

FR 9201877

CEA-R-5582

CEA-R-5582

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

B11

**INTERCOMPARAISON
DES MESURES DE COMPOSITION
ISOTOPIQUE DU PLUTONIUM
PAR SPECTROMETRIE X ET GAMMA
RESULTATS DE L'ACTION "PIDIE"
RAPPORT FINAL**

par

Jean MOREL, Bruno CHAUVENET

**DIRECTION DES TECHNOLOGIES AVANCEES
DEPARTEMENT DES APPLICATIONS ET DE LA METROLOGIE
DES RAYONNEMENTS IONISANTS**

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay

Rapport CEA-R-5582

1992

**SERVICE DE DOCUMENTATION
ET D'ÉDITION MULTIMÉDIA**

C.E.-SACLAY 91191 GIF-sur-YVETTE Cédex FRANCE

CLASSIFICATION DES RAPPORTS, NOTES ET BIBLIOGRAPHIES CEA

(Classification du système international de documentation nucléaire INIS de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique)

A 11	Physique théorique générale et physique mathématique	C 50	Santé, radioprotection et environnement
A 12	Physique atomique et physique moléculaire	C 60	Radiologie et médecine nucléaire
A 13	Physique de l'état solide et physique des fluides	D 10	Isotopes et sources de rayonnements
A 14	Physique des plasmas et réactions thermonucléaires	D 20	Applications des isotopes et des rayonnements
A 15	Astrophysique et cosmologie, rayonnement cosmique	E 11	Thermodynamique et écoulement des fluides
A 16	Conversion directe d'énergie	E 13	Structures mécaniques et équipements
A 17	Physique des basses températures et cryogénie	E 14	Explosions nucléaires
A 20	Physique des hautes énergies	E 15	Manutention des matériaux radioactifs
A 30	Physique neutronique et physique nucléaire	E 16	Accélérateurs
B 11	Analyse chimique et isotopique	E 17	Essais des matériaux
B 12	Chimie minérale, chimie organique et chimie-physique	E 20	Réacteurs à fission (généralités)
B 13	Radiochimie et chimie nucléaire	E 30	Types spécifiques de réacteurs à fission et centrales associées
B 14	Chimie des rayonnements	E 40	Instrumentation
B 16	Combustibles nucléaires	E 50	Gestion des déchets
B 22	Métaux et alliages	F 10	Sociologie et sciences économiques
B 23	Céramiques et cermets	F 20	Droit
B 24	Autres matériaux	F 30	Documentation nucléaire
B 30	Sciences de la terre	F 40	Garanties nucléaires et contrôle de vérification
C 10	Tous les effets et aspects variés de l'irradiation externe en biologie	F 50	Méthodes mathématiques et codes pour ordinateur
C 20	Effets et cinétique des radioisotopes	F 60	Divers
C 40	Sciences de la vie appliquées		

Rapport CEA-R-5582

Cote-matière de ce rapport : B11

MOTS CLEFS (*extraits du thesaurus INIS*)

en français

en anglais

ISOTOPES DE PLUTONIUM

PLUTONIUM ISOTOPES

RAPPORT ISOTOPIQUE

ISOTOPE RATIO

SPECTROSCOPIE GAMMA

GAMMA SPECTROSCOPY

SPECTROSCOPIE DES RAYONS X

X-RAY SPECTROSCOPY

COMPARAISONS INTERLABORATOIRES

INTERLABORATORY COMPARISONS

RAPPORT CEA-R-5582 - Jean MOREL, Bruno CHAUVENET

"INTERCOMPARAISON DES MESURES DE COMPOSITION ISOTOPIQUE DU PLUTONIUM PAR SPECTROMETRIE X ET GAMMA ; RESULTATS DE L'ACTION PIDIE, RAPPORT FINAL"

Sommaire - Ce présent rapport récapitule les résultats de l'intercomparaison appelée exercice PIDIE et initiée par le Groupe de Travail ESARDA sur les Techniques et Références pour les Analyses Non-Destructives.

L'objet de cet exercice entrepris courant 1988 a été de tester les méthodes de spectrométrie X et gamma utilisées pour déterminer la composition isotopique du plutonium, cela pour une gamme étendue de rapports isotopiques. Des jeux de sept échantillons de plutonium de composition isotopique différente ont été mesurés par neufs laboratoires. Les résultats définitifs et les indicateurs d'incertitude sont présentés ; ils sont comparés à des résultats provenant d'analyses destructives.

Une analyse des paramètres et des causes d'erreur influençant les résultats est proposée. De cet exercice, aucun biais important n'a été observé. Un notable progrès a pu être relevé grâce, à la fois, à des méthodes d'analyse de spectre plus élaborées et à de meilleurs appareillages.

1991 - Commissariat à l'Energie Atomique - France

RAPPORT CEA-R-5582 - Jean MOREL, Bruno CHAUVENET

"INTERCOMPARISON OF PLUTONIUM ISOTOPIC COMPOSITION MEASUREMENTS BY X-AND GAMMA-RAY SPECTROMETRY ; RESULTS FROM THE PIDIE EXERCISE, FINAL REPORT"

Summary - The present report summarizes the results from the intercomparison called PIDIE exercise which has been initiated by the ESARDA Working Group on Techniques and Standards for Non-Destructive Analysis.

The aim of this exercise carried out in 1988 was to test the X-and gamma-ray spectroscopy methods used to determine the plutonium isotopic composition in a large range of isotopic ratios. Sets of seven samples with different isotopic composition were measured by nine participating laboratories. The final results with uncertainty indicators are presented ; they are compared with results from complementary destructives analyses.

An analysis of the parameters and the error sources influencing the results is proposed. No important bias has been observed from this exercise. Appreciable progress have been recorded from both more elaborate spectrum analysis methods and better equipment.

1991 - Commissariat à l'Energie Atomique - France

- Rapport CEA-R-5582 -

Centre d'Etudes de Saclay
Direction des Technologies Avancées
Département des Applications et de la Métrologie des Rayonnements Ionisants
Laboratoire Primaire des Rayonnements Ionisants

**INTERCOMPARAISON DES MESURES DE COMPOSITION
ISOTOPIQUE DU PLUTONIUM PAR SPECTROMETRIE X ET GAMMA
RESULTATS DE L'ACTION "PIDIE"
RAPPORT FINAL**

par

Jean MOREL, Bruno CHAUVENET,
Esarda Working Group on Techniques and Standards for Non-Destructive Analysis

- Décembre 1991 -

ISSN 0429 - 3460

- Rapport CEA-R-5582 -

**Centre d'Etudes de Saclay
Direction des Technologies Avancées
Département des Applications et de la Métrologie des Rayonnements Ionisants
Laboratoire Primaire des Rayonnements Ionisants**

**INTERCOMPARISON OF PLUTONIUM ISOTOPIC
COMPOSITION MEASUREMENTS BY X-AND GAMMA-RAY SPECTROMETRY
RESULTS FROM THE PIDIE EXERCISE
FINAL REPORT**

**Jean MOREL, Bruno CHAUVENET,
Esarda Working Group on Techniques and Standards for Non-Destructive Analysis**

- Décembre 1991 -

ISSN 0429 - 3460

SOMMAIRE

AVANT-PROPOS

1. INTRODUCTION

2. DESCRIPTION D'ENSEMBLE DE L'EXERCICE "PIDIE"

2.1 - Objet

2.2 - Description des échantillons de plutonium

2.3 - Participation

3. INSTRUMENTATION ET CONDITIONS DE MESURE

3.1 - Instrumentation

3.2 - Conditions de mesure

4. DETERMINATION DE LA COMPOSITION ISOTOPIQUE

4.1 - Principes généraux

4.2 - Analyse des pics

4.3 - Etalonnage en efficacité relative

4.4 - Données nucléaires

a) *Périodes radioactives*

b) Probabilités d'émission photonique

4.5 - Utilisation d'étalons pilotes CBNM

5. REGLES D'EVALUATION

5.1 - Préliminaire

5.2 - Compilation des résultats individuels

5.3 - Résultats définitifs

6. RESULTATS

6.1 - Résultats individuels du ^{238}Pu au ^{241}Pu obtenus par spectrométrie X-gamma (résultats N.D.A.)

6.2 - Résultats individuels du ^{238}Pu au ^{241}Pu obtenus par spectrométrie X-gamma en utilisant un écran additionnel

6.3 - Résultats provenant d'analyses destructives (résultats D.A.)

6.4 - Détermination du ^{242}Pu par corrélations isotopiques

CONTENTS**PREFACE**

- 1. INTRODUCTION**
- 2. GENERAL DESCRIPTION OF THE "PIDIE" EXERCISE**
 - 2.1 - Purpose**
 - 2.2 - Description of the plutonium samples**
 - 2.3 - Participation**
- 3. INSTRUMENTATION AND MEASUREMENT CONDITIONS**
 - 3.1 - Instrumentation**
 - 3.2 - Measurement conditions**
- 4. ISOTOPIC COMPOSITION DETERMINATION**
 - 4.1 - General principles**
 - 4.2 - Peak analysis**
 - 4.3 - Relative efficiency calibration**
 - 4.4 - Nuclear data**
 - a) Half-lives**
 - b) Photon emission probabilities**
 - 4.5 - Use of CBNM Pilot reference samples**
- 5. EVALUATION RULES**
 - 5.1 - Preliminaries**
 - 5.2 - Compilation of individual results**
 - 5.3 - Final results**
- 6. RESULTS**
 - 6.1 - ^{238}Pu to ^{241}Pu individual results by X/gamma-ray spectrometry (N.D.A. results)**
 - 6.2 - ^{238}Pu to ^{241}Pu individual results from X/gamma-ray spectrometry using an additional absorber**
 - 6.3 - Résultats from destructive analysis (D.A. results)**
 - 6.4 - Measurement of ^{242}Pu by isotopic correlations**

6.5 - Résultats définitifs

- a) Comparaison des résultats définitifs
- b) Commentaires
- c) Corrections basées sur l'utilisation des références pilotes CBNM .
- d) Dosage de l'²⁴¹Am
- e) L'exercice PERLA

7 - CONCLUSION

REMERCIEMENTS

REFERENCES

TABLES ET FIGURES

ANNEXE A : Résultats d'analyses destructives PIDIE

6.5 - Final results

- a) Comparison of final results
- b) Comments
- c) Corrections based on the use of the CBNM pilot reference samples
- d) Determination of ^{241}Am abundance
- e) The PERLA exercise

7 - CONCLUSION

ACKNOWLEDGMENTS

REFERENCES

TABLES AND FIGURES

APPENDIX A : PIDIE destructive-analysis results.

AVANT-PROPOS

Ce rapport final conclut l'action PIDIE (Plutonium Isotopic Determination Intercomparison Exercise) qui a été une "expérience d'évaluation des méthodes de mesure" par spectrométrie gamma, suivie d'une brève comparaison des résultats d'analyses destructives effectuée dans le but d'établir des valeurs de référence pour les analyses non destructives - NDA -.

L'action PIDIE a été l'un des projets internationaux organisés par le Groupe de Travail ESARDA sur les Techniques et Références pour Analyses Non-Destructives, et lancé comme contribution au développement de références internationales utiles aux procédés de détermination de la composition isotopique du plutonium par spectrométrie gamma. Les résultats de l'action PIDIE devraient être une aide dans la définition des futurs développements nécessaires aux garanties et à la métrologie.

Dans le domaine des garanties, les mesures non-destructives jouent un rôle croissant en permettant aux inspecteurs d'effectuer, en toute indépendance, des mesures et des observations pour vérification. Pour interpréter correctement les mesures de quantités du plutonium obtenues, soit par comptage de coïncidence neutronique, soit par calorimétrie, il est nécessaire de connaître la composition isotopique du plutonium contenu dans ces échantillons. Dans de tels cas, une spectrométrie gamma précise peut jouer un rôle important.

Les mesures de teneur isotopique sur l'uranium par spectrométrie gamma, qui donnent des résultats comparables à ceux de la spectrométrie de masse, ont été rendus possibles par l'utilisation de matériaux de références certifiées CRM's(*). Dans le cas des mesures de teneur isotopique sur le plutonium, pourrait-on obtenir des résultats analogues par spectrométrie gamma ? Au début de l'action PIDIE, la technique de mesure, et, ce qui est encore plus important, l'évaluation des spectres gamma, ne se situaient pas en fin d'un processus de développement. Lorsque PIDIE a commencé à prendre corps dans le cadre des réunions du Groupe de Travail NDA à la fin des années 70, le problème principal était d'en déterminer les possibilités.

(*) CRM's: Certified Reference Materials.

PREFACE

This final report concludes the PIDIE (Plutonium Isotopic Determination Intercomparison Exercise). It consists of a "Measurement method evaluation experiment" for gamma-spectrometry followed by a small intercomparison by destructive analysis, intended to establish reference values for the NDA part.

PIDIE is one of the international projects organised by the ESARDA Working Group on Techniques and Standards for Non-Destructive Analysis, as a contribution to the development of international standards for the determination of the abundances of the plutonium isotopes by gamma-spectrometry. The results of PIDIE should help to specify further development needs for safeguards and metrology.

Non-destructive measurements play an increasing role in safeguards to enable inspectors to conduct the independent measurements and observations for verification. For correct interpretation of measurements of the mass of plutonium samples by either neutron coincidence counting, or by calorimetry, it is necessary to know the isotopic composition of the plutonium in the samples. Accurate gamma-spectrometry can play an important role in such situations.

Uranium isotopic abundance gamma-measurements, which yield results comparable with the results of mass spectrometry, have been made possible by the use of special Certified Reference Materials (CRM's). Could gamma-spectrometry also yield similar results for plutonium isotopic abundance measurements? At the start of PIDIE the measurement technique and even more important, the evaluation of the gamma-spectra was not at the end of a development process. When PIDIE was first formulated in the meetings of the NDA Working Group in the late seventies, the main question was to determine what should be possible.

Une précédente évaluation des possibilités de mesure de l'isotopie du plutonium par spectrométrie gamma avait été lancée sur la base des matériaux de référence SRM 946-948 certifiés par le NBS et avait été terminée en 1981. La teneur la plus élevée en plutonium 240 des échantillons mesurés était de 18 % alors que, dans le cycle du combustible, des teneurs supérieures sont fréquemment rencontrées, d'autant plus que le taux de combustion est élevé. Suite à un premier exercice, l'action PIDIE a donc été conçue en tant qu'"expérience d'évaluation des méthodes de mesure" dans la plus large gamme possible de composition isotopique.

Des résultats préliminaires de l'action PIDIE ont été publiés lors du Symposium ESARDA qui s'est tenu à Luxembourg en 1989 ; ils ont été également l'objet d'une présentation détaillée, comprenant l'historique du projet et effectuée au nom de l'ESARDA et avec la collaboration des membres du Groupe de Travail NDA, lors de la réunion de l'INMM à Los Angeles en 1990. Par la suite, d'autres résultats sont parvenus ; le présent rapport indique donc le détail des résultats transmis, fournit leur synthèse et les conclusions correspondantes.

Comme le prouvent les résultats de l'action PIDIE, ces dernières années ont vu apparaître d'importantes améliorations, et les résultats des mesures "NDA" [Non-Destructive Analysis] deviennent tout à fait comparables aux résultats des mesures DA [Destructive Analysis] obtenus par spectrométrie de masse et spectrométrie alpha. Des durées de mesure très brèves, de l'ordre de dix minutes, peuvent déjà suffire pour obtenir de bons résultats. Concernant la teneur en ^{241}Am , les résultats PIDIE font apparaître une différence systématique, non expliquée, entre les valeurs "DA" et les valeurs "NDA". Les résultats concernant la teneur en ^{238}Pu pourraient également être affectés par un effet similaire, bien que moins prononcé.

An earlier evaluation of the performance of gamma-spectrometry for determination of the isotopic composition of plutonium was based on the NBS certified reference materials SRM 946-948, and was concluded in 1981. The highest value of the plutonium-240 abundance of these samples was 18%, while in the fuel cycle much higher abundances were becoming more common since fuel burn-up reached gradually higher values. Hence PIDIE was formalized as a "Measurement method evaluation experiment" in which a larger range of isotopic compositions should be investigated.

Preliminary results of PIDIE were published at the ESARDA Symposium in Luxembourg in 1989. On behalf of ESARDA, and with co-operation of the members of the NDA Working Group, a comprehensive presentation including the historical development of the project has been given at the INMM annual meeting in Los Angeles in 1990, based on those preliminary results. This final report gives in detail the results of the participants, the evaluation and its conclusions.

As the results of PIDIE demonstrate, important improvements have been achieved in the last years. The results of NDA measurements are becoming quite competitive to the results of the DA analyses by mass spectrometry and alpha spectrometry. Very short measurement times in the order of ten minutes can be already sufficient to reach good results. The PIDIE results of the determination of the ^{241}Am abundance show an unexplained systematic difference between the results of DA and NDA methods. A similar but less pronounced effect may be influencing the ^{238}Pu abundance results too.

Le présent rapport représente une étape dans le débat sur le besoin de procédures types et de matériaux de référence. Les questions fondamentales suivantes se posent donc :

- Existe-t-il un réel besoin de Matériaux de Référence Certifiés pour déterminer la composition isotopique du plutonium par spectrométrie gamma, ou peut-on se contenter de codes de calcul convenablement validés ?

- De quelle manière peut-on établir la liaison avec les unités fondamentales du système SI ?

Lors de la réunion du Groupe de Travail ESARDA NDA, qui s'est tenue à Cadarache du 9 au 11 octobre 1990, l'examen de ce sujet a donné lieu à une proposition préliminaire préconisant la constitution de lots importants, mais en nombre limité, de matériaux de référence certifiés, à partir desquels quelques gros échantillons seraient confectionnés à l'intention de certains laboratoires d'étalonnage particuliers, tels que PERLA. De ces mêmes lots, on tirerait également des petits échantillons destinés aux étalonnages ainsi qu'aux travaux de recherche et de développement effectués dans un plus grand nombre de laboratoires. Cette proposition a été inspirée par la nécessité, pour les organismes chargés des contrôles des garanties, de disposer d'étalons répondant le plus fidèlement possible aux conditions de mesure existant "sur le terrain", et de résoudre le problème général posé par la distribution de quantités croissantes de plutonium à de plus en plus de laboratoires. Le débat sur cette question se poursuit encore.

Dans le domaine de la normalisation des procédures, plusieurs codes de calcul ont été mis au point et les résultats obtenus ces dernières années avec certains de ces codes indiquent que des solutions pragmatiques ont été trouvées. Même si la procédure implique une connaissance préalable et plus ou moins précise des données nucléaires, notamment des probabilités d'émission photonique, une comparaison des résultats avec des valeurs étalons permet de corriger les codes jusqu'à l'obtention d'excellents résultats.

The present report is a step in the further discussions about the need for both procedural and materials standards. Basic questions are:

- Is there a real need for Certified Reference Material to determine the isotopic composition of Pu by gamma-spectrometry, or are well established calculation codes sufficient?

- In which way could traceability to the basic SI-units be established?

In the ESARDA NDA Working Group meeting at Cadarache from 9 to 11 October 1990, the development of this subject resulted in a preliminary proposal of having a limited number of large batches of Certified Reference Material, from which a few large size samples are made for some specific calibration laboratories like PERLA. Also small samples should be produced from the same batches of material for calibration, and research and development purposes in a larger number of laboratories. Background of this proposal was the need of the safeguards inspectorates to have calibration samples which are reflecting as near as possible the "in field" measurement conditions, and the general difficulty to distribute such larger amounts of plutonium to more laboratories. Discussions on this issue are continuing.

In the area of procedural standards several calculational codes have been developed, and the remarkable achievements of the last years with those codes are indicating that for the practical measurement problems pragmatic solutions are achieved. Even when the development has to start with less accurate knowledge on basic nuclear data like the photon emission probabilities, comparison of results on well calibrated samples allows adjustments to the codes which finally are giving excellent results.

Certains participants ont corrigé leur procédure d'évaluation en modifiant les valeurs des probabilités d'émission photonique suite à des mesures précises faites sur des échantillons pilotes ; ils ont ainsi obtenu de meilleurs résultats. Cependant, dans le cas présent, le but recherché n'est pas de déterminer les véritables valeurs des constantes nucléaires, mais de trouver la meilleure solution pratique pour le problème posé. Bien que du point de vue fondamental, ceci puisse constituer une impasse pour le progrès de la science, il n'en reste pas moins que les techniques de contrôle bénéficient quotidiennement des solutions récemment mises au point.

Le programme PIDIE a été rendu possible grâce à l'enthousiasme et la persévérance manifestés par les organisateurs et les participants. Malgré les réorganisations intervenues au cours des dix dernières années, les participants sont parvenus à maintenir leur contribution telle qu'elle était prévue à l'origine. Toutefois, les progrès enregistrés dans les différents domaines de l'expérience, du matériel et des codes de calcul, se sont traduits par différentes manières de parvenir aux résultats. Pour l'évaluation définitive, ceci conduit à grouper les résultats en sous-ensembles dont l'importance est insuffisante pour permettre de tirer des conclusions nettes. Dans les comparaisons futures, un trop faible nombre de participants pourrait être un obstacle à une évaluation statistiquement valable, à moins que la participation ne puisse être élargie.

En tant que responsable du Groupe de Travail ESARDA pour les Techniques et Références pour Analyses Non-Destructives durant le déroulement de l'action PIDIE, l'invitation à rédiger cet avant-propos a été pour moi un honneur et un plaisir. PIDIE a marqué une longue période de coopération agréable et constructive, pour laquelle je désire exprimer, à titre personnel, toute ma gratitude.

R.J.S. HARRY

Some of the participants applied corrections on their spectrum evaluation by directly adjusting the photon emission probabilities, based upon measurements on accurately defined "pilot samples", and obtained accordingly "better" results. In the present safeguards research the objective is not to find the scientific true values of nuclear constants, but to find the best workable solution to the existing measurement problem. Fundamentally this may be a blind alley for the development of science, but safeguards daily benefits from the recently developed solutions.

PIDIE has been made possible by the enthusiasm and perseverance of its organisers and participants. In the course of the ten years organisational structures have changed but the contributors found a way to maintain their initial announced participation. However, the developments of experience, equipment, and calculational codes, caused differences between the ways in which results have been obtained. For the final evaluation this leads to a grouping of results in too small subsets, which don't allow to draw firm conclusions. For future intercomparisons, the number of participants may become the bottleneck for a statistically sound evaluation, if not a wider participation can be found.

Being convener of the ESARDA Working Group on Techniques and Standards for Non-Destructive Analysis during the period in which PIDIE developed, it was a honour and pleasure to be invited to write this preface. PIDIE marked a long period of pleasant and constructive co-operation, for which I like to express my personal gratitude.

R.J.S. HARRY

1 - INTRODUCTION

Au cours de plusieurs réunions, le Groupe de Travail ESARDA* sur les Techniques et Références pour Analyses Non-Destructives a exprimé le besoin d'évaluer les performances des différents procédés mis en oeuvre pour déterminer la composition isotopique du plutonium. A la suite d'un exercice interlaboratoire fondé sur des mesures de Matériaux de Référence Certifiés de plutonium (CRM's) et achevé courant 1981 [1], il a été décidé d'organiser une comparaison internationale dénommée exercice "PIDIE" (Plutonium Isotopic Determination Intercomparison Exercise). Cet exercice devait notamment répondre à la demande du Groupe de Travail de disposer, pour l'intercomparaison, d'échantillons présentant une gamme étendue en isotopie. La préparation des échantillons et leur expédition furent confiées à l'établissement AERE Harwell de l'UKAEA ; quant au LMRI, il fut chargé de la collection des résultats, du dépouillement et de leur synthèse.

Les participants à l'exercice PIDIE reçurent leur jeu d'échantillons et procédèrent aux mesures courant 1988. Après une synthèse des premiers résultats fournis par huit participants, un rapport préliminaire fut rédigé et transmis aux participants en 1989 [2]. Un neuvième participant ayant transmis ses résultats avant la date limite, il fut possible de les inclure dans le rapport définitif. Après collection de tous les résultats d'analyses non-destructives, résultats NDA, des mesures comparatives par spectrométrie de masse sur des fragments de chaque lot de plutonium furent effectuées en 1989 et 1990 par six autres laboratoires afin de compléter l'analyse des résultats obtenus par spectrométrie X et gamma.

Certains participants ont remis plusieurs jeux de résultats en faisant appel à différentes voies de détermination de la composition isotopique du plutonium, si bien qu'en tout, seize jeux de résultats ont été pris en compte dans l'évaluation finale.

* European Safeguards Research and Development Association

1 - INTRODUCTION

In several meetings, the ESARDA* Working Group on Techniques and Standards for Non-Destructive Analysis has expressed the need to evaluate the different methods used for the determination of the isotopic composition of plutonium. After an earlier interlaboratory exercise based on measurements of plutonium Certified Reference Materials (CRM's) and completed in 1981 [1], it was decided to organize the international comparison called "PIDIE", i.e., Plutonium Isotopic Determination Intercomparison Exercise. At the time, a request of the Working Group was to have intercomparison materials, with an extended range of isotopic composition, available. AERE Harwell of the UKAEA was given the responsibility of preparing and dispatching these materials ; LMRI accepted the task of collecting and analyzing the results.

The PIDIE participants received their sets of plutonium samples and carried out their measurements in 1988. After a synthesis of the first results provided by eight participants, a preliminary report was written and sent to the participants in 1989 [2]. A ninth participant sent his results before the deadline, these results are included in this final report. Following the receipt of NDA (Non-Destructive Analysis) results, a mass-spectrometry intercomparison on small samples of each plutonium batch was carried out in 1989 and 1990 by six other laboratories to complete the final analysis of the X/gamma-ray spectrometry results.

Some participants gave results using different methods for the determination of the isotopic composition of plutonium. In all, sixteen sets of results are available for this final evaluation.

* European Safeguards Research and Development Association

2 - DESCRIPTION D'ENSEMBLE DE L'EXERCICE "PIDIE"

2.1 - Objet

Au cours des récentes années, un intérêt accru s'est manifesté pour les méthodes non-destructives de détermination de la composition isotopique du plutonium [3 à 10]. Ces méthodes reposent sur l'analyse du rayonnement X et/ou gamma émis par les isotopes Pu238, Pu239, Pu240, Pu241 et Am241 ; elles présentent l'avantage de rendre superflu l'emploi d'étalons extérieurs.

L'exercice PIDIE a donc eu pour objectif de tester les récentes méthodes X et gamma de caractérisation du plutonium dans une large gamme de composition isotopique, afin, si possible, de les perfectionner, de mieux comprendre les causes d'erreur et d'améliorer la connaissance des probabilités d'émission photonique. Un objectif supplémentaire de l'action PIDIE a été d'étudier les éventuelles améliorations apportées par l'emploi de références pilotes CBNM.

L'action PIDIE ayant été lancée il y a 10 ans environ, les objectifs décrits auparavant ont été depuis quelque peu modifiés, le questionnaire reflète les problèmes posés à l'époque. Ainsi, par exemple, aucun test portant sur des mesures à taux de comptage élevés n'a été envisagé. Néanmoins, en raison des strictes conditions d'anonymat et de secret, l'action PIDIE peut être considérée comme un test véritablement impartial des possibilités actuelles (1989) de la spectrométrie gamma et X pour les mesures d'abondance isotopique.

Les participants ont eu à déterminer la composition isotopique de 7 échantillons de plutonium. Pour chacun d'eux, ils devaient effectuer trois comptages de durée suffisante afin que la composante aléatoire de l'incertitude de mesure du ^{240}Pu à 160 keV soit inférieure à 5 %, cela après corrections et pour un niveau de confiance de 68 %. Les résultats définitifs devaient être remis à la date de référence du 1er janvier 1988 et exprimés sur la forme de rapports atomiques Pu 238/P, Pu 239/P, Pu 240/P, Pu 241/P et Am 241/P, P étant la somme des valeurs d'abondance des nucléides Pu 238 à Pu 241. Les incertitudes correspondantes devaient être évaluées comme des écarts-type en se fondant sur la règle de combinaison quadratique. En outre, les participants étaient invités à donner les rapports Pu $^{242}/\text{Pu}$ obtenus par des corrélations isotopiques.

2 - GENERAL DESCRIPTION OF THE PIDIE EXERCISE

2.1 - Purpose

In the last few years, there has been an increasing interest in non-destructive methods for determining plutonium isotope abundances [3 to 10]. These methods are based on the X- and/or gamma-ray radiation emitted by the isotopes ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu and ^{241}Am and they offer the advantage that the use of external standards is not essential.

The aim of the PIDIE exercise was, therefore, to test the recent X/gamma-ray methods for measuring plutonium over a wide range of isotopic composition, to give an opportunity to improve them, to investigate sources of error and, if possible, to improve the knowledge of emission probabilities. An additional aim was to examine the possible improvement of such measurements by using CBNM pilot reference samples.

Because the PIDIE exercise started about 10 years ago, the aims described above have somewhat changed since then. Basically the questionnaire for the participants reflects the problems faced at that time. For example, no part of the exercise was devoted to measurements at high counting rates. Nevertheless, due to the strict anonymity and secrecy maintained, the PIDIE exercise can be considered as a real blind test to confirm the present (1989) possibilities of X/gamma-ray spectrometry for isotope abundance measurements.

The participants were asked to determine the atomic ratios for seven samples. For each sample, they had to make three measurements with a counting time long enough to obtain a random uncertainty component for ^{240}Pu at 160 keV of less than 5% at a 68 % confidence level after corrections. The final results were to be given at the reference date of 1st January 1988. They were to be expressed in terms of atomic ratios $^{238}\text{Pu}/\text{P}$, $^{239}\text{Pu}/\text{P}$, $^{240}\text{Pu}/\text{P}$, $^{241}\text{Pu}/\text{P}$ et $^{241}\text{Am}/\text{P}$, where P is the sum of the abundances of the nuclides ^{238}Pu to ^{241}Pu . The corresponding uncertainties were evaluated as standard deviations using the quadratic summation rule. The participants were also asked to give the $^{242}\text{Pu}/\text{Pu}$ ratios derived from isotopic correlations.

Les participants devaient également décrire les caractéristiques principales de leur appareillage et de leurs conditions de mesure. Ils devaient donner des informations sur les méthodes utilisées, les procédés d'analyse de pics et d'étalonnage en efficacité ; ils devaient aussi mentionner les valeurs des données nucléaires utilisées (périodes radioactives des éléments, probabilités d'émission X ou gamma).

2.2 - Description des échantillons de plutonium

Des jeux de sept échantillons de plutonium identiques ont été préparés et expédiés par AERE Harwell de l'UKAEA. Bien que les conteneurs d'échantillons aient été conçus il y a environ dix ans, et que la préparation des échantillons ait commencé peu après, l'expédition finale a été retardée en raison de difficultés d'exportation des matières nucléaires.

Chaque échantillon se présentait sous la forme d'une capsule soudée en acier inoxydable, renfermant une pastille d'oxyde de plutonium, ayant pour masse en plutonium une quantité de 0,45 gramme environ (figure 1). Les différents lots étaient caractérisés par les abondances isotopiques - en atomes pour cent - suivantes :

Lots n°1	$^{238}\text{Pu}/\text{P} = 0,01$	$^{239}\text{Pu}/\text{P} = 94$	$^{240}\text{Pu}/\text{P} = 6$	$^{241}\text{Pu}/\text{P} = 0,2$
2	0,02	89	10	0,4
3	0,05	85	14	1,0
4	0,1	78	20	1,8
5	0,1	76	21	2,0
6	1,0	69	25	5,4
7	1,3	65	27	6,8

They were asked to describe the main characteristics of their instrumentation and the measurement set-up. They had to give information of the methods applied, on peak analysis and efficiency calibration procedures. They also had to report the values of the nuclear data used (half-lives and X- or gamma-ray emission probabilities).

2.2 - Description of the plutonium samples

Sets of seven identical plutonium samples were prepared and dispatched by AERE Harwell of the UKAEA. The sample containers were designed about ten years ago and the preparation of the samples began not long after, but the final dispatch was delayed due to obstacles encountered in the export of nuclear materials.

