

CARACTERIZAÇÃO DE PASTILHAS DE UO_2 POR MÉTODO SEMIAUTOMÁTICO DE TITULAÇÃO POTENCIOMÉTRICA PARA FINS DE SALVAGUARDAS NUCLEARES

Bárbara Fernandes Gonçalves Cristiano

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de Pós-graduação em Engenharia Nuclear, COPPE, da Universidade Federal do Rio de Janeiro, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de Doutor em Engenharia Nuclear.

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes
José Ubiratan Delgado

Rio de Janeiro
Abril de 2014

CARACTERIZAÇÃO DE PASTILHAS DE UO_2 POR MÉTODO SEMIAUTOMÁTICO DE
TITULAÇÃO POTENCIOMÉTRICA PARA FINS DE SALVAGUARDAS NUCLEARES

Bárbara Fernandes Gonçalves Cristiano

TESE SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO INSTITUTO ALBERTO LUIZ
COIMBRA DE PÓS-GRADUAÇÃO E PESQUISA DE ENGENHARIA (COPPE) DA
UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE DOS REQUISITOS
NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE DOUTOR EM CIÊNCIAS EM
ENGENHARIA NUCLEAR.

Examinada por:

Prof. Roberto Schirru, D.Sc.

Prof. José Ubiratan Delgado, D.Sc.

Prof. Edgar Francisco Oliveira de Jesus, D.Sc.

Prof. Carlos José da Silva, D.Sc.

Prof. Estela Maria de Oliveira, D.Sc.

Prof. Ana Cristina de Melo Ferreira, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ – BRASIL

ABRIL DE 2014

Cristiano, Bárbara Fernandes Gonçalves

Caracterização de pastilhas de UO_2 por método semiautomático de titulação potenciométrica para fins de salvaguardas nucleares/ Bárbara Fernandes Gonçalves Cristiano – Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2014.

XII, 110 p.: il.; 29,7 cm.

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

José Ubiratan Delgado

Tese (doutorado) – UFRJ/ COPPE/ Programa de Engenharia Nuclear, 2014.

Referências Bibliográficas: p.104-110.

1. Titulação Potenciométrica. 2. Dióxido de Urânio. 3. Salvaguardas Nucleares. I. Lopes, Ricardo Tadeu *et al.* II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título

*Ao meu marido e amigo, Rúben.
Aos meus amados pais, Cristiano e Rossana.*

AGRADECIMENTOS

A Deus por estar sempre guiando meus caminhos e abençoando meus dias. A ele entreguei minha vida e nele tenho certeza que o melhor sempre será realizado.

Ao meu marido Rúben que com todo o seu amor e carinho esteve sempre presente. Com ele sou uma pessoa muito melhor.

Aos meus pais Cristiano e Rossana pelo amor incondicional, torcendo sempre pela minha felicidade.

À minha família, em especial meu irmão Daniel e meus sogros Milton e Zenith, pelas orações e palavras de incentivo.

Ao meu orientador Profº Ricardo, a quem sou muito grata, por desde o início acreditar em mim, dando total apoio para o meu crescimento profissional.

Ao meu orientador Bira que seguiu mais essa jornada ao meu lado, sempre desejando a minha vitória.

À equipe do LASAL, em especial aos colegas Fábio, Wanderley, Aline e Marcos, que contribuíram de maneira ativa na realização deste trabalho.

À COPPE e toda equipe do PEN pelo apoio na área acadêmica.

Aos colegas de turma Paulo Alberto L. da Cruz e Paulo Roberto Rocha Ferreira pelo companheirismo na busca de um mesmo ideal.

Aos membros da banca pela participação e pelo profissionalismo.

Aos amigos Duda e Artur que tiveram paciência para me “escutar” (via facebook) e que fizeram o possível para me ajudar.

Aos amigos especiais Raimundo, Chris, Emília, Cema e Leonice pelo carinho e admiração que tem por mim.

Resumo da Tese apresentada à COPPE/UFRJ como parte dos requisitos necessários para a obtenção do grau de Doutor em Ciências (D.Sc.)

CARACTERIZAÇÃO DE PASTILHAS DE UO_2 POR MÉTODO SEMIAUTOMÁTICO DE TITULAÇÃO POTENCIOMÉTRICA PARA FINS DE SALVAGUARDAS NUCLEARES

Bárbara Fernandes Gonçalves Cristiano

Abril/2014

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes
José Ubiratan Delgado

Programa: Engenharia Nuclear

As instalações nucleares brasileiras, de acordo com a norma CNEN-NN-2.02, devem dispor de sistemas de medição que possibilitem determinar seus inventários de material nuclear. O objetivo principal deste trabalho é a caracterização de pastilhas de dióxido de urânio enriquecido (UO_2) a serem usadas como material de referência para avaliar e verificar estes sistemas por meio da participação dos laboratórios envolvidos em programas de comparação interlaboratorial. Portanto, antes de serem enviadas para os laboratórios, pastilhas de dois diferentes lotes tiveram suas homogeneidades confirmadas. O estudo de homogeneidade foi realizado por meio de técnicas de análise destrutiva e não destrutiva pelo método titrimétrico Davies & Gray / NBL e pelo método de espectrometria gama de alta resolução, respectivamente. A caracterização das pastilhas de UO_2 em concentração de urânio total foi realizada pela aplicação do método semiautomático de titulação potenciométrica, a qual possibilitou obter resultados com melhores níveis de incerteza do que as relativas aos métodos tradicionais utilizados nas instalações nucleares. Com isso, as pastilhas de UO_2 foram consideradas aceitáveis para uso em um programa brasileiro de avaliação dos sistemas de medição.

Abstract of Thesis presented to COPPE/UFRJ as a partial fulfillment of the requirements for the degree of Doctor of Science (D.Sc.)

CHARACTERIZATION OF URANIUM DIOXIDE PELLETS BY SEMIAUTOMATIC
VERSION OF THE POTENTIOMETRIC TITRATION METHOD FOR NUCLEAR
SAFEGUARDS PURPOSES

Bárbara Fernandes Gonçalves Cristiano

April/2014

Advisors: Ricardo Tadeu Lopes
José Ubiratan Delgado

Department: Nuclear Engineering

The Brazilian nuclear facilities, in accordance with norm CNEN-NN-2.02, must dispose of measurement systems that allow the determination of their nuclear material inventories. The main goal of this work is the characterization of enriched uranium dioxide (UO_2) pellets to use as reference material to evaluate and verify these systems through the participation of the involved laboratories in interlaboratorial comparison programs. Therefore, before be sent to laboratories, pellets from two different batches had their homogeneity confirmed. The homogeneity study was carried out through destructive and nondestructive analysis techniques that are Davies & Gray/NBL titrimetric method and gamma-ray spectrometry with high-resolution, respectively. The characterization of the UO_2 pellets in total uranium concentration was performed by applying the semiautomatic version of the potentiometric titration method, which allowed obtaining results with levels of combined standard uncertainty better than those on traditional methods used in the nuclear facilities. Thus, the UO_2 pellets were considered acceptable for use in a Brazilian measurement systems evaluation program.

ÍNDICE

RESUMO	vi
ABSTRACT	vii
1 INTRODUÇÃO	01
1.1 Revisão Bibliográfica	04
2 FUNDAMENTOS TEÓRICOS	08
2.1 Dióxido de Urânio (UO ₂)	08
2.2 Produção de Pastilhas de UO ₂	09
2.3 Qualidade	10
2.4 Padrão de Medição e Rastreabilidade Metrológica	11
2.5 Material de Referência	13
2.6 Caracterização do Candidato a Material de Referência	14
2.6.1 Estudo de Homogeneidade	14
2.6.2 Estudo de Estabilidade	17
2.6.3 Caracterização do Material	19
2.7 Ensaio de Proficiência por Comparação Interlaboratorial	20
2.8 Métodos Analíticos Utilizados nos Estudos de Homogeneidade	22
2.8.1 Método Titrimétrico Davies & Gray/NBL	22
2.8.2 Método de Espectrometria Gama de Alta Resolução	24
2.9 Método Analítico Utilizado na Caracterização do Material	27
2.9.1 Método Semiautomático de Titulação Potenciométrica	27
3 METODOLOGIA	29

3.1 Definição do Candidato a Material de Referência	30
3.2 Amostragem dos Lotes de Pastilhas de UO_2	31
3.3 Estudo de Homogeneidade por DA	33
3.3.1 Arranjo Experimental do Método Titrimétrico Davies & Gray/NBL	35
3.4 Estudo de Homogeneidade por NDA	39
3.4.1 Arranjo Experimental do Método de Espectrometria Gama de Alta Resolução	39
3.5 Caracterização do Material em Concentração de Urânio Total	42
3.5.1 Arranjo Experimental do Método Semiautomático de Titulação Potenciométrica	42
4 RESULTADOS E DISCUSSÕES	48
4.1 Desenvolvimento e Aperfeiçoamento do Método Semiautomático de Titulação Potenciométrica para Análise de UO_2	48
4.2 Estudo de Homogeneidade pelo Método Titrimétrico Davies & Gray / NBL e Avaliação Estatística dos Resultados	49
4.3 Estudo de Homogeneidade pelo Método de Espectrometria Gama de Alta Resolução e Avaliação Estatística dos Resultados	53
4.4 Caracterização em Concentração de Urânio Total pelo Método Semiautomático de Titulação Potenciométrica e Definição dos Valores de Referência com suas Incertezas Devidamente Estimadas	57
4.5 Discussão Geral	68
5 CONCLUSÕES	70
6 ANEXOS	71
7 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	81

LISTA DE FIGURAS

- Figura 2.1** Ciclo do combustível nuclear
- Figura 2.2** Hierarquia dos padrões metrológicos
- Figura 2.3** Esquema do sistema de espectrometria gama
- Figura 3.1** Fluxograma para a caracterização de um material de referência
- Figura 3.2** FCN Pastilhas–Processo de produção de pastilhas sinterizadas de UO_2
- Figura 3.3** Conjunto de frascos usados para acondicionar as pastilhas de UO_2
- Figura 3.4** Embalagem e tipo de acondicionamento normalmente utilizado pela CNEN para transporte de material nuclear
- Figura 3.5** Esquema analítico para o estudo de homogeneidade pelo método de Davies & Gray/NBL
- Figura 3.6** Esquema para execução do método Davies & Gray/NBL
- Figura 3.7** Faixa de energia analisada pelo MGAU para uma amostra de urânio com 4,46 % p/p de enriquecimento em ^{235}U
- Figura 3.8** Esquema para execução do Método Semiautomático
- Figura 4.1** Comparação entre os procedimentos experimentais de dissolução de pastilha de UO_2 e pó de U_3O_8
- Figura 4.2** Gráfico com os resultados obtidos para o Lote 1 com suas respectivas incertezas expandidas para um nível de confiança de 95 %
- Figura 4.3** Gráfico com os resultados obtidos para o Lote 2 com suas respectivas incertezas expandidas para um nível de confiança de 95 %
- Figura 4.4** Gráfico com os resultados obtidos para o Lote 1
- Figura 4.5** Gráfico com os resultados obtidos para o Lote 2

LISTA DE TABELAS

Tabela 1.1 MRC em concentração de urânio total

Tabela 2.1 Equações e termos utilizados na ANOVA fator único e no teste F

Tabela 2.2 Principais energias dos raios gama emitidos pelos isótopos de urânio e suas respectivas intensidades

Tabela 3.1 Características dos lotes de pastilhas de UO_2 enriquecido

Tabela 4.1 Resultados experimentais para as pastilhas do Lote 1 e do Lote 2 pela aplicação do método Davies & Gray/NBL

Tabela 4.2 Resultados ANOVA fator único e teste F para as pastilhas do Lote 1

Tabela 4.3 Resultados ANOVA fator único e teste F para as pastilhas do Lote 2

Tabela 4.4 Resumo dos resultados obtidos no estudo de homogeneidade pela aplicação do método titrimétrico de Davies & Gray/NBL

Tabela 4.5 Resultados de enriquecimento (% ^{235}U) do Lote 1, obtidos pela aplicação do método de espectrometria gama de alta resolução

Tabela 4.6 Resultados de enriquecimento (% ^{235}U) do Lote 2, obtidos pela aplicação do método de espectrometria gama de alta resolução

Tabela 4.7 Resultados de concentração de urânio total obtidos pela aplicação do método semiautomático de titulação potenciométrica

Tabela 4.8 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 1 do Lote 1

Tabela 4.9 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 2 do Lote 1

Tabela 4.10 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 3 do Lote 1

Tabela 4.11 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 4 do Lote 1

Tabela 4.12 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 5 do Lote 1

Tabela 4.13 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 6 do Lote 1

Tabela 4.14 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 7 do Lote 1

Tabela 4.15 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 1 do Lote 2

Tabela 4.16 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 2 do Lote 2

Tabela 4.17 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 3 do Lote 2

Tabela 4.18 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 4 do Lote 2

Tabela 4.19 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 5 do Lote 2

Tabela 4.20 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 6 do Lote 2

Tabela 4.21 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da média das 7 alíquotas do Lote 1

Tabela 4.22 Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da média das 6 alíquotas do Lote 2

Tabela 4.23 Valores e incertezas atribuídos a propriedade do material dos lotes 1 e 2

INTRODUÇÃO

As salvaguardas nucleares no Brasil são garantidas pela Constituição Federal, que determina que o uso de materiais nucleares seja exclusivamente para fins pacíficos. Sendo, neste contexto, a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), o órgão responsável pelo controle do material nuclear no país, para que seu uso seja unicamente para a finalidade autorizada. Como material nuclear, entende-se: urânio, plutônio e tório, sob qualquer forma, e qualquer material que os contenha, com exceção dos minerais e da ganga [1].

O verbo salvaguardar, utilizado na área nuclear, compreende um vasto conjunto de ações, procedimentos e sistemas de controle e contabilidade de material nuclear, de modo a detectar, em tempo oportuno, seu desvio para aplicação em armas ou outros dispositivos nucleares explosivos. Sendo, portanto, um termo comum que compreende todas as medidas tecno-administrativas para resguardar instalações do desvio de material nuclear [2]. Dentre as medidas podemos citar:

- a) Proteção física e radiológica;
- b) Procedimentos gerais para evitar e detectar o roubo ou desvio de material nuclear;
- c) Inspeções nas instalações nucleares visando assegurar que não haja desvios;
- d) Uso de métodos físicos e químicos para detectar ou medir compostos nucleares;
- e) Manutenção e verificação de registro de variação de inventário e respectivos relatórios.

As atividades da área nuclear são supervisionadas por tratados de cooperação internacionais que tem como um dos seus pilares a comparação entre os resultados de medição em materiais nucleares declarados pelo operador de uma instalação e verificados pela Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA) em seus laboratórios analíticos localizados em Seibersdorf, na Áustria [3].

Como responsável pelo Sistema Nacional de Contabilidade e Controle de Materiais Nucleares, a CNEN deve estar apta a verificar independentemente os inventários declarados pelos operadores das instalações nucleares. Para tal, são executadas no Laboratório de Salvaguardas da CNEN (LASAL) análises destrutivas e não destrutivas de materiais produzidos, manipulados e estocados nestas instalações.

As instalações nucleares brasileiras, de acordo com a norma CNEN-NN-2.02 [1], devem dispor de sistemas de medição que possibilitem determinar os seus inventários de material nuclear. Com o intuito de avaliar e acompanhar estes sistemas torna-se fundamental a participação sistemática dos laboratórios envolvidos em programas de comparação interlaboratorial.

De uma forma geral, a realização de programas de comparação interlaboratorial representa um passo essencial para comprovar a competência técnica dos laboratórios envolvidos, bem como sua capacidade de medição, constituindo-se em uma ferramenta prática e eficiente de avaliar o desempenho de um conjunto de laboratórios. Além disso, estes programas possibilitam o intercâmbio de conhecimento entre os laboratórios participantes, a melhoria contínua de processos e sistemas de medição e, ainda, o estabelecimento de uma confiança mútua.

Baseado nesta premissa, foi iniciado um projeto de desenvolvimento e implementação de um programa nacional de comparação interlaboratorial que visa à avaliação e o acompanhamento dos sistemas de medição das instalações nucleares brasileiras para fins de contabilidade e controle dos seus inventários de material nuclear. O início deste projeto foi dado com a implementação em 2010 no LASAL de uma versão semiautomática do método de titulação potenciométrica para determinação da concentração de urânio total [4].

Com este método foi possível atingir a meta de níveis de incerteza da ordem de 0,01 %, ou seja, uma ordem de grandeza melhor do que as relativas aos métodos tradicionalmente usados pelas instalações nucleares na verificação de seus inventários nucleares. Sendo esta incerteza na determinação da concentração de

urânio total compatível com a repetitividade e confiabilidade necessárias para a utilização do método na caracterização de compostos de urânio candidatos a materiais de referência [5].

O objetivo geral deste projeto baseia-se na caracterização em concentração de urânio total de dois lotes de pastilhas de dióxido de urânio (UO_2) enriquecido, tornando-as disponíveis para o uso como materiais de referência em medições destrutivas a serem aplicadas em programas de intercomparação para fins de verificação e avaliação dos sistemas de medição dos laboratórios das instalações nucleares brasileiras.

Os objetivos específicos deste projeto foram:

1. Desenvolvimento e aperfeiçoamento do método semiautomático de titulação potenciométrica para análise de UO_2 ;
2. Definição do candidato a material de referência, seguido da amostragem dos lotes de pastilhas de UO_2 ;
3. Realização de estudos de homogeneidade por meio de técnicas de análise destrutiva (DA) e não destrutiva (NDA), utilizando o método titrimétrico Davies & Gray / NBL e o método de espectrometria gama de alta resolução, respectivamente;
4. Avaliação estatística dos resultados dos testes de homogeneidade por meio da análise de variâncias (ANOVA) fator único associada ao teste de variância Fisher- Snedecor (teste F);
5. Caracterização em concentração de urânio total das pastilhas de UO_2 , utilizando o método semiautomático de titulação potenciométrica;
6. Definição dos valores de referência para concentração de urânio total informados com suas incertezas devidamente estimadas.

1.1 Revisão Bibliográfica

Em 1901, o National Bureau of Standards (NBS), atualmente chamado de National Institute for Standards and Technology (NIST) foi fundado nos Estados Unidos devido ao aumento da demanda por vários tipos de padrões na engenharia industrial. Porém, somente em 1905 iniciou-se a história dos padrões do NBS, que teve a ajuda da indústria de ferro e de aço, em que analistas industriais participaram ativamente da caracterização dos materiais de referência (MR) [6].

Em 1949, o New Brunswick Laboratory (NBL) foi fundado pela Comissão de Energia Atômica dos Estados Unidos para ajudar no desenvolvimento de métodos de medição analítica de urânio (e em 1959 de plutônio).

A partir do início de 1950 a necessidade de um material de referência primário de urânio tornou-se prioritária. A parceria entre o NBS, o NBL e outros laboratórios da Comissão de Energia Atômica dos Estados Unidos foi fundamental na identificação das propriedades dos MR, na aquisição de materiais de base, no desenvolvimento de técnicas químicas e de manipulação, no estudo de formas químicas apropriadas dos MR para armazenamento e, sobretudo, na certificação das propriedades químicas e físicas dos MR produzidos [7].

O primeiro material de referência de urânio foi o U_3O_8 . Porém, devido a problemas de estequiometria com óxidos de urânio, o Comité Consultivo para Materiais de Referência e Medições decidiu que era necessário produzir um padrão de urânio metálico puro. Durante o início de 1960 o material foi processado e, no início dos anos 1970, medições para sua certificação foram realizadas no NBS [7].

Em 1987, a parte técnica e administrativa relativa aos materiais de referência nuclear do NBS foi completamente transferida para o NBL [8]. E desde então, o NBL fornece materiais de referência certificados (MRC) para uso em atividades de medição analítica na área de salvaguardas nucleares.

Na Europa também foram desenvolvidos vários materiais de referência, principalmente pela European Atomic Energy Community (EURATOM) e pelo

Departamento de Salvaguardas da Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA), em colaboração com os operadores das instalações européias. Tanto que em 1978, uma reunião do grupo consultivo sobre o tema "Chemical and Isotopic Reference Materials in the Nuclear Fuel Cycle" foi realizada na AIEA. Participantes da EURATOM (França, Alemanha, Holanda, Polônia, Reino Unido e Estados Unidos), bem como representantes da International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC), da International Organization for Standardization (ISO) e da própria AIEA estiveram presentes para tratar do uso de materiais de referência em análises de material nuclear para fins de salvaguardas [9].

Na década de 80, Le Duigou e Verdingh [10, 11, 12, 13] da European Commission (EC) publicaram alguns trabalhos, que são referência até hoje, sobre a caracterização e certificação de materiais de referência de urânio e plutônio. Dentre os trabalhos, destaca-se a certificação de um material de referência de UO_2 preparado para o uso em análises químicas e outro para determinação de urânio em campo.

Assim, não restam dúvidas que materiais de referência, com o seus valores de referência e incertezas associadas, são de importância fundamental para resultados de medição.

Particularmente na contabilidade e controle do material nuclear, em que decisões importantes são baseadas em tais resultados de medição, um alto grau de confiança tem de ser colocado nas medições e nos materiais de referência. Consequentemente, o preparo e a caracterização de materiais de referência exigem uma profunda compreensão dos processos envolvidos e uma execução cuidadosa do trabalho preparativo e analítico no laboratório.

Atualmente, a disponibilidade de materiais de referência, principalmente na área nuclear, ainda é incipiente, tendo em conta que a demanda excede em muito a variedade disponível desses materiais. Além disso, produzir estes materiais de referência torna-se muito caro, já que as etapas de produção e certificação são demoradas e fazem uso de técnicas dispendiosas [14]. Poucos são produzidos no

Brasil, o que significa afirmar que, em grande parte, são obtidos em laboratórios internacionais, como descrito anteriormente.

Diante desse fato, a necessidade de contribuir para o desenvolvimento tecnológico do país, aumentando a disponibilidade de materiais de referência em áreas diversas, tornou-se meta de pesquisadores e instituições.

Há no mercado internacional um número significativo de materiais de referência nuclear ou radioativo utilizados em análises destrutiva. Porém, devido aos requisitos de manipulação específica e ao mercado limitado para tais materiais, são poucos os seus fornecedores. Dentre os fornecedores de materiais de referência para análise de concentração de urânio total destacam-se:

- Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM) da EC;
- NBL dos Estados Unidos;
- CETAMA da França.

Na Tabela 1 são apresentados os MRC comumente utilizados em análises de concentração de urânio total.

Tabela 1.1: MRC em concentração de urânio total

Uso	Descrição do Material	Código do Fornecedor	Valor de referência certificado
Concentração de urânio total	Urânio metálico	NBL 112a	(0,99975 ± 0,00006) gU/g
		EC-NRM-101	(999,85 ± 0,05) mgU/g
		CETAMA MU2	(999,85 ± 0,05) gU/kg
	Pastilhas de UO ₂	EC-NRM-106	(881,43 ± 0,24) mgU/g
		CETAMA OU1	(881,22 ± 0,90) gU/kg
	U ₃ O ₈	CETAMA OTU1	(847,74 ± 0,82) gU/kg
		NBL 129	(0,847698 ± 0,000090) kgU/kg
	Solução de nitrato de uranila (10 mg/mL)	NBL 145	(0,0101356 ± 0,0000011) gU/g

Atualmente, os materiais de referência produzidos por estes fornecedores são largamente utilizados pela comunidade analítica nuclear permitindo a validação de métodos analíticos, o estabelecimento de procedimento de controle de qualidade nos laboratórios e a realização de programas de comparação interlaboratoriais.

No entanto, é importante ressaltar que a preparação, caracterização e certificação de materiais de referência é uma atividade muito complexa e onerosa, da qual se ocupam alguns institutos governamentais e pouquíssimas empresas privadas. É realmente muito difícil manter um programa contínuo e diversificado de produção de materiais referência certificados.

Isto faz com que a caracterização de materiais de referência no Brasil, realizada de acordo com o Guia 35 [15] e a NBR ISO/IEC 17025 [16], seja de grande valia, pois atualmente o país ainda não produz um material de referência nacional para análise de concentração de urânio total em soluções de concentração na faixa de 30 a 125 mg/mL.

FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Neste trabalho são abordados aspectos relevantes sobre o dióxido de urânio; os conceitos e requisitos metrológicos associados à caracterização de um candidato a material de referência e os métodos de análise utilizados na avaliação da homogeneidade e na própria caracterização.

2.1 Dióxido de Urânio (UO_2)

Antes de 1940, praticamente não se utilizava comercialmente o dióxido de urânio. Além de proporcionar tons de coloração amarela a objetos de cristal, pequenas quantidades de UO_2 eram usadas como catalisador em alguns processos orgânicos [17].

Com a construção do primeiro reator nuclear por Enrico Fermi em 1941 e o surgimento de estudos do fenômeno da fissão nuclear, criou-se um interesse pelo UO_2 como combustível nuclear [17,18].

No início do desenvolvimento da fabricação de elementos combustíveis para reatores nucleares empregou-se o urânio metálico [19]. Porém, devido ao aumento da temperatura de operação nos combustíveis metálicos, que podem resultar em fusão na parte central do combustível, inchamento da pastilha combustível e uma intensidade do fenômeno de creep (fluência) que deforma, ao longo da irradiação, o revestimento das varetas combustíveis, optou-se pela utilização dos materiais cerâmicos [20,21].

Além de serem empregados em altas temperaturas, os materiais cerâmicos possuem outras vantagens tais como [17,20,21]:

- Alto ponto de fusão (2.865°C para o UO_2);
- Considerável economia no custo do reprocessamento dos elementos combustíveis;

- Baixa dilatação térmica até 1.800°C, resultando numa boa estabilidade dimensional;
- Estabilidade química em relação ao refrigerante, como água, CO₂ e outros fluidos;
- Danos menos consideráveis quando submetidos à radiação em relação aos combustíveis metálicos.

Entretanto, existem algumas desvantagens na utilização do material cerâmico, tais como:

- Condutibilidade térmica inferior e peso específico menor quando comparado aos metais.
- Sensibilidade a defeitos superficiais, trincas interiores e tensões residuais;
- Fragilidade que, contrariamente aos metais, não pode ser compensada por tratamentos térmicos.

Os principais materiais cerâmicos utilizados como combustível nuclear são: UO₂; UO₂-PuO₂; ThO₂; UC. Em reatores de potência refrigerados a água leve como Pressurized Water Reactor (PWR) e Boiling Water Reactor (BWR), assim como nos refrigerados a água pesada como Pressurized Heavy-Water Reactor (PHWR) e Canada Deuterium Uranium Reactor (CANDU) utiliza-se como combustível o UO₂ [20].

O elemento combustível do reator PWR é constituído por um conjunto de varetas fabricadas em Zircaloy 4 [22], contendo no seu interior pastilhas de UO₂ com enriquecimento de 2 a 3% em peso de ²³⁵U.

2.2 Produção de Pastilhas de UO₂

O ciclo do combustível nuclear pode ser descrito em etapas que vão desde a mineração, passando pelo enriquecimento do UF₆, até a fabricação do UO₂ e seu tratamento após o uso na geração de energia, conforme simplificado na Figura 2.1.

As etapas de homogeneização, compactação e sinterização, destacadas na Figura 2.1, estão associadas à produção das pastilhas de UO₂.

