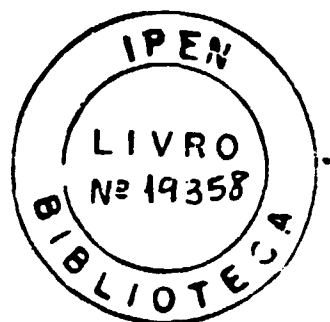


BR 9127169
NIS-BR--2663

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**APLICAÇÃO DA TÉCNICA DE CORRELAÇÃO ISOTÓPICA PARA
DETERMINAÇÃO DA CONCENTRAÇÃO DOS NUCLÍDEOS ^{241}Am E
 ^{243}Am EM COMBUSTÍVEIS NUCLEARES IRRADIADOS**

JORGE EDUARDO DE SOUZA SARKIS



Tese apresentada como parte dos requisitos para obtenção do Grau de Doutor na Área de Reatores Nucleares de Potência e Tecnologia do Combustível Nuclear.

Orientador: Dr. Claudio Rodrigues

SÃO PAULO
1990

*Dedico este trabalho a:
Eduardo (in memoriam), Clélia,
Regina, Julio, Ilva e Ana.*

AGRADECIMENTOS

Agradeço de modo especial ao Dr. Claudio Rodrigues, pela orientação, colaboração e confiança em mim depositada não somente durante a realização deste trabalho como também em todo o período de trabalho conjunto.

Ao Dr. Lothar Koch, pela possibilidade de realização deste trabalho junto ao Grupo de Radioquímica e Análises Isotópicas do *Institut for Transuranium Elements, EURATOM, Karlsruhe*.

Aos Doutores Marco A. Marzo e Adimir dos Santos, pelas proveitosas discussões quanto aos procedimentos de utilização do código computacional ORIGEN2.

Aos colegas do Centro de Processamento de Dados do IPEN, em especial ao Sr. Antonio S. de Gouvea, Sras. Maria do Carmo C. Falcão e Emilia K. Nakamura pelo apoio na utilização das facilidades daquele Departamento.

Ao Francisco L.B. Filho, Egberto Galego e Marilene M.S. Leal, pela ajuda na edição final deste trabalho.

As Sras. Ney Marly Moura e Elaine Campos, pela revisão bibliográfica.

Aos colegas do Grupo de Caracterização Isotópica, Mauricio H. Kakazu, Isabel M.S. Silva e João C. Ulrich, pelo apoio e paciência.

Aos amigos Adolf H. Müller, Marcio A. Araújo, Mauro B. Brasil, Neide e Darcy Fonseca, Ivone M. Sato, Marta e Nilson Dias, que embora nada entendam sobre correlações isotópicas podem muito bem compreender as dificuldades e quanto este trabalho representa para mim.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, pelo fornecimento do material e suporte financeiro.

Aos que direta ou indiretamente auxiliaram na execução deste trabalho, como também aqueles que em nada contribuíram mas também não atrapalharam. Nos dias de hoje, Deus sabe como isto é importante.

A todos, muito obrigado,

Jorge Eduardo S. Sarkis

"Pós-irradiados - Nosso próximo desafio"

APLICAÇÃO DA TÉCNICA DE CORRELAÇÃO ISOTÓPICA PARA DETERMINAÇÃO DA CONCENTRAÇÃO DOS NUCLÍDEOS ^{241}Am E ^{243}Am EM COMBUSTÍVEIS NUCLEARES IRRADIADOS

Jorge Eduardo de Souza Sarkis

RESUMO

Nos últimos anos a técnica de correlação isotópica tem se mostrado como uma poderosa técnica para determinação da concentração e composição isotópica de nuclídeos pesados no ciclo do combustível nuclear com significativa importância quer sob o ponto de vista de salvaguarda do material nuclear quer sob aspectos de contabilidade e previsão de formação da quantidade destes nuclídeos em combustíveis nucleares irradiados.

Neste trabalho foram propostas 42 correlações isotópicas entre os nuclídeos ^{241}Am e ^{243}Am envolvendo dados de caracterização isotópica de 7 amostras do elemento combustível BE-124 e 1 amostra do elemento combustível BE-120 pertencentes ao reator de potência à água pressurizada da Central Nuclear de Obrigheim, Alemanha Ocidental.

Por meio destas correlações a concentração isotópica dos nuclídeos ^{241}Am e ^{243}Am puderam ser estimadas com um desvio percentual relativo aos dados experimentais menores do que 10% em média. Estes valores mostraram-se mais precisos do que aqueles encontrados quando da utilização do código computacional ORIGEN2 demonstrando o potencial desta técnica tanto na determinação como na previsão de formação da quantidade destes nuclídeos em combustíveis nucleares irradiados.

São também discutidos aspectos técnicos analíticos das etapas de caracterização isotópica de materiais irradiados.

THE USE OF ISOTOPIC CORRELATION TECHNIQUE FOR DETERMINATION
OF ^{241}Am AND ^{243}Am CONCENTRATION IN NUCLEAR
IRRADIATED FUELS

Jorge Eduardo de Souza Sarkis

ABSTRACT

In the last years the isotopic correlation technique is emerging as a powerfull tool for the determination of concentration and isotopic composition of heavy nuclides in the nuclear fuel cycle . Accordingly , this technique has gained significant importance for the safeguard of the nuclear materials as well as for the accounting and build up of actnides elements in the irradiated nuclear fuels .

In this work 42 isotopic correlations between the nuclides ^{241}Am and ^{243}Am and post irradiation isotopic data of 7 samples from fuel element BE-124 and 1 sample from fuel element BE-120 from the Obrigheim pressurized water nuclear power reactor ,Federal Republic of Germany , were proposed .

These isotopic correlations allowed to estimate the isotopic concentrations of ^{241}Am and ^{243}Am with an average deviation , relative to the experimental data obtained from isotopic dilution mass spectrometry technique , of 10% .

These results are more precise than those found using the computer code ORIGEN 2 demonstrating the great potential of this technique for the determination of isotopic concentration and build up of those nuclides in irradiated nuclear fuels .

The analytical and other experimental aspects of the post irradiation isotopic analysis of nuclear fuels are also discussed .

ÍNDICE GERAL

I. Introdução	1
II. Objetivos	8
III. Considerações Teóricas	10
III.1. Correlações isotópicas	10
III.2. Definição das correlações isotópicas	19
III.2.1. Correlações isotópicas baseadas em isótopos de elementos pesados	22
III.2.2. Correlações isotópicas baseadas em isótopos de produtos estáveis de fissão	26
III.2.3. Correlações isotópicas baseadas em isótopos de produtos de fissão radioativos	28
III.2. Aplicações da técnica de correlação isotópica	33
IV. Parte Experimental	35
IV.1. Reator de Obrigheim	37
IV.2. Métodos de separação química dos elementos de interesse	41
IV.2.1. Separação química dos elementos urânio e plutônio	41
IV.2.2. Separação química dos elementos neodímio e amerício	43
IV.3. Caracterização isotópica do combustível nuclear irradiado	48
IV.3.1. Espectrometria gama	48
IV.3.2. Espectrometria de massa	51
IV.3.2.1. Preparo de amostras	54
IV.3.2.2. Análise	54
IV.3.2.3. Método de diluição isotópica ..	55

IV.4.	Espectrometria alfa	61
IV.4.1.	Determinação da concentração do nuclídeo ^{238}Pu	62
IV.5.	Métodos para determinação da queima do combustível nuclear irradiado	62
IV.5.1.	Método do ^{148}Nd	63
IV.5.2.	Método do ^{137}Cs	65
IV.6.	Códigos computacionais	66
IV.6.1.	Código computacional ORIGEN2	66
IV.6.2.	Simulação do histórico de irradiação das amostras em estudo por meio do código computacional ORIGEN2	69
IV.7.	CrITÉrios estatísticos adotados no estabelecimento de correlações isotópicas	73
V.	Resultados e Discussão	78
V.1.	Determinação da concentração dos nuclídeos ^{137}Cs e ^{241}Am por meio da técnica de espectrometria gama ..	79
V.2.	Avaliação da concentração e composição isotópica das amostras por meio de correlações isotópicas encontradas na literatura	81
V.3.	Determinação da queima por meio dos métodos do ^{137}Cs ^{148}Nd	87
V.4.	Caracterização isotópica	89
V.5.	Correlações isotópicas	104
VI.	Conclusão	161
VII.	Referências Bibliográficas	179

ÍNDICE GERAL DE TABELAS

Tabela I.	Massa de actínideos em toneladas acumuladas até o ano 2000 em relação à capacidade nuclear instalada	4
Tabela II.	Limites de ingestão e inalação dos principais actínideos presentes no combustível irradiado	7
Tabela III.	Concentração das amostras em estudo	41
Tabela IV.	Parâmetros utilizados para o cálculo da concentração isotópica dos nuclídeos de interesse.....	58
Tabela V.	Interpretação do histórico de irradiação dos elementos combustíveis BE-120 e BE-124	70
Tabela VI.	Concentração do nuclídeo ^{137}Cs nas amostras em estudo	79
Tabela VII.	Comparação entre as medidas de concentração isotópica do nuclídeo ^{241}Am por meio das técnicas de espectrometria de massa e espectrometria gama	80
Tabela VIII.	Valores da queima sofrida pelas amostras em porcentagem de átomos fissionados	81
Tabela IX.	Alguns exemplos de correlações isotópicas encontradas na literatura	83
Tabela X.	Comparação entre os valores experimentais (EX) de concentração isotópica e depleção do nuclídeo ^{235}U (DS), com aqueles obtidos por meio da técnica de correlação isotópica (CI)	85
Tabela XI.	Comparação entre os valores experimentais (EX) de razões isotópicas e aqueles obtidos por meio da técnica de correlação isotópica (CI)	86
Tabela XII.	Comparação entre os valores de queima das amostras obtidos por meio dos métodos do ^{148}Nd e ^{137}Cs	88
Tabela XIII.	Abundância isotópica em porcentagem atômica para o nuclídeo ^{150}Nd	89
Tabela XIV.	Composição isotópica do elemento urânio em porcentagem atômica	91

Tabela XV.	Composição isotópica do elemento plutônio em porcentagem atômica	92
Tabela XVI.	Composição isotópica do elemento neodímio em porcentagem atômica	93
Tabela XVII.	Composição isotópica do elemento amerício em porcentagem atômica	94
Tabela XVIII.	Concentração isotópica dos isótopos do elemento urânio em gramas/tonelada de combustível	95
Tabela XIX.	Concentração isotópica dos isótopos do elemento plutônio em gramas/tonelada de combustível	97
Tabela XX.	Concentração isotópica dos isótopos do elemento neodímio em gramas/tonelada de combustível	98
Tabela XXI.	Concentração isotópica dos isótopos do elemento amerício em gramas/tonelada de combustível	99
Tabela XXII.	Desvio percentual relativo entre os dados teóricos e experimentais. Comparação com os dados obtidos para os reatores PWR Turkey Point Unit 3 E.H. Robinson e Trino Vercellese	100
Tabela XXIII.	Comparação entre os dados de razão isotópica experimentais (E) e teóricos (O)	102
Tabela XXIV.	Comparação entre os dados de concentração isotópica experimentais (E) e teóricos (O)	103
Tabela XXV.	Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nuclídeo $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus razões isotópicas	105
Tabela XXVI.	Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nuclídeo $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus razões isotópicas	107
Tabela XXVII.	Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nuclídeo $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus concentrações isotópicas	108
Tabela XXVIII.	Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nuclídeo $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus concentrações isotópicas	109

Tabela XXIX.	Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nuclídeo $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus parâmetros do reator	110
Tabela XXX.	Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nuclídeo $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus parâmetros do reator	111
Tabela XXXI.	Comparação entre os valores obtidos para a concentração isotópica do nuclídeo $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ por meio das equações estabelecidas neste trabalho e aquelas encontradas na literatura	113
Tabela XXXII.	Avaliação da concentração isotópica do nuclídeo $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ por meio das equações definidas neste trabalho	115
Tabela XXXIII.	Avaliação da concentração do nuclídeo $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ por meio das equações definidas neste trabalho .	116
Tabela XXXIV.	Valores médios dos desvios percentuais entre os dados obtidos experimentalmente e aqueles estimados pelas equações	118
Tabela XXXV.	Comparação entre os valores de precisão (%) obtidos para a concentração de urânio e dos nuclídeos ^{235}U e ^{239}Pu obtidos para diferentes laboratórios	163
Tabela XXXVI.	Comparação entre as diferentes técnicas para determinação da concentração de amerício ex combustíveis nucleares irradiados	169

ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 1.	Riscos inerentes aos combustíveis nucleares irradiados com o tempo de armazenamento	2
Figura 2.	Riscos inerentes aos combustíveis nucleares irradiados: a) com a recuperação de 99,5% do urânio e plutônio presentes; b) com a recuperação de 99,5% de urânio, plutônio e actinídeos minoritários presentes ..	3
Figura 3.	Variação da abundância isotópica do nuclídeo A com o número de fissões	11
Figura 4.	Variação da razão isotópica $A+1/A$ com o número de fissões	12
Figura 5.	Correlação isotópica entre a concentração do nuclídeo $^{240}\text{Pu}/\text{IMA}$ e a razão isotópica $^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$	24
Figura 6.	Correlação isotópica entre a abundância isotópica dos nuclídeos ^{236}U e ^{235}U , em porcentagem em peso, para os reatores de Yankee Rowe, Indian Point e Sena	25
Figura 7.	Correlação isotópica entre a queima e a razão $^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$	27
Figura 8.	Correlação isotópica entre a atividade do nuclídeo ^{137}Cs e a queima obtida por meio do método do ^{148}Nd ..	29
Figura 9.	Correlação isotópica entre a taxa de nêutrons e a queima no ponto central de 19 elementos combustíveis analisados pela EURATON	31
Figura 10.	Correlação isotópica entre a taxa de nêutrons e a concentração total de plutônio no ponto central de 19 elementos combustíveis analisados pela EURATON ..	32
Figura 11.	Diagrama esquemático do núcleo do reator de Obrigheim	38
Figura 12.	Localização das varetas dentro de cada elemento combustível	39
Figura 13.	Posições de corte de cada vareta	39
Figura 14.	Localização das pastilhas de combustível analisadas ..	40

Figura 15. Diagrama esquemático dos procedimentos para separação química dos elementos urânio e plutônio	43
Figura 16. Diagrama esquemático dos procedimentos para separação química dos elementos amerício e neodímio	46
Figura 17. Arranjo experimental para separação química dos elementos amerício e neodímio.....	47
Figura 18. Sequência de eluição dos elementos cúrio, amerício e neodímio	48
Figura 19. Suporte para análise das amostras por meio da técnica de espectrometria gama	50
Figura 20. Histórico de irradiação do reator de Obrigheim entre 1971 e 1974	71
Figura 21. Correlação isotópica: $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus queima	119
Figura 22. Correlação isotópica: $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus queima	120
Figura 23. Correlação isotópica: $^{240}\text{Am}/\text{IMA}$ versus D5	121
Figura 24. Correlação isotópica: $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus D5	122
Figura 25. Correlação isotópica: $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{235}\text{U}/\text{IMA}$	123
Figura 26. Correlação isotópica: $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{235}\text{U}/\text{IMA}$	124
Figura 27. Correlação isotópica: $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{236}\text{U}/\text{IMA}$	125
Figura 28. Correlação isotópica: $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{236}\text{U}/\text{IMA}$	126
Figura 29. Correlação isotópica: $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{238}\text{Pu}/\text{IMA}$...	127
Figura 30. Correlação isotópica: $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{238}\text{Pu}/\text{IMA}$...	128
Figura 31. Correlação isotópica: $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{240}\text{Pu}/\text{IMA}$...	129
Figura 32. Correlação isotópica: $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{240}\text{Pu}/\text{IMA}$...	130
Figura 33. Correlação isotópica: $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{241}\text{Pu}/\text{IMA}$...	131
Figura 34. Correlação isotópica: $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{241}\text{Pu}/\text{IMA}$...	132
Figura 35. Correlação isotópica: $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{137}\text{Cs}/\text{IMA}$...	133
Figura 36. Correlação isotópica: $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{137}\text{Cs}/\text{IMA}$...	134
Figura 37. Correlação isotópica: $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$...	135

Figura 38. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$...	133
Figura 39. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$...	137
Figura 40. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$...	138
Figura 41. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$.	138
Figura 42. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$.	140
Figura 43. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$.	141
Figura 44. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$.	142
Figura 45. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$.	143
Figura 46. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$.	144
Figura 47. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$.	145
Figura 48. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$.	145
Figura 49. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$...	147
Figura 50. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$...	148
Figura 51. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$...	148
Figura 52. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$...	150
Figura 53. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$...	151
Figura 54. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$...	152
Figura 55. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$.	153
Figura 56. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$.	154
Figura 57. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$.	155
Figura 58. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$.	155
Figura 59. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$.	157
Figura 60. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$.	158
Figura 61. Correlação isotópica:	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{136}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$.	158
Figura 62. Correlação isotópica:	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus	$^{136}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$.	160

Figura 63. Previsão de formação	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ via queima (AFX)	171
Figura 64. Previsão de formação	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ via queima (AFX)	172
Figura 65. Previsão de formação	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{235}\text{U}/\text{IMA}$	173
Figura 66. Previsão de formação	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{235}\text{U}/\text{IMA}$	174
Figura 67. Previsão de formação	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	175
Figura 68. Previsão de formação	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	176
Figura 69. Previsão de formação	$^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$	177
Figura 70. Previsão de formação	$^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$	178

I. INTRODUÇÃO

A utilização comercial da energia nuclear tem como consequência a produção de grandes quantidades de rejeitos radioativos. A presença nestes rejeitos de elementos actinídeos e os riscos de seu armazenamento a gerações futuras levam-nos a considerar o seu reaproveitamento e estocagem final como um dos problemas fundamentais da utilização pacífica da energia nuclear. Estudos indicam que enquanto os produtos de fissão levarão cerca de 600 anos para atingir níveis de risco de armazenamento inócuos os elementos actinídeos levarão dezenas de milhares de anos até que os níveis de risco para o seu armazenamento atinjam valores próximos àqueles de quantidade equivalente de minério de urânio (figura 1)⁽⁹⁷⁾.

Atualmente as principais estratégias de gerenciamento de combustíveis nucleares irradiados consistem em seu armazenamento direto ou reprocessamento. O armazenamento direto apesar de ser no momento a solução mais econômica, sua prática entretanto, aumenta o risco radiológico a longo prazo⁽⁹⁷⁾. O reprocessamento deste material visa a recuperação de urânio e plutônio presentes para sua posterior reutilização^(16,173,179), enquanto que os demais actinídeos e produtos de fissão permanecem nos rejeitos do processo.

A recuperação dos elementos actinídeos amerício, cúrio e neptúnic, vem sendo estudada de modo a reduzir-se ainda mais os riscos radiológicos de armazenamento a longo prazo (figura 2)⁽⁹⁸⁾.

Segundo Koch⁽⁹⁷⁾, baseado em dados da literatura^(91,133), até o ano 2000, considerando-se apenas os países de economia aberta, serão produzidas dezenas de toneladas de amerício, cúrio e neptúnic (tabela 1).

No momento a solução mais aceita para os rejeitos radioativos de alta atividade consiste em sua imobilização em meio inerte e posterior armazenamento em sítios geológicos estáveis^(29,173). Alguns pesquisadores⁽³⁵⁾, entretanto, alegam não haver garantias de que as análises tectônicas de formação geológica poderão fornecer resultados que permanecerão válidos por vários períodos geológicos.

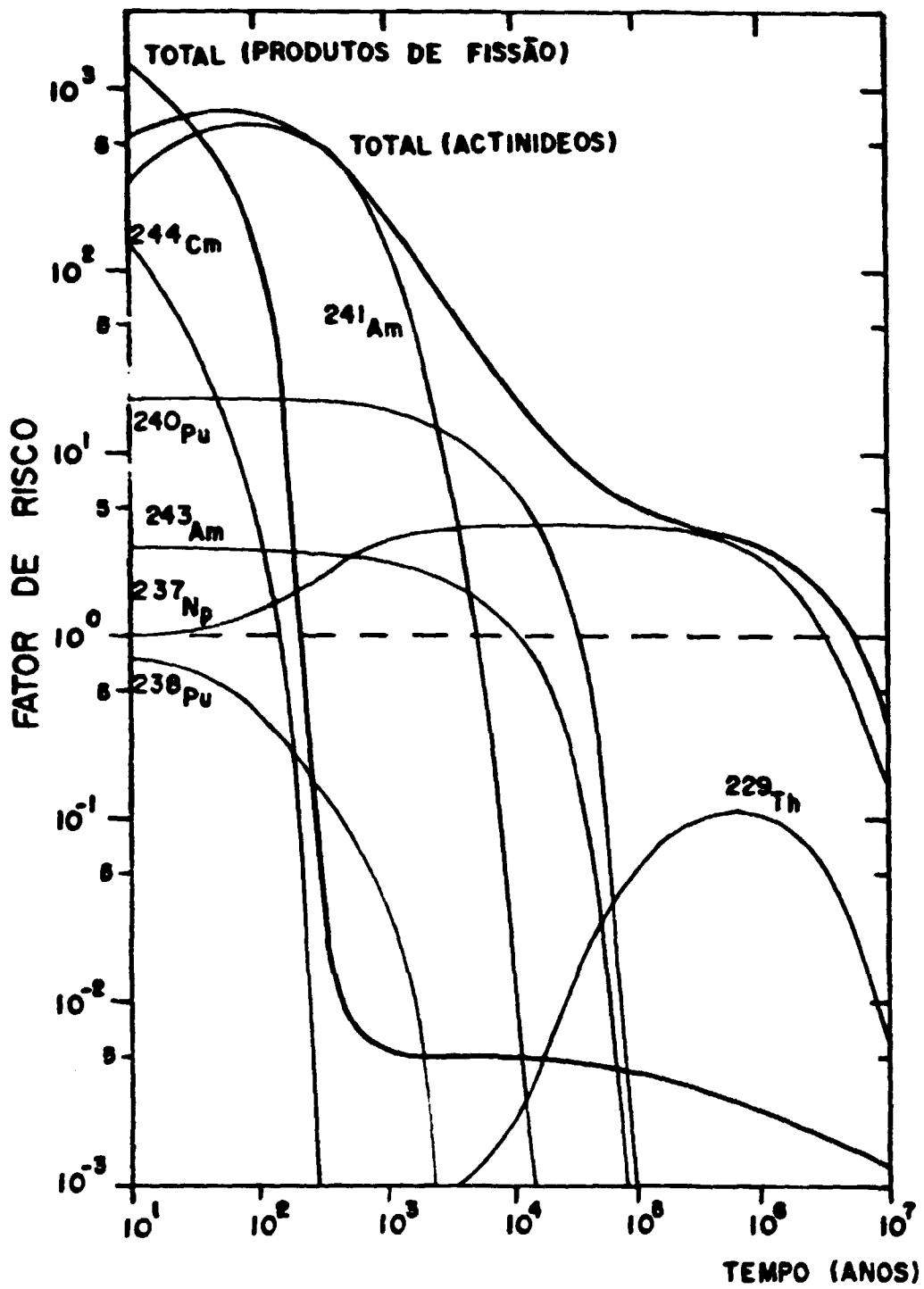
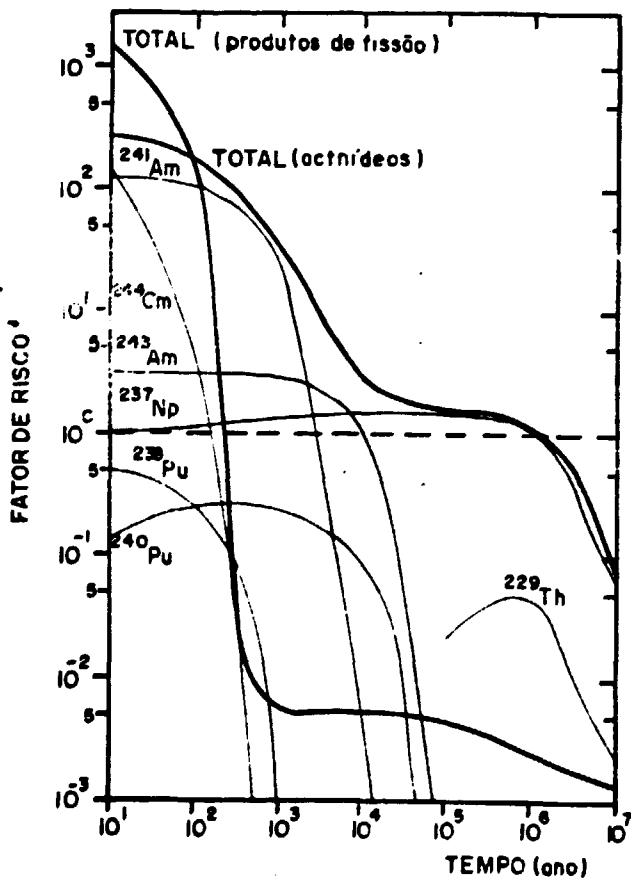
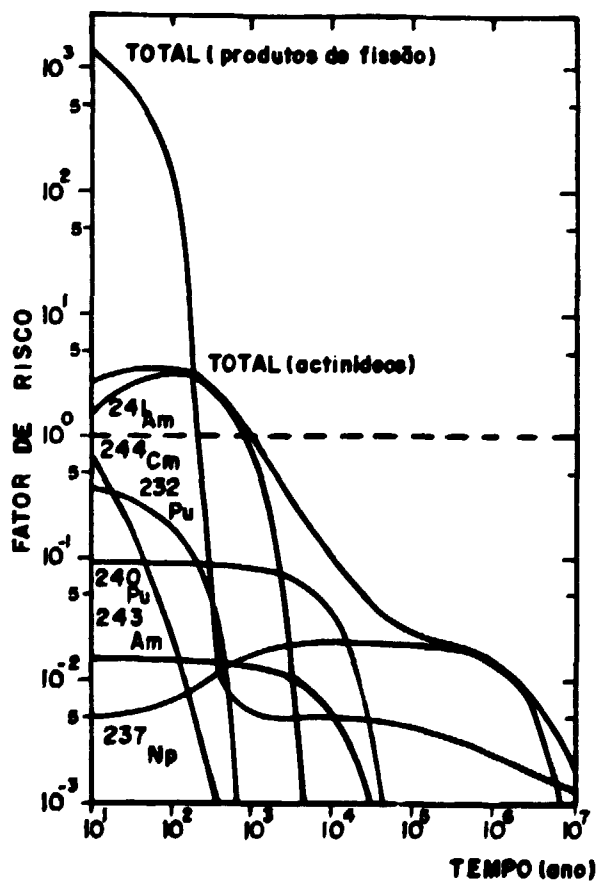


Figura 1. Riscos inerentes ao armazenamento de combustíveis nucleares irradiados em função do tempo.



(a)



(b)

Figura 2. Riscos inerentes ao armazenamento de combustíveis nucleares irradiados: a) com a recuperação de 99,5% do urânio e plutônio presentes; b) com a recuperação de 99,5% de urânio, plutônio e dos actinídeos minoritários presentes.

Tabela 1. Massa de actinídeos, em toneladas, acumulada até o ano 2000 em relação à capacidade de energia nuclear instalada

Energia Nuclear Instalada (Mwe)	Massa dos Elementos Actinídeos Acumulada (toneladas)				
	^{237}Nf	^{241}Am	^{243}Am	^{242}Cm	^{244}Cm
514	38	34	7	0,4	2,2
1800	140	120	25	1,4	7,2

Uma opção que vem sendo estudada para o destino final destes nuclídeos consiste na sua transmutação nuclear método pelo qual, por meio de reações nucleares tais como captura de nêutrons, fissão $(n,2n)$ etc., são transformados em nuclídeos estáveis ou de meia-vida curta ou simplesmente em nuclídeos menos perigosos ^(107,110,150,151).

A transmutação nuclear foi sugerida pela primeira vez em 1964 por Steinberg ⁽¹⁶³⁾ visando a eliminação dos nuclídeos ^{85}Kr , ^{90}Sr e ^{137}Cs presentes em rejeitos radioativos. Em 1972 Clairbone ⁽⁴⁴⁾ apresenta a possibilidade de reutilização de elementos actinídeos, tais como amerício, cúrio e neptúnio em reatores nucleares de potência pressurizados à água, demonstrando que a energia exigida para transmutação destes nuclídeos representa uma pequena fração da energia utilizada na formação dos mesmos com uma taxa de transmutação significativamente mais rápida do que a necessária para o seu decaimento radioativo natural.

A partir de 1975 com o desenvolvimento de estudos para reutilização dos elementos amerício, cúrio e neptúnio em combustíveis de reatores rápidos de potência ^(26,136), a transmutação nuclear tomou novo impulso sendo hoje por muitos considerada como a melhor forma de eliminação de elementos actinídeos trazendo as seguintes vantagens ^(97,151,179): melhor utilização do potencial energético do urânio, simplificação dos procedimentos para o armazenamento dos re

Jeitos, redução nos custos de armazenamento e transporte, grande redução nos riscos de armazenamento a longo prazo, aumento de custos na geração de energia de apenas 4,8 a 5,2% para reatores à água pressurizada e de cerca de 2% para reatores regeneradores rápidos.

Em artigo publicado na revista *New Scientist* de maio de 1986, Mackenzie⁽¹¹⁸⁾ informa que nos próximos 4 anos os laboratórios da *Commission of the European Communities*, EURATOM, juntamente com *Japan's Central Research Institute of the Electric Power Industry*, irão investir cerca de 1,4 milhões de libras esterlinas em um trabalho conjunto visando o estudo do emprego de elementos actínicos em reatores regeneradores rápidos. Na mesma entrevista, Roger Wellue do *Institut for Transuranium Elements*, EURATOM, localizado no Centro de Pesquisas Nucleares de Karlsruhe, *Kernforschungszentrum Karlsruhe*, Alemanha Ocidental, informa que estudos revelam que apenas um reator regenerador rápido poderá queimar os rejeitos provenientes de 20 reatores de água leve, tornando o reprocessamento de combustíveis nucleares irradiados uma atividade economicamente viável.

Embora a transmutação nuclear ainda não seja uma técnica universalmente aceita⁽⁸³⁾ uma das conseqüências do progresso dos estudos nesta área foi o aumento do interesse comercial dos actínicos outrora considerados rejeitos nucleares e a necessidade do desenvolvimento de metodologias para sua análise e previsão de formação, quer por meio de métodos experimentais, quer através de códigos computacionais. Inicialmente estes estudos tiveram algumas dificuldades devido à imprecisão nos valores de parâmetros nucleares dos nuclídeos envolvidos e pela falta de metodologias precisas para sua determinação^(75,81). Um dos métodos utilizados, consistiu na técnica de correlação isotópica por meio da qual, baseado em dados de um histórico analítico provenientes de centrais de reprocessamento de combustíveis nucleares irradiados, são estabelecidas equações matemáticas relacionando parâmetros tais como a queima sofrida pelo combustível, razões isotópicas, concentrações isotópicas etc., as quais tornam possível uma previsão da formação dos nuclídeos de

interesse.

Durante a descarga e armazenamento do combustível nuclear irradiado, o amerício é um dos principais responsáveis pela atividade de alfa deste material. Formado por três isótopos de meia-vida longa (¹⁵⁶ (²⁴¹Am = 432,6 anos; ²⁴²Am = 141 anos; ²⁴³Am = 3730 anos) é altamente tóxico e quando absorvido pelo organismo humano concentra-se principalmente nos ossos, pulmões e fígados. Segundo valores publicados pela Comissão Nacional de Energia Nuclear⁽⁴⁶⁾, baseado em dados fornecidos pela *International Commission on Radiological Protection*⁽⁸²⁾, o amerício se apresenta como um dos elementos de maior risco no que diz respeito aos limites de ingestão e inalação permissíveis aos trabalhadores (tabela II).

No passado algumas correlações isotópicas com os núclídeos ²⁴¹Am e ²⁴³Am foram estudadas para combustíveis de diferentes reatores nucleares⁽¹⁷⁷⁾. A metodologia para determinação da concentração destes núclídeos nas amostras baseou-se na medida das razões isotópicas ²⁴²Am/²⁴¹Am e ²⁴³Am/²⁴¹Am por meio da técnica de espectrometria de massa e a determinação da concentração do núclídeo ²⁴¹Am por meio da técnica de espectrometria alfa^(48,101). Os resultados encontrados não foram satisfatórios já que segundo Koch e Wellum⁽¹⁰³⁾ a determinação quantitativa destes núclídeos, baseada na técnica de espectrometria alfa, acarreta um erro experimental de cerca de 10%.

A partir de 1982, com a disponibilidade de soluções traçadoras enriquecidas no núclídeo ²⁴³Am, foi possível determinar quantitativamente a concentração dos isótopos do elemento amerício em amostras de combustíveis nucleares irradiados com uma precisão de até 0,5% por meio da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa^(78,175). Entretanto, não há na literatura internacional um amplo sistema de pesquisa da taxa de formação dos diferentes isótopos do elemento amerício em reatores nucleares, assim como um estudo comparativo destes valores como resultado proveniente de um inventário isotópico.

Tabela 11. Limites de ingestão e inalação dos principais actinídeos presentes no combustível nuclear irradiado

Trabalhadores na Área				Público em Geral	
Radic-nuclídeo	Forma	Limite anual de tomada por inalação (Bq)	Limite da concentração derivada no ar para uma exposição de 2000 s/ano ($Bq m^{-3}$)	Limite anual de tomada por inalação (Bq)	Limite anual de tomada por ingestão (Bq)
$^{230}_{90}Th$	W	2×10^2	1×10^{-1}	2×10^1	
	Y	6×10^2	2×10^{-1}	6×10^1	1×10^4
$^{238}_{92}U$	D	5×10^4	2×10^1	5×10^3	
	W	6×10^4	1×10^1	3×10^3	
	Y	2×10^3	7×10^{-1}	2×10^2	a) 5×10^4 b) 8×10^5
$^{239}_{94}Pu$	W	2×10^2	8×10^{-2}	2×10^1	
	Y	5×10^2	2×10^{-1}	5×10^1	a) 2×10^4 b) 2×10^5
$^{241}_{95}Am$	W	2×10^2	8×10^{-2}	2×10^1	5×10^3
$^{243}_{95}Am$	W	2×10^2	8×10^{-2}	2×10^1	5×10^3

Elemento	Forma	Compostos
$^{92}_{92}U$	D	UF_6 , UO_2F_2 , $UO_2(NO_3)_2$
	W	menos solúvel como UO_3 , UF_4 , UCl_4
	Y	óxidos altamente solúveis, i.e., UO_2 e U_3O_8
	(a)	solúvel em água compostos inorgânicos de U(VI)
	(b)	compostos relativamente insolúveis tais como UF_4 , UO_2 e U_3O_8
$^{94}_{94}Pu$	Y	PUO_2
	W	todos os outros compostos
	(a)	todos os compostos exceto óxidos e hidróxidos
	(b)	óxidos e hidróxidos
$^{95}_{95}Am$	W	todos os compostos
	D	tempo de retenção no pulmão 1 a 10 dias
	W	tempo de retenção no pulmão 10 a 100 dias
	Y	tempo de retenção no pulmão >100 dias

II. OBJETIVOS

O principal objetivo deste trabalho consiste em trazer uma contribuição ao desenvolvimento de metodologias para determinação da concentração e previsão de formação dos isótopos majoritários do elemento amerício, ^{241}Am e ^{243}Am formados por transmutação nuclear durante a irradiação de combustíveis nucleares em reatores de potência.

A técnica escolhida foi a técnica de correlação isotópica a qual tem sido amplamente utilizada, em salvaguardas e programas de contabilidade de material nuclear, para determinação da concentração e composição isotópica dos elementos urânio, plutônio e alguns produtos de fissão e sobre a qual inexistem na literatura dados precisos envolvendo os isótopos do elemento amerício.

Serão discutidos também os procedimentos de caracterização isotópica utilizados em laboratórios de análise de combustíveis nucleares irradiados propondo, a partir de análises da queima do combustível, concentração e composição isotópica dos elementos urânio, plutônio, amerício, neodímio, xenônio e kriptônio, por meio das técnicas de espectrometria de massa, espectrometria alfa e espectrometria gama, uma metodologia segura para determinação do inventário isotópico das amostras em estudo.

Os resultados experimentais serão comparados a valores teóricos obtidos com o código computacional ORIGEN2 para o cálculo da queima e inventário isotópico dos nuclídeos presentes em combustíveis nucleares irradiados.

Pretende-se também propor critérios estatísticos para o estabelecimento das correlações isotópicas comparando os resultados obtidos com aqueles encontrados na literatura internacional.

A parte experimental deste trabalho foi realizada junto ao grupo de radioquímica e análises isotópicas do *Institut for Transuranium Elements, EURATOM*, Karlsruhe, Alemanha Ocidental.

Os dados experimentais utilizados foram obtidos durante a caracterização isotópica de amostras de combustíveis nucleares irra

diados provenientes de uma campanha de reprocessamento de dois elementos combustíveis pertencentes ao reator nuclear de potência a água pressurizada, da Central Nuclear de Obrigheim, Alemanha Ocidental.

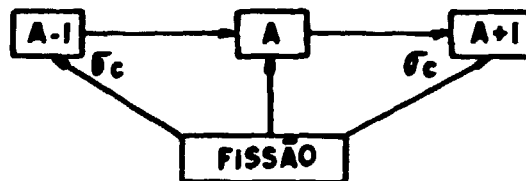
III. CONSIDERAÇÕES TEÓRICAS

III. 1. Correlações Isotópicas

No ciclo do combustível nuclear, durante a fabricação do elemento combustível, são utilizados urânio natural, urânio enriquecido, urânio reciclado e algumas vezes plutônio reciclado. A concentração destes elementos e seus isótopos mais importantes (^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu etc.) é conhecida com grande precisão. Durante a utilização deste material em reatores nucleares ocorrem mudanças complexas em sua composição devido a: depleção dos isótopos de urânio e plutônio, formação e transmutação de nuclídeos pesados tais como ^{241}Am , ^{242}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm etc., assim como a formação de produtos de fissão, como por exemplo ^{137}Cs , ^{140}Nd etc..

O inventário isotópico dos elementos de interesse assim como a determinação da queima em amostras irradiadas são normalmente feitos a partir de análises químicas e isotópicas as quais dependem muitas vezes das propriedades químicas e nucleares dos elementos envolvidos além de procedimentos analíticos complexos e demorados.

Em 1960, Rider⁽¹⁴⁴⁾ em estudo de avaliação de métodos analíticos para determinação da queima em combustíveis nucleares constatou haver uma relação matemática entre a composição inicial e final de elementos pesados antes e após um período de irradiação. Dois anos mais tarde Maek⁽¹¹⁹⁾ propõe um "novo conceito para a determinação da queima" baseado na medida da razão isotópica entre produtos de fissão. Segundo Maek, supondo que uma fonte de fissão monoisotópica forme, ao ser submetida a um fluxo de nêutrons constante e isotrópico, os produtos de fissão de massa atômica $A-1$, A e $A+1$.



A abundância isotópica de A será proporcional ao número de fissões somente se as seções de choque de captura de nêutrons de A (σ_c^A) e $A-1$ (σ_c^{A-1}) forem insignificantes ou igual a zero.

Se σ_c^{A-1} for grande, a produção relativa de A aumenta com o aumento do número de fissões, ao contrário, se σ_c^A for grande, a produção relativa de A diminui com o número de fissões (Figura 3).

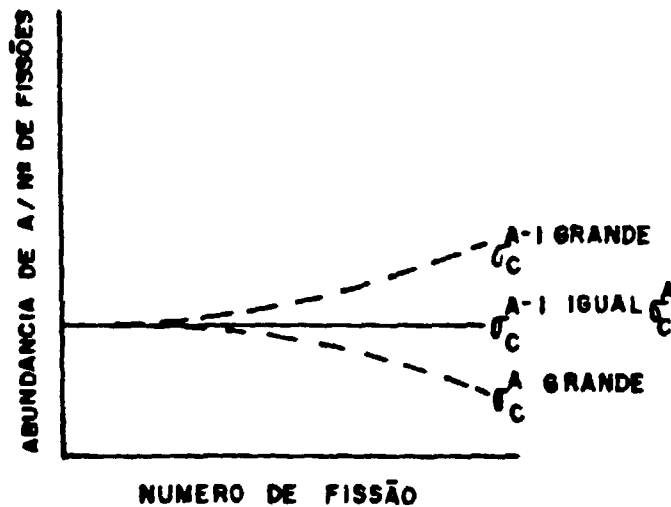
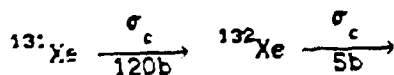
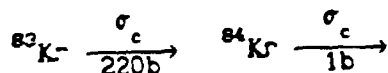
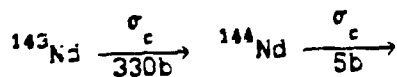


Figura 3. Variação de abundância isotópica do nuclídeo "A" com o número de fissões.

Assim sendo, baseado em cálculos teóricos, Maecck verifica que considerando-se alguns pares de produtos de fissão em que σ_c^{A-1} e σ_c^A são pequenos e σ_c^A é maior do que 100 barns, tais como:



A razão $A+1/A$ é uma função exponencial crescente com o tempo de irradiação e, conseqüentemente, com o número de fissões como representado na figura 4.



Figura 4. Variação de razão isotópica $A+1/A$ com o número de fissões

Estabelecido estes conceitos vários problemas associados a determinação da queima do combustível nuclear irradiado por métodos radioquímicos convencionais ficam resolvidos pois evitam-se:

- medida absoluta da concentração de um determinado produto de fissão e sim razão isotópica, o que é tecnicamente mais fácil e preciso;
- medidas volumétricas de difícil realização devido a alta atividade das soluções envolvidas;
- dissolução completa da amostra já que para as análises é necessária apenas uma fração representativa da amostra;
- imprecisões nos valores de rendimento de fissão.

Dessa forma foram definidos os princípios fundamentais do que mais tarde seria denominada técnica de correlação isotópica por meio da qual, utilizando-se de equações matemáticas, procura-se es-

tabelecer uma interdependência entre os valores de razões e concentrações isotópicas de isótopos de urânio, plutônio, produtos de fissão e parâmetros tais como: queima sofrida pelo combustível, depleção do nuclídeo ^{235}U , atividades de produtos de fissão selecionados etc..

No final dos anos 60 com a liberalização dos dados experimentais provenientes das centrais de reprocessamento de combustíveis nucleares irradiados de diferentes tipos de reatores localizados na Europa e Estados Unidos, foram estabelecidas um grande número de correlações isotópicas.

Após o ganho de alguma experiência com correlações isotópicas empíricas foram desenvolvidos estudos teóricos baseados em códigos computacionais, para determinação da queima e inventário isotópico ex combustíveis nucleares irradiados, de modo a avaliar-se a influência de parâmetros físicos do combustível, tipo de reator e histórico de irradiação na formação das correlações isotópicas (68, 70, 73).

Entre os principais objetivos alcançados com estes estudos destacam-se:

- confirmação e explicação das correlações isotópicas evidenciadas empiricamente;
- avaliação e aperfeiçoamento dos códigos computacionais e seus bancos de dados;
- extrapolação dos resultados obtidos para faixas de queima mais altas;
- entendimento da dependência das correlações com parâmetros tais como: enriquecimento inicial do nuclídeo ^{235}U , razão moderador/combustível, material de revestimento etc.;
- definição dos campos de aplicação das correlações isotópicas estudadas.

Inicialmente estes estudos foram dificultados devido à imprecisões nos dados nucleares de seções de choque efetiva e sua de

pendência com a energia e espectro de nêutrons, para os nuclídeos presentes, durante o processo de fissão. Entretanto, com a determinação de dados nucleares mais precisos assim como com o aperfeiçoamento dos códigos computacionais existentes tornou-se possível calcular a composição e concentração isotópica dos principais isótopos dos elementos urânio, plutônio e alguns produtos de fissão (neodímio, xenônio, kriptônio etc.) com desvios, relativos aos dados experimentais, comparáveis àqueles encontrados em programas analíticos de intercomparação ^(79,120,121,122).

A fim de determinar o potencial da técnica de correlação isotópica e suas aplicações quer sob o ponto de vista de controle e contabilidade do material nuclear quer na verificação da consistência de resultados analíticos ou mesmo sob o ponto de vista de salvaguardas, foram formados diversos grupos de trabalho envolvendo diferentes centrais de reprocessamento, centrais nucleares e organismos internacionais ^(12,40,42,55,67,80,89,102,114) dos quais destacam-se:

1. Joint Integral Safeguards Experiment (JEX 70) at the Eurochemic Reprocessing Plant, Mol, Belgium ⁽¹¹⁴⁾

Neste programa foram estudados problemas associados com a contabilidade de material nuclear no início e final de campanhas de reprocessamento de combustíveis pertencentes ao reator tipo CANDU (combustível de urânio natural e moderado à água pesada). Entre os principais objetivos procurou-se demonstrar experimentalmente a utilização dos dados de composição isotópica no inventário físico do material a ser reprocessado comparando-se os resultados experimentais obtidos com aqueles provenientes de um estudo teórico.

Os resultados demonstraram que a utilização interativa de correlações envolvendo a depleção do nuclídeo ^{235}U e formação do nuclídeo ^{236}U com razões isotópicas do tipo $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ e Pu/U provém um meio para a determinação do conteúdo de plutônio presente nas situações de processo.

2. Working Group Meeting in the Use of Isotopic Correlation Technique^(80,145)

No ano de 1972 a utilização da técnica de correlação isotópica em salvaguardas é sugerida em um grande número de trabalhos^(34,41,43,152,153). A Agência Internacional de Energia Atômica promove então um encontro de especialistas nesta área a fim de avaliar a utilização desta técnica na verificação do conteúdo de plutônio e como técnica de contabilidade e verificação do inventário isotópico nas soluções de entrada em centrais de reprocessamento.

Como resultado deste encontro considerou-se que, apesar do grande potencial de aplicação desta técnica, devido a reduzida experiência nesta área seria ainda prematuro sua utilização como uma técnica analítica rotineira. Sua adoção veio ocorrer somente a partir de 1975^(80,145).

3. Joint Safeguards Experiment Mol IV (1972-1973) at the Eurochemic Reprocessing Plant⁽¹²⁾

O principal objetivo deste trabalho foi o de ganhar maior experiência prática na utilização da técnica de correlação isotópica como uma forma independente para avaliação da quantidade total de plutônio nos tanques de dissolução em centrais de reprocessamento. O experimento cobriu várias campanhas de reprocessamento de combustíveis nucleares provenientes de reatores do tipo água leve e água pesada e baseou-se em um grande número de análises destrutivas de elementos pesados, ensaios não destrutivos de produtos de fissão radioativos e análises de gases de fissão nos tanques de dissolução da planta de reprocessamento.

Os resultados indicaram que correlações do tipo Pu/U versus ²³²Pu poderiam ser utilizadas na estimativa da razão Pu/U com um desvio percentual relativo de 1 a 1,5%. A razão ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs e a atividade do nuclídeo ¹³⁷Cs mostraram-se adequadas para determinação do conteúdo de plutônio e razão Pu/U respectivamente.

Durante o programa foi desenvolvido um banco de dados por

tátil de modo a permitir uma rápida verificação e controle do conteúdo isotópico das amostras no próprio local de trabalho durante uma inspeção de salvaguardas do material nuclear⁽¹⁴⁾.

4. Isotopic Correlation Safeguards Techniques⁽⁴⁰⁾

O objetivo deste programa consistiu no estudo e desenvolvimento da técnica de correlação isotópica para a utilização pelos inspetores da Agência Internacional de Energia Atômica na avaliação do conteúdo de plutônio presente nos tanques de dissolução em centrais de reprocessamento.

Foi criado um banco de dados baseado em 353 campanhas de reprocessamento de combustíveis nucleares irradiados provenientes de 4 diferentes reatores nucleares de potência à água leve, 6 reatores à água fervente, 2 reatores à água pesada e 2 reatores de metal e grafita, no qual foram incluídos e comparados resultados teóricos obtidos por meio de códigos computacionais.

Entre as principais conclusões deste trabalho podem-se destacar:

- comprovação da eficiência das correlações isotópicas envolvendo os nuclídeos ^{235}U e ^{239}Pu versus a razão Pu/U na avaliação do conteúdo de plutônio;

- utilização de bancos de dados permite testar a consistência dos dados experimentais com aqueles provenientes de um histórico analítico.

5. The Isotopic Correlation Experiment⁽¹⁰²⁾

Este programa teve como objetivos principais estudar a aplicação da técnica de correlação isotópica na verificação e contabilidade do material nuclear sob condições de rotina e os benefícios ganhos na aplicação desta técnica para fins de salvaguardas e gerenciamento do combustível nuclear. Para isto foram utilizados dados de caracterização isotópica medidos nos tanques de entrada pa

ra o reprocessamento de combustíveis nucleares irradiados, realizados por 4 diferentes laboratórios.

Verificou-se que a precisão encontrada com a utilização da técnica de correlação isotópica para determinação dos principais isótopos dos elementos urânio e plutônio era de 1 a 2% comparável àquela obtida quando do uso de técnicas volumétricas, gravimétricas e da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa. Sua adoção evita o transporte de amostras, diminui o número de ensaios e permite a detecção de erros randômicos e sistemáticos da mesma forma que outros métodos estatísticos.

Com o desenvolvimento de estudos nesta área, e devido ao grande número de informações envolvidas, foram criados diversos bancos de dados nucleares a partir dos quais pôde-se levantar o perfil histórico do inventário isotópico de combustíveis nucleares irradiados e avaliar a aplicação desta técnica para diferentes reatores e diferentes tipos de reatores^(13,26,71,146,147).

E. The Esarda Exercise to Test the Performance of ICT Procedures⁽⁸⁰⁾

A fim de demonstrar-se a possibilidade de utilização da técnica de correlação isotópica não somente na verificação da consistência dos dados experimentais mas também na detecção de causas e fontes de erros, pesquisadores do *Centre d'Etudes de Bruyeres - Le Chatel*, CEA/França, e da *Compagnie Générales des Matières Nucléaires, Etablissement de Marcoule*, Cogema/França, organizaram um programa de intercomparação envolvendo 7 diferentes laboratórios. As amostras utilizadas foram fornecidas pela central de reprocessamento de La Hague, quando do reprocessamento de combustíveis nucleares irradiados pertencentes ao reator à água leve de Obrigheim, e dados do histórico de irradiação fornecidos pela *Kernkraftwerk Obrigheim*, Alemanha Ocidental.

A primeira etapa deste programa, denominada de "integralmente original", teve como objetivo estimar a melhor precisão obtida por cada laboratório estudando a variação sistemática e aleató-

ria dos resultados obtidos pelos mesmos, em relação ao laboratório de referência, no estabelecimento de um inventário de entrada para o reprocessamento com ajuda de seu próprio método de correlação isotópica.

Para tanto, foram utilizadas informações presentes no banco de dados da central de La Hague, referentes a 24 dissoluções de combustíveis nucleares irradiados, numa faixa de queima de 25-35 Gwd/ton, provenientes do reator nuclear de potência de Obrigheim.

Os resultados encontrados para a concentração total do elemento urânio revelaram um erro sistemático de até 0,07% quando da utilização de correlações isotópicas empíricas e de 0,01% quando da utilização de correlações isotópicas calculadas. Para o elemento plutônio estes desvios foram de cerca de 0,5%.

Com relação aos erros aleatórios, verificou-se que a simples eliminação destes dados não acarreta modificações significativas nos resultados finais.

A segunda parte deste programa, denominada de "intencionalmente perturbada", teve como objetivo verificar a capacidade de detecção, por cada laboratório, de anomalias que podem ocorrer nos dados de dissolução das amostras nas centrais de reprocessamento. Para tal, foi utilizado um banco de dados contendo informações referentes a 29 campanhas de reprocessamento de combustíveis nucleares irradiados também pertencentes ao reator de Obrigheim, o qual foi sujeito a modificações voluntárias de modo a introduzir anomalias nos dados originais simulando, com isto, erros que possam ocorrer nos procedimentos de dissolução de combustíveis nucleares irradiados.

Os resultados encontrados nesta etapa do programa ainda não estão disponíveis na literatura internacional. Entretanto, segundo Koch⁽⁹³⁾ e Persianni⁽¹³⁸⁾, foi possível identificar por meio da técnica de correlação isotópica todas as modificações feitas e determinar as causas dos erros em 10 dos 11 casos estudados.

III.2. DEFINIÇÃO DE CORRELAÇÕES ISOTÓPICAS

Como descrito anteriormente a existência de correlações isotópicas baseia-se principalmente no fato da produção e depleção de nuclídeos em um reator nuclear serem governadas basicamente por equações do tipo:

$$Y = \sum_{i=0}^k B_i X^i \quad (III.1)$$

onde X e Y representam quantidades tais como razão isotópica, concentração isotópica e parâmetros do reator (i.e., depleção do nuclídeo ^{235}U , queima etc.).

Para o caso mais simples em que $k=1$ tem-se que:

$$Y_c = B_0 + B_1 X \quad (III.2)$$

chamada de equação linear, para $k=2$ tem-se:

$$Y_c = B_0 + B_1 X + B_2 X^2 \quad (III.3)$$

chamada de equação quadrática e assim sucessivamente.

Os coeficientes destas equações dependem de diversos parâmetros do núcleo do reator como por exemplo: enriquecimento inicial, concentração de nuclídeos pesados, espectro de nêutrons, razão moderador/combustível, materiais estruturais presentes etc., alguns dos quais podem variar tanto espacialmente como com o tempo de irradiação. Estas diferenças entretanto só apresentam influência significativa no estudo teórico de correlações isotópicas e sensibilidade de formação de certos nuclídeos durante o processo de irradiação de amostras em reatores nucleares. Em termos práticos, embora a análise de pastilhas de combustível nuclear irradiado seja a base de todos os estudos nesta área, quando um elemento combustível é analisado, tanto por métodos destrutivos como por métodos não des

trutivos, o que se procura é determinar uma composição e concentração isotópica média representativa deste elemento combustível ou de um conjunto de elementos combustíveis^(80,135).

A escolha das variáveis a serem utilizadas depende da facilidade de medida de seus termos, precisão, exatidão dos parâmetros envolvidos assim como a finalidade a que se destinam. Existem na literatura diferentes métodos para criação e seleção destes termos^(47,132) os quais basicamente podem ser:

- razões isotópicas;
- razão isotópica e concentração isotópica;
- razão isotópica e parâmetros do reator;
- concentrações isotópicas;
- concentrações isotópicas e parâmetros do reator.

Correlações isotópicas envolvendo razões isotópicas são correlações de grande interesse.

Medidas de razões isotópicas podem ser realizadas com um alto grau de precisão por meio da técnica de espectrometria de massa, não exigindo grandes esforços analíticos quando comparadas a medidas de queima e concentração isotópica, não sendo influenciadas por instabilidades da amostra tais como radiólise, hidrólise, evaporação etc., por problemas operacionais, tais como pesagem, dissolução e fatores de diluição.

Uma desvantagem deste tipo de correlação reside no fato de que em centrais de reprocessamento geralmente são utilizados reagentes reciclados, contendo na maioria das vezes traços dos principais elementos em estudo, exigindo correções nos valores de razões isotópicas o que diminui a precisão dos resultados.

Correlações envolvendo concentrações isotópicas são comumente utilizadas em salvaguardas do material nuclear e medidas da consistência da técnica analítica de um laboratório ou entre laboratórios

Correlações envolvendo a queima do combustível nuclear irradiado e depleção do nuclídeo ^{235}U são as mais estudadas em toda a literatura pois juntamente com aquelas envolvendo concentrações isotópicas permitem a operadores de reatores, centrais de reprocessamento e pesquisadores em laboratórios de pós-irradiados avaliar a quantidade de actínideos correspondente ao consumo de combustível do reator e a quantidade de rejeitos a serem produzidos quando do tratamento químico destes materiais.

As correlações isotópicas podem ser divididas nas seguintes categorias:

- correlações baseadas em isótopos de elementos pesados;
- correlações baseadas em isótopos de produtos estáveis de fissão;
- correlações baseadas em isótopos de produtos de fissão radioativos;

Foggi e Frequelucci⁽⁶⁹⁾ estabeleceram os seguintes critérios para a seleção de dados na geração das correlações:

1. estudo da evolução da composição isotópica de elementos presentes em uma única pastilha de combustível nuclear (possível somente através de cálculos);
2. cálculo ou medida da composição isotópica de um grande número de pastilhas irradiadas;
3. cálculo ou medida da composição isotópica média de elementos presentes em uma carga de combustível (sendo uma carga composta de um ou mais conjuntos de elemento combustível).

A utilização de um dos três procedimentos descritos leva a diferentes definições de correlações:

1. se os dados foram obtidos de uma simples pastilha a correlação representa a "contabilidade histórica" (*historic account*) da evolução da irradiação da pastilha e é chamada de correlação de pri

meira ordem:

2. se os dados foram derivados de um grande número de pastilhas a correlação representa a "contabilidade instantânea detalhada" (*detailed instantaneous account*) da situação existente neste combustível no final da irradiação, chamada de correlação de segunda ordem.

3. se os dados provirem de um número de cargas de combustível, a correlação representa a "contabilidade média instantânea" (*average instantaneous account*) da situação existente no final das irradiações e é chamada de correlação de terceira ordem.

III.2.1. Correlações Isotópicas Baseadas em Isótopos de Elementos Pesados

Já em 1969 *Christensen*⁽³⁹⁾, *Moeken*⁽¹²⁷⁾ e colaboradores definem equações empíricas correlacionando a depleção do urânio e formação do plutônio em função da composição isotópica de ambos os elementos em amostras de urânio natural, urânio altamente enriquecido (90 a 93%) e urânio levemente enriquecido (5%) no nuclídeo ^{235}U . *Moeken* define também os primeiros critérios estatísticos para ajuste e detecção de pontos os quais sem uma explicação aparente, quer por problemas experimentais, quer por fatores físicos e nucleares estejam fora do ajuste e serão definidos neste trabalho como pontos suspeitos.

No ano seguinte *Christensen*⁽⁴²⁾ baseado em dados obtidos em diferentes campanhas de reprocessamento de combustíveis provenientes do reator à água leve da central de Yankee Rowe, Estados Unidos da América, obtém uma exatidão de cerca de 1% na determinação do conteúdo de plutônio por meio da correlação envolvendo a depleção do nuclídeo ^{235}U e razão Pu/U e assim como *Moeken*⁽¹²⁸⁾ propõe a utilização de correlações isotópicas como uma metodologia para verificação e como uma forma de controle e identificação de erros analíticos decorrentes das medidas experimentais.

Este tipo de correlação isotópica é de grande interesse na caracterização do material nuclear já que traz importantes informações para a avaliação do desempenho do combustível nuclear assim como do valor econômico do material irradiado. Outrossim, considerando-se que determinação da concentração isotópica de elementos pesados, principalmente urânio e plutônio, é feita rotineiramente em centrais de reprocessamento este tipo de correlação é a que reúne o maior número de dados e tem sido mais amplamente estudada (7,40,43,68,105,106,115,116).

Nas Figuras 5 e 6 têm-se dois exemplos deste tipo de correlação isotópica.

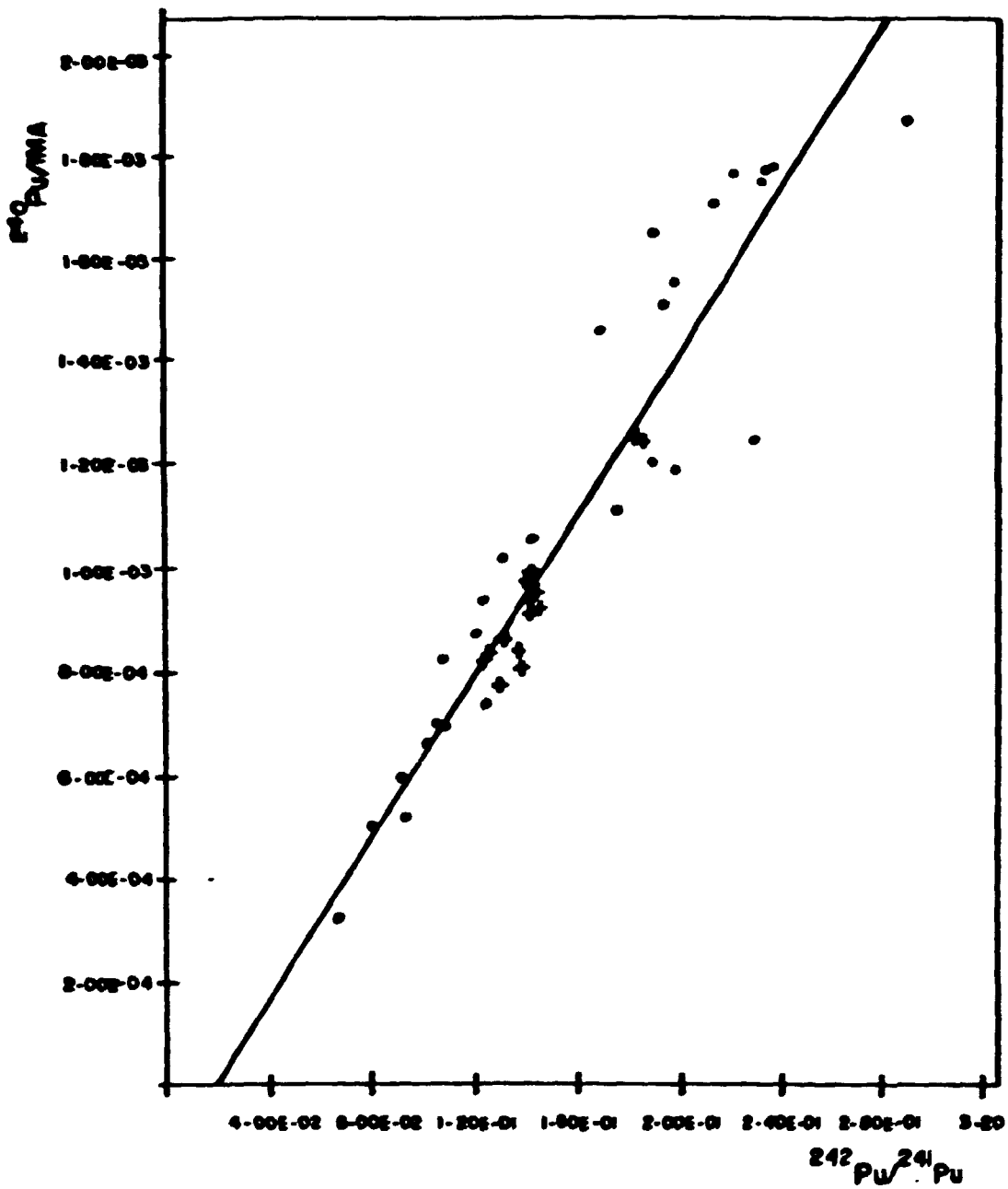


Figura 5. Correlação isotópica entre a concentração do nuclídeo $^{242}\text{Pu}/\text{IMA}$ versus a razão isotópica $^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$. Dados do reprocessamento (+) e dados do histórico experimental de pós irradiação (.) para o combustível do reator Trino Vercellese.

