

JAERI-M  
82-074

多重シングル・チャネル・アナライザーに  
によるウラン濃縮度測定

1982年7月

東條 隆夫

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。入手の問合せは、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（〒319-41 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 いばらき印刷株

多重シングル・チャネル・アナライザによるウラン濃縮度測定

日本原子力研究所ラジオアイソトープ・原子炉研修所

東條 隆夫

(1982年6月1日受理)

3インチ直径×3インチ長のNaI(T<sub>l</sub>)結晶と12.318 a/o および3.051 a/oの標準金属ウラン試料を用いた多重シングル・チャネル・アナライザによるウラン濃縮度測定を、アナライザの種々なウインド設定条件で行い、これらの測定結果( $ER_M$ )をGe  $\gamma$ 線スペクトロメータによる測定結果( $ER_G$ )と比較・検討した。濃縮度  $ER_M$ が7.345, 5.638 および0.535 a/o と測定された被測定試料に対する濃縮度の差異( $ER_M - ER_G$ )は、それぞれ-0.001 a/o, 0.066 a/o および-0.009 a/o であった。これらの測定においては、<sup>235</sup>Uに起因する185-keV  $\gamma$ 線のピーク計数率測定用のウインドのエネルギー領域は、165～210 keVに設定し、バックグラウンド計数率測定用のウインドは、216～291 keVに設定した。このウインド設定条件では、ここでテストした他のウインド設定条件に比べて、測定系の不安定性や外部からの  $\gamma$ 線の影響を受け難い濃縮度測定が可能である。標準および被測定試料をそれぞれ10分間計測したとき、7.3 a/o, 5.6 a/o および0.53 a/o と測定された濃縮度の統計誤差は、それぞれ0.23 %, 0.29 % および1.9 % であった。濃縮度 5.6 a/o の試料を用いて行った一連の測定結果は、濃縮度測定値の標準偏差が、0.025 a/o (0.045 %) であることを示した。

Measurements of Uranium Enrichment with a System of  
Multiple Single-channel Analyzers

Takao TOJO

Radioisotope and Nuclear Engineering School, JAERI

(Received June 1, 1982)

Measurements of uranium enrichment with a system of multiple single-channel analyzers(MSCA) using a 3 in. dia. x 3 in. long NaI(Tl) crystal and standard samples of 12.318 a/o and 3.051 a/o have been made in various setting conditions of the windows of single-channel analyzers, and the results were compared with those by a Ge gamma-ray spectrometer. Differences of the enrichments by the MSCA from those by the Ge spectrometer were -0.001 a/o , 0.066 a/o and -0.009 a/o for "unknown" enrichment samples which were measured as 7.345 a/o , 5.638 a/o and 0.535 a/o . In these measurements, energy ranges of the windows were set in 165-210 keV for counting the peak count-rate of 185 keV gamma-rays from  $^{235}\text{U}$  and in 216-291 keV for counting the background count-rate. The measurement of the enrichment under the above condition of window setting was less affected by instability of the measuring system and by change of external gamma-rays, comparing with the other conditions tested here. Statistical standard errors of the enrichments measured as 7.3 a/o , 5.6 a/o and 0.53 a/o were 0.23 %, 0.29 % and 1.9 %, respectively, when counting time for each measurements was 10 minutes. The set of enrichment data which were obtained by iterative measurement for the 5.6 a/o sample indicated that standard deviation of the enrichment was 0.025 a/o (0.045 %).

Keywords : Uranium Enrichment, Gamma-ray Spectrometry, Single-channel Analyzer, Two Scaler Method, NaI(Tl) Crystal, Ge Detector, Energy Range 150-300 keV

## 目 次

1. まえがき	1
2. 多重シングル・チャネル・アナライザー法によるウラン濃縮度測定法	2
3. ウラン試料および実験装置	4
4. 実 験	6
4.1 実験方法	6
4.2 Ge $\gamma$ 線スペクトロメトリ法によるウラン濃縮度測定	7
4.3 多重シングル・チャネル・アナライザー法による濃縮度測定	7
4.3.1 185 keV ピーク領域を一定に保ち、バックグラウンド領域を変化させた場合	7
4.3.2 バックグラウンド領域を一定に保ち、185 keV ピーク領域を変化させた場合	9
4.3.3 185 keV 全エネルギー吸収ピーカー領域をピーカー計数領域とバックグラウンド計数領域に分割した場合	10
4.3.4 濃縮度測定の再現性および自然計数の寄与の検討	11
5. 計数率解析式による多重シングル・チャネル・アナライザー法の特性の検討	13
6. 結 論	16
謝 辞	17
参考文献	18

## 付 錄

付録 I $^{235}\text{U}$ と $^{231}\text{Th}$ の簡略化された壊変図	34
付録 II $^{238}\text{U}$ , $^{234}\text{Th}$ , $^{234\text{m}}\text{Pa}$ , $^{234}\text{Pa}$ および $^{234}\text{U}$ の簡略化された壊変図	35
付録 III ウラン同位体から放出される主な $\gamma$ 線とその放出率の表	36
付録 IV 代表的なウランの娘核種から放出される $\gamma$ 線とその放出率の表	37

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Description of the technique for measuring uranium enrichment by multiple single-channel analyzers .....	2
3. Uranium samples and measuring apparatus .....	4
4. Experiment .....	6
4.1 Experimental method .....	6
4.2 Measurements of uranium enrichment with the method of Ge gamma-ray spectrometry .....	7
4.3 Measurements of uranium enrichment with the method of multiple single-channel analyzers .....	7
4.3.1 In the case of fixed counting region of 185-keV full-energy peak and variable counting region of background .....	7
4.3.2 In the case of fixed counting region of background and variable counting region of 185-keV full-energy peak .....	9
4.3.3 In the case that 185-keV full-energy peak is divided into two counting regions of full-energy peak and background ...	10
4.3.4 Examinations of precision of enrichment measurement and of contribution of natural background to enrichment measurement .....	11
5. Examinations of characteristics of the method of multiple single-channel analyzers by a count-rate analysis formula .....	13
6. Conclusion .....	16
Acknowledgement .....	17
References .....	18
Appendix I Simplified version of the decay schemes of $^{235}\text{U}$ and $^{231}\text{Th}$ .....	34
Appendix II Simplified version of the decay schemes of $^{238}\text{U}$ , $^{234}\text{Th}$ , $^{234\text{m}}\text{Pa}$ , $^{234}\text{Pa}$ and $^{234}\text{U}$ .....	35
Appendix III Table of gamma-ray energies from uranium isotopes and their emission rates .....	36
Appendix IV Table of gamma-ray energies from representative daughter nuclides of uranium and their emission rates .....	37

## 1. まえがき

ウラン濃縮度測定技術は核燃料管理に要する基本的技術である。濃縮度測定法としては、高い測定精度と信頼度を有する質量分析法があり、この方法が一般的な濃縮度測定法として広く用いられている。同位体比のみならず<sup>235</sup>U含有量をも含めた広い意味での濃縮度測定法としては、核分光技術を利用する $\alpha$ 線スペクトロメトリ法<sup>1)</sup>や $\gamma$ 線スペクトロメトリ法<sup>2,3)</sup>などのパッシブ・アッセイ法のほか、中性子<sup>4,5)</sup>や高エネルギー $\gamma$ 線<sup>6)</sup>の照射に伴う核分裂によって放出される即・遅発中性子や $\gamma$ 線を計測するアクティブ・アッセイ法がある。さらに、原子吸光法<sup>7)</sup>を含めた光学スペクトル法<sup>8)</sup>もこの種の目的に利用できる。

これらの測定法の中で最も簡便で迅速な方法は $\gamma$ 線スペクトロメトリ法である。この方法は非破壊的に濃縮度測定が可能であるため、核燃料の使用・保管場所において行う燃料検査の目的に適している。 $\gamma$ 線スペクトロメトリ法には、検出器としてNaI(Tl)シンチレーション検出器を用いる方法とGe半導体検出器を用いる方法がある。

NaI(Tl)検出器のエネルギー分解能は、Ge検出器に比べて劣るため、NaI(Tl)検出器を用いて測定したウラン濃縮度は、<sup>235</sup>Uの壊変に起因する $\gamma$ 線のそれに近いエネルギーの $\gamma$ 線を放出する<sup>237</sup>Uの妨害や外部 $\gamma$ 線の変動の影響を受けやすい。この点がNaI(Tl)検出器を用いる方法がGe検出器を用いる方法に劣る点である。しかし、NaI(Tl)検出器はGe検出器のように極低温に冷却して使用する必要がないため、NaI(Tl)検出器を用い、かつ多重パルス波高分析器を用いない $\gamma$ 線スペクトロスコピ法を採用すれば、最も簡便でコンパクトな携帯型のパッシブ・ガンマ法による濃縮度測定装置を製作することができる。多重パルス波高分析器を用いずに、 $\gamma$ 線スペクトロメトリ法を可能にする方法として、多重シングル・チャネル・アナライザ法<sup>3,9)</sup>

(Multiple Single-Channel Analyzer Method, MSCA法)と呼ばれる方法がある。この方法に基づく濃縮度測定装置は、核燃料の保障措置の目的のほか、ウラン濃縮プラント<sup>9)</sup>における測定にも利用されている。ウラン濃縮度測定におけるMSCA法においては、次章において述べるように、2台のシングル・チャネル・アナライザを用いて選別した2つのエネルギー領域の計数率を測定することによって濃縮度が求められる。この意味から、MSCA法は二計数回路法(Two Scaler Method)とも呼ぶことができる。MSCA法を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリにおいては、2種の濃縮度の標準試料を用い、それぞれの試料に対して異った2つのエネルギー領域の計数率を選別的に測定する。濃縮度を求めるためには、注目した1つのエネルギー領域(<sup>235</sup>Uの壊変に伴う185-keV $\gamma$ 線の全エネルギー吸収ピーク領域)における185-keV $\gamma$ 線のみに起因する計数率を求める必要がある。この計数率を求める過程において必要となる因子の1つとして、他のもう1つのエネルギー領域における計数率が用いられる。従って、MSCA法による濃縮度の測定精度には、選別エネルギー領域依存性が存在し、測定系の安定性も、この選別エネルギー領域に関係するものと思われる。

ここでは、高精度な濃縮度測定を行うために必要な選別エネルギー領域を求ることを主な目的として、このエネルギー領域依存性の検討を、Ge $\gamma$ 線スペクトロメトリ法との比較において、行うことも試みた。

## 2. 多重シングル・チャネル・アナライザー法によるウラン濃縮度測定法

NaI(Tl)検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメータで測定したウラン試料のパルス波高分布を一例としてFig. 1に示す。同図には、 $^{235}\text{U}$ から最も高い放出率で放出される185-keV  $\gamma$ 線の全エネルギー吸収ピークが明確に測定されている。多重シングル・チャネル・アナライザー(MSCA)法によって $^{235}\text{U}$ を定量するためには、185 keV ピークの正味のピーク面積(計数率)  $N_p'$  を求める必要がある。Fig. 1から明らかなように、このピークは連続的な分布を示すコンプトン・バックグラウンドと重複している。従って、Fig. 1にWindow-1(WP)として示されているようなエネルギー領域にシングル・チャネル・アナライザー(SCA)のウインド(window)を設定した場合、得られる計数率  $C_{1x}$  は  $N_p'$  にバックグラウンド計数率  $N_B$  が加わったものになる。このため、 $N_B$  を評価する必要がある。MSCA法では、Fig. 1に示すようにバックグラウンド測定用に第2のSCAでWindow-2(WB)を設定し、計数率  $C_{2x}$  を測定する。ここで  $C_{ij}$  は window i, 試料番号 j の計数率である。

未知試料(試料番号:x)の濃縮度  $ER_x$  は次式のように表わされる。

$$ER_x = a C_{1x} - b C_{2x} \quad (1a)$$

$$= a [C_{1x} - (b/a) C_{2x}] \quad (1b)$$

$$= a (C_{1x} - FC_{2x}) \quad (1c)$$

ここで、a および b は濃縮度が既知の標準試料を用いて実験的に求める定数である。

式(1c)の関係から、 $N_B = FC_{2x}$ ,  $N_p' = C_{1x} - FC_{2x}$ ,  $ER_x = a N_p'$ , である。このように、定数 a は、濃縮度を求めるためにピーク面積(計数率)に乘ずる比例定数になっている。

定数 a および b を求めるためには、濃縮度が異なる 2 種の標準試料を用いた較正が必要である。試料番号をそれぞれ 1 および 2 とすれば、それぞれの試料の濃縮度  $ER_1$  および  $ER_2$  は次のように表わせる。

$$ER_1 = a C_{11} - b C_{21} \quad (2a)$$

$$ER_2 = a C_{12} - b C_{22} \quad (2b)$$

以上の関係から、定数 a および b は、次のように求められる。

$$a = \frac{ER_1 \cdot C_{22} - ER_2 \cdot C_{21}}{C_{11} \cdot C_{22} - C_{12} \cdot C_{21}} \quad (3a)$$

$$b = -\frac{ER_1 \cdot C_{12} - ER_2 \cdot C_{11}}{C_{21} \cdot C_{12} - C_{22} \cdot C_{11}} \quad (3b)$$

ただし、ここではバックグラウンド評価における比、 $F = b/a$ ，は注目している一連の試料間で一定であることを前提としている。従って、バックグラウンド・スペクトルの形状を変化させ

る試料中の不純物の存在や検出器周辺のバックグラウンドの変動などは比  $F$ 、従って濃縮度の誤差要因となる。

以上のようなMSCA法による濃縮度の相対統計誤差  $\Delta ER/ER$  は次のようにして求められる。

$$\frac{\Delta ER}{ER} = \frac{\sqrt{a^2 C_{1x} + b^2 C_{2x}}}{a C_{1x} - b C_{2x}} \quad (4)$$