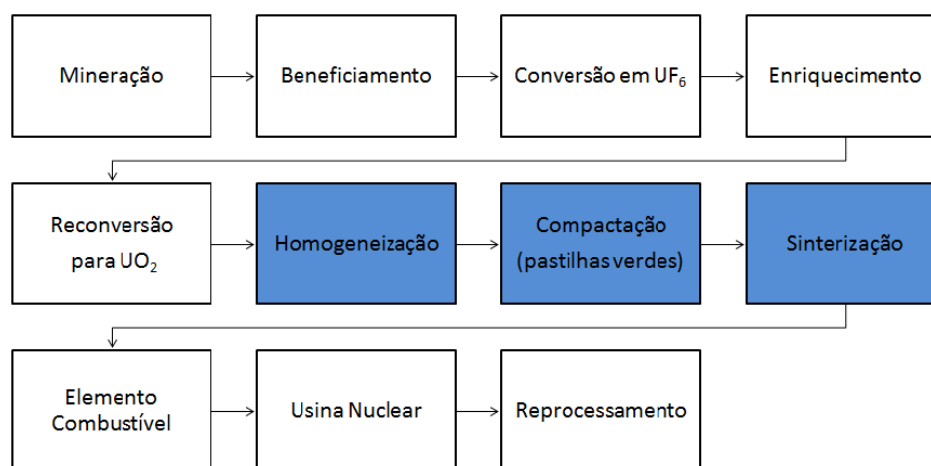


Figura 2.1: Ciclo do combustível nuclear

Essas pastilhas de UO₂, assim como as que usamos no presente estudo em questão, são consideradas suficientemente homogêneas e estáveis para serem utilizadas na montagem dos elementos combustíveis.

2.3 Qualidade

Podemos atribuir vários significados para a palavra qualidade, porém a mesma é definida como grau no qual um conjunto de características inerentes satisfaz a requisitos [23].

A qualidade adotada nos laboratórios analíticos contempla a execução de atividades técnicas e administrativas onde são organizadas e planejadas, desde a amostragem até o resultado final das análises, cujo objetivo é garantir a confiabilidade dos resultados, por meio da repetitividade, reprodutibilidade e rastreabilidade das medições.

Atualmente, as empresas têm recorrido à acreditação pela norma NBR ISO 9001, estabelecendo políticas e objetivos para a melhoria contínua do seu sistema de gestão da qualidade. Entretanto, deve-se ressaltar que as normas ISO série 9000 são normas que dizem respeito apenas ao sistema de gestão da qualidade de uma empresa, e não às especificações técnicas dos produtos e serviços oriundos desta empresa.

O produto e/ou serviço proveniente de um processo acreditado segundo as normas ISO 9000 apresentarão as mesmas características e o mesmo padrão de qualidade, isso não significa que eles sejam de qualidade inferior ou superior a outro similar [24].

Devido a isso, os laboratórios analíticos também procuram manter seus sistemas de gestão adequados e acreditados segundo a NBR ISO/IEC 17025:2005 – Requisitos gerais para a competência de laboratórios de ensaio e calibração [16], buscando a competência do laboratório para produzir dados e resultados tecnicamente válidos.

O grande diferencial desta norma é a exigência da competência do pessoal do laboratório, seja na realização de atividades gerenciais ou técnicas, a fim de que sejam emitidos resultados de ensaio e calibração confiáveis (consistentes, coerentes e tecnicamente válidos) com níveis de incerteza adequados.

2.4 Padrão de Medição e Rastreabilidade Metrológica

O padrão é uma referência para a medição e/ou calibração, e tem seu valor e incerteza conhecidos.

É comum estabelecermos uma hierarquia entre os padrões, sendo que a incerteza associada ao padrão define sua posição na hierarquia.

Um padrão de medição pode receber denominações diferentes em função de suas qualidades metrológicas e incertezas, como [25]:

- Padrão de Medição Internacional: é aquele reconhecido internacionalmente como sendo o de incerteza mais baixa, e que serve de referência para todas as medições do mundo.
- Padrão de Medição Nacional: é aquele reconhecido como sendo o de referência no país, por ser o de mais alto valor metrológico. Geralmente, este padrão é mantido nos Institutos Nacionais de Metrologia, e dele derivam as medições da grandeza no território.

- Padrão de Medição de Referência: é aquele que possui menor incerteza nesse local e serve para calibrar outros padrões que vão realizar o trabalho. Por isso, este padrão de maior qualidade metrológica é a referência e deve ser calibrado por um laboratório externo que disponha de padrões superiores.
- Padrão de Medição de Trabalho: é aquele efetivamente utilizado nas rotinas de calibração ou controle de instrumentos ou sistemas de medição, salvaguardando o padrão de referência de uma frequência de uso acentuado que poderia deteriorá-lo, colocando em risco a rastreabilidade metrológica da grandeza apresentada por este.

A hierarquia dos padrões metrológicos, que está associada ao princípio da rastreabilidade, inicia-se no topo da cadeia pelo BIPM (Bureau International des Poids et Mesures), seguido pelos Institutos Nacionais de Metrologia, passando pelos laboratórios de calibração e/ou ensaio até alcançar os demais laboratórios, conforme apresentada na Figura 2.2.

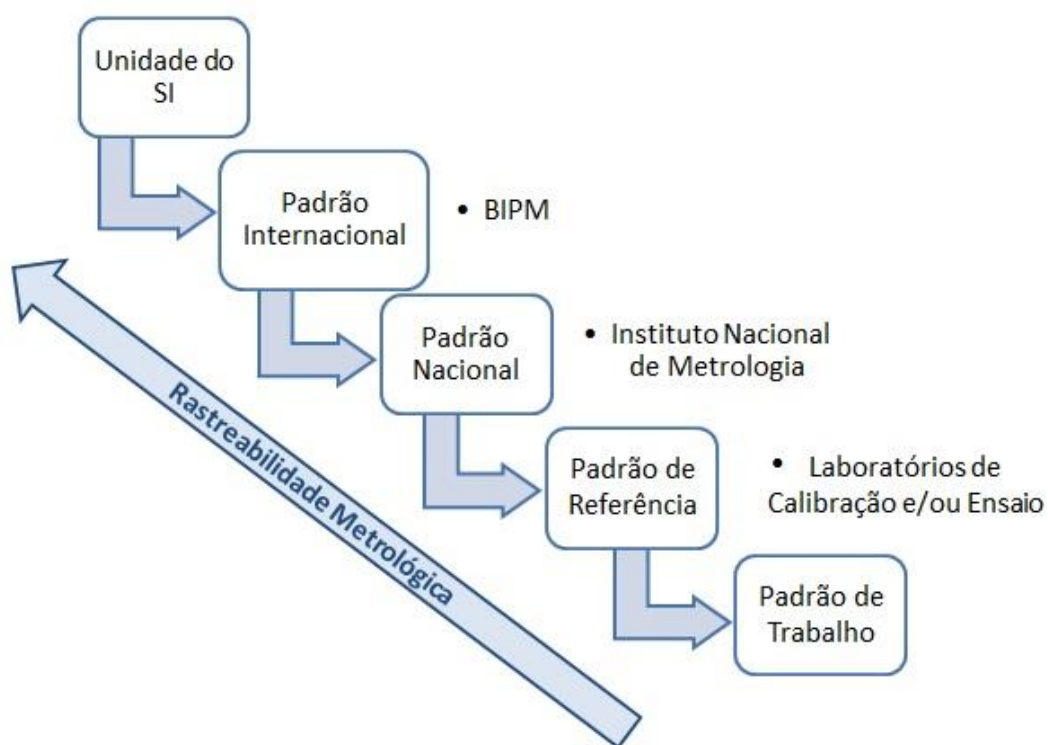


Figura 2.2: Hierarquia dos padrões metrológicos

O termo rastreabilidade metrológica pode ser compreendido como a capacidade que um resultado de medição tem de estar relacionado, por meio de uma sequência de padrões e calibrações, a uma referência estabelecida [25].

No sentido inverso da rastreabilidade metrológica, conforme apresentado na Figura 2.2, pode-se observar a disseminação dos padrões, ou seja, a partir dos padrões hierarquicamente superiores podemos reproduzir padrões que irão transmitir as calibrações aos padrões de nível metrológico inferior.

De acordo com a NBR ISO/IEC 17025:2005 [16] os equipamentos que apresentam efeito significativo sobre a exatidão ou validade do resultado de um ensaio, calibração ou amostragem, devem ser periodicamente calibrados. É imprescindível que exista uma rastreabilidade, na qual o resultado de uma medição esteja relacionado a uma referência adotada.

2.5 Material de Referência

A ABNT ISO Guia 30:2011 [26] reconhece dois conceitos de materiais, sendo um chamado de 'material de referência' (MR) e o outro de 'material de referência certificado' (MRC). Ambos são importantes ferramentas na determinação de muitos aspectos da qualidade de medição, pois possuem a capacidade de transferir valores de grandezas medidas ou atribuídas de um lugar para outro.

Todos os materiais de referência devem ser suficientemente homogêneos e estáveis em relação a uma ou mais propriedades específicas. O valor atribuído a qualquer MR necessita ser rastreável a uma referência apropriada e ser estabelecido para ser usado na calibração de instrumentos de medição, na avaliação de métodos de análise ou de ensaios e para a garantia da qualidade das medições.

A diferença fundamental entre MR e MRC é que o primeiro pode ser usado para controle de qualidade, mas não para validação de metodologias como o segundo.

De uma forma geral, os materiais de referência para salvaguardas nucleares podem ser divididos em três principais categorias [27]:

- 1) Aqueles destinados à análise química destrutiva, certificado para conteúdos elementares de U e/ou Pu;
- 2) Aqueles destinados à análise isotópica destrutiva por espectrometria de massa, certificado para razões e conteúdos isotópicos;
- 3) Aqueles destinados à análise não destrutiva, certificados para razões e conteúdo isotópicos.

Por recomendação da Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA), deve-se destacar que [27]:

- A caracterização e a certificação de um MR devem ser baseadas em técnicas bem estabelecidas;
- A responsabilidade pela caracterização de um MR deve ser atribuída a um grupo qualificado e treinado, completamente envolvido no projeto, e que seus integrantes sejam identificados no certificado;
- A aceitação e o uso de um MR devem ser baseados no mais alto nível de qualidade compreendido desde a etapa de sua preparação até a sua caracterização;
- Sempre que possível, os materiais de referência devem ser certificados tanto para o conteúdo elementar quanto isotópico do material.

2.6 Caracterização do Candidato a Material de Referência

O processo de caracterização consiste, inicialmente, na avaliação da heterogeneidade e da estabilidade do material embalado na sua forma final, para finalmente realizar a descrição detalhada da obtenção dos valores de propriedade do material, denominada como caracterização.

2.6.1 Estudo de Homogeneidade

O estudo de homogeneidade é realizado para avaliar se a variabilidade das amostras pode ser considerada desprezível quando comparada à variabilidade do

próprio método de ensaio. Segundo a norma ISO Guia 30 [26], um MR é dito homogêneo se o valor de uma propriedade específica se encontra dentro dos limites de incerteza estabelecidos.

Materiais de referência sólidos são, em princípio, heterogêneos. Portanto, é necessário tomar todas as medidas para tornar a heterogeneidade a menor possível durante o processo de fabricação. Na prática, o estudo de homogeneidade é utilizado para se verificar se a diferença observada entre os diversos frascos do lote do material, isto é, a heterogeneidade residual, é significativa se comparada com a incerteza da caracterização do material [15].

O teste de homogeneidade é um dos fatores essenciais para a garantia das propriedades físico-química do material de interesse. Para ser considerado representativo, o nº de frascos selecionados para o estudo depende do tamanho do lote [15].

A amostragem dos frascos pode ser aleatória (estratificada ou não) ou sistemática. O conhecimento sobre o método utilizado na preparação das amostras permite uma análise crítica na escolha do esquema de amostragem [15].

É importante que para o estudo de homogeneidade seja utilizado um método de boa repetitividade, não necessariamente exato, pois o objetivo é apenas avaliar a diferença dos valores de propriedade entre as unidades. Isto significa dizer que é desejável verificar se a variação dentro da unidade (dentro do frasco) e a variação unidade a unidade (entre os frascos) estão dentro da variância do método [15,28].

A análise de variâncias (ANOVA) fator único [15,29] é a ferramenta estatística indicada para avaliar se a variação na composição das amostras distribuídas nos frascos foi suficientemente pequena para o objetivo proposto.

É recomendável aplicar um teste estatístico para verificar a existência de resultados dispersos no estudo de homogeneidade. Resultados discordantes podem ser rejeitados pela aplicação do Teste de Cochran e do Teste de Grubbs [30].

O teste de variância Fisher- Snedecor (teste F) indica se os resultados da homogeneidade são significativos. Portanto, quando o $F_{\text{calculado}}$ for menor que o $F_{\text{crítico}}$ ($\alpha = 5\%$) é aceitável considerar as amostras contidas nos frascos como sendo homogêneas.

Na Tabela 2.1 são expressas as equações e os termos utilizados na ANOVA fator único e no teste F.

Tabela 2.1: Equações e termos utilizados na ANOVA fator único e no teste F

Variação	Soma dos Quadrados	Graus de Liberdade (GL)	Média dos Quadrados
Entre Frascos	$SQE = \sum_{j=1}^k n_j (\overline{X}_j - \overline{\overline{X}})^2$	$k - 1$	$MQE = \frac{\sum_{j=1}^k n_j (\overline{X}_j - \overline{\overline{X}})^2}{k - 1}$
Dentro dos Frascos	$SQD = \sum_{j=1}^k (n_j - 1) S_j^2$	$\sum_{j=1}^k (n_j - 1)$	$MQD = \frac{\sum_{j=1}^k (n_j - 1) S_j^2}{\sum_{j=1}^k (n_j - 1)}$
$k =$ é o nº de médias populacionais sendo comparadas $n_j =$ é o nº de valores na j-ésima amostra $S_j^2 =$ é a variância dos valores na j-ésima amostra $\overline{\overline{X}} =$ é a média de todos os valores amostrais combinados $\overline{X} =$ é a média dos valores na j-ésima amostra			$F_{\text{calculado}} = \frac{MQE}{MQD}$ $GL = \frac{k - 1}{\sum_{j=1}^k (n_j - 1)}$

A estimativa da incerteza da homogeneidade ($u_{\text{homogeneidade}}$), a partir da ANOVA fator único, é função dos valores da média quadrática entre (MQE) e dentro (MQD) dos frascos [15].

Quando o valor de MQE for maior que do MQD, a incerteza padrão devido à homogeneidade é equivalente ao desvio padrão ($S_{\text{homogeneidade}}$) entre os frascos. Essa estimativa da incerteza é utilizada quando todos os frascos analisados possuem o mesmo número de repetições (n). Assim:

$$u_{\text{homogeneidade}} = S_{\text{homogeneidade}} = \sqrt{\frac{MQE - MQD}{n}} \quad (2.1)$$

No caso de métodos de medição pouco repetitivos, o valor de MQE é menor que do MQD, a incerteza da homogeneidade é estimada por meio de uma abordagem mais conservativa, conforme equação a seguir:

$$u_{\text{homogeneidade}} = \sqrt{\frac{MQD}{n}} \sqrt[4]{\frac{2}{\sum_{j=1}^k n_j - 1}} \quad (2.2)$$

A estimativa da incerteza da homogeneidade pode ser baseada também pela perspectiva do Guia para a Expressão da Incerteza de Medição [31]. No Guia, a variação das médias dos frascos é uma incerteza combinada consistindo da heterogeneidade entre os frascos e a variação da medição (desvio padrão), obtida analisando-se um frasco várias vezes.

Para a estimativa da variabilidade entre frascos, por esta abordagem, é vital que os resultados sejam obtidos pela mesma técnica analítica e usando a mesma quantidade de amostra. Vale ressaltar que ao aumentar o número de repetições por frasco, um melhor valor para o desvio padrão pode ser obtido, mesmo para métodos pouco repetitivos.

2.6.2 Estudo de Estabilidade

Segundo o Guia 30 [26], a estabilidade é a capacidade de um MR manter inalterado o valor de uma determinada propriedade dentro dos limites especificados, por um período de tempo e condição de estocagem preestabelecida.

O estudo de estabilidade de um MR deve contemplar as condições de transporte e armazenamento do material, chamados de curta e de longa duração, respectivamente.

Nos estudos da estabilidade de curta e de longa duração, o material é submetido a, no mínimo, duas condições diferenciadas, sendo uma de referência (no qual o material se mantém estável) e a outra estimada para transporte e para armazenamento do material, respectivamente.

Para o estudo de estabilidade de longa duração, utiliza-se o modelo clássico, no qual o valor da propriedade é medido em função do tempo em condições de reprodutibilidade [15,32]. Neste estudo, a instabilidade do sistema contribui para a estimativa da incerteza.

Para o estudo de estabilidade de curta duração, utiliza-se o modelo isócrono no qual são realizadas medições repetitivas de amostras mantidas em condições diferenciadas de temperatura, umidade, pressão ou outros fatores de influência. Neste estudo, as incertezas são menores que no modelo clássico, sendo na maioria das vezes negligenciadas [15, 32, 33].

O tempo estimado para cada um destes estudos, curta ou longa duração, deve ser estabelecido pelo produtor, que deve levar em consideração as características e as necessidades de transporte e armazenamento do MR.

A natureza do recipiente usado para armazenar e transportar o MR tem uma grande relevância na manutenção da sua integridade durante todo o período despendido para a realização de tais funções.

O Guia 35 [15] estabelece que a avaliação da estabilidade do material seja feita pela análise de variância de regressão. Se a inclinação da reta ou a não linearidade da mesma não forem significativas, o material é considerado estável. Sendo assim, para um conjunto de n observações aos pares de Y versus X , para cada Y_i , tem-se:

$$Y_i = \beta_0 + \beta_1 X_i + \varepsilon_i \quad (2.3)$$

Em que: X indica o tempo e Y o valor da propriedade do candidato a MRC.

Para um MR estável, espera-se que β_1 seja zero. Valores de Y_i estarão disponíveis para cada X_i devido à repetição da medição, entretanto para análises de tendência o resultado médio de todos os frascos no tempo X_i pode ser utilizado.

O estudo de estabilidade é afetado pelas seguintes fontes de incerteza: repetitividade da medição; instabilidade do material e do sistema de medição,

aspectos de reprodutibilidade (operador, equipamento) e em alguns casos pela homogeneidade entre os frascos [15].

Na situação em que mudanças relacionadas à estabilidade do material possam ser razoavelmente negligenciáveis, a incerteza do método utilizado neste estudo tem que ser incluída na estimativa da incerteza do valor certificado [15].

2.6.3 Caracterização do Material

A caracterização do material equivale à determinação de um ou mais valores de propriedades físicas, químicas, biológicas ou tecnológicas relevantes para a utilização desejada [26].

Dentre as formas de caracterização, tem-se [14,15]:

- a) Medições por meio de um único método primário de medição, preferencialmente em duplicata, por um único laboratório;
- b) Medições por meio de dois ou mais métodos de referência independentes em um único laboratório;
- c) Medições realizadas por uma rede de laboratórios, utilizando um ou mais métodos de exatidão comprovada, que sejam aptos a estimar a incerteza do processo;
- d) Medições envolvendo uma rede de laboratórios utilizando um método específico que fornece apenas valores de propriedade específica do mesmo.

A escolha por uma das formas de caracterização dependerá do tipo do candidato a MR, do seu uso pretendido, da competência dos laboratórios envolvidos e da qualidade dos métodos empregados [14].

Os métodos para a caracterização do material, o estudo de homogeneidade e de estabilidade não precisam ser necessariamente os mesmos, desde que sejam rastreáveis a uma referência comum estabelecida [15].

O valor da propriedade obtida na caracterização representa a melhor estimativa do valor verdadeiro e a incerteza é determinada com base nas orientações do ISO-GUM [31] e do Guia EURACHEM/CITAC [34].

O valor da propriedade do MR deve ser informado com sua incerteza devidamente estimada, proveniente da incerteza padrão inerente à caracterização ($u_{\text{caracterização}}$), homogeneidade ($u_{\text{homogeneidade}}$) e estabilidade ($u_{\text{estabilidade}}$) da amostra, conforme apresentado na equação a seguir:

$$u_{MR} = \sqrt{u_{\text{caracterização}}^2 + u_{\text{homogeneidade}}^2 + u_{\text{estabilidade}}^2} \quad (2.4)$$

2.7 Ensaio de Proficiência por Comparação Interlaboratorial

Entende-se por comparação interlaboratorial toda organização, desempenho e avaliação de medições ou ensaios nos mesmos ou em itens similares por dois ou mais laboratórios, de acordo com as condições predeterminadas [35].

Dentre as finalidades dos ensaios de comparação interlaboratorial, destacam-se:

- a) Verificação do desempenho global e individual da equipe do laboratório de ensaios;
- b) Estabelecimento da eficácia e da comparabilidade de um método de ensaio,
- c) Certificação de um ou mais valores de propriedades relevantes para a utilização desejada de um MR.

Por ensaios de proficiência entende-se como a avaliação do desempenho dos laboratórios participantes contra critérios pré-estabelecidos por meio de comparações interlaboratoriais [35].

O ensaio de proficiência por comparação interlaboratorial é uma ferramenta importante para os laboratórios participantes, pois permite:

- ✓ Confiabilidade metrológica aos seus resultados de medições;
- ✓ Identificação de problemas e estabelecimento de ações corretivas, quando necessário;

- ✓ Avaliação e monitoramento contínuo do seu próprio desempenho;
- ✓ Comparação do seu desempenho perante aos demais laboratórios participantes.

Os tipos de ensaio de proficiência (EP) variam em função da natureza do material ou produto ensaiado, do método de ensaio e do número de laboratórios participantes. Em comum, todos possibilitam a comparação dos resultados obtidos por um laboratório de ensaio ou de calibração com aqueles obtidos pelos demais.

Os principais modelos de EP são definidos como [35]:

- Programas de participação sequencial, no qual o item ou material a ser ensaiado circula sucessivamente de um laboratório participante para o próximo;
- Programas de participação simultâneos, no qual subamostras, selecionadas aleatoriamente de uma fonte de grau de homogeneidade adequado, são distribuídos simultaneamente aos laboratórios participantes;
- Programas de ensaio de amostras divididas, no qual amostras de um produto ou material são divididas em duas ou mais partes, de modo que cada laboratório participante ensaie uma parte de cada amostra.

Dentre os tópicos considerados em um planejamento para a realização de um ensaio de proficiência por comparação interlaboratorial, os mais relevantes são: a identificação dos métodos a serem utilizados pelos laboratórios participantes; a disponibilidade e a integridade das amostras, o fornecimento de instruções detalhadas sobre todos os aspectos pertinentes ao ensaio e a preservação do anonimato entre os laboratórios participantes.

É essencial que seja preparado um plano de análise estatística adequado, no qual sejam considerados: a repetitividade e a reprodutibilidade dos ensaios envolvidos; as menores diferenças detectáveis entre os laboratórios a um nível de confiança desejado; e a quantidade de laboratórios participantes, de amostras e de repetições a serem realizadas em cada uma delas.

2.8 Métodos Analíticos Utilizados nos Estudos de Homogeneidade

Para a realização dos estudos de homogeneidade do material foi selecionado o Método titrimétrico Davies & Gray/NBL para a determinação da concentração de urânio total e o Método de Espectrometria Gama de Alta Resolução para discriminar e quantificar os isótopos do urânio, mais especificamente o enriquecimento em ^{235}U .

2.8.1 Método Titrimétrico de Davies & Gray/NBL

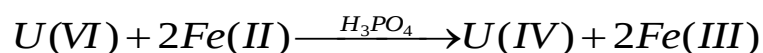
O processo de titulação consiste em adicionar um reagente padrão, geralmente com o auxílio de uma bureta, à solução de um analito, o qual se quer quantificar alguma propriedade, até que a reação entre eles seja considerada completa [4].

Nas titulações volumétricas são feitas medidas de volume do reagente padrão para a determinação da concentração de uma espécie de interesse em uma amostra. Porém, quando esta é realizada por meio do monitoramento da variação gradual de outra grandeza, no caso o potencial, estas passam a ser chamadas titulações potenciométricas [4].

Na titulação potenciométrica, os potenciais absolutos, ou os potenciais em relação ao eletrodo de referência, são necessários, e as medições são realizadas no curso da titulação com vista à localização do ponto de equivalência. A aproximação deste ponto é evidenciada por uma súbita mudança no potencial [36].

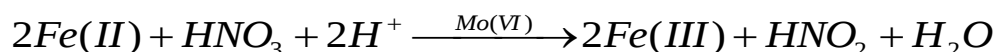
O método titrimétrico Davies & Gray [37, 38] possibilita determinar urânio por titulação com um oxidante padrão de dicromato de potássio, sem separação química, em soluções contendo ferro, plutônio, nitrato e muitos outros interferentes.

O método Davies & Gray/NBL [38] é baseado na redução do U (VI), sua forma mais estável, a U (IV) em solução de ácido fosfórico (H_3PO_4) concentrado e ácido sulfâmico por reação de oxi-redução com o sulfato ferroso.

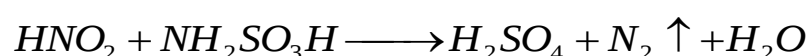


O meio de H_3PO_4 concentrado favorece a redução do urânio pelo ferro por meio de um acréscimo na diferença de potencial padrão de redução do U (VI) / U (IV) [39].

O excesso de Fe (II) é removido pela oxidação com o ácido nítrico (HNO₃), catalisada pelo Mo (VI) em meio de ácido sulfâmico.

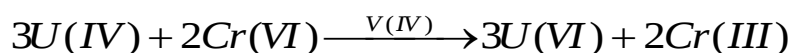


Nestas etapas, o ácido sulfâmico realiza duas funções importantes no método. Dentre elas, destaca-se a eficácia em proteger o urânio de uma possível oxidação, pois possui potencial padrão de redução menor do que o do metal. E a remoção do ácido nitroso formado pela interação de sulfato ferroso com o ácido nítrico adicionado, conforme a seguinte reação [4]:



Após esta etapa, a amostra é diluída imediatamente antes da titulação com solução de sulfato de vanadila, adicionado para aumentar a velocidade de reação na determinação do ponto final potenciométrico [40,41].

E para finalizar, o U (IV) é titulado com uma solução padrão de dicromato de potássio (K₂Cr₂O₇) 0,004 M até o potencial de 130 mV. Este potencial de 130 mV é definido pelo sistema eletródico constituído de um eletrodo indicador de platina-ródio (liga 90:10) e um eletrodo de referência de Hg/HgSO₄ [42].



A concentração de urânio total obtida pela aplicação do método Davies&Gray/NBL está diretamente relacionada com a quantidade de titulante (solução padrão de K₂Cr₂O₇) adicionado na titulação até o potencial de 130 mV.

Para evitar qualquer outra reoxidação do U (IV), diferente da obtida pela adição do titulante, o tempo de titulação não deve ultrapassar o tempo máximo de 5 minutos [41].

A rastreabilidade da medição é estabelecida pelo material de referência padrão de K₂Cr₂O₇ certificado pelo National Institute of Standards and Technology (NIST) [43], que está em conformidade com a especificação da American Chemical Society para

materiais de pureza analítica e com os critérios de padrão primário da Analytical Chemistry Section da International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC) [44].

O método de Davies & Gray/NBL apresenta vantagens como ótima repetitividade, com níveis de incerteza padrão combinada da ordem de 0,1 %, associada à alta seletividade. Para alcançar este nível de incerteza é necessário executar o método em base de peso, ao invés de volume, e usar tituladores potenciométricos automáticos para evitar a influência do analista e garantir a realização da titulação dentro do tempo requerido [45].