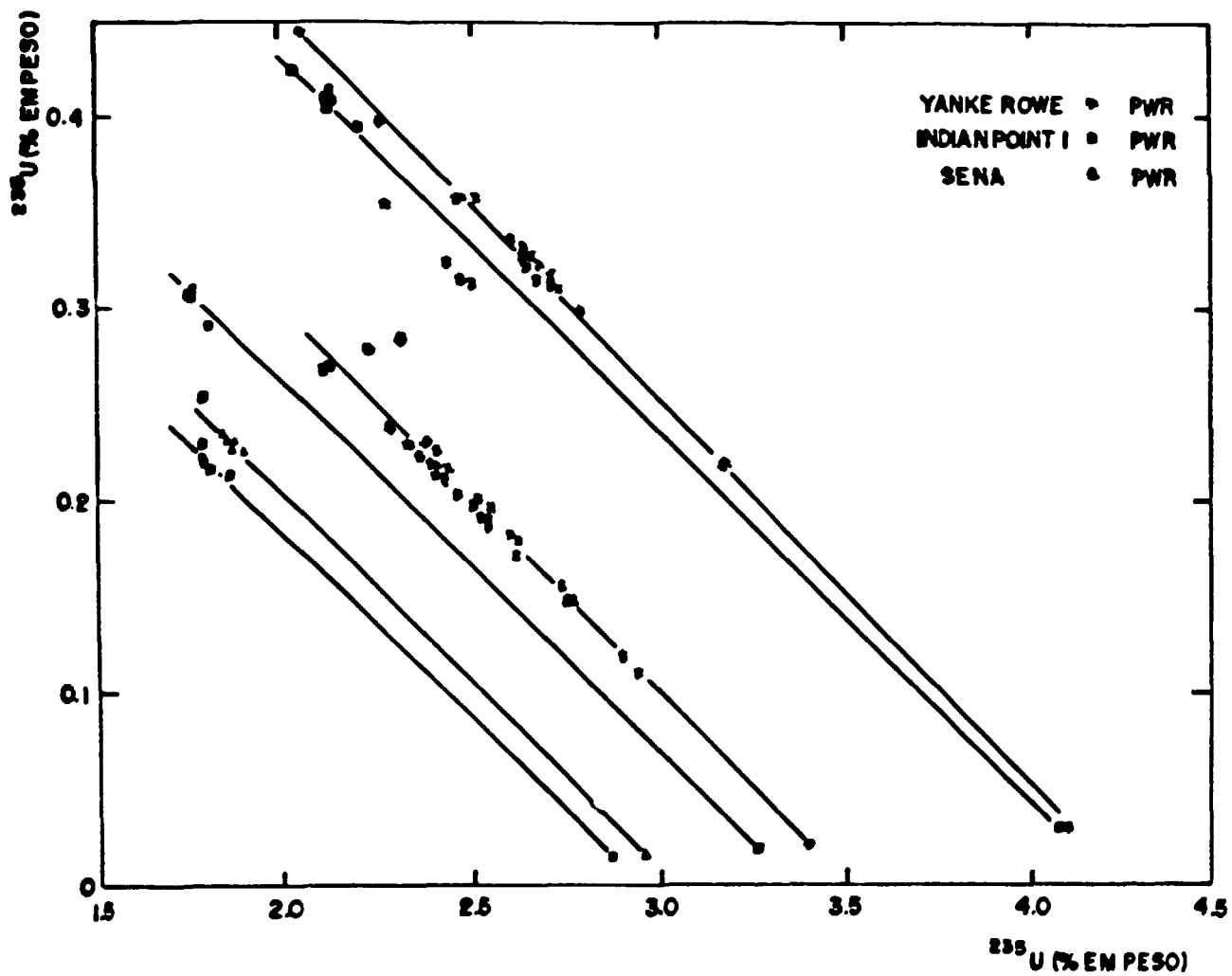


Figura 6. Correlação isotópica entre a abundância isotópica dos núclídeos ^{236}U e ^{235}U , em percentagem em peso para o combustível dos reatores Yankee Rowe, Indian Point e Sena.

III.2.2. Correlações Isotópicas Baseadas em Produtos Estáveis de Fissão

Os principais produtos estáveis de fissão mais comumente utilizados são os isótopos do elemento neodímio e dos gases de fissão: kriptônio e xenônio.

A utilização de isótopos do elemento neodímio em correlações isotópicas possui a vantagem de, sendo o isótopo ^{148}Nd utilizado comumente como um monitor da queima sofrida pelo combustível, seção IV.5.1, existirem disponíveis um grande número de dados experimentais de composição e concentração isotópica destes nuclídeos.

Os primeiros trabalhos envolvendo gases de fissão foram desenvolvidos no *Institut for Transuranium Elements, Karlsruhe, Alemanha Ocidental*, por Koch e colaboradores^(7,25,89,106,111,112).

As vantagens nas medidas de gases de fissão em relação a elementos pesados consistem em:

- a amostragem é feita diretamente no sistema de eliminação de gases das plantas de reprocessamento com pouca intromissão na operação da planta;

- soluções recicladas, usualmente utilizadas em centrais de reprocessamento, não contêm traços de gases de fissão;

- amostras líquidas podem, algumas vezes, não ser representativas devido a problemas de dissolução da solução de alimentação. Gases de fissão ao contrário não são afetados por estes problemas dez minutos de amostragem são suficientes para uma boa análise;

- precisão obtida nas medidas de razões isotópicas é melhor do que 1%;

- único fator limitante é o procedimento de amostragem para análise;

- realização dos ensaios é feita com maior segurança já que não há manipulação direta de elementos pesados.

Na figura 7 têm-se um exemplo típico onde a razão isotópica

Na figura 7 têm-se um exemplo típico onde a razão isotópica $^{84}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$ é correlacionada com a queima (FT) para diferentes reatores ^{110E}.

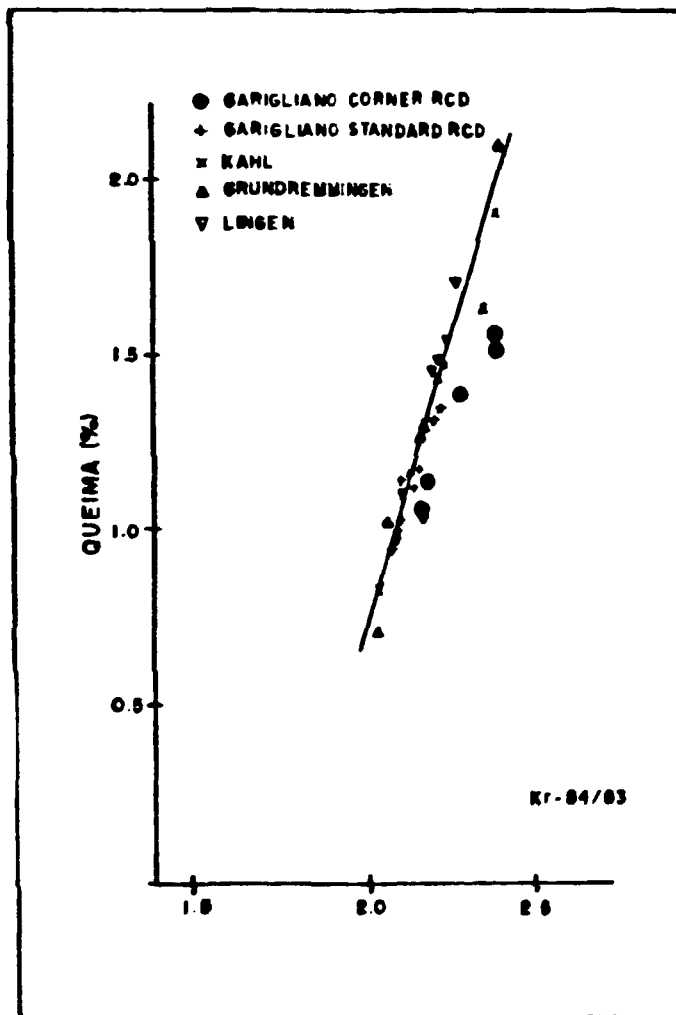


Figura 7. Correlação isotópica entre a queima e a razão isotópica $^{84}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$.

111.2.3. Correlações Isotópicas Baseadas em Isótopos de Produtos de Fissão Radioativos

Este tipo de correlação baseia-se na medida de atividade gama de produtos de fissão radioativos ou na medida de nêutrons produzidos quer por meio da reação (α, n) quer pela fissão espontânea de isótopos de elementos pesados tais como plutônio e cúrio.

A grande vantagem de sua utilização consiste na possibilidade de obtenção de dados por meio de medidas não destrutivas o que, embora exija instalações apropriadas na piscina de resfriamento do combustível nuclear irradiado, podem ser realizadas durante o período de armazenamento no reator antes da dissolução do elemento combustível.

Uma desvantagem deste tipo de correlação isotópica reside no fato de que medidas realizadas com produtos de fissão radioativos exigirem correções decorrentes do decaimento de outros nuclídeos naqueles de interesse assim como no seu próprio decaimento radioativo o que às vezes é problemático devido a falta de dados precisos do histórico de irradiação e tempo de resfriamento.

As principais características para utilização de produtos de fissão radioativos em correlações isotópicas são⁽¹⁾:

- possuir meia vida razoavelmente longa;
- alto rendimento de fissão;
- espectro gama com boa intensidade e resolução em energias superiores a 100 keV.

Os produtos de fissão radioativos mais comumente utilizados são: ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{154}Eu e ^{155}Eu .

Correlações entre a atividade gama do nuclídeo ^{137}Cs e das razões de atividades entre os nuclídeos $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$, $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$, $^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$, vêm sendo desenvolvidas para combustíveis provenientes de diferentes reatores^(8,31,82,86,87,88,159) (figu-

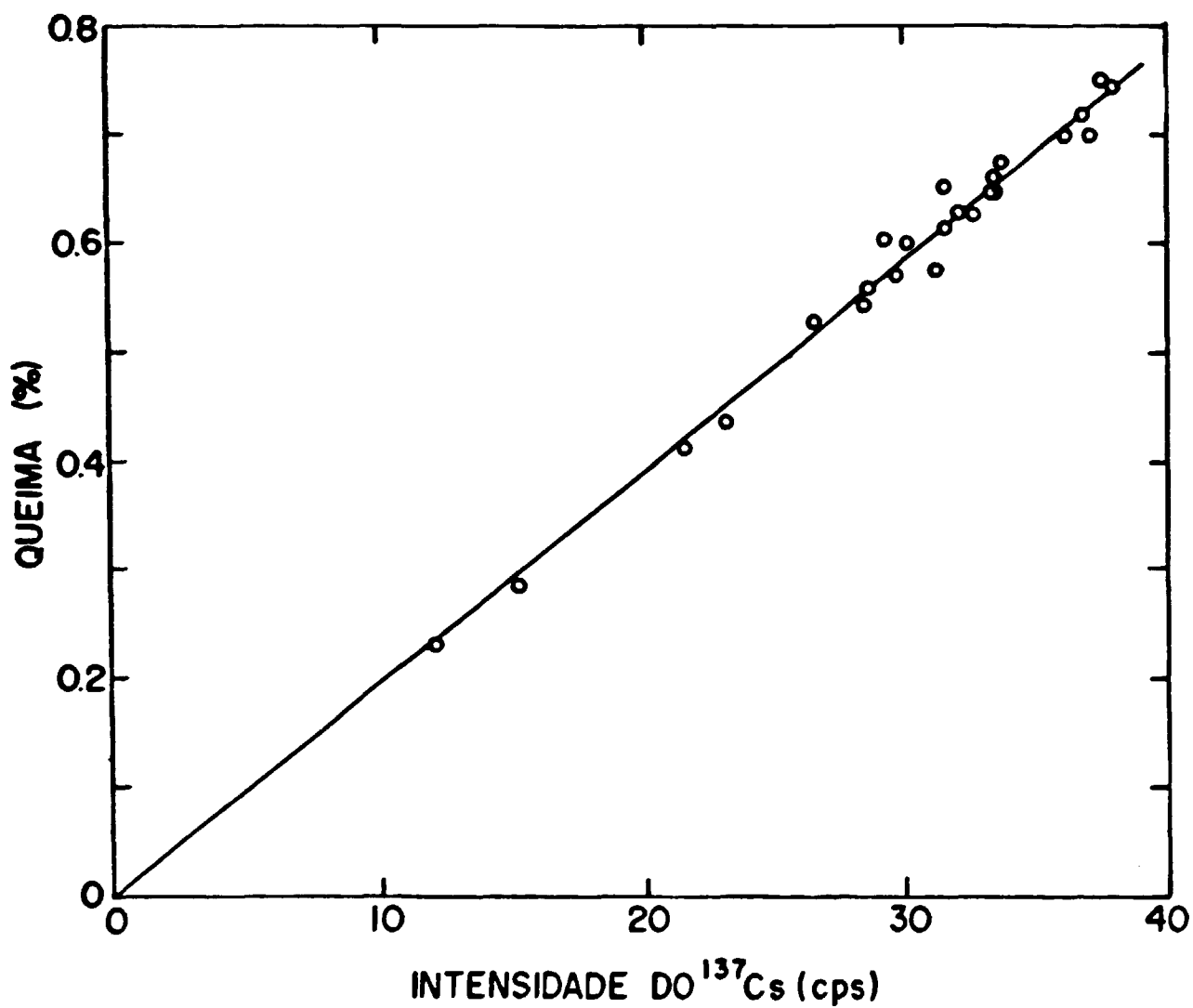


Figura 8. Correlação isotópica entre a atividade do nuclídeo ¹³⁷Cs e a queima obtida por meio do método do ¹⁴⁸Nd.

Estudos mostram que correlações obtidas para reatores do tipo água pressurizada, PWR^(30,84), são geralmente superiores às desenvolvidas para reatores à água fervente, BWR^(1,25), segundo Suzuki e colaboradores⁽¹⁶⁶⁾ isto pode ser atribuído ao fato de que a distribuição espacial de potência e o espectro de nêutrons para o núcleo de reatores tipo PWR ser mais simples do que para reatores tipo BWR.

Correlações baseadas em medidas de nêutrons vêm sendo desenvolvidas para determinação da queima e conteúdo de plutônio^(33,147,155), figuras 9 e 10, com as seguintes vantagens:

1. transparência dos elementos combustíveis aos nêutrons;
2. facilidade de detecção e simplicidade no equipamento adotado;
3. alta taxa de emissão de nêutrons provenientes dos núcleos: ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Cm ^{244}Cm .

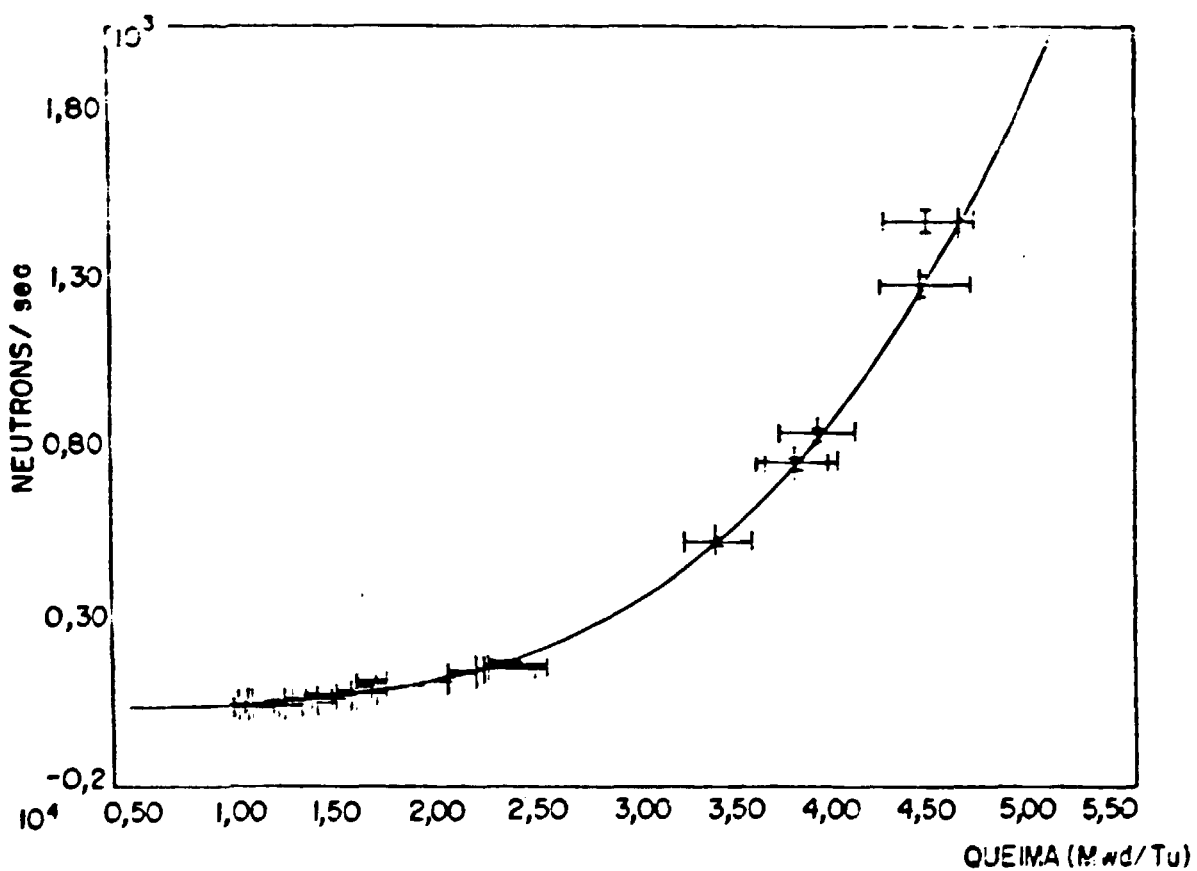


Figura 9. Correlação isotópica entre a taxa de nêutrons e a queima no ponto central de 19 elementos combustíveis analisados pela EUPATON.

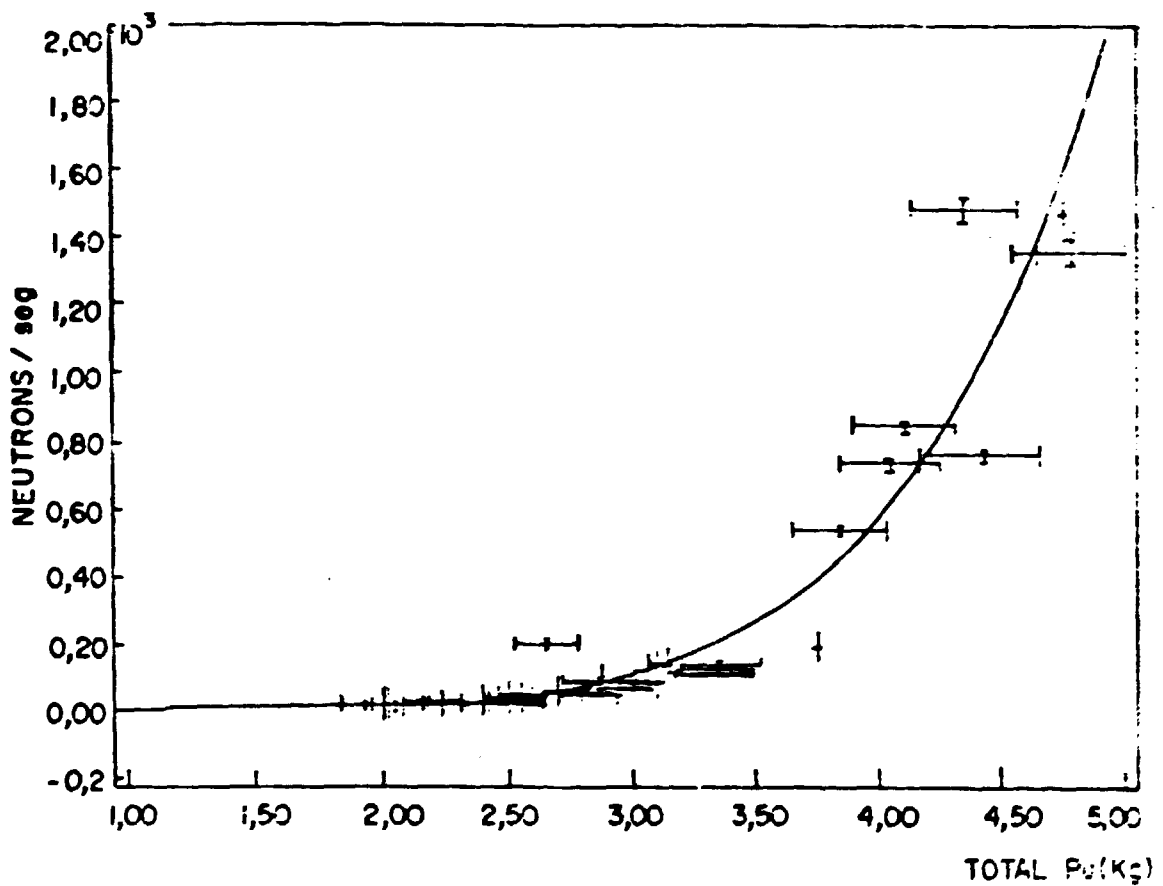


Figura 10. Correlação isotópica entre a taxa de nêutrons e a concentração total do plutônio no ponto central de 19 elementos combustíveis analisados pela EURATON.

III.3. APLICAÇÕES DA TÉCNICA DE CORRELAÇÃO ISOTÓPI- CA (2, 17, 18, 27, 34, 38, 41, 67, 70, 85, 100, 104, 125, 138, 139, 153, 164, 169)

A técnica de correlação isotópica encontra aplicação em toda extensão do ciclo do combustível nuclear. Em centrais de enri- quecimento correlações isotópicas são utilizadas na avaliação da ra- zão $^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$ nos vapores periféricos da cascata. Segundo Cocchi⁽⁴⁵⁾, embora de forma limitada correlações são também utiliza- das em fábricas de elementos combustíveis de modo a avaliar o con- teúdo de material fissil presente quer para fins de verificação, quer para fins de salvaguardas. Em centrais nucleares correlações isotópicas são utilizadas tanto na determinação da queima e conteú- do de material fissil após a irradiação como também na avaliação de radionuclídeos desprendidos na água de refrigeração do circuito pri- mário e na piscina de armazenamento do combustível nuclear irradia- do. Entretanto, é no campo de salvaguardas e contabilidade isotópi- ca de combustível nuclear irradiado que esta técnica encontra um nú- mero maior de aplicações tais como:

- verificação da consistência dos resultados e detecção de erros nos procedimentos analíticos de pós-irradiação;
- avaliação do conteúdo de plutônio nos tanques de dissolução em plantas de reprocessamento;
- detecção de erros nos registros de análises do material irradiado;
- desenvolvimento de códigos computacionais para determinação da queima e conteúdo isotópico em materiais pós-irradiados;
- identificação do combustível deduzindo-se exposição, tempo de resfriamento, tipo de reator etc..

Estas possíveis áreas de aplicação estão listadas em se- quência do seu atual estado de desenvolvimento o qual está direta- tamente relacionado com os graus de confiança obtidos pela técni- ca.

Atualmente a técnica de correlação isotópica tem sido utilizada como uma técnica redundante na avaliação do conteúdo e caracterização isotópica de amostras de combustíveis nucleares irradiados e rotineiramente na primeira das áreas acima citadas.

IV. PARTE EXPERIMENTAL

A parte experimental deste trabalho foi desenvolvida junto ao grupo de radioquímica e análise isotópica do *Institut für Transuraniun Elements* da Comunidade Européia (EURATOM) localizado no Centro de Pesquisas Nucleares de Karlsruhe (Kernforschungszentrum Karlsruhe, KFK), na cidade de Karlsruhe, Alemanha Ocidental, e constituiu-se basicamente nas seguintes etapas:

1. Separação química dos elementos urânio, plutônio, neodímio e amerício em oito amostras de combustíveis nucleares irradiados provenientes de uma campanha de reprocessamento de dois elementos combustíveis do reator pertencente a Central Nuclear de Obrigheim, Alemanha Ocidental.

2. Análise isotópica dos elementos acima mencionados por meio das técnicas de espectrometria de massa, espectrometria alfa e espectrometria gama.

3. Determinação da queima nestes materiais por meio do método de espectrometria de massa baseado na medida da concentração isotópica do produto estável de fissão ^{148}Nd , método do ^{148}Nd , e método radioquímico baseado na medida da atividade gama do nuclídeo ^{137}Cs .

4. Comparação dos resultados experimentais com valores teóricos obtidos por meio do código computacional ORIGEN2.

Considerando-se que na literatura internacional a maior parte dos dados utilizados no estudo de correlações isotópicas foram obtidos em centrais de reprocessamento ou em laboratórios de caracterização, contabilidade ou salvaguardas destes materiais procurou-se, de modo a levantar dados tão próximos quanto possível de uma situação real, adotar os mesmos procedimentos de rotina executados pelo laboratório onde este trabalho foi realizado.

Antes do início da execução do trabalho experimental foram realizados os seguintes ensaios preliminares:

a) Avaliação da atividade total das amostras

Este é um procedimento rotineiro executado por técnicos do departamento de proteção radiológica do instituto em que este trabalho foi realizado.

A atividade total das amostras é medida com detetores do tipo Geiger Müller e tem como objetivo definir a quantidade máxima de amostra permitida por manipulação assim como o tempo de exposição máximo permitido a cada pesquisador junto a cada amostra.

b) Determinação da concentração do nuclídeo ^{137}Cs

Após a avaliação da atividade total de cada amostra, uma pequena alíquota individual é separada para determinação da concentração do nuclídeo ^{137}Cs por meio da técnica de espectrometria gama, seção IV.3.1.

Baseado nestes valores e dados do reator de *Obrigheim*⁽¹¹⁾ faz-se um cálculo aproximado da queima sofrida por cada amostra, seção IV.5.1.

A partir destes dados e de correlações isotópicas encontradas na literatura, seção V.2, faz-se uma estimativa do inventário isotópico dos elementos de interesse para efeito da adição de solução traçadora quando da determinação das concentrações isotópicas dos nuclídeos de interesse por meio da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa, seção IV.3.2.3.

c) Determinação da concentração do nuclídeo ^{241}Am

Uma avaliação inicial da concentração do nuclídeo ^{241}Am é necessária para efeito de cálculo da quantidade de solução traçadora a ser adicionada às amostras para determinação de concentração

por meio da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa.

Como até hoje não existiam na literatura internacional correlações isotópicas precisas envolvendo isótopos do elemento amerício, esta avaliação foi feita por meio da técnica de espectrometria gama, seção IV.3.1.

IV.1. REATOR DE OBRIGHEIM

A planta nuclear de *Obrigheim* é operada pela *Kernkraftwerk Obrigheim (KFK)* estando equipada com um reator à água pressurizada, PWR, com 350 MWe de potência⁽¹¹³⁾.

Para o estudo desenvolvido neste trabalho foram selecionadas 4 varetas do elemento combustível designado pela sigla BE-124 e uma vareta do elemento combustível designada pela sigla BE-120. Ambos os elementos combustíveis são formados por 180 varetas com enriquecimento em ^{235}U de 3% e 2,83% respectivamente.

Na Figura 11 têm-se o diagrama esquemático do núcleo do reator e a posição dos elementos combustíveis em estudo durante os ciclos de irradiação a que foram submetidos.

A Figura 12 mostra a localização das varetas dentro de cada elemento combustível e na Figura 13 as posições de corte de cada vareta.

A Figura 14 mostra a localização das pastilhas de combustível analisadas e o espectro de nêutrons a que foram submetidas⁽¹¹⁾.

As amostras utilizadas podem ser identificadas na Figura 13 e Figura 14 por meio das seguintes siglas: M14P1R1-744, G7P1F2-741, M14P4R1-745, G7P5R1-743, E3P2R1-739, E3P4R2-740, G7P3F2-742 e K14P4R1-747. De modo a simplificar a nomenclatura será adotado no texto somente a sigla numérica.

CICLOS DE IRRADIAÇÃO	PERÍODO
SEGUNDO	30.09.1970 - 12.08.1971
TERCEIRO	30.09.1971 - 07.09.1972
QUARTO	05.10.1972 - 01.09.1973
QUINTO	25.09.1973 - 16.08.1974

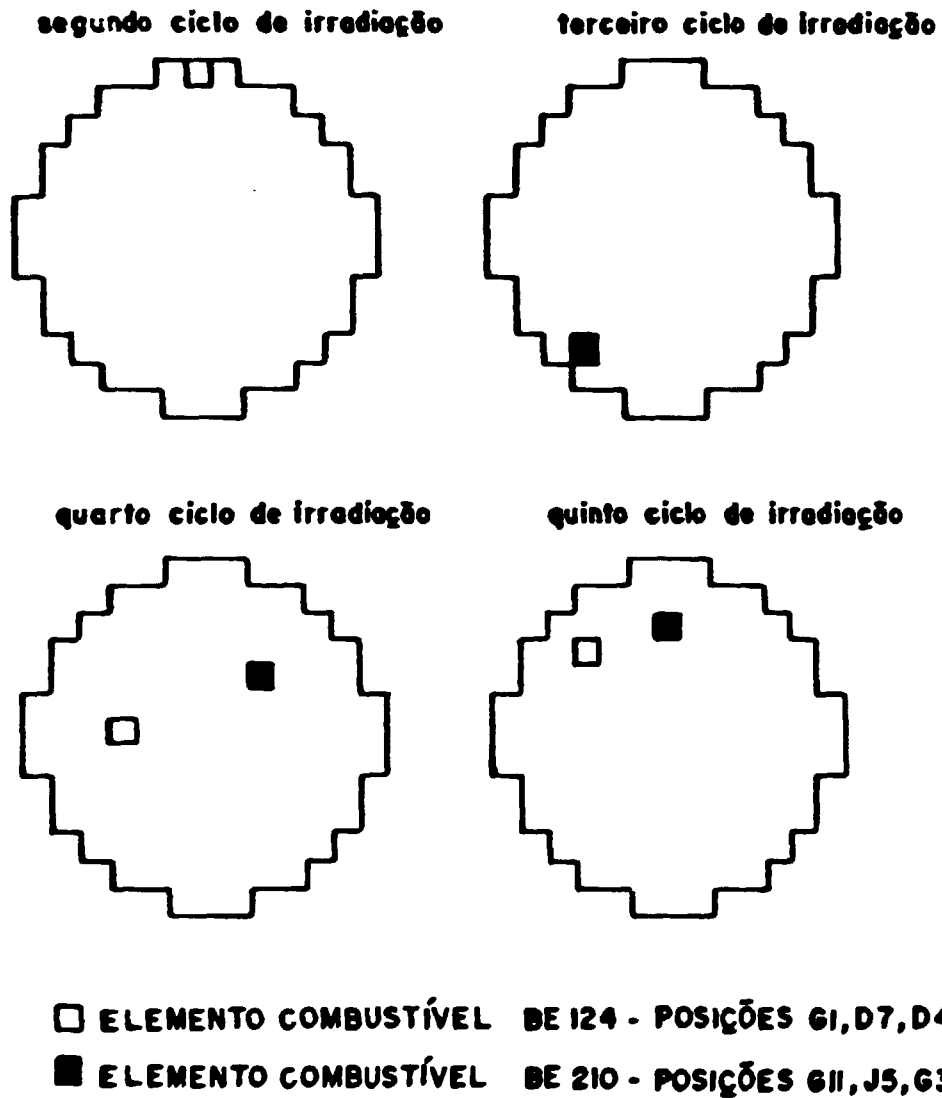


Figura 22. Diagrama esquemático do núcleo reator de Obrigheim.

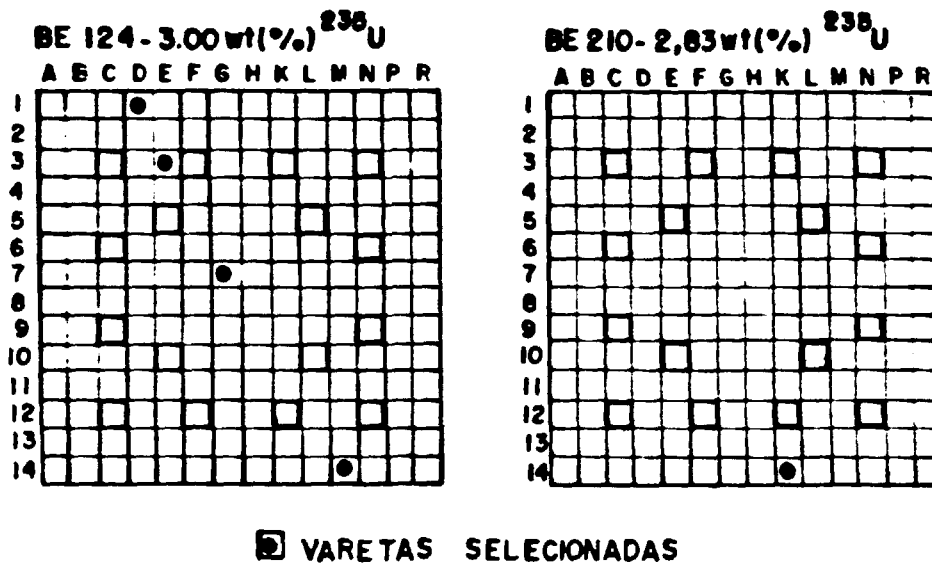


Figura 12. Localização das varetas dentro de cada elemento combustível.

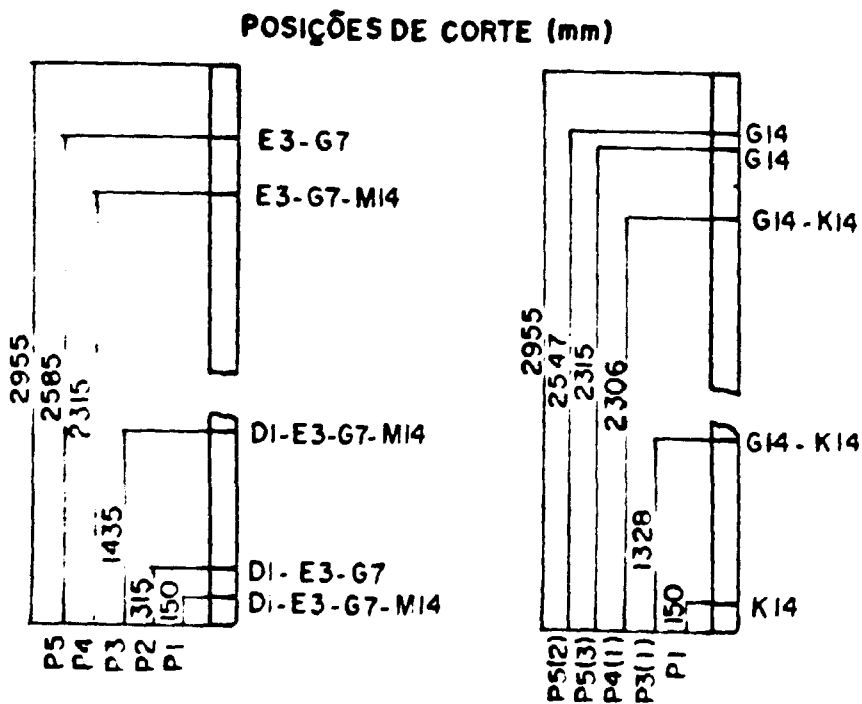


Figura 13. Posições de corte de cada vareta.

IV.2. MÉTODOS DE SEPARAÇÃO QUÍMICA DOS ELEMENTOS DE INTERESSE

As amostras em estudo foram recebidas em solução de HNO_3 14M de acordo com os dados da Tabela III.

Tabela III. Concentração das amostras em estudo

Amostra	Concentração (mg/gr solução)
739	0.314
740	0.324
741	0.358
742	0.334
743	0.381
744	0.291
745	0.288
747	0.289

IV.2.1. Separação Química dos Elementos Urânio e Plutônio

O procedimento utilizado envolveu a técnica de troca iônica com o uso de resina aniônica forte em meio nítrico e coluna de vidro pirex com diâmetro interno de 5mm e altura do tubo capilar de 130mm.

O método baseia-se no fato de que em soluções moderadamente concentradas de HNO_3 os nitrato complexos de plutônio, no estado tetravalente, $[\text{Pu}(\text{NO}_3)_6]^{-2}$, são muito mais fortemente retidos em resinas aniônicas fortes do que os nitrato complexos de urânio no estado hexavalente, $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_3]^{-1}$ e $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_4]^{-2}$, enquanto que os outros íons metálicos, como por exemplo amerício, cúrio e produtos de fissão não são retidos pela resina^(96,109,148).

Foram pesadas 5 alíquotas de cerca de 0,2 gramas de solu-

ção de cada amostra. Em três destas alíquotas foram adicionadas quantidades conhecidas de soluções traçadoras enriquecidas nos núclídeos ^{233}U e ^{242}Pu para determinação da concentração dos isótopos dos elementos urânio e plutônio nas amostras por meio da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa, seção IV.3.2.3. A cada alíquota foram adicionadas duas gotas de NH_4F 10M seguindo-se de um aquecimento a cerca de 80°C , em placa aquecedora, durante 15 horas. Após este período cada solução foi levada secura e redissolvida em cerca de 1 mL de HNO_3 1M, a fim de obter-se uma identidade química entre os isótopos de urânio (+6) e isótopos de plutônio (+4). Cada alíquota foi submetida a um processo de redução-oxidação com a adição lenta de cerca de 1 mL de $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$ 2M, aquecimento a 100°C até a secura, dissolução em cerca de 1 mL de HNO_3 8M seguida de aquecimento até secura. Após resfriadas, as amostras foram redissolvidas em HNO_3 8M e percoladas em coluna de vidro contendo cerca de 0,5 gramas de resina aniônica Dowex 1X8 200 a 400 mesh (ocupando aproximadamente 6,5 cm de altura no capilar) previamente condicionada em HNO_3 8M. O urânio em excesso e produtos de fissão foram removidos lavando-se a coluna com 8 mL de HNO_3 recolhendo o quarto mililitro para análise isotópica de urânio.

De modo a eliminar-se o urânio remanescente, ao método original, acrescentou-se neste ponto uma etapa a mais de purificação lavando-se a coluna com cerca de 0,5 mL de HNO_3 5M⁽¹⁴⁸⁾.

A fim de eluir-se plutônio adicionou-se a coluna cerca de 3 mL de HNO_3 0,35M recolhendo-se os dois últimos mililitros para sua análise isotópica.

Na Figura 15 é apresentado um diagrama esquemático dos procedimentos adotados.

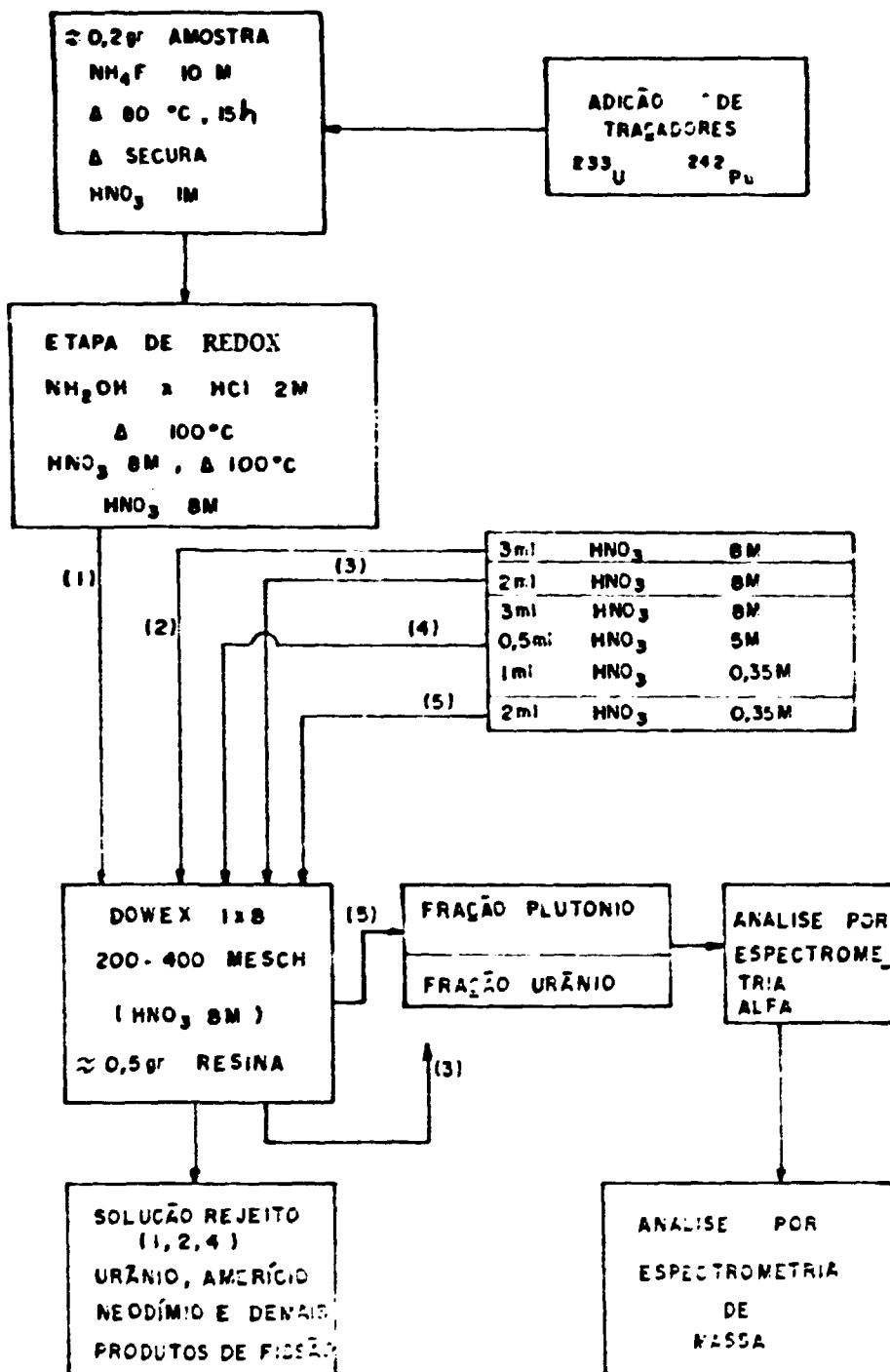


Figura 15. Diagrama esquemático dos procedimentos para separação química dos elementos urânio e plutônio.

IV.2.2. Separação Química dos Elementos Neodímio e Americio

Devido às semelhanças em seus raios iônicos, estruturas cristalinas, arranjos eletrônicos externos e, conseqüentemente, comportamento químico, a separação química, em frações puras, dos elementos lantanídeos e elementos actínídeos trivalentes têm sido um problema clássico em química analítica^(130,137,162).

Neste trabalho a separação química dos elementos de interesse foi feita utilizando-se resina catiônica forte e o ácido alfa hidroxibutírico (α - HIBA) como agente complexante^(36,37) e tiveram como referência os trabalhos desenvolvidos por Koch^(101,106) e Wantschik⁽¹⁷⁴⁾.

O princípio do método baseia-se no fato de que o raio iônico hidratado destes ions trivalentes aumenta com o aumento do número atômico. Como a formação de um composto entre a parte negativa da resina e um cation envolve forças de natureza eletrostática os elementos leves ficam mais fortemente retidos pela resina do que os elementos pesados^(124,148).

Um aumento dos coeficientes de separação destes ions é conseguido com o uso de agentes complexantes. Isto se deve ao fato de que na presença de um ligante complexante a distribuição dos cations entre a solução e a resina é o resultado da afinidade do cation pela resina e pelo agente complexante. Como a afinidade dos ions pela resina é similar à eluição destes elementos se processa de acordo com suas afinidades pelo agente complexante.

Nas condições adotadas neste trabalho o amerício tem um comportamento químico muito similar ao praseodímio precedendo ao neodímio na seqüência de eluição^(84,129).

Da mesma forma como na seção IV.2.1, foram pesadas 5 alíquotas de 5g de solução para cada amostra adicionando em 3 delas quantidades conhecidas de soluções traçadoras enriquecidas nos núcleos ¹⁵⁰Nd e ²⁴³Am para determinação da concentração dos isótopos dos elementos neodímio e amerício por meio da técnica de diluição

ção isotópica aplicada a espectrometria de massa, seção IV.3.2.3.

Cada alíquota foi aquecida até a secura e redissolvida em cerca de 1 mL de HCl 12M. A solução foi percolada em coluna de vidro contendo cerca de 0,5 gramas de resina aniônica forte Dowex 1X8 200 a 400 mesh, similar a anteriormente utilizada na separação química dos elementos urânio e plutônio, previamente condicionada em HCl pela passagem de alguns mililitros de HCl 10M. Os elementos urânio e plutônio permaneceram fortemente retidos na resina enquanto que amerício, cúrio, neodímio e demais produtos de fissão foram eluídos lavando-se a coluna com HCl 10M. A solução eluída foi evaporada a secura e o resíduo redissolvido em 1 mL de HCl 0,05M. Após agitação a solução resultante foi percolada em coluna de vidro pirex (diâmetro interno de 5mm e cerca de 130 mm de altura) contendo cerca de 0,3 gramas (aproximadamente 6,0 cm de altura no capilar) de resina catiônica forte Dowex 50W 200-400 mesh previamente condicionada com solução de α -HIBA 0,25M, pH = 4,6, em meio amoniacal. Em seguida a coluna foi lavada com cerca de 2 mL de solução de α -HIBA em frações de 0,4 mL. Após cerca de 1 mL de lavagem elui o cúrio seguido pelo amerício e neodímio. As frações de interesse foram recolhidas em tubos de ensaio e evaporadas a 80°C em placa aquecedora até a secura. Nesta etapa observou-se a formação de resíduos de cor branca, cuja eliminação exigiu uma queima a cerca de 450°C com adição, de forma cuidadosa e simultânea, de algumas gotas de HNO₃ concentrado⁽¹⁴⁸⁾.

Na Figura 16 tem-se o diagrama esquemático da metodologia utilizada.

Após o desaparecimento do resíduo as amostras foram resfriadas e redissolvidas em HNO₃ 0,5M para posterior análise por espectrometria de massa.

A seqüência de eluição foi monitorada por meio da atividade de alfa, dos elementos cúrio e amerício, adaptando-se detectores semicondutores às saídas das colunas conforme diagrama da Figura 17.

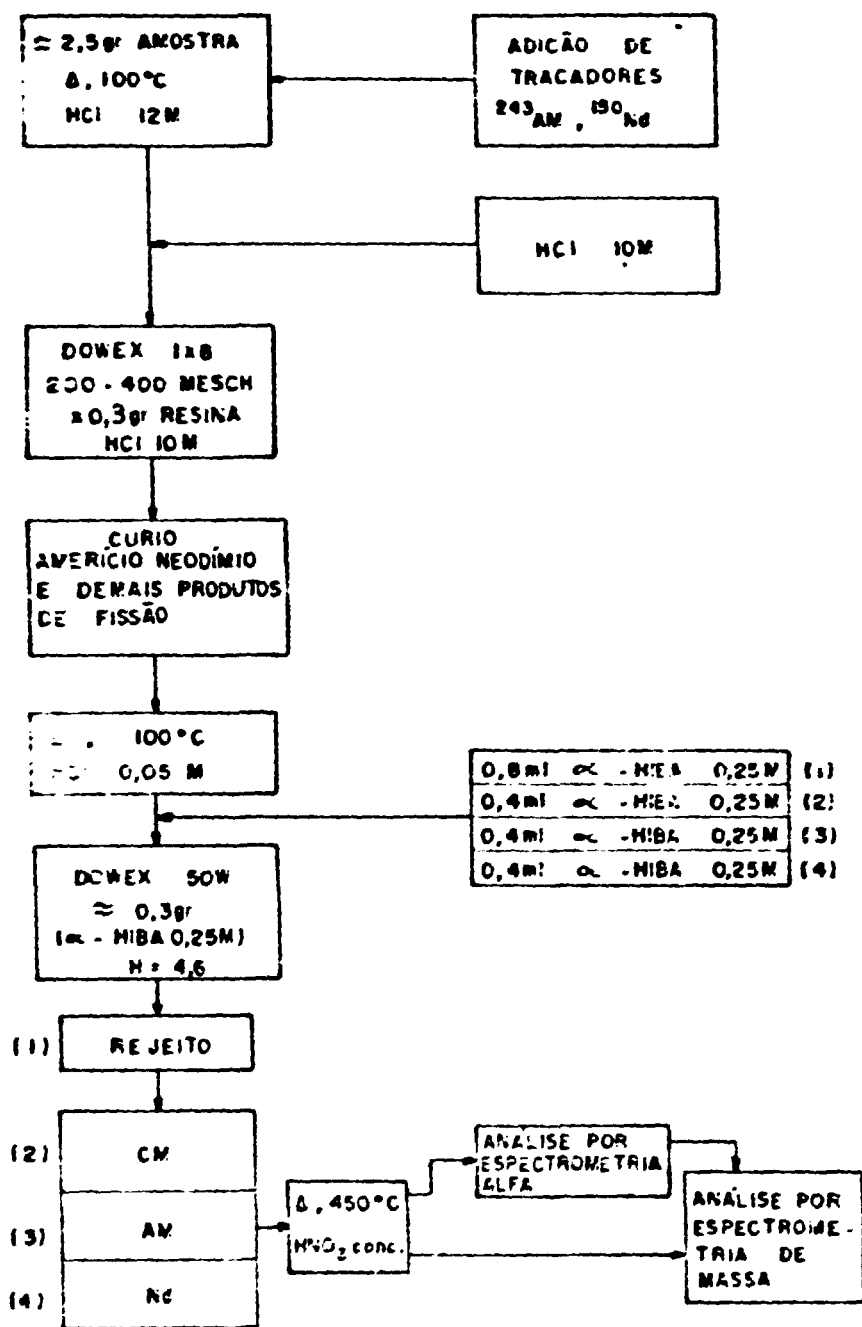


Figura 16. Diagrama esquemático dos procedimentos para separação química dos elementos amerício e neodímio.

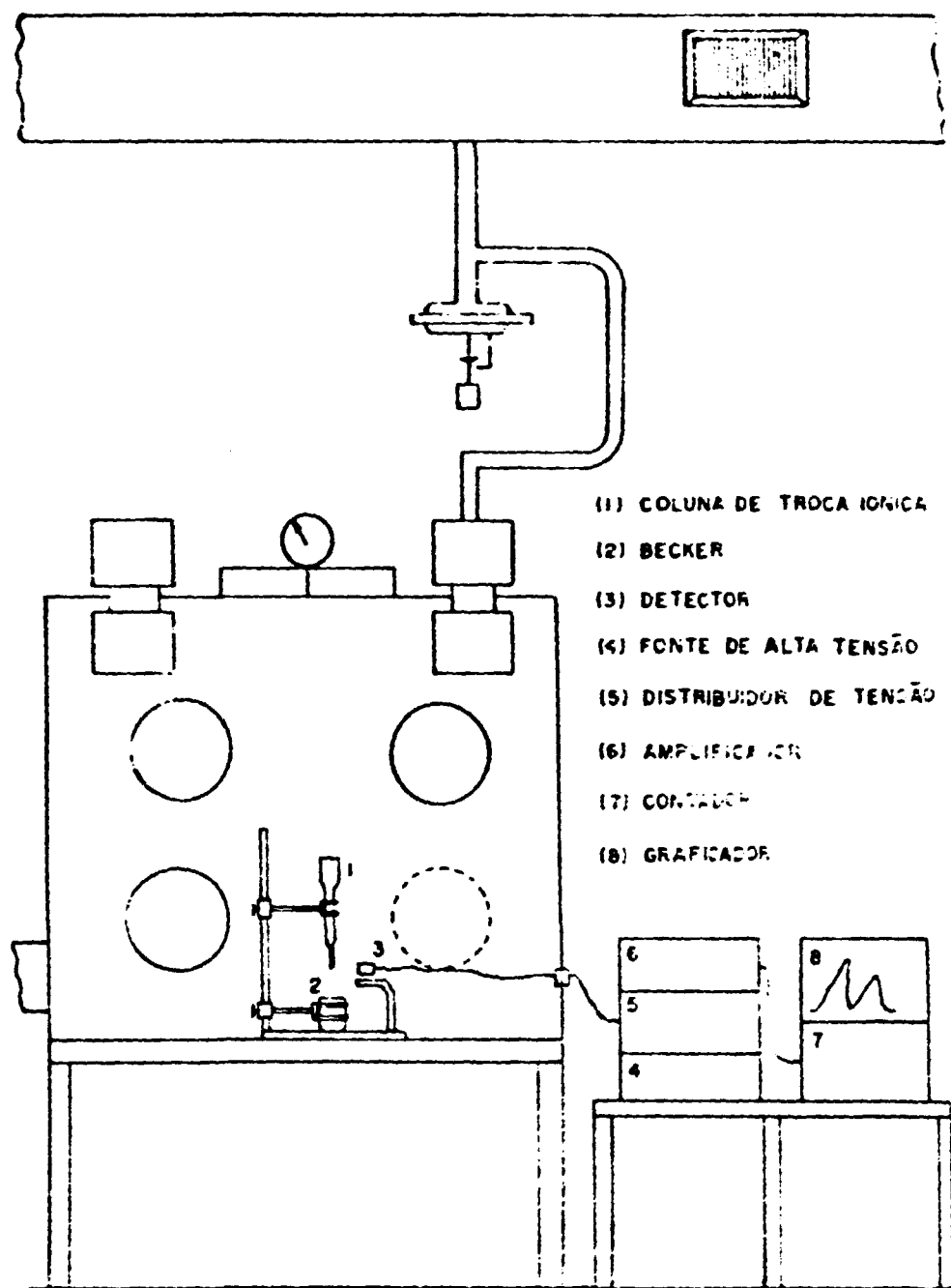


Figura 17. Arranjo experimental para separação química dos elementos amerício e neodímio.

Na Figura 18 tem-se um exemplo típico do registro da seqüência de eluição dos elementos de interesse.

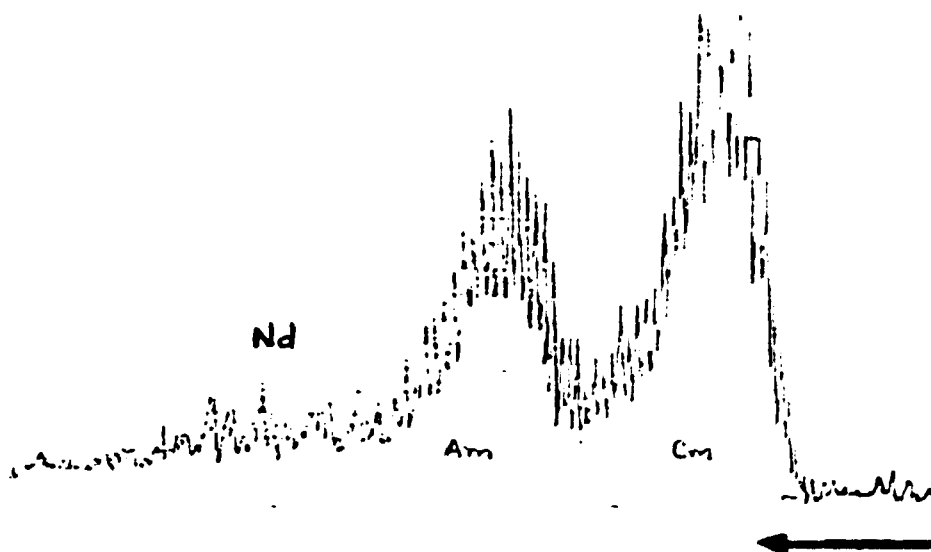


Figura 18. Seqüência de eluição dos elementos cúrio, amerício e neodímio.

IV.3. CARACTERIZAÇÃO ISOTÓPICA DO COMBUSTÍVEL NUCLEAR IRRADIADO

A caracterização isotópica das amostras em estudo consistiu da análise da concentração e composição isotópica dos isótopos dos elementos urânio, plutônio, neodímio e amerício por meio de três técnicas conjugadas a saber:

IV.3.1. Espectrometria Gama

Utilizada para uma avaliação preliminar da concentração dos nuclídeos ^{137}Cs e ^{241}Am e determinação da queima por meio do método radioquímico.

vácuo iniciou-se as análises elevando-se a corrente do filamento de ionização até obter-se uma emissão iônica estável do nuclídeo ^{187}Re de aproximadamente 1,2 Volts. Em seguida elevou-se a corrente do filamento com a amostra até conseguir-se uma emissão iônica dos isótopos de interesse de aproximadamente 1 Volt. Nos casos em que esta emissão não apresentou-se estável, provavelmente devido à impurezas e/ou qualidade do depósito, reduziu-se a corrente do filamento da amostra até que a intensidade do isótopo de interesse fosse reduzida metade e após 15 minutos retomou-se o processo de elevação da temperatura até obtenção de um feixe iônico estável e com intensidade de satisfatória.

Cada amostra foi analisada por três vezes. Para cada análise foram feitas três varreduras independentes nas quais as razões isotópicas dos nuclídeos de interesse foram medidas por dez vezes. Para eliminação de valores de razão isotópica suspeitos aplicou-se o teste de Dixon conforme manual do fabricante⁽⁸⁵⁾ admitindo-se no máximo a eliminação de 30% dos valores de razão isotópica medidos. Nestes casos todo procedimento de preparo e análise das amostras foi repetido.

Urânio, plutônio, amerício e neodímio foram medidos como íons metálicos utilizando a técnica de filamento duplo⁽¹⁴⁸⁾. A presença de interferentes isobáricos foi monitorada nas regiões correspondentes aos íons $^{239}\text{Pu}^+$, $^{235}\text{U}^+$, $^{142}\text{Ce}^+$ e $^{146}\text{Sm}^+$, $^{244}\text{Cm}^+$ e $^{239}\text{Pu}^+$ para as análises de urânio, plutônio, neodímio e amerício, respectivamente.

Apenas no caso de análises de neodímio foi observada a presença de interferentes isobáricos, os quais foram eliminados no próprio espectrômetro de massa após desgaseificação baseada no princípio da evaporação diferencial entre os íons presentes⁽⁹⁵⁾.

IV.3.2.3. Método de diluição isotópica

A determinação da concentração de um elemento por meio do método de diluição isotópica baseia-se na medida da variação da

composição isotópica de um elemento antes e após a adição de quantidade conhecida de solução traçador isotópico com composição isotópica bem definida^(23,64,128,176).

Uma grande vantagem de utilização desta técnica consiste em ser desnecessária a utilização de procedimentos de separação química quantitativa dos elementos de interesse simplificando e tornando mais rápidos os trabalhos de laboratório o que torna esta técnica extremamente útil para análise de elementos lantanídeos e actínídeos provenientes de amostras irradiadas .

Quando aplicada à espectrometria de massa esta técnica possui ainda as seguintes características⁽¹⁴⁸⁾:

- permite a obtenção simultânea da concentração e abundância isotópica dos nuclídeos de interesse;
- alta sensibilidade podendo medir elementos actínídeos a nível de nanogramas;
- permite a determinação da concentração e composição isotópica com precisões na ordem de 1 a 0,1%, respectivamente;
- as fontes de erros devem-se principalmente às etapas de calibração da solução traçadora e nos procedimentos de identidade química dos nuclídeos contidos nas soluções misturas.

As principais etapas da técnica de diluição isotópica são:

- A. obtenção e preparação de uma solução representativa da amostra a ser analisada;
- B. adição a amostra, com base no peso, de quantidade exatamente conhecida de solução traçadora, previamente calibrada, com concentração bem definida;
- C. tratamento químico adequado das soluções amostra, traçadora e mistura de modo a obter-se identidade química dos elementos presentes;

D. separação química dos elementos de interesse;

E. análise isotópica por espectrometria de massa dos elementos de interesse nas soluções amostra, traçadora e mistura;

F. cálculo das concentrações por meio da seguinte equação:

$$C_A^E = C_T^K \frac{M_T}{M_A} \frac{m_a}{m_p} \left(\frac{MEK - TEK}{1 - \frac{MEK}{TEK}} \right) \quad (IV.8)$$

onde: E e K = nuclídeos de interesse na solução amostra e traçadora respectivamente;

C_A^E e C_T^K = concentração dos nuclídeos E e K, em átomos/grama de solução, nas soluções amostra e traçadora respectivamente;

m_a e m_p = massa atômica dos nuclídeos E e K respectivamente;

MEK, TEK e AEK = razão isotópica entre os nuclídeos E e K nas soluções mistura, traçadora e amostra respectivamente;

M_T e M_A = massa das soluções traçadora e amostra presente na mistura, respectivamente.

Na tabela IV são apresentados os principais parâmetros utilizados para o cálculo da concentração isotópica dos isótopos dos elementos de interesse neste trabalho.

Tabela IV. Parâmetros utilizados para o cálculo da concentração isotópica dos nuclídeos de interesse

Elemento a ser analisado	Concentração isotópica		Razões Isotópicas				
	C_A^E	C_T^R	MEK	TEK	AEK		
Urânio	^{238}U	^{235}U	$\frac{^{238}\text{U}}{^{235}\text{U}}$	$\frac{^{238}\text{U}}{^{235}\text{U}}$	$\frac{^{234}\text{U}}{^{238}\text{U}}$	$\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}}$	$\frac{^{236}\text{U}}{^{238}\text{U}}$
Plutônio	^{239}Pu	^{242}Pu	$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{242}\text{Pu}}$	$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{242}\text{Pu}}$	$\frac{^{240}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}}$	$\frac{^{241}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}}$	$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}}$
Americônio	^{241}Am	^{243}Am	$\frac{^{241}\text{Am}}{^{243}\text{Am}}$	$\frac{^{241}\text{Am}}{^{243}\text{Am}}$	$\frac{^{242}\text{Am}}{^{241}\text{Am}}$	$\frac{^{243}\text{Am}}{^{241}\text{Am}}$	
Neodímio	^{148}Nd	^{150}Nd	$\frac{^{148}\text{Nd}}{^{150}\text{Nd}}$	$\frac{^{148}\text{Nd}}{^{150}\text{Nd}}$	$\frac{^{142}\text{Nd}}{^{148}\text{Nd}}$	$\frac{^{143}\text{Nd}}{^{148}\text{Nd}}$	$\frac{^{144}\text{Nd}}{^{148}\text{Nd}}$
					$\frac{^{145}\text{Nd}}{^{148}\text{Nd}}$	$\frac{^{146}\text{Nd}}{^{148}\text{Nd}}$	$\frac{^{150}\text{Nd}}{^{148}\text{Nd}}$

Para o caso do neodímio além das correções para a presença de átomos de ^{150}Nd produzidos na fissão e átomos de ^{148}Nd presentes na solução traçadora corrigiu-se também a presença de átomos de ^{146}Nd e ^{150}Nd provenientes da contaminação de neodímio natural.