Each sample is in the form of a welded stainless steel capsule containing a pressed plutonium oxide pellet - Figure 1. The weight of the plutonium in each sample is about 0.45 g. The batches are characterized by the following isotopic abundances in atoms %:

Batch n°1	$^{238}\text{Pu}/\text{P} = 0.01$	$^{239}\text{Pu}/\text{P} = 94$	$^{240}\text{Pu}/\text{P} = 6$	$^{241}\text{Pu}/\text{P} = 0.2$
2	0.02	89	10	0.4
3	0.05	85	14	1.0
4	0.1	78	20	1.8
5	0.1	76	21	2.0
6	1.0	69	25	5.4
7	1.3	65	27	6.8

2.3 - Participation

Neuf laboratoires ont participé à l'exercice de mesures par spectrométrie X/gamma PIDIE. Un numéro de code arbitraire a été attribué à chaque participant ; un indice 1, 2 ou 3 a été ajouté au numéro de code pour ceux qui ont envoyé plusieurs jeux de résultats.

La liste des participants est la suivante :

- ANMCO HARWELL (Royaume Uni)
G.M. WELLS.
- CEC/CBNM GEEL et SCK/CEN MOL (Belgique)
B. CARCHON - P. FETTWEIS - W. NAGEL - F. QUIK.
- CEC/JRC ISPRA (Italie)
G. CARAVATI - D. D'ADAMO
- ECN/PETTEN (Pays-Bas)
J.K. AALDIJK - R.J.S. HARRY
- ENEA CASACCIA (Italie)
P. CRESTI - C. VICINI
- SAL - IAEA (Vienne)
J. PARUS - W. RAAB
- LANL (U.S.A.)
M. CHAVEZ - J.L. PARKER - T.E. SAMPSON
- LLNL (U.S.A.)
R. GUNNINK - W.D. RUHTER
- DAMRI/LMRI (France)
B. CHAUVENET - J. MOREL - M. VALLEE.

2.3 - Participation

Nine laboratories participated in the PIDIE exercise for X/gamma-spectrometry measurements. An arbitrary code number was allocated to each participant ; a subscript - 1, 2 or 3 was added to the code number of the laboratories which sent in several questionnaires.

The laboratories that participated are:

- ANMCO HARWELL (United Kingdom)
G.M. WELLS.

- CEC/CBNM GEEL and SCK/CEN MOL (Belgium)
B. CARCHON - P. FETTWEIS - W. NAGEL - F. QUIK.

- CEC/JRC ISPRA (Italy)
G. CARAVATI - D. D'ADAMO

- ECN/PETTEN (The Netherlands)
J.K. AALDIJK - R.J.S. HARRY

- ENEA CASACCIA (Italy)
P. CRESTI - C. VICINI

- SAL - IAEA (Vienna)
J. PARUS - W. RAAB

- LANL (U.S.A.)
M. CHAVEZ - J.L. PARKER - T.E. SAMPSON

- LLNL (U.S.A.)
R. GUNNINK - W.D. RUHTER

- DAMRI/LMRI (France)
B. CHAUVENET - J. MOREL - M. VALLEE.

3 - INSTRUMENTATION ET CONDITIONS DE MESURE

3.1 - Instrumentation

Les principales caractéristiques de l'instrumentation et des conditions de mesure adoptées pour l'exercice PIDIE sont mentionnées dans le tableau 1. Un seul participant a utilisé un détecteur coaxial au germanium de type n, les autres ont fait appel à de petits détecteurs au germanium intrinsèque à structure planaire, de volume compris entre 1,4 et 10 cm³, afin d'avoir la meilleure résolution possible en énergie.

Les préamplificateurs, faisant partie intégrante de l'ensemble cryogénique, étaient dotés d'une contre-réaction de type résistif ou de type opto-électronique. Dans la plupart des cas, un module de réjection des empilements était incorporé ou connecté à l'amplificateur.

Les systèmes d'analyse comportaient des convertisseurs analogiques-numériques de type Wilkinson (80 à 450 MHz) ou de type temps mort fixe (3 à 10 µs). Une mémoire d'au moins 4000 canaux était nécessaire pour pouvoir travailler avec une sensibilité de 0,1 keV/canal environ.

3.2 - Conditions de mesure

La composition isotopique des échantillons de plutonium est déterminée avec une précision qui est largement tributaire d'une bonne résolution en énergie, et, pour des taux de comptage élevés, d'une bonne collection des charges. L'incertitude, qui affecte les résultats de dosage du plutonium, peut être doublée lorsque la résolution à 208 keV passe de 0,7 à 1,0 keV. Il est en général conseillé d'opérer avec un rapport expérimental FWTM (largeur au dixième de la hauteur du pic considéré)/FWHM (largeur à mi-hauteur) inférieur à 1,9 et aussi proche que possible de la valeur théorique de 1,82 obtenue pour un pic de forme gaussienne. L'un des participants a suggéré d'employer la grandeur FWFH (largeur au cinquantième de la hauteur) pour mieux apprécier les défauts de traînée à la base des pics.

3 - INSTRUMENTATION AND MEASUREMENT CONDITIONS

3.1 - Instrumentation

The principal characteristics of the instrumentation and measurement conditions used for the PIDIE exercise are given in Table 1. One participant used a coaxial n-type germanium detector, the others used small-sized planar intrinsic germanium detectors, 1.4 to 10 cm³ in volume, which have the best energy resolution.

Preamplifiers are usually an integral part of the cryogenic assembly. They were equipped with an opto-electronic or resistor feedback. In most cases, a pile-up rejector module was included in, or connected to, the amplifiers.

The analysis equipment was provided with Wilkinson-type (80 à 450 MHz) or constant dead-time type (3 to 10 μ s) analog-to-digital converters. A minimum 4000-channel memory was required to ensure a channel width of about 0.1 keV/channel.

3.2 - Measurement conditions

A precise determination of the isotopic composition of plutonium samples is strongly dependent on good energy resolution and, at high counting rates, on good charge collection. The error made in plutonium parameters can be doubled when the resolution at 208 keV goes from 0.7 to 1.0 keV. It is generally recommended to have the experimental ratio FWTM (Full Width at Tenth Maximum)/FWHM (Full Width at Half Maximum) lower than 1.9, as close as possible to the theoretical value of 1.82 obtained for a Gaussian peak shape. One participant suggested that FWHM data (Full Width at Fiftieth Maximum) are more appropriate to estimate the detector tailing.

Le tableau 1 montre que la plupart des détecteurs utilisés dans le cadre de l'action PIDIE avaient, à bas taux de comptage, une résolution meilleure que 600 eV à 125 keV et 700 eV à 208 keV. En raison de la faible quantité de plutonium contenue dans les échantillons, il n'a pas été possible de tester l'instrumentation à des taux de comptage élevés, la valeur maximale relevée ayant été d'environ 9000 coups par seconde. Cependant, pour un exercice ultérieur, il serait intéressant d'effectuer des mesures dans ce domaine.

Les éléments caractérisant les conditions de mesure sont indiqués dans les tableaux 2 à 11. La plupart des participants ont utilisé un écran de cadmium d'une épaisseur de 1 à 2 mm, et parfois un écran supplémentaire en cuivre ; un seul participant a utilisé un collimateur.

Sauf pour la chaîne munie d'un détecteur coaxial, les échantillons ont été mesurés près de la fenêtre du détecteur, la distance source-détecteur ayant été généralement inférieure à 4 centimètres. Dans ces conditions, les taux de comptage étaient faibles, quelques kilo-coups par seconde.

Pour avoir une précision suffisante sur le dosage de ^{240}Pu après corrections, des durées de comptage de plusieurs heures ont été nécessaires pour les procédés fondés sur l'analyse du spectre gamma dans la région 120 à 500 keV, alors que des durées de quelques minutes ont suffi pour les récentes méthodes utilisant principalement la région des raies XK du spectre.

From Table 1, it can be seen that most of the PIDIE detectors had an energy resolution better than 600 eV at 125 keV and 700 eV at 208 keV at low counting rates. Because of the small quantity of plutonium in the samples, it was impossible to test the instrumentation at high counting rates, the highest value was about 9000 counts per second. It would be interesting to test this factor in a future exercise.

The details of the measurement set-ups are given in Tables 2 to 11. Most participants used a cadmium absorber, 1 to 2 millimeters thick, and, sometimes, a copper absorber in addition. Only one participant used a collimator.

Except for the coaxial detector arrangement, the samples were measured close to the detector window, generally, with a source-to-detector distance below 4 centimeters. Under these conditions, the counting rates were low, a few kilo-counts per second.

In order to have a sufficient precision on the determination of ^{240}Pu after corrections, measurement times of several hours were required for the computer programs using the 120 to 500 keV region, but only few minutes were necessary for recent computer programs using mainly the XK-ray region.

4 - DETERMINATION DE LA COMPOSITION ISOTOPIQUE

4.1 - Principes généraux

A l'exception du ^{242}Pu , tous les isotopes du plutonium sont émetteurs gamma, par conséquent, le mode opératoire utilisé pour déterminer la composition isotopique du plutonium repose sur la mesure du rayonnement X et gamma émis par ces isotopes, et deux autres produits de décroissance : l' ^{237}U et l' ^{241}Am . En combinant les informations de différents pics du spectre X et gamma avec les probabilités d'émission correspondantes et les périodes radioactives, il est possible de connaître les rapports isotopiques, cela après un étalonnage en efficacité relative sans faire appel à des étalons extérieurs [5,6].

Deux types de procédés ont été testés lors de l'intercomparaison PIDIE. Le premier et le plus récent [3] repose, pour l'essentiel, sur l'analyse des raies X et gamma dans la région 94 à 104 keV (figure 2), complétée par l'analyse de quelques raies gamma présentes dans d'autres régions : pour ce faire, l'étalonnage en efficacité relative doit tenir compte de la discontinuité K du plutonium observée à 121 keV. Le deuxième type regroupe la plupart des méthodes [4 à 10] qui exploitent le spectre dans la région 120 à 500 keV (figures 3 et 4). Une des principales sources d'incertitude est liée à la détermination de l'abondance du ^{240}Pu d'après le rayonnement gamma émis à 160 keV, peu intense et perturbé par les interférences.

Pour différencier chaque ensemble de résultats selon le procédé ou les données nucléaires employés, une lettre a été affectée à chacun d'eux. La lettre A a été attribuée aux méthodes du premier type et les lettres B, C, D à celles du deuxième type : B lorsque les résultats reposent sur l'utilisation des données nucléaires UCRL-52139 [11] ou UCRL-53506 [4], C lorsque des références pilotes CBNM ont été employées [7] et D dans le cas d'autres données nucléaires. Plusieurs participants ont utilisé un même code avec des données similaires (5.A, 6.3.A et 8.2.A ; 6.1.B et 8.1.B). D'autres ont utilisé un même code plusieurs fois, mais avec des données nucléaires différentes (3.B et 3.C ; 12.B, 12.C et 12.D ; 13 B et 13.D).

4 - ISOTOPIC COMPOSITION DETERMINATION

4.1 - General principles

Except for ^{242}Pu , all the isotopes of plutonium emit gamma rays; for this reason, the general procedure used for determining the plutonium isotopic composition is based on the measurement of the X and gamma radiations emitted by these isotopes and, also, by the two other decay products, ^{237}U and ^{241}Am . Combining the information from different peaks in the gamma spectrum with their specific X- or gamma-ray emission probabilities and the half-lives, the atom ratios can be determined after a relative efficiency calibration without the use of external standards [5,6].

Two types of methods were used in the PIDIE exercise. The first and most recent type [3] exploits the X and gamma-rays in the 94 to 104 keV region, see Figure 2, with some gamma rays from other regions; the efficiency calibration has to take account of the discontinuity at the K-absorption edge at 121 keV. The second type is related to other methods [4 to 10], where the data processing mainly uses several peaks in the 120 to 500 keV region, see Figures 3 and 4. One of the main sources of uncertainty is the determination of the ^{240}Pu abundance by its sole gamma ray at 160 keV, which is not very intense and is perturbed by the interferences.

A letter was assigned to each method to characterize each set of final results. The results. The letter A is for the methods of the first type, the letters B, C, and D for the methods of the second type, B when UCRL-52139 [11] or UCRL-53506 [4] nuclear data were used, C when CBNM pilot reference samples [7] were used to get corrected parameters and D when other nuclear data were used. Several participants used the same analysis code with similar nuclear data (5.A, 6.3.A and 8.2.A ; 6.1.B and 8.1.B). Some participants used the same analysis code several times, but with different nuclear data (3.B and 3.C ; 12.B, 12.C and 12.D ; 13 B and 13.D).

4.2 - Analyse des pics

Pour évaluer la surface des pics, les participants ont fait appel à différentes méthodes. Celles-ci peuvent être classées comme suit :

- les événements de la région du pic sont totalisés après déduction du fond, ce dernier étant décrit par une fonction échelon lissée ; cette procédure est combinée avec un simple ajustement de courbe de Gauss,
- une fonction gaussienne est ajustée, de manière élaborée, aux données du pic corrigées d'un fond décrit par une fonction échelon lissée,
- une fonction gaussienne, modifiée avec des fonctions traînes pour pallier les défauts d'asymétrie observés du côté basses énergies du pic, est utilisée ; le fond est représenté par une droite, une fonction échelon lissée ou par d'autres fonctions,
- une fonction Voigt (Lorentzienne convoluée avec une gaussienne), comprenant une ou deux composantes de traîne, est employée pour décrire les pics X et une courbe de Gauss, incluant des paramètres d'asymétrie similaires, est utilisée pour les pics gamma.

Concernant la déconvolution des multiplets, d'une manière générale, les hauteurs des pics ont été des paramètres laissés libres lors de l'ajustement en vue de leur détermination selon le principe des moindres carrés. Pour faciliter le calcul, les paramètres de position et de forme (largeur et termes d'asymétrie), déduits d'un étalonnage préalable et réalisé avec quelques pics intenses sélectionnés, ont été imposés dans le processus.

4.3 - Étalonnage en efficacité relative

L'étalonnage en efficacité relative est une étape importante. Il s'effectue au moyen des surfaces de quelques pics sélectionnés du ^{239}Pu et/ou du ^{241}Pu avec l' ^{237}U . Ces surfaces, divisées par les probabilités d'émission photonique correspondantes, sont ajustées à un modèle selon la méthode des moindres carrés. Les fonctions employées ont été les suivantes :

$$a) - \ln \epsilon_f = \sum_{j=0}^n a_j \cdot (\ln E)^j$$

où ϵ_f est l'efficacité relative et E est l'énergie ; généralement, le degré n de la relation est égal à 3.

4.2 - Peak analysis

The participants used different methods to evaluate peak areas. They can be classified as follows:

- the counts in the peak region are summed after subtraction of the background described by a smoothed step function; this procedure is combined with a Gaussian function fitting,
- a Gaussian function is fitted to the peak region after subtraction of the background described by a smoothed step function,
- a Gaussian function, modified by tailing functions on the low-energy side of the gamma peak, is used; the background is described by a linear function, by a smoothed step function or by other different functions,
- a Voigt function (Lorentzian line convoluted with a Gaussian function), including one or two tailing components, is used for describing X-peak shapes in the low-energy region, and a Gaussian function with tailing parameters is used for gamma-peaks.

For multiplet deconvolution, the peak height was generally the only free parameter in the fitting by a least-squares procedure. The peak position and the peak shape parameters (peak width, asymmetry parameter) are imposed in the fitting process after a calibration using selected intense peaks.

4.3 - Relative efficiency calibration

The relative efficiency calibration is an important step in the measurement process; it is carried out using selected peak areas of ^{239}Pu and/or ^{241}Pu with ^{237}U . The peak areas, divided by photon emission probabilities, are fitted by a least-squares method. The applied functions were of the following types:

$$\text{a) - } \ln \epsilon_f = \sum_{j=0}^n a_j (\ln E)^j$$

where ϵ_f is the relative detection efficiency and E is the energy; generally, the degree n of the relation ship is equal to 3.

$$b) - \ln \epsilon f = \alpha + \beta \cdot \delta + \sum_{j=1}^2 a_j \cdot (\ln E)^j$$

$$c) - \ln \epsilon f = \alpha_0 + \frac{\alpha_1}{E^2} + \sum_{j=1}^3 a_j \cdot (\ln E)^j + \beta_1 \cdot \delta_1 + \beta_2 \cdot \delta_2$$

$$d) - \ln \epsilon f = \sum_{j=-1}^3 a_j \cdot (E)^{-j} + \beta \cdot \delta$$

Remarque : pour les modèles d'efficacité relative b, c et d, les paramètres β , β_1 et β_2 normalisent les données du ^{239}Pu à celles du ^{241}Pu en équilibre avec l' ^{237}U ; les valeurs δ , δ_1 et δ_2 sont égales à 1 ou 0.

$$e) - \epsilon f = \sum_{j=0}^4 a_j / E^j$$

f) Pour une autre méthode, les valeurs de l'efficacité relative sont combinées avec plusieurs variables dans l'équation suivante :

$$A_j = \sum_{k=1}^{3/4} (B_{j,k} \cdot X_k) \cdot (e^{-\mu_{j,\text{Cd}} \cdot \text{CD}} \cdot (1 - e^{-\mu_{j,\text{Pu}} \cdot \text{PU}})) \cdot \frac{\mu_{j,\text{Pu}} \cdot \text{PU}}{\mu_{j,\text{Pu}}} \cdot \epsilon f(E_j) \cdot (1 + bE_j + cE_j^2)$$

où A_j est la surface du pic d'indice j , $B_{j,k}$ est la probabilité d'émission photonique correspondante pour le composant k , X_k est l'activité de ce dernier, $\epsilon f(E_j)$ est l'efficacité de détection estimée à l'énergie E_j et obtenue à partir d'une courbe standard.

Les paramètres μ_j^{Cd} et μ_j^{Pu} sont les coefficients d'atténuation massiques du cadmium et du plutonium et CD et PU sont les épaisseurs massiques de l'écran de cadmium et de l'échantillon de plutonium. Les variables inconnues X_k , PU, b, c sont déterminées à partir d'un processus itératif par les moindres carrés, prenant en compte la discontinuité K de la réponse du détecteur imputable à la présence du plutonium.

$$b) - \ln \epsilon f = \alpha + \beta \cdot \delta + \sum_{j=1}^2 a_j \cdot (\ln E)^j$$

$$c) - \ln \epsilon f = \alpha_0 + \frac{\alpha_1}{E^2} + \sum_{j=1}^3 a_j \cdot (\ln E)^j + \beta_1 \cdot \delta_1 + \beta_2 \cdot \delta_2$$

$$d) - \ln \epsilon f = \sum_{j=-1}^3 a_j \cdot (E)^{-j} + \beta \cdot \delta$$

Remark: For the relative efficiency functions b, c et d, the parameters β , or β_1 and β_2 , normalize the ^{239}Pu data points to the $^{241}\text{Pu}/^{237}\text{U}$ data points and δ , δ_1 and δ_2 equal 1 or 0.

$$e) - \epsilon f = \sum_{j=0}^4 a_j / E^j$$

f) For another method, the relative efficiency values are combined with several variables in the following equation:

$$A_j = \sum_{k=1}^{3/4} (B_{j,k} \cdot X_k) \cdot (e^{-\mu_j \cdot \text{Cd}})^{-\mu_j \cdot \text{CD}} \cdot \frac{(1 - e^{-\mu_j \cdot \text{Pu}})^{\mu_j \cdot \text{PU}}}{\mu_j \cdot \text{Pu}} \cdot \epsilon f(E_j) \cdot (1 + bE_j + cE_j^2)$$

where A_j is the area of peak j, $B_{j,k}$ is the photon emission probability of peak j and component k, X_k is the activity of component k, $\epsilon f(E_j)$ is the estimated detection efficiency at energy E_j obtained from a standard curve. Les variables μ_j^{Cd} and μ_j^{Pu} are the mass attenuation coefficients for cadmium and plutonium, CD and PU are the masses of the cadmium absorber and the plutonium sample. The unknown variables X_k , Pu, b, and c are determined by an iterative least-squares fitting taking account of the discontinuity in the detector response at the K-absorption edge of plutonium.

4.4 - Données nucléaires

a) Périodes radioactives :

Les valeurs de périodes radioactives exprimées en années et utilisées par les participants se récapitulent ainsi :

Isotope	Réf. 3,4,11	Réf. 12	Réf. 13	Autres valeurs	
^{238}Pu	87,79	87,7	87,74	87,7	87,74
^{239}Pu	24082	24110	24119	24120	24119
^{240}Pu	6537	6563	6564	6540	6550
^{241}Pu	14,35	14,35	14,348	14,40	14,35
^{242}Pu		373500	376300		376300
^{241}Am	434,1	432,7	433,6	433	432,6

Colonne 1 : pour 2.B, 6.1B, 8.1B, 17.B

Colonne 2 : pour 3.B ou C, 13B ou D

Colonne 3 : pour 4.B, 6.2B

Colonne 4 : pour 5.A, 6.3A ou 8.2A

Colonne 5 : pour 12.B, C ou D

b) Probabilités d'émission photonique :

La plupart des participants ont adopté les données UCRL-52139 [11] ou UCRL-53506 [4]. Certains d'entre eux ont obtenu d'autres valeurs de rapports isotopiques du plutonium sur la base d'autres données nucléaires [12,14].

4.5 - Utilisations d'étalons pilotes CBNM

Afin d'examiner les améliorations dues à l'emploi d'échantillons pilotes de référence, le questionnaire suggérait aux participants possédant de tels échantillons de transmettre une série complémentaire de résultats obtenus après utilisation des échantillons pilotes en tant qu'étalons. Deux laboratoires ont ainsi fourni de tels résultats ; les facteurs correctifs, déduits de l'étalonnage avec ces échantillons, ont été appliquées soit aux valeurs isotopiques individuelles pour un laboratoire, soit aux valeurs définitives

4.4 - Nuclear data

a) Half-lives:

The half-lives in years used by the participants are shown as follows:

Isotope	Réf. 3,4,11	Réf. 12	Réf. 13	Other values	
^{238}Pu	87.79	87.7	87.74	87.7	87.74
^{239}Pu	24082	24110	24119	24120	24119
^{240}Pu	6537	6563	6564	6540	6550
^{241}Pu	14.35	14.35	14.348	14.40	14.35
^{242}Pu		373500	376300		376300
^{241}Am	434.1	432.7	433.6	433	432.6

Column 1: for 2.B, 6.1B, 8.1B, 17.B

Column 2: for 3.B or C, 13B or D

Column 3: for 4.B, 6.2B

Column 4: for 5.A, 6.3A or 8.2A

Column 5: for 12.B, C or D.

b) Photon emission probabilities:

Most participants adopted the UCRL-52139 [11] or UCRL-53506 [4] data. Some participants recalculated the plutonium isotope ratios on the basis of other nuclear data [12,14].

4.5 - Use of CBNM pilot reference samples

To examine possible improvements using reference samples, the questionnaire suggested that participants possessing CBNM pilot reference samples for Plutonium Isotopic Composition give any additional results obtained by using them as standards. Two laboratories gave such results. They calculated correction factors obtained from a calibration

pour l'autre. Un troisième laboratoire a effectué des mesures de composition isotopique sur ces étalons, puis a comparé les résultats obtenus aux valeurs certifiées. Les écarts observés ayant été considérés comme négligeables, aucune correction n'a alors été apportée aux résultats des échantillons du test PIDIE.

5 - REGLES D'EVALUATION

5.1 - Préliminaire

Pour le $j^{\text{ème}}$ résultat du $j^{\text{ème}}$ composant donné par le participant k , les principales incertitudes affectant la détermination de la composition isotopique proviennent de possibles incertitudes aléatoires $S_{i,j,k}$ = est ($\sigma_{i,j,k}$) dues à la statistique de comptage et à la détermination de l'efficacité, et d'incertitudes systématiques $U_{i,j,k}$ liées à la détermination de la surface d'un pic, à la détermination de l'efficacité, à l'évaluation des facteurs de correction et à l'utilisation des données nucléaires. L'incertitude finale affectant un résultat peut s'écrire :

$$\Delta x_{i,j,k} = [(S_{i,j,k})^2 + (U_{i,j,k})^2]^{1/2}$$

D'une manière générale, les participants ont utilisé différentes méthodes pour évaluer les incertitudes, par exemple :

- le laboratoire 3 a transmis des résultats et incertitudes correspondantes pour des mesures effectuées dans différentes conditions,
- les laboratoires 4 et 5 n'ont fait état que des résultats définitifs et incertitudes associées,
- les participants 6.1 et 6.2 ont mentionné des incertitudes déduites du procédé et des écarts-type (sur une détermination) évaluées d'après des mesures répétées. Pour le participant 5.3, chaque résultat partiel indiqué était la moyenne de 24 mesures, l'erreur correspondante était l'écart-type.
- les laboratoires 8, 12, 13 et 17 ont indiqué des résultats partiels et les incertitudes correspondantes déduites du procédé. Pour le laboratoire 13, les incertitudes mentionnées semblent surestimées puisqu'il a été pris en compte les incertitudes affectant les probabilités d'émission gamma et non pas les incertitudes affectant les rapports d'émission.

with these samples, one applied to individual isotopic ratios and the other to final results. A third laboratory communicated only the results of measurements made on these standards compared to certified values but corrections were not applied to the PIDIE, as the biases were considered negligible.

5 - EVALUATION RULES

5.1 - Preliminaries

For the j^{th} result of the j^{th} component given by participant k , the major uncertainties which occur in the isotopic composition arise from possible random uncertainties $S_{i,j,k} = \text{est}(\sigma_{i,j,k})$, due to counting statistics and to the efficiency determination and from systematic uncertainties $U_{i,j,k}$ associated with the peak area determination method, the efficiency determination, the evaluation of correction factors and the use of nuclear data. The final uncertainty associated with a result can be written:

$$\Delta x_{i,j,k} = [(S_{i,j,k})^2 + (U_{i,j,k})^2]^{1/2}$$

In the general case, the participants used different methods for evaluating the uncertainties, for example:

- laboratory 3 gave results and uncertainties obtained by measurements under different conditions,
- laboratories 4 and 5 quoted only the final results and corresponding uncertainties,
- participants 6.1 and 6.2 indicated the uncertainties predicted by the process and the standard deviation of a single result calculated from repeated measurements. For participant 6.3, each partial result was the average of results from 24 measurements; the corresponding error was the standard deviation of a single result.
- laboratories 8, 12, 13 and 17 mentioned the partial results and the corresponding uncertainties given by the procedure. The uncertainties given by laboratory 13 seem over-estimated because the gamma-emission probability uncertainties were taken into account instead of only the corresponding ratio uncertainties.

5.2 - Compilation des résultats individuels

Pour le participant k mentionnant le $i^{\text{ème}}$ résultat partiel, désigné par $x_{i,j,k}$ pour le $j^{\text{ème}}$ composant, et une incertitude correspondante désignée par $\Delta x_{i,j,k}$, le résultat final retenu est donné par la moyenne pondérée $X_{j,k}$ estimée comme suit :

$$X_{j,k} = \frac{\sum_{i=1}^m \frac{\Delta x_{i,j,k}}{(\Delta x_{i,j,k})^2}}{\sum_{i=1}^m \frac{1}{(\Delta x_{i,j,k})^2}}$$

(m : nombre de mesures)

Une correction de normalisation mineure a été appliquée lorsque la somme $^{238}\text{Pu}/\text{P} + ^{239}\text{Pu}/\text{P} + ^{240}\text{Pu}/\text{P} + ^{241}\text{Pu}/\text{P}$ était différente de 1.00 (100 %).

Le nombre d'expériences étant limité [3] et les participants ayant évalué les incertitudes selon des règles différentes, l'attribution d'incertitudes finales comparables n'a pas été évidente. A condition de considérer les composantes systématiques de l'incertitude comme prépondérantes, il a été possible d'admettre que la répétition des mesures dans des conditions identiques n'améliorait pas les incertitudes de manière significative. Aussi, l'incertitude affectant chaque résultat final a été prise comme étant la valeur maximale entre d'une part, la moyenne des incertitudes des résultats partiels annoncées par les participants, et d'autre part, l'écart-type sur la moyenne pondérée :

$$\Delta X_{j,k} = S_{X_{j,k}} \text{ or } M_{X_{j,k}}$$

où l'écart-type sur la moyenne pondérée s'écrit :

$$S_{X_{j,k}} = \left[\frac{\sum_{i=1}^m \frac{(x_{i,j,k} - X_{j,k})^2}{(\Delta x_{i,j,k})^2}}{m-1} \cdot \frac{m}{\sum_{i=1}^m \frac{1}{(\Delta x_{i,j,k})^2}} \right]^{1/2}$$

et la valeur moyenne des incertitudes est :

$$M_{X_{j,k}} = \sum_{i=1}^m \frac{\Delta x_{i,j,k}}{m}$$

5.2 - Compilation of individual results

For participant k giving an i^{th} partial result designated $x_{i,j,k}$ for the j^{th} component, and a corresponding uncertainty designated $\Delta x_{i,j,k}$, the final result adopted is given by the weighted mean $X_{j,k}$ estimated as follows:

$$X_{j,k} = \frac{\sum_{i=1}^m \frac{\Delta x_{i,j,k}}{(\Delta x_{i,j,k})^2}}{\sum_{i=1}^m \frac{1}{(\Delta x_{i,j,k})^2}}$$

(m : number of experiments)

A minor correction for normalization was applied when the sum $^{238}\text{Pu}/\text{P} + ^{239}\text{Pu}/\text{P} + ^{240}\text{Pu}/\text{P} + ^{241}\text{Pu}/\text{P}$ was different from 1.00 (100%).

Because the number of experiments was limited [3] and the participants evaluated their uncertainties following different rules, the attribution of comparable final uncertainties was not obvious. Provided that systematic components were considered predominant in most cases, it was considered that repeated measurements under identical conditions could not improve the uncertainties significantly. Then, the uncertainty in the final result was taken as the maximum value of the mean of the uncertainties in the partial results quoted by the laboratories, and the standard deviation of the weighted mean:

$$\Delta X_{j,k} = S_{X_{j,k}} \text{ or } M_{X_{j,k}}$$

where the standard deviation on weighted mean is given by:

$$S_{X_{j,k}} = \left[\frac{1}{m-1} \cdot \frac{\sum_{i=1}^m \frac{(x_{i,j,k} - X_{j,k})^2}{(\Delta x_{i,j,k})^2}}{\sum_{i=1}^m \frac{1}{(\Delta x_{i,j,k})^2}} \right]^{1/2}$$

and the mean value of the uncertainties is:

$$M_{X_{j,k}} = \frac{\sum_{i=1}^m \frac{\Delta x_{i,j,k}}{m}}$$

5.3 - Résultats définitifs

Considérant les résultats de chaque participant, il a été possible de calculer, pour le j^{ème} composant, les valeurs moyennes et incertitudes suivantes :

- moyenne simple (non pondérée)

$$\bar{X}_j = \sum_{k=1}^n \frac{X_{j,k}}{n} \quad (n = \text{nombre de résultats})$$

- écart-type relatif sur une mesure (à partir de la moyenne simple)

$$S_{X_j} = \frac{1}{\bar{X}_j} \cdot \left[\sum_{k=1}^n \frac{(X_{j,k} - \bar{X}_j)^2}{(n-1)} \right]^{1/2}$$

- écart-type relatif sur la moyenne simple :

$$S_{\bar{X}_j} = \frac{S_{X_j}}{\sqrt{n}}$$

- moyenne des incertitudes relatives :

$$M_{X_j} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{k=1}^n \frac{\Delta X_{j,k}}{X_{j,k}}$$

où $\Delta X_{j,k}$ est l'incertitude affectant le résultat $X_{j,k}$.

- moyenne pondérée :

$$\bar{X}_{\pi j} = \frac{\sum_{k=1}^n \frac{X_{j,k}}{(\Delta X_{j,k})^2}}{\sum_{k=1}^n \frac{1}{(\Delta X_{j,k})^2}}$$

5.3 - Final results

Taking account of the results of each participant, it was possible to calculate the mean values and various uncertainties for the j^{th} component defined as follows:

- unweighted mean:

$$\bar{X}_j = \frac{\sum_{k=1}^n X_{j,k}}{n} \quad (n = \text{number of results})$$

- relative standard deviation of a result (from the unweighted mean):

$$S_{X_j} = \frac{1}{\bar{X}_j} \cdot \left[\sum_{k=1}^n \frac{(X_{j,k} - \bar{X}_j)^2}{(n-1)} \right]^{1/2}$$

- relative standard deviation of the mean (from the unweighted mean):

$$S_{\bar{X}_j} = \frac{S_{X_j}}{\sqrt{n}}$$

- average of relative uncertainties:

$$M_{X_j} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{k=1}^n \frac{\Delta X_{j,k}}{X_{j,k}}$$

where $\Delta X_{j,k}$ is the uncertainty in the result $X_{j,k}$.