一方、多重波高分析器を用いる通常の  $\gamma$  線スペクトロメトリ法においては、正味の 185-keV  $\gamma$  線の全エネルギー吸収ピークの面積（計数率）  $N$  は、Fig. 1 に示されているように、波高分布の形状から評価したコンプトン・バックグラウンドの計数率  $N_B$  を用いて、 $N_P = N_T - N_B$  の関係から求められ、 $\Delta ER/ER$  は、

$$\Delta ER/ER = \sqrt{N_T + N_B}/N_P,$$

で求められる。ただし、 $N_T$  は注目したエネルギー領域の全計数率である。

### 3. ウラン試料および実験装置

#### A) ウラン試料

標準試料および被測定試料としては、イギリス原子力公社（UKAEA）から入手した金属ウランを用いた。これらの試料は、直径 12.5 mm, 厚さ 3 mm に成形されており、これを窓厚 1 mm のアクリル樹脂製の円筒状容器に密封した。これらの試料は何れも、注目する 185 keV の  $\gamma$  線に対して、無限厚<sup>\*</sup> に近い厚さを有しているとみなすことができる。

標準試料としては、12.318 a/o と 3.051 a/o と値付けされた 2 種の試料を用いた。被測定試料としては、約 7 a/o, 約 6 a/o および約 0.5 a/o の 3 種の金属ウランを用いた。

#### B) 検出器

MSCA 法においては、3 インチ径 × 3 インチ長の円柱状の NaI (Tl) 蛍光体（堀場製作所製、12 A 12 N 型）を RCA 8054 型光電子増倍管と組合せて使用した。検出器および試料は厚さ 10 cm の鉛で遮蔽された。

Ge  $\gamma$  線スペクトロメトリ法のためには、2 種の Ge 検出器が用いられた。

##### (i) Ge 検出器

Princeton Gamma-Tech 社製イントリンシック型 Ge 検出器

検出器の形式：一端開放同軸型 (S/N : IGC-13, No. 511)

Ge 結晶寸法および体積：49 mm 径 × 43 mm 長, 81 cc

検出器窓厚：0.56 mm (Al)

Ge 結晶-クライオスタッフ窓間距離： $< 5$  mm

エネルギー分解能 (FWHM) : 986 eV (122 keV,  $^{57}\text{Co}$ ),

2.04 keV (1332 keV,  $^{60}\text{Co}$ )

相対検出効率：14.9 %, ピーク / コンプトン：39.8 / 1

検出器は 5 cm 厚の鉄（内側）および 10 cm 厚の鉛で遮蔽された。

##### (ii) 低エネルギー光子用高純度 Ge 検出器 (HP Ge 検出器)

Canberra 社製 7305 型

検出器の形式：平板型 (S/N : 1275279)

検出器寸法： $10 \text{ mm}^2 \times 5 \text{ mm}$

検出器窓厚：1.3 mil (Be)

Ge 結晶-クライオスタッフ窓間距離：3 mm

エネルギー分解能 (FWHM) : 195 eV (5.9 keV,  $^{55}\text{Fe}$ ), 499 eV (122 keV,  $^{57}\text{Co}$ )

検出器は 4 cm 厚の鉄によって遮蔽された。

#### C) 測定回路系

---

\* 0.3 cm 厚の金属ウラン中の  $^{235}\text{U}$  の放射能を 185 keV  $\gamma$  線に注目して測定した場合、試料自体の放射能の約 12 % を直接測定できるに過ぎない。

## (i) MSCA 法

MSCA 法の測定系のブロックダイヤグラムを Fig. 2 に示す。MSCA 法で用いられる回路は Fig. 2 において太い線によって結合されている。これらの回路は全て NIM モジュール化されたものであり、ここでは次のようなものが用いられた。比例増幅器：ORTEC 社製 410 型、SCA：ORTEC 社製 420 型、スケーラ／タイマ：JAERI 製 178 型。

Fig. 2 のミキサー以後の回路は、本実験において、ウインドを正確に設定するとともにその設定値の変動をモニターできるようにするための付加的回路系である。この回路系においても多重波高分析器（日立製 RAH-403 型）とその出力装置以外は、モジュール化されたミキサー（JAERI 製 176 A 型）、リニア・デイレイ（JAERI 製 142 B 型）、コインシデンス／リニア・ゲート（JAERI 製 138 A 型）が用いられた。また、ビン／電源としては、ORTEC 社製 401 A／402 A が、検出器用高圧電源としては John Fluke 社製 415 B 型が用いられた。

(ii) Ge  $\gamma$  線スペクトロメトリ法

本法においては、検出器出力信号を前置増幅器（Princeton Gamma Tech 社製 RG-11 A 型）およびスペクトロスコピー・アンプ（Canberra 社製 1413 型）を通してパルス整形・増幅を行い、多重波高分析器（Nuclear Data 社製 2200 型）で分析し、その出力をデジタル・プリンタ（Hewlett Packard 社製 5050 B）で打出した。回路系については、ここで用いた 2 種の Ge 検出器について共通である。

## 4. 実験

### 4.1 実験方法

MSCA法による濃縮度測定においては、Fig. 2に示すように、MSCA法のための回路系のみならず、本実験の目的上、ウインドの位置および幅を迅速・正確に設定できるとともに、その変動の確認を容易にするモニター装置を付加した。

MSCA法においては、2つに分けられた比例増幅器出力パルスがそれぞれSCAに供給され、それぞれのSCAで選別されたパルスがWindow-1(WP)およびWindow-2(WB)の計数率 $C_{1x}$ および $C_{2x}$ としてスケーラ/タイマに記録される。

モニター装置においては、Window-1およびWindow-2で選別されたSCA出力パルスをミキサー回路で1系統にまとめ、このパルスをコインシデンス/リニア・ゲート回路のコインシデンス入力に供給する。このパルスによってこの回路へのリニア入力パルスを制御すれば、後続の多重波高分析器には、Window-1およびWindow-2で選別された波高のパルスのみが記録される。このようにして測定したウラン試料のゲート化されたパルス波高分布を、一例としてFig.3に示す。同図には、ウインド設定条件を示す図も示されている。

MSCA法による濃縮度測定においては、アクリル樹脂製の保持具を用いて、NaI(Tl)結晶と同軸的に試料を配置した。線源距離は13 mmに設定し、1試料の計測時間は10分とした。

ここで用いた5種のウラン試料のNaI(Tl)検出器によるパルス波高分布をFig. 4に示す。この測定では、Fig. 2に示されているコインシデンス入力をOFFの状態にすることによって、全体の測定系を通常の $\gamma$ 線スペクトロメータとした。

高エネルギー分解能・低検出効率の低エネルギー光子用HP Ge検出器を用いて測定した濃縮ウランおよび天然ウランのパルス波高分布をFig. 5に示す。高検出効率・低エネルギー分解能のGe検出器による同様なパルス波高分布をFig. 6に示す。

Fig. 5には $^{235}\text{U}$ (n,  $\gamma$ )反応で生成される $^{236}\text{U}$ ( $\gamma$ 線エネルギー: 112.75 keV, 半減期: 2.39  $\times 10^7$ 年)の存在が観測されている。このことから、用いた試料には再処理工程を経たウランが用いられたと考えることができる。また、 $^{235}\text{U}$ の壊変に伴う185 keVの $\gamma$ 線に近接したエネルギーの $\gamma$ 線を放出するが故に、MSCA法による濃縮度測定において妨害核種となる $^{237}\text{U}$ [半減期: 6.7日,  $\gamma$ 線エネルギー: 208 keV(23.3%), 165 keV(2%)]の存在は試料中に認められていない。 $^{237}\text{U}$ は $^{236}\text{U}$ (n,  $\gamma$ ),  $^{238}\text{U}$ (n, 2n)反応でも生成されるが、動力炉燃料中においては主として $^{241}\text{Pu}$ の娘核種として生成される。しかし、 $^{237}\text{U}$ は短半減期核種であるので、Puから分離後2か月程度の十分な時間を経過したウラン試料であるならば、MSCA法による濃縮度測定においても決定的な妨害核種とはならないと思われる。

Ge  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法では、185 keVのピーク面積を求め、それを標準試料のピーク面積に対比させる通常の方法で濃縮度を求めた。ここで用いた2種のGe検出器の何れの場合においても、試料は検出器エンド・キャップと同軸的に配置した。線源距離は、Ge検出器の場合は4 cm, HP Ge検出器の場合は5 mmにアクリル樹脂製の試料保持具を用いて設定した。

#### 4.2 Ge $\gamma$ 線スペクトロメトリ法によるウラン濃縮度測定

Table 1 に示されている標準試料に照らして、濃縮度が未知のウラン試料を Ge  $\gamma$  線スペクトロメトリ法で測定した。測定結果を Table 2 に示す。同表の結果は 2 種の Ge 検出器を用いたスペクトロメトリ法による結果の加重平均値であるが、この平均値は統計的重みの故に、高検出効率の Ge 検出器による結果によって大半が支配されている。濃縮度を求めるにあたっては、2 種の標準試料によって得られた較正直線を用いた。

#### 4.3 多重シングル・チャネル・アナライザー法による濃縮度測定

多重シングル・チャネル・アナライザー法による濃縮度測定結果の Window 設定領域に対する依存性の検討を試みることを目的として、種々なウインド設定条件下において濃縮度を測定した。

##### 4.3.1 185 keV ピーク領域を一定に保ち、バックグラウンド領域を変化させた場合

185 keV ピーク領域に Window-1 (WP) を固定し、バックグラウンド領域の Window-2 (WB) の設定エネルギー領域を種々に変化させながら濃縮度を測定した。ウインド WP および WB の設定エネルギー領域を Table 3 に示す。同表に示されたエネルギー領域の上限および下限値は、 $^{235}\text{U}$  の 185 keV の  $\gamma$  線の他、 $^{109}\text{Cd}$  線源からの 83 keV の KX 線および $^{137}\text{Cs}$  線源からの 661 keV の  $\gamma$  線を用いて ± 2 keV 以内の精度で設定した。

Run I から Run III までの種々なウインド設定条件下での測定結果を Table 4 (Run I) から Table 6 (Run III) までの表に示す。各表には、設定されたウインドのエネルギー範囲をパルス波高分布との関連において示した図が添えられている。各表の Run 番号は添付図中の WB 設定領域条件の番号に対応している。各表中に用いられている記号  $ER_M$  は MSCA 法によって測定された濃縮度を、 $ER_G$  は Ge  $\gamma$  線スペクトロメトリ法によって測定された濃縮度を意味し、 $ER_M$  に付された誤差は統計的標準偏差である。

Table 4 の結果は、Run I のウインド設定条件下における MU-8 および MU-6 試料に対する濃縮度測定結果には統計的な有意差は明確には認められていないことを示している。DEPL-1 試料については、WB 領域の拡大に伴って、 $ER_M$  の値が増加する傾向を示し、Run I-1 と Run I-4 の  $ER_M$  の値の間には有意差が認められる。DEPL-1 試料に対する濃縮度は、標準試料の濃縮度の関係から外挿誤差が加わるため、高精度測定を期待し難いが、WB 領域の拡大に伴う濃縮度  $ER_M$  の増加傾向は、Fig. 7 に示した実験結果から次のように理解することができる。Fig. 7 は典型的なウインド設定条件である Run I-3, Run II-2 および Run III-4 における濃縮度  $ER_X$  と WB 領域の計数率との関係を示したものである。同図には、用いた各試料の濃縮度に対応する実測計数率  $C_{2x}$  は黒丸印で示されており、MU-3 および MU-12 標準試料の濃縮に対する実測計数率を結ぶ直線は実線で示されている。計数率の値としては、便宜上 10 分間計測時の計数値が用いられている。

- (i) Fig. 7 に示されているように、濃縮度  $ER_X$  と WB 領域の実測計数率  $C_{2x}$  の関係には、直線的な関係からのずれが認められている。
- (ii) このため、Fig. 7 において Run I-3 の実直線で示されている関係から求めた DEPL-1 試料に対する外挿値としての WB 領域の計数率  $C_{2x}$  は、実測計数率  $C_{2x}$  より小さくなっている。

この結果、MSCA 法で求めた DEPL-1 試料の濃縮度  $ER_M$  は、WB 領域が狭い場合、小さく求められる。

- (iii) しかし、WB 領域の拡大に伴って、実測計数率  $C_{2x}$  に対する  $^{235}\text{U}$  起因の  $\gamma$  線計数率の寄与が減少するため、濃縮度と  $C_{2x}$  の関係は、勾配がより小さい直線的な関係に近づく。この結果、実測計数率が外挿計数率  $C_{2x}$  により接近するため、DEPL-1 試料の濃縮度は、狭い WB 領域の場合に比べて、大きな値として求められる。
- (iv) 以上の(i)～(iii)の観点からは、標準試料の濃縮度の中間に位置する MU-6 および MU-8 試料に対しては、WB 領域の拡大に伴って、濃縮度が次第に小さく測定される傾向が存在すると考えることができる。Table 4 では、統計的に有意ではないが、この傾向が示唆されているものと思われる。

一方、Ge 検出器を用いた  $\gamma$  線スペクトロメトリ法で測定した濃縮度  $ER_G$  と MSCA 法による濃縮度  $ER_M$  との相対的な差異 ( $\Delta = (ER_M - ER_G)/ER_G$ ) は、 $\Delta$  の統計誤差が MU-8, MU-6 および DEPL-1 試料に対してそれぞれ、0.3%, 0.4% および 2.0% であるので、ウインド設定条件 Run I-1 から Run I-4 までについて、MU-8 試料の場合には、統計的有意差は認められない。しかし、MU-6 試料については有意差存在の可能性がかなりあり、DEPL-1 試料については、有意差の存在は明確ではない。

以上のように、両測定法による濃縮度測定結果の一貫性は、総合的に見れば良好であるとともに、Run I-1 から Run I-4 までのウインド設定条件下では濃縮度  $ER_M$  の間に明確な差異は見出し難い。

なお、Run I-3 のウインド設定条件 (WP: 165～210 keV, WB: 216～291 keV) は T. D. Reilly 等<sup>9)</sup> によってガス拡散プラントにおける濃縮度測定で用いられた条件 (WP: 160～210 keV, WB: 220～280 keV) にはほぼ等しい。

Table 5 に示した Run II のウインド設定条件下における濃縮度測定結果は、WB の幅を一定 (約 45 keV) に保ちながら、WB のエネルギー領域を変化させることによって、Run I の場合よりも強いウインド WB の設定エネルギー領域依存性を計数率  $C_{2x}$  に与えて測定したものである。Table 5 の結果は、WB 領域の高エネルギー領域への移行に伴い、DEPL-1 試料の濃縮度が Run I-1 の場合よりも明確に増加する傾向を示している。

