

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

Jorge Eduardo de Souza Sarkis , Cláudio Rodrigues

IPEN-CNEN/SP
CAIXA POSTAL 11049
CEP 05422-970 , SÃO PAULO , S.P., BRASIL
e-mail : jesarkis@net.ipen.br

RESUMO

Neste trabalho são propostas varias correlações isotópicas entre os nuclídeos ^{241}Am e ^{243}Am envolvendo dados de caracterização isotópica de 8 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 destes nuclídeos puderam ser estimadas com um desvio porcentual relativo aos dados experimentais menores do que 10% em média .

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 à 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 aqueles de quantidade equivalente de minério de urânio .

Segundo Koch [1] , baseado em dados da literatura[2] , até o ano 2000, considerando-se apenas os países de economia aberta, serão produzidas dezenas de toneladas de amerício, cúrio e neptúnio .

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 aumenta o risco radiológico [3] a longo prazo. O reprocessamento deste material visa a recuperação de urânio e plutônio presentes para sua posterior reutilização [4] enquanto que os demais actinídeos e produtos de fissão permanecem nos rejeitos do processo. A recuperação dos elementos actinídeos amerício, cúrio e neptúnio, vem sendo estudada de modo a reduzir-se ainda mais os [5] riscos radiológicos de armazenamento a longo prazo .

Uma opção que vem sendo estudada para o destino final destes nuclídeos consiste na sua reutilização em combustíveis de reatores rápidos de potência [6] . Esta

técnica , conhecida como transmutação nuclear permite , por meio de reações nucleares tais como captura de neutrons, fissão, $(n,2n)$ etc., sua transformação ou em nuclídeos estáveis ou de meia-vida curta ou simplesmente em nuclídeos enos perigosos [7] .

A partir de 1975 com o desenvolvimento de estudos para reutilização dos elementos amerício, cúrio e neptúnio, a transmutação nuclear tomou novo impulso sendo hoje considerada como uma opção para a eliminação de elementos actinídeos com as seguintes vantagens [7] : melhor utilização do potencial energético do urânio, simplificação dos procedimentos para o armazenamento dos rejeitos, 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 a água pressurizada de cerca de 2% para reatores regeneradores rápidos.

Embora a transmutação nuclear ainda não seja uma técnica universalmente aceita [8] uma das consequências do progresso dos estudos nesta área foi o aumento do interesse comercial dos actinídeos outrora considerados rejeitos nucleares e a necessidade do desenvolvimento de metodologias para sua análise e previsão de formação .

Uma das técnicas potencialmente promissoras é a 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 [9] .

Durante a descarga e armazenamento do combustível nuclear irradiado, o amerício é um dos

principais responsáveis pela atividade alfa deste material. Formado por três isótopos de meia-vida longa [10] (^{241}Am = 432,6 anos; ^{242}Am = 141 anos; ^{243}Am = 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 [11], baseado em dados fornecidos pela International Commission on Radiological Protection [12], o amerício se apresenta como um dos elementos de maior risco no que diz respeito aos limites de ingestão e inalação permissíveis aos trabalhadores.

No passado algumas correlações isotópicas com os nuclídeos ^{241}Am e ^{243}Am foram estudadas para combustíveis de diferentes reatores nucleares [13]. A metodologia para determinação da concentração destes nuclídeos nas amostras baseou-se na medida das razões isotópicas $^{242}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ e $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ por meio da técnica de espectrometria de massa e a determinação da concentração do nuclídeo ^{241}Am por meio da técnica de espectrometria alfa [14]. Os resultados encontrados não foram satisfatórios já que segundo Koch e Wellum [15] a determinação quantitativa destes nuclídeos, 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 nuclídeo ^{243}Am , 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 [16]. 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.

OBJETIVO DESTE TRABALHO

O 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 formados por transmutação nuclear durante a irradiação de combustíveis nucleares em reatores de potência.

A técnica escolhida foi a de correlação isotópica.

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

PARTE EXPERIMENTAL

A parte experimental deste trabalho foi desenvolvida junto ao grupo de radioquímica e análise isotópica do Institut für Transurium Elements, localizado no Kernforschungszentrum Karlsruhe, KFK, na cidade de Karlsruhe, Alemanha Ocidental.

Caracterização das amostras. Existem diversas estratégias para a obtenção de dados para o estudo de correlações isotópicas [9].

Neste trabalho adotou-se um modelo baseado em dados de caracterização química e isotópica provenientes de um mesmo reator nuclear. Assim sendo, 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 e pertencem a planta nuclear de Obrigheim equipada com um reator a água pressurizada com 350 MWe de potência [17].

