

CORRELAÇÕES ISOTÓPICAS 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

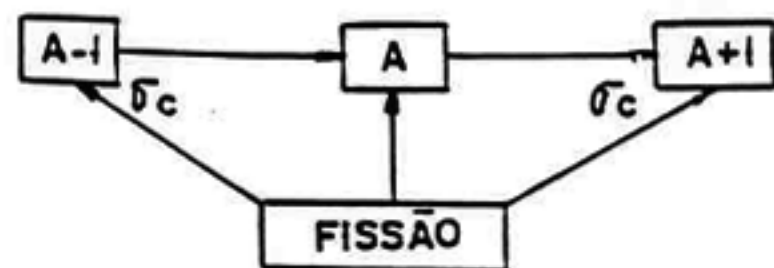
Durante a irradiação de um combustível em um reator nuclear sua composição isotópica muda como resultado das reações de fissão e transmutação nuclear . Estas mudanças na composição original dependem de parâmetros de irradiação e parâmetros do reator e podem ser correlacionadas por meio de equações matemáticas denominadas correlações isotópicas . As correlações isotópicas mais comumente utilizadas envolvem concentrações isotópicas , razões isotópicas e parâmetros do reator nuclear . Neste trabalho será feita uma análise crítica da técnica de correlação isotópica comparando seus resultados com aqueles obtidos por meio de técnicas experimentais .

INTRODUÇÃO

No ciclo do combustível nuclear , durante a irradiação do elemento combustível , são utilizados urânio natural , urânio enriquecido , urânio reciclado e algumas vezes plutônio , amerício e cúrio. A concentração destes elementos e seus isótopos mais importantes (^{235}U , ^{238}U , ^{238}Pu , ^{239}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 , ^{243}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm , etc., assim como a formação de produtos de fissão, como por exemplo ^{137}Cs , ^{148}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 [1] 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 Maeck [2] propõe um "novo conceito para a determinação da queima" baseado na medida da razão isotópica entre produtos de fissão. Segundo Maeck, 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 absorção de nêutrons de A (σ_c^A) e $A-1$ (σ_c^{A-1}) forem insignificantes ou iguais 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 é grande, a produção relativa de A diminui com o número de fissões (Figura 1).

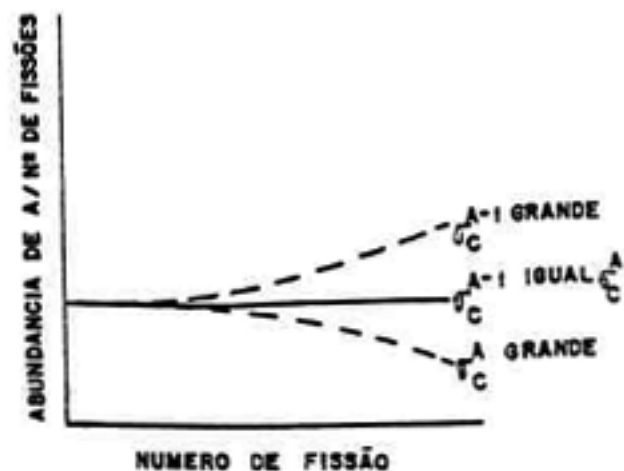
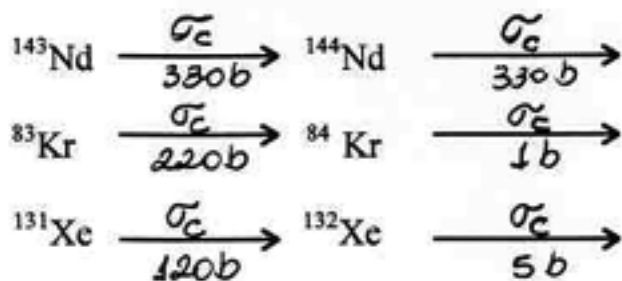


Figura 1. Variação de abundância isotópica do nuclídeo "A" com o número de fissões.

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



A razão $A/A+1$ é uma função exponencial crescente com o tempo de irradiação e, conseqüentemente, com o número de fissões como representado na figura 2.



Figura 2. Variação de razão isotópica $A+1/A$ com o número de fissões

Estabelecidos 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 ;
- 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, procurou-se estabelecer 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 ${}^{235}\text{U}$, atividades de produtos de fissão selecionados, etc.

No final dos anos 60 ,com a divulgação 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 em 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 [3 , 4].

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;
- compreensão da dependência das correlações com parâmetros tais como: enriquecimento inicial do nuclídeo ${}^{235}\text{U}$, 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 quanto a seções de choque efetiva, e sua dependência 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 em relação aos dados experimentais, comparáveis àqueles encontrados em programas analíticos de intercomparação [5,6].

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 [7 , 8 , 9 , 10] .

DEFINIÇÃO DE CORRELAÇÕES ISOTÓPICAS

Conforme 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 diferenciais do tipo:

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

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:

$$Y_0 = B_0 + B_1 X \quad (2)$$

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

$$Y_0 = B_0 + B_1 X + B_2 X^2 \quad (3)$$

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 e 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 destrutivos, o que se procura é determinar uma composição e concentração isotópica média representativa deste elemento combustível ou de um conjunto de elementos combustíveis [11,12].