O Instituto para Material de Referência e Medições (IRMM) tem por muitos anos aplicado o método para certificação de MR, preparo de amostras de intercomparação e para análises de rotina [46, 10].

O método Davies & Gray/NBL para determinação de concentração de urânio total é aplicável em amostras retiradas de praticamente qualquer ponto do ciclo do combustível nuclear. O método é rotineiramente usado pelos operadores para preenchimento dos inventários das instalações nucleares. Na verificação de análises destrutivas (DA) para fins de Salvaguardas Internacionais e Nacionais é provavelmente o método analítico mais utilizado.

2.8.2 Método de Espectrometria Gama de Alta Resolução

A espectrometria gama consiste em identificar e determinar a natureza e a atividade de radioisótopos contidos em uma amostra, a partir da análise do espectro de emissão gama. Este espectro representa o conjunto de radiações detectadas e classificadas de acordo com sua energia [47].

O espectro é único para cada nuclídeo, sendo caracterizado pelo tipo de emissão radioativa, energia e intensidade (ou probabilidade de emissão) da radiação. Para obtê-lo, utiliza-se um detector acoplado a um sistema eletrônico de aquisição de dados, resultando em um espectro de natureza discreta (linhas).

Um sistema genérico de espectrometria gama é formado por um detector gama, uma fonte de alta tensão, um pré-amplificador, um amplificador, um conversor analógico digital, um analisador multicanal e um registrador, conforme apresentado na Figura 2.3.

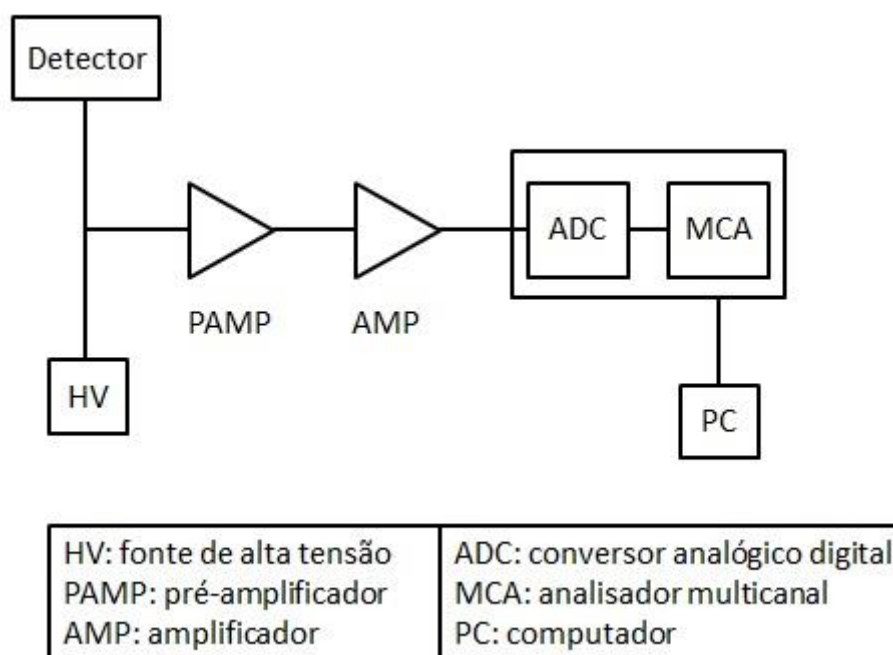


Figura 2.3: Esquema do sistema de espectrometria gama.

O decaimento de um radioisótopo é muitas vezes acompanhado pela emissão de um ou mais raios gama. As medições das energias desses raios gama emitidos servem para identificá-lo. Além disso, a taxa de emissão de raios gama permite quantificar o material radioativo de uma determinada amostra [48].

Na Tabela 2.2 são apresentadas as principais energias dos raios gama emitidas pelos isótopos ^{232}U , ^{234}U , ^{235}U e ^{236}U , e suas respectivas intensidades [49].

A espectrometria gama é, dentre as técnicas de análise não destrutiva (NDA), a usada com maior frequência para fins de contabilidade e controle de material nuclear, principalmente para a determinação do conteúdo ou enriquecimento em ^{235}U (abundância isotópica de ^{235}U) no material, que consiste em se determinar a razão de átomos de ^{235}U para o total de átomos de urânio na amostra [50].

Na prática, as determinações de enriquecimento por espectrometria gama são feitas em relação a padrões de calibração com abundância isotópica em ^{235}U de mesma geometria da amostra, bem como composição química e densidade [51,52]

Tabela 2.2: Principais energias dos raios gama emitidas pelos isótopos do urânio e suas respectivas intensidades.

Isótopo	Energia (keV)	Intensidade (%)
^{232}U	57,752 (13)	0,200 (4)
	129,065 (3)	0,0686 (7)
^{234}U	53,20 (2)	0,1253 (40)
	120,90 (4)	0,0386 (32)
^{235}U	96,09 (2)	0,091 (11)
	97 (4)	0,016 (4)
	109,19 (7)	1,66 (13)
	143,767 (3)	10,94 (6)
	163,356 (3)	5,08 (3)
	185,720 (4)	57,0 (3)
	202,12 (1)	1,08 (2)
	205,316 (4)	5,02 (3)
^{238}U	49,55 (6)	0,0697 (26)
	113,5 (1)	0,0174 (47)

As técnicas NDA são amplamente empregadas nas instalações do ciclo do combustível nuclear durante as inspeções de salvaguardas, pois evitam a necessidade de amostragem e possíveis problemas de transporte, reduzem a exposição do operador, além de serem muito mais rápidas e baratas do que os ensaios químicos destrutivos, embora menos exatas que estes na faixa de incerteza exigida [53].

O método de espectrometria gama de alta resolução [54] foi utilizado nas análises para a determinação do isótopo ^{235}U (enriquecimento) nas pastilhas de UO_2 . O método tem capacidade de atingir níveis de incerteza padrão combinada da ordem de 0,5 %. Para este nível de incerteza, a influência da temperatura e da umidade é significativa e, portanto, o uso de equipamentos auxiliares para controle de temperatura e umidade é recomendado no local onde as medições são realizadas [55].

2.9 Método Analítico Utilizado na Caracterização do Material

Para a caracterização do material foi selecionado o Método Semiautomático de Titulação Potenciométrica destinada à determinação da concentração de urânio total.

2.9.1 Método Semiautomático de Titulação Potenciométrica

O método Semiautomático de Titulação Potenciométrica [4], assim como o método titrimétrico de Davies & Gray/NBL [38], é usado na determinação da concentração de urânio total sem a necessidade de separação química.

Ambos os métodos são baseados na redução do U (VI) a U (IV) por reação de oxi-redução com excesso de Fe (II) em meio de ácido fosfórico concentrado, seguida da titulação do U (IV) pelo reagente oxidante padrão de $K_2Cr_2O_7$.

A diferença entre os dois métodos de titulação potenciométrica está no processo de adição do material de referência padrão de $K_2Cr_2O_7$ certificado pelo NIST [43].

No método de Davies & Gray/NBL, o U (IV) é titulado somente por uma solução padrão de $K_2Cr_2O_7$ 0,004 M até o potencial de 130 mV. Enquanto que no método Semiautomático, a distribuição do titulante é feita primeiro pela adição do $K_2Cr_2O_7$ sólido, necessário para reagir com até 99 % do urânio presente na amostra, seguida pelo acréscimo da solução padrão de $K_2Cr_2O_7$ $1,67 \times 10^{-3}$ M até o potencial final de 130 mV.

No método Semiautomático, a determinação da concentração de urânio total é obtida não somente pela solução do padrão primário de $K_2Cr_2O_7$, mas também pela quantidade de $K_2Cr_2O_7$ sólido consumido na titulação. A rastreabilidade da medição continua sendo estabelecida pelo MRC de $K_2Cr_2O_7$ [43], usado tanto na sua forma sólida quanto para preparar a solução titulante de $1,67 \times 10^{-3}$ M.

A associação de técnicas, como a adição de 99 % do titulante na sua forma sólida, o uso de balança analítica de resolução igual a 0,001 mg, além da semi-automatização do método por meio da implementação de um titulador automático de

detecção de potencial final na adição da solução de $K_2Cr_2O_7$, possibilitam uma ótima repetitividade e uma melhor determinação da incerteza do resultado [4].

Com o método Semiautomático é possível obter resultados com níveis de incerteza padrão combinada na determinação da concentração de urânio total da ordem de 0,01 %, ou seja, uma ordem de grandeza melhor do que a relativa ao método Davies & Gray/NBL que são da ordem de 0,1 % [56].

A implementação do método Semiautomático de Titulação Potenciométrica para a determinação da concentração de urânio total no LASAL/CNEN em 2010, possibilitou a obtenção de resultados mais repetitivos, associados a menores valores de incerteza de medição do que os obtidos nas análises rotineiras utilizadas para fins de salvaguardas [4].

Uma variação deste método é utilizada por laboratórios internacionais que produzem e fornecem padrões de referência certificados de urânio, como o NBL (New Brunswick Laboratory) dos EUA [57,58].

Durante a implementação do método Semiautomático também foram realizados estudos para avaliação dos parâmetros de entrada que mais contribuem na incerteza inerente à concentração de urânio total. Neste estudo foi determinado que tanto para a concentração individual de cada alíquota quanto para a média dos resultados, a estimativa da incerteza é dominada pela pureza do $K_2Cr_2O_7$ fornecida pelo certificado do material de referência [5].

METODOLOGIA

Uma vez confirmada a necessidade de um MR para a determinação de urânio, em soluções de concentração na faixa de 30 a 125 mg/mL, um plano de ação foi desenvolvido. O planejamento proposto para a caracterização de um MR de urânio teve com base o Guia 35 [15]. Este guia fornece as diretrizes gerais e princípios estatísticos para a certificação de um MR, instruindo sobre as possíveis formas de caracterização do mesmo.

A execução deste plano de ação consistiu em 8 etapas, conforme apresentado na Figura 3.1: definição do candidato a MR, amostragem dos lotes de pastilhas de UO_2 , estudos de homogeneidade por análise destrutiva (DA) e não destrutiva (NDA), avaliação estatística dos resultados obtidos nesses estudos, caracterização do material em concentração de urânio total e por fim, estabelecimento do valor de referência para o parâmetro de interesse informado com sua incerteza devidamente estimada, provenientes das etapas de homogeneidade e caracterização.

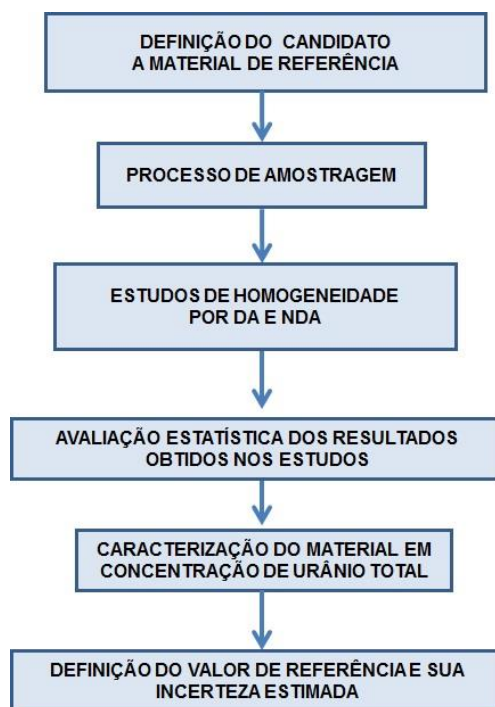


Figura 3.1: Fluxograma para a caracterização de um MR

3.1 Definição do Candidato a Material de Referência

A primeira etapa consistiu em definir o material de interesse e consequentemente suas propriedades e níveis de incerteza desejáveis.

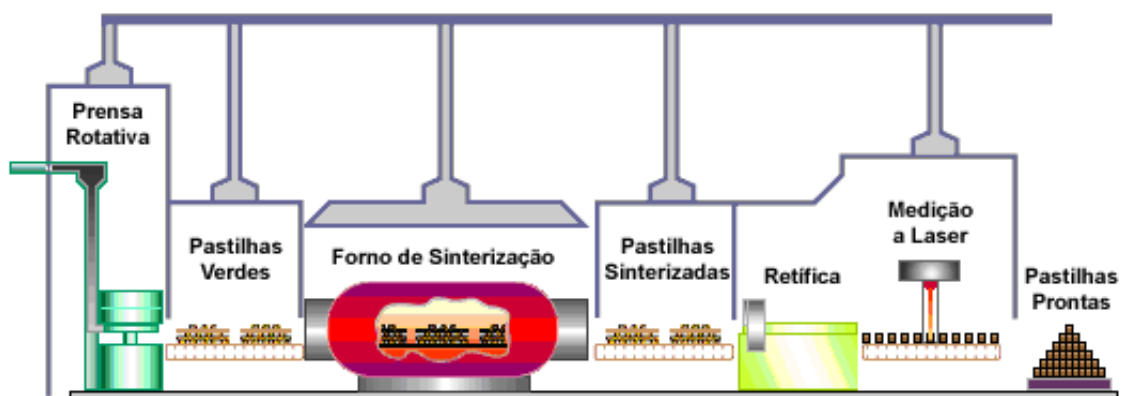
Conforme significância para salvaguardas e disponibilidade, definiu-se como prioritário caracterizar amostras de dióxido de urânio (UO_2) na forma de pastilhas, com foco na concentração de urânio total e no grau de enriquecimento, associados cada um à sua incerteza expandida.

Toda a parte de processamento e produção das pastilhas de UO_2 foi realizada na Fábrica de Combustível Nuclear (FCN) pertencente às Indústrias Nucleares Brasileiras (INB), localizada no distrito de Engenheiro Passos, no município de Resende (RJ).

A FCN é um conjunto de unidades nas quais são processadas etapas importantes do ciclo do combustível nuclear. São elas: usina de enriquecimento isotópico de urânio; FCN Reconversão - produção de pó de UO_2 ; FCN Pastilhas - produção de pastilhas de UO_2 ; e FCN Componentes e Montagem - fabricação de componentes e a montagem do elemento combustível.

Na FCN Pastilhas são produzidas inicialmente as chamadas “pastilhas verdes” (pastilhas não sinterizadas) por meio de processos de homogeneização do pó de UO_2 proveniente da FCN Reconversão. Para ganhar rigidez, as pastilhas verdes são encaminhadas para um forno de sinterização e aquecidas a 1750 °C para adquirir a resistência necessária às condições de operação a que serão submetidas dentro do reator de uma usina nuclear. Antes de seguirem para a montagem dos elementos combustíveis, as pastilhas sinterizadas passam por uma retificação para ajuste de suas dimensões e pela verificação da circunferência padrão das pastilhas por meio de medição a laser [59].

Para melhor compreensão foi ilustrado na Figura 3.2 todo processo de produção de pastilhas sinterizadas de UO_2 realizado na FCN Pastilhas.



Fonte: http://www.inb.gov.br/pt-br/WebForms/interna2.aspx?secao_id=58

Figura 3.2: FCN Pastilhas-Processo de produção de pastilhas sinterizadas de UO_2

As pastilhas prontas são acondicionadas em caixas e consideradas suficientemente homogêneas e estáveis para serem utilizadas na montagem dos elementos combustíveis.

3.2 Amostragem dos Lotes de Pastilhas de UO_2

Após acordo entre as partes técnicas da INB, CNEN e AIEA, foram selecionados dois lotes de pastilhas de UO_2 enriquecido para que deles fossem retiradas as amostras.

Tabela 3.1: Características dos lotes de pastilhas de UO_2 enriquecido.

Características	Lote 1 ⁽¹⁾	Lote 2 ⁽¹⁾
Nº total de pastilhas selecionadas	25	25
Massa média das pastilhas	7,3985 g	5,3644 g
Massa total de UO_2	184,9625 g	134,1105 g
Concentração de U-total	(0,84121±0,00010) kg/kg	(0,84136±0,00010) kg/kg
Enriquecimento	3,199 % ²³⁵ U	1,902 % ²³⁵ U

(1) Dados fornecidos pelos operadores da instalação nuclear.

No 2º semestre de 2012 foi realizada a atividade técnica de coleta de amostras (pastilhas de UO_2) na FCN - Pó e Pastilha. Os inspetores da CNEN foram designados a retirar 25 pastilhas de cada um dos lotes anteriormente citados.

As pastilhas retiradas aleatoriamente e de forma simultânea pelo inspetor da CNEN foram acondicionadas em frascos de polietileno de alta densidade com tampa de capacidade de 30 mL. Os frascos foram previamente identificados e continham pedaços de algodão para evitar o atrito entre a pastilha e o frasco (uma pastilha/frasco).



Figura 3.3: Conjunto de frascos usados para acondicionar as pastilhas de UO_2 .

(a) Conjunto de frascos do Lote 1; (b) Conjunto de frascos do Lote 2

Para o transporte adequado das pastilhas até o LASAL, as amostras foram acondicionadas em uma embalagem de latão de aproximadamente 20 L, lacrada com selo, rotineiramente utilizada pela CNEN para transporte de material nuclear. Junto a essas embalagens foram enviados os documentos de transferência de amostras de material nuclear (TAM) com todas as informações referentes às pastilhas, declaradas pelo operador da instalação.



(a)



(b)



(c)



(d)

Figura 3.4: Embalagem e tipo de acondicionamento normalmente utilizado pela CNEN para transporte de material nuclear.

- (a) Latão de 20 L com identificação padrão para transporte de material nuclear; (b) Latão de 20 L lacrado com selo colocado pelo inspetor da CNEN; (c) Reforço de isopor para acondicionamento seguro dos frascos; (d) Frascos separados por lote

3.3 Estudo de Homogeneidade por DA

Com a finalidade de garantir que as pastilhas selecionadas dos lotes para a caracterização fossem representativas, com o mínimo erro de amostragem, verificou-se o grau de homogeneidade quanto à concentração de urânio total, por meio da análise destrutiva baseada no método titrimétrico de Davies & Gray/NBL [38].

Para este estudo foram selecionadas amostras aleatórias para verificação da homogeneidade entre os frascos (homogeneidade do lote) e dentro dos frascos (homogeneidade da pastilha) em condições de reprodutibilidade [15].

Por meio de uma amostragem simples, foram selecionadas quatro frascos de cada lote.

Para as primeiras análises foram selecionados dois frascos da cada lote. De cada frasco, ou de cada pastilha, de um lote foram abertas duas subamostras de aproximadamente 0,5 g cada, que proporcionaram seis alíquotas. Destas seis, metade foi analisada em um dia (d1) e a outra metade no dia posterior (d2), favorecendo uma verificação da homogeneidade entre as pastilhas do mesmo lote e da homogeneidade de cada pastilha, conforme pode ser visto no esquema da Figura 3.5.

Os dois frascos restantes foram abertos, conforme os anteriores, após o período de aproximadamente um ano para a verificação da reprodutibilidade dos resultados e consequentemente comprovação da estabilidade do material a longo prazo.

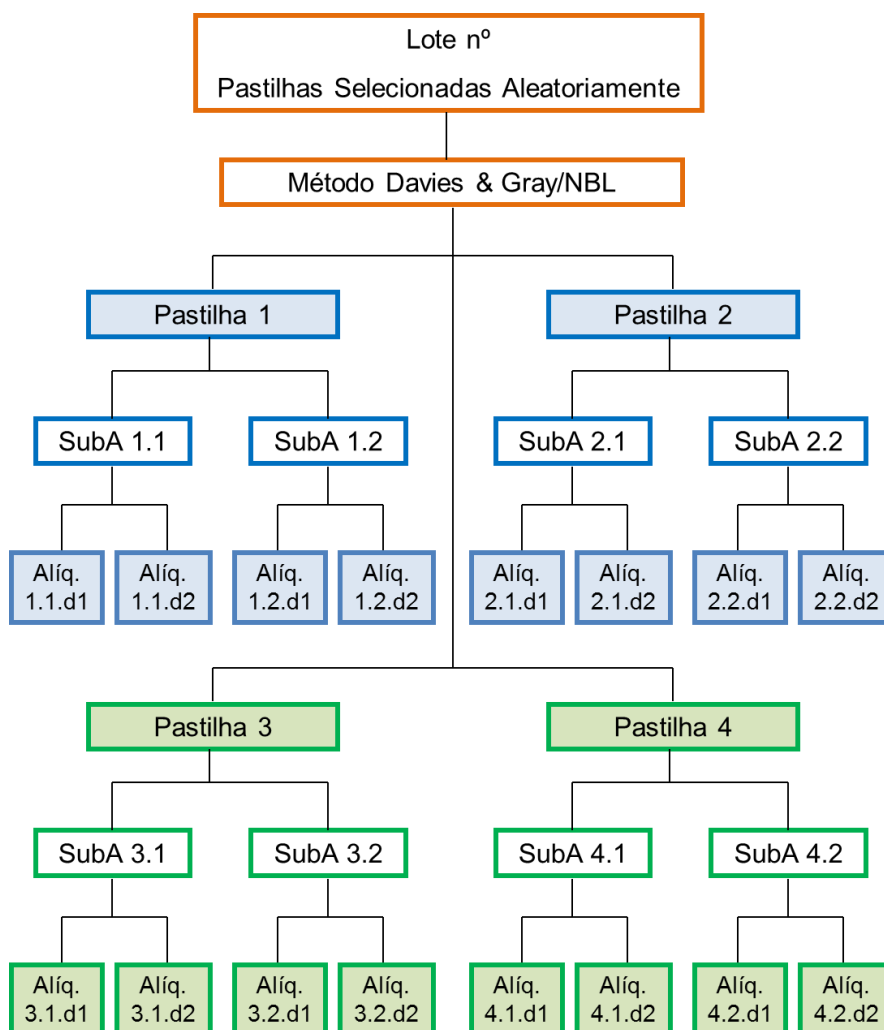


Figura 3.5: Esquema analítico para o estudo de homogeneidade pelo método de Davies & Gray/NBL.

3.3.1 Arranjo Experimental do Método Titrimétrico de Davies & Gray/NBL

O sistema empregado para a realização do método de Davies & Gray/NBL para a determinação da concentração de urânio total em base de peso, consistiu basicamente do uso de: balanças analíticas e de precisão; titulador potenciométrico automático associado a um eletrodo indicador e outro de referência; reagentes e soluções analíticas; solução padrão primário de $K_2Cr_2O_7$ 0,004 M; e solução padrão de urânio de concentração 75 mg/mL.

As principais especificações relacionadas a estes equipamentos e insumos são:

a) Balanças analíticas e de precisão

Para as pesagens de precisão foi utilizada a balança modelo CP4202S, da marca Sartorius com resolução de 0,01 g. Enquanto que as pesagens analíticas foram realizadas nas balanças modelo AG245, da Mettler Toledo com resolução de 0,01 mg. Todas essas balanças são calibradas anualmente por laboratório acreditado e pertencente à Rede Brasileira de Calibração (RBC) e são sujeitas a verificações de funcionamento em condições controladas de temperatura, umidade relativa do ar e pressão atmosférica.

b) Titulador potenciométrico automático

Nas titulações das alíquotas foi utilizado o titulador potenciométrico automático modelo Titrand 836, da marca Metrohm-Pensalab com incremento (resolução da bureta) de 2 μ L de solução titulante.

Para converter o volume (mL) de solução padrão de $K_2Cr_2O_7$ consumido na titulação em “massa de titulante” (g), foi obtido o fator de calibração da bureta (*fb*). Este fator é definido pela média de 6 razões entre o peso líquido da solução padrão de $K_2Cr_2O_7$ de cada frasco, realizado em balança analítica calibrada, e o volume fixo de 20 mL da bureta [4]. O coeficiente de variação (CV) obtido nesta medição é um indicador de repetitividade da bureta, além de ser um indicador da qualidade da

calibração. Este CV deve ser igual ou menor que 0,022 % de acordo com a literatura [42].

Além da bureta e da sua parte eletrônica, o titulador necessita de um sistema eletródico constituído de um eletrodo indicador de Pt:Rh (liga de platina com 10 % de ródio) e outro de referência de sulfato mercurioso (Hg/HgSO_4) para acompanhamento do potencial da alíquota durante a titulação [42].

c) Reagentes e soluções analíticas

Para a realização do método destrutivo aplicado no estudo de homogeneidade do material foi necessário utilizar diversos reagentes de grau analítico e soluções preparadas a partir destes. No preparo das soluções foi utilizada água deionizada, obtida por meio de um sistema de osmose reversa modelo RO 0420, da marca Permution [60].

Dentre os reagentes e soluções analíticas, destacam-se o reagente de ácido fosfórico 85 %, a solução de sulfato ferroso 1,0 M, a solução de ácido sulfâmico 1,5 M, a solução oxidante (composta de molibdato de amônio, solução de ácido sulfâmico 1,5 M e ácido nítrico P.A.), a solução de ácido sulfúrico 1,0 M e a solução redutora (preparada a partir de uma mistura quantitativa de uma solução de sulfato ferroso 1,0 M e outra de ácido sulfâmico 1,5 M) [4].

Além das soluções descritas acima, também são utilizadas na aplicação do método duas soluções padrão [4]. Uma delas é a solução padrão $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ preparada a partir do material de referência padrão SRM 136e certificado pelo NIST [43]. A outra é a solução padrão de urânio proveniente do material de referência CRM 112-A certificado pelo New Brunswick Laboratory (NBL) [8].

O uso da solução padrão de urânio é fundamental para a determinação do fator de correção de erros sistemáticos. Cabe destacar que, nas medições destinadas aos trabalhos de salvaguardas nucleares, o critério estatístico para as variações sistemáticas na titulação de Davies & Gray/NBL é de 0,1 %. Em resumo, o desvio

padrão da média de um conjunto de medições em relação ao valor conhecido deve ser $\leq 0,1 \%$ [61].

d) Método Davies & Gray/NBL

O método foi adotado neste trabalho para o estudo de homogeneidade e da estabilidade das pastilhas de UO_2 , devido a sua boa repetitividade, o que auxilia verificar se a variação dentro da unidade (dentro do frasco) e a variação unidade a unidade (entre os frascos) de um lote estão dentro da variância do método.

A realização do método procedeu-se nas seguintes etapas [4]:

a) Dissolução da subamostra

Para a dissolução da amostra foram pesadas por diferença cerca de 0,5 g de UO_2 , na forma de pastilha, em um erlenmeyer de 250 mL. Em seguida, foram adicionados 3 mL de HNO_3 concentrado (65%) para cada grama de amostra.

A dissolução ocorreu sob chapa de aquecimento (modelo 510, Fisatom) ajustada em 100°C e se completou em 3 horas.

b) Ajuste da concentração da solução da subamostra

Quando se fizer necessário, a concentração da solução de urânio deve ser ajustada entre 30 mg a 40 mg de urânio por mililitro de solução, de acordo com o previsto no método.

c) Aliquotagem

Para tomada de alíquota, o peso bruto da solução amostra pré-ajustado foi primeiramente determinado em balança analítica. Posteriormente, com o auxílio de micropipeta e ponteiros reutilizáveis, foram distribuídas alíquotas de 1000 μL da solução e transferidas para um becher de 250 mL. Logo em seguida, foi determinado o peso bruto do erlenmeyer após a retirada da alíquota.

Esta distribuição foi repetida até o esgotamento do conteúdo do erlenmeyer, sendo que para cada subamostra foram preparadas aproximadamente 6 alíquotas.

d) Tratamento químico das alíquotas

O tratamento de alíquotas foi realizado em capela e tem por objetivo eliminar interferência de materiais orgânicos, de ácido nítrico e de haletos.