Dessa forma a razão $^{148}\text{Nd}/^{150}\text{Nd}$ corrigida medida na solução: mistura (M_{80}^c) é dada por^(143,167):

$$M_{80}^c = M_{80} \left(\frac{1 - \frac{T_{80}}{M_{80}} - N_{82} \cdot M_{26}}{1 - E_{08} \cdot M_{80} - N_{02} \cdot M_{20}} \right) \quad (IV.9)$$

onde M_{80} = razão isotópica entre os nuclídeos $^{148}\text{Nd}/^{150}\text{Nd}$ na

solução mistura;

M_{28} e M_{20} = razão isotópica entre os nuclídeos $^{142}\text{Nd}/^{148}\text{Nd}$ e $^{142}\text{Nd}/^{150}\text{Nd}$ na solução mistura;

N_{28} e N_{02} = razão isotópica entre os nuclídeos $^{142}\text{Nd}/^{148}\text{Nd}$ e $^{150}\text{Nd}/^{142}\text{Nd}$ para o neodímio natural;

E_{CS} = fator de correção para o nuclídeo ^{150}Nd produzido pela fissão, dado por:

$$E_{CS} = \frac{A_{08} \cdot (A_{02} - N_{02})}{A_{02} - (A_{08} \cdot N_{82})} \quad (\text{IV. 10})$$

onde: A_{08} e A_{02} = razão isotópica entre os nuclídeos $^{150}\text{Nd}/^{148}\text{Nd}$ e $^{150}\text{Nd}/^{142}\text{Nd}$ para o neodímio natural.

Conhecido o número de átomos de ^{150}Nd na solução traçadora, C_{50}^t , a razão isotópica $^{148}\text{Nd}/^{150}\text{Nd}$ corrigida, M_{80}^c , a massa da solução amostra, M_a , e a massa da solução traçadora, M_t , a concentração do nuclídeo ^{148}Nd na solução, N_{48}^{cn} , é dada por :

$$N_{48}^{cn} = C_{50}^t \cdot M_{80}^c \cdot \frac{M_a}{M_t} \quad (\text{IV. 11})$$

A quantidade de amerício em combustíveis nucleares irradiados depende do tipo de combustível, da queima sofrida pela amostra e do tempo de resfriamento⁽¹³⁷⁾. Após a descarga do reator a concentração do nuclídeo ^{243}Am permanece praticamente inalterada. Já a concentração do isótopo ^{241}Am cresce como resultado do decaimento β^- do nuclídeo ^{241}Pu cuja meia-vida é de 14,4 anos⁽¹⁵⁶⁾. Assim sendo faz-se necessária a correção da concentração deste nuclídeo para seu decaimento radioativo e para influência da concentração do nuclídeo ^{241}Pu presente na amostra no momento da descarga do reator, através da seguinte equação⁽⁷⁸⁾:

$$C_{A1} = C_{A2} e^{LA t} - \left[\frac{LP}{LA - LP} C_P \left(e^{(LA-LP)t} - 1 \right) \right] \quad (IV. 12)$$

onde: C_{A1} = concentração do nuclídeo ^{241}Am corrigida para o dia da descarga do reator;

C_{A2} = concentração do nuclídeo ^{241}Am medida;

C_P = concentração do nuclídeo ^{241}Pu medida;

LP = constante de decaimento do nuclídeo $^{241}\text{Pu} = 1,526 \cdot 10^{-11} \text{ s}^{-1}$

LA = constante de decaimento do nuclídeo $^{241}\text{Am} = 5,081 \cdot 10^{-11} \text{ s}^{-1}$

t = tempo transcorrido entre a descarga do reator e o dia da medida.

Para o nuclídeo ^{243}Am a correção, embora muito pequena, foi feita somente para o seu decaimento radioativo da seguinte forma:

$$C_{A3} = C_{A4} e^{-L3t} \quad (IV. 13)$$

em que: C_{A3} = representa a concentração do nuclídeo ^{243}Am corrigida para o dia da descarga do reator;

C_{A4} = representa a concentração do nuclídeo ^{243}Am no dia da medida;

L3 = representa a constante de decaimento deste nuclídeo, igual a $5,893 \cdot 10^{-12} \text{ s}^{-1}$;

t = tempo transcorrido entre a descarga do reator e a realização da análise.

Neste trabalho foram utilizadas soluções traçadoras enriquecidas nos nuclídeos ^{233}U , ^{242}Pu , ^{150}Nd e ^{243}Am fornecidas pelo *Oak Ridge National Laboratory*, Estados Unidos. Estas soluções foram previamente calibradas também por meio da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa utilizando-se de soluções padrões enriquecidas nos nuclídeos ^{238}U e ^{239}Pu fornecidos pelo *National Bureau of Standards*, Estados Unidos; soluções de neodímio natural fornecida pelo *Johnson Matthey Chemicals Limited*, Inglaterra.

terra e, solução de amerício enriquecida no nuclídeo ^{241}Am fornecida pelo *Institut for Transuranium Elements*, Alemanha Ocidental.

IV.4. ESPECTROMETRIA ALFA

A técnica de espectrometria alfa foi utilizada na determinação da concentração do nuclídeo ^{238}Pu e como técnica auxiliar na verificação da qualidade dos procedimentos de separação química urânio/plutônio, amerício/curio, para estimativa da quantidade de amostra a ser depositada no filamento para análise da composição isotópica de urânio, plutônio e amerício pela técnica de espectrometria de massa.

Em um disco de aço inoxidável ou cerâmico desengordurado com álcool etílico, delimitou-se uma área central de cerca de 20 milímetros de diâmetro utilizando-se de uma solução esmalte conhecida como *Zappon*. Sobre esta superfície depositou-se cerca de 20 μl de uma mistura na razão 1:1 de solução amostra, proveniente das etapas de separação química, e solução a 10% de tetraetileno (TEG), aqui utilizado como agente dispersante.

O disco foi então aquecido suavemente sob lâmpada de raios infravermelhos até a eliminação quase total da fase líquida. Em seguida, a fim de eliminar-se a fase orgânica do depósito, o disco foi aquecido em um aquecedor elétrico a cerca de 1000°K. Após resfriado o disco foi introduzido em um sistema de contagem alfa da *Frieseke-Hoepfner* chamado *Mikroprozessorgestwertes Rechnen, Analysieren und Steuersystem - Mikras Frieseke Hoepfner*. O sistema é equipado com um detetor de barreira de superfície de silício-lítio, Ortec modelo CR-19/150-100, possuindo uma resolução de 20 keV (FWHM) para energia de 5,48 Mev.

As fontes foram contadas por tempo suficiente até obtenção de cerca de 10^5 contagens sob área total na região correspondente aos picos dos nuclídeos em estudo.

A determinação dos nuclídeos de interesse em cada alíquota foi feita comparando-se as atividades medidas com aquelas obti-

das em amostras padrões preparadas no próprio laboratório com a mesma geometria e com massa e atividade bem conhecidas.

IV.4.1. Determinação da Composição Isotópica do Nuclídeo ^{238}Pu

Em combustíveis nucleares irradiados o nuclídeo ^{238}Pu está presente geralmente em quantidades muito pequenas e com baixa abundância isotópica dificultando a sua determinação por meio da técnica de espectrometria de massa, principalmente quando da utilização de espectrômetros de massa mais antigos. Dessa forma a técnica de espectrometria alfa tem sido amplamente utilizada para este fim^(22,24,161).

O método consiste na determinação da razão isotópica $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (N_{89}) baseada na medida da razão entre as atividades alfa $^{238}\text{Pu}/(^{238}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu})$, R, e razão isotópica entre os nuclídeos $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, N_{09} , obtida por meio da técnica de espectrometria de massa, assim sendo tem-se:

$$N_{89} = R \cdot L_{98} \cdot \left[1 + N_{09} + L_{09} \right] \quad (\text{IV.14})$$

onde: L_{98} = razão entre as constantes de decaimento dos nuclídeos $^{239}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$;

L_{09} = razão entre as constantes de decaimento dos nuclídeos $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$.

IV.5. MÉTODOS PARA A DETERMINAÇÃO DA QUEIMA DO COMBUSTÍVEL NUCLEAR IRRADIADO

O termo queima, "Burnup", é utilizado genericamente para expressar o número de fissões que ocorrem em um combustível durante seu período de utilização no reator nuclear expressando o grau de

consumo do mesmo devido ao processo de fissão.

A queima do combustível nuclear irradiado pode ser definida de diversas maneiras dependendo do método utilizado na sua determinação e do parâmetro cuja variação com a queima está sendo estudada.

Na indústria nuclear a queima é normalmente expressa em termos da quantidade de energia térmica produzida por tonelada métrica de átomos pesados inicialmente presentes no combustível; em metalurgia define-se como a densidade de fissão e em economia utiliza-se o termo rendimento em energia. Neste trabalho, assim como na maioria das atividades de pesquisa e desenvolvimento a queima será expressa em função da percentagem de átomos fissionados, ou seja, o número de fissões ocorridas por cem átomos pesados (massa molecular > 232) inicialmente presentes no combustível.

A determinação da queima em combustíveis nucleares irradiados pode ser obtida por meio de métodos destrutivos, não destrutivos, por correlações isotópicas e através de códigos computacionais. Um levantamento destes métodos pode ser encontrado em trabalhos publicados por Sarkis⁽¹⁴⁸⁾, Cunha⁽⁵⁴⁾, Simon⁽¹⁵⁷⁾ e Stover⁽¹⁶⁵⁾.

Neste trabalho determinou-se a queima das amostras em estudo por meio de métodos destrutivos baseados na técnica de espectrometria de massa, método do ^{148}Nd , e espectrometria gama, método radioquímico do ^{137}Cs . Em ambos os casos o número de fissões é calculado dividindo-se a concentração do produto de fissão selecionado pelo seu rendimento de fissão relativo ao principal, ou principais, isótopos fissionáveis presentes no combustível⁽¹¹⁷⁾.

IV.5.1. Método do ^{148}Nd

O método do ^{148}Nd é o mais preciso e tradicionalmente empregado método para determinação da queima em combustíveis nuclea-

res irradiados.

Proposto pela primeira vez por Fudge e colaboradores^(76,77) o ^{148}Nd apresenta as seguintes características^(4,142):

- não é volátil nem possui precursores voláteis;
- não migra dentro do combustível;
- sua utilização não exige um conhecimento do histórico de irradiação ao qual foi submetido o combustível;
- possui baixa seção de choque de absorção de nêutrons;
- possui baixos rendimentos de formação através de cadeias adjacentes;
- possui rendimentos de fissão aproximadamente iguais para os nuclídeos ^{239}Pu e ^{235}U ;
- não é um constituinte normalmente presente em materiais de revestimento e suporte do combustível nuclear;
- possui um isótopo blindado, ^{142}Nd , que pode ser usado para a avaliação da contaminação devido a presença de neodímio natural;
- o isótopo ^{150}Nd possui baixo rendimento de fissão podendo ser utilizado como traçador isotópico quando da utilização da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa;
- o elemento neodímio possui boas características de emissão iônica para medidas no espectrômetro de massa.

Pelo método do ^{148}Nd a percentagem total de átomos fissi \underline{o} nados (PF%) pode ser calculada pela relação entre o número total de fissões (NF) e o número de átomos pesados inicialmente presentes (NAT).

$$PF\% = \frac{NF}{NAT} \cdot 100 \quad (IV.15)$$

O número de fissões é dado por sua vez pela razão entre o número de átomos de ^{148}Nd presentes no combustível (N48) e o seu rendimento de fissão (E48) para os nuclídeos ^{235}U e ^{239}Pu .

$$NF = \frac{N48}{E48} \quad (IV.16)$$

$$NAT = NF + (U) + (Pu) \quad (IV.17)$$

onde (U) e (Pu) correspondem ao número de átomos de urânio e plutônio presentes no combustível após a irradiação.

IV.5.2. Método do ^{137}Cs

As principais desvantagens da utilização do método do ^{137}Cs consistem na migração que este nuclídeo sofre em combustíveis sob altas taxas de queima e a necessidade de um conhecimento preciso do histórico de irradiação a que foi submetido.

Entretanto, embora menos preciso do que o método do ^{148}Nd o método do ^{137}Cs possui a vantagem de ser rápido e não exigir procedimentos de separação química complexos para a sua execução.

Por meio deste método a queima sofrida pelo combustível (PF%) pode ser relacionada com a atividade gama do nuclídeo ^{137}Cs através da seguinte fórmula⁽³⁾:

$$PF\% = \frac{(K \cdot R_{\text{Cs/U}}) / E_{37}}{1 + R_{\text{Pu/U}} + (K \cdot R_{\text{Cs/U}}) / E_{37}} \quad (IV.18)$$

onde: $R_{\text{Cs/U}}$ = razão atômica entre $^{137}\text{Cs/U}$;

$R_{\text{Pu/U}}$ = razão atômica entre Pu/U;

E_{37} = rendimento de fissão do nuclídeo ^{137}Cs para o nuclídeo $^{235}\text{U} = 0,06376$;

K = fator de correção para a concentração do nuclídeo para o decaimento radioativo durante o período de irradiação e resfriamento dado por⁽⁵⁾:

$$K = \frac{e^{-LT} \cdot (1 - e^{-Lt})}{e^{-Lt}} \quad (IV.19)$$

onde: L = constante de decaimento do nuclídeo $^{137}\text{Cs} = 7,32 \cdot 10^{-15} \text{s}^{-1}$

T = tempo de irradiação em segundos;

t = tempo de resfriamento em segundos.

IV. E. CÓDIGOS COMPUTACIONAIS

Códigos computacionais são largamente empregados em toda extensão do ciclo do combustível nuclear quer na avaliação e previsão do comportamento do combustível quer na definição de procedimentos para o tratamento químico e salvaguardas do material nuclear assim como no estudo e no estabelecimento de correlações isotópicas.

Em estudos de física de reatores servem para simulação de ciclos de irradiação e cálculo da queima de combustíveis nucleares irradiados. Em centrais nucleares auxiliam na avaliação tanto da queima como da reatividade dos elementos combustíveis irradiados a serem armazenados nos tanques de resfriamento. Em laboratórios de análises de elementos combustíveis pós-irradiados, assim como em centrais de reprocessamento, juntamente com dados obtidos por meio de técnicas analíticas destrutivas e não destrutivas, fornecem informações para caracterização isotópica destes materiais.

IV.6.1. Código Computacional ORIGEN2

O código ORIGEN2^(51,134) foi desenvolvido no final da década de 70 pelo Oak Ridge National Laboratory, Estados Unidos, como um aperfeiçoamento do código ORIGEN⁽¹⁵⁾ sobre o qual possui diversas vantagens das quais podemos citar⁽⁵²⁾:

- variações das seções de choque dos principais nuclídeos com a queima durante a irradiação;

- tabelas de constantes nucleares atualizadas;
- energia por fissão específica para cada nuclídeo fissil;
- permite uma maior variedade de ciclos de combustíveis;
- possibilidade de um detalhamento do ciclo do combustível;
- especifica fatores de separação para o reprocessamento para cada elemento individualmente.

Escrito em linguagem FORTRAN o código ORIGEN2 foi desenvolvido para computadores tipo IBM 370/4341, como aquele instalado no Centro de Processamento de Dados do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. Seu banco de dados contém dados nucleares concernentes a 130 actnídeos, 850 produtos de fissão e 720 produtos de ativação provenientes das bibliotecas ENDF/B-IV⁽⁶⁰⁾ e ENDF/B-V⁽⁶¹⁾ desenvolvidas pelo National Neutron Cross Section Center, Brookhaven National Laboratory, Estados Unidos. O espectro de nêutrons foi calculado pela combinação do espectro estático XSDRNPM⁽⁸³⁾ e o código multidimensional de deflexão CITATION⁽⁷⁴⁾. A formação ou desaparecimento de um dado nuclídeo por transmutação, fissão ou decaimento durante um ciclo de irradiação é calculada usando um modelo pontual para resolução das equações não levando-se em consideração efeitos espaciais, efeitos de ressonância de alto absorção ou mudanças no espectro de nêutrons senão àqueles já estabelecidos previamente em seu banco de dados.

Por meio deste código a taxa na qual a concentração de um dado nuclídeo "i" muda durante um período de irradiação é descrita por meio de um sistema acoplado de equações diferenciais do tipo:

$$\frac{dx_i}{dT} = \sum_{j=1}^N l_{ij} h_j x_j + \phi \sum_{k=1}^N f_{ik} \sigma_k x_k - \left[h_i + \phi \sigma_i + r_i \right] x_i + F_i; \quad (\text{IV.20})$$

$$i = 1, 2, \dots, N$$

onde: x_i = densidade atômica do nuclídeo i;

T = período de irradiação;

- N = número de nuclídeos presentes;
- l_{ij} = fração de desintegração radioativa de outros nuclídeos que levam a formação do nuclídeo "i";
- h_i = constante de decaimento radioativo do nuclídeo "i";
- ϕ = fluxo médio de nêutrons ponderados na posição e energia;
- f_{ik} = fração de nêutrons que quando absorvidos por outros nuclídeos levam a formação do nuclídeo "i";
- σ_k, σ_i = seção de choque média de absorção de nêutrons do nuclídeo "k" e "i", respectivamente;
- r_i = taxa de remoção contínua do nuclídeo "i";
- F_i = taxa de alimentação contínua do nuclídeo "i".

Durante o ciclo de irradiação existirão n equações do tipo acima descrito para os n nuclídeos presentes. A solução deste sistema de equações diferenciais é feita pelo método de matriz exponencial, descrito detalhadamente por Croff⁽⁵³⁾ e Solá⁽¹⁶⁰⁾, e fornece a quantidade de cada nuclídeo presente.

Devido à grande versatilidade e volume de informações fornecidas, o código **ORIGEN2** encontra diferentes aplicações no ciclo do combustível nuclear dentre as quais destacam-se⁽⁵³⁾:

- projetos e operações de instalações nucleares;
- cálculos de calor de decaimento em piscinas de resfriamento de combustíveis nucleares irradiados;
- cálculos de espectros de irradiação gama utilizados na avaliação e projetos de blindagens para laboratórios e cascos de transporte de material nuclear irradiado;
- projetos de plantas de reprocessamento e depósitos de rejeitos radioativos;

- análises de risco;
- projeção de composição e características de rejeitos radioativos.

IV.5.2. Simulação do Histórico de irradiação das amostra em estudo por meio do Código Computacional ORIGEN2

Além de informações básicas tais como tipo de reator, enriquecimento inicial, composição do elemento combustível e tempo de irradiação, a utilização de códigos computacionais exige um conhecimento detalhado do histórico de irradiação a que a amostra foi submetida.

Neste trabalho a simulação de irradiação foi feita a partir dos valores de queima e razão isotópica $^{148}\text{Nd}/^{238}\text{U}$ obtidos experimentalmente, dos dados fornecidos pela central de Obrigheim, da interpretação gráfica do histórico de irradiação, Tabela V, apresentada na Figura 20⁽¹¹³⁾, desconsiderando-se pequenos transientes de potência.

Tabela V. Interpretação do histórico de irradiação dos elementos combustíveis BE-120 e BE-124

ELEMENTO COMBUSTÍVEL			
BE-120		BE-124	
Tempo de Irradiação (Dias)	Potência (%)	Tempo de Irradiação (Dias)	Potência (%)
30	100	5	100
5	0	2	0
8	100	101	100
4	0	1	0
60	100	13	100
9	0	43	0
77	100	135	100
8	0	5	0
40	100	35	100
5	80	28	0
43	100	131	100
5	0	5	0
5	80	83	100
17	90	6	0
420	0	25	100
131	100	10	30
5	0	39	100
88	100	27	85
6	0	24	0
25	100	229	100
10	0	25	90
40	100	13	85
27	80	54	78
24	0	5	50
229	100		
25	90		
67	60		
4	50		

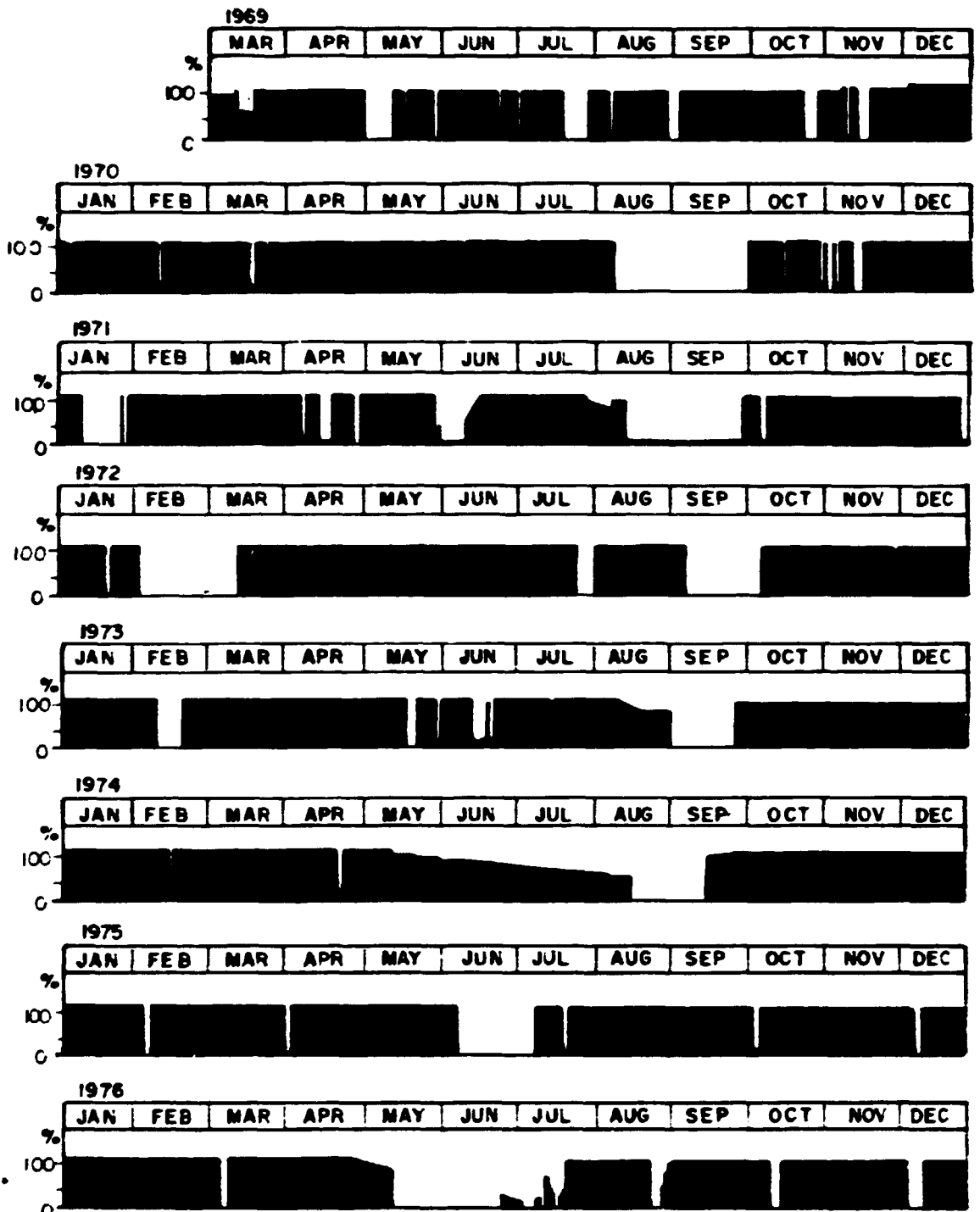


Figura 20. Histórico de irradiação do reator de Obrigheim entre 1969 e 1976.

De modo a exemplificar os procedimentos adotados considere-se, por exemplo, a amostra 742 do elemento combustível BE-124.

Pela análise dos dados da figura 20 tem-se que este elemento combustível foi submetido as seguintes taxas de irradiação:

Tempo de Irradiação (Dias)	Potência (%)
770	100
42	90
37	80
67	60
4	50
10	30

Desse modo a taxa de potência relativa (TPR) é dada por:

$$TPR = 770 \times 1 + 42 \times 0,90 + 37 \times 0,80 + 67 \times 0,60 + 4 \times 0,50 + 10 \times 0,30 = 882,6 \quad (IV.21)$$

Como para esta amostra o valor da queima obtido experimentalmente foi de 31832 Mwd/t, calcula-se um fator de potência (FP) dividindo-se o valor experimental da queima pela taxa de potência relativa. No exemplo em questão tem-se:

$$FP = \frac{31832,3}{882,6} = 36,07 \quad (IV.22)$$

Dessa forma estabelece-se a seguinte correspondência:

Potência	FP
100	36,07
90	32,45
80	28,83
60	21,42
50	18,03
30	10,82

Os dados acima são inseridos na estrutura do programa

ORIGEN2 ajustando-os até que a razão isotópica $^{148}\text{Nd}/^{238}\text{U}$ esteja de acordo com o valor obtido experimentalmente. Os valores para 100% de potência e razão isotópica $^{148}\text{Nd}/^{238}\text{U}$ encontrados para as amostras foram:

Amostra	FP	$^{148}\text{Nd}/^{238}\text{U}$ ($\times 10^{-4}$)
739	32,66	5,305
740	35,71	5,888
741	24,50	3,436
742	36,07	5,911
743	29,75	4,905
744	17,98	2,900
745	28,75	4,706
747	37,20	7,096

IV.7. CRITÉRIOS ESTATÍSTICOS ADOTADOS NO ESTABELECIMENTO DAS CORRELAÇÕES ISOTÓPICAS

Como descrito anteriormente, correlações isotópicas definem basicamente uma relação matemática entre duas quantidades diferentes. Dessa forma, ao estabelecerem-se correlações isotópicas um ponto importante a ser definido consiste nos critérios estatísticos a serem adotados para o ajuste dos pontos e identificação daqueles fora do ajuste. Existem na literatura um grande número de artigos sobre este assunto^(72,102,105,154,170,171) não havendo, entretanto, um consenso sobre quais os critérios de avaliação da qualidade do ajuste que devam ser adotados.

Neste trabalho o ajuste de pontos foi feito por meio do método dos mínimos quadrados^(8,49,56).

Considerando-se, por exemplo, uma experiência em que as variáveis x e y são correlacionadas e que para um certo conjunto de dados $(x_1, y_1, x_2, y_2, x_3, y_3, \dots, x_n, y_n)$ é válida a expressão:

$$y = a + bx \quad (\text{IV.23})$$

Admitindo-se que o erro na variável independente x é

desprezível em relação à variável dependente y . O ajuste pelo método dos mínimos quadrados consiste em se calcular valores para os parâmetros a e b que satisfaçam a todas as n equações possíveis de maneira que a soma dos quadrados dos desvios entre os valores observados de y e os valores ajustados pela reta, (IV.23), seja mínima. Isto é, deve-se obter a e b tais que:

$$f(a,b) = \sum_{i=1}^n \left[y_i - (a+bx_i) \right]^2 \quad (\text{IV.24})$$

seja mínima.

Derivando-se $f(a,b)$ em relação a cada argumento e igualando-se a zero, pode-se demonstrar que:

$$a = \frac{\sum_{i=1}^n x_i^2 \sum_{i=1}^n y_i - \sum_{i=1}^n x_i \sum_{i=1}^n x_i y_i}{n \sum_{i=1}^n x_i^2 - \left[\sum_{i=1}^n x_i \right]^2} \quad (\text{IV.25})$$

$$b = \frac{n \sum_{i=1}^n x_i y_i - \sum_{i=1}^n x_i \sum_{i=1}^n y_i}{n \sum_{i=1}^n x_i^2 - \left[\sum_{i=1}^n x_i \right]^2} \quad (\text{IV.26})$$

Neste trabalho o ajuste dos pontos em estudo foi testado para equações de primeiro e segundo grau. A avaliação do grau do polinômio foi feita por meio da análise da variância.

Para a regressão linear, IV.23, a variação de y é dada pela equação:

$$\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2 = \sum_{i=1}^n (y_i - Y_i)^2 + \sum_{i=1}^n (Y_i - \bar{y})^2 \quad (\text{IV.27})$$

onde: y = valor experimental;

\bar{y} = valor médio de y ;

Y = valor de y ajustado.

O primeiro termo a esquerda da equação representa a variação de y devido à regressão, e o segundo a variação residual.

Segundo Atalla⁽⁸⁾, pode-se demonstrar que

$$\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2 = b \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \quad (\text{IV.28})$$

onde \bar{x} é o valor médio de x . Dessa forma a hipótese $y = F(x)$ é aceita caso:

$$F_{\text{ex}} = \frac{b^2 \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 (n-2)}{\sum_{i=1}^n (y_i - Y_i)^2} > F_p(1, n-2) \quad (\text{IV.29})$$

onde: n = número de pontos;

F_{ex} = valor de F obtido experimentalmente e;

F_p = valor crítico de $F(1, N-2)$ dado pela distribuição de Fisher-Snedecor com grau de confiança de 95%⁽³²⁾, sendo aceitos valores percentuais de F de no máximo 5% para o qual a hipótese $y = F(x)$ é rejeitada.

No caso de equações quadráticas, $y = a + bx + cx^2$, são adotados os mesmos critérios acima mencionados substituindo-se o termo $(N-2)$ da equação (IV.27) por $(N-3)$ aceitando-se a hipótese $y = F(x)$ para $F_{\text{ex}} > F_p(1, N-4)$.

Para conjuntos de dados em que ambos os ajustes são adequados faz-se uma avaliação do comportamento dos resíduos. Na

equação (IV.27), ao passarmos de um polinômio de grau m para um polinômio de grau $m+1$ a parcela referente ao residuo diminui enquanto que a parte da regressão aumenta. Se a diferença entre os termos referentes a regressão obtidos pelos ajustes linear e quadrático forem da mesma ordem de grandeza dos residuos opta-se pelo ajuste linear por ser mais simples.

Uma avaliação da adequação do ajuste é feita por meio da razão entre a variação residual e variação devido à regressão, termo conhecido como coeficiente de correlação múltipla ao quadrado, R^2 .

$$R^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2 - \sum_{i=1}^n (y_i - Y_i)^2}{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2} \quad (IV.30)$$

R^2 varia entre zero e um. Nos casos em que os pontos estiverem bem ajustados a parcela da equação (IV.30) referente à soma dos quadrados dos residuos, $\sum_{i=1}^n (y_i - Y_i)^2$, será pequena e o valor de $R^2 \cong 1$.

Neste trabalho a qualidade do ajuste é aceita para valores de $R^2 \geq 0,90$, o que representa, em termos percentuais, um ajuste entre os pontos $\geq 90\%$.

Para o caso do ajuste linear a equação (IV.23) irá, na prática, ser usada para estimar a concentração das amostras por interpolação e os limites de detecção dos procedimentos analíticos. Neste caso, a imprecisão admitida para os parâmetros a e b foi de 15% e pôde ser calculada por meio das seguintes equações⁽⁸⁾:

$$S_a^2 = \frac{S_o^2 \sum_{i=1}^n x_i^2}{n \sum_{i=1}^n x_i^2 - \left[\sum_{i=1}^n x_i \right]^2} \quad (IV.31)$$

$$S_b^2 = \frac{n S_o^2}{n \sum_{i=1}^n x_i^2 - \left[\sum_{i=1}^n x_i \right]^2} \quad (\text{IV.32})$$

onde S_o^2 é a variância que caracteriza a dispersão dos valores y achados em relação aos valores Y estimados pela relação dada por:

$$S_o^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (y_i - Y_i)^2}{n - 2} \quad (\text{IV.33})$$

Para o caso das equações quadráticas adotaram-se os mesmos critérios.

Em ambos os casos o desenvolvimento matemático das equações utilizadas pode ser encontrado nas referências bibliográficas desta seção .

No auxílio dos cálculos utilizou-se os procedimentos de análise estatística do programa de análise de dados denominado como "SAS SYSTEM" desenvolvido pelo SAS Institute Inc., CARY, North Caroline, USA⁽¹⁴⁹⁾ e implantado no Centro de Processamento de Dados do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. Assim sendo a avaliação da qualidade, a existência do ajuste, sua qualidade e identificação dos pontos suspeitos foi feita da seguinte forma:

- determinação dos estimadores das constantes das equações e avaliação de sua imprecisão;
- análise de variâncias e resíduos;
- análise do coeficiente de correlação quadrático, R^2 ;
- teste da hipótese $y = F(x)$;
- análise da precisão dos parâmetros a e b ;
- testes de influência de cada observação individual no ajuste;
- análises dos limites de confiança e previsão;
- análise gráfica dos pontos ajustados.

V. RESULTADOS E DISCUSSÃO

A estratégia adotada na parte experimental deste trabalho parte do princípio de que a manipulação de materiais radioativos exige dos técnicos envolvidos um planejamento dos procedimentos analíticos a serem adotados a fim de evitar-se uma exposição e manipulação prolongada a materiais, os quais, quer por sua toxidez, quer pela alta atividade podem, em caso de acidentes, causar danos à saúde. Assim sendo, antes do início das operações de análise química e isotópica procurou-se levantar o perfil de cada amostra de modo a obter-se uma estimativa de seus constituintes.

Inicialmente determinou-se a concentração dos nuclídeos ^{137}Cs e ^{241}Am nas amostras por meio da técnica de espectrometria gama. A partir dos dados de concentração do nuclídeo ^{137}Cs e valores encontrados na literatura para a razão Pu/U e concentração do nuclídeo ^{238}U , típico para o reator de Obrigheim, determinou-se aproximadamente, a queima sofrida pelas amostras pelo método radioquímico do ^{137}Cs . Baseado nestes valores e utilizando-se de correlações isotópicas encontradas na literatura, fez-se uma avaliação inicial da concentração isotópica de urânio, plutônio e amerício presentes em cada amostra. A partir destes valores definiu-se as quantidades de cada amostra necessária para os procedimentos de separação química dos elementos de interesse assim como a quantidade de soluções traçadoras a serem adicionadas às amostras para determinação da concentração de urânio, plutônio, amerício e neodímio por meio da técnica de diluição isotópica aplicada à espectrometria de massa.

Baseado nos dados experimentais de composição e concentração isotópica procedeu-se à caracterização isotópica das amostras determinando-se, com precisão, a queima sofrida pelas mesmas e comparando-se os resultados experimentais com aqueles obtidos por meio do código computacional ORIGEN2. Finalmente, a partir dos dados de caracterização isotópica, foram estudadas as correlações isotópicas propostas neste trabalho.

V.1. DETERMINAÇÃO DA CONCENTRAÇÃO DOS NUCLÍDEOS ^{137}Cs e ^{241}Am
 POR MEIO DA TÉCNICA DE ESPECTROMETRIA GAMA

A determinação da concentração dos nuclídeos ^{137}Cs e ^{241}Am foi feita por meio do método comparativo a padrões previamente calibrados em atividade e massa.

Na Tabela V são apresentados os valores de concentração isotópica obtidos para o nuclídeo ^{137}Cs na data da medida. A precisão para todas as análises foi de cerca de 1%. O valor de "K" representa a correção da concentração deste nuclídeo para o decaimento radioativo durante e após a irradiação conforme descrito na seção IV.5.2 deste trabalho. A concentração deste nuclídeo no dia da parada do reator é obtida multiplicando-se a concentração isotópica medida pelo fator K.

Tabela VI. Concentração do nuclídeo ^{137}Cs nas amostras em estudo

Amostra	Tempo		Fator K	Concentração ^{137}Cs
	Irradiação	Resfriamento (Dias)		Gramas/Tonelada de Combustível
744	886	3510	1,2839	441,0
741	886	3510	1,2839	489,7
745	886	3510	1,2839	715,0
743	886	3510	1,3052	721,8
739	886	3770	1,2839	784,3
740	886	3510	1,3052	818,4
742	886	3770	1,2839	864,9
747	916	3510	1,2841	944,3

Na Tabela VII são apresentados os resultados encontrados para o nuclídeo ^{241}Am e uma comparação com aqueles obtidos por meio da técnica de diluição isotópica aplicada à espectrometria de massa encontrados neste mesmo trabalho.

Verifica-se que as precisões individuais para cada método estão de acordo com aquelas encontradas na literatura^(58,141).

A diferença percentual relativa entre os dois métodos foi em média de cerca de 4% e no máximo de 6,7%. Embora não haja na literatura outro trabalho em que ambas as técnicas sejam diretamente comparadas nestas mesmas condições, estes resultados foram considerados satisfatórios considerando-se que a análise do nuclídeo ^{241}Am por meio da técnica

Tabela VII. Comparação entre as medidas da concentração do nuclídeo ^{241}Am por meio das técnicas de espectrometria de massa e espectrometria gama

Amostra	Espectrometria		Diferença Percentual
	Massa 10^{14} átomos/g solução	Gama átomos/g	Relativa
744	1,257 0,3	1,202 0,8	4,4
741	1,942 0,4	2,000 0,7	(-)2,9
745	2,628 0,3	2,497 0,7	5,0
743	3,496 0,5	3,473 0,8	0,7
739	2,961 0,4	2,763 0,7	6,7
740	3,476 0,5	3,421 0,9	1,6
742	3,759 0,4	3,613 0,8	3,9
747	3,274 0,3	3,132 0,6	4,3

de espectrometria gama teve como principal objetivo somente uma avaliação inicial da concentração deste nuclídeo para o cálculo da quantidade de solução traçadora a ser adicionada às amostras quando da determinação da concentração isotópica do elemento amerício por meio da técnica de diluição isotópica aplicada à espectrometria de

massa.

V.2. AVALIAÇÃO DA CONCENTRAÇÃO E COMPOSIÇÃO ISOTÓPICA DAS AMOSTRAS POR MEIO DE CORRELAÇÕES ISOTÓPICAS ENCONTRADAS NA LITERATURA

A partir dos dados da Tabela VI, pode-se rapidamente fazer-se uma avaliação inicial da queima e, por meio de correlações isotópicas já estabelecidas, do conteúdo isotópico das amostras a serem analisadas.

Assim sendo, baseado no trabalho de Barbero e colaboradores⁽¹¹⁾ verificamos que para o reator de Obrigheim os valores típicos para a razão Pu/U e concentração de urânio são $8,38 \times 10^{-3}$ e 880000 g/tonelada de combustível respectivamente. Aplicando estes valores a fórmula (IV.15), seção IV.5.2 deste trabalho, são encontrados os seguintes valores de queima para a amostra.

Tabela VIII. Valores estimados de queima sofrida pelas amostras em percentagem de átomos fissionados

Amostras	Queima
744	1,72
741	1,90
745	2,76
743	2,63
739	3,02
740	3,28
742	3,32
747	3,62

Os resultados apresentados na Tabela VIII são aproximados já que utilizou-se para o cálculo valores médios da razão Pu/U e concentração de urânio nas amostras. Ainda assim, estes resultados quando aplicados à correlações isotópicas já estabelecidas na literatura, Tabela IX, fornecem informações suficientes para uma avaliação prévia do conteúdo isotópico das amostras o que irá faci-

res isotópicos para determinação da concentração dos nuclídeos de interesse por meio da técnica de diluição isotópica aplicada à espectrometria de massa.

Apesar de terem sido selecionadas apenas 12 correlações isotópicas, as equações apresentadas na Tabela IX demonstram claramente a possibilidade de uma ampla avaliação do conteúdo de nuclídeos pesados de uma amostra a partir da determinação aproximada da queima sofrida pela amostra e de uma simples medida de razão isotópica de um gás de fissão, como por exemplo, $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$, o qual pode ser facilmente coletado e analisado no sistema de exaustão nos tanques de dissolução em centrais de reprocessamento.

Outros exemplos existem em que a caracterização isotópica pode ser feita a partir de medidas não destrutivas de produtos de fissão radioativos como descrito no capítulo III. Entretanto, estes dados não estavam disponíveis quando da realização deste trabalho.

Sobre o reator de Obrigheim existem na literatura diversos trabalhos específicos em que são apontadas diversas correlações isotópicas. Contudo, de modo a evidenciar-se a universalidade desta técnica, são apresentadas na Tabela IX equações obtidas para diferentes reatores a água leve.

Nas Tabelas X e XI os resultados obtidos por meio da técnica de correlação isotópica são confrontados com aqueles medidos experimentalmente. Os valores absolutos encontrados para o desvio percentual relativo aos dados experimentais (D%) demonstram claramente, principalmente para os nuclídeos majoritários ^{238}U e ^{239}Pu , em que estes desvios foram de cerca de 10%, a validade e o potencial de utilização da técnica de correlação isotópica na avaliação da composição isotópica em amostras de combustíveis nucleares irradiados.

Tabela IX. Alguns exemplos de correlações isotópicas existentes na literatura

Y	=	A	+	B	X	REATOR	REFERÊNCIA
FT	(-)	5,08		3,46	$\frac{^{132}\text{Xe}}{^{131}\text{Xe}}$	GUNDREMMINGEN	27
DS		0,190		0,163	FT	OBRIGHEIM	102
$\frac{\text{Pu}}{\text{U}}$		$4,92 \times 10^{-4}$		$1,21 \times 10^{-2}$	DS	OBRIGHEIM	102
$\frac{^{236}\text{U}}{\text{IMA}}$		$5,45 \times 10^{-4}$		$1,19 \times 10^{-3}$	FT	LWR	177
$\frac{^{238}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	(-)	$2,81 \times 10^{-4}$		$1,59 \times 10^{-4}$	$\frac{^{132}\text{Xe}}{^{131}\text{Xe}}$	PWR	177
$\frac{^{239}\text{Pu}}{\text{IMA}}$		$3,87 \times 10^{-3}$		$3,38 \times 10^{-4}$	FT	OBRIGHEIM	102
$\frac{^{240}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	(-)	$3,03 \times 10^{-4}$		$2,04 \times 10^{-3}$	$\frac{^{132}\text{Xe}}{^{131}\text{Xe}}$	PWR	177
$\frac{^{241}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	(-)	$5,71 \times 10^{-5}$		$3,77 \times 10^{-4}$	FT	OBRIGHEIM	102
$\frac{^{243}\text{Am}}{\text{IMA}}$	(-)	$3,43 \times 10^{-5}$		$2,52 \times 10^{-5}$	FT	OBRIGHEIM	62
$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$		$4,93 \times 10^{-2}$		0,585	$\frac{^{240}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}}$	PWR	177
$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$	(-)	$8,42 \times 10^{-2}$		145.	$\frac{^{240}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	OBRIGHEIM	102
$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{241}\text{Pu}}$	(-)	0,309		1,68	$\frac{^{240}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}}$	OBRIGHEIM	102

A partir dos dados destas tabelas a concentração isotópica do nuclídeo ^{238}U foi obtida por meio da seguinte relação:

$$^{238}\text{U} = \frac{1}{\left[\frac{\text{Pu}}{\text{U}}\right]} X(^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu} + ^{241}\text{Pu}) \quad (\text{V.1})$$

A ausência do isótopo ^{242}Pu , por ser minoritário, não causa diferenças significativas na concentração total do nuclídeo ^{238}U .

Para os demais nuclídeos pesados os valores absolutos das diferenças percentuais relativas aos dados experimentais são também em média cerca de 10%.

Para o nuclídeo ^{243}Am os desvios, cerca de 30 a 60%, estão bem acima daqueles encontrados para os demais nuclídeos pesados o que demonstra uma certa inadequação da equação adotada.

Posteriormente, seção V.4, veremos que a utilização da técnica de diluição isotópica aplicada à espectrometria de massa na determinação deste nuclídeo permitiu a obtenção de melhores resultados com a definição de novas equações.

O fator de depleção do nuclídeo ^{235}U (DS) é definido como:

$$\text{DS} = \frac{^{235}\text{U}_f - ^{235}\text{U}_i}{^{235}\text{U}_i}, \quad (\text{V.2})$$

onde os símbolos "i" e "f" designam enriquecimento inicial e final do nuclídeo ^{235}U .

Tabela X. Comparação entre os valores experimentais (EX) de concentração isotópica, relativos ao número de átomos pesados inicialmente presentes (IMA), e depleção do nuclídeo ^{235}U com aqueles obtidos por meio da técnica de correlação isotópica (CI). (D%) desvio percentual relativo aos dados experimentais = $100 \times (\text{EX} - \text{CI})/\text{EX}$.

Parâmetro	D5	^{236}U	^{238}U	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{243}Am
		x	x	x	x	x	x	x
Amostra		10^{-3}	10^{-1}	10^{-5}	10^{-3}	10^{-4}	10^{-4}	10^{-5}
744(CI)	0,4704	2,588	8,822	3,227	4,451	9,714	5,913	0,911
(EX)	0,4620	2,720	9,596	2,703	3,908	10,190	4,555	0,576
D%	-1,8	4,9	-8,1	-19,4	13,8	4,67	-29,8	-58,2
741(CI)	0,4997	2,802	9,619	4,056	4,512	10,77	6,592	1,365
(EX)	0,5040	2,915	9,569	3,950	4,416	12,37	5,793	1,038
D%	0,85	3,88	-0,52	-2,68	2,17	12,9	-13,8	-31,5
745(CI)	0,6399	3,824	9,047	8,018	4,803	15,83	9,834	3,535
(EX)	0,6420	3,605	9,517	9,485	4,907	18,34	9,910	4,105
D%	0,33	-6,07	-4,94	15,5	2,11	13,7	0,8	13,9
743(CI)	0,6187	3,669	9,118	7,419	4,759	15,06	9,344	3,207
(EX)	0,6440	3,652	9,484	10,970	5,406	20,63	10,312	4,691
D%	3,92	-0,47	3,86	32,4	11,97	26,9	9,4	31,6
739(CI)	0,6823	4,133	8,917	9,21	4,891	17,36	10,81	4,191
(EX)	0,7090	3,817	9,503	10,31	4,552	19,57	10,12	5,708
D%	3,77	-8,28	6,17	10,6	7,44	11,3	-6,87	26,6
740(CI)	0,7246	4,442	8,802	10,41	4,979	18,89	11,79	4,947
(EX)	0,7330	3,874	9,468	14,38	4,904	22,31	11,73	7,967
D%	1,15	-14,7	7,03	27,6	1,53	15,3	-0,51	39,2
742(CI)	0,7312	4,489	8,787	10,59	4,992	19,13	11,95	4,947
(EX)	0,7360	3,987	9,467	14,75	4,987	22,57	12,00	8,681
D%	0,65	-12,6	7,18	28,2	-0,1	15,2	0,42	43,0
747(CI)	0,7801	4,846	8,671	11,98	5,094	20,89	13,09	5,704
(EX)	0,8150	3,840	9,432	16,62	4,471	23,41	12,10	12,151
D%	4,28	-26,2	8,07	-27,9	-13,9	10,7	-8,2	53,1

Tabela XI. Comparação-entre os valores experimentais (EX) de razões isotópicas e aqueles obtidos por meio da técnica de correlação isotópica (CI). D% - desvio percentual relativo aos dados experimentais = $100 \times (EX - CI)/EX$. * - valor não disponível

Parâmetro	$\frac{Pu}{U} \times 10^{-3}$	$\frac{^{132}Xe}{^{131}Xe}$	$\frac{^{242}Pu}{^{240}Pu}$	$\frac{^{240}Pu}{^{239}Pu}$	$\frac{^{242}Pu}{^{241}Pu}$
Amostra					
744(CI)	6,183	1,965	0,0566	0,1811	- $4,753 \times 10^3$
(EX)	5,604	1,191	0,0715	0,2607	0,1625
D%	-10,3	- 2,72	20,8	30,5	102
741(CI)	6,538	2,017	0,0720	0,2073	0,0393
(EX)	6,549	1,968	0,0909	0,2819	0,1899
D%	0,2	- 2,5	20,8	26,5	79,3
745(CI)	8,234	2,266	0,1454	0,3328	0,2500
(EX)	8,405	2,314	0,1502	0,3738	0,2970
D%	2,03	2,27	3,20	10,9	15,8
743(CI)	7,978	2,228	0,1343	0,3138	0,2182
(EX)	9,296	2,378	0,1633	0,3815	0,3055
D%	14,2	16,3	17,8	17,8	28,6
739(CI)	8,747	2,341	0,1676	0,3707	0,3137
(EX)	8,289	2,397	0,1889	0,4300	0,3730
D%	- 5,52	2,34	11,3	13,8	15,9
740(CI)	9,260	2,416	0,1898	0,4086	0,3774
(EX)	9,318	2,116	0,2153	0,4550	0,4074
D%	0,6	-14,3	-11,8	-10,2	7,36
742(CI)	9,339	2,428	0,1932	0,4144	0,3872
(EX)	9,471	2,578	0,2159	0,4526	0,4098
D%	1,39	5,82	10,5	8,4	5,51
747(CI)	9,931	2,514	0,2188	0,4582	0,4607
(EX)	9,273	*	0,2746	0,5236	0,5446
D%	- 7,1	-	-20,3	12,5	15,4

V.3. DETERMINAÇÃO DA QUEIMA POR MEIO DOS MÉTODOS DO ^{148}Nd E ^{137}Cs

Embora o método do ^{148}Nd seja o mais preciso e tradicionalmente empregado método para determinação da queima em combustíveis nucleares irradiados, sua utilização geralmente envolve procedimentos de separação química complexos visando a obtenção de frações dos elementos de interesse com um grau de pureza suficiente alta para análise por espectrometria de massa. Além dos custos envolvidos o método é de execução demorada, a qual além de submeter os operadores a uma exposição prolongada às amostras com alta atividade, impede sua utilização como método de rotina.

O método destrutivo por espectrometria gama, embora menos preciso possui a vantagem de ser mais rápido, não exigindo procedimentos de separação química específicos e envolver uma quantidade limitada de amostra sendo, portanto, utilizado principalmente em análises rotineiras.

No estudo de correlações isotópicas assim como para efeito dos cálculos teóricos o método adotado foi o do produto estável de fissão ^{148}Nd .

Na Tabela XII tem-se os resultados obtidos pelas duas técnicas.

Tabela XII. Comparação entre os valores de queima das amostras obtidos por meio dos métodos do ^{148}Nd e ^{137}Cs

Amostra	Queima em % Átomos Fissionados		Diferença Percentual
	^{148}Nd	^{137}Cs	Relativa
744	1,66	1,75	- 5,42
741	2,26	1,98	12,38
745	2,65	2,85	- 7,55
743	2,74	2,89	- 5,47
739	3,79	3,01	20,78
740	3,29	3,32	- 0,91
742	3,31	3,47	- 4,83
747	3,50	3,80	- 8,60

Para as amostras 740, 742, 743, 744 e 745 do elemento combustível BE-124 a diferença média absoluta percentual relativa ao método ^{148}Nd foi de 4,83% e máxima de 7,55%. Para a amostra 747 do elemento combustível BE-120 foi de 8,6%. Estes resultados estão de acordo com aqueles encontrados na literatura internacional^(8,10,11), podendo ser usados em processos considerando-se que para fins de reproprocessamento, por exemplo, as exigências de precisão e exatidão para os valores de queima são de 5% e 10%, respectivamente⁽⁷⁾.

Os valores de queima obtidos por meio do método do ^{137}Cs foi, para todas as amostras, superior àqueles encontrados pelo método do ^{148}Nd . Como esta diferença foi praticamente constante em toda extensão do intervalo de queima atribuiu-se a isto as incertezas nos dados nucleares e no histórico de irradiação não havendo elementos, neste trabalho, para que se possa atribuí-las à migração de célio dentro das varetas do elemento combustível.

As amostras 739 e 741 apresentam um desvio acima da média. Na Tabela XIII observa-se que os valores de abundância isotópica para o nuclídeo ^{150}Nd estão acima dos valores médios encontrados para as demais amostras. A razão deste desvio atribuiu-se a contaminação das amostras pela solução traçadora enriquecida neste nuclí

deo já que durante as análises isotópicas não foram observados a presença substancial do nuclídeo ^{142}Nd , o que elimina a possibilidade de contaminação de neodímio natural, nem tão pouco a presença o nuclídeo ^{147}Sm , eliminando a possibilidade de contaminação por erros nos procedimentos de separação química. Assim sendo será adotado neste trabalho, para as amostras 739 e 741, os valores de queima obtidos por meio do método do produto de fissão ^{137}Cs .

Tabela XIII. Abundância isotópica em porcentagem atômica do nuclídeo ^{150}Nd

Amostra	739	740	741	742	743	744	745	747
% Atômica ^{150}Nd	8,798	4,320	7,582	4,250	4,258	4,051	4,267	4,420

V.4. CARACTERIZAÇÃO ISOTÓPICA

Entende-se como caracterização isotópica de uma amostra o conjunto de informações sobre a concentração e composição isotópica de seus constituintes e parâmetros do reator de onde se originam. Estas informações podem ser obtidas por meio de métodos experimentais, códigos computacionais, através da técnica de correlação isotópica ou utilizando-se dos três métodos anteriormente mencionados de forma conjugada⁽⁶⁾.

A escolha de uma ou de outra alternativa irá depender dos objetivos do trabalho a ser realizado, por exemplo: contabilidade de materiais, salvaguardas, controle de processos etc. e da etapa do ciclo do combustível onde se deseja caracterizar o material nuclear. Neste trabalho a caracterização isotópica das amostras foi feita baseada em medidas de concentração e composição isotópica dos nuclídeos de interesse obtidas por meio das técnicas de espectrome-

tria de massa, espectrometria alfa e espectrometria gama.

Os resultados experimentais foram comparados com valores teóricos obtidos por meio do código computacional ORIGEN2 baseado em informações sobre o histórico de irradiação do combustível, seção IV.6, e nos valores de queima obtidos experimentalmente.

O objetivo desta comparação reside no fato de que até a presente data a previsão de formação para os isótopos de amerício em reatores nucleares tem sido feita somente por meio de códigos computacionais já que não existem correlações isotópicas precisas definidas para estes nuclídeos.

Na literatura internacional existem diversos trabalhos em que dados teóricos são comparados com valores experimentais^(50,63,66,158,168,178,180) todavia, códigos computacionais não específicos, como o código ORIGEN2, possuem limitações na comparação direta com dados de composição e concentração isotópica teórica por ele obtido e aqueles provenientes de um trabalho experimental. Isto deve-se ao fato de não levarem em consideração problemas ocasionais de dissolução e contaminação das amostras, características individuais de cada amostra em estudo tais como: variações temporais e locais no fluxo de energia de nêutrons, dimensões do encamisamento e da pastilha do combustível e, principalmente, devido à imprecisões nos dados nucleares e na interpretação do histórico de irradiação do combustível a ser analisado. Assim sendo, os dados a seguir apresentados serão analisados exclusivamente sob o ponto de vista de contabilidade e caracterização isotópica das amostras em estudo não levando em consideração, pois para tanto faltam informações, aspectos físicos nucleares.

Nas Tabelas a seguir, e até o final deste trabalho, as amostras serão apresentadas na ordem crescente à queima sofrida.

Nas Tabelas XIV e XV são apresentados os resultados da composição isotópica, em percentagem atômica, obtidos experimentalmente (E) e por meio do código computacional ORIGEN2 (O) e a diferença percentual relativa aos dados experimentais, para os principais isó

$$D = \frac{100^{\circ}(E - O)}{E}$$

(V.3)

onde "E" representa os dados experimentais e "O" os valores teóricos.

Tabela XIV. Composição isotópica do elemento urânio em porcentagem atômica. Valor experimental (E); código ORIGEN2 (O);

Amostra	²³⁴ U	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U	Diferença Percentual Relativa			
					²³⁴ U	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U
744 (E)	0,016	1,614	0,276	98,09				
744 (O)	0,014	1,670	0,251	98,07	12,5	-3,47	9,06	0,03
741 (E)	0,015	1,475	0,296	98,21				
741 (O)	0,013	1,485	0,282	98,22	13,3	-0,68	4,79	-0,07
745 (E)	0,014	1,074	0,371	98,54				
745 (O)	0,012	1,102	0,344	98,54	14,29	-2,61	7,28	0,00
743 (E)	0,012	1,049	0,377	98,57				
743 (O)	0,011	1,050	0,352	98,59	8,33	0,10	6,60	-0,02
739 (E)	0,012	0,882	0,394	98,71				
739 (O)	0,011	0,950	0,367	98,67	8,33	-7,71	6,85	0,41
740 (E)	0,010	0,803	0,403	98,79				
740 (O)	0,011	0,812	0,387	98,79	-10,00	0,98	5,61	0,00
742 (E)	0,013	0,800	0,417	98,78				
742 (O)	0,011	0,815	0,386	98,79	15,38	-1,88	7,43	-0,01
747 (E)	0,017	0,530	0,400	99,05				
747 (O)	0,010	0,533	0,393	99,06	41,18	-5,47	1,75	-0,08

Tabela Xi. Composição isotópica do elemento plutônio em porcentagem atômica. Valor experimental (E); código ORIGEN2 (O)

Amostra	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	Diferença Percentual Relativa				
						²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu
744 (E)	0,494	71,33	18,60	8,257	1,330					
744 (O)	0,393	71,35	18,56	8,448	1,255	20,34	-0,4	0,19	-2,31	5,64
741 (E)	0,615	68,98	19,45	9,197	1,768					
741 (O)	0,533	67,86	20,31	9,539	1,757	13,33	1,62	-4,44	-3,71	0,62
745 (E)	1,168	60,43	22,59	12,21	3,597					
745 (O)	0,937	60,71	23,13	11,97	3,257	19,78	-0,46	-2,38	1,99	9,45
743 (E)	0,942	60,05	22,950	12,27	3,780					
743 (O)	1,008	59,75	23,520	12,22	3,500	-7,00	0,50	-2,48	0,41	7,40
739 (E)	1,363	57,00	24,50	12,52	4,628					
739 (O)	1,155	57,93	24,17	12,73	4,012	15,26	-1,65	1,36	-1,72	13,3
740 (E)	1,608	54,80	24,93	13,29	5,368					
740 (O)	1,393	55,47	24,96	13,36	4,818	13,37	-1,22	-0,10	-0,53	10,3
742 (E)	1,679	54,91	24,85	13,20	5,364					
742 (O)	1,387	55,53	24,94	13,34	4,797	17,4	-1,12	0,4	-1,06	10,6
747 (E)	1,884	50,68	26,53	13,66	7,287					
747 (O)	1,828	51,05	25,91	14,51	6,710	2,97	-0,74	2,35	-6,21	7,92

Tabela X.I. Composição isotópica do elemento neodímio em porcentagem atômica. Valor experimental (E); código ORIGEN2 (O)

Amostra	¹⁴³ Nd	¹⁴⁴ Nd	¹⁴⁵ Nd	¹⁴⁶ Nd	¹⁴⁸ Nd	¹⁵⁰ Nd	Diferença Percentual Relativa	
							¹⁴⁸ Nd	¹⁵⁰ Nd
744 (E)	23,97	29,51	18,02	15,65	8,786	4,051		
744 (O)	25,91	22,88	19,66	17,26	9,606	4,287	-9,33	- 5,83
741 (E)	22,08	28,39	17,14	15,04		7,582		
741 (O)	25,06	23,69	19,39	17,36	9,633	4,352	1,38	42,6
745 (E)	21,52	31,43	17,31	16,43	9,024	4,267		
745 (O)	23,02	25,40	18,81	17,86	9,731	4,516	-7,83	- 5,83
743 (E)	21,44	31,44	17,25	16,55	9,054	4,258		
743 (O)	22,71	25,66	18,72	18,06	9,745	4,535	-7,63	- 6,60
739 (E)	18,89	30,14	16,01	15,51	10,620	8,798		
739 (O)	22,09	26,18	18,54	18,10	9,773	4,586	7,97	47,87
740 (E)	19,89	32,77	16,76	16,90	9,150	4,320		
740 (O)	21,14	26,96	18,25	18,35	9,816	4,377	7,27	- 7,78
742 (E)	21,45	31,46	17,26	16,57	9,017	4,250		
742 (O)	21,17	26,94	18,26	18,34	9,815	4,654	-8,85	- 9,51
747 (E)	17,99	34,51	16,64	17,19	9,241	4,420		
747 (O)	19,26	27,99	17,74	19,06	10,010	4,886	-8,32	-10,5

Tabela X.II. Composição isotópica do elemento amerício em porcentagem atômica. Valor experimental (E); código ORIGEN2

(O)

Amostra	Medido		Corrigido		Diferença Percentual Relativa	
	²⁴¹ Am	²⁴³ Am	²⁴¹ Am	²⁴³ Am	²⁴¹ Am	²⁴³ Am
744 (E)	95,40	4,50	81,29	18,71		
744 (O)	96,98	2,89	73,85	24,83	9,16	-32,73
744 (E)	95,92	4,07	73,19	26,81		
744 (O)	95,55	4,30	65,40	33,36	10,64	-24,42
745 (E)	90,83	9,18	44,18	55,82		
745 (O)	91,23	8,62	45,86	53,17	- 3,79	4,74
743 (E)	90,10	9,82	46,742	53,27		
743 (O)	89,40	10,47	43,09	55,99	16,31	-12,67
738 (E)	88,50	11,50	38,13	61,87		
738 (O)	88,76	11,11	37,87	61,31	0,68	0,91
740 (E)	85,92	14,01	20,174	69,28		
740 (O)	85,78	14,09	30,820	68,48	- 0,35	1,16
742 (E)	85,16	14,84	37,96	62,04		
742 (O)	86,07	13,81	30,98	68,32	18,39	-10,13
747 (E)	80,67	19,33	30,88	69,12		
747 (O)	78,67	21,22	18,58	80,97	39,83	-17,14

Os resultados obtidos mostram que os valores de composição isotópica experimentais e teóricos estão em boa concordância principalmente para os isótopos majoritários dos elementos urânio e plutônio.

Para o caso dos isótopos neodímio verifica-se claramente a influência da contaminação na composição isotópica dos nuclídeos ^{150}Nd e ^{148}Nd .

Para os isótopos de amerício observam-se maiores desvios em baixas e altas taxas de queima.