Table 6 に示した Run III の結果は、Run II の場合よりも広いエネルギー範囲において、濃縮度のウインド WB の設定エネルギー領域依存性を検討するために行った測定結果である。

Run III の測定における濃縮度  $ER_X$  と WB 領域の計数率  $C_{2x}$  の関係は、Run III-1 の場合、 $C_{2x}$  は  $ER_X$  と共に増加しているが、Run III-2～III-5 の場合には、 $C_{2x}$  は  $ER_X$  の増加に伴って減少する傾向を示している。しかし、Run III の条件下ではいずれの場合も、ここで用いた標準試料の濃縮度に対応する実測計数率  $C_{2x}$  の 2 つの値を結んだ直線から求めた WB 領域の内挿値としての計数率  $C_{2x}$  の値は、3～12 a/o の濃縮度（標準試料の濃縮度）の場合は実測計数率より大きな値を示し、3 a/o 以下の濃縮度の場合は実測計数率より小さな値を示している。従って、3～12 a/o 範囲の試料は濃縮度が高く、3 a/o 以下の範囲の試料は濃縮度が低く測定される傾向になる。しかし、Table 6 において、統計的有意差が認められる MU-6 試料の濃縮度  $ER_M$  が Ge スペクトロメトリ法による濃縮度  $ER_G$  よりも低く測定されている。このことは、Ge スペクトロメトリ法に

による濃縮度が幾分高く測定された可能性を示唆している。Run III-2～III-5の相対的な濃縮度の変化は、各Runにおける実測計数率 $C_{2x}$ と外（または内）挿計数率 $C_{2x}'$ との相異に基づいて生じたものと思われる。計数率の差異 $C_{2x} - C_{2x}'$ は、各Runによって異なるが、MU-8およびMU-6試料に対しては1～2%程度である。DEPL-1試料の場合は、Run III-5においてこの差異が最小（統計誤差0.7%で有意差が認められない）となる。このため、Table 6が示すように、 $ER_M$ と $ER_G$ が最もよく一致する結果となっている。

185-keV ピーク領域にピーク計数率測定のためのウインド WP を固定して行った Run I～III の濃縮度 $ER_M$ の測定においては、Run I のウインド設定条件の場合に、 $\gamma$ 線スペクトロメトリ法による濃縮度 $ER_G$ と最もよく一致する結果が得られた。Run I の条件下での MU-8 および MU-6 試料の測定では、Run I-3 の条件下で測定した $ER_M$ が最もよく $ER_G$ と一致する結果が得られた。この Run I-3 の条件下では、濃縮度 3 a/o および 12 a/o の標準試料を用いた場合、3～12 a/o の濃縮度範囲にある試料の測定結果 $ER_M$ は約 1% 以内で $ER_G$ と一致し、0.5 a/o の試料の場合でも、約 2% 以内の $ER_G$ との一致性において、濃縮度測定が可能であることが明らかになった。また、Run I-3 の条件下での濃縮度 $ER_X$ と WB 領域の計数率の関係では、Fig. 7 にみられるように、実測計数率 $C_{2x}$ と標準試料の濃縮度にそれぞれ対応する 2 つの $C_{2x}$ を結んだ直線が示す計数率 $C_{2x}'$ との差異は、最大で約 3% になっている。このことから、Run I-3 の条件下における MSCA 法による濃縮度測定は、その測定原理にかなり忠実に従って行われたと考えられる。従って、試料中の不純物核種による妨害がないと仮定するならば、Table 4 の Run I-3 の結果から、Ge  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法による濃縮度は、MU-8 試料については正確に、MU-6 試料については 1% (0.05 a/o) 程度大きく、DEPL-1 試料については 2% (0.01 a/o) 程度小さく測定された可能性があると考えられる。また、MSCA 法による濃縮度測定結果がもつ傾向を把握した濃縮度測定には、2 種の標準試料のみならず、第 3 の濃縮度が既知のウラン試料を用いて、濃縮度と WB 領域の計数率の関係を予め検討しておくことが有効と思われる。

#### 4.3.2 バックグラウンド領域を一定に保ち、185 keV ピーク領域を変化させた場合

バックグラウンド計数率測定のためのウインド WB を一定エネルギー領域に保ち、 $^{235}\text{U}$  に起因する 185-keV ピーク面積（計数率）測定用のウインド WP を Table 7 の Run IV に示すように変化させて濃縮度を測定した。同表には、次に行う Run V のウインド設定条件も合わせて示されている。

Run IV のウインド設定条件で行った濃縮度測定結果は、ウインド設定条件を示すパルス波高分布とともに Table 8 に示す。

ウラン試料の $\gamma$ 線パルス波高分布においては、先の Fig. 6 に示されているように、100 keV 近傍のエネルギー領域においては、U および Th の K X 線および $^{234}\text{Th}$ からの $\gamma$ 線（主として 92.3 および 92.8 keV のダブルレット）の全エネルギー吸収ピークが優勢であり、コンプトン・バックグラウンドとしては、主として $^{238}\text{U}$ の娘核種 $^{234}\text{Pa}$ からの $\gamma$ 線（765, 1001 keV）によるものが優勢と思われる（付録 I～IV 参照）。U の K X 線は主として $^{235}\text{U}$ の壊変に伴って放出される $\gamma$ 線のウラン試料内における光電効果に起因して発生する自己蛍光 X 線である。また、Th の K X 線は $^{235}\text{U}$ の壊変に伴って放出される $\gamma$ 線（ $^{231}\text{Th}$ の励起核のエネルギー・レベルの転移による）の内部

転換に起因するものである。一方、 $^{234}\text{Th}$ からの $\gamma$ 線（主として92 keVのダブルレット）は $^{238}\text{U}$ の壊変に伴うものである。また、150 keV近傍のエネルギー領域においては、Fig. 6 から明らかのように、 $^{235}\text{U}$ の壊変に伴う $\gamma$ 線（143.7, 163.3 keV）の全エネルギー吸収ピークが優勢である（付録 I および III 参照）。

上述のような $^{235}\text{U}$ 起因の $\gamma$ 線の、Run Nで設定したウインド WP 領域の計数率に対する寄与を考慮すると、低濃縮ウラン試料の場合には、Run N-3 のように広いエネルギー範囲にウインド WP を設定しても、全計数率のかなりの部分を $^{235}\text{U}$ 起因の計数率が占めるものと思われる。

濃縮度の関数として表わした WP 領域の計数率の実験結果は、何れのウインド設定条件下においても良好な直線的関係を示している。この直線的関係から評価した WP 領域中の全計数率中に占める $^{235}\text{U}$ 起因の計数率の割合  $f_{15}$  は、3 a/o および 10 a/o の試料に対して、各ウインド設定条件において、それぞれ次の通りである。

Run N-1 : 0.74 (3 a/o), 0.91 (10 a/o)

Run N-2 : 0.67 (3 a/o), 0.87 (10 a/o)

Run N-3 : 0.45 (3 a/o), 0.74 (10 a/o)

このような  $f_{15}$  の結果から、低濃縮ウラン試料の場合には濃縮度測定が十分可能であると思われる。しかし、劣化ウラン試料の場合には割合  $f_{15}$  がかなり小さくなるため、ピーク面積の誤差にはバックグラウンド計数率の統計的揺動がより大きく寄与することになる。このため、高精度な濃縮度測定が困難になると思われる。DEPL-1 試料に対する割合  $f_{15}$  は、それぞれのウインド設定条件において、0.40 (Run N-1), 0.22 (Run N-2), 0.13 (Run N-3) と求められた。

Table 8 に示した濃縮度測定結果は、ウインド WP を広範囲に変化させたにもかかわらず、Ge  $\gamma$  線スペクトロメトリ法による測定値  $ER_G$  に近い測定結果  $ER_M$  が得られていることを示している。Table 8 の結果から、ウインド WP を 185 keV ピーク領域に設定して測定を行う場合、領域の上下限値が所期値と  $\pm 10\text{ keV}$  程度ずれて設定されても、0.5 % 以上の変化を測定結果に及ぼすことはないと判断できるので、測定系の厳密なエネルギー較正は不要であると思われる。

#### 4.3.3 185 keV 全エネルギー吸収ピーク領域をピーク計数領域とバックグラウンド計数領域に分割した場合

$^{235}\text{U}$  の壊変に伴う 185 keV の $\gamma$ 線の全エネルギー吸収ピークをほぼ 2 分割し、それぞれウインド WP およびウインド WB として使用し濃縮度測定を行った。ここで行った Run V のウインド設定条件下で行った濃縮度測定結果を Table 9 に示す。同表中の参考図に示されているように、ウインド WP および WB は一定エネルギー領域 (Table 7 参照) に固定し、濃縮度測定を 5 回くり返し行った。それぞれの測定では較正過程もその都度行った。Table 9 の結果は、MU-8 および MU-6 試料に対する測定結果  $ER_M$  は Ge  $\gamma$  線スペクトロメトリ法による測定結果  $ER_G$  と比較的一致することを示している。しかし、DEPL-1 試料の場合には大きな差異が生じることを示している。Table 9 の測定値  $ER_M$  は平均濃縮度であり、それらに添えられた誤差は測定値の標準偏差である。

Run V のウインド設定条件は次のような理由で濃縮度測定には不適当であると考えられる。

(i) WP および WB の両領域が狭く、エネルギー的にも接近しているため、両領域に対するコン

プトン・バックグラウンド計数率の寄与の程度が等しくなりやすい。この程度が全く等しい場合、式(3a)および(3b)の係数aおよびbは、次に示す式(5a)および(5b)の関係式において、 $f_{15} = f_{25}$ となり求めることができない。また、コンプトン・バックグラウンドの分布やWPおよびWBの設定条件にもよるが、係数aおよびbの値が負になる場合が起りやすくなる。

$$a \propto \frac{f_{15} (1-f_{25})}{f_{15} - f_{25}} \quad (5a)$$

$$b \propto \frac{f_{25} (1-f_{15})}{f_{15} - f_{25}} \quad (5b)$$

ただし、 $f_{15}$ および $f_{25}$ はそれぞれ、WPおよびWB領域の計数率中に占める $^{235}\text{U}$ 起因の計数率の割合である。式(5)は次の5章において行われた仮定に基づいて求められた関係式である。

- (ii) WPおよびWB両領域の計数率が測定系の不安定性の影響を受けやすい。
- (iii) 濃縮度測定値の統計誤差が大きくなる(MU-8試料に対するRun Vの統計誤差はRun Iの約1.6倍になっている)。

以上に行ったRun IからRun Vに至る種々なウインド設定条件においては、MSCA法が標準試料を用いる比較測定法であるが故に、ウインド設定条件に対する顕著な依存性がなく、何れの条件においても比較的良好な測定結果を与えることが明らかになった。

#### 4.3.4 濃縮度測定の再現性および自然放射線の寄与の検討

濃縮度測定の再現性を検討するため、Run I-3のウインド設定条件下におけるMU-6試料に対する測定を較正過程を含めてくり返し行った。測定結果をTable 10に示す。同表において各濃縮度 $ER_M$ および平均値 $ER_M$ に添えられた誤差は統計標準誤差であり、 $\sigma_M$ は各測定値の揺動を示す標準偏差である。10分間の計測時間で測定したTable 10の結果は、 $\sigma_M$ が0.025 a/o(0.45%)であることを示し、十分正確な測定が行われていることを示している。

Table 10の濃縮度測定結果およびこれまでに行なった全てのMU-6試料に対する測定結果は、MSCA法による濃縮度( $ER_M$ )とGe  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法による濃縮度( $ER_G$ )5.704 a/oとの間に系統的な差異が存在していることを示しており、 $ER_G$ が1%(0.05 a/o)程度大きく測定されていることが示唆されている。

ここで行った濃縮度測定に対する自然バックグラウンド計数の影響を検討した。バックグラウンドのパルス波高分布をFig. 8に示す。同図は、Run Iのウインド設定エネルギー領域における自然計数が単調に分布していることを示している。Run IIIの各ウインド設定条件下で測定した自然計数率(cpm)を、MU-3およびMU-6試料を用いた際の計数率とともにTable 11に示す。同表中のWPおよびWB-1などはTable 6に添えられた図中に記されたウインド設定条件を示している。

Table 11の測定結果から、10cm厚の鉛遮蔽体は、濃縮度測定目的には大きすぎる3×3(インチ)のNaI(Tl)蛍光体の使用にもかかわらず、185 keVの全エネルギー吸収ピークと、これに

隣接する領域にウインドを設定する濃縮度測定においては、十分な遮蔽効果をもっているとみなし得る。この点を明確にするため、自然計数を除去した場合と除去しない場合の濃縮度測定結果をTable 12に示す。これらの測定はRun I-3のウインド設定条件下で行われた。同表は自然計数がここで濃縮度測定に殆んど影響を与えていないことを示している。

## 5. 計数率解析式による多重シングル・チャネル アナライザ法の特性の検討

多重シングル・チャネル・アナライザ法によるウラン濃縮度測定法の特性の一端を明らかにするため、簡単な計数率解析式に基づく検討を行った。この解析式による計算に必要な定数は実測データに基づいて求めた。また、ウインド設定条件としては、Run I-1 および Run I-3 の条件を用いた。

ある測定条件において、濃縮度  $ER_1$  が既知の試料の、WP領域の計数率  $C_{11}$  および WB領域の計数率  $C_{21}$  は、次式で表わされる。また、濃縮度  $ER_2$  が既知の試料の、WP領域の計数率  $C_{12}$  および WB領域の計数率  $C_{22}$  も次式のように表わせる。

$$C_{11} = ER_1 \cdot \epsilon_{15} + (1 - ER_1) \cdot \eta \cdot \epsilon_{18} \quad (6a)$$

$$C_{21} = ER_1 \cdot \epsilon_{25} + (1 - ER_1) \cdot \eta \cdot \epsilon_{28} \quad (6b)$$

$$C_{12} = ER_2 \cdot \epsilon_{15} + (1 - ER_2) \cdot \eta \cdot \epsilon_{18} \quad (6c)$$

$$C_{22} = ER_2 \cdot \epsilon_{25} + (1 - ER_2) \cdot \eta \cdot \epsilon_{28} \quad (6d)$$

