトロメトリーを中心に最近は質量分析法まで加えて急速に整備されつつある。また保障措置分析を目的に非破壊の各種パッセンサ・アッセイやアクチブ・アッセイの手法が検討されている。これらとは別に光学スペクトル法の研究も続けられている。
- 1.3** ウラン濃縮度の測定については核燃料・炉材料等分析委員会でも早くから論議があったが、1.2に述べたような事情から共同検討の体制は組めなかった。しかし、1969年、迅速・簡便測定法のための標準試料作製を望む声が高まり、当時の分析技術（原研と動燃の質量分析）の評価を兼ねて、JAERI-U3を製作し共同分析で表示値を決め<sup>1)</sup>、一般にも頒布した。更に、1971年、当時の測定態勢では到底予想される燃料サイクル全般にわたる数多くの要求に応じきれなくなるとの判断から、ワーキング・グループをつくって測定法の検討、測定態勢の現状分析を行うとともに将来の展望についても討議し、翌年5月これらをとりまとめて関係者に配布した。その後、核燃料メーカーの工程管理分析や保障措置分析の態勢が整備され、1976年には（財）核物質管理センターが国内関係事業所の測定値を評価する共同実験を実施するに至った。このような事情を背景に当委員会では1979年にウラン濃縮度測定専門部会を設け、測定諸法の討議や関連する経験知見、情報の交換を行った<sup>2)</sup>。
- 1.4** 国内のウラン濃縮度測定態勢が漸やく整備された今日、測定の基準となる標準試料の作製、維持は益々重要となってきている。ちなみにNBSの標準試料は入手の困難に加えて高価である（低濃縮ウラン領域の試料で比較するとJAERI-U3のおよそ10倍）。
- ところで旧標準試料JAERI-U3は、天然～20% $^{235}\text{U}$ の範囲の5試料から成るが、高濃縮ウラン（5% $^{235}\text{U}$ 以上）の使用許可を取っていない核燃料メーカーでは濃縮度の高い2試料を購入することができず、当初から強い不満があった。この標準試料40セットも在庫が少なくなったので（1978年まで33セットを頒布）、1977年、低濃縮の軽水炉燃料の測定に焦点を合わせた新しい標準系列JAERI-U5の製作を計画した。

1.5 新同位体標準試料は、旧試料と同様に原研手持ちの濃縮ウラン残材を原料とし、それらを溶液で混合して製作することにしたが、製作規模は5倍に拡大した。前回の製作量は1濃縮度当たり100 gの規模だったので原研分析センターの実験室で取扱うことができた。今回はその限度を超える量であるため、加工作業は三菱金属中央研究所に委託した。

同位体比の測定は1970年の前回と同様に、動燃東海事業所技術部分析課（担当和田幸男氏）の協力を得て実施した。ウラン同位体比測定について実績のある2分析所の測定結果は、その時点における我が国の測定技術を代表するものとして評価されよう。なお、測定はNBSの標準試料（市販されているものは厳密に言えば2次標準）を基準にしており、その意味でJAERI-U5は3次標準試料と呼ぶべきであろう。関係者の一部には、我が国においてもNBS級の同位体標準試料の作製を考えるべきであるとする意見もあるが、高濃縮度同位体の多量生産、高水準の分析支援体制の確立などの至難の事情が解決されぬ限り不可能であることを残念ながら指摘せねばならない。

1.6 表示値は、2分析所の共同測定結果をもとに、第26回核燃料・炉材料等分析委員会（1979年5月18日）で審議のうえ決定した。

1.7 JAERI-U5は、1979年夏から、原研RI事業課を通じ“成果の普及”として1セット（2 g×6試料）140,000円で頒布されている。

## 2. 製 作

### 2.1 製作過程

1970年作製した同種標準試料JAERI-U3の経験から、実験室での作成は1試料100 gが限度と思われたので、1977年12月三菱金属中央研究所に委託した。翌年1～2月に原研支給原材料などを運び、5月全製品が原研へ納入された。

委託は、原研支給の3種類の濃縮ウラン原材料と三菱の劣化二酸化ウラン（いずれも米国籍）とを混ぜ合わせて6段階の濃縮度の八酸化三ウラン粉末を各500 g作製し、2 gずつびん詰めのうえ梱包することであった。

製作はJAERI-U3の経験を基にし、微細な点は三菱に一任されたが、原研の主な注文は次の通りであった。：① 製品の濃縮度はそれぞれ目標値の10%以内であること、② 混合は溶液状で行うこと、③ ジスプロシウムなど多量の他物質を含む原材料については使用にさきだちこれを分離除去すること、④ 沈殿生成以後の相互汚染（濃縮度につき）には極力注意を払うこと、⑤ 不純物元素（Fe, Ni, Cr, Si, Al, N, K, Na, Ca, Mg, Mo）の混入に注意を払うこと。

以下製作過程を追って記す（Fig.1, Fig.2参照）。

#### 2.1.1 溶 解

原材料（Fig.1）には溶解の困難な二酸化ウランパレットがあったので、全原材料とも650

1.5 新同位体標準試料は、旧試料と同様に原研手持ちの濃縮ウラン残材を原料とし、それらを溶液で混合して製作することにしたが、製作規模は5倍に拡大した。前回の製作量は1濃縮度当たり100 gの規模だったので原研分析センターの実験室で取扱うことができた。今回はその限度を超える量であるため、加工作業は三菱金属中央研究所に委託した。

同位体比の測定は1970年の前回と同様に、動燃東海事業所技術部分析課（担当和田幸男氏）の協力を得て実施した。ウラン同位体比測定について実績のある2分析所の測定結果は、その時点における我が国の測定技術を代表するものとして評価されよう。なお、測定はNBSの標準試料（市販されているものは厳密に言えば2次標準）を基準にしており、その意味でJAERI-U5は3次標準試料と呼ぶべきであろう。関係者の一部には、我が国においてもNBS級の同位体標準試料の作製を考えるべきであるとする意見もあるが、高濃縮度同位体の多量生産、高水準の分析支援体制の確立などの至難の事情が解決されぬ限り不可能であることを残念ながら指摘せねばならない。

1.6 表示値は、2分析所の共同測定結果をもとに、第26回核燃料・炉材料等分析委員会（1979年5月18日）で審議のうえ決定した。

1.7 JAERI-U5は、1979年夏から、原研RI事業課を通じ“成果の普及”として1セット（2 g×6試料）140,000円で頒布されている。

## 2. 製 作

### 2.1 製作過程

1970年作製した同種標準試料JAERI-U3の経験から、実験室での作成は1試料100 gが限度と思われたので、1977年12月三菱金属中央研究所に委託した。翌年1～2月に原研支給原材料などを運び、5月全製品が原研へ納入された。

委託は、原研支給の3種類の濃縮ウラン原材料と三菱の劣化二酸化ウラン（いずれも米国籍）とを混ぜ合わせて6段階の濃縮度の八酸化三ウラン粉末を各500 g作製し、2 gずつびん詰めのうえ梱包することであった。

製作はJAERI-U3の経験を基にし、微細な点は三菱に一任されたが、原研の主な注文は次の通りであった。：① 製品の濃縮度はそれぞれ目標値の10%以内であること、② 混合は溶液状で行うこと、③ ジスプロシウムなど多量の他物質を含む原材料については使用にさきだちこれを分離除去すること、④ 沈殿生成以後の相互汚染（濃縮度につき）には極力注意を払うこと、⑤ 不純物元素（Fe, Ni, Cr, Si, Al, N, K, Na, Ca, Mg, Mo）の混入に注意を払うこと。

以下製作過程を追って記す（Fig.1, Fig.2参照）。

#### 2.1.1 溶 解

原材料（Fig.1）には溶解の困難な二酸化ウランパレットがあったので、全原材料とも650

～700 °Cに強熱して溶けやすい酸化ウラン粉末としたのち、3 N 硝酸で溶解した。

JAERI-U3 の作製ではペレットの酸化に磁製ざらを用い、ニッケル板でカバーして電気炉で強熱したが、ニッケル板の酸化皮膜がはく離して混入するのでこのカバーは1回限りしか使えなかった。三菱ではハステロイXで長方形の容器（ふた付、空気が通じるよう隙間あり）を作って用いた。使用につれて黒色の保護膜ができ、はく離などの不都合はなかった。粉碎にはアルミナ製乳鉢が用いられた。

### 2.1.2 他元素分離

原材料のすべてにつき、溶解後不溶残分を沪別した。

原材料Aは1.5%のジスプロシウムを含むので、Fig.2に示すような条件でTBP抽出分離を行った。1 ℥分液漏斗2本を交互に用い、シェーカーで振り混ぜた。60～70 °Cに液温を保つため赤外線ランプを用いた。

### 2.1.3 混 合

Fig.1に示すように、各硝酸ウラニル原液の計算量を混合して、CとDからNo.2の、AとBからNo.6の、AとDからNo.5の溶液を作製した。

### 2.1.4 沈殿、乾燥、強熱

No.1～No.6の各原液調製以後の作業は、相互汚染を避けるため、個別に行われた。

重ウラン酸アンモニウムの沈殿（約700 g）は、ポリプロピレン製ビーカー（10 ℥）を用い、スターラーでかき混ぜながらpH 7.8になるまでアンモニア水を滴下して作られた。30分間熟成後、ステンレス鋼製沪過器（30 cm径）、沪紙（JIS 2種）、沪過びん（20 ℥）を用い、沈殿を吸引沪過した。次に100 °C前後で乾燥し、ハステロイX製容器（前記）を用いて900 °Cで3時間強熱した。

### 2.1.5 びん詰め、梱包

2.1.1～2.1.4の過程で作られた各試料はいずれも予定濃縮度どおりで、数量は全試料とも560 gを若干上まわった（予定は500 g）。

これらを、原研支給のラベルを貼ったびん合計1,680本に2.00 gずつ詰める作業は全工程中、最も手間と時間がかかるものであった。濃縮ウランは計量管理上10 mgのけたまでひょう量しておく必要があるが、6名が手分けしてまず上ざら天秤で粗ひょうし、次にmgのけたまで精ひょうし、外箱のふたに記録した。なお、容器のガラスびんは、そのままガンマ線スペクトロメトリーなど非破壊測定に利用されることを予想して、低カリウムガラス製のものを用いた。

## 2.2 不純物

三菱の21元素の定量結果をTable 1に示す。ほとんどが発光分光分析法によるが、クロム（No.3～No.6）、モリブデン（No.2～No.4）、ケイ素以外評価できるほどの元素は認めら