Nas Tabelas XVIII a XXI são apresentados os valores de concentração isotópica dos nuclídeos de interesse em gramas por tonelada de combustível.

Assim como no caso anterior os valores teóricos e experimentais de concentração isotópica estão em boa concordância entre si. Para o caso dos isótopos de urânio e plutônio os valores encontrados estão de acordo com aqueles obtidos por Croff⁽⁵³⁾ quando da análise de amostras pertencentes aos reatores Turkey Point Unit 3 H.B. Robinson Unit 2, Barbero e colaboradores⁽¹⁰⁾ quando da análise de amostras pertencentes ao reator Trinno Vercellese, Tabela XXII, e outros dados encontrados na literatura^(103,110).

Para o caso dos isótopos de amerício, com utilização da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa, os desvios percentuais relativos aos dados experimentais foram de cerca de 5,5% para nuclídeo ^{241}Am e cerca de 8% para o nuclídeo ^{243}Am nas amostras pertencentes ao elemento combustível BE-120. No elemento combustível BE-124 esta diferença foi de cerca de 11% e 28% para os nuclídeos ^{241}Am e ^{243}Am respectivamente. Para o nuclídeo ^{241}Am o desvio médio percentual relativo aumenta para cerca de 17% a 41%, para as amostras BE-120 e BE-124 respectivamente, quando da correção da concentração isotópica para a data de parada do reator. Estes valores demonstram claramente a influência da concentração do nuclídeo ^{241}Pu e dos dados nucleares no cálculo teórico da formação do nuclídeo ^{241}Am .

Até recentemente os valores encontrados na literatura, ba

Tabela XVIII. Concentração isotópica dos isótopos do elemento urânio em grammas/tonelada de combustível. Valor experimental (E); código ORIGEN2 (O)

Amostra	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	Diferença Percentual Relativa			
	\bar{x} 10	\bar{x} 10^3	\bar{x} 10^3	\bar{x} 10^5	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U
744 (E)	13,66	13,94	2,385	8,484				
744 (O)	11,55	14,22	2,145	8,456	15,4	-2,01	10,16	0,33
741 (E)	12,24	12,47	2,510	8,310				
741 (O)	11,08	12,60	2,406	8,438	9,48	-1,03	4,14	-1,54
745 (E)	11,45	9,119	3,147	8,378				
745 (O)	9,999	9,271	2,908	8,392	12,7	-1,67	7,59	-0,17
743 (E)	10,19	8,859	3,161	8,343				
743 (O)	9,836	8,817	2,971	8,385	3,51	0,47	0,60	-0,50
739 (E)	11,58	7,487	3,351	8,413				
739 (O)	9,509	7,954	3,088	8,370	17,9	-6,23	7,84	0,51
740 (E)	6,670	6,676	3,339	8,229				
740 (O)	9,020	6,771	3,238	8,346	-35,2	-1,42	3,02	-1,42
742 (E)	10,87	6,637	3,471	8,310				
742 (O)	9,032	6,798	3,234	8,347	16,9	-2,43	6,83	-0,45
747 (E)	13,80	4,422	3,339	8,271				
747 (O)	7,969	4,414	3,267	8,306	42,3	0,18	2,16	-0,42

Tabela XIX. Concentração isotópica dos isótopos do elemento plutônio em gramas/tonelada de combustível. Valor experimental (E); código ORIGEN2 (O)

Amostra	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	Diferença Percentual Relativa				
	$\times 10^2$	$\times 10^2$	$\times 10^2$	$\times 10^2$	$\times 10^2$	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu
744 (E)	0,239	34,70	9,086	4,078	0,655					
744 (O)	0,203	36,97	9,656	4,414	0,659	15,1	- 6,54	- 6,27	- 8,24	- 0,61
741 (E)	0,343	38,51	10,83	5,094	0,979					
741 (O)	0,307	39,23	11,79	5,561	1,029	10,5	- 1,86	- 8,86	- 9,16	- 5,11
745 (E)	0,835	43,38	16,28	8,834	2,614					
745 (O)	0,652	42,35	16,20	8,423	2,301	21,9	2,37	0,49	4,65	11,9
743 (E)	0,909	44,62	17,09	9,195	2,821					
743 (O)	0,717	42,67	16,87	8,800	2,530	21,1	4,37	1,29	4,30	10,3
739 (E)	0,913	40,47	17,47	9,068	3,327					
739 (O)	0,850	43,20	18,10	9,572	3,030	6,90	- 6,76	- 3,60	- 7,54	8,93
740 (E)	1,250	42,80	19,55	10,32	4,245					
740 (O)	1,096	43,84	19,81	10,65	3,855	12,3	- 2,43	- 1,31	- 3,18	9,18
742 (E)	1,295	43,96	19,98	10,67	4,349					
742 (O)	1,090	43,83	19,77	10,62	3,834	15,8	0,30	1,05	- 0,45	11,8
747 (E)	1,457	39,38	20,70	10,74	5,732					
747 (O)	1,588	44,55	22,71	12,77	5,930	- 8,99	-13,2	- 9,71	-18,9	- 3,45

Tabela XX. Concentração isotópica dos isótopos do elemento neodímio em granas/tonelada de combustível. Valor experimental (E); código ORIGEN2 (O)

Amostra	¹⁴³ Nd	¹⁴⁴ Nd	¹⁴⁵ Nd	¹⁴⁶ Nd	¹⁴⁸ Nd	¹⁵⁰ Nd	Diferença Percentual Relativa	
	x 10 ²	x 10 ²	x 10 ²	x 10 ²	x 10 ²	x 10 ²	¹⁴⁸ Nd	¹⁵⁰ Nd
744 (E)	4,030	4,997	3,072	2,687	1,529	0,714		
744 (O)	3,970	3,529	3,055	2,690	1,523	0,689	0,39	3,50
741 (E)	4,575	5,924	3,602	3,182	1,774*	1,648		
741 (O)	4,518	4,300	3,545	3,196	1,797	0,823	-1,13	50,1
745 (E)	5,646	8,301	4,604	4,402	2,450	1,174		
745 (O)	5,614	6,237	4,651	4,446	2,456	1,155	-0,24	1,62
743 (E)	5,819	8,592	4,748	4,586	2,543	1,212		
743 (O)	5,759	6,551	4,814	4,643	2,558	1,207	-6,60	- 0,4
739 (E)	6,469	10,395	5,562	5,423	2,773*	3,161		
739 (O)	6,034	7,201	5,134	5,047	2,763	1,314	0,36	58,4
740 (E)	6,367	10,563	5,442	5,526	3,031	1,451		
740 (O)	6,400	8,219	5,602	5,671	3,075	1,478	-1,45	- 1,86
742 (E)	7,145	10,360	5,725	5,535	3,052	1,458		
742 (O)	6,392	8,193	5,591	5,655	3,068	1,474	-0,52	- 1,10
747 (E)	6,861	13,250	6,433	6,692	3,647	1,768		
747 (O)	6,807	9,963	6,359	6,877	3,663	1,811	-0,44	- 2,43

* Calculado a partir do valor da queima obtido experimentalmente por meio do método do ¹³⁷Cs.

Tabela XII. Concentração isotópica dos isótopos do elemento amerício em gramas/tonelada de combustível. Valor experimental (E); código ORIGEN2 (O)

Amostra	Medido		delta t (dias)	Corrigido		Diferença Percentual Relativa		
	^{241}Am x 10^2	^{243}Am x 10^2		^{241}Am x 10^2	^{243}Am x 10^2	^{241}Am Medido	^{241}Am Corrigido	^{243}Am
	744 (E)	1,727		0,052		0,193	0,052	
744 (O)	1,817	0,054	3618	0,160	0,054	- 5,21	17,1	- 3,85
741 (E)	2,208	0,092		0,256	0,092			
741 (O)	2,330	0,104	3715	0,202	0,104	- 5,52	21,1	-13,0
745 (E)	3,652	0,369		0,365	0,369			
745 (O)	3,414	0,329	3573	0,282	0,329	6,51	22,7	10,8
743 (E)	3,899	0,421		0,355	0,421			
743 (O)	3,678	0,379	3739	0,293	0,379	- 5,68	17,5	9,98
739 (E)	3,714	0,516		0,340	0,516			
739 (O)	3,864	0,496	3573	0,304	0,496	- 4,04	10,6	3,87
740 (E)	4,335	0,707		0,360	0,707			
740 (O)	4,419	0,715	3738	0,319	0,715	- 1,94	11,4	- 1,13
742 (E)	4,433	0,778		0,465	0,778			
742 (O)	4,269	0,709	3573	0,319	0,709	3,69	31,4	8,87
747 (E)	4,658	1,088		0,540	1,088			
747 (O)	5,155	1,391	3660	0,317	1,391	-10,67	41,3	-27,8

Tabela XXII. Desvio percentual relativo entre os dados teóricos e experimentais. Comparação com os dados obtidos para os reatores PWR Turkey Point Unit 3 e H.B. Robinson Unit 2 e Trino Vercellese

Parâmetros	Obrigheim		Turkey Point		H.B. Robinson	Trino Vercellese
	Neste Trabalho		Croff ⁽¹³¹⁾			Barbero e colaboradores ⁽¹⁰⁾
	739-745	747	A	B	A	
$\frac{^{235}\text{U}}{\text{U}}$	- 0,55	0,58	7,7	-2,3	0,1	-1,1
$\frac{^{236}\text{U}}{\text{U}}$	7,18	2,56	- 4,3	-0,7	- 3,2	-7,3
$\frac{^{238}\text{Pu}}{\text{Pu}}$	14,25	2,98	-12,1	-4,0	- 9,0	*
$\frac{^{239}\text{Pu}}{\text{Pu}}$	0,29	- 0,72	0,2	1,5	- 0,4	-2,8
$\frac{^{240}\text{Pu}}{\text{Pu}}$	- 1,85	2,34	- 3,9	-1,7	1,2	1,8
$\frac{^{241}\text{Pu}}{\text{Pu}}$	- 1,80	- 6,53	1,4	0,9	1,8	0,3
$\frac{^{242}\text{Pu}}{\text{Pu}}$	5,98	7,92	-10,0	-7,6	- 2,6	-6,4
$\frac{^{241}\text{Am}}{\text{Am}}$	14,61	48,62	*	*	- 5,0	*
$\frac{^{243}\text{Am}}{\text{Am}}$	-22,59	-27,82	*	*	8,3	*
Queima GwD/t	15,6-31,8	32,7	19,3-26,9	28,6-33,6	30,0	20,0-25,0

* Dados não disponíveis

seados na determinação da concentração dos isótopos de amerício por meio da técnica de espectrometria alfa indicavam desvios de 150 a 300%⁽¹⁰³⁾ entre os valores experimentais e teóricos.

Como visto anteriormente a caracterização isotópica de combustíveis nucleares irradiados envolve medidas com precisões em diferentes ordens de grandeza. Outrossim estes materiais geralmente possuem uma alta atividade obrigando aos operadores de laboratórios de pós-irradiação a fazerem sucessivas diluições antes de enviar amostras para sua análise química. Dessa forma de modo a atenuar estes problemas, assim como erros decorrentes de dissoluções, amostragens etc., e permitir a comparação de nossos dados com aqueles existentes na literatura, todos os dados em concentração isotópica aqui apresentados serão normalizados pelo número de átomos pesados inicialmente presentes no combustível (IMA) por meio das seguintes equações⁽¹¹⁾:

$$R(h) = \frac{R(h)}{^{238}\text{U}} \quad (\text{V.4})$$

$$\text{RNd} = \frac{^{148}\text{Nd}}{^{238}\text{U}} \quad (\text{V.5})$$

$$\text{HA} = \sum R(h) \quad (\text{V.6})$$

$$\text{IMA} = \text{HA} + \frac{\text{RNd}}{\text{E48}} \quad (\text{V.7})$$

onde: h = isótopos dos elementos: urânio, plutônio e amerício;
 R(h) = razão isotópica entre o número de átomos do nuclídeo "h" e o número de átomos de ²³⁸U;
 RNd = razão isotópica entre os nuclídeos ¹⁴⁸Nd e ²³⁸U;
 E48 = rendimento de fissão do nuclídeo ¹⁴⁸Nd = 1,734 x 10⁻² para os nuclídeos ²³⁵U e ²³⁹Pu⁽¹¹⁾.

Nas tabelas XXIII e XXIV são apresentados os valores de razões isotópicas utilizados neste trabalho.

Tabela XXIII. Comparação entre dados de razão isotópica experimentais (E) e teóricos (O) . D - diferença percentual relativa aos dados experimentais . ** Valores não disponíveis

Amostra		744	741	745	743	739	740	742	747
Queima % Átomos Fissionados		1,66	1,96	2,65	2,74	3,01	3,29	3,31	3,50
$\frac{235}{238}\text{U}$ $\times 10^{-5}$	(E)	1645	1502	1090	1064	894	813	810	535
	(O)	1703	1512	1118	1065	964	822	825	538
	(D)	-3,55	-0,66	- 2,57	-0,09	- 7,72	- 1,07	- 1,85	- 0,60
$\frac{236}{238}\text{U}$ $\times 10^{-6}$	(E)	2814	3014	3765	3825	3992	4089	4221	4038
	(O)	2558	2875	3494	3571	3720	3912	3907	3967
	(D)	9,10	4,61	7,19	6,63	6,81	4,09	7,43	1,75
$\frac{240}{239}\text{Pu}$ $\times 10^{-4}$	(E)	2607	2819	3738	3822	4300	4550	4526	5236
	(O)	2601	2993	3810	3936	4172	4500	4491	5075
	(D)	0,23	-6,17	- 1,93	-2,90	2,97	1,09	0,77	3,07
$\frac{242}{241}\text{Pu}$ $\times 10^{-4}$	(E)	1625	1899	2970	3081	3730	4074	4098	5446
	(O)	1486	1842	2721	2864	3152	3606	3596	4624
	(D)	8,55	3,00	8,38	7,04	15,5	11,5	12,24	15,09
$\frac{242}{240}\text{Pu}$ $\times 10^{-4}$	(E)	715	909	1592	1647	1889	2153	2159	2746
	(O)	676	865	1408	1488	1668	1930	1923	2590
	(D)	5,45	4,84	11,56	9,65	11,7	10,4	10,93	5,68
$\frac{146}{145}\text{Nd}$ $\times 10^{-4}$	(E)	868	877	959	949	968	1009	960	1033
	(O)	874	895	956	948	976	1001	1003	1073
	(D)	-0,74	-2,06	0,24	0,13	- 0,88	0,79	- 4,46	- 3,87
$\frac{132}{131}\text{Xe}$ $\times 10^{-3}$	(E)	1913	1968	2314	2378	2397	2116	2578	*
	(O)	1899	1986	2222	2261	2344	2479	2476	*
	(D)	0,73	-0,91	3,98	4,49	2,21	-17,2	3,96	
$\frac{131}{134}\text{Xe}$ $\times 10^{-4}$	(E)	3391	3334	3026	3039	3061	2957	2940	*
	(O)	3485	3406	3200	3167	3100	2995	2999	*
	(D)	-2,77	-2,16	- 5,76	4,2	- 1,27	- 1,28	- 2,00	
$\frac{132}{134}\text{Xe}$ $\times 10^{-3}$	(E)	649	656	700	723	734	625	757	*
	(O)	662	676	711	716	727	742	742	
	(D)	-2,00	-3,05	- 1,57	0,97	0,95	-18,7	1,98	
$\frac{136}{134}\text{Xe}$ $\times 10^{-3}$	(E)	1375	1399	1491	1487	1520	1518	1534	*
	(O)	1397	1437	1510	1519	1536	1559	1559	*
	(D)	-1,60	-2,72	- 1,27	2,15	- 1,06	- 2,70	- 1,63	
$\frac{83}{86}\text{Kr}$ $\times 10^{-4}$	(E)	2574	2547	2409	2453	2334	2311	2290	*
	(O)	2536	2491	2376	2358	2321	2262	2263	*
	(D)	1,48	3,22	1,36	3,07	0,56	2,12	1,18	
$\frac{84}{83}\text{Kr}$ $\times 10^{-3}$	(E)	2205	2249	2464	2456	2626	2645	2677	*
	(O)	2225	2297	2491	2522	2590	2701	2699	*
	(D)	-0,91	-2,13	- 1,09	2,69	1,37	- 2,11	- 0,82	

Tabela XXIV. Comparação entre dados de concentração isotópica experimentalis (E) e teóricos (O) .D - diferença percentual relativa aos dados experimentais (D)

Amostra	744	741	745	743	739	740	742	747
Queima % Átomos Fissionados	1,66	1,96	2,65	2,74	3,01	3,29	3,31	3,50
$D5 \times 10^{-3}$ (E)	462	504	642	650	706	733	736	815
(O)	443	505	633	650	683	729	731	814
(D)	4,11	-0,1	1,4	0,0	3,26	-0,5	0,7	0,1
$^{241}\text{Am} \times 10^{-8}$ (E)	2156	2911	4095	3994	5030	4090	5231	6104
(O)	1784	2263	3156	3283	3406	3574	3574	3552
IMA (D)	17,2	22,3	22,9	17,8	32,3	12,6	-31,7	-41,9
$^{243}\text{Am} \times 10^{-8}$ (E)	576	1038	4105	4698	5708	7967	8681	12151
(O)	600	1156	3659	4211	5511	7945	7878	15457
IMA (D)	-4,17	-11,8	10,9	10,4	3,45	0,28	9,25	-27,1
$^{235}\text{U} \times 10^{-5}$ (E)	1597	1455	1049	1022	857	779	766	511
(O)	1633	1448	1065	1013	914	778	781	507
IMA (D)	-2,31	0,48	-1,6	0,88	-6,70	-0,03	-1,99	0,57
$^{236}\text{U} \times 10^{-6}$ (E)	2720	2915	3605	3632	3817	3874	3987	3840
(O)	2454	2753	3501	3399	3533	3705	3700	3738
IMA (D)	9,41	5,55	7,71	6,42	7,44	4,36	-0,22	2,66
$^{238}\text{Pu} \times 10^{-7}$ (E)	270	395	948	1097	1031	1438	1475	1662
(O)	230	348	739	813	964	1244	1237	1801
IMA (D)	14,9	11,8	22,1	25,9	6,50	13,5	16,1	-8,36
$^{240}\text{Pu} \times 10^{-6}$ (E)	1019	1237	1834	1931	1957	2231	2257	2341
(O)	1086	1326	1823	1898	2036	2229	2224	2555
IMA (D)	-6,58	-7,19	0,54	1,71	-5,17	-0,27	0,05	-9,28
$^{241}\text{Pu} \times 10^{-7}$ (E)	4555	5793	9910	10350	10120	11730	12002	12098
(O)	4944	6223	9437	9859	10720	11930	11899	14308
IMA (D)	-8,56	-7,42	4,77	4,73	-5,93	-1,75	0,86	-18,3
$^{137}\text{Cs} \times 10^{-7}$ (E)	11120	12580	18120	18340	19220	21350	21976	24045
(O)	9594	11330	15500	17120	17450	19430	19382	23323
IMA (D)	13,7	9,97	14,4	6,65	9,18	8,99	11,8	3,00

Os valores de razões isotópicas envolvendo gases de fissão foram fornecidos pelo grupo de Radioquímica e Análise Isotópica do *Institut for Transuranium Elements*, EURATOM, Karlsruhe, Alemanha Ocidental.

V.5. CORRELAÇÕES ISOTÓPICAS

Neste trabalho foram definidas 21 correlações isotópicas para cada nuclídeo de interesse. As equações encontradas foram divididas em três categorias a saber: concentração isotópica versus razão isotópica, concentração isotópica versus concentração isotópica e concentração isotópica versus parâmetros do reator.

Nas Tabelas XXV a XXX são apresentados os resultados dos ajustes encontrados, critérios estatísticos ($E\%$ = imprecisão percentual dos estimadores das constantes, F = valor percentual para o qual a hipótese $Y = F(x)$ é rejeitada e R^2 = coeficiente de correlação quadrático) e os pontos fora do ajuste para cada equação estudada (PFA).

No estudo de correlações isotópicas é fato comum algumas amostras ajustarem-se bem a certos conjuntos de dados e serem consideradas fora de ajuste para outros^(80,102,154). As razões para este comportamento podem ser atribuídas a erros experimentais na medida de um dos parâmetros ou a fatores associados às características nucleares de cada parâmetro com relação à queima, espectro de nêutrons etc.. Nestes casos sempre que possível procura-se analisar uma outra amostra da mesma região comparando-se os resultados. Caso contrário, elimina-se simplesmente a amostra do ajuste desde que o número de amostras a serem eliminadas não ultrapassem a 30% do número total de amostras envolvidas.

Verifica-se que o nuclídeo ^{241}Am , ao contrário do que consta na literatura^(62,177), correlaciona-se bem principalmente por meio de equações de primeiro grau, exceto para correlações envolvendo a razão isotópica $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$, e as concentrações isotópicas $^{242}\text{Pu}/\text{IMA}$ e $^{241}\text{Pu}/\text{IMA}$ para as quais o melhor ajuste foi obtido

por meio de equação parabólica do tipo $Y = BX^2$.

A amostra 740 foi considerada fora de ajuste para todas as correlações com o nuclídeo ^{241}Am . Este comportamento é atribuído a erros experimentais. Verificou-se que em média o valor da concentração estimado pelas equações apresentou um desvio percentual de cerca de 30% em relação aos dados experimentais sendo portanto eliminada para todos os ajustes envolvendo o nuclídeo ^{241}Am .

O nuclídeo ^{243}Am apresentou um comportamento mais complexo. Embora tenha se correlacionado preferencialmente por meio de equações de segundo grau para ajustes envolvendo as razões isotópicas $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, $^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$, $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$, $^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$ e concentração isotópica $^{238}\text{Pu}/\text{IMA}$ o ajuste linear mostrou-se mais apropriado. Assim como no caso anterior algumas correlações foram melhor definidas por meio de equação tipo parabólica, $Y = BX^2$, como por exemplo para a razão isotópica $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$ e $^{238}\text{Pu}/\text{IMA}$. Observou-se neste caso uma maior dificuldade de correlacionamento das amostras de baixa queima principalmente a amostra 744 e embora o número de amostras analisadas não torne possível uma avaliação mais fundamentada pode-se atribuir a este fato provavelmente a baixa concentração deste nuclídeo nesta amostra.

Na literatura existem muito poucos dados de correlações isotópicas envolvendo nuclídeo ^{243}Am . Além da equação proposta por *Ernstberger* e colaboradores⁽⁶²⁾, Tabela IX seção V.2, tem-se duas outras definidas por *Wellun* e colaboradores⁽¹⁷⁷⁾, a saber:

$$A) \ ^{243}\text{Am} = (-) 2.20\text{E-}05 + 2.231\text{E-}05 \text{ FT};$$

$$B) \ ^{243}\text{Am} = (-) 1.300\text{E-}04 + 7.061\text{E-}05 \ ^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe};$$

A equação proposta por *Ernstberger* foi definida especificamente para o reator de *Obrigheim* e verificou-se no início deste capítulo, Tabela X, que a concentração do nuclídeo ^{243}Am por ela estimada apresenta uma diferença média absoluta percentual relativa aos dados experimentais de cerca de 37%.

Tabela XXV. Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nuclídeo $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus razões isotópicas

Razão	N	$^{241}\text{Am}/\text{IMA} = A + BX$						
		A	E%	B	E%	R ²	F	PFA
$\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}}$	7	$8,002 \times 10^{-5}$	0,01	$-3,511 \times 10^{-3}$	0,01	98,7	0,01	740
$\frac{^{236}\text{U}}{^{238}\text{U}}$	6	$-3,565 \times 10^{-5}$	1,35	$2,071 \times 10^{-2}$	0,09	95,2	0,09	740
$\frac{^{146}\text{Nd}}{^{147}\text{Nd}}$	6	$-1,716 \times 10^{-4}$	0,20	$2,250 \times 10^{-4}$	0,09	95,2	0,09	740 747
$\frac{^{240}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}}$	7	$-1,425 \times 10^{-5}$	0,75	$1,460 \times 10^{-4}$	0,01	98,4	0,01	740
$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$	7	$1,122 \times 10^{-5}$	5,38	$1,785 \times 10^{-4}$	0,04	90,0	0,04	740
$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{241}\text{Pu}}$	7	$8,827 \times 10^{-6}$	4,14	$1,022 \times 10^{-4}$	0,01	96,0	0,01	740
$\frac{^{136}\text{Xe}}{^{134}\text{Xe}}$	6	$2,264 \times 10^{-4}$	0,43	$-5,980 \times 10^{-4}$	0,85	90,0	0,85	740
$\frac{^{132}\text{Xe}}{^{134}\text{Xe}}$	6		-	$1,335 \times 10^{-5}$	0,01	99,9	0,01	740
$\frac{^{136}\text{Xe}}{^{134}\text{Xe}}$	6	$-1,466 \times 10^{-4}$	0,55	$2,640 \times 10^{-4}$	0,23	92,3	0,23	740
$\frac{^{138}\text{Xe}}{^{134}\text{Xe}}$	6	$-2,240 \times 10^{-4}$	0,08	$1,792 \times 10^{-4}$	0,05	96,5	0,05	740
$\frac{^{84}\text{Kr}}{^{82}\text{Kr}}$	6	$-1,119 \times 10^{-4}$	0,04	$6,171 \times 10^{-5}$	0,01	98,1	0,01	740
$\frac{^{84}\text{Kr}}{^{85}\text{Kr}}$	6	$-3,104 \times 10^{-4}$	0,16	$5,887 \times 10^{-4}$	0,10	94,8	0,10	740
$\frac{^{83}\text{Kr}}{^{85}\text{Kr}}$	6	$2,911 \times 10^{-4}$	0,02	$-1,036 \times 10^{-3}$	0,04	96,7	0,04	740

Tabela XXVI. Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nuclídeo $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus razões isotópicas

Razão	$^{243}\text{Am}/\text{IMA} = A + BX + CX^2$									
	N	A $\times 10^{-5}$	E%	B $\times 10^{-4}$	E%	C $\times 10^{-4}$	E%	R ²	F	PFA
$\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}}$	8	24,16	0,01	-258,3	0,15	6964	1,2	98,33	0,01	-
$\frac{^{236}\text{U}}{^{238}\text{U}}$	6	48,50	10,9	-3171	8,01	526800	5,27	97,56	0,38	741 747
$\frac{^{146}\text{Nd}}{^{145}\text{Nd}}$	6	276,0	0,06	-64,39	0,05	37,69	0,04	99,92	0,01	742 744
$\frac{^{240}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}}$	7	-	-	-1,872	0,01	8,059	0,01	99,86	0,01	739
$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{241}\text{Pu}}$	7	-5,206	0,16	3,193	0,01	-	-	97,63	0,01	744
$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$	6	-6,975	0,14	6,996	0,01	-	-	98,52	0,01	744 741
$\frac{^{132}\text{Xe}}{^{131}\text{Xe}}$	6	42,40	6,36	-4,692	3,95	1,313	2,25	99,37	0,05	740
$\frac{^{132}\text{Xe}}{^{134}\text{Xe}}$	6	-	-	-5,794	0,07	9,047	0,05	99,07	0,29	740 743
$\frac{^{131}\text{Xe}}{^{134}\text{Xe}}$	5	254,1	3,07	-140,5	3,98	193,7	5,13	99,92	0,38	745 739
$\frac{^{136}\text{Xe}}{^{134}\text{Xe}}$	5	539,0	13,1	-78,96	11,9	28,94	10,70	99,25	0,75	745
$\frac{^{84}\text{Kr}}{^{83}\text{Kr}}$	6	-39,46	0,07	1,792	0,05	-	-	98,97	0,05	739 744
$\frac{^{84}\text{Kr}}{^{86}\text{Kr}}$	6	988,5	10,2	-350,9	9,22	311,7	8,30	98,31	0,22	739
$\frac{^{83}\text{Kr}}{^{86}\text{Kr}}$	6	509,3	10,3	-388,7	12,0	742,4	13,9	98,10	0,26	743

Tabela XXVII. Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nuclídeo $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ e concentrações isotópicas (CI)

CI	N	$^{241}\text{Am}/\text{IMA} = A + BX + CX^2$						
		A	E%	B	E%	R ²	F	PFA
$\frac{^{235}\text{U}}{\text{IMA}}$	7	$7,922 \times 10^{-5}$	0,01	$-3,573 \times 10^{-3}$	0,01	98,65	0,01	740
$\frac{^{238}\text{U}}{\text{IMA}}$	6	$-5,700 \times 10^{-5}$	2,51	$2,903 \times 10^{-2}$	0,36	90,42	0,36	740
$\frac{^{238}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	6	$1,607 \times 10^{-5}$	0,40	$2,537 \times 10^{-1}$	0,05	96,38	0,05	740
$\frac{^{240}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	7	-	-	$2,349 \times 10^{-2}$	0,01	98,93	0,01	740
$\frac{^{241}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	7	-	-	$4,540 \times 10^{-2}$	0,01	99,00	0,01	740
$\frac{^{137}\text{Cs}}{\text{IMA}}$	7	$9,397 \times 10^{-6}$	11,0	$2,878 \times 10^{-2}$	0,01	95,98	0,01	740

Tabela XXVIII. Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nu-
clídeo $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ e concentrações isotópicas (CI).

CI	$^{243}\text{Am}/\text{IMA} = A + BX + CX^2$									
	N	A $\times 10^{-5}$	EX	B $\times 10^{-1}$	EX	C	EX	R ²	F	PFA
$\frac{^{235}\text{U}}{\text{IMA}}$	8	24,09	0,01	-26,95	0,10	0,7642	0,76	98,58	0,01	-
$\frac{^{236}\text{U}}{\text{IMA}}$	6	65,81	10,7	4,377	8,25	73,94	5,9	96,95	0,53	744 747
$\frac{^{238}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	6	-1,90	9,16	7,626	0,02	-	-	94,96	0,02	744
$\frac{^{240}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	6	5,599	10,9	-1,000	4,86	50,37	0,99	98,96	0,01	747
$\frac{^{241}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	5	7,185	0,38	-2,414	0,26	211,5	0,13	99,97	0,03	731-739-747
$\frac{^{137}\text{Cs}}{\text{IMA}}$	6	6,753	0,4	-1,206	0,06	59,36	0,01	99,80	0,01	-

Tabela XXIX. Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nuclídeo $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus parâmetros do reator (PR)

PR	$^{241}\text{Am}/\text{IMA} = A + BX + CX^2$							
	N	A	EX	B	EX	R ²	F	PFA
Queima (FT)	7	-1.167×10^{-5}	3.42	2.001×10^{-5}	0.01	97.40	0.01	740
Depleção ^{235}U (DS)	7	-2.782×10^{-5}	0.06	1.086×10^{-4}	0.01	98.74	0.01	740

Tabela XXX. Correlações isotópicas entre a concentração isotópica do nuclídeo $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ e parâmetros do reator (PR)

PR	N	$^{243}\text{Am}/\text{IMA} = A \cdot Bx + Cx^2$								
		A $\times 10^{-5}$	EX	B $\times 10^{-4}$	EX	C $\times 10^{-4}$	EX	R ²	F	PFA
Queima (FT)	8	9,887	12,5	-1,079	5,63	3,187	1,29	97,46	0,01	-
Depleção ^{235}U (DE)	7	-2,782	0,06	1,086	1,48	6,614	0,25	99,63	0,53	744 745

A equação A, proposta por Wellun foi definida para todos os reatores tipo água leve cujo combustível seja apenas de óxido de urânio enriquecido no isótopo ^{235}U , e a equação B para todos os reatores à água pressurizada.

Na Tabela XXXI são comparados os resultados obtidos na avaliação do conteúdo do nuclídeo ^{243}Am por meio destas equações com as similares obtidas neste trabalho.

Para a correlação entre ^{243}Am e a queima sofrida pelas amostras em estudo a diferença média absoluta percentual relativa aos dados experimentais é de cerca de 56% para a equação A e de 11,3% para a equação definida neste trabalho. Verifica-se que a equação proposta por Wellun não se aplica a amostras de baixa queima, apresentando um desvio percentual relativo aos dados experimentais crescentes com a taxa de queima.

Para a correlação entre o nuclídeo ^{243}Am e a razão isotópica $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$ sugerida pelo autor, os resultados apresentados na Tabela XXXI mostram desvios médios absolutos percentuais relativos aos dados experimentais de cerca de 22%. Como no caso anterior esta diferença cresce com o aumento da razão isotópica $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$ e, conseqüentemente, com a queima. Para equação definida neste trabalho esta diferença é de cerca de 8% não apresentando, como no caso anterior, nenhuma tendência observável.

Para esta correlação não foi considerada a amostra 740, já que aparentemente houve algum problema na medida da razão isotópica $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$, e a amostra 747 para a qual a razão $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$ não encontrava-se disponível.

No conjunto das 42 equações aqui definidas não foi observado a influência do enriquecimento inicial das amostras já que a amostra 747 ajustou-se bem a maioria das correlações estudadas. Esta avaliação, entretanto, não pode ser considerada definitiva já que dispôs-se apenas de uma amostra do elemento combustível BE-124. Todavia, segundo Wellun⁽¹¹⁷⁾, devido à relativa homogeneidade no enriquecimento dos elementos combustíveis do reator de Obrigheim não são observadas normalmente influências do enriquecimento inicial

Tabela XXXI. Comparação entre os valores obtidos para concentração do nuclideo $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ por meio de correlações isotópicas estabelecidas neste trabalho e dados constantes na literatura⁽¹⁷⁷⁾. DZ = diferença percentual relativa aos dados experimentais. * = amostra considerada fora do ajuste. # = dados da amostra não disponíveis

A M O S T R A	Valor Experi mental	$^{243}\text{Am}/\text{IMA} \times 10^{-5}$							
		Valor Obtido Por Meio De Correlações Isotópicas							
		relativo à queima				relativo à razão isotópica $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$			
		Neste Tra balho	D%	Equação A	D%	Neste Tra balho	D%	Equação B	D%
744	0,576	0,746	-29,4	1,503	-160	0,681	-18,2	0,508	11,9
741	1,038	0,967	6,8	2,173	-109	0,905	13,1	0,896	13,7
745	4,105	3,655	10,9	3,712	9,57	4,117	-0,31	3,339	18,7
743	4,698	4,229	9,85	3,913	16,6	5,057	-7,80	3,791	14,4
739	5,709	6,261	-9,67	4,515	20,9	5,356	6,16	3,925	31,2
740	7,967	8,860	-11,2	5,140	35,5	*	*	1,941	75,6
742	8,681	9,064	-4,42	5,185	40,3	5,685	-0,04	5,203	40,0
747	2,151	11,136	8,35	5,609	53,8	#	#	#	#

das amostras quando do estudo de correlações isotópicas para este reator.

Equações tipo parabólica geralmente não são adotadas para correlações envolvendo isótopos de elementos actinídeos já que em centrais de reprocessamento, origem da maior parte das amostras, são utilizados rotineiramente reagentes reciclados contendo traços dos principais elementos em estudo e embora sejam previstas correções para este tipo de contaminação sua total eliminação é inteiramente impossível.

Tanto nuclideo ^{241}Am como ^{243}Am correlacionam-se bem com

gases de fissão, razões e concentrações isotópicas, queima do combustível e depleção do nuclídeo ^{235}U o que permite a utilização das equações aqui estabelecidas em todas as etapas do ciclo do combustível nuclear pós-irradiado.

A consistência interna entre as diversas correlações estudadas pode ser constatada nas Tabelas XXXII e XXXIII.

Na Tabela XXXII são apresentados os valores de concentração isotópica do nuclídeo $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ estimados por meio de cada equação desenvolvida neste trabalho. Para cada amostra foram calculadas as médias destes valores e o desvio padrão percentual sem a aplicação de nenhum outro método estatístico para eliminação de quaisquer valores.

Os resultados mostram que tomando-se o conjunto total das equações a concentração do nuclídeo $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ pode ser estimada com uma precisão interna média de cerca de 4% e, tomando-se os valores experimentais como referência, uma exatidão de cerca de 4% em valores absolutos.

A amostra 740 foi considerada fora de ajuste para todas as equações estudadas. Os valores apresentados na tabela XXXII referem-se aos desvios percentuais entre os valores de concentração isotópica obtidos experimentalmente e os valores estimados pelas equações.

Para o nuclídeo ^{243}Am os valores de precisão interna média e exatidão são cerca de 7% e 2,5% respectivamente.

Na Tabela XXXIV são apresentados, para cada parâmetro correlacionado, os valores médios dos desvios percentuais entre os dados de concentração isotópica dos nuclídeos $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ e $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$, obtidos por meio das equações aqui propostas, e aqueles obtidos experimentalmente. Os resultados mostram que para ambos os nuclídeos a precisão está numa faixa de 3% a 10% o que não só comprova a qualidade e reprodutibilidade dos critérios matemáticos aqui adotados como também corroboram os resultados apresentados nas Tabelas XXXII e XXXIII demonstrando serem estes frutos realmente de valores médios e não a média de valores equidistantes.

Tabela XXXII. Avaliação da concentração do nuclídeo ^{241}Am por meio das equações definidas neste trabalho

Amostra Valor Experimental	$^{241}\text{Am}/\text{IMA} \times 10^{-5}$							
	739	740 [*]	741	742	743	744	745	747
	5,030	4,090	2,911	5,231	3,994	2,156	4,095	6,104
Parâmetros								
Queima (FT)	4,856	32,41	2,755	5,456	4,316	2,155	4,136	5,837
D5	4,888	26,66	2,693	5,214	4,214	2,237	4,192	6,071
$^{235}\text{U}/\text{IMA}$	4,861	25,71	2,723	5,185	4,252	2,219	4,173	6,096
$^{236}\text{U}/\text{IMA}$	5,379	35,56	2,761	5,017	-	2,163	4,764	5,446
$^{238}\text{Pu}/\text{IMA}$	-	28,48	2,609	5,350	4,397	2,293	4,014	5,824
$^{240}\text{Pu}/\text{IMA}$	4,455	35,06	2,891	5,226	4,841	2,393	4,306	5,492
$^{241}\text{Pu}/\text{IMA}$	4,593	30,42	2,630	5,449	4,682	2,068	4,499	5,493
$^{137}\text{Cs}/\text{IMA}$	4,591	27,30	2,682	5,386	4,339	2,261	4,276	5,981
$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	4,865	25,86	2,728	5,158	4,235	2,226	4,175	6,123
$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$	4,702	19,36	2,677	5,176	4,356	2,263	4,232	-
$^{240}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$	4,854	27,59	2,691	5,184	4,146	2,382	4,033	6,220
$^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$	4,494	-	2,744	4,976	4,037	2,398	3,964	6,024
$^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$	4,696	23,40	2,824	5,072	4,006	2,544	3,919	6,450
$^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$	4,624	35,43	2,574	-	4,205	2,379	4,417	6,079
$^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$	4,942	26,23	2,736	5,397	3,709	2,457	4,165	•
$^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$	5,037	20,69	2,659	5,037	4,407	2,365	3,901	•
$^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$	5,011	25,37	2,684	5,325	3,962	2,413	4,011	•
$^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$	4,324	15,78	2,692	5,048	4,456	2,351	4,534	•
$^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$	4,907	30,12	2,698	5,351	4,093	2,367	3,990	•
$^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$	4,715	-55,08	2,656	5,327	4,425	2,471	3,817	•
$^{136}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$	4,839	17,42	2,670	5,090	4,248	2,240	4,319	•
$\bar{M} \pm D\%$	4,782	-	2,703	5,221	4,266	2,316	4,182	5,933
	5,0		2,6	1,5	5,9	5,1	5,6	5,1
DPM	4,9	-	7,1	0,19	-6,8	-7,4	-2,1	2,7

* Os valores apresentados referem-se aos desvios percentuais relativos entre os valores de concentração isotópica experimentais e aqueles estimados pelas equações.

$\bar{M} \pm D\%$ = média \pm desvio padrão percentual

DPM = desvio percentual da média relativo aos dados experimentais

Tabela XXXIII. Avaliação da concentração do nuclídeo ^{243}Am por meio das equações definidas neste trabalho

$^{243}\text{Am}/\text{IMA} \times 10^{-5}$								
Amostra	739	740	741	742	743	744	745	747
Valor experimental	5,708	7,967	1,038	8,681	4,698	0,576	4,105	12,16
Parâmetros								
Queima (FT)	6,261	8,859	0,967	9,064	4,233	-	3,655	11,13
DS	-	8,095	1,054	8,233	4,534	0,516	4,466	12,30
$^{235}\text{U}/\text{IMA}$	6,662	7,736	1,057	7,936	4,475	0,544	4,231	12,32
$^{236}\text{U}/\text{IMA}$	6,456	7,202	1,040	8,824	4,566	-	4,101	
$^{238}\text{Pu}/\text{IMA}$	5,961	9,065	1,111	9,347	4,153	-	3,932	10,77
$^{240}\text{Pu}/\text{IMA}$	5,314	8,353	0,932	8,291	5,046	0,636	4,195	-
$^{241}\text{Pu}/\text{IMA}$	-	7,960	-	6,673	4,778	0,577	4,030	-
$^{137}\text{Cs}/\text{IMA}$	5,460	8,031	0,943	8,880	4,563	0,650	4,354	12,03
$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	6,645	7,771	1,079	7,813	4,467	0,520	4,268	12,33
$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$	6,248	7,203	1,030	8,132	4,641	-	4,136	-
$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	-	8,168	1,128	8,092	4,169	0,597	4,264	12,36
$^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$	6,240	8,087	-	8,129	4,445	-	4,162	12,23
$^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$	6,704	7,803	0,858	7,130	4,549	-	4,277	12,18
$^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$	5,912	7,926	1,054		4,647	-	3,989	12,13
$^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$	6,536	7,538	0,928	8,527	-	0,699	3,789	*
$^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$	-	7,918	0,929	8,429	5,459	0,707	3,582	*
$^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$	-	7,927	0,830	8,500	4,534	-	4,684	*
$^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$	5,639	8,125	1,109	8,571	-	0,527	-	*
$^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$	5,356	-	0,903	8,685	5,057	0,681	4,118	*
$^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$	6,124	-	0,924	7,982	3,400	0,503	3,772	*
$^{136}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$	-	7,457	0,944	8,957	4,971	0,624	-	*
$\bar{M} \pm D\%$	6,101 7,8	7,959 5,9	0,991 9,0	8,488 5,1	4,587 7,1	0,598 12,2	4,106 6,7	11,97 4,7
DPM	-6,9	0,1	4,5	2,2	0,2	-3,8	-0,02	1,6

$\bar{M} \pm D\%$ = média \pm desvio padrão percentual

DPM = desvio percentual da média relativo aos dados experimentais

Tabela XXXIV. Valorès médios dos desvios percentuais entre os dados obtidos experimentalmente e aqueles estimados pelas equações

Parâmetros	Nuclídeo	
	²⁴¹ Am	²⁴³ Am
Queima (FT)	3,9	11,3
DS	3,4	4,5
²³⁵ U/IMA	3,3	5,2
²³⁶ U/IMA	7,1	4,6
²³⁸ Pu/IMA	6,0	8,6
²⁴⁰ Pu/IMA	7,9	6,7
²⁴¹ Pu/IMA	9,1	0,8
²³⁵ U/ ²³⁸ U	3,3	6,7
²³⁶ U/ ²³⁸ U	5,6	4,1
²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu	4,3	4,1
²⁴² Pu/ ²⁴⁰ Pu	7,1	4,1
²⁴² Pu/ ²⁴¹ Pu	5,6	7,8
¹⁴⁶ Nd/ ¹⁴⁵ Nd	7,4	1,6
⁸³ Kr/ ⁸⁶ Kr	5,4	9,7
⁸⁴ Kr/ ⁸⁶ Kr	6,2	10,4
⁸⁴ Kr/ ⁸³ Kr	4,0	8,4
¹³¹ Xe/ ¹³⁴ Xe	9,5	4,0
¹³² Xe/ ¹³¹ Xe	4,5	7,6
¹³² Xe/ ¹³⁴ Xe	8,0	10,6
¹³⁶ Xe/ ¹³⁴ Xe	5,2	6,6
Média	5,8	6,3

Nas Figuras 21 a 62 estão representados graficamente os resultados até aqui apresentados. As linhas superior e inferior foram calculadas pelo programa SAS e delimitam as bandas de precisão do ajuste. A interpretação desta faixa é que se forem tomadas novas observações (novos valores de X para o cálculo de Y) e o modelo utilizado estiver correto então, em média, 95% das novas medidas cairão dentro desta faixa.

Verifica-se que na maioria dos casos, principalmente para aqueles obtidos em uma faixa de queima intermediária, os resultados teóricos estão dentro do limite de precisão definido pelas equações. O que, em princípio, pode-se suspeitar da qualidade dos dados nucleares presentes no banco de dados do programa em estudo para os isótopos de amerício para as regiões de alta e de baixa taxa de queima.

Figura 21 - Correlação Isotópica $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus Queima (AF%)

119

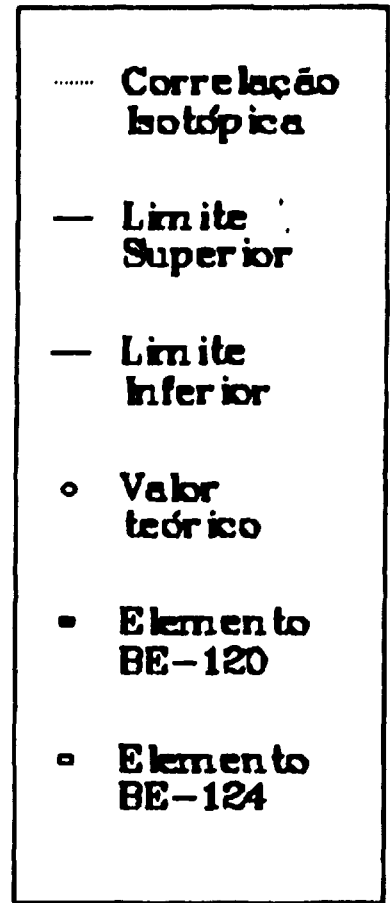
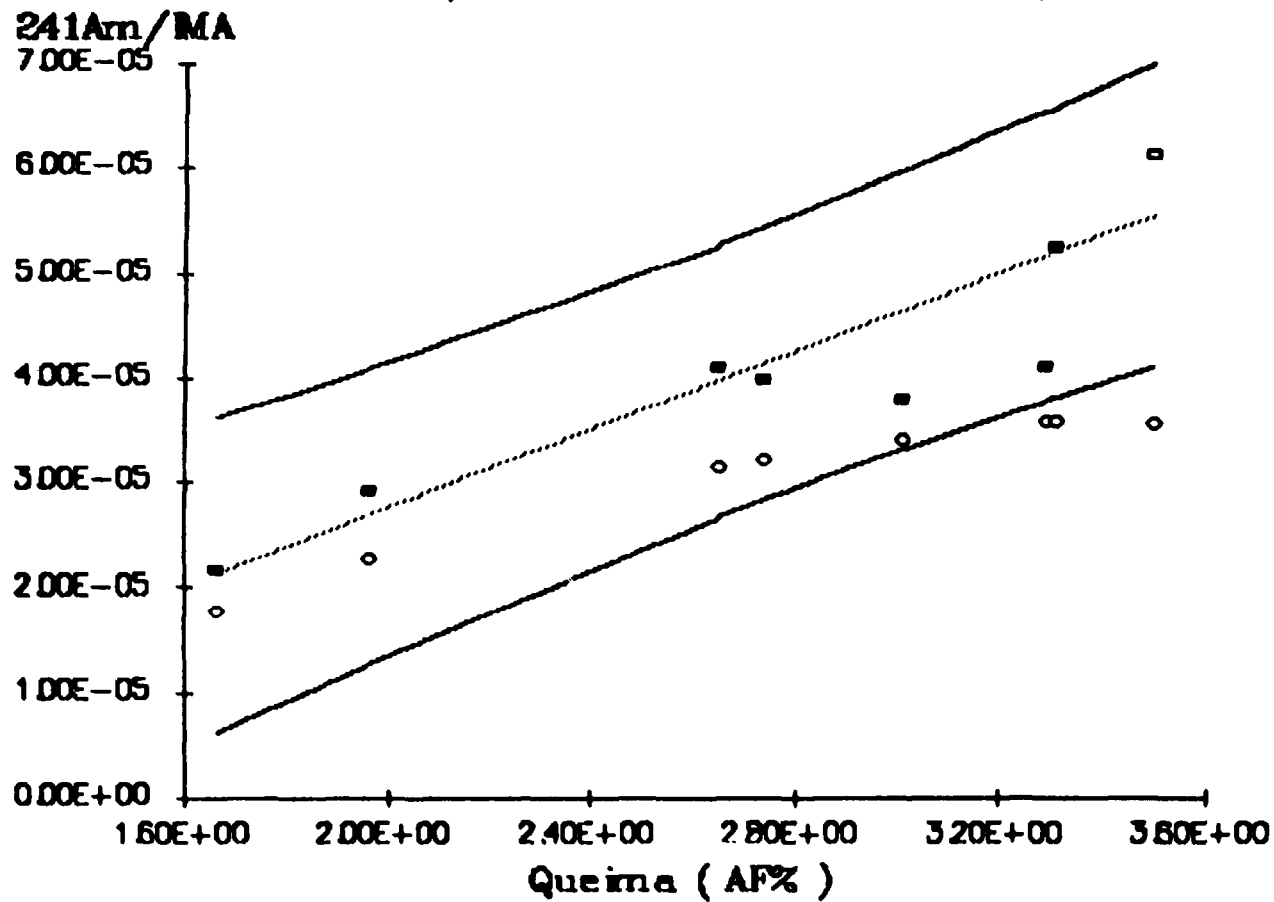
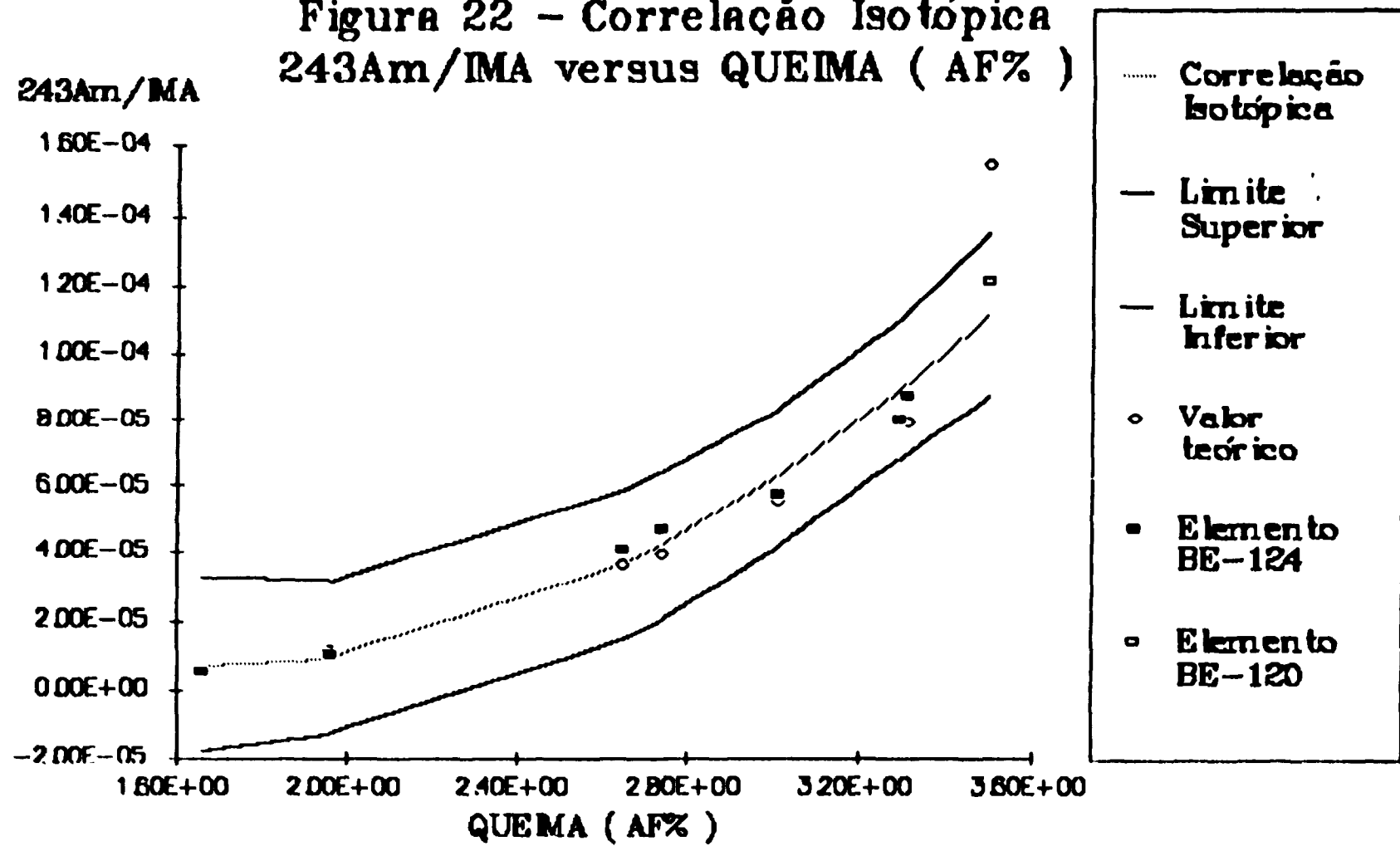
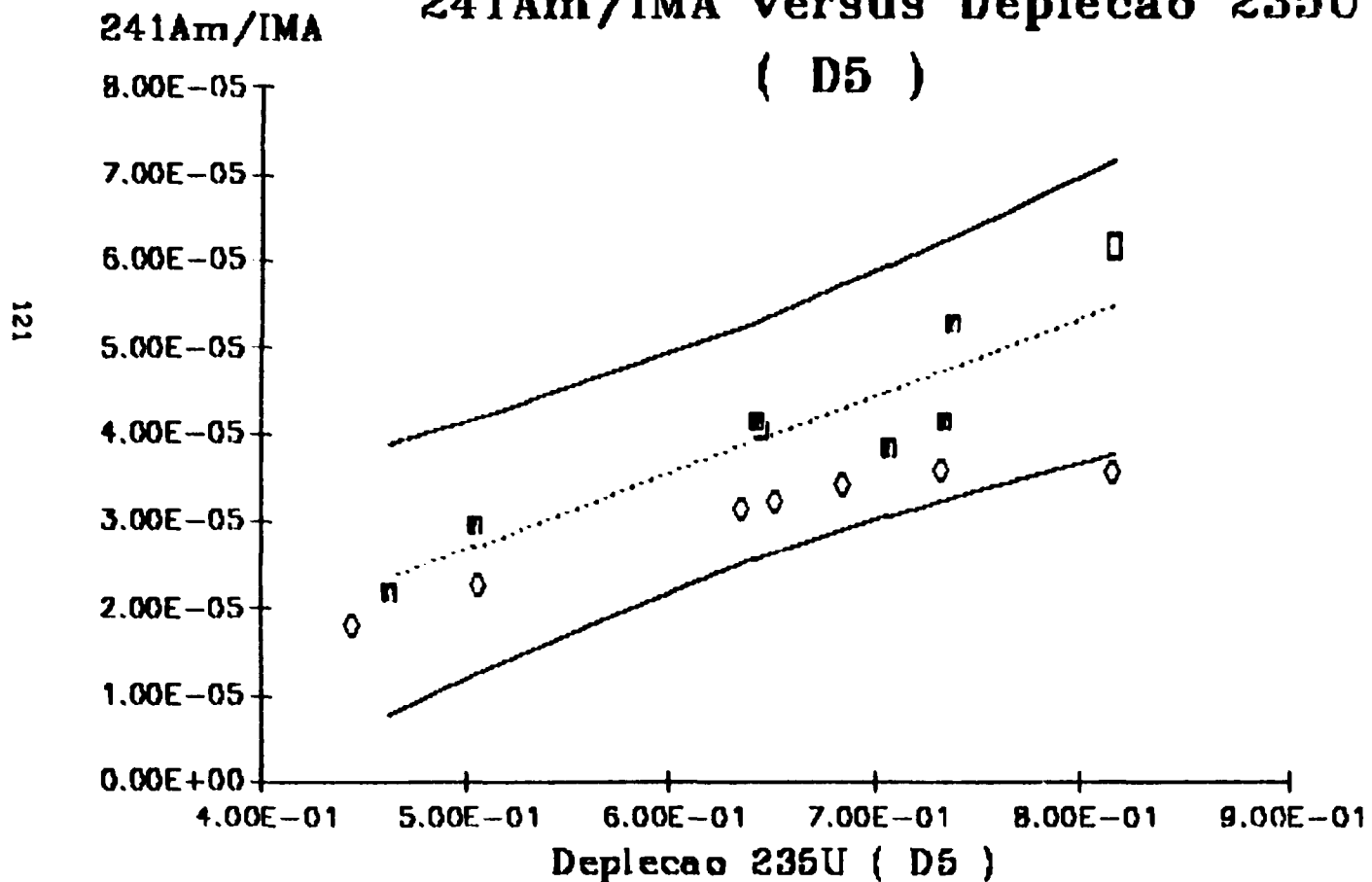


Figura 22 - Correlação Isotópica 243Am/IMA versus QUEIMA (AF%)

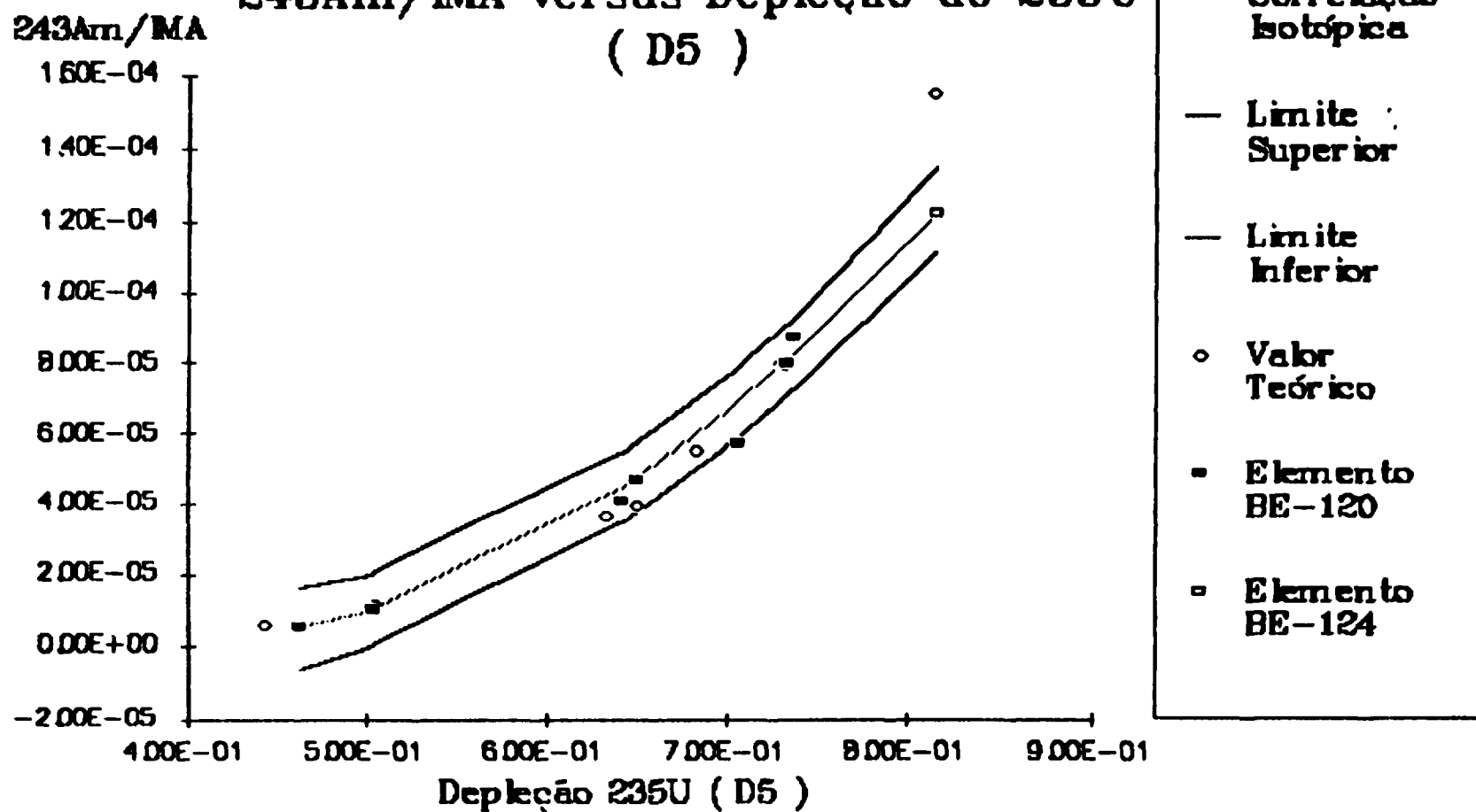


**Figura 23 - Correlacao Isotopica
 $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus Deplecao ^{235}U
 (D5)**



- Correlacao Isotopica
- Limite Superior
- Limite Inferior
- ◇ Valor Teorico
- Elemento BE-120
- Elemento BE-124

Figura 24 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus Depleção do ^{235}U
 (D5)