ただし、 $\epsilon_{ij}$  は、WP領域 ( $i=1$ ) または WB領域 ( $i=2$ ) の計数率として、 $^{235}\text{U}$  ( $j=5$ ) または  $^{238}\text{U}$  ( $j=8$ ) の壊変に伴う  $\gamma$  線が計数される確率を表わす比例定数である。この比例定数は、特定エネルギー領域の計数として検出する検出効率、幾何学的効率および  $\gamma$  線放出率などを含み、濃縮度と計数率  $C_{ij}$  との関係を結びつけている。 $\eta$  は  $^{235}\text{U}$  の壊変定数に対する  $^{238}\text{U}$  の壊変定数の比 (0.157) である。

これらの  $C_{ij}$  を式 (3a) および (3b) に代入すれば、係数  $a$  および  $b$  は  $\epsilon_{ij}$  によって次のように表わされる。

$$a = \frac{\epsilon_{28}}{\epsilon_{15} \cdot \epsilon_{28} - \epsilon_{18} \cdot \epsilon_{25}} \quad (7a)$$

$$b = \frac{\epsilon_{18}}{\epsilon_{15} \cdot \epsilon_{28} - \epsilon_{18} \cdot \epsilon_{25}} \quad (7b)$$

このように、係数  $a$ 、および  $b$  は濃縮度に依存しない結果となり、それ故式 (1c) の  $F (= \frac{b}{a})$  は濃縮度に依存しない一定値となる。

係数  $a$  および  $b$  を求めるに必要な  $\epsilon_{ij}$  は実験データから次のようにして求めることができる。

(i)  $\epsilon_{18}$  は濃縮度  $ER_X$  と  $C_{1x}$  の関係曲線の  $ER_X = 0$  における外挿値として求められる、(ii)  $\epsilon_{15}$  は濃縮度  $ER_X$  が既知の試料の測定値  $C_{1x}$  と(i)で求めた  $\epsilon_{18}$  を式 (6a) に用いて求められる。 $\epsilon_{25}$  および  $\epsilon_{28}$  なども WB領域の実験データを用いて同様な方法で求めることができる。

比例定数  $\epsilon_{ij}$  を得ることができれば、WP領域の計数率中に占める  $^{235}\text{U}$  に起因する  $\gamma$  線の計数率の割合  $f_{15}$  および WB領域中の計数率中に占める  $^{235}\text{U}$  に起因する  $\gamma$  線の計数率の割合  $f_{25}$  を求めることができる。

### A) WP領域およびWB領域の計数率の評価

式(6a)および(6b)の関係から、WP領域の計数率 $C_1$ およびWB領域の計数率 $C_2$ を種々な濃縮度について計算し、前章の実測計数率 $C_{1x}$ および $C_{2x}$ との比較・検討を行った。このためのウインド設定条件としては、Run I-1およびRun I-3を選んだ。計数率 $C_{ij}$ として、便宜上10分間あたりの計数値を用いた場合、Run I-1およびRun I-3の測定における $\epsilon_{ij}$ としては、次の値が得られた。

$$\text{Run I-1 : } \epsilon_{15} = 3.85676 \times 10^4, \epsilon_{25} = 1.23345 \times 10^3 \\ \epsilon_{18} = 2.83395 \times 10^3, \epsilon_{28} = 2.19745 \times 10^3$$

$$\text{Run I-3 : } \epsilon_{15} = 3.85847 \times 10^4, \epsilon_{25} = 1.44574 \times 10^3 \\ \epsilon_{18} = 2.82800 \times 10^3, \epsilon_{28} = 3.89808 \times 10^3$$

ただし、 $\epsilon_{15}$ および $\epsilon_{25}$ を求めるためには標準試料MU-12(12.318 a/o)のWPおよびWB領域の実測計数率を用いた。

また、これら $\epsilon_{ij}$ の値と式(7a)および(7b)の関係から、係数aおよびbとして次の式が得られた。

$$\text{Run I-1 : } a = 2.70439 \times 10^{-5}, b = 3.48773 \times 10^{-5} \\ \text{Run I-3 : } a = 2.66412 \times 10^{-5}, b = 1.93278 \times 10^{-5}$$

これらの値 $\epsilon_{ij}$ を式(6a)および(6b)に用いて計算した、Run I-3のウインド設定条件下でのWP領域の計数率 $C_1$ およびRun I-1およびRun I-3の条件下でのWB領域の計数率 $C_2$ を濃縮度の関数としてFig.9に実線で示す。同図に計算された計数率 $C_1$ および $C_2$ を示す実線とともに黒丸印で示されているデータ点は、 $C_1$ および $C_2$ と同一条件下における実測計数率 $C_{1x}$ および $C_{2x}$ である。Fig.9に示された計数率の値としては、便宜上10分間計測時の計数値が用いられている。

Fig.9の結果は、ここで用いた計数率解析式による計算結果が実験データと比較的よく一致することを示している。Fig.9の直線で示された計算された計数率 $C_1$ および $C_2$ の値を2種の濃縮度について種々組み合わせ、それぞれの計数率の組合せについて計算した係数aおよびb、従って式(1c)のFは、当然のことながら、濃縮度依存性を示さない。しかし、実測計数率 $C_{2x}$ の濃縮度に対する非直線的变化は、係数Fが濃縮度に依存していることを示している。それ故、前章におけるRun I～Vでのウインド設定条件下での測定において、系統的と考えられる濃縮度の差異が、MSCA法とGe  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法との間に生じたものと考えられる。

なお、Run I-1とRun I-3の両条件下における計算されたWP領域の計数率 $C_1$ は約0.1%以内で一致する結果が得られた。

#### B) WP領域およびWB領域の計数率中に占める $^{235}\text{U}$ の壊変に伴う $\gamma$ 線計数率の割合の評価

$^{235}\text{U}$ の壊変に伴う $\gamma$ 線計数率がWPおよびWB領域の計数率中に占める割合 $f_{15}$ (=ER<sub>X</sub>・ $\epsilon_{15}$ /C<sub>1x</sub>)および $f_{25}$ (=ER<sub>X</sub>・ $\epsilon_{25}$ /C<sub>2x</sub>)を計算によって求め、実験結果との比較を $f_{15}$ について行った。Run I-3の条件での $f_{15}$ およびRun I-1およびRun I-3の条件下での $f_{25}$ の計算結果を濃縮度の関数としてFig.10に実線で示す。同図には、式(1b)のWP領域のピーク面積(計数率)、 $N'_P = C_{1x} - (b/a)C_{2x}$ ,  $f_{15} = N'_P/C_{1x}$ , の関係とRun I-3における実験データ(a, b, C<sub>1x</sub>およびC<sub>2x</sub>)から求めた実験値としての $f_{15}$ が黒丸印で示されている。計算値 $f_{15}$ についてのRun I-1とRun I-3の両条件下での結果は、0.025%以内で一致し、実験値 $f_{15}$ の両条件下

での結果は、1.5 %以内で一致している。Fig. 10 に示された割合  $f_{15}$  の解析式による計算値と実験値の良好な一致は、ここでの計数率解析法の妥当性を示している。

Fig. 10 に示されている割合  $f_{25}$  の計算結果は、濃縮度の変化に伴って直線的に変化していない。Run I-1 のウインド設定条件では、 $f_{25}$  は約 7 a/o の濃縮度において最大のふくらみをもつ上に凸の曲線を描き、Run I-3 の条件では Run I-1 と同様な傾向ではあるが、直線により近い傾向の曲線になっている。

### C) 計数率解析式による濃縮度の評価

前項の A) で求めた係数  $\epsilon_{ij}$  から計算し、Fig. 9 に直線で示した  $C_1$  および  $C_2$  の 3 a/o および 12 a/o の濃縮度に対応する計数率から計算した係数  $a$  および  $b$  と、実験データ ( $C_{1x}$  および  $C_{2x}$ ) を用いて濃縮度  $ER_C$  を求めた。その結果を Table 13 に示す。この濃縮度  $ER_C$  は設定条件 Run I-1 および Run I-3 において MU-8 および DEPL-1 試料に対して求めたものである。Table 13 の濃縮度  $ER_C$  の値は、Table 3 に示されている同一条件下での測定結果とほぼ一致しており、MSC A 法の特性の概要がここで示す計数率解析式によって表わし得ることを示している。

Table 4 と Table 13 の結果を求めるための較正に用いた標準試料の濃縮度の値と、Fig. 9 に実線で示された計数率  $C_1$  および  $C_2$  と、黒丸印で示された実測計数率  $C_{1x}$  および  $C_{2x}$  との比較から、Table 13 に示されている各試料の濃縮度  $ER_C$  は、Table 4 に示されている濃縮度  $ER_M$  より大きい値として求められる傾向があるといえる。この傾向は、標準試料の濃縮度 3 a/o に対応するバックグラウンド計数率の計算値が実測計数率より大きく求められたことに起因している。Table 4 および Table 13 の両表の濃縮度  $ER_M$  および  $ER_C$  の値はこの傾向を裏付けている。

## 6. 結 論

標準試料として、12.318 a/o と 3.051 a/o の金属ウランを用いた多重シングル・チャネル・アナライザー (MSCA) 法による濃縮度測定を種々なウインド設定条件下で行い、その結果を Ge  $\gamma$  線スペクトロメトリ法による濃縮度測定結果と比較し、検討を行った。この結果、次の点が明らかになった。

- (i) MSCA法による濃縮度測定では、 $^{235}\text{U}$  の壊変に起因する 185-keV  $\gamma$  線の全エネルギー吸収ピークの計数率測定用のシングル・チャネル・アナライザーのウインド (WP) が 165 ~ 210 keV、バックグラウンド計数率測定用のウインド (WB) が 215 ~ 290 keV の範囲に設定されたとき、測定された濃縮度  $ER_M$  は、Ge  $\gamma$  線スペクトロメトリ法による濃縮度  $ER_G$  とよく一致した。この結果、MSCA法でかなり高精度な濃縮度測定が可能であることが明らかになった。濃縮度  $ER_M$  と  $ER_G$  との差異は、7.345 a/o, 5.638 a/o および 0.535 a/o の被測定試料に対して、それぞれ -0.001 a/o, 0.066 a/o および -0.009 a/o であった。5.6 a/o の試料における大きな差異は、 $ER_G$  が約 0.05 a/o 大きく測定されたことに起因することが、一連の実験結果によって示された。
- (ii) 濃縮度測定値は、WP および WB の設定条件に対して強い依存性を示さず、上の(i)の設定条件の場合、ウインド設定時における設定値の  $\pm 10\text{ keV}$  程度のずれは、測定結果に 0.5 % 以上の変動を与えない。
- (iii) ウラン試料のパルス波高分布の形状から判断して、上の(ii)とこれに近いウインド設定条件においては、測定系の利得などの不安定性の影響や外部放射線の影響が少ない濃縮度測定が可能である。
- (iv) 標準試料および被測定試料を各 10 分間計測した場合、7.3 a/o, 5.6 a/o および 0.53 a/o の被測定試料に対する統計誤差は、それぞれ 0.017 a/o (0.23 %), 0.016 a/o (0.29 %) および 0.010 a/o (1.9 %) であった。
- (v) 濃縮度が 5.6 a/o の被測定試料に対する 15 回の濃縮度測定の結果、標準偏差として 0.025 a/o (0.45 %) が得られた。
- (vi) MSCA法における計数率解析式によって、MSCA 法の特性を検討した。その結果、WP および WB 領域の計数率中に占める  $^{235}\text{U}$  の壊変に起因する  $\gamma$  線計数率の割合が明らかになった。前の(i)のウインド設定条件での WP 領域におけるこの割合は、濃縮度 10, 6, 4, 2 および 1 a/o の試料に対して、それぞれ 0.91, 0.85, 0.78, 0.64 および 0.47 と計算された。また、WB 領域におけるこの割合は、(i)のウインド設定条件 (Run I - 3) の場合、濃縮度とともにほぼ直線的に増加し、濃縮度 10 および 1 a/o の試料に対して、それぞれ 0.21 および 0.023 と計算された。
- (vii) 放射平衡の状態や不純物核種あるいは、 $^{235}\text{U}$  や  $^{234m}\text{Pa}$  などの分布状態について、無視し得ない個体差が用いた試料間に存在すると考えられ、ここで測定結果はこれによって影響を受けていると推測される。
- (viii) 2 種の濃縮度の標準試料のみならず、第 3 の標準試料を用いて、濃縮度と計数率、とくに WB

領域の計数率との間の直線性を把握することは、濃縮度測定結果の評価に役立つ。

(ix) 185-keV  $\gamma$  線 ( $^{235}\text{U}$ ) に対して実効的に無限厚の試料であっても、WB領域に計数される  $\gamma$  線に対しては無限厚とはならない。このため、高精度なMSCA法による濃縮度測定には、多重波高分析器を用いる  $\gamma$  線スペクトロメトリ法とは異なり、試料形状の一定化が必要と思われる。

#### 謝 辞

本報告書の作成にあたり有益な御指摘を頂いた原研RI・原子炉研修所次長・西村和明博士ならびに実験結果の検討に際し有益な助言を頂いた原研分析センター室長・小森卓二博士に深謝致します。

領域の計数率との間の直線性を把握することは、濃縮度測定結果の評価に役立つ。

(ix) 185-keV  $\gamma$  線 ( $^{235}\text{U}$ ) に対して実効的に無限厚の試料であっても、WB領域に計数される  $\gamma$  線に対しては無限厚とはならない。このため、高精度なMSCA法による濃縮度測定には、多重波高分析器を用いる  $\gamma$  線スペクトロメトリ法とは異なり、試料形状の一定化が必要と思われる。

#### 謝 辞

本報告書の作成にあたり有益な御指摘を頂いた原研RI・原子炉研修所次長・西村和明博士ならびに実験結果の検討に際し有益な助言を頂いた原研分析センター室長・小森卓二博士に深謝致します。

References

1. Kunzendorf H. : Nucl. Instr. and Meth., 63, 152(1968).
2. Rowson J. W. and Hontzeas S. A. : Nucl. Instr. and Meth., 154, 541(1978).
3. Kull L. A. and Ginaven R. O. : BNL-50414(1974).
4. Thorpe M. M. : The Role of Nuclear Data in the Practical Application of Non-destructive Nuclear Assay Methods, Symposium on Application of Nuclear Data in Science and Technology IAEA/SM-170/54(1973).
5. Binney S. E. and Scherpelz R. I. : Nucl. Instr. and meth., 154, 413(1978).
6. Gozaini T. : Nucl. Technology, 13, 8(1972).
7. Goleb J. A. : Anal. Chem. Acta, 34, 135(1966).
8. Leys J. A. and Perkins R. E. : Anal. Chem., 38, 1099(1966).
9. Reilly T. D. and Walton R. B. : LA-4705-MS, p. 16(1971).

