



**MÉTODOS EXPERIMENTAIS PARA A DETERMINAÇÃO DE
BURN-UP EM COMBUSTÍVEIS NUCLEARES**

I - MÉTODO DO NEODÍMIO-148

José Fernando de A. C. Taddei e Cláudio Rodrigues

**PUBL. IEA 405
CEQ - APE 3**

DEZEMBRO/1977

**MÉTODOS EXPERIMENTAIS PARA A DETERMINAÇÃO DE
BURN-UP EM COMBUSTÍVEIS NUCLEARES
I - MÉTODO DO NEODÍMIO-148**

José Fernando de A. C. Taddei e Claudio Rodrigues

**CENTRO DE ENGENHARIA QUÍMICA
Área de Processos Especiais**

**INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
SÃO PAULO - BRASIL**

APROVADA PARA PUBLICAÇÃO EM OUTUBRO/1977

CONSELHO DELIBERATIVO

MEMBROS

Klaus Reinech — Presidente
Roberto D'Utra Vaz
Helcio Modesto da Costa
Ivano Humbert Marschal
Ademar Cervellini

PARTICIPANTES

Regina Elisabete Azevedo Baretta
Fabrício Gori

SUPERINTENDENTE

Rômulo Ribeiro Pironi

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11.049 (Pinheiros)
Cidade Universitária "Armando de Salles Oliveira"
SÃO PAULO — BRASIL

MÉTODOS EXPERIMENTAIS PARA A DETERMINAÇÃO DE BURN-UP EM COMBUSTÍVEIS NUCLEARES

I - MÉTODO DO NEODÍMIO-148

José Fernando de A. C. Taddei e Cláudio Rodrigues

INTRODUÇÃO

Na tecnologia nuclear o termo "burn-up", é utilizado genericamente para expressar o número de fissões que ocorreram num combustível nuclear durante seu período de irradiação no reator. A determinação precisa do valor do "burn-up" experimentado por um elemento combustível nuclear é particularmente importante, seja considerado um aspecto puramente econômico, tal como o estabelecimento dos custos de um ciclo do combustível nuclear, seja considerado aspectos essencialmente operacionais, tais como operação de reatores nucleares, contabilidade de materiais físséis, aplicação de normas de segurança e de salvaguardas para combustíveis irradiados, ou seja ainda, considerado um aspecto mais fundamental de interesse direto para os estudos, pesquisas e desenvolvimento relativos a novos tipos de combustíveis e reatores.

Os problemas envolvidos na determinação do "burn-up", ou mais precisamente, da porcentagem total de átomos fissionados, são particularmente complexos, se considerarmos que durante a irradiação de um combustível, diferentes reações nucleares além da fissão estão ocorrendo simultaneamente que podem resultar numa "produção" e num "consumo" adicional de núclídeos físséis e férteis. Para combustíveis nucleares contendo inicialmente urânio natural ou enriquecido em U235, a reação mais importante é obviamente a fissão do U235 por nêutrons térmicos, mas simultaneamente estão ocorrendo reações de captura de nêutrons pelo U235 originando U236, reações de fissão do U238 por nêutrons rápidos e ainda reações de captura pelo U238 originando U239. Este último pode, por sua vez ser fissionado e pode capturar originando inicialmente Pu-240 e então Pu-241, que é também fissionável. Os valores das secções de choque para essas reações são extremamente diferentes e consideravelmente dependentes da energia dos nêutrons. O resultado é que num elemento combustível irradiado a concentração dos diferentes núclídeos de urânio, plutônio, elementos transplutônios e produtos de fissão é extremamente variável seja especialmente, considerando o elemento combustível e sua posição no caroço do reator, seja em função do tempo de irradiação.

Os métodos mais precisos para a determinação da porcentagem de átomos fissionados, envolvem a determinação de parâmetros que só podem ser medidos após a dissolução de parte ou de todo o elemento combustível. Dentre os métodos destrutivos mais utilizados, quer pela precisão final dos resultados, quer pela sua aplicabilidade a vários tipos de combustíveis nucleares, destacam-se dois métodos que envolvem a utilização de espectrometria de massa. Um se baseia na determinação de produtos de fissão estáveis, principalmente neodímio-148, e o outro é baseado na medida da variação na concentração dos núclídeos de urânio e plutônio ocorrida durante a irradiação do combustível.

O presente trabalho visa apresentar uma descrição sucinta desses dois métodos, incluindo considerações sobre as técnicas utilizadas e o desenvolvimento das expressões de recorrência e das correções necessárias, com ênfase nos procedimentos químicos e analíticos que devem ser conduzidos desde o recebimento de uma mostra representativa do combustível, até o resultado final.

Este trabalho foi dividido em duas partes, a primeira parte constante desta publicação é reservada à descrição detalhada do método do neodímio-148, enquanto que a segunda parte, que trata do método das variações isotópicas, será motivo de uma próxima publicação.

MÉTODO DO NEODÍMIO-148

1 - INTRODUÇÃO

O método permite o cálculo da porcentagem total de átomos fissionados (burn-up)⁽⁸⁾ em combustíveis nucleares a partir das medidas das quantidades absolutas do produto de fissão neodímio-148 e de urânio e plutônio presentes no combustível após a irradiação, conhecidos os rendimentos de fissão do neodímio-148. A aplicação dos procedimentos químicos, descritos neste trabalho, é restrita a combustíveis contendo inicialmente urânio, e até 5% de plutônio, e que tenham experimentado um burn-up de 1 a 1000 Gwd/t. Para combustíveis contendo inicialmente de 5 a 50% de Pu, as concentrações de Pu na solução de calibração dos traçadores isotópicos (item 2.1) e na solução dos traçadores isotópicos (item 2.2), devem ser aumentadas por um fator variando de 10 a 100.

Os procedimentos químicos descritos neste trabalho foram baseados no método E 321-69 da ASTM⁽¹⁾.

A medida do burn-up através da determinação da concentração de um produto estável de fissão, tem uma série de vantagens⁽⁷⁾ com relação aos outros métodos destrutivos, sejam aqueles baseados diretamente na medida das variações da abundância isotópica do urânio e plutônio, que ocorrem no combustível devido à irradiação, sejam os baseados na medida da atividade de produtos de fissão radioativos. Podendo ser citadas entre as vantagens mais significativas, o fato de não serem necessárias amostras equivalentes do combustível pré-irradiado e irradiado, que são essencialmente requeridas quando medidas da variação na abundância isotópica de U e Pu são usadas para o cálculo do burn-up, e o fato de não ser necessário o conhecimento dos parâmetros nucleares envolvidos no processo de irradiação, nem dos detalhes específicos dessa irradiação, como exigido quando produtos de fissão radioativos são empregados como monitores de burn-up.