Com o auxílio de micropipeta e ponteiros reutilizáveis, para cada alíquota foram adicionados, aproximadamente, 1 mL de H_2SO_4 1:1. Em seguida, as alíquotas foram colocadas sob chapa térmica à temperatura de 100 °C. A evaporação ocorreu até a total liberação de fumaças brancas, em que se pôde observar um aspecto xaroposo da solução.

e) Titulação das alíquotas

Esta etapa dividiu-se em duas partes, a saber: a adição de reagentes, seguida da titulação potenciométrica de Davies & Gray/NBL propriamente dita.

A adição de reagentes decorreu sem interrupção e foi composta pelas etapas sequenciais de redução do urânio presente na alíquota, reoxidação do ferro adicionado e diluição da solução.

Deve-se destacar que nenhum destes reagentes necessita ser medido com exatidão. O importante é que as quantidades mínimas devam ser adicionadas, mesmo tendo-se em conta que porções de reagente com valores um pouco acima do requerido não afetam o processo de titulação.

Paralelamente à estas etapas, foram preparadas não somente as soluções padrão de dicromato de potássio e de urânio como também foi realizada a calibração da bureta do titulador, conforme apresentado na Figura 3.6.

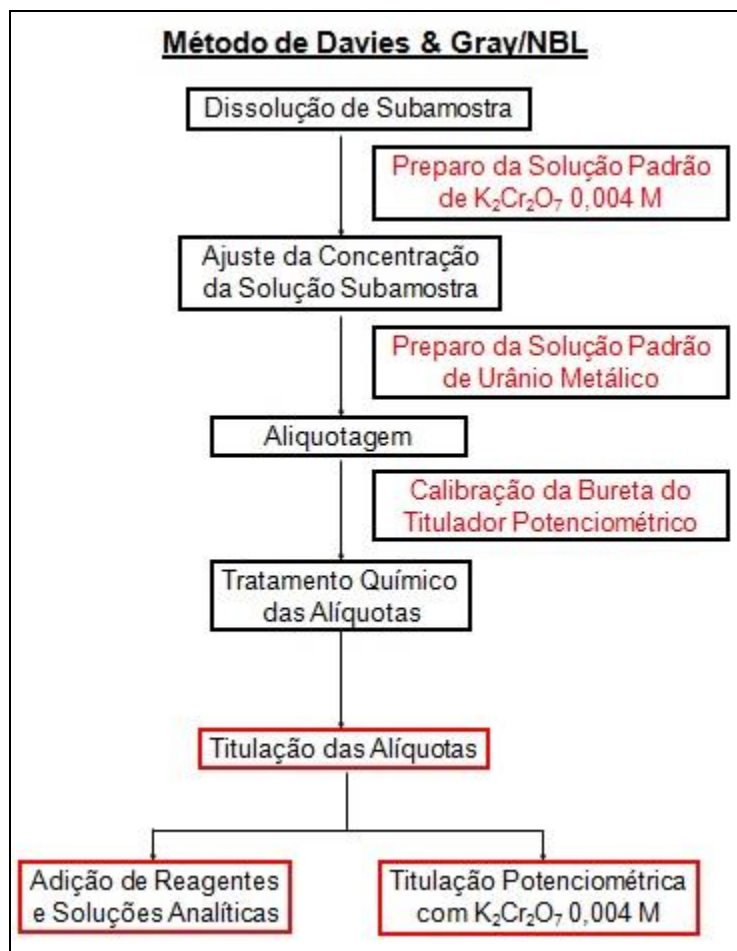


Figura 3.6: Esquema para execução do Método Davies & Gray/NBL

A concentração percentual de urânio total, expressa em peso por peso (p/p), em cada alíquota é obtida de acordo com a seguinte equação:

$$U_{DG} = \frac{V_i \times f_b \times T_D}{T_A \times m_{alíq}} \times 1000 \quad (3.1)$$

Em que:

U_{DG} : é a concentração percentual de urânio total de cada alíquota, expressa em peso por peso (p/p), determinada pelo uso do método de Davies & Gray/NBL;

V_i : é o volume de titulante (solução padrão de $K_2Cr_2O_7$ 0,004 M) adicionado a amostra (mL);

f_b : é o fator de calibração da bureta (g/mL);

T_D : é a concentração (título) da solução padrão de $K_2Cr_2O_7$ 0,004 M (mg/g);

T_A : é o título da solução amostra, expresso pela razão entre o peso da amostra e o peso da solução (mg/g);

m_{aliq} : é a massa de alíquota retirada da solução (g).

A expressão " $V_i \times f_b \times T_D$ " da equação 3.1 representa a quantidade de urânio presente na alíquota, calculada desta forma para converter o volume gasto na titulação em massa.

A solução padrão de urânio, preparada conforme mesma metodologia utilizada nas subamostras [4], possibilitou a comparabilidade das medições e foi determinante na obtenção do fator de correção de erros sistemáticos (F_{bias}).

Cabe ressaltar que a concentração (U_{DG}), obtida conforme equação 3.1, foi posteriormente corrigida pelo fator de correção de erros sistemáticos e pelo fator de enriquecimento da amostra ($U_{DG} \times F_{bias} \times F_{enr}$), para então ser declarada juntamente com sua incerteza expandida. O fator de correção de erros sistemáticos e o fator de enriquecimento foram determinados conforme equações a seguir:

$$F_{bias} = \frac{100}{B_{médio} + 100} \quad (3.2)$$

$$F_{enr} = \frac{238,05 - 0,0305858 \times E\%}{238,03} \quad (3.3)$$

Em que o termo $E\%$ representa o enriquecimento da amostra e o $B_{médio}$ é o valor médio dos erros relativos obtidos a partir da titulação das soluções padrão de urânio.

A expressão da incerteza da concentração de urânio total, considerando que não existem correlações entre as grandezas de entrada, foi obtida pela seguinte equação:

$$u_{U_{DG}} = \sqrt{\left(\frac{\partial U_{DG}}{\partial T_D}\right)^2 u_{T_D}^2 + \left(\frac{\partial U_{DG}}{\partial T_A}\right)^2 u_{T_A}^2 + \left(\frac{\partial U_{DG}}{\partial f_b}\right)^2 u_{f_b}^2 + \left(\frac{\partial U_{DG}}{\partial m_{aliq}}\right)^2 u_{m_{aliq}}^2 + \left(\frac{\partial U_{DG}}{\partial V_i}\right)^2 u_{V_i}^2} \quad (3.4)$$

Na qual, as incertezas padrão são:

1) Incerteza padrão do título da solução padrão de $K_2Cr_2O_7$ 0,004 M (T_D), obtida conforme equação a seguir:

$$u_{T_D} = \sqrt{\left(\frac{\partial T_D}{\partial w}\right)^2 u_w^2 + \left(\frac{\partial T_D}{\partial W}\right)^2 u_W^2 + \left(\frac{\partial T_D}{\partial P_D}\right)^2 u_{P_D}^2 + \left(\frac{\partial T_D}{\partial E_D}\right)^2 u_{E_D}^2} \quad (3.5)$$

Na equação 3.5 foi considerado que não existem correlações entre as grandezas de entrada e as incertezas padrão são:

1.1) Incerteza padrão da massa de dicromato de potássio sólido (w), calculada com base nas incertezas da tara e do peso bruto do cadinho utilizado, conforme equação 3.6. Essas incertezas são obtidas no certificado de calibração da balança utilizada, para as faixas de peso correspondentes.

$$u_w = \sqrt{u_{w_{tara}}^2 + u_{w_{bruto}}^2} \quad (3.6)$$

1.2) Incerteza padrão da massa de solução de dicromato de potássio 0,004 M (W), calculada com base nas incertezas do peso bruto do balão volumétrico e de sua tara, conforme equação 3.7. Essas também obtidas no certificado de calibração da balança utilizada, para as faixas de peso correspondentes.

$$u_w = \sqrt{u_{W_{tara}}^2 + u_{W_{bruto}}^2} \quad (3.7)$$

1.3) Incerteza padrão da pureza do dicromato de potássio padrão (P_D) proveniente do certificado do material de referência NIST SRM 136e.

1.4) Incerteza padrão do fator de empuxo de pesagem do dicromato de potássio sólido (E_D).

2) Incerteza do título da solução amostra (T_A), obtida conforme equação a seguir:

$$u_{T_A} = \sqrt{\left(\frac{\partial T_A}{\partial W_a}\right)^2 u_{W_a}^2 + \left(\frac{\partial T_A}{\partial W_{sol.U}}\right)^2 u_{W_{sol.U}}^2} \quad (3.8)$$

Sendo as incertezas padrão da massa de urânio dissolvida (W_a) e da massa da solução amostra de urânio ($W_{sol.U}$), obtidas com base nas incertezas dos respectivos

pesos brutos e taras dos recipientes utilizados. Essas incertezas são obtidas no certificado de calibração da balança utilizada, para as faixas de peso correspondentes.

3) Incerteza padrão do fator de calibração da bureta (f_b), obtida a partir do desvio padrão da média para 6 determinações;

4) Incerteza padrão da massa de alíquota ($m_{alíq}$), obtida com base nas incertezas do peso bruto do erlenmeyer e de sua tara a partir do certificado de calibração da balança utilizada, para as faixas de peso correspondentes;

5) Incerteza padrão do volume de titulante (V_i), obtida a partir do desvio padrão da média para N determinações.

3.4 Estudo de Homogeneidade por NDA

Neste estudo realizaram-se medições em todas as demais amostras dos lotes 1 e 2, que não foram usadas no 1º ano das análises destrutivas, para verificação da homogeneidade do lote quanto ao enriquecimento em ^{235}U pela aplicação do Método de Espectrometria Gama de Alta Resolução.

3.4.1 Arranjo Experimental do Método de Espectrometria Gama de Alta Resolução

O sistema empregado para a realização do Método de Espectrometria Gama de Alta Resolução para a determinação do enriquecimento em ^{235}U , ou seja, a razão de átomos de ^{235}U para o total de átomos de urânio na amostra consistiu basicamente de um detector de Ge com pré-amplificador embutido; revestimento de Pb para blindagem e suporte de acrílico para o posicionamento da pastilha, de modo a garantir exatamente a mesma geometria em todas as medições. Além disso, foi utilizado um sistema de aquisição de dados e um software de análise do espectro de urânio na faixa de energia de (89-100) keV.

As principais especificações relacionadas a estes equipamentos e insumos são:

a) Detector de Ge

Foi utilizado nas medições o detector do tipo germânio hiper-puro (HPGe) planar de baixa energia (LEGe), modelo 2003 GL-0213R da Canberra com aproximadamente 16 mm de diâmetro x 13 mm de espessura e janela de Be. Blindagem de chumbo de cerca de 50 mm de espessura para diminuir a radiação de fundo (background) e suporte de acrílico tipo prateleira altura variável de 480 mm de altura x 430 mm de largura x 530 mm de profundidade para o posicionamento da pastilha em frente ao detector.

b) Sistema de aquisição de dados

O sistema de aquisição de dados foi composto pelo analisador multicanal digital modelo Canberra DSA-1000 e pelo software Gamma Acquisition Analyses (Canberra Genie-2000) de ganho de 0,075 keV/canal, acoplado a um computador XP.

Para um tratamento estatístico robusto dos dados foram feitas múltiplas aquisições de espectros para cada amostra. As medições consecutivas foram realizadas sem qualquer alteração do sistema ou substituição da amostra.

c) Software de análise do espectro de urânio

O software MGAU versão 4.0 foi usado no modo “Standard Enrichment Mode”. Neste modo, uma análise multi-grupo da razão de picos na região de 89 keV a 100 keV foi realizada.

Com o MGAU não há necessidade de realizar calibração em eficiência e pode ser utilizado em amostras de todos os tamanhos. É aplicável para medições de amostras de urânio em equilíbrio radioativo com seus descendentes, que não tenham Pu e com atenuação equivalente gama máxima de 10 mm de aço [62].

O MGAU é baseado na medição de raios gama do ^{235}U e do ^{238}U e da intensidade de raios-X na faixa de energia de 89 keV a 100 keV do espectro de urânio. Nesta faixa, conforme ilustrado na Figura 3.7, o ^{234}Th (descendente do ^{238}U) emite dois raios gama de energias próximas, uma de 92,38 keV e outra de 92,80 keV. Existem

também raios-X de Th, 93,35 keV ($K\alpha_1$) e 89,96 keV ($K\alpha_2$), emitidos no decaimento $^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Th}$, além de raios-X de Pa de 95,86 keV ($K\alpha_1$) e 92,28 keV ($K\alpha_2$), acompanhado do decaimento β do ^{231}Th . Há também raios gama de 96,09 keV (^{235}U), 89,95 keV e 99,28 keV do ^{231}Th que, junto com os raios-X indicados, formam a contribuição do ^{235}U para a faixa de energia. Os picos mais intensos na parte considerada do espectro vem dos raios-X $\text{UK}\alpha$, 98,43 keV ($K\alpha_1$) e 94,65 keV ($K\alpha_2$), que, junto com os picos $K\beta$ correspondentes, estão sempre presentes devido à fluorescência de auto-indução da amostra [63].

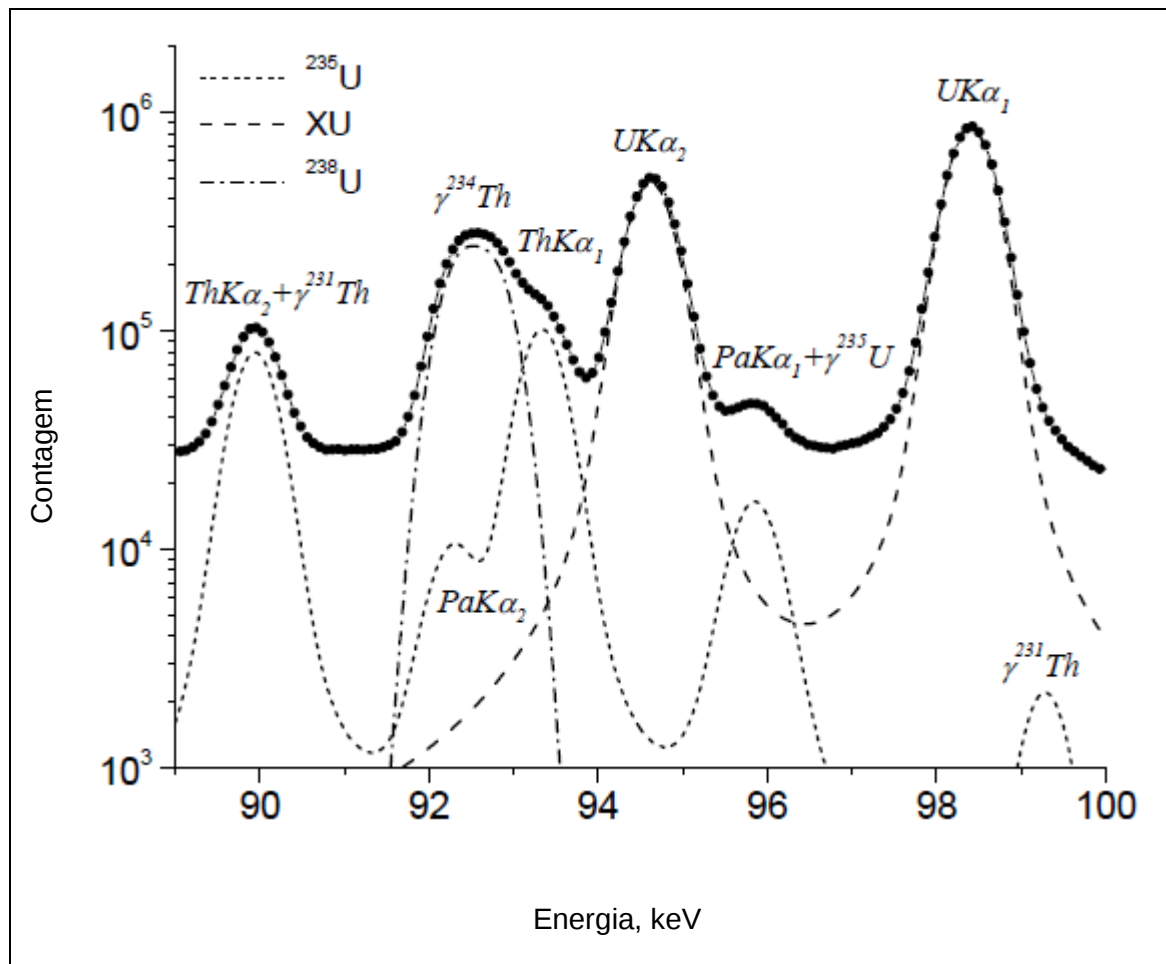


Figura 3.7: Faixa de energia analisada pelo MGAU para uma amostra de urânio com 4,46 %p/p de enriquecimento em ^{235}U .

d) Método de Espectrometria Gama de Alta Resolução

O método foi aplicado como uma avaliação alternativa da heterogeneidade das pastilhas de UO_2 . Apesar de boa repetitividade, com este método só foi possível verificar a variação do lote (variação entre os frascos).

A realização do método foi baseada na medição de 23 pastilhas de cada lote, sendo feita 72 contagens por pastilha. A média das medições repetidas e o desvio padrão da média representam o resultado final de enriquecimento da amostra e a incerteza da média devido aos efeitos randômicos respectivamente.

3.5 Caracterização do Material em Concentração de Urânio Total

Para a caracterização do material em concentração de urânio total será utilizada uma metodologia de referência para fins de salvaguardas com níveis de incerteza padrão combinada melhor, em termos de ordem de grandeza, do que as relativas aos métodos tradicionais utilizados nas instalações nucleares.

Assim como no estudo de homogeneidade pelo método Davies & Gray/NBL, amostras aleatórias serão selecionadas para aplicação do método Semiautomático de Titulação Potenciométrica.

3.5.1 Arranjo Experimental do Método Semiautomático de Titulação Potenciométrica

O sistema empregado para a realização do método Semiautomático de Titulação Potenciométrica para a determinação da concentração de urânio total é muito similar ao usado na aplicação do método Davies & Gray/NBL. Dentre as exceções pode-se destacar o uso de uma balança analítica de melhor resolução, de uma bureta de menor volume no titulador e do MRC de $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ ser adicionado na sua forma sólida e na de solução padrão primário de $1,67 \times 10^{-3}$ M. Sendo assim:

a) Balança analítica de melhor resolução

A balança analítica modelo ME-36S, da Sartorius com resolução de 0,001 mg é de suma importância na pesagem do $K_2Cr_2O_7$ sólido. A maior parte de $K_2Cr_2O_7$ usado na titulação é adicionado em sua forma sólida, ou seja, no método são calculadas e medidas as quantidades de $K_2Cr_2O_7$ sólido necessárias para reagir com até 99 % do urânio presente na amostra.

Assim como as demais balanças, esta também é calibrada anualmente por laboratório acreditado e pertencente à Rede Brasileira de Calibração (RBC) e periodicamente são verificadas suas condições de funcionamento em específicas faixas de temperatura, umidade relativa do ar e pressão atmosférica controlada.

b) Titulador potenciométrico automático

O volume da solução padrão primário de $K_2Cr_2O_7$ $1,67 \times 10^{-3}$ M no método Semi-automático é muito pequeno, não ultrapassa 5 mL.

Para gerar um fator de calibração da bureta (*fb*) mais consistente com a quantidade de solução padrão adicionada no método é acoplada ao titulador uma bureta de 5 mL. A obtenção do *fb* é a mesma realizada no método Davies & Gray/NBL, só modifica o volume fixo da bureta para 5 mL [4].

c) Método Semiautomático de Titulação Potenciométrica

A realização minuciosa do método possibilitou a sua divisão nas etapas de: dissolução da amostra de aproximadamente 2,5 g, cálculos e pesagens do $K_2Cr_2O_7$ e do $FeSO_4$ necessários para cada alíquota, adição de reagentes e soluções analíticas e finalmente adição do $K_2Cr_2O_7$ sólido seguida da sua solução padrão [4]. Paralelamente, são preparadas as soluções padrão de $K_2Cr_2O_7$ $1,67 \times 10^{-3}$ M e realizada a calibração da bureta de 5 mL do titulador, conforme apresentado na Figura 3.8 [4].

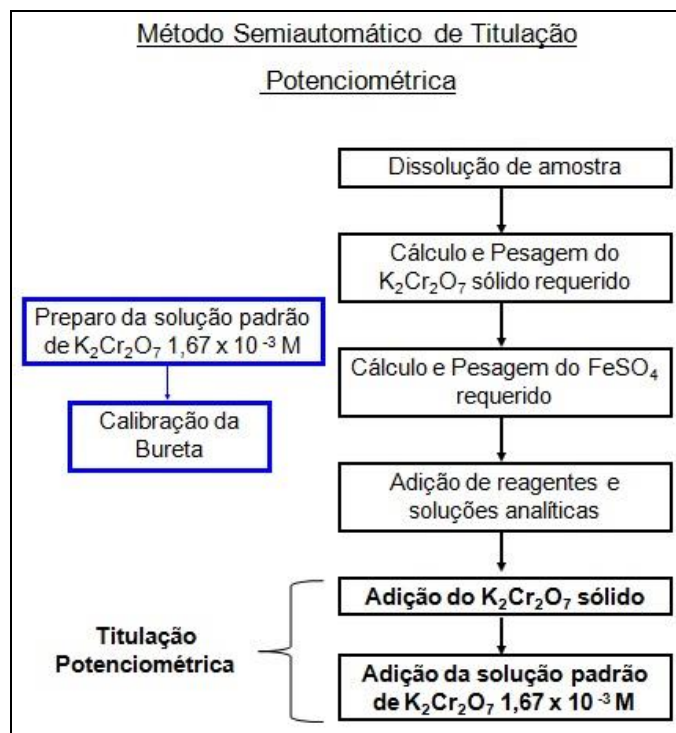


Figura 3.8: Esquema para execução do Método Semiautomático

Para a dissolução da amostra foram pesadas por diferença cerca de 2,5 g de UO_2 , na forma de pastilha, em um bécher de vidro de fôrma alta. Em seguida, foram adicionados 20 mL de HNO_3 8 M e o bécher foi colocado na chapa de aquecimento (modelo 510, Fisatom) ajustada em 100 °C até a total dissolução do material [57].

A amostra foi levada à secura e em seguida dissolvida com um mínimo de água deionizada. No passo seguinte foram adicionados 20 mL de HNO_3 concentrado (65 %) e no centro da solução 20 gotas de HF concentrado (48 %). Novamente o bécher foi colocado sob aquecimento à 100 °C por no mínimo 8 horas.

Com o mínimo de água, lavou-se as paredes do bécher e levou-se a solução até à secura. Após esta etapa, a amostra foi redissolvida com 10 mL de HNO_3 8 M e 5 mL de HClO_4 concentrado e levada até a quase secura em chapa de aquecimento.

Por no mínimo duas vezes, a amostra foi redissolvida com uma quantidade mínima de água deionizada e 5 mL de HClO_4 , seguida de aquecimento até a quase secura. Também por duas vezes foi adicionado nas paredes do bécher uma quantidade mínima de água, seguida de aquecimento até a secura.

Por fim, foi adicionado uma quantidade mínima de água para dissolver amostra, além de 50 mL de H_3PO_4 e 3 gotas de $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ 2%. Posteriormente, o bécher foi aquecido em chapa por aproximadamente 30 minutos para a completa dissolução da amostra.

O padrão de U_3O_8 , CRM 129-A certificado pelo NBL [64], que possibilitou a comparabilidade das medições e foi determinante na obtenção do fator de correção de erros sistemáticos teve uma dissolução mais simplificada [4].

A concentração de urânio (U_{AP}) é obtida a partir da quantidade total (sólido e solução) de padrão primário de $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$, que foi consumido na titulação. Sendo assim:

$$U_{AP} = \frac{100 \cdot E_D \cdot P_D}{E_U \cdot F_D} \cdot \left[\frac{W_{di} + f_b \cdot \frac{w}{W} \cdot V_{di}}{W_{si}} \right] \quad (3.9)$$

Em que:

E_D : é o fator de empuxo relativo a pesagem do dicromato de potássio;

P_D : é a pureza do MRC de dicromato de potássio;

E_U : é o fator de empuxo relativo à pesagem do urânio (UO_2);

F_D : é o fator de equivalência, baseado na reação de oxi-redução entre o $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ e o U;

W_{di} : é a massa de dicromato sólido, obtido pela diferença entre o peso bruto e a tara, para cada alíquota (g);

f_b : é o fator de calibração da bureta (g/mL);

w : é a massa de $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ sólido, obtido pela diferença entre o peso bruto e a tara do balão volumétrico, necessário para o preparo da solução de $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ $1,67 \times 10^{-3}$ M (g);

W : é a massa da solução padrão de $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ $1,67 \times 10^{-3}$ M, obtido pela diferença entre o peso bruto e a tara do balão volumétrico (g);

V_{di} : é o volume da solução padrão de $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ $1,67 \times 10^{-3}$ M adicionado a cada amostra (mL);

W_{si} : é a massa da alíquota de UO_2 , obtido pela diferença entre peso bruto e a tara (g).

Sendo que, para o cálculo da incerteza padrão combinada da concentração média das alíquotas analisadas foi utilizada a seguinte equação:

$$U_{AP_média} = \frac{1}{N} \cdot \frac{100 \cdot E_D \cdot P_D}{E_U \cdot F_D} \cdot \sum_{i=1}^n \left[\frac{W_{di} + f_b \cdot \frac{w}{W} \cdot V_{di}}{W_{si}} \right] \quad (3.10)$$

A solução padrão de urânio, preparada conforme mesma metodologia utilizada nas subamostras [4], foi determinante na obtenção do fator de correção de erros sistemáticos (F_{bias}). Esse fator foi determinado conforme equação a seguir:

$$F_{bias} = \frac{100}{B_{médio} + 100} \quad (3.11)$$

Em que o termo $B_{médio}$ é o valor médio dos erros relativos obtidos a partir da titulação das soluções padrão de urânio.

Cabe ressaltar que a concentração ($U_{AP_média}$), obtida conforme equação 3.10, foi posteriormente corrigida pelo fator de correção de erros sistemáticos ($U_{AP_média} \times F_{bias}$), para então ser declarada juntamente com sua incerteza expandida.

A identificação das fontes de incerteza estão definidas e esclarecidas em literatura [4].

As diferentes contribuições de incerteza foram quantificadas por meio das derivadas parciais da concentração de urânio total em relação a cada fonte de incerteza atribuída ao método, considerando que não existem correlações entre as grandezas de entrada. A equação a seguir representa resumidamente como foi realizado o cálculo da incerteza padrão combinada da concentração de urânio total [4]:

$$u_c(U_{AP}) = \left\{ \left(\frac{\partial C_U}{\partial E_D} \right)^2 u_{E_D}^2 + \left(\frac{\partial C_U}{\partial P_D} \right)^2 u_{P_D}^2 + \left(\frac{\partial C_U}{\partial E_U} \right)^2 u_{E_U}^2 + \left(\frac{\partial C_U}{\partial F_D} \right)^2 u_{F_D}^2 + \dots \right. \\ \left. \dots + \left(\frac{\partial C_U}{\partial W_{di}} \right)^2 u_{W_{di}}^2 + \left(\frac{\partial C_U}{\partial f_b} \right)^2 u_{f_b}^2 + \left(\frac{\partial C_U}{\partial w} \right)^2 u_w^2 + \left(\frac{\partial C_U}{\partial W} \right)^2 u_W^2 + \dots \right.$$

$$\dots + \left(\frac{\partial C_U}{\partial V_{di}} \right)^2 u_{V_{di}}^2 + \left(\frac{\partial C_U}{\partial W_{si}} \right)^2 u_{W_{si}}^2 \}^{\frac{1}{2}} \quad (3.12)$$

A estimativa da incerteza foi feita de acordo com a ISO GUM [30]. Os cálculos foram efetuados usando a abordagem Kragten via planilha validada [65].