A concentração isotópica dos isótopos de urânio, plutônio [18] e amerício [19] foram obtidas por meio da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa. A queima sofrida pelas amostras foi determinada pelos métodos radioquímico, ^{137}Cs [20] e espectrometria de massa, ^{148}Nd [21]. Os dados relacionados aos produtos de fissão gasosos foram fornecidos pelos operadores da planta de dissolução.

Crítérios 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 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 [22] e para equações do primeiro e segundo grau. A avaliação do grau do polinômio foi feita por meio da análise da variância.

Para conjuntos de dados em que ambos os ajustes são adequados faz-se uma avaliação do comportamento dos resíduos. Se a diferença entre os termos referentes a regressão obtidos pelos ajustes forem da mesma ordem de grandeza dos resíduos 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 varia entre zero e um. Nos casos em que os pontos estiverem bem ajustados a soma dos quadrados dos resíduos será pequena e o valor de $R^2 \approx 1$.

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

No caso do ajuste linear a equação foi, na prática, usada para estimar a concentração das amostras por interpolação e os limites de detecção dos procedimentos

analíticos. A imprecisão admitida para os parâmetros a e b foi de 15%.

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

Assim sendo 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 ;
- 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.

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Em todo o estudo realizado [23] foram definidas cerca de 21 correlações isotópicas para cada nuclídeo de interesse. Neste trabalho, entretanto, serão apresentadas apenas alguns exemplos de cada tipo estudado.

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.

Todos os dados de concentração isotópica apresentados neste trabalho referem-se a concentração relativa ao número de átomos pesados inicialmente presentes no combustível (IMA)

Nas Tabelas 1 a 5 são apresentados os resultados dos ajustes encontrados, critérios estatísticos ($E\%$ =precisão 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). Observa-se algumas amostras embora ajustem-se bem a certos conjuntos de dados e serem consideradas fora de ajuste para outros. As razões para este comportamento podem ser atribuídas a erros experimentais na medida de um dos parâmetros ou a fatores associados as 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 [13], 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 $^{240}\text{Pu}/\text{IMA}$ e $^{241}\text{Pu}/\text{IMA}$ para as quais o melhor ajuste foi obtido por meio de equação parabólica.

A amostra 740 foi considerada fora de ajuste para todas as correlações envolvendo o nuclídeo ^{241}Am este comportamento foi atribuído a erros experimentais.

TABELA 1 - Correlações Isotópicas entre a Concentração Isotópica do nuclídeo ^{241}Am *Versus* Razões Isotópicas

Razão	N	$^{241}\text{Am}/\text{IMA} = A + BX + CX^2$						
		A	EX	B	EX	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
$\frac{^{238}\text{U}}{^{239}\text{Pu}}$	6	$-3,565 \times 10^{-5}$	1,35	$2,071 \times 10^{-2}$	0,09	95,2	0,09	740
$\frac{^{146}\text{Nd}}{^{145}\text{Nd}}$	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
$\frac{^{131}\text{Xe}}{^{134}\text{Xe}}$	6	$2,264 \times 10^{-4}$	0,43	$-5,980 \times 10^{-4}$	0,85	90,0	0,85	740
$\frac{^{132}\text{Xe}}{^{131}\text{Xe}}$	6	-	-	$1,335 \times 10^{-5}$	0,01	99,9	0,01	740
$\frac{^{132}\text{Xe}}{^{134}\text{Xe}}$	6	$-1,466 \times 10^{-4}$	0,55	$2,640 \times 10^{-4}$	0,23	92,3	0,23	740
$\frac{^{136}\text{Xe}}{^{134}\text{Xe}}$	6	$-2,240 \times 10^{-4}$	0,08	$1,792 \times 10^{-4}$	0,05	96,5	0,05	740
$\frac{^{84}\text{Kr}}{^{83}\text{Kr}}$	6	$-1,119 \times 10^{-4}$	0,04	$6,171 \times 10^{-5}$	0,01	98,1	0,01	740
$\frac{^{84}\text{Kr}}{^{86}\text{Kr}}$	6	$-3,104 \times 10^{-4}$	0,16	$5,887 \times 10^{-4}$	0,10	94,8	0,10	740
$\frac{^{83}\text{Kr}}{^{86}\text{Kr}}$	6	$2,911 \times 10^{-4}$	0,02	$-1,036 \times 10^{-3}$	0,04	96,7	0,04	740

TABELA 2 - Correlações Isotópicas entre a Concentração Isotópica do nuclídeo ^{241}Am *Versus* Concentrações Isotópicas

CI	N	$^{241}\text{Am}/\text{IMA} = A + BX + CX^2$						
		A	EX	B	EX	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

O nuclídeo ^{243}Am apresentou um comportamento mais complexo que pode ser entendido pela sua cadeia de

formação . Embora tenha se correlacionado preferencialmente por meio de equações do segundo grau ocorrem casos de equações de segundo grau e parabólicas.