- weighted mean:

$$\bar{X}_{\text{mj}} = \frac{\sum_{k=1}^n \frac{X_{j,k}}{(\Delta X_{j,k})^2}}{\sum_{k=1}^n \frac{1}{(\Delta X_{j,k})^2}}$$

- écart-type relatif sur la moyenne pondérée (appelé aussi erreur externe) :

$$S_{\bar{X}_{\pi j}} = \left[\frac{1}{(n-1) \cdot \bar{X}_{\pi j}} \cdot \frac{\sum_{k=1}^n \frac{(\bar{X}_{\pi j} - X_{j,k})^2}{(\Delta X_{j,k})^2}}{\sum_{k=1}^n \frac{1}{(\Delta X_{j,k})^2}} \right]^{1/2}$$

- relative standard deviation of the weighted mean (also called the external error):

$$S_{\bar{X}_{nj}} = \left[\frac{1}{(n-1) \cdot \bar{X}_{nj}} \cdot \frac{\sum_{k=1}^n \frac{(\bar{X}_{nj} - X_{j,k})^2}{(\Delta X_{j,k})^2}}{\sum_{k=1}^n \frac{1}{(\Delta X_{j,k})^2}} \right]^{1/2}$$

6 - RESULTATS

6.1 - Résultats individuels du ^{238}Pu au ^{241}Pu obtenus par spectrométrie X-gamma (résultats N.D.A.)

Les résultats NDA (Non-Destructive Analysis) concernant la détermination des rapports isotopiques $^{238}\text{Pu}/\text{P}$, $^{239}\text{Pu}/\text{P}$, $^{240}\text{Pu}/\text{P}$, $^{241}\text{Pu}/\text{P}$, $^{241}\text{Am}/\text{P}$ des échantillons n°1 à n°7, récapitulés dans les tableaux 2 à 8, sont présentés de la manière suivante :

- moyennes simples et pondérées calculées pour l'ensemble des résultats obtenus par spectrométrie X-gamma, avec indication des écarts-type relatifs sur une mesure, sur la moyenne simple, sur la moyenne pondérée (voir chapitre 5.3),
- moyennes simples calculées pour l'ensemble des résultats obtenus par spectrométrie de masse, avec mention des écarts-type relatifs sur une mesure et la moyenne simple (voir Annexe A),
- rapports des moyennes simples des résultats d'ensemble de spectrométrie X-gamma à celles des résultats de spectrométrie de masse avec indication des écarts-type relatifs correspondants.

Les figures 5 à 11 permettent de comparer visuellement les résultats individuels obtenus par spectrométrie X-gamma aux moyennes simples. Le regroupement de ces résultats selon le type de procédé employé fait apparaître une moindre dispersion dans le cas des procédés reposant essentiellement sur l'analyse du spectre de plutonium dans la région des raies X (procédé A).

En considérant l'ensemble des résultats de spectrométrie X-gamma, la dispersion observée en fonction des abondances isotopiques est illustrée par la figure 12 ; les rapports isotopiques ont ainsi été déterminés avec une précision d'environ :

- 1 à 4 % pour Pu $^{238}/\text{P}$
- 0,2 à 1,4 % pour Pu $^{239}/\text{P}$
- 2 à 3,5 % pour Pu $^{240}/\text{P}$
- 1 à 2 % pour Pu $^{241}/\text{P}$
- 3 à 5 % pour Am $^{241}/\text{P}$

6 - RESULTS

6.1 - ^{238}Pu to ^{241}Pu individual results by X- and gamma-ray spectrometry (N.D.A. results)

The NDA (Non-Destructive Analysis) results for the determination of $^{238}\text{Pu/P}$, $^{239}\text{Pu/P}$, $^{240}\text{Pu/P}$, $^{241}\text{Pu/P}$, $^{241}\text{Am/P}$ of samples 1 to 7 are listed in Tables 2 to 8 with the following data:

- individual results and, in brackets, their relative uncertainties,
- for all X- and gamma-ray spectrometry results, the unweighted and weighted means with the relative standard deviations on a single result and on the mean (cf. section 5.3),
- from mass-spectrometry measurements, the values of the unweighted means with the corresponding relative standard deviations on a single result and on the mean (cf. Appendix A),
- the ratios of X/gamma-ray spectrometry unweighted means and mass spectrometry unweighted means and the corresponding relative standard deviations.

A comparison of individual results with the unweighted means is illustrated by Figures 5 to 11; the correlation of individual results with the type of method used indicates smaller dispersion for the methods using mainly the X-ray region (type A).

The dispersion obtained in all the X/gamma-ray spectrometry results versus atom ratios is shown in Figure 12; isotopic ratios were determined with a standard deviation on a single result of about:

1	to 4%	for $^{238}\text{Pu/P}$
0.2	to 1.4%	for $^{239}\text{Pu/P}$
2	to 3.5%	for $^{240}\text{Pu/P}$
1	à 2%	for $^{241}\text{Pu/P}$
3	à 5%	for $^{241}\text{Am/P}$

6.2 - Résultats individuels du ^{238}Pu au ^{241}Pu obtenus par spectrométrie X-gamma en utilisant un écran additionnel

Il était demandé aux participants de mesurer les échantillons n°2 et n°6 en utilisant un écran additionnel afin de réduire l'efficacité de détection aux basses énergies. Les résultats de cette expérience sont donnés dans le tableau 9 pour l'échantillon n°2 et le tableau 10 pour l'échantillon n°6 ; les résultats mentionnés au tableau 11 ont été remis par deux participants qui ont mesuré l'échantillon n°7 au lieu de l'échantillon n°6 comme indiqué dans le questionnaire.

6.3 - Résultats provenant d'analyses destructives (résultats D.A.)

Afin de comparer les résultats obtenus par spectrométrie X-gamma avec d'autres valeurs obtenues différemment, plusieurs fragments d'échantillons PIDIE ont été distribués à plusieurs laboratoires en vue d'analyses destructives - D.A. - (Destructive Analysis). La spectrométrie de masse a été utilisée pour déterminer l'abondance de tous les isotopes du plutonium, à l'exception du ^{238}Pu ; des comptages alpha et une autre technique ont été employés pour le dosage du ^{238}Pu et de l' ^{241}Am .

Sept jeux de résultats, collectés récemment [15], sont présentés dans les tableaux A1 à A7 de l'Annexe A. Pour le ^{239}Pu et le ^{240}Pu , la dispersion observée sur le dosage est très faible, d'environ 0,01 à 0,02 % pour le rapport $^{239}\text{Pu}/\text{P}$ et 0,05 à 0,1 % pour le rapport $^{240}\text{Pu}/\text{P}$. Pour les autres nucléides, ce paramètre est plus important, 0,2 à 2 % pour le rapport $^{241}\text{Pu}/\text{P}$, 0,6 à 4 % pour le rapport $^{238}\text{Pu}/\text{P}$ et 1 à 4 % pour le rapport $^{241}\text{Am}/\text{P}$.

6.4 - Détermination du ^{242}Pu par corrélations isotopiques

La spectrométrie X/gamma ne permet de mesurer directement le ^{242}Pu . Cependant, le questionnaire comportait une question optionnelle à l'intention des participants qui accepteraient de donner la teneur de cet isotope à partir de corrélations isotopiques. Neuf résultats, provenant de six laboratoires, ont été reçus - tableau 12 - ; une dispersion assez grande (écart-type relatif d'environ 20 %) peut ainsi être observée. Ce défaut peut s'expliquer en partie par les différentes manières d'apprécier les corrections de décroissance à partir du rapport $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$. Par ailleurs, pour les faibles abondances, un biais notable par rapport aux valeurs d'analyses destructives est observé (environ 100 % pour des abondances en ^{242}Pu inférieures à 0,2 %) ; ce biais peut être en partie dû à la

6.2 - ^{238}Pu to ^{241}Pu individual results from X/gamma-ray spectrometry using an additional absorber

The participants were asked to measure samples n°2 and n°6 with an additional absorber, thus, reducing the efficiency for low-energy peaks. The results of this experiment are given in Table 9 for sample n°2 and in Table 10 for sample n°6; the results mentioned in Table 11 were submitted by two participants who measured sample n°7 instead of sample n°6 as suggested in the questionnaire.

6.3 - Results from destructive analyses (DA results)

In order to compare the X/gamma-ray spectrometry results with other values obtained by other measurement technique after the NDA-intercomparison, special small PIDIE samples were distributed to a number of laboratories for destructive analysis - DA - Mass spectrometry was used to determine the abundances of all the plutonium isotopes except ^{238}Pu and alpha counting or another technique was used for the measurement of ^{238}Pu and ^{241}Am abundances.

The results of seven sets of PIDIE destructive analyses collected recently [15] are given in Appendix A, Tables A1 to A7. For ^{239}Pu and ^{240}Pu abundances, the standard deviation of a single result is very low, about 0.01 to 0.02% for the $^{239}\text{Pu}/\text{P}$ ratio and 0.05 to 0.1% for the $^{240}\text{Pu}/\text{P}$ ratio. For other nuclides the same parameter is larger, 0.2 to 2% for the $^{241}\text{Pu}/\text{P}$ ratio, 0.6 to 4% for $^{238}\text{Pu}/\text{P}$ ratio and 1 to 4% for $^{241}\text{Am}/\text{P}$ ratio.

6.4 - Measurement of ^{242}Pu by isotopic correlations

^{242}Pu cannot be measured by X/gamma-ray spectrometry. The questionnaire included an optional question for participants willing to give a result for ^{242}Pu using isotopic correlations. Nine results from six laboratories were received - Table 12. Rather large dispersion can be observed (around 20% relative standard deviation) for the results. This may be explained by the different ways of dealing with the $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ ratio correction. A significant bias relative to the destructive analysis results may be noted for low abundances (around 100% bias below 0.2% ^{242}Pu abundance) that could be partially explained by the unknown history and mixed origins of the samples. But

méconnaissance de l'historique des échantillons et au fait qu'ils proviennent de diverses origines. Néanmoins, cette situation pourrait être représentative des situations futures qui seront rencontrées avec les mélanges, comme par exemple, les combustibles recyclés. Aussi, l'une des principales conclusions de l'exercice (bien que l'étude des corrélations n'ait pas été l'objet principal de l'action PIDIE) pourrait être la nécessité de rechercher de nouvelles formules de corrélation.

6.5 - Résultats définitifs

a) Comparaison des résultats définitifs :

Le tableau 13 et les figures 13 à 19 font apparaître les paramètres suivants :

- moyennes simples, écarts-type relatifs sur une mesure et sur la moyenne, pour l'ensemble des résultats NDA et DA, puis pour l'ensemble des résultats regroupés selon chaque type de méthodes A,B,C,D. Compte-tenu du nombre trop limité (-2-) de résultats transmis pour les procédés C et D, les écarts-type relatifs, non significatifs, ne sont pas transcrits,
- moyennes pondérées et écarts-type relatifs correspondants (erreurs externes) calculés pour l'ensemble des résultats NDA,
- moyennes des incertitudes relatives calculées pour l'ensemble des résultats NDA et pour les résultats spécifiques à chaque type de méthodes A,B,C,D.

b) Commentaires :

Les résultats présentés précédemment donnent lieu à plusieurs remarques :

- reposant sur des objectifs définis il y a dix ans environ, l'exercice PIDIE n'a pas permis de bien prendre en compte les avancées technologiques récentes. Ainsi, les nouveaux procédés ont été testés en nombre trop limité pour permettre la mise en évidence de leurs éventuels biais ;
- beaucoup de paramètres : conditions expérimentales, appareillage, données nucléaires, régions d'intérêt, procédures,...se sont avérés différents d'un participant à l'autre, si bien que les conclusions ne peuvent porter que sur des généralités. Maintenant, des conclusions plus précises seraient possibles en définissant préalablement un protocole, tenant compte des récentes évolutions et limitant le nombre de paramètres influençant les mesures ;

this could be representative of future actual materials, such as re-cycled fuels. A possible conclusion of this exercise (which was not the main purpose of PIDIE) is the need to study new isotopic correlation formulas.

6.5 - Final results

a) Comparison of final results:

The following parameters are given in Table 13 and Figures 13 à 19:

- unweighted means with the corresponding relative standard deviations of a single result and of the mean for all DA and NDA results, and results from the X/gamma-ray spectrometry methods A,B,C and D. Because the number of results available for methods C and D is limited, i.e., 2, the relative standard deviation is not significant and is not, therefore, given.
- weighted means for all NDA results with, in the Table, the corresponding relative standard deviations of the mean (external errors) ;
- average of the relative uncertainties for all NDA results and for the methods A,B,C and D, separately.

b) Comments:

Several observations can be made with respect to the above results:

- The PIDIE exercise is based on aims which were defined about ten years ago, therefore it is not designed to take account of recent technologies at best. New analysis techniques which are tested are utilized by a number of participants which is too limited for studying a possible specific bias.
- Many parameters, such as measuring conditions, equipment, nuclear data, range of energies, softwares, differ from one participant to another, so that conclusions relate to general points only. Nowadays, it could be possible to obtain more specific conclusions, by limiting the number of influencing parameters and taking account of recent developments.

- d'une manière générale, l'écart-type sur une mesure est du même ordre de grandeur que la valeur moyenne des incertitudes relatives, ce qui signifie que les participants ont plutôt bien évalué ces dernières ;
- excepté l' ^{241}Am pour lequel le biais est analysé par la suite (section d), les résultats NDA sont, dans l'ensemble, en accord avec les résultats DA. Toutefois, ces derniers sont caractérisés par une très faible dispersion des rapports $^{239}\text{Pu}/\text{P}$, $^{240}\text{Pu}/\text{P}$ et $^{241}\text{Pu}/\text{P}$;
- concernant le dosage du ^{240}Pu qui s'avère délicat par spectrométrie gamma, les résultats d'ensemble sont en accord avec les valeurs D.A. Cependant, un examen plus fin montre que les résultats obtenus avec les procédés de type B sont, en moyenne, plus faibles que les valeurs DA alors que le contraire se produit avec les résultats des procédés de type A. En contre-partie, les résultats du dosage du ^{239}Pu avec les procédés de type B sont plutôt supérieurs aux valeurs DA.
- par rapport aux autres méthodes de spectrométrie gamma, un progrès notable est constaté avec les méthodes de type A. Les résultats obtenus, en accord avec les valeurs DA, se caractérisent par des indicateurs d'incertitude : écart-type relatif sur une mesure, moyenne des incertitudes relatives, nettement inférieurs à ceux obtenus avec les autres méthodes. De plus, les méthodes de type A apparaissent plus précises que les méthodes destructives pour le ^{238}Pu , l' ^{241}Am et parfois le ^{241}Pu ;
- apportant des progrès significatifs, l'analyse du spectre du plutonium dans la région des raies XK apparaît cependant limitée en présence d'écrans. Aussi, les procédés traditionnels s'avèrent être le complément indispensable dans certaines applications comme la mesure des déchets nucléaires ou des rétentions. D'ores et déjà, d'autres expériences portant sur des épaisseurs différentes d'écrans, des faibles quantités,... semblent souhaitables.

c) Corrections basées sur l'utilisation des références pilotes CBNM :

Le nombre de participants ayant utilisé les étalons pilotes CBNM étant trop limité, il n'est pas possible de tirer des conclusions générales. Cependant, d'après les tableaux 2 à 8 et les figures 5 à 11, on relève que les écarts entre les résultats NDA et les valeurs DA ont été réduites d'un facteur 3 pour le ^{239}Pu , le ^{240}Pu et le ^{241}Pu .

- In general, the relative standard deviation for a single result is of the same order of magnitude as the average of the relative uncertainties, which means, on average, that the latter have been correctly estimated.
- Except for ^{241}Am where the bias is analyzed below (section d) the NDA results are, overall, in agreement with the DA results. The latter are, nevertheless, characterized by a very small scatter of the $^{239}\text{Pu}/\text{P}$, $^{240}\text{Pu}/\text{P}$ and $^{241}\text{Pu}/\text{P}$ ratios.
- With respect to the determination of ^{240}Pu , which turns out to be rather difficult by gamma-ray spectrometry, the results are in agreement with the DA values. Nevertheless, it can be shown after a careful analysis that the results obtained with the type B methods, are, on average, lower than the DA values, while the results obtained with type A methods are slightly higher. As a consequence, the results of the determination of ^{239}Pu from the type B methods are somewhat higher than the DA values.
- With respect to the other methods based on gamma-ray spectrometry, significant progress can be seen with the type A methods. The results obtained, in agreement with the DA values, are characterized by uncertainty levels, relative standard deviation of a single result and average of the relative uncertainties, definitely lower than those obtained with the other methods. In addition, for the determination of ^{238}Pu , ^{241}Am and occasionally, for the determination of ^{241}Pu , these type A methods appear to be more precise than the destructive methods.
- The analysis of Pu spectra in the KX-ray energy region, which provides significant improvements, appears to be limited in the presence of screens. Then, usual methods turn out to be an indispensable complement in some applications, such as the measurement of nuclear wastes of hold-up. Other experiments relating to screen thicknesses and low quantities measurements, seem worth while.

c) Corrections based on the use of the CBNM pilot reference samples:

As too few participants used the CBNM pilot reference samples, it is not possible to draw general conclusions. However, from Tables 2 to 8 and Figures 5 to 11, it can be seen that the differences between the NDA results and the DA results were reduced by a factor of 3 for ^{239}Pu , ^{240}Pu and ^{241}Pu .

d) Dosage de l' ^{241}Am :

La figure 20 permet de comparer l'ensemble des résultats obtenus par spectrométrie X/gamma à l'ensemble des résultats d'analyses destructives. Les rapports des valeurs moyennes NDA aux valeurs moyennes DA sont ainsi représentés avec les écarts-type résultant de la combinaison quadratique des écarts-type élémentaires. Une différence significative apparaît alors dans le cas du dosage de l' ^{241}Am ; à faibles concentrations, les résultats du dosage obtenus par spectrométrie X/gamma sont plus faibles que ceux obtenus par analyses destructives, l'inverse est vrai aux concentrations élevées.

En se référant à la figure 21, on note que ce biais s'observe de façon similaire avec les méthodes de type A, celles de type B et celles de la spectrométrie de masse faisant appel à la technique du double traceur. Cette constatation laisse supposer qu'une erreur systématique puisse apparaître au niveau des comptages alpha.

e) L'exercice PERLA :

A cause du grand nombre de facteurs différents d'un participant à l'autre : appareillage de spectrométrie X/gamma, conditions expérimentales, procédés, données nucléaires, l'action PIDIE n'a abouti qu'à des conclusions générales. En figeant certains de ces facteurs : même appareillage, mêmes conditions de mesure, mêmes échantillons, l'exercice PERLA, lancé plus récemment [16], se révèle être un prolongement utile puisqu'il permet de valider principalement les procédures et d'analyser leurs biais spécifiques.

7 - CONCLUSION

A partir de cette comparaison, il ressort qu'aucun biais important n'a été observé entre les valeurs obtenues par la spectrométrie X/gamma et les valeurs issues d'analyses destructives, exception faite pour le ^{242}Pu et l' ^{241}Am .

Des progrès sensibles en précision et en exactitude ont été constatés, grâce à la fois, à de meilleurs équipements et à des procédés plus élaborés, comme ceux fondés sur l'analyse du spectre X et gamma du plutonium dans la région des basses énergies.

d) Determination of ^{241}Am abundance:

The ensemble of the results by X/gamma-ray spectrometry can be compared with the ensemble of those obtained by destructive analyses in Figure 20. The ratios of the average NDA values to average DA values are thus represented with standard deviations resulting from the quadratic summing of the primary standard deviations of the average values. A significant difference can then be seen for the determination of ^{241}Am : at low concentrations, the values determined by X/gamma-ray spectrometry are lower than those obtained from destructive analyses, on the other hand, the converse holds at high concentrations.

From Figure 21, it can be seen that this bias is also observed with the type A methods; in addition, it is similar to the bias observed between the results obtained by mass spectrometry using the double spike technique and those obtained by alpha-counting. This observation implies that there is a possible systematic error in the alpha-counting.

e) The PERLA exercise:

Due to large number of factors influencing the measurement, X/gamma-ray spectrometry equipment, different experimental conditions, methods, and nuclear data, PIDIE cannot be expected to yield general conclusions. By fixing some factors: same equipment, same measurement conditions, same samples, the PERLA exercise, which was initiated more recently [16], is turning out to be a valuable follow-up since it makes it possible to validate, in principle, the methods and to analyze their specific biases.

7 - CONCLUSION

From this comparison, it is evident that there is no significant bias between the values given by X/gamma-ray spectrometry and the values provided by destructive analyses with the exceptions of ^{242}Pu and ^{241}Am .

Appreciable progress in both precision and accuracy have been recorded, due to a combination of better equipment and improved procedures, as, for example, the method based on the analysis of the plutonium X/gamma-ray spectrum in the low-energy region.

Analysés et caractérisés par des méthodes différentes et indépendantes, les échantillons PIDIE peuvent également se révéler être l'outil appréciable de validation des procédés de détermination de la composition isotopique du plutonium.

Ainsi, l'exercice PIDIE a permis de mieux comprendre les possibilités offertes par la spectrométrie X et gamma pour le contrôle des matières nucléaires.

REMERCIEMENTS

Les auteurs désirent remercier tous les participants qui ont trouvé les moyens nécessaires pour apporter leur contribution à cet exercice. PIDIE représente l'aboutissement du travail de nombreuses personnes, et, en particulier, de l'initiative de Mr. A.S. Adamson et de sa contribution, ainsi que de celle de Mr. H. Ottmar pour la définition de PIDIE et l'obtention des matières nucléaires destinées à constituer les échantillons. Nous désirons rendre un hommage particulier aux efforts constamment déployés par feu Mr. F.J.G. Rogers au cours de la longue période qui a précédé l'expédition des échantillons aux participants. Ce travail a été mené à bien par ses successeurs, Mr. G.M. Wells et Mr. J.A. Cookson, qui ont également effectué des analyses destructives complémentaires. Nous remercions aussi Mr. S. Guardini et Mr. R.J.S. Harry pour leurs utiles conseils.

Characterized by different and independent analytical methods, the PIDIE samples can turn out to be a very useful means for verifying the gamma-spectrometric analysis of the isotopic composition of plutonium.

Thus, PIDIE has made it possible to understand better the possibilities offered by X and gamma-ray spectrometry for the non-destructive monitoring of nuclear materials.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors wish to thank all the participants who found ways and means to make their contributions to this exercise. PIDIE is the result of the work of many people, in particular, the original initiative from Mr. A.S. Adamson and his contribution together with that of Mr. H. Ottmar in formulating PIDIE and obtaining the nuclear material for the samples. We wish to pay special tribute to the continued efforts of the late Mr. F.J.G. Rogers during the long period before the samples were dispatched to the participants. This work was completed by his successors, Mr. G.M. Wells and Mr. J.A. Cookson, who also evaluated the PIDIE D.A. results. Our thanks also go to Mr. S. Guardini and to Mr. R.J.S. Harry for their helpful advice.

REFERENCES

- [1] H. Ottmar; "Results from an Interlaboratory Exercise of the Determination of Plutonium Isotopic Ratios by Gamma Spectrometry, Report of the ESARDA Working Group on Techniques and Standards for Non-Destructive Analysis"; Kernforschungszentrum Karlsruhe, July 1981, KfK 3149, ESARDA 1/81.

- [2] J. Morel, B. Chauvenet; "Preliminary results of the PIDIE intercomparison exercise for the measurement of Pu isotopic composition"; Proc. 11th ann. symp. on safeguards and nucl. mat. mngmt., Luxembourg, 30 May - 1 June 1989, CEC JRC Ispra (1989), EUR 12193 EN, ESARDA 22, p. 503-508.

- [3] R. Gunnink; "MGA: A Gamma-Ray Spectrum Analysis Code for Determining Plutonium Isotopic Abundances"; September 1990, UCRL-LR-103220, Vol. 1 and Vol. 2 - ISPO N°317.

- [4] W.D. Ruhter; "A Portable Microcomputer for the Analysis of Plutonium Gamma-Ray Spectra"; May 1984, UCRL-53506, Vol. 1 ISPO N°209.

- [5] R.J.S. Harry, J.K. Aaldijk, J.P. Braak; "Gamma-spectrometric determination of isotopic composition without use of standards"; Proc. IAEA symp. on safeguarding nucl. mat., Vienna, 20-24 October 1975, Vol. II p.235, IAEA Vienna (1976).

- [6] T.N. Dragnev; "Intrinsic self-calibration of non-destructive gamma spectrometric measurements, determination of U, Pu and Am-241 isotopic ratios"; Journ. Radioan. Chem., 36 (1977), p. 491.

- [7] P. Fettweis, H. Meyer, F. Quik; "Improvement of isotopic composition measurements of plutonium by the use of calibration samples for gamma spectrometry"; Nuclear safeguards technology 1986, proc. symp. Vienna, 10-14 November 1986, IAEA Vienna 1987, p. 363-374.

- [8] J. Morel, M. Vallée, M. Etcheverry; "Détermination de la composition isotopique du plutonium par spectrométrie gamma, logiciel COMPOS"; Note Technique LPRI/90-269 (1990).

- [9] T.E. Sampson, G.W. Nelson, T.A. Kelley, "FRAM: A Versatile Code for Analyzing the Isotopic Composition of Plutonium from Gamma-Ray Pulse Height Spectra"; Los Alamos National Laboratory Report LA-11720-MS, (December 1989); "FRAM: A New, Versatile Gamma-Ray Spectrometry Code for Measuring the Isotopic Composition of Plutonium"; Institute of Nuclear Materials Management, 31st Annual Meeting, Los Angeles, (July 15-18, 1990).
- [10] C. Vicini, M. De Stephano, F.V. Frazzoli; "ENEA Plutonium Isotopic Composition"; Private Communication.
- [11] R. Gunnink, J.E. Evans, A.L. Prindle; "A re-evaluation of the gamma-ray energies and absolute branching intensities of ^{237}U , ^{238}U to ^{241}Pu and ^{241}Am "; UCRL-52139 (1976).
- [12] International Atomic Energy Agency, Vienna; "Decay data of the transactinium nuclides"; Technical Report N°261 (1986).
- [13] ANSI; "Plutonium Bearing Solids - Calibration Techniques for Calorimetric Assay"; ANSI-N-15.22 (1987).
- [14] P. Fettweis, F. Quik; "Some considerations on gamma branching ratios resulting from calibration runs performed with the help of PuO_2 reference samples of well-defined isotopic composition"; Proc. 9th ann. symp. on safeguards and nucl. mat. mngmt., London, UK, 12-14 May 1987, CEC JRC Ispra, p. 173-178.
- [15] J.A. Cookson; "1990 Re-evaluation of the PIDIE Destructive Analysis Results"; ANMCO (90) P.07A - ESARDA NDA WG Meeting, Petten March 1991.
- [16] S. Guardini, G. Guzzi, F. Mousty, S. Baumann, E. Kuhn, P. de Regge; "PERLA: Quality Control Provisions Applied in the Preparation and Characterization of Pu-Bearing Perla Standards"; Report EUR 13308 EN, 1990, CEC JRC Ispra.

TABLEAUX ET FIGURES

TABLES AND FIGURES

TABLEAU 1 - Exercice PIDIE - Conditions de mesure et appareillage.

TABLE 1 - PIDIE exercise: Instrumentation and measurement conditions.

Laboratory code number	Isotopic determination procedure	INSTRUMENTATION						MEASUREMENT CONDITIONS				
		Detector type	size (cm ² x cm)	Amplification		Analysis equipment		Channel width (keV/channel)	*FWHM (eV) at		*FWTM (eV) at	
				Preamplifier feedback type	Pulse shaping of amplifier	Analog to digital converter type	Stabilizer		129 keV	208 keV	129 keV	208 keV
2	B	HP Ge planar	30 x 10	Opto-electronic	2 μs	/	with	0.12	0.70			
3	B and C	HP Ge coax	17 x 3.3	R.C.	Gaussian, 6 μs	Wilkinson, 80 MHz	without	0.12	0.77	0.86		
4	B	HP Ge planar	20 x 10	R.C.	Gaussian, 2 μs	Fixed conversion time, 3 μs	without	0.11	0.55	0.68	1.20	1.24
5	A	HP Ge planar	50 x 1.3	R.C.	Gaussian, 6 μs	Wilkinson, 100 MHz	with	0.075	0.57	0.63	1.08	1.23
6	6(1)	HP Ge planar	20 x 1.0	/	Gaussian, 2 μs	Wilkinson, 400 MHz	without	0.20	0.67			
	6(2)	HP Ge planar	2.0 x 1.3	/	Triangular, 1 μs	Wilkinson, 450 MHz	with	0.10	0.54	0.67	(Note : FWHM more appropriate)	
	6(3)	HP Ge planar	50 x 1.3	R.C.	Gaussian, 3 μs	Wilkinson, 450 MHz	with	0.075	0.53	0.65	0.97	1.19
8	8(1)	HP Ge planar	5.0 x 2.0	R.C.	Gaussian, 2 μs	Wilkinson, 80 MHz	without	0.10	0.58	0.70	1.07	1.36
	8(2)	HP Ge planar	2.0 x 1.3	R.C.	Gaussian, 2 μs	Wilkinson, 80 MHz	with	0.075	0.52	0.64		
12	B, C, D	HP Ge planar	50 x 1.3	R.C.	Gaussian, 3 μs	Wilkinson, 100 MHz	/	0.05	0.59	0.72	1.08	1.32
13	B, D	HP Ge planar	3.0 x 1.0	Opto-electronic	Gaussian, 6 μs	Fixed conversion time, 10 μs	without	0.09	0.60	0.72	1.10	1.30
17	B	HP Ge planar	2.0 x 0.7	Opto-electronic	Gaussian, 2 μs	Fixed conversion time, 3 μs	without	0.10	0.56	0.67	1.02	1.23

TABLEAU 2 - Résultats pour l'échantillon n°1.

TABLE 2 - Results for sample n°1.