Dentre os parâmetros de entrada, o que mais contribui para a incerteza da concentração de urânio total, é a pureza do MRC de dicromato potássio (P_D) fornecido pelo NIST SRM 136e [4, 5].

RESULTADOS E DISCUSSÕES

Os resultados obtidos para este trabalhos foram apresentados em quatro etapas, sendo a primeira referente ao desenvolvimento e aperfeiçoamento do método escolhido para a caracterização das amostras, as duas seguintes ao estudo de homogeneidade realizado pela aplicação dos métodos de Davies & Gray / NBL e de espectrometria gama de alta resolução respectivamente e a última a efetiva caracterização das amostras.

4.1 Desenvolvimento e Aperfeiçoamento do Método Semiautomático de Titulação Potenciométrica para Análise de UO_2

O Método Semiautomático quando implementado no LASAL foi desenvolvido para a análise de U_3O_8 . Quando aplicado em análises de UO_2 foi necessário aperfeiçoar principalmente a etapa de dissolução da amostra.

Enquanto que amostras de U_3O_8 são dissolvidas diretamente em H_3PO_4 que favorece a redução U (IV) a U (VI), as pastilhas de UO_2 são dissolvidas em HNO_3 , HClO_4 e HF , para que depois de garantida sua completa dissolução, seja adicionado o H_3PO_4 com intuito de prosseguir com as demais etapas do método, conforme Figura 4.1.

Todas análises foram realizadas no LASAL e não foi obtida qualquer dificuldade de aplicar o método semiautomático em amostras de UO_2 , o que permitiu a utilização da técnica para caracterização de tais pastilhas.

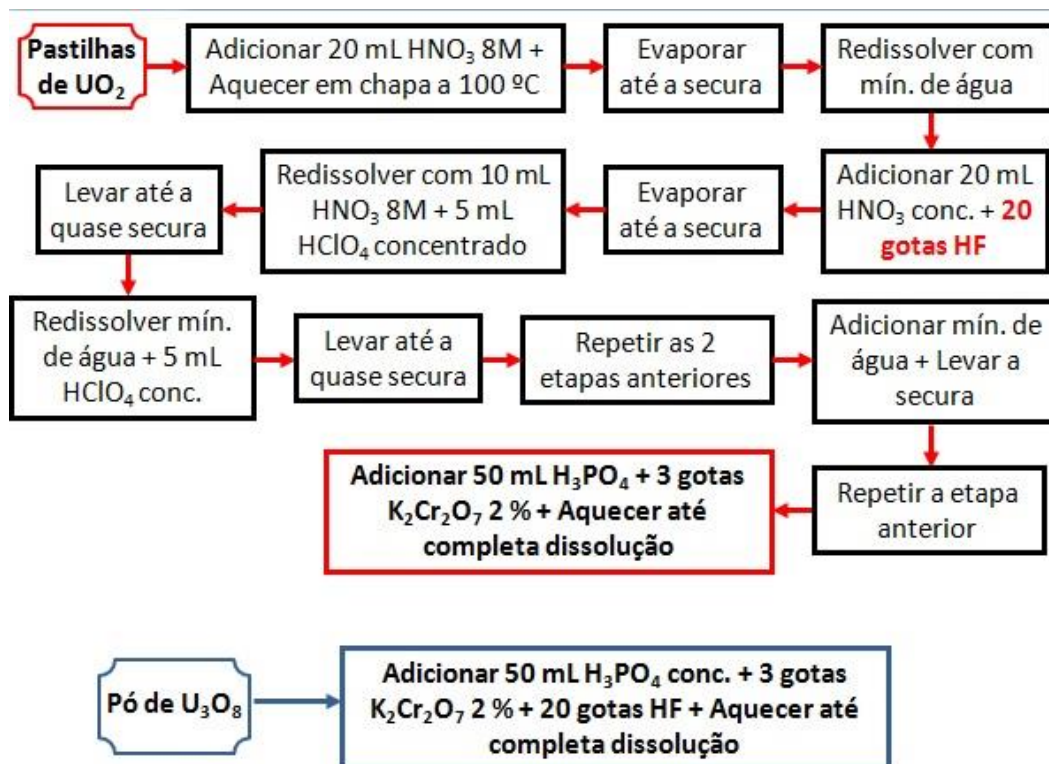


Figura 4.1: Comparação entre os procedimentos experimentais de dissolução de pastilhas de UO_2 e pó de U_3O_8 .

4.2 Estudo de Homogeneidade pelo Método Titrimétrico Davies & Gray / NBL e Avaliação Estatística dos Resultados.

O estudo de homogeneidade das pastilhas de UO_2 foi realizado no LASAL/CNEN, pela aplicação do método titrimétrico Davies & Gray / NBL. Para este propósito 4 pastilhas de cada lote foram escolhidos aleatoriamente.

O estudo foi realizado em duas fases, sendo que na 1ª fase somente metade das pastilhas foram analisadas. Na 2ª fase, ocorrida após 1 ano da realização da anterior, a outra metade foi estudada.

Os resultados em concentração de urânio total de todas as pastilhas analisadas, com suas respectivas incertezas padrão combinada, estão apresentados na Tabela 4.1.

Tabela 4.1: Resultados experimentais para as pastilhas do Lote 1 e do Lote 2 pela aplicação do método Davies & Gray/NBL.

Identificação da Amostra	Lote 1 (3,2 % ²³⁵ U)		Lote 2 (1,9 % ²³⁵ U)	
	Média (%U)	Incerteza ^a (%U)	Média (%U)	Incerteza ^a (%U)
ALIQ.1.1 d1	88,130	0,036	88,189	0,047
ALIQ.1.1 d2	88,067	0,038	88,193	0,032
ALIQ.1.2 d1	88,041	0,027	88,116	0,027
ALIQ.1.2 d2	88,086	0,029	88,054	0,027
ALIQ.2.1 d1	88,036	0,033	88,128	0,028
ALIQ.2.1 d2	88,082	0,035	88,070	0,028
ALIQ.2.2 d1	88,022	0,032	88,140	0,033
ALIQ.2.2 d2	88,102	0,031	88,149	0,033
ALIQ.3.1 d1	88,085	0,033	88,183	0,023
ALIQ.3.1 d2	88,148	0,039	88,183	0,028
ALIQ.3.2 d1	88,103	0,031	88,172	0,029
ALIQ.3.2 d2	88,179	0,029	88,189	0,031
ALIQ.4.1 d1	88,333	0,034	88,116	0,030
ALIQ.4.1 d2	88,313	0,034	88,138	0,034
ALIQ.4.2 d1	88,003	0,026	88,118	0,037
ALIQ.4.2 d2	88,119	0,027	88,204	0,027
Média (%U)	88,116		88,146	
Desvio Padrão (%U)	0,093		0,045	
Desvio Padrão Relativo (%)	0,106		0,051	

^aIncerteza padrão combinada calculada em planilha validada Kragten (ANEXO 1).

Para uma melhor ilustração dos resultados relatados na Tabela 4.1, são apresentados na Figura 4.2 e na Figura 4.3 todos os valores obtidos para concentração de urânio total com suas respectivas incertezas expandidas para um nível de confiança de 95 % e fator de abrangência (k) cujo valor calculado foi em média aproximadamente 2.

Em ambas as figuras, a linha sólida horizontal indica a média e as linhas tracejadas indicam uma faixa de $\pm 2\sigma$.

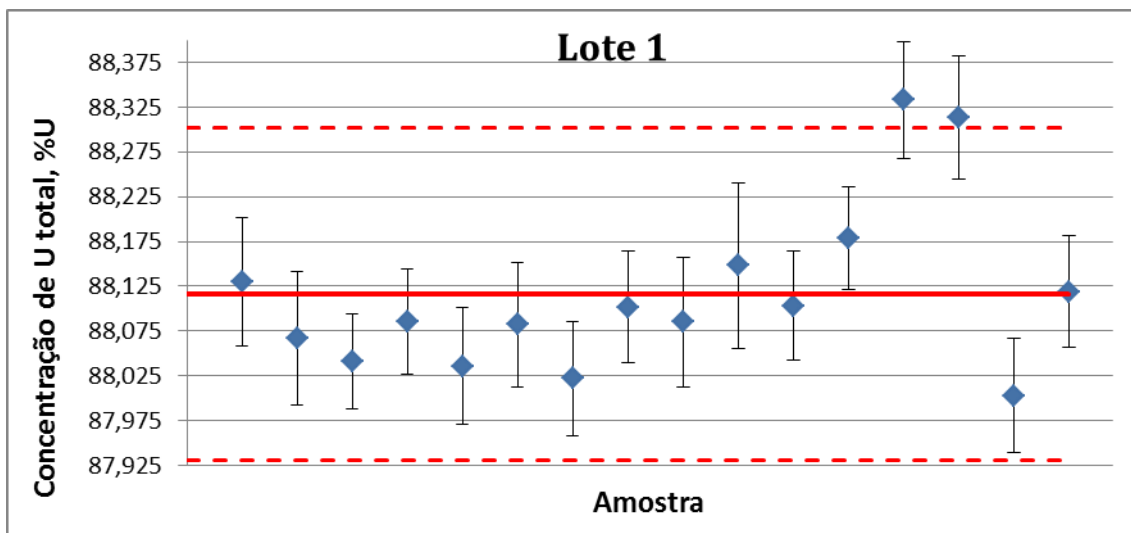


Figura 4.2: Gráfico com os resultados obtidos para o Lote 1 com suas respectivas incertezas expandidas para um nível de confiança de 95 %.

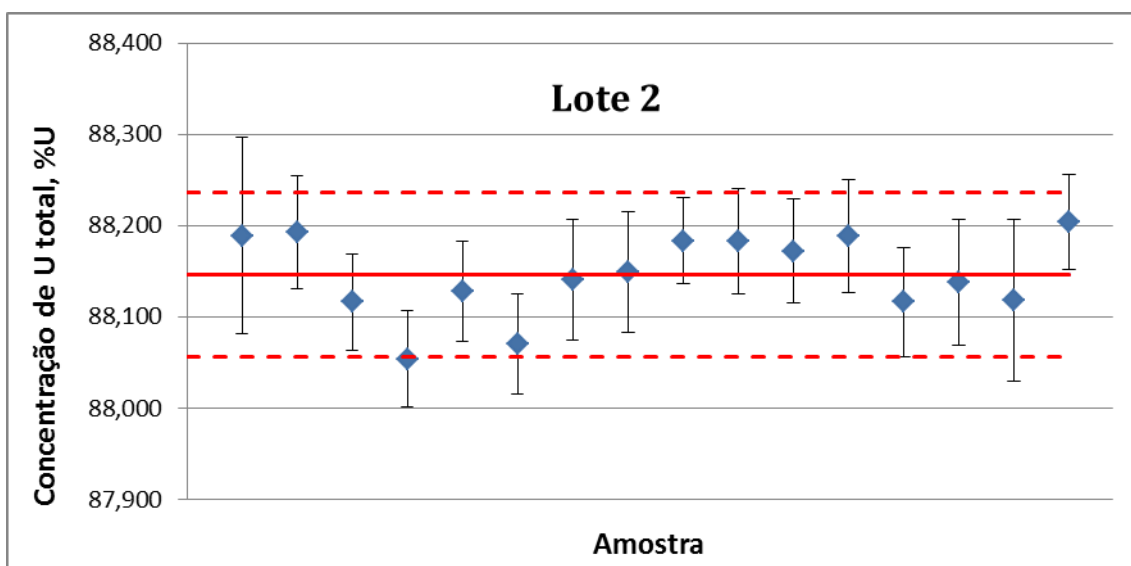


Figura 4.3: Gráfico com os resultados obtidos para o Lote 2 com suas respectivas incertezas expandidas para um nível de confiança de 95 %.

Testes de rejeição de valores discrepantes foram aplicados aos resultados de concentração de urânio total para ambos os lotes. Aplicou-se o Teste de Cochran, seguido do teste de Grubbs, sendo que somente houve rejeição das alíquotas ALIQ.4.1 d1, ALIQ.4.1 d2, ALIQ.4.2 d1 e ALIQ.4.2 d2 do Lote 1. Como as alíquotas excluídas foram todas de uma única pastilha (Pastilha 4 do Lote 1), acredita-se que tenha ocorrido problemas durante a pesagem e preparação dessas alíquotas, já que este comportamento não foi observado nas demais pastilhas analisadas.

Como a importância destes resultados está diretamente relacionada ao estudo de homogeneidade, foi feita análises estatísticas para verificar se a variação dentro da unidade (dentro da pastilha) e a variação unidade a unidade (entre as pastilhas) estão dentro da variância do método.

A análise de variâncias (ANOVA) fator único associada ao teste F foi utilizada para avaliar se os resultados da homogeneidade são significativos. E neste estudo foram obtidos os resultado apresentados nas Tabelas 4.2 e 4.3:

Tabela 4.2: Resultados ANOVA fator único e teste F para as pastilhas do Lote 1.

Lote 1	Soma Quadrática	Graus de liberdade	Média Quadrática	F _{calculado}	valor-P	F _{crítico}
Entre as pastilhas	0,0098112	2	0,00490558	3,162228	0,0912	4,256495 ($\alpha = 5\%$)
Dentro das pastilhas	0,0139618	9	0,00155131			
Total	0,0237729	11				

Pode-se observar que o $F_{\text{calculado}}$ foi menor que o $F_{\text{crítico}}$ ($\alpha = 5\%$), portanto é aceitável considerar as pastilhas do Lote 1 como sendo homogêneas. Outro critério de análise pode ser feito pelo valor-P, que quando maior que o nível de significancia do teste ($\alpha = 0,05$) é dito que não há diferenças significativas, ou seja, as amostras são suficientemente homogêneas.

Como o valor de MQE é maior que do MQD, a incerteza padrão devido à homogeneidade foi estimada pelo desvio padrão entre os frascos conforme equação 2.1 e o resultado obtido foi $u_{\text{homogeneidade}}$ igual a 0,029 %U.

Tabela 4.3: Resultados ANOVA fator único e teste F para as pastilhas do Lote 2.

Lote 2	Soma Quadrática	Graus de liberdade	Média Quadrática	F _{calculado}	valor-P	F _{crítico}
Entre as pastilhas	0,0077343	3	0,0025781	1,39321	0,29250	3,490295 ($\alpha = 5\%$)
Dentro das pastilhas	0,0222055	12	0,0018505			
Total	0,0299397	15				

Pode-se observar que tanto $F_{\text{calculado}}$ foi menor que o $F_{\text{crítico}}$ quanto o valor-P foi maior que o nível de significância, portanto é aceitável considerar as pastilhas do Lote 2 como sendo suficientemente homogêneas.

Como o valor de MQE é maior que do MQD, a incerteza padrão devido à homogeneidade foi estimada pelo desvio padrão entre os frascos conforme equação 2.1 e o resultado obtido foi $U_{\text{homogeneidade}}$ igual a 0,013 %U.

De forma resumida, os resultados obtidos no estudos de homogeneidade pela aplicação do método titrimétrico Davies & Gray / NBL são apresentados na Tabela 4.4.

Tabela 4.4: Resumo dos resultados obtidos no estudo de homogeneidade pela aplicação do método titrimétrico Davies & Gray / NBL.

	Lote 1	Lote 2
Média (% U_{total})	88,090	88,146
Desvio Padrão (% U_{total})	0,046	0,045
Desvio Padrão da Média (%)	0,053	0,051
$U_{\text{homogeneidade}}$ (% U_{total})	0,029	0,013

4.3 Estudo de Homogeneidade pelo Método de Espectrometria Gama de Alta Resolução e Avaliação Estatística dos Resultados.

O estudo de homogeneidade pelo método de espectrometria gama de alta resolução foi aplicado nas pastilhas dos Lotes 1 e 2, e seus resultados foram avaliados estatisticamente.

Para ambos os lotes foram realizadas 72 contagens/pastilha e seus resultados estão descritos na Tabela 4.5 e na Tabela 4.6.

O teste de Grubbs, para rejeição de resultados, foi aplicado aos resultados de enriquecimento (% ^{235}U) apresentados nas tabelas citadas anteriormente.

O valor da média obtida para o Lote 1 foi igual a 3,197 % ^{235}U é considerado bem próximo do valor declarado para essas pastilhas que é de 3,199 % ^{235}U e consistente com os resultados de rotina do laboratório para este tipo de análise. Esta comparação realizada entre a média obtida e o valor declarado forneceu uma visão satisfatória da exatidão dos resultados. O mesmo foi observado no Lote 2 no qual o valor da média obtida foi de 1,896 % ^{235}U e o valor declarado é de 1,902 % ^{235}U .

Devido às limitações da técnica, só é possível avaliar a homogeneidade do lote (homogeneidade entre as pastilhas). Porém deve-se ressaltar que o estudo de homogeneidade por NDA é de caráter adicional, isso porque o foco do trabalho é a caracterização do material em concentração de urânio total e não em enriquecimento em ^{235}U .

Tabela 4.5: Resultados de enriquecimento ($\%^{235}\text{U}$) do Lote 1, obtidos pela aplicação do método de espectrometria gama de alta resolução.

Pastilhas do Lote 1	Média ($\%^{235}\text{U}$) ^a	Desvio Padrão ($\%^{235}\text{U}$)
1	3,204 ± 0,006	0,051
2	3,202 ± 0,009	0,073
3	3,204 ± 0,007	0,059
4	3,192 ± 0,008	0,071
5	3,197 ± 0,009	0,072
6	3,185 ± 0,009	0,080
7	3,185 ± 0,006	0,055
8	3,205 ± 0,007	0,062
9	3,199 ± 0,009	0,073
10	3,196 ± 0,007	0,054
11	3,202 ± 0,009	0,080
12	3,193 ± 0,008	0,064
13	3,190 ± 0,008	0,072
14	3,201 ± 0,009	0,075
15	3,215 ± 0,010	0,085
16	3,194 ± 0,008	0,065
17	3,225 ± 0,009	0,076
18	3,191 ± 0,009	0,077
19	3,184 ± 0,008	0,068
20	3,192 ± 0,010	0,083
21	3,175 ± 0,008	0,066
22	3,197 ± 0,008	0,064
23	3,207 ± 0,009	0,073
Média ($\%^{235}\text{U}$)		3,197
Desvio Padrão ($\%^{235}\text{U}$)		0,011

^aIncerteza padrão, tipo A, referente as medições de enriquecimento

Tabela 4.6: Resultados de enriquecimento ($\%^{235}\text{U}$) do Lote 2, obtidos pela aplicação do método de espectrometria gama de alta resolução.

Pastilhas do Lote 2	Média ($\%^{235}\text{U}$) ^a	Desvio Padrão ($\%^{235}\text{U}$)
1	1,888 ± 0,010	0,084
2	1,884 ± 0,008	0,070
3	1,899 ± 0,008	0,071
4	1,907 ± 0,007	0,056
5	1,917 ± 0,011	0,095
6	1,903 ± 0,009	0,080
7	1,900 ± 0,007	0,061
8	1,880 ± 0,007	0,062
9	1,881 ± 0,009	0,074
10	1,904 ± 0,007	0,063
11	1,880 ± 0,009	0,074
12	1,899 ± 0,007	0,059
13	1,889 ± 0,007	0,060
14	1,893 ± 0,007	0,057
15	1,898 ± 0,009	0,076
16	1,902 ± 0,009	0,077
17	1,908 ± 0,008	0,067
18	1,898 ± 0,007	0,062
19	1,899 ± 0,008	0,064
20	1,887 ± 0,007	0,063
21	1,890 ± 0,008	0,068
22	1,900 ± 0,009	0,077
23	1,904 ± 0,007	0,059
Média ($\%^{235}\text{U}$)		1,896
Desvio Padrão ($\%^{235}\text{U}$)		0,010

^aIncerteza padrão, tipo A, referente as medições de enriquecimento

Para uma melhor ilustração, os valores de enriquecimento e suas respectivas incertezas apresentados na Tabela 4.5 e na Tabela 4.6, foram plotados conforme ilustrados na Figura 4.4 e na Figura 4.5 respectivamente.

Teste t (Student) com nível de confiança de 99 % foi usado como alternativa na avaliação do grau de heterogeneidade dos lotes. Para ambos os lotes, com graus de liberdade igual a 22, o fator t (tabelado) tem valor de 2,82.

Em ambas as figuras, a linha sólida horizontal indica a média (μ) e as linhas tracejadas indicam uma faixa de $\pm 2,82\sigma$.

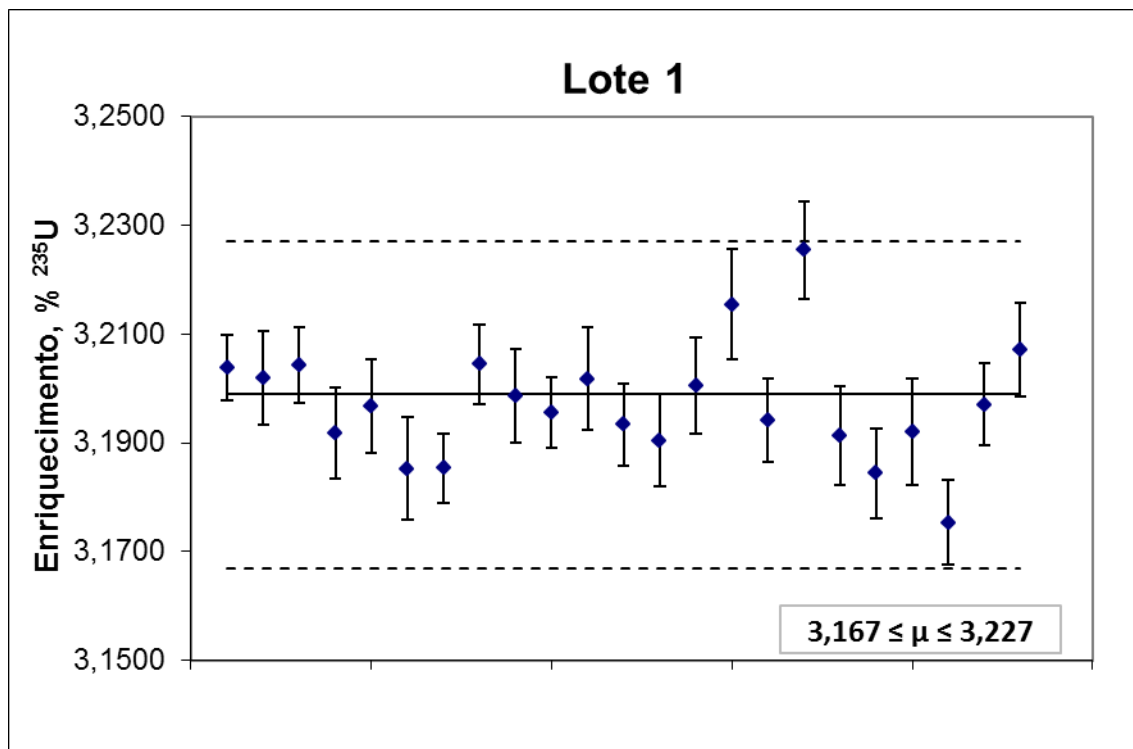


Figura 4.4: Gráfico com os resultados obtidos para o Lote 1.

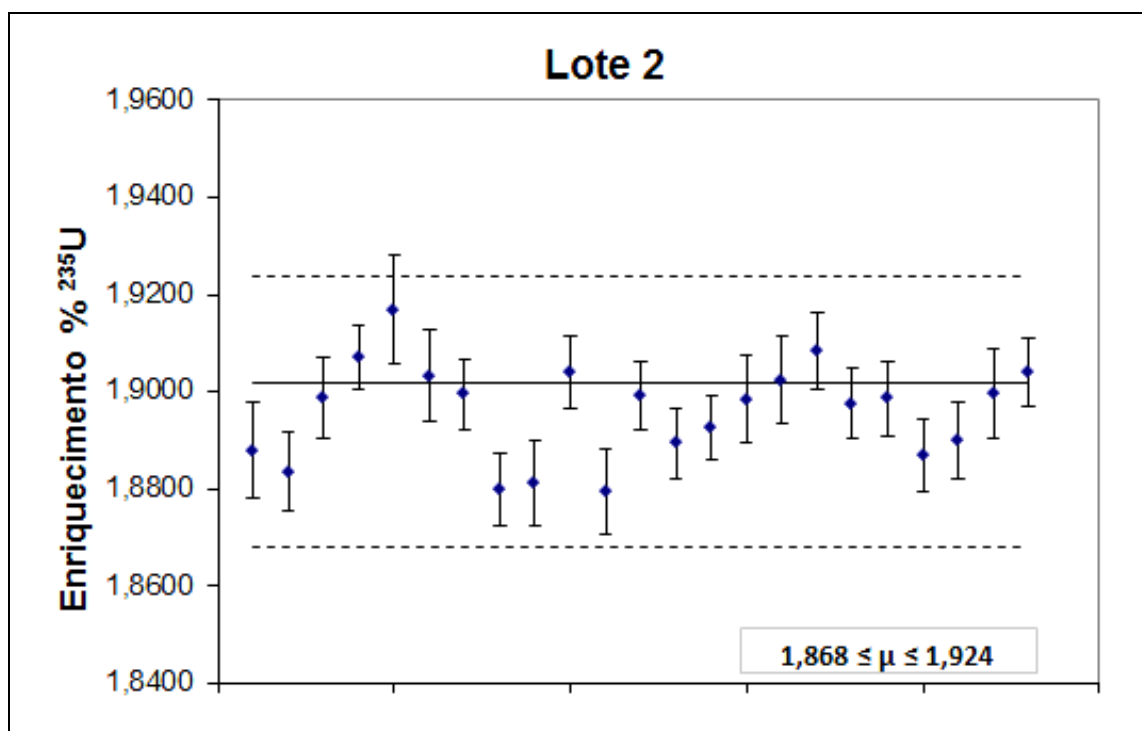


Figura 4.5: Gráfico com os resultados obtidos para o Lote 2.

Como observado nas figuras, todos os resultados, de ambos os lotes, estão dentro dos limites calculados. Portanto, foi aceitável considerar as amostras como sendo homogêneas.

4.4 Caracterização em Concentração de Urânio Total pelo Método Semiautomático de Titulação Potenciométrica e Definição dos Valores de Referência com suas Incertezas Devidamente Estimadas.

A caracterização em concentração de urânio total pelo método semiautomático de titulação potenciométrica foi aplicado nas pastilhas dos Lotes 1 e 2, e seus resultados estão descritos na Tabela 4.7.

O teste de Grubbs foi aplicado aos resultados e nenhum valor de concentração de urânio total foi rejeitado.