A escolha das variáveis a serem utilizadas dependem da facilidade de medida de seus termos, precisão, exatidão dos parâmetros envolvidos assim como a finalidade a que se destinam. Existe na literatura diferentes métodos para criação e seleção destes termos [13] 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 já que medidas de razões isotópicas possuem as seguintes vantagens:

- podem ser realizadas com um alto grau de precisão por meio da técnica de espectrometria de massa;
- não exigem grandes esforços analíticos quando comparadas com as medidas de queima e concentração isotópica;
- não são influenciadas por instabilidades da amostra tais como: radiólise, hidrólise, evaporação;
- não são influenciadas 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 frequentemente 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 aos operadores de reatores, centrais de reprocessamento e pesquisadores de química quente avaliar a quantidade de actínidos 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 [14] 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 primeira 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.

OBJETIVO DESTE TRABALHO

Este trabalho tem como objetivo demonstrar o potencial da técnica de correlação isotópica na caracterização química e isotópica de combustíveis nucleares irradiados assim como na previsão de formação de actínidos e produtos de fissão.

PARTE EXPERIMENTAL

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

A planta nuclear de Obrigheim é operada pela Kernkraftwerk Obrigheim estando equipada com um reator a água pressurizada, PWR 1, com 350 MWe de potência [15].

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.

A estratégia adotada na parte experimental deste trabalho consiste em, obter-se um quadro completo da composição química e isotópica do combustível nuclear irradiado, a partir de um simples dado analítico.

Assim sendo, inicialmente determinou-se a concentração dos nuclídeos ^{137}Cs por meio da técnica de espectrometria gama [16]. Baseado nestes valores e utilizando-se de correlações isotópicas encontradas na literatura, tabela 1, fez-se uma avaliação inicial de algumas razões isotópicas assim como da concentração isotópica de urânio, plutônio e amerício relativa ao número de átomos pesados inicialmente presentes nas amostras (IMA).

TABELA 1 - Correlações isotópicas existentes na literatura

Y	A	B	X	REATOR	REFERÊNCIA
FT	(-)5,08	3,46	$\frac{^{132}\text{Xe}}{^{131}\text{Xe}}$	GUNDRECHINGEN	18
DS	0,190	0,163	FT	OBRIGHEIM	19
$\frac{^{238}\text{U}}{\text{IMA}}$	$4,92 \times 10^{-4}$	$1,21 \times 10^{-2}$	DS	OBRIGHEIM	19
$\frac{^{238}\text{U}}{\text{IMA}}$	$5,45 \times 10^{-4}$	$1,19 \times 10^{-3}$	FT	LWR	23
$\frac{^{238}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	(-)2,81 $\times 10^{-4}$	$1,59 \times 10^{-4}$	$\frac{^{132}\text{Xe}}{^{131}\text{Xe}}$	PWR	23
$\frac{^{238}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	$3,87 \times 10^{-3}$	$3,38 \times 10^{-4}$	FT	OBRIGHEIM	19
$\frac{^{240}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	(-)3,03 $\times 10^{-4}$	$2,04 \times 10^{-3}$	$\frac{^{132}\text{Xe}}{^{131}\text{Xe}}$	PWR	23
$\frac{^{241}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	(-)5,71 $\times 10^{-5}$	$3,77 \times 10^{-4}$	FT	OBRIGHEIM	19
$\frac{^{243}\text{Am}}{\text{IMA}}$	(-)3,43 $\times 10^{-5}$	$2,52 \times 10^{-5}$	FT	OBRIGHEIM	10
$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$	$4,93 \times 10^{-2}$	0,585	$\frac{^{240}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	PWR	23
$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$	(-)8,42 $\times 10^{-2}$	145	$\frac{^{240}\text{Pu}}{\text{IMA}}$	OBRIGHEIM	19
$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{241}\text{Pu}}$	(-)10,309	1,68	$\frac{^{240}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	OBRIGHEIM	19

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Sobre o reator de Obrigheim existem na literatura diversos trabalhos específicos em que são apontados diversas correlações isotópicas. Contudo, e de modo a evidenciar-se a universalidade desta técnica foram utilizadas equações obtidas para diferentes reatores a água leve [17,18,19].

Nas Tabelas 2 e 3 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 , onde 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.

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

$$^{238}\text{U} = (\text{U/Pu}) * (^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu} + ^{241}\text{Pu} + ^{242}\text{Pu}) \quad (4)$$

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

O fator de depleção do nuclídeo ^{235}U (D5) é definido como: $D5 = \frac{(^{235}\text{U} - ^{235}\text{U}_f)}{^{235}\text{U}_i}$, onde as notações "i" e "f" designam enriquecimento inicial e final do nuclídeo ^{235}U .

Tabela 2. Comparação entre os valores experimentais (EX) de concentração isotópica e depleção do nuclídeo ^{235}U com aqueles obtidos por meio da técnica de correlação isotópica (CI).