れない。

No. 5 および No. 6 試料は 1.5 % のジスプロシウムを含む原材料 A を、これを含まない原材料と混ぜて作ったものであるが、いずれも 0.08% 程度含まれており、その混合比 (No. 5 は 45%, No. 6 は 60%) からみて、2.1.2 の TBP 抽出分離でジスプロシウムは約 90% しか除けなかったことになる。ガンマ線スペクトロメトリーなどの非破壊法による測定に何らかの影響を及ぼすことも考えられるので、陰イオン交換分離後アルセナゾⅢ光度法でジスプロシウム含量を確認してみた。結果は、No. 5 が 0.088<sub>1</sub> % (0.087<sub>5</sub>, 0.087<sub>9</sub>, 0.089<sub>0</sub>), No. 6 が 0.085<sub>2</sub> % (0.085<sub>5</sub>, 0.085<sub>5</sub>, 0.085<sub>0</sub>) であった。

### 2.3 均一性

2.1 で述べたように、JAERI-U5 は溶液状で混合し、沈殿以後の作業では極力相互汚染に注意して作製したので、均一性については問題ないものと考えられるが、確認のため次のような試験を原研で行った。

各試料 280 本のびんにつき、100 本に 1 本の割合で 3 本、合計 18 本のびんを選び出し、それぞれ約 100mg の粉末を溶かし、各溶液につき独立 3 回の同位体比を 4.1 の方法で測定した。

Table 2-(1)~(6) に全測定値を示す。Table 3 は分析精度のよい <sup>235</sup>U の分散分析表 (原子%) であるが、危険率 5 % で検定し全試料につき有意差は認められなかった。

## 3. 表示値決定のための共同分析

### 3.1 計画

1979 年 10 月に担当者間で最初の会合を持ち、同年 12 月に動燃に測定試料を渡した。両者は独立に 1 セット 6 試料 (6 濃縮度) の共同分析試料を受けとり、そのなかから約 0.1 g の八酸化三ウランを溶解し、各 5 回の独立分析をそれぞれの測定手順に従って行い、同位体比、原子百分率、重量百分率などの測定値と較正バイアス値の管理数値などの必要な情報を提出することを決めた。

### 3.2 結果と評価

#### 3.2.1 測定法と分析精度

両分析所で用いた装置と使用条件をまとめて Table 4 に示す。測定結果の比較評価を行うためには、両所の測定法および日常分析の正確さと精度を検討しておく必要がある。

原研の測定法の特徴は NBS 法に準じているため、比較的多量 ( $2 \times 25 \mu\text{g}$  U, NBS では  $2 \times 50 \mu\text{g}$  U) の試料を用い、拡大スケール方式で測定可能な  $10^{-12} \text{A}$  ( $^{235}\text{U}^+$  イオン) 以上のイオン電流をフアラデー・カップで測定していることであり、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  同位体比 ( $> 0.005$ ) につき

れない。

No. 5 および No. 6 試料は 1.5 % のジスプロシウムを含む原材料 A を、これを含まない原材料と混ぜて作ったものであるが、いずれも 0.08% 程度含まれており、その混合比 (No. 5 は 45%, No. 6 は 60%) からみて、2.1.2 の TBP 抽出分離でジスプロシウムは約 90% しか除けなかったことになる。ガンマ線スペクトロメトリーなどの非破壊法による測定に何らかの影響を及ぼすことも考えられるので、陰イオン交換分離後アルセナゾⅢ光度法でジスプロシウム含量を確認してみた。結果は、No. 5 が 0.088, % (0.087<sub>s</sub>, 0.087<sub>s</sub>, 0.089<sub>s</sub>), No. 6 が 0.085, % (0.085<sub>s</sub>, 0.085<sub>s</sub>, 0.085<sub>s</sub>) であった。

### 2.3 均一性

2.1 で述べたように、JAERI-U5 は溶液状で混合し、沈殿以後の作業では極力相互汚染に注意して作製したので、均一性については問題ないものと考えられるが、確認のため次のような試験を原研で行った。

各試料 280 本のびんにつき、100 本に 1 本の割合で 3 本、合計 18 本のびんを選び出し、それぞれ約 100 mg の粉末を溶かし、各溶液につき独立 3 回の同位体比を 4.1 の方法で測定した。

Table 2-(1)~(6) に全測定値を示す。Table 3 は分析精度のよい <sup>235</sup>U の分散分析表 (原子%) であるが、危険率 5 % で検定し全試料につき有意差は認められなかった。

## 3. 表示値決定のための共同分析

### 3.1 計画

1979 年 10 月に担当者間で最初の会合を持ち、同年 12 月に動燃に測定試料を渡した。両者は独立に 1 セット 6 試料 (6 濃縮度) の共同分析試料を受けとり、そのなかから約 0.1 g の八酸化三ウランを溶解し、各 5 回の独立分析をそれぞれの測定手順に従って行い、同位体比、原子百分率、重量百分率などの測定値と較正バイアス値の管理数値などの必要な情報を提出することを決めた。

### 3.2 結果と評価

#### 3.2.1 測定法と分析精度

両分析所で用いた装置と使用条件をまとめて Table 4 に示す。測定結果の比較評価を行うためには、両所の測定法および日常分析の正確さと精度を検討しておく必要がある。

原研の測定法の特徴は NBS 法に準じているため、比較的多量 ( $2 \times 25 \mu\text{g}$  U, NBS では  $2 \times 50 \mu\text{g}$  U) の試料を用い、拡大スケール方式で測定可能な  $10^{-12} \text{A}$  ( $^{235}\text{U}^+$  イオン) 以上のイオン電流をフアラデー・カップで測定していることであり、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  同位体比 ( $> 0.005$ ) につき

変動係数 0.1 %以内の高い精度を長期間にわたり維持している。 $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ の微小同位体については振動容量型電位計及びペン記録計のノイズ、ならびに隣接ピークのティーリングが大きいので試料内再現精度は数%(CV)以内にとどまっている。しかし、試料間再現精度はTable 5に示すようにNBS表示値(換算値)とほぼ±1%以内で一致しており、正確さは高いものと考えられる。

動燃分析課の測定法は原研に比べ数分の1量(10~20  $\mu\text{g U}$ )の試料を用い、2次電子増倍管を使用し、 $^{234}\text{U}$ ~ $^{238}\text{U}$ 同位体スペクトルを同時に平行測定している。 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比の測定精度の管理限界はTable 6に示すように、原研の2~3倍大きい。しかし、微小同位体についての再現精度は2次電子増倍管を使用しているので原研に比べて数倍良くなっている。

### 3.2.2 共同分析結果

共同分析の結果をTable 7に示す。これらの数値をWelch法(JIS Z 9049-1969, 標準偏差未知の場合の2つの平均値の差の検定)により検出した。95%信頼率で有意差の認められたのは、No. 4 の $^{235}\text{U}$ と $^{238}\text{U}$ , No. 5 の $^{234}\text{U}$ , 99%信頼率でNo. 2 の $^{236}\text{U}$ , No. 3 の $^{234}\text{U}$ (各々原子百分率)であった。No. 4 の $^{235}\text{U}$ および $^{238}\text{U}$ (原子百分率)に有意差が検出されたのは重大であるが、動燃測定値が偶然によく収斂し、その平均値が高めであったことに起因している(測定誤差は通常の4分の1)。しかしながら、同所の誤差管理データ(Table 6)から考え、再測定は不要と判断した。

微小頻度同位体に関しては、たとえ有意差があったとしても、どちらが真値に近いかは、 $^{238}\text{U}$ スパイクを用いる同位体希釈法などにより決定しなければわからないので、現状では十分の許容誤差をとって両者の平均値を採用するのが技術的に妥当と考えられる。

### 3.3 表示値

両分析所の全測定値は範囲Rを用いる推定で棄却できるものがないので、総平均をとり表示値とすることになった。この表示値は共同分析、均一性試験とその関連測定値のすべての平均値と良く一致する[Table 8-(1)~8-(2)を参照]。 $^{235}\text{U}$ 原子および重量百分率の表示値の精度および正確さは、No. 1 およびNo. 2 について約0.2%(1σ), No. 3 ~ No. 6 について約0.1%(1σ)である。これらは、JAERI-U3の場合より2,3倍良くなっている。微小同位体を含めての精度の向上は今後、可能であると考えられるが、将来の表示値改訂の際の課題とした。

第26回核燃料・炉材料等分析委員会(1979年5月18日)で承認されたJAERI-U5の保証書(英文版)をTable 9に示す。

## 4. 表示値決定に用いた測定法

以下に共同分析時における両分析所の質量分析法の操作条件などを記した。細部の条件は両分析所で、それぞれ一定の期間の検討や経験を経たもので急に変更することが困難であるもの

変動係数 0.1 %以内の高い精度を長期間にわたり維持している。 $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ の微小同位体については振動容量型電位計及びペン記録計のノイズ、ならびに隣接ピークのティリングが大きいので試料内再現精度は数%(CV)以内にとどまっている。しかし、試料間再現精度はTable 5に示すようにNBS表示値(換算値)とほぼ±1 %以内で一致しており、正確さは高いものと考えられる。

動燃分析課の測定法は原研に比べ数分の1量(10 ~ 20  $\mu\text{g U}$ )の試料を用い、2次電子増倍管を使用し、 $^{234}\text{U}$ ~ $^{238}\text{U}$ 同位体スペクトルを同時に平行測定している。 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比の測定精度の管理限界はTable 6に示すように、原研の2~3倍大きい。しかし、微小同位体についての再現精度は2次電子増倍管を使用しているので原研に比べて数倍良くなっている。

### 3.2.2 共同分析結果

共同分析の結果をTable 7に示す。これらの数値をWelch法(JIS Z 9049-1969, 標準偏差未知の場合の2つの平均値の差の検定)により検出した。95%信頼率で有意差の認められたのは、No. 4 の $^{235}\text{U}$ と $^{238}\text{U}$ , No. 5 の $^{234}\text{U}$ , 99%信頼率でNo. 2 の $^{236}\text{U}$ , No. 3 の $^{234}\text{U}$ (各々原子百分率)であった。No. 4 の $^{235}\text{U}$ および $^{238}\text{U}$ (原子百分率)に有意差が検出されたのは重大であるが、動燃測定値が偶然によく収斂し、その平均値が高めであったことに起因している(測定誤差は通常の4分の1)。しかしながら、同所の誤差管理データ(Table 6)から考え、再測定は不要と判断した。

微小頻度同位体に関しては、たとえ有意差があったとしても、どちらが真値に近いかは、 $^{233}\text{U}$ スパイクを用いる同位体希釈法などにより決定しなければわからないので、現状では十分の許容誤差をとって両者の平均値を採用するのが技術的に妥当と考えられる。