A porcentagem total de átomos fissionados é calculada pela relação entre o número total de fissões ocorridas no combustível, que é diretamente obtida pela medida da quantidade absoluta do produto de fissão Nd-148, e o número total de átomos de urânio e plutônio inicialmente presentes no combustível, que é obtido somando-se ao número de fissões ocorridas, o número de átomos de U e Pu presentes após a irradiação.

A desvantagem principal do método está na necessidade da determinação das quantidades absolutas do isótopo Nd-148, de U e Pu. A realização dessa medida é feita utilizando a técnica espectrometria de massa - diluição isotópica⁽²⁾, que requer a seleção de padrões isotópicos para os três elementos, medidas volumétricas e gravimétricas bastante precisas, e um procedimento químico para a preparação de amostras, relativamente complexo, o que implica num aumento considerável do tempo de análise.

A escolha do produto de fissão estável, Nd-148, apresenta uma série de vantagens⁽⁵⁾, principalmente em se tratando de reatores tipo PWR:

- a) O neodímio não é volátil, e portanto não migra no combustível, o que resultaria num gradiente de valores do "burn-up" em função da distribuição dos átomos de Nd-148 no elemento combustível.
- b) Não tem precursores voláteis.

- c) Tem uma seção de choque de absorção de nêutrons relativamente baixa.
- d) Tem baixos rendimentos de formação através de cadeias de massa adjacentes.
- e) Tem boas características de emissão iônica para medidas de espectrometria de massa por termoionização.
- f) Tem rendimentos de fissão aproximadamente iguais para U-235 e Pu-239, e aproximadamente independentes da energia dos nêutrons de fissão.
- g) Não é um constituinte normalmente presente em materiais combustíveis nucleares não irradiados.
- h) O elemento neodímio tem um isótopo blindado, o Nd-142, que pode ser usado para avaliação da contaminação por neodímio natural.
- i) Tem um isótopo, Nd-150, com baixo rendimento de fissão, que pode ser utilizado como traçador isotópico na técnica espectrometria de massa – diluição isotópica.

A espectrometria de massa – diluição isotópica é uma técnica extremamente recomendada para combustíveis nucleares, especialmente para materiais irradiados que contém produtos de fissão, elementos transurânicos, e produtos radioativos, pois requerendo quantidades de material da ordem de somente algumas microgramas, ou menos ainda quando os sistemas de detecção de íons são constituídos por multiplicadores de elétrons ou cintiladores, e não sendo essencial uma separação química quantitativa dos elementos de interesse, os procedimentos químicos para preparação das amostras, se tornam consideravelmente simplificados quando comparados com a complexidade de operações controladas remotamente, que seriam exigidas se quantidades maiores de material irradiado fossem processadas. Na maioria dos casos, simples células alfa (glove boxes) são suficientes. Pequenas alíquotas de amostras irradiadas são transferidas para essas células, onde todo o procedimento químico necessário para a preparação das amostras, para medidas isotópicas através da técnica de espectrometria de massa – diluição isotópica, pode ser realizado com total segurança.

Um procedimento normal para a realização de medidas de concentração de um nuclídeo de um determinado elemento pela técnica espectrometria de massa – diluição isotópica, envolve basicamente, as seguintes etapas:

- a) Obtenção e preparação de uma solução precisa e representativa da amostra a ser analisada.
- b) Adição à amostra a ser analisada de quantidades exatamente conhecidas dos traçadores isotópicos previamente calibrados.
- c) Tratamento químico adequado da solução contendo os traçadores e amostra de modo a ser ter estados químicos idênticos para os diferentes isótopos presentes nessa solução.
- d) Separação química dos elementos de interesse (no presente caso neodímio, urânio, plutônio) e depósito de uma alíquota das frações separadas, no filamento de um espectrômetro de massa.
- e) Realização das medidas dos espectros de massa requeridos e o subsequente cálculo⁽³⁾ das razões isotópicas.

2 – DETERMINAÇÃO DA CONCENTRAÇÃO DE NEODÍMIO-148, URÂNIO E PLUTÔNIO

O que se pretende é descrever um procedimento químico analítico que permita a determinação absoluta do número de átomos de neodímio-148, urânio e plutônio presentes em soluções de

combustíveis nucleares irradiados, utilizando a técnica espectrometria de massa – diluição isotópica. Basicamente, o procedimento envolve dissolução e diluição do material combustível nuclear, a adição dos traçadores isotópicos, no presente caso Nd-150, U-233 e Pu-242, a separação química dos elementos U, Pu e Nd, e a análise isotópica desses elementos por espectrometria de massa termo-iônica.

As separações e purificações químicas devem resultar em soluções de Nd, U e Pu com um alto grau de pureza, principalmente quando as quantidades desses elementos depositadas nos filamentos não extremamente reduzidas (alguns nanogramas), pois nesses casos a presença de impurezas pode inibir sensivelmente a emissão iônica. Além disso, extremo cuidado deve ser tomado, afim de evitar contaminação das amostras do material a ser analisado, com urânio normalmente presente nos reagentes utilizados nos procedimentos químicos efetuados, para se obter amostras em condições adequadas a uma análise isotópica.

Na técnica de diluição isotópica⁽⁹⁾ a precisão final dos resultados é diretamente dependente da precisão final com que se conhece o número de átomos do traçador isotópico adicionado à solução do material que se quer analisar. Para medidas de urânio, plutônio e neodímio, a calibração do número de átomos do isótopo traçador é invariavelmente feita pela técnica espectrometria de massa – diluição isotópica, usando nesse caso como traçadores isotópicos amostras de padrão de urânio, plutônio e neodímio.

Dessa maneira são exigidas, para a aplicação da técnica espectrometria de massa – diluição isotópica, na determinação do burn-up em combustíveis nucleares pelo método do neodímio-148, três soluções independentes, a saber: solução do material utilizado para calibração dos traçadores, solução dos traçadores isotópicos e solução do material cuja concentração e composição isotópica se pretende determinar.

2.1 – Calibração dos Traçadores Isotópicos

A solução para a calibração dos traçadores isotópicos é preparada a partir de amostras padrão contendo neodímio natural (Nd_2O_3), urânio natural (U_3O_8) e plutônio metálico. Normalmente, para urânio e plutônio são utilizados os materiais padrão fornecidos pela NBS, respectivamente NBS980 e NBS949.

Para a calibração do número de átomos do neodímio-150 o traçador utilizado é Nd-148. A solução de calibração contendo Nd-148 é preparada dissolvendo uma certa quantidade, aproximadamente 0.5 g de Nd_2O_3 (Neodímio natural com uma porcentagem de pureza superior a 99.9%) com HNO_3 (1:1) e diluindo-se até 500 ml.