**Figura 25 - Correlacao Isotopica
241Am/IMA versus 235U/IMA**

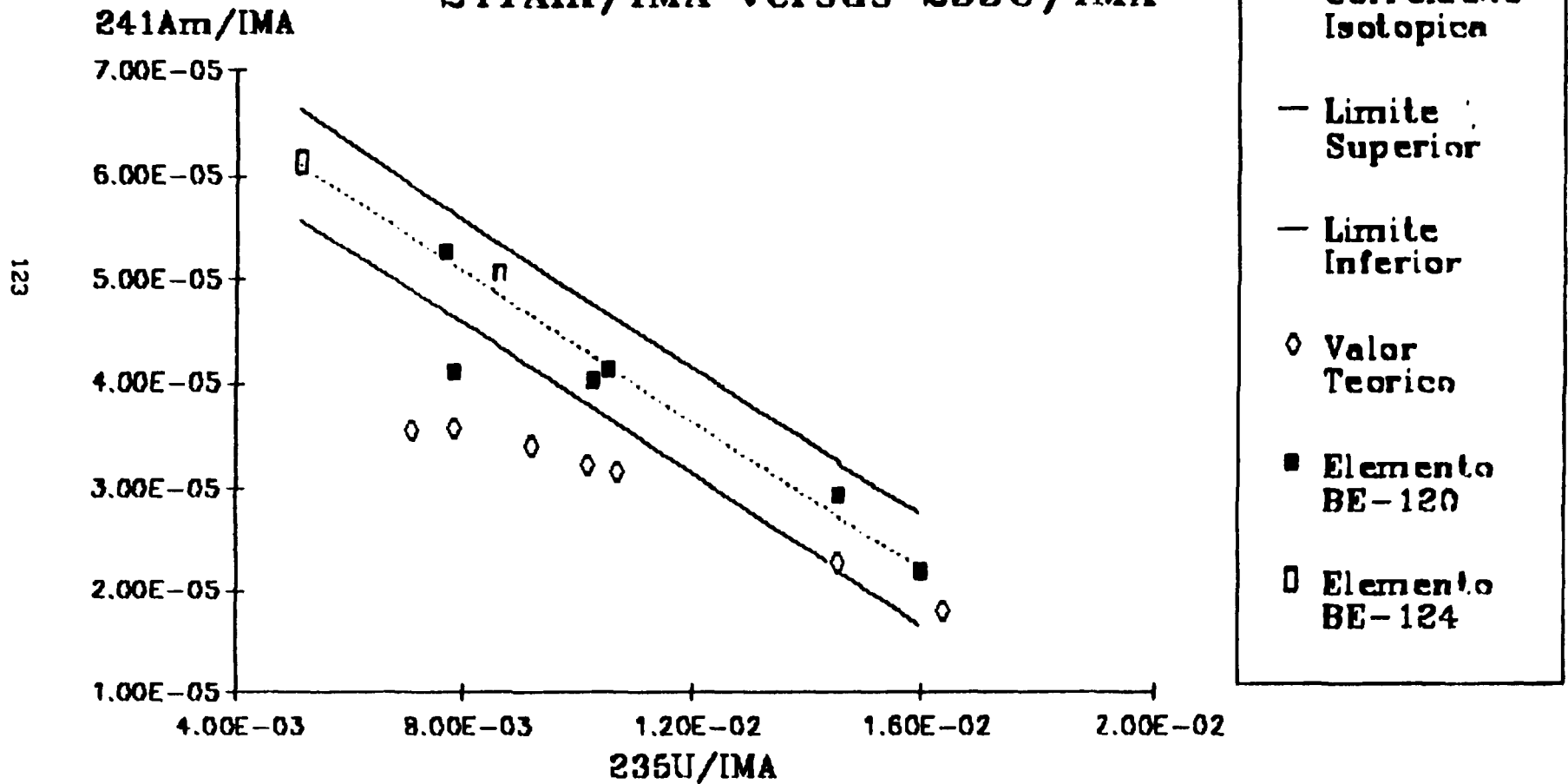


Figura 26 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{235}\text{U}/\text{MA}$

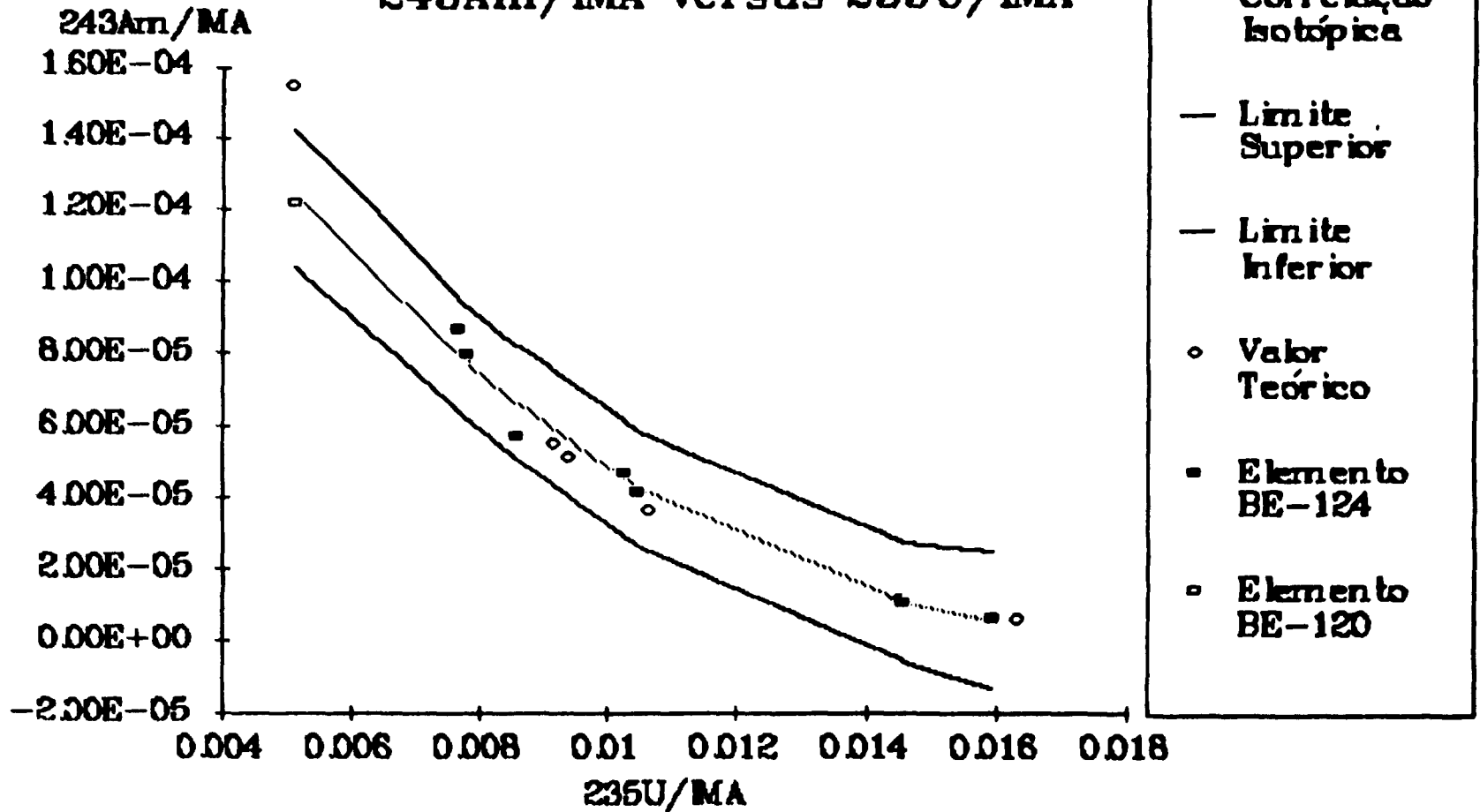


Figura 27 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{236}\text{U}/\text{IMA}$

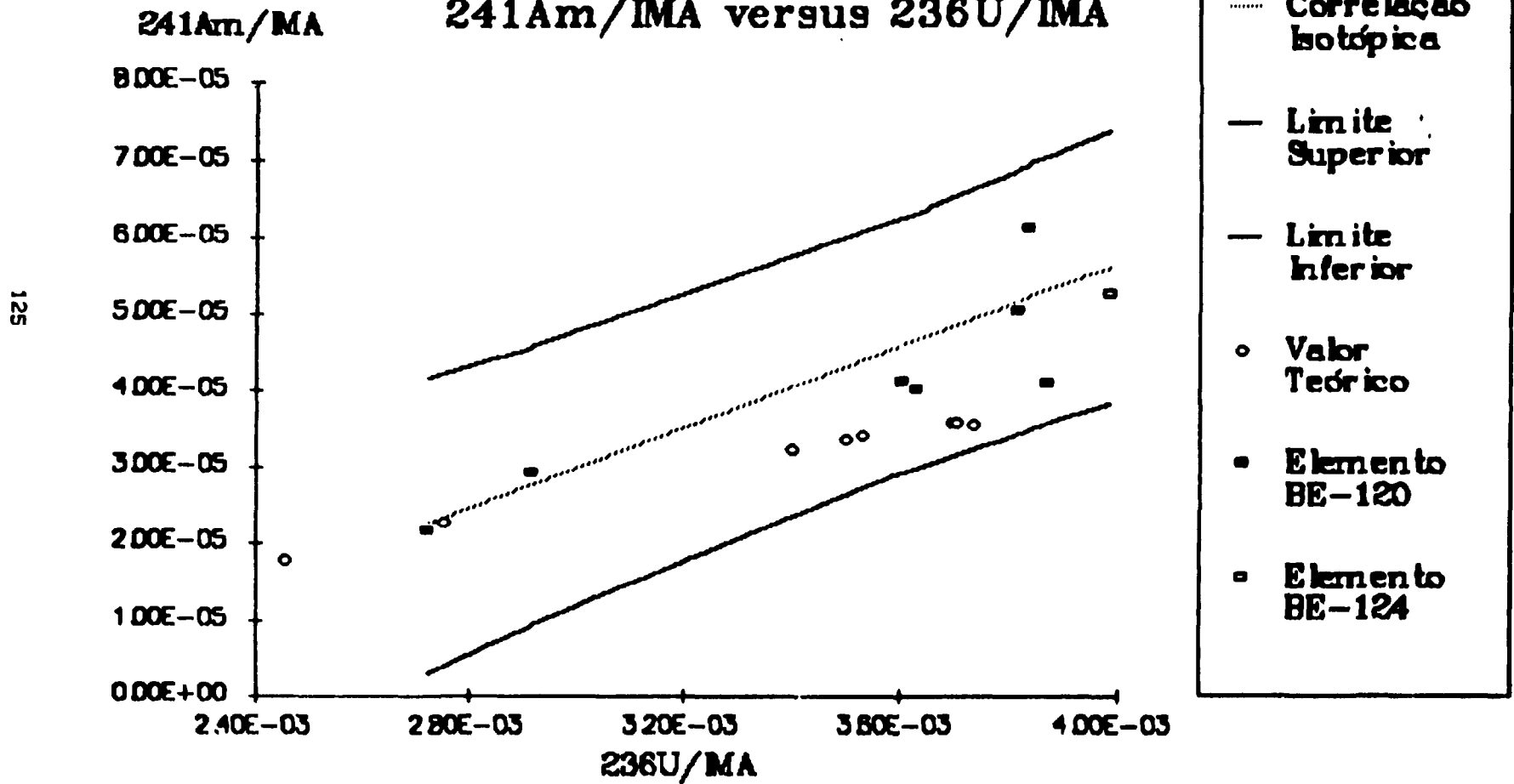


Figura 28 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{236}\text{U}/\text{MA}$

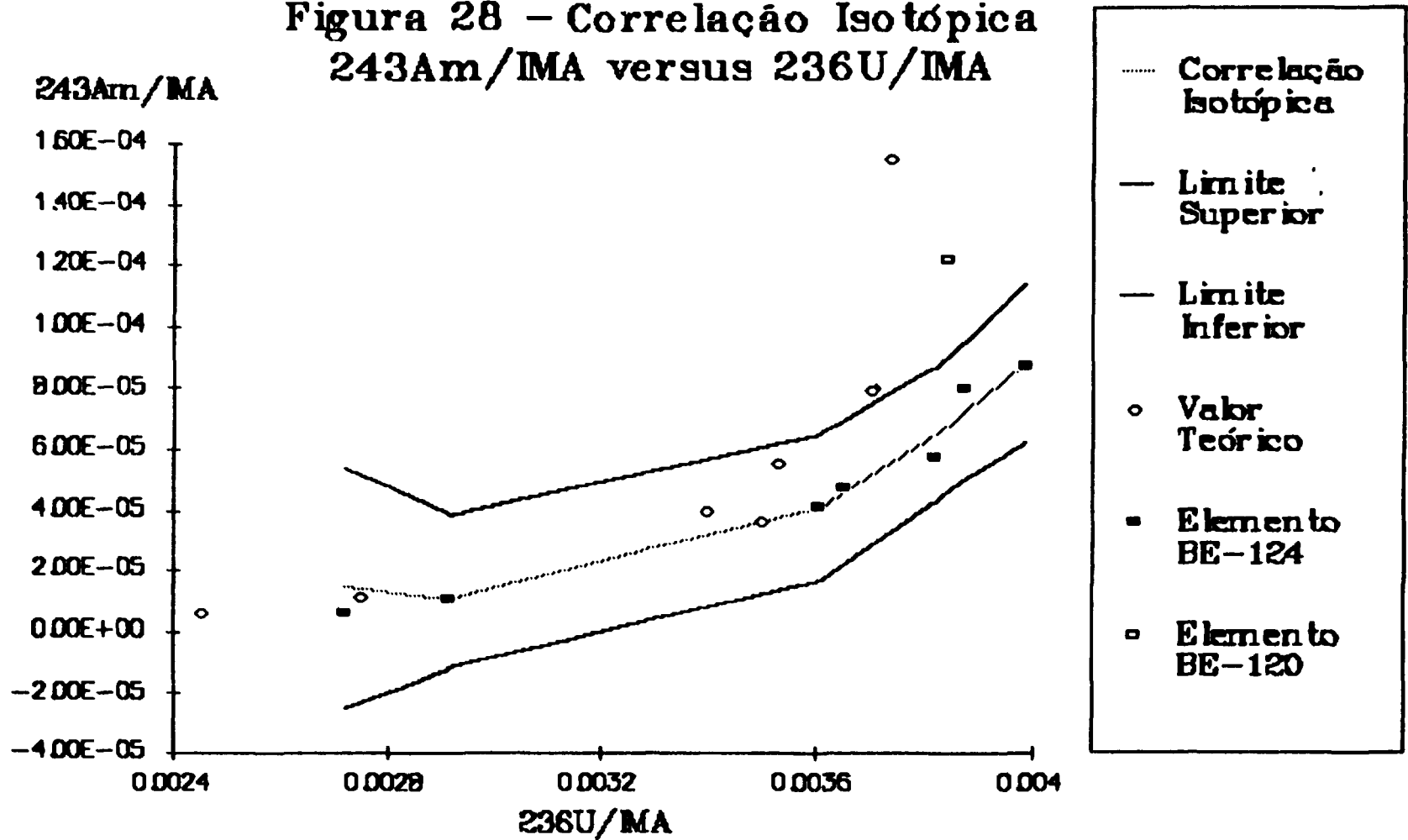


Figura 29 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{238}\text{Pu}/\text{IMA}$

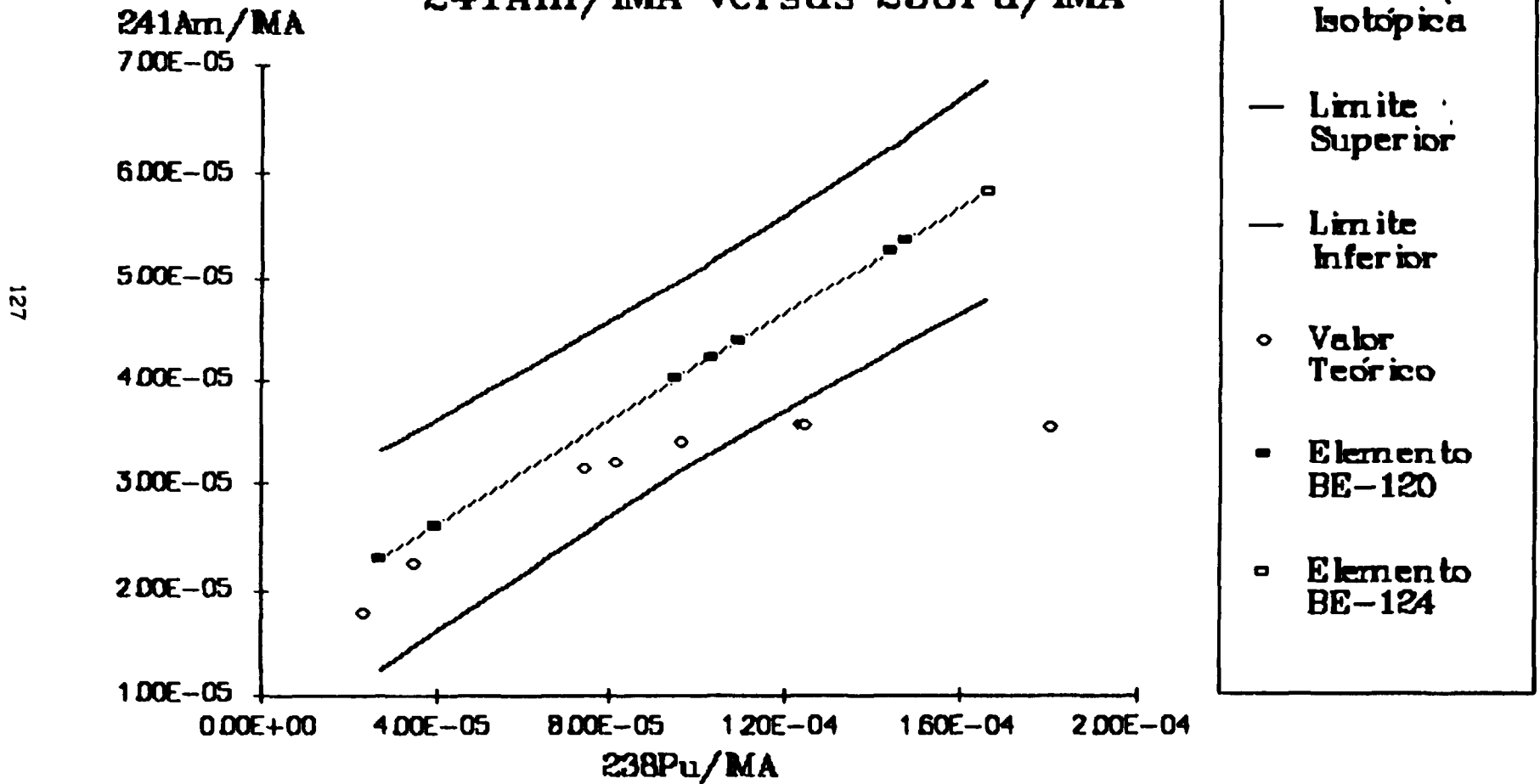


Figura 30 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{238}\text{Pu}/\text{MA}$

128

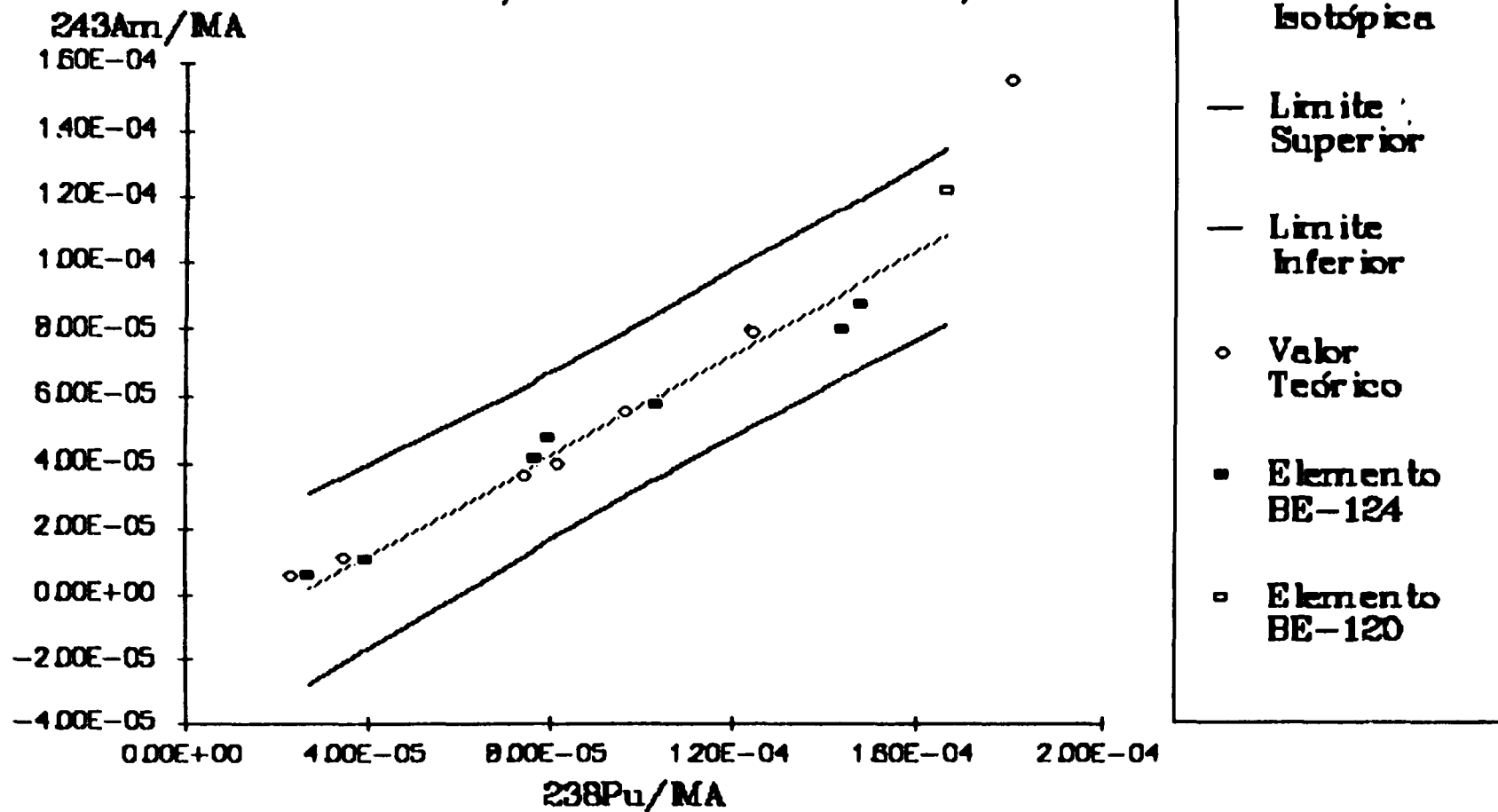


Figura 31 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{240}\text{Pu}/\text{MA}$

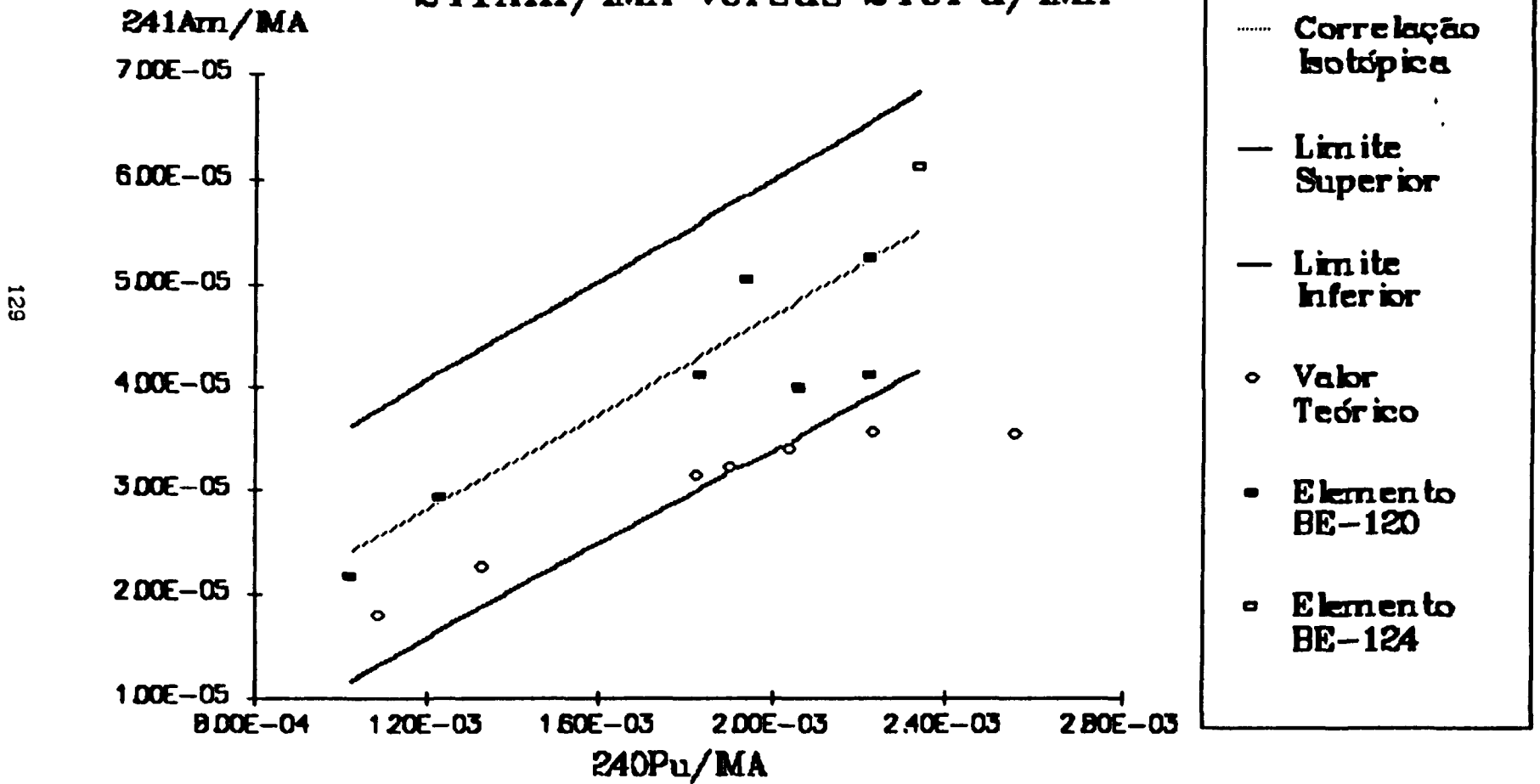


Figura 32 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{240}\text{Pu}/\text{IMA}$

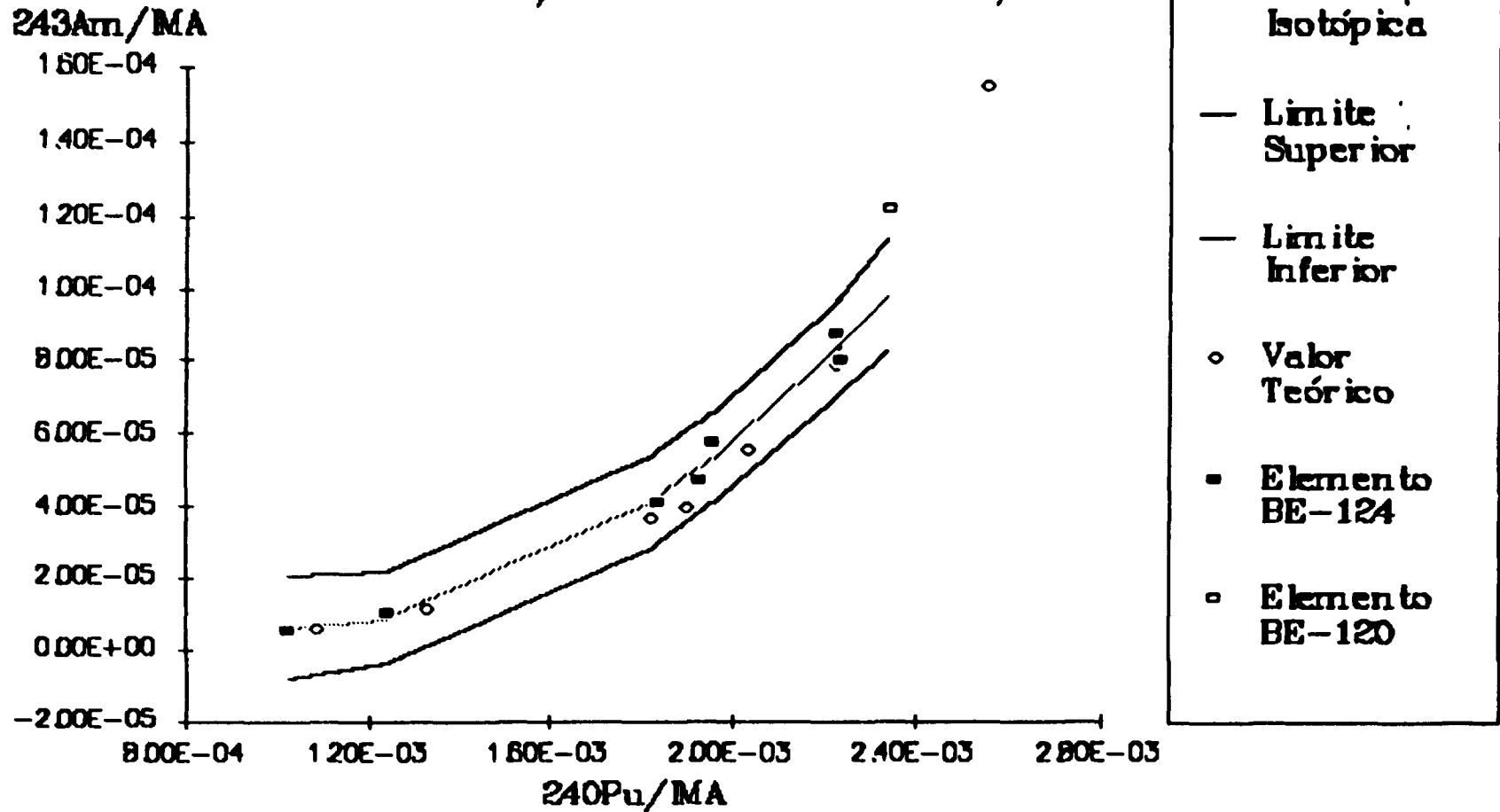


Figura 33 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{241}\text{Pu}/\text{IMA}$

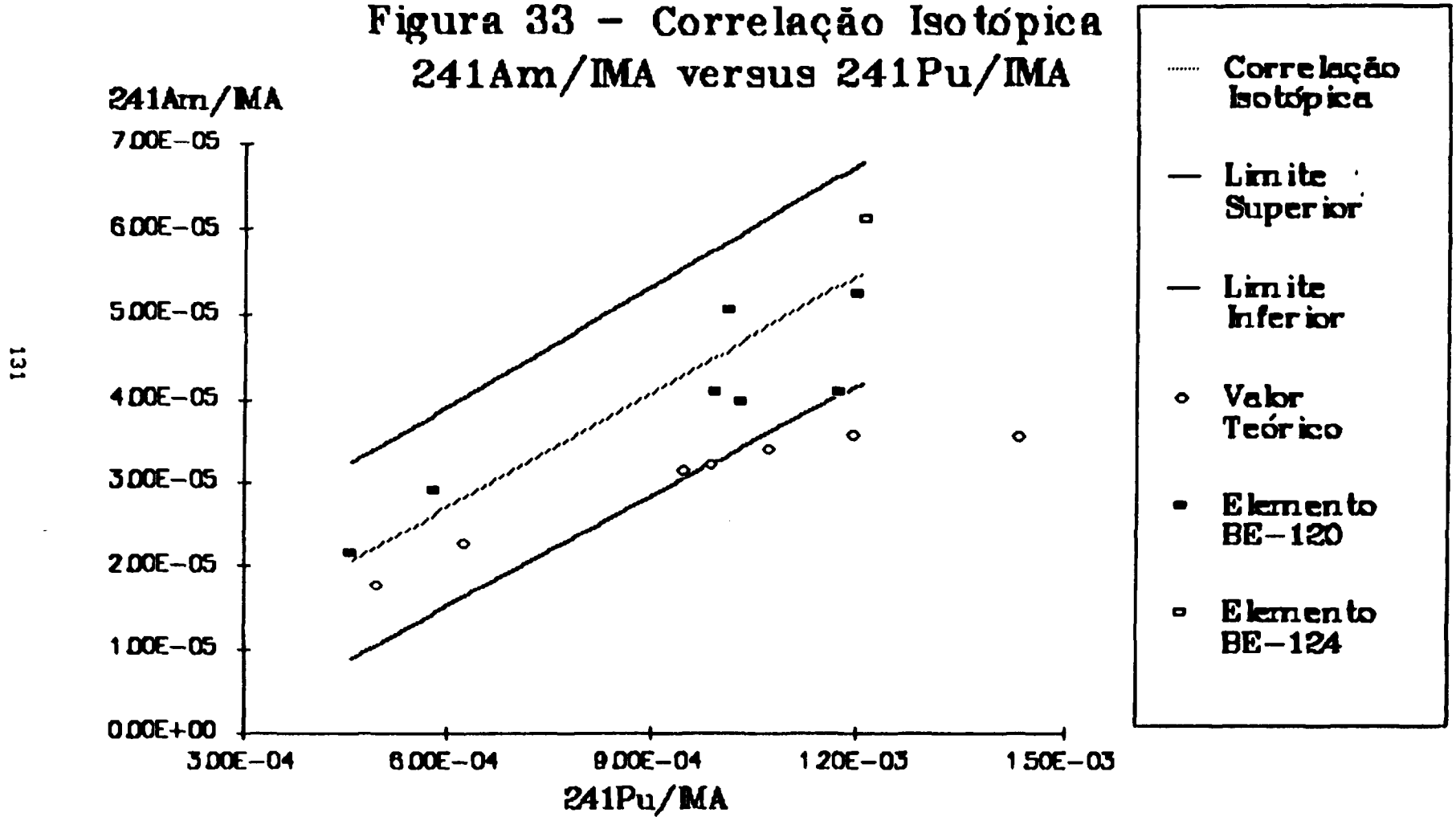
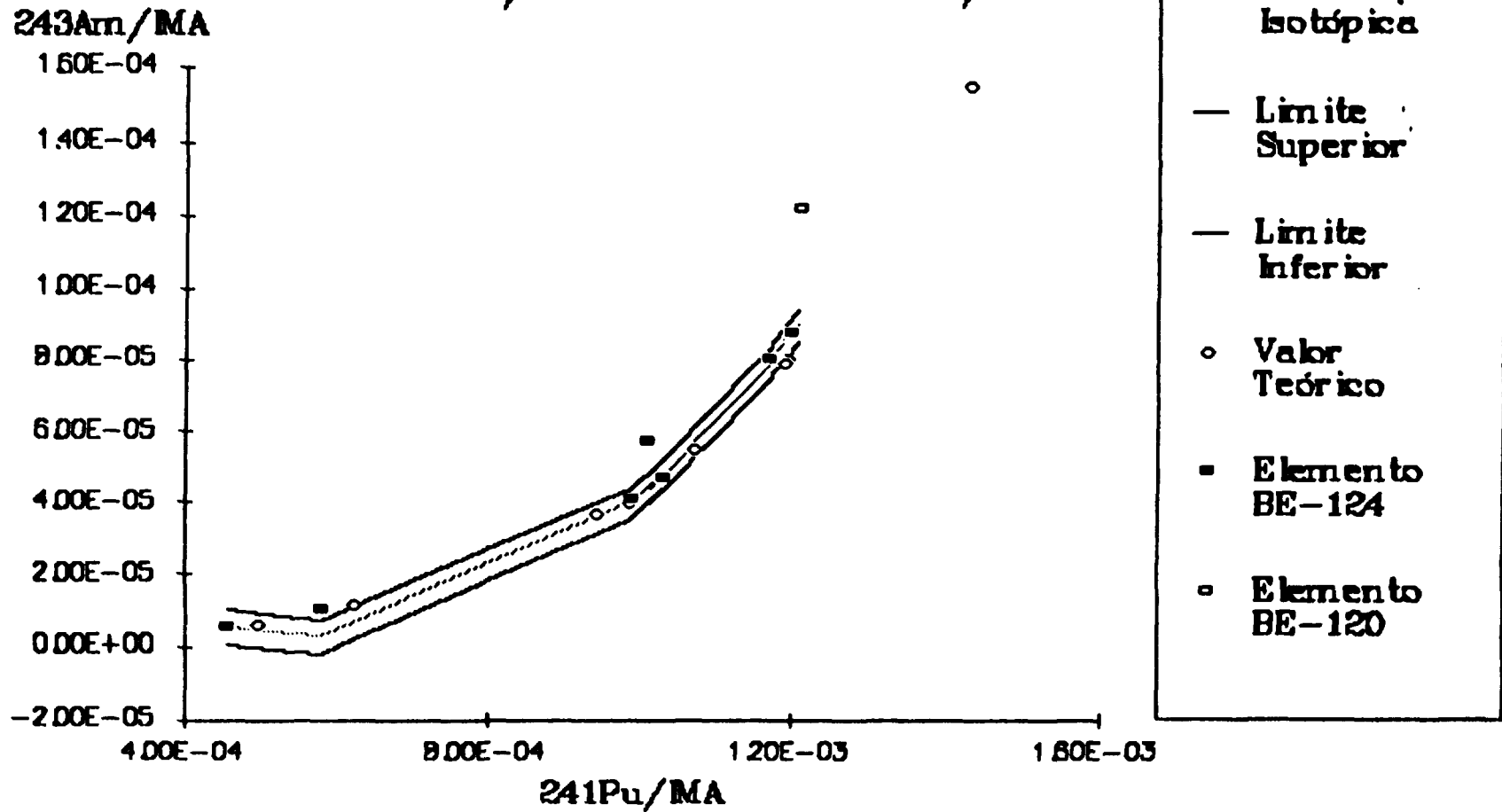


Figura 34 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{241}\text{Pu}/\text{MA}$



**Figura 35 - Correlação Isotópica
241Am/IMA versus 137Cs/IMA**

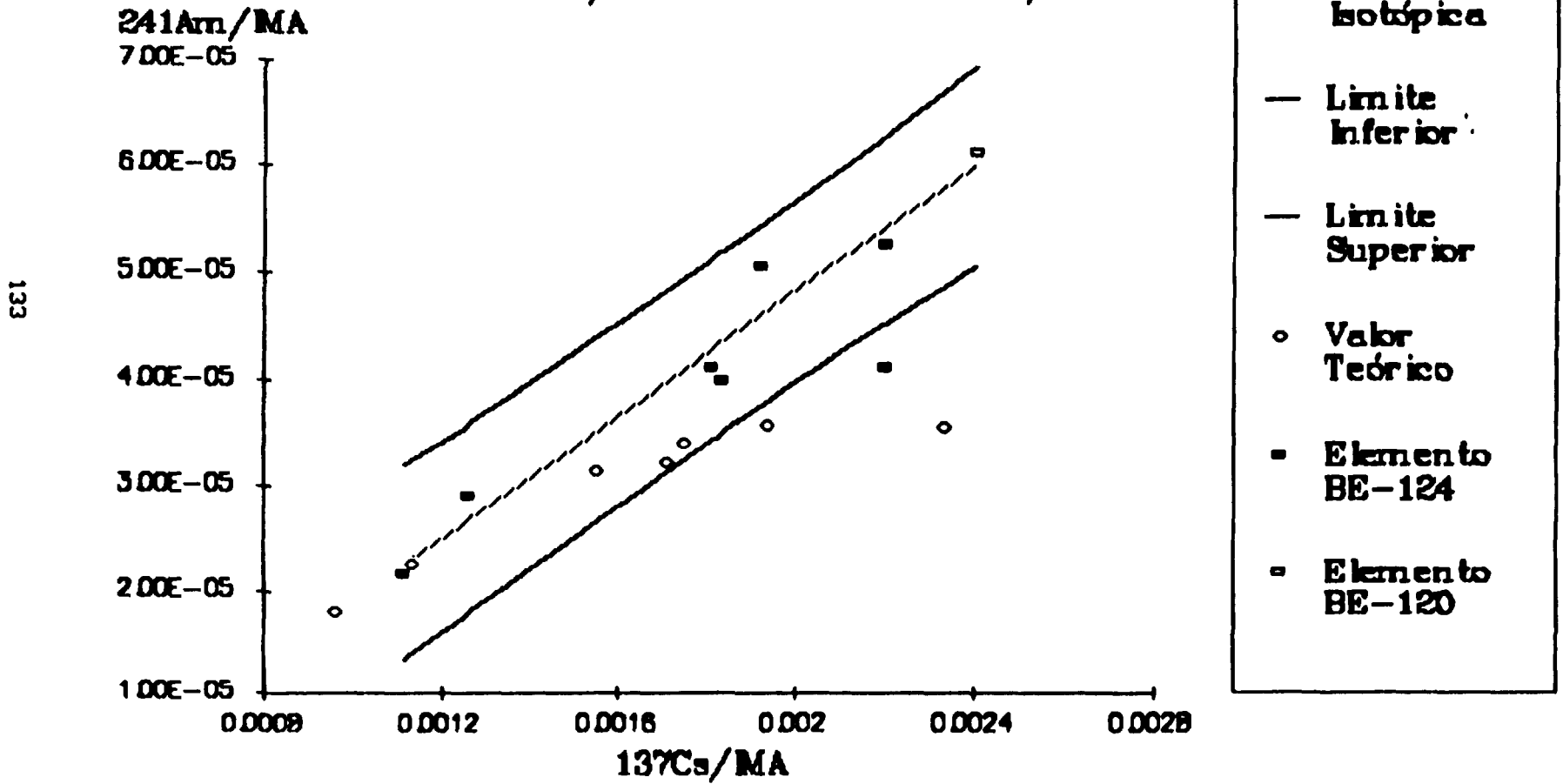
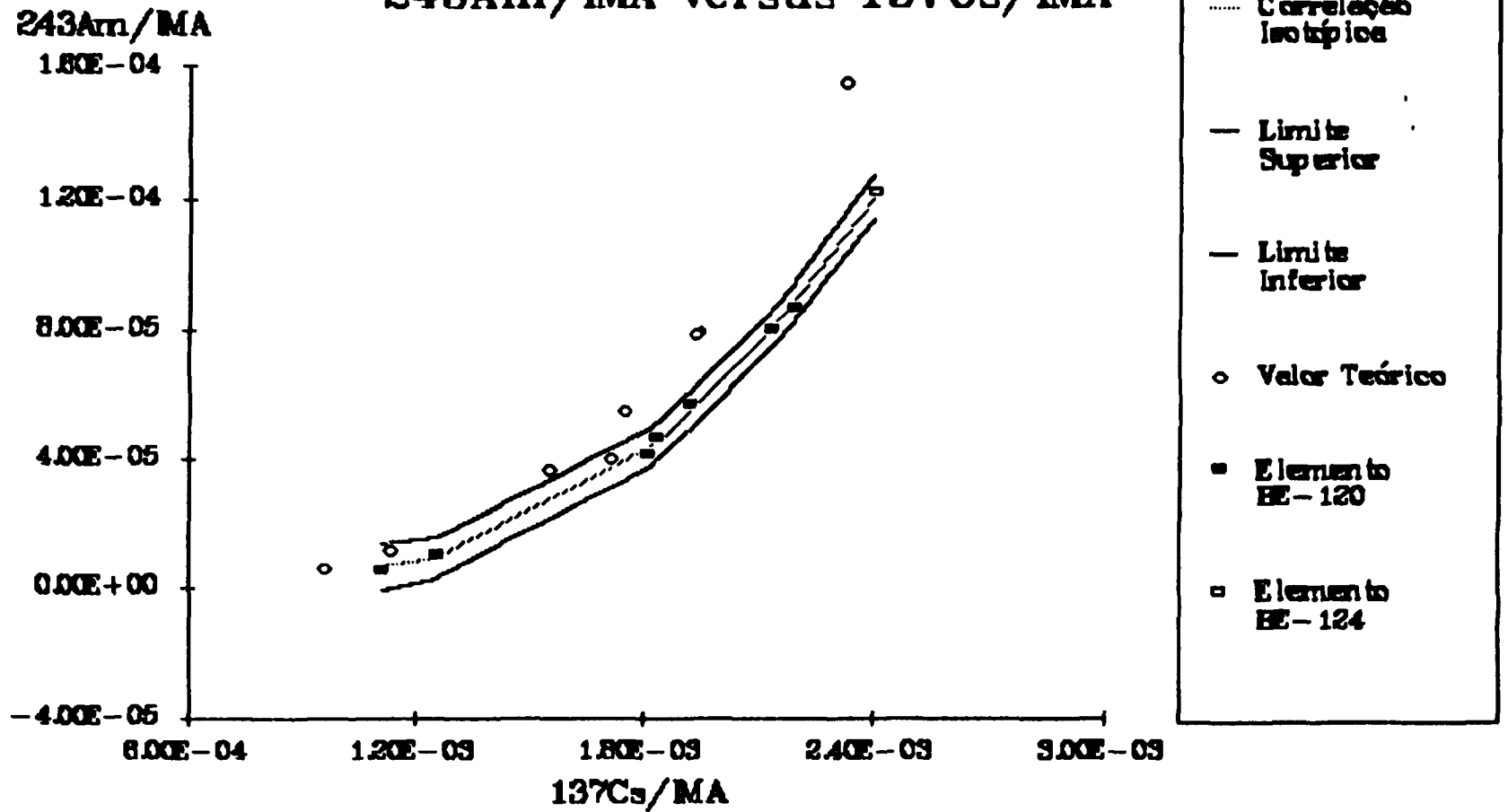
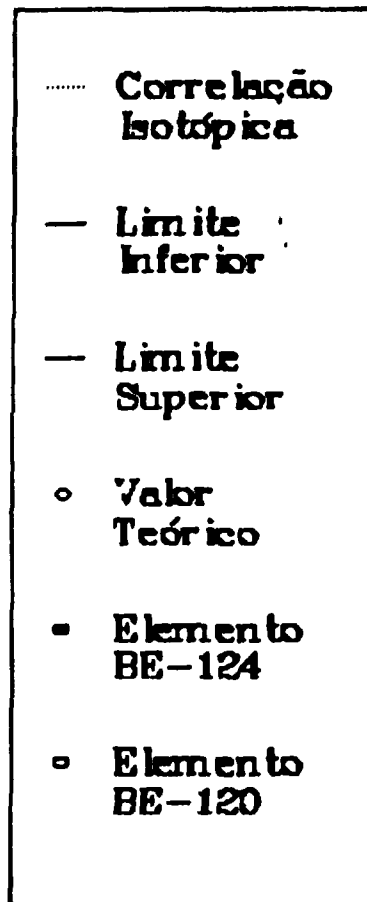
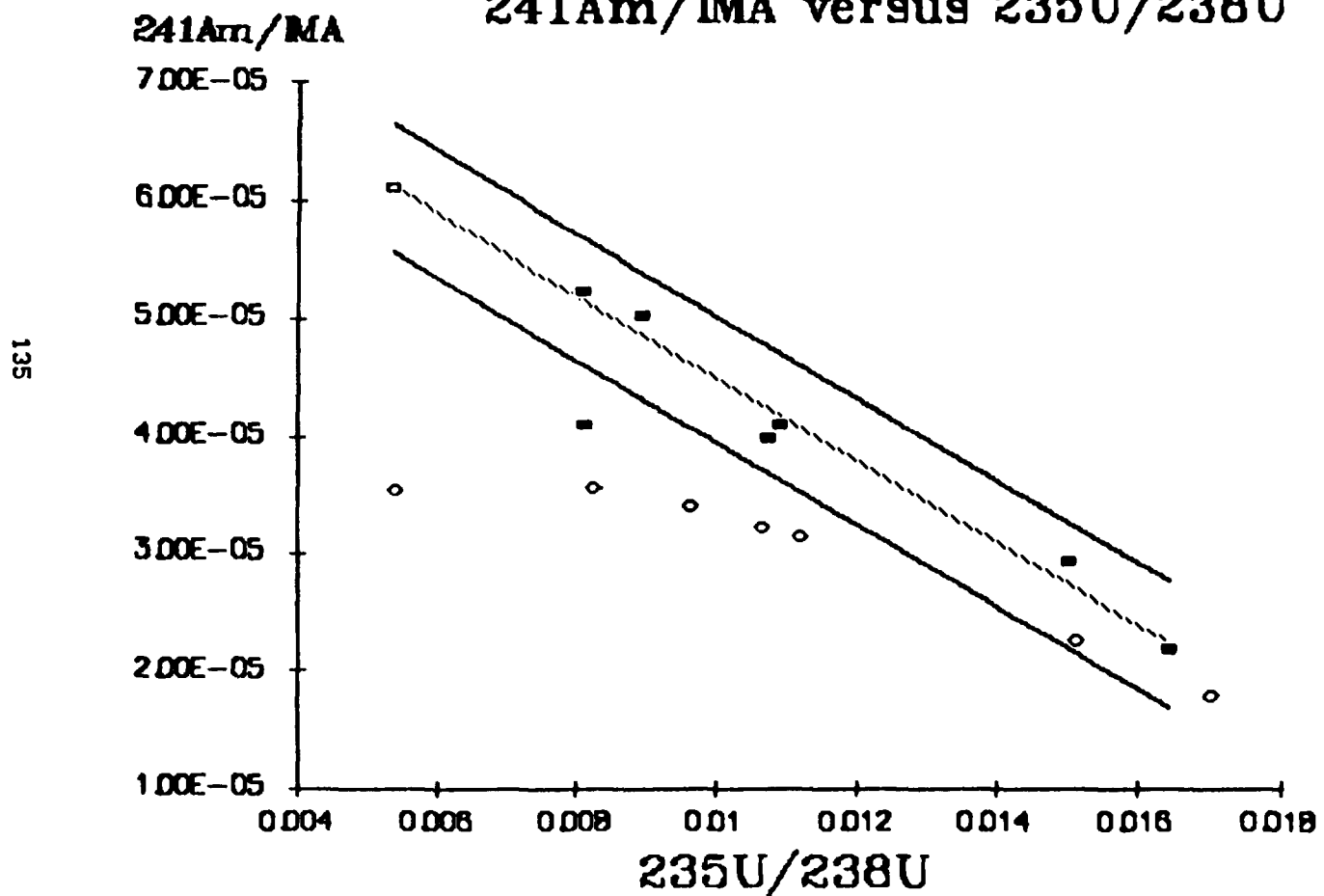


Figura 36 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{137}\text{Cs}/\text{MA}$

134



**Figura 37 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$**



**Figura 38 - Correlação Isotópica
243Am/IMA versus 235U/238U**

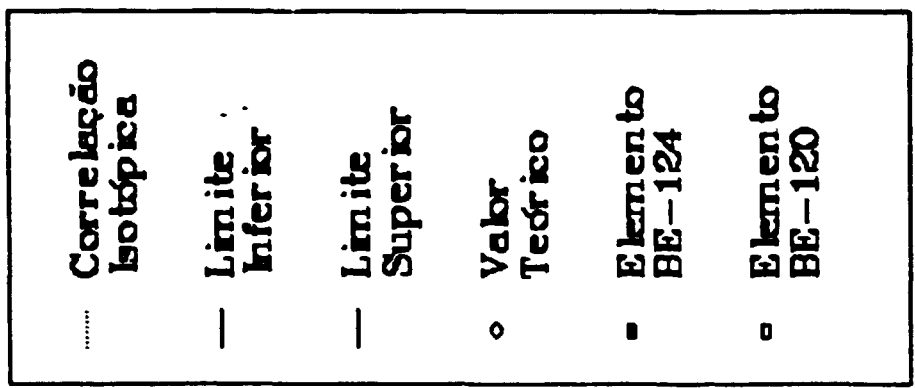
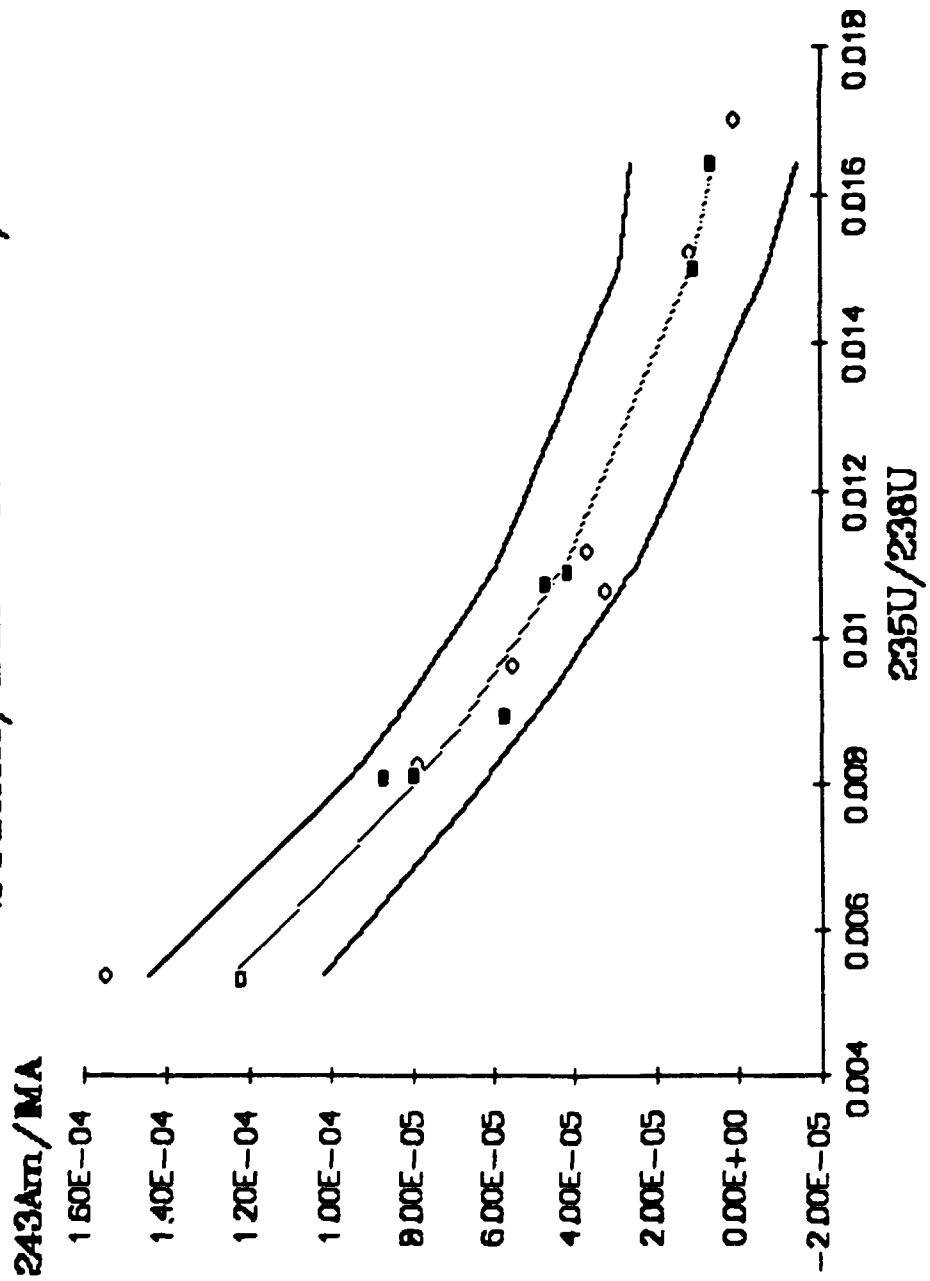


Figura 39 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

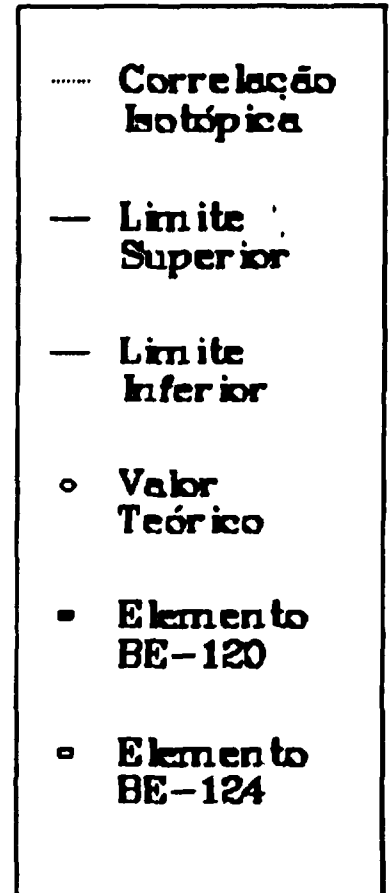
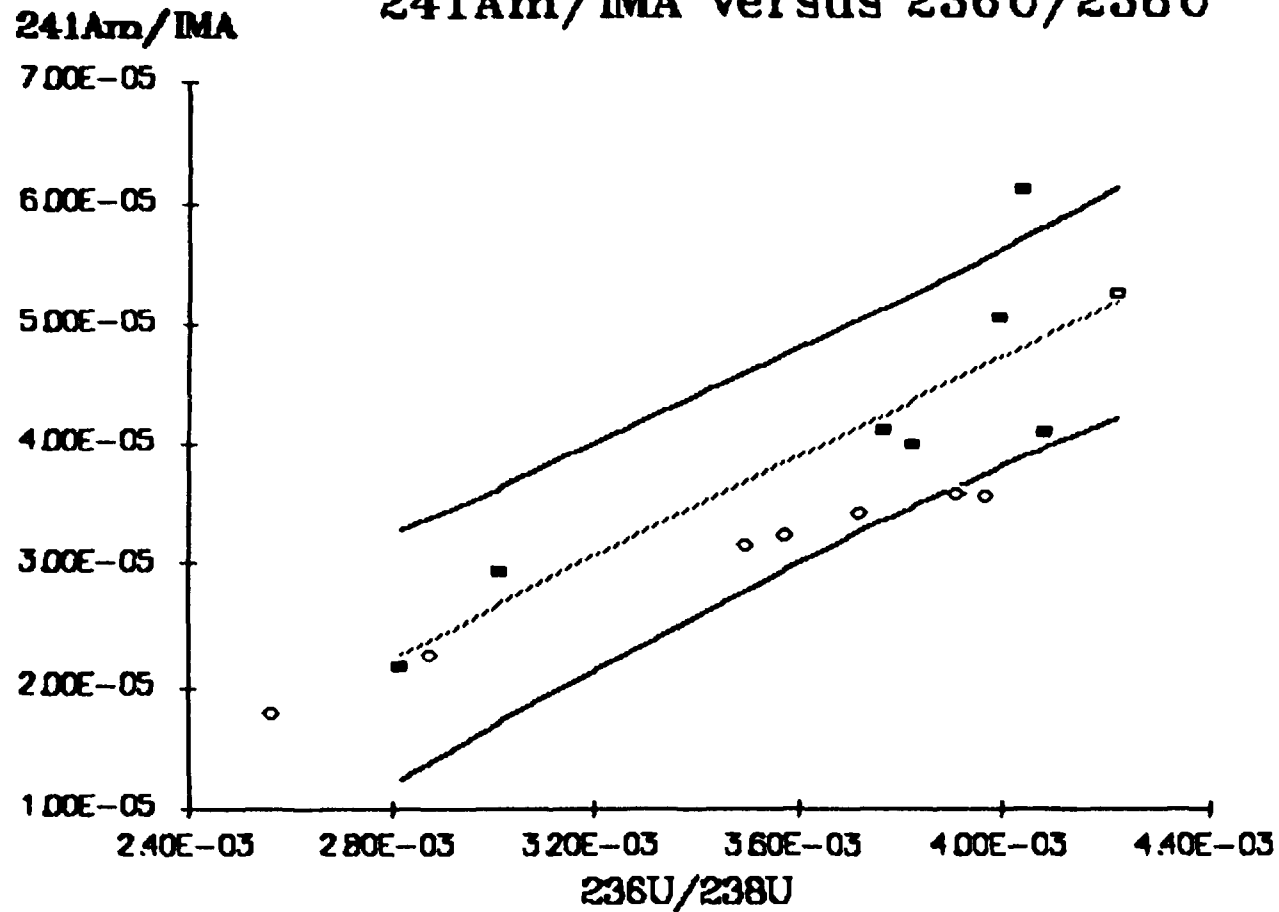
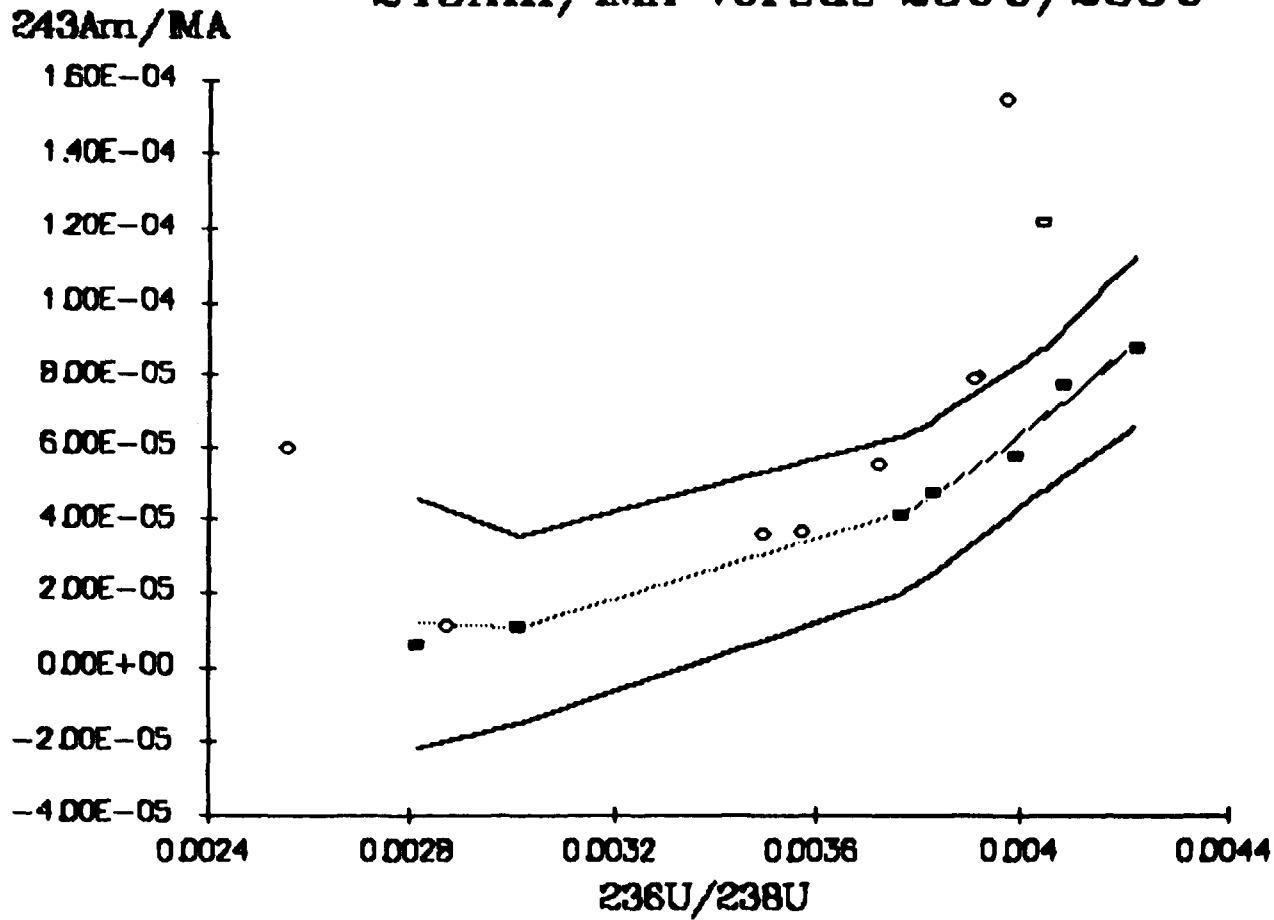