### 3.3 表示値

両分析所の全測定値は範囲Rを用いる推定で棄却できるものがないので、総平均をとり表示値とすることになった。この表示値は共同分析、均一性試験とその関連測定値のすべての平均値と良く一致する[Table 8-(1)~8-(2)を参照]。 $^{235}\text{U}$ 原子および重量百分率の表示値の精度および正確さは、No. 1 およびNo. 2 について約0.2%(1σ), No. 3 ~ No. 6 について約0.1%(1σ)である。これらは、JAERI-U3の場合より2,3倍良くなっている。微小同位体を含めての精度の向上は今後、可能であると考えられるが、将来の表示値改訂の際の課題とした。

第26回核燃料・炉材料等分析委員会(1979年5月18日)で承認されたJAERI-U5の保証書(英文版)をTable 9に示す。

## 4. 表示値決定に用いた測定法

以下に共同分析時における両分析所の質量分析法の操作条件などを記した。細部の条件は両分析所で、それぞれ一定の期間の検討や経験を経たもので急に変更することが困難であるもの

が含まれている。また用語についても完全に統一できない経過をもつものであることを了解されたい。

#### 4.1 質量分析法(原研分析センター)<sup>3,4)</sup>

##### 4.1.1 概要

質量分析計の試料フィラメント(2個)に硝酸ウラニル試料液を塗布し、空気中で通電加熱しウラン酸化物とした後、イオン源に装着・排気する。一定のフィラメント温度で発生するイオン( $U^+$ )を磁場走査し、各同位体イオンピークをチャート記録計にとり、その高さを目測し同位体比平均値および標準偏差を算出する。NBS標準試料についての測定値からバイアス補正を行った同位体比平均値を用い原子および重量百分率などを求める。

##### 4.1.2 適用範囲、精度および正確さ

数 ppm から 100 % に近い<sup>234</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>236</sup>U, <sup>238</sup>U が測定できる。精度は 1~99 原子% の<sup>235</sup>U で変動係数 0.1 %, 劣化ウラン(0.2 %<sup>235</sup>U)で 0.2 % 程度である。正確さは NBS 標準試料に対するバイアス測定値の変動係数から算出すると、± 0.1 % 以内(95 % 信頼率)である。

##### 4.1.3 装置および試薬

- (1) 質量分析計: CEC 21-702B型(改良品)
- (2) フィラメント焼出し装置: レニウム・センターフィラメントを  $10^{-7} \sim 10^{-6}$  Torr の真空で 4 A, 1 時間空焼きする。
- (3) フィラメントリボン: 厚さ 0.025, 幅 0.75 mm のリボン状のレニウムおよびタンタル。前者はイオン化用、後者は試料蒸発用。
- (4) NBS ウラン同位体標準試料: SRM U-005 ~ U-930<sup>5)</sup>を用いる。

##### 4.1.4 操作

- (1) 酸化物試料 0.1 g を硝酸に溶解後、水で希釈して 5 ~ 10 mg U / ml の濃度(0.1 NHNO<sub>3</sub>)とする。
- (2) タンタルフィラメント(以下試料フィラメントと呼ぶ) 2 本にそれぞれ 25  $\mu$ g U をマイクロピペット(容量  $5 \times 10^{-6}$  l)で塗布する。
- (3) 試料フィラメントを大気中で通電加熱し、水分蒸発後、さらに赤橙色の酸化物とする。
- (4) フィラメントブロックに試料フィラメント 2 本とレニウムフィラメント 1 本(以下イオン化フィラメントと呼ぶ)を固定し、治具を用い配置を調整する。
- (5) イオン源にフィラメントブロックをとりつけ、 $5 \times 10^{-8}$  Torr の真空中まで排気する。
- (6) イオン化フィラメント電流を 5 A(10 VAC)に、また試料フィラメント電流を 1.4 A に 10 分間保持して予備加熱を行い、ついで 30 分間放冷・排気する。
- (7) その後、イオン化フィラメントに 5.5 ± 0.2 A、試料フィラメントに約 1.3 A の電流を通じ、<sup>187</sup>Re<sup>+</sup>イオンを検出する。イオン源レンズ電位の調整を行い、 $2.0 \sim 2.5 \times 10^{-12}$  A のイオン

電流が得られるようイオン化フィラメント電流を調節する。

- (8) 次に、試料フィラメント電流を6分間隔で、1.7, 2.0, 2.1Aまで上げる。その後、5分毎に0.1Aの割合で2.5Aまで上げる。その6分後に2.6Aまで上げ、フィラメント電流を固定したままU<sup>+</sup>イオンの自然増加を待ち、試料フィラメント電流1.4Aのときから55分間経過後、<sup>235</sup>U<sup>+</sup>/<sup>238</sup>U<sup>+</sup>イオン強度の測定を開始する。このとき、<sup>238</sup>U<sup>+</sup>イオン電流が約3×10<sup>-11</sup>Aとなるように各フィラメント電流の微調節を行う(以上の測定操作で所定の条件を著じるしく逸脱する場合は測定を打ち切り再測定を行う)。
- (9) <sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U同位体ピーク比を12個測定(1ピークの測定時間は20~30秒)し、その最大、最小値各1個を棄却し、10個の値の平均値と標準偏差(不偏分散の平方根)を算出する。
- (10) <sup>234</sup>U/<sup>235</sup>Uおよび<sup>236</sup>U/<sup>235</sup>U同位体比は、<sup>235</sup>U<sup>+</sup>イオン電流が0.7~2×10<sup>-12</sup>Aの範囲になるようにフィラメント電流を上げて(9)と同様に測定する。
- (11) NBSウラン同位体標準試料系列について上記と同様の操作条件下で測定を行い、バイアス補正值を求める(4.1.5参照)。

#### 4.1.5 同位体比算出およびバイアス補正

隣接する<sup>238</sup>U<sup>+</sup>(<sup>234</sup>U, <sup>236</sup>U同位体を測定するときは<sup>235</sup>U<sup>+</sup>)のピーク高さの中央点を結ぶ直線(高さH<sub>238</sub>)の下に位置する<sup>235</sup>U<sup>+</sup>のピーク高さ(H<sub>235</sub>)を記録紙上で目測する。同位体比R<sub>5/8</sub>はH<sub>235</sub>/H<sub>238</sub>(すなわち面積比でなくピーク高さの比)にそれぞれの電流利得を乗じて算出する。10個の比の平均と標準偏差を求める。 $\bar{R}_{4/8}$ は $\bar{R}_{4/5} \times \bar{R}_{5/8}$ ,  $\bar{R}_{6/8}$ は $\bar{R}_{6/5} \times \bar{R}_{5/8}$ として算出する。

バイアス補正係数Bは次のように定義する。

$$B = (\bar{R}_{5/8})_{\text{obs.}} / (R_{5/8})_{\text{NBS}}$$

ここで、 $(\bar{R}_{5/8})_{\text{obs.}}$ は実測値の平均、 $(R_{5/8})_{\text{NBS}}$ はNBS表示値である。

同位体比 $\bar{R}_{i/8}$ (i=4, 5, 6)の較正値 $(\bar{R}_{i/8})_c$ はそれぞれ次式で求める。

$$(\bar{R}_{4/8})_c = (\bar{R}_{4/8})_{\text{obs.}} \times \frac{1}{1 + \frac{4}{3}(B - 1)}$$

$$(\bar{R}_{5/8})_c = (\bar{R}_{5/8})_{\text{obs.}} \times \frac{1}{B}$$

$$(\bar{R}_{6/8})_c = (\bar{R}_{6/8})_{\text{obs.}} \times \frac{1}{1 + \frac{2}{3}(B - 1)}$$

微小同位体のバイアス補正是NBS表示値と実測値から直接求めることは精度上意味がなく、<sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U同位体比の高精度実測値を比例配分して行うのが妥当である。

なお、今回の分析に用いたバイアス補正係数をTable 9に示した。

## 4.1.6 原子百分率および重量百分率の算出

同位体  $i$  ( $i = 234, 235, 236, 238$ ) の原子百分率  $A_i$ , 重量百分率  $W_i$  は次のように求められる。

$$A_i = \frac{(\bar{R}_{i/8})_c}{1 + \sum (\bar{R}_{i/8})_c} \times 100 ,$$

$$W_i = \frac{A_i \times M_i}{\sum (A_i \times M_i)} \times 100 ,$$

ここで,  $M_i$  は同位体  $i$  の絶対原子質量<sup>6)</sup>である。

原子百分率  $A_i$  の測定誤差  $\sigma_{A_i}$  は誤差伝播の計算<sup>7)</sup>により次のように算出する。すなわち,  
 $P = 1 + \sum (\bar{R}_{i/8})$  とおき,

$$\sigma_{A_{234}}^2 = \frac{1}{P^4} \cdot [ \{ P - (\bar{R}_{4/8})_c \}^2 \cdot \sigma_{(\bar{R}_{4/8})_c}^2 + (\bar{R}_{4/8})_c^2 \cdot \{ \sigma_{(\bar{R}_{5/8})_c}^2 + \sigma_{(\bar{R}_{6/8})_c}^2 \} ] ,$$

$$\sigma_{A_{235}}^2 = \frac{1}{P^4} \cdot [ \{ P - (\bar{R}_{5/8})_c \}^2 \cdot \sigma_{(\bar{R}_{5/8})_c}^2 + (\bar{R}_{5/8})_c^2 \cdot \{ \sigma_{(\bar{R}_{4/8})_c}^2 + \sigma_{(\bar{R}_{6/8})_c}^2 \} ] ,$$

$$\sigma_{A_{236}}^2 = \frac{1}{P^4} \cdot [ \{ P - (\bar{R}_{6/8})_c \}^2 \cdot \sigma_{(\bar{R}_{6/8})_c}^2 + (\bar{R}_{6/8})_c^2 \cdot \{ \sigma_{(\bar{R}_{4/8})_c}^2 + \sigma_{(\bar{R}_{5/8})_c}^2 \} ] ,$$

$$\sigma_{A_{238}}^2 = \frac{1}{P^4} \cdot \{ \sigma_{(\bar{R}_{4/8})_c}^2 + \sigma_{(\bar{R}_{5/8})_c}^2 + \sigma_{(\bar{R}_{6/8})_c}^2 \} ,$$

となる。重量百分率の誤差  $\sigma_{w_i}$  は上と同様に算出できるが、数値の上で  $\sigma_{A_i}$  と近似できる。

## 4.2 質量分析法(動燃分析課)

## 4.2.1 要旨

試料(八酸化三ウラン)を硝酸で溶解し、その一部をフィラメントに塗布する。イオン源に導入して所定の真空度まで排気後、フィラメントを通電加熱する。イオンを発生させ、磁場を通してコレクタで捕捉、増幅してイオン強度を記録紙上にアナログ測定する。この数値から各同位体の原子百分率、重量百分率および原子数比(同位体比)を算出する。