Dessa solução são retiradas alíquotas para as quais se determina, por espectrometria de massa, as razões isotópicas $R_{50/48}$, $R_{48/48}$, $R_{46/48}$, $R_{44/48}$, $R_{43/48}$ e $R_{42/48}$ onde os índices representam os diferentes isótopos envolvidos. Assim, por exemplo, $R_{44/48}$ significa a razão entre os números de átomos dos isótopos Nd-144 e Nd-148. Determinadas as razões isotópicas, a fração atômica do Nd-148 na solução de calibração pode ser calculada através da expressão:

$$A_{48}^{cal} = R_{48/48} / (R_{50/48} + R_{48/48} + R_{46/48} + R_{44/48} + R_{43/48} + R_{42/48}) \quad (1)$$

Conhecida a fração atômica para o Nd-148, a pureza do óxido utilizado, e a quantidade deste inicialmente dissolvida, a concentração em átomos de Nd-148, por ml de solução, pode ser expressa por:

$$N_{48}^{cal} = (mg \text{ } Nd_2O_3 \times 0.857) / (500 \text{ ml de solução}) \times (\text{porcentagem de pureza} / 100) \times (6.025 \times 10^{23} \text{ átomos} / 144.24) \times A_{48}^{cal} \quad (2)$$

Para a calibração do número de átomos de Pu-242, o traçador utilizado é Pu-239. A solução de calibração contendo Pu-239 é preparada dissolvendo aproximadamente 0.5 g de Pu (material padrão NBS 949 plutônio, metal) com HCl (1:1), e em seguida diluindo com HNO₃ (1:1) até 100 ml de solução. Dessa solução são preparadas alíquotas para as quais são medidas as razões R_{2/9}, R_{1/9}, R_{0/9} e R_{9/9}, onde os índices representam os isótopos de plutônio envolvidos.

A fração atômica para Pu-239 na solução de calibração, é dada por:

$$A_9^{cal} = R_{9/9} / (R_{9/9} + R_{0/9} + R_{1/9} + R_{2/9}) \quad (3)$$

Conhecida a pureza do material dissolvido, a quantidade inicialmente dissolvida, e a fração atômica, a concentração em átomos de Pu-239 por ml de solução pode ser expressa pela seguinte equação:

$$N_9^{cal} = (\text{mg de Pu} / 100 \text{ ml de solução}) \times (\text{porcentagem de pureza} / 100) \times (6.025 \times 10^{23} \text{ átomos} / \text{peso molecular de Pu}) \times A_9^{cal} \quad (4)$$

Para a calibração do número de átomos de U-233 o traçador isotópico usado é U-238. A solução de calibração contendo urânio 238, é preparada a partir da dissolução com HNO₃ (1:1) de aproximadamente 12 g de U₃O₈ (material padrão NBS-980, urânio natural). Essa solução é diluída também com HNO₃ (1:1) até 100 ml, a partir da qual são retiradas alíquotas para medida da razão isotópica. São medidas as razões R_{4/8}, R_{5/8}, R_{6/8} e R_{8/8}, onde os índices representam os isótopos de urânio envolvidos. A fração atômica para U-238 na solução será dada por:

$$A_8^{cal} = R_{8/8} / (R_{4/8} + R_{5/8} + R_{6/8} + R_{8/8}) \quad (5)$$

Conhecida a pureza do material, a quantidade dissolvida e a fração atômica, a concentração em átomos de U-238 por ml de solução pode ser determinada pela expressão:

$$N_8^{cal} = (\text{g de U}_3\text{O}_8 \times 0.848) / (100 \text{ ml de solução}) \times (\text{pureza do material} / 100) \times (6.025 \times 10^{23} \text{ átomos} / 238.03) \times A_8^{cal} \quad (6)$$

A solução dosada para calibração dos traçadores isotópicos U-233, Pu-242 e Nd-150, é preparada a partir dessas três soluções independentes, cujo conteúdo em átomos de U-238, Pu-239 e Nd-148 por ml de solução, é conhecida a partir das expressões (4), (5) e (6), definidas acima. A solução de calibração é preparada misturando-se: 0.500 ml de solução de calibração contendo Pu-238, 0.500 ml de solução de calibração contendo U-238 e 1.000 ml de solução de calibração contendo Nd-148. A solução acima obtida é então diluída com HNO₃ (1:1) até 1000 ml, e em seguida são acrescentadas algumas gotas de HF concentrado. Essa solução assim preparada é denominada solução dosada de calibração.

Conhecidos os valores N₄₈^{cal}, N₈^{cal} e N₉^{cal}, respectivamente o número de átomos de Nd-148, U-238 e Pu-239 nas soluções independentes de calibração, expressões (4), (5) e (6) pode-se determinar o número de átomos desses isótopos por ml da solução dosada de calibração.

$$N_{48}^{SDC} = \frac{\text{ml da solução independente contendo Nd-148}}{1000 \text{ ml da solução dosada de calibração}} \times N_{48}^{cal} \quad (7)$$

$$N_8^{SDC} = \frac{\text{ml da solução independente contendo U-238}}{1000 \text{ ml da solução dosada de calibração}} \times N_8^{cal} \quad (8)$$

$$N_9^{SDC} = \frac{\text{ml da solução independente contendo Pu-239}}{1000 \text{ ml da solução dosada de calibração}} \times N_9^{cal} \quad (9)$$

A solução dosada de calibração é armazenada em ampolas de vidro em porções de 3 a 5 ml, que são seladas, a fim de evitar evaporação, até a ocasião do seu uso.

2.2 -- Traçadores Isotópicos

Para medidas de concentração do neodímio-148, de urânio e de plutônio em materiais combustíveis nucleares irradiados, pela técnica de espectrometria de massa -- diluição isotópica os traçadores isotópicos normalmente utilizados são isótopos separados de Nd-150, na forma de Nd_2O_3 ; de U-233 na forma de U_3O_8 ; e de Pu-242, na forma de metal Pu, que são fornecidos pelo Oak Ridge National Laboratory com purezas isotópicas superiores a 95%, 98% e 99%, respectivamente.

Para a calibração do número de átomos de U-233, Pu-242 e Nd-150 nesses materiais traçadores, é preparada uma solução contendo aproximadamente 0.4 mg de Nd-150/litro, 50 mg de U-233/litro e 2.5 mg de Pu-242/litro, em HNO_3 (1:1) com HF 0.01M. Após a preparação dessa solução e já dispondo-se da solução dosada de calibração (item anterior), preparam-se três soluções de trabalho, a saber: uma contendo 500 μl da solução dosada de calibração e 500 μl da solução dos traçadores isotópicos, outra contendo 1 ml de solução dosada de calibração, e uma terceira contendo 1 ml da solução dosada dos traçadores isotópicos.

Após um cuidadoso procedimento químico que visa a assegurar a identidade química dos isótopos de U, Pu e Nd presentes nas diferentes soluções, são realizadas operações de separação e purificação química, não necessariamente quantitativa, normalmente através da troca iônica⁽⁴⁾, obtendo-se então três frações de neodímio, três de urânio e três de plutônio originárias das três soluções de trabalho preparadas.