Figura 40 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

138



- Correlação Isotópica
- Limite Inferior
- Limite Superior
- Valor Teórico
- Elemento BE-124
- Elemento BE-120

**Figura 41 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$**

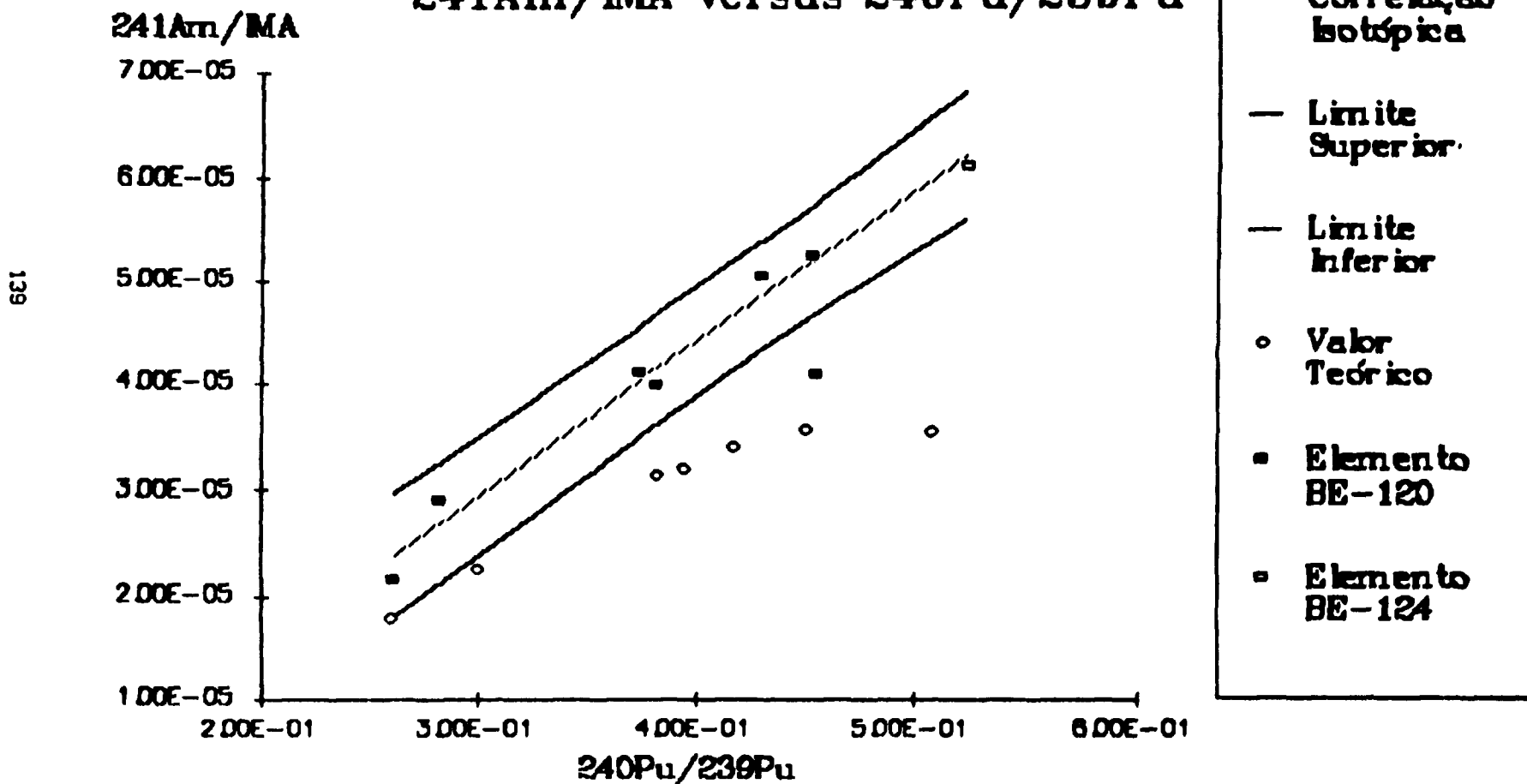
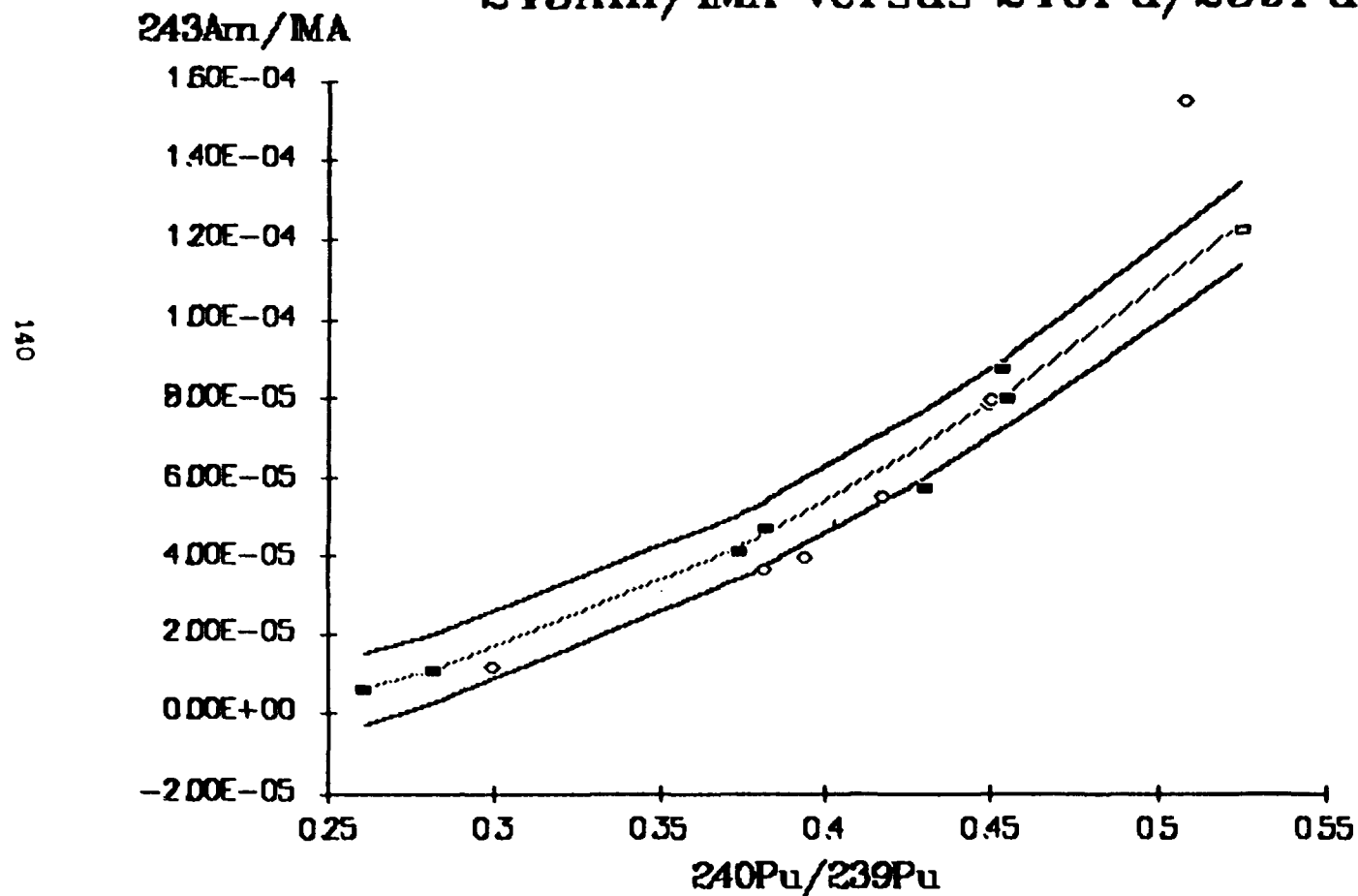


Figura 42 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$



- Correlação Isotópica
- Limite Inferior
- Limite Superior
- Valor Teórico
- Elemento BE-124
- Elemento BE-120

Figura 43 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$

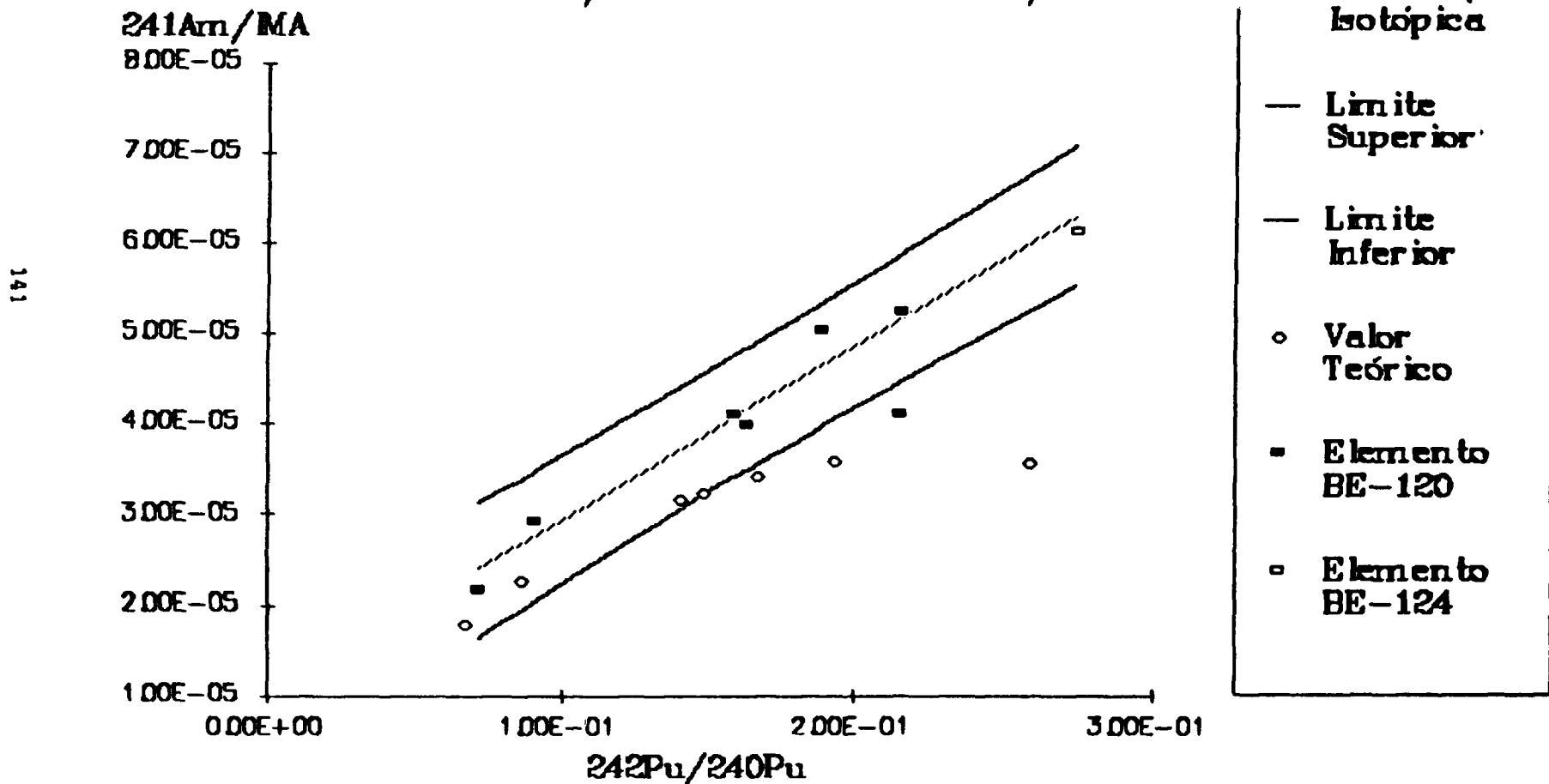


Figura 44 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$

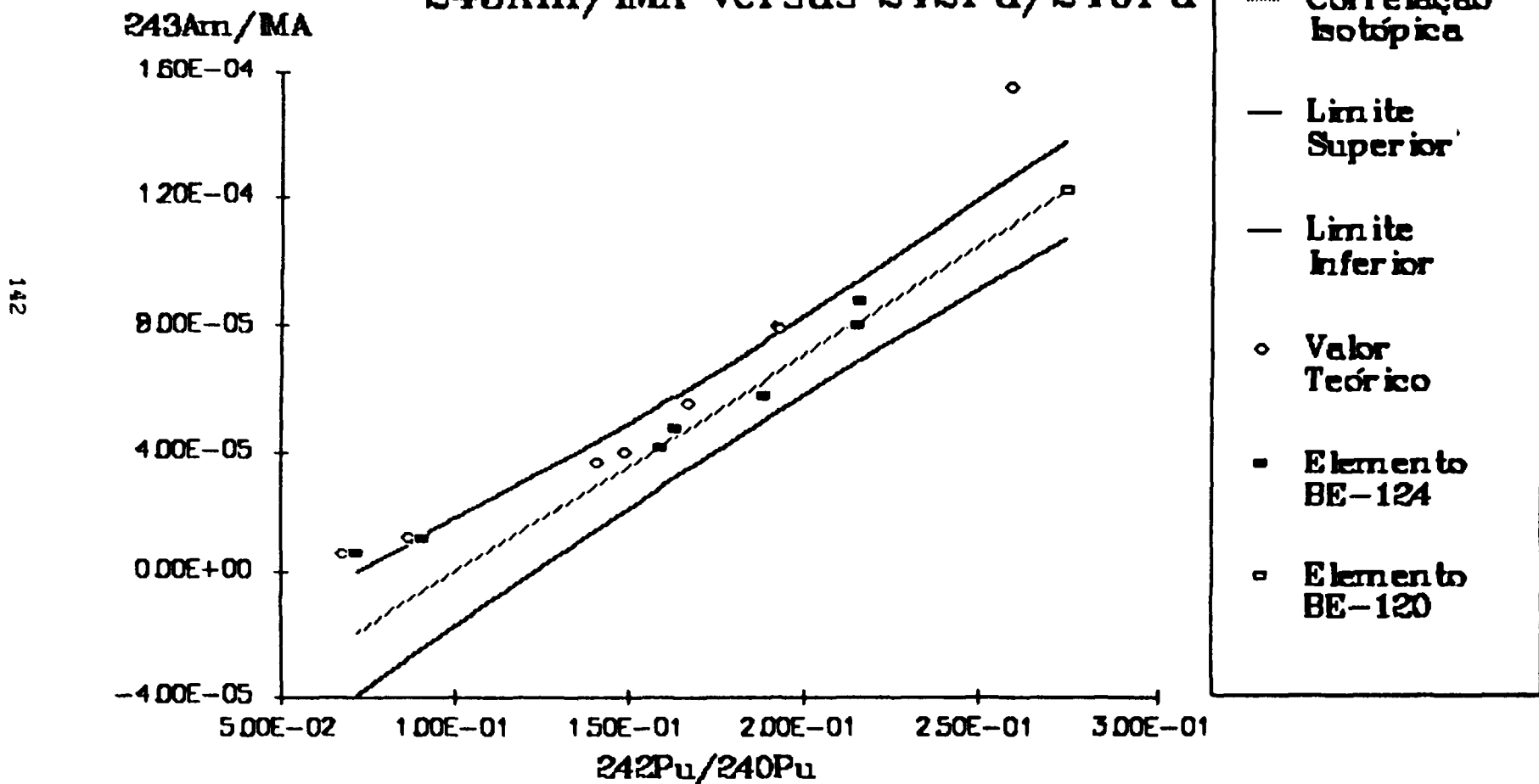


Figura 45 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$

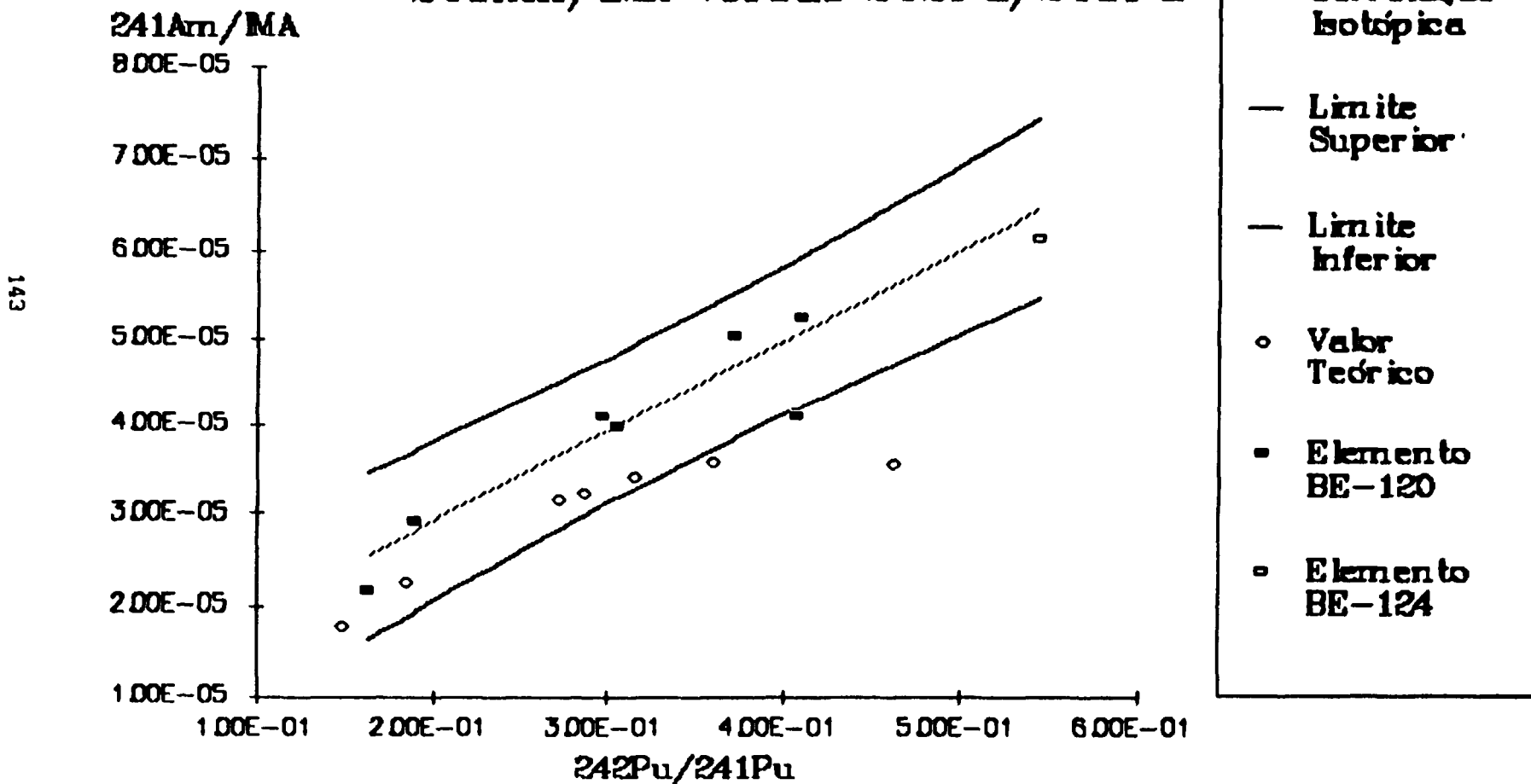
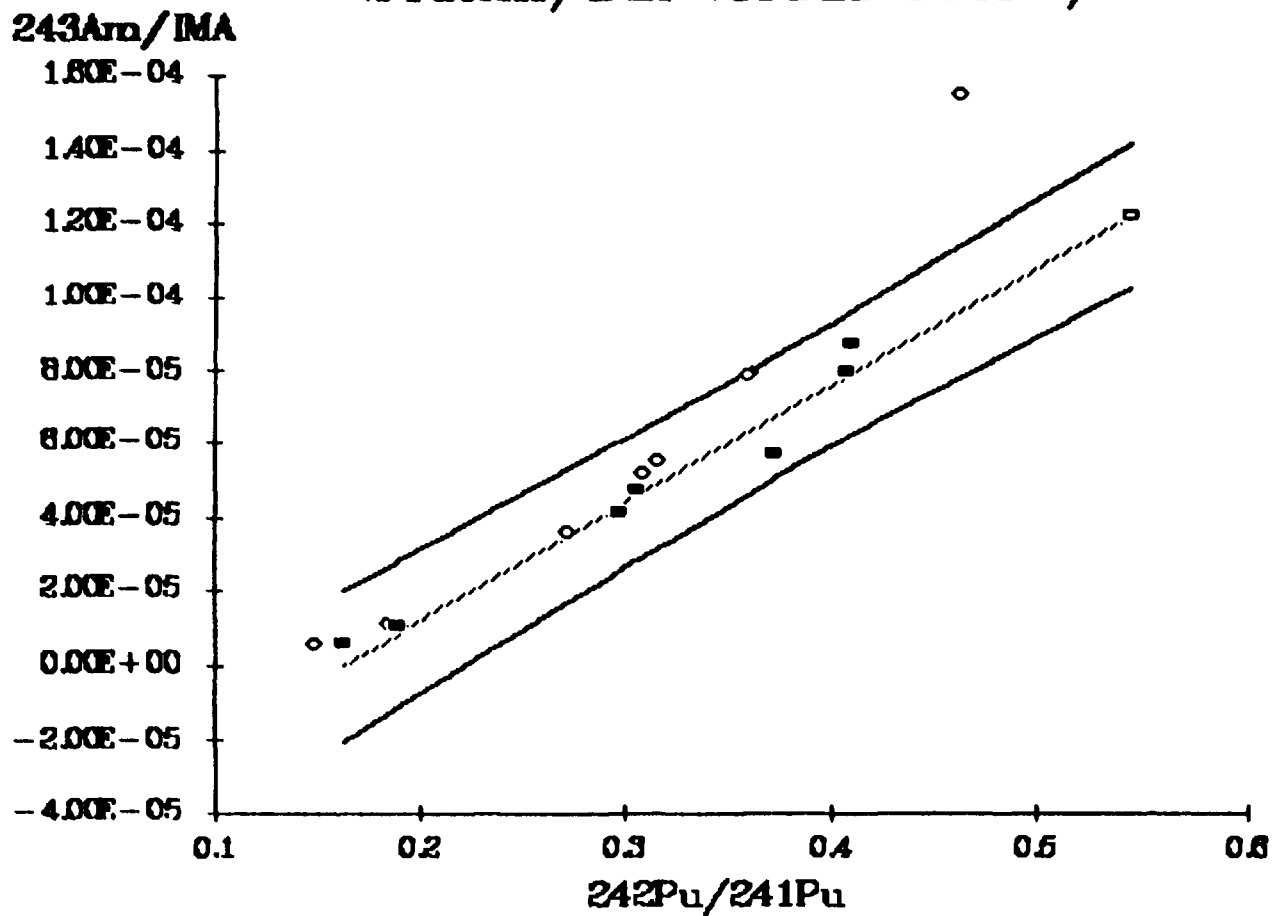


Figura 46 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$

144



- Correlação Isotópica
- Limite Inferior
- Limite Superior
- Valor Teórico
- Elemento BE-124
- Elemento BE-120

Figura 47 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$

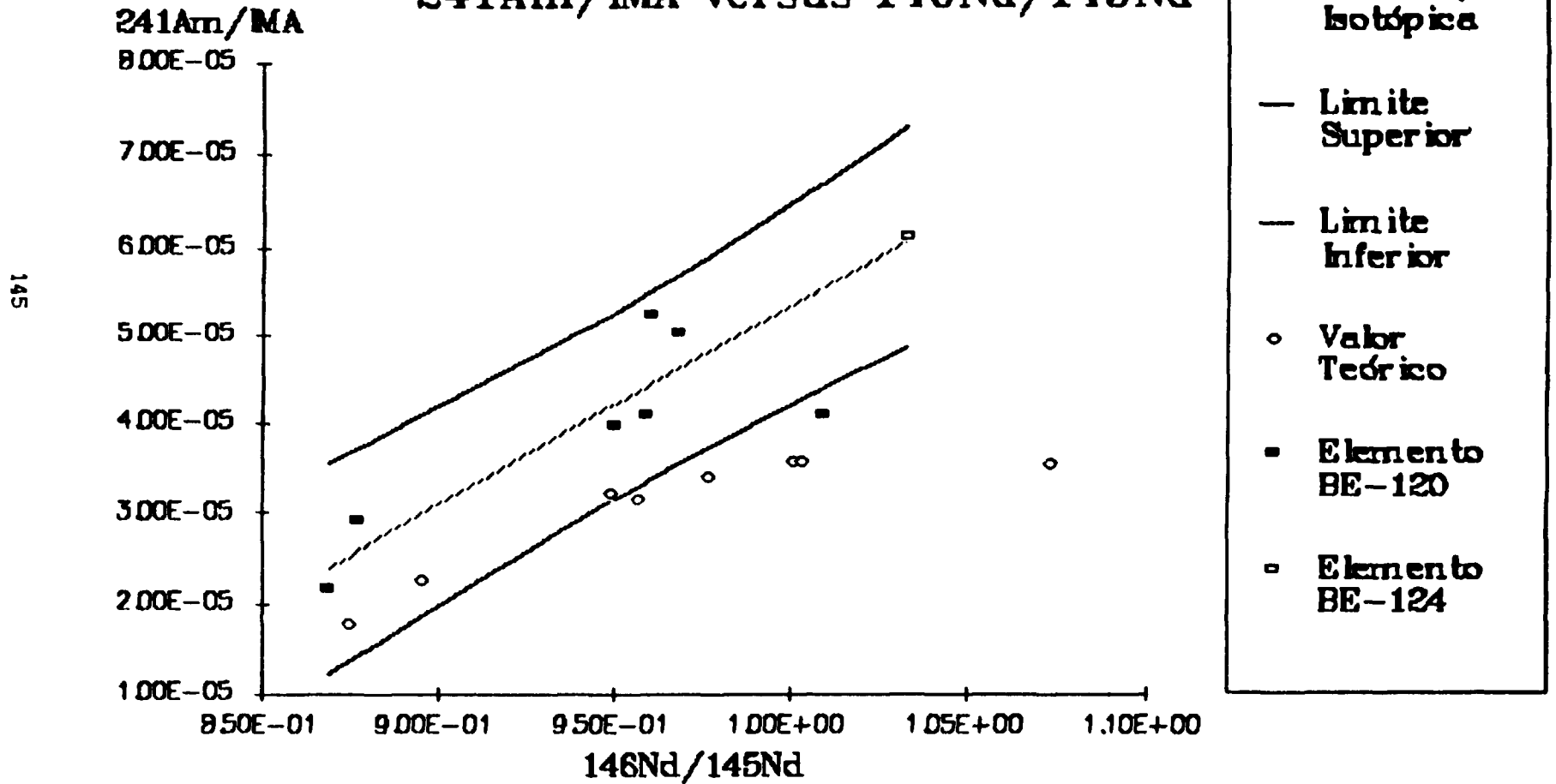


Figura 48 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$

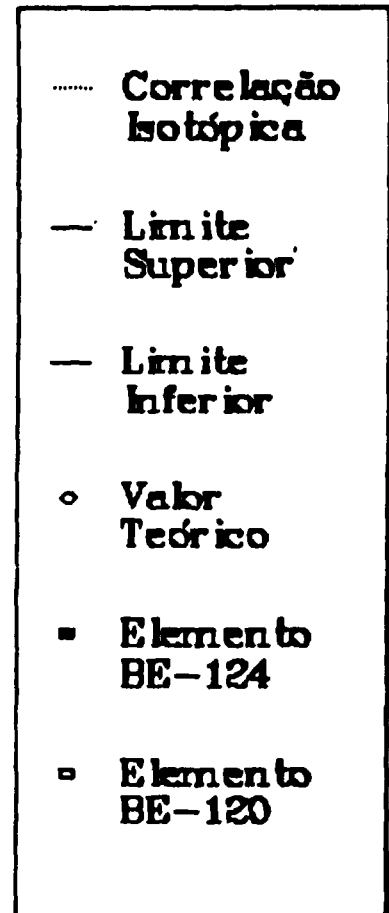
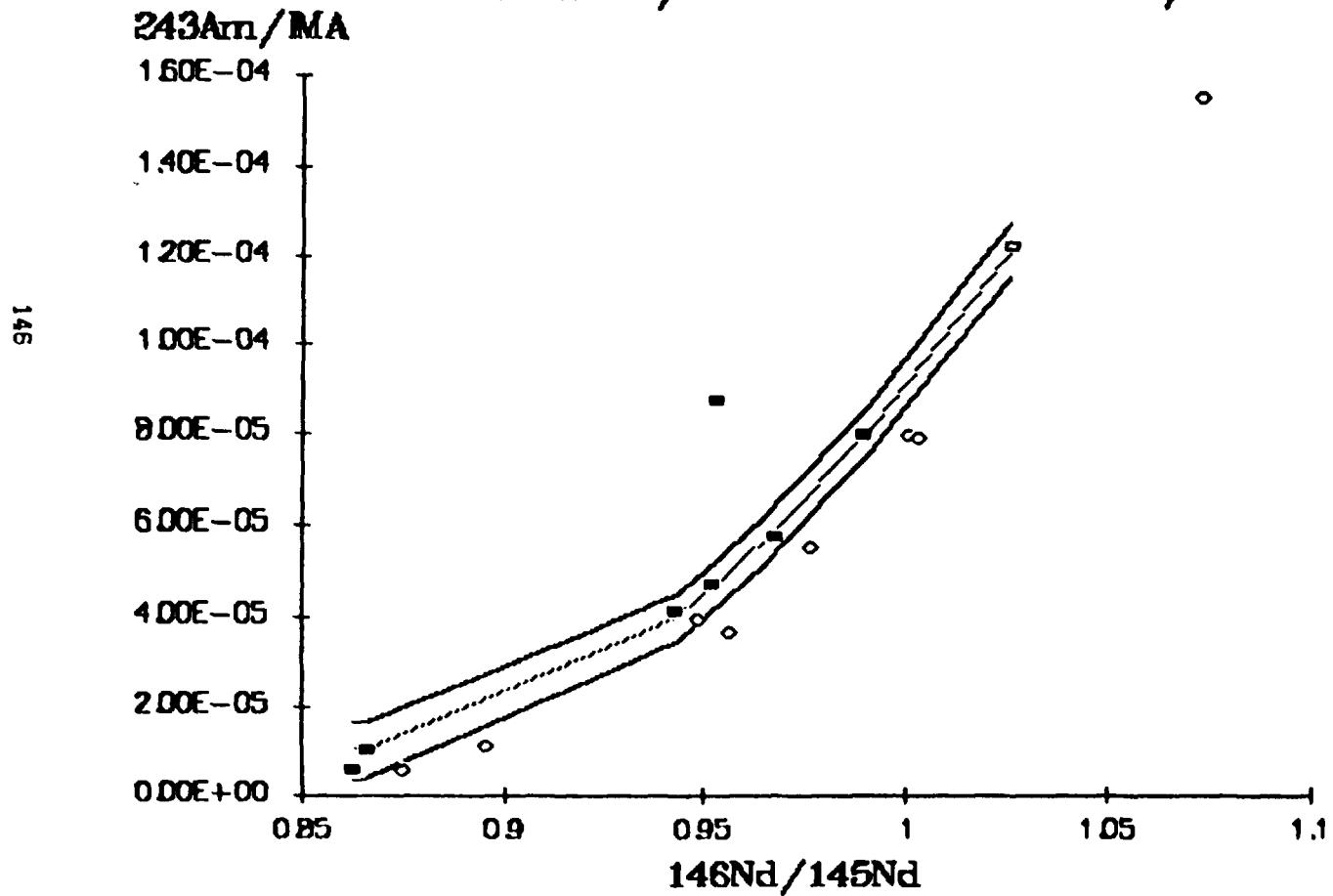


Figura 49 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{83}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$

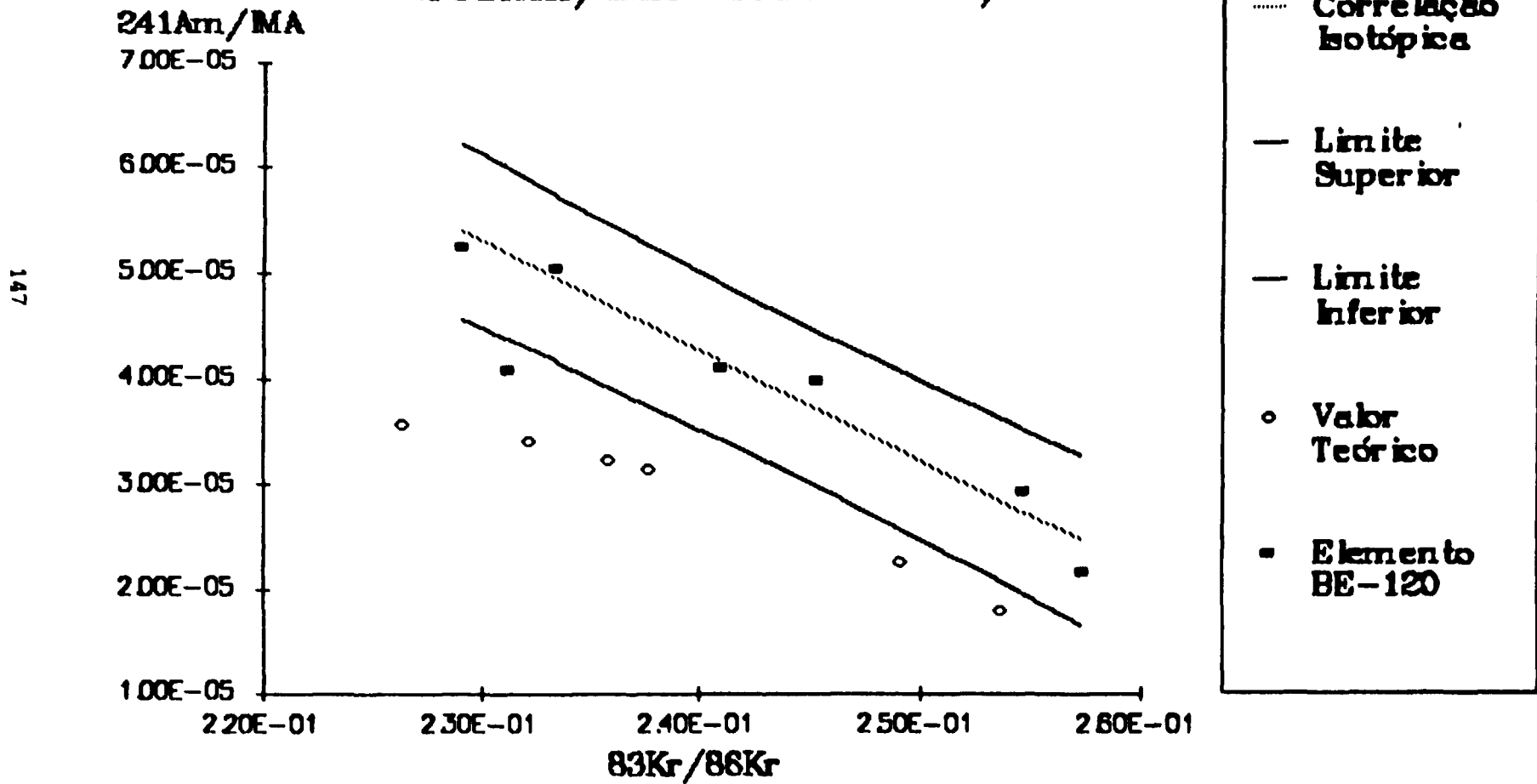


Figura 51 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$

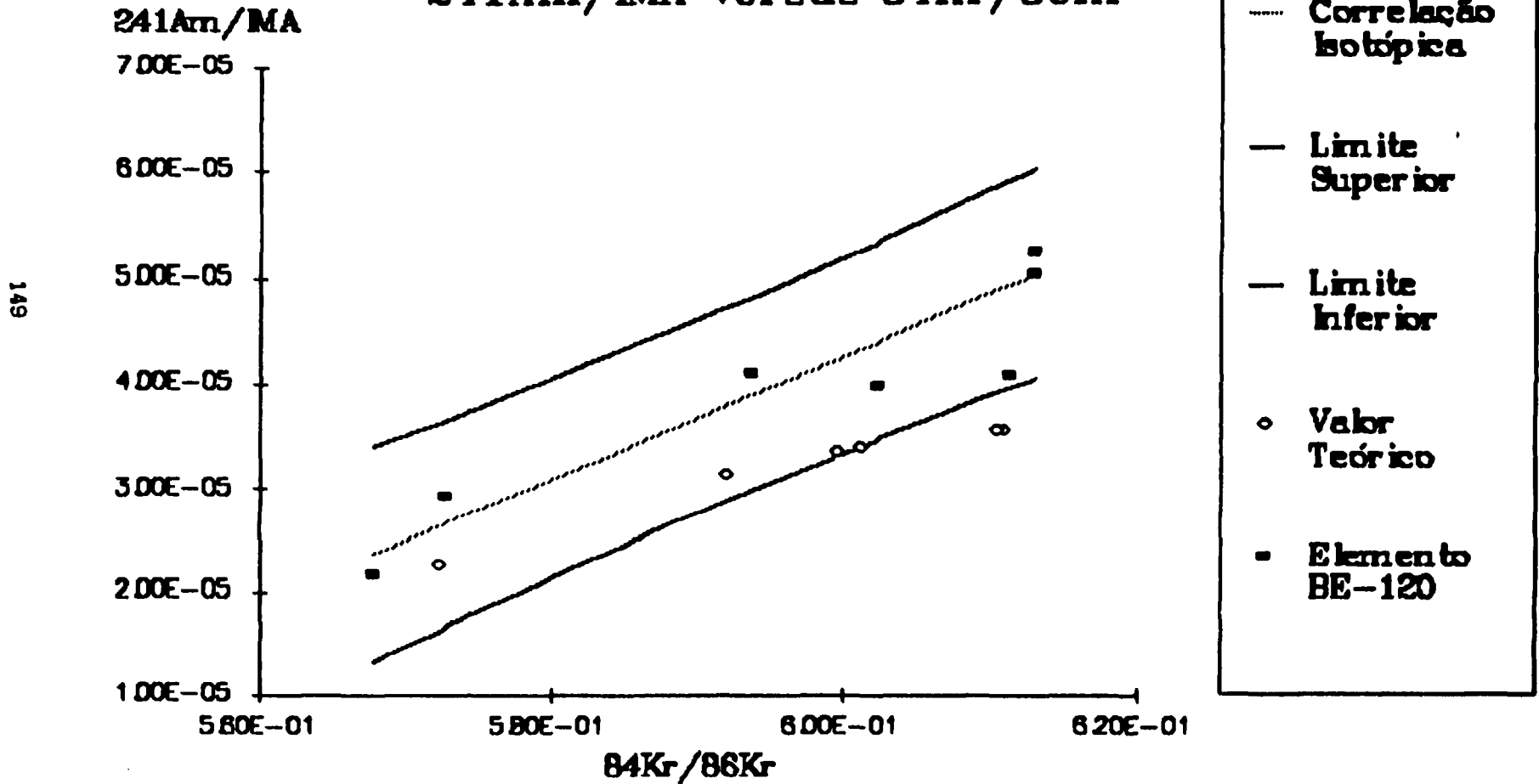


Figura 52 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{84}\text{Kr}/^{86}\text{Kr}$

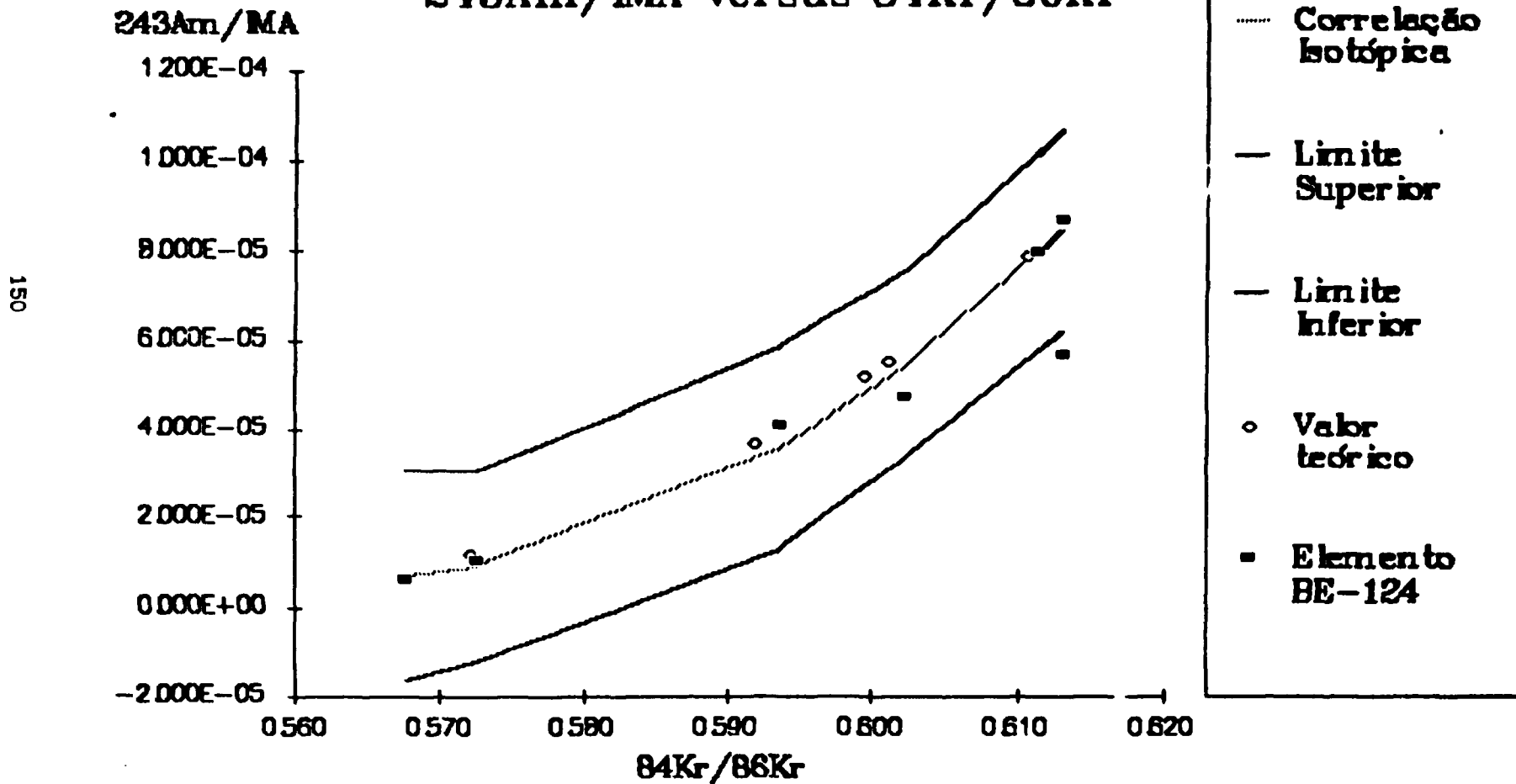


Figura 53 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$

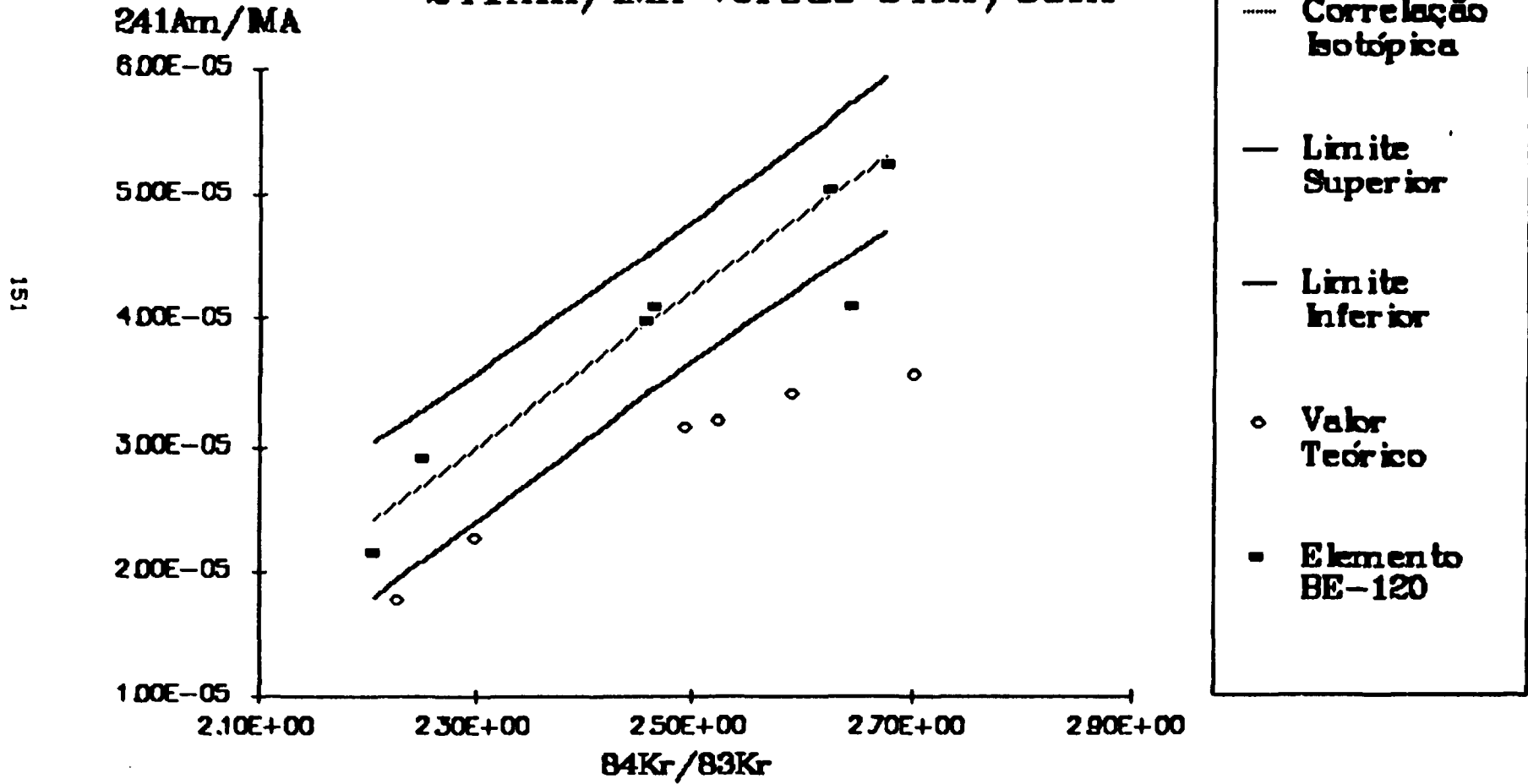


Figura 54 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$

152

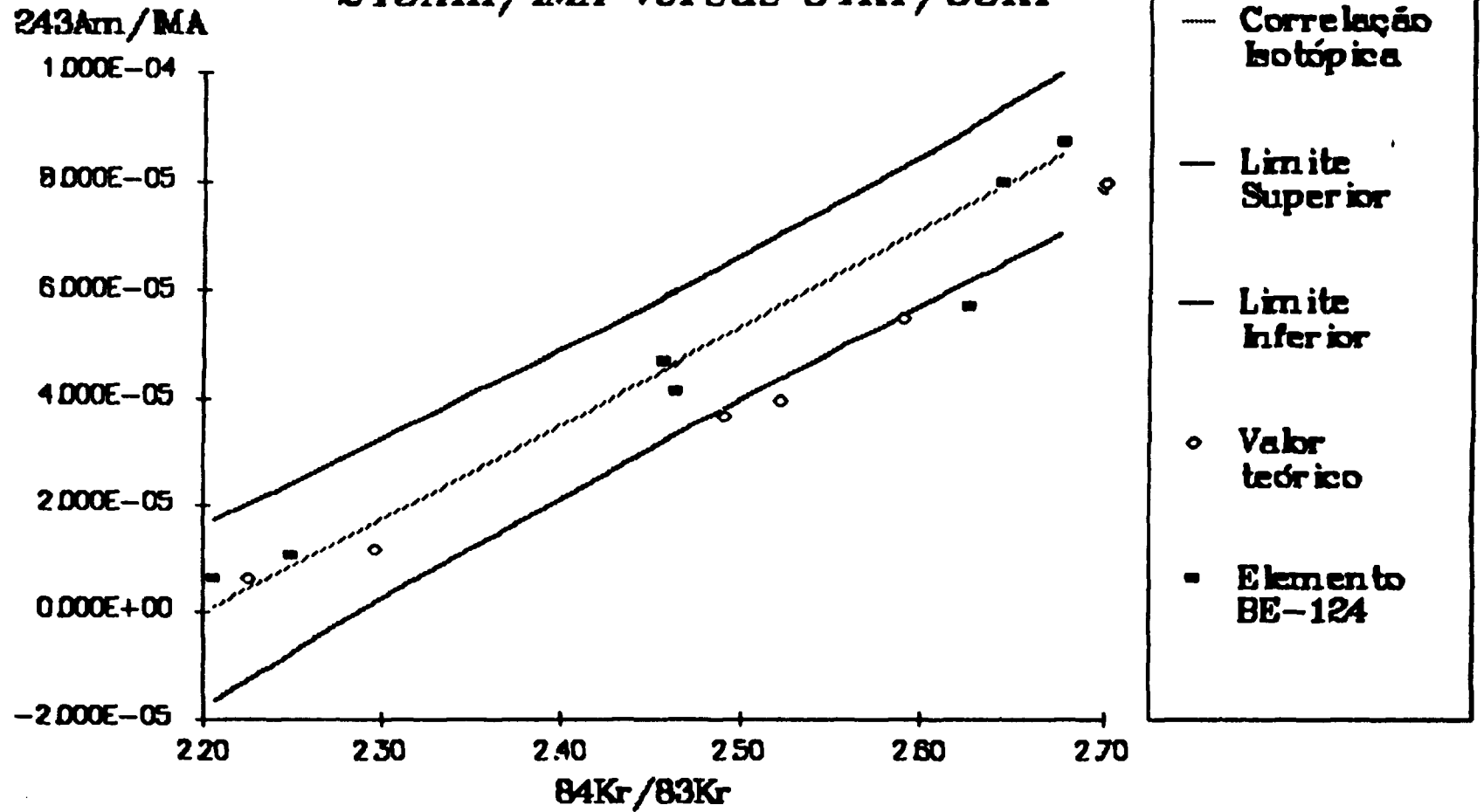
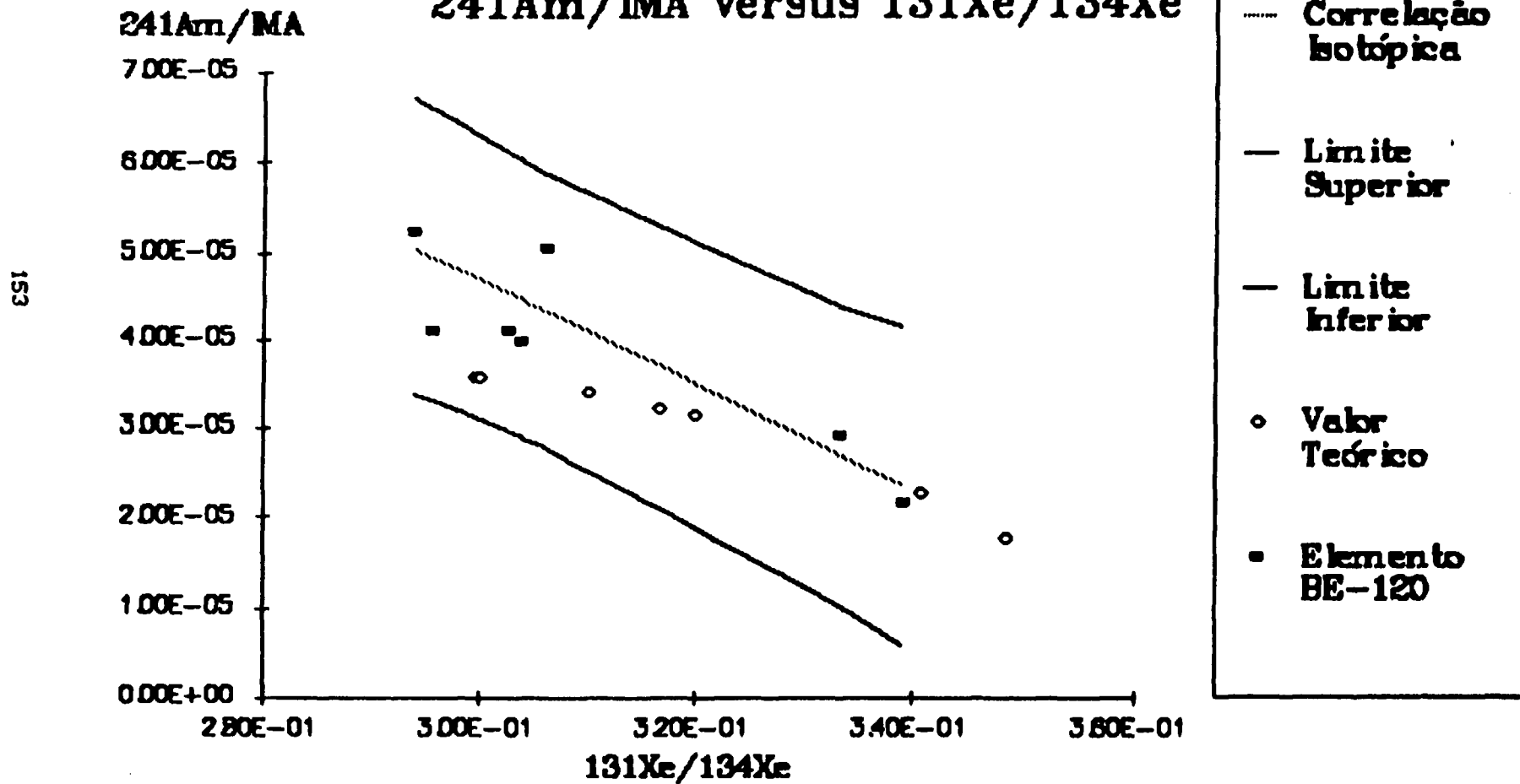


Figura 55 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{131}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$



**Figura 56 - Correlação Isotópica
243Am/MA versus 131Xe/134Xe**

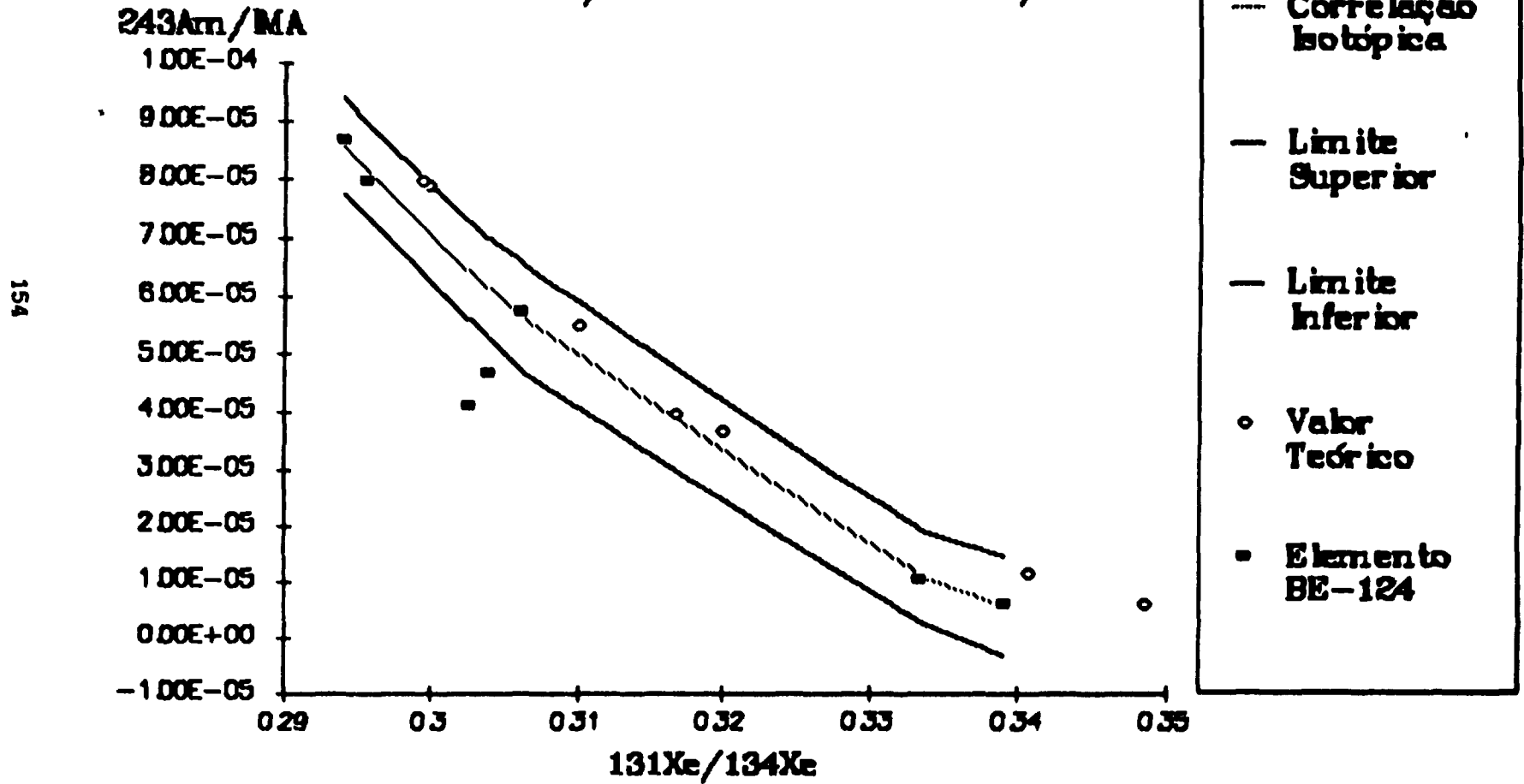


Figura 57 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ versus $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$