## 4.2.2 適用範囲および精度

本法はウランの全同位体組成分析に適用できる。分析精度は、質量スペクトルの繰返し測定誤差(同一試料内)およびフィラメント間誤差(同じ試料を数回、塗布をしなおし独立に測定したときの測定誤差)を評価して求めるが、Table 6に示すように同位体存在率により異なる。なお、本表は過去5年間に動燃法で測定したNBSウラン同位体標準試料についての測定結果を

解析した値である。

#### 4.2.3 装置および標準物質

- (1) 質量分析計 : Nuclide 12 - 90, SU-2・3型
- (2) 試料塗布装置
- (3) ウラン同位体標準試料 : NBS ウラン同位体標準試料<sup>5)</sup>

#### 4.2.4 操作

- (1) 八酸化三ウラン試料約100mgをビーカにはかりとり、硝酸(1+1) 10mℓで溶解する。ホットプレート上で完全に溶解した後、蒸発乾固する。残分を希硝酸(約0.5N) 20mℓで再溶解する。
- (2) 試料塗布装置とマイクロピペットを用い三重フィラメントマウント(英国Cathodeon社製ガラスビーズ, Re-Re-Reリボン・フィラメント)の両サイドの試料フィラメントに1~1.5Aの直流電流を通じながら、10~20μgU(合量)の試料液を塗布する。
- (3) このフィラメントマウントをイオン源に装着し、徐々に真空排気する。イオン源ハウジングの真圧度が10<sup>-7</sup> Torr以下になったとき、徐々に試料フィラメントおよびイオン化フィラメントに電流を通す。
- (4) マグネット電流、イオン加速電圧を調整してウランイオン(U<sup>+</sup>)のピークを捕捉する。
- (5) マグネット電流、イオン加速電圧、イオン源およびコレクタ・レンズ系の電圧をウラン・ピーク形が良好でスペクトル強度が最大となるように微調整する。
- (6) ウランのイオン電流が安定したときに、フィラメント電流、イオン加速電圧を固定する。磁場電流を走査して、<sup>234</sup>Uから<sup>238</sup>Uまでのスペクトルを21組み繰返し記録する。

#### 4.2.5 原子百分率および重量百分率の算出

まず、ピークセット毎に各同位体のスペクトル強度( $i_4 \sim i_8$ )と電流増幅器の測定レンジ( $G_4 \sim G_8$ )から各スペクトル強度分率( $I_4 \sim I_8$ )をそれぞれ21組み求める。

$$I_j = i_j / G_j \times \sum (i_j / G_j), \quad (j = 4 \sim 8).$$

この $I_j$ の21組みの平均値 $\bar{I}_j$ とプールされた補正係数 $F_j$ ( $j = 4, 5, 6, 8, F_8 \equiv 1$ )とから、各同位体の原子百分率 $A_j$ ( $j = 4, 5, 6, 8$ )を算出する。すなわち、

$$A_j = \bar{I}_j \cdot F_j \times 100 / \sum (\bar{I}_j \cdot F_j)$$

次に、重量百分率 $W_j$ ( $j = 4, 5, 6, 8$ )は各同位体の質量を $M_j$ として、次式から算出される。

$$W_j = A_j \cdot M_j \times 100 / \sum (A_j \cdot M_j)$$

#### 4.2.6 同位体比の算出

基準同位体（親ピーク、例えば<sup>238</sup>U）に対する各同位体の比( $R_{4/8}$ ,  $R_{5/8}$ ,  $R_{6/8}$ )は、原子百分率の比から算出する。

$$R_j/8 = A_j/A_8$$

#### 4.2.7 同位体比のバイアス補正

NBS ウラン同位体標準試料についての本法による測定値( $R'$ )とNBS 表示値( $R$ )とから次のように質量差別効果値（バイアス） $\beta$ を求める<sup>8,9)</sup>。

$$\beta = \frac{M}{\Delta M} \times \left( \frac{R'}{R} - 1 \right),$$

ここで、Mは基準同位体の質量数（<sup>238</sup>UならM=238）、 $\Delta M$ は同位体の質量数の差（<sup>235</sup>Uなら $\Delta M=3$ ）である。この $\beta$ の値から各同位体に関する補正係数（ $F_4$ ～ $F_8$ ）は次のようになる。

$$F_4 = 1 / \{ 1 + (4/238) \times \beta \}$$

$$F_5 = 1 / \{ 1 + (3/238) \times \beta \}$$

$$F_6 = 1 / \{ 1 + (2/238) \times \beta \}$$

$$F_8 = 1$$

## 5. あとがき

本報告の草稿が完成したのは1980年の半ばであった。この間に、各事業所に電算機装備（フィラメント加熱ステップ、イオンレンズ電圧、イオン強度などの制御、データ処理を可能とする）の装置が設置され、原研、動燃、核管センター、日本核燃料開発㈱、旭化成㈱などにおいて運転・測定の経験が蓄積され、こゝに報告された測定精度をしのぐ日常分析の能力を發揮しつつある。

これらの新しい装置および測定法では、使用試料量が1～2 μgU（ファラデーカップ使用）でも<sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U同位体比の再現精度が±0.05%レベルの値を得ることが出来る。微小同位体についても相対精度1%レベルを実現している。しかし、正確さを含めて、今回の表示値を改訂するためには、あと2、3年の期間のデータ管理を確実に行う必要があるよう思える。

なお本報告の実施分担は以下、別記のとおりである。

最後に、本報告のとりまとめが編者らの都合により大幅に遅れたことを深くお詫びする次第である。

#### 4.2.6 同位体比の算出

基準同位体（親ピーク、例えば<sup>238</sup>U）に対する各同位体の比( $R_{4/8}$ ,  $R_{5/8}$ ,  $R_{6/8}$ )は、原子百分率の比から算出する。

$$R_j/8 = A_j/A_8$$

#### 4.2.7 同位体比のバイアス補正

NBS ウラン同位体標準試料についての本法による測定値( $R'$ )とNBS表示値( $R$ )とから次のように質量差別効果値(バイアス)  $\beta$ を求める<sup>8,9)</sup>。

$$\beta = \frac{M}{\Delta M} \times \left( \frac{R'}{R} - 1 \right),$$

ここで、Mは基準同位体の質量数(<sup>238</sup>UならM=238),  $\Delta M$ は同位体の質量数の差(<sup>235</sup>Uなら $\Delta M=3$ )である。この $\beta$ の値から各同位体に関する補正係数( $F_4$ ~ $F_8$ )は次のようになる。

$$F_4 = 1 / \{ 1 + (4/238) \times \beta \}$$

$$F_5 = 1 / \{ 1 + (3/238) \times \beta \}$$

$$F_6 = 1 / \{ 1 + (2/238) \times \beta \}$$

$$F_8 = 1$$

## 5. あとがき

本報告の草稿が完成したのは1980年の半ばであった。この間に、各事業所に電算機設備(フィラメント加熱ステップ、イオンレンズ電圧、イオン強度などの制御、データ処理を可能とする)の装置が設置され、原研、動燃、核管センター、日本核燃料開発㈱、旭化成㈱などにおいて運転・測定の経験が蓄積され、こゝに報告された測定精度をしのぐ日常分析の能力を發揮しつつある。

これらの新しい装置および測定法では、使用試料量が1~2  $\mu\text{g}$  U(ファラデーカップ使用)でも<sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U同位体比の再現精度が±0.05%レベルの値を得ることが出来る。微小同位体についても相対精度1%レベルを実現している。しかし、正確さを含めて、今回の表示値を改訂するためには、あと2、3年の期間のデータ管理を確実に行う必要があるよう思える。

なお本報告の実施分担は以下、別記のとおりである。

最後に、本報告のとりまとめが編者らの都合により大幅に遅れたことを深くお詫びする次第である。

## 実施分担

執筆編集 田村 修三, 橋谷 博 (原研分析センター)  
 調整 小森 卓二 (原研分析センター)  
 加工 中井英一郎 (三菱金属中央研究所)  
 質量分析 田村 修三, 田村 公子, 郡司 勝文 (原研分析センター)  
             和田 幸男ほか (動燃東海事業所分析課)  
 化学分析 橋谷 博, 武石 秀世

## 参考文献

- 1) 核燃料・炉材料等分析委員会「二酸化ウランの分析」, JAERI 4053, 1971年1月.
- 2) 核燃料・炉材料等分析委員会「ウラン濃縮度測定技術の現状」, JAERI-M 82-051,  
1982年6月.
- 3) 小森卓二, 田村修三, 郡司勝文, 田村公子, 質量分析, 18, 1270 (1970).
- 4) 小森卓二, 田村修三, 郡司勝文, 織田善次郎, 質量分析, 21, 27 (1973).
- 5) E.L.Garner, L.A.Machlan, and W.R.Shields, NBS Spec. Publ. 260 - 27, April  
1971.
- 6) A.H.Wapstra and K.Bos, Atom. Data Nucl. Data Tables, 19, 177 (1977).
- 7) 本間 仁, 春日尾伸昌, 「次元解析・最小2乗法と実験式」(応用数学講座 第5巻),  
コロナ社, 1957年1月, pp. 89 ~ 95.
- 8) " 1972 Annual Book of ASTM Standards ", E 321-67 T (1972).
- 9) C.J.Rodden (Ed.), " Selected Measurement Methods for Plutonium and  
Uranium in the Nuclear Fuel Cycle ", U.S.AEC (1972).

## 実施分担

執筆編集 田村 修三, 橋谷 博 (原研分析センター)  
 調整 小森 卓二 (原研分析センター)  
 加工 中井英一郎 (三菱金属中央研究所)  
 質量分析 田村 修三, 田村 公子, 郡司 勝文 (原研分析センター)  
             和田 幸男ほか (動燃東海事業所分析課)  
 化学分析 橋谷 博, 武石 秀世

## 参考文献

- 1) 核燃料・炉材料等分析委員会「二酸化ウランの分析」, JAERI 4053, 1971年1月.
- 2) 核燃料・炉材料等分析委員会「ウラン濃縮度測定技術の現状」, JAERI-M 82-051,  
1982年6月.
- 3) 小森卓二, 田村修三, 郡司勝文, 田村公子, 質量分析, 18, 1270 (1970).
- 4) 小森卓二, 田村修三, 郡司勝文, 織田善次郎, 質量分析, 21, 27 (1973).
- 5) E. L. Garner, L. A. Machlan, and W. R. Shields, NBS Spec. Publ. 260 - 27, April  
1971.
- 6) A. H. Wapstra and K. Bos, Atom. Data Nucl. Data Tables, 19, 177 (1977).
- 7) 本間 仁, 春日尾伸昌, 「次元解析・最小2乗法と実験式」(応用数学講座 第5巻),  
コロナ社, 1957年1月, pp. 89 ~ 95.
- 8) "1972 Annual Book of ASTM Standards", E 321 - 67 T (1972).
- 9) C. J. Rodden (Ed.), "Selected Measurement Methods for Plutonium and  
Uranium in the Nuclear Fuel Cycle", U.S.AEC (1972).