Laboratory code number	Method (type)	Number of experiments	Count duration (mn)	MEASUREMENT SET-UP					RESULTS AS ATOMIC RATIOS (%)									
				Count rate (kc s ⁻¹)	Source to detector distance (cm)	Absorber		Collimator	[P = sum of atoms of Pu 238, Pu 239, Pu 240, Pu 241]									
						type	thickness (mm)		²³⁸ Pu/P	²³⁹ Pu/P	²⁴⁰ Pu/P	²⁴¹ Pu/P	²⁴¹ Am/P					
2	B	3(*)	3 × 27 10 ²	0.9	zero	Cd Cu	2 0.5	Uncollimated	0.0103 (5.2 %)	93.97 (0.14 %)	5.828 (2.3 %)	0.1952 (0.57 %)	0.2328 (1.5 %)					
3	B	3	$\left\{ \begin{array}{l} 1 \times 37 10^3 \\ 1 \times 41 10^3 \\ 1 \times 15 10^3 \end{array} \right.$	1.1	10	Cd, Cu	10, 0.55	Uncollimated	0.01011 (1.8 %)	94.21 (1.0 %)	5.588 (2.3 %)	0.1990 (0.7 %)	0.2218 (1.4 %)					
	C			1.0		Cd, Cu	10, 1.0		0.01025 (2.0 %)	93.87 (0.8 %)	5.924 (2.6 %)	0.1993 (0.6 %)	0.2301 (1.6 %)					
4	B	3							0.0110 (1.6 %)	93.66 (0.2 %)	6.108 (1.9 %)	0.196 (1.8 %)	0.233 (4.3 %)					
5	A	1	1 × 51 10 ²	0.12	1	Cd	1.5	Uncollimated	0.0117 (5.1 %)	93.73 (0.1 %)	6.059 (1.2 %)	0.1963 (0.9 %)	0.2295 (0.8 %)					
6	B (1)	10	6 × 48 10 ²	2	0.2	Cd Cu	2.0 0.25	Uncollimated	0.01051 (4.8 %)	93.93 (0.17 %)	5.858 (2.9 %)	0.2001 (0.15 %)	0.2230 (0.17 %)					
	B (2)	6							0.01071 (3.0 %)	93.88 (0.08 %)	5.908 (0.23 %)	0.1987 (0.11 %)	0.2245 (0.38 %)					
	A (3)	3							0.8	30	Cd Cu	1.2 0.25	Uncollimated	0.0115 (1.6 %)	93.86 (0.06 %)	5.936 (0.36 %)	0.1988 (0.15 %)	0.2241 (0.28 %)
8	B (1)	3	3 × 33	3.9	0.2	Cd	1.5	Uncollimated	0.0110 (14 %)	93.89 (0.22 %)	6.094 (3.0 %)	0.2008 (0.5 %)	0.2237 (0.5 %)					
	A (2)	3	3 × 10	8.0	-	Cd	1.1	Uncollimated	0.0117 (4.0 %)	93.81 (0.05 %)	5.984 (0.7 %)	0.1987 (0.5 %)	0.2271 (0.5 %)					
12	B		$\left\{ \begin{array}{l} 11 \times 10^3 \end{array} \right.$	0.3	3.7	Cd	1.2	Pb collimator 3.0 cm × φ 1.1 cm distance to detector 0.17 cm	0.0102 (- 5 %)	94.17 (- 0.5 %)	5.824 (- 1.5 %)	0.191 (- 1 %)	0.202 (- 5 %)					
	C								0.0100 (")	93.93 (")	5.866 (")	0.198 (")	0.218 (")					
	D								0.0110 (")	93.84 (")	5.847 (")	0.197 (")	0.211 (")					
13	B	3	$\left\{ \begin{array}{l} 3 \times 83 10^2 \end{array} \right.$	1.8	2.0	Cd Cu	1.7 2.0	Uncollimated	0.01150 (9.2 %)	93.92 (0.3 %)	5.871 (5.0 %)	0.1978 (1.8 %)	0.2085 (2.8 %)					
	D								0.01158 (9.3 %)	93.35 (0.3 %)	6.434 (4.6 %)	0.2042 (1.7 %)	0.2062 (3.1 %)					
17	B	3	3 × 80	1.0	0.4	Cd Cu	2.0 1.0	Uncollimated	0.0138 (11 %)	94.02 (0.57 %)	5.774 (8.4 %)	0.1905 (0.93 %)	0.2130 (2.5 %)					
Compilation for γ-spectrometry results : Unweighted mean values \bar{X} : Relative standard deviations on a result $S_{\bar{X}}$, and on unweighted mean, $S_{\bar{X}}$: Weighted mean values X_{eff} : Relative standard deviations on weighted mean $S_{X_{\text{eff}}}$: Mass spectrometry values : Unweighted mean values \bar{X} : Relative standard deviations on a result $S_{\bar{X}}$, and on unweighted mean $S_{\bar{X}}$: Comparison of γ-spectrometry and mass spectrometry results : NDA/DA ratios from unweighted means : Relative standard deviations on ratio :									0.01105	93.873	5.919	0.1971	0.2204					
									6.5 %	2.1 %	0.21 %	0.050 %	3.4 %	0.84 %	1.7 %	0.43 %	4.4 %	1.1 %
									0.01078	93.838	5.917	0.1975	0.2237					
										1.4 %		0.022 %		0.22 %	0.24 %			
									0.01108	93.822	5.969	0.1977	0.2287					
									3.8 %	1.5 %	0.0089 %	0.0034 %	0.11 %	0.043 %	1.7 %	0.84 %	3.2 %	1.3 %
									0.999	1.000 ₅	0.992	0.997	0.984					
									2.6 %	0.050 %	0.84 %	0.77 %	1.7 %					

A : methods using mainly the X-ray region
 B : 120-500 keV region analysis procedures with UCRL-52139 or 53508 data
 C : 120-500 keV region analysis procedures after correction with CBNM Pu reference samples

D : 120-500 keV region analysis procedure with other data
 (*: each value is the result for three measurements)

TABLEAU 3 - Résultats pour l'échantillon n°2 (sans écran additionnel).

TABLE 3 - Results for sample n°2 (without additional absorber).

Laboratory code number	Method (type)	Number of experiments	Count duration (min)	MEASUREMENT SET-UP					RESULTS AS ATOMIC RATIOS (%)									
				Count rate (kc.s ⁻¹)	Source to detector distance (cm)	Absorber		Collimator	[P = sum of atoms of Pu 238, Pu 239, Pu 240, Pu 241]									
						type	thickness (mm)		238Pu/P	239Pu/P	240Pu/P	241Pu/P	241Am/P					
2	B	3(*)	3 x 2.7 10 ²	1.2	zero	Cd Cu	2.0 0.5	Uncollimated	0.0228 (4.0 %)	89.37 (0.19 %)	10.17 (1.7 %)	0.4369 (0.64 %)	0.2624 (1.4 %)					
3	B	3	$\left\{ \begin{array}{l} 1.3 \times 10^3 \\ 2.5 \times 10^3 \\ 4.0 \times 10^3 \end{array} \right.$	1.3	10	Cd, Cu	1.0, 0.55	Uncollimated	0.02187 (1.5 %)	89.97 (0.87 %)	9.56 (1.9 %)	0.4468 (0.8 %)	0.2515 (1.3 %)					
	0.9			Cd, Cu		1.6, 1.0	0.02251 (1.6 %)		89.42 (0.67 %)	10.11 (2.4 %)	0.4460 (0.5 %)	0.2619 (1.9 %)						
	1.2			Cd, Cu		1.0, 1.0												
4	B	3							0.0235 (2.6 %)	89.26 (0.2 %)	10.28 (2.0 %)	0.439 (1.9 %)	0.275 (4.2 %)					
5	A	1	1 x 5.8 10 ²	0.12	1	Cd	1.5	Uncollimated	0.0225 (3.0 %)	89.42 (0.15 %)	10.11 (0.8 %)	0.4465 (0.6 %)	0.268 (0.7 %)					
6	B	9	9 x 4.8 10 ²	1.5	1.0	Cd	2.0	Uncollimated	0.02220 (2.7 %)	89.50 (0.21 %)	10.03 (2.1 %)	0.4468 (0.21 %)	0.2553 (0.22 %)					
	B	9							Cu	0.25	0.02214 (2.1 %)	89.51 (0.09 %)	10.03 (0.79 %)	0.4382 (0.12 %)	0.2578 (0.47 %)			
	A	3							Cd	1.2	0.02236 (1.1 %)	89.42 (0.03 %)	10.11 (0.28 %)	0.4439 (0.19 %)	0.2598 (0.13 %)			
6	B	3	3 x 33	4.6	0.2	Cd	1.5	Uncollimated	0.02317 (8.5 %)	89.51 (0.3 %)	10.02 (2.2 %)	0.4452 (0.7 %)	0.2598 (1.4 %)					
	A	3	3 x 10	6.5	-	Cd	1.1	Uncollimated	0.02377 (2.3 %)	89.53 (0.6 %)	10.00 (0.5 %)	0.4407 (0.4 %)	0.2597 (0.5 %)					
12	B		$\left\{ \begin{array}{l} 1.1 \times 10^3 \end{array} \right.$	0.33	3.7	Cd	1.5	Pb collimator 3.0 cm x ϕ 1.1 cm distance to detector 0.17 cm	0.023 (- 5 %)	90.06 (- 0.5 %)	9.48 (- 1.5 %)	0.432 (- 1 %)	0.224 (- 5 %)					
	C									0.024 (")	89.83 (")	9.71 (")	0.436 (")	0.241 (")				
	D									0.024 (")	89.74 (")	9.79 (")	0.441 (")	0.236 (")				
13	B	3	$\left\{ \begin{array}{l} 3 \times 6.3 10^2 \end{array} \right.$	0.7	3.0	Cd	1.7	Uncollimated	0.02361 (6.6 %)	89.85 (0.57 %)	9.66 (5.1 %)	0.4471 (1.9 %)	0.2483 (3.3 %)					
	D									0.02437 (8.7 %)	89.28 (0.57 %)	10.23 (4.9 %)	0.4617 (1.9 %)	0.2445 (3.5 %)				
17	B	3	3 x 60	1.2	0.4	Cd Cu	2.0 1.0	Uncollimated	0.0248 (9.2 %)	89.36 (0.40 %)	10.17 (3.5 %)	0.4425 (1.2 %)	0.2355 (2.3 %)					
Compilation for γ-spectrometry results :																		
Unweighted mean values \bar{x} :									0.0232	89.552	9.980	0.4431	0.2522					
Relative standard deviations on a result S_{x_i} , and on unweighted mean, $S_{\bar{x}}$:									3.8 %	0.86 %	0.067 %	2.3 %	0.59 %	1.5 %	0.38 %	5.3 %	1.3	
Weighted mean values \bar{x}_w :									0.0225	89.431	10.051	0.4413	0.2567					
Relative standard deviations on weighted mean $S_{\bar{x}_w}$:										0.68 %	0.017 %		0.34 %	0.22 %	0.25 %			
Mass-spectrometry values :																		
Unweighted mean values \bar{x} :									0.0227	89.463	10.071	0.4428	0.2633					
Relative standard deviations on a result S_{x_i} , and on unweighted mean $S_{\bar{x}}$:									3.1 %	1.2 %	0.010%	0.0036%	0.066 %	0.033 %	0.52 %	0.20 %	1.2 %	0.49 %
Comparison of γ-spectrometry and mass-spectrometry results :																		
NDA/DA ratios (from unweighted means) :									1.022	1.001	0.991	1.001	0.958					
Relative standard deviations on ratio :									1.5 %	0.067 %	0.59 %	0.43 %	1.4 %					

A : methods using mainly the X-ray region

B : 120-500 keV region analysis procedures with UCRL-52139 or 53506 data

C : 120-500 keV region analysis procedures after correction with CBNM Pu reference samples

D : 120-500 keV region analysis procedure with other data

[* : each value is the result for three measurements]

TABLEAU 4 - Résultats pour l'échantillon n°3.

TABLE 4 - Results for sample n°3.

Laboratory code number	Method (type)	Number of experiments	Count duration (mn)	MEASUREMENT SET-UP					RESULTS AS ATOMIC RATIOS (%)									
				Count rate (kc s ⁻¹)	Source to detector distance (cm)	Absorber		Collimator	[P = sum of atoms of Pu 238, Pu 239, Pu 240, Pu 241]									
						type	thickness (mm)		²³⁸ Pu/P	²³⁹ Pu/P	²⁴⁰ Pu/P	²⁴¹ Pu/P	²⁴¹ Am/P					
2	B	3(*)	3 x 1.8 10 ²	1.6	zero	Cd Cu	2 0.5	Uncollimated	0.0467 (1.7 %)	84.99 (0.31 %)	13.99 (1.6 %)	0.972 (0.56 %)	0.613 (0.83 %)					
3	B	3	1.3 x 10 ³ 2.6 x 10 ³ 5.4 x 10 ³	2.0	10	Cd, Cu	1.0, 0.55	Uncollimated	0.0460 (1.1 %)	85.31 (0.83 %)	13.85 (2.1 %)	0.998 (0.6 %)	0.604 (1.9 %)					
	1.8			10	Cd, Cu	1.0, 1.0	0.0471 (1.4 %)		84.60 (0.5 %)	14.37 (2.4 %)	0.992 (0.4 %)	0.613 (3.1 %)						
	0.6			20	Cd, Cu	1.0, 1.0												
4	B	3							0.0482 (5.0 %)	84.55 (0.3 %)	14.42 (3.9 %)	0.982 (3.7 %)	0.598 (4.1 %)					
5	A	1	1 x 6.1 10 ²	0.12	1	Cd	1.5	Uncollimated	0.0475 (2.2 %)	84.76 (0.1 %)	14.20 (0.6 %)	0.994 (0.6 %)	0.620 (0.8 %)					
6	B(1)	6	6 x 3.3 10 ²	1.8	1	Cd Cu	2 0.25	Uncollimated	0.0482 (1.8 %)	84.71 (0.25 %)	14.25 (1.8 %)	0.990 (0.26 %)	0.611 (0.33 %)					
	B(2)								0.0467 (1.6 %)	84.95 (0.16 %)	14.03 (0.6 %)	0.970 (0.18 %)	0.615 (0.40 %)					
	A(3)								0.0484 (0.8 %)	84.76 (0.04 %)	14.16 (0.25 %)	0.992 (0.19 %)	0.612 (0.23 %)					
8	B(1)	3	3 x 33	3.9	1.0	Cd	1.5	Uncollimated	0.0480 (5.4 %)	84.76 (0.3 %)	14.17 (2.0 %)	0.987 (0.83 %)	0.635 (1.4 %)					
	A(2)	3	3 x 10	8.0	-	Cd	1.5	Uncollimated	0.0483 (2.3 %)	84.82 (0.27 %)	14.13 (0.7 %)	0.984 (0.5 %)	0.619 (0.6 %)					
12	B	3	1.1 x 10 ³	0.7	3.7	Cd	1.5	Pb collimator 3.0 cm x φ 1.1 cm distance to detector 0.17 cm	0.047 (- 5 %)	85.34 (- 0.5 %)	13.63 (- 1.5 %)	0.986 (- 1 %)	0.557 (- 5 %)					
	C								0.049 (")	84.61 (")	14.16 (")	0.988 (")	0.590 (")					
	D								0.049 (")	84.99 (")	13.97 (")	0.991 (")	0.581 (")					
13	B	3	3 x 6.3 10 ²	1.0	3.0	Cd Cu	1.7 2.0	Uncollimated	0.0489 (6.0 %)	85.26 (0.84 %)	13.66 (4.1 %)	0.997 (1.9 %)	0.624 (2.6 %)					
	D								0.0466 (6.1 %)	84.50 (0.66 %)	14.43 (3.9 %)	1.002 (1.9 %)	0.617 (2.7 %)					
17	B	3	3 x 60	1.7	0.4	Cd Cu	2 1.0	Uncollimated	0.0490 (3.7 %)	83.67 (0.48 %)	15.10 (2.7 %)	0.988 (1.9 %)	0.590 (1.4 %)					
Compilation for γ-spectrometry results : Unweighted mean values \bar{X} : Relative standard deviations on a result S_{X_i} , and on unweighted mean, $S_{\bar{X}}$: Weighted mean values \bar{X}_P : Relative standard deviations on weighted mean $S_{\bar{X}_P}$: Mass-spectrometry values : Unweighted mean values \bar{X} : Relative standard deviations on a result S_{X_i} , and on unweighted mean $S_{\bar{X}}$: Comparison of γ-spectrometry and mass-spectrometry results : NDA/DA ratios (from unweighted means) : Relative standard deviations on ratio :									0.0477	84.814	14.148	0.9883	0.6082					
									2.4 %	0.80 %	0.42 %	0.10 %	2.5 %	0.63 %	0.66 %	0.22 %	3.2 %	0.79 %
									0.0473	84.784	14.153	0.9835	0.6130					
										0.55 %		0.036 %		0.23 %		0.27 %	0.21 %	
									0.0475	84.835	14.128	0.9900	0.6249					
									1.0 %	0.40 %	0.011 %	0.0041 %	0.049 %	0.018 %	0.48 %	0.18 %	2.9 %	1.2 %
									1.004	1.000	1.001	0.998	0.970					
									0.72 %		0.10 %		0.63 %		0.28 %		1.4 %	

A : methods using mainly the X-ray region

B : 120-500 keV region analysis procedures with UCRL-52139 or 53506 data

C : 120-500 keV region analysis procedures after correction with CBNM Pu reference samples

D : 120-500 keV region analysis procedure with other data

(*: each value is the result for three measurements)

TABLEAU 5 - Résultats pour l'échantillon n°4.

TABLE 5 - Results for sample n°4.

Laboratory code number	Method (type)	Number of experiments	Count duration (mn)	MEASUREMENT SET-UP					RESULTS AS ATOMIC RATIOS (%)									
				Count rate (kc s ⁻¹)	Source to detector distance (cm)	Absorber		Collimator	[P = sum of atoms of Pu 238, Pu 239, Pu 240, Pu 241]									
						type	thickness (mm)		²³⁸ Pu/P	²³⁹ Pu/P	²⁴⁰ Pu/P	²⁴¹ Pu/P	²⁴¹ Am/P					
2	B	3(*)	3 x 1.8 10 ²	2.8	zero	Cd Cu	2 0.5	Uncollimated	0.1073 (1.4 %)	78.05 (0.38 %)	20.05 (1.5 %)	1.784 (0.71 %)	1.578 (0.85 %)					
3	B	3	$\left\{ \begin{array}{l} 1 \times 1.3 \cdot 10^3 \\ 1 \times 4.2 \cdot 10^3 \\ 1 \times 3.0 \cdot 10^3 \end{array} \right.$	$\left\{ \begin{array}{l} 2.2 \\ 1.0 \\ 1.0 \end{array} \right.$	10	Cd, Cu Cd, Cu Cd, Cu	$\left\{ \begin{array}{l} 1.6, 0.55 \\ 1.0, 1.0 \\ 1.6, 1.0 \end{array} \right.$	Uncollimated	0.1071 (1.0 %)	79.13 (0.73 %)	18.82 (2.3 %)	1.857 (0.57 %)	1.583 (1.4 %)					
	0.1063 (1.3 %)								78.22 (0.73 %)	19.64 (2.7 %)	1.836 (0.60 %)	1.621 (2.1 %)						
4	B	3				Cu	0.25		0.110 (1.0 %)	77.84 (0.3 %)	20.22 (1.3 %)	1.830 (1.1 %)	1.534 (1.0 %)					
8	A	1	1 x 6.4	0.12	1	Cd	1.5	Uncollimated	0.1105 (1.2 %)	78.24 (0.16 %)	19.82 (0.8 %)	1.8295 (0.5 %)	1.582 (0.5 %)					
8	B	15	7 x 2.4 10 ²	2.8	1	Cd Cu	$\left\{ \begin{array}{l} 2.0 \\ 0.25 \end{array} \right.$	Uncollimated	0.1077 (1.1 %)	78.13 (0.34 %)	19.94 (1.7 %)	1.823 (0.42 %)	1.581 (0.54 %)					
	0.1077 (1.1 %)	78.64 (0.34 %)							19.48 (0.84 %)	1.791 (0.35 %)	1.588 (0.53 %)							
	0.1120 (0.81 %)	78.05 (0.66 %)							19.99 (0.28 %)	1.849 (0.22 %)	1.580 (0.19 %)							
8	A	3	3 x 4.0 10 ²	2.3	3.0	Cd Cu	1.2 0.2	Uncollimated	0.1120 (0.81 %)	78.05 (0.66 %)	19.99 (0.28 %)	1.849 (0.22 %)	1.580 (0.19 %)					
8	B	3	3 x 33	3.9	1.0	Cd	1.5	Uncollimated	0.1102 (3.0 %)	78.15 (0.4 %)	19.89 (1.5 %)	1.853 (0.8 %)	1.602 (0.7 %)					
	A	3	3 x 10	8.8	-	Cd	1.5	Uncollimated	0.1088 (1.5 %)	78.38 (0.18 %)	19.71 (0.7 %)	1.828 (0.53 %)	1.570 (0.55 %)					
12	B		$\left\{ \begin{array}{l} 1.1 \times 10^3 \end{array} \right.$	1.7	3.75	Cd	1.5	Pb collimator 3.0 cm x ϕ 1.1 cm distance to detector 0.17 cm	0.107 (~ 5 %)	78.91 (~ 0.5 %)	19.15 (~ 1.5 %)	1.831 (~ 1 %)	1.432 (~ 5 %)					
	0.108 (")								77.81 (")	20.28 (")	1.820 (")	1.488 (")						
	0.111 (")								78.48 (")	19.57 (")	1.820 (")	1.484 (")						
13	B	3	$\left\{ \begin{array}{l} 3 \times 8.3 \cdot 10^2 \end{array} \right.$	1.7	3.0	Cd Cu	$\left\{ \begin{array}{l} 1.7 \\ 2.0 \end{array} \right.$	Uncollimated	0.1084 (3.8 %)	78.74 (0.77 %)	19.31 (3.1 %)	1.842 (2.0 %)	1.627 (2.4 %)					
	0.1093 (4.0 %)								78.10 (0.80 %)	19.90 (3.0 %)	1.881 (2.0 %)	1.812 (2.4 %)						
17	B	3	3 x 80	2.8	0.4	Cd Cu	2 1	Uncollimated	0.1097 (3.3 %)	77.78 (0.80 %)	20.31 (2.5 %)	1.818 (1.3 %)	1.543 (0.89 %)					
Compilation for γ-spectrometry results : Unweighted mean values \bar{X} : Relative standard deviations on a result S_{X_i} , and on unweighted mean, $S_{\bar{X}}$: Weighted mean values \bar{X}_w : Relative standard deviations on weighted mean $S_{X_{w_i}}$: Mass-spectrometry values : Unweighted mean values \bar{X} : Relative standard deviations on a result S_{X_i} , and on unweighted mean $S_{\bar{X}}$: Comparison of γ-spectrometry and mass-spectrometry results : NDA/DA ratios (from unweighted means) : Relative standard deviations on ratio :									0.1091	78.289	19.771	1.831	1.580					
									1.4 %	(0.34 %)	0.51 %	0.13 %	2.0 %	0.50 %	1.2 %	0.31 %	3.4 %	0.85 %
									0.1092	78.256	19.889	1.831	1.575					
									(0.41 %)	0.068 %	0.29 %	0.32 %	0.25 %					
									0.1088	78.237	19.818	1.837	1.573					
									1.2 %	(0.45 %)	0.017%	0.0065%	0.048 %	0.018 %	0.29 %	0.11 %	2.0 %	0.83 %
									0.995	1.001	0.998	0.997	0.992					
									0.56 %	0.13 %	0.50 %	0.33 %	1.2 %					

A : methods using mainly the X-ray region
 B : 120-500 keV region analysis procedures with UCRL-52139 or 53508 data
 C : 120-500 keV region analysis procedures after correction with CBNM Pu reference samples

D : 120-500 keV region analysis procedure with other data
 [* : each value is the result for three measurements]

74

60

TABLEAU 6 - Résultats pour l'échantillon n°5.

TABLE 6 - Results for sample n°5.

Laboratory code number	Method (type)	Number of experiments	Count duration (mn)	MEASUREMENT SET-UP				Collimator	RESULTS AS ATOMIC RATIOS (%)									
				Count rate (kc s ⁻¹)	Source to detector distance (cm)	Absorber type	thickness (mm)		[P = sum of atoms of Pu 238, Pu 239, Pu 240, Pu 241]									
								²³⁸ Pu/P	²³⁹ Pu/P	²⁴⁰ Pu/P	²⁴¹ Pu/P	²⁴¹ Am/P						
2	B	3(*)	3 x 1.8 10 ²	2.8	zero	{ Cd Cu	2.0 0.5	Uncollimated	0.1327 (0.62 %)	78.75 (0.41 %)	21.09 (1.5 %)	2.028 (0.74 %)	1.758 (0.73 %)					
3	B	3	{ 1 x 1.3 10 ³ 1 x 4.2 10 ³ 1 x 3.0 10 ³	2.0	10	Cd, Cu	1.8, 1.0	Uncollimated	0.1297 (0.63 %)	77.39 (0.77 %)	20.40 (2.2 %)	2.083 (0.87 %)	1.733 (1.1 %)					
	1.0			20	Cd, Cu	1.0, 1.0	0.1320 (1.3 %)		78.45 (0.59 %)	21.36 (2.5 %)	2.059 (0.63 %)	1.785 (1.8 %)						
	1.8			10	Cd, Cu	2.0, 1.0												
4	B	3							0.134 (1.6 %)	75.88 (0.4 %)	21.95 (1.9 %)	2.042 (1.6 %)	1.696 (2.2 %)					
5	A	1	1 x 8.8 10 ²	0.12	1	Cd	1.5	Uncollimated	0.1325 (1.2 %)	78.54 (0.2 %)	21.27 (0.8 %)	2.064 (0.5 %)	1.742 (0.5 %)					
6	6(1)	13	6 x 2.4 10 ²	3.4	1.0	{ Cd Cu	2.0 0.25	Uncollimated	0.1284 (1.0 %)	78.52 (0.37 %)	21.31 (1.7 %)	2.045 (0.45 %)	1.738 (0.59 %)					
	6(2)	6							0.1298 (0.92 %)	78.95 (0.39 %)	20.92 (0.79 %)	2.002 (0.40 %)	1.785 (0.50 %)					
	6(3)	3							3 x 4.0 10 ²	2.5	3.0	{ Cd Cu	1.2 0.2	Uncollimated	0.1351 (0.85 %)	78.33 (0.09 %)	21.48 (0.32 %)	2.074 (0.14 %)
8	8(1)	3	3 x 33	5.0	1.7	Cd	1.5	Uncollimated	0.1314 (3.0 %)	78.21 (0.5 %)	21.56 (1.7 %)	2.097 (1.0 %)	1.758 (0.8 %)					
	8(2)	3	3 x 10	9.0	-	Cd	1.5	Uncollimated	0.1338 (1.4 %)	78.42 (0.20 %)	21.37 (0.87 %)	2.099 (0.53 %)	1.759 (0.57 %)					
12	B	3	1.1 x 10 ³	1.9	3.7	Cd	1.5	Pb collimator 3.0 cm x φ 1.1 cm distance to detector 0.17 cm	0.129 (- 5 %)	77.15 (- 0.5 %)	20.88 (- 1.5 %)	2.083 (- 1 %)	1.804 (- 5 %)					
	C								0.130 (")	75.64 (")	22.19 (")	2.037 (")	1.855 (")					
	D								0.133 (")	78.71 (")	21.09 (")	2.058 (")	1.881 (")					
13	B	3	3 x 8.3 10 ²	1.2	3.0	{ Cd Cu	1.7 2.0	Uncollimated	0.1333 (3.5 %)	78.82 (0.88 %)	20.97 (3.1 %)	2.077 (2.0 %)	1.819 (2.4 %)					
	D								0.1342 (3.8 %)	78.03 (0.89 %)	21.73 (3.0 %)	2.105 (2.1 %)	1.803 (2.4 %)					
17	B	3	3 x 80	3.1	0.4	{ Cd Cu	2.0 1.0	Uncollimated	0.1343 (2.2 %)	75.53 (0.81 %)	22.28 (2.8 %)	2.075 (0.88 %)	1.688 (1.0 %)					
Compilation for T-spectrometry results :																		
Unweighted mean values X̄ :									0.1321	78.457	21.349	2.061	1.735					
Relative standard deviations on a result S _X , and on unweighted mean, S _{X̄} :									1.6 %	0.40 %	0.67 %	0.17 %	2.4 %	0.80 %	1.3 %	0.32 %	3.3 %	0.84 %
Weighted mean values X _w :									0.1319	78.397	21.353	2.064	1.751					
Relative standard deviations on weighted mean S _{X_w} :									0.43 %	0.064 %	0.33 %	0.27 %	0.22 %					
Mass-spectrometry values :																		
Unweighted mean values X̄ :									0.1330	78.504	21.300	2.063	1.748					
Relative standard deviations on a result S _X , and on unweighted mean S _{X̄} :									1.1 %	0.42 %	0.025%	0.0098%	0.070 %	0.027 %	0.27 %	0.10 %	2.7 %	1.1 %
Comparison of T-spectrometry and mass-spectrometry results :																		
NDA/DA ratios (from unweighted means) :									0.993	0.999	1.002	0.999	0.993					
Relative standard deviations on ratio :									0.58 %	0.17 %	0.80 %	0.34 %	1.4 %					

A : methods using mainly the X-ray region

B : 120-500 keV region analysis procedures with UCRIL 52139 or 53508 data

C : 120-500 keV region analysis procedures after correction with CBNM Pu reference samples

D : 120-500 keV region analysis procedure with other data

[* : each value is the result for three measurements]

- su ta s pour ec an i on n sans ecran a t onne .

TABLE 7 - Results for sample n°6 (without additional absorber).

Laboratory code number	Method (type)	Number of experiments	MEASUREMENT SET-UP						RESULTS AS ATOMIC RATIOS (%)				
			Count duration (mn)	Count rate (kc.s ⁻¹)	Source to detector distance (cm)	Absorber		Collimator	[P = sum of atoms of Pu 238, Pu 239, Pu 240, Pu 241]				
						type	thickness (mm)		²³⁸ Pu/P	²³⁹ Pu/P	²⁴⁰ Pu/P	²⁴¹ Pu/P	²⁴¹ Am/P
2	B	3(*)	{ 1 x 90 2 x 90	69 58	zero	{ Cd Cu	2 0.5	Uncollimated	0.939 (1.7 %)	69.48 (0.99 %)	24.39 (2.1 %)	5.199 (1.5 %)	3.876 (1.4 %)
3	B	2	{ 1 x 5.5 10 ³ 1 x 4.8 10 ³	1.0	20	Cd, Cu Cd, Cu	2.8, 1.0 3.2, 1.0	Uncollimated	0.959 (1.5 %)	70.34 (2.0 %)	23.18 (4.0 %)	5.523 (1.4 %)	3.941 (2.1 %)
	2.4			10	0.970 (1.7 %)				69.53 (2.1 %)	24.08 (4.2 %)	5.417 (1.4 %)	4.029 (2.6 %)	
4	B	3							0.986 (2.3 %)	67.66 (1.2 %)	25.97 (2.7 %)	5.378 (2.1 %)	3.784 (2.3 %)
5	A	1	1 x 6.1 10 ²	0.12	1	Cd	1.5	Uncollimated	0.973 (0.5 %)	68.74 (0.3 %)	24.85 (0.8 %)	5.438 (0.4 %)	3.877 (0.4 %)
6	B	11	8 x 4.2 10 ²	5.3	1.8	{ Cd Cu	2 0.25	Uncollimated	0.936 (1.3 %)	68.53 (0.75 %)	25.31 (3.0 %)	5.229 (1.1 %)	3.858 (1.8 %)
	B	8							0.957 (1.1 %)	69.68 (1.2 %)	24.06 (1.4 %)	5.290 (1.2 %)	3.941 (1.7 %)
	A	3							3 x 4.0 10 ²	5.7	3.0	{ Cd Cu	1.2 0.25
8	B	3	3 x 3.3	6.2	3.3	Cd	1.5	Uncollimated	0.943 (1.9 %)	68.99 (0.43 %)	24.81 (2.7 %)	5.264 (1.6 %)	3.840 (1.4 %)
	A	3	3 x 1.0	9.0	-	Cd	1.4	Uncollimated	0.977 (1.2 %)	68.61 (0.55 %)	24.96 (1.2 %)	5.458 (1.0 %)	3.885 (1.2 %)
12	B		{ 5.8 x 10 ²	3.0	3.7	Cd	1.5	Pb collimator 3.0 cm x ø 1.1 cm distance to detector 0.17 cm	0.956 (- 5 %)	70.27 (- 0.5 %)	23.32 (- 1.5 %)	5.452 (- 1 %)	3.867 (- 5 %)
	C								0.968 (")	68.89 (")	24.78 (")	5.383 (")	3.863 (")
	D								0.973 (")	69.34 (")	24.30 (")	5.381 (")	3.863 (")
13	B	3	{ 3 x 6.3 10 ²	1.2	8.0	{ Cd Cu	1.7 2.0	Uncollimated	0.987 (5.1 %)	69.12 (2.7 %)	24.33 (7.8 %)	5.564 (4.1 %)	4.032 (3.9 %)
	D								0.985 (5.2 %)	68.07 (2.6 %)	25.33 (7.5 %)	5.614 (4.3 %)	3.963 (3.8 %)
17	B	3	3 x 60	1.2	0.5	{ Cd Cu	2 1	Uncollimated	0.975 (1.3 %)	69.17 (0.63 %)	24.41 (2.5 %)	5.448 (1.1 %)	3.905 (1.3 %)
Compilation for γ-spectrometry results :													
Unweighted mean values \bar{X} :									0.968	69.070	24.561	5.404	3.880
Relative standard deviations on a result S_x , and on unweighted mean, $S_{\bar{X}}$:									1.7 %	1.0 %	2.9 %	2.1 %	3.3 %
Weighted mean values \bar{X}_w :									0.972	68.813	24.816	5.415	3.872
Relative standard deviations on weighted mean $S_{\bar{X}_w}$:									0.21 %	0.13 %	0.34 %	0.23 %	0.14 %
Mass-spectrometry values :													
Unweighted mean values \bar{X} :									0.9695	68.890	24.703	5.438	3.775
Relative standard deviations on a result S_x , and on unweighted mean $S_{\bar{X}}$:									0.65 %	0.016%	0.0062%	0.048 %	0.018 %
Comparison of γ-spectrometry and mass-spectrometry results :													
NDA/DA ratios (from unweighted means) :									0.968	1.003	0.994	0.994	1.023
Relative standard deviations on ratio :									0.49 %	0.26 %	0.73 %	0.54 %	1.6 %

A : methods using mainly the X-ray region

B : 120-500 keV region analysis procedures with UCRL-52139 or 53506 data

C : 120-500 keV region analysis procedures after correction with CBNM Pu reference samples

D : 120-500 keV region analysis procedure with other data

[* : each value is the result for three measurements]

TABLEAU 8 - Résultats pour l'échantillon n°7 (sans écran additionnel).