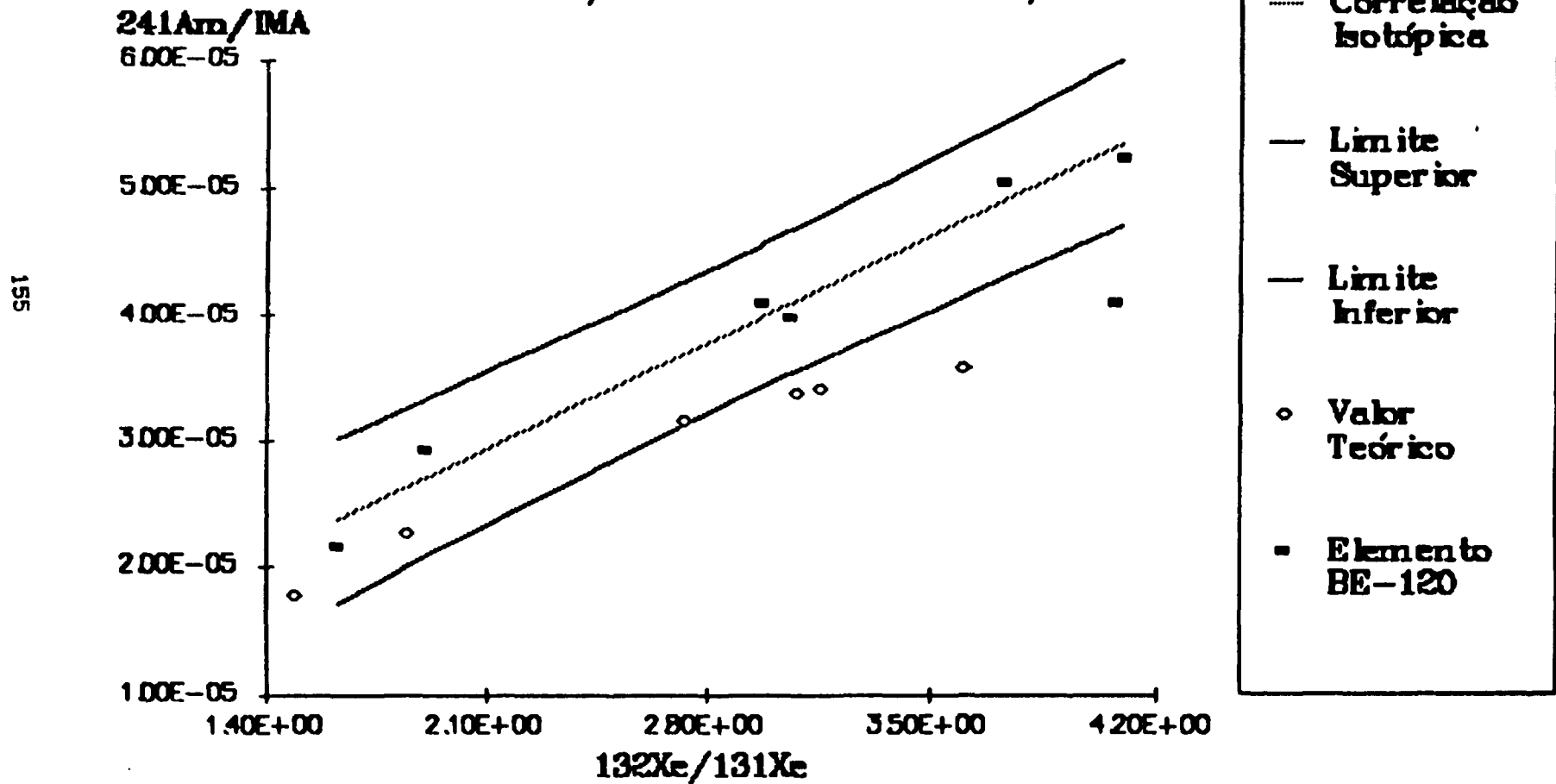


Figura 58 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$

156

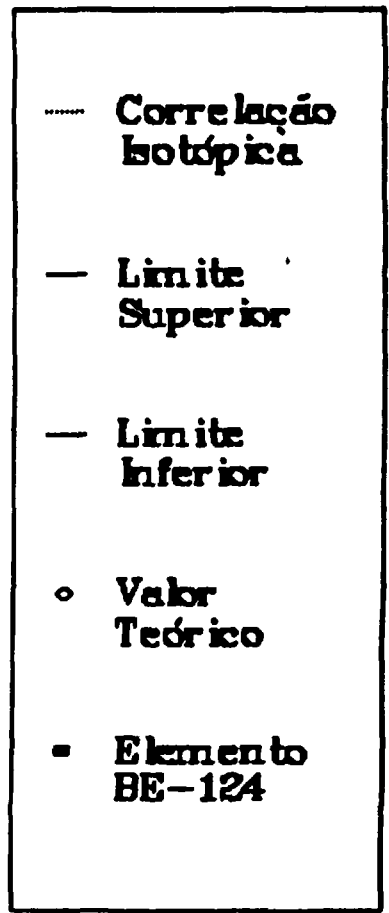
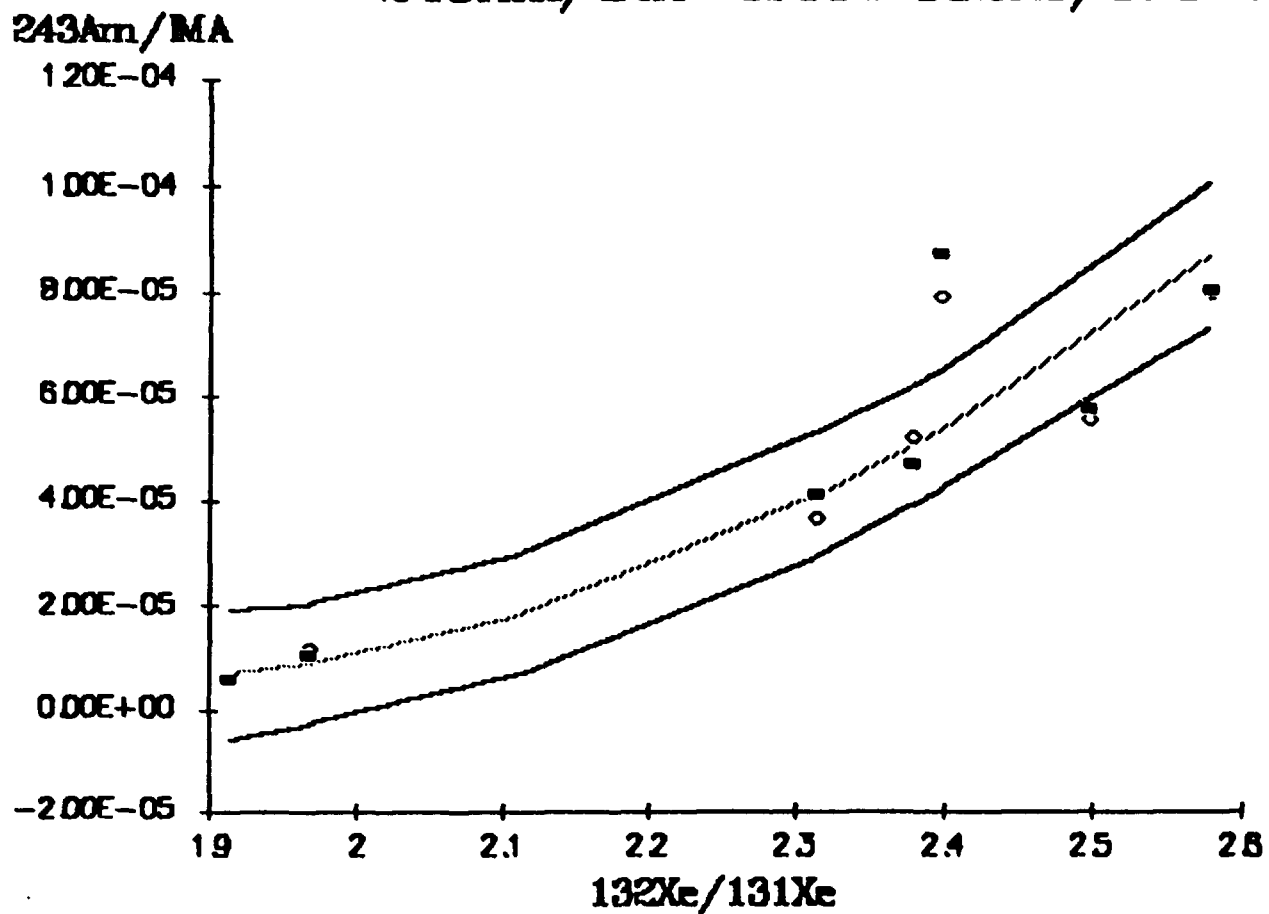


Figura 59 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$

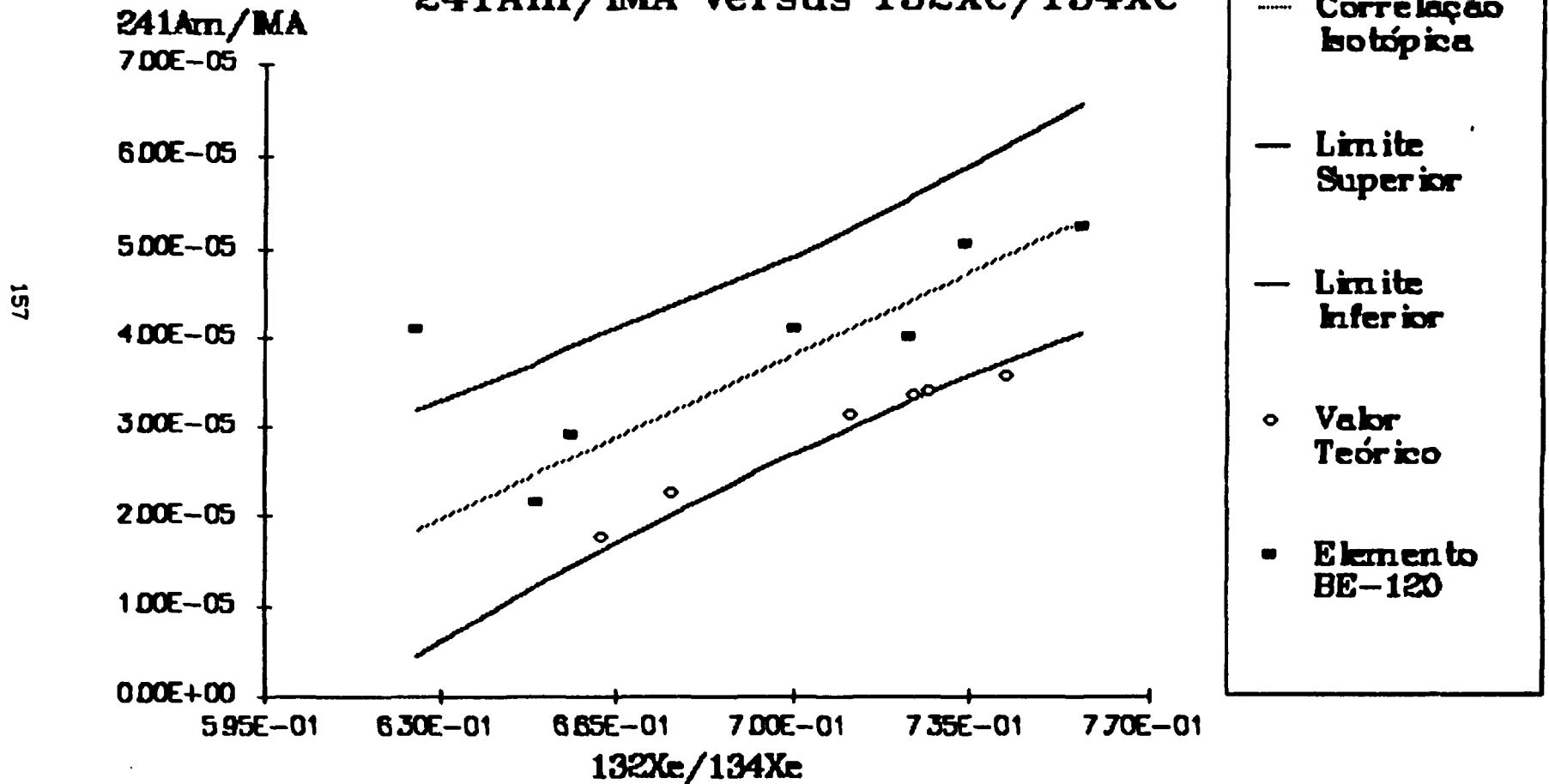


Figura 60 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{132}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$

158

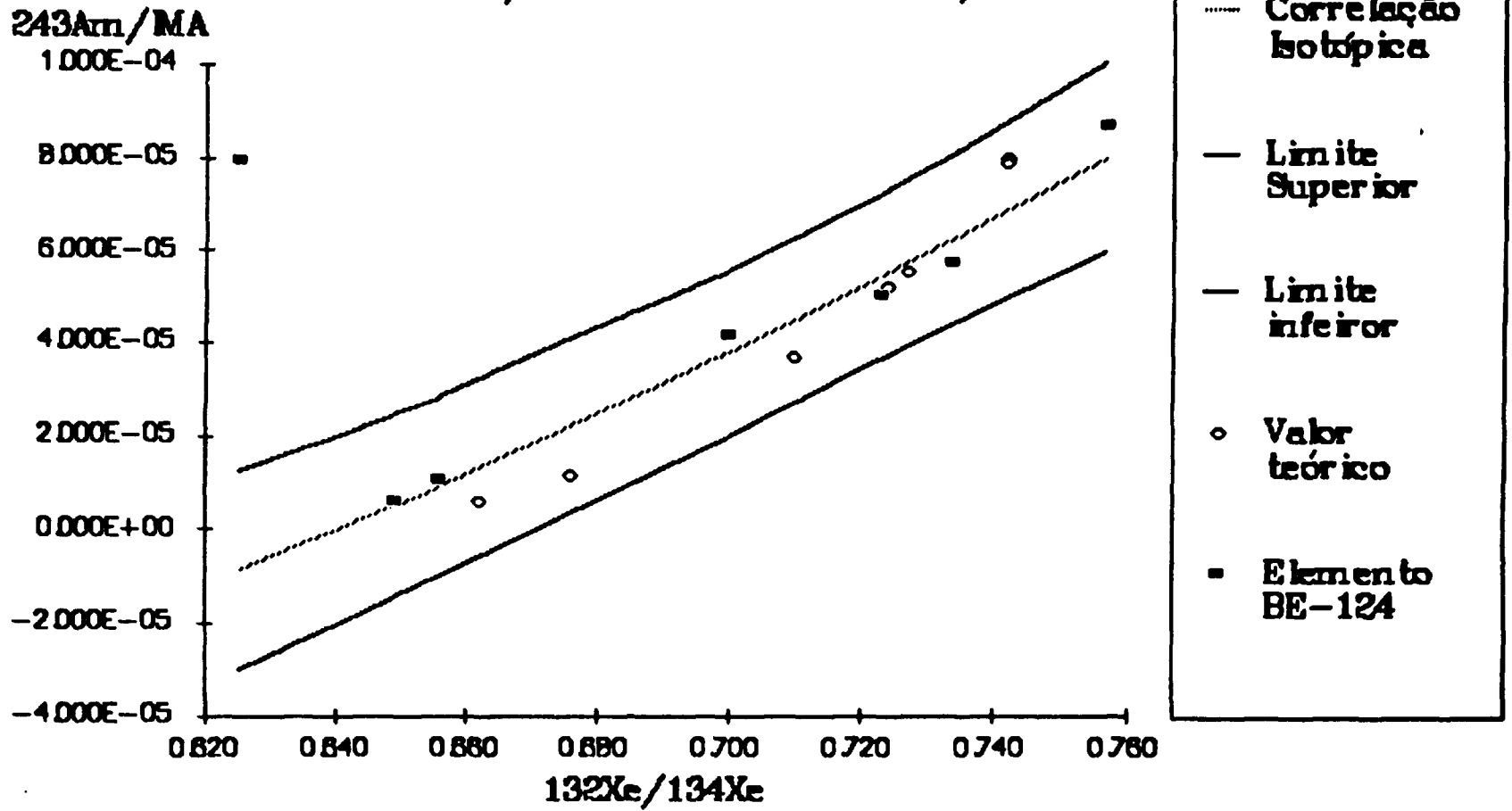


Figura 61 - Correlação Isotópica
 $^{241}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{136}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$

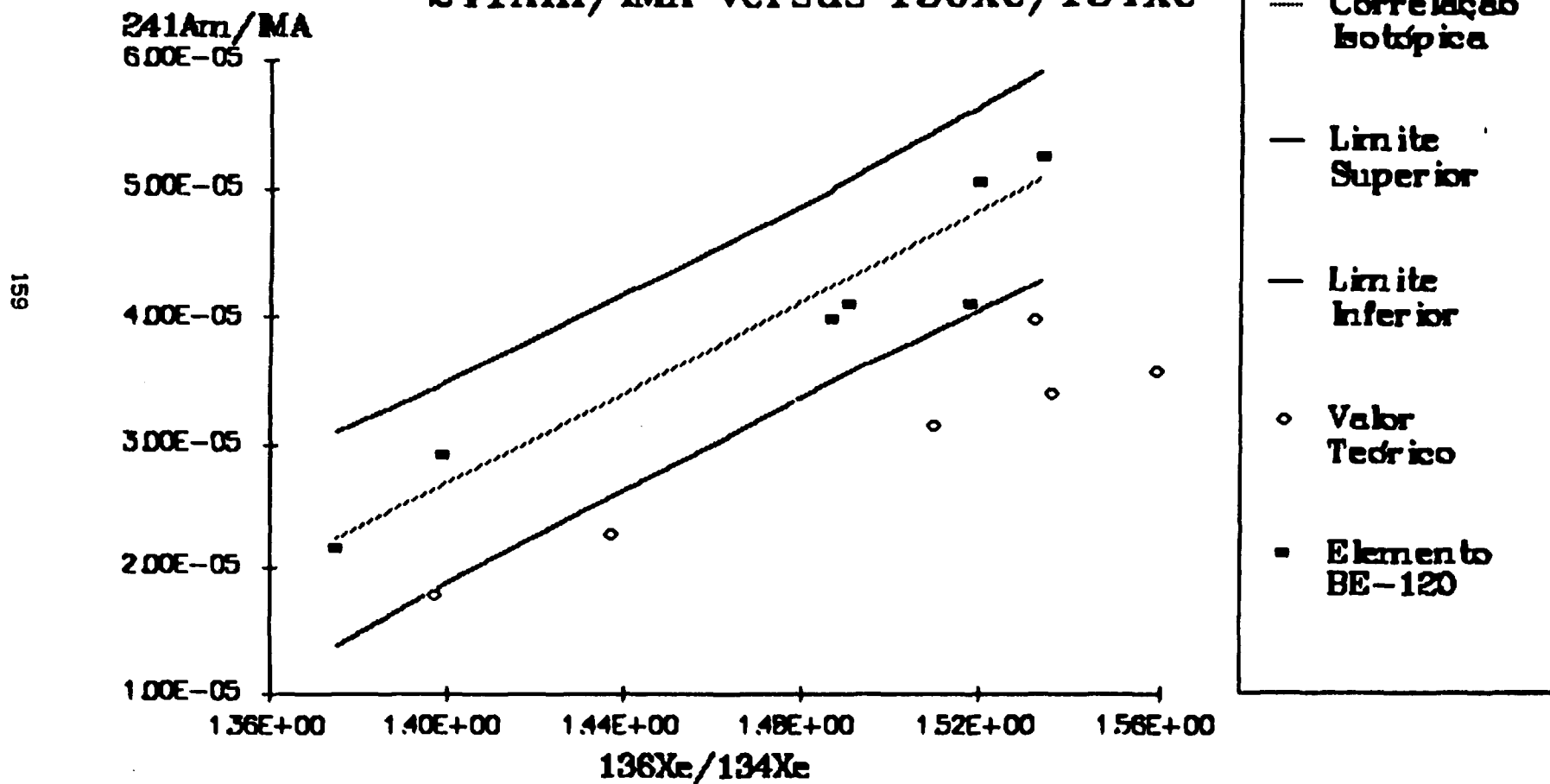
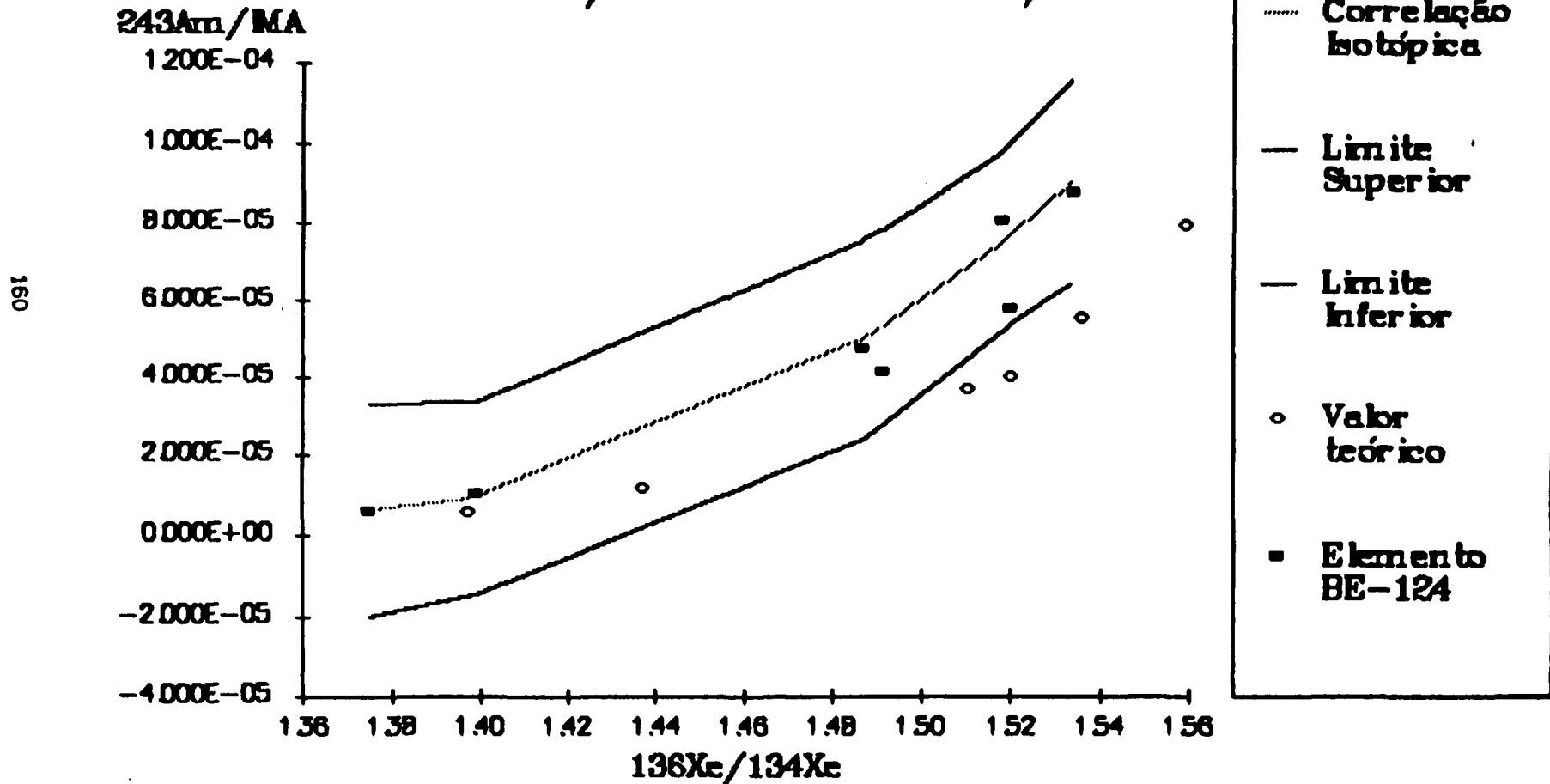


Figura 62 - Correlação Isotópica
 $^{243}\text{Am}/\text{MA}$ versus $^{136}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$



VI. CONCLUSÃO

A caracterização isotópica do combustível nuclear, pré e pós-irradiado, é um requisito da maior importância em várias atividades do ciclo do combustível nuclear.

A execução de um programa dessa natureza envolve a manipulação e análise de um grande número de informações de diferentes origens as quais, quer por motivos de contabilidade ou salvaguardas do material radioativo quer por aspectos puramente comerciais, precisam ser verificadas e comparadas de maneira rápida, segura e independente.

Um aspecto importante num programa de caracterização isotópica consiste na diversidade de metodologias utilizadas, algumas vezes de forma redundante, necessárias para determinação e comprovação de dados experimentais assim como a interdependência destas metodologias.

Neste trabalho propõe-se uma metodologia que utiliza as técnicas analíticas de espectrometria de massa, espectrometria alfa, espectrometria gama, dados de correlação isotópica e valores teóricos do inventário isotópico das amostras obtidos por meio do código computacional ORIGEN2.

Um exemplo típico, e ocasional, da importância e necessidade de utilização de diferentes técnicas, de forma simultânea, durante um programa de caracterização isotópica ocorreu com as amostras 739 e 741. Nestas amostras as divergências entre os dados de queima obtidos por meio dos métodos do ^{148}Nd e ^{137}Cs foram esclarecidas e corrigidas utilizando-se de informações de concentração e composição isotópica calculadas por meio do código computacional ORIGEN2.

Considerando-se que estas divergências nos dados de queima já haviam sido observadas em outros trabalhos^(11,174), sem que as causas fossem identificadas, conclui-se que a estas amostras foram de alguma forma, como demonstram os resultados apresentados nas tabelas XIII e XVI, contaminadas com solução enriquecida no nuclídeo ^{150}Nd e que esta contaminação deve ter ocorrido durante a fase

de dissolução e diluição do combustível nuclear irradiado antes, portanto, de sua chegada ao laboratório.

Na década de 70 os códigos computacionais foram de grande utilidade no estudo teórico de correlações isotópicas. Com o desenvolvimento de metodologias mais precisas para a determinação de parâmetros nucleares tais como rendimentos de fissão, seções de choque, meias vida etc. e com a sensível melhora nos equipamentos e técnicas de análise isotópica ambos os métodos tiveram um desenvolvimento simultâneo de modo a permitir, nos dias de hoje, que os principais isótopos dos elementos urânio e plutônio e alguns gases de fissão possam ser estimados com uma boa precisão.

Verificou-se neste trabalho que mesmo na ausência de dados mais precisos sobre o histórico de irradiação das amostras em estudo a utilização do código computacional ORIGEN2 apresentou resultados satisfatórios, quando comparados aos dados experimentais, na avaliação da composição e concentração isotópica principalmente para os isótopos majoritários de urânio, plutônio e alguns produtos de fissão o que comprova a utilidade destes códigos no inventário isotópico de combustíveis nucleares irradiados.

Os desvios percentuais relativos aos dados experimentais, aqui obtidos, embora atinjam valores acima daqueles encontrados em programas de intercomparação entre resultados experimentais realizados por diferentes laboratórios^(19,20,21), estão de acordo com aqueles encontrados em trabalhos de análise de amostras pós-irradiadas pertencentes ao reator de OBRIGHEIM realizados por diferentes laboratórios^(11,120,122), tabela XXXV.

Formado minoritariamente durante o processo de fissão o elemento amerício foi por muitos anos considerado apenas mais um elemento presente no rejeito nuclear. Nos últimos anos, entretanto, com o desenvolvimento de estudos sobre os riscos radiológicos de armazenamento a longo prazo e com a possibilidade de sua reutilização, principalmente em reatores rápidos, um crescente interesse vem sendo despertado para o estudo e desenvolvimento de metodologias a serem utilizadas na determinação da concentração e previsão de formação deste elemento no ciclo do combustível nuclear.

Tabela XXXV. Comparação entre os valores de precisão (%) obtidos para a concentração de urânio e dos nuclídeos ^{235}U e ^{239}Pu obtidos por diferentes laboratórios

Urânio (total)	IDA 72 ^(a)	0,84
	IDA 80 ^(b)	0,69
	SARKIS ^(c)	0,72
	BARBERO ^(d)	0,28
^{239}Pu	IDA 72	5,91
	IDA 80	1,28
	SARKIS	4,70
	BARBERO	1,52
$^{235}\text{U}/\text{IMA}$	MARZO ^(e)	2,24
	SARKIS	1,82
$^{239}\text{Pu}/\text{IMA}$	MARZO	1,03
	SARKIS	4,68

- (a) Desvio padrão percentual dos resultados obtidos por 21 laboratórios⁽¹⁹⁾
- (b) Desvio padrão percentual dos resultados obtidos por 31 laboratórios⁽²¹⁾
- (c) Desvio percentual entre resultados obtidos experimentalmente e aqueles calculados por meio do código ORIGEN2 neste trabalho
- (d) Desvio percentual relativo entre os resultados experimentais de análise de pós-irradiação obtidos em um trabalho de intercomparação entre os laboratórios do *Institut for Transuraniu Elements, Karlsruhe, Alemanha Ocidental* e o *Joint Research Centre Ispra, Ispra, Itália*. Dados referem-se somente às amostras 740, 741, 742 do reator de Obrigheim⁽¹¹⁾
- (e) Desvio percentual relativo entre os resultados experimentais (médios de 4 laboratórios) e aqueles obtidos por meio do código computacional KORIGEN⁽¹⁷⁸⁾. Dez amostras pertencentes ao reator de Obrigheim⁽¹²⁰⁾

Entre os principais resultados deste trabalho tem-se a demonstração, pela primeira vez, da possibilidade de utilização da

técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa para determinação precisa, cerca de 0,5%, da concentração dos isótopos do elemento amerício a nível de traços, 5 a 100 gramas/tonelada de combustível nuclear irradiado, dentro de uma faixa de queima de cerca de 16 a 34Gwd/t.

Os valores médios dos desvios relativos aos dados experimentais de concentração isotópica para os nuclídeos ^{241}Am e ^{243}Am obtidos por meio do código computacional ORIGEN2, cerca de 20 e 10% respectivamente, embora tenham sido melhores do que aqueles valores presentes na literatura, 150 e 300%⁽¹⁰³⁾, encontram-se ainda acima daqueles encontrados para os demais actínides .

Dessa forma, considerando-se que todos os elementos actínides foram analisados por meio da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa e que os procedimentos para a simulação de irradiação, via ORIGEN2, foram também os mesmos para todas as amostras, conclui-se que estes desvios devem-se provavelmente à imprecisão dos dados nucleares constantes no banco de dados do programa. Neste caso a hipótese de contaminação fica afastada pois observando-se as figuras 21 a 62 verifica-se haver realmente uma tendência de distribuição dos dados experimentais em relação aos valores teóricos.

A técnica de correlação isotópica foi desenvolvida nos anos 60 inicialmente apenas como meio de verificação da consistência de resultados analíticos provenientes da caracterização isotópica de combustíveis nucleares irradiados nos tanques de dissolução em plantas de reprocessamento. Com o seu desenvolvimento, e a definição de diferentes equações matemáticas envolvendo os elementos actínides, a técnica de correlação isotópica passou a ter um interesse cada vez maior no campo de salvaguardas do material radioativo e, juntamente com códigos computacionais para a simulação da queima e inventário isotópico do material irradiado, na avaliação e previsão de formação do conteúdo isotópico dos principais nuclídeos envolvidos durante o processo de fissão nuclear.

Pelos resultados apresentados nas Tabelas IX e X fica demonstrada a universalidade da técnica de correlação isotópica onde,

partindo-se de valores aproximados para o cálculo da queima, foi possível estimar-se a concentração dos principais isótopos dos elementos urânio e plutônio com uma diferença percentual relativa aos dados experimentais de cerca de 10%.

Para o caso do amerício foram encontradas na literatura internacional somente três equações envolvendo o isótopo ^{243}Am . Os valores de concentração isotópica obtido por meio destas equações, Tabelas IX e XXXI, apresentam desvios percentuais relativos aos dados experimentais piores do que aqueles obtidos neste trabalho tanto pelas correlações isotópicas aqui definidas como pelo código computacional ORIGEN2. Estas diferenças podem ser explicadas pelo fato de que na época em que aquelas equações foram definidas a metodologia para a determinação da concentração do nuclídeo ^{243}Am nas amostras baseou-se na técnica de espectrometria alfa.

Com relação ao nuclídeo ^{241}Am não foram encontradas na literatura correlações isotópicas o que corroborava as observações de Wellum⁽¹⁷⁷⁾ ao fato deste nuclídeo não se correlacionar bem. Barbero e colaboradores⁽¹¹⁾ apresentam um gráfico isolado em que este nuclídeo é correlacionado com queima sem entretanto descrever equações, critérios estatísticos e, principalmente, sem fundamentar a possível correlação dentro de uma análise mais profunda do inventário isotópico das amostras por ele utilizadas.

Para o estudo das correlações isotópicas foi necessário definir-se inicialmente os critérios estatísticos e a escolha dos parâmetros a serem correlacionados. Neste aspecto não há na literatura uma definição clara sobre quais devam ser adotados. A escolha de um modelo adequado é ainda objeto de estudo^(72,103,170,171) dependendo basicamente dos objetivos do trabalho a ser realizado. Isto se deve ao fato de que grande parte dos trabalhos na área de correlação isotópica baseiam-se em informações provenientes de bancos de dados de diferentes reatores nucleares, analisados por diferentes laboratórios e obtidos por meio de diferentes técnicas analíticas. Estes são também alguns dos motivos pelos quais na análise de um grande número de dados provenientes de diferentes origens pode-se eliminar aqueles que a partir de certos critérios estatísti-

cos e operacionais, encontram-se fora de ajuste^(80,102).

Esta não foi, evidentemente, uma dificuldade encontrada na execução deste trabalho. Entretanto, estudos demonstram que mesmo dentro de um conjunto de dados analíticos obtidos em um mesmo laboratório pode ocorrer, principalmente em procedimentos de rotina, a dispersão de alguns dados experimentais. Este problema e suas conseqüências, vêm sendo intensivamente estudados pela comunidade científica através de programas de intercomparação envolvendo diversos laboratórios no mundo inteiro^(19,20,21,22,24,59,161).

Pelos resultados obtidos conclui-se que os critérios estatísticos adotados neste trabalho mostraram-se compatíveis com o número de amostras analisadas e, principalmente, com a diversidade de valores de queima por elas apresentadas.

Quanto a escolha de parâmetros, existe na literatura uma diversidade de modelos que vão desde a escolha de simples razões e/ou concentração isotópicas, como por exemplo $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ versus $^{235}\text{U}/^{236}\text{U}$ ⁽¹⁶⁸⁾, $^{240}\text{Pu}/\text{IMA}$ versus $^{241}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$ ⁽¹⁸⁾ até a definição de termos mais complexos do tipo $(^{239}\text{Pu})^2 \times (100 - ^{240}\text{Pu}) / (^{235}\text{U})^2$ versus $(100 - ^{239}\text{Pu})$ ⁽¹⁶⁹⁾, obtidos por meio de séries de potências visando a obtenção de correlações lineares⁽¹³²⁾. Este tipo de correlação embora encontre aplicações específicas⁽¹⁷²⁾ não foi objeto de estudo neste trabalho onde procurou-se estabelecer correlações isotópicas a partir de informações básicas obtidas em qualquer programa de caracterização isotópica sem a utilização de qualquer artifício matemático para definição dos parâmetros envolvidos.

No desenvolvimento deste trabalho foram estudadas ao todo cerca de 250 equações matemáticas envolvendo os nuclídeos ^{241}Am e ^{243}Am , das quais 42 foram escolhidas, tabelas XXVI a XXX.

Os resultados apresentados nas Tabelas XXXII, XXXIII e XXXIV demonstram que os valores de concentração isotópica calculados para ambos os nuclídeos, por meio das equações aqui definidas, apresentam um desvio percentual relativo aos dados experimentais inferiores a 10% em média, valores estes melhores do que aqueles encontrados com a utilização do código computacional ORIGEN2, o que permite-se concluir a validade dos critérios adotados no estabeleci

mento das correlações isotópicas e a possibilidade de utilização desta técnica, com vantagens em relação aos códigos computacionais, na determinação da concentração e previsão de formação dos isótopos em reatores nucleares.

Outrossim, se, de acordo com dados encontrados na literatura, a razão Pu/U ($\approx 10^{-3}$) pode ser estimada por meio de correlações isotópicas com uma precisão de cerca de 1 a 1,5%^(67,68,90,138,153,185), o valor de 10% de precisão para as razões $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ e $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ ($\approx 10^{-5}$) encontra-se perfeitamente dentro de um intervalo compatível com a técnica e com os métodos experimentais disponíveis para a determinação da queima, concentração e composição isotópica dos nuclídeos de interesse.

Pelos resultados apresentados na Tabela XXXII, verifica-se que o valor estimado para a concentração do nuclídeo $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ na amostra 740 apresentou, para a maioria das equações, um desvio de cerca de 25 a 30% em relação aos dados experimentais, o que demonstra a possibilidade de utilização da técnica de correlação isotópica na verificação da consistência dos dados experimentais assim como, e mais uma vez, a validade dos critérios estatísticos adotados.

O principal resultado de um programa de correlações isotópicas consiste na definição de equações matemáticas compatíveis entre si, como anteriormente demonstrado, e também que estas equações tenham um caráter universal podendo serem aplicadas na análise de outras amostras da mesma ou diferentes origens. Assim sendo, e de modo a testar o caráter universal das equações aqui desenvolvidas, foram analisadas oito amostras desconhecidas provenientes de um reator de potência, possivelmente do próprio reator de Obrigheim, cujo desligamento ocorreu por volta de maio de 1982.

Nas figuras 63 a 70 são apresentados alguns exemplos dos resultados obtidos, em que os dados experimentais destas amostras são plotados nas curvas correspondentes àqueles definidos neste trabalho.

Observa-se que para o nuclídeo ^{241}Am os valores estão correlacionados com um desvio levemente superior aqueles anteriormente

estudados. O motivo deste comportamento deve-se, certamente, à falta de informações precisas sobre o tempo de resfriamento do combustível, o que aumenta os erros devido à contribuição do nuclídeo ^{241}Pu na formação do ^{241}Am . Uma outra possibilidade, bastante provável para o caso de combustível nuclear pertencente ao reator de Obrigheim, consiste em serem estas amostras de composição do tipo óxidos mistos, ($\text{UO}_2\text{-PuO}_2$). Em ambos os casos existe a necessidade de cálculos complementares os quais dependem de informações ainda não disponíveis.

Verificando-se os valores médios dos desvios percentuais entre os dados obtidos experimentalmente e aqueles estimados pelas equações definidas neste trabalho, tabela XXXIII, verifica-se que estes valores estão numa faixa de 3 a 7% o que significa que mesmo aqueles pontos que se encontram fora da faixa que define os limites de precisão do ajuste apresentam ainda assim um desvio relativo aos dados ajustados inferior aqueles encontrados entre os dados teóricos obtidos por meio do código computacional ORIGEN2 e os valores experimentais encontrados para as amostras 739 a 747.

Já para o caso do nuclídeo ^{243}Am , observa-se com grande clareza a validade das equações aqui definidas.

Nas tabelas XXXIV e XXXVI são apresentados, de forma ilustrativa, uma comparação entre as diferentes técnicas usualmente utilizadas para determinação da concentração dos isótopos do elemento amerício^(*) e a técnica de correlação isotópica. A escolha de uma ou outra técnica irá depender fundamentalmente dos objetivos do trabalho a ser realizado e as facilidades disponíveis em cada laboratório. É importante apenas ressaltar que quaisquer que sejam os métodos analíticos adotados, dentro de um programa de caracterização isotópica, esses dados precisam ser necessariamente analisados den-

(*) Sarkis, J.E.S., Kammerichs, K.L., Wellum, R.; Koch, L. - ^{243}Am . Determination in Nuclear Fuels. Karlsruhe International Conference on Analytical Chemistry in Nuclear Technology. Karlsruhe, June 3-6, 1985. Federal Republic of Germany.

tro de um estudo mais amplo do inventário isotópico de cada amostra em estudo utilizando-se, inclusive, de ensaios redundantes para sua confirmação.

Tabela XXXVI. Comparação entre as diferentes técnicas para determinação da concentração de amerício em combustíveis nucleares irradiados

Parâmetros	DIEM	GAMA	(141)	
			ALFA	TCT*
Precisão (%)	0,5	1	3	≈ 10
Determinação ²⁴³ Am	1	-	3	2
Custos do Equipamento	3	2	1	-
Custos com condicionamento das amostras	3	1	2	-
Estudo de previsão de formação	-	-	-	2
Tempo gasto para análise	3	1	2	1

1 = MUITO BOM

2 = BOM

3 = RUIM

DIEM - técnica de diluição isotópica aplicada à espectrometria de massa

TCT - técnica de correlação isotópica

* - a partir de bancos de dados já existentes

Como escrito anteriormente, apesar do crescente interesse que os isótopos do elemento amerício vem despertando na comunidade científica não havia na literatura internacional, até o momento, um amplo estudo da taxa de formação de seus isótopos em relação aos dados de caracterização isotópica de combustíveis nucleares irradiados assim como a comparação dos dados experimentais com aqueles obtidos por meio de códigos computacionais. Com relação a correla-

ções isotópicas com estes nuclídeos, conseqüência natural deste tipo de estudo, os dados encontrados na literatura são escassos e imprecisos como ficou aqui demonstrado. Dessa forma este trabalho traz como sua principal contribuição a proposição da técnica de correlação isotópica tanto na determinação da concentração dos isótopos do elemento amerício em combustíveis nucleares irradiados como na avaliação da consistência dos dados experimentais demonstrando, quer pelo número de equações desenvolvidas, quer pela diversidade de seus termos, o potencial desta técnica no ciclo do combustível nuclear na previsão de formação dos nuclídeos aqui estudados.

Figura 63 - Previsão de Formação
 $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ via QUEIMA (AF%)

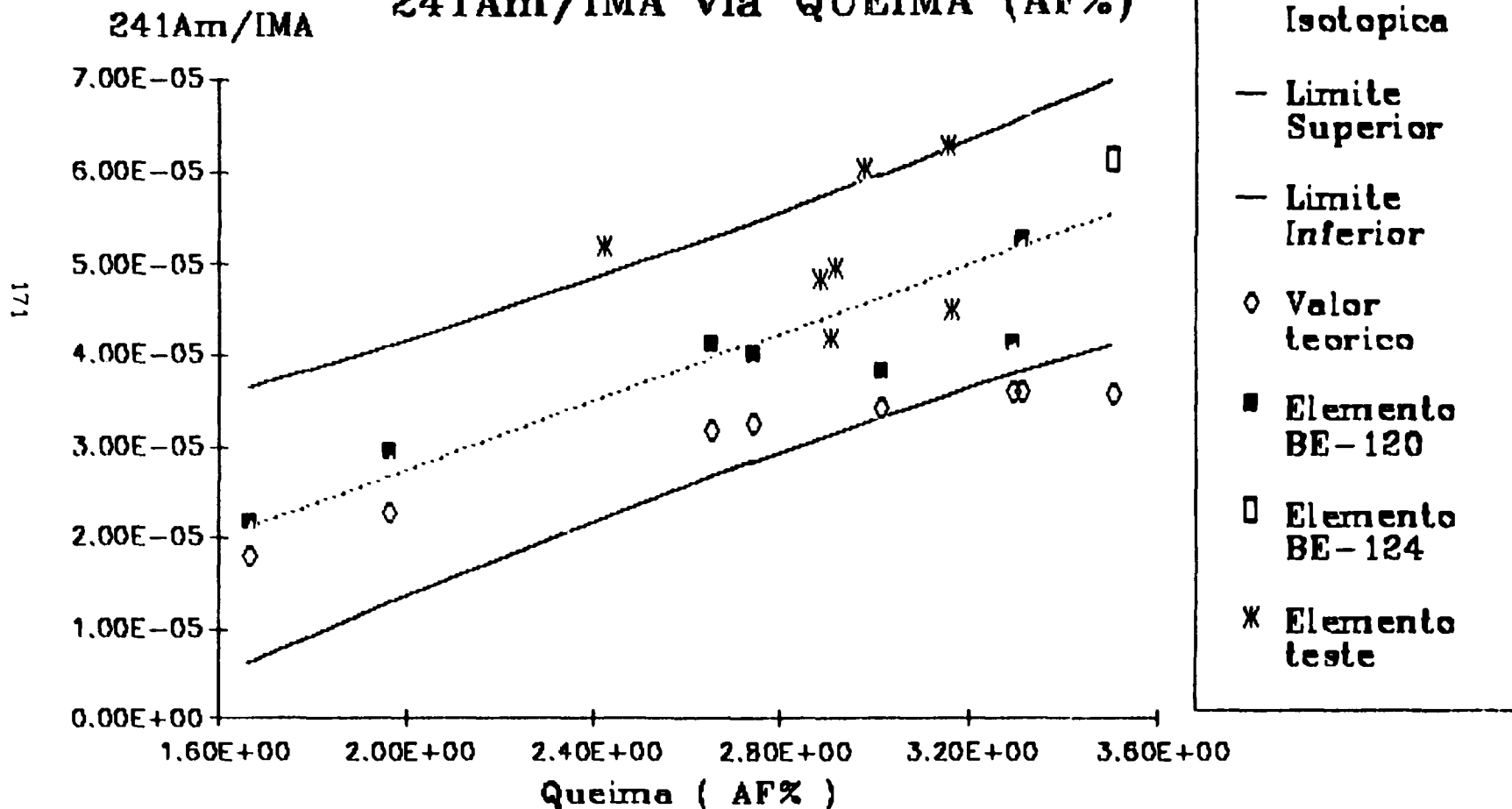


Figura 64 - Previsão de Formação
 $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ via QUEIMA (AF%)

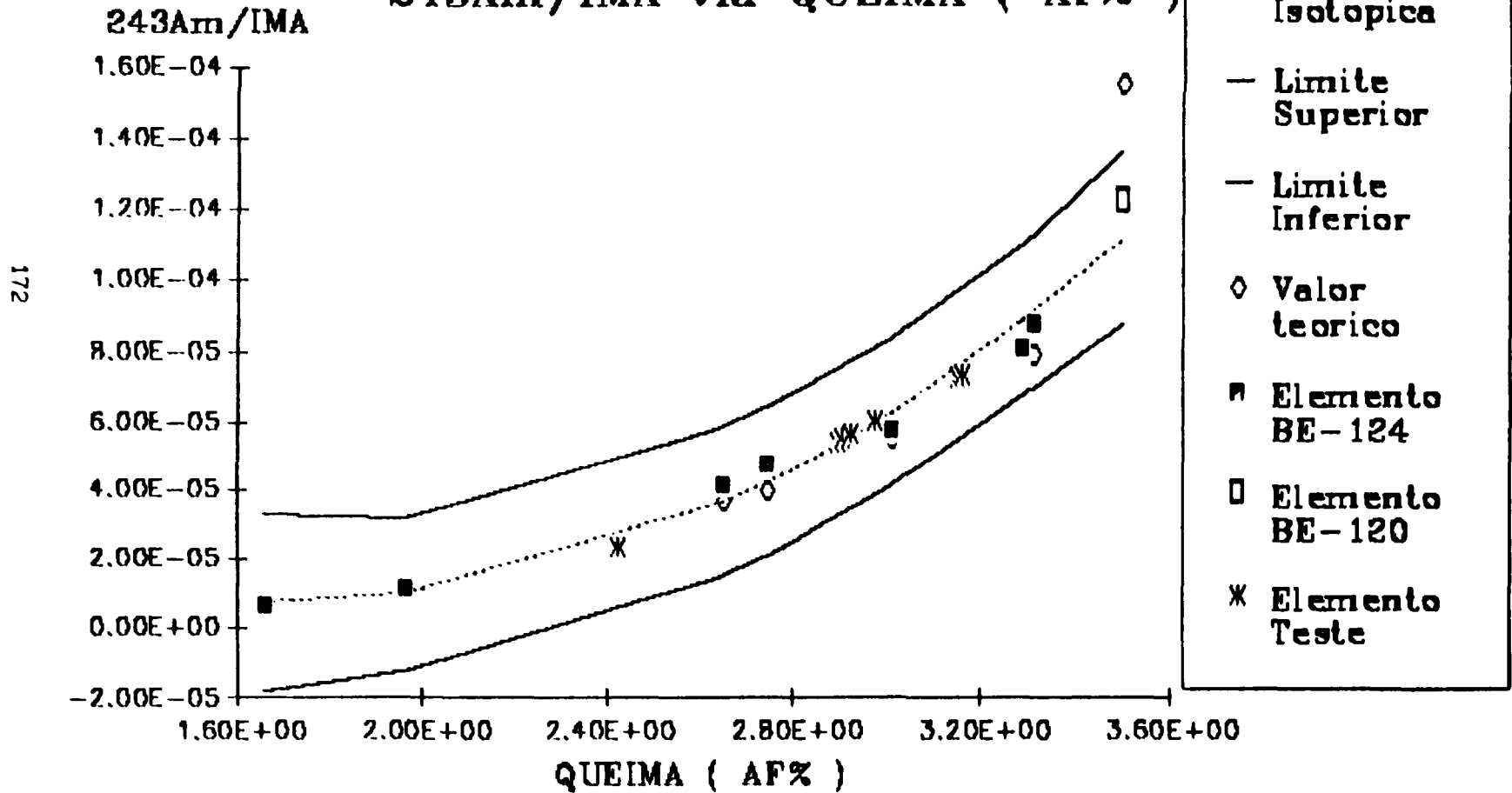


Figura 65 - Previsão de Formação
 $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{235}\text{U}/\text{IMA}$

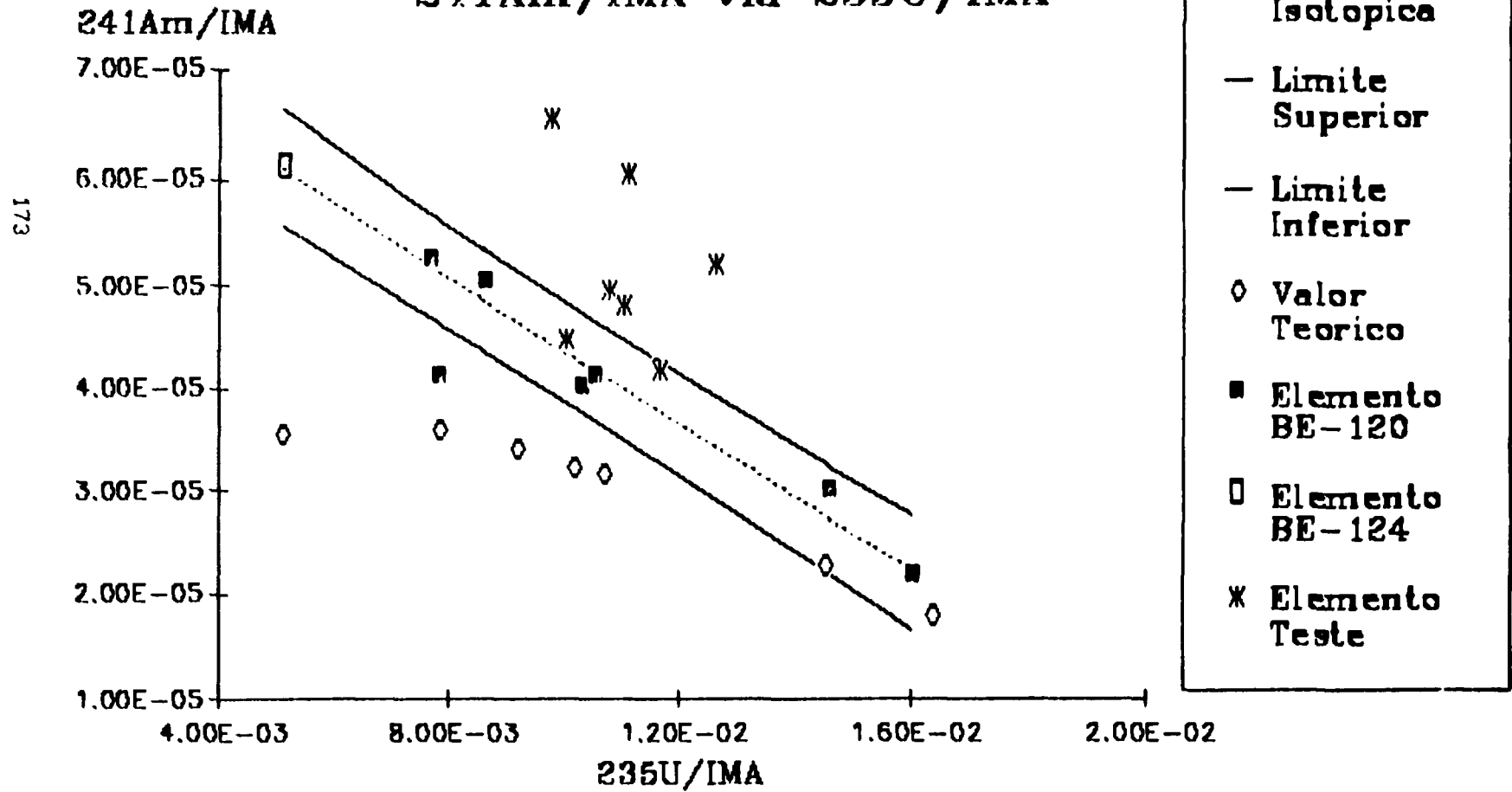


Figura 66 - Previsão de Formação
 $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{235}\text{U}/\text{IMA}$

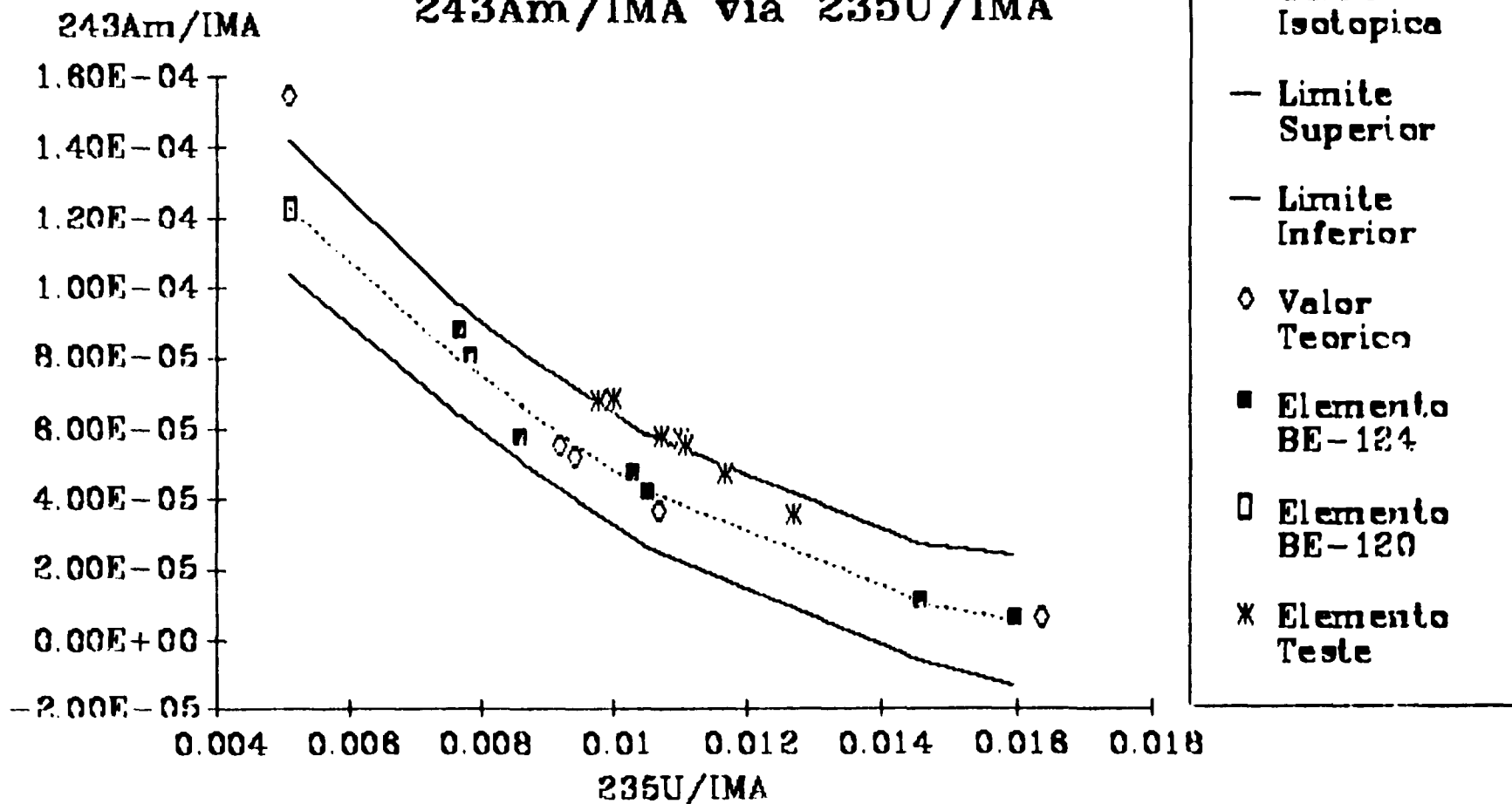


Figura 67 - Previsão de Formação
 $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$

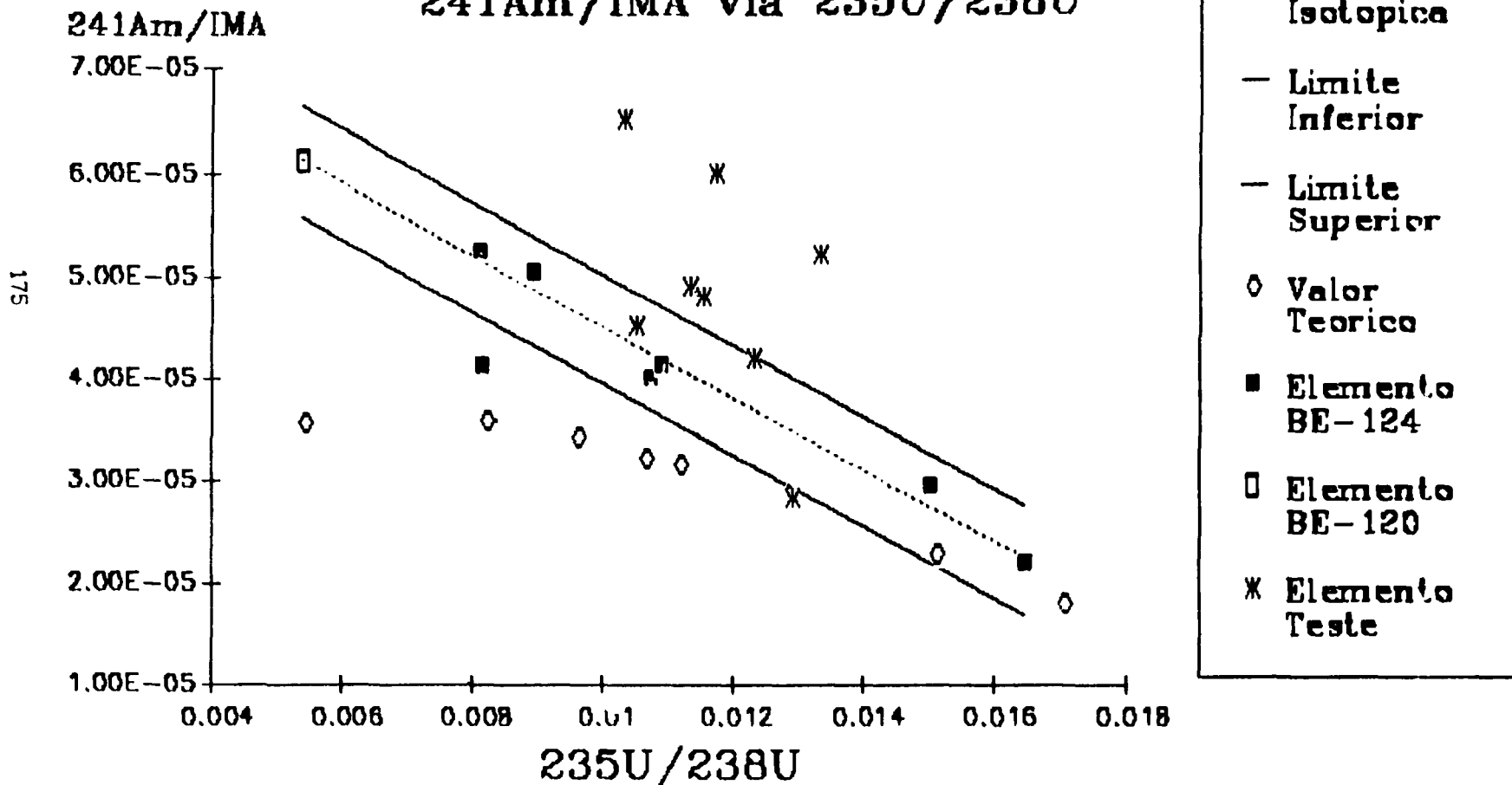


Figura 68 - Previsão de Formação
 $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$

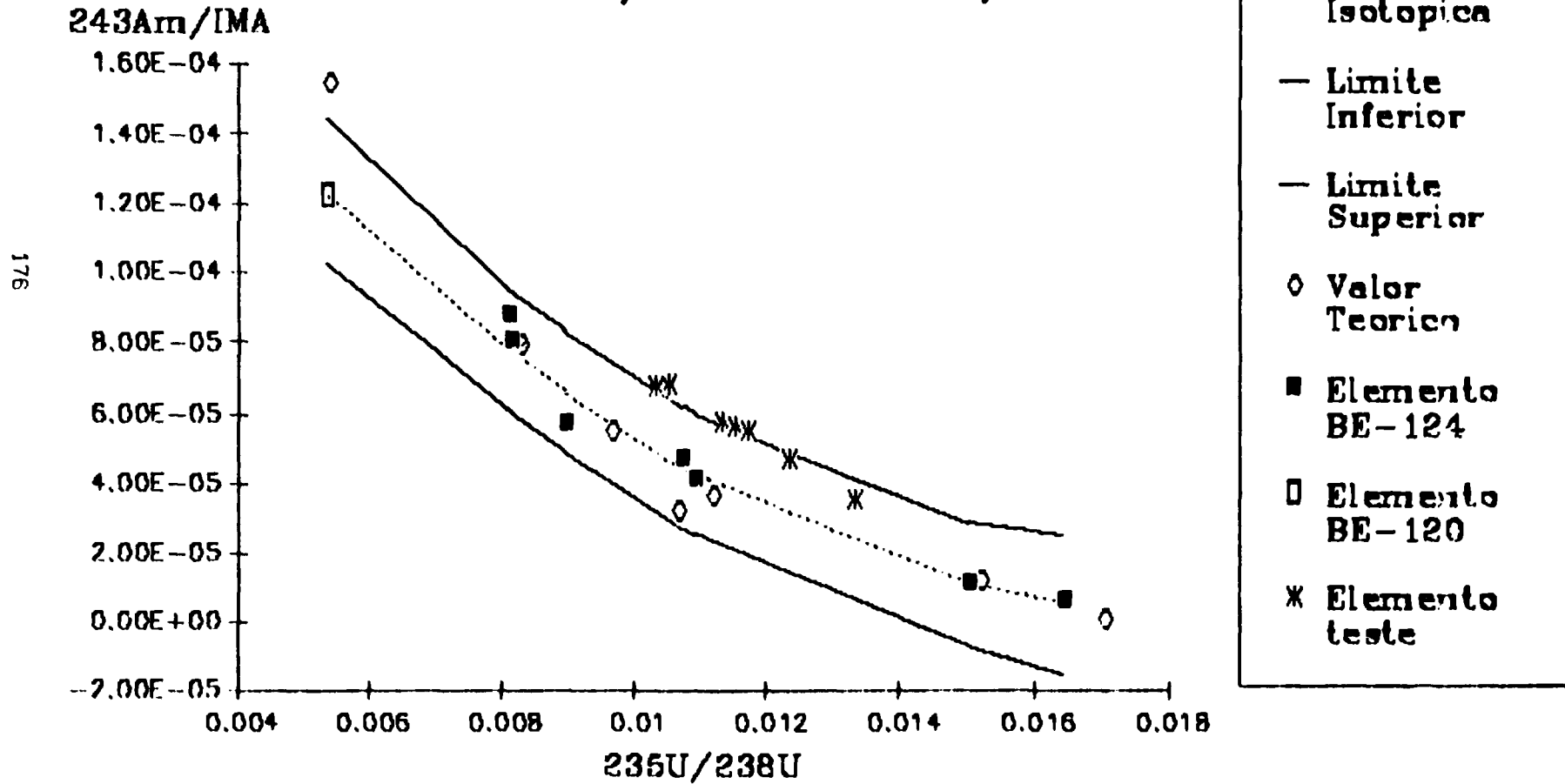


Figura 69 - Previsão de Formação
 $^{241}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$

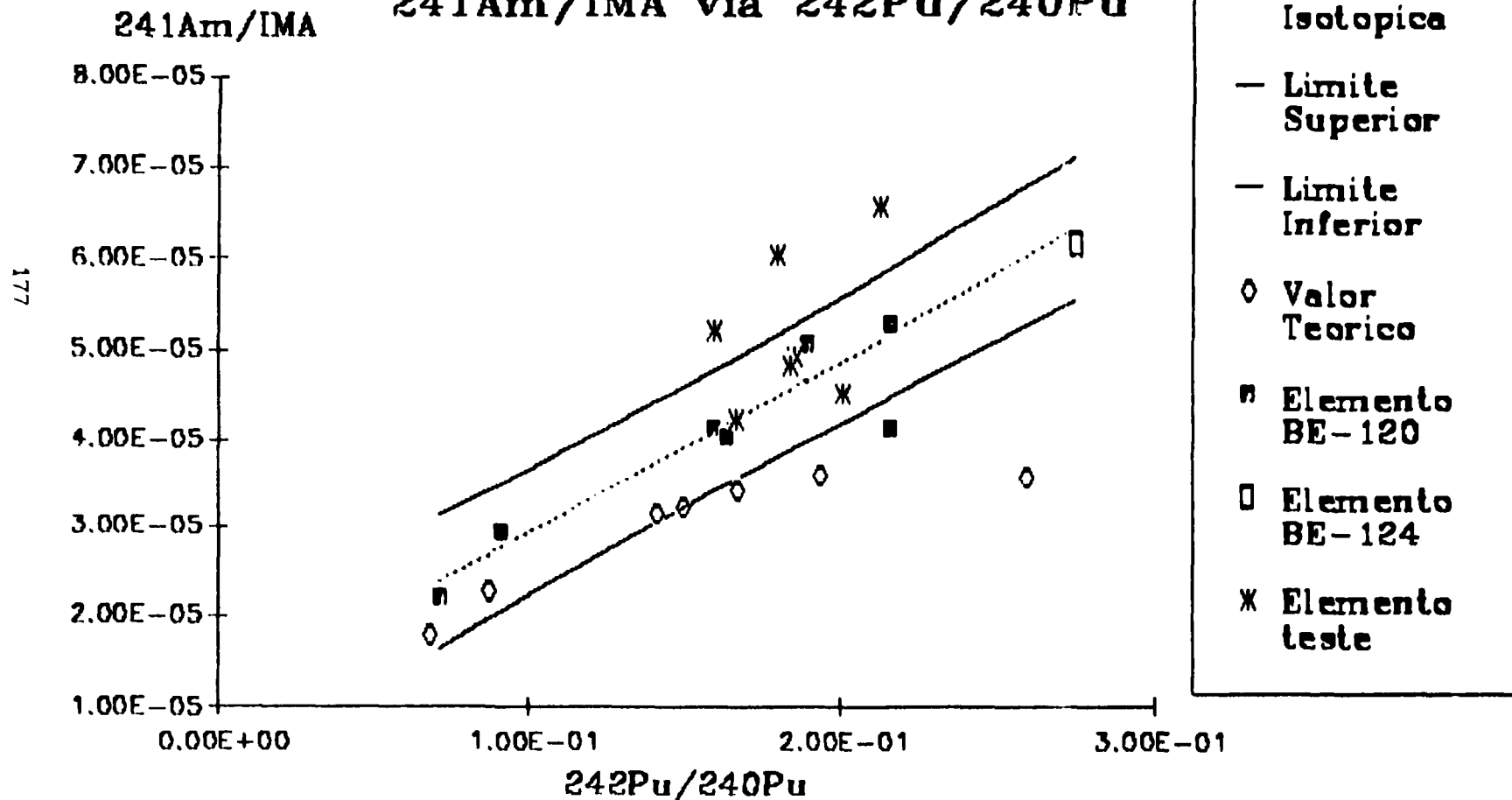
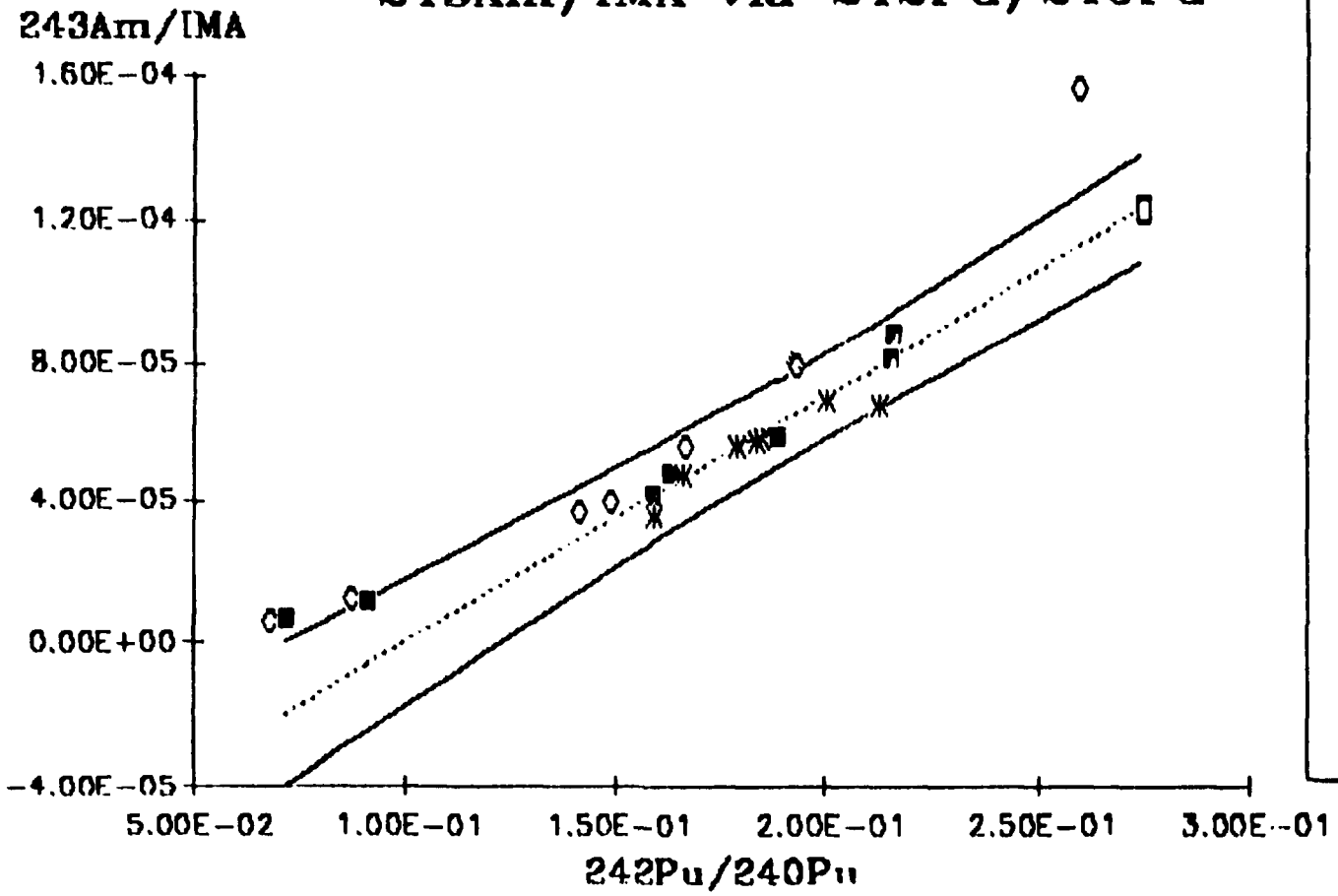


Figura 70 - Previsão de Formação
 $^{243}\text{Am}/\text{IMA}$ via $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$

178



- ⋯ Correlação Isotópica
- Limite Superior
- Limite Inferior
- ◊ Valor Teórico
- Elemento BE-124
- Elemento BE-120
- * Elemento Teste

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 ADILETTA, G.; BENATTI, N.; GUIDOTTI, R.; GUALANDI, M.P.; BRESSA NI, M.; PERONI, P.; D'ADAMO, D. Investigations on radioactive fission product correlations: gamma espectrumetry measurements on spent fuel assemblies of the Garagliano reactor. Ispra, Commission of the European Communities, 1974. (EUR 5289).
- 2 AIRES, M.; PATIGNY, P.; BOUCHARD, J.; GIACOMETTI, A; GIREND, P. Quatre ans d'experience d'utilisation des correlations isotopiques calcules dans l'etablissement du bilan d'entre a l'usine de la haque. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear safeguards technology: proceedings of a international symposium on ... held in Vienna, 8-12 November, 1982. Vienna, 1982, v. 1, p. 455-71.
- 3 AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS. Standard test method for atom percent fission in uranium fuel (radiochemical method). 1969. (ANSI/ASTM E 219-69). In: 1980 ANNUAL book of ASTM standards, part 45: Nuclear standards. p. 890-3.
- 4 AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS. Standard test method for atom percent fission in uranium and plutonium fuel (Neodymium-148 method). 1979. (ASTM-E-321-79). In: 1983 ANNUAL book of ASTM standards, section 12: Nuclear solar, and geothermal energy. v.12.02, on p. 140-51.
- 5 AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS. Standard test method for cesium-137 in irradiated nuclear fuels by high-resolution gamma-ray spectral analysis. 1979. (ASTM-E-692-79). In: 1983 ANNUAL book of ASTM standards, section 12: Nuclear, solar and geothermal energy. v. 12.02, p.398-401.
- 6 ARENZ, H.J.; KOCH, L.; SCHOOF, S. A comprehensive fuel nuclide analysis at the reprocessing input. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear safeguards technology: proceedings of an international symposium on... held in Vienna, 8-12 November, 1982. Vienna, 1983. p.409-20 (IAEA-SM-260/50).
- 7 ARIEMMA, A.; BRAMATI, L.; GALLIANI, M.; PAOLLETTI, G.M.; ZAFFI-RO, B.; CRICHIO, A.; KOCH, L. Experimental and theoretical determination of burnup and heavy isotope content in a fuel assembly irradiated in the Garagliano Boiling Water Reactor. Brussels, Comission of the European Communities, July, 1971. (EUR 4638).