Table 1      Impurities in JAERI-U5\*

Element	Sample					
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5	No. 6
Ag	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
Al	< 14	< 14	14	< 14	< 14	< 14
B	< 0.3	0.3	0.3	< 0.3	0.3	0.3
Bi	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1
Ca	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10
Cd	< 0.6	< 0.6	< 0.6	< 0.6	< 0.6	< 0.6
Cr	< 3	< 3	8	5	5	5
Cu	< 0.5	1.	0.5	12	< 0.5	1.4
Fe	< 14	< 14	14	< 14	14	14
Mg	2	2	2	2	2	2
Mn	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2
Mo	< 3	21	11	6	3	3
Ni	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2
Pb	2	2	< 1	2	1	1
Si	12	12	60	12	34	34
Sn	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1
V	< 3	< 3	< 3	< 3	< 3	< 3
K	< 50	< 50	< 50	< 50	< 50	< 50
Na	< 50	< 50	< 50	< 50	< 50	< 50
N	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10
Dy**	-	-	-	-	0.07 <sub>s</sub>	0.07 <sub>s</sub>

\* 1 Analyzed by Mitsubishi Metal Res. Institute. Except with flame photometry for K (ppm in sample), spectrophotometry for N (ppm in sample) and X-ray fluorescence method for Dy (% in sample), emission spectrography (ppm in U) were used.

\* 2 Values obtained by Japan Atomic Energy Res. Institute using Arsenazo III photometry after ion exchange separation are as follows : No 5 = 0.088<sub>1</sub>, No 6 = 0.085<sub>2</sub>.

Table 2-(1) Result of homogeneity test for  
No. 1 sample of JAERI-U5  
(Analyzed at JAERI)

Bottle No. (Anal. No.)	Average $\pm$ std. dev. ( $\sigma_{n-1}$ )*, At. %			
	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
1050 (1)	0.00074 $\pm 0.000035$	0.2038 $\pm 0.00028$	0.00181 $\pm 0.000066$	99.7937 $\pm 0.00029$
	0.00079 $\pm 0.000065$	0.2033 $\pm 0.00034$	0.00176 $\pm 0.000071$	99.7942 $\pm 0.00036$
	0.00080 $\pm 0.000032$	0.2039 $\pm 0.00038$	0.00174 $\pm 0.000059$	99.7936 $\pm 0.00039$
1150 (1)	0.00076 $\pm 0.000012$	0.2037 $\pm 0.00012$	0.00175 $\pm 0.000085$	99.7938 $\pm 0.00015$
	0.00087 $\pm 0.000065$	0.2040 $\pm 0.00033$	0.00191 $\pm 0.000088$	99.7932 $\pm 0.00035$
	0.00086 $\pm 0.000126$	0.2032 $\pm 0.00026$	0.00183 $\pm 0.000088$	99.7942 $\pm 0.00030$
1250 (1)	0.00074 $\pm 0.000041$	0.2035 $\pm 0.00027$	0.00180 $\pm 0.000078$	99.7940 $\pm 0.00028$
	0.00075 $\pm 0.000016$	0.2036 $\pm 0.00016$	0.00185 $\pm 0.000059$	99.7938 $\pm 0.00018$
	0.00077 $\pm 0.000037$	0.2039 $\pm 0.00014$	0.00174 $\pm 0.000114$	99.7935 $\pm 0.00018$
$\bar{x}$ $\pm \sigma_{n-1}$	0.00079 $\pm 0.000049$	0.2037 $\pm 0.00028$	0.00180 $\pm 0.000058$	99.7938 $\pm 0.00033$

\* Average of 10 peak sets for  $^{235}\text{U}$  and  $^{238}\text{U}$ , and of 8 for  
 $^{234}\text{U}$  and  $^{236}\text{U}$ .

Table 2-(2) Result of homogeneity test for  
No. 2 sample of JAERI-U5  
(Analyzed at JAERI)

Bottle No. (Anal. No.)	Average $\pm$ std. dev. ( $\sigma_{n-1}$ )*, At. %			
	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
2050 (1)	0.00374 $\pm 0.000068$	0.8081 $\pm 0.00062$	0.00682 $\pm 0.000321$	99.1813 $\pm 0.00070$
	0.00367 $\pm 0.000077$	0.8090 $\pm 0.00066$	0.00692 $\pm 0.000123$	99.1804 $\pm 0.00068$
	0.00357 $\pm 0.000041$	0.8093 $\pm 0.00032$	0.00696 $\pm 0.000087$	99.1802 $\pm 0.00032$
2150 (1)	0.00350 $\pm 0.000135$	0.8096 $\pm 0.00067$	0.00670 $\pm 0.000165$	99.1802 $\pm 0.00070$
	0.00368 $\pm 0.000058$	0.8088 $\pm 0.00051$	0.00694 $\pm 0.000010$	99.1806 $\pm 0.00051$
	0.00355 $\pm 0.000139$	0.8094 $\pm 0.00015$	0.00689 $\pm 0.000128$	99.1802 $\pm 0.00021$
2250 (1)	0.00352 $\pm 0.000045$	0.8083 $\pm 0.00054$	0.00664 $\pm 0.000113$	99.1815 $\pm 0.00055$
	0.00369 $\pm 0.000075$	0.8092 $\pm 0.00017$	0.00696 $\pm 0.000134$	99.1801 $\pm 0.00023$
	0.00349 $\pm 0.000087$	0.8087 $\pm 0.00029$	0.00711 $\pm 0.000061$	99.1807 $\pm 0.00031$
$\bar{x}$	0.00360	0.8089	0.00688	99.1806
$\pm \sigma_{n-1}$	$\pm 0.000094$	$\pm 0.00050$	$\pm 0.000143$	$\pm 0.00051$

\* See Table 2-(1)

Table 2 - (3)      Result of homogeneity test for  
 No. 3 sample of JAERI-U5  
 (Analyzed at JAERI)

Bottle No. (Anal. No.)	Average $\pm$ std. dev. ( $\sigma_{n-1}$ ), * At. %			
	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
3050 (1)	0.00802 $\pm 0.000222$	1.518 $\pm 0.0012$	0.00890 $\pm 0.000353$	98.465 $\pm 0.0013$
	0.00816 $\pm 0.000212$	1.523 $\pm 0.0006$	0.00906 $\pm 0.000271$	98.460 $\pm 0.0007$
	0.00821 $\pm 0.000065$	1.521 $\pm 0.0009$	0.00912 $\pm 0.000215$	98.462 $\pm 0.0010$
3150 (1)	0.00808 $\pm 0.000112$	1.520 $\pm 0.0006$	0.00928 $\pm 0.000111$	98.463 $\pm 0.0006$
	0.00808 $\pm 0.000230$	1.521 $\pm 0.0016$	0.00906 $\pm 0.000210$	98.462 $\pm 0.0016$
	0.00808 $\pm 0.000132$	1.522 $\pm 0.0006$	0.00906 $\pm 0.000076$	98.461 $\pm 0.0006$
3250 (1)	0.00801 $\pm 0.000154$	1.519 $\pm 0.0002$	0.00861 $\pm 0.000197$	98.465 $\pm 0.0003$
	0.00807 $\pm 0.000092$	1.523 $\pm 0.0009$	0.00889 $\pm 0.000154$	98.460 $\pm 0.0009$
	0.00791 $\pm 0.000176$	1.518 $\pm 0.0004$	0.00857 $\pm 0.000106$	98.466 $\pm 0.0004$
$\bar{x}$	0.00807	1.521	0.00895	98.
$\pm \sigma_{n-1}$	$\pm 0.000086$	$\pm 0.0019$	$\pm 0.000235$	$\pm 0.0022$

\* See Table 2 - (1)

Table 2-(4)      Result of homogeneity test for  
 No. 4 sample of JAERI-U5  
 (Analyzed at JAERI)

Bottle No. (Anal. No.)	Average $\pm$ std. dev. ( $\sigma_{n-1}$ )*, At %			
	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
4050 (1)	0.0122 $\pm 0.00025$	2.590 $\pm 0.0014$	0.0213 $\pm 0.00030$	97.376 $\pm 0.0014$
	0.0123 $\pm 0.00042$	2.595 $\pm 0.0036$	0.0219 $\pm 0.00020$	97.371 $\pm 0.0036$
	0.0122 $\pm 0.00010$	2.593 $\pm 0.0009$	0.0214 $\pm 0.00014$	97.374 $\pm 0.0010$
4150 (1)	0.0120 $\pm 0.00017$	2.590 $\pm 0.0010$	0.0214 $\pm 0.00027$	97.376 $\pm 0.0011$
	0.0120 $\pm 0.00014$	2.590 $\pm 0.0011$	0.0219 $\pm 0.00020$	97.376 $\pm 0.0012$
	0.0121 $\pm 0.00029$	2.594 $\pm 0.0018$	0.0215 $\pm 0.00042$	97.372 $\pm 0.0019$
4250 (1)	0.0123 $\pm 0.00009$	2.593 $\pm 0.0018$	0.0218 $\pm 0.00023$	97.373 $\pm 0.0018$
	0.0121 $\pm 0.00021$	2.588 $\pm 0.0032$	0.0221 $\pm 0.00036$	97.378 $\pm 0.0032$
	0.0119 $\pm 0.00012$	2.592 $\pm 0.0009$	0.0217 $\pm 0.00014$	97.374 $\pm 0.0010$
$\bar{x}$	0.0121	2.592	0.0217	97.374
$\pm \sigma_{n-1}$	$\pm 0.00014$	$\pm 0.0023$	$\pm 0.00028$	$\pm 0.0022$

\* See Table 2-(1)

Table 2 -(5)      Result of homogeneity test for  
 No. 5 sample of JAERI-U 5  
 (Analyzed at JAERI)