TABELA 3 - Correlações Isotópicas entre a Concentração Isotópica do nuclídeo ²⁴³Am Versus Razões Isotópicas

Razão	²⁴³ Am/IMA = A+BX+CX ²									
	N	A x10 ⁻⁵	EX	B x10 ⁻⁴	EX	C x10 ⁻⁴	EX	R ²	F	PFA
²³⁸ U	8	24.18	0,01	-258,3	0,15	6964	1,2	98,33	0,01	-
²³⁸ U	6	48.50	10,9	-3171	8,01	528800	5,27	97,56	0,38	741 747
¹⁴⁶ Nd	6	276.0	0,08	-64,39	0,05	37,69	0,04	99,92	0,01	742 744
²⁴⁰ Pu	7	-	-	-1,872	0,01	8,059	0,01	99,86	0,01	739
²⁴² Pu	7	-5.206	0,18	3,193	0,01	-	-	97,63	0,01	744
²⁴⁰ Pu	6	-6,975	0,14	6,996	0,01	-	-	98,52	0,01	744 741
¹³² Xe	6	42,40	6,36	-4,692	3,95	1,313	2,25	99,37	0,05	740
¹³¹ Xe	6	-	-	-5,794	0,07	9,047	0,05	99,07	0,29	740 743
¹³¹ Xe	5	254,1	3,07	-140,5	3,98	193,7	5,13	99,92	0,38	745 739
¹³⁸ Xe	5	539,0	13,1	-78,96	11,9	28,94	10,70	99,25	0,75	745
⁸⁴ Kr	6	-39,46	0,07	1,792	0,05	-	-	98,97	0,05	739 744
⁸⁶ Kr	6	988,5	10,2	-350,9	9,22	311,7	8,30	98,31	0,22	739
⁸³ Kr	6	509,3	10,3	-388,7	12,0	742,4	13,9	98,10	0,26	743

TABELA 4 - Correlações Isotópicas entre a Concentração Isotópica do nuclídeo ²⁴³Am Versus Concentrações Isotópicas

CI	²⁴³ Am/IMA = A+BX+CX ²									
	N	A x10 ⁻⁵	EX	B x10 ⁻¹	EX	C	EX	R ²	F	PFA
²³⁸ U IMA	8	24,09	0,01	-28,95	0,10	0,7642	0,76	98,58	0,01	-
²³⁸ U IMA	6	65,81	10,7	4,377	8,25	73,94	5,9	96,95	0,53	744 747
²⁴⁰ Pu IMA	6	-1,90	9,16	7,628	0,02	-	-	94,96	0,02	744
²⁴⁰ Pu IMA	6	5,599	10,9	-1,000	4,88	50,37	0,99	98,96	0,01	747
²⁴¹ Pu IMA	5	7,185	0,38	-2,414	0,26	211,5	0,13	99,97	0,03	731-739-747
¹³⁷ Cs IMA	6	6,753	0,4	-1,206	0,08	59,38	0,01	99,80	0,01	-

No conjunto das equações definidas não foi observado influência do enriquecimento inicial das amostras já que a amostra 747 ajustou-se bem a maioria das correlações estudadas . Observou-se, também , uma maior dificuldade de correlacionamento das amostras de baixa queima , principalmente a amostra 744 . Em ambos os casos , entretanto , estas observações devem ser vistas com reservas pois o número de amostras analisadas foi muito pequeno

TABELA 5 - Correlações Isotópicas Concentração Isotópica Versus Parâmetros do Reator

PR	²⁴³ Am/IMA=A+BX+CX ²									
	N	A x10 ⁻⁵	E%	B x10 ⁻⁴	E%	C x10 ⁻⁴	E%	R ²	F	PFA
¹ FT	8	9,88	12,5	-1,079	5,63	3,187	1,29	97,46	0,01	-
² D5	7	-2,782	0,06	1,086	1,48	6,614	0,25	99,63	0,53	744 745

PR	²⁴¹ Am/IMA=A+BX							R ²	F	PFA
	N	Ax10 ⁻⁵	E%	Bx10 ⁻⁴	E%	R ²				
¹ FT	7	-1,167	3,4	2,001	0,01	97,40	0,01	740		
² D5	7	-2,782	0,0	1,086	0,01	98,74	0,01	740		

¹Queima do combustível

²Depleção

Nas tabelas 6 e 7 são apresentados uma comparação dos valores de concentração isotópica dos nuclídeos estudados obtidos experimentalmente por meio da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massas [19] e aqueles estimados utilizando-se as correlações isotópicas estudadas neste trabalho . De modo a avaliar a consistência interna dos dados , para cada nuclídeo , e para cada amostra , foram calculados os

valores médios estimados (\bar{M}) , desvio padrão percentual (%), e desvio percentual da média relativo aos dados experimentais .