TABLE 8 - Results for sample n°7 (without additional absorber).

Laboratory code number	Method (type)	Number of experiments	MEASUREMENT SET-UP						RESULTS AS ATOMIC RATIOS (%)									
			Count duration (min)	Count rate (c.c.s ⁻¹)	Source to detector distance (cm)	Absorber		Collimator	[P = sum of atoms of Pu 238, Pu 239, Pu 240, Pu 241]									
						type	thickness (mm)		²³⁸ Pu/P	²³⁹ Pu/P	²⁴⁰ Pu/P	²⁴¹ Pu/P	²⁴¹ Am/P					
2	B	3(*)	3 x 1.8 10 ²	6.9	zero	{Cd Cu	2 0.5	uncollimated	1.293 (0.93 %)	65.39 (0.53 %)	26.84 (1.3 %)	6.474 (0.82 %)	3.748 (0.97 %)					
3	B	2	{ 1 x 6.0 10 ³ 1 x 4.2 10 ³	1.0	20	Cd, Cu	3.2, 1.0	uncollimated	1.308 (1.7 %)	66.05 (2.5 %)	25.82 (0.3 %)	6.825 (1.6 %)	3.709 (2.7 %)					
	C			2.5	10	Cd, Cu	3.6, 1.0		1.318 (1.9 %)	65.26 (2.5 %)	26.75 (6.4 %)	6.871 (1.6 %)	3.825 (2.9 %)					
4	B	3							1.354 (2.9 %)	63.60 (0.5 %)	26.13 (3.3 %)	6.712 (2.9 %)	3.868 (2.9 %)					
5	A	1	1 x 7.2 10 ²	0.12	1	Cd	1.5	uncollimated	1.330 (0.6 %)	65.26 (0.3 %)	26.65 (0.5 %)	6.784 (0.5 %)	3.711 (0.5 %)					
6(1)	B	12	{ 8 x 4.6 10 ² 3 x 4.0 10 ²	3.3	2.7	{Cd Cu	2 0.25	uncollimated	1.280 (1.5 %)	64.81 (0.91 %)	27.41 (3.4 %)	6.500 (1.5 %)	3.729 (2.2 %)					
	6(2)	B							8	1.308 (1.7 %)	66.41 (1.7 %)	25.71 (1.9 %)	6.573 (0.26 %)	3.821 (2.4 %)				
	6(3)	A							3	1.361 (0.21 %)	64.52 (0.15 %)	27.31 (0.32 %)	6.824 (0.20 %)	3.782 (0.30 %)				
8(1)	B	3	3 x 33	6.0	4.0	Cd	1.5	uncollimated	1.343 (1.9 %)	65.59 (1.4 %)	26.21 (2.8 %)	6.853 (1.6 %)	3.674 (1.6 %)					
	8(2)	A	3	3 x 10	9.0	-	Cd	1.4	uncollimated	1.346 (1.3 %)	65.10 (1.4 %)	26.79 (1.4 %)	6.770 (1.2 %)	3.753 (1.2 %)				
12	B	3	{ 4.4 10 ²	3.0	3.8	Cd	1.5	Pb collimator 3.0 cm x φ = 1.7cm distance to detector 0.17 cm	1.337 (- 9 %)	67.40 (- 0.5 %)	24.37 (- 1.5 %)	6.886 (- 1 %)	3.484 (- 5 %)					
	C								1.359 (")	66.18 (")	25.64 (")	6.819 (")	3.507 (")					
	D								1.353 (")	66.26 (")	25.82 (")	6.770 (")	3.548 (")					
13	B	3	{ 3 x 6.3 10 ²	1.3	6.0	{Cd Cu	1.7 2.0	uncollimated	1.359 (5.4 %)	65.73 (3.0 %)	26.27 (7.9 %)	6.633 (4.5 %)	3.873 (4.2 %)					
	D								1.351 (5.8 %)	64.36 (3.1 %)	27.36 (7.8 %)	6.924 (4.6 %)	3.784 (4.2 %)					
17	B	3	3 x 60	7.6	0.4	{Cd Cu	2 1	uncollimated	1.375 (1.3 %)	64.73 (1.1 %)	27.06 (3.0 %)	6.829 (1.2 %)	3.774 (1.3 %)					
Completion for T-spectrometry results :																		
Unweighted mean values \bar{X} :									1.335	65.428	26.499	6.739	3.708					
Relative standard deviations on a result $S_{\bar{X}}$, and on unweighted mean, $S_{\bar{X}}$:									2.0 %	0.50 %	1.4 %	0.34 %	3.5 %	0.87 %	2.0 %	0.50 %	3.1 %	0.78 %
Weighted mean values \bar{X}_w :									1.344	64.956	26.889	6.735	3.748					
Relative standard deviations $S_{\bar{X}_w}$, and on weighted mean $S_{\bar{X}_w}$:										0.33 %		0.32 %		0.54 %		0.47 %	0.24 %	
Mass-spectrometry values :																		
Unweighted mean values \bar{X} :									1.322	65.132	26.761	6.765	3.677					
Relative standard deviations on a result $S_{\bar{X}}$, and on unweighted mean $S_{\bar{X}}$:									1.6 %	0.62 %	0.088 %	0.032 %	0.064 %	0.036 %	0.25 %	0.067 %	3.6 %	1.5 %
Comparison of T-spectrometry and mass-spectrometry results :																		
NDA/DA ratios (from unweighted means) :									1.010	1.004	0.989	0.996	1.008					
Relative standard deviations on ratio :									0.60 %		0.34 %	0.67 %	0.51 %	1.7 %				

A : methods using mainly the X-ray region

B : 120-500 keV region analysis procedures with UCRL-52139 or 53508 data

C : 120-500 keV region analysis procedures after correction with CBNM Pu reference samples

D : 120-500 keV region analysis procedure with other data

[* : each value is the result for three measurements]

TABLEAU 9 - Résultats pour l'échantillon n°2 (avec écran additionnel).

TABLE 9 - Results for sample n°2 (with additional absorber).

Laboratory code number	Method (type)	Number of experiments	Count duration (min)	MEASUREMENT SET-UP					RESULTS AS ATOMIC RATIOS (%)				
				Count rate (kc.s ⁻¹)	Source to detector distance (cm)	Absorber type	thickness (mm)	Collimator	[P = sum of atoms of Pu 238, Pu 239, Pu 240, Pu 241]				
									238Pu/P	239Pu/P	240Pu/P	241Pu/P	241Am/P
- lead additional absorber -													
2	B	3(*)	3 x 2.7 10 ²	0.8	zero	{ Cd Cu Pb	2 0.5 0.4	Uncollimated	0.0221 (4.1 %)	89.39 (0.25 %)	10.14 (2.2 %)	0.439 (0.86 %)	0.280 (1.8 %)
4	B	3				with additional lead absorber : 0.3 mm			0.0234 (2.8 %)	89.29 (0.2 %)	10.27 (2.3 %)	0.436 (2.2 %)	0.288 (2.4 %)
6(1)	B	3	3 x 50	3.9	2.0	{ Cd Pb	1.5 0.25	Uncollimated	0.0236 (6.7 %)	89.32 (0.2 %)	10.21 (0.9 %)	0.444 (2.2 %)	0.257 (1.1 %)
12	B		8.3 10 ²	0.08	3.8	{ Cd Pb	1.5 0.3	Pb collimator 3.0 x φ 1.1 cm distance to detector 0.2 cm	0.022 (- 5 %)	89.12 (- 5 %)	9.44 (- 1.5 %)	0.421 (- 1 %)	0.232 (- 5 %)
13	B	3	3 x 8.3 10 ²	1.1	1.0	{ Cd Cu Pb	1.7 2.0 0.45	Uncollimated	0.0244 (11 %)	89.97 (0.57 %)	10.58 (4.7 %)	0.451 (1.9 %)	0.234 (4.2 %)
17	B	3	3 x 60	0.6	0.4	{ Cd Cu Pb	2.0 1 0.3	Uncollimated	0.0163 (9.3 %)	89.12 (0.53 %)	10.41 (4.4 %)	0.443 (0.69 %)	0.280 (5.3 %)
Mean values for results from γ-spectrometry \bar{X} :									0.2187	89.39	10.17	0.4393	0.2552
Standard deviations on a single result $S_{\bar{X}}$, and on mean $S_{\bar{X}}$:									1.3 %	0.44 % 0.53 %	3.8 % 0.18 %	2.3 % 0.94 %	7.4 % 3.0 %
- other additional absorber -													
8(2)	A	3	3 x 10	4.2	-	Lead impossible ; Cd = 1.7 mm instead Cd = 1.1 mm		Uncollimated	0.0239 (4 %)	89.44 (0.10 %)	10.09 (0.7 %)	0.444 (0.6 %)	0.262 (0.7 %)

G4

A : methods using mainly the X-ray region
 B : 120-500 keV region analysis procedures with UCRL-52139 or 53508 data
 (*) : each value is the result for three measurements

TABLEAU 10 - Résultats pour l'échantillon n°6 (avec écran additionnel).

TABLE 10 - Results for sample n°6 (with additional absorber).

Laboratory code number	Method (type)	Number of experiments	Count duration (mn)	MEASUREMENT SET-UP				Collimator	RESULTS AS ATOMIC RATIOS (%)									
				Count rate (c.c.s ⁻¹)	Source to detector distance (cm)	Absorber type	thickness (mm)		²³⁸ Pu/P	[P = sum of atoms of Pu 238, Pu 239, Pu 240, Pu 241] ²³⁹ Pu/P		²⁴⁰ Pu/P	²⁴¹ Pu/P	²⁴¹ Am/P				
- lead additional absorber -																		
3	B	1	1 × 3.9 10 ³	2.1	10	Cd	1.6		0.972	(1.6 %)	70.35	(2.1 %)	23.07	(4.0 %)	5.617	(1.4 %)	3.877	(2.9 %)
	C						Cu		1.0	0.963	(1.9 %)	69.52	(2.4 %)	23.99	(4.3 %)	5.516	1.6 %)	3.867
4	B	3				with additional lead absorber : 0.3 mm			0.980	(2.3 %)	68.28	(1.2 %)	23.35	(2.9 %)	5.360	(2.2 %)	3.885	(2.3 %)
8(1)	B	3	3 × 50	57	3.0	Cd	1.5	Uncollimated	0.958	(1.4 %)	68.64	(0.9 %)	24.82	(2.1 %)	5.385	(1.1 %)	3.787	(1.1 %)
12	B		6.3 10 ²	0.09	3.8	Cd	1.5	Pb collimator 3.0 cm × φ 1.1 cm distance to detector 0.17 cm	0.950	(- 5 %)	69.86	(- 0.5 %)	23.74	(- 1.5 %)	5.444	(- 1 %)	3.718	(- 5 %)
						Pb	0.3											
13	B	3	3 × 8.3 10 ²	1.3	4.0	Cd	1.7	Uncollimated	0.987	(5.3 %)	69.51	(2.5 %)	24.13	(7.2 %)	5.361	(3.9 %)	4.059	(3.9 %)
						Cu	2.0											
						Pb	0.45											
17	B	3	3 × 60	2.3	0.43	Cd	2.0	Uncollimated	1.023	(2.3 %)	67.80	(1.7 %)	25.63	(5.1 %)	5.546	(1.8 %)	3.788	(4.0 %)
						Cu	1.0											
						Pb	0.3											
			Mean values for results from γ -spectrometry \bar{x} :						0.976		69.17		24.39		5.485		3.866	
			Standard deviations on a single result S_x , and on mean $S_{\bar{x}}$:						2.4 %	0.91 %	1.3 %	0.49 %	3.8 %	1.4 %	1.7 %	0.54 %	3.3 %	1.2 %
-other additional absorber -																		
8(2)	A	3	3 × 10	9.0	-	Lead impossible ; Cd = 1.7 mm instead Cd = 1.1 mm		Uncollimated	0.964	(1.2 %)	68.71	(0.57 %)	24.83	(1.4 %)	5.473	(1.1 %)	3.824	(1.1 %)

A : methods using mainly the X-ray region
 B : 120-500 keV region analysis procedure with UCRL-52139 or 53508 data
 C : 120-500 keV region analysis procedure after calibration CBNM Pu reference samples
 D : 120-500 keV region analysis procedure with other data

TABLEAU 11 - Résultats pour l'échantillon n°7 (avec écran additionnel).

TABLE 11 - Results for sample n°7 (with additional absorber).

Laboratory code number	Method (type)	Number of experiments	MEASUREMENT SET-UP						RESULTS AS ATOMIC RATIOS (%)				
			Count duration (min)	Count rate (kc s ⁻¹)	Source to detector distance (cm)	Absorber		Collimator	[P = sum of atoms of Pu 238, Pu 239, Pu 240, Pu 241]				
						type	thickness (mm)		²³⁸ Pu/P	²³⁹ Pu/P	²⁴⁰ Pu/P	²⁴¹ Pu/P	²⁴¹ Am/P
2	B	3*	3 × 1.8 10 ²	4.4	zero	Cd	2	uncollimated	1.268 (1.1 %)	65.66 (0.55 %)	26.40 (1.4 %)	6.452 (0.91 %)	3.767 (1.0 %)
						Cu	0.5						
						Pb	0.4						
3	B	1	1 × 1.3 10 ³	2.4	10	Cd	1.6	uncollimated	1.332 (1.7 %)	67.16 (2.3 %)	24.47 (5.0 %)	7.005 (1.6 %)	3.806 (2.4 %)
	Cu					1.0							
	Pb					0.5							
	C				10				1.345 (2.0 %)	66.42 (2.5 %)	25.37 (5.3 %)	6.661 (1.7 %)	3.900 (2.9 %)
			Mean values for all results \bar{x} :					1.322	66.46	25.41	6.773	3.834	
			Mass-spectrometry values :					1.322	65.13	26.76	6.765	3.646	

B : 120-500 keV region analysis procedures with UCRL-52139 or 53506 data
 C : 120-500 keV region analysis procedures after correction with CBNM Pu reference samples
 [* : each value is the result for three measurements]

01

TABLEAU 12 - Résultats du dosage du ²⁴²Pu par corrélation.

TABLE 12 - Results for ²⁴²Pu dosage by correlation.

Laboratory code number	Isotopic determination method (type)	Procedure used for isotopic correlation		Results								
		Principle	Correction for decay by using the ²⁴¹ Pu/ ²⁴¹ Am ratio	Sample 1	Sample 2	Sample 3	Sample 4	Sample 5	Sample 6	Sample 7		
2	B	$52 \times [^{240}\text{Pu} \times ^{241}\text{Pu}]^2 / [^{239}\text{Pu}]^2$	Yes									
3	B and C		No									
4	B											
5	A	$53 \times [^{240}\text{Pu} \times (^{241}\text{Pu} + ^{241}\text{Am})] / [^{239}\text{Pu}]^2$		0.020	0.082	0.218	0.75	0.94	3.35	4.48		
6	6(1)	$52 \times [^{240}\text{Pu} \times ^{241}\text{Pu}] / [^{239}\text{Pu}]^2$	Yes	0.015	0.046	0.186	0.58	0.72	2.56	3.48		
	6(2)	$89.4 \times [^{240}\text{Pu} \times ^{241}\text{Pu}] / [^{239}\text{Pu}]^2$ (* : mass ratios)	Yes	0.028 (25%)	0.087 (25%)	0.307 (25%)	1.06 (25%)	1.32 (25%)	4.55 (25%)	6.03 (25%)		
	6(3)	A										
8	8(1)	$52 \times [^{240}\text{Pu} \times ^{241}\text{Pu}] / [^{239}\text{Pu}]^2$	Yes	0.02	0.06	0.21	0.75	0.95	3.14	4.25		
	8(2)	$53 \times [^{240}\text{Pu} \times (^{241}\text{Pu} + ^{241}\text{Am})] / [^{239}\text{Pu}]^2$	Yes	0.017	0.054	0.195	0.68	0.85	3.04	4.14		
12	B C D	$75 \times [^{240}\text{Pu} \times ^{241}\text{Pu}] / [^{239}\text{Pu}]^2$ similar similar	No	0.01	0.04	0.14	0.42	0.54	1.83	2.77		
13	B	$66.2 \times [^{240}\text{Pu} \times ^{241}\text{Pu}] / [^{239}\text{Pu}]^2$ (* : mass ratios)	Yes	0.014 (20%)	0.052 (20%)	0.183 (20%)	0.59 (20%)	0.76 (20%)	2.94 (20%)	4.23 (20%)		
	D	similar		0.015 (20%)	0.059 (20%)	0.212 (20%)	0.63 (20%)	0.82 (20%)	3.18 (20%)	3.76 (20%)		
17	B	$52 \times [^{240}\text{Pu} \times ^{241}\text{Pu}] / [^{239}\text{Pu}]^2$	Yes	0.017 (7%)	0.055 (4.0%)	0.215 (3.2%)	0.72 (3.0%)	0.94 (3.7%)	3.03 (3.4%)	4.34 (4.2%)		
Compilation for γ-spectrometry results :												
Unweighted mean values \bar{X} :				0.017	0.057	0.206	0.68	0.87	3.08	4.17		
Relative standard deviations on a result S_x , and on unweighted mean, $S_{\bar{X}}$:				29% 8.7%	23% 7.7%	22% 7.3%	25% 8.3%	24% 8%	23% 7.7%	21% 7%		
Mass-spectrometry values :												
Unweighted mean values \bar{X} :				0.0342	0.0932	0.2311	0.5604	0.6938	3.519	4.626		
Relative standard deviations on a result S_x , and on unweighted mean $S_{\bar{X}}$:				5.7% 2.2%	2.6% 1.1%	3.3% 1.6%	0.57% 0.22%	0.30% 0.11%	0.14% 0.054%	0.23% 0.087%		

A : methods using mainly the X-ray region
 B : 120-500 keV region analysis procedures with UCRL-52139 or 53506 data
 C : 120-500 keV region analysis procedures after correction with CBNM Pu reference samples
 D : 120-500 keV region analysis procedure with other data

81

67

TABLEAU 13 - Résultats finals de l'exercice PIDIE exprimés sous forme de rapports atomiques ²³⁸Pu/P, ²³⁹Pu/P, ²⁴⁰Pu/P, ²⁴¹Pu/P, ²⁴¹Am/P, où P représente le nombre total d'atomes de ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu.
TABLE 13 - Final results for the PIDIE exercise given as atomic ratios ²³⁸Pu/P, ²³⁹Pu/P, ²⁴⁰Pu/P, ²⁴¹Pu/P, ²⁴¹Am/P, where P is the sum of atoms of ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu.

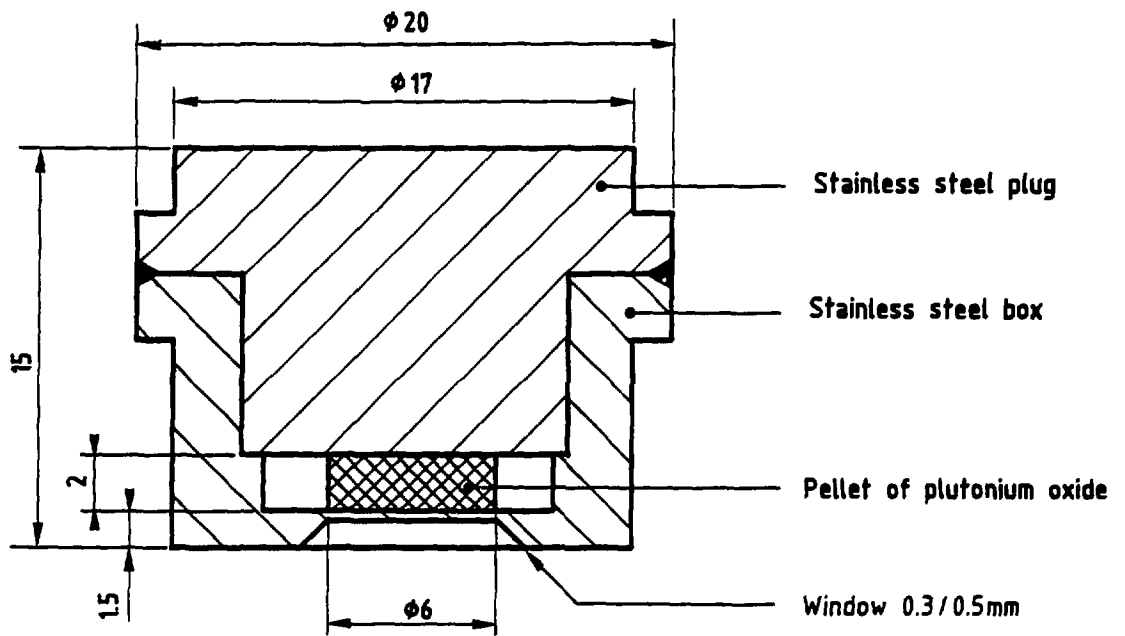
n = number of results
 \bar{X} = mean value of results, S_x relative standard deviation on a single result, S_R relative standard deviation on mean

M_x = average of the relative uncertainties on results

The letter "A" is attributed to the methods using mainly the X ray region, for the methods using the 120 to 500 keV region, the letter "B" is given when the UCRL-52135 or 53506 nuclear data were used, "C" when a correction derived from the CBHM Pilot samples was applied, "D" when other photon emission probabilities were used

Sample ratio Pu/P	Mass spectrometry results (n = 7)				For all results, unweighted means (n = 18)				For all results, weighted means (n = 18)				Final results from X/T-ray spectrometry																
													For type A methods (n = 3, unweighted means)				For type B methods (n = 9, unweighted means)				For type C methods (n = 2, unweighted means)				For type D methods (n = 2, unweighted means)				
	\bar{X}	S _x (%)	S _R (%)	M _x (%)	\bar{X}	S _x (%)	S _R (%)	M _x (%)	\bar{X}	S _x (%)	S _R (%)	M _x (%)	\bar{X}	S _x (%)	S _R (%)	M _x (%)	\bar{X}	S _x (%)	S _R (%)	M _x (%)	\bar{X}	S _x (%)	S _R (%)	M _x (%)	\bar{X}	S _x (%)	S _R (%)	M _x (%)	
Sample 1																													
²³⁸ Pu/P	0.0111	3.8	1.5	5.5	0.0111	8.5	2.1	5.5	0.0108	1.4	5.5	0.0118	0.99	0.57	3.8	0.0110	10.3	3.4	6.2	0.0101	3.5	0.0113	7.1	93.800	0.65	93.645	0.40		
²³⁹ Pu/P	93.822	0.0089	0.0034	0.34	93.873	0.21	0.050	0.34	93.836	0.022	0.34	93.801	0.070	0.040	0.070	93.941	0.19	0.063	0.35	93.900	0.65	93.645	0.40	5.850	3.1	1.0	2.8	5.895	2.0
²⁴⁰ Pu/P	5.969	0.11	0.043	2.4	5.919	3.4	0.84	2.4	5.917	0.025	2.4	5.993	1.0	0.60	0.75	5.850	3.1	1.0	2.8	5.895	2.0	6.141	3.1	0.1977	1.7	0.64	0.80	0.1978	0.80
²⁴¹ Pu/P	0.1977	1.7	0.64	0.8	0.1971	1.7	0.43	0.8	0.1975	0.22	0.81	0.1968	0.13	0.075	0.52	0.1963	1.0	0.62	0.60	0.1978	0.80	0.2008	1.3	0.2287	3.2	1.3	2.2	0.2231	3.4
²⁴¹ Am/P	0.2287	3.2	1.3	2.2	0.2204	4.4	1.1	2.2	0.2237	0.24	2.2	0.2269	1.2	0.69	0.52	0.2202	4.8	1.6	2.1	0.2231	3.4	0.2088	4.0						
Sample 2																													
²³⁸ Pu/P	0.0227	3.1	1.2	4.4	0.0232	3.8	0.98	4.4	0.0225	0.68	4.4	0.0229	3.4	2.0	2.1	0.0230	4.1	1.4	4.9	0.02325	3.3	0.0242	6.8	89.483	0.010	0.0039	0.40	89.522	0.010
²³⁹ Pu/P	89.483	0.010	0.0039	0.40	89.532	0.28	0.067	0.40	89.431	0.017	0.40	89.458	0.070	0.040	0.26	89.577	0.31	0.10	0.37	89.625	0.59	89.510	0.54	10.071	0.068	0.033	1.7	10.075	0.64
²⁴⁰ Pu/P	10.071	0.068	0.033	1.7	9.980	2.4	0.59	1.7	10.051	0.34	1.7	10.075	0.64	0.37	0.53	9.958	2.7	0.92	1.7	9.910	1.9	10.010	3.2	0.4428	0.52	0.20	0.87	0.4431	1.5
²⁴¹ Pu/P	0.4428	0.52	0.20	0.87	0.4431	1.5	0.38	0.87	0.4413	0.22	0.87	0.4437	0.65	0.38	0.40	0.4416	1.2	0.40	0.82	0.4410	0.75	0.4514	1.4	0.2633	1.2	0.49	2.3	0.2522	5.3
²⁴¹ Am/P	0.2633	1.2	0.49	2.3	0.2522	5.3	1.3	2.3	0.2567	0.25	2.3	0.2815	2.2	1.3	0.44	0.2519	6.0	2.0	2.2	0.2514	3.4	0.2403	4.2						
Sample 3																													
²³⁸ Pu/P	0.0475	1.0	0.40	3.4	0.0477	2.4	0.60	3.4	0.0473	0.55	3.4	0.0481	1.0	0.59	1.8	0.0472	2.6	0.85	3.5	0.0480	3.2	0.0489	5.5	84.835	0.011	0.0041	0.40	84.784	0.031
²³⁹ Pu/P	84.835	0.011	0.0041	0.40	84.814	0.42	0.10	0.40	84.784	0.031	0.40	84.788	0.040	0.023	0.14	84.863	0.54	0.18	0.42	84.705	0.50	84.745	0.59	14.128	0.049	0.018	2.0	14.148	2.5
²⁴⁰ Pu/P	14.128	0.049	0.018	2.0	14.148	2.5	0.83	2.0	14.153	0.23	2.0	14.170	0.28	0.15	0.92	14.103	3.3	1.1	2.3	14.265	1.9	14.200	2.7	9.9900	0.48	0.13	1.0	9.9833	0.88
²⁴¹ Pu/P	9.9900	0.48	0.13	1.0	9.9833	0.88	0.22	1.0	9.9835	0.27	1.0	9.9902	0.55	0.32	0.43	9.9855	0.88	0.33	1.2	0.9900	0.70	9.985	1.4	0.6249	2.9	1.2	2.2	0.6062	3.2
²⁴¹ Am/P	0.6249	2.9	1.2	2.2	0.6062	3.2	0.79	2.2	0.6130	0.21	2.2	0.6170	0.71	0.41	0.48	0.6052	3.7	1.2	2.0	0.6015	4.0	0.5990	3.8						
Sample 4																													
²³⁸ Pu/P	0.1096	1.2	0.45	2.5	0.1091	1.4	0.34	2.5	0.1092	0.41	2.5	0.1108	1.0	0.59	1.2	0.1083	1.2	0.39	2.3	0.1091	3.1	0.1102	4.5	78.237	0.017	0.0065	0.56	78.289	0.51
²³⁹ Pu/P	78.237	0.017	0.0065	0.56	78.289	0.51	0.13	0.56	78.258	0.089	0.56	78.217	0.20	0.12	0.34	78.372	0.63	0.21	0.48	78.015	0.62	78.295	0.85	19.818	0.048	0.016	1.7	19.771	2.0
²⁴⁰ Pu/P	19.818	0.048	0.016	1.7	19.771	2.0	0.50	1.7	19.889	0.29	1.7	19.840	0.71	0.41	0.52	19.694	2.5	0.84	1.8	20.050	2.1	19.735	2.2	1.837	0.29	0.11	0.90	1.831	1.2
²⁴¹ Pu/P	1.837	0.29	0.11	0.90	1.831	1.2	0.31	0.90	1.831	0.32	0.90	1.835	0.68	0.39	0.42	1.828	1.3	0.42	0.93	1.828	0.60	1.851	1.5	1.573	2.0	0.83	1.8	1.560	3.4
²⁴¹ Am/P	1.573	2.0	0.83	1.8	1.560	3.4	0.85	1.8	1.575	0.25	1.8	1.567	0.91	0.52	0.41	1.561	3.6	1.2	1.5	1.559	3.5	1.548	3.7						
Sample 5																													
²³⁸ Pu/P	0.1330	1.1	0.42	2.3	0.1321	1.6	0.40	2.3	0.1319	0.43	2.3	0.1338	0.97	0.56	1.2	0.1314	1.7	0.57	2.1	0.1310	3.1	0.1336	4.3	78.504	0.025	0.0096	0.50	78.457	0.87
²³⁹ Pu/P	78.504	0.025	0.0096	0.50	78.457	0.87	0.17	0.50	78.397	0.084	0.50	78.429	0.14	0.081	0.16	78.578	0.79	0.28	0.56	78.045	0.55	78.370	0.70	21.300	0.070	0.027	1.7	21.349	2.4
²⁴⁰ Pu/P	21.300	0.070	0.027	1.7	21.349	2.4	0.60	1.7	21.353	0.33	1.7	21.368	0.45	0.26	0.53	21.235	2.8	0.94	1.9	21.775	2.0	21.410	2.2	2.063	0.27	0.10	0.91	2.061	1.3
²⁴¹ Pu/P	2.063	0.27	0.10	0.91	2.061	1.3	0.32	0.91	2.064	0.27	0.91	2.069	0.24	0.14	0.39	2.057	1.5	0.49	0.96	2.048	0.82	2.082	1.5	1.748	2.7	1.1	1.9	1.735	3.3
²⁴¹ Am/P	1.748	2.7	1.1	1.9	1.735	3.3	0.84	1.9	1.751	0.22	1.9	1.751	0.49	0.28	0.43	1.732	3.5	1.2	1.6	1.725	3.4	1.732	3.7						
Sample 6																													
²³⁸ Pu/P	0.9695	0.65	0.25	2.5	0.9661	1.7	0.42	2.5	0.9718	0.21	2.5	0.9747	0.21	0.12	0.64	0.9598	2.0	0.67	2.4	0.9690	3.3	0.9790	5.1	68.890	0.016	0.0062	1.1	69.070	1.0
²³⁹ Pu/P	68.890	0.016	0.0062	1.1	69.070	1.0	0.26	1.1	68.813	0.13	1.1	68.684	0.10	0.056	0.32	69.249	1.2	0.40	1.1	69.210	1.3	68.705	1.8	24.703	0.048	0.018	2.8	24.561	2.9
²⁴⁰ Pu/P	24.703	0.048	0.018	2.8	24.561	2.9	0.73	2.8	24.816	0.34	2.8	24.908	0.23	0.13	0.69	24.420	3.6	1.2	3.1	24.420	2.8	24.815	4.5	5.438	0.29	0.11	1.5	5.404	2.1
²⁴¹ Pu/P	5.438	0.29	0.11	1.5	5.404	2.1	0.53	1.5	5.415	0.23	1.5	5.439	0.33	0.19	0.53	5.372	2.5	0.82	1.7	5.400	1.2	5.498	2.8	3.775	4.1	1.7	2.5	3.860	3.3
²⁴¹ Am/P	3.775	4.1	1.7	2.5	3.860	3.3	0.82	2.5	3.872	0.14	2.5	3.877	0.19	0.11	0.59	3.862	3.2	1.1	2.4	3.848	3.8	3.833	4.4						
Sample 7																													
²³⁸ Pu/P	1.322	1.6	0.62	2.8	1.335	2.0	0.50	2.8	1.344	0.33	2.8	1.342	0.82	0.47	0.70	1.328	2.5	0.82	2.5	1.338	3.4	1.352	5.3	65.132	0.088	0.032	1.3	65.428	1.4
²³⁹ Pu/P	65.132	0.088	0.032	1.3	65.428	1.4	0.34	1.3	64.958	0.32	1.3	64.980	0.80	0.35	0.62	65.545	1.8	0.53	1.3	65.720	1.5	65.310	1.8	28.781	0.094	0.036	3.2	28.496	3.5
²⁴⁰ Pu/P	28.781	0.094	0.036	3.2	28.496	3.5	0.87	3.2	28.889	0.64	3.2	28.915	1.3	0.75	0.74	28.42													