Bottle No. (Anal. No.)	Average $\pm$ std. dev. ( $\sigma_{n-1}$ ) * At. %			
	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
5050 (1)	0.0236 $\pm 0.00031$	3.644 $\pm 0.0020$	0.0201 $\pm 0.00018$	96.313 $\pm 0.0021$
	0.0235 $\pm 0.00025$	3.644 $\pm 0.0024$	0.0198 $\pm 0.00014$	96.312 $\pm 0.0024$
	0.0235 $\pm 0.00047$	3.642 $\pm 0.0010$	0.0205 $\pm 0.00028$	96.314 $\pm 0.0011$
5150 (1)	0.0235 $\pm 0.00015$	3.642 $\pm 0.0031$	0.0200 $\pm 0.00016$	96.315 $\pm 0.0031$
	0.0233 $\pm 0.00029$	3.645 $\pm 0.0014$	0.0195 $\pm 0.00030$	96.312 $\pm 0.0015$
	0.0236 $\pm 0.00012$	3.650 $\pm 0.0016$	0.0197 $\pm 0.00012$	96.307 $\pm 0.0017$
5250 (1)	0.0231 $\pm 0.00041$	3.644 $\pm 0.0028$	0.0198 $\pm 0.00032$	96.314 $\pm 0.0028$
	0.0238 $\pm 0.00025$	3.642 $\pm 0.0012$	0.0201 $\pm 0.00040$	96.314 $\pm 0.0013$
	0.0237 $\pm 0.00064$	3.642 $\pm 0.0032$	0.0196 $\pm 0.00048$	96.314 $\pm 0.0033$
$\bar{x}$	0.0235	3.644	0.0199	96.313
$\pm \sigma_{n-1}$	$\pm 0.00021$	$\pm 0.0026$	$\pm 0.00031$	$\pm 0.0024$

\* See Table 2 -- (1)

Table 2 - (6)      Result of homogeneity test for  
 No. 6 sample of JAERI-U5  
 (Analyzed at JAERI)

Bottle No. (Anal. No.)	Average $\pm$ std. dev. ( $\sigma_{n-1}$ ), At. %			
	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
6050 (1)	0.0276 $\pm 0.00014$	4.561 $\pm 0.0019$	0.0272 $\pm 0.00020$	95.384 $\pm 0.0019$
	0.0279 $\pm 0.00026$	4.564 $\pm 0.0030$	0.0278 $\pm 0.00037$	95.380 $\pm 0.0030$
	0.0275 $\pm 0.00028$	4.568 $\pm 0.0025$	0.0278 $\pm 0.00030$	95.377 $\pm 0.0026$
6150 (1)	0.0274 $\pm 0.00016$	4.570 $\pm 0.0044$	0.0283 $\pm 0.00027$	95.374 $\pm 0.0044$
	0.0278 $\pm 0.00031$	4.562 $\pm 0.0014$	0.0276 $\pm 0.00028$	95.382 $\pm 0.0014$
	0.0281 $\pm 0.00021$	4.557 $\pm 0.0032$	0.0278 $\pm 0.00052$	95.388 $\pm 0.0032$
6250 (1)	0.0276 $\pm 0.00041$	4.562 $\pm 0.0041$	0.0277 $\pm 0.00041$	95.382 $\pm 0.0042$
	0.0276 $\pm 0.00056$	4.564 $\pm 0.0034$	0.0273 $\pm 0.00035$	95.381 $\pm 0.0021$
	0.0270 $\pm 0.00031$	4.565 $\pm 0.0034$	0.0282 $\pm 0.00035$	95.379 $\pm 0.0034$
$\bar{x}$	0.0276	4.564	0.0277	95.381
$\pm \sigma_{n-1}$	$\pm 0.00031$	$\pm 0.0038$	$\pm 0.00036$	$\pm 0.0040$

\* See Table 2 - (1)

Table 3      Homogeneity test for  $^{235}\text{U}$   
                  atomic percents in JAERI-U5  
                  (Analysis of variance)

Sample	Analysis of variance			
	S *	$\phi$	V *	F <sub>o</sub>
JAERI-U5 No. 1	a) $S_B$ 0.22	2	$V_B$ 0.11	0.01
	a) $S_w$ 62.00	6	$V_w$ 10.33	
No. 2	$S_B$ 50.67	2	$V_B$ 25.34	0.99
	$S_w$ 153.3	6	$V_w$ 25.55	
No. 3	$S_B$ 1.55	2	$V_B$ 0.777	0.16
	$S_w$ 29.67	6	$V_w$ 4.95	
No. 4	$S_B$ 4.67	2	$V_B$ 2.34	0.38
	$S_w$ 37.33	6	$V_w$ 6.22	
No. 5	$S_B$ 14.89	2	$V_B$ 7.45	1.18
	$S_w$ 38.00	6	$V_w$ 6.33	
No. 6	$S_B$ 2.67	2	$V_B$ 1.34	0.07
	$S_w$ 115.3	6	$V_w$ 19.22	

\* Magnification of  $10^8$  for No. 1 and No. 2 , of  $10^6$  for No. 3 to No. 6

a) Subscripts B and W denote " between bottles "  
      and " within bottles ", respectively.

Table 4 Instrument used and working conditions

Lab.	Instrument	Filament	Sample loaded (U)	Detector	Ion acceleration voltage (kV)	No. of calculated peak sets
JAERI	CEC21-702B (12", 60°)	Triple, Ta-Re-Ta	25 μg × 2	Faraday, $R_0 = 10^6 \Omega$ , Expanded scale	6, 9	10
PNC	Nuclide 12-90 (12", 90°)	Triple, Re-Re-Re	5 μg × 2	SEM, $R_0 = 10^9 \Omega$ , (Acc. Volt., 1 kV)	10	21
JAERI*	CEC-NBS (Home-made) 12", 60°	Triple, Ta-Re-Ta	2.5 μg × 2	SEM, $R_0 = 10^9 \Omega$ , (Acc. Volt., 1.5 kV)	7.0	10

\* Data obtained by this instrument were not used in collaborative works for certification.

Table 5 Analytical results for minor isotopes in NBS SRM's  
by faraday - cup detection (JAERI)

 $(\times 10^6)$ 

Sample	U - 015			U - 020			U - 050		
	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
NBS Value	21. 9 ± 0. 4	4.6. 8 ± 0. 5	127. 6 ± 1. 0	168. 4 ± 1. 0	293. 9 ± 1. 0	505. 7 ± 2. 1			
a)									
1	20. 8 <sub>1</sub>	47. 0 <sub>4</sub>	125. 9	166. 0	288. 8	493. 3			
2	21. 6 <sub>1</sub>	47. 7 <sub>7</sub>	123. 8	168. 2	290. 3	509. 6			
3	21. 6 <sub>1</sub>	47. 2 <sub>7</sub>	128. 0	168. 9	289. 2	502. 7			
4	22. 1 <sub>2</sub>	47. 9 <sub>9</sub>	129. 8	169. 9	289. 8	505. 5			
5	21. 9 <sub>9</sub>	46. 1 <sub>6</sub>	127. 4	162. 2	292. 8	507. 7			
6	20. 8 <sub>3</sub>	46. 7 <sub>3</sub>	***	***	296. 2	508. 7			
7	21. 6 <sub>4</sub>	48. 1 <sub>3</sub>	***	***	296. 6	509. 0			
8	21. 9 <sub>4</sub>	47. 0 <sub>8</sub>	***	***	293. 3	506. 2			
9	23. 7 <sub>0</sub>	47. 3 <sub>0</sub>	***	***	289. 4	501. 3			
$\bar{x}$	21. 8 <sub>0</sub>	47. 2 <sub>8</sub>	127. 0	167. 0	291. 8	504. 9			
$\sigma_{N^{-1}}$	0. 8 <sub>5</sub>	0. 6 <sub>3</sub>	2. 3	3. 1	3. 0	5. 2			

Observed Values \*

\* Average for different sample loadings. Each contains 8 peak sets.

\*\* Not measured.

a) Calculated values of NBS certificates in atomic percents.

Table 6      Precision control data at PNC  
for five years (1974~1978).\*

Isotopic abundance (Atom %)	Analytical precision (Coef-of variation %)
99.97	0.0001 <sub>7</sub>
99.50	0.003 <sub>4</sub>
99.00	0.003 <sub>8</sub>
95.00	0.008 <sub>4</sub>
90.00	0.02 <sub>1</sub>
50.00	0.04 <sub>6</sub>
10.00	0.2 <sub>0</sub>
1.00	0.3 <sub>8</sub>
0.10	0.6 <sub>5</sub>
0.01	1.1
0.001	1.9

\* Observed values for NBS SRM's using  
secondary-electron-multiplier detection.

Table 7 Collaborative analysis result for JAERI-U5  
between JAERI and PNC

(At.%)