Tabela 4.7: Resultados de concentração de urânio total obtidos pela aplicação do método semiautomático de titulação potenciométrica

Concentração de urânio total Valor $\pm$ Inc. expandida (%U_{total}, % p/p, k=1,96 %)	
Lote 1 (3,2 % ²³⁵U)	Lote 2 (1,9 % ²³⁵U)
88,027 $\pm$ 0,010	88,107 $\pm$ 0,010
88,046 $\pm$ 0,010	88,105 $\pm$ 0,010
88,077 $\pm$ 0,010	88,098 $\pm$ 0,010
87,997 $\pm$ 0,010	88,107 $\pm$ 0,010
88,072 $\pm$ 0,010	88,110 $\pm$ 0,010
88,111 $\pm$ 0,010	88,101 $\pm$ 0,010
88,094 $\pm$ 0,010	-
Média = 88,061	Média = 88,132
Desvio Padrão = 0,040	Desvio Padrão = 0,004
Desvio Padrão Relativo = 0,045 %	Desvio Padrão Relativo = 0,005 %

Somente no Lote 2 o método apresentou repetitividade melhor do que 0,01 %, representado pelo valor de desvio padrão relativo calculado para 6 determinações igual a 0,005 %. Tal fato não foi observado no Lote 1 que apresentou repetitividade para 7 determinações similar a obtida com o método Davies & Gray/NBL em torno de 0,05 %.

Para cada medição foram determinados os valores dos componentes de incerteza, associando-se a cada um deles uma incerteza padrão, conforme apresentado nas Tabelas 4.8 a 4.14 para o Lote 1 e 4.15 a 4.20 para o Lote 2.

Além da incerteza padrão combinada, foi calculado nesta planilha, em função do número de graus de liberdade, o fator de abrangência (k), cujo valor obtido foi igual a 1,96. Consequentemente pôde-se expressar a incerteza expandida, cujo propósito é fornecer um intervalo sobre o resultado destas medições para um determinado nível de confiança.

A contribuição relativa de cada fonte de incerteza para os resultados de cada alíquota também foi obtida, conforme antepenúltima linha da planilha. Em ambos os lotes, a estimativa de incerteza do mensurando é dominada pela pureza do dicromato de potássio (P_D) fornecida pelo certificado do material de referência NIST SRM 136e.

Tabela 4.8: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 1 do Lote 1.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd1)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd1)	u(Ws1)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
	df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E_D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P_D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E_U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F_D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
$Wd1$	0,97167	0,97167	0,97167	0,97167	0,97167	0,97168	0,97167	0,97167	0,97167	0,97167	0,97167
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
$Vd1$	4,4735	4,47350	4,47350	4,47350	4,47350	4,47350	4,47350	4,47350	4,47350	4,48790	4,47350
$Ws1$	2,68600	2,68600	2,68600	2,68600	2,68600	2,68600	2,68600	2,68600	2,68600	2,68600	2,68601
Resultado	88,027	88,02758	88,03240	88,02727	88,02690	88,02822	88,02733	88,02733	88,02732	88,02797	88,02699
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00090	0,00001	0,00000	0,00000	0,00065	-0,00033
u_c	0,00523	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1125564,25	0,2%	94,2%	0,0%	0,6%	3,0%	0,0%	0,0%	0,0%	1,5%	0,4%
k	1,96	88,00149	88,04141	-88,03083	-213,67156	90,38593	0,20263	0,40405	-0,00020	0,04516	-32,77252
U	0,010	0,012% $U_{relativo}$ %									

Tabela 4.9: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 2 do Lote 1.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd2)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd2)	u(Ws2)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
	df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd2	0,84292	0,84292	0,84292	0,84292	0,84292	0,84293	0,84292	0,84292	0,84292	0,84292	0,84292
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd2	4,8095	4,80950	4,80950	4,80950	4,80950	4,80950	4,80950	4,80950	4,80950	4,82390	4,80950
Ws2	2,33087	2,33087	2,33087	2,33087	2,33087	2,33087	2,33087	2,33087	2,33087	2,33087	2,33088
Resultado	88,046	88,04663	88,05146	88,04632	88,04596	88,04742	88,04639	88,04638	88,04637	88,04712	88,04600
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00104	0,00002	0,00001	0,00000	0,00075	-0,00038
u _c	0,00528	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1160954,51	0,2%	92,7%	0,0%	0,6%	3,9%	0,0%	0,0%	0,0%	2,0%	0,5%
k	1,96	88,02054	88,06046	-88,04989	-213,71781	104,15708	0,25105	0,50058	-0,00025	0,05204	-37,77388
U	0,010		0,012% U _{relativo} %								

Tabela 4.10: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 3 do Lote 1.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd3)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd3)	u(Ws3)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
	df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd3	0,86984	0,86984	0,86984	0,86984	0,86984	0,86985	0,86984	0,86984	0,86984	0,86984	0,86984
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd3	5,324	5,32400	5,32400	5,32400	5,32400	5,32400	5,32400	5,32400	5,32400	5,33840	5,32400
Ws3	2,40496	2,40496	2,40496	2,40496	2,40496	2,40496	2,40496	2,40496	2,40496	2,40496	2,40497
Resultado	88,077	88,07765	88,08248	88,07734	88,07697	88,07840	88,07741	88,07740	88,07739	88,07812	88,07703
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00101	0,00002	0,00001	0,00000	0,00073	-0,00037
u _c	0,00527	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1152137,61	0,2%	93,1%	0,0%	0,6%	3,7%	0,0%	0,0%	0,0%	1,9%	0,5%
k	1,96	88,05155	88,09149	-88,08091	-213,79310	100,94829	0,26934	0,53706	-0,00027	0,05044	-36,62307
U	0,010		0,012% U _{relativo} %								

Tabela 4.11: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 4 do Lote 1.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd4)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd4)	u(Ws4)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
	df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd4	0,92237	0,92237	0,92237	0,92237	0,92237	0,92238	0,92237	0,92237	0,92237	0,92237	0,92237
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd4	3,744	3,74400	3,74400	3,74400	3,74400	3,74400	3,74400	3,74400	3,74400	3,75840	3,74400
Ws4	2,54991	2,54991	2,54991	2,54991	2,54991	2,54991	2,54991	2,54991	2,54991	2,54991	2,54992
Resultado	87,997	87,99709	88,00191	87,99678	87,99642	87,99779	87,99685	87,99684	87,99683	87,99752	87,99649
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00095	0,00001	0,00000	0,00000	0,00069	-0,00035
u _c	0,00525	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1137467,70	0,2%	93,7%	0,0%	0,6%	3,3%	0,0%	0,0%	0,0%	1,7%	0,4%
k	1,96	87,97102	88,01092	-88,00035	-213,59756	95,20987	0,17864	0,35621	-0,00018	0,04757	-34,50965
U	0,010		0,012%	U _{relativo} , %							

Tabela 4.12: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 5 do Lote 1.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd5)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd5)	u(Ws5)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
	df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd5	0,84309	0,84309	0,84309	0,84309	0,84309	0,84310	0,84309	0,84309	0,84309	0,84309	0,84309
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd5	20,5155	20,51550	20,51550	20,51550	20,51550	20,51550	20,51550	20,51550	20,51550	20,52990	20,51550
Ws5	2,35228	2,35228	2,35228	2,35228	2,35228	2,35228	2,35228	2,35228	2,35228	2,35228	2,35229
Resultado	88,072	88,07271	88,07754	88,07240	88,07204	88,07349	88,07252	88,07248	88,07244	88,07320	88,07208
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00103	0,00007	0,00002	-0,00001	0,00074	-0,00037
u _c	0,00528	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1150106,86	0,2%	92,8%	0,0%	0,6%	3,8%	0,0%	0,0%	0,0%	2,0%	0,5%
k	1,96	88,04661	88,08655	-88,07597	-213,78111	103,20906	1,06112	2,11586	-0,00106	0,05157	-37,44116
U	0,010		0,012%	U _{relativo} , %							

Tabela 4.13: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 6 do Lote 1.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd6)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd6)	u(Ws6)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
	df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd6	0,83907	0,83907	0,83907	0,83907	0,83907	0,83908	0,83907	0,83907	0,83907	0,83907	0,83907
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd6	5,8385	5,83850	5,83850	5,83850	5,83850	5,83850	5,83850	5,83850	5,83850	5,85290	5,83850
Ws6	2,31997	2,31997	2,31997	2,31997	2,31997	2,31997	2,31997	2,31997	2,31997	2,31997	2,31998
Resultado	88,111	88,11121	88,11604	88,11091	88,11054	88,11201	88,11098	88,11097	88,11096	88,11171	88,11058
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00105	0,00002	0,00001	0,00000	0,00075	-0,00038
u _c	0,00528	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1162093,22	0,2%	92,7%	0,0%	0,6%	3,9%	0,0%	0,0%	0,0%	2,0%	0,5%
k	1,96	88,08511	88,12506	-88,11447	-213,87457	104,64644	0,30619	0,61054	-0,00031	0,05229	-37,97919
U	0,010		0,012%	U _{relativo} %							

Tabela 4.14: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 7 do Lote 1.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd7)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd7)	u(Ws7)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
	df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd7	0,9897	0,98970	0,98970	0,98970	0,98970	0,98971	0,98970	0,98970	0,98970	0,98970	0,98970
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd7	5,442	5,44200	5,44200	5,44200	5,44200	5,44200	5,44200	5,44200	5,44200	5,45640	5,44200
Ws7	2,73498	2,73498	2,73498	2,73498	2,73498	2,73498	2,73498	2,73498	2,73498	2,73498	2,73499
Resultado	88,094	88,09455	88,09938	88,09424	88,09387	88,09518	88,09431	88,09430	88,09429	88,09493	88,09397
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00089	0,00002	0,00000	0,00000	0,00064	-0,00032
u _c	0,00523	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1121588,61	0,2%	94,4%	0,0%	0,6%	2,9%	0,0%	0,0%	0,0%	1,5%	0,4%
k	1,96	88,06844	88,10839	-88,09781	-213,83412	88,76723	0,24209	0,48272	-0,00024	0,04435	-32,21010
U	0,010		0,012%	U _{relativo} %							

Tabela 4.15: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 1 do Lote 2.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd1)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd1)	u(Ws1)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
	df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd1	0,93497	0,93497	0,93497	0,93497	0,93497	0,93498	0,93497	0,93497	0,93497	0,93497	0,93497
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd1	5,071	5,07100	5,07100	5,07100	5,07100	5,07100	5,07100	5,07100	5,07100	5,08540	5,07100
Ws1	2,58326	2,58326	2,58326	2,58326	2,58326	2,58326	2,58326	2,58326	2,58326	2,58326	2,58327
Resultado	88,107	88,10752	88,11234	88,10721	88,10684	88,10820	88,10727	88,10726	88,10726	88,10794	88,10692
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00094	0,00002	0,00000	0,00000	0,00068	-0,00034
u _c	0,00525	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1134117,39	0,2%	93,8%	0,0%	0,6%	3,2%	0,0%	0,0%	0,0%	1,7%	0,4%
k	1,96	88,08141	88,12136	-88,11078	-213,86559	93,98071	0,23884	0,47623	-0,00024	0,04696	-34,10687
U	0,010	0,012% U _{relativo} %									

Tabela 4.16: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 2 do Lote 2.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd2)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd2)	u(Ws2)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
	df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd2	0,99459	0,99459	0,99459	0,99459	0,99459	0,99460	0,99459	0,99459	0,99459	0,99459	0,99459
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd2	5,0205	5,02050	5,02050	5,02050	5,02050	5,02050	5,02050	5,02050	5,02050	5,03490	5,02050
Ws2	2,74754	2,74754	2,74754	2,74754	2,74754	2,74754	2,74754	2,74754	2,74754	2,74754	2,74755
Resultado	88,105	88,10532	88,11014	88,10501	88,10464	88,10594	88,10507	88,10506	88,10506	88,10570	88,10474
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00088	0,00001	0,00000	0,00000	0,00064	-0,00032
u _c	0,00523	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1120622,31	0,2%	94,4%	0,0%	0,6%	2,9%	0,0%	0,0%	0,0%	1,5%	0,4%
k	1,96	88,07921	88,11916	-88,10858	-213,86025	88,36145	0,22232	0,44330	-0,00022	0,04415	-32,06677
U	0,010	0,012% U _{relativo} %									

Tabela 4.17: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 3 do Lote 2.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd3)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd3)	u(Ws3)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
	df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd3	0,94971	0,94971	0,94971	0,94971	0,94971	0,94972	0,94971	0,94971	0,94971	0,94971	0,94971
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd3	4,8165	4,81650	4,81650	4,81650	4,81650	4,81650	4,81650	4,81650	4,81650	4,83090	4,81650
Ws3	2,62381	2,62381	2,62381	2,62381	2,62381	2,62381	2,62381	2,62381	2,62381	2,62381	2,62382
Resultado	88,098	88,09795	88,10278	88,09764	88,09728	88,09862	88,09771	88,09770	88,09769	88,09836	88,09736
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00093	0,00001	0,00000	0,00000	0,00067	-0,00034
u _c	0,00524	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1130569,58	0,2%	94,0%	0,0%	0,6%	3,1%	0,0%	0,0%	0,0%	1,6%	0,4%
k	1,96	88,07185	88,11179	-88,10121	-213,84238	92,52827	0,22334	0,44534	-0,00022	0,04623	-33,57612
U	0,010	0,012% U _{relativo} , %									

Tabela 4.18: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 4 do Lote 2.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd4)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd4)	u(Ws4)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
	df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd4	0,98936	0,98936	0,98936	0,98936	0,98936	0,98937	0,98936	0,98936	0,98936	0,98936	0,98936
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd4	5,017	5,01700	5,01700	5,01700	5,01700	5,01700	5,01700	5,01700	5,01700	5,03140	5,01700
Ws4	2,73307	2,73307	2,73307	2,73307	2,73307	2,73307	2,73307	2,73307	2,73307	2,73307	2,73308
Resultado	88,107	88,10705	88,11188	88,10674	88,10637	88,10768	88,10681	88,10680	88,10679	88,10743	88,10647
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00089	0,00001	0,00000	0,00000	0,00064	-0,00032
u _c	0,00523	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1121709,67	0,2%	94,4%	0,0%	0,6%	2,9%	0,0%	0,0%	0,0%	1,5%	0,4%
k	1,96	88,08094	88,12089	-88,11031	-213,86446	88,82927	0,22334	0,44533	-0,00022	0,04438	-32,23718
U	0,010	0,012% U _{relativo} , %									

Tabela 4.19: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 5 do Lote 2.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd5)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd5)	u(Ws5)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
		df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd5	0,93628	0,93628	0,93628	0,93628	0,93628	0,93629	0,93628	0,93628	0,93628	0,93628	0,93628
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd5	5,321	5,32100	5,32100	5,32100	5,32100	5,32100	5,32100	5,32100	5,32100	5,33540	5,32100
Ws5	2,58713	2,58713	2,58713	2,58713	2,58713	2,58713	2,58713	2,58713	2,58713	2,58713	2,58714
Resultado	88,110	88,11037	88,11520	88,11006	88,10970	88,11105	88,11013	88,11012	88,11011	88,11079	88,10977
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00094	0,00002	0,00000	0,00000	0,00068	-0,00034
u _c	0,00525	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1133759,74	0,2%	93,8%	0,0%	0,6%	3,2%	0,0%	0,0%	0,0%	1,7%	0,4%
k	1,96	88,08426	88,12422	-88,11363	-213,87253	93,84013	0,25023	0,49896	-0,00025	0,04689	-34,05696
U	0,010	0,012% U _{relativo} , %									

Tabela 4.20: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da alíquota 6 do Lote 2.

		u(ED)	u(PD)	u(EU)	u(FD)	u(Wd6)	u(fb)	u(w)	u(W)	u(Vd6)	u(Ws6)
		0,0000029	0,0000577	0,0000006	0,0000020	0,0000100	0,0000630	0,0000100	0,0100000	0,0144000	0,0000100
		df	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	4,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00	1000000,00
Parâmetros de Entrada	Valor										
E _D	1,00029	1,00030	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029	1,00029
P _D	0,99984	0,99984	0,99990	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984	0,99984
E _U	0,9999595	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
F _D	0,4119730	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197	0,41197
Wd6	0,99841	0,99841	0,99841	0,99841	0,99841	0,99842	0,99841	0,99841	0,99841	0,99841	0,99841
fb	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699	0,99705	0,99699	0,99699	0,99699	0,99699
w	0,5000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50000	0,50001	0,50000	0,50000	0,50000
W	997,71	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,71000	997,72000	997,71000	997,71000
Vd6	5,0625	5,06250	5,06250	5,06250	5,06250	5,06250	5,06250	5,06250	5,06250	5,07690	5,06250
Ws6	2,75825	2,75825	2,75825	2,75825	2,75825	2,75825	2,75825	2,75825	2,75825	2,75825	2,75826
Resultado	88,101	88,10129	88,10612	88,10098	88,10061	88,10191	88,10105	88,10104	88,10103	88,10167	88,10071
		0,00026	0,00508	-0,00005	-0,00042	0,00088	0,00001	0,00000	0,00000	0,00063	-0,00032
u _c	0,00523	0,00000	0,00003	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
df	1119834,21	0,2%	94,4%	0,0%	0,6%	2,8%	0,0%	0,0%	0,0%	1,5%	0,4%
k	1,96	88,07518	88,11513	-88,10455	-213,85048	88,01835	0,22331	0,44527	-0,00022	0,04398	-31,94080
U	0,010	0,012% U _{relativo} , %									

Tabela 4.21: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da Média das 7 alíquotas do Lote 1.

[illegible]

Tabela 4.22: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da Média das 6 alíquotas do Lote 2.

Parâmetro	Valor	df																	
		u(E)	u(D)	u(EU)	u(FT)	u(W1)	u(W2)	u(W3)	u(W4)	u(W5)	u(W6)	u(W)	u(W)	u(W)	u(W)	u(W)	u(W)	u(W)	u(W)
E ₀	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029	1.00029
P ₀	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984	0.99984
E _U	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996
F ₀	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197	0.41197
W1	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497	0.93497
W2	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459	0.99459
W3	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971	0.94971
W4	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836	0.9836
W5	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628	0.93628
W6	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841	0.9841
b	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869	0.9869
w	0.5	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000	0.5000
W	997.71	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100	997.7100
Vd1	5.071	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710	5.0710
Vd2	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205	5.0205
Vd3	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165	4.8165
Vd4	5.017	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170	5.0170
Vd5	5.321	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210	5.3210
Vd6	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625	5.0625
Ws1	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326	2.8326
Ws2	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454	2.7454
Ws3	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281	2.6281
Ws4	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307	2.73307
Ws5	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713	2.58713
Ws6	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825	2.75825
Resultado	88.104	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441	88.10441
u ₂	0.00513	0.00000	0.00508	-0.00005	-0.00042	0.00016	0.00015	0.00015	0.00015	0.00016	0.00015	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000
df	1036728.04	0.2%	98.2%	0.0%	0.7%	0.1%	0.1%	0.1%	0.1%	0.1%	0.1%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
k	1.96	88.08	88.12	-88.11	-13.86	15.66	14.73	15.42	14.80	15.64	14.67	0.23	0.46	0.00	0.01	0.01	-5.68	-5.37	-5.32
U	0.010																		

Para o valor da concentração final de urânio foi obtida a média das determinações e, para calcular a sua incerteza padrão combinada, foi utilizada a lei de propagação da incerteza, conforme demonstrado na Tabela 4.21 para o Lote 1 e na Tabela 4.22 para o Lote 2.

Para a correção de erros sistemáticos, por meio da análise do padrão de U_3O_8 (NBL CRM 129-A), foi obtido fator de Bias de valor igual a 1,00031.

O valor da média obtida para o Lote 1, já corrigido pelo fator de Bias, igual a 88,087 % U (%p/p) é considerado bem próximo do valor obtido por outra técnica analítica (método Davies & Gray/NBL), que foi de 88,090 % U (%p/p). O mesmo foi observado no Lote 2 no qual o valor da média obtida foi de 88,146 % U (%p/p) e pela outra técnica foi de 88,131 % U (%p/p). Com essas medições, por meio de dois métodos de referência independentes em um único laboratório; pode-se obter uma visão satisfatória da repetitividade dos resultados. Esta equivalência entre os resultados pode ser visualizada na Figura 4.23.

Tabela 4.23: Valores e incertezas atribuídos a propriedade do material dos lotes 1 e 2.

	Resultado Davies & Gray/NBL (% U_{total}) ^a	Resultado Semiautomático (% U_{total}) ^b	$U_{homogeneidade}$ (% U_{total}) ^b	Valor Final ^c
Lote 1	88,090 ± 0,092	88,088 ± 0,010	0,029	88,088 ± 0,059
Lote 2	88,146 ± 0,108	88,132 ± 0,010	0,013	88,132 ± 0,028

^a Incerteza expandida para k calculado e nível de confiança de 95 %, obtida conforme planilhas validadas Kragten (ANEXO 1).

^b Incerteza expandida para k=1,96 e nível de confiança de 95 %, obtida conforme planilhas validadas Kragten (Tabela 4.20 e Tabela 4.21).

^b Incerteza padrão devido a homogeneidade calculada conforme equação 2.1.

^c Incerteza expandida para k=2 e nível de confiança de 95 %, calculada conforme equação 2.4

Os valores de incerteza de medição obtidos para estas concentrações de urânio total são menores que 0,1 %, atendendo a um dos objetivos deste trabalho, e permitem a realização de avaliações e verificações dos sistemas de medição dos laboratórios das instalações nucleares.

4.5 Discussão Geral:

Este trabalho teve como primeira etapa o desenvolvimento e aperfeiçoamento do método semiautomático de titulação potenciométrica para análise de UO_2 .

A realização dessa etapa se fez necessária, pois o método semiautomático quando implementado no LASAL foi desenvolvido apenas para a análise de U_3O_8 , que possui uma sequência de ensaios analíticos de dissolução da amostra mais simplificada do que a aplicada em análises de UO_2 .

As análises foram realizadas e não foi obtida qualquer dificuldade de aplicar o método semiautomático em amostras de UO_2 , o que permitiu a utilização da técnica para caracterização de tais pastilhas.

Em seguida, para fins de estudo de homogeneidade das pastilhas de UO_2 , foram tituladas alíquotas de dois lotes diferentes, conforme procedimento descrito no método “Davies & Gray/NBL”.

A escolha do método “Davies & Gray/NBL” baseada na sua boa repetitividade, foi fundamental para avaliar a diferença dos valores de propriedade entre as unidades (dentro das pastilhas e entre as pastilhas).

Com auxílio de testes de rejeição de resultados dispersos como o Teste de Cochran e o Teste de Grubbs e a aplicação da ferramenta estatística ANOVA fator único foi observado que a variação na composição das amostras distribuídas nos frascos de ambos os lotes foi suficientemente pequena para o objetivo proposto. Ou seja, as pastilhas de UO_2 tanto para o Lote 1 quanto para o Lote 2 tiveram sua homogeneidade confirmada.

Paralelamente, foi feito o estudo de homogeneidade por meio do método de espectrometria gama de alta resolução. Devido às limitações da técnica, na qual só é possível avaliar a homogeneidade entre as pastilhas, esse estudo teve apenas caráter adicional e seus resultados não foram incluídos no valor final apresentado em concentração de urânio total.

A associação das avaliações feitas a partir dos resultados de ambos os métodos foi importante na comprovação da homogeneidade das pastilhas.

Com isto, foram iniciados os experimentos de caracterização em concentração de urânio total pelo método semiautomático de titulação potenciométrica.

Dentre as principais observações destaca-se a repetitividade dos resultados de dois métodos de referência independentes em um único laboratório, que é de fato interessante, principalmente quando se trata de definição de valor de uma propriedade do material, conforme realizado neste trabalho.

Além da obtenção de valores de incerteza de medição menores que 0,1 %, que permitem a realização de avaliações e verificações dos sistemas de medição dos laboratórios das instalações nucleares.

CONCLUSÕES

A utilização de uma abordagem metrológica, baseada em normas e guias, exigiu um conhecimento profundo do processo de estimativa (caracterização) do valor verdadeiro da propriedade de um material e de sua incerteza. Que associada a uma dedicação anterior, ocorrida durante a implementação e aperfeiçoamento do método semiautomático de titulação potenciométrica, foram de suma importância para a realização e finalização deste trabalho.

O programa de caracterização em concentração de urânio total das pastilhas de UO_2 atingiu plenamente os objetivos propostos para os dois lotes, na medida em que foram realizados os estudos de homogeneidade e as análises de alíquotas pelo método semiautomático de titulação potenciométrica.

A determinação da concentração dessas pastilhas teve seu valor final para a concentração de urânio total de $(88,088 \pm 0,059) \%$ para o Lote 1 e de $(88,132 \pm 0,028) \%$ para o Lote 2 a um intervalo de confiança de 95 %.

A meta de incertezas de medição para a concentração de urânio total menor que 0,1% foi atingida, o que significa que o material estudado obteve incerteza inferior as obtidas em análises rotineiras realizadas pelos laboratorios das instalações nucleares para fins de Salvaguardas.

Valores de incerteza de medição menores que 0,1 %, permitem a realização de avaliações e verificações dos sistemas de medição dos laboratórios das instalações nucleares. Possibilitando ao LASAL/CNEN iniciar trabalhos futuros com essas pastilhas de UO_2 de preparação e realização de programas de comparação interlaboratorial dos sistemas de medição utilizados nos laboratórios nacionais.

As perspectivas para o futuro deste trabalho são:

- 1) que sejam comparados e avaliados os resultados analíticos desenvolvidos neste trabalho com os obtidos pela IAEA, que também analisou essas pastilhas de

UO₂, para certificar os valores de referência com as respectivas incertezas globais para ambos os lotes.

2) que seja planejado e preparado um programa brasileiro de intercomparação na área de salvaguardas nucleares.

Para viabilizar tal programa, o LASAL/CNEN deve estabelecer parcerias com uma rede de laboratórios especializados na determinação de materiais do ciclo do combustível nuclear. Pode-se aqui listar alguns deles:

- Serviço de Química e Minerologia do Centro de Desenvolvimento de Tecnologia Nuclear (CDTN/CNEN).
- Laboratório de Caracterização de Urânio e Laboratório de Espectrometria de Massa do Centro Tecnológico da Marinha em São Paulo (CTMSP).
- Serviço de Análises Químicas e Ensaio de Materiais da Divisão de Química e Materiais Nucleares do Instituto de Engenharia Nuclear (IEN/CNEN).
- Laboratório de Caracterização Química do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN/CNEN).
- Unidade de Concentrado de Urânio (URA) pertencente a Indústrias Nucleares do Brasil (INB/Caetité).

Por outro lado, o LASAL/CNEN mantém um convênio com o NBL, que produz e fornece MRC para urânio, e promove programas de comparação interlaboratorial com os mais diferentes e qualificados laboratórios do mundo, em que o laboratório de salvaguardas participa há mais de 20 anos.

Nos anexos estão as planilhas Kragten utilizadas para o cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida referente ao estudo de homogeneidade por meio do método titrimétrico de Davies & Gray/ NBL.

Em cada planilha é determinado um resultado para três alíquotas, de uma mesma subamostra, proveniente de uma pastilha de um determinado lote, analisadas no mesmo dia.

[illegible]

[illegible]

ANEXO 3: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da Subamostra 2 da Pastilha 1 do Lote 1 analisada no dia 1.