Dessas frações são retiradas alíquotas que, através de técnicas específicas, utilizando tubos capilares ou microseringas, são depositadas em filamentos, de preferência de rênio, para uma análise isotópica por espectrometria de massa termoiônica do elemento separado.

São determinadas as razões isotópicas Nd150/148 nas frações que contém Nd; Pu-242/Pu-239 nas frações que contém Pu e U-233/U-238 nas frações que contém U, obtidas da solução dosada de calibração, respectivamente designadas por $C_{50/48}$, $C_{2/9}$ e $C_{3/8}$; da solução proveniente da mistura traçadores e solução dosada de calibração, respectivamente designadas por $M_{50/48}$, $M_{2/9}$ e $M_{3/8}$; e da solução de traçadores, respectivamente designadas por $S_{40/48}$, $S_{2/9}$ e $S_{3/8}$.

Determinadas essas razões isotópicas, e conhecidos os números de átomos de Nd-148, Pu-239 e U-238 na solução dosada de calibração, o número de átomos de Nd-150, Pu-242 e U-233 por ml da solução dos traçadores isotópicos, podem ser respectivamente calculados através das expressões:

$$N_{50}^I = N_{48}^{SDC} \left\{ (M_{50/48} - C_{50/48}) / [1 - (M_{50/48} / S_{50/48})] \right\} \quad (10)$$

$$N_2^I = N_9^{SDC} \left\{ (M_{2/9} - C_{2/9}) / [1 - (M_{2/9} / S_{2/9})] \right\} \quad (11)$$

$$N_3^I = N_8^{SDC} \left\{ (M_{3/8} - C_{3/8}) / [1 - (M_{3/8} / S_{3/8})] \right\} \quad (12)$$

- a dedução dessas fórmulas está descrita no apêndice I.

A solução dos traçadores isotópicos já calibrada é então armazenada, da mesma maneira que a solução dosada de calibração, em ampolas de vidro com capacidade entre 3 a 5 ml, que são seladas, para evitar evaporação, e somente abertas quando de sua utilização.

2.3 – Determinação do Número de Átomos de Nd-148, U e Pu no Combustível Nuclear

A partir da solução original do combustível nuclear irradiado dissolvido, são retiradas alíquotas que são transferidas para "glove boxes", onde se processa uma diluição com $\text{HNO}_3(1:1)$ até se obter uma solução com concentração de 100 a 1000 mg de U + Pu por litro de solução.

Para a determinação do número de átomos de Nd-143, de U e Pu, pela técnica de espectrometria de massa – diluição isotópica, com os traçadores isotópicos Nd-150, U-233 e Pu-242 previamente calibrados, são preparadas duas soluções:

- a) solução contendo 1 ml da solução dosada dos traçadores e uma alíquota da solução do combustível. O conteúdo adequado de U + Pu a ser adicionado à solução dos traçadores isotópicos deve ser tal, que permita a medidas das razões isotópicas de interesse com a maior precisão possível (A quantidade de U + Pu que 1 ml da solução do traçador deve conter, pode ser determinada conhecendo-se o burn-up experimentado pelo combustível⁽¹⁾).
- b) solução do combustível com uma concentração de U + Pu similar à solução (a).

Observadas as condições da solução (a) o conteúdo do produto de fissão Nd-148 na alíquota do combustível será de aproximadamente 70 nanogramas.

Preparadas as soluções dos traçadores + combustível e do combustível, procede-se às etapas químicas necessárias para o estabelecimento de uma identidade química para os isótopos de Nd, Pu e U, sua separação em diferentes frações e a purificação individual dessas frações.

As frações purificadas desses elementos são analisadas isotopicamente por espectrometria de massa termoiônica. Para as frações contendo neodímio, determina-se as razões isotópicas Nd-148/Nd-150 e Nd-142/Nd-150; para a fração proveniente da solução de combustível + traçador, essas razões são designadas por $M_{48/50}$ e $M_{42/50}$. e para a fração da solução contendo somente o combustível, são

designadas por $R_{48/50}$ e $R_{42/50}$. Para a fração contendo U que se origina da solução do combustível, são determinadas as razões isotópicas U-233/U-238, U-234/U-238, U-235/U-238 e U-236/U-238, designadas por $R_{3/8}$, $R_{4/8}$, $R_{5/8}$ e $R_{6/8}$; para a fração que se origina da solução dos traçadores + combustível, é determinada a razão U-238/U-233, designada por $M_{8/3}$. Para a fração contendo Pu originária da solução do combustível são determinadas as razões, Pu-240/Pu-239, Pu-241/Pu-239 e Pu-242/Pu-239, designadas por $R_{0/9}$, $R_{1/9}$ e $R_{2/9}$. Para a fração da solução dos traçadores + combustível é determinada a razão Pu-239/Pu-242 designadas por $M_{9/2}$.

Todas as razões isotópicas medidas são corrigidas para o efeito de discriminação de massa do espectrômetro de massa utilizado⁽¹²⁾.

Para o cálculo da concentração de urânio e plutônio, conhecendo-se as razões isotópicas, procede-se inicialmente o cálculo das frações atômicas de U-238 e Pu-239 na solução do combustível, através das seguintes expressões:

$$A_8^{CN} = R_{8/8} / (R_{3/8} + R_{4/8} + R_{5/8} + R_{6/8} + R_{8/8}) \quad (13)$$

$$A_9^{CN} = R_{9/9} / (R_{9/9} + R_{0/9} + R_{1/9} + R_{2/9}) \quad (14)$$

Conhecidas as frações atômicas A_8^{CN} e A_9^{CN} , o número de átomos de U-233 e Pu-242 adicionados à solução do combustível, respectivamente N_8^T e N_9^T , as razões isotópicas $S_{3/8}$ e $R_{9/2}$ na solução dos traçadores isotópicos, as razões isotópicas $R_{8/3}$ e $R_{9/2}$ na solução do combustível, e $M_{8/3}$ e $M_{9/2}$ na solução do combustível + traçador, e levando-se em conta que $S_{8/3} = 1/S_{3/8}$, $S_{9/2} = 1/S_{2/9}$, $R_{8/3} = 1/R_{3/8}$ e $R_{9/2} = 1/R_{2/9}$, pode-se determinar o número de átomos de urânio, e o número de átomos de plutônio, respectivamente denominados U e Pu, na amostra do combustível nuclear irradiado, através das expressões:

$$[U] = \frac{N_8^T}{A_8^{CN}} \times \left[\frac{M_{8/3} - S_{8/3}}{1 - (M_{8/3} / R_{8/3})} \right] \quad (15)$$

$$[Pu] = \frac{N_9^T}{A_9^{CN}} \times \left[\frac{M_{9/2} - S_{9/2}}{1 - (M_{9/2} / R_{9/2})} \right] \quad (16)$$

- a dedução das fórmulas acima estão mostradas no apêndice I.