Fig. 1 - VIEW OF PIDIE SAMPLE
(Dimensions in mm)



70
 Fig. 2 - THE 90 - TO 110 keV ENERGY REGION FROM PIDIE
 PLUTONIUM SAMPLES

Ge-Hp - fwhm: 600eV at 122keV
 Size: 3cc - Sensitivity: .09keV/channel
 Absorbers: 1.7mm Cd + 2.0mm Cu

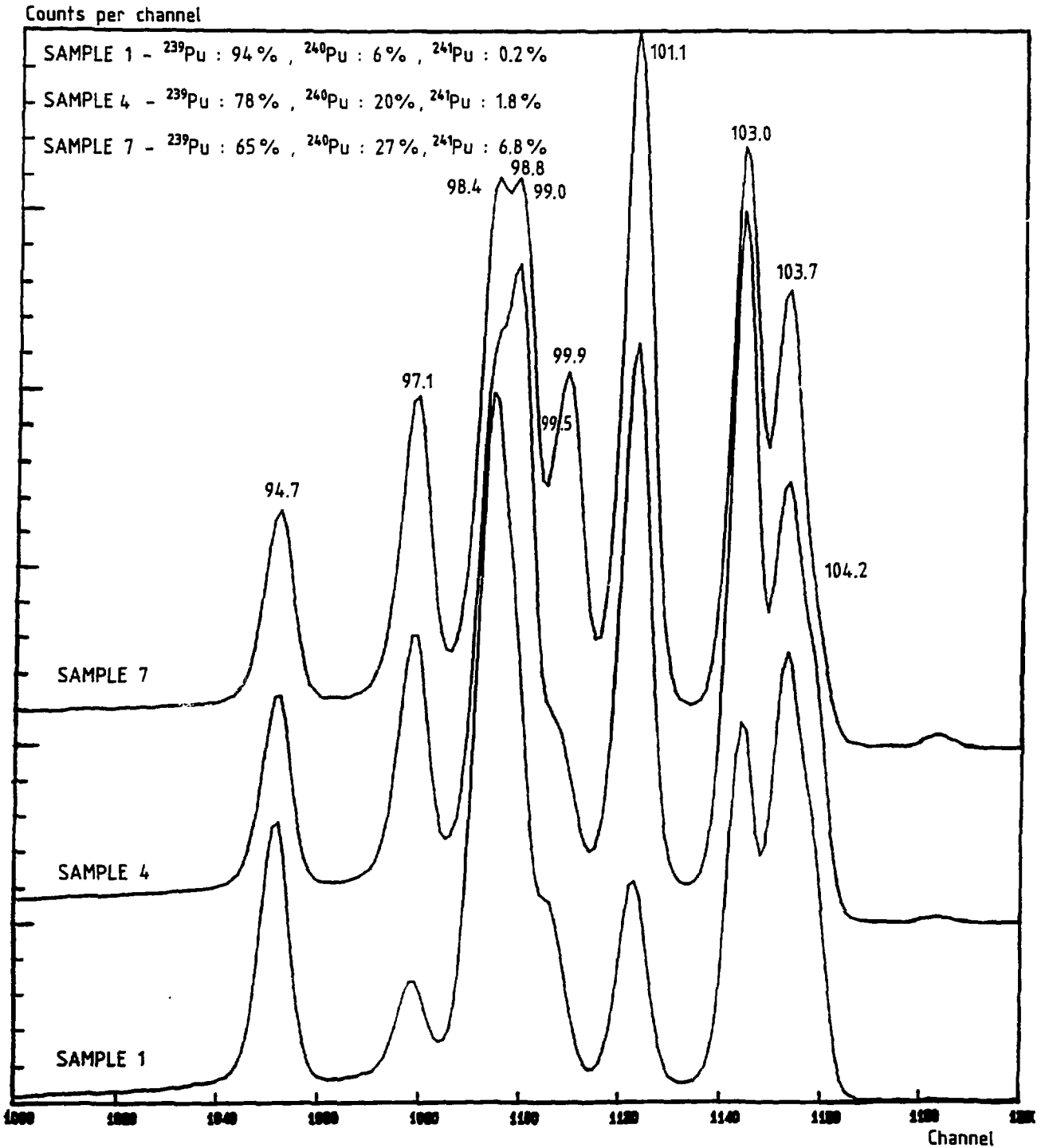


Fig.3 - THE 120 - TO 170 keV REGION FROM PIDIE
PLUTONIUM SAMPLES

Ge-Hp - fwhm: 600eV at 122keV
Size: 3cc - Sensitivity: .09keV/channel
Absorbers: 1.7mm Cd + 2.0mm Cu

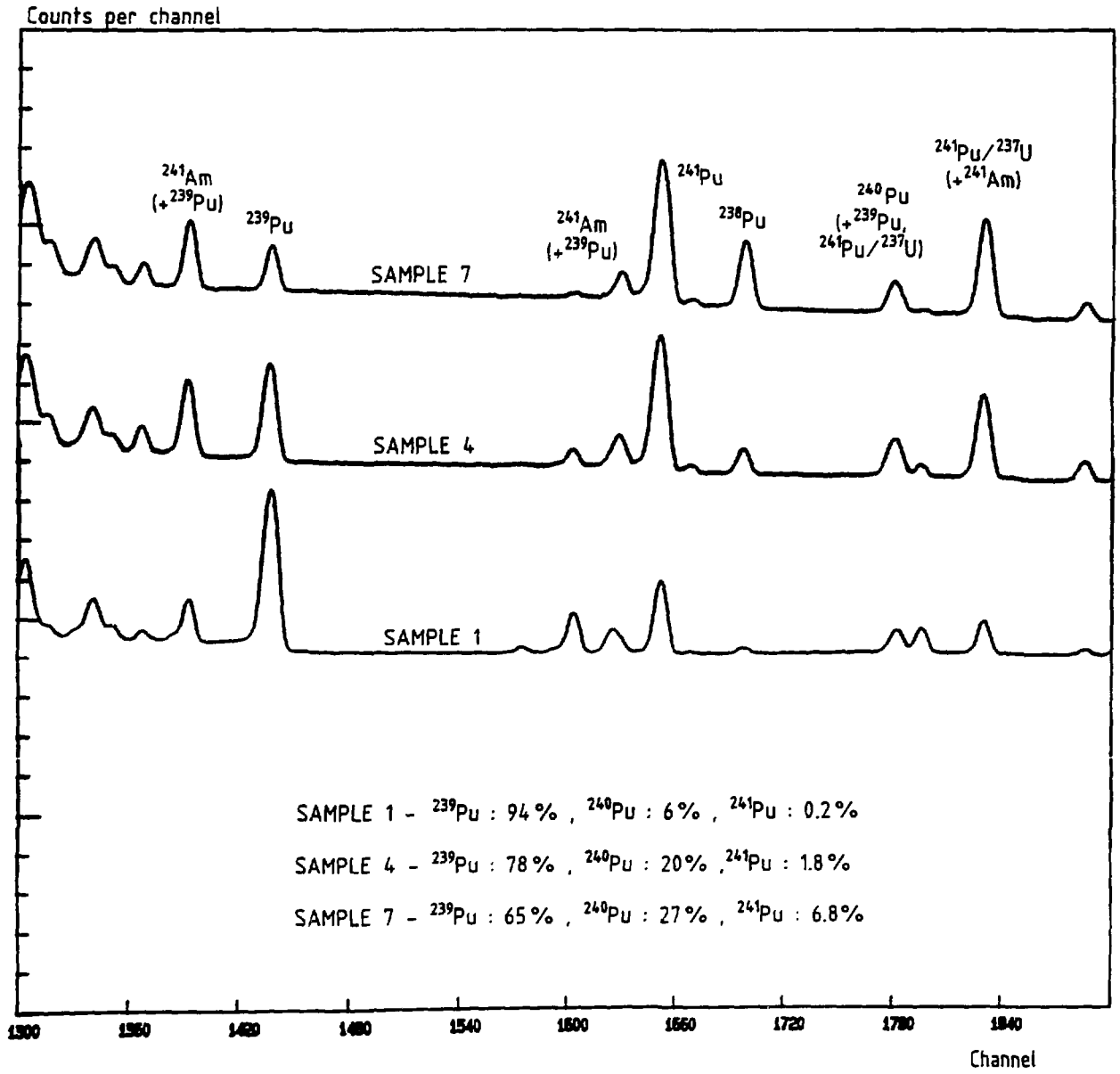


Fig. 4 - THE 200 - TO 450 keV ENERGY REGION FROM PIDIE
PLUTONIUM SAMPLES

Ge-Hp - fwhm: 600eV at 122keV
Size: 3cc - Sensitivity: .09keV/channel
Absorbers: 1.7mm Cd + 2.0mm Cu

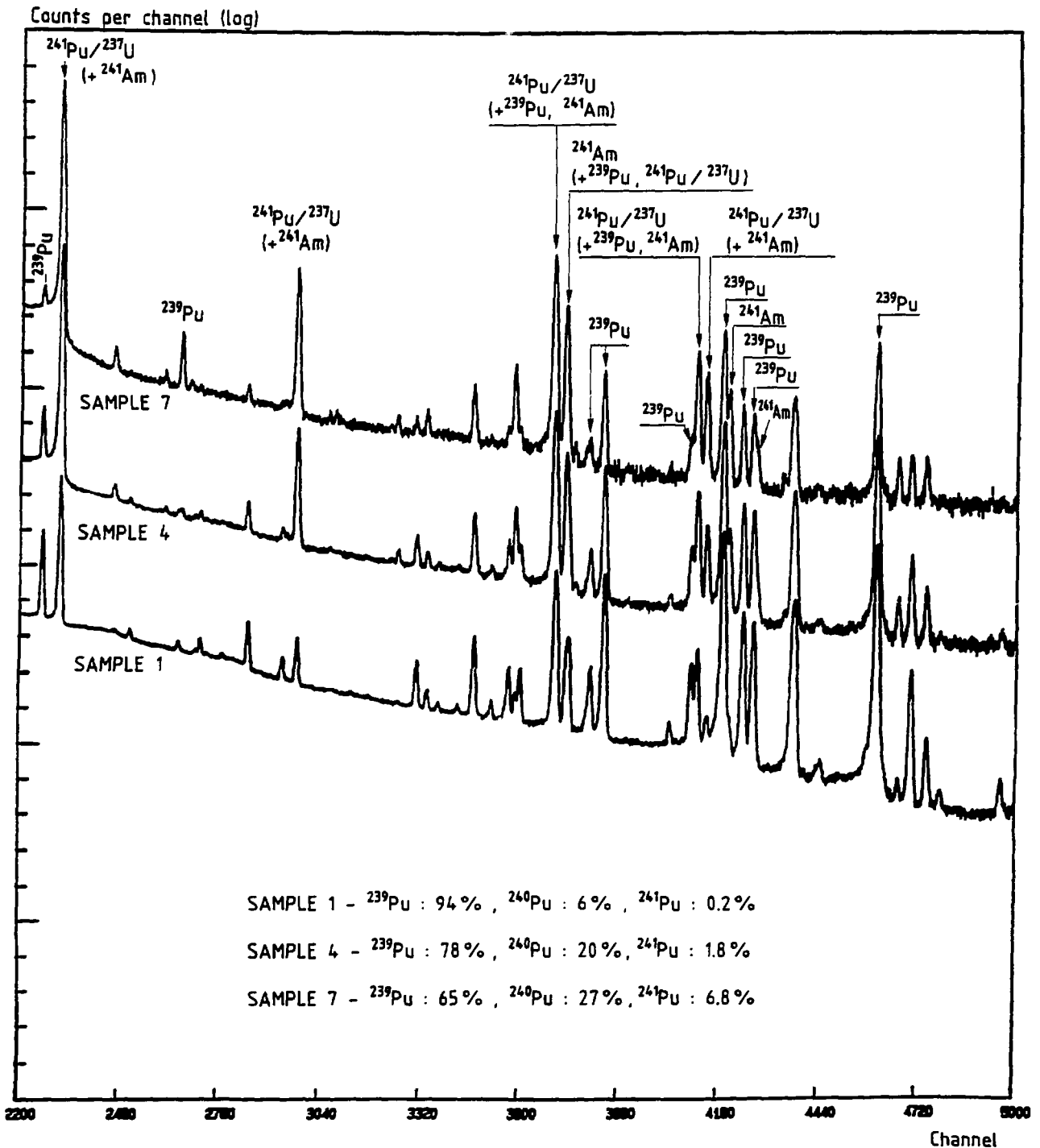
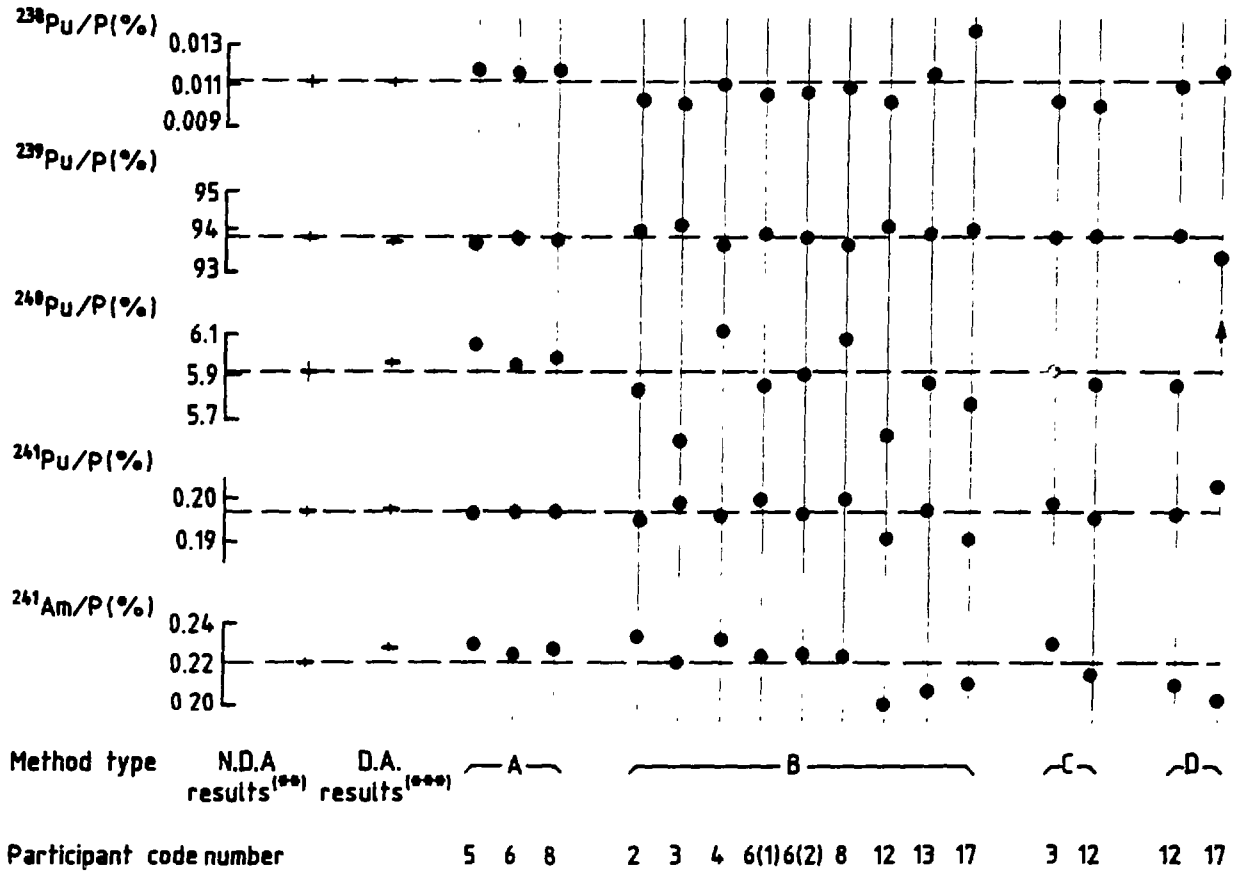
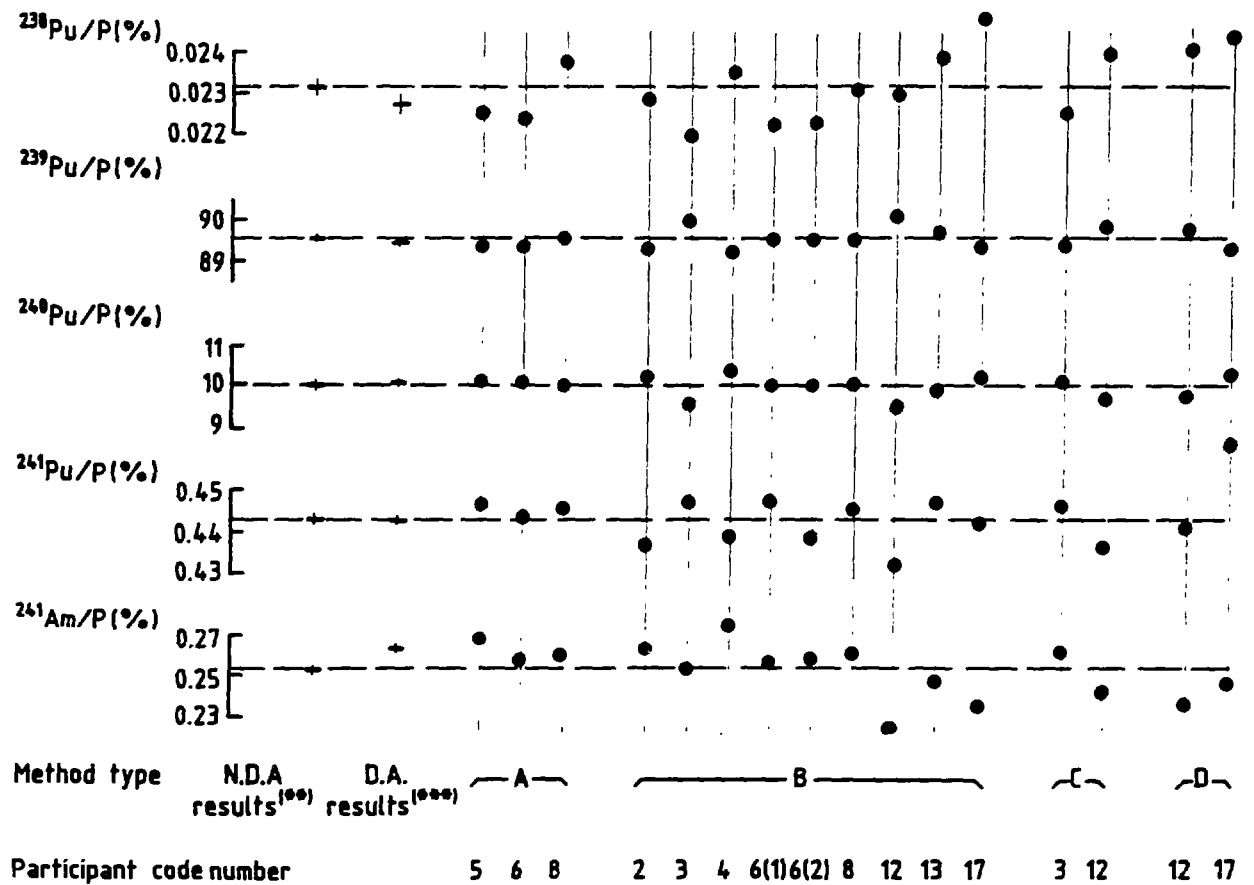


Fig. 5 - INDIVIDUAL RESULTS FROM GAMMA-RAY SPECTROMETRY FOR SAMPLE N°1



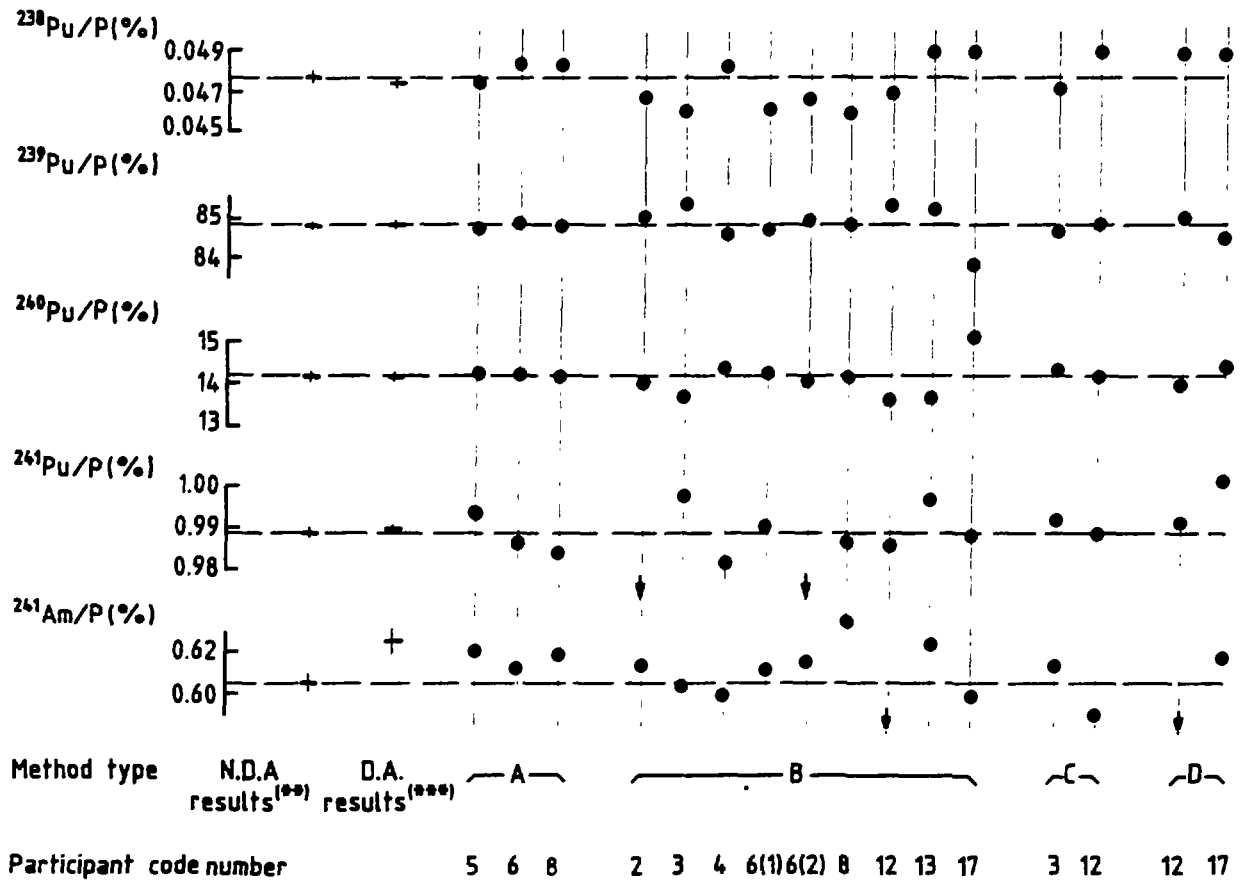
- * -P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu
- ** -N.D.A. results : γ -ray spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean
- ***-D.A results : mass-spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean

Fig. 6 - INDIVIDUAL RESULTS FROM GAMMA-RAY SPECTROMETRY FOR SAMPLE N°2



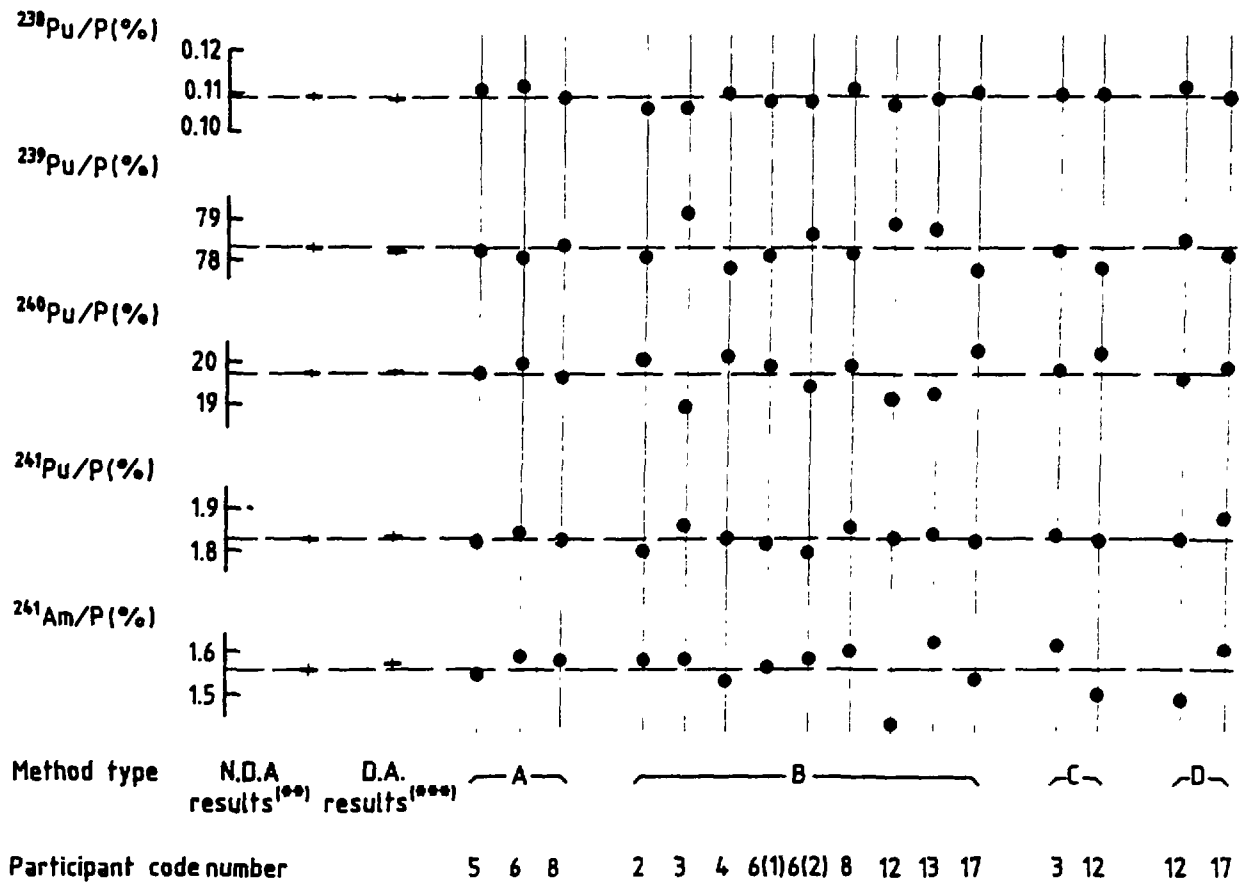
- * -P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu
- ** -N.D.A. results : γ -ray spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean
- *** -D.A results : mass-spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean

Fig. 7 - INDIVIDUAL RESULTS FROM GAMMA-RAY SPECTROMETRY FOR SAMPLE N°3



- * -P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{261}Pu
- ** -N.D.A. results : γ -ray spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean
- ***-D.A results : mass-spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean

Fig. 8 - INDIVIDUAL RESULTS FROM GAMMA-RAY SPECTROMETRY FOR SAMPLE N°4

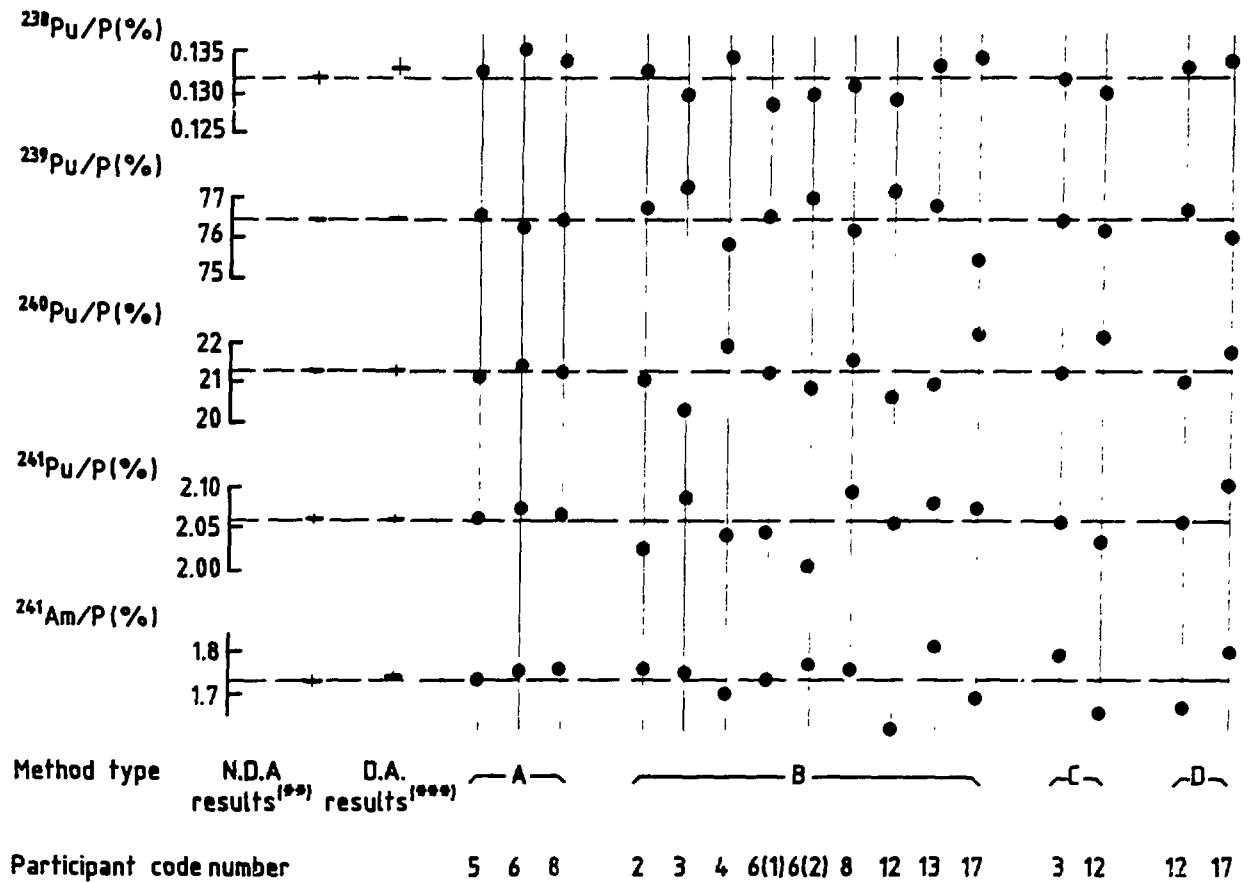


* ΣP : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu

** -N.D.A. results : γ -ray spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean

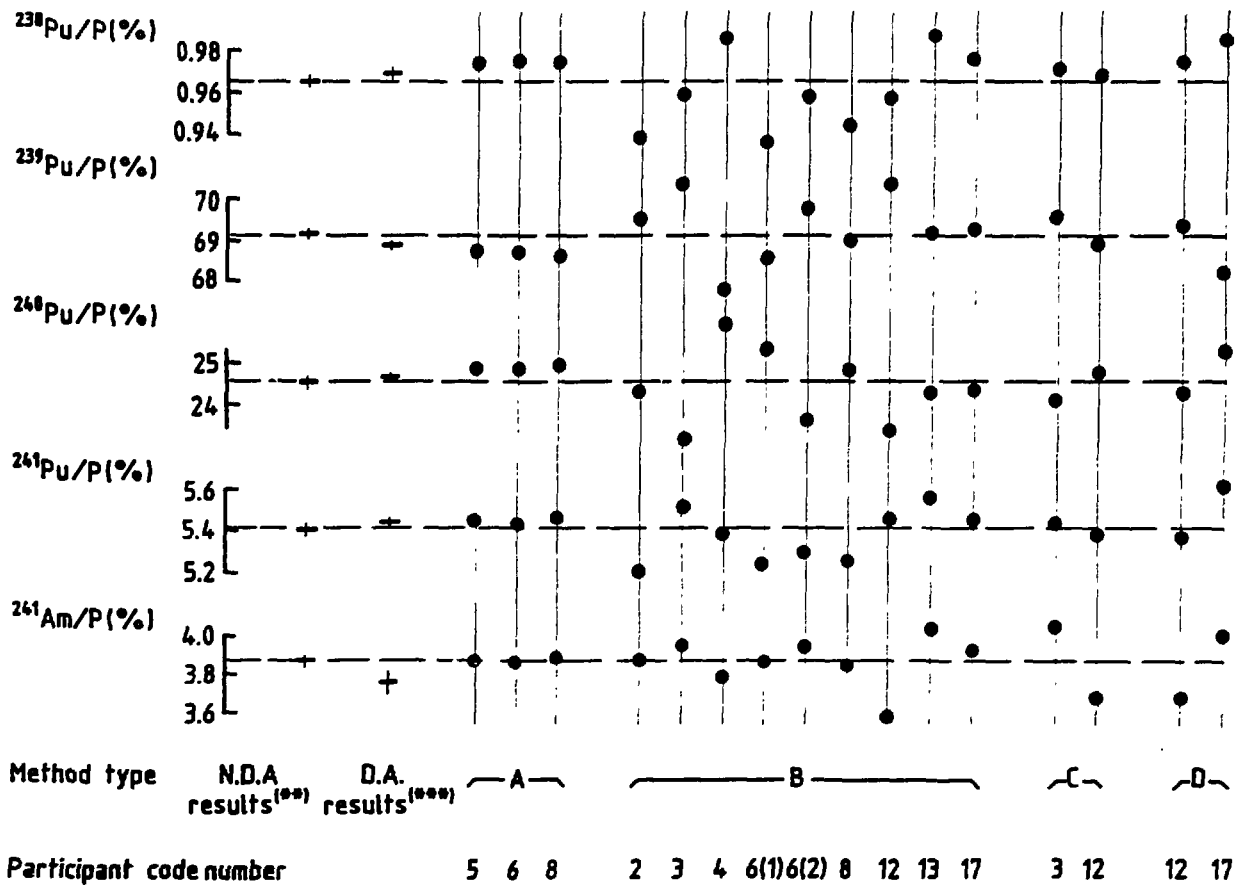
***-D.A results : mass-spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean

Fig. 9 - INDIVIDUAL RESULTS FROM GAMMA-RAY SPECTROMETRY FOR SAMPLE N°5



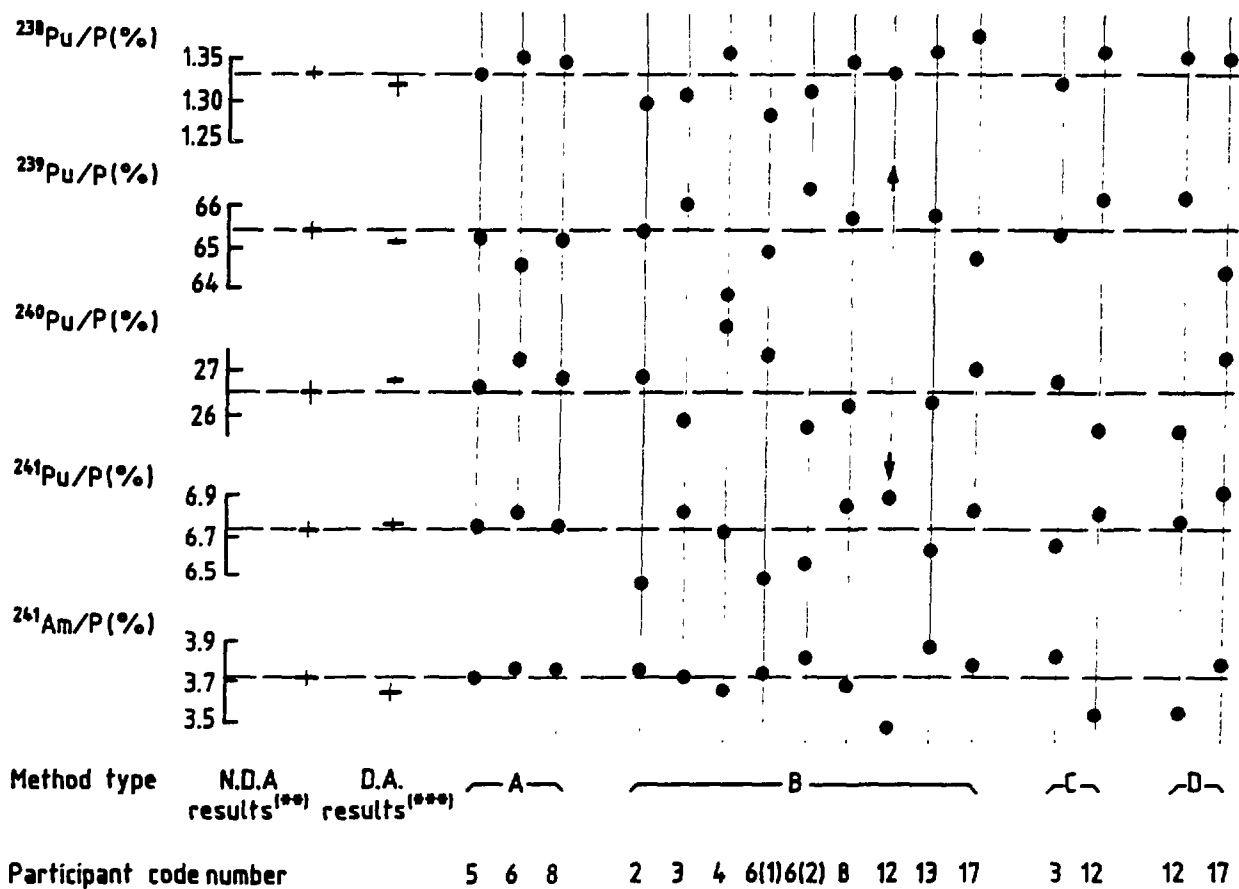
- * -P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu
 ** -N.D.A. results : γ -ray spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean
 *** -D.A. results : mass-spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean

Fig. 10 - INDIVIDUAL RESULTS FROM GAMMA-RAY SPECTROMETRY FOR SAMPLE N°6



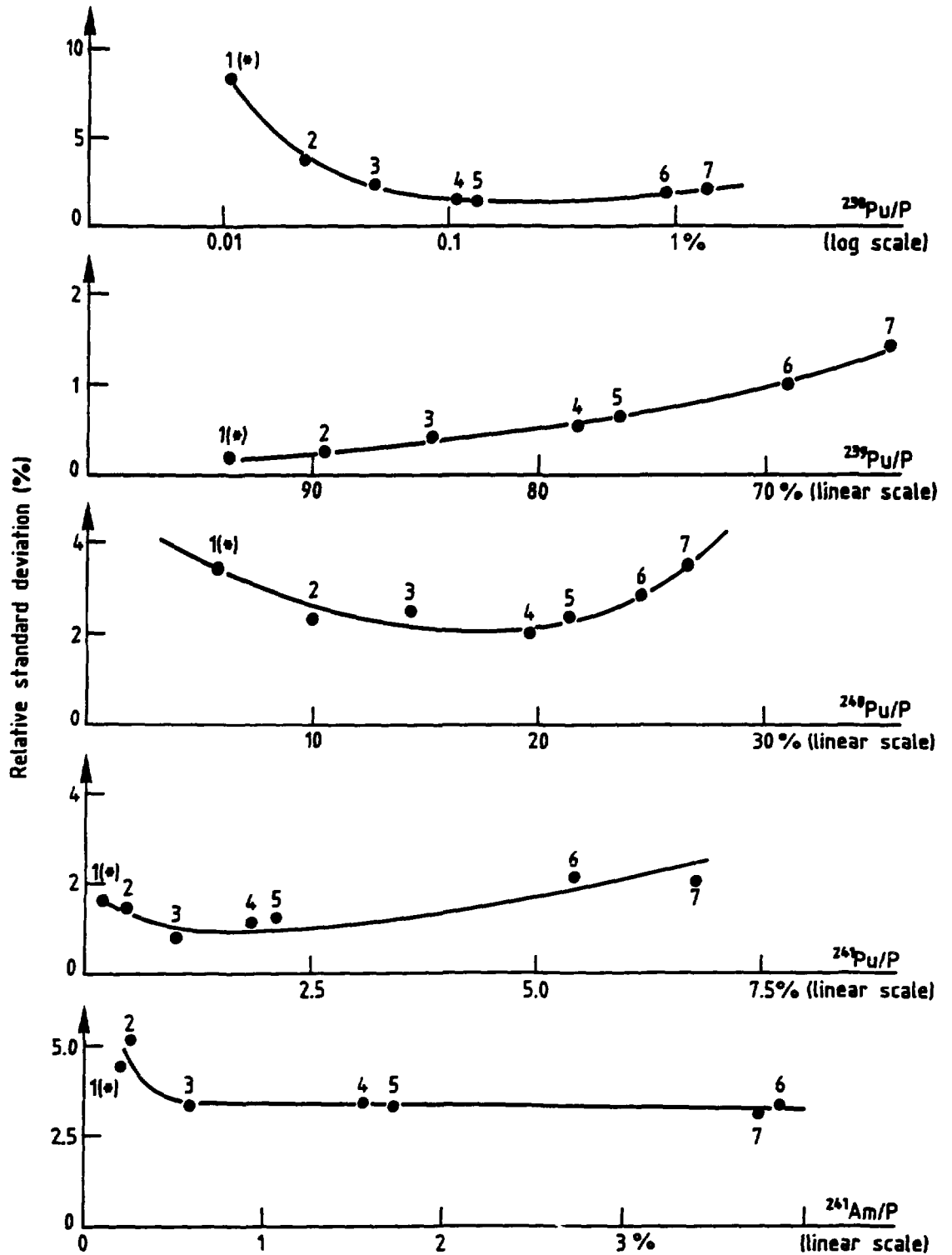
* -P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu
 ** -N.D.A. results : γ -ray spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean
 *** -D.A results : mass-spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean

Fig. 11 - INDIVIDUAL RESULTS FROM GAMMA-RAY SPECTROMETRY FOR SAMPLE N°7



* -P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu
 ** -N.D.A. results : γ -ray spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean
 *** -D.A results : mass-spectrometry unweighted mean values with standard deviations on mean

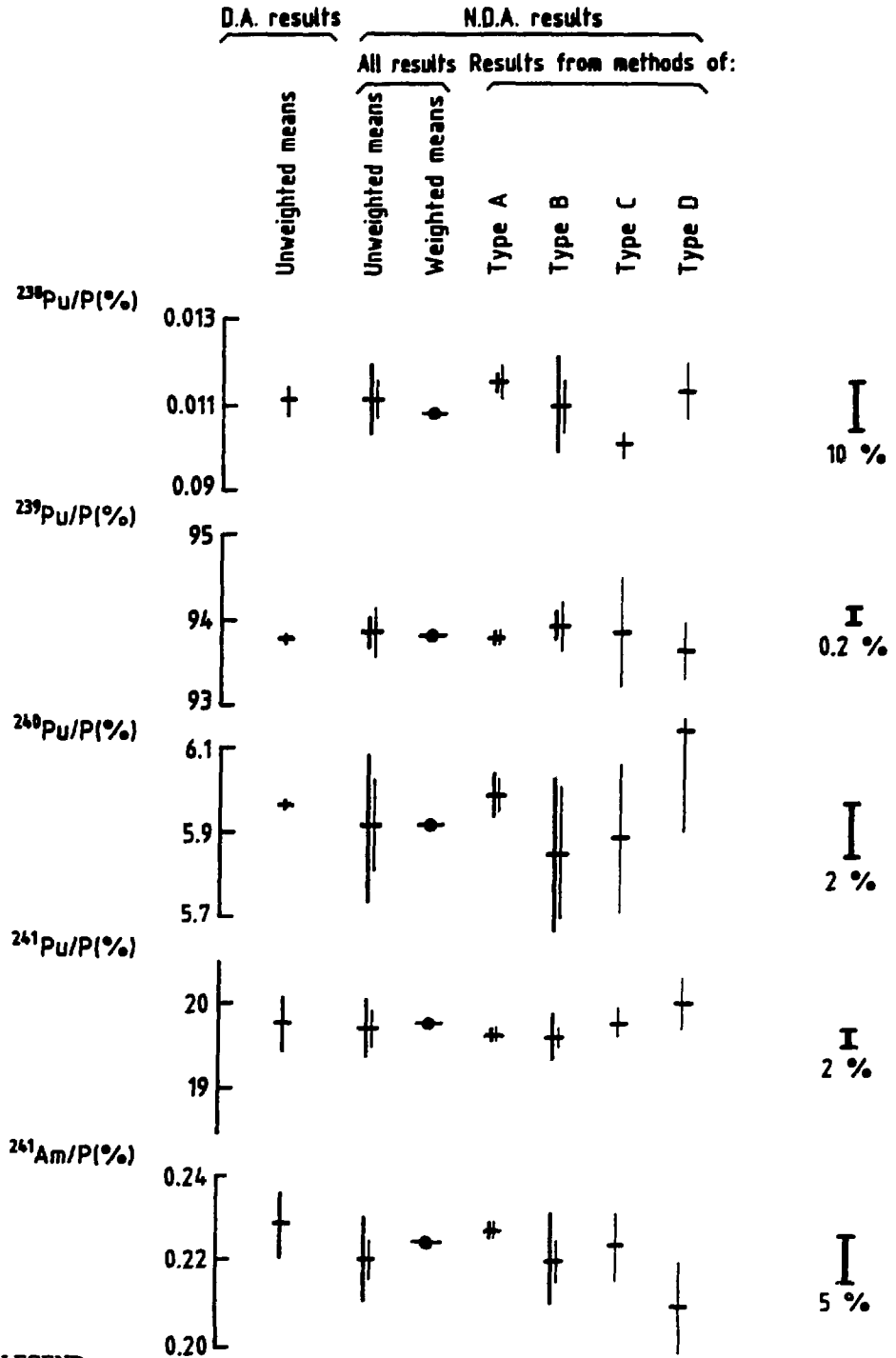
Fig. 12 - RELATIVE STANDARD DEVIATION ON A SINGLE RESULT OBTAINED FROM ALL X/ γ -RAY SPECTROMETRY RESULTS VERSUS ATOMIC RATIOS



LEGEND

- (*) : sample number
- P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu

Fig. 13 - COMPARISON OF MEAN VALUES FOR SAMPLE N°1



LEGEND :

P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu

— : relative standard deviation for a single result

— : average of the relative uncertainties on result

D.A. results : results from destructive analysis techniques

N.D.A. results : results from non-destructive analysis techniques (X/γ-ray spectrometry)

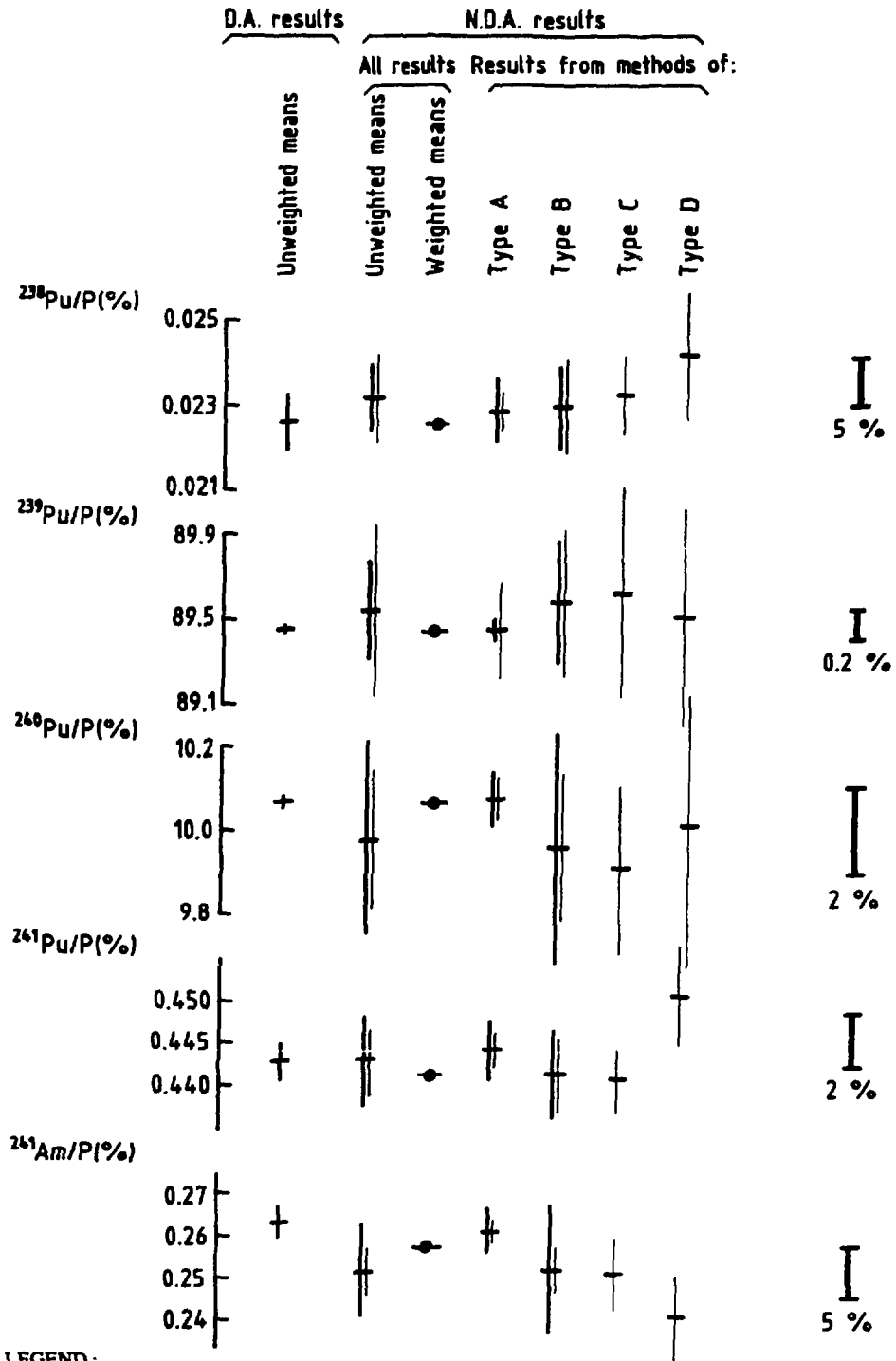
Type A : methods using mainly the X-ray region

Type B : 120 - 500 keV region analysis procedures with UCRL data

Type C : 120 - 500 keV region analysis procedures after correction with CBNM reference samples

Type D : 120 - 500 keV region analysis procedures using other data

Fig. 14 - COMPARISON OF MEAN VALUES FOR SAMPLE N°2



LEGEND :

P : sum of abundances of ²³⁸Pu to ²⁴¹Pu

— : relative standard deviation for a single result

— : average of the relative uncertainties on result

D.A results : results from destructive analysis techniques

N.D.A. results : results from non-destructive analysis techniques (X/γ-ray spectrometry)

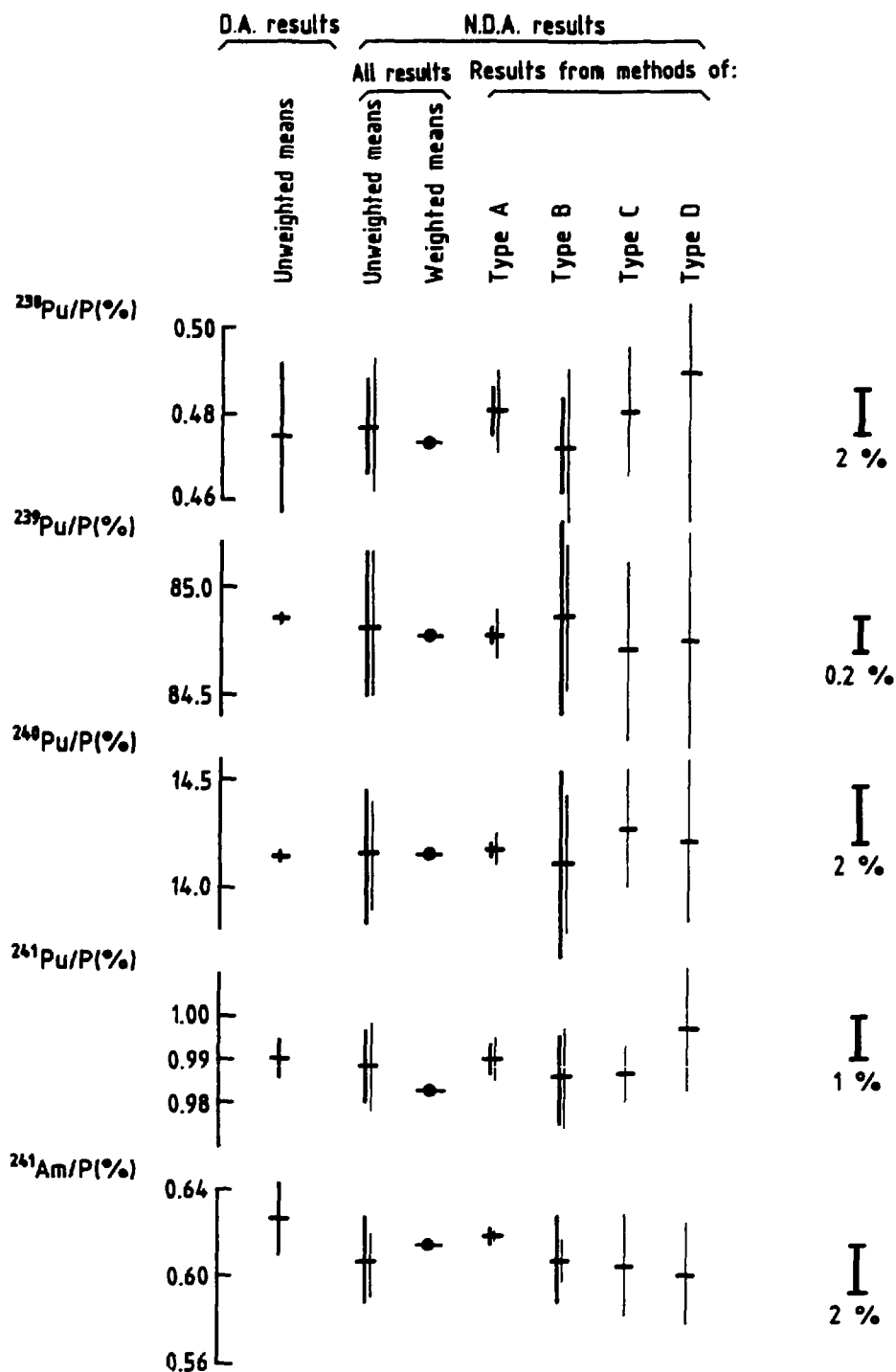
Type A : methods using mainly the X-ray region

Type B : 120 - 500 keV region analysis procedures with UCRL data

Type C : 120 - 500 keV region analysis procedures after correction with CBNM reference samples

Type D : 120 - 500 keV region analysis procedures using other data

Fig. 15 - COMPARISON OF MEAN VALUES FOR SAMPLE N°3



LEGEND :

P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu

— : relative standard deviation for a single result

— : average of the relative uncertainties on result

D.A. results : results from destructive analysis techniques

N.D.A. results : results from non-destructive analysis techniques (X γ -ray spectrometry)

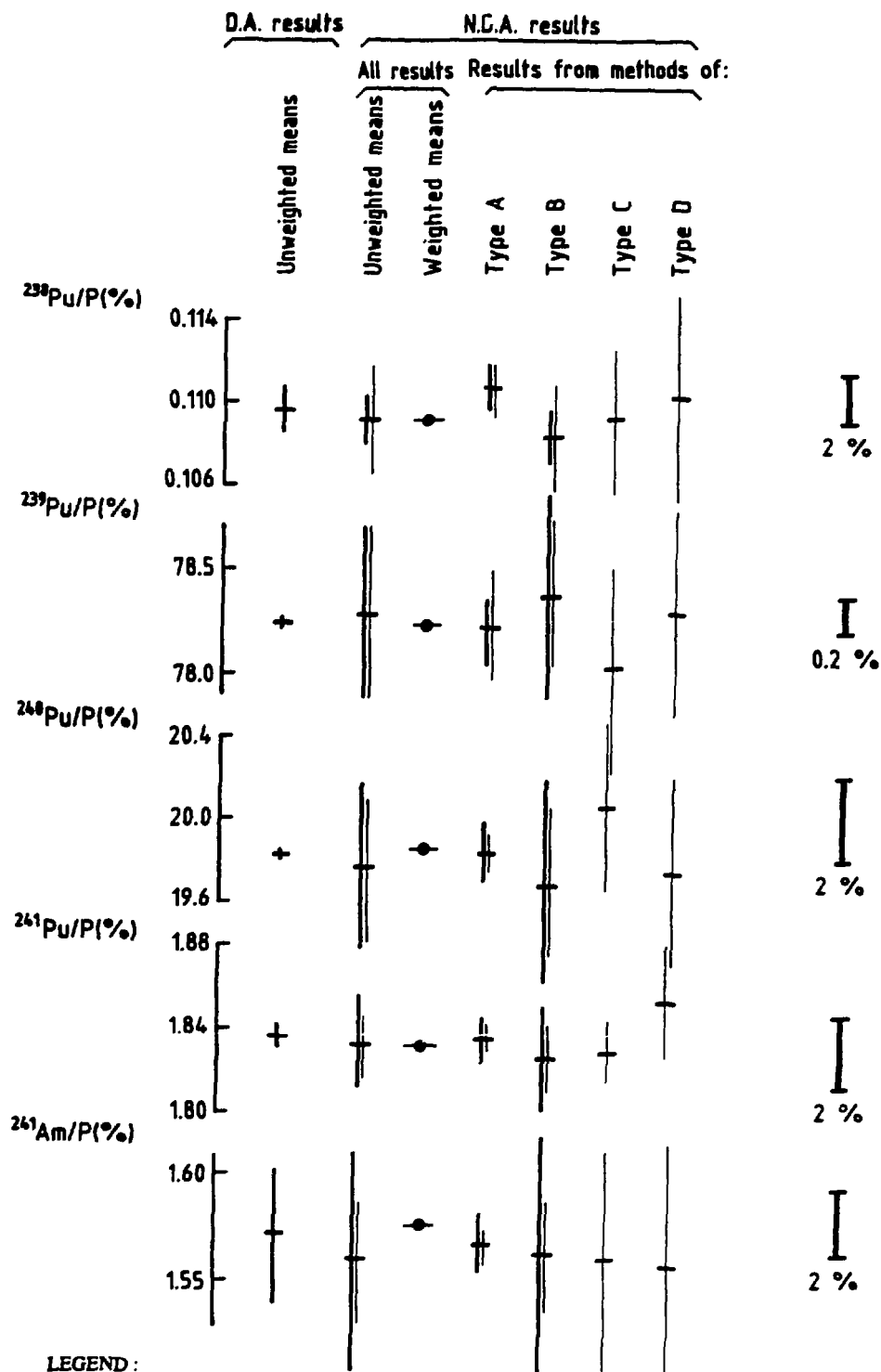
Type A : methods using mainly the X-ray region

Type B : 120 - 500 keV region analysis procedures with UCRL data

Type C : 120 - 500 keV region analysis procedures after correction with CBNM reference samples

Type D : 120 - 500 keV region analysis procedures using other data

Fig. 16 - COMPARISON OF MEAN VALUES FOR SAMPLE N°4



LEGEND :

P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu

— : relative standard deviation for a single result

— : average of the relative uncertainties on result

D.A. results : results from destructive analysis techniques

N.D.A. results : results from non-destructive analysis techniques (X/γ-ray spectrometry)

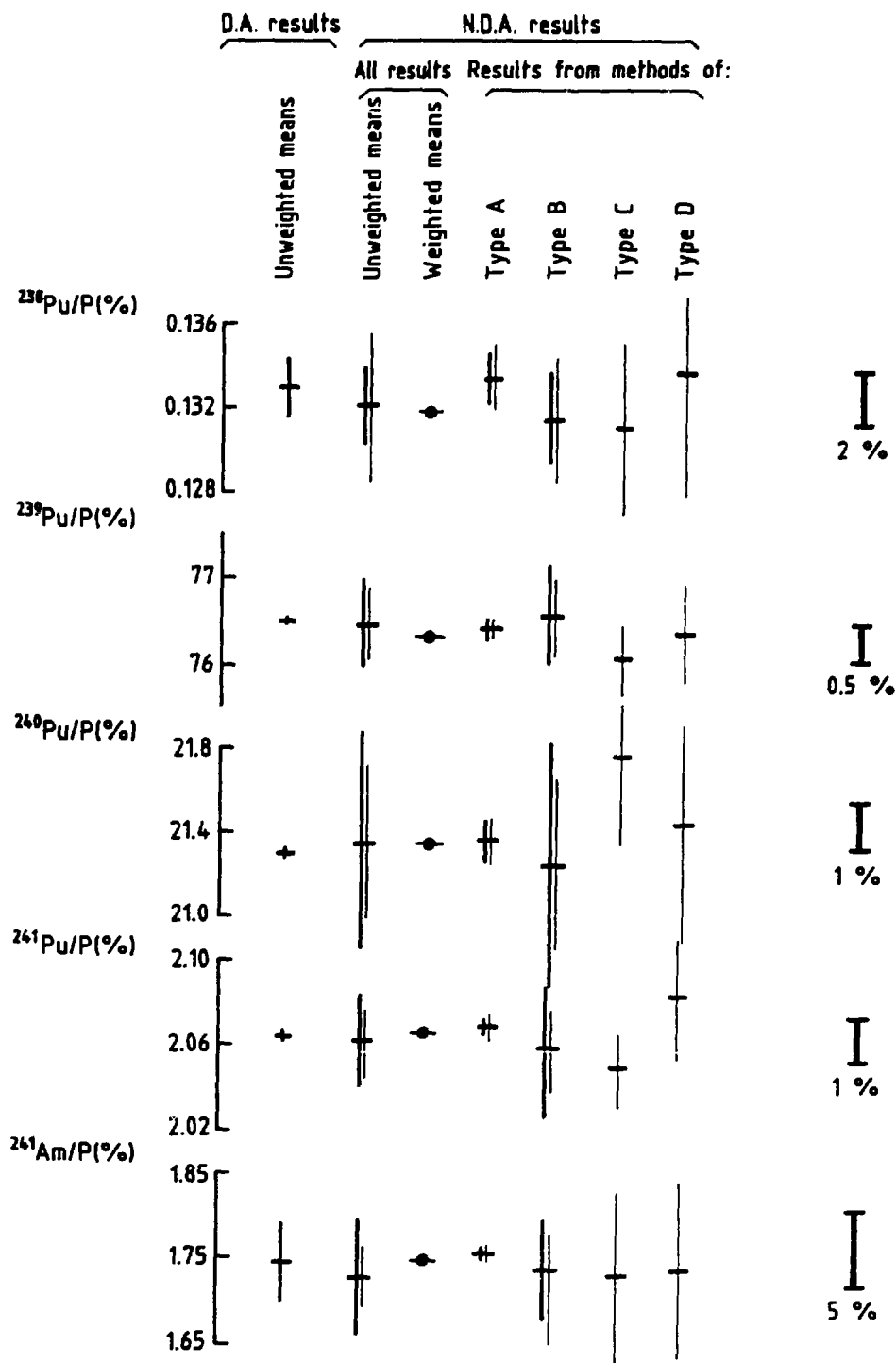
Type A : methods using mainly the X-ray region

Type B : 120 - 500 keV region analysis procedures with UCRL data

Type C : 120 - 500 keV region analysis procedures after correction with CBNM reference samples

Type D : 120 - 500 keV region analysis procedures using other data

Fig.17 - COMPARISON OF MEAN VALUES FOR SAMPLE N°5



LEGEND :

P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu

— : relative standard deviation for a single result

— : average of the relative uncertainties on result

D.A results : results from destructive analysis techniques

N.D.A. results : results from non-destructive analysis techniques (X γ -ray spectrometry)