Isotope	$^{234}\text{U}$		$^{235}\text{U}$		$^{236}\text{U}$		$^{238}\text{U}$	
Lab.	JAERI	PNC	JAERI	PNC	JAERI	PNC	JAERI	PNC
No. 1	0.00079	0.00077	0.2038	0.2043	0.00174	0.00190	99.794	99.793
	0.00073	0.00078	0.2032	0.2034	0.00183	0.00192	99.794	99.794
	0.00070	0.00079	0.2035	0.2043	0.00177	0.00181	99.794	99.793
	0.00082	0.00077	0.2031	0.2033	0.00186	0.00186	99.794	99.794
	0.00078	0.00077	0.2036	0.2030	0.00189	0.00189	99.794	99.794
	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		0.2035 <sub>5</sub>		0.00184 <sub>7</sub>		99.793 <sub>8</sub>	
No. 2	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		0.00046		0.00005 <sub>9</sub>		0.00042	
	0.00356	0.00363	0.8089	0.8064	0.00693	0.00688	99.181	99.183
	0.00365	0.00361	0.8088	0.8105	0.00701	0.00683	99.181	99.179
	0.00371	0.00362	0.8084	0.8084	0.00705	0.00678	99.181	99.181
	0.00362	0.00359	0.8078	0.8091	0.00701	0.00677	99.182	99.181
	0.00345	0.00355	0.8096	0.8097	0.00689	0.00681	99.180	99.180
No. 3	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		0.8087 <sub>6</sub>		0.00689 <sub>6</sub>		99.180 <sub>9</sub>	
	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		0.00113		0.00010 <sub>1</sub>		0.001 <sub>1</sub>	
	0.00813	0.00796	1.518	1.519	0.00887	0.00899	98.465	98.464
	0.00829	0.00810	1.521	1.521	0.00922	0.00907	98.462	98.462
	0.00827	0.00806	1.518	1.519	0.00928	0.00900	98.465	98.464
	0.00811	0.00799	1.520	1.516	0.00936	0.00892	98.462	98.467
No. 4	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		1.520	1.517	0.00939	0.00898	98.462	98.466
	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		0.00809 <sub>7</sub>		0.00910 <sub>8</sub>		98.463 <sub>9</sub>	
	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		0.000124		0.000189		0.0019	
	0.0120	0.0120	2.593	2.595	0.0216	0.0215	97.374	97.372
	0.0121	0.0119	2.593	2.597	0.0213	0.0216	97.373	97.369
	0.0120	0.0120	2.593	2.593	0.0212	0.0216	97.373	97.374
No. 5	0.0121	0.0120	2.589	2.594	0.0217	0.0215	97.377	97.372
	0.0122	0.0120	2.589	2.595	0.0220	0.0216	97.376	97.371
	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		2.593 <sub>1</sub>		0.0215 <sub>6</sub>		97.373 <sub>1</sub>	
	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		0.0025		0.00022		0.0023	
	0.0236	0.0234	3.645	3.637	0.0204	0.0197	96.311	96.320
	0.0238	0.0233	3.647	3.641	0.0201	0.0198	96.309	96.316
No. 6	0.0238	0.0235	3.647	3.643	0.0201	0.0198	96.309	96.314
	0.0238	0.0234	3.643	3.650	0.0199	0.0198	96.313	96.307
	0.0235	0.0228	3.643	3.650	0.0198	0.0196	96.314	96.308
	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		3.644 <sub>6</sub>		0.0199 <sub>0</sub>		96.312 <sub>1</sub>	
	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		0.0041		0.00024		0.0041	
	0.0272	0.0280	4.556	4.560	0.0277	0.0283	95.390	95.384
	0.0277	0.0277	4.560	4.563	0.0279	0.0282	95.385	95.381
	0.0278	0.0280	4.559	4.571	0.0278	0.0287	95.386	95.372
	0.0277	0.0278	4.563	4.566	0.0280	0.0278	95.382	95.378
	0.0279	0.0276	4.566	4.573	0.0283	0.0283	95.378	95.372
	$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		4.563 <sub>7</sub>		0.0281 <sub>0</sub>		95.380 <sub>8</sub>	
$\bar{x}_{\sigma_{N-1}}$		0.00023	0.0054		0.00031		0.0059	

Table 8 -(1)      Values collected for JAERI - U5  
 No. 1 samples

(  $^{235}\text{U}$  at. % )

Certified value	Lab.	Observed values	
		Average and std. dev. (N)	
0.2036	JAERI (a)	0.2038	$\bar{x}_a$ 0.2034 <sub>4</sub>
		0.2032	$\sigma_{N-1}$ 0.00028 <sub>8</sub> (5)
		0.2035	$\bar{x}_b$ 0.2036 <sub>6</sub>
		0.2031	$\sigma_{N-1}$ 0.00060 <sub>2</sub> (5)
		0.2036	
	PNC (b)	0.2043	
		0.2034	
		0.2043	$\bar{x}_{a,b}$ 0.2035 <sub>5</sub>
		0.2033	$\sigma_{N-1}$ 0.00046 (10)
		0.2030	
	JAERI Homo- -geneity test	{ 0.2038 0.2033 0.2039	
		{ 0.2037 0.2040 0.2032	
		{ 0.2035 0.2036 0.2039	$\bar{x}$ 0.20366
			$\sigma_{N-1}$ 0.00028 (9)
	Misc. anal.	0.2040	
		0.2036	
		0.2031	
		0.2032	
Grand av. and std. dev.		$\bar{x}$ 0.2035 <sub>8</sub> $\sigma_{N-1}$ 0.00038 ( 23 )	

Table 8 -(2)      Values collected for JAERI-U5  
No. 2 Samples

(  $^{235}\text{U}$  at.% )

Certified value	Lab.	Observed values		
		Average and std. dev. (N)		
0.8088	JAERI (a)	0.8089	$\bar{x}_a$	0.8087 <sub>0</sub>
		0.8088	$\sigma_{N-1}$	0.00066 <sub>3</sub> (5)
		0.8084	$\bar{x}_b$	0.8088 <sub>8</sub>
		0.8078	$\sigma_{N-1}$	0.00157 <sub>7</sub> (5)
		0.8096		
	PNC (b)	0.8064		
		0.8105		
		0.8084	$\bar{x}_{a,b}$	0.8087 <sub>6</sub>
		0.8094	$\sigma_{N-1}$	0.0011 <sub>3</sub> (10)
		0.8097		
	JAERI Homo- -geneity test	0.8081		
		0.8090		
		0.8093		
		0.8096		
		0.8088		
		0.8094		
		0.8083	$\bar{x}$	0.8089 <sub>3</sub>
		0.8092	$\sigma_{N-1}$	0.00050 (9)
		0.8087		
	Misc. anal.	0.8083		
		0.8087		
		0.8086		
Grand av. and std. dev.		$\bar{x}$	0.8088 <sub>1</sub>	
		$\sigma_{N-1}$	0.00082 (22)	

Table 8 -(3)      Values collected for JAERI-U5  
No. 3 samples

( $^{235}\text{U}$  at. %)

Certified value	Lab.	Observed values			
		Average and std. dev. (N)			
1.519	JAERI (a)	1.518	$\bar{x}_a$	1.519 <sub>4</sub>	
		1.521	$\sigma_{N-1}$	0.0013 <sub>4</sub> (5)	
		1.518	$\bar{x}_b$	1.518 <sub>4</sub>	
		1.520	$\sigma_{N-1}$	0.0019 <sub>4</sub> (5)	
		1.520			
	PNC (b)	1.519			
		1.521			
		1.519	$\bar{x}_{a,b}$	1.5189	
		1.516	$\sigma_{N-1}$	0.0017 (10)	
		1.517			
	JAERI Homo - -geneity test	1.518			
		1.523			
		1.521			
		1.520			
		1.521			
		1.522			
		1.519	$\bar{x}$	1.520 <sub>6</sub>	
		1.523	$\sigma_{N-1}$	0.0019 (9)	
		1.518			
	Misc. anal.	1.515			
		1.525			
		1.523			
Grand av. and std. dev.		$\bar{x}$	1.519 <sub>9</sub>		
		$\sigma_{N-1}$	0.0025 (22)		

Table 8 -(4) Values collected for JAERI-U5

No. 4 samples

(  $^{235}\text{U}$  at. % )

Certified value	Lab.	Observed values		
		Average and std. dev. (N)		
2.593	JAERI (a)	2.593	$\bar{x}_a$	2.591 <sub>4</sub>
		2.593	$\sigma_{N-1}$	0.0021 <sub>9</sub> (5)
		2.593	$\bar{x}_b$	2.594 <sub>8</sub>
		2.589	$\sigma_{N-1}$	0.0014 <sub>8</sub> (5)
		2.589		
	PNC (b)	2.595		
		2.597		
		2.593	$\bar{x}_{a,b}$	2.593 <sub>1</sub>
		2.594	$\sigma_{N-1}$	0.0025 (10)
		2.595		
	JAERI Homo- geneity test	2.590		
		2.595		
		2.593		
		2.590		
		2.590		
		2.594		
		2.593	$\bar{x}$	2.591 <sub>7</sub>
		2.588	$\sigma_{N-1}$	0.0017 (9)
		2.592		
	Misc. anal.	2.595		
		2.590		
		2.587		
Grand av. and std. dev.		$\bar{x}$	2.592 <sub>2</sub>	
		$\sigma_{N-1}$	0.0027 (22)	

Table 8 -(5) Values collected for JAERI-U5  
No. 5 samples

(  $^{235}\text{U}$  at. % )

Certified value	Lab.	Observed values		
		Average and std. dev. (N)		
3.645	JAERI (a)	3.645	$\bar{x}_a$	3.645 <sub>0</sub>
		3.647	$\sigma_{N-1}$	0.0020 <sub>0</sub> (5)
		3.647	$\bar{x}_b$	3.6442
		3.643	$\sigma_{N-1}$	0.0057 <sub>2</sub> (5)
		3.643		
	PNC (b)	3.637		
		3.641		
		3.643	$\bar{x}_{a,b}$	3.644 <sub>6</sub>
		3.650	$\sigma_{N-1}$	0.0041 (10)
		3.650		
	JAERI Homo- -geneity test	3.644		
		3.644		
		3.642		
		3.642		
		3.645		
		3.650		
		3.644	$\bar{x}$	3.643 <sub>9</sub>
		3.642	$\sigma_{N-1}$	0.0026 (9)
		3.642		
Grand av. and std. dev.	Misc. anal.	3.644		
		3.644		
		3.644		
	$\bar{x}$	3.644 <sub>2</sub>		
	$\sigma_{N-1}$	0.0031 (22)		

Table 8-(6) Values collected for JAERI-U5

No. 6 samples

(  $^{235}\text{U}$  at.% )

4. 564	JAERI (a)	4. 556	$\bar{x}_a$ 4. 560, $\sigma_{N-1}$ 0. 0038, (5)
		4. 560	
		4. 559	
		4. 563	
		4. 566	
	PNC (b)	4. 560	$\bar{x}_{a,b}$ 4. 563, $\sigma_{N-1}$ 0. 0054 (10)
		4. 563	
		4. 571	
		4. 566	
		4. 573	
	JAERI Homo - - geneity test	4. 561	$\bar{x}$ 4. 563, $\sigma_{N-1}$ 0. 0038 (9)
		4. 564	
		4. 568	
		4. 570	
		4. 562	
		4. 557	
		4. 562	
		4. 564	
		4. 565	
	Misc. anal.	4. 563	
		4. 566	
		4. 567	
		4. 562	
		4. 563	
Grand av. and std. dev.		$\bar{x}$ 4. 563, $\sigma_{N-1}$ 0. 0042 (24)	

Table 9 Certificate of Analysis of JAERI-U5

(English version)

JAPAN ATOMIC ENERGY RESEARCH INSTITUTE  
**Certificate of Analysis**

Certified Reference Materials

JAERI - U5  
 $\text{U}_3\text{O}_8$  for uranium isotopic ratio determination

Sample	<u><math>^{234}\text{U}</math></u>	<u><math>^{235}\text{U}</math></u>	<u><math>^{236}\text{U}</math></u>	<u><math>^{238}\text{U}</math></u>
No. 1 0.00077 0.00076	0.00077 0.2036 0.2010	0.2036 0.00185 0.00183	9.9794 9.9796	
No. 2 0.00361 0.00355	0.00361 0.7987	0.8088 0.00684	9.9181 9.9191	
No. 3 0.00810 0.00797	0.00810 1.519 1.500	1.519 0.00911 0.00905	9.8464 9.8483	
No. 4 0.0118	0.0118	2.593 2.561	0.0216 0.0214	9.7373 9.7406
No. 5 0.0235 0.0231	0.0235 3.645	3.645 3.601	0.0199 0.0197	9.6312 9.6357
No. 6 0.0277 0.0273	0.0277 4.564	4.564 4.509	0.0281 0.0279	9.5381 9.5436

Upper figures are atomic % and others weight %.