Para a determinação do número de fissões ocorridas no combustível, é necessário, como já foi mencionado anteriormente, conhecer o número de átomos de Nd-148 presentes na solução do combustível. Para a medida da concentração de Nd-148 através da técnica espectrometria de massa - diluição isotópica, é necessário determinar-se a razão isotópica Nd-148/Nd-150 na solução traçador + combustível. A razão isotópica Nd-148/Nd-150 obtida da solução resultante da mistura do combustível nuclear com a solução dosada do traçador, designada como $M_{48/50}$, deve conter somente átomos de Nd-148 provenientes da fissão, e átomos de Nd-150 do traçador.

Portanto a razão obtida deve então ser corrigida para:

- a) Nd-150 produzido por fissão.
- b) Nd-148 presente como impureza no traçador.
- c) Nd-148 e Nd-150 provenientes de contaminação com neodímio natural.

Essas correções são feitas até primeira ordem, isto é, não são feitas correções nas razões isotópicas incluídas na expressão para correção da razão $M_{48/50}$.

A correção para o efeito do Nd-150 produzido por fissão envolve o cálculo da razão entre o número de átomos de Nd-150 e o número de átomos de Nd-148 produzidos por fissão. Essa relação é igual à razão dos rendimentos efetivos de fissão dos isótopos 150 e 148 do neodímio e pode ser expressa pela seguinte relação:

$$E_{50/48} = \frac{R_{50/48} (R_{50/42} - C_{50/42})}{R_{50/42} - (R_{50/48} \cdot C_{48/42})} \quad (17)$$

– a dedução dessa expressão pode ser encontrada no apêndice II.

Pode ser que a razão isotópica Nd-148/Nd-150 na mistura combustível + traçador, corrigido para os ítems (a), (b) e (c) mencionados acima, é dada pela expressão:

$$M_{48/50}^* = M_{48/50} \left[\frac{1 - S_{48/50} M_{50/48} - C_{48/42} M_{42/48}}{1 - E_{50/48} M_{48/50} - C_{50/42} M_{42/50}} \right] \quad (18)$$

onde $E_{50/48}$ é a razão dos rendimentos de fissão dos isótopos Nd-150 e Nd-148.

– a dedução da expressão para $M_{48/50}^*$ pode ser encontrada no Apêndice III.

Conhecido o número de átomos de Nd-150 na solução do traçador, N_{50}^T , e a razão entre os isótopos Nd-148 produzidos na fissão e Nd-150 do traçador isotópico, $M_{48/50}^*$, pode-se calcular o número de átomos de Nd-148 na solução do combustível nuclear,

$$N_{48}^C = N_{50}^T \cdot M_{48/50}^*$$

3 – PORCENTAGEM DE ÁTOMOS FISSIONADOS

O número de fissões ocorridas no combustível é dado pela relação entre o número de átomos de Nd-148 e o rendimento de fissão desse isótopo para U-235 e Pu-239. Temos, então:

$$NF = \frac{N_{48}^C}{E_{48}} \quad (20)$$

onde E_{48} é o rendimento do isótopo Nd-148 na fissão térmica de U-235, que é aproximadamente o mesmo para Pu-239.

A porcentagem atômica de fissão para o total dos átomos de elementos pesados presentes no combustível (átomos de urânio + plutônio) é definida, como já mencionamos neste trabalho, pela razão entre o número de fissões ocorridas na amostra considerada de combustível, e o número de átomos dos elementos pesados (urânio e plutônio) inicialmente presentes na amostra do combustível. O número de átomos de urânio e plutônio inicialmente presentes na amostra, é igual à soma do número de fissões ocorridas, mais o número de átomos de urânio e de plutônio presentes na amostra irradiada. Temos, então:

$$PF = \frac{100 \cdot NF}{[U] + [Pu] + NF} \quad (21)$$

onde:

PF é a porcentagem total de átomos fissionados.

[U] é o número de átomos de U após a irradiação.

[PU] é o número de átomos de Pu após a irradiação.

NF é o número de fissões ocorridas.

APÊNDICE I

DESENVOLVIMENTO DA EXPRESSÃO PARA A DETERMINAÇÃO DA CONCENTRAÇÃO ISOTÓPICA POR ESPECTROMETRIA DE MASSA – DILUIÇÃO ISOTÓPICA

Suponhamos uma solução (A) contendo X átomos de um determinado elemento com n isótopos e com abundâncias isotópicas expressas por $a_1, a_2, a_3, \dots, a_n$, tal que $\sum_{i=1}^n a_i = 1$. O número de átomos do i-ésimo isótopo será dado por Xa_i .

Consideremos agora uma outra solução (B) contendo Y átomos do mesmo elemento também com n isótopos mas com uma composição isotópica diferente. Sejam $b_1, b_2, b_3, \dots, b_n$ as abundâncias isotópicas, temos então $\sum_{i=1}^n b_i = 1$. O número de átomos do i-ésimo isótopo será dado por Yb_i .

Numa mistura dessas duas soluções, a razão entre o número de átomos de dois isótopos genéricos i e k, será:

$$\frac{c_i}{c_k} = \frac{Xa_i + Yb_i}{Xa_k + Yb_k}$$

resolvendo para X teremos:

$$X = Y \frac{\frac{c_i}{c_k} - \frac{b_i}{b_k}}{1 - \frac{c_i}{c_k} \frac{b_k}{a_i}}$$

Fazendo $\frac{a_i}{a_k} = A_{i,k}$, $\frac{b_i}{b_k} = B_{i,k}$ e $\frac{c_i}{c_k} = C_{i,k}$ e passando a_i para o 1º temos:

$$Xa_i = Yb_k \frac{C_{i,k} - B_{i,k}}{1 - \frac{C_{i,k}}{A_{i,k}}} \quad (A_1)$$

lembrando que Xa_i e Yb_k representam respectivamente o número de átomos do isótopo i na solução A e o número de átomos do isótopo k na solução B, a expressão acima permite o cálculo da concentração isotópica de um elemento numa solução, conhecendo-se a concentração de um outro isótopo do mesmo elemento numa solução diferente e medindo-se as razões isotópicas entre os dois isótopos considerados, nas duas soluções, e numa mistura dessas soluções.

a) Aplicação para o caso da calibração dos traçadores isotópicos.

... Número de átomos de Nd-150 (expressão 10).