Table 1 Enrichments of the standard uranium samples.

Sample No.	Enrichment(a/o)
MU-12	12.318 ± 0.019
MU-3	3.051 ± 0.008

Table 2 Enrichments of the "unknown" a/o samples measured with the Ge gamma-ray spectrometer.

Sample No.	Enrichment(a/o)
MU-8	7.346 ± 0.009*
MU-6	5.704 ± 0.009
DEPL-1	0.526 ± 0.002

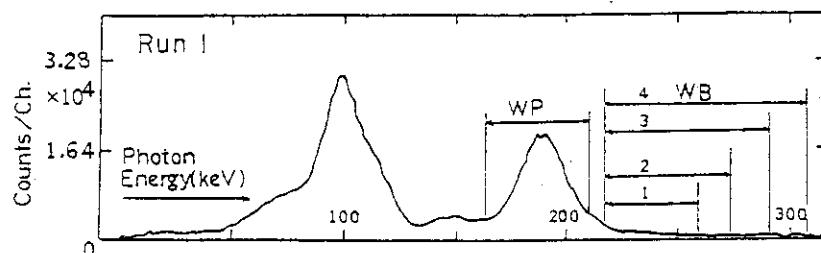
\* errors : standard statistical errors

Table 3 Energy ranges of the window for counting background count-rate, WB, in the setting conditions of run I to III.

Run	WB (keV)	Run	WB (keV)	Run	WB (keV)
I-1	216-258	II-1	216-258	III-1	229-337
I-2	216-273	II-2	229-273	III-2	299-407
I-3	216-291	II-3	245-289	III-3	358-470
I-4	216-307			III-4	435-543
				III-5	508-616

Energy range of the window for counting the peak count-rate of 185 keV gamma-rays from  $^{235}\text{U}$ , WP, was fixed at 165-210 keV throughout run I-III.

Table 4 Results of enrichment for "unknown" a/o enrichment samples.  
Energy ranges of the window for each runs are shown in table 3.

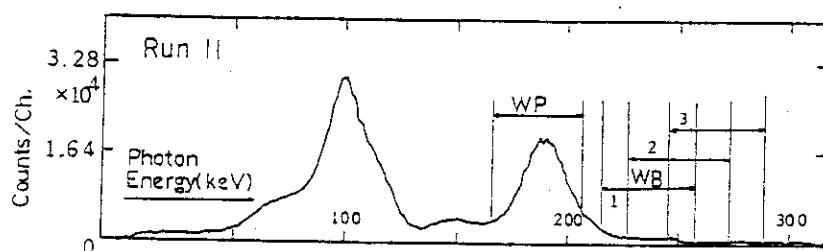


Run	Sample	$ER_M$ (a/o)	$ER_M$ (rel.)	$\frac{ER_M - ER_G}{ER_G}$ (%)
I-1	MU-8	$7.368 \pm 0.017$	1.000	0.299
	MU-6	$5.642 \pm 0.016$	1.000	-1.087
	DEPL-1	$0.520 \pm 0.010$	1.000	-1.141
I-2	MU-8	$7.351 \pm 0.016$	0.998	0.068
	MU-6	$5.632 \pm 0.015$	0.998	-1.262
	DEPL-1	$0.531 \pm 0.009$	1.021	0.951
I-3	MU-8	$7.345 \pm 0.016$	0.997	-0.014
	MU-6	$5.638 \pm 0.015$	0.999	-1.157
	DEPL-1	$0.535 \pm 0.009$	1.029	1.711
I-4	MU-8	$7.337 \pm 0.016$	0.996	-0.123
	MU-6	$5.620 \pm 0.014$	0.996	-1.473
	DEPL-1	$0.544 \pm 0.009$	1.046	3.422

$ER_M$  : Enrichment measured with the system of multiple  
single-channel analyzers.

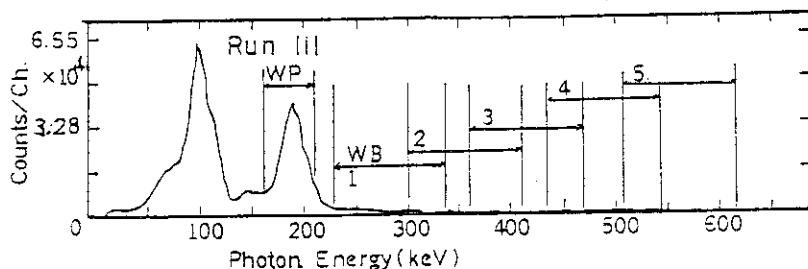
$ER_G$  : Enrichment measured with the Ge gamma-ray spectrometer.

Table 5 Results of enrichment for "unknown" a/o enrichment samples.  
Energy ranges of the window for each runs are shown in table 3.



Run	Sample	$ER_M$ (a/o)	$ER_M$ (rel.)	$\frac{ER_M - ER_G}{ER_G}$ (%)
II-1	MU-8	$7.317 \pm 0.017$	1.000	-0.395
	MU-6	$5.600 \pm 0.016$	1.000	-1.823
	DEPL-1	$0.526 \pm 0.010$	1.000	0.000
II-2	MU-8	$7.330 \pm 0.017$	1.002	-0.218
	MU-6	$5.619 \pm 0.015$	1.003	-1.490
	DEPL-1	$0.573 \pm 0.009$	1.088	8.935
II-3	MU-8	$7.357 \pm 0.016$	1.005	0.150
	MU-6	$5.635 \pm 0.015$	1.006	-1.210
	DEPL-1	$0.601 \pm 0.009$	1.142	14.20

Table 6 Results of enrichment for "unknown" a/o enrichment samples.  
Energy ranges of the window for each runs are shown in table 3.

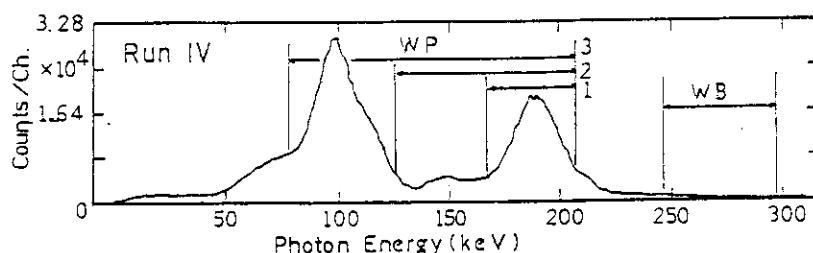


Run	Sample	$ER_M$ (a/o)	$ER_M$ (rel.)	$\frac{ER_M - ER_G}{ER_G}$ (%)
III-1	MU-8	$7.339 \pm 0.015$	1.000	-0.095
	MU-6	$5.633 \pm 0.014$	1.000	-1.245
	DEPL-1	$0.559 \pm 0.009$	1.000	6.357
III-2	MU-8	$7.312 \pm 0.015$	0.996	-0.463
	MU-6	$5.619 \pm 0.014$	0.998	-1.490
	DEPL-1	$0.565 \pm 0.009$	1.011	7.483
III-3	MU-8	$7.320 \pm 0.016$	0.997	-0.354
	MU-6	$5.626 \pm 0.014$	0.999	-1.367
	DEPL-1	$0.567 \pm 0.009$	1.014	7.829
III-4	MU-8	$7.348 \pm 0.016$	1.001	0.027
	MU-6	$5.624 \pm 0.015$	0.998	-1.403
	DEPL-1	$0.546 \pm 0.009$	0.976	3.791
III-5	MU-8	$7.383 \pm 0.017$	1.006	0.504
	MU-6	$5.637 \pm 0.016$	1.001	-1.175
	DEPL-1	$0.530 \pm 0.009$	0.948	0.794

Table 7 Energy ranges of the window in setting conditions of run IV and V.

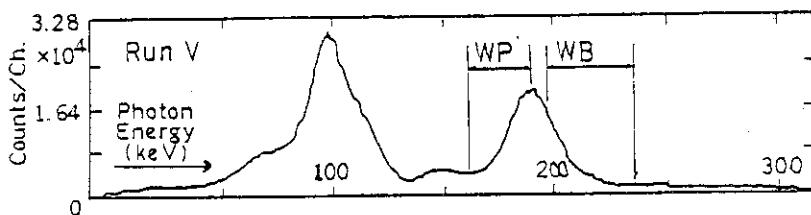
Run	Energy range of the window	
	WP (keV)	WB (keV)
IV-1	170-207	252-300
IV-2	130-207	252-300
IV-3	55-207	252-300
V	158-185	192-232

Table 8 Results of enrichment for "unknown" a/o enrichment samples. Energy ranges of the window are shown in table 7.



Run	Sample	$ER_M$ (a/o)	$ER_M$ (rel.)	$\frac{ER_M - ER_G}{ER_G} (\%)$
IV-1	MU-8	$7.310 \pm 0.017$	1.000	-0.490
	MU-6	$5.576 \pm 0.015$	1.000	-2.244
	DEPL-1	$0.580 \pm 0.009$	1.000	5.400
IV-2	MU-8	$7.275 \pm 0.017$	0.995	-0.967
	MU-6	$5.507 \pm 0.015$	0.988	-3.454
	DEPL-1	$0.550 \pm 0.011$	0.948	4.563
IV-3	MU-8	$7.331 \pm 0.011$	1.003	-0.204
	MU-6	$5.558 \pm 0.010$	0.997	-2.560
	DEPL-1	$0.556 \pm 0.007$	0.959	5.703

Table 9 Results of enrichment for "unknown" a/o enrichment samples.  
Energy ranges of the window are shown in table 7.



Run	Sample	$\overline{ER}_M$ (a/o)	$\frac{\overline{ER}_M - ER_G}{ER_G}$ (%)
V	MU-8	$7.318 \pm 0.046^*$	-0.381
	MU-6	$5.563 \pm 0.053$	-2.472
	DEPL-1	$1.168 \pm 0.040$	122.1

$\overline{ER}_M$  : Mean enrichment

\* Errors : Standard deviations of the enrichments measured

Table 10 Results of enrichment for MU-6 sample obtained by iterative measurement in the energy range of the window of run I-3.

Run	$ER_M$ (a/o)	Run	$ER_M$ (a/o)
1	$5.626 \pm 0.014$	9	$5.692 \pm 0.015$
2	$5.596 \pm 0.015$	10	$5.578 \pm 0.014$
3	$5.656 \pm 0.015$	11	$5.671 \pm 0.015$
4	$5.594 \pm 0.015$	12	$5.633 \pm 0.014$
5	$5.637 \pm 0.014$	13	$5.594 \pm 0.014$
6	$5.608 \pm 0.014$	14	$5.610 \pm 0.014$
7	$5.617 \pm 0.015$	15	$5.638 \pm 0.014$
8	$5.605 \pm 0.014$		

$$\overline{J}_M = 0.025 \text{ a/o} (0.045 \%)$$

$$\overline{ER}_M = 5.619 + 0.007 \text{ a/o}$$

$$\frac{\overline{ER}_M - ER_G}{ER_G} = -0.015$$

Table 11 Natural background count-rates in various energy ranges of the window, and count-rates at these energy ranges with MU-3 and MU-12 samples. Energy ranges of the window are shown in table 3 as run III. Energy ranges of WP and WB are illustrated in the figure inserted in table 6.

Window setting	Count-rate (cpm)		
	Natural backg'd	with MU-3	With MU-12
WP	0.803	99.77	169.40
WB-1	1.377	134.1	148.69
WB-2	1.133	88.81	85.55
WB-3	0.980	64.84	59.57
WB-4	0.812	43.14	38.64
WB-5	0.713	28.44	33.29

Table 12 Enrichments obtained from count-rates with and without natural background. Condition of window setting : run I-3 (refer to table 3)

Sample No.	Enrichment, $ER_M$ (a/o)	
	without nat. backg'd	with nat. backg'd
MU-8	$7.321 \pm 0.016$	$7.321 \pm 0.016$
MU-6	$5.610 \pm 0.014$	$5.610 \pm 0.014$
DEPL-1	$0.538 \pm 0.009$	$0.537 \pm 0.009$

Table 13 Enrichments calculated with the coefficients a and b, which are determined on the basis of count-rate analysis formula in the method of multiple single-channel analyzers. Energy ranges of the window for each runs are shown in table 3.