June 1979

Analytical Chemistry Laboratory,  
 Japan Atomic Energy Research Institute  
 Tokai, Ibaraki, Japan

— (Back Page) —

JAERI-U5 is consisted of 6 samples of No.1 to No.6.  
 Each bottle contains 2.00 g of  $\text{U}_3\text{O}_8$  powder. The glass bottle  
 of low content of potassium was used for non-destructive  
 gamma-rays spectrometry.

Samples

Preparation

The preparation of samples was consigned to Mitsubishi Metal  
 Research Institute. It includes blending in solution,  
 precipitation, ignition, bottling and packing.

Certification

A collaborative analysis was carried out between JAERI and PNC  
 (Power Reactor and Nuclear Fuels Development Corporation) with  
 mass spectrometry. The results were evaluated by the Committee  
 on Analytical Chemistry of Nuclear Fuels and Reactor Materials,  
 JAERI. NBS SRM's were used as reference in the measurement.

Note

A detailed technical report on the preparation, collaborative  
 analysis and analytical procedures used is available from  
 JAERI (JAERI-M 82-053, in Japanese, 1982).

Table 10 Bias values ( $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) observed for NBS SRN's by faraday-cup detection (JAERI)

(R 5/8) obs.	SRM	U-005	NBS			SRM	U-020	NBS			SRM	U-050
			(R5/8) obs.	(CV %)	Bias*			(R5/8) obs.	(CV %)	Bias*		
0. 004931 <sub>3</sub>	( 0. 12 )	1. 0025	0. 02086 <sub>1</sub>	( 0. 14 )	1. 0025	0. 05298 <sub>8</sub>	( 0. 04 )	1. 0039				
0. 004934 <sub>8</sub>	( 0. 11 )	1. 0032	0. 02087 <sub>9</sub>	( 0. 07 )	1. 0033	0. 05297 <sub>5</sub>	( 0. 11 )	1. 0037				
0. 004933 <sub>4</sub>	( 0. 08 )	1. 0037	0. 02087 <sub>2</sub>	( 0. 06 )	1. 0030	0. 05294 <sub>2</sub>	( 0. 05 )	1. 0031				
0. 004931 <sub>6</sub>	( 0. 07 )	1. 0026	0. 02087 <sub>5</sub>	( 0. 05 )	1. 0031	0. 05299 <sub>0</sub>	( 0. 03 )	1. 0040				
0. 004934 <sub>9</sub>	( 0. 08 )	1. 0032	0. 02088 <sub>1</sub>	( 0. 07 )	1. 0034	0. 05296 <sub>1</sub>	( 0. 03 )	1. 0034				
0. 004941 <sub>1</sub>	( 0. 03 )	1. 0045	—	—	—**	0. 05294 <sub>6</sub>	( 0. 05 )	1. 0031				
0. 004933 <sub>0</sub>	( 0. 05 )	1. 0037	—	—	—**	—	—	—*				
Mean of bias			1. 0033 <sub>4</sub>			1. 0033 <sub>6</sub>			1. 0035 <sub>3</sub>			
Std. dev.			± 0. 0069 (7)			± 0. 0035 <sub>1</sub> (5)			± 0. 00039 <sub>3</sub> (6)			
Grand mean of bias			1. 0033 <sub>3</sub>									
std. dev.			± 0. 00053 <sub>0</sub>		(18)							

\* Bias = (R 5/8) obs. / (R 5/8) NBS. Values cited were obtained in the period of June 1978 to

July 1979. NBS values are those of as of the year 1971.

\*\* Not measured.

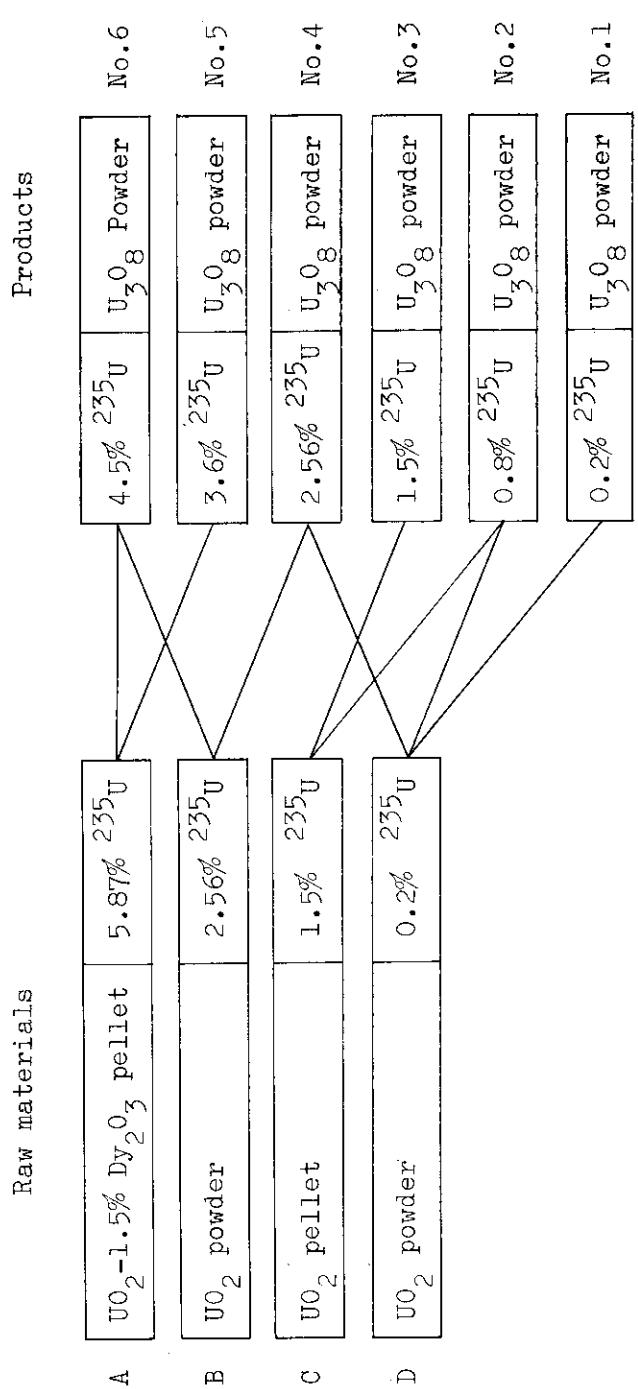


Fig.1 Raw materials and products of JAERI-U5

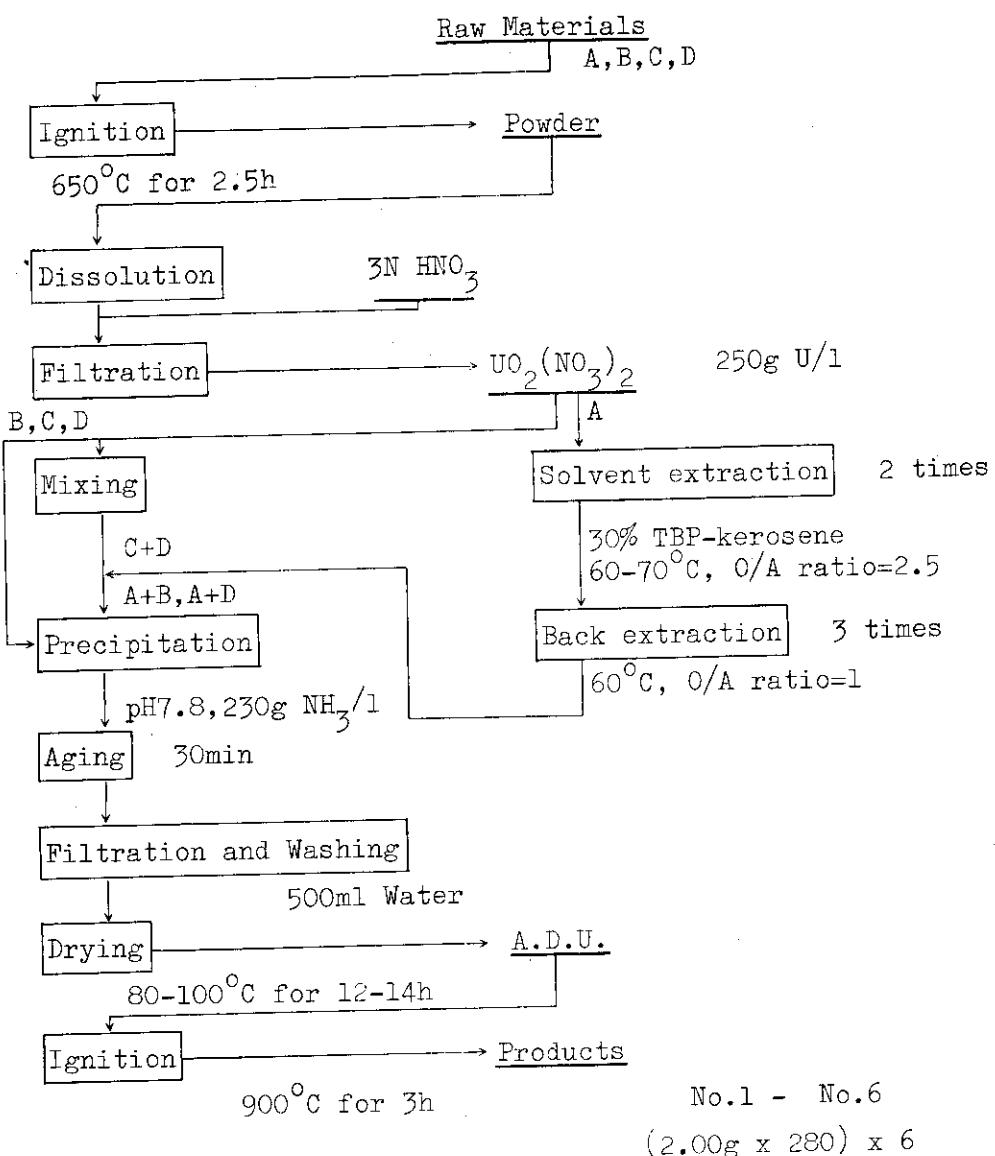


Fig.2 Flowsheet of preparation of JAERI-U5