Na expressão deduzida acima (A_1), fazendo

$$\begin{aligned}
 X_{a_1} &= N_{50}^T \text{ (número de átomos de Nd-150 em solução dos traçadores isotópicos)} \\
 Y_{b_k} &= N_{48}^{SDC} \text{ (número de átomos de Nd-148 na solução dosada de calibração)} \\
 B_{i,k} &= C_{50/48} \text{ (razão isotópica Nd-150/Nd-148 na solução dosada de calibração)} \\
 C_{i,k} &= M_{50/48} \text{ (razão isotópica Nd-150/Nd-148 na mistura).} \\
 A_{i,k} &= S_{50/48} \text{ (razão isotópica Nd-150/Nd-148 na solução dos traçadores).}
 \end{aligned}$$

... nós vamos ter diretamente a expressão (10).

$$N_{50}^T = N_{48}^{SDC} \left[\frac{M_{50/48} - C_{50/48}}{\left(1 - \frac{M_{50/48}}{S_{50/48}}\right)} \right]$$

... Número de átomos de Pu-242 (expressão 11).

Analogamente fazendo na expressão (A_1) deste Apêndice.

$$\begin{aligned}
 X_{a_1} &= N_{42}^T \text{ (número de átomos de Pu-242 na solução dos traçadores isotópicos)} \\
 Y_{b_1} &= N_9^{SDC} \text{ (número de átomos de Pu-239 na solução dosada de calibração).} \\
 C_{i_k} &= M_{2/9} \text{ (razão isotópica Pu-242/Pu-239 na mistura)} \\
 B_{i_k} &= C_{2/9} \text{ (razão isotópica de Pu-242/Pu-239 na solução dosada de calibração)} \\
 A_{i_k} &= S_{2/9} \text{ (razão isotópica de Pu-242/Pu-239 na solução traçadora)}
 \end{aligned}$$

teremos imediatamente a expressão (11)

$$N_2^T = N_9^{SDC} \left[\frac{M_{2/9} - C_{2/9}}{\left(1 - \frac{M_{2/9}}{S_{2/9}}\right)} \right]$$

... Número de átomos de U-233 (expressão 12)

Analogamente fazendo na expressão deduzida neste Apêndice (A_1)

$$\begin{aligned}
 X_{a_1} &= N_{23}^T \text{ (número de átomos de U-233 na solução dos traçadores).} \\
 Y_{b_k} &= N_8^{SDC} \text{ (número de átomos de U-238 na solução dosada de calibração).} \\
 C_{i_k} &= M_{3/8} \text{ (razão isotópica U-233/U-238 na mistura)} \\
 B_{i_k} &= C_{1/8} \text{ (razão isotópica U-233/U-238 na solução dosada de calibração).}
 \end{aligned}$$

$A_{i,k} = S_{3/8}$ (razão isotópica U-233/U-238 na solução dos traçadores).

teremos:

$$N_3^T = N_8^{SDC} \left[\frac{M_{3/8} - C_{3/8}}{1 - \frac{M_{3/8}}{S_{3/8}}} \right]$$

b. Aplicação para o caso do cálculo do número de átomos de U e Pu presentes no combustível irradiado.

· Número de átomos de U (expressão 15)

Fazendo na expressão (A_1)

$X_{a,i} = N_{38}^{CN}$ (número de átomos de U-238 na solução do combustível nuclear).

$Y_{b,k} = N_{33}^T$ (número de átomo de U-233 na solução dos traçadores isotópicos).

$C_{1,k} = M_{8/3}$ (razão isotópica U-238/U-233 na mistura).

$B_{1,k} = S_{8/3}$ (razão isotópica U-238/U-233 na solução dos traçadores).

$A_{1,k} = R_{8/3}$ (razão isotópica U-238/U-233 na solução do combustível).

teremos:

$$N_8^{CN} = N_3^T \left[\frac{M_{8/3} - S_{8/3}}{1 - \frac{M_{8/3}}{S_{8/3}}} \right]$$

considerando que o número total de átomos de U pode ser expresso por uma relação entre o número de átomos de um determinado isótopo e a fração atômica dessa espécie, teremos:

$$U = \frac{N_8^{CN}}{A_8^{CN}}$$

onde:

U é o número de átomos de urânio, N_8^{CN} o número de átomos de U238 e A_8^{CN} a fração dos átomos de U238 no material sendo investigado.

Substituindo N_8^{CN} pela expressão anterior teremos:

$$| U | = \frac{N_3^T}{A_8^{CN}} \left[\frac{M_{8/3} - S_{8/3}}{\left(1 - \frac{M_{8/3}}{R_{8/3}}\right)} \right]$$

– Número de átomos de Pu (expressão 16)

Analogamente fazendo na expressão (A₁)

$$X_{a_i} = N_9^{CN} \text{ (número de átomos de Pu-239 na solução do combustível nuclear).}$$

$$Y_{b_k} = N_2^T \text{ (número de átomos de Pu-242 na solução dos traçadores).}$$

$$C_{i,k} = M_{9/2} \text{ (razão isotópica Pu-239/Pu-242 na mistura).}$$

$$B_{i,k} = S_{9/2} \text{ (razão isotópica Pu-239/Pu-242 na solução dos traçadores).}$$

$$A_{i,k} = R_{9/2} \text{ (razão isotópica Pu-239/Pu-242 na solução do combustível).}$$

teremos:

$$N_9^{CN} = N_2^T \left[\frac{M_{9/2} - S_{9/2}}{\left(1 - \frac{M_{9/2}}{R_{9/2}}\right)} \right]$$

lembrando que,

$$[Pu] = \frac{N_9^{CN}}{A_9^{CN}}$$

onde:

[Pu] é o número de átomos de plutônio

N_9^{CN} é o número de átomos de Pu-239, e A_9^{CN} é a fração atômica de Pu-239 no combustível.

Substituindo nessa expressão N_9^{CN} pela expressão anterior vem:

$$[Pu] = \frac{N_2^T}{A_9^{CN}} \times \left[\frac{M_{2/9} - S_{9/2}}{\left(1 - \frac{M_{9/2}}{R_{9/2}}\right)} \right]$$

APÊNDICE II

DEDUÇÃO DA EXPRESSÃO PARA O CÁLCULO DA RAZÃO ENTRE O RENDIMENTO DE FISSÃO PARA Nd-150 E Nd-148 ($E_{50/48}$) (11)