[illegible]

expandida da Subamostra 2 da Pastilha 1 do Lote 1 analisada no dia 2.

	u(Tara do Frasco PAURÃO (g))	u(Peso BRUTO Frasco Pad (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g))	u(Pureza do Padão)	u(Empuxo na Pesagem do Padão)	u(VolMassa Medio Pad (ml/g))	u(Tara do Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	u(Empuxo na Pesagem da Amostra)	u(VolMassa Medio Amostra (ml/g))	u(Enriquecimento da Amostra (%L2U5))	u(Teor de Unidade (%))
	0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,0000009	0,0013631	0,00011	0,00011	0,00011	0,0000006	0,0020538	0,00577	0,00000
df	10000	10000	10000	10000	22091	17	10000	10000	10000	23403	5	10000	10000
Dados de Entrada													
Tara do Frasco PADRÃO (g)	63,9874	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740
Peso BRUTO Frasco Pad (g)	65,4363	65,43841	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830
Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	104,1769	104,17890	104,17901	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890
Pureza do Padão	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuxo na Pesagem do Padão	0,9999133	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
VolMassa Medio Pad (ml/g)	11,866928	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86629	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693
Tara do Frasco AMOSTRA (g)	64,3024	64,30240	64,30240	64,30240	64,30240	64,30240	64,30251	64,30240	64,30240	64,30240	64,30240	64,30240	64,30240
Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g)	64,9579	64,95790	64,95790	64,95790	64,95790	64,95790	64,95790	64,95801	64,95790	64,95790	64,95790	64,95790	64,95790
Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g)	80,6400	80,64000	80,64000	80,64000	80,64000	80,64000	80,64000	80,64011	80,64000	80,64000	80,64000	80,64000	80,64000
Empuxo na Pesagem da Amostra	0,9999601	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
VolMassa Medio Amostra (ml/g)	11,625162	11,62518	11,62518	11,62518	11,62518	11,62518	11,62518	11,62518	11,62518	11,62518	11,62724	11,62518	11,62518
Enriquecimento da Amostra (%L2U5)	3,199	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,20477	3,19900
Teor de Umidade (%)	0,00	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
RESULTADO (U-total)	88,086	88,08006	88,09318	88,08626	88,08955	88,07638	88,10069	88,07172	88,08709	88,08645	88,10206	88,08643	88,08650
Incerteza Padrão uc		-0,00644	0,00668	-0,00024	0,00305	-0,01012	0,01419	-0,01478	0,00659	-0,00005	0,01556	-0,00007	0,00000
Grau de Lib Efetivo df	59,88	4,8%	5,2%	0,0%	1,1%	0,0%	11,9%	23,4%	25,4%	0,0%	28,2%	0,0%	0,0%
Fator de Abrangência k	2,001	-58,52002	60,70653	-2,18966	88,08653	88,09444	123,00653	-134,35006	5,3864	-88,08697	7,57726	-0,00132	100,0%
Incerteza Expandida 95% U	0,059		0,07%	U_{rel}									$U_{rel}(c,u)^2$
													$c, u, U_{rel}(c,u)^2$

[illegible]

ANEXO 6: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da Subamostra 1 da Pastilha 2 do Lote 1 analisada no dia 2.

	q(Tara do Frasco PADRAO) (g)	q(Peso BRUTO Frasco Pad(g))	q(Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g))	q(Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g))	q(Pureza do Padrao)	q(Empuxo na Pesagem do Padrao)	q(VolMassa Medio Pad (ml/g))	q(Tara do Frasco AMOSTRA) (g)	q(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA) (g)	q(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA) (g)	q(Empuxo na Pesagem da Amostra)	q(VolMassa Medio Amostra (ml/g))	q(Enriquecimento da Amostra (%))	q(Teor de Unidade (%))
	0,00011	0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,000009	0,0013631	0,00011	0,00011	0,00011	0,000006	0,0017968	0,00577	0,00000
	10000	10000	10000	10000	10000	22091	17	10000	10000	10000	23403	3	10000	10000
Dados de Entrada														
	Valor													
Tara do Frasco PADRAO (g)	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874
Peso BRUTO Frasco Pad (g)	65,4383	65,4383	65,4384	65,4383	65,4383	65,4383	65,4383	65,4383	65,4383	65,4383	65,4383	65,4383	65,4383	65,4383
Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	104,1789	104,1789	104,1789	104,1789	104,1789	104,1789	104,1789	104,1789	104,1789	104,1789	104,1789	104,1789	104,1789	104,1789
Pureza do Padrao	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuxo na Pesagem do Padrao	0,9999133	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
VolMassa Medio Pad (ml/g)	11,866928	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86629	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693
Tara do Frasco AMOSTRA (g)	56,9881	56,9881	56,9881	56,9881	56,9881	56,9881	56,9881	56,9881	56,9881	56,9881	56,9881	56,9881	56,9881	56,9881
Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g)	57,4510	57,4510	57,4510	57,4510	57,4510	57,4510	57,4510	57,4510	57,4511	57,4510	57,4510	57,4510	57,4510	57,4510
Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g)	68,0151	68,0151	68,0151	68,0151	68,0151	68,0151	68,0151	68,0151	68,0152	68,0151	68,0151	68,0151	68,0151	68,0151
Empuxo na Pesagem da Amostra	0,9999601	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
VolMassa Medio Amostra (ml/g)	12,162550	12,16255	12,16255	12,16255	12,16255	12,16255	12,16255	12,16255	12,16255	12,16255	12,16255	12,16435	12,16255	12,16255
Enriquecimento da Amostra (% U235)	3,199	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,20477	3,19900
Teor de Unidade (%)	0,00	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
RESULTADO (% U-total)	88,082	88,07590	88,08901	88,08210	88,08539	88,08242	88,07222	88,10239	88,06141	88,08322	88,08229	88,09535	88,08227	88,08234
	-0,00644	0,00668	-0,00024	-0,00024	0,00305	0,00008	-0,01012	0,02093	-0,02093	0,00088	-0,00005	0,01301	-0,00007	0,00000
Incerteza Padrão uc	0,035	0,00004	0,00004	0,00000	0,00001	0,00000	0,00010	0,00040	0,00044	0,00000	0,00000	0,00017	0,00000	0,00000
Grau de Lib Efetivo df	142,95	3,4%	3,7%	0,0%	0,8%	0,0%	8,5%	33,3%	36,2%	0,1%	0,0%	14,0%	0,0%	0,0%
Fator de Abrangência k	1,977	-58,5726	60,70076	-2,9166	88,10436	88,08997	-7,4285	182,3398	-180,2382	7,98788	-88,06586	7,24208	-0,0102	100,0%
Incerteza Expandida 95% U	0,069		0,08%	U relativo										

ANEXO 7: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da Subamostra 2 da Pastilha 2 do Lote 1 analisada no dia 1

	u(Tara do Frasco PACRÃO (g))	u(Peso BRUTO Frasco Pad (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g))	u(Pureza do Padrao)	u(Empuxo na Pesagem do Padrao)	u(Vol/Massa Medio Pad (ml/g))	u(Tara do Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	u(Empuxo na Pesagem da Amostra)	u(Vol/Massa Medio Amostra (ml/g))	u(Enriquecimento da Amostra (%L235))	u(Teor de Unidade (%))
	0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,0000009	0,0015871	0,00011	0,00011	0,00011	0,0000006	0,0016077	0,00577	0,00000
	10000	10000	10000	10000	22091	16	10000	10000	10000	23403	3	10000	10000
Dados de Entrada													
	df	Valor											
Tara do Frasco PACRÃO (g)	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874	63,9874
Peso BRUTO Frasco Pad (g)	65,4383	65,43841	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830
Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	104,1789	104,17890	104,17901	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890
Pureza do Padrao	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuxo na Pesagem do Padrao	0,9999133	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
Vol/Massa Medio Pad (ml/g)	11,909692	11,90969	11,90969	11,90969	11,90969	11,91128	11,90969	11,90969	11,90969	11,90969	11,90969	11,90969	11,90969
Tara do Frasco AMOSTRA (g)	64,4777	64,47770	64,47770	64,47770	64,47770	64,47770	64,47781	64,47770	64,47770	64,47770	64,47770	64,47770	64,47770
Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g)	65,0005	65,00050	65,00050	65,00050	65,00050	65,00050	65,00050	65,00061	65,00050	65,00050	65,00050	65,00050	65,00050
Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g)	77,5470	77,54700	77,54700	77,54700	77,54700	77,54700	77,54700	77,54700	77,54711	77,54700	77,54700	77,54700	77,54700
Empuxo na Pesagem da Amostra	0,9999601	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
Vol/Massa Medio Amostra (ml/g)	11,623674	11,62367	11,62367	11,62367	11,62367	11,62367	11,62367	11,62367	11,62367	11,62367	11,62528	11,62367	11,62367
Enriquecimento da Amostra (%L235)	3,199	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,20477	3,19900
Teor de Unidade (%)	0,00	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
RESULTADO (% U-total)	88,022	88,01572	88,02882	88,02191	88,02520	88,01042	88,03993	88,00364	88,02289	88,02210	88,03433	88,02209	88,02215
		-0,00643	0,00657	-0,00024	0,00305	-0,01173	0,01778	-0,01852	0,00074	-0,00005	0,01217	-0,00007	0,00000
Incerteza Padrão uc	0,032	0,00004	0,00004	0,00000	0,00001	0,00014	0,00032	0,00034	0,00000	0,00000	0,00015	0,00000	0,00000
Gran de Lib Efetivo df	127,00	4,0%	4,3%	0,0%	0,9%	13,2%	30,4%	32,9%	0,1%	0,0%	14,2%	0,0%	0,0%
Fator de Abrangência K	1,979	-8,47737	60,68728	-2,9006	88,0446	88,02378	1616876	-168,3306	6,75903	-88,02562	7,57286	-0,0131	#DIV/0!
Incerteza Expandida 95% U	0,064		0,07% U _{relativo}										100,0%
													$\sum rel(c,u_i)^2$
													c_i

ANEXO 8: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da Subamostra 2 da Pastilha 2 do Lote 1 analisada no dia 2

Dados de Entrada																			
df	Valor	qt (Tara do Frasco PADRÃO) (g)	q (Peso BRUTO Frasco Pad) (g)	q (Peso BRUTO Frasco Sol+Pad (g))	q (Pureza do Padrão)	q (Empoona na Pesagem do Padrão)	q (Vol/Massa Medio Pad (ml/g))	qt (Tara do Frasco AMOSTRA (g))	q (Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	q (Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	q (Empoona na Pesagem da Amostra)	q (Vol/Massa Medio Amostra (ml/g))	q (Enriquecimento da Amostra (%2U25))	q (Teor de Unidade (%))					
0.00011	10000	0.00011	0.00011	0.00011	0.00003	0.0000009	0.0013631	0.00011	0.00011	0.00011	0.000006	0.0014070	0.00577	0.00000					
10000	10000	10000	10000	10000	10000	22091	17	10000	10000	10000	23403	2	10000	10000					
Tara do Frasco PADRÃO (g)																			
63.9874	63.9874	63.98740	63.98740	63.98740	63.98740	63.98740	63.98740	63.98740	63.98740	63.98740	63.98740	63.98740	63.98740	63.98740					
65.4383	65.4383	65.43841	65.43830	65.43830	65.43830	65.43830	65.43830	65.43830	65.43830	65.43830	65.43830	65.43830	65.43830	65.43830					
104.1789	104.1789	104.17890	104.17890	104.17890	104.17890	104.17890	104.17890	104.17890	104.17890	104.17890	104.17890	104.17890	104.17890	104.17890					
0.99975	0.99975	0.99975	0.99975	0.99975	0.99978	0.99975	0.99975	0.99975	0.99975	0.99975	0.99975	0.99975	0.99975	0.99975					
0.9999133	0.99991	0.99991	0.99991	0.99991	0.99991	0.99991	0.99991	0.99991	0.99991	0.99991	0.99991	0.99991	0.99991	0.99991					
11.866928	11.86693	11.86693	11.86693	11.86693	11.86693	11.86693	11.86829	11.86693	11.86693	11.86693	11.86693	11.86693	11.86693	11.86693					
64.4777	64.47770	64.47770	64.47770	64.47770	64.47770	64.47770	64.47770	64.47781	64.47770	64.47770	64.47770	64.47770	64.47770	64.47770					
65.0005	65.00050	65.00050	65.00050	65.00050	65.00050	65.00050	65.00050	65.00050	65.00061	65.00050	65.00050	65.00050	65.00050	65.00050					
77.5470	77.54700	77.54700	77.54700	77.54700	77.54700	77.54700	77.54700	77.54700	77.54711	77.54700	77.54700	77.54700	77.54700	77.54700					
0.9999601	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996	0.99996					
11.592497	11.59250	11.59250	11.59250	11.59250	11.59250	11.59250	11.59250	11.59250	11.59250	11.59250	11.59250	11.59390	11.59250	11.59250					
3.199	3.19900	3.19900	3.19900	3.19900	3.19900	3.19900	3.19900	3.19900	3.19900	3.19900	3.19900	3.19900	3.20477	3.19900					
0.00	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000					
88.102	88.09596	88.10908	88.10216	88.10216	88.10546	88.10249	88.09228	88.12020	88.08387	88.10314	88.10235	88.11310	88.10234	88.10240					
	-0.00644	0.00668	-0.00024	0.00000	0.00305	0.00008	-0.01012	0.01780	-0.01853	0.00074	-0.00005	0.01069	-0.00007	0.00000					
0.031	0.00004	0.00004	0.00000	0.00000	0.00001	0.00000	0.00010	0.00032	0.00034	0.00000	0.00000	0.00011	0.00000	0.00000					
131.93	4.3%	4.6%	0.0%	0.0%	1.0%	0.0%	10.5%	32.6%	35.3%	0.1%	0.0%	11.8%	0.0%	0.0%					
1.978	-88.55068	60.72268	-2.8206	88.1004	88.12446	88.1004	-7.42304	1618305	-88.4848	6.7417	-88.0887	7.8895	-0.0132	100.0%					
0.062			0.07%	U relativo										$\frac{c}{c'}$					

expandida da Subamostra 1 da Pastilha 3 do Lote 1 analisada no dia 1.

	q(Tar do Frasco PADRÃO) (g)	q(Peso BRUTO Frasco Pad(g))	q(Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g))	q(Pureza do Padrão)	q(Emputona Pesagem do Padrão)	q(VolMassa Medio Pad(ml/g))	q(Taa do Frasco AMOSTRA (g))	q(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	q(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	q(Emputona Pesagem da Amostra)	q(VolMassa Medio Amostra (ml/g))	q(Enriquecimento da Amostra (%U235))
	0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,0000010	0,0007837	0,00011	0,00011	0,00011	0,0000006	0,00032288	0,00577
df	10000	10000	10000	10000	22411	8	10000	10000	10000	23079	4	10000
Dados de Entrada												
Tara do Frasco PADRÃO [g]	56,7878	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780
Peso BRUTO Frasco Pad [g]	59,7869	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690
Peso BRUTO Frasco Sol Pad [g]	156,2618	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180
Pureza do Padrão	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuxo na Pesagem do Padrão	0,9999132	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
VolMassa Medio Pad [ml/g]	9,0424	9,04240	9,04240	9,04240	9,04240	9,04318	9,04240	9,04240	9,04240	9,04240	9,04240	9,04240
Tara do Frasco AMOSTRA [g]	56,7942	56,79420	56,79420	56,79420	56,79420	56,79420	56,79431	56,79420	56,79420	56,79420	56,79420	56,79420
Peso BRUTO Frasco AMOSTRA [g]	57,4641	57,46410	57,46410	57,46410	57,46410	57,46410	57,46410	57,46421	57,46410	57,46410	57,46410	57,46410
Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA [g]	72,2466	72,24660	72,24660	72,24660	72,24660	72,24660	72,24660	72,24660	72,24671	72,24660	72,24660	72,24660
Empuxo na Pesagem da Amostra	0,9999599	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
VolMassa Medio Amostra [ml/g]	11,4601	11,46010	11,46010	11,46010	11,46010	11,46010	11,46010	11,46010	11,46010	11,46010	11,46333	11,46010
Enriquecimento da Amostra (%U235)	3,199	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,20477
RESULTADO (% U-total)	88,085	88,08170	88,08806	88,08473	88,08788	88,07720	88,09867	88,07037	88,08546	88,08478	88,10965	88,08477
Incerteza Padrão uc	0,033	0,00313	0,00323	-0,00010	0,00305	-0,00763	0,01384	-0,01446	0,00063	-0,00005	0,02482	-0,00007
Grau de Lib Efetivo df	12,81	0,9%	0,9%	0,0%	0,0%	5,3%	17,3%	18,9%	0,0%	0,0%	55,7%	100,0%
Fator de Abrangência k	2,179	-23,48496	23,37042	-0,88561	88,10686	-3,7404	125,88978	-131,63733	5,70040	-48,08831	7,68622	7,68622
Incerteza Expandida 95% U	0,072	0,08% U _{relativo}										U _{rel} (c,u) ^{1/2}

[illegible]

	q(Tara do Frasco PADRÃO) (g)	q(Peso BRUTO Frasco Sol Pad) (g)	q(Pureza do Padrão)	q(Empuro na Pesagem do Padrão)	u(Vol/Massa Medio Pad (ml/g))	u(Tara do Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	u(Empuro na Pesagem da Amostra)	u(Vol/Massa Medio Amostra (ml/g))	u(Enriquecimento da Amostra (%U235))
	0,00011	0,00011	0,00003	0,0000010	0,0007837	0,00011	0,00011	0,00011	0,000006	0,0019123	0,00577
df	10000	10000	10000	22411	8	10000	10000	10000	23079	4	10000
Dados de Entrada	Valor										
Tara do Frasco PADRÃO (g)	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780	56,78780
Peso BRUTO Frasco Pad (g)	59,78690	59,78701	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690	59,78690
Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180	156,26180
Pureza do Padrão	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuro na Pesagem do Padrão	0,9999132	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
Vol/Massa Medio Pad (ml/g)	9,04240	9,04240	9,04240	9,04240	9,04318	9,04240	9,04240	9,04240	9,04240	9,04240	9,04240
Tara do Frasco AMOSTRA (g)	65,36930	65,36930	65,36930	65,36930	65,36930	65,36941	65,36930	65,36930	65,36930	65,36930	65,36930
Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g)	65,89940	65,89940	65,89940	65,89940	65,89940	65,89940	65,89951	65,89940	65,89940	65,89940	65,89940
Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g)	77,49710	77,49710	77,49710	77,49710	77,49710	77,49710	77,49710	77,49721	77,49710	77,49710	77,49710
Empuro na Pesagem de Amostra	0,9999599	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
Vol/Massa Medio Amostra (ml/g)	11,55680	11,55680	11,55680	11,55680	11,55680	11,55680	11,55680	11,55680	11,55680	11,55680	11,55680
Enriquecimento da Amostra (%U235)	3,199	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,19900	3,20477
RESUMIDO (% U total)	88,103	88,09943	88,10580	88,10247	88,10562	88,10265	88,08429	88,10337	88,10252	88,11715	88,10250
	-0,00313	0,00323	-0,00010	0,00305	-0,00763	0,01749	-0,01828	0,00080	-0,00005	0,01458	-0,00007
	0,00001	0,00001	0,00001	0,00001	0,00006	0,00031	0,00033	0,00000	0,00000	0,00021	0,00000
Incerteza Padrão uc	0,031	1,1%	0,0%	1,0%	6,2%	32,5%	35,5%	0,1%	0,0%	22,5%	0,0%
Grau de Lib Eletivo df	75,43	1,0%	0,0%	1,0%	6,2%	32,5%	35,5%	0,1%	0,0%	22,5%	0,0%
Fator de Abrangência k	1,992	-23,49688	23,37634	-0,88568	88,12460	193,38838	-186,18542	7,26461	-48,10605	7,62244	-0,0132
Incerteza Expandida 95% U	0,061	0,07%	U relativo								

[illegible]

ANEXO 13: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da Subamostra 1 da Pastilha 1 do Lote 2 analisada no dia 1.

	u(Tara do Frasco PAUFAO (g))	u(Peso BRUTO Frasco Pad (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g))	u(Pureza do Padrao)	u(Emposu na Pesagem do Padrao)	u(VolMassa Medio Pad (ml/g))	u(Tara do Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	u(Emposu na Pesagem da Amostra)	u(VolMassa Medio Amostra (ml/g))	u(Enriquecimento da Amostra (%U235))	u(Tor de Unidade (%))
	0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,0000009	0,0013631	0,00011	0,00011	0,00011	0,0000006	0,0046274	0,00577	0,00000
	10000	10000	10000	10000	22091	17	10000	10000	10000	23403	3	10000	10000
	df												
	Valor												
Tara do Frasco PAUFAO (g)	63,9874	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740
Peso BRUTO Frasco Pad (g)	65,4383	65,43841	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830
Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	104,1789	104,17890	104,17901	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890
Pureza do Padrao	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuxo na Pesagem do Padrao	0,9999133	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
VolMassa Medio Pad (ml/g)	11,866928	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86829	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693
Tara do Frasco AMOSTRA (g)	58,2853	58,28530	58,28530	58,28530	58,28530	58,28530	58,28541	58,28530	58,28530	58,28530	58,28530	58,28530	58,28530
Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g)	58,7959	58,79590	58,79590	58,79590	58,79590	58,79590	58,79590	58,79601	58,79590	58,79590	58,79590	58,79590	58,79590
Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g)	71,5715	71,57150	71,57150	71,57150	71,57150	71,57150	71,57150	71,57161	71,57150	71,57150	71,57150	71,57150	71,57150
Empuxo na Pesagem da Amostra	0,9999601	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
VolMassa Medio Amostra (ml/g)	11,146293	11,14629	11,14629	11,14629	11,14629	11,14629	11,14629	11,14629	11,14629	11,14629	11,15082	11,14629	11,14629
Enriquecimento da Amostra (%U235)	1,902	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90777	1,90200
Tor de Unidade (%)	0,00	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
RESULTADO (% U-total)	88,189	88,18304	88,19618	88,18925	88,19255	88,17936	88,20776	88,17049	88,19022	88,18944	88,22531	88,18942	88,18949
		-0,00644	0,00669	-0,00024	0,00306	-0,01013	0,01827	-0,01899	0,00073	-0,00005	0,03582	-0,00007	0,00000
Incerteza Padrao uc	0,047	0,00004	0,00004	0,00000	0,00001	0,00010	0,00033	0,00036	0,00000	0,00000	0,00128	0,00000	0,00000
Grau de Lib Eletivo df	8,62	1,9%	2,1%	0,0%	0,4%	4,7%	15,3%	16,6%	0,0%	0,0%	59,0%	0,0%	0,0%
Fator de Abrangência k	2,306	-58,58854	60,78261	-2,9423	88,2165	-7,43068	165,1548	-172,8807	6,63768	-68,18246	7,93001	-0,0053	100,0%
Incerteza Expandida 95% U	0,108												

ANEXO 14: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da Subamostra 1 da Pastilha 1 do Lote 2 analisada no dia 2.

[illegible]

[illegible]

		u(Tar do Frasco PADRÃO) (g)	u(Peso BRUTO Frasco Pad) (g)	u(Peso BRUTO Frasco Sol/Pad (g))	u(Pureza do Padrão)	u(Empur na Pesagem do Padrão)	u(Vol/Massa Medio Pad (ml/g))	u(Tar do Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	u(Empur na Pesagem da Amostra)	u(Vol/Massa Medio Amostra (ml/g))	u(Enriquecimento da Amostra (%L235))	u(Teor de Unidade (%))
		0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,0000009	0,0013631	0,00011	0,00011	0,00011	0,0000006	0,0000079	0,00577	0,00000	0,00000
	df	10000	10000	10000	10000	22091	17	10000	10000	10000	23403	3	10000	10000	10000
	Valor														
	Dados de Entrada														
	Tar do Frasco PADRÃO (g)	63,98751	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740
	Peso BRUTO Frasco Pad (g)	65,43830	65,43841	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830
	Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890
	Pureza do Padrão	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
	Empur na Pesagem do Padrão	0,9999133	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
	Vol/Massa Medio Pad (ml/g)	11,866928	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86629	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693
	Tar do Frasco AMOSTRA (g)	62,6982	62,69820	62,69820	62,69820	62,69820	62,69820	62,69820	62,69820	62,69820	62,69820	62,69820	62,69820	62,69820	62,69820
	Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g)	63,2874	63,28740	63,28740	63,28740	63,28740	63,28740	63,28740	63,28751	63,28740	63,28740	63,28740	63,28740	63,28740	63,28740
	Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g)	77,6400	77,64000	77,64000	77,64000	77,64000	77,64000	77,64000	77,64000	77,64011	77,64000	77,64000	77,64000	77,64000	77,64000
	Empur na Pesagem da Amostra	0,9999601	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
	Vol/Massa Medio Amostra (ml/g)	11,419374	11,41937	11,41937	11,41937	11,41937	11,41937	11,41937	11,41937	11,41937	11,41937	11,41938	11,41937	11,41937	11,41937
	Enriquecimento da Amostra (%L235)	1,902	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90777	1,90200	1,90200
	Teor de Unidade (%)	0,00	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
	RESULTADO (% U-total)	88,054	88,04752	88,06063	88,05372	88,05701	88,05404	88,04384	88,06975	88,03752	88,05460	88,05391	88,05402	88,05399	88,05396
	Incerteza Padrão uc		-0,00643	0,00688	-0,00024	0,000305	0,00008	-0,01011	0,01579	-0,01644	0,00065	-0,00005	0,00005	-0,00007	0,00000
	Grau de Lib Efetivo df	0,027	0,00004	0,00004	0,00000	0,00001	0,00000	0,00010	0,00025	0,00027	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
	Fator de Abbrangência k	818,45	5,8%	6,2%	0,0%	1,3%	0,0%	14,3%	34,8%	37,6%	0,1%	0,0%			

	u(Tar do Frasco PADRÃO (g))	u(Peso BRUTO Frasco Pad (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g))	u(Pureza do Padrão)	u(Empurtoira Pesagem do Padrão)	u(Vol/Massa Medio Pad (ml/g))	u(Tar do Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	u(Empurtoira Pesagem da Amostra)	u(Vol/Massa Medio Amostra (ml/g))	u(Enriquecimento da Amostra (%L235))	u(Teor de Unidade (%))
	0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,0000009	0,0013631	0,00011	0,00011	0,00011	0,0000006	0,0000053	0,00577	0,00000
df	10000	10000	10000	10000	22091	17	10000	10000	10000	23403	3	10000	10000
Valor													
Dados de Entrada													
Tar do Frasco PADRÃO (g)	63,9874	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740
Peso BRUTO Frasco Pad (g)	65,4383	65,43841	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830
Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	104,1789	104,17890	104,17901	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890
Pureza do Padrão	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuro na Pesagem do Padrão	0,9999133	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
Vol/Massa Medio Pad (ml/g)	11,866928	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86829	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693
Tar do Frasco AMOSTRA (g)	60,2532	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320
Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g)	60,8038	60,80380	60,80380	60,80380	60,80380	60,80380	60,80380	60,80391	60,80380	60,80380	60,80380	60,80380	60,80380
Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g)	73,9183	73,91830	73,91830	73,91830	73,91830	73,91830	73,91830	73,91830	73,91841	73,91830	73,91830	73,91830	73,91830
Empuro na Pesagem da Amostra	0,9999601	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
Vol/Massa Medio Amostra (ml/g)	11,678069	11,67807	11,67807	11,67807	11,67807	11,67807	11,67807	11,67807	11,67807	11,67807	11,67807	11,67807	11,67807
Enriquecimento da Amostra (%L235)	1,902	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90777	1,90200
Teor de Unidade (%)	0,00	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
RESULTADO (% U-total)	88,128	88,12158	88,13471	88,12778	88,13108	88,12811	88,11790	88,11042	88,12873	88,12797	88,12807	88,12796	88,12803
Incerteza Padrão uc		-0,00644	0,00688	-0,00024	0,00305	0,00008	-0,01012	0,01680	-0,01750	0,00071	-0,00005	0,00004	-0,00007
	0,028	0,00004	0,00004	0,00000	0,00001	0,00000	0,00010	0,00029	0,00031	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
	991,81	5,6%	5,6%	0,0%	1,2%	0,0%	12,9%	36,0%	39,0%	0,1%	0,0%	0,0%	0,0%
Grau de Lib Efetivo df	991,81	5,6%	5,6%	0,0%	1,2%	0,0%	12,9%	36,0%	39,0%	0,1%	0,0%	0,0%	0,0%
Fator de Abrangência k	1,962	-86,64770	60,74025	-2,18270	88,6006	88,10667	-7,42660	85,63973	-80,02618</				

ANEXO 18: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da Subamostra 1 da Pastilha 2 do Lote 2 analisada no dia 2.

	u(Tara do Frasco PAQUÃO (g))	u(Peso BRUTO Frasco Pad (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g))	u(Pureza do Padrão)	u(Empuxo na Pesagem do Padrão)	u(VolMassa Medio Pad (ml/g))	u(Tara do Frasco AMDSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco AMDSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMDSTRA (g))	u(Empuxo na Pesagem da Amostra)	u(VolMassa Medio Amostra (ml/g))	u(Enriquecimento da Amostra (%U235))	u(Teor de Unidade (%))
	0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,000009	0,0013631	0,00011	0,00011	0,00011	0,000006	0,0000174	0,00577	0,00000
df	10000	10000	10000	10000	22091	17	10000	10000	10000	23403	3	10000	10000
Dados de Entrada													
Tara do Frasco PAQUÃO (g)	63,9874	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740
Peso BRUTO Frasco Pad (g)	65,4383	65,43841	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830
Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	104,1789	104,17890	104,17901	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890
Pureza do Padrão	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuxo na Pesagem do Padrão	0,9999133	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
VolMassa Medio Pad (ml/g)	11,866928	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693
Tara do Frasco AMDSTRA (g)	60,2532	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320	60,25320
Peso BRUTO Frasco AMDSTRA (g)	60,8038	60,80380	60,80380	60,80380	60,80380	60,80380	60,80380	60,80391	60,80380	60,80380	60,80380	60,80380	60,80380
Peso BRUTO Frasco Sol AMDSTRA (g)	73,9183	73,91830	73,91830	73,91830	73,91830	73,91830	73,91830	73,91830	73,91841	73,91830	73,91830	73,91830	73,91830
Empuxo na Pesagem da Amostra	0,9999601	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
VolMassa Medio Amostra (ml/g)	11,670341	11,67034	11,67034	11,67034	11,67034	11,67034	11,67034	11,67034	11,67034	11,67034	11,67036	11,67034	11,67034
Enriquecimento da Amostra (%U235)	1,902	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90777	1,90200
Teor de Unidade (%)	0,00	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
RESULTADO (% U-total)	88,070	88,06327	88,07639	88,06947	88,07276	88,06979	88,06660	88,05212	88,07042	88,06966	88,06984	88,06971	88,06971
Incerteza Padrão uc	0,028	-0,00644	0,00668	-0,00024	0,00305	-0,01012	0,01689	-0,01759	0,00071	-0,00005	0,00013	-0,00007	0,00000
Grau de Lib Eletivo df	991,84	5,2%	5,6%	0,0%	1,2%	0,0%	36,0%	39,0%	0,1%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%
Fator de Abrangência k	1,952	-88,06896	80,70006	-2,19125	88,07736	-7,42093	163,53806	-189,32000	6,44486	-88,07736	7,54646	-0,0002	#DIV/0!
Incerteza Expandida 95% U	0,055		0,05%	U _{relativo}									$\sum (c, u_i)^2$
													c, u_i
													$\sum (c, u_i)^2$
													c, u_i

expandida da Subamostra 2 da Pastilha 2 do Lote 2 analisada no dia 1

		u(Tar do Frasco PADÃO) (g)	u(Peso BRUTO Frasco Sol/Pad) (g)	u(Pureza do Padão)	u(Emprego na Pesagem do Padão)	u(Vol/Massa Medio Pad(milg))	u(Tar do Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	u(Emprego na Pesagem da Amostra)	u(Vol/Massa Medio Amostra (milg))	u(Enriquecimento da Amostra (uL235))	u(Teor de Unidade (%))
		0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,0013631	0,00011	0,00011	0,00011	0,000006	0,0000057	0,00577	0,00000
	df	10000	10000	10000	10000	17	10000	10000	10000	23403	2	10000	10000
	Valor												
	Dados de Entrada												
	Tara do Frasco PADÃO [g]	63,9874	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740	63,98740
	Peso BRUTO Frasco Pad [g]	65,4383	65,43841	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830	65,43830
	Peso BRUTO Frasco Sol Pad [g]	104,1789	104,17890	104,17901	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890	104,17890
	Pureza do Padão	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
	Emprego na Pesagem do Padão	0,9999133	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
	Vol/Massa Medio Pad (milg)	11,866928	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693	11,86693
	Tara do Frasco AMOSTRA [g]	57,3643	57,36430	57,36430	57,36430	57,36430	57,36441	57,36430	57,36430	57,36430	57,36430	57,36430	57,36430
	Peso BRUTO Frasco AMOSTRA [g]	57,8071	57,80710	57,80710	57,80710	57,80710	57,80710	57,80721	57,80710	57,80710	57,80710	57,80710	57,80710
	Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA [g]	68,7576	68,75760	68,75760	68,75760	68,75760	68,75760	68,75771	68,75760	68,75760	68,75760	68,75760	68,75760
	Emprego na Pesagem da Amostra	0,9999601	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
	Vol/Massa Medio Amostra (milg)	11,265917	11,26592	11,26592	11,26592	11,26592	11,26592	11,26592	11,26592	11,26592	11,26592	11,26592	11,26592
	Enriquecimento da Amostra (%L235)	1,902	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90777	1,90200
	Teor de Unidade (%)	0,00	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000	0,00000
	RESULTADO (% U-total)	88,140	88,13393	88,14706	88,14013	88,14343	88,14046	88,13025	88,16142	88,11848	88,14123	88,14042	88,14031
	Incerteza Padrão uc		-0,00644	0,00688	-0,00024	0,00305	0,00008	-0,01012	0,02105	-0,02189	0,00085	0,00004	-0,00007
	Grau de Lib Eletivo df	0,033	0,00004	0,00004	0,00000	0,00001	0,00000	0,00010	0,00044	0,00048	0,00000	0,00000	0,00000
	Fator de Abrangência k	1,901,95	3,7%	4,0%	0,0%	0,8%	0,0%	9,1%	39,5%	42,7%	0,1%	0,0%	0,0%
	Incerteza Expandida 95% U	1,961	-58,95591	60,74876	-2,19300	88,86241	88,14802	-7,45394	191,36372	-89,00390	7,82363	-0,0013	100,0%
													$\sum rel(c,u_i)^2$
													$\sum rel(c,u_i)$

[illegible]

[illegible]

		qt(Tar do Frasco PADRÃO (g))	q(Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g))	q(Pureza do Padão)	q(Empuxo na Pesagem do Padão)	q(Vol/Massa Medio Pad (ml/g))	qt(Tar do Frasco AMOSTRA (g))	q(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	q(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	q(Empuxo na Pesagem da Amostra)	q(Vol/Massa Medio Amostra (ml/g))	q(Enriquecimento da Amostra (%U235))
		0,00011	0,00011	0,00003	0,0000010	0,0010319	0,00011	0,00011	0,00011	0,0000006	0,0020990	0,00577
		10000	10000	10000	22411	13	10000	10000	10000	23079	3	10000
Dados de Entrada												
	Tara do Frasco PADRÃO (g)	64,81741	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730
	Peso BRUTO Frasco Pad (g)	67,74870	67,74881	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870
	Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840
	Pureza do Padrão	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
	Empuxo na Pesagem do Padrão	0,9999132	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
	Vol/Massa Medio Pad (ml/g)	9,1926	9,19260	9,19260	9,19260	9,19363	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260
	Tara do Frasco AMOSTRA (g)	57,3639	57,36390	57,36390	57,36390	57,36390	57,36401	57,36390	57,36390	57,36390	57,36390	57,36390
	Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g)	58,0968	58,09680	58,09680	58,09680	58,09680	58,09680	58,09680	58,09680	58,09680	58,09680	58,09680
	Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g)	75,3635	75,36350	75,36350	75,36350	75,36350	75,36350	75,36350	75,36361	75,36350	75,36350	75,36350
	Empuxo na Pesagem de Amostra	0,9999598	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
	Vol/Massa Medio Amostra (ml/g)	10,7641	10,76410	10,76410	10,76410	10,76410	10,76410	10,76410	10,76410	10,76410	10,76620	10,76410
	Enriquecimento da Amostra (%U-235)	1,902	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90777
	RESULTADO (% U-total)	88,183	88,17969	88,18621	88,18280	88,18595	88,18298	88,17300	88,19560	88,16967	88,18344	88,18283
		-0,00321	0,00331	-0,00010	0,00306	0,00306	-0,00008	0,00990	0,01270	-0,01323	0,00054	-0,00007
	Incerteza Padrão uc	0,028	0,00001	0,00001	0,00001	0,00001	0,00001	0,00010	0,00016	0,00018	0,00000	0,00000
	Grau de Lib Eletivo df	19,37	1,4%	0,0%	0,0%	12,9%	21,2%	23,0%	0,0%	0,0%	38,9%	100,0%
	Fator de Abrangência k	2,093	-23,8884	30,0828	-0,82337	88,1905	116,4595	-120,30245	4,9088	-88,18539	8,18323	0,0133
	Incerteza Expandida 95% U	0,058		0,07%	U _{relativo}							

	q(Tara do Frasco PAQUÃO) (g)	q(Peso BRUTO Frasco Sol Pad) (g)	q(Pureza do Padrão)	q(Empuxo na Pesagem do Padrão)	q(Vol/Massa Medio Pad (ml/g))	q(Tara do Frasco AMDSTRA (g))	q(Peso BRUTO Frasco Sol AMDSTRA (g))	q(Empuxo na Pesagem da Amostra)	q(Vol/Massa Medio Amostra (ml/g))	q(Enriquecimento da Amostra (%U235))
	0,00011	0,00011	0,00003	0,0000010	0,0010319	0,00011	0,00011	0,0000006	0,0007701	0,00577
	10000	10000	10000	22411	13	10000	10000	23079	3	10000
Dados de Entrada										
Tara do Frasco PAQUÃO [g]	64,81741	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730
Peso BRUTO Frasco Pad [g]	67,74870	67,74881	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870
Peso BRUTO Frasco Sol Pad [g]	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840
Pureza do Padrão	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuxo na Pesagem do Padrão	0,9999132	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
Vol/Massa Medio Pad (ml/g)	9,1926	9,19260	9,19260	9,19260	9,19363	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260
Tara do Frasco AMDSTRA [g]	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770	75,19781	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770
Peso BRUTO Frasco AMDSTRA [g]	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740	75,71751	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740
Peso BRUTO Frasco Sol AMDSTRA [g]	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960
Empuxo na Pesagem da Amostra	0,9999598	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
Vol/Massa Medio Amostra (ml/g)	10,2674	10,26740	10,26740	10,26740	10,26740	10,26740	10,26740	10,26740	10,26817	10,26740
Enriquecimento da Amostra (%U235)	1,902	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90777
RESULTADO (% U-total)	88,172	88,16880	88,17532	88,17191	88,17507	88,16211	88,18995	88,15335	88,17274	88,17195
	-0,00321	0,00331	-0,00010	0,00306	-0,00990	0,01794	-0,01866	0,00073	-0,00005	-0,00007
Incerteza Padrão uc	0,029	0,00001	0,00000	0,00001	0,00010	0,00032	0,00035	0,00000	0,00004	0,00000
Grau de Lib Efetivo df	508,19	1,3%	0,0%	1,1%	0,0%	11,6%	41,3%	0,1%	0,0%	0,0%
Fator de Abrangência k	1,965	1,2%	1,3%	1,1%	0,0%	38,2%	41,3%	0,1%	5,2%	100,0%
Incerteza Expandida 95% U	0,057	-28,16824	30,07846	-9,03236	88,18406	163,10003	-163,62354	6,53833	-68,17500	0,0163

		Dados de Entrada											RESULTADO (% U-total)										
	df	Valor	u(Tara do Frasco PADRÃO) (g)	u(Peso BRUTO Frasco Sol Pad) (g)	u(Pureza do Padão)	u(Empuxo na Pesagem do Padão)	u(Vol/Massa Medio Pad (ml/g))	u(Tara do Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	u(Empuxo na Pesagem da Amostra)	u(Vol/Massa Medio Amostra (ml/g))	u(Enriquecimento da Amostra (%U235))										
			0,00011	0,00011	0,00003	0,0000010	0,0010319	0,00011	0,00011	0,00011	0,0000006	0,0014891	0,00577										
			10000	10000	10000	22411	13	10000	10000	10000	23079	3	10000										
Tara do Frasco PADRÃO (g)	64,8173	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730										
Peso BRUTO Frasco Pad (g)	67,7487	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870										
Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	160,3184	160,31840	160,31851	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840										
Pureza do Padão	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975										
Empuxo na Pesagem do Padão	0,9999132	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991										
Vol/Massa Medio Pad (ml/g)	9,1926	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260										
Tara do Frasco AMOSTRA (g)	75,1977	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770	75,19770										
Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g)	75,7174	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740	75,71740										
Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g)	88,5696	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960	88,56960										
Empuxo na Pesagem da Amostra	0,9999598	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996										
Vol/Massa Medio Amostra (ml/g)	10,2694	10,26940	10,26940	10,26940	10,26940	10,26940	10,26940	10,26940	10,26940	10,26940	10,26940	10,27089	10,26940										
Enriquecimento da Amostra (%U235)	1,902	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90777										
RESUMIDO (% U-total)	88,189	88,18598	88,19250	88,19068	88,19244	88,19008	88,17929	88,20713	88,17052	88,18991	88,18914	88,20197	88,18912										
			-0,00321	0,00331	-0,00010	0,00306	-0,00990	0,01794	-0,01866	0,00073	-0,00005	0,01279	-0,00007										
			0,00001	0,00001	0,00000	0,00001	0,00010	0,00032	0,00035	0,00000	0,00000	0,00016	0,00000										
			0,031	0,031	0,031	0,031	0,031	0,031	0,031	0,031	0,031	0,031	0,031										
Incerteza Padrão uc																							
Grau de Lib. Efetivo df	95,85	1,1%	1,1%	0,0%	1,0%	0,0%	10,2%	33,4%	36,2%	0,1%	0,0%	17,0%	100,0%										
Fator de Abrangência k	1,985	-23,60362	30,08432	-0,32344	88,21024	88,18684	-9,58242	163,0196	-483,65686	6,59616	-88,18266	8,86757	0,00133										
Incerteza Exp																							

	q(Tara do Frasco PAOPAC(g))	q(Peso BRUTO Frasco Pad(g))	q(Puroza do Padrão)	q(Empuxo na Pesagem do Padrão)	q(Vol/Massa Medo Pad (ml/g))	q(Tara do Frasco AMOSTRA (g))	q(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	q(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	q(Empuxo na Pesagem da Amostra)	q(Vol/Massa Medio Amostra (ml/g))	q(Enriquecimento da Amostra (%L235))
	0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,0010319	0,00011	0,00011	0,00011	0,0000006	0,0014763	0,00577
df	10000	10000	10000	10000	13	10000	10000	10000	23079	3	10000
Dados de Entrada											
Tara do Frasco PAOPAC(g)	64,81741	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730
Peso BRUTO Frasco Pad (g)	67,74870	67,74881	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870
Peso BRUTO Frasco Sol Pad(g)	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840
Pureza do Padrão	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuxo na Pesagem do Padrão	0,9999132	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
Vol/Massa Medio Pad (ml/g)	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19363	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260
Tara do Frasco AMOSTRA (g)	62,69760	62,69760	62,69760	62,69760	62,69760	62,69771	62,69760	62,69760	62,69760	62,69760	62,69760
Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g)	63,22170	63,22170	63,22170	63,22170	63,22170	63,22170	63,22181	63,22170	63,22170	63,22170	63,22170
Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g)	75,35070	75,35070	75,35070	75,35070	75,35070	75,35070	75,35081	75,35070	75,35070	75,35070	75,35070
Empuxo na Pesagem de Amostra	0,9999598	0,99995	0,99995	0,99995	0,99995	0,99995	0,99995	0,99995	0,99995	0,99995	0,99995
Vol/Massa Medio Amostra (ml/g)	10,93550	10,93560	10,93560	10,93560	10,93560	10,93560	10,93560	10,93560	10,93560	10,93708	10,93560
Enriquecimento da Amostra (%L235)	1,902	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90777
RESULTADO (% U-total)	88,116	88,11289	88,11940	88,11915	88,11618	88,10621	88,11686	88,11605	88,12799	88,11603	
Incerteza Padrão uc	-0,00321	0,00331	-0,00010	0,00305	0,00008	-0,00989	0,01773	-0,01849	0,00077	-0,00005	-0,00007
Grau de Lib Efetivo df	0,030	0,00001	0,00001	0,00001	0,00000	0,00010	0,00031	0,00034	0,00000	0,00014	0,00000
Fator de Abrangência k	115,55	1,1%	1,2%	1,0%	0,0%	10,6%	33,9%	36,9%	0,1%	15,3%	0,0%
Incerteza Expandida 95% U	1,981	24,13876	30,05939	88,10890	88,12375	18,19825	-183,08300	6,96399	-88,10959	8,05773	100,0%
	0,060		0,07%	U _{relativo}							c ; u ; [c ; u ;] ²

Dados de Entrada													
	u(Tara do Frasco PAUFRÃO) (g)	u(Peso BRUTO Frasco Pad) (g)	u(Pureza do Padão) (%)	u(Empuxão na Pesagem do Padão)	u(VolMassa Medio Pad) (ml/g)	u(Tara do Frasco AMOSTRA) (g)	u(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA) (g)	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA) (g)	u(Empuxão na Pesagem da Amostra)	u(VolMassa Medio Amostra) (ml/g)	u(Enriquecimento da Amostra (%))		
df	10000	10000	10000	22411	13	10000	10000	10000	23079	3	10000		
Valor	64,8173	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730
Tara do Frasco PAUFRÃO [g]	64,81741	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730	64,81730
Peso BRUTO Frasco Pad [g]	67,7487	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870	67,74870
Peso BRUTO Frasco Sol Pad [g]	160,3184	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840	160,31840
Pureza do Padão	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuxo na Pesagem do Padão	0,9999132	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
VolMassa Medio Pad [ml/g]	9,1926	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260	9,19260
Tara do Frasco AMOSTRA [g]	62,6976	62,69760	62,69760	62,69760	62,69760	62,69771	62,69760	62,69760	62,69760	62,69760	62,69760	62,69760	62,69760
Peso BRUTO Frasco AMOSTRA [g]	63,2247	63,22170	63,22170	63,22170	63,22170	63,22170	63,22181	63,22170	63,22170	63,22170	63,22170	63,22170	63,22170
Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA [g]	75,3507	75,35070	75,35070	75,35070	75,35070	75,35070	75,35070	75,35081	75,35070	75,35070	75,35070	75,35070	75,35070
Empuxo na Pesagem da Amostra	0,9999598	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
VolMassa Medio Amostra [ml/g]	10,9383	10,93830	10,93830	10,93830	10,93830	10,93830	10,93830	10,93830	10,93830	10,93830	10,93830	10,93830	10,93830
Enriquecimento da Amostra (%))	1,902	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200
RESULTADO (% U-total)	88,138	88,13465	88,14116	88,13775	88,14091	88,12796	88,15559	88,11936	88,13862	88,15636	88,13779	88,13779	88,13779
		-0,00321	0,00331	-0,00010	0,00305	0,00008	0,01774	-0,01849	0,00077	-0,00005	0,01851	-0,00007	-0,00007
		0,00001	0,00001	0,00000	0,00001	0,00010	0,00031	0,00034	0,00000	0,00034	0,00000	0,00000	0,00000
Incerteza Padrão uc	0,034	0,00001	0,00001	0,00000	0,00001	0,00010	0,00031	0,00034	0,00000	0,00034	0,00000	0,00000	0,00000
Grau de Lib Efetivo df	31,92	0,9%	1,0%	0,0%	0,8%	8,7%	27,9%	30,3%	0,1%	0,0%	0,0%	30,4%	100,0%
Fator de Abbrangência k	2,040	-2414,995	30,06881	-0,92290	88,15883	-9,58884	16123805	-483,13463	6,98571	-88,14134	0,0%	8,06773	0,0%
Incerteza Expandida 95% U	0,069		0,005% U relativo				</						

ANEXO 27: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da Subamostra 2 da Pastilha 4 do Lote 2 analisada no dia 1.

	u(Tara do Frasco PADRÃO) (g)	u(Peso BRUTO Frasco Padrão) (g)	u(Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g))	u(Pureza do Padrão)	u(Empuxo na Pesagem do Padrão)	u(Vol/Massa Médio Pad (ml/g))	u(Tara do Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g))	u(Empuxo na Pesagem da Amostra)	u(Vol/Massa Médio Amostra (ml/g))	u(Enriquecimento da Amostra (%L235))
	0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,0000010	0,0010319	0,00011	0,00011	0,00011	0,0000006	0,0033571	0,00577
	10000	10000	10000	10000	22411	13	10000	10000	10000	23079	2	10000
Dados de Entrada												
Tara do Frasco PADRÃO (g)	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173
Peso BRUTO Frasco Pad (g)	67,7487	67,7487	67,7487	67,7487	67,7487	67,7487	67,7487	67,7487	67,7487	67,7487	67,7487	67,7487
Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184
Pureza do Padrão	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuxo na Pesagem do Padrão	0,9999132	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
Vol/Massa Médio Pad (ml/g)	9,1926	9,1926	9,1926	9,1926	9,1926	9,19363	9,1926	9,1926	9,1926	9,1926	9,1926	9,1926
Tara do Frasco AMOSTRA (g)	80,1499	80,1499	80,1499	80,1499	80,1499	80,1499	80,15001	80,1499	80,1499	80,1499	80,1499	80,1499
Peso BRUTO Frasco AMOSTRA (g)	80,7364	80,7364	80,7364	80,7364	80,7364	80,7364	80,7364	80,73651	80,7364	80,7364	80,7364	80,7364
Peso BRUTO Frasco Sol AMOSTRA (g)	94,2640	94,2640	94,2640	94,2640	94,2640	94,2640	94,2640	94,2640	94,26411	94,2640	94,2640	94,2640
Empuxo na Pesagem da Amostra	0,9999598	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
Vol/Massa Médio Amostra (ml/g)	10,9711	10,9711	10,9711	10,9711	10,9711	10,9711	10,9711	10,9711	10,9711	10,9711	10,97446	10,9711
Enriquecimento da Amostra (%L235)	1,902	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90200	1,90777
RESULTADO (% U-total)	88,118	88,11491	88,12142	88,11802	88,12117	88,10823	88,13396	88,10159	88,11880	88,11807	88,14508	88,11805
	-0,00321	0,00331	-0,00010	0,00000	0,00305	-0,00989	0,01584	-0,01652	0,00069	-0,00005	0,02696	-0,00007
Incerteza Padrão uc	0,037	0,00001	0,00001	0,00000	0,00001	0,00000	0,00025	0,00027	0,00000	0,00000	0,00073	0,00000
Grau de Lib. Efetivo df	7,18	0,7%	0,6%	0,0%	0,7%	7,1%	18,2%	19,8%	0,0%	0,0%	52,7%	100,0%
Fator de Abrangência k	2,365	-23,0342	30,08006	-3,82265	88,4005	-3,59463	144,02776	-150,2666	6,2437	-88,1261	8,0304	0,032
Incerteza Expandida 95% U	0,088		0,10%	U _{efetivo}								

ANEXO 28: Planilha de cálculo da concentração de urânio total e respectiva incerteza expandida da Subamostra 2 da Pastilha 4 do Lote 2 analisada no dia 2.

	u(Tar do Frasco PACRÃO) (g)	u(Peso BRUTO Frasco Pad) (g)	u(Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g))	u(Pureza do Padrão)	u(Enxugação Pesagem do Padrão)	u(VolMassa Medio Pad (ml/g))	u(Tar do Frasco AMDSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco AMDSTRA (g))	u(Peso BRUTO Frasco Sol AMDSTRA (g))	u(Enxugação Pesagem da Amostra)	u(VolMassa Medio Amostra (ml/g))	u(Enriquecimento da Amostra (%U235))
	0,00011	0,00011	0,00011	0,00003	0,0000010	0,0010319	0,00011	0,00011	0,00011	0,0000006	0,0008876	0,00577
	10000	10000	10000	10000	22411	13	10000	10000	10000	23079	2	10000
Dados de Entrada												
Tar do Frasco PACRÃO (g)	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173	64,8173
Peso BRUTO Frasco Pad (g)	67,487	67,4881	67,4870	67,4870	67,4870	67,4870	67,4870	67,4870	67,4870	67,4870	67,4870	67,4870
Peso BRUTO Frasco Sol Pad (g)	160,3184	160,3184	160,31851	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184	160,3184
Pureza do Padrão	0,99975	0,99975	0,99975	0,99978	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975	0,99975
Empuxo na Pesagem do Padrão	0,9999132	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991	0,99991
VolMassa Medio Pad (ml/g)	9,1926	9,1926	9,1926	9,1926	9,1926	9,19363	9,1926	9,1926	9,1926	9,1926	9,1926	9,1926
Tar do Frasco AMDSTRA (g)	80,1499	80,1499	80,1499	80,1499	80,1499	80,1499	80,15001	80,1499	80,1499	80,1499	80,1499	80,1499
Peso BRUTO Frasco AMDSTRA (g)	80,7364	80,7364	80,7364	80,7364	80,7364	80,7364	80,7364	80,73651	80,7364	80,7364	80,7364	80,7364
Peso BRUTO Frasco Sol AMDSTRA (g)	94,2640	94,2640	94,2640	94,2640	94,2640	94,2640	94,2640	94,2640	94,26411	94,2640	94,2640	94,2640
Empuxo na Pesagem da Amostra	0,9999598	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996	0,99996
VolMassa Medio Amostra (ml/g)	10,9818	10,9818	10,9818	10,9818	10,9818	10,9818	10,9818	10,9818	10,9818	10,9818	10,98269	10,9818
Enriquecimento da Amostra (%U235)	1,902	1,9020	1,9020	1,9020	1,9020	1,9020	1,9020	1,9020	1,9020	1,9020	1,9020	1,90777
RESULTADO (% U-total)	88,2085	88,20737	88,20396	88,20711	88,20414	88,19416	88,21992	88,18752	88,20475	88,20401	88,21119	88,20399
	-0,00321	0,00331	-0,00010	0,00306	0,00008	-0,00090	0,01586	-0,01654	0,00069	-0,00005	0,00713	-0,00007
Incerteza Padrão uc	0,027	0,00001	0,00001	0,00001	0,00001	0,00010	0,00025	0,00027	0,00000	0,00000	0,00005	0,00000
Grau de Lib Efetivo df	243,09	1,5%	1,6%	1,3%	0,0%	13,9%	35,7%	38,8%	0,1%	0,0%	7,2%	0,0%
Fator de Abrangência k	1,970