Os resultados mostram que, tomando-se quer o conjunto total das equações quer as correlações individuais, a concentração do nuclídeo ²⁴¹Am pode ser estimada com uma precisão interna média de 4% e exatidão , em relação aos dados obtidos experimentalmente, de cerca de 4 % em valores absolutos . Mesmo para a amostra 740 , considerada fora de ajuste para todas as equações estudadas e com problemas de contaminação , fica evidente a consistência das equações definidas neste trabalho .

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

CONCLUSÕES

Os resultados apresentados neste trabalho demonstram claramente o potencial da técnica de correlação isotópica quer na verificação da consistência de resultados analíticos provenientes da caracterização isotópica de combustíveis nucleares irradiados quer na avaliação e previsão de formação do conteúdo isotópico dos principais nuclídeos envolvidos durante o processo de fissão nuclear sendo, portanto, um importante instrumento no campo salvaguardas do material nuclear.

Conclui-se também, que os critérios estatísticos adotados foram compatíveis com o número de amostras analisadas e, principalmente, com a diversidade de valores

Foram também estudadas correlações isotópicas envolvendo o nuclídeo ^{242}Am . Entretanto, devido a sua pequena taxa de formação os resultados obtidos apresentaram desvios muito grandes de queima por elas apresentadas.

TABELA 6 - 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
Parâmetros	5,030	4,090	2,911	5,231	3,994	2,158	4,095	6,104
Queima (FT)	4,856	32,41	2,755	5,456	4,316	2,155	4,136	5,837
DS	4,888	28,66	2,693	5,214	4,214	2,237	4,192	6,071
$^{235}\text{U}/\text{IMA}$	4,881	25,71	2,723	5,185	4,252	2,219	4,173	6,096
$^{238}\text{U}/\text{IMA}$	5,379	35,56	2,761	5,017	-	2,163	4,784	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	5,228	4,841	2,393	4,306	5,492
$^{241}\text{Pu}/\text{IMA}$	4,593	30,42	2,630	5,449	4,682	2,088	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
$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	4,885	25,86	2,728	5,158	4,235	2,226	4,175	6,123
$^{238}\text{U}/^{238}\text{U}$	4,702	19,36	2,677	5,178	4,358	2,263	4,232	-
$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	4,854	27,59	2,691	5,184	4,148	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
$^{148}\text{Nd}/^{148}\text{Nd}$	4,624	35,43	2,574	-	4,205	2,379	4,417	6,079
$^{83}\text{Kr}/^{88}\text{Kr}$	4,942	26,23	2,736	5,397	3,709	2,457	4,165	*
$^{84}\text{Kr}/^{88}\text{Kr}$	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	4,488	2,351	4,534	*
$^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$	4,907	30,12	2,688	5,351	4,093	2,387	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	*
$\bar{R} \pm \text{DX}$	4,795	-	2,698	5,238	4,238	2,307	4,189	5,961
	4,7		2,2	3,2	5,1	5,2	5,8	4,6
DPH	4,2	-	7,4	0,1	6,1	-7,2	-2,3	2,3

TABELA 7 - Avaliação da concentração do nuclídeo ^{243}Am por meio das equações definidas neste trabalho

Amostra Valor expg rimental	$^{243}\text{Am}/\text{IMA} \times 10^{-5}$							
	739	740	741	742	743	744	745	747
Parâmetros	5,708	7,967	1,038	8,681	4,698	0,576	4,105	12,18
Queima (FT)	6,261	8,859	0,967	9,084	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	7,738	1,057	7,938	4,475	0,544	4,231	12,32
$^{238}\text{U}/\text{IMA}$	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	0,638	4,195	-
$^{241}\text{Pu}/\text{IMA}$	-	7,960	-	8,673	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
$^{238}\text{U}/^{238}\text{U}$	6,248	7,203	1,030	8,932	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	7,880	4,549	-	4,277	12,18
$^{148}\text{Nd}/^{148}\text{Nd}$	5,912	7,926	1,054	-	4,647	-	3,989	12,13
$^{83}\text{Kr}/^{88}\text{Kr}$	6,536	7,538	0,928	8,527	-	0,699	3,789	*
$^{84}\text{Kr}/^{88}\text{Kr}$	-	7,918	0,929	8,439	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	5,400	0,503	3,772	*
$^{136}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$	-	7,457	0,944	8,957	4,971	0,624	-	*
$\bar{R} \pm \text{DX}$	6,096	7,935	0,995	8,431	4,702	0,596	4,131	12,08
	8	5,4	9,4	5	7,4	12,7	6,3	4,1
DPH	-7,6	0,4	3,8	3	0,4	3,5	0,06	0,6