O número total de átomos de Nd-150 na solução do combustível nuclear (Nd^{CN50}) é igual ao número de átomos de Nd-150 produzidos na fissão (Nd^F50), mais o número de átomos devido a contaminação com neodímio natural (Nd^N50). Temos, então:

$$Nd^{CN50} = Nd^F50 + Nd^N50 \quad (B1)$$

O número total de átomos de Nd-148 na solução do combustível (Nd^{CN48}) será dado, analogamente, pela soma dos átomos de Nd-148 da fissão (Nd^F48), com os átomos de Nd-148 devido a contaminação natural (Nd^N48). Temos, então:

$$Nd^{CN48} = Nd^F48 + Nd^N48 \quad (B2)$$

dividindo (1) por (2) teremos:

$$\frac{Nd^{CN50}}{Nd^{CN48}} = \frac{Nd^F50 + Nd^N50}{Nd^F48 + Nd^N48} \quad (B3)$$

usando a nomenclatura do texto, temos que:

$$\frac{Nd^{CN50}}{Nd^{CN48}} = R_{50/48}$$

$$R_{50/48} = \frac{Nd^F50 + Nd^N50}{Nd^F48 + Nd^N48} \quad (B4)$$

Utilizando um raciocínio análogo, e admitindo que o número de átomos de Nd-142 na solução do combustível é somente devido à contaminação natural (Nd-142 não é formado na fissão), temos:

$$\frac{Nd^{CN50}}{Nd^{CN42}} = \frac{Nd^F50 + Nd^N50}{Nd^N42} \quad (B5)$$

ou:

$$R_{50/42} = \frac{Nd^F50 + Nd^N50}{Nd^N42} \quad (B6)$$

reescrevendo de outra forma:

$$Nd^{N42} = \frac{Ni^{F50}}{R_{50/42} \cdot \frac{Ni^{N50}}{Nd^{N42}}} \quad (B7)$$

como, na nomenclatura usada neste trabalho

$$\frac{Ni^{N50}}{Nd^{N42}} = C_{50/42}$$

temos:

$$Nd^{N42} = \frac{Ni^{F50}}{R_{50/42} - C_{50/42}} \quad (B8)$$

multiplicando ambos os membros de (B8) por Nd^{N48} e reescrevendo teremos:

$$Nd^{N48} = \frac{Ni^{F50}}{R_{50/42} - C_{50/42}} \cdot \frac{Ni^{N48}}{Nd^{N42}} \quad (B9)$$

como

$$\frac{Ni^{N48}}{Nd^{N42}} = C_{48/42}$$

vamos ter:

$$Nd^{N48} = \frac{Ni^{F50}}{R_{50/42} - C_{50/42}} \cdot C_{48/42} \quad (B10)$$

analogamente multiplicando ambos os membros de (B8) por Nd^{N50} e reescrevendo temos:

$$Ni^{F50} = Nd^{N50} \cdot (R_{50/42} - C_{50/42})$$

ou,

$$\text{Nd}^{\text{N}50} = \frac{\text{Nd}^{\text{F}50}}{R_{50/42} - R_{50/42}} \cdot C_{50/42} \quad (\text{B11})$$

de (B4), reescrevendo, teremos:

$$R_{50/48} (\text{Nd}^{\text{F}48} + \text{Nd}^{\text{N}48}) = \text{Nd}^{\text{F}50} + \text{Nd}^{\text{N}50}$$

ou,

$$R_{50/48} \text{Nd}^{\text{F}48} = \text{Nd}^{\text{F}50} + \text{Nd}^{\text{N}50} - R_{50/48} \text{Nd}^{\text{N}48}$$

dividindo ambos os membros por $\text{Nd}^{\text{F}50}$, vem:

$$R_{50/48} \frac{\text{Nd}^{\text{F}48}}{\text{Nd}^{\text{F}50}} = 1 + \frac{\text{Nd}^{\text{N}50}}{\text{Nd}^{\text{F}50}} - \frac{R_{50/48} \text{Nd}^{\text{N}48}}{\text{Nd}^{\text{F}50}}$$

$$\frac{\text{Nd}^{\text{F}48}}{\text{Nd}^{\text{F}50}} = \frac{1}{R_{50/48}} + \frac{\text{Nd}^{\text{N}50}}{\text{Nd}^{\text{F}50} \cdot R_{50/48}} - \frac{\text{Nd}^{\text{N}48}}{\text{Nd}^{\text{F}50}}$$

substituindo $\text{Nd}^{\text{N}48}$ e $\text{Nd}^{\text{N}50}$, respectivamente por (B10) e (B11) vem:

$$\frac{\text{Nd}^{\text{F}48}}{\text{Nd}^{\text{F}50}} = \frac{1}{R_{50/48}} + \frac{C_{50/42}}{(R_{50/42} - C_{50/42}) R_{50/48}} - \frac{C_{48/42}}{(R_{50/42} - C_{50/42})}$$

ou,

$$\frac{\text{Nd}^{\text{F}48}}{\text{Nd}^{\text{F}50}} = \frac{1}{R_{50/48} (R_{50/42} - R_{0/42})} [R_{50/42} - R_{50/48} C_{48/42}]$$

invertendo e lembrando que:

$$\frac{\text{Nd}^{\text{F}50}}{\text{Nd}^{\text{F}48}} = E_{50/48}$$

vem:

$$E_{50/48} = \frac{R_{50/48} (R_{50/42} - C_{50/42})}{R_{40/42} \cdot (R_{50/48} \cdot C_{42/42})}$$

que é a expressão que relaciona a razão entre os rendimentos de fissão e a razão isotópica.

APÊNDICE III

DESENVOLVIMENTO DA EXPRESSÃO PARA A CORREÇÃO DA RAZÃO Nd-148/Nd-150 NA SOLUÇÃO TRAÇADOR E COMBUSTÍVEL

O que se pretende é estabelecer uma fórmula de recorrência, para a correção da razão isotópica Nd-148/Nd-150 na solução que contém o combustível nuclear e o traçador isotópico, para o número de átomos de Nd-150 produzidos na fissão, para o número de átomos de Nd-148 originalmente presentes na solução do traçador isotópico (Nd_2O_3 , 99,5% Nd-150) e para número de átomos de Nd-148 e Nd-150 devido à contaminação com neodímio natural.

- O número de átomos de Nd-148 presente na solução combustível + traçador corrigido para os itens mencionados acima será:

$$\text{Nd}^{48} = \text{Nd}^{\text{M}48} + \text{Nd}^{\text{T}48} - \text{Nd}^{\text{N}48} \quad (\text{C1})$$

onde:

$\text{Nd}^{\text{M}48}$ é o número de átomos de Nd-148 presentes na solução do combustível + traçador.

$\text{Nd}^{\text{T}48}$ é o número de átomos de Nd-148 presentes na solução do traçador.

$\text{Nd}^{\text{N}48}$ é o número de átomos de Nd-148 presentes na solução do combustível + traçador devido à contaminação com neodímio natural.