Run	Sample	Enrichment, $ER_C (a/o)$	$ER_C (\text{rel.})$	$\frac{ER_C - ER_G}{ER_G} (\%)$
I-1	MU-8	$7.381 \pm 0.017$	1.000	0.476
	MU-6	$5.661 \pm 0.015$	1.000	-0.754
	DEPL-1	$0.560 \pm 0.010$	1.000	6.464
I-3	MU-8	$7.358 \pm 0.016$	0.997	0.163
	MU-6	$5.656 \pm 0.014$	0.999	-0.842
	DEPL-1	$0.581 \pm 0.008$	1.038	10.45

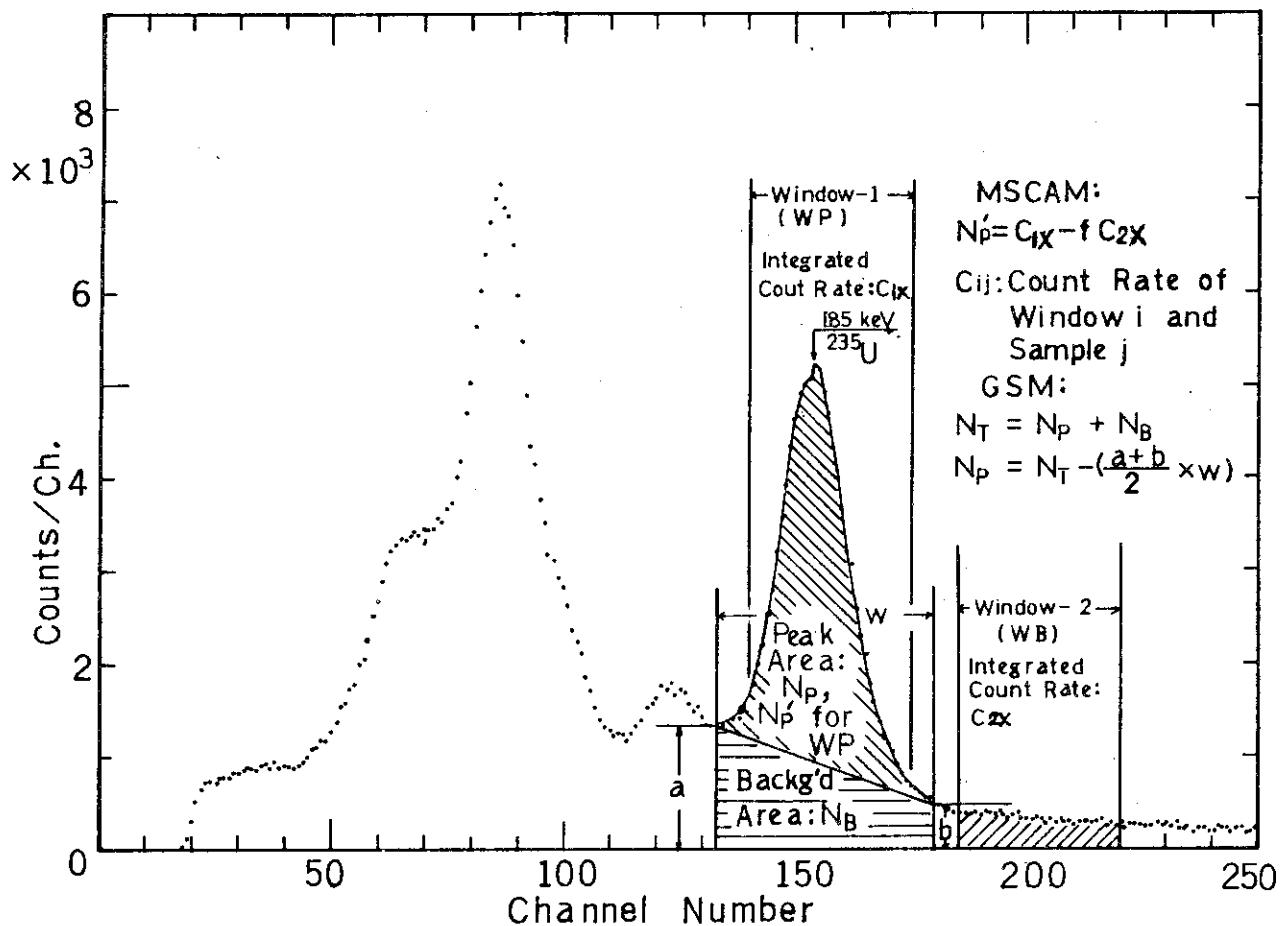


Fig. 1 Illustration of the procedure to determine the net count-rate in the full-energy peak of 185-keV gamma-rays from  $^{235}\text{U}$  by the multiple single-channel analyzer method(MSCAM) and by the gamma-ray spectrometric method(GSM) using a multichannel analyzer.

$N_p$  is the net peak count-rate by GSM,  $N_B$  the evaluated count-rate of continuous background in the window W and  $N_T$  the total count-rate in the window W.

$N_p'$  is the net peak count-rate in the window-1(WP),  $C_{1X}$  the count-rate by MSCAM in the window WP and  $C_{2X}$  the count-rate of the continuous background in the window-2(WB).

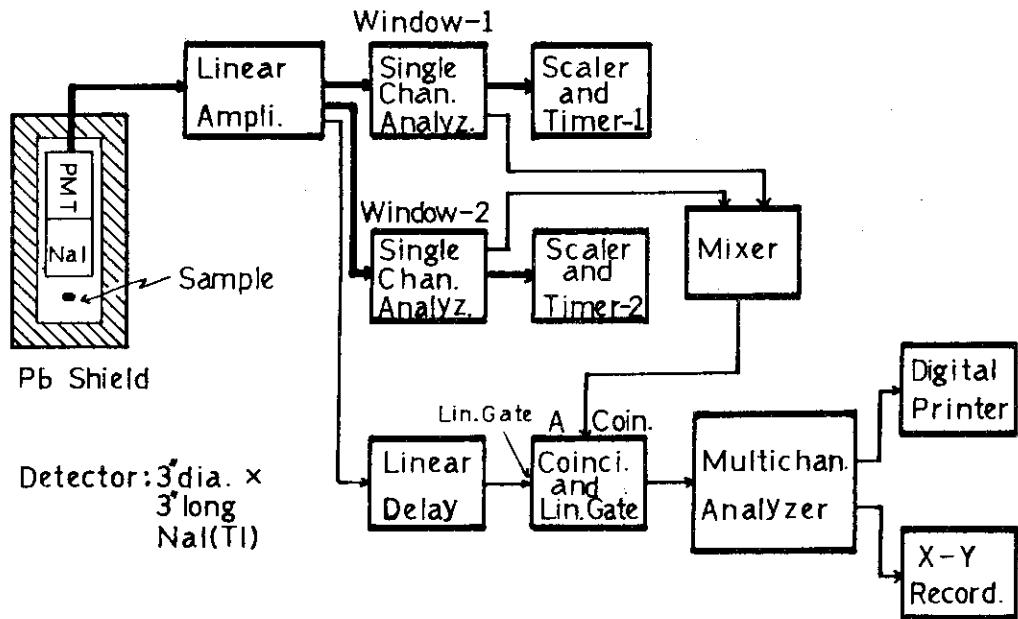


Fig. 2 Block diagram of the method of multiple single-channel analyzers (MSCA) with the additive monitoring system.

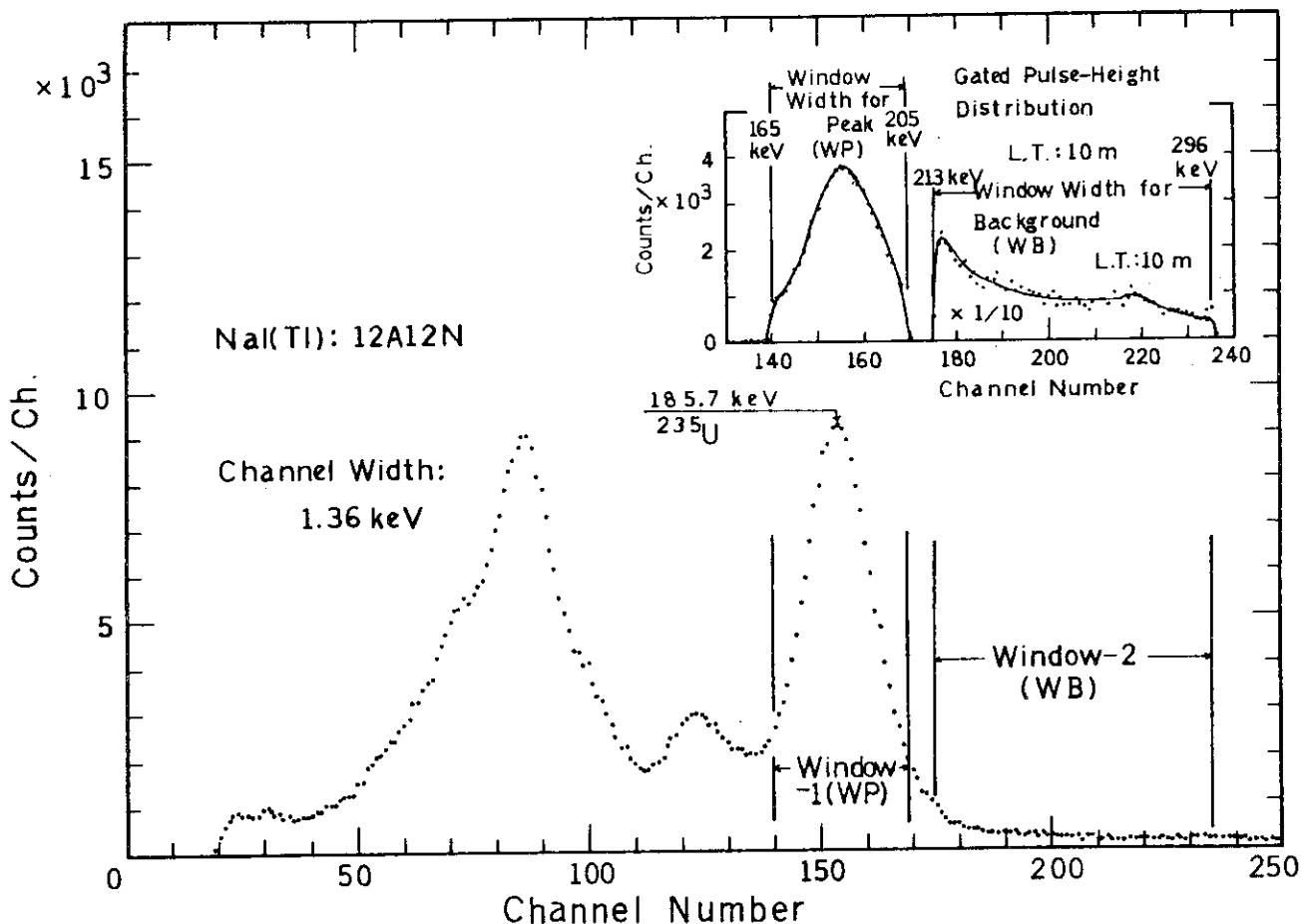


Fig. 3 Typical example of the window setting in the method of single-channel analyzers. Typical example of the gated pulse-height distribution measured with an uranium sample is given in inset.

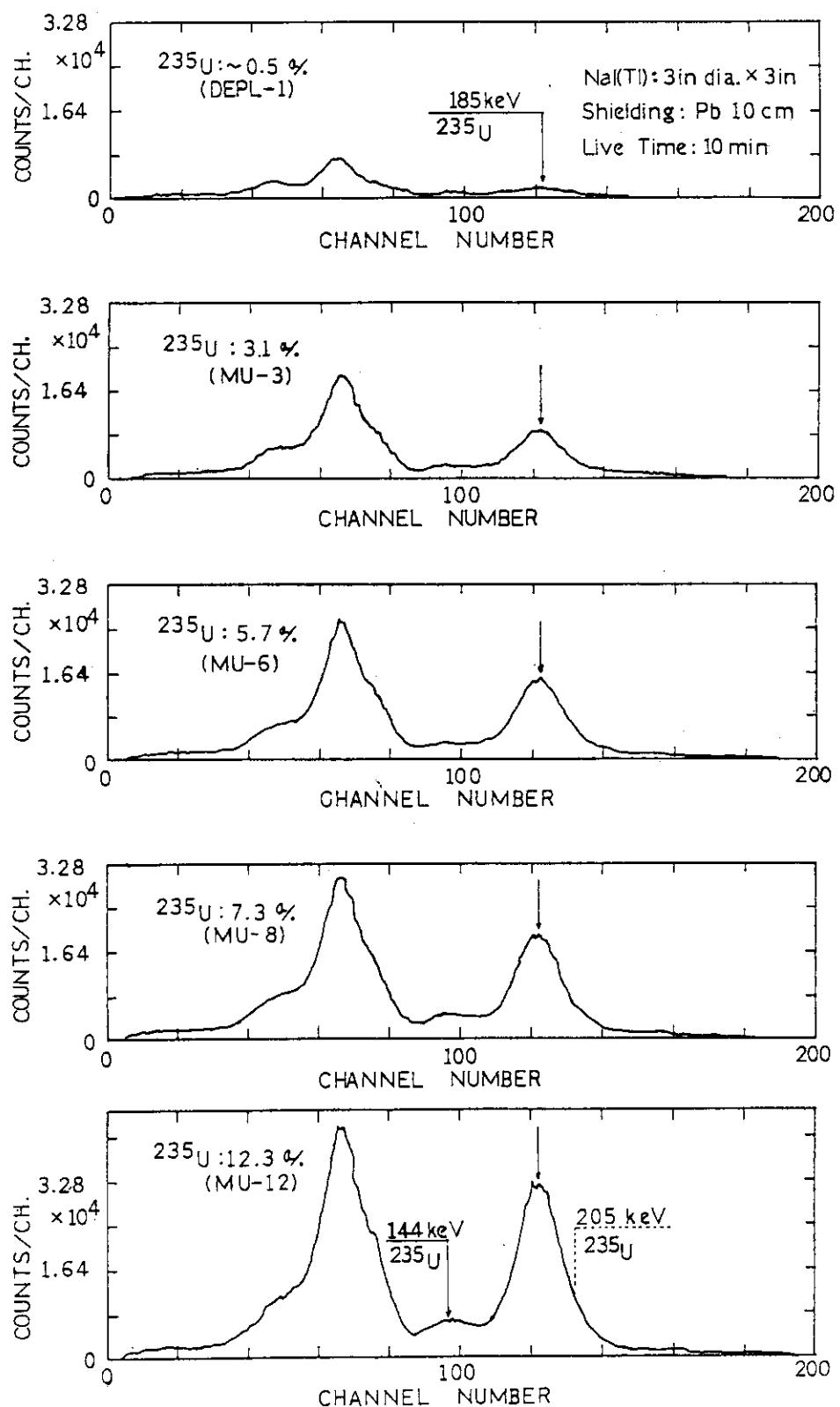


Fig. 4 Pulse-height distributions of the five uranium samples used in this work, measured by using the NaI(Tl) gamma-ray spectrometer shown in Fig. 2.

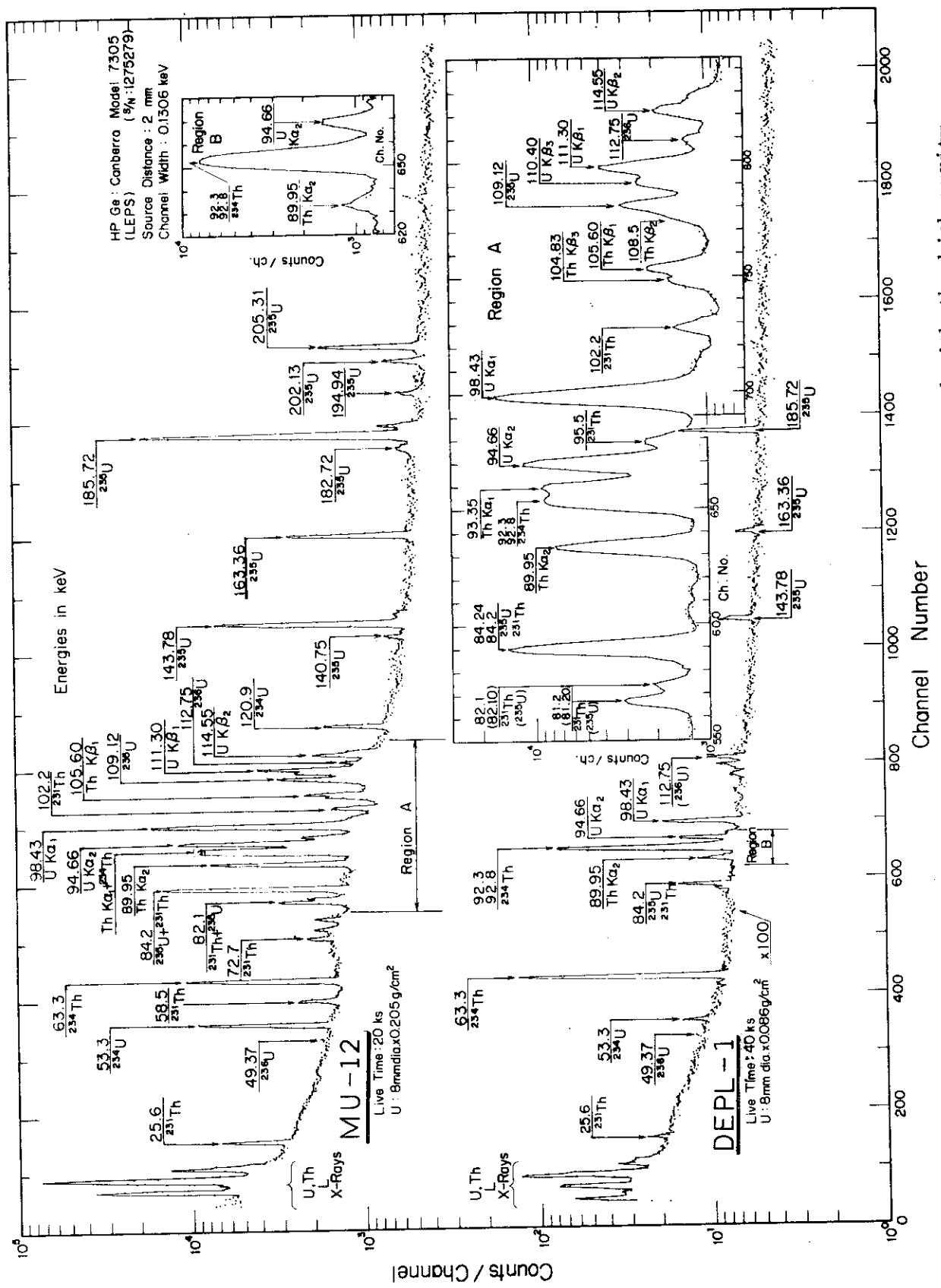


Fig. 5 Pulse-height distributions of MU-12 and DEPL-1 samples measured with the high purity Ge detector for low energy photon spectroscopy.

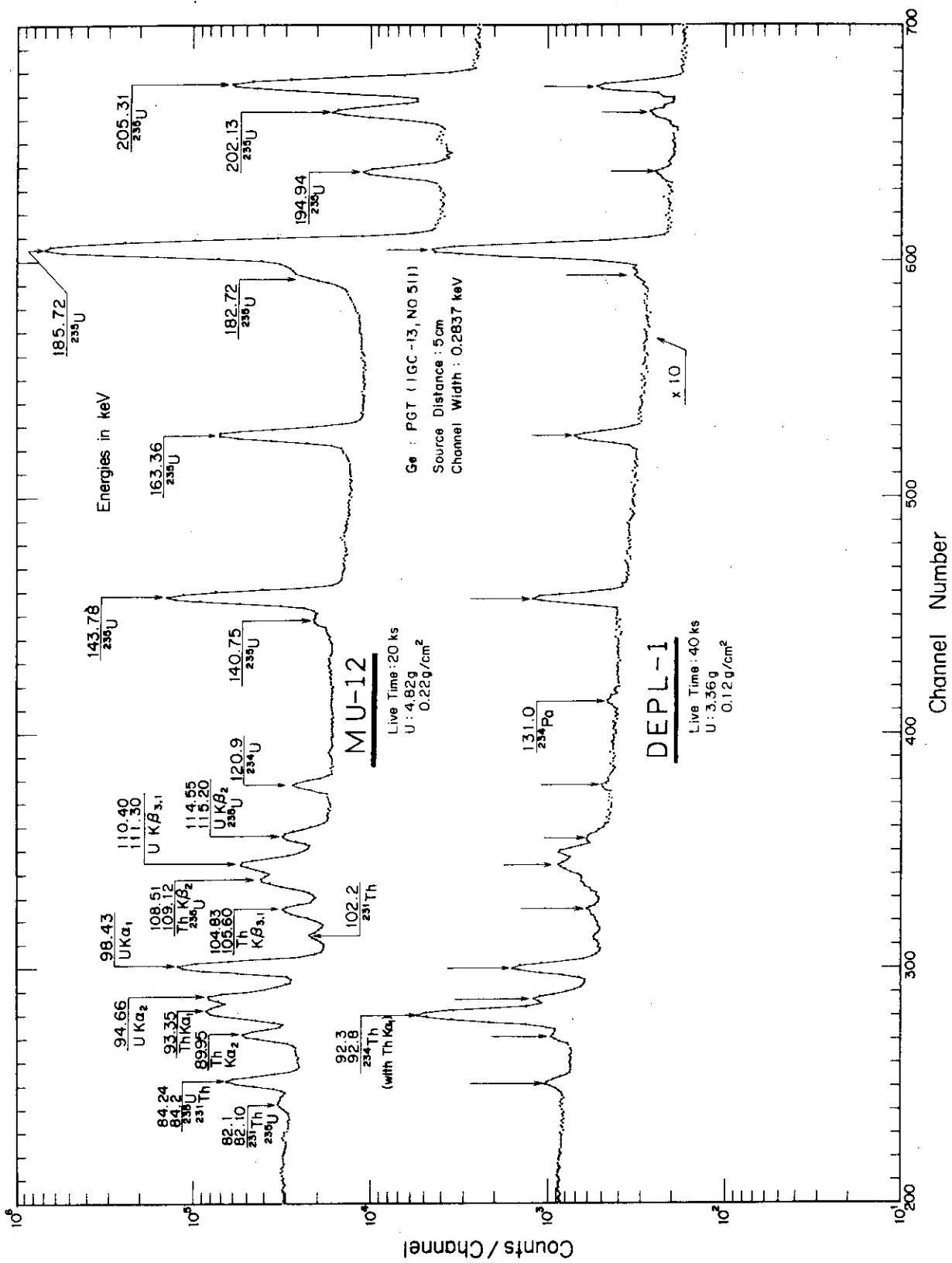


Fig. 6 Pulse-height distributions of MU-12 and DEPL-1 samples measured with the Ge detector for gamma-ray spectroscopy.

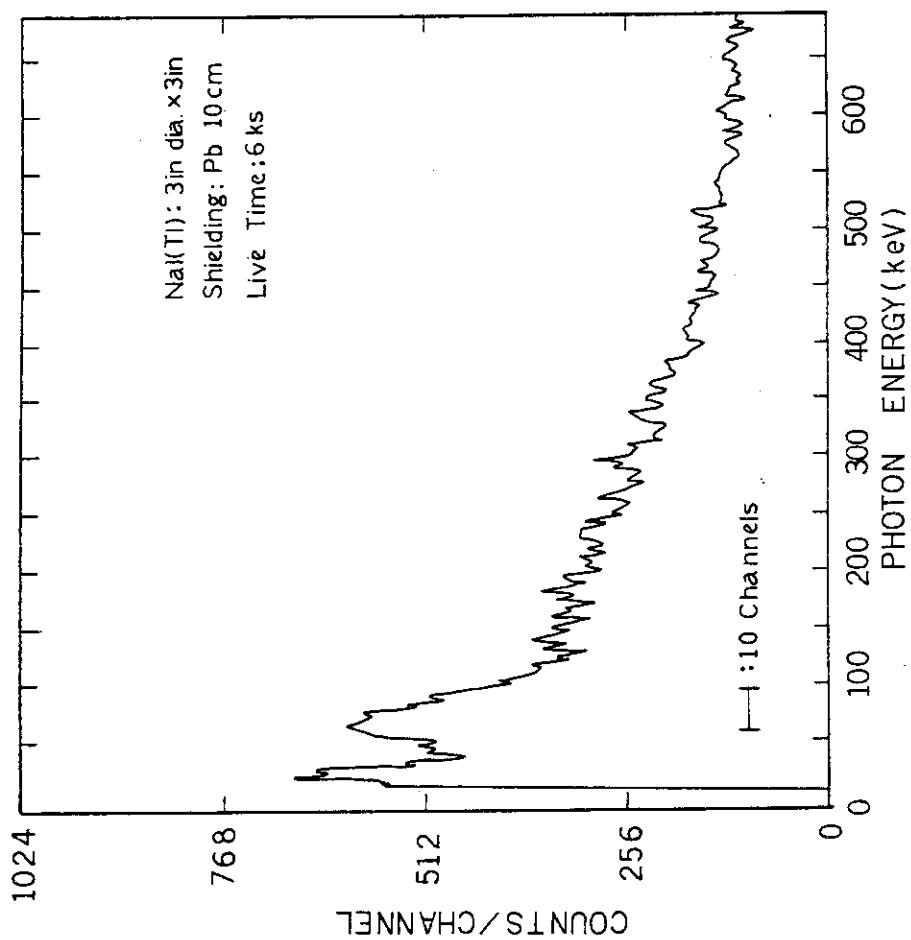


Fig. 8 Pulse-height distribution of natural background of the multiple single-channel analyzers.

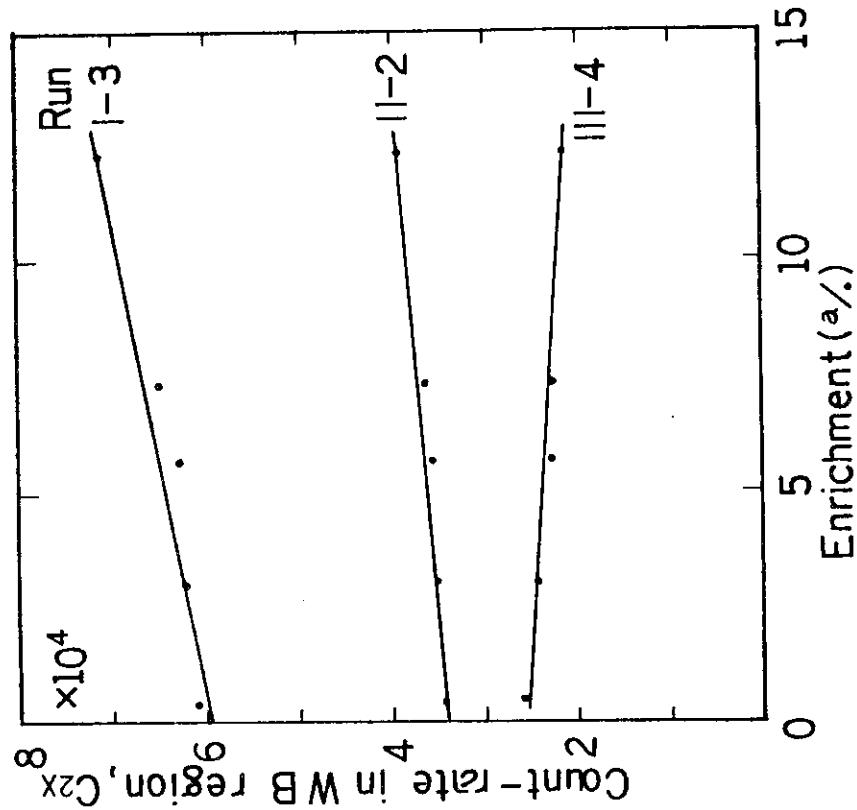


Fig. 7 Relations between enrichment (a/o) and count-rate C<sub>2X</sub> in the region of the window WB for the cases of run I-3, II-2 and III-4. Linear solid lines are drawn through the two data points obtained for standard enrichment samples of MU-3 and MU-12.

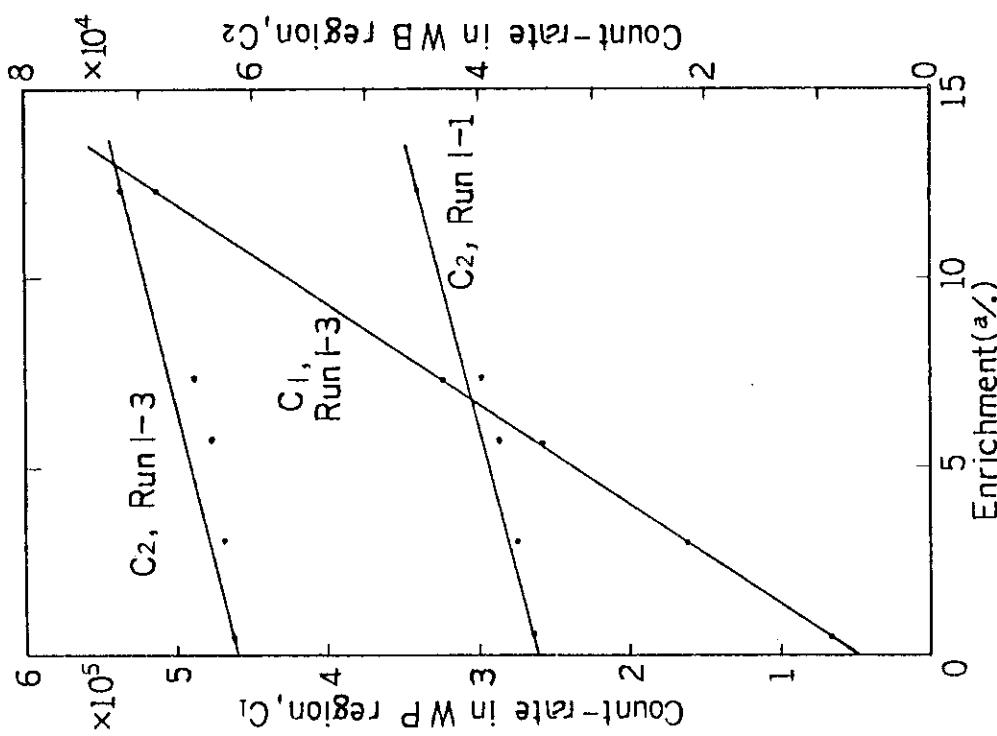


Fig. 9 Relation between enrichment(a/o) and count-rate in the region of the window WP for the case of run I-3, and relations between enrichment(a/o) and count-rate in the regions of the window WB for the cases of run I-1 and run I-3. Linear solid lines indicate calculated count-rates of C<sub>1</sub> and C<sub>2</sub>, which are determined on the basis of count-rate analysis formula in the method of multiple single-channel analyzers. Closed circles indicate count-rates measured.

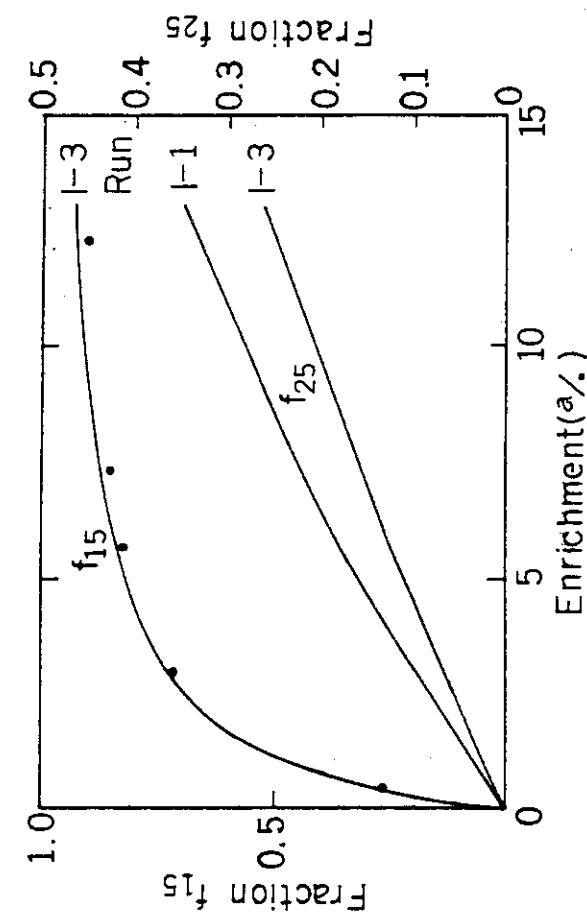
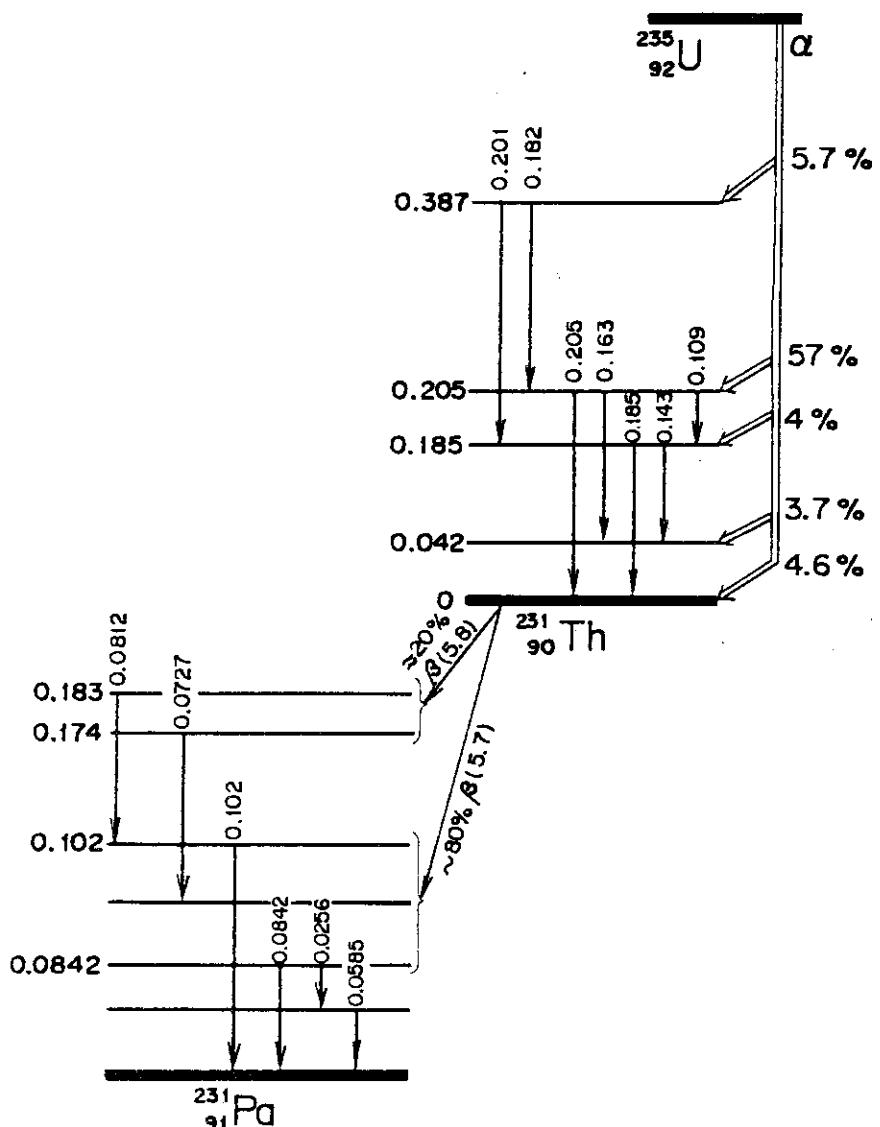


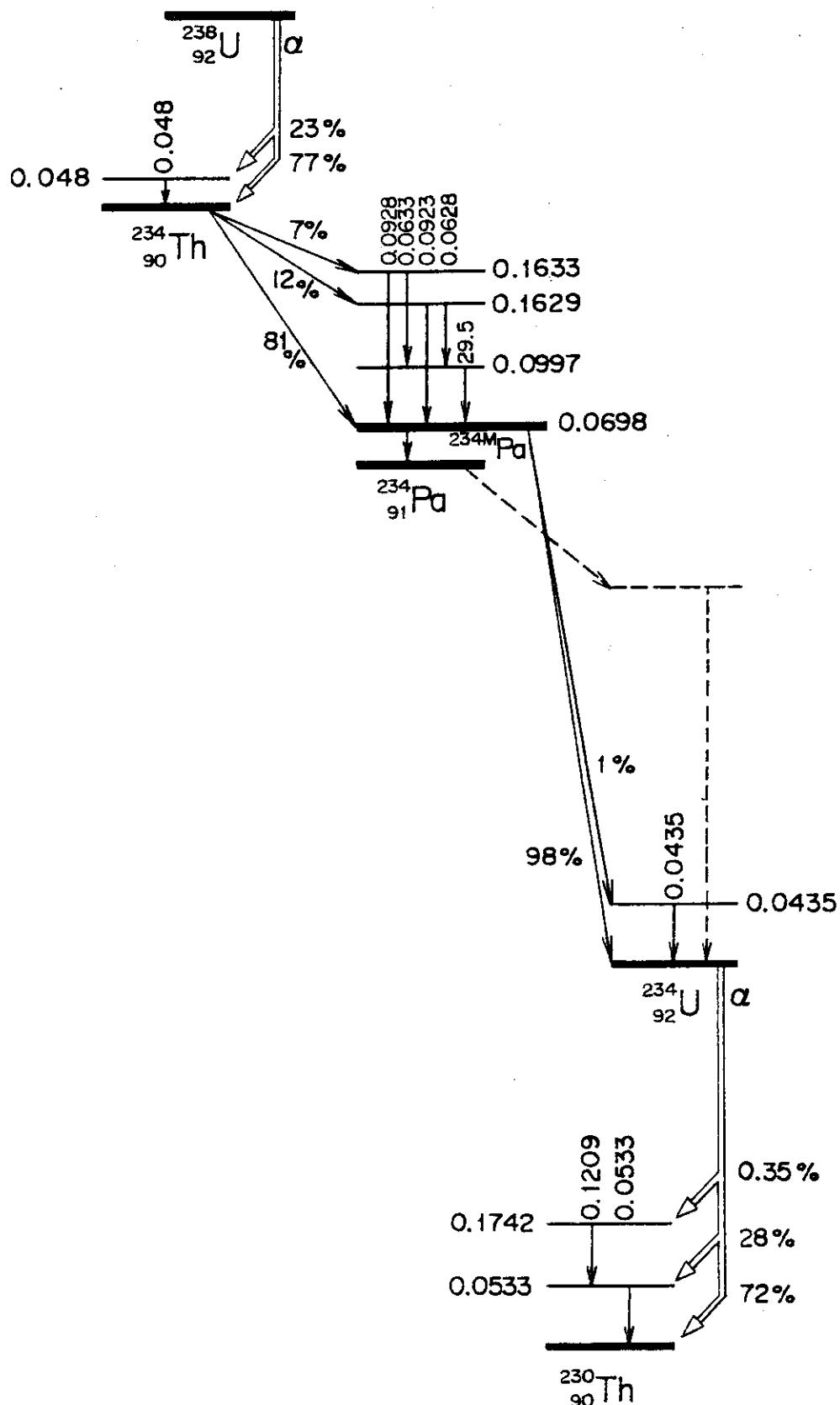
Fig. 10 Fractions f<sub>15</sub> and f<sub>25</sub> as a function of enrichment(a/o).  
 $f_{15} = (\text{count-rate due to gamma-rays resulting from } ^{235}\text{U in the region of the window WP}) / (\text{count-rate in the region of the window WP}).$   
 $f_{25} = (\text{count-rate due to gamma-rays resulting from } ^{235}\text{U in the region of the window WB}) / (\text{count-rate in the region of the window WB}).$

Solid curves indicate the values of fractions which are calculated on the basis of count-rate analysis formula in the method of multiple single-channel analyzers, and closed circles indicate experimental values.

Appendix I Simplified version of the decay schemes of  $^{235}\text{U}$   
and  $^{231}\text{Th}$



Appendix II Simplified version of the decay schemes of  $^{238}\text{U}$ ,  
 $^{234}\text{Th}$ ,  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ,  $^{234}\text{Pa}$  and  $^{234}\text{U}$



Appendix III Table of gamma-ray energies from uranium  
isotopes and their emission rates\*.

$^{232}\text{U}$ 7.2E+ly E(keV) (Emission rate)	$^{233}\text{U}$ 1.58E+5y	$^{234}\text{U}$ 2.44E+5y	$^{235}\text{U}$ 7.04E+8y	$^{236}\text{U}$ 2.39E+7y	$^{237}\text{U}$ 6.75d	$^{238}\text{U}$ 4.47E +9y
57.6 (2.1E-3)	29.0 (3.62E-4)	53.5 (6.81E-3)	26.64 (1.20E-1)	49.37 (7.7E-4)	26.35 (2.4E-2)	48 (un.)
129.0 (8.24E-4)	42.4 (1.89E-3)	120.9 (2.33E-3)	84.24 (5.1E-2)	112.75 (1.9E-4)	59.54 (3.61E-1)	
270.5 (3.8E-5)	54.69 (4.14E-4)	460 (un.)	109.12 (1.51E-2)	171.6 (un.)	64.94 (1.3E-2)	
327.8 (3.4E-5)	97.21 (6.01E-4)	510 (un.)	143.78 (9.72E-2)	223.2 (un.)	101.04 (2.73E-1)	
500 (2E-7)	119.01 (1.08E-4)	560 (un.)	163.36 (4.59E-2)		164.59 (2E-2)	
	146.38 (1.84E-4)		185.72 (5.40E-1)		208.00 (2.33E-1)	
	164.6 (1.77E-4)		202.13 (1.0E-2)		332.34 (1.30E-2)	
	245.34 (1.07E-4)		205.31 (5.0E-2)			
	291.34 (1.60E-4)					
	317.15 (2.31E-4)					

\* Gamma-rays listed: Emission rate  $> 10^{-4}$  for  $^{233}\text{U}$   
                  : Emission rate  $> 10^{-2}$  for  $^{235}\text{U}$  and  $^{237}\text{U}$

un. : unknown

Appendix IV Table of gamma-ray energies from representative daughter nuclides of uranium and their emission rates.

$^{231}_{\text{Th}}$	$^{234}_{\text{Th}}$	$^{234m}_{\text{Pa}}$	$^{234}_{\text{Pa}}$
25.52h	24.10d	1.17m	6.75h
E (keV) (Emission rate)			
25.6 (9.4E-2)	29.5 (un.)	257.9 (4.8E-4)	131.0 (2.0E-1)
58.5 (6.6E-3)	62.8 (1E-3)	742.81 (5.7E-4)	226.1 (1.2E-1)
72.7 (3.5E-3)	63.3 (8.49E-2)	766.36 (2.06E-3)	569.5 (1.3E-1)
82.1 (1.7E-2)	92.3 (5.3E-1)	786.27 (3.45E-4)	883.0 (1.3E-1)
84.2 (7.9E-2)	92.8 (5.3E-1)	1001.03 (6.0E-3)	926.0 (1.1E-1)
89.9 (1.1E-2)	115 (6.3E-2)	1738.2 (1.2E-4)	927.1 (1.1E-1)
95.5 (4.9E-3)	136 (5E-2)	1831.5 (1.1E-4)	946.3 (1.7E-1)
102.2 (3.6E-3)	155 (4E-2)		
106.8 (2.4E-3)	167 (4E-2)		
	184 (2E-2)		

There are 29 gamma-rays of different energy from  $^{234}_{\text{Pa}}$  are present up to 1695 keV, i.e., 63.4, 152.5, 185.9, 200.6, 245.0, 248.8, 293.5, 330.6, 369.3, 458.6, 653.7, 692.8, 699.0 keV etc., and their emission rates are below  $10^{-2}$ .

un : unknown