- 8 ATALLA, L. Interpretaç o quantitativa de resultados experimen-
tais. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, maio 1978.
(IEA-Inf-60).
- 9 BARBERO, P.; BIDOGLIO, G.; BRESESTI, M.; CALDIROLI, A.; DANIE-
LE, F. Post irradiation analysis of the Gundremmingen BWR
spent fuel. Ispra, Commission of the European Communities,
1979. (EUR 6301).
- 10 BARBERO, P.; BIDOGLIO, G.; BRESESTI, M.; CHEVALIER, R.;
D'ADAMO, D. Post irradiation of the fuel discharged from the
Trino Vercellese reactor after the 2nd irradiation cycle.
Ispra, Commission of the European Communities, Mar. 1977.
(EUR 5605).
- 11 BARBERO, P.; BIDOGLIO, G.; CALDIROLI, A.; DANIELE, F.; DE
MEESTER, R. Post irradiation analysis of the Obrigheim PWR
spent fuel. Eur. Appl. Res. Rep. Nucl. Sci. Technol. Sect.,
2 (1):129-77, 1980.
- 12 BEETS, C. Joint safeguards experiment mol-IV (1972-1973) at
the eurochemic reprocessing plant. In: STANCHI, L., ed.
Isotopic correlation and its application to the nuclear fuel
cycle: symposium on... held in Stresa, 9-11 May, 1978.
Ispra, ESARDA, 1982 p. 143-48 (ESARDA-14).
- 13 BEETS, C.L.; BAIROT, H.; BEMELMANS, P.; FRANSEN, F. Application
of the CEN/SCK data bank to the reprocessed fuel. In:
STANCHI, L., ed. Isotopic correlation and its application to
the nuclear fuel cycle: symposium on... held in Stresa, 9-11
May, 1978. Ispra, ESARDA, 1982 p. 149-80 (ESARDA-14).
- 14 BEETS, C.; BEMELMANS, P.; FRANSSEN, F.; PETENYI, V. A portable
isotopic data bank. In: STANCHI, L., ed. Isotopic
correlation and its application to the nuclear fuel cycle:
symposium on... held in Stresa, 9-11 May, 1978. Ispra,
ESARDA, 1982 p.319-32 (ESARDA-14).
- 15 BELL, M.J. Origen - The ORNL isotope generation and depletion
code. Oak Ridge National Lab., May, 1973 (ORNL-4628).
- 16 BENISTAN, G.; BLANCHON, T.; LENAIL, B. Le programme français
concernant la partie terminale du cycle de combustible
nucleaire. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Back end
of the nuclear fuel cycle-strategies and options: proceedings
of a symposium on... held in Vienna, 11-15 May, 1987.
Vienna, 1987 p.3-14.

- 17 BERG, R.; FOGGI, C.; KOCH, L.; KRAEMER, R.; WOODMAN, F.J. Value and use of isotopic correlations in irradiated fuels. In: EUROPEAN SAFEGUARDS RESEARCH AND DEVELOPMENT ASSOCIATION. Practical applications of R&D in the field of safeguards: symposium on... held in Rome, 7-8 March, 1974. s.n.t. p.185-210.
- 18 BERG, R.; FUHSE, W.; GUPTA, D.L.; KOCH, L.; WIESE, H.W. Application of the isotopic correlation technique in fissile materials safeguards systems. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Dec. 1977, (KFK-2408, EUR-5752).
- 19 BEYRICH, W.; DROSSELMEYER, E. The Interlaboratory Experiment IDA-72 on mass spectrometric isotope dilution, V.1. Karlsruhe, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1975 (KFK-1905/I)
- 20 BEYRICH, W.; GOLLY, W.; SPANNAGEL, G. The IDA-80 measurement evaluation programme on mass spectrometric isotopic dilution analysis of uranium and plutonium, v.3: compilation of evaluation data. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Apr. 1985. (KFK-3762, EUR-7992).
- 21 BEYRICH, W.; GOLLY, W.; SPANNAGEL, G.; DE BIÈVRE, P.; WOLTERS, W. The IDA-80 measurement evaluation programme on mass spectrometric isotope dilution analysis of uranium and plutonium, v.1: design and results. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Dec. 1984 (KFK-3760, EUR 7990).
- 22 BEYRICH, W.; SPANNAGEL, G. The AS-76 interlaboratory experiment on the alpha spectrometric determination of Pu-238 Part 1: performance and results. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Dec. 1979 (KFK-2860, EUR-6400).
- 23 BOKELUND, H. Determination of concentrations of uranium and plutonium by isotopic dilution mass spectrometry. Mol. Belgium, European Company for the Chemical Processing of Irradiated Fuels, Sept. 1967 (ETR-217).
- 24 BORTELS, G.; BROOthaerts, J.; DE BIÈVRE, P.; GALLET, M.; WOLTERS, W.; GLOVER, K.M.; KING, M. The AS-76 interlaboratory experiment on the alpha spectrometric determination of Pu-238. Part III: preparation and characterization of samples. Karlsruhe (Germany, F.R.), Kernforschungszentrum Karlsruhe G.m.b.H., Dec. 1979 (KFK-2862, EUR-6402).
- 25 BRAND, P.; CRICCHIO, A.; KOCH, L. Feasibility study of the use of radioactive fission product correlation of burnup and heavy isotopes composition of BWR dodewaard fuel. Karlsruhe, Commission of the European Communities, June 1974 (EUR-5141).

- 26 BRANDALISE, B.; COTTONE, G.; CRICHIO, A.; GERIN, F.; KOCH, L. Automatic evaluation of isotope analysis of nuclear fuels including isotope dilution, mass spectrometry, alpha spectrometry and isotope correlation technique with an appropriate databank. Karlsruhe, Commission of the European Communities, 1977. (EUR-5669).
- 27 BRANDALISE, B.; KOCH, L.; RIJKEBOER, C.; ROMKOWSKI, D. The application of isotope correlations in verifying automatic analyses of irradiated fuels. In: STANCHI, L., ed. Isotopic correlation and its application to the nuclear fuel cycle: symposium on... held in Stresa, 9-11 May, 1978. Ispra, ESARDA, 1982, p.181-6. (ESARDA-14).
- 28 BREEN, R.J. Elimination of actinides with LMFBR recycle. Trans. Am. Nucl. Soc. 21:262-3, 1975.
- 29 BRESESTI, M. Radioactive waste management: outline of the research programme of the Commission of European Communities In: HAGE, W. ed. Nuclear transmutation of actinides: proceedings of 2nd technical meeting on the...held in Ispra, 21-24 April, 1980. Brussels, 1980 p.5-13.
- 30 BRESESTI, A.M.; BRESESTI, M.; CUYPERS, M.; D'ADAMO, D.; LEZZOLI, L.; BANNEL, R.; GIURIATO, A. Investigations on radioactive fission product correlations: gamma spectrometry measurements on spent fuel assemblies discharged from the Trino Vercellese reactor at the end of the 2nd irradiation cycle. Ispra, Commission of the European Communities, 1975 (EUR-5334).
- 31 BRESESTI, M. & PERONI, P. Gamma measurements on Trino fuel assemblies. In: Beets, C., ed. Contributions to the joint safeguards experiment Mol IV at the eurochemic reprocessing plant, Mol-Belgium. Mol-Belgium, Centre d'Etude de l'Energie Nucleaire, June 1973 (BLG-486).
- 32 BUSSAB, W. & SEVERO, J.S.C. Tábuas estatísticas de matemática. s.l., Brasiliense, 1980.
- 33 CARCHON, R.; SMAERS, G.; VERRECHIA, G.P.D.; ARLT, R.; STOYANOVA, I.; BOSLER, G.E.; SATINET, J. NDA measurements on spent fuel assemblies at tihange 1 by means of the ion 1/fork. Mol, Belgium, Centre d'Etude de l'Energie Nucleaire, June 1986 (BLG-589).
- 34 CARTER, N.E.; CHRISTENSEN, D.E.; PREZBINDOWSKI, D.L. Use of isotopic composition data to improve reactor calculational techniques. Richland, WA, Battelle Pacific Northwest Labs., Mar. 1972 (BNWL-SA-4275).

- 35 CECILLE, L.; HAGE, W.; HETTINGER, H.; MANNONE, F.; MOUSTY, F.; SCHMIDT, E.M.; SOLA, A. Nuclear transmutation of actinides other than fuel as a radioactive waste management scheme. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear power and its fuel cycle: proceedings of an international conference on... held in Salzburg, 2-13 May, 1977, v.4: radioactivity management. Vienna, 1977 p. 513-28 (IAEA-CN-36/366).
- 36 CHOPPIN, G.R.; CHOPPORIAN, J.A. Complexes of the lanthanide elements with α -Hydroxy Carboxylate ligands. J. Inorg. Nucl. Chem. 22: 99-113, 1961.
- 37 CHOPPIN, G.R.; HARVEY, B.G.; THOMPSON, S.G. A new eluant for the separation of the actinide elements. J. Inorg. Nucl. Chem. 2:66. 1956.
- 38 CHRISTENSEN, D.E. Application of isotopic correlation to verify the plutonium content of Humboldt Bay spent fuel. Richland, WA., Battelle Pacific Northwest Labs., Mar., 1972 (BNWL-SA-4274).
- 39 CHRISTENSEN, D.E. & SCHNEIDER, R.A. Consistency evaluation of accountability data for a chemical processing plant. Richland, WA, Battelle Pacific Northwest Labs., Nov. 1969 (BNWL-CC-234 6-REV).
- 40 CHRISTENSEN, D.E. & SCHNEIDER, R.A. Summary of experience with heavy-element isotopic correlations. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguarding nuclear materials: proceedings of a symposium on the... held in Vienna, 20-24 October, 1975. Vienna, 1976 v.2, p.377-93 (IAEA-SM-201/10).
- 41 CHRISTENSEN, D.E.; SCHNEIDER, R.A.; STEWART, K.B. Summary of experience with the use isotopic correlation safeguards technique. Richland, WA, Battelle Pacific Northwest Labs., Mar., 1972 (BNWL-SA-4273).
- 42 CHRISTENSEN, D.E.; EWING, D.A.; GAINES JR., E.P.; KRAMER, R.; SCHNEIDER, R.A.; STIEFF, C.R.; WINTER, H. A summary results obtained from the first MIST experiment at nuclear fuel services. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Progress in safeguards techniques: proceedings of a symposium on... held in Karlsruhe, 6-10 July, 1970. Vienna, 1970 v.1, p.563-82 (IAEA-SM-133/54).
- 43 CHRISTENSEN, D.E.; SCHNEIDER, R.A.; REPPOND, E.B. Application of heavy isotopic correlation safeguards techniques to SENA, DOUGLAS POINT 1 and TRINO reactor fuels. In: Beets, C., ed. Contributions to the joint safeguards experiment Mol IV at the eurochemic reprocessing plant, Mol-Belgium. Mol, Belgium,, Centre d'Etude de l'Energie Nucleaire, June 1973 (BLG-486).

- 44 CLAIRBORNE, H.C. Neutron induced transmutation of high-level radioactive waste. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Laboratory, Dec. 1972 (ORNL-TM-3364).
- 45 COCCHI, A.; ZAFFIRO, B.; VENCHIARUTTI, R. Potential application of the fuel isotopic correlation to the fuel cycle. In: STANCHI, L. ed. Isotopic correlation and its applications to the nuclear fuel cycle: symposium on... held in Stresa, 6-11 May, 1978. Ispra, ESARDA, 1982, p.207-14 (ESARDA-14).
- 46 COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR Diretrizes básicas de radioproteção. Rio de Janeiro, Jul. 19, 1988 (CNEN-NE-3.01).
- 47 COMMISSION OF THE EUROPEAN COMMUNITIES. ISOCORR: on information system to store analytical data measured in irradiated fuel samples and to make isotopic correlations. Luxembourg, 1985 (EUR-9709).
- 48 COMMISSION OF THE EUROPEAN COMMUNITIES. Plutonium fuels and actinide research: programme progress report July-December 1978. Karlsruhe, Germany, Joint Research Centre, s.d. (Confidential communication category 1.2, nr. 3582).
- 49 COOK, R.D. Influential observations in linear regression. J. Am. Stat. Assoc., 74:169-74, 1979.
- 50 CROFF, A.G. Comparison of experimentally determined spent fuel compositions with ORIGEN2 calculations. Trans. Am. Nucl. Soc., 39:215-17, 1981.
- 51 CROFF, A.G. ORIGEN2 - a revised and update version of the Oak Ridge isotope generation and depletion code. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., July, 1980 (ORNL-5621).
- 52 CROFF, A.G. ORIGEN2: a revised and update version of origen. Trans. Am. Nuclear Soc., 34:349-50, 1980.
- 53 CROFF, A.G. ORIGEN2: a versatile computer code for calculating the nuclide compositions and characteristics of nuclear materials. Nucl. Technol., 62(9):335-52, 1983.
- 54 CUNHA, I.I.L. Aplicação dos métodos radioquímico e de espectrometria de raios gama direto para determinação da queima do óxido de urânio irradiado. São Paulo, 1979 (Dissertação de Mestrado, Instituto de Química, Universidade de São Paulo).
- 55 COOPERS, M. Activities of the ESARDA working groups and their results. In: INSTITUTE OF NUCLEAR MATERIALS MANAGEMENT. Nuclear materials management: 20th annual meeting on... held in Albuquerque, 16-18 July, 1979. s.n.t. p.29-36.

- 56 DANIEL, C. & WOOD, F. Fitting equations to data. New York, N.Y., John Wiley, 1980.
- 57 DE BIÈVRE, P. Accurate isotope ratio mass spectrometry: some problems and possibilities. In: Daly, N.R., ed. Advances in mass spectroscopy, proceed of the 7th Conference on ... held in Florence 30 Aug. - 3 Sept., 1976. Vol. 7A, p. 395-447.
- 58 DE BIÈVRE, P.; BAUMAN, S.; GORGENYI, T.; KUHN, E.; DERON, S.; DALTON, J.; PIERRIN, R.E. 1987 Target values for uncertainty components in fissile isotope and element assay. J. Inst. Nucl. Mater. Managem., 15(4):99-104, 1987.
- 59 DE BIÈVRE, P.; GALLET, M.; HENDRICKY, F.; LYCKE, W.; WOLTERS, W.H.; EBERHARDT, K.R.; FASSET, J.D. The IDA-80 measurement evaluation programme on mass spectrometric isotope dilution analysis of uranium and plutonium characterization and transport of the test samples. Karlsruhe (Germany, F.R.), Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Dec. 1984.
- 60 ENDF/B - IV Library tapes 401-411 and 414-419, available from the national neutron cross section center. Upton, Brookhaven National Lab., Dec. 1974 apud CROFF, A.G. ORIGEN2: a revised and update version of origem. Trans. Am. Nuclear Soc., 34: 349-50, 1980.
- 61 ENDF/B - V Library tapes 514-521 and 522, available from the national neutron cross section center. Upton, Brookhaven National Lab., July 1979 apud CROFF, A.G. ORIGEN2: a revised and update version of origem. Trans. Am. Nuclear Soc., 34: 349-50, 1980.
- 62 ERNSTBERGER, R.; WELLUN, R.; KOCH, L. Utilization des correlations isotopiques dans la gestion des materiaux nucleaires et des dechets radioactifs. In: STANCHI, L., ed. Isotopic correlation and its applications to the nuclear fuel cycle: symposium on... held in Stresa, 9-11 May, 1978. Ispra, ESARDA, 1982 p.251-68 (ESARDA-14).
- 63 EZURE, H. Validation of ORIGEN computer code by measurements on nuclear fuels of JPDR-1. J. Nucl. Sci. Technol., 26(8): 777-86, 1989.
- 64 FASSET, J.D. & PAULSEN, P.J. Isotope dilution mass spectrometry for accurate elemental analysis. Anal. Chem., 61(10): 643A -49A, 1989.
- 65 FINNIGAN, MAT. Finnigan mat operative manual 16100 mass spectrometer 260. (Catálogo comercial).

- 66 FISER, U. & WIESE, W. Verbesserte konsistente berechnung des nuklearen inventars abgebrannter DWR-Brennstoff auf der basis von zell-abbrand-verfahren mit Korigen. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Jan. 1983 (KFK-3014).
- 67 FOGGI, C. Activities of the European safeguards research and development association (ESARDA) in the field of isotopic correlations. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear material safeguards: proceedings of a symposium on... held in Vienna, 2-6 October, 1978. Vienna, 1979 v.2, p.767-76 (IAEA-SM-231/26).
- 68 FOGGI, C. & FRANDOLLI, P. Correlations between heavy isotopes in irradiated fuels of light water power reactors. Ispra, Commission of the European Communities, Mar. 1974 (EUR-5071)
- 69 FOGGI, C. & FRENQUELUCCI, F. Correlations between heavy isotopes and radioactive fission products in LWR fuels. In: STANCHI, L., ed. Isotopic correlation and its application to the nuclear fuel cycle: symposium on... held in Stresa, 9-11 May, 1978. Ispra, ESARDA, 1982 p.23-40 (ESARDA-14).
- 70 FOGGI, C. & FRENQUELUCCI, F. Fission product nuclear data requirements for the calculations based on Cs and Eu isotopes in LWR irradiated fuels. In: STANCHI, L. ed. Isotopic correlation and its application to the nuclear fuel cycle: symposium on... held in Stresa, 9-11 May, 1978. Ispra, ESARDA, 1982 p. 41-54 (ESARDA-14).
- 71 FOGGI, C & PAGLIARI, V. The ESARDA data bank of isotopic compositions of irradiated nuclear fuels. In: STANCHI, L., ed. Isotopic correlation and its applications to the nuclear fuel cycle: symposium on... held in Stresa, 9-11 May 1978. Ispra, ESARDA, 1982 p.333-45 (ESARDA-14).
- 72 FOGGI, C. & ZIJP, W.L. Data treatment for the isotopic correlation technique. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguarding nuclear materials. Vienna, 1976, v.2, p.405-24 (IAEA-SM-201/39).
- 73 FOGGI, C.; FRENQUELUCCI, F.; PERDIZA, G. Isotope correlation based on fission product nuclides in LWR fuels: a theoretical evaluation. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguarding nuclear materials: proceedings of a symposium on the... held in Vienna, 20-24 October, 1975. Vienna, 1976, v.2, p.425-38 (IAEA -SM-201/44).
- 74 FOWLER, T.B.; VONDY, D.R.; CUNNINGHAM, G.W. Nuclear reactor core analysis code: citation. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., July 1971 (ORNL/TM-2496 REV.2) apud CROFF, A.G. ORIGEN2: a revised and update version of origem. Trans.Am.Nucl.Soc., 34:349-50, 1980.

- 75 FROHNER, F.H.; GOEL, B.; FISHER, U.; JAHN, H. Neutron cross section evaluation for ^{241}Am , ^{242}Am , ^{243}Am and ^{244}Cm . In: BOCKHOFF, K.H., ed. Nuclear data for Science and Technology. Brussels, ECSC, 1983, p.211-4.
- 76 FUDGE, A.J.; WOOD, A.J.; BANHAN, M.F. The determination of burnup of nuclear fuel specimens using stable fission products isotopes and isotope dilution. In Analytical Chemistry in Nuclear Reactor Technology: Fifth Conference, Gallinburg, Tenn., October 10-12, 1961. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Laboratory, Jun 1962, p. 152-165 (TID-7629).
- 77 FUDGE, A.J. & FOSTER, E. Procedures for the determination of burnup by chemical methods and nuclear data requirements in burnup calculations. In: HURRELL, M.L. ed. Chemical Nuclear Data. Measurements and applications. International conference on... held in Canterbury, 20-22 September, 1971. London, Institution of Civil Engineers, 1971, p.65-74.
- 78 GANSER, B. Analyse und ein gewinnungsverfahren des americiums in Kernbrennstoffzyklus der druckwasser reactors. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Juli 1982 (KFK-3380).
- 79 GIACOMETTI, A.; GIRIEUD, R.; ARIES, M. Calculated ICT improvements: consequences of five years of industrial implementation perspective of development. In: STANCHI, L. Safeguards and nuclear material management: proceedings of the 6th annual symposium on... held in Venice, 14-18 May, 1984. Ispra, Commission of the European Communities, s.d., p.457-9 (ESARDA-17).
- 80 GIACOMETTI, A. The ESARDA exercise to test the performance of ICT procedures. In: STANCHI, L. ed. Safeguards and nuclear material management: proceedings of the 6th annual symposium on... held in Venice, 14-18 May, 1984. Ispra, Commission on the European Communities, 1984, p.213-22 (ESARDA-17).
- 81 GOEL, B. & FISCHER U. A critical review of resonance integrals and post irradiation fuel analysis for important isotopes of Am and Cm. In: BOCKHOFF, K.H., ed. Nuclear data for science and technology. Brussels, ECSR, 1983, P. 196-201.
- 82 GRABER, H.; HOFMANN, G.; BERNDT, R. Correlation for burnup with the $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ and $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ concentration ratios for irradiated fuel. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear safeguards technology: proceedings of an international symposium on... held in Vienna, 8-12 Nov., 1982. Vienna 1983, v.2, p.443-53 (IAEA-SM-260/84).

- 83 GREENE, N.M.; LUCIUS, J.L.; PETRIE, L.M.; FORD III, W.E.; WHITE, J.E.; WRIGHT, R.Q. AMPX: a modular code system for generating complet multigroup neutro-gamma libraries from ENDF/B. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., Mar 1976 (ORNL/TM-3706) apud CROFF, A.G. ORIGEN2: a revised and update version of origen. Trans. Am. Nucle. Soc., 34:349-50, 1980.
- 84 GUALAND, P.M.; PERONI, P.; BRESESTI, M.; CRYSPEERS, M.; D'ADAMO, D.; LEZZOLI, L. Determination of burnup and plutonium content in irradiated fuels by gamma-spectrometry measurements of radioactive fission products. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguarding of nuclear materials: proceedings of a symposium on the... held in Vienna, 20-24 October, 1975. Vienna, 1976, v.2., p.613-24 (IAEA-SM-20113).
- 85 GUPTA, D. Isotopic correlation for accounting and control of nuclear materials in a fuel cycle review paper. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Sept. 1976 (KFK-2400).
- 86 HERMANN, A. & BERNDT, R. New possibilities in isotope correlation analysis of spent nuclear fuel. J. Radioanal. Chem., 80(1-2):189-98, 1983.
- 87 HERMANN, A. & MEHNER, H.C. Investigations into the possibilities of determine uranium and plutonium content of VVER type fuel for safeguards in connection with isotope correlations technique. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear material safeguards: proceedings of a symposium on... held in Vienna, 2-6 October, 1978. Vienna, 1979, v.2, p.1-18 (IAEA-SM-231/20).
- 88 HOFMANN, G. & GRABER, H. Die korrelationstechnik ein zerstörungsfreies verfahren zur kontrolle bestrahlter brennstoffkasseten. Rossendorf, Zentralinstitute fuer Kernforschung, Sept. 1980 (ZKF-423).
- 89 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Report of the working group on the use of isotopic correlation data in safeguards. Vienna, 1972 (IAEA-PL-488).
- 90 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Methods of using isotopic composition data. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. IAEA safeguards technical manual. Vienna, 1975, cap.7, p.163-219 (IAEA-174).
- 91 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Reprocessing, plutonium handling, recycle: report of INFCE working group 4. Vienna, 1980.
- 92 INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. Limits for intakes of radionuclides by workers. Oxford, N.Y., July, 1978. (ICRP-30, suppl. Pt. I).

- 93 JOHNSON, K.D.B. & KEEN, N.J. Is the nuclear transmutation of the actinides justifiable? In: HAGE, W., ed. Nuclear transmutation of actinides: proceedings of the 2th technical meeting on the... held in Ispra, 21-24 April, 1980. Brussels, 1980, p. 493-98.
- 94 KELLER, C. The chemistry of the transuranium elements. Weinheim, Verlag Chemie GmbH, 1971. V. 3 (Kernchemie in Einzeldarstellung).
- 95 KISER, R.W. Introduction to mass spectrometry and its applications. Englewood cliffs, N.J., Prentice-Hall, 1965.
- 96 KOCH, L. Bestimmung der isotopenzusammensetzung von uran und plutonium. Radiochim. Acta, 12:160-61, 1969.
- 97 KOCH, L. Formation and recycling of minor actinides in nuclear power stations. In: FREEMAN, A.J. & KELLER, C., eds. Handbook on the physics and chemistry of the actinides Amsterdam, Elsevier, 1986, cap.9, p.457-90.
- 98 KOCH, L. Minor actinide transmutation: a waste management option. J. Less-Common Met., 122:371-82, 1986.
- 99 KOCH, L. New procedures to verify the input analysis of nuclear fuel reprocessing. In: EBERT, K.; AMMON, R. von, eds. Safety of the nuclear fuel cycle: ... on the... held in Obertraun, 15-21 March, 1987. s.l., 1989, v.4, p.121-35.
- 100 KOCH, L. & BRESESTI, M. Improved method for the verification of the reprocessing input analysis. J.Inst.Nucl.Mater. Manage. 4(3):498-507, 1975.
- 101 KOCH, L. & GEERLINGS, M.W. Bestimmung der konzentration und isotopenhaufgkeit von americium und curium. Radiochim. Acta 11:49-52, 1969.
- 102 KOCH, L. & SCHOOF, S., eds. ESARDA working group on isotopic correlations and reprocessing input analysis. The isotope correlation experiment. Rome, European Safeguards Research Development Association, 1981 (ESARDA 2/81, EUR-7766EN, KFK-3337).
- 103 KOCH, L. & WELLUN, R. Actinide evolution in LWR an FBR. In: HAGE, W. ed. Nuclear transmutation of actinides: proceedings of the 2nd technical meeting on... held in ispra, 21-24 April, 1980. Brussels, 1980, p.153-60 (EUR-6929).

- 104 KOCH, L. & WELLUN, R. Burnup determination by the isotope correlation technique (summary). In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Burnup determination of water reactor fuel: proceedings of a technical committee meeting, held in Karlsruhe, 13-16 June, 1988. Vienna, 1989, p.70-72 (IWGFPT-31).
- 105 KOCH, L.; BRAND, P.; CRICCHIO, H.; SOMMER, D.; ZAFFIRO, B. Isotope correlations: a new tool in fuel management. In: EUROPEAN nuclear conference: proceedings of the... held in Paris. 1975. Oxford, Pergamon, 1976, p. 57-65.
- 106 KOCH, L.; BRAUN, H.; CRICCHIO, A. Some correlations between isotopes of Xe, Kr, U, Pu and burnup parameters for various thermal and fast reactors. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Progress in safeguards techniques: proceedings of a symposium on... held in Karlsruhe, 6-10 July, 1970. Vienna, 1970. V.1, p.539-44 (IAEA-SM-133/25).
- 107 KOCH, L.; COTTONE, G.; CRICCHIO, A. Accumulation of transplutonium elements in wastes and possibilities for their nuclear incineration. In: MULLER, W. & LINDNER, R. eds. Transplutonium element symposium: 4th international... held in Baden Baden, 13-17 September, 1975. Amsterdam, North-Holland Publ., 1976, p.459-64.
- 108 KOCH, L.; COTTONE, G.; GEERLINGS, M.W. ^{148}Nd analyse zur abbrandbestimmung von Kernbrennstoffen. Radiochim. Acta, 10: 122-4, 1968.
- 109 KOCH, L.; CRICCHIO, A.; GERIN, F. Improved post irradiation in analysis for burnup and heavy isotope content. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear fuel cycle proceedings: methods in... held in Vienna, 29 Nov.-3 Dec., 1972. Vienna, 1972, p. 523-36.
- 110 KOCH, L.; ERNSTBEGER, R.; KAMMERICKS, K. Formation on minor actinides and requirements of nuclear incineration. In: COMMISSION OF THE EUROPEAN COMMUNITIES. Nuclear transmutation of actinides: proceedings of the technical meeting on the... held in Ispra, 16-18 March, 1977. p.247-61 (EUR-5897).
- 111 KOCH, L.; GERIN, F.; DE MEESTER, R. Fission gas correlations. In: Beets, C., ed. Contributions to the joint safeguards experiment Mol IV at the eurochemic reprocessing plant, Mol Belgium. Mol, Belgium, Centre d'Etude de l'Energie Nucleaire, June, 1973 (BLG-486).

- 112 KOCH, L.; HOCHSTEIN, P.; POHL, P.; WOLFF, U. Nachbestrahlungsuntersuchungen eines Brennelementbündels des WAK reactors und Vergleich mit Rechnungen. Karlsruhe, Kommission der Europäischen Gemeinschaften, 1971 (EUR-4690).
- 113 KOMMISSION DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN. Kernkraftwerk Obrigheim: Jahresbericht 1973. Brussels, Dec. 1974 (EUR-5315d).
- 114 KRAEMER, R. & BEYRICH, W. eds. Joint integral safeguards experiment (JEX-70) at the Eurochemic reprocessing plant, Mol. Belgium, January 1970-July 1971. Grenoble, European Atomic Energy Community, s.d. (EUR-4576, KFK-1100).
- 115 KRTEL, J.; SUS, F.; BULOVIC, V.; KLOSOVA, E.; MAKSIMOVIC, Z. Correlation of the uranium and plutonium isotopic compositions with burnup for natural uranium fuel. Radiochem. Radioanal. Letters. 36(6):369-74, 1978.
- 116 KRTEL, J.; SUS, F.; BULOVIC, V.; KLOSOVA, E.; VECERNIK, J.; KUKUVIC, V.; MAKSIMOVIC, Z. The use of isotopic correlation for the determination of the components of irradiated fuel. Part I. Heavy atom isotope correlation for a natural uranium nuclear fuel. Radiochem. Radioanal. Lett., 49(1): 49-58, 1981.
- 117 LISMAN, F.L.; MAECK, W.J.; REIN, J.E. Determination of nuclear fuel burnup from fission product analysis. Nucl. Sci.Eng. 42:215-7, 1970.
- 118 MACKENZIE, D. Fast breeders sap life from radioactive elements. New Sci., 117(1605):25, 1988.
- 119 MAECK, W.J. Proposed determination of nuclear fuel burnup based on the ratio of two stable fission products of the same nuclide. Idaho Falls, ID, Department of Energy, Apr. 1965 (IDO-14642).
- 120 MARZO, M.A.S. Influência de dados nucleares recentes no cálculo da composição de combustível irradiado em PWR's. Rio de Janeiro, Comissão Nacional de Energia Nuclear, s.d., p.296-304. (INIS-BR-95).
- 121 MARZO, M.A.S. Untersuchungen zur Anwendung der Isotopenrelationstechnik bei Nachbestrahlungsuntersuchungen und der Überwachung von Spaltstoffen. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Jan. 1982 (Ph.D. Thesis) (KFK-3264).

- 122 MARZO, M. & KRISTEN, H. Applicability of isotopic correlation techniques to nuclear safeguards. In: EUROPEAN SAFEGUARDS RESEARCH AND DEVELOPMENT ASSOCIATION. Harmonization and standartization in nuclear safeguards: 4th annual symposium specialist meeting on... held in Petten, Netherlands, 27-29 April, 1982. Rome, 1982, p.171-8 (ESARDA-15).
- 123 MCDOWEL, C.A., ed. Mass spectrometry. New York, McGraw-Hill, 1953.
- 124 MIKHEEV, N.B.; SPITSYN, G.V.; IONOVA, G.V.; AUERMAN, L.N. The stabilities of the oxidation states of the lanthanides and actinides. Radiochimica Acta, vol. 37 (4), 181-185. 1984.
- 125 MIRANDA, U.; BRESESTI, M.; DE BIÈVRE, P.; KOCH, L. Development and application of safeguards techniques in the nuclear fuel cycle of the european community. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear power and its fuel cycle: proceedings of an international conference, held in Salzburg, 2-13 May, 1977. Vienna, 1977, p.543-55 (Proceedings series, 7).
- 126 MOEKEN, H.H.PH. & BOKELUND, H. Some developments in input accountability at EUROCHEMIC. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Progress in safeguards techniques: proceedings of a symposium on... held in Karlsruhe, 6-10 July, 1970. Vienna, 1970, v.1, p.551-62 (IAEA-SM-133/77).
- 127 MOEKEN, H.H.PH. & BOKELUND, H. Verification of the uranium and plutonium measurements on a batch of dissolved reactor fuel. Mol, Belgium, European Company for the Chemical Processing of Irradiated Fuels, June, 1969 (ETR-235).
- 128 MOORE, L.J.; KINGSTON, H.M.; MURPHY, T.J.; PAULSEN, P.J. The use of isotope dilution mass spectrometry for the certification of standard reference materials. Environ. Int., 10:169-73, 1984.
- 129 MOORE, F.L. New technique for the separation of trivalent actnide elements from lanthanide elements. Analytical Chemistry, vol. 33 (6), 748-751, May 1961.
- 130 MOORE, F.L. Separation of Americium from other elements: Application to the purification and radiochemical determination of Americium. Analytical Chemistry, vol. 35 (6), 715-719, May 1963.
- 131 MORAES, N.M.P. Análises isotópicas de urânio por espectrometria de massa termoiônica. São Paulo, 1978 (Dissertação de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares).

- 132 NAPIER, B.A. & TIMMERMAN, C.L. Developing isotopic functions. Illinois, Argonne National Lab., June 1978. (ISPO-27, PN-SA-6594).
- 133 NUKEY MARKET REPORT. Hanau, Germany F.R., 1982. apud KOCH, L. Minor actinide transmutation: a waste management option. J. Less-Common Met., 122:371-82, 1986.
- 134 OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY RSIC computer code collection. OF:GEN2: Isotope generation and depletion code. Oak Ridge, Tenn., Radiation Shielding Information Center, Sept. 1929 (CCC-371).
- 135 OKASHITA, H.; NAKAHARA, Y.L.; UMEZAWA, H. Isotope safeguards techniques at the Tokai reprocessing plant-V. Tokyo, Japan Atomic Energy Research Inst., June 1983 (JAERI-MEMO-56-241).
- 136 OLIVA, G.; PALMIOTTI, G.; SALVATORE, M.; TONDINELLI, L. Elimination of transuranium elements by burnup in a power fast breeder reactor. Nucl. Technol., 37:340-52, 1976.
- 137 PENNEMAN, R.A.; KEENAN, T.K. The radiochemistry of americium and curium. Washington, DC, National Academy of Sciences, National Research Council. Nuclear Research Series (NAS-NS-3006), 1960.
- 138 PERSIANI, P.J. & BUCHER, R.G. Implementation of isotope correlation technique for safeguards. In: STANCHI, L. ed. Safeguards and nuclear material management: 11th annual symposium on... held in Luxembourg, 30 May-1 June, 1983. Brussels, Commission of the European Communities, 1983, p.45-52 (EUR-12193, ESARDA 22).
- 139 PERSIANI, P.J.; KALIMULLAH; BUCHER, R.G.; POND, R.B. Isotope correlations for safeguards and accountability of LWR fuel cycles. Oak Ridge, USDOE Office of Scientific and Technical Information, May 1983 (CONF-831106-1) (Pres. on conf. on Safeguards Technology: the process-safeguards interface, 29 Nov.-2 Dec., 1983).
- 140 PHILLIPS, J.R.; HALBIG, J.K.; LEE, D.M.; BEACH, S.E.; BEMENT, T.R.; DEMENDJIEV, E.; HATCHER, C.R. Application of non-destructive gamma-ray and neutron techniques for the safeguarding of irradiated fuel materials. New Mexico, Los Alamos Scientific Labor., May, 1980 (LA-8212, ISPO-77).
- 141 RAAE, W.; SUS, F. Determination of microgram and submicrogram amounts of americium in spent nuclear fuel and plutonium samples by isotope dilution gamma spectrometry. Kernenergie 32 (2), 65-68, 1989.

- 142 REIN, J.E. Status of burnup measurement methodology. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Analytical methods in the nuclear fuel cycle: Proc. of a symposium on... held in Vienna, 29 Nov. - 3 Dec., 1971. Vienna, 1972, p. 449-472.
- 143 RIDER, B.F.; PETERSON JR., J.P.; RUIZ, C.P.; SMITH, F.R. Determination of neodymium-148 in irradiated uranium and plutonium as a measure of burnup. San Jose, Ca., General Electric Co., Mar. 1967 (GEAP-5354, TID-4500).
- 144 RIDER, B.F.; RUSSEL JR., J.C.; HARRIS, D.W.; PETERSON JR., J.P. The determination of uranium burnup in MWD/Ton. San Jose, Ca., General Electric Co., Mar. 1960 (GEAP-3373).
- 145 SANATANI, S. A report on the IAEA co-ordinated research programme on the application of isotopic correlation techniques to international safeguards 1975-1982. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear materials management: 24th annual meeting of Institute of... held in Vail, 10-13 July, 1983. Vienna, 1983, p.55-7.
- 146 SANATANI, S. & SIWY, P. IAEA bank of correlated isotopic compositions data. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguarding of nuclear materials: proceedings of a symposium on the... held in Vienna, 20-24 October, 1975. Vienna, 1976, v.2, p.439-48 (IAEA-SM-201/100).
- 147 SANATANI, S. & SIWY, P. Utilization of a data bank for safeguards application of isotopic correlation. In: STANCHI, L. ed. Isotopic correlation and its application to the nuclear fuel cycle: symposium on the... held in Stresa, 9-11 May, 1978. Ispra, ESARDA, 1982, P. 303-18 (ESARDA-14).
- 148 SARKIS, J.E.S. Determinação da queima em combustíveis nucleares irradiados pelo método do produto estável de fissão: 149-Nd. São Paulo, 1982. (Dissertação de mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares).
- 149 SAS INSTITUTE INC. SAS user's guide: statistics version. S.ed. Cary, NC, SAS Institute Inc., 1985.
- 150 SCHMIDT, E. Nuclear transmutation of radioactive waste: a review of the state of the art. Ispra, Commission of the European Communities, Joint Research Centre, Dec. 1985 (Technical note).
- 151 SCHMIDT, E.; ZAMORANI, E.; HAGE, W.; GUARDINI, S. Assessment studies on nuclear transmutation of by-product actinides. Final report. Ispra, Commission of the European Communities, Joint Research Centre, s.d.

- 152 SCHNEIDER, R. A.; STEWART, K. B.; CHRISTENSEN, D. E.; PREZBINDOWSKI, D.L. The safeguards value of isotopic correlations application. Richland, Wa., Battelle Pacific Northwest Labs., Feb. 1972 (BNWL-SA-3929).
- 153 SCHNEIDER, R.A.; STEWART, K.B.; CHRISTENSEN, D.E. The use of isotopic correlations in verification: safeguards application. Richland, Wa., Battelle Pacific Northwest Labs., Feb. 1972 (BNWL-SA-4251).
- 154 SCHOOT, SM. & ZIJP, W.L. Comparison of the isotopic correlation technique with conventional statistical methods. In: EUROPEAN SAFEGUARDS RESEARCH AND DEVELOPMENT ASSOCIATION. Safeguards and nuclear material management: proceedings of the 2nd annual symposium on... held in Edimburg, 26-28 March, 1980. Rome, 1980, p. 342-6 (ESARDA-11).
- 155 SCHULZE, G.; WURZ, H.; KOCH, L.; WELLUM, R. Neutron assay plus isotopic correlations: a method for determining Pu and burnup in spent LWR fuel assemblies. In: EUROPEAN SAFEGUARDS RESEARCH AND DEVELOPMENT ASSOCIATION. Safeguards and nuclear material management: 2nd annual symposium on... held in Edimburg, 26-28 March, 1980. Rome, 1980, p.396-403 (ESARDA-11).
- 156 SEELMAN-EGGEBERT, W.; PFENNIG, G.; MUNZEL, H.; KLEWE-NEBE-
NIUS, H. Nuklidkarte. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Nov. 1981.
- 157 SIMON, G.G. & WURZ, H. Non destructive measurements of water reactor fuel and evaluation of measurement techniques for improved assay accuracy. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Burnup determination of water reactor fuel: proceedings of a technical committee meeting, held in Karlsruhe 13-16 June, 1988. Vienna, 1989, p.57-66 (IWGFPT/31).
- 158 SMITH, B.G.R.; GUARDINI, S.; OLIVA, G.; TONDINELLI, L. Comparison between measured calculated by-product actinide build up within fuel assemblies in a large burnup range. In: HAGE, W., ed. Nuclear transmutation of actinides: proceedings of the second technical meeting on... held in Ispra, 21-24 April, 1980. Brussels, Commission of the European Communities, 1980 (EU-6929).
- 159 SMJLECK, W.; KRTEL, J.; SUS, F.; BULOVIĆ, V.; KLOSOVA, E. Correlation between the ratio of $^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$ radioactivity and burnup in fuel samples from the Czechoslovak nuclear power station. Radiochem. Radioanal. Lett., 50(5):299-306, 1982.
- 160 SOLA, A. Analytical evaluation of actinides sensitivities. Ispra, Commission of the European Communities, 1977 (EUR-5763).

- 161 SPANNAGEL, G.; BEYRICH, W.; BORTELS, G. The AS-76 interlaboratory experiment on the alpha spectrometric determination of Pu-238. Part II: collection and evaluation of representative spectra. Karlsruhe (Germany, F.R.) Kernforschungszen- trum Karlsruhe GmbH, Dec. 1979 (KFK-2861, EUR-6401).
162. SPITSYN, V.I. Some peculiarities of the actinide chemistry. Soviet Radiochemistry, vol. 27 (3), 221-231, May-June 1985.
- 163 STEINBERG, M.; WOTZAK, G.; MANOWITZ, B. Neutron burning of longlived fission products for waste disposal. Upton, N.Y., Brookhaven National Lab., Sept. 1964 (BNL-8558).
- 164 STIJL, E. van der; ARENZ, H.J.; HEIN, H.J.; KOCH, L. In field application of isotopic correlation techniques (ICT) by the safeguard inspectorate: a practical approach and experimental results. In: EUROPEAN SAFEGUARDS RESEARCH AND DEVELOPMENT ASSOCIATION. Safeguards and nuclear material management: 5th annual symposium... held in Versailles, 19-21 April, 1983. Petten, s.d. p.187-92.
- 165 STOVER, R.L. & MOELLER, G.K. Methods for determining fuel burnup. Oak Ridge, Massachusetts Inst. of Tech., July 1961 (MIT-OR-6).
- 166 SUZAKI, T.; TSURUTA, H.; MATSUURA, S. Non-destructive gamma ray spectrometry and analysis on spent fuel assemblies of the JPDR-I. Tokyo, Japan Atomic Energy Research Inst., July 1985 (JAERI-1296).
- 167 TADDEI, J.F.A.C. & RODRIGUES, C. Métodos experimentais para determinação de burnup em combustíveis nucleares. I-Método de neodímio-148. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, Dez. 1977 (IEA-Pub-495).
- 168 THOMAZ JR., C.C.; COBB, D.D.; OSTENAK, C.A. Spent fuel composition: a comparison of predicted and measured data. Los Alamos, Los Alamos Scientific Lab., s.d. (LA-8764-MS).
- 169 TIMMERMAN, C.L. Isotopic safeguards techniques: nuclear safeguards analysis. In: AMERICAN CHEMICAL SOCIETY. Non-destructive and analytical chemical techniques: 175th meeting... held in Anaheim, 13-17 March, 1978. Washington, 1978, p.82-94.
- 170 TIMMERMAN, C.L. & STEWART, K.B. Isotopic safeguards statistics, Richland, Wa., Pacific Northwest Laboratory, June 1978 (ISPO-26, PNL-SA-6595).

- 171 TIMMERMAN, C.L.; CHRISTENSEN, D.E.; STEWART, K.B. Statistical evaluation of isotopic safeguards data. Richland, Wa., Battelle Pacific Northwest Labs., July 1976 (BNWL-SA-6371).
- 172 TIMMERMAN, C.L.; SELBY, G.P.; NAPIER, B.A. Selected isotopic functions: a description and demonstration of their uses. Richland, Wa., Pacific Northwest Laboratory, Oct. 1978 (ISPO-37, PNL-2761).
- 173 VENDITTI, P. & ROLAND, G. Back end of the nuclear fuel cycle: italian policy and programmes. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Back end of the nuclear fuel cycle strategies and options: proceedings of a symposium on... held in Vienna, 11-15 May, 1987. Vienna, 1987, p.131-140 (IAEA-SM-294/94).
- 174 WANTSCHICK, M. Bestimmung der curiumbildung in leichtwasser-reactoren und vergleich mit berechnungen. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Marz 1982 (KFK-3316).
- 175 WANTSCHICK, M.; GANSER, B.; KOCH, L. Mass spectrometric isotope dilution of Am and Cm. Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys., 48:405-8, 1983.
- 176 WEBSTER, R.K. Isotope dilution analysis. In: WALDRON, I.D. ed. Advances in mass spectrometry: proceedings of a joint conference on... held in London, 24-26 September, 1958. New York, N.Y., McMillan, 1959, p.103-19.
- 177 WELLUN, R.; MEESTER, R.; KAMMERICH, K.; KOCH, L. The categorization of binary isotope correlations derived from the databank of the European Institute for transuranium elements, Karlsruhe. In: STANCHI, L., ed. Isotopic correlation and its application to the nuclear fuel cycle: symposium on the... held in Stresa, 9-11 May, 1978. Ispra, ESARDA, 1982, p.55-56 (ESARDA-14).
- 178 WIESE, H.W. & MARZO, M. Korrelationem zwischen schweren isotopen: eine theoretische untersuchung der Pu/U/L²³⁵ korrelation in einen 1300 MWe-druckwasser-reactor. In: STANCHI, L., ed. Isotopic correlation and its application to the nuclear fuel cycle: symposium on the... held in Stresa, 9-11 May, 1978. Ispra, ESARDA, 1982, p.3-22 (ESARDA-14).
- 179 WILKINSON, W.L.; BILLAN, P.M.; TOWNSEND, M. Spent fuel management strategy in the United Kindgom. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Back end of the nuclear fule cycle strategies and options: proceedings of a symposium on... held ir Vienna, 11-15 May, 1987. Vienna, 1987, p.33-40 (IAEA-SM-294/69).

180 WILSON, W.B.; LABAUVE, R.J.; ENGLAND, T.R. Calculations of spent thermal reactor fuel nuclide inventories and comparisons with measurements. Palo Alto, Electric Power Research Inst., 1983 (EPRI-N-28885).

REFERENCIAS COMPLEMENTARES

- BERG, R. Verifications on reprocessing input measurements. Mol. Belgium, European Company for the Chemical Processing of Irradiated Fuels, Jan. 1973 (ETR-277).
- BLOMEKE, J.O. & CROFF, A.G. An overall assessment of actinide partitioning and transmutation. Trans. Am. Nucl. Soc., 34:417-20, 1980.
- CHRISTENSEN, D.E. & PREZBINDOWSKI, D.L. Isotopic correlation safeguards techniques: ratios and their properties. Trans. Am. Nucl. Soc., 18:187-9, 1974.
- COBB, D.D.; PHILLIPS, J.R.; BAKER, M.P.; BOSLER, G.E.; ECCLESTON, G.W.; HALBIG, J.K.; KLEIN, S.L. Nondestructive verification and assay systems for spent fuels: technical appendixes. Los Alamos, Los Alamos National Laboratory, April 1982 (LA-9041, vol. II).
- COBB, D.D.; PHILLIPS, J.R.; BOSLER, G.E.; ECCLESTON, G.W.; HALBIG, J.K.; HATCHER, C.R.; HSUE, S.T. Nondestructive verification and assay systems for spent fuels. Los Alamos, Los Alamos National Laboratory, April 1982 (LA-9041, vol. I).
- CROFF, A.G. A user's manual for the ORIGEN2 computer code. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., July 1980 (ORNL/TM 7175).
- CROFF, A.G.; ALEXANDER, C.W.; WACHTER, J.W. Transmutation and fuel cycle impacts. Trans. Am. Nucl. Soc., 34:413-4, 1980.
- DE REGGE, P. & RUDEN, P. Isotopic correlations in Pu recycling LWR fuel. In: STANCHI, L. ed. Isotopic correlation and its application to the nuclear fuel cycle: Symposium on... held in Stresa, 9-11 May 1978. Ispra, ESARDA, 1982, p.101-12 (ESARDA-14).
- DRAGNEV, T.N.; DE CAROLIS, M.; KEDDAR, A.; KONNOV, Y.; MARTINEZ-GARCIA, G.; WALIGURA, A.J. Some agency contributions to the development of instrumental techniques in safeguards. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguarding nuclear materials: proceedings of a symposium on the... held in Vienna, 20-24 October 1975. Vienna, 1976, v.2, p.37-62.
- DRAPER, N.; SMITH, H. Applied regression analysis. 2 ed. New York, N.Y., John Wiley, 1981.
- FINNEY, B.C. & TEDDER, D.W. Actinide partitioning process for fuel cycle wastes. Trans. Am. Nucl. Soc., 34:412-3, 1980.
- FULLWOOD, R.R. & JACKSON, R.R. Short-term risk of actinide partitioning. Trans. Am. Nucl. Soc., 34:415-6, 1980.

- GIRARDI, F. Overview of partitioning and transmutation studies in the european community. Trans. Am. Nucl. Soc., 34:411, 1980.
- GORRELL, T.C. Transmutation of LWR waste actinides in thermal reactors. Aiken, Du Pont de Nemours (E.I.) and Co, 1978 (DP-MS 78-100). (Pres. at the American Nuclear Society Meeting, held in Atlanta, 3-6 June 1979).
- GORRELL, T.C. Transmutation of waste actinides in thermal reactors: survey calculations of candidate irradiation schemes. Aiken, Du Pont de Nemours (E.I.) and Co, Nov. 1978 (DP-1496).
- GORRELL, T.C. Transmutation of waste actinides in light water reactors. Aiken, Du Pont de Nemours (E.I.) and Co, April 1979 (DP-1518).
- GUARDINI, S. & GUZZI, G. Benchmark: reference data on post irradiation analysis of light water reactor fuel samples. Ispra, Commission of the European Communities, 1983 (EUR-7879).
- GUARDINI, S.; GUZZI, G.; PERONI, P., eds. Benchmark report relevant to Trino Vercellese and Gariagliano reactors. Ispra, Commission of the Europe Communities, 1978 (Confidential).
- HAGE, W. & SCHMIDT, E. Concepts for the nuclear transmutation of radioactive waste from fission reactors at present under discussion. Ispra, Commissione delle Comunità Europee, June 1975 (EUR/C/IS/417/75e).
- HERMANN, a. & MEHNER, H.C. Isotopenkorrelationen mit gammaaktiven spaltprodukten fuer die kernmaterialkontrolle von WWER-Brennstoff. J. Radional.Chem., 58:101-11, 1980.
- INGRHAM, M.G. Chupka K.A. "Surface ionization source using multiple filaments. Rev.Sci.Instrum., 24(7):518-20, 1953.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Reactor burnup physics: proceedings of a panel on... held in Vienna, 12-16 July 1971. Vienna, 1973.
- KOCH, L. Options to recycle transuranium elements in nuclear power stations. J. At. Energy Soc. Jpn., 30(7):589-92, 1988.
- KOCH, L. Potentials of Np and Am recycling. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Back end of the nuclear fuel cycle strategies of a symposium on... held in Vienna, 11-15 May, 1987. Vienna, 1987, p.551-3.
- KOCH, L. European programmes in wast management (incineration of actinides. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Transactinium isotope nuclear data: advisory group... held in Karlsruhe, 1975. Vienna, s.d., p.191-200 (AED-Conf. 1975-781-006).

- KOCH, L. Possible ways of verifying the input of a reprocessing facility. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear safeguard technology: proceedings of a Symposium on one... held in Vienna, 2-6 October, 1978. Vienna, 1979, v.2, p.612-8 (IAEA-SM-231-4).
- KOCH, L. & SCHOOF, S. An example of material accounting and verification of reprocessing input. In: INSTITUTE OF NUCLEAR MATERIALS MANAGEMENT Nuclear materials management: 22nd annual meeting on...held in San Francisco, 13-15 July, 1981 s.n.t. p.
- KRTIL, J.; SUS, F.; BULOVIC, V.; KSLOA, E.; ROCEK, J.; MAKSIMOVIC, Z. The use of the isotope correlation for the determination of the components of irradiated fuel. II. Correlations of the radioactive fission products. Radiochem. Radionol. Lett., 50(2):79-88, 1981.
- LOGAN, S.E. & CONARTY, H.S. Long-term risk analysis of actinide partitioning and transmutation. Trans. Am. Nucl. Soc., 34:416-7, 1980.
- MCGRATH, P.E. Radioactive waste management potentials and hazards from a risk point of view. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, June 1974 (KFK 1992).
- PERSIANI, P.J. & KALIMULLAH Isotope correlations for safeguards surveillance and accountancy methods. Argonne, IL, Argonne National Laboratory, Oct. 1962 (CONF-830423-1).
- PERSIANI, P.J. & KROC, T.K. Preliminary study isotopic safeguards techniques (IST) LMFBR fuel cycle. Argonne, IL, Argonne National Laboratory, June 1980 (ANL-80-70).
- PERSIANI, P.J.; GOLEB, J.A.; KROC, T.K. Nuclear materials safeguards surveillance and accountancy by isotope correlation techniques. Trans. Am. Nucl. Soc., 39:322-3, 1981.
- RINARD, P.M. & BOSLER, G.E. B-R spent-fuel measurements with the ION-1/Fork detector and a calorimeter. Los Alamos, Los Alamos National Laboratory, Aug. 1982 (LA-10758-MS).
- SALAHUDDIN, A. & ARSHAD, M. Isotopic composition actinides and fission products in the irradiated fuel of the 10 MW low enriched PARR reference core. Rawalpindi Pakistan Inst. of Nuclear Science and Technology, Oct. 1987 (PINSTECH/NED-130).
- TIMMERMAN, C.L. Application of isotopic safeguards techniques to the Tokai-Mura reprocessing facility. Trans. Am. Nucl. Soc., 34:157-8, 1980.
- UMEZAWA, H.; ICHIKAWA, S.-I.; SUZUKI, T.; OKASHITA, H. L. NATSUME, H. Correlation of amounts of transplutonium nuclides with burnup in the JPDR-1 spent fuel. J. Nucl. Sci. Technol., 10(8):489-92, 1973.