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] 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.
- [2] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Reprocessing, plutonium handling, recycle: report of INFCE working group 4. Vienna, 1980.
- [3] 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).
- [4] 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.

[5] KOCH, L. **Minor actinide transmutation: a waste management option.** J. Less-Common Met., 122:371-82, 1986.

[6] BREEN, R.J. **Elimination of actinides with LMFBR recycle.** Trans. Am. Nucl. Soc. 21:262-3, 1975.

[7] 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,

[8] 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.

[9] SARKIS, JORGE EDUARDO DE S. ; RODRIGUES C. - **CORRELAÇÕES ISOTÓPICAS EM COMBUSTÍVEIS NUCLEARES IRRADIADOS .** Neste congresso .

[10] 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).

[11] COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR **Diretrizes Básicas de Radioproteção.** Rio de Janeiro, Jul. 19, 1988 (CNEN-NE-3.01).

[12] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. **Limits for Intakes of Radionuclides by Workers.** Oxford, N.Y., July, 1978. (ICRP-30, suppl. Pt.I). (13) 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).

[14] KOCH, L. & GEERLINGS, M.W. **Bestimmung der Konzentration und Isotopenhäufigkeit von Americium und Curium.** Radiochim. Acta 11:49-52, 1969.

[15] 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).

[16] GANSER, B. **Analyse und ein Gewinnungsverfahren des Americiums in Kernbrennstoffzyklus der Druckwasser Reactors.** Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Juli 1982 (KFK-3380).

[17] KOMMISSION DER EUROPAISCHEN GEMEINSCHAFTEN. **Kernkraftwerk Obrigheim: jahresbericht 1973.** Brussels, Dec. 1974 (EUR-5315d).

[18] SARKIS, JORGE EDUARDO DE S. ; RODRIGUES, C. **Determinação da Concentração e Composição Isotópica de Urânio e Plutônio em Combustíveis Nucleares Irradiados .** Anais do IV Congresso Geral de Energia Nuclear, Rio de Janeiro, 5 a 9 de Julho de 1992, Vol 1. pp. 177 - 182

[19] SARKIS, JORGE EDUARDO DE S. ; RODRIGUES, C. **Determinação da Concentração de Americio em Combustíveis Nucleares Irradiados .** Neste Congresso

[20] SARKIS, JORGE EDUARDO DE S. ; RODRIGUES, C. **DETERMINAÇÃO DA QUEIMA EM COMBUSTÍVEIS NUCLEARES IRRADIADOS POR MEIO DA MEDIDA DO PRODUTO DE FISSÃO ¹³⁷Cs .** Neste congresso .

[21] SARKIS, JORGE EDUARDO DE S. ; RODRIGUES, C. **Determinação da Queima em Combustíveis Nucleares Irradiados Pelo Método do Produto Estável de Fissão ¹⁴⁸Nd .** Anais do IV Congresso Geral de Energia Nuclear, Rio de Janeiro, 5 a 9 de Julho de 1992, Vol 1. pp. 171 - 175

[22] DANIEL, C. & WOOD, F. **Fitting Equations to Data.** New York, N.Y., John Wiley, 1980

[23] SARKIS, JORGE EDUARDO DE S. - **Aplicação da Técnica de Correlação Isotópica para a Determinação da Concentração dos Nuclídeos ²⁴¹Am e ²⁴³Am em Combustíveis Nucleares Irradiados .** São Paulo, 1990 (Tese de Doutorado, Instituto de pesquisas Energéticas e Nucleares)

ABSTRACT

This work discusses the use the isotope correlation technique as a prognosis tool for americium isotopes produced during the irradiation of nuclear fuels in a nuclear power reactor . The results obtained by this technique allowed to estimate the isotope composition and isotopic concentration of ²⁴¹Am and ²⁴³Am with an average deviation of 10% ,relative to the experimental values obtained by using the isotope dilution mass spectrometry technique .