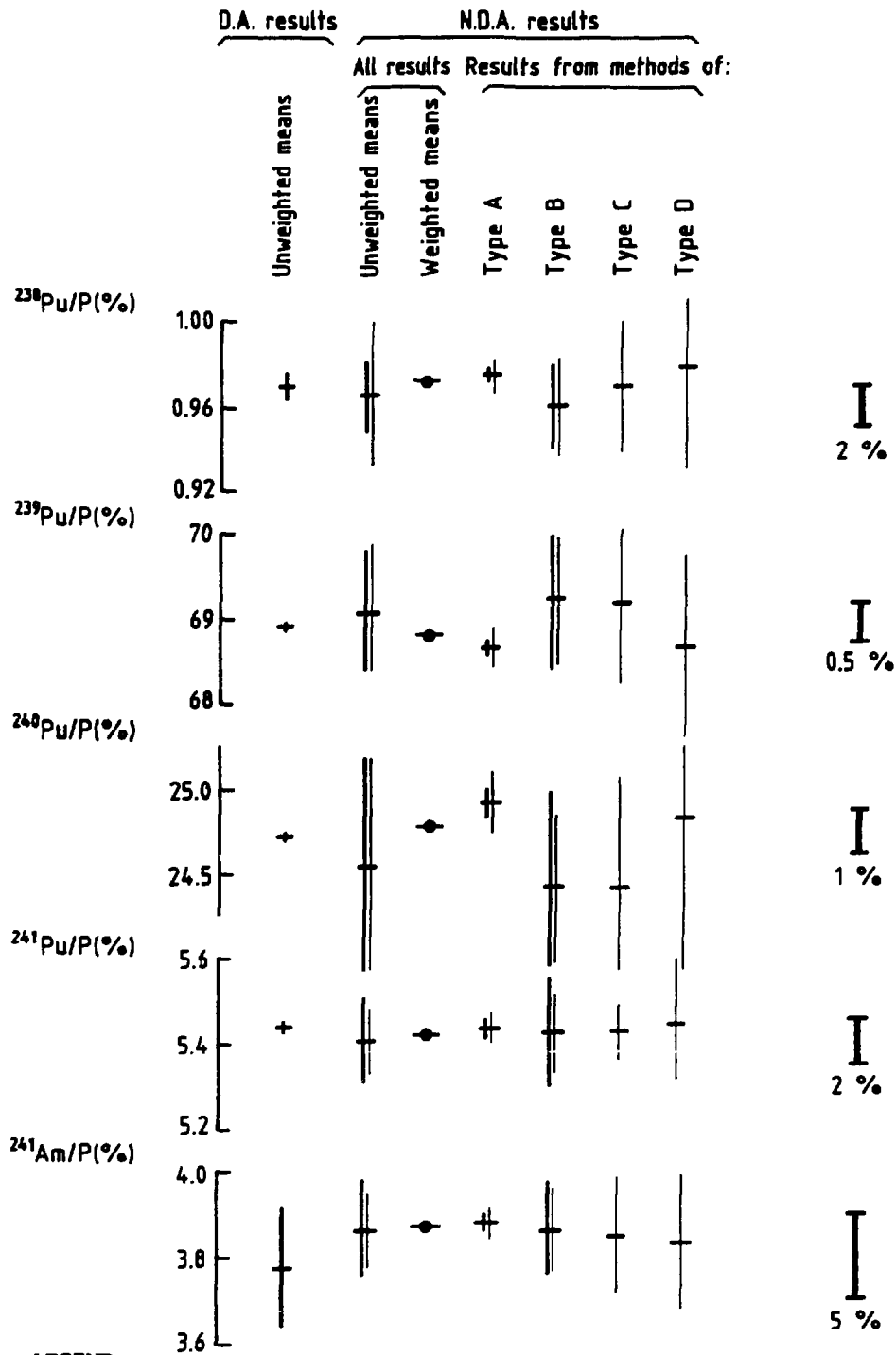
Type A : methods using mainly the X-ray region

Type B : 120 - 500 keV region analysis procedures with UCRL data

Type C : 120 - 500 keV region analysis procedures after correction with CBNM reference samples

Type D : 120 - 500 keV region analysis procedures using other data

Fig. 18 - COMPARISON OF MEAN VALUES FOR SAMPLE N°6



LEGEND :

P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu

— : relative standard deviation for a single result

— : average of the relative uncertainties on result

D.A results : results from destructive analysis techniques

N.D.A. results : results from non-destructive analysis techniques (X γ -ray spectrometry)

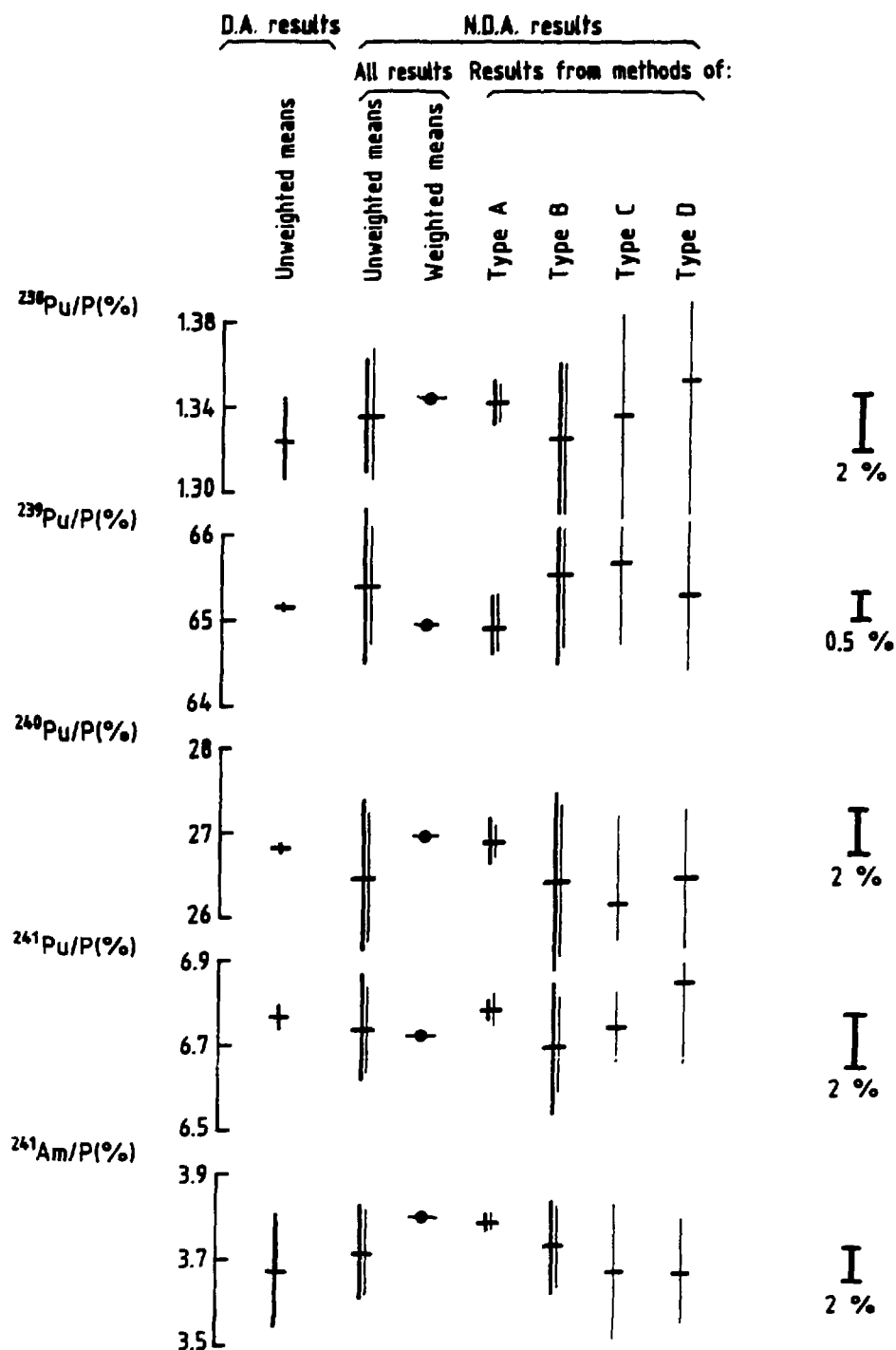
Type A : methods using mainly the X-ray region

Type B : 120 - 500 keV region analysis procedures with UCRL data

Type C : 120 - 500 keV region analysis procedures after correction with CBNM reference samples

Type D : 120 - 500 keV region analysis procedures using other data

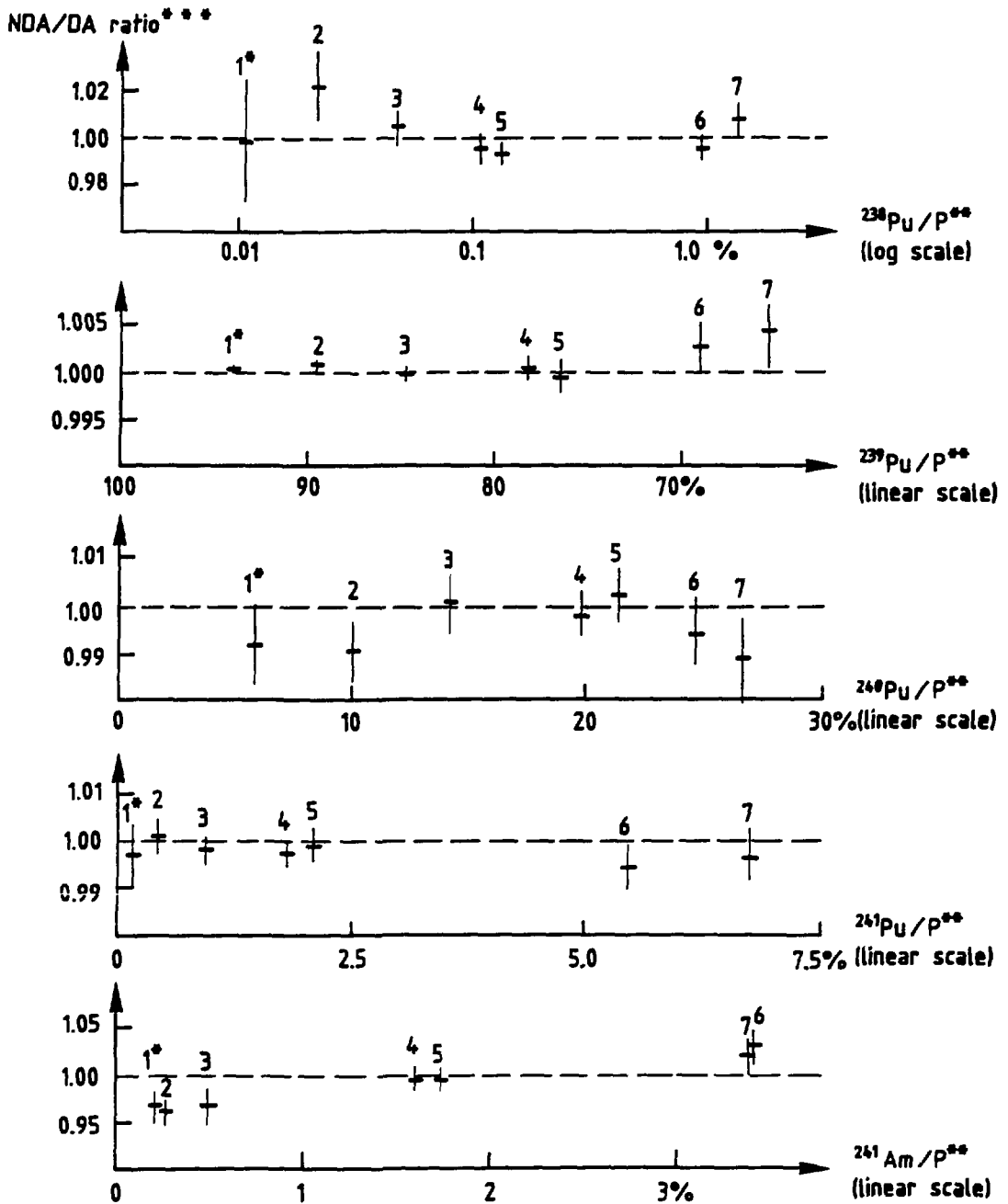
Fig. 19 - COMPARISON OF MEAN VALUES FOR SAMPLE N°7



LEGEND :

- P : sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu
- : relative standard deviation for a single result
- : average of the relative uncertainties on result
- D.A results : results from destructive analysis techniques
- N.D.A. results : results from non-destructive analysis techniques (X/γ-ray spectrometry)
- Type A : methods using mainly the X-ray region
- Type B : 120 - 500 keV region analysis procedures with UCRL data
- Type C : 120 - 500 keV region analysis procedures after correction with CBNM reference samples
- Type D : 120 - 500 keV region analysis procedures using other data

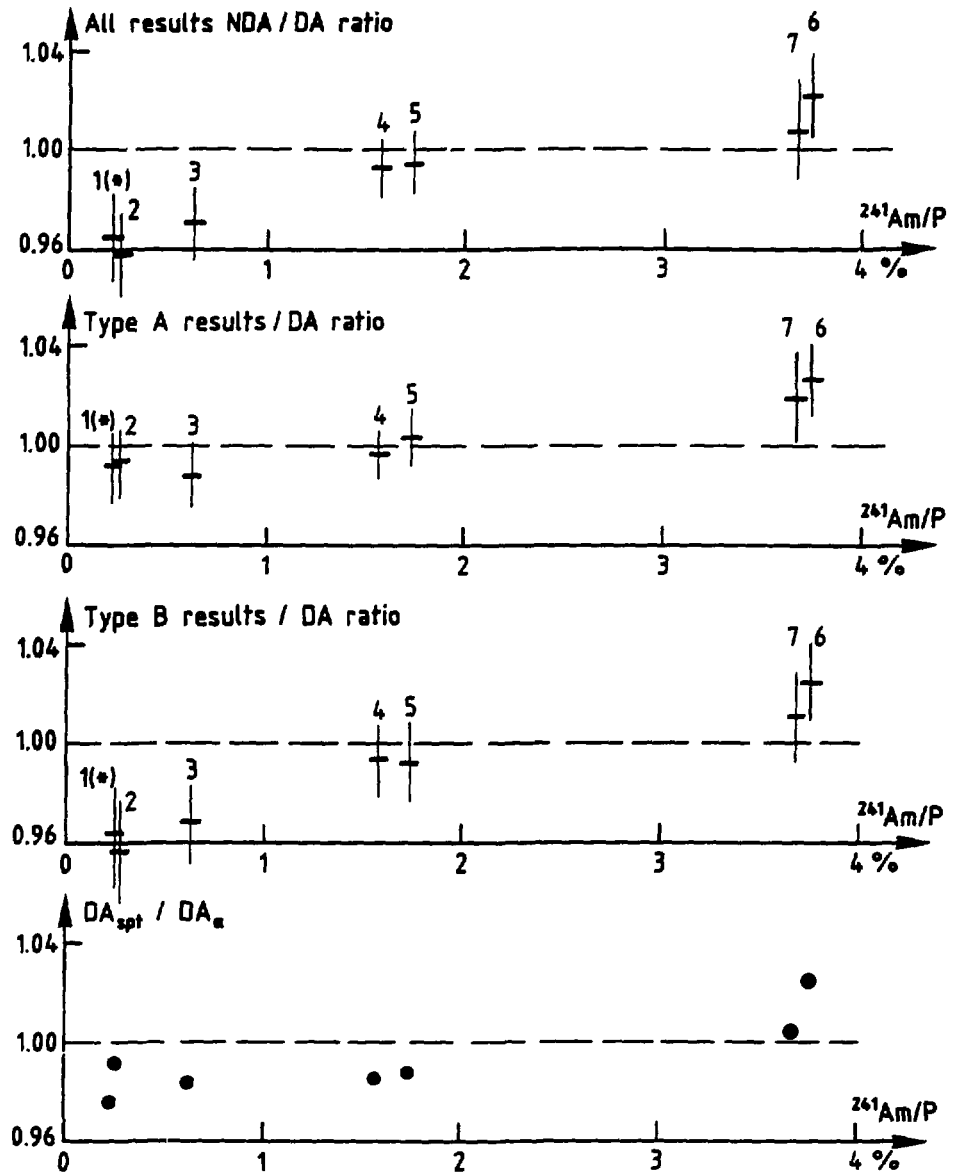
Fig.20- COMPARISON OF X/ γ - RAY SPECTROMETRY AND MASS - SPECTROMETRY RESULTS



LEGEND :

- * : Sample number
- ** : P = sum of abundances of ^{238}Pu to ^{241}Pu
- *** : NDA/DA ratio = ratio of unweighted means given by x/ γ -ray spectrometry and mass-spectrometry

Fig. 21 - BIAS OF ^{241}Am RESULTS; COMPARISON OF X/ γ -RAY SPECTROMETRY RESULTS AND D.A. RESULTS



LEGEND - (*): sample number

- P: sum of abundances of ^{239}Pu to ^{241}Pu
- NDA: results from non-destructive analyses (x/ γ -ray spectrometry)
- DA: results from destructive analyses
- All results NDA / DA ratio: ratio of unweighted means calculated for all x/ γ -ray spectrometry results to unweighted means calculated for DA results
- Type A results / DA ratio: ratio of unweighted means calculated for results of type A methods to unweighted means calculated for DA results
- Type B results / DA ratio: ratio of unweighted means calculated for results of type B methods to unweighted means calculated for DA results
- $\text{DA}_{\text{spt}} / \text{DA}_{\alpha}$: ratio of results given by double spike technique to alpha-counting results

ANNEXE A - RESULTATS PIDIE D'ANALYSES DESTRUCTIVES

Les résultats individuels, valeurs moyennes et écarts-type sur une mesure et sur la moyenne correspondants sont mentionnés dans les tableaux A1 à A7.

Exception faite du ^{238}Pu , les abondances de tous les isotopes du plutonium ont été déterminées par spectrométrie de masse. Les laboratoires A, B (B₁, B₂), C, D et E ont dosé le ^{238}Pu et l' ^{241}Am par comptages alpha ; la spectrométrie de masse a été employée par le laboratoire E pour une seconde mesure du ^{238}Pu . Le laboratoire F a toujours fait appel à la spectrométrie de masse pour doser tous les isotopes du plutonium et l'américium, en se reposant notamment sur la technique du double traceur.

APPENDIX A - PIDIE DESTRUCTIVE-ANALYSIS RESULTS

The individual results, mean values, and relative standard deviations of a single result and of the mean are given in Tables A1 to A7.

Except for ^{238}Pu , the abundances of all plutonium isotopes were determined by mass spectrometry. Laboratories A, B (B₁, B₂), C, D and E used alpha counting to determine the ^{238}Pu and ^{241}Am abundances; mass spectrometry was also used by laboratory E for a second determination of ^{238}Pu . Laboratory F always used mass spectrometry, with a double-spike technique to measure the isotopic distributions of the plutonium and the americium/plutonium ratios.

TABLEAU A1 - Résultats obtenus par spectrométrie de masse pour l'échantillon PIDIE n°1.

TABLE A1 - Results obtained by mass spectrometry for PIDIE sample n°1.

RATIOS	INDIVIDUAL RESULTS						FINAL RESULTS			
	Laboratory A measurement B/1	Laboratory B measurement B/2	Laboratory C	Laboratory D	Laboratory E	Laboratory F	Means	Relative standard deviations for a single result (%)	Relative standard deviations on mean (%)	
$^{238}\text{Pu}/\text{P}^{(*)}$	0.0108	0.0108 ₁	0.0108 ₀	0.011	0.011	0.0120	0.0110	0.0110 ₆	3.8	1.5
$^{239}\text{Pu}/\text{P}$	93.824 ₀	93.814	93.817	93.819	93.837	93.816	93.829 ₁	93.822 ₃	0.0099	0.0034
$^{240}\text{Pu}/\text{P}$	5.966 ₇	5.974 ₁	5.969 ₇	5.974	5.958	5.977	5.962 ₉	5.968 ₉	0.11	0.043
$^{241}\text{Pu}/\text{P}$	0.1985	0.2011 ₆	0.2028 ₇	0.195	0.194	0.195	0.1971	0.1976 ₆	1.7	0.64
$^{241}\text{Am}^{(**)}/\text{P}$	0.2253	0.2292	—	0.226	0.224	0.243	0.2244	0.2286	3.2	1.3
$^{242}\text{Pu}/\text{Pu}^{(***)}$	0.0350	0.0345 ₃	0.0373 ₈	0.033	0.032	0.032	0.0352	0.0342	5.7	2.2

* Normalized to sum ^{238}Pu to ^{241}Pu inclusive and backdated to 88.01.01.

** Backdated to 88.01.01 after decay correction including the production by ^{241}Pu .

*** Normalized to sum ^{238}Pu to ^{242}Pu .

TABLEAU A2 - Résultats obtenus par spectrométrie de masse pour l'échantillon PIDIE n°2.

TABLE A2 - Results obtained by mass spectrometry for PIDIE sample n°2.

RATIOS	INDIVIDUAL RESULTS						FINAL RESULTS			
	Laboratory A measurement B/1	Laboratory B measurement B/2	Laboratory C	Laboratory D	Laboratory E	Laboratory F	Means	Relative standard deviations for a single result (%)	Relative standard deviations on mean (%)	
$^{238}\text{Pu}/\text{P}^*$	0.0226	0.0225 ₆	0.0225 ₆	0.022	0.022	0.024	0.0233	0.0227 ₂	3.1	1.2
$^{239}\text{Pu}/\text{P}$	89.457 ₂	89.452	89.457	89.479	89.469	89.466	89.461 ₉	89.463 ₂	0.010	0.0039
$^{240}\text{Pu}/\text{P}$	10.076 ₃	10.081	10.077	10.054	10.067	10.072	10.071 ₇	10.071 ₃	0.068	0.033
$^{241}\text{Pu}/\text{P}$	0.4439	0.4449 ₈	0.4439 ₈	0.444	0.442	0.438	0.4431	0.442 ₈	0.52	0.20
$^{241}\text{Am}^{**}/\text{P}$	0.2647	0.2685	—	0.263	0.259	0.263	0.2616	0.2633	1.2	0.49
$^{242}\text{Pu}/\text{Pu}^{***}$	0.0941	0.0937 ₇	0.0970 ₅	0.093	0.089	0.0909	0.0948	0.0932	2.8	1.1

* Normalized to sum ^{238}Pu to ^{241}Pu inclusive and backdated to 88.01.01.

** Backdated to 88.01.01 after decay correction including the production by ^{241}Pu .

*** Normalized to sum ^{238}Pu to ^{242}Pu .

TABLEAU A3 - Résultats obtenus par spectrométrie de masse pour l'échantillon PIDIE n°3.

TABLE A3 - Results obtained by mass spectrometry for PIDIE sample n°3.

RATIOS	INDIVIDUAL RESULTS							FINAL RESULTS		
	Laboratory A	Laboratory B		Laboratory C	Laboratory D	Laboratory E	Laboratory F	Means	Relative standard deviations for a single result (%)	Relative standard deviations on mean (%)
		measurement B/1	measurement B/2							
$^{238}\text{Pu}/\text{P}^{\circ}$	0.0472	0.0475 ₅	0.0474 ₆	0.047	0.048	0.047	0.0483	0.0475	1.0	0.40
$^{239}\text{Pu}/\text{P}$	84.830 ₉	84.821	84.828	84.834	84.849	89.841	84.838 ₉	84.834 ₇	0.011	0.0041
$^{240}\text{Pu}/\text{P}$	14.131 ₂	14.137	14.131	14.125	14.116	14.131	14.122 ₉	14.127 ₇	0.049	0.018
$^{241}\text{Pu}/\text{P}$	0.9907	0.9944 ₁	0.9932 ₉	0.994	0.987	0.9810	0.9899	0.9900	0.48	0.18
$^{241}\text{Am}^{**})/\text{P}$	0.6257	0.6200	—	0.607	0.621	0.660	0.6158	0.6249	2.9	1.2
$^{242}\text{Pu}/\text{Pu}^{***}$	0.2354	0.2365 ₇	0.2322 ₀	0.236	0.209	0.2315	0.2369	0.2311	4.3	1.6

• Normalized to sum ^{238}Pu to ^{241}Pu inclusive and backdated to 88.01.01.

** Backdated to 88.01.01 after decay correction including the production by ^{241}Pu .

*** Normalized to sum ^{238}Pu to ^{242}Pu .

TABLEAU A4 - Résultats obtenus par spectrométrie de masse pour l'échantillon PIDIE n°4.

TABLE A4 - Results obtained by mass spectrometry for PIDIE sample n°4.

RATIOS	INDIVIDUAL RESULTS						FINAL RESULTS			
	Laboratory A measurement B/1		Laboratory B measurement B/2		Laboratory C	Laboratory D	Laboratory E	Laboratory F	Means	Relative standard deviations for a single result (%)
$^{238}\text{Pu}/\text{P}(\ast)$	0.1093	0.1092 ₈	0.1091 ₀	0.109	0.108	0.112	0.1107	0.1096	1.2	0.45
$^{239}\text{Pu}/\text{P}$	78.221 ₈	78.218	78.234	78.247	78.251	78.251	78.236 ₃	78.237 ₀	0.017	0.0065
$^{240}\text{Pu}/\text{P}$	19.828 ₁	19.830	9.817	19.806	19.808	19.810	19.816 ₀	19.816 ₄	0.048	0.018
$^{241}\text{Pu}/\text{P}$	1.840 ₈	1.842 ₃	1.839 ₈	1.838	1.833	1.827	1.836 ₉	1.836 ₈	0.29	0.11
$^{241}\text{Am}(\ast\ast)/\text{P}$	1.582	1.551 ₄	—	1.536	1.592	1.622	1.553 ₁	1.572 ₇	2.0	0.83
$^{242}\text{Pu}/\text{Pu}(\ast\ast\ast)$	0.5623	0.5628 ₈	0.56168	0.560	0.559	0.5539	0.5629	0.5604	0.57	0.22

* Normalized to sum ^{238}Pu to ^{241}Pu inclusive and backdated to 88.01.01.

** Backdated to 88.01.01 after decay correction including the production by ^{241}Pu .

*** Normalized to sum ^{238}Pu to ^{242}Pu .

TABLEAU A5 - Résultats obtenus par spectrométrie de masse pour l'échantillon PIDiE n°5.

TABLE A5 - Results obtained by mass spectrometry for PIDIE sample N°5.

RATIOS	INDIVIDUAL RESULTS						FINAL RESULTS			
	Laboratory A	Laboratory B		Laboratory C	Laboratory D	Laboratory E	Laboratory F	Means	Relative standard deviations for a single result (%)	Relative standard deviations on mean (%)
		measurement B/1	measurement B/2							
$^{238}\text{Pu}/\text{P}(\ast)$	0.1354	0.1321 ₀	0.1326 ₁	0.132	0.132	0.1350	0.1322	0.1330	1.1	0.42
$^{239}\text{Pu}/\text{P}$	76.498 ₅	76.506	76.475	76.484	76.523	76.527	76.512 ₅	76.503 ₇	0.025	0.0096
$^{240}\text{Pu}/\text{P}$	21.299 ₃	21.296	21.323	21.319	21.287	21.285	21.292 ₇	21.300 ₃	0.070	0.027
$^{241}\text{Pu}/\text{P}$	2.066 ₈	2.066 ₃	2.069 ₅	2.066	2.059	2.053	2.062 ₆	2.063 ₃	0.27	0.10
$^{241}\text{Am}(\ast\ast)/\text{P}$	1.709	1.741 ₈	—	1.725	1.744	1.842	1.728 ₈	1.748 ₄	2.7	1.1
$^{242}\text{Pu}/\text{Pu}(\ast\ast\ast)$	0.6970	0.6953 ₂	0.6944 ₈	0.694	0.693	0.6912	0.6914	0.6938	0.30	0.11

* Normalized to sum ^{238}Pu to ^{241}Pu inclusive and backdated to 88.01.01.

** Backdated to 88.01.01 after decay correction including the production by ^{241}Pu .

*** Normalized to sum ^{238}Pu to ^{242}Pu .

TABLEAU A6 - Résultats obtenus par spectrométrie de masse pour l'échantillon PIDIE n°6.

TABLE A6 - Results obtained by mass spectrometry for PIDIE sample n°6.

RATIOS	INDIVIDUAL RESULTS							FINAL RESULTS		
	Laboratory A measurement B/1	Laboratory B measurement B/2	Laboratory C	Laboratory D	Laboratory E	Laboratory F	Means	Relative standard deviations for a single result (%)	Relative standard deviations on mean (%)	
$^{238}\text{Pu}/\text{P}(\ast)$	0.9782	0.9668 ₁	0.9693 ₃	0.958	0.974	0.968	0.9719	0.9695	0.65	0.25
$^{239}\text{Pu}/\text{P}$	68.870 ₅	68.892	68.894	68.897	68.882	68.906	68.890 ₁	68.890 ₂	0.016	0.0062
$^{240}\text{Pu}/\text{P}$	24.710 ₅	24.702	24.702	24.679	24.709	24.716	24.700 ₅	24.702 ₇	0.048	0.018
$^{241}\text{Pu}/\text{P}$	5.440 ₃	5.439 ₁	5.435 ₆	5.466	5.435	5.411	5.437 ₅	5.437 ₈	0.29	0.11
$^{241}\text{Am}(\ast\ast)/\text{P}$	3.888	3.876 ₈	—	3.558	3.883	3.600	3.847 ₄	3.775 ₅	4.1	1.7
$^{242}\text{Pu}/\text{Pu}(\ast\ast\ast)$	3.5249	3.5180	3.5162	3.521	3.521	3.509	3.520 ₂	3.518 ₆	0.14	0.054

* Normalized to sum ^{238}Pu to ^{241}Pu inclusive and backdated to 88.01.01.

** Backdated to 88.01.01 after decay correction including the production by ^{241}Pu .

*** Normalized to sum ^{238}Pu to ^{242}Pu .

TABLEAU A7 - Résultats obtenus par spectrométrie de masse pour l'échantillon PIDIE n°7.

TABLE A7 - Results obtained by mass spectrometry for PIDIE sample n°7.

RATIOS	INDIVIDUAL RESULTS						FINAL RESULTS			
	Laboratory A measurement B/1	Laboratory B measurement B/2	Laboratory C	Laboratory D	Laboratory E	Laboratory F	Means	Relative standard deviations for a single result (%)	Relative standard deviations on mean (%)	
$^{238}\text{Pu}/\text{P}(\ast)$	1.342 ₇	1.318 ₆	1.324 ₅	1.286	1.347	1.303	1.331 ₃	1.322	1.6	0.62
$^{239}\text{Pu}/\text{P}$	65.091 ₄	65.090	65.091	65.238	65.112	65.176	65.124 ₄	65.131 ₈	0.066	0.032
$^{240}\text{Pu}/\text{P}$	26.788 ₇	26.806	26.802	26.729	26.783	26.780	26.780 ₈	26.781 ₃	0.094	0.036
$^{241}\text{Pu}/\text{P}$	6.777 ₂	6.785 ₀	6.782 ₂	6.747	6.758	6.741	6.763 ₄	6.764 ₈	0.25	0.097
$^{241}\text{Am}(\ast\ast)/\text{P}$	3.801	3.710 ₁	—	3.455	3.608	3.807	3.681 ₁	3.677 ₀	3.6	1.5
$^{242}\text{Pu}/\text{Pu}(\ast\ast\ast)$	4.6336	4.6411	4.6394	4.612	4.626	4.618	4.626 ₆	4.628 ₁	0.23	0.087

- Normalized to sum ^{238}Pu to ^{241}Pu inclusive and backdated to 88.01.01.
- Backdated to 88.01.01 after decay correction including the production by ^{241}Pu .
- Normalized to sum ^{238}Pu to ^{242}Pu .

*Achévé d'imprimer
par
le CEA, Service de Documentation et d'Édition Multimédia
Décembre 1991*

DEPOT LEGAL
4ème trimestre 1991

ISSN 0429 - 3460

La diffusion des rapports et bibliographies du Commissariat à l'Énergie Atomique est assurée par le Service de Documentation et d'Édition Multimédia, CE-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cédex, (France)

Reports and bibliographies of the Commissariat à l'Énergie Atomique are available from the Service de Documentation et d'Édition Multimédia, CE-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cédex, (France)

*Édité par
le Service de Documentation
et d'Édition Multimédia
Centre d'Études de Saclay
91191 GIF-sur-YVETTE Cédex (France)*