Parâmetro	D5	^{238}U	^{238}U	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{243}Am
Amostra		x	x	x	x	x	x	x
		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	3,808	10,190	4,555	0,576
DX	-1,8	4,9	-8,1	-19,4	13,8	4,67	-29,8	-58,2
741(CI)	0,4997	2,802	9,619	4,058	4,512	10,77	6,502	1,365
(EX)	0,5040	2,915	9,559	3,950	4,416	12,37	5,793	1,038
DX	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
DX	0,33	-6,07	-4,84	15,5	2,11	13,7	0,8	13,9
743(CI)	0,6187	3,869	9,118	7,419	4,759	15,06	9,344	3,207
(EX)	0,6440	3,852	9,484	10,970	5,406	20,63	10,312	4,691
DX	3,92	-0,47	3,66	32,4	11,97	26,9	9,4	31,6
739(CI)	0,6923	4,133	8,917	9,21	4,891	17,38	10,81	4,191
(EX)	0,7090	3,817	9,503	10,31	4,552	19,57	10,12	5,708
DX	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	4,847
(EX)	0,7330	3,874	9,468	14,38	4,904	22,31	11,73	7,967
DX	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	4,847
(EX)	0,7360	3,887	9,467	14,75	4,937	22,57	12,00	8,681
DX	0,65	-12,6	7,18	28,2	-0,1	15,2	0,42	43,0
747(CI)	0,7801	4,846	8,671	11,68	5,094	20,69	13,09	5,704
(EX)	0,8150	3,840	9,432	16,62	4,471	23,41	12,10	12,151
DX	4,28	-26,2	8,07	-27,9	-13,9	10,7	-8,2	53,1

Tabela 3. Comparação Entre os Valores Experimentais (EX) de Razões Isotópicas e Aqueles Obtidos Por Meio da Técnica de Correlação Isotópica (CI).

* valor não disponível literatura .

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	- 4,753x10 ³
(EX)	5,604	1,191	0,0715	0,2607	0,1825
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

Para o nuclídeo ²⁴³Am 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 [20]. Entretanto, conforme demonstrado por Sarkis [21, 22] melhores resultados podem ser obtidos quando da definição de equações baseadas em dados analíticos obtidos por meio da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massas.

CONCLUSÕES

Apesar de terem sido selecionados apenas 12 correlações isotópicas, as equações apresentadas na Tabela 1 demonstram claramente a possibilidade de uma ampla avaliação do conteúdo de nuclídeos pesados de uma amostra a partir da determinação da queima ou de uma simples medida de razão isotópica de um gás de fissão, como por exemplo, ³²Xe/¹²⁴Xe, o qual pode ser facilmente coletado e analisado no sistema de exaustão nos tanques de dissolução em centrais de reprocessamento.

Pelos resultados apresentados nas Tabelas 2 e 3 fica demonstrada a universalidade da técnica de correlação isotópica onde, partindo-se apenas de valores da queima,

foi possível estimar-se a concentração dos principais isótopos dos elementos pesados presentes.

REFERÊNCIAS

- [1] 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. 1970 (GEAP-3373).
- [2] 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).
- [3] FOGGI, C. & FRENQUELLUCCI, 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).
- [4] FOGGI, C.; FRENQUELLUCCI, 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).
- [5] 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).
- [6] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Report of the working group on the use of isotopic correlation data in safeguards.** Vienna, 1972 (IAEA-PL-488).
- [7] 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).
- [8] 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).
- [9] 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).

[10] 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).

[11] 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).

[12] 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-58-241).

[13] NAPIER, B.A. & TIMMERMAN, C.L. **Developing isotopic functions**. Illinois, Argonne National Lab., June 1978. (ISPO-27, PNL-SA-6594).

[14] FOGGLI, C. & FRENQUELLUCCI, 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).

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

[16] SARKIS, JORGE EDUARDO DE S. ; RODRIGUES, C. **Determinação da Queima em Combustíveis Nucleares Irradiados Por Meio da Medida do Produto de Fissão ^{137}Cs** . Neste Congresso.

[17] 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).

[18] 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).

[19] 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).

[20] ERNSTBERGER, R.; WELLUN, R.; KOCH, L. **Utilization des corrélations isotopiques dans la gestion des matériaux nucléaires et des déchets 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).

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

[22] SARKIS, JORGE EDUARDO DE S. ; RODRIGUES, C. **Aplicação da Técnica de Correlação Isotópica na Determinação da Concentração dos Nuclídeos ^{241}Am e ^{243}Am em Combustíveis Nucleares Irradiados**. Neste Congresso

[23] LISMAN, F.L.; MAECK, W.J.; REIN, J.E. **Determination of nuclear burnup from fission product analysis**. Nucl. Sci. Eng., 42:215-7,1970.

ABSTRACT

The isotope correlation technique investigates the relationships between build up and depletion of different isotopes in nuclear fuels during the period of irradiation.

This work will discuss the feasibility to use the isotope correlation technique for an input analysis of the accountability tank at the reprocessing plant. It will be described the statistical model which has been used to define the best fit between the functions. The results will be compared with the ones obtained by using analytical techniques.