O número de átomos de Nd-148 na solução do traçador ($\text{Nd}^{\text{T}48}$) pode ser expresso em função da razão entre os isótopos Nd-148 e Nd-150 na solução dos traçadores ($S_{48/50}$) multiplicada pelo número de átomos de Nd-150 na solução dos traçadores, que numa primeira aproximação é igual ao número de átomos de Nd-150 na solução do combustível + traçador, expresso por $\text{Nd}^{\text{M}50}$; $\text{Nd}^{\text{M}50}$; Temos,

$$\text{Nd}^{\text{T}48} = S_{48/50} \cdot \text{Nd}^{\text{M}50} \quad (\text{C2})$$

Analogamente, o número de átomos de Nd-148 devido à contaminação natural ($\text{Nd}^{\text{N}48}$) pode ser expresso em função da razão entre os isótopos Nd-148 e Nd-142 no neodímio natural ($C_{48/42}$) multiplicada pelo número de átomos de Nd-142 na solução do combustível + traçador, ($\text{Nd}^{\text{M}42}$). Temos, então:

$$\text{Nd}^{\text{N}48} = C_{48/42} \cdot \text{Nd}^{\text{M}42} \quad (\text{C3})$$

(O Nd-142 não é produzido na fissão).

Substituindo (C2) e (C3) em (C1), temos:

$$\text{Nd}^{48} = \text{Nd}^{\text{M}48} + S_{48/50} \cdot \text{Nd}^{\text{M}50} - C_{48/42} \cdot \text{Nd}^{\text{M}42} \quad (\text{C4})$$

O número de átomos de Nd 150 na solução de combustível + traçador corrigido para o Nd-150 produzido por fissão, e para o Nd 150 de contaminação natural, pode ser expresso por:

$$Nd^{*50} = Nd^{M50} - Nd^{F50} - Nd^{N50} \quad (C5)$$

onde:

Nd^{M50} é o número de átomos de Nd-150 na solução de combustível + traçador.

Nd^{F50} é o número de átomos de Nd-150 produzidos na fissão; e

Nd^{N50} é o número de átomos de Nd-150 presentes na solução do combustível + traçador devido à contaminação com neodímio natural.

Analogamente ao que foi feito na correção do Nd^{M48} para contaminação natural, o número de átomos de Nd-150 provenientes de uma contaminação com neodímio natural, pode ser expresso pela seguinte relação:

$$Nd^{N50} = C_{50/42} \cdot Nd^{M42} \quad (C6)$$

onde $C_{50/42}$ é a razão entre os isótopos 150 e 142 no neodímio natural.

O número de átomos de Nd-150 produzidos por fissão (Nd^{F50}), pode ser expresso em função da razão entre os rendimentos de fissão para os isótopos Nd-150 e Nd-148 ($E_{50/48}$), multiplicada pelo número de átomos de Nd-148 produzidos por fissão, que numa segunda aproximação é igual ao número de átomos de Nd-148 na solução do combustível + traçador (Nd^{M48}). Temos, então:

$$Nd^{F50} = E_{50/48} \cdot Nd^{M48} \quad (C7)$$

Substituindo (C7) e (C6) em (C5), teremos:

$$Nd^{*50} = Nd^{M50} - E_{50/48} \cdot Nd^{M48} - C_{50/42} \cdot Nd^{M42} \quad (C8)$$

Dividindo (C4) por (C8), temos:

$$\frac{Nd^{*48}}{Nd^{*50}} = \frac{Nd^{M48} - S_{48/50} \frac{Nd^{M50}}{Nd^{M48}} - C_{48/42} \frac{Nd^{M42}}{Nd^{M48}}}{Nd^{M50} - E_{50/48} \cdot Nd^{M48} - C_{50/42} \cdot Nd^{M42}}$$

colocando Nd^{M48} e Nd^{M50} em evidência, respectivamente no numerador e denominador, temos:

$$\frac{Nd^{*48}}{Nd^{*50}} = \frac{Nd^{M48} \left[1 - S_{48/50} \left(\frac{Nd^{M50}}{Nd^{M48}} \right) - C_{48/42} \left(\frac{Nd^{M42}}{Nd^{M48}} \right) \right]}{Nd^{M50} \left[1 - E_{50/48} \left(\frac{Nd^{M48}}{Nd^{M50}} \right) - C_{50/42} \left(\frac{Nd^{M42}}{Nd^{M50}} \right) \right]}$$

reescrivendo na nomenclatura usada no texto, teremos:

$$M_{48/50}^* = M_{48/50} \left[\frac{1 - S_{48/50} \cdot M_{50/48} - C_{48/42} \cdot M_{42/48}}{1 - E_{50/48} \cdot M_{48/50} - C_{50/42} \cdot M_{42/50}} \right]$$

Uma expressão mais precisa para a correção da razão $M_{48/50}$ envolveria também a correção das razões $M_{50/48}$ e $M_{42/50}$ que aparecem na expressão de correção.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS, Philadelphia, Pa. *Designation: E-321-75* - Standard method of test for atom percent fission in uranium and plutonium fuel. (Neodymium-148 method). Philadelphia, Pa., 1975.
2. FUDGE, A. S. A review of experimental methods for the determination of nuclear fuel burn-up. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna. *Reactor burnup physics: proceedings... Vienna, 12-16 July 1971*. Vienna, 1973. p.239-48.
3. _____ et alii. The determination of burnup in nuclear fuel test specimens using stable fission-product isotopes and isotopic dilution. In: ANALYTICAL chemistry in nuclear reactor technology: fifth conference, Gatlinburg, Tenn., October 10-12, 1961. Oak Ridge, Oak Ridge National Lab., June 1962. p.152-65.
4. GARNER, E. L. et alii. *Uranium isotopic standard reference materials*. Washington, D. C., National Bureau of Standards, Apr. 1971. (NBS-Special publication 260-27).
5. GORIS, P. et alii. Uranium determination by the isotope dilution technique. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 29(11):1590-2, 1957.
6. HUEBOTTER, P. R. Nuclear fuel burnup conversions. *Nucleonics*, New York, 18(11):176-7, 1960.
7. LISIMAN, F. L. et alii. Fission yields of over 40 stable and long-lived fission products for thermal neutron fissioned at U^{233} , U^{235} , Pu^{239} , and Pu^{241} and fast reactor fissioned U^{235} and Pu^{239} . *Nucl. Sci. Engng*, Hirsdale, Ill., 42:191-214, 1970.
8. MONCASSOLI-TOSI, A. M et alii. Post-irradiation burnup analysis of Trino-Vercellese Reactor fuel elements. Comparison with theoretical results. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna. *Reactor burnup physics: proceedings... Vienna, 12-16 July 1971*. Vienna 1973. p.197-225.
9. RIDER, B. F. et alii. *Accurate nuclear fuel burnup analysis: thirteenth quarterly progress report, December 1964 - February 1965*. São Jose, Calif., General Electric Co., Vallecitos Atomic Lab., Mar. 1965. (GEAP-4817).
10. _____ et alii. *The determination of uranium burnup in MWD/ton*. Plessanton, Calif., General Electric Co., Vallecitos Atomic Lab., Mar. 1960. (GEAP-3373).
11. ROZETT, R. W. Isotope abundances from mass spectra. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 46(14):2085-9, 1974.

12. STUDIER, M. H. et alii. The chemistry of uranium in surface ionization sources. *J. phys. Chem.*, 66:133-4, 1962.