

JAERI-M  
83-222

4種のγ線スペクトロメトリ法による  
ウラン濃縮度測定

1983年12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（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒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, 1983

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 桜高野高速印刷

4種の $\gamma$ 線スペクトロメトリ法による  
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

(1983年11月22日受理)

4種の $\gamma$ 線スペクトロメトリ法によるウラン濃縮度測定をLMRI(フランス) $UO_2$ 標準試料を用いて行い、各スペクトロメトリ法の濃縮度測定特性を検討した。 $^{235}U$ からの186 keV- $\gamma$ 線のピーグ面積の直接的決定に基づく次の(i)~(iii)のスペクトロメトリ法においては、6.297 a/oの標準試料を用いて1.4~9.6 a/o範囲の濃縮度を測定した場合、実測値の表示値からの標準偏差として、それぞれ次の値が得られた。(i) LEPS HP Ge  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法: 1.4%, (ii) Ge(Li)  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法: 2.0%, (iii) NaI(Tl)  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法: 1.2%。第4のスペクトロメトリ法、多重シングルチャネル・アナライザ法の場合は、個々の試料に対して最適な組合せの標準試料を用いることによって、1.4~9.6 a/o範囲の濃縮度を0.5~1%の標準偏差で測定できた。一連の測定を通して、適用した各技法によってもたらされる系統誤差の原因の一端が明らかになった。さらに、LMRIによる濃縮度の表示値が正確に値付けされていること、および本 $UO_2$ 標準試料は、ここで用いた4種の $\gamma$ 線スペクトロメトリ技法に基づく濃縮度測定に大変有用であることが認められた。

Measurements of Uranium Enrichment by Four Techniques  
of Gamma-ray Spectrometry

Takao TOJO

Radioisotope and Nuclear Engineering School, JAERI

(Received November 22, 1983)

Measurements of uranium enrichment with the uses of the LMRI (France)  $\text{UO}_2$  standards have been made by four techniques of gamma-ray spectrometry, in order to examine measurement characteristics of each technique. The following results were obtained by the three techniques based on the direct determination of the peak area of the 186-keV gamma-rays from  $^{235}\text{U}$ , when the standard sample of 6.297 a/o was used for measuring enrichments ranging from 1.4 a/o to 9.6 a/o ; (i) In a LEPS HP Ge gamma-ray spectrometry, standard deviation of the measured enrichments from the certified ones was 1.4 %, (ii) in a Ge(Li) gamma-ray spectrometry, the standard deviation was 2.0 %, (iii) in a NaI(Tl) gamma-ray spectrometry, the standard deviation was 1.2 %. In the fourth technique, the method of multiple single-channel analyzers, enrichments of 1.4 - 9.6 a/o were measured in the standard deviation of 0.51 %, when the most suitable pairs of standard samples were used for each sample. A part of sources of systematic errors which were caused by each technique adopted was revealed throughout the measurements. And also, it was recognized that the LMRI's values of enrichment were certified precisely, and the  $\text{UO}_2$  standards were very useful for enrichment measurements in the four techniques of gamma-ray spectrometry used here.

Keywords : Uranium Enrichment, Uranium Reference Material Standard, Gamma-ray Spectrometry, Ge Detector, NaI(Tl) Detector, Two Scaler Method, Method of Multiple Single-channel Analyzers

## 目 次

1. はじめに.....	1
2. LMR I UO <sub>2</sub> 比較標準試料.....	1
3. ウラン濃縮度測定法.....	2
3.1 LEPS HP Ge $\gamma$ 線スペクトロメトリ法.....	2
3.2 Ge(Li) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法.....	2
3.3 NaI(Tl) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法.....	3
3.4 多重シングルチャネル・アナライザ法.....	3
4. ウラン濃縮度の測定.....	5
4.1 LEPS HP Ge $\gamma$ 線スペクトロメトリ法による濃縮度測定.....	5
4.2 Ge(Li) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法による濃縮度測定.....	5
4.3 NaI(Tl) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法による濃縮度測定.....	6
4.4 多重シングルチャネル・アナライザ法による濃縮度測定.....	6
5. 濃縮度測定結果の検討.....	8
6. 結論.....	11
謝辞.....	13
参考文献.....	14

## Contents

1.	Introduction .....	1
2.	LMRI UO <sub>2</sub> reference material standards .....	1
3.	Methods of measuring uranium enrichment .....	2
3.1	Method of LEPS HP Ge gamma-ray spectrometry .....	2
3.2	Method of Ge(Li) gamma-ray spectrometry .....	2
3.3	Method of NaI(Tl) gamma-ray spectrometry .....	3
3.4	Method of multiple single-channel analyzers .....	3
4.	Measurements of uranium enrichments .....	5
4.1	Enrichment measurement by LEPS HP Ge gamma-ray spectrometry .....	5
4.2	Enrichment measurement by Ge(Li) gamma-ray spectrometry .....	5
4.3	Enrichment measurement by NaI(Tl) gamma-ray spectrometry .....	6
4.4	Enrichment measurement by multiple single-channel analyzers .....	6
5.	Examinations of the results of enrichment measurements .....	8
6.	Conclusions .....	11
	Acknowledgement .....	13
	References .....	14

## 1. はじめに

ウラン濃縮度測定技術は核燃料管理上の基本的技術である。 $^{235}\text{U}$ が $185.715\text{ keV}$ の $\gamma$ 線を高い放出率で放出する点に着目する $\gamma$ 線スペクトロメトリを、ウラン濃縮度の測定に適用すれば、迅速・簡便で、かつ非破壊的な濃縮度測定が可能になる。このため、 $\gamma$ 線スペクトロメトリを利用した濃縮度測定技術の開発が近年活発に行われた。<sup>11～13)</sup>

一方、 $\gamma$ 線スペクトロメトリに不可欠な濃縮度の比較標準試料の開発も国際的な協力によって積極的に進められている。

このたび、フランスのLMR Iにおいて、核燃料中の $^{235}\text{U}$ の定量を目的として製作された1組の比較標準試料入手することができた。この比較標準試料は、濃縮度が $0.71\sim9.5\text{ w/o}$ の範囲にある6種の濃縮度の $\text{UO}_2$ ペレットで構成されている。<sup>13)</sup>

ここでは、これらのペレット中のあるものを標準試料として、他のものを未知試料として用いることによって、4種の $\gamma$ 線スペクトロメトリ法、即ち(i) 低エネルギー光子用のHP Ge検出器、(ii) 中・高エネルギー $\gamma$ 線用Ge(Li)検出器および(iii) NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いた通常の $\gamma$ 線スペクトロメトリ法、並びに(iv) NaI(Tl)検出器を用いた多重シングルチャネル・アナライザ法(2スレーラ法)による濃縮度測定を行った。これによって、濃縮度測定に適用されている全ての $\gamma$ 線スペクトロメトリ技法において、LMR I 比較標準試料を用いた場合の濃縮度測定特性および本比較標準試料そのものの特質の一端を明らかにすることを試みた。

## 2. LMR I $\text{UO}_2$ 比較標準試料

LMR I 比較標準試料は、Fig.1に示されているように、アルミニウムを基材とする合金、Duralinox(type AG5)<sup>\*</sup>製の容器に密封された $\text{UO}_2$ ペレットである。濃縮度としては、天然ウランから $9.5\text{ w/o}$ までの6種の濃縮度の試料が1組になっている。その主な仕様をTable 1に示す。

$^{235}\text{U}$ から放出される $185.715\text{ keV}-\gamma$ 線(放出率:  $0.540\text{ r/dis.}$ )の計数率は、 $3.2\text{ mm}$ 厚の $\text{UO}_2$ (密度:  $10.9\text{ g/cm}^3$ 、減弱係数( $186\text{ keV}$ ):  $14.4\text{ cm}^{-1}$ )の場合、無限厚において得られる計数率の $99\%$ に達する。したがって、Table 1に示されている最も高さの低い $10\text{ mm}$ 高の試料の場合でも、ほぼ完全な無限厚試料とみなすことができる。このため、Table 1に示されている試料間の厚さの相異が $\gamma$ 線スペクトロメトリに与える影響は無視し得る。それ故、コリメータを用いて、検出器がみる試料面積を限定すれば、試料面積にも依存しない濃縮度測定が可能になる。

一方、Fig.1に示されているように、ペレット密封容器の厚さの公差は $0.06\text{ mm}$ である。この公差分だけ容器厚さが変化した場合、 $186\text{ keV}-\gamma$ 線の計数率は約 $0.2\%$ 変化すると計算できる。この

\*  $\text{Al} + \text{Cu}(0.1\%)$ ,  $\text{Mg}(5\%)$ ,  $\text{Si}(0.4\%)$ ,  $\text{Fe}(0.5\%)$ ,  $\text{Mn}(0.6\%)$ ,  $\text{Zn}(0.2\%)$ ,  
 $\text{Cr}(0.4\%)$ ,  $\text{Ti}(0.2\%)$

\*\* 容器材質を純粋なアルミニウム(減弱係数:  $0.338\text{ cm}^{-1}$ )として求めた。

## 1. はじめに

ウラン濃縮度測定技術は核燃料管理上の基本的技術である。 $^{235}\text{U}$ が $185.715\text{ keV}$ の $\gamma$ 線を高い放出率で放出する点に着目する $\gamma$ 線スペクトロメトリを、ウラン濃縮度の測定に適用すれば、迅速・簡便で、かつ非破壊的な濃縮度測定が可能になる。このため、 $\gamma$ 線スペクトロメトリを利用した濃縮度測定技術の開発が近年活発に行われた。<sup>1)~10)</sup>

一方、 $\gamma$ 線スペクトロメトリに不可欠な濃縮度の比較標準試料の開発も国際的な協力によって積極的に進められている。<sup>11)~13)</sup>

このたび、フランスのLMR Iにおいて、核燃料中の $^{235}\text{U}$ の定量を目的として製作された1組の比較標準試料を入手することができた。この比較標準試料は、濃縮度が $0.71\sim 9.5\text{ w/o}$ の範囲にある6種の濃縮度の $\text{UO}_2$ ペレットで構成されている。

ここでは、これらのペレット中のあるものを標準試料として、他のものを未知試料として用いることによって、4種の $\gamma$ 線スペクトロメトリ法、即ち(i) 低エネルギー光子用のHP Ge検出器、(ii) 中・高エネルギー $\gamma$ 線用Ge(Li)検出器および(iii) NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いた通常の $\gamma$ 線スペクトロメトリ法、並びに(iv) NaI(Tl)検出器を用いた多重シングルチャネル・アナライザ法(2スレーラ法)による濃縮度測定を行った。これによって、濃縮度測定に適用されている全ての $\gamma$ 線スペクトロメトリ技法において、LMR I 比較標準試料を用いた場合の濃縮度測定特性および本比較標準試料そのものの特質の一端を明らかにすることを試みた。

## 2. LMR I $\text{UO}_2$ 比較標準試料

LMR I 比較標準試料は、Fig.1に示されているように、アルミニウムを基材とする合金、Duralinox(type AG5)<sup>\*</sup>製の容器に密封された $\text{UO}_2$ ペレットである。濃縮度としては、天然ウランから $9.5\text{ w/o}$ までの6種の濃縮度の試料が1組になっている。その主な仕様をTable 1に示す。

$^{235}\text{U}$ から放出される $185.715\text{ keV}-\gamma$ 線(放出率:  $0.540\text{ r/dis.}$ )の計数率は、 $3.2\text{ mm}$ 厚の $\text{UO}_2$ (密度:  $10.9\text{ g/cm}^3$ 、減弱係数( $186\text{ keV}$ ):  $14.4\text{ cm}^{-1}$ )の場合、無限厚において得られる計数率の $99\%$ に達する。したがって、Table 1に示されている最も高さの低い $10\text{ mm}$ 高の試料の場合でも、ほぼ完全な無限厚試料とみなすことができる。このため、Table 1に示されている試料間の厚さの相異が $\gamma$ 線スペクトロメトリに与える影響は無視し得る。それ故、コリメータを用いて、検出器がみる試料面積を限定すれば、試料面積にも依存しない濃縮度測定が可能になる。

一方、Fig.1に示されているように、ペレット密封容器の厚さの公差は $0.06\text{ mm}$ である。この公差分だけ容器厚さが変化した場合、 $186\text{ keV}-\gamma$ 線の計数率は約 $0.2\%$ 変化すると計算できる。この

\*  $\text{Al} + \text{Cu}(0.1\%)$ ,  $\text{Mg}(5\%)$ ,  $\text{Si}(0.4\%)$ ,  $\text{Fe}(0.5\%)$ ,  $\text{Mn}(0.6\%)$ ,  $\text{Zn}(0.2\%)$ ,  
 $\text{Cr}(0.4\%)$ ,  $\text{Ti}(0.2\%)$

\*\* 容器材質を純粋なアルミニウム(減弱係数:  $0.338\text{ cm}^{-1}$ )として求めた。

ことは、ペレット容器の厚さの変動が、有力な濃縮度測定の誤差要因とはならないことを示している。なお、濃縮度が同一の試料間における濃縮度の均一性は、それぞれの濃縮度レベルに対して次のように報告されている。<sup>13)</sup>

0.7 w/o : 0.04% (標準偏差), 2.8 w/o : 0.15%, 9.6 w/o : 0.39%

また、UO<sub>2</sub>の低原子番号の不純物は、試料間で異なるが、各不純物に対する最大値のみを挙げれば、

B : < 0.2 ppm, Be : < 0.2 ppm, C : 130 ppm, Li : < 1 ppm, Na : 14 ppm,  
などと報告されている。

### 3. ウラン濃縮度測定法

#### 3.1 LEPS HP Ge $\gamma$ 線スペクトロメトリ法

低エネルギー光子スペクトロスコピ用高純度Ge検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリ法（以下、LEPS HP Ge  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法と呼ぶ）によるウラン濃縮度測定においては、無限厚試料としてのUO<sub>2</sub>ペレットの直径に依存しない測定を可能にするため、Fig. 2に示すようなコリメータを用いて、検出部を構成した。コリメータは、厚さが12mmの鉛製であり、貫通部の形状は入射側の直径が3mm、出口側の直径が9mmの円錐形である。186 keVの $\gamma$ 線は、12mmの厚さの鉛で約 $1.5 \times 10^{-7}$ に減衰するので、ここで濃縮度測定目的には十分なコリメータ機能を有している。

用いたLEPS HP Ge検出器の主な仕様を以下に示す。

Canberra社製7305型(S/N: 1275279)

検出器の形式：平板型

Ge結晶の寸法：10 mm<sup>2</sup> × 5 mm

検出器入射窓厚：1.3 mil (Be)

Ge結晶—入射窓間距離：3 mm

エネルギー分解能(FWHM)：195 eV(5.9 keV, <sup>55</sup>Fe), 499 eV(122 keV, <sup>57</sup>Co)

検出器部遮蔽：4 cm厚の鉄

電子回路系としては、970C型前置増幅器、1413型スペクトロスコピ・アンプ、1468A型ライプタイム・コレクタ／パイルアップ・リジェクタ（以上何れもCanberra社製）、およびORTEC社製459型バイアス・サプライを用いた。多重波高分析器としては、Nuclear Data社製2200型(1024チャネル)を用い、デジタル出力をプリント・アウトした。

186 keV— $\gamma$ 線のピーク面積の算出にあたっては、ピーク両端のコンプトン・バックグラウンド評価用の各チャネルの計数値を直線で結び、この直線下のピーク領域内の面積（バックグラウンド計数値）を求め、この値をピーク領域内の全計数値から差し引くCovell法を用いた。<sup>14)</sup>

#### 3.2 Ge(Li) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法

中・高エネルギー $\gamma$ 線用のGe(Li)検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリ法（以下、Ge(Li)  $\gamma$

ことは、ペレット容器の厚さの変動が、有力な濃縮度測定の誤差要因とはならないことを示している。なお、濃縮度が同一の試料間における濃縮度の均一性は、それぞれの濃縮度レベルに対して次のように報告されている。<sup>13)</sup>

0.7 w/o : 0.04% (標準偏差), 2.8 w/o : 0.15%, 9.6 w/o : 0.39%

また、UO<sub>2</sub>の低原子番号の不純物は、試料間で異なるが、各不純物に対する最大値のみを挙げれば、

B : < 0.2 ppm, Be : < 0.2 ppm, C : 130 ppm, Li : < 1 ppm, Na : 14 ppm,  
などと報告されている。<sup>13)</sup>

### 3. ウラン濃縮度測定法

#### 3.1 LEPS HP Ge $\gamma$ 線スペクトロメトリ法

低エネルギー光子スペクトロスコピ用高純度Ge検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリ法（以下、LEPS HP Ge  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法と呼ぶ）によるウラン濃縮度測定においては、無限厚試料としてのUO<sub>2</sub>ペレットの直径に依存しない測定を可能にするため、Fig. 2に示すようなコリメータを用いて、検出部を構成した。コリメータは、厚さが12mmの鉛製であり、貫通部の形状は入射側の直径が3mm、出口側の直径が9mmの円錐形である。186 keVの $\gamma$ 線は、12mmの厚さの鉛で約 $1.5 \times 10^{-7}$ に減衰するので、ここで濃縮度測定目的には十分なコリメータ機能を有している。

用いたLEPS HP Ge検出器の主な仕様を以下に示す。

Canberra社製 7305型 (S/N: 1275279)

検出器の形式：平板型

Ge結晶の寸法：10 mm<sup>2</sup> × 5 mm

検出器入射窓厚：1.3 mil (Be)

Ge結晶—入射窓間距離：3 mm

エネルギー分解能 (FWHM) : 195 eV (5.9 keV, <sup>55</sup>Fe), 499 eV (122 keV, <sup>57</sup>Co)

検出器部遮蔽：4 cm厚の鉄

電子回路系としては、970C型前置増幅器、1413型スペクトロスコピ・アンプ、1468A型ライプタイム・コレクタ／パイルアップ・リジェクタ（以上何れもCanberra社製）、およびORTEC社製459型バイアス・サプライを用いた。多重波高分析器としては、Nuclear Data社製2200型(1024チャネル)を用い、デジタル出力をプリント・アウトした。

186 keV— $\gamma$ 線のピーク面積の算出にあたっては、ピーク両端のコンプトン・バックグラウンド評価用の各チャネルの計数値を直線で結び、この直線下のピーク領域内の面積（バックグラウンド計数値）を求め、この値をピーク領域内の全計数値から差し引くCovell法を用いた。<sup>14)</sup>

#### 3.2 Ge(Li) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法

中・高エネルギー $\gamma$ 線用のGe(Li)検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリ法（以下、Ge(Li)  $\gamma$

線スペクトロメトリ法と呼ぶ)によるウラン濃縮度測定の場合も, Fig.2に示したものと同様な鉛製のコリメータを用いた。コリメータの貫通部の中心軸がGe(Li)の*i*層の中間に位置するように, コリメータをGe(Li)検出器の入射窓上面に配置した。

Ge(Li)検出器の主な仕様を以下に示す。

ORTEC社製 8001-1521W型 (S/N: 16-3862)

検出器の形式: 同軸型

Ge 結晶の寸法: 48.6 mm(径) × 56.2 mm(長)

Li ドリフト深さ: 19.8 mm, 拡散深さ: 1.2 mm

有体積: 91.7 cc

吸収物質厚さ: Al 0.5 mm, テフロン 1.0 mm

Ge 結晶-入射窓間距離: 5 mm

エネルギー分解能 (FWHM): 2.06 keV (1.33 MeV,  $^{60}\text{Co}$ )

ピーク/コンプトン: 39/1 ( $^{60}\text{Co}$ )

相対的ピーク検出効率 ( $3'' \times 3''$  NaI): 16.5% (1.33 MeV, 25 cm)

電子回路系としては, 120-4F前置増幅器 (119F型高圧フィルタ付属), 472型スペクトロスコピ・アンプおよび459型バイアス・サプライ (以上全てORTEC社製) を用いた。多重波高分析器としては, ORTEC社製 6240型を用い, デジタル出力をプリント・アウトした。

### 3.3 NaI(Tl) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法

NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリ法 (以下, NaI(Tl)  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法と呼ぶ) によるウラン濃縮度測定においては, Fig.3に示すようなコリメータを用いて検出部を構成した。NaI(Tl)蛍光体としては, 堀場製作所製の1" (径) × 1" (高) (4A4N型) を用いた。コリメータの貫通部の寸法は, Fig.2に示したコリメータと同じであるが鉛の厚さは2 mm薄くなっている。しかし, 10 mm厚の鉛は186 keV- $\gamma$ 線を約  $2.0 \times 10^{-6}$  に減衰させるため, このコリメータはここで測定目的には十分な機能を有している。

電子回路系としては, 東京原子工業製S-212型高圧分割回路/エミッタ・ホロワ, ORTEC 410リニア・アンプ, John Fluke 415B型高圧電源を用いた。多重波高分析器としては, Nuclear Data社製 2200型をチャネル容量 256で用い, デジタル出力をプリント・アウトした。

### 3.4 多重シングルチャネル・アナライザ法

多重シングルチャネル・アナライザ法 (2スケーラ法) によるウラン濃縮度測定においては, 前節3.3と同一の検出部, リニア回路系および高圧電源回路を用いた。

本法での測定系のブロックダイヤグラムをFig.4に示す。

多重シングルチャネル・アナライザ (MSCA) 法は, 多重波高分析器を用いずにウラン濃縮度が測定できる $\gamma$ 線スペクトロメトリ法である。NaI(Tl)検出器を用いれば測定装置全体を携帯に便利な程度にコンパクトにすることが容易であり, 経済的でもあるので, ウラン濃縮度測定に広く用いられている。

Fig.4に示されたブロックダイヤグラム中で、MSCA法に供される回路は、太い線で結ばれているスケーラ／タイマまでの回路である。その他の回路は、MSCA法による濃縮度測定に必要な測定条件の設定を迅速・的確に行うとともに、測定条件が変動した場合、それを早期に把握できるようするためのモニタを構成している。

MSCA法によるウラン濃縮度測定原理を概説するために、NaI(Tl)検出器を用いて測定したウラン試料のパルス波高分布の一例をFig.5に示す。

試料中の<sup>235</sup>U含有量に比例する計数率を得るために、186 keV- $\gamma$ 線のピーク計数率N<sub>P</sub>を求める必要がある。しかし、Fig.5にWindow-1として示されているパルス波高領域にシングルチャネル・アナライザ(SCA)のウインド(window)を設定した場合、得られる計数率N<sub>T</sub>は、N<sub>P</sub>にバックグラウンド計数率N<sub>B</sub>が加わったものになる。従って、N<sub>P</sub>を求めるためには、N<sub>B</sub>を評価し、それをN<sub>T</sub>から差引く必要がある。MSCA法では、以下に示すように、2種の濃縮度標準試料を用いることによって、ピーク計数率を評価し、これに基づいて、未知試料の濃縮度を求めている。

- (i) 濃縮度E<sub>R1</sub>が既知の標準試料をFig.4に示した2台のSCAを用いて、Fig.5の186 keVのピーク領域(Window-1)およびバックグラウンド領域(Window-2)の計数率をそれぞれ測定する。この結果、濃縮度E<sub>R1</sub>の試料に対する計数率N<sub>11</sub>およびN<sub>21</sub>が得られる。ただし、N<sub>ij</sub>はWindow-iにおける標準試料jの計数率を示す。
- (ii) 濃縮度E<sub>R2</sub>の標準試料を用いて、同一条件下での測定によって計数率N<sub>12</sub>およびN<sub>22</sub>を得る。
- (iii) これらの計数率と標準試料の濃縮度の間には次の関係が成立すると考える。

$$\left. \begin{aligned} E R_1 &= a N_{11} - b N_{21} = a(N_{11} - \frac{b}{a} N_{21}) \\ E R_2 &= a N_{12} - b N_{22} = a(N_{12} - \frac{b}{a} N_{22}) \end{aligned} \right\} \dots \quad (1)$$

式(1)における、例えばN<sub>11</sub>はFig.5に示した全計数率N<sub>T</sub>であり、(b/a)N<sub>21</sub>はピーク領域内のバックグラウンド計数率N<sub>B</sub>に対応している。したがって、(N<sub>11</sub> - b/a N<sub>21</sub>)はピーク計数率N<sub>P</sub>を意味しているので、係数aは、ピーク計数率と濃縮度を関係づける比例定数になる。

- (iv) 式(1)から係数aおよびbを求める。

$$\left. \begin{aligned} a &= \frac{E R_1 \cdot N_{22} - E R_2 \cdot N_{21}}{N_{11} \cdot N_{22} - N_{12} \cdot N_{21}} \\ b &= \frac{E R_1 \cdot N_{12} - E R_2 \cdot N_{11}}{N_{11} \cdot N_{22} - N_{12} \cdot N_{21}} \end{aligned} \right\} \dots \quad (2)$$

- (v) 未知試料を測定し、計数率N<sub>1X</sub>およびN<sub>2X</sub>を得て、その濃縮度E<sub>RX</sub>を求める。

$$E R_X = a N_{1X} - b N_{2X}$$

この場合、統計誤差(%)は次のような。

$$\frac{\Delta(E R)}{E R} = \sqrt{\frac{a^2 N_{1X} + b^2 N_{2X}}{a N_{1X} - b N_{2X}}} \times 100$$

MSCA法による濃縮度測定原理は、b/aの値が濃縮度に依存せず、試料間で一定である場合によく成立する。

## 4. ウラン濃縮度の測定

### 4.1 LEPS HP Ge $\gamma$ 線スペクトロメトリ法による濃縮度測定

LEPS HP Ge  $\gamma$ 線スペクトロメータを用いて測定した0.7U（濃縮度：0.7202a/o）および9.6U（9.658a/o）試料のパルス波高分布をFig.6 AおよびFig.6 Bに示す。また、0.7Uおよび9.6U試料の185.715keV- $\gamma$ 線の全エネルギー吸収ピークとその近傍のパルス波高分布をそれぞれFig.7にA（0.7U）およびB（9.6U）として示す。

Fig.6およびFig.7から、ここで濃縮度範囲の上下限値を示すこれら試料には、目的とする $\gamma$ 線スペクトロメトリを妨害する核種や、ウランとその娘核種以外の不純物核種は含まれていないことが明らかになっている。また、ピーク領域のコンプトン・バックグラウンドは非常に平坦で、正確なピーク面積の算出が可能であることが明らかになっている。

Covell法によって算出したピーク面積から求めた濃縮度測定結果を、LMRIによる表示値とともにTable 2に示す。同表中に示されている実測濃縮度 $ER_M(I)$ は、0.7Uから9.6Uまでの6個の試料の全てを標準試料に用いて計算したピーク計数率対濃縮度表示値の回帰直線から求めた結果である。また、 $ER_M(II)$ は6.2U試料（6.297a/o）のみを標準試料に用いて求めた結果である。全試料を標準試料に用いた回帰直線の標準偏差は、0.53%（相関係数：0.999977）であった。この濃縮度測定結果は、 $\gamma$ 線スペクトロメトリが高精度で行われたことを示している。

Table 2の濃縮度測定結果は、全試料を標準試料として用いた場合および6.2U試料のみを標準試料に用いた場合の何れにおいても、2.8a/o～9.6a/o範囲の濃縮度を、表示値からの差異が1.5%以下で測定できたことを示している。また、天然ウラン（0.7U）と1.4a/o（1.4U）試料の場合には、表示値からの差異が最大約3%生じていることが明らかになっている。

### 4.2 Ge(Li) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法による濃縮度測定

Ge(Li)  $\gamma$ 線スペクトロメータを用いて測定した1.4U（1.434a/o）および9.6U（9.658a/o）試料の185.715keV- $\gamma$ 線のピークとその近傍のパルス波高分布を、Fig.8にAおよびBとしてそれぞれ示す。

濃縮度測定結果を、LMRIによる表示値とともにTable 3に示す。同表中に示されている実測濃縮度 $ER_M(I)$ および $ER_M(II)$ の意味は、前節の4.1（Table 2）と同様である。また、186keV- $\gamma$ 線のピーク面積の算出にあたっては、Covell法が用いられた。

実測濃縮度 $ER_M(I)$ を求めるための回帰直線の標準偏差は、1.21%（相関係数：0.99988）であった。これらの統計量を、LEPS HP Ge  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法の場合のそれらと比較すると、ピーク面積の統計誤差は両者ともほぼ同等であるにもかかわらず、Ge(Li)  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法による相関係数は、LEPS HP Ge法に比較して、小さくなり、標準偏差は2.3倍になっている。

\* LEPS HP Ge法による各試料に対する統計誤差；0.63%（1.4U），0.45%（5.1U），0.35%（9.6U）

Ge(Li)法による各試料に対する統計誤差；0.91%（1.4U），0.40%（5.1U），0.30%（9.6U）

Table 3に示した濃縮度測定結果は、 $ER_M(I)$  および  $ER_M(II)$  の両者とも、0.7 U および 1.4 U 試料の場合には、表示値より濃縮度が大きく測定される傾向があることを示している。このような傾向は、ここで得られた傾向よりも弱いが、Table 2に示した LEPS HP Ge 法の場合についてもみられ、Covell 法によるピーカ面積算出法によってもたらされる系統誤差の存在を示唆している。

#### 4.3 Na I(Tl) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法による濃縮度測定

Na I(Tl)  $\gamma$  線スペクトロメータを用いて測定した 0.7 U ~ 9.6 U の 6 種の濃縮度の試料に対するパルス波高分布を Fig.9 A および 9 B に示す。なお、186 keV -  $\gamma$  線に対するエネルギー分解能 (FWHM) としては、35.9 keV (19.3%) が得られた。

濃縮度測定結果を Table 4 に示す。同表に示した濃縮度は、186 keV -  $\gamma$  線のピーカ面積を Covell 法で算出して得られたものである。Table 4 の  $ER_M(I)$  および  $ER_M(II)$  の意味は、前出の 4.1 および 4.2 (Table 2 および 3) と同様である。 $ER_M(I)$  を求めるための回帰直線の標準偏差は 3.4% (相関係数 : 0.99904) であった。これらの統計量を 4.1 および 4.2 で得た結果と比較すると、用いた検出器のエネルギー分解能の低下に伴って、相関係数は小さくなり、回帰直線の標準偏差は大きくなる傾向が一層明らかである。ここで得られた回帰直線の標準偏差は、LEPS HP Ge 法による値より 6.4 倍、Ge(Li) 法による値よりも 2.8 倍大きくなっている。このように標準偏差が大きくなった原因としては、Table 4 から明らかなように、濃縮度の低い 0.7 U, 1.4 U および 2.8 U 試料の実測値が特に大きく表示値から偏差していることが挙げられる。このような Na I(Tl) スペクトロメトリ法による測定誤差の根本的原因は、Covell 法によるピーカ面積の算出法にあると考えられる。Table 4 の結果から、6.2 U (6.297 a/o) 試料を標準試料とした場合、Covell 法による Na I(Tl)  $\gamma$  線スペクトロメトリ法でも、3 a/o 以上のレベルの濃縮度の場合には、約 1.5% の誤差で測定可能であるが、1.5 a/o 以下のレベルの濃縮度測定には約 2.5% 以上の誤差が伴い、測定目的を果し得ないことが明らかになっている。また、Table 4 に示された実測濃縮度の表示値からの偏差の正または負の値の傾向は、Covell 法による Na I(Tl)  $\gamma$  線スペクトロメトリでは、ある濃縮度レベルではピーカ面積が過大 (コンプトン・バックグラウンド計数値が過小) に算出され、またある濃縮度レベルでは過小に算出されることを示唆している。

#### 4.4 多重シングルチャネル・アナライザ法による濃縮度測定

多重シングルチャネル・アナライザ法による濃縮度測定においては、186 keV -  $\gamma$  線のピーカ領域 (Window-1) を 160 ~ 210 keV に、バックグラウンド領域 (Window-2) を 220 ~ 280 keV に設定する条件 (以下、設定条件 I と呼ぶ)<sup>2)</sup> と 165 ~ 210 keV (Window-1) および 215 ~ 290 keV (Window-2) に設定する条件 (以下、設定条件 II と呼ぶ)<sup>10)</sup> の両ウインド設定条件を用いた。両設定条件における同時ゲート化されたパルス波高分布をそれぞれ Fig.10 (設定条件 I) および Fig.11 (設定条件 II) に示す。それぞれの図にはシングル・スペクトルも併せて示されており、Fig.11 の場合には同時ゲート化され自然バックグラウンド・スペクトルも併せて示されている。

ウインド設定条件 I および II の両条件において、各試料の計測時間を 1000 秒とし、0.7 U ~ 9.6

Uの6個の試料計測を1ブロックとする測定法を用いた。設定条件Ⅰの場合は11ブロックの測定を、設定条件Ⅱの場合は10ブロックの測定を行った。ウインドの設定値は一連の測定を通じて±2 keV以内に保たれた。

多重シングルチャネル・アナライザ法による濃縮度測定結果を、LMR Iの濃縮度の表示値とともにTable 5に示す。同表中に示されている実測濃縮度 $ER_M(I)$ はウインド設定条件Ⅰにおいて行った11ブロックの測定結果の平均値であり、 $ER_M(II)$ は設定条件Ⅱにおいて行った10ブロックの測定結果の平均値である。これらの測定結果に付されている誤差は、 $ER_M(I)$ については11ブロックの、 $ER_M(II)$ については10ブロックの実測濃縮度の標準偏差である。各試料の濃縮度を求めるための標準試料としては、被測定試料の濃縮度を間にした濃縮度が相隣れる2種の試料を用いた。なお、0.7 U試料については1.4 Uおよび2.8 Uを、9.6 U試料については、5.1 Uおよび6.2 U試料を標準試料に用いた。

Table 5に示した結果は、0.7 Uおよび1.4 U試料については、測定精度のウインド設定条件に対する依存性は明らかではない。しかし、2.8 U (2.820 a/o) より濃縮度が高い試料に対する設定条件Ⅱによる実測濃縮度の標準偏差は、設定条件Ⅰによる標準偏差の約1/2になり、設定条件Ⅱの方が濃縮度測定の確度が高いことを示している。

Table 5の測定結果から、濃縮度が相隣れる標準試料とウインド設定条件Ⅱを用いた測定によって2.8 a/o ~ 9.6 a/o 範囲の濃縮度を2.6%以内の標準偏差で測定できることが明らかになっている。

広い範囲にわたる種々な濃縮度を測定するための適当な標準試料の組合せを選択するため、種々な標準試料の組合せで各試料の濃縮度を求めた。その結果、ウインド設定条件Ⅰの場合には、0.7 Uと9.6 Uの組合せのときに3種の被測定試料が最も表示値に近い濃縮度を示した。また、ウインド設定条件Ⅱの場合には、0.7 Uと9.6 Uおよび1.4 Uと6.2 Uの組合せのとき、それぞれ2種の被測定試料が最も表示値に近い濃縮度を示した。

Table 6に標準試料の組合せ0.7 U - 9.6 Uおよび1.4 U - 6.2 Uを、ウインド設定条件ⅠおよびⅡの条件下においてそれぞれ用いて測定した濃縮度測定結果と実測標準偏差を示す。同表中に示されている実測濃縮度(I)は、ウインド設定条件Ⅰで得られた11ブロックの測定結果の平均値であり、実測濃縮度(II)は、ウインド設定条件Ⅱで得られた10ブロックの測定結果の平均値である。

Table 6に示した濃縮度測定結果から次の事項が明らかになっている。

- (i) 何れの標準試料の組合せを用いても、ウインド設定条件Ⅱの方が実測標準偏差が小さくなる、
- (ii) 統計的に有意な差はないが、ウインド設定条件Ⅱにおいては、表示値に最も近い測定値が4種の試料について得られ、条件Ⅰにおいては2種の試料について得られている、
- (iii) ウインド設定条件Ⅱにおける実測値の表示値からの標準偏差としては、0.7 U - 9.6 Uの場合 0.051 a/o (1.3%) が、1.4 U - 6.2 Uの場合 0.051 a/o (1.1%) が得られ、何れの組合せを用いても測定精度には影響がない。

標準および被測定試料の測定をブロック化した今迄の測定とは異なり、標準試料をそれぞれ6000秒間計測して濃縮度の算出に必要な定数を決定し、被測定試料の1000秒計測を連続的にくり返す方法で濃縮度を測定した。標準試料の組合せとしては、0.7 U - 9.6 U (ウインド設定条件Ⅰ) および2.8 U - 6.2 U (ウインド設定条件Ⅱ) を用い、被測定試料としては5.1 U (5.173 a/o) を選んだ。5.1 U試料の計測を0.7 U - 9.6 Uの場合は60回、2.8 U - 6.2 Uの場合は80回行った。その結果、5.1 U試料に対する平均濃縮度とその実測標準偏差としてそれぞれ次の値が得られた。

0.7 U - 9.6 U 標準試料の場合 :  $5.201 \pm 0.089$  a/o

2.8 U - 6.2 U 標準試料の場合 :  $5.168 \pm 0.086$  a/o

これらの測定結果に対応するブロック化した測定法によって得られた濃縮度としては、0.7 U - 9.6 U 標準試料による 11 ブロックの平均値、 $5.178 \pm 0.093$  a/o が Table 6 に、2.8 U - 6.2 U 標準試料による 10 ブロックの平均値、 $5.169 \pm 0.069$  a/o が Table 5 にそれぞれ示されている。これらの互いに対応する濃縮度の比較は、標準試料がカバーする濃縮度範囲がかなり異なるにもかかわらず、標準試料の 2 種の組合せ方によって測定結果に有意差が生ぜず、標準偏差もほぼ同等の値であることを示している。このような、ブロック化した場合と、しない場合の測定結果の同等性は、ここで用いたウインド設定条件が高い計数の安定性を保証するパルス波高領域に該当すること、および測定回路系の高い安定性の故に、安定な濃縮度測定が行われたことを示している。

自然バックグラウンドの濃縮度測定結果における寄与の検討を、Table 6 の実測濃縮度(II)に対する条件下で検討した。この結果、標準試料の 2 種の組合せの何れの場合でも、濃縮度の値に関係なく、信頼度 95%において、自然バックグラウンドの濃縮度測定結果における寄与は認められなかった。

## 5. 濃縮度測定結果の検討

Table 2, 3 および 4 にそれぞれ示されている LEPS HP Ge, Ge(Li) および NaI(Tl)  $\gamma$  線スペクトロメトリ法による濃縮度測定結果は、共通して 0.7 U および 1.4 U 試料の測定値が表示値より大きく求められている。また、測定値の表示値からの偏差は、検出器のエネルギー分解能の低下とともに大きくなっている。このような系統的誤差は、ピーク面積の算出法に基づくものと考えられる。この点を明らかにするため、NaI(Tl)  $\gamma$  線スペクトロメータを用いて測定した 0.7 U, 2.8 U および 9.6 U 試料の 186 keV -  $\gamma$  線ピークを中心としたパルス波高分布をそれぞれ Fig.12 A, Fig.12 B および Fig.12 C に示す。ここで用いた Covell 法によってピーク面積を求めるためのコンプトン・バックグラウンド分布は、これらの図中に直線の実線で示されており、ピークより高エネルギー側のコンプトン・バックグラウンドの直線的外挿値は点線で示されている。各パルス波高分布の実線および点線の傾向から、ピーク領域のコンプトン・バックグラウンド分布は、図中に鎖線で示されているように、0.7 U 試料の場合は上方にふくらんだ、9.6 U 試料の場合は下方にふくらんだ分布であり、2.8 U 試料の場合はかなり直線に近い分布であると判断できる。従って、Covell 法によるピーク面積は、2.8 U ( $2.820$  a/o) より低濃縮度の試料に対しては過大に、2.8 U 試料より高濃縮度の試料に対しては過小に、2.8 U 試料に対してはかなり正確に評価される傾向になる。このような理由によって、0.7 U および 1.4 U 試料の各濃縮度は表示値より大きな値として求められたものと考えられる。

以上の点を明らかにするため、コンプトン・バックグラウンド分布を Fig.12 A ~ 12 C に鎖線で示したような放物線にフィットし、そのピーク領域内の分布の積分値をピーク領域の全計数値から差し引いてピーク面積を求める方法（以後、放物線法によるピーク面積算出法と呼ぶ）を用いた。この結果、Covell 法によるピーク計数率に対する放物線法によるピーク計数率の比は、それぞれの試料

0.7 U - 9.6 U 標準試料の場合 :  $5.201 \pm 0.089$  a/o

2.8 U - 6.2 U 標準試料の場合 :  $5.168 \pm 0.086$  a/o

これらの測定結果に対応するブロック化した測定法によって得られた濃縮度としては、0.7 U - 9.6 U 標準試料による 11 ブロックの平均値、 $5.178 \pm 0.093$  a/o が Table 6 に、2.8 U - 6.2 U 標準試料による 10 ブロックの平均値、 $5.169 \pm 0.069$  a/o が Table 5 にそれぞれ示されている。これらの互いに対応する濃縮度の比較は、標準試料がカバーする濃縮度範囲がかなり異なるにもかかわらず、標準試料の 2 種の組合せ方によって測定結果に有意差が生ぜず、標準偏差もほぼ同等の値であることを示している。このような、ブロック化した場合と、しない場合の測定結果の同等性は、ここで用いたウインド設定条件が高い計数の安定性を保証するパルス波高領域に該当すること、および測定回路系の高い安定性の故に、安定な濃縮度測定が行われたことを示している。

自然バックグラウンドの濃縮度測定結果における寄与の検討を、Table 6 の実測濃縮度(II)に対する条件下で検討した。この結果、標準試料の 2 種の組合せの何れの場合でも、濃縮度の値に関係なく、信頼度 95%において、自然バックグラウンドの濃縮度測定結果における寄与は認められなかった。

## 5. 濃縮度測定結果の検討

Table 2, 3 および 4 にそれぞれ示されている LEPS HP Ge, Ge(Li) および NaI(Tl)  $\gamma$  線スペクトロメトリ法による濃縮度測定結果は、共通して 0.7 U および 1.4 U 試料の測定値が表示値より大きく求められている。また、測定値の表示値からの偏差は、検出器のエネルギー分解能の低下とともに大きくなっている。このような系統的誤差は、ピーク面積の算出法に基づくものと考えられる。この点を明らかにするため、NaI(Tl)  $\gamma$  線スペクトロメータを用いて測定した 0.7 U, 2.8 U および 9.6 U 試料の 186 keV -  $\gamma$  線ピークを中心としたパルス波高分布をそれぞれ Fig.12 A, Fig.12 B および Fig.12 C に示す。ここで用いた Covell 法によってピーク面積を求めるためのコンプトン・バックグラウンド分布は、これらの図中に直線の実線で示されており、ピークより高エネルギー側のコンプトン・バックグラウンドの直線的外挿値は点線で示されている。各パルス波高分布の実線および点線の傾向から、ピーク領域のコンプトン・バックグラウンド分布は、図中に鎖線で示されているように、0.7 U 試料の場合は上方にふくらんだ、9.6 U 試料の場合は下方にふくらんだ分布であり、2.8 U 試料の場合はかなり直線に近い分布であると判断できる。従って、Covell 法によるピーク面積は、2.8 U ( $2.820$  a/o) より低濃縮度の試料に対しては過大に、2.8 U 試料より高濃縮度の試料に対しては過小に、2.8 U 試料に対してはかなり正確に評価される傾向になる。このような理由によって、0.7 U および 1.4 U 試料の各濃縮度は表示値より大きな値として求められたものと考えられる。

以上の点を明らかにするため、コンプトン・バックグラウンド分布を Fig.12 A ~ 12 C に鎖線で示したような放物線にフィットし、そのピーク領域内の分布の積分値をピーク領域の全計数値から差し引いてピーク面積を求める方法（以後、放物線法によるピーク面積算出法と呼ぶ）を用いた。この結果、Covell 法によるピーク計数率に対する放物線法によるピーク計数率の比は、それぞれの試料

に対して次の結果が得られた。

$$\begin{array}{ll}
 0.7\text{U} : 0.78799 \pm 1.2\% & 1.4\text{U} : 0.89296 \pm 0.70\% \\
 2.8\text{U} : 1.0842 \pm 0.48\% & 5.1\text{U} : 1.0805 \pm 0.29\% \\
 6.2\text{U} : 1.0821 \pm 0.27\% & 9.6\text{U} : 1.0876 \pm 0.21\%
 \end{array}$$

放物線法によるピーク面積計数率を用いて求めた濃縮度測定結果を、Table 4と同様の表式においてTable 7に示す。Table 7に示されている濃縮度とその表示値からの偏差は、Table 4に示されているそれぞれの値に比べて顕著に向上了していることを示している。即ち、放射線法によるピーク面積算出法によって、 $ER_M(I)$  の全試料についての実測標準偏差は、Cove11法の 3.4 % から 1.2 % に向上了している。また、0.7 U および 1.4 U 試料の表示値からの偏差は、それぞれ 1.8 % (0.13 a/o) および 8.9 % (0.13 a/o) から 8.1 % (0.058 a/o) および 1.1 % (0.017 a/o) に向上了している。さらに、 $ER_M(II)$  の場合は、 $ER_M(I)$  の場合よりも著しい濃縮度測定結果の向上がもたらされ、実測標準偏差は 6.5 % (0.26 a/o) から 1.4 % (0.055 a/o)<sup>\*</sup> に向上了している。

一方、Ge(Li)  $\gamma$  線スペクトロメトリ法においても、Cove11法によるピーク面積の算出は、NaI(Tl) 法の場合ほど顕著ではないが、濃縮度測定誤差をもたらし、その誤差は 0.7 U および 1.4 U 試料の場合に特に大きくなると考えられる。この点は、Table 3に示した濃縮度測定結果からも十分推測することができる。この点を明らかにするため、放物線法によるピーク面積算出法によって濃縮度を求めた。その結果を Table 8 に示す。なお、0.7 U および 1.4 U 試料については、Cove11法と放物線法とで、ピーク面積に統計的有意差 ( $3\sigma$ ) が生じたが、他の試料については有意差は認められなかった。Table 3 および 8 に示された測定結果の比較から、放物線法によるピーク面積算出法によって、 $ER_M(I)$  の実測標準偏差は 1.2 % (0.053 a/o) から 0.52 % (0.022 a/o) に向上了ることが明らかになっている。一方、 $ER_M(II)$  については、1.4 U 試料の実測値の表示値からの差異は、4.4 % (0.063 a/o) から -0.13 % (0.002 a/o) に向上了している。しかし、天然ウラン (0.7 U) 試料についての向上は認められていない。これは、0.7 U 試料に対するコンプトン・バックグラウンド分布の評価の不完全性と、ピーク面積が小さいため、この不完全性の影響を強く受けることに起因している。

LEPS HP Ge  $\gamma$  線スペクトロメトリ法においては、極高エネルギー分解能の故に、ピーク領域内のコンプトン・バックグラウンド分布の形状が濃縮度測定結果におよぼす影響は、前 2 者の測定法に比べて著しく小さいものと考えられる。このことは、Fig.7 に示されているパルス波高分布や Table 2 に示されている Cove11 法を用いた LEPS HP Ge 法による濃縮度の標準偏差が 0.53 % であるのに対し、放物線法を用いた Ge(Li) 法による標準偏差が 0.52 % であることからも明らかである。したがって、LEPS HP Ge 法においては、Cove11 法によるピーク面積算出法によって、十分正確な濃縮度測定が可能であると判断できる。

以上の結果、(i) LMR I による濃縮度の表示値の正確さが 3 種の  $\gamma$  線スペクトロメトリ法によって実証された。さらに、6.2 U 試料 (6.297 a/o) を標準試料とした測定法では、1.4 a/o ~ 9.6

\* 9.6 U を標準試料とした場合、実測標準偏差は、1.7 % (0.056 a/o) となり、6.2 U 標準試料の場合に次いで小さい値を示した。

\*\* 0.7 U 試料の場合ですら、Cove11 法と放物線法とによるピーク面積の差異は、1  $\sigma$  以内であった。

a/o 範囲の濃縮度を, (ii) LEPS HP Ge  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法では, Covell法によるピーク面積算出法によって, 0.60% (0.029 a/o) の標準偏差で測定でき, (iii) Ge(Li)  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法では, 1.4 a/o 以下の試料に対してのみ放物線法によるピーク面積算出法を適用することによって, 1.96% (0.094 a/o) の標準偏差で濃縮度測定が可能であり, (iv) NaI(Tl)  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法では, 全ての試料に放物線法を適用することによって, 2.5% (0.12 a/o) の標準偏差で濃縮度測定が可能であることが明らかになった。また, 天然ウラン試料 (0.7 U) については, (i) LEPS HP Ge  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法では約 2% (0.02 a/o) の測定誤差が伴い, (ii) Ge(Li)  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法では約 7% (0.05 a/o) の, (iii) NaI(Tl)  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法では約 11% (0.08 a/o) の測定誤差が生じるものと判断できる。

多重シングルチャネル・アナライザ法においては, 式(1)から明らかにとく, 全ての試料にわたって,  $b/a = f$  が一定で, 186 keV- $\gamma$ 線のピーク領域のコンプトン・バックグラウンド計数率が  $f \cdot N_{2X}$  ( $N_{2X}$ : 試料Xに対するウインドー2の計数率) に等しい場合に正確な濃縮度測定が可能になる。この関係を明らかにするため, 先に行ったNaI(Tl)  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法において放物線法を用いて求めた試料Xに対するバックグラウンド計数率,  $(N_B)_X$  をウインドー1の妥当なバックグラウンド計数率と考え, 4.4 での  $E_R_M(I)$  を求めた一連の測定データ  $N_{2X}$  を用いて, 各試料に対する  $f$  の値を求めた。

$$(N_B)_X = f \cdot N_{2X}$$

$$f = (N_B)_X / N_{2X}$$

その結果, それぞれの試料に対して次の結果が得られた。

$$0.7U: 1.646 \pm 0.018, \quad 1.4U: 1.612 \pm 0.018,$$

$$2.8U: 2.134 \pm 0.035, \quad 5.1U: 2.208 \pm 0.041,$$

$$6.2U: 2.138 \pm 0.037, \quad 9.6U: 2.287 \pm 0.030$$

これらの結果は,  $f$  の値を 0.7 U~1.4 U, 2.8 U~6.2 U および 9.6 U の 3 グループに大別できることを示している。これは, Table 1 に示した  $UO_2$  ペレットの寸法についてのグループ分けにはかならない。すなわち, 用いたコリメータは, 186 keV- $\gamma$ 線に対しては無限厚であるが, ピーク領域のコンプトン・バックグラウンド源の  $\gamma$ 線に対しては無限厚ではないことの当然の結果である。このような  $f$  の値の非一定性が Table 5 および 6 に示した濃縮度測定誤差の一因になっている。したがって, 同一寸法の標準および未知試料の場合に, 最も正確な濃縮度測定が可能となる。このことは, (i) 統計的意味においては明確でないが, 2.8 U~6.2 U 標準試料で測定した 5.1 U 試料の濃縮度が Table 5 において最も表示値からの偏差が小さい, (ii) 0.7 U~9.6 U 標準試料を用いたくり返し測定で得た 5.1 U の濃縮度,  $5.201 \pm 0.012^{*} a/o$  よりも, 2.8 U~6.2 U 標準試料でのくり返し測定で得た,  $5.168 \pm 0.0096^{*} a/o$  の方が, 表示値,  $5.173 \pm 0.016 a/o$  に近い, などによって示唆されている。

種々な標準試料の組合せについて, 濃縮度と  $f$  の値を直線にフィットしたところ,  $f$  の値の標準偏差は, 0.7 U~9.6 U, 0.7 U~6.2 U, 1.4 U~6.2 U および 6.2 U~9.6 U の場合がほぼ同等な小さい値を示した。このことは, 4.4において, 0.7 U~9.6 U および 1.4 U~6.2 U 標準試料の場合に優れた濃縮度測定結果が得られたことを裏付けている。また, 標準試料とする 2 種の濃縮度の試

\* 標準誤差

\*\*  $f$  の値の標準偏差は, これら 4 組の標準試料の組合せで, 8.7%~10.8% の範囲内にある。

料にそれぞれ対応する 2 つの  $f$  の値と未知試料としての他の試料の値  $f$  の相互関係から、 $186\text{keV}-\gamma$  線ピーク領域におけるバックグラウンド計数率の差引の過多または過少によって、(i)  $0.7\text{U}-9.6\text{U}$  標準試料の場合、 $2.8\text{U}, 5.1\text{U}$  および  $6.2\text{U}$  試料は濃縮度が大きめに、 $1.4\text{U}$  試料は小さめに測定され、(ii)  $1.4\text{U}-6.2\text{U}$  試料の場合は、 $0.7\text{U}, 2.8\text{U}$  および  $5.1\text{U}$  試料は濃縮度が大きめに、 $9.6\text{U}$  試料は小さめに測定される傾向の存在を予測できる。この傾向は、Table 6 に示されている各試料の濃縮度測定結果に明確に示されている。このことから、 $186\text{keV}-\gamma$  線に対して無限厚であるウラン試料を用いても、試料寸法の相異が濃縮度測定結果に系統的な測定誤差を発生させることが明らかになっている。

LMR I 標準試料の場合、各試料の濃縮度を測定するための標準試料の最適な組合せが存在し、その組合せは、ウインド設定条件 I および II にかかわらず次の通りであることが明らかになった。

$$0.7\text{U}:1.4\text{U}-9.6\text{U}, \quad 1.4\text{U}:0.7\text{U}-9.6\text{U}, \quad 2.8\text{U}:5.1\text{U}-9.6\text{U},$$

$$5.1\text{U}:2.8\text{U}-9.6\text{U}, \quad 6.2\text{U}:0.7\text{U}-9.6\text{U}, \quad 9.6\text{U}:2.8\text{U}-5.1\text{U}$$

このような標準試料の組合せを用いて測定した各試料の濃縮度測定結果を、多重シングルチャネル・アナライザ法による最終的な測定値として Table 9 に示す。同表に示されている値は、ウインド設定条件 I および II による測定結果（測定ブロック数：21）の平均値である。Table 9 には、LEPS HP Ge, Ge(Li) および NaI(Tl)  $\gamma$  線スペクトロメトリ法において、全試料を標準試料に用いて測定した最終的な測定結果も、比較を容易にするために合わせて示した。

Table 9 の濃縮度測定結果は、ここで用いた 4 種の測定法の何れによても、非常に正確な濃縮度測定が可能であることを明らかにしている。

## 6. 結 論

LEPS HP Ge-, Ge(Li)-, NaI(Tl)-  $\gamma$  線スペクトロメトリ法および多重シングルチャネル・アナライザ法による天然ウランから  $9.6\text{a/o}$  範囲のウラン濃縮度測定を LMR I  $\text{UO}_2$  標準試料を用いて行い、これらの測定技法ならびに標準試料の特質が濃縮度測定結果におよぼす影響を検討した。その結果、次の諸点が明らかになった。

### I. LEPS HP Ge $\gamma$ 線スペクトロメトリ法；

(1) その極高エネルギー分解能の故に、Covell 法によって  $186\text{keV}-\gamma$  線のピーク面積算出を行っても、正確な濃縮度 ( $^{235}\text{U}$  の放射能濃度) の測定が可能である、(2)  $6.297\text{a/o}$  の標準試料を用いて、 $1.4\text{a/o} \sim 9.6\text{a/o}$  範囲の濃縮度を  $1.4\%$  の標準偏差で測定することができ、天然ウランの場合でも、 $0.016\text{a/o}$  ( $2.2\%$ ) の誤差で測定することができた。

### II. Ge(Li) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法；

(1) Covell 法によるピーク面積算出法を用いた場合、 $1.4\text{a/o}$  以下の試料の濃縮度が約  $5\%$  大きく測定される傾向が認められた、(2) このため、コンプトン・バックグラウンド分布を放物線にフィットする放物線法によるピーク面積算出法を用いた。これによって、 $1.4\text{a/o}$  の試料を  $0.017$

---

\* LEPS HP Ge 法の場合は Table 2, Ge(Li) 法の場合は Table 8, NaI(Tl) 法の場合は Table 7 の濃縮度測定結果を用いた。

料にそれぞれ対応する 2 つの  $f$  の値と未知試料としての他の試料の値  $f$  の相互関係から、 $186\text{keV}-\gamma$  線ピーク領域におけるバックグラウンド計数率の差引の過多または過少によって、(i)  $0.7\text{U}-9.6\text{U}$  標準試料の場合、 $2.8\text{U}, 5.1\text{U}$  および  $6.2\text{U}$  試料は濃縮度が大きめに、 $1.4\text{U}$  試料は小さめに測定され、(ii)  $1.4\text{U}-6.2\text{U}$  試料の場合は、 $0.7\text{U}, 2.8\text{U}$  および  $5.1\text{U}$  試料は濃縮度が大きめに、 $9.6\text{U}$  試料は小さめに測定される傾向の存在を予測できる。この傾向は、Table 6 に示されている各試料の濃縮度測定結果に明確に示されている。このことから、 $186\text{keV}-\gamma$  線に対して無限厚であるウラン試料を用いても、試料寸法の相異が濃縮度測定結果に系統的な測定誤差を発生させることが明らかになっている。

LMR I 標準試料の場合、各試料の濃縮度を測定するための標準試料の最適な組合せが存在し、その組合せは、ウインド設定条件 I および II にかかわらず次の通りであることが明らかになった。

$$0.7\text{U}:1.4\text{U}-9.6\text{U}, \quad 1.4\text{U}:0.7\text{U}-9.6\text{U}, \quad 2.8\text{U}:5.1\text{U}-9.6\text{U},$$

$$5.1\text{U}:2.8\text{U}-9.6\text{U}, \quad 6.2\text{U}:0.7\text{U}-9.6\text{U}, \quad 9.6\text{U}:2.8\text{U}-5.1\text{U}$$

このような標準試料の組合せを用いて測定した各試料の濃縮度測定結果を、多重シングルチャネル・アナライザ法による最終的な測定値として Table 9 に示す。同表に示されている値は、ウインド設定条件 I および II による測定結果（測定ブロック数：21）の平均値である。Table 9 には、LEPS HP Ge, Ge(Li) および NaI(Tl)  $\gamma$  線スペクトロメトリ法において、全試料を標準試料に用いて測定した最終的な測定結果も、比較を容易にするために合わせて示した。

Table 9 の濃縮度測定結果は、ここで用いた 4 種の測定法の何れによても、非常に正確な濃縮度測定が可能であることを明らかにしている。

## 6. 結 論

LEPS HP Ge-, Ge(Li)-, NaI(Tl)-  $\gamma$  線スペクトロメトリ法および多重シングルチャネル・アナライザ法による天然ウランから  $9.6\text{a/o}$  範囲のウラン濃縮度測定を LMR I  $\text{UO}_2$  標準試料を用いて行い、これらの測定技法ならびに標準試料の特質が濃縮度測定結果におよぼす影響を検討した。その結果、次の諸点が明らかになった。

### I. LEPS HP Ge $\gamma$ 線スペクトロメトリ法：

(1) その極高エネルギー分解能の故に、Covell 法によって  $186\text{keV}-\gamma$  線のピーク面積算出を行っても、正確な濃縮度 ( $^{235}\text{U}$  の放射能濃度) の測定が可能である、(2)  $6.297\text{a/o}$  の標準試料を用いて、 $1.4\text{a/o} \sim 9.6\text{a/o}$  範囲の濃縮度を  $1.4\%$  の標準偏差で測定することができ、天然ウランの場合でも、 $0.016\text{a/o}$  ( $2.2\%$ ) の誤差で測定することができた。

### II. Ge(Li) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法：

(1) Covell 法によるピーク面積算出法を用いた場合、 $1.4\text{a/o}$  以下の試料の濃縮度が約  $5\%$  大きく測定される傾向が認められた、(2) このため、コンプトン・バックグラウンド分布を放物線にフィットする放物線法によるピーク面積算出法を用いた。これによって、 $1.4\text{a/o}$  の試料を  $0.017$

---

\* LEPS HP Ge 法の場合は Table 2, Ge(Li) 法の場合は Table 8, NaI(Tl) 法の場合は Table 7 の濃縮度測定結果を用いた。

a/o (1.2 %) の誤差で測定し得る改善がもたらされたが、天然ウランの場合には、バックグラウンド分布の評価の困難性の故に、有意な改善はもたらされなかった、(3) 放物線法によるピーク面積算出法と 6.297 a/o の標準試料を用いることによって 1.4 a/o ~ 9.6 a/o 範囲の濃縮度を 2.0 % の標準偏差で測定することができ、天然ウランの場合は、0.040 a/o (5.6 %) の誤差で測定することができた。

### III. NaI(Tl) $\gamma$ 線スペクトロメトリ法；

(1) Covell 法および放物線法によってそれぞれ求めたピーク面積を用いて得た濃縮度測定結果を比較した場合、2.8 a/o 以上の試料に対しては、両者はほぼ同等な値を示している、しかし、2.8 a/o 以下の試料に対しては、Covell 法による濃縮度が著しく大きい値になる、(2) このため、あらゆる濃縮度の試料に対して放物線法によるピーク面積算出法を適用することが、濃縮度測定範囲の拡大のために不可欠であり、(3) このピーク面積算出法と 6.297 a/o の標準試料を用いることによって、1.4 a/o ~ 9.6 a/o 範囲の濃縮度を、1.2 % の標準偏差で測定でき、天然および 1.4 a/o の試料の場合、Covell 法による測定誤差、0.38 a/o (5.3 %) および 0.35 a/o (2.5 %) をそれぞれ 0.05 a/o (7.5 %) および 0.017 a/o (1.2 %) に減少させることができた、(4) この場合でも、Ge(Li)  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法の場合と同様、天然ウランに対しては、コンプトン・バックグラウンド分布の評価の困難性の故に、約 8 % の測定誤差を避けることはできなかった。

### IV. 多重シングルチャネル・アナライザ法；

(1) 多重シングルチャネル・アナライザ法では、186 keV -  $\gamma$ 線のピーク領域内のコンプトン・バックグラウンド分布を評価できない。それ故、コンプトン分布の形状が測定結果におよぼす寄与を原理的に排除し得る前述の 3 種の濃縮度測定法とは異なり、試料間の分布の差異が直接測定結果に反映される。さらに、186 keV -  $\gamma$ 線に対して無限厚試料であっても、ピーク領域内のバックグラウンド源の  $\gamma$ 線にとっては無限厚とは限らない。このため、寸法・形状が異なる標準および未知試料を用いた測定においては、系統的な測定誤差が発生する、(2) 試料の寸法・形状が異なる場合、濃縮度が互いに接近した標準および未知試料のときに、より正確な測定が可能になるとは限らない、(3) NaI(Tl)  $\gamma$ 線スペクトロメトリ法によって求めたピーク領域内のバックグラウンド計数率と、多重シングルチャネル・アナライザ法でのバックグラウンド領域の計数率から、試料の寸法・形状の差異による系統的な濃縮度測定誤差の主因は、試料間のコンプトン・スペクトルの差異にあることが明らかになった。また、それによる測定誤差の傾向の予測も実験結果と定性的に一致した、(4) シングルチャネル・アナライザの波高選別領域の設定条件としては、T. D. Reilly らによる 160 ~ 210 keV (ピーク領域) と 220 ~ 280 keV (バックグラウンド領域) (条件 I) および T. Tojo による 165 ~ 210 keV と 215 ~ 290 keV (条件 II) の両条件を用いた。エネルギー分解能や試料 - 検出器部などの相異のため、両条件の測定精度に関する比較は困難である。ここで行った(a) 天然ウランと 9.658 a/o の試料を標準試料とする 1.4 ~ 6.2 a/o 範囲の濃縮度測定、および(b) 各試料にとって最適な標準試料の組合せによる天然ウラン ~ 9.6 a/o 範囲の濃縮度測定においては、実測値の表示値からの標準偏差は、条件 II ではそれぞれ 1.3 % (a) および 1.3 % (b) となり、条件 I の下におけるそれぞれの値、1.8 % (a) および 1.7 % (b) より何れも小さい値が得られた。また、一連の測定において各試料に対して行われた多数回の計測によって得られた個々の試料の濃縮度の実測標準偏差は、条件 I の場合よりも条件 II で得られた値の方が系統的に小さ

い。これらの実測標準偏差は試料によって異なるが、条件Ⅰによる値の47～89%の範囲にある。以上の結果、ここでの測定においては、波高選別領域の設定条件Ⅱの方が、条件Ⅰより確度の高い濃縮度測定を可能にすることが明らかになった。

謝 詞

本報告書の作成にあたり有益な御指摘を下された原研R I・原子炉研修所 田村務博士に深く感謝致します。

い。これらの実測標準偏差は試料によって異なるが、条件Ⅰによる値の47～89%の範囲にある。以上の結果、ここでの測定においては、波高選別領域の設定条件Ⅱの方が、条件Ⅰより確度の高い濃縮度測定を可能にすることが明らかになった。

謝 詞

本報告書の作成にあたり有益な御指摘を下された原研R I・原子炉研修所 田村務博士に深く感謝致します。

## References

1. T. Ishimori, K. Ueno, J. Akatsu and M. Hoshi, "Gamma-spectroscopic determination of the isotopic ratios  $^{235}\text{U}$  to  $^{238}\text{U}$ ", Japan Analyst, 17(11), 1439(1968) in Japanese.
2. T. D. Reilly, R. B. Walton and J. L. Parker, "Enrichment meter---- A simple method for measuring isotopic enrichment", LA-4705-MS, UC-15, p.p. 19-21(1970).
3. T. D. Reilly and R. B. Walton, "Uranium enrichment measurements at a gaseous diffusion plant", LA-4705-MS, UC-15, p.p. 15-16(1971).
4. T. D. Reilly, R. B. Walton, F. R. Martin and J. L. Parker, LA-5197-PR, UC-15, p. 11(1972).
5. J. L. Parker and T. D. Reilly, "Plutonium fraction measurements in  $(\text{Pu}, \text{U})\text{O}_2$  fuel materials", LA-5197-PR, UC-15, p.p. 13-14(1972).
6. L. A. Kull, "An introduction to Ge(Li) and NaI gamma-ray detectors for safeguards applications", ANL-ACEA 103, (1973).
7. L. A. Kull and R. O. Ginaven, "Guidelines for gamma-ray spectroscopy measurements of  $^{235}\text{U}$  enrichment", BNL 50414(1974).
8. J. W. Rowson and S. A. Hontzeas, "Uranium isotopic ratio determination by gamma-ray spectroscopy", Nucl. Instr. and Meth., 154, 541(1978).
9. A Committee on Analytical Chemistry of Nuclear Fuels and Reactor Materials(JAERI), "A committee report on the state-of art of uranium isotope enrichment measurement techniques", JAERI-M 82-051(1982) in Japanese.

10. T. Tojo, "Measurements of uranium enrichment with a system of multiple single-channel analyzers", JAERI-M 82-074(1982) in Japanese.
11. R. J. S. Harry and H. T. Yolken, "Development of uranium oxide reference materials for gamma-ray measurements of the enrichment", Nuclear Material Management, 1979 INMM proceedings, p.p. 54-64.
12. National Measurement Laboratory Office of Measurements for Nuclear Technology Annual Report 1980, "Standard reference materials for NDA", NBSIR 81-2205.
13. J. Morel, H. Goenvec, J. Dalmazzone and G. Malet, "References for the determination of uranium 235 in nuclear fuels", LMRI technical report.
14. D. F. Covell, "Determination of gamma-ray abundance directly from the total absorption peak", Anal. Chem., 31(11), 1785(1959).

Table 1 Enrichments and dimensions of LMRI UO<sub>2</sub>  
reference material standards.

Sample	Enrichment		Dimensions of UO <sub>2</sub> pellet (d x h, mm) <sup>++</sup>	Outer dimensions (D x H, mm) <sup>++</sup>
	(w/o)	(a/o)		
07U	0.7112 $\pm 0.0012^*$	0.7202 $\pm 0.0562^{**}$	13.1 x 20.0	18 x 31.5
14U	1.416 $\pm 0.004$	1.434 $\pm 0.094$	13.1 x 19.0	18 x 31.5
28U	2.785 $\pm 0.013$	2.820 $\pm 0.156$	8.1 x 11.0	18 x 22.5
51U	5.111 $\pm 0.046$	5.173 $\pm 0.300$	8.1 x 10.3	18 x 22.5
62U	6.222 $\pm 0.055$	6.297 $\pm 0.295$	8.1 x 10.0	18 x 22.5
96U	9.548 $\pm 0.121$	9.658 $\pm 0.422$	9.1 x 13.5	18 x 25.5

\* Three sigma

\*\* Percent error (one sigma)

+ Calculated from weight percent under the assumption that uranium consists only of <sup>238</sup>U and <sup>235</sup>U.

++ For meanings of abbreviations, see fig. 1.

Table 2 Enrichments of the UC<sub>2</sub> samples by the LEPS HP Ge gamma-ray spectrometry.

Sample	Enrichment (a/o)			Deviation (%)	
	Certified ER <sub>C</sub>	Measured (I) <sup>+</sup> ER <sub>M</sub> (I)	Measured (II) <sup>†</sup> ER <sub>M</sub> (II)	ER <sub>M</sub> (I) - ER <sub>C</sub> ER <sub>C</sub>	ER <sub>M</sub> (II) - ER <sub>C</sub> ER <sub>C</sub>
07U	0.7202 $\pm 0.0562\%$	0.7305 $\pm 0.53\%$	0.7361 $\pm 0.82\%^{**}$	1.430 $\pm 0.53$	2.203 $\pm 0.82$
14U	1.434 $\pm 0.094\%$	1.462 $\pm 0.53\%$	1.466 $\pm 0.70\%$	1.918 $\pm 0.54$	2.254 $\pm 0.71$
28U	2.820 $\pm 0.156\%$	2.789 $\pm 0.53\%$	2.792 $\pm 0.70\%$	-1.106 $\pm 0.55$	-0.983 $\pm 0.72$
51U	5.173 $\pm 0.300\%$	5.150 $\pm 0.53\%$	5.151 $\pm 0.53\%$	-0.445 $\pm 0.61$	-0.424 $\pm 0.61$
62U	6.297 $\pm 0.295\%$	6.297 $\pm 0.53\%$	Std.	0 $\pm 0.61$	Std.
96U	9.658 $\pm 0.422\%$	9.674 $\pm 0.53\%$	9.671 $\pm 0.46\%$	0.168 $\pm 0.68$	0.131 $\pm 0.62$

+ Enrichment measured with the six samples of 07U-96U as the standards.

++ Enrichment measured with the sample of 62U as the standard.

\* Standard deviation of the least squares by a linear function from which ER<sub>M</sub>(I)'s were calculated.

\*\* Standard errors containing statistical errors and the error of the standard sample.

Table 3 Enrichments of the  $\text{UO}_2$  samples by the Ge(Li) gamma-ray spectrometry.

Sample	Certified $\text{ER}_C$	Enrichment (a/o)		Deviation (%)	
		Measured (I) $\text{ER}_M(I)$	Measured (II) $\text{ER}_M(II)$	$\frac{\text{ER}_M(I) - \text{ER}_C}{\text{ER}_C}$	$\frac{\text{ER}_M(II) - \text{ER}_C}{\text{ER}_C}$
07U	0.7202 $\pm 0.0562\%$	0.7508 $\pm 1.2\%$	0.7575 $\pm 1.7\%^{**}$	4.249 $\pm 1.2$	5.181 $\pm 1.7$
14U	1.434 $\pm 0.094\%$	1.482 $\pm 1.2\%$	1.479 $\pm 1.0\%$	3.361 $\pm 1.2$	4.363 $\pm 1.0$
28U	2.820 $\pm 0.156\%$	2.776 $\pm 1.2\%$	2.803 $\pm 0.51\%$	-1.571 $\pm 1.2$	-0.588 $\pm 0.54$
51U	5.173 $\pm 0.300\%$	5.142 $\pm 1.2\%$	5.194 $\pm 0.49\%$	-0.599 $\pm 1.2$	0.413 $\pm 0.58$
62U	6.297 $\pm 0.295\%$	6.233 $\pm 1.2\%$	Std.	-1.012 $\pm 1.2$	Std.
96U	9.658 $\pm 0.422\%$	9.718 $\pm 1.2\%$	9.818 $\pm 0.48\%$	0.623 $\pm 1.3$	1.659 $\pm 0.64$

+ Enrichment measured with the six samples of 07U-96U as the standards.

++ Enrichment measured with the sample of 62U as the standard.

\* Standard deviation of the least squares by a linear function from which  $\text{ER}_M(I)$ 's were calculated.

\*\* Standard errors containing statistical errors and the error of the standard sample.

Table 4 Enrichments of the  $\text{UO}_2$  samples by the NaI(Tl) gamma-ray spectrometry.

Sample	Enrichment (a/o)			Deviation (%)	
	Certified $\text{ER}_C$	Measured (I) $\text{ER}_M(\text{I})$	Measured (II) $\text{ER}_M(\text{II})$	$\frac{\text{ER}_M(\text{I}) - \text{ER}_C}{\text{ER}_C} \times 100$	$\frac{\text{ER}_M(\text{II}) - \text{ER}_C}{\text{ER}_C} \times 100$
07U	0.7202 $\pm 0.0562\%$	0.8500 $\pm 3.4\%$ *	1.093 $\pm 0.79\%**$	18.02 $\pm 3.4$	51.76 $\pm 0.79$
14U	1.434 $\pm 0.094\%$	1.562 $\pm 3.4\%$	1.778 $\pm 0.56\%$	8.926 $\pm 3.4$	23.98 $\pm 0.76$
28U	2.820 $\pm 0.156\%$	2.617 $\pm 3.4\%$	2.792 $\pm 0.45\%$	-7.199 $\pm 3.4$	-0.982 $\pm 0.69$
51U	5.173 $\pm 0.300\%$	5.038 $\pm 3.4\%$	5.120 $\pm 0.36\%$	-2.610 $\pm 3.4$	-1.026 $\pm 0.67$
62U	6.297 $\pm 0.295\%$	6.262 $\pm 3.4\%$	Std.	-0.556 $\pm 3.4$	Std.
96U	9.658 $\pm 0.422\%$	9.772 $\pm 3.4\%$	9.672 $\pm 0.33\%$	1.180 $\pm 3.4$	0.142 $\pm 0.71$

+ Enrichment measured with the six samples of 07U-96U as the standards.

++ Enrichment measured with the sample of 62U as the standard.

\* Standard deviation of the least squares by a linear function from which  $\text{ER}_M(\text{I})$ 's were calculated.

\*\* Standard errors containing statistical errors and the error of the standard sample.

Table 5 Enrichments of the  $\text{UO}_2$  samples by the method of multiple single-channel analyzers. <sup>¶</sup>

Sample	Certified $\text{ER}_C$	Enrichment(a/o)		Deviation(%)	
		Measured(I) $\text{ER}_M$ (I)	Measured(II) $\text{ER}_M$ (II)	$\frac{\text{ER}_M(\text{I}) - \text{ER}_C}{\text{ER}_C}$	$\frac{\text{ER}_M(\text{II}) - \text{ER}_C}{\text{ER}_C}$
07U	0.7202 $\pm 0.0562\%$	0.8469 $\pm 0.124^*$	0.6543 $\pm 0.110^{**}$	17.59 $\pm 14.7$	-9.146 $\pm 16.9$
14U	1.434 $\pm 0.094\%$	1.317 $\pm 0.118$	1.484 $\pm 0.091$	-8.136 $\pm 8.9$	3.492 $\pm 6.1$
28U	2.820 $\pm 0.156\%$	2.861 $\pm 0.076$	2.849 $\pm 0.045$	1.463 $\pm 2.7$	1.041 $\pm 1.6$
51U	5.173 $\pm 0.300\%$	5.154 $\pm 0.147$	5.169 $\pm 0.069$	-0.365 $\pm 2.9$	-0.083 $\pm 1.4$
62U	6.297 $\pm 0.295\%$	6.327 $\pm 0.159$	6.283 $\pm 0.078$	0.480 $\pm 2.5$	-1.371 $\pm 1.2$
96U	9.658 $\pm 0.422\%$	9.679 $\pm 0.553$	9.732 $\pm 0.265$	0.214 $\pm 5.7$	0.767 $\pm 1.7$

¶ Standards ; 14U-28U for 07U, 07U-28U for 14U, 14U-51U for 28U, 28U-62U for 51U, 51U-96U for 62U and 51U-62U for 96U.

+ Enrichment measured under the window setting condition I ; 160 - 210 keV(peak region), 220 - 280 keV(background region).

++ Enrichment measured under the window setting condition II ; 165 - 210 keV(peak region), 215 - 290 keV(background region).

\* Standard deviation(a/o) of the data of 11 blocks.

\*\* Standard deviation(a/o) of the data of 10 blocks.

Table 6 Enrichments measured with the uses of two pairs of standard samples  
of 07U-96U and of 14U-62U.

Sample	Certified	Enrichment(a/o)		Measured (II) pair of std. samples	Measured (II) pair of std. samples
		07U-96U	14U-62U		
07U	0.7202 $\pm 0.0562\%$	Std.	0.8341 $\pm 0.1255$ *	Std.	0.6430 $\pm 0.1091$ **
14U	1.434 $\pm 0.0948$	1.321 $\pm 0.131$ *	Std.	1.503 $\pm 0.100$ **	Std.
28U	2.820 $\pm 0.156\%$	2.830 $\pm 0.085$	2.859 $\pm 0.071$	2.873 $\pm 0.057$	2.852 $\pm 0.044$
51U	5.173 $\pm 0.300\%$	5.178 $\pm 0.093$	5.171 $\pm 0.148$	5.180 $\pm 0.093$	5.179 $\pm 0.072$
62U	6.297 $\pm 0.295\%$	6.334 $\pm 0.143$	Std.	6.291 $\pm 0.099$	Std.
96U	9.658 $\pm 0.422\%$	Std.	9.585 $\pm 0.212$	Std.	9.686 $\pm 0.157$

+ Enrichment measured under the window setting condition I ; 160 - 210 keV(peak region),  
220 - 280 keV(background region).

++ Enrichment measured under the window setting condition II ; 165 - 210 keV(peak region),  
215 - 290 keV(background region).

\* Standard deviation(a/o) of the data of 11 blocks.

\*\* Standard deviation(a/o) of the data of 10 blocks.

Table 7 Enrichments of the  $\text{UO}_2$  samples by the NaI(Tl) gamma-ray spectrometry.  
 Peak area was deduced by integrating a Gaussian curve superimposed on  
 a parabolic continuum.

Sample	$\text{ER}_C$	Enrichment (a/o)			Deviation (%)	
		Certified $\text{ER}_M$	Measured (I) + $\text{ER}_M$	Measured (II) ++ $\text{ER}_M$	$\frac{\text{ER}_M(\text{I}) - \text{ER}_C}{\text{ER}_C}$	$\frac{\text{ER}_M(\text{II}) - \text{ER}_C}{\text{ER}_C}$
07U	0.7202 $\pm 0.0562\%$	0.7787 $\pm 1.20\%$ *	0.7961 $\pm 0.96\%$ **	8.123 $\pm 1.21$	10.539 $\pm 0.96$	
14U	1.434 $\pm 0.094\%$	1.450 $\pm 1.20\%$	1.467 $\pm 0.58\%$	1.116 $\pm 1.21$	2.301 $\pm 0.59$	
28U	2.820 $\pm 0.156\%$	2.782 $\pm 1.20\%$	2.798 $\pm 0.45\%$	-1.348 $\pm 1.21$	-0.780 $\pm 0.47$	
51U	5.173 $\pm 0.300\%$	5.100 $\pm 1.20\%$	5.112 $\pm 0.36\%$	-1.411 $\pm 1.24$	-1.179 $\pm 0.47$	
62U	6.297 $\pm 0.295\%$	6.283 $\pm 1.20\%$	Std.	-0.222 $\pm 1.24$	Std.	
96U	9.658 $\pm 0.422\%$	9.710 $\pm 1.20\%$	9.721 $\pm 0.33\%$	0.538 $\pm 1.28$	0.652 $\pm 0.53$	

+ Enrichment measured with the six samples of 07U-96U as the standards.

++ Enrichment measured with the sample of 62U as the standard.

\* Standard deviation of the least squares by a linear function from which  $\text{ER}_M$ (I)'s were calculated.

\*\* Standard errors containing statistical errors and the error of the standard sample.

Table 3 Enrichments of the  $\text{UO}_2$  samples by the Ge(Li) gamma-ray spectrometry.

Peak areas of the  $07\text{U}$  and of  $14\text{U}$  were deduced by integrating a Gaussian curve superimposed on a parabolic Compton continuum, while the continua for the  $28\text{U}-96\text{U}$  were treated as linear distributions.

Sample	Enrichment(a/o)			Deviation(%)		
	Certified ER <sub>C</sub>	Measured(I) <sup>+</sup> ER <sub>M</sub> (I)	Measured(II) <sup>++</sup> ER <sub>M</sub> (II)	ER <sub>M</sub> (I) - ER <sub>C</sub>	ER <sub>M</sub> (II) - ER <sub>C</sub>	ER <sub>M</sub> (II) - ER <sub>C</sub>
				ER <sub>C</sub>	ER <sub>C</sub>	ER <sub>C</sub>
07U	0.7202 $\pm 0.0562\%$	0.7267 $\pm 0.52\%$ *	0.6801 $\pm 1.90\%^{**}$	0.9025 $\pm 0.52$	-5.568 $\pm 1.92$	
14U	1.434 $\pm 0.094\%$	1.465 $\pm 0.52\%$	1.432 $\pm 1.00\%$	2.169 $\pm 0.52$	-0.126 $\pm 1.04$	
28U	2.820 $\pm 0.156\%$	2.811 $\pm 0.52\%$	2.803 $\pm 0.51\%$	-0.305 $\pm 0.54$	-0.589 $\pm 0.59$	
51U	5.173 $\pm 0.300\%$	5.159 $\pm 0.52\%$	5.194 $\pm 0.49\%$	-0.273 $\pm 0.60$	0.412 $\pm 0.58$	
62U	6.297 $\pm 0.295\%$	6.241 $\pm 0.52\%$	Std.	-0.881 $\pm 0.59$	Std.	
96U	9.658 $\pm 0.422\%$	9.699 $\pm 0.52\%$	9.818 $\pm 0.48\%$	0.419 $\pm 0.67$	1.653 $\pm 0.51$	

+ Enrichment measured with the six samples of  $07\text{U}-96\text{U}$  as the standards.

++ Enrichment measured with the sample of  $62\text{U}$  as the standard.

\* Standard deviation of the least squares by a linear function from which ER<sub>M</sub>(I)'s were calculated.

\*\* Standard errors containing statistical errors and the error of the standard sample.

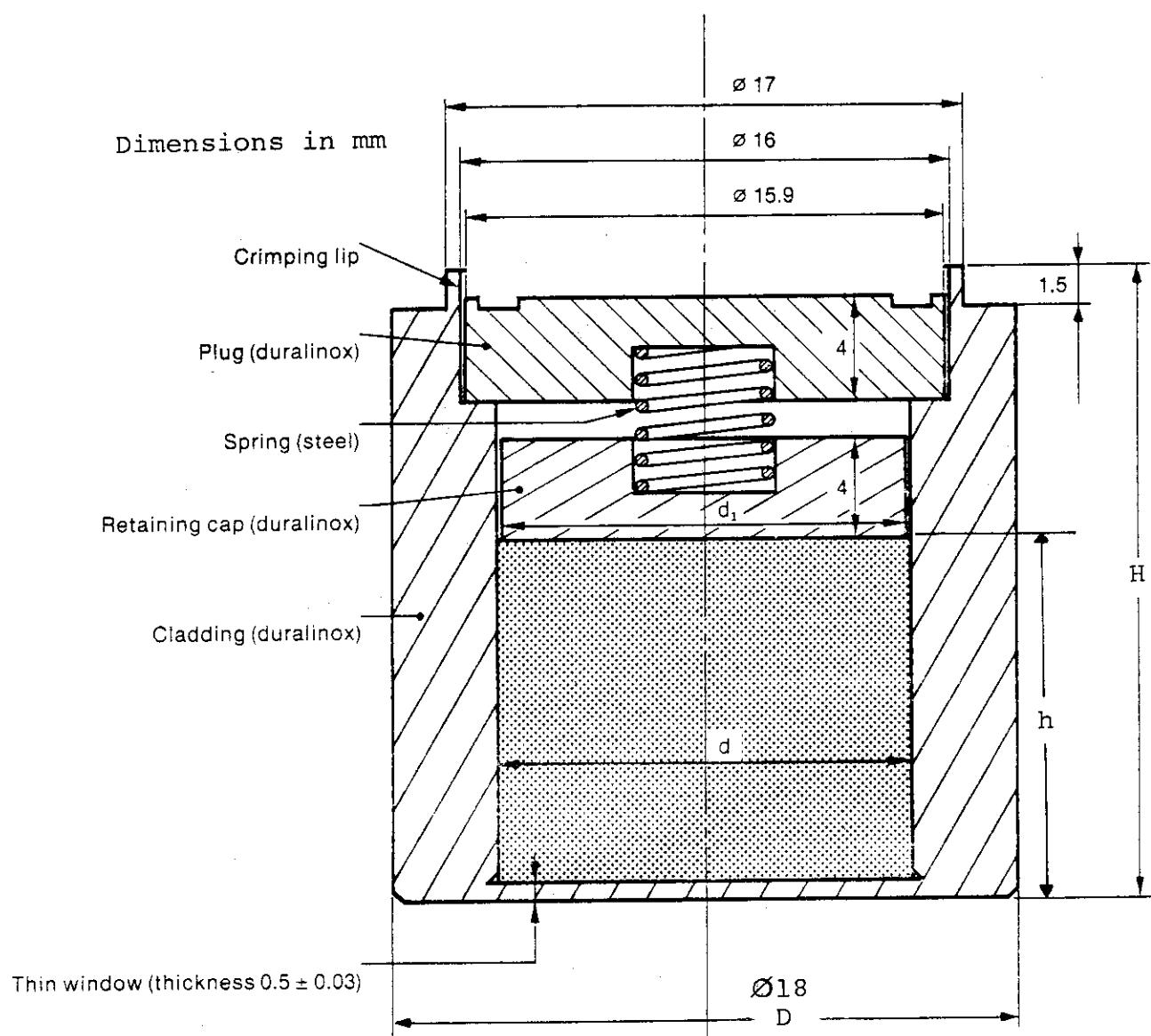
Table 9 Final results of enrichment by the LEPS HP Ge-, Ge(Li)- and NaI(Tl)-gamma-ray spectrometry, and the result by the method of multiple single-channel analyzers.

Sample	LEPS HP GE		Ge(Li)		NaI(Tl)		Multiple SCA	
	Enrichment (a/o)	ER <sub>M</sub> -ER <sub>C</sub> (a/o)	Enrichment (a/o)	ER <sub>M</sub> -ER <sub>C</sub> (a/o)	Enrichment (a/o)	ER <sub>M</sub> -ER <sub>C</sub> (a/o)	Enrichment (a/o) *	ER <sub>M</sub> -ER <sub>C</sub> (a/o)
07U	0.7305 $\pm 0.0039$	0.0103 $\pm 0.0039$	0.7267 $\pm 0.0038$	0.0065 $\pm 0.0038$	0.7787 $\pm 0.0093$	0.0585 $\pm 0.0093$	0.7379 $\pm 0.1194$	0.0177 $\pm 0.1194$
14U	1.462 $\pm 0.008$	0.028 $\pm 0.008$	1.465 $\pm 0.008$	0.031 $\pm 0.017$	1.450 $\pm 0.017$	0.016 $\pm 0.017$	1.412 $\pm 0.116$	-0.022 $\pm 0.116$
28U	2.789 $\pm 0.015$	-0.031 $\pm 0.016$	2.811 $\pm 0.015$	-0.009 $\pm 0.016$	2.782 $\pm 0.033$	-0.038 $\pm 0.033$	2.830 $\pm 0.172$	-0.010 $\pm 0.172$
51U	5.150 $\pm 0.027$	-0.023 $\pm 0.031$	5.159 $\pm 0.027$	-0.024 $\pm 0.031$	5.100 $\pm 0.061$	-0.073 $\pm 0.063$	5.162 $\pm 0.088$	-0.011 $\pm 0.089$
62U	6.297 $\pm 0.035$	0 $\pm 0.040$	6.241 $\pm 0.032$	-0.056 $\pm 0.037$	6.283 $\pm 0.075$	-0.014 $\pm 0.077$	6.313 $\pm 0.121$	0.006 $\pm 0.122$
96U	9.671 $\pm 0.051$	0.013 $\pm 0.065$	9.699 $\pm 0.050$	0.041 $\pm 0.064$	9.710 $\pm 0.117$	0.052 $\pm 0.124$	9.700 $\pm 0.233$	0.042 $\pm 0.236$

ER<sub>M</sub> : Enrichment measured, ER<sub>C</sub> : Enrichment certified.

\* Average of the ER<sub>M</sub>(I) and ER<sub>M</sub>(II).

Pair of standard samples in the method of multiple single-channel analyzers : 14U-62U for 07U,  
07U-96U for 14U and for 62U, 51U-96U for 28U, 28U-96U for 51U, and 28U-51U for 96U.



Composition of duralinox: type AG5  
 $\text{Al} + \text{Cu}$  (0.1 %),  $\text{Mg}$  (5 %),  $\text{Si}$  (0.4 %),  $\text{Fe}$  (0.5 %),  $\text{Mn}$  (0.6 %),  $\text{Zn}$  (0.2 %),  $\text{Cr}$  (0.4 %),  $\text{Ti}$  (0.2 %).

Fig. 1 Cladding of standard  $\text{UO}_2$  references.

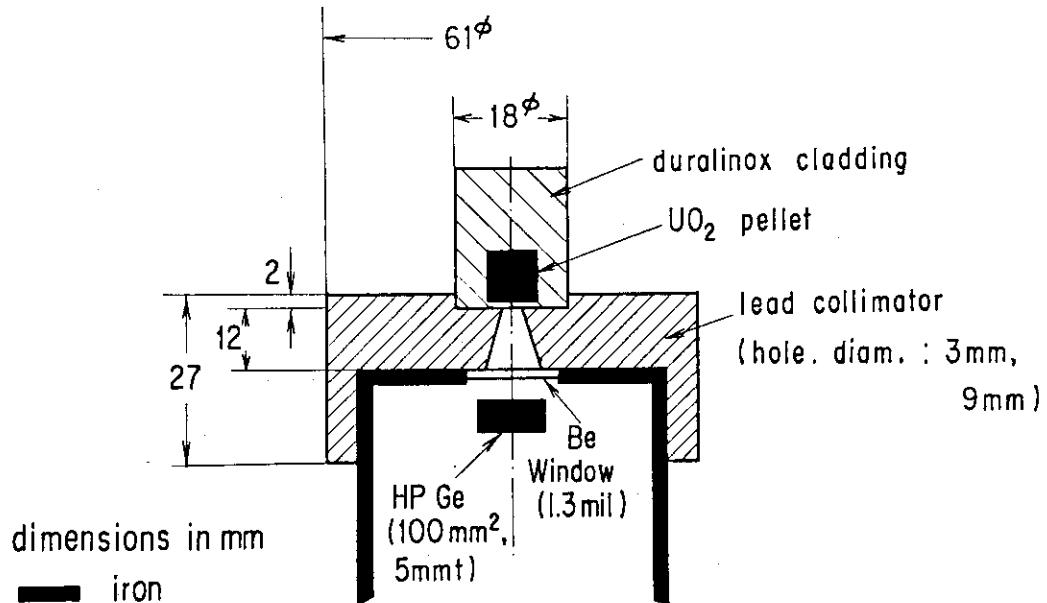


Fig. 2 Collimated geometry detection assembly of the LEPS HP Ge gamma-ray spectrometer.

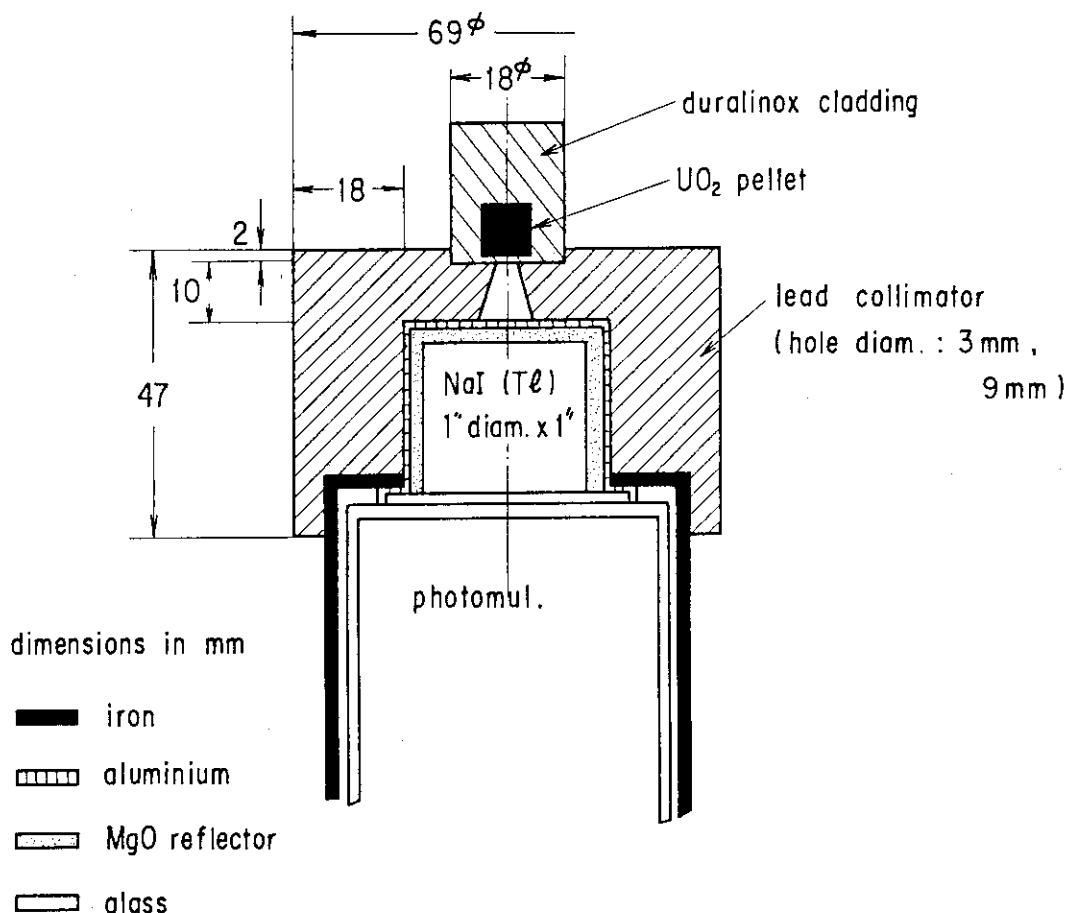


Fig. 3 Collimated geometry detection assembly of the NaI(Tl) gamma-ray spectrometer.

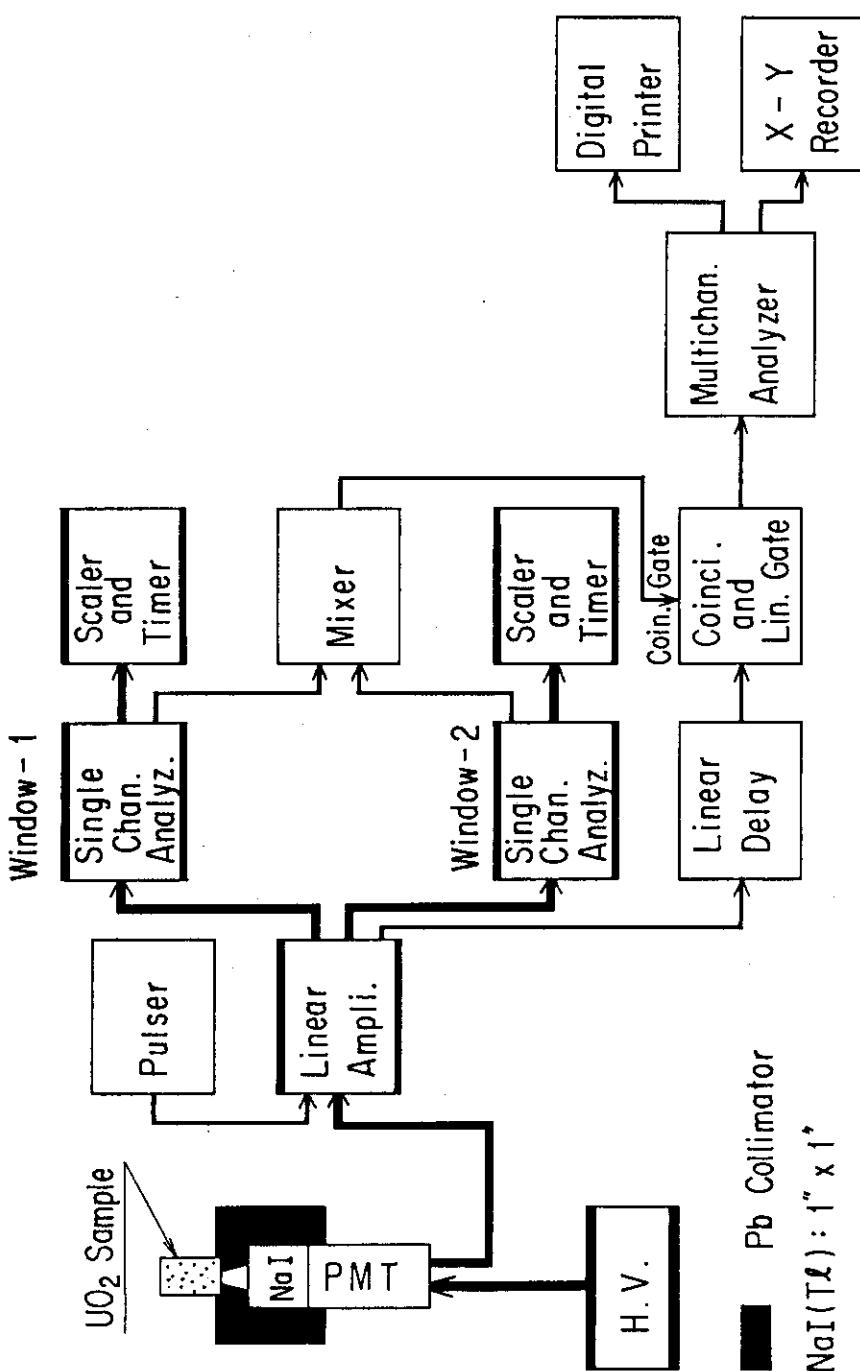


Fig. 4 Block diagram of the method of multiple single-channel analyzers with a monitor system.

In the figure, electronic units belong to the method are linked by the broad lines.

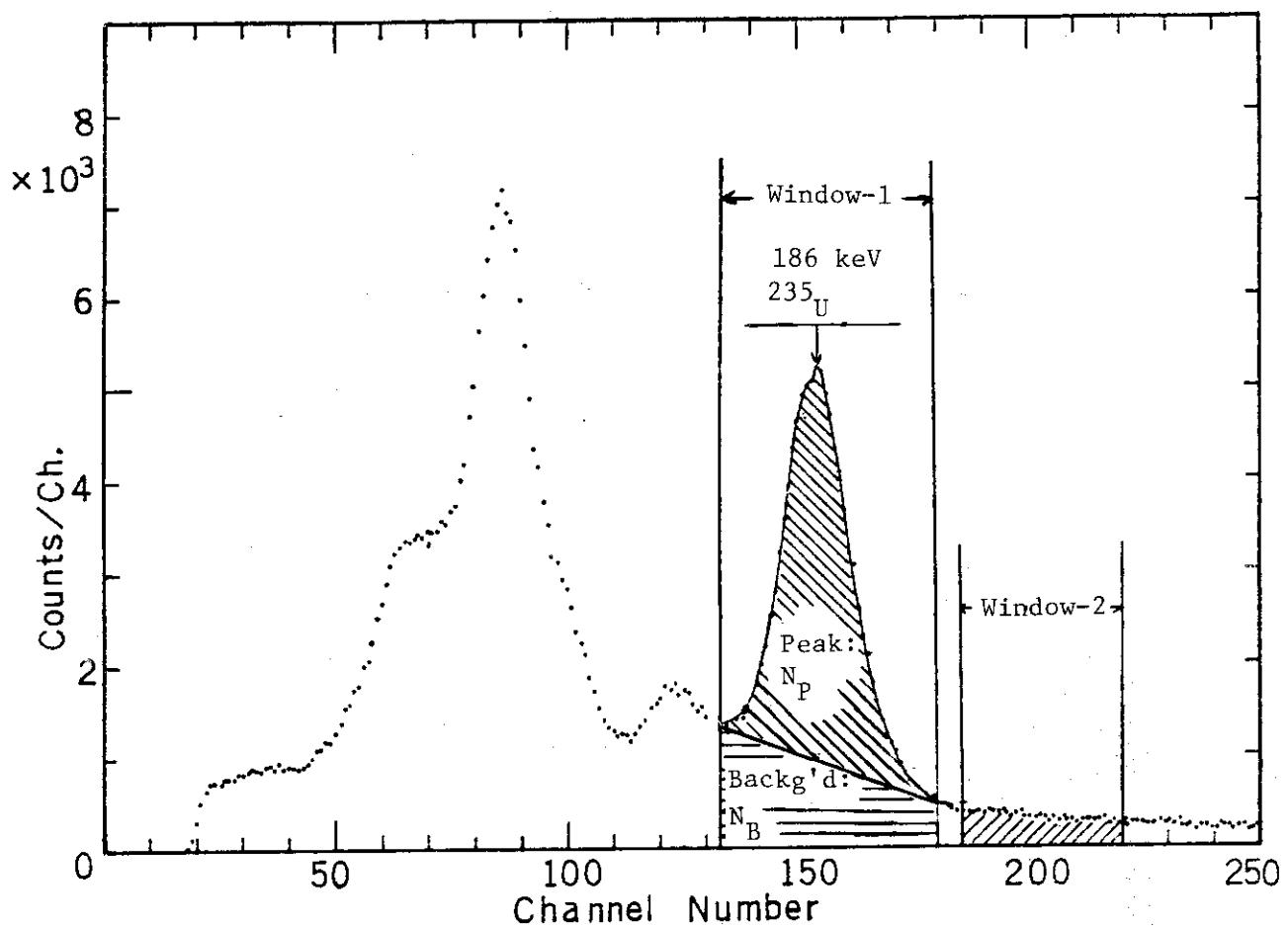


Fig. 5 Pulse-height distribution of gamma-rays from a uranium sample by a NaI(Tl) gamma-ray spectrometer. Window-1(186-keV peak region) and Window-2(background region) in the figure, indicate a pair of conditions of window setting in the method of multiple single-channel analyzers.

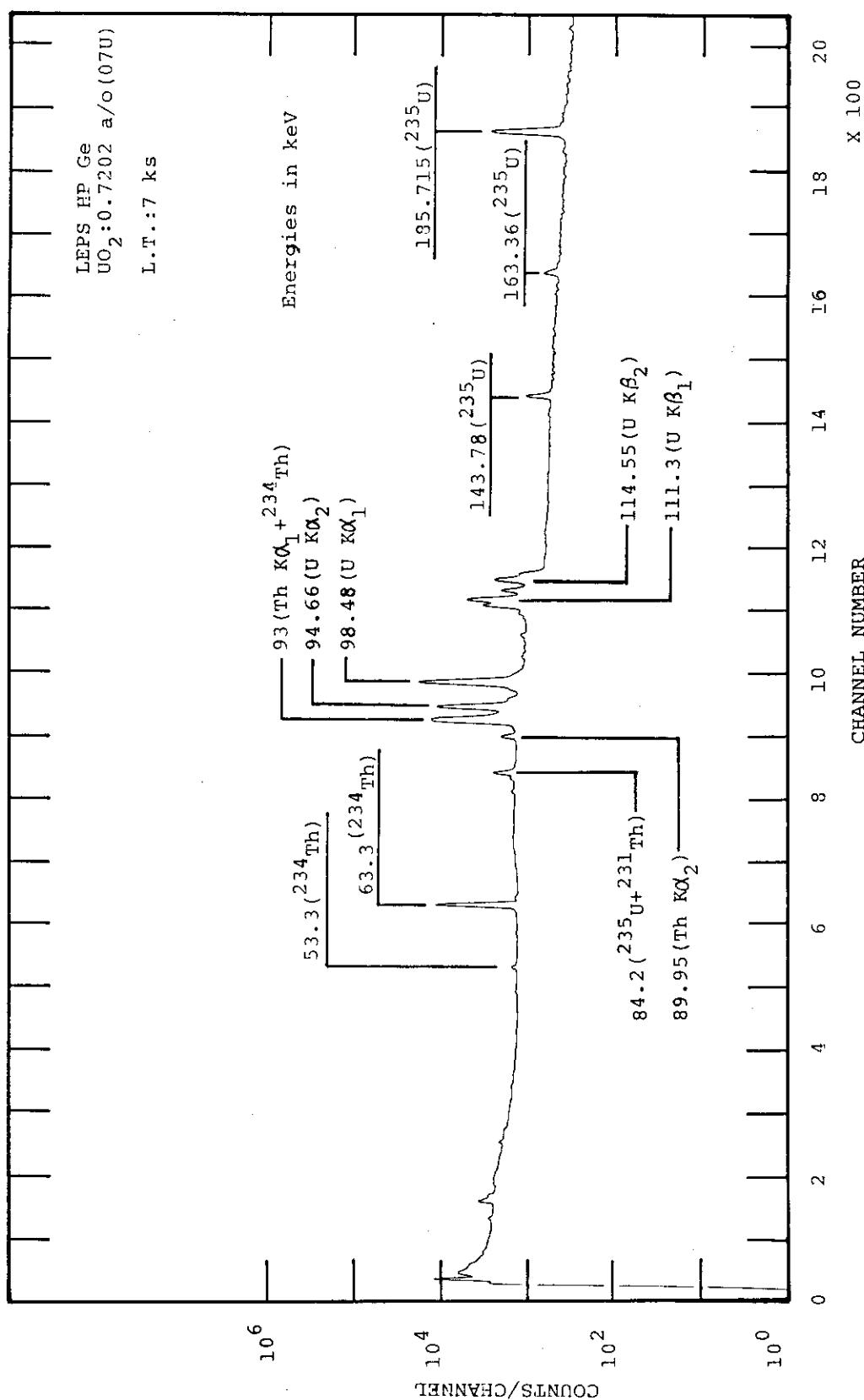


Fig. 6A Pulse-height distribution of the 0.7202 a/o uranium sample (07U) measured with the LEPS HP Ge gamma-ray spectrometer.

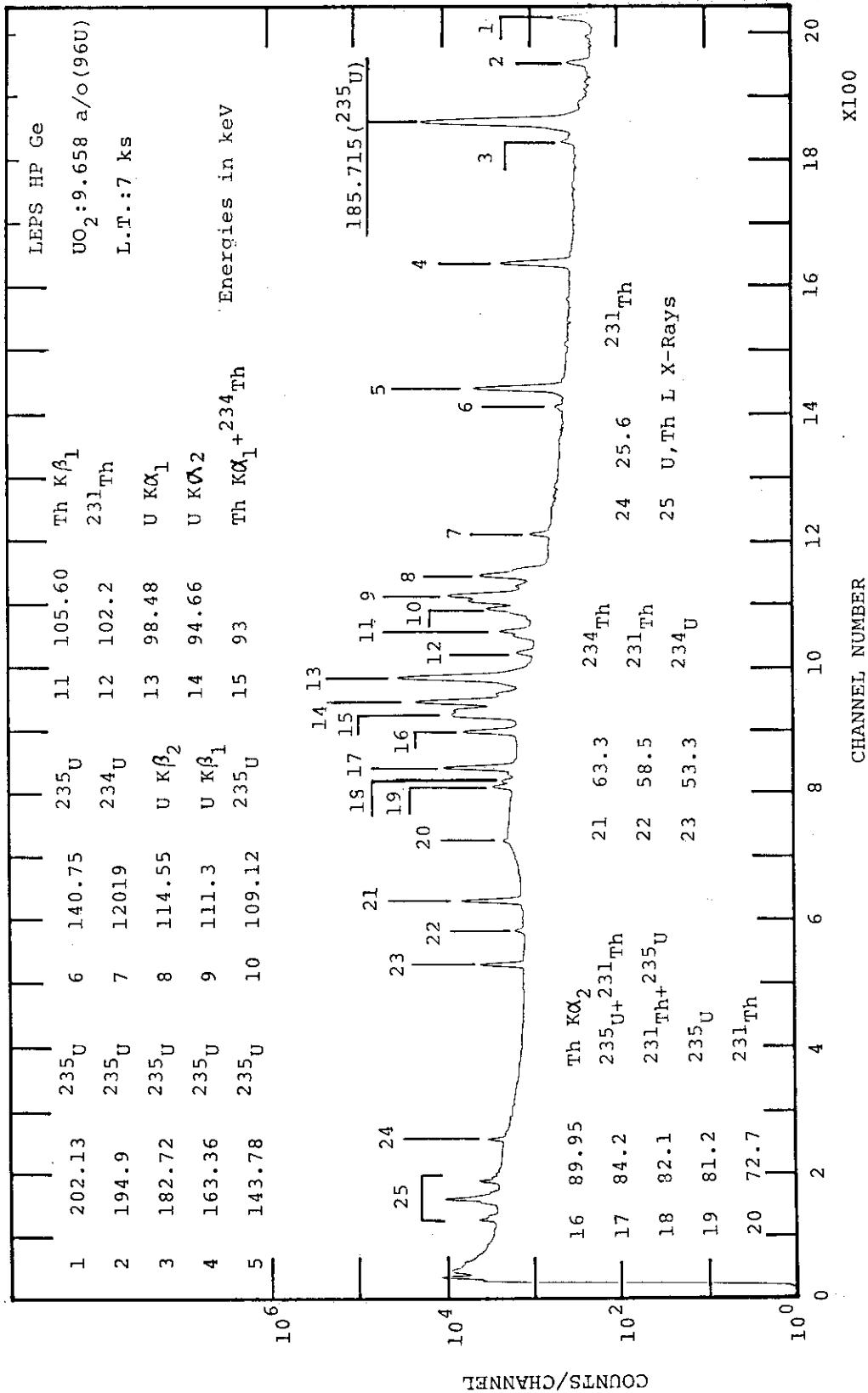


Fig. 6B Pulse-height distribution of the 9.658 a/o uranium sample( $^{96}\text{U}$ ) measured with the LEPS HP Ge gamma-ray spectrometer.

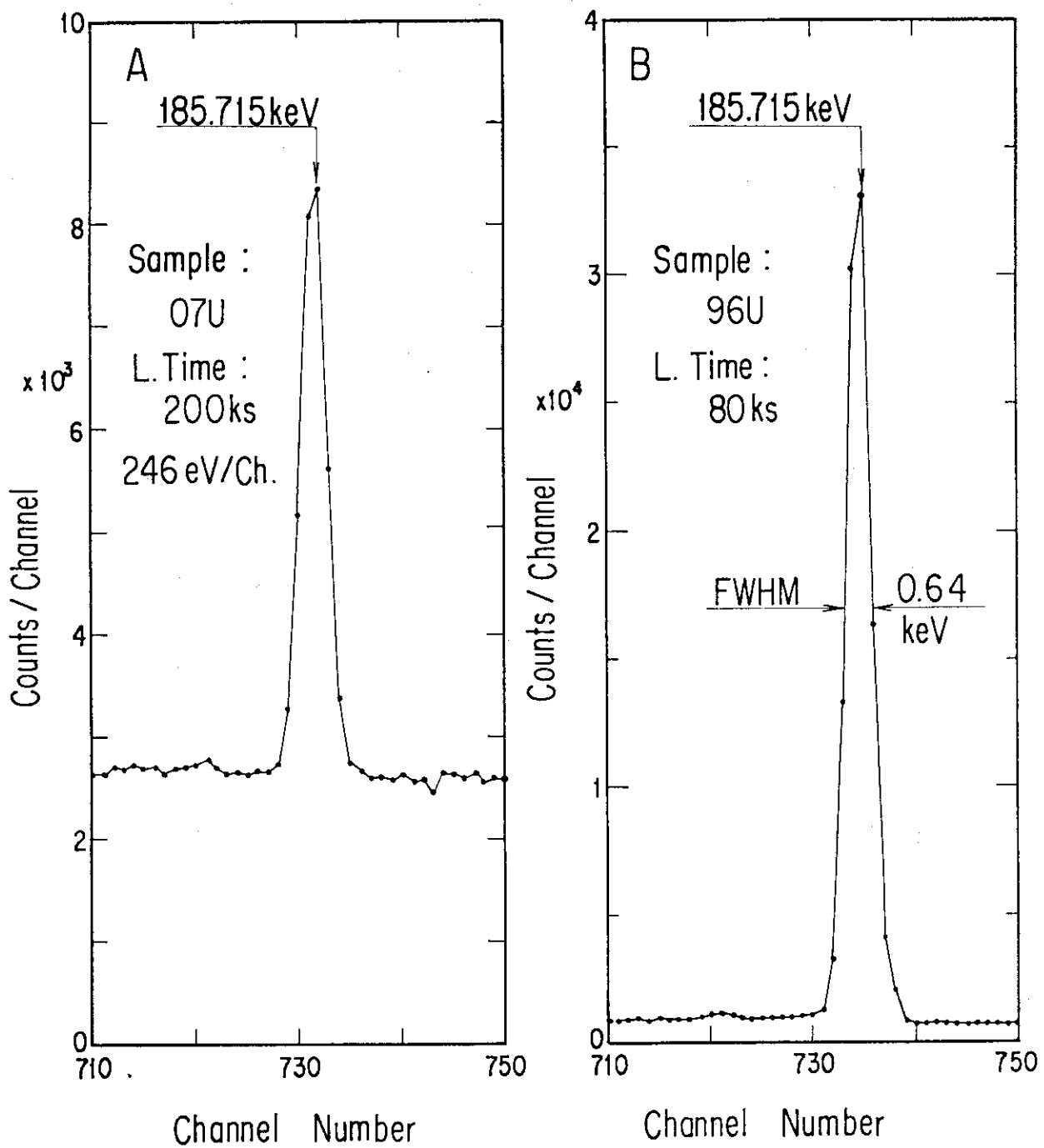


Fig. 7 Pulse-height distributions centering the full-energy peak of 185.715-keV gamma-rays, measured with the LEPS HP Ge gamma-ray spectrometer. Uranium samples are the 07U(0.7202 a/o) for the distribution A and the 96U(9.658 a/o) for the distribution B.

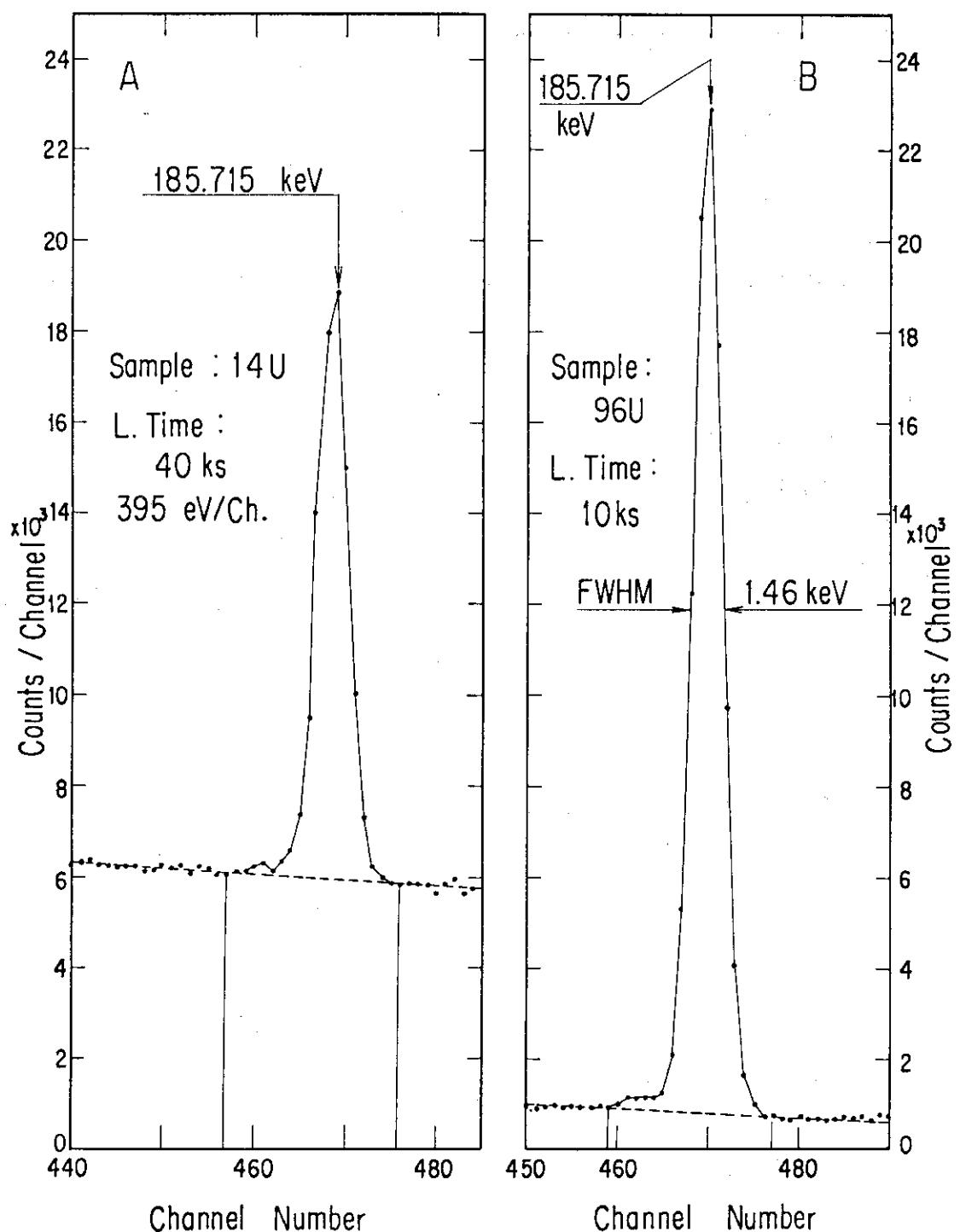


Fig. 8 Pulse-height distributions centering the full-energy peak of 185.715-keV gamma-rays, measured with the Ge(Li) gamma-ray spectrometer. Uranium samples are the 14U(1.434 a/o) for the distribution A and the 96U(9.658 a/o) for the distribution B.

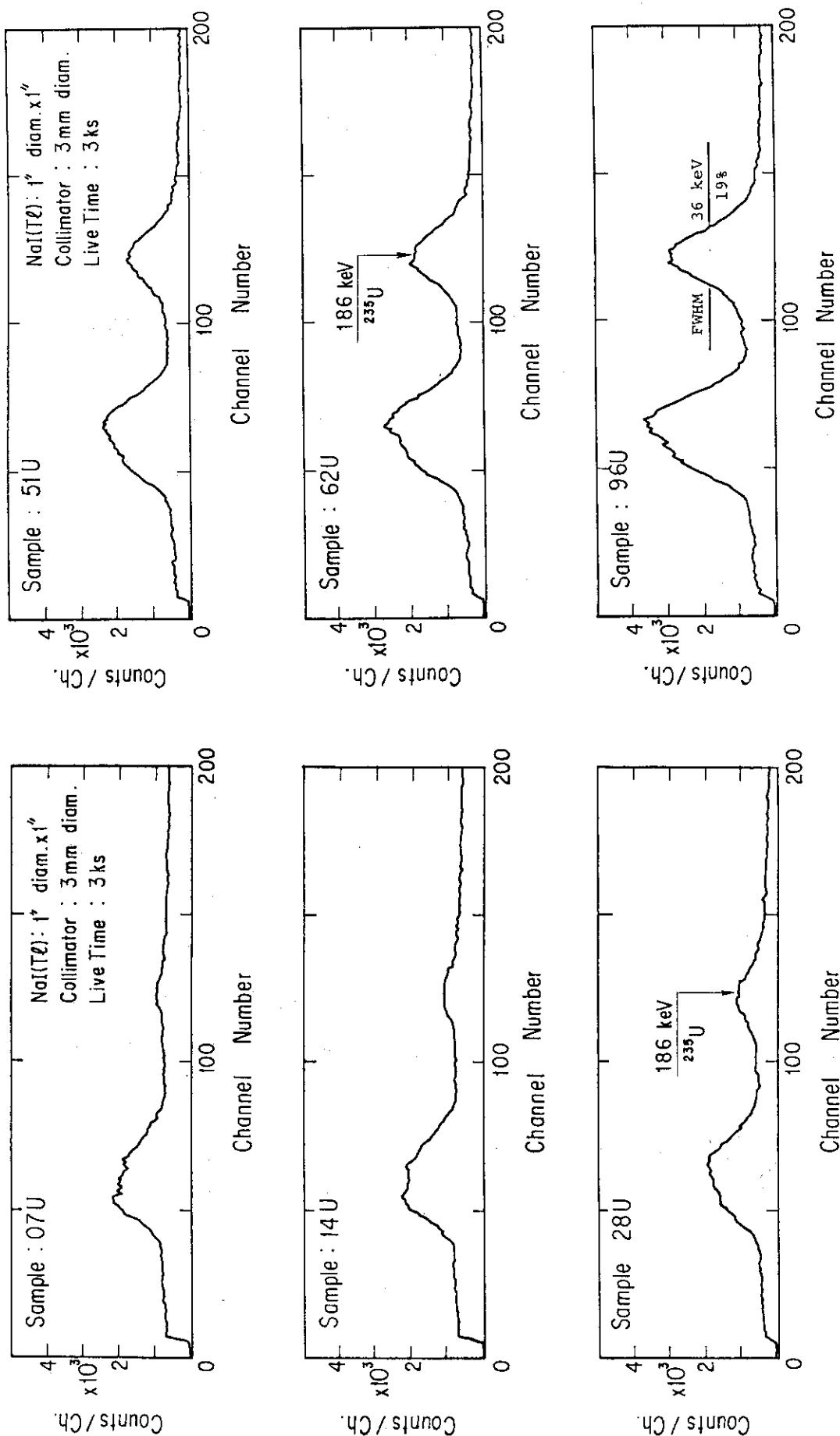


Fig. 9A

Pulse-height distributions of the  $07\text{U}(0.7202 \text{ a/o})$ ,  $14\text{U}(1.434 \text{ a/o})$  and  $28\text{U}(2.820 \text{ a/o})$  uranium samples measured with the NaI(Tl) gamma-ray spectrometer.

Fig. 9B

Pulse-height distributions of the  $51\text{U}(5.173 \text{ a/o})$ ,  $62\text{U}(6.297 \text{ a/o})$  and  $96\text{U}(9.658 \text{ a/o})$  uranium samples measured with the NaI(Tl) gamma-ray spectrometer.

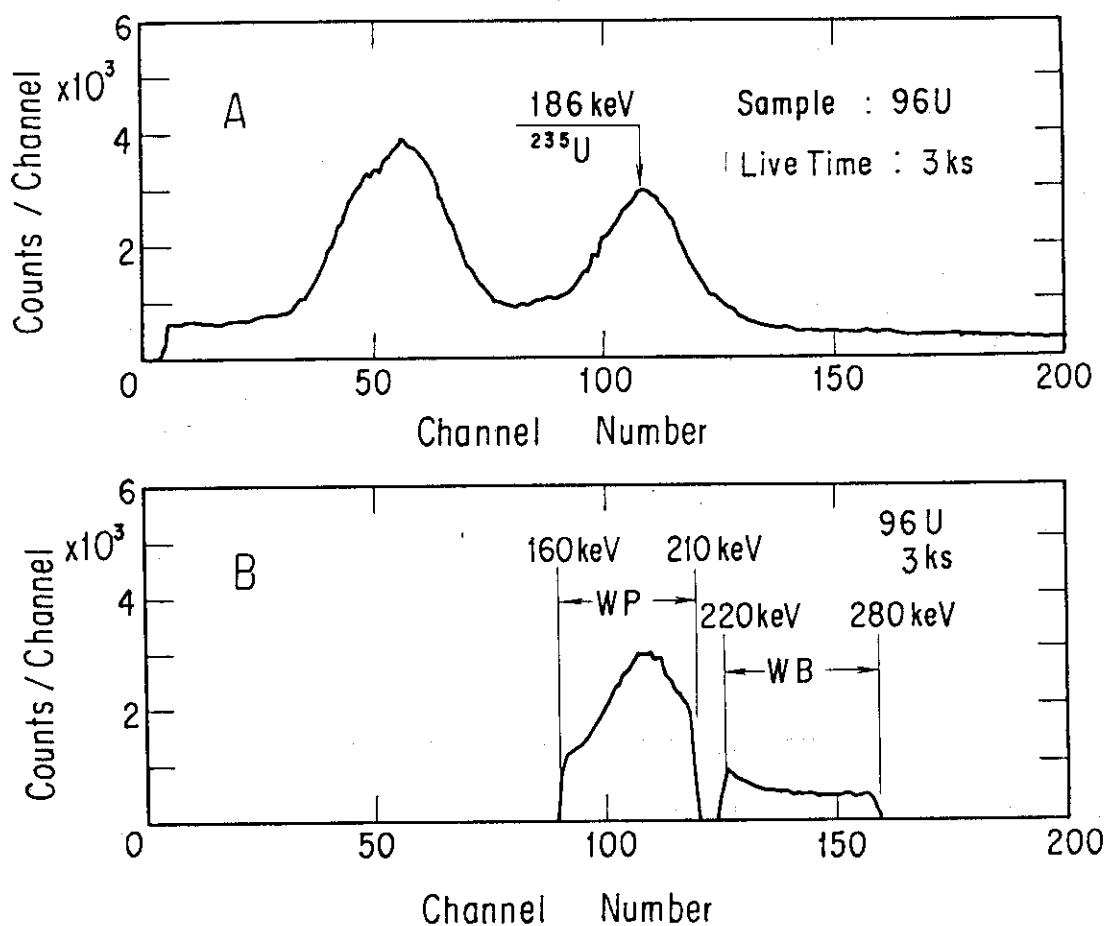


Fig. 10 Illustration of "window setting condition I" named here, in the method of multiple single-channel analyzers. Gated spectrum(B) coincided with the outputs from the two single-channel analyzers show that the pulses belong to the 186-keV peak region (WP) and to the background region(WB) are counted by the two scalers in fig. 4, respectively. Single spectrum(A) was measured under the same conditions without coincidence.

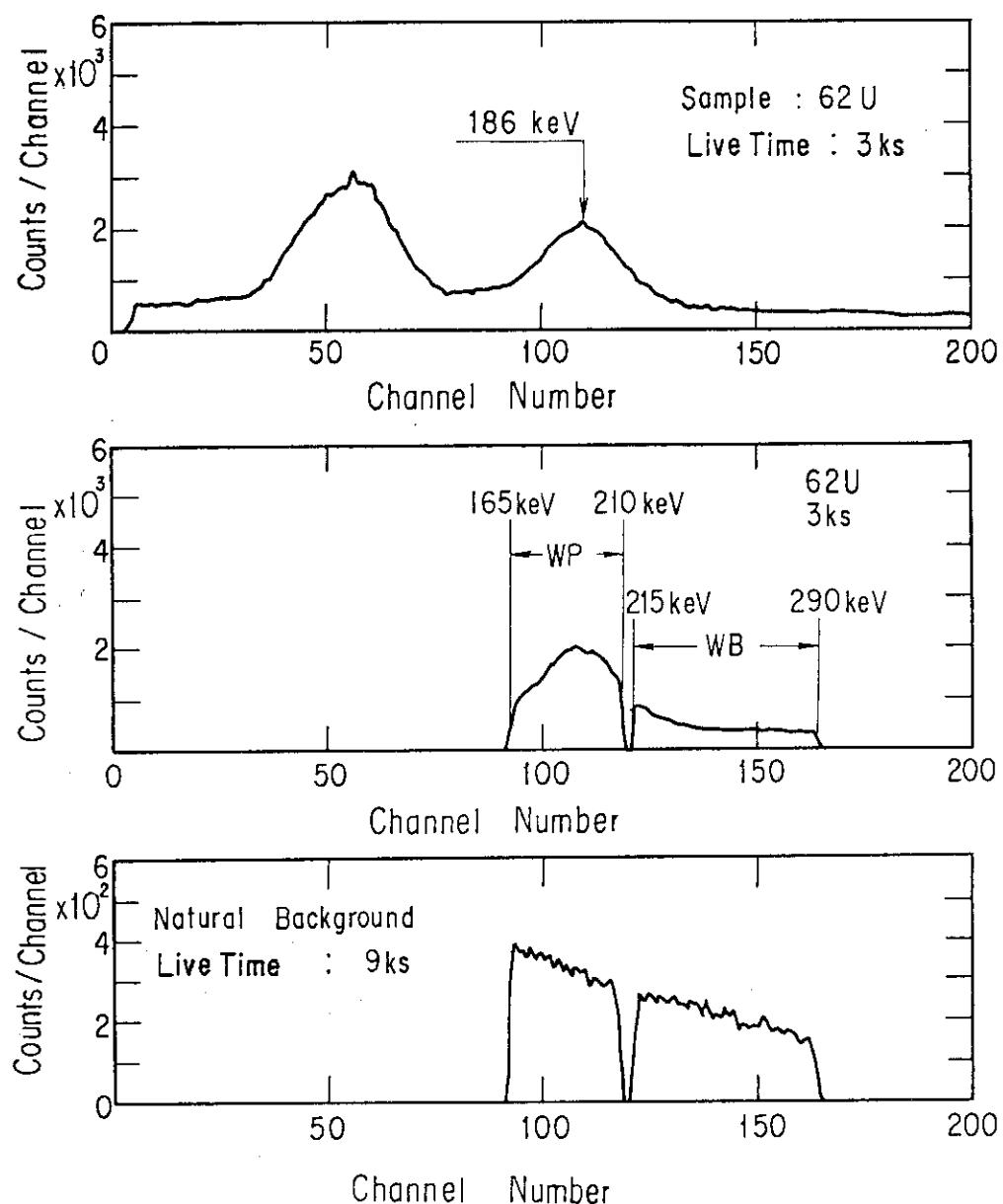


Fig. 11 Illustration of "window setting condition II" named here, in the method of multiple single-channel analyzers. Single spectrum(upper) and gated natural background spectrum(lower) are also shown with the illustration(middle).

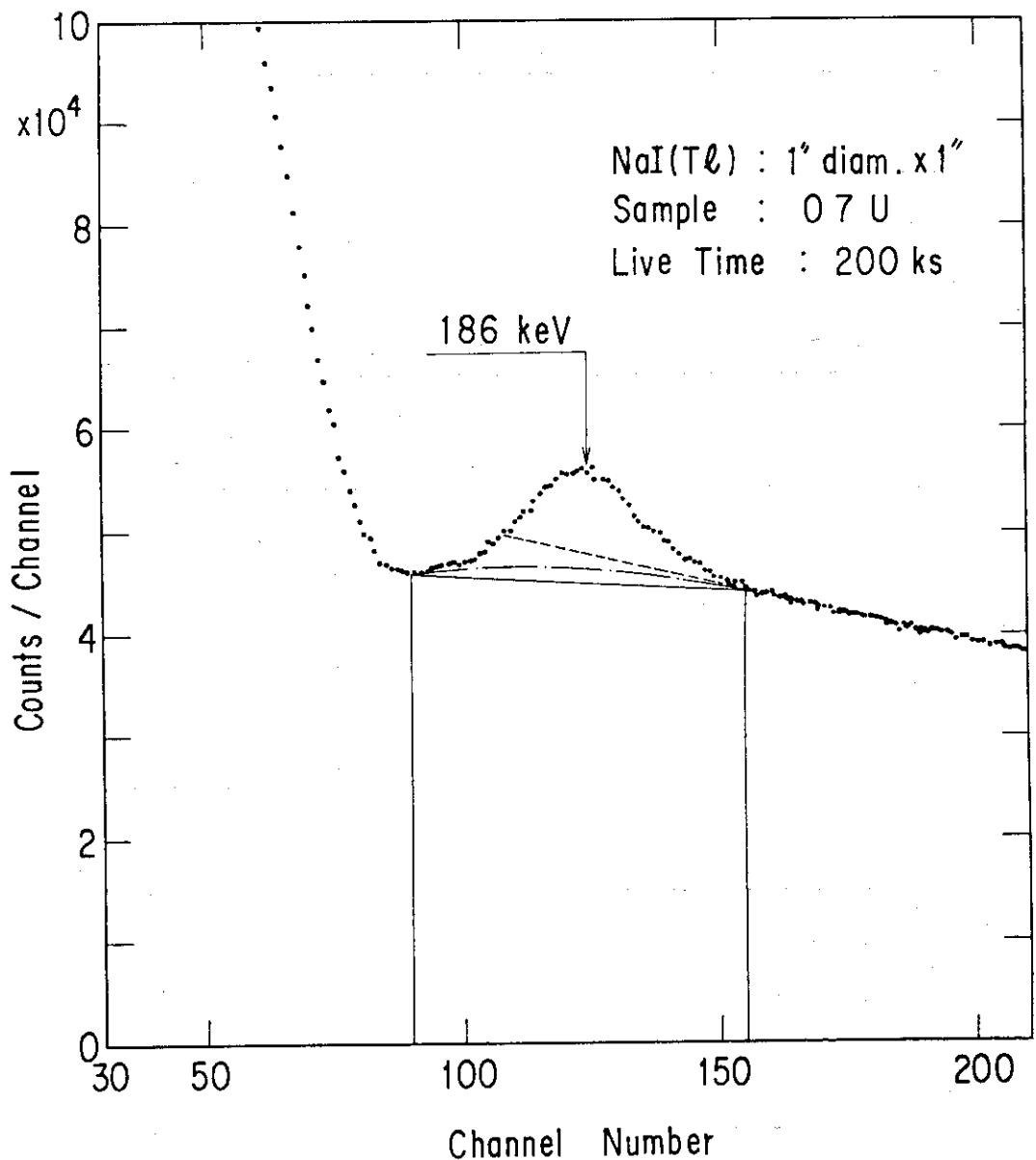


Fig. 12A Background distributions in the full-energy peak of the 186 keV of the 07U(0.7202 a/o) uranium sample in the NaI(Tl) gamma-ray spectrometry. The solid straight line shows Compton distribution taken in calculating the peak area by the method of Covell in which the distribution is considered as a linear distribution. The dotted straight line shows the linear extrapolation of Compton distribution in the higher energy region than the full-energy peak. The dot-dash line shows Compton distribution taken in calculating the peak area by the method in which the distribution is considered as a parabola.

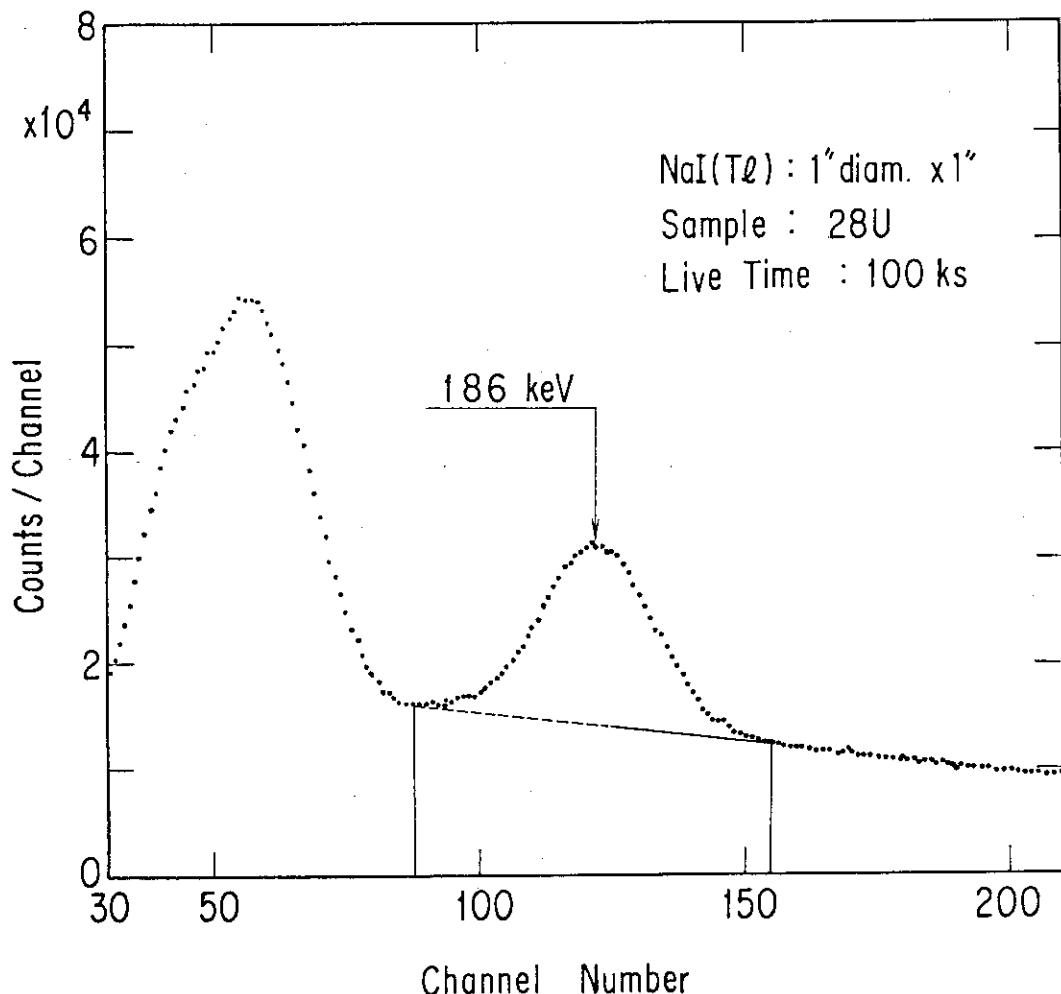


Fig. 12B Background distributions in the full-energy peak of the 186 keV of the 28U(2.820 a/o) uranium sample in the NaI(Tl) gamma-ray spectrometry. The solid straight line shows Compton distribution taken in calculating the peak area by the method of Covell in which the distribution is considered as a linear distribution. The dotted straight line shows the linear extrapolation of Compton distribution in the higher energy region than the full-energy peak.

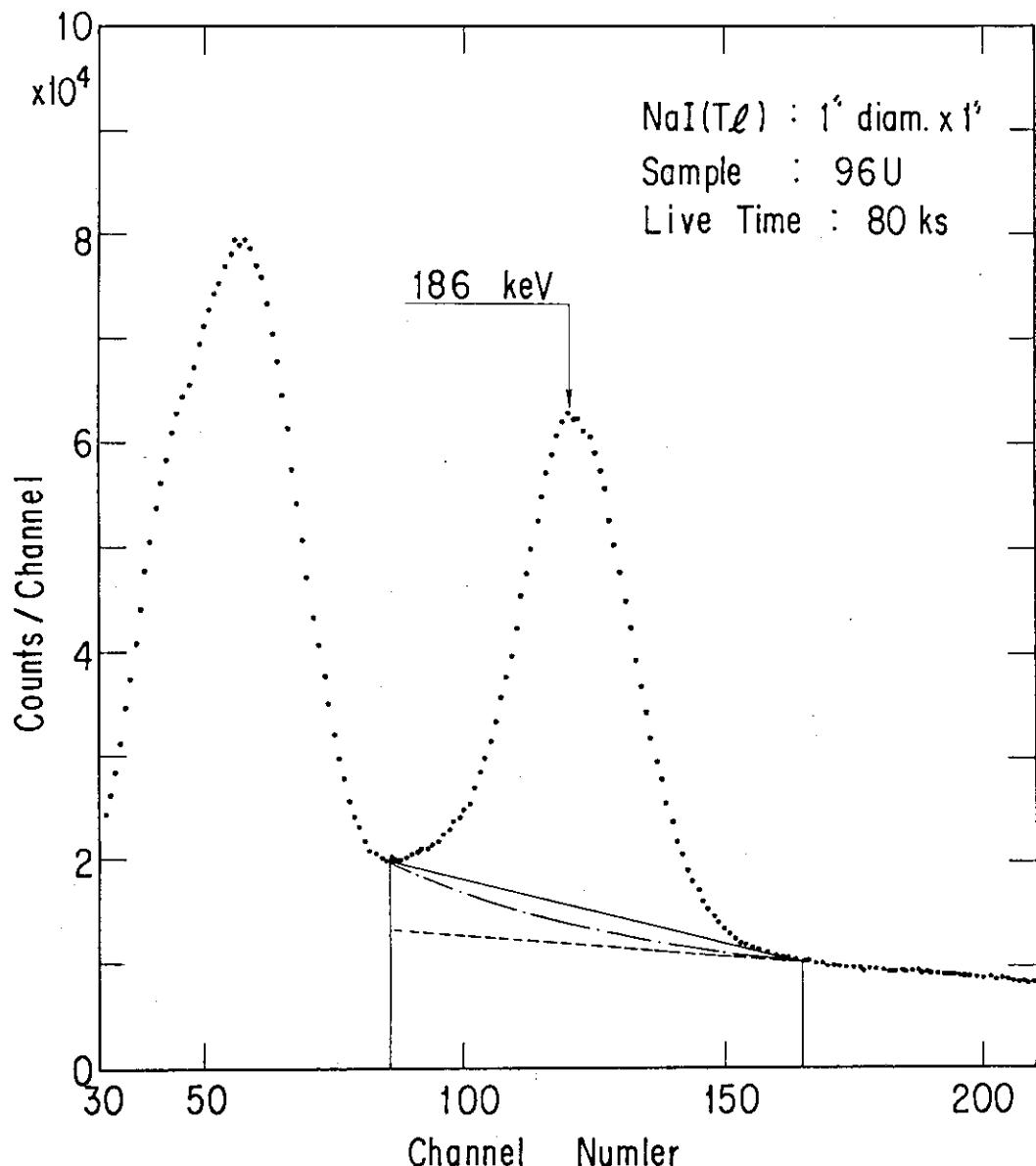


Fig. 12 C Background distributions in the full-energy peak of the 186 keV of the 96U(9.658 a/o) uranium sample in the NaI(Tl) gamma-ray spectrometry. The solid straight line shows Compton distribution taken in calculating the peak area by the method of Covell in which the distribution is considered as a linear distribution. The dotted straight line shows the linear extrapolation of Compton distribution in the higher energy region than the full-energy peak. The dot-dash-line shows Compton distribution taken in calculating the peak area by the method in which the distribution is considered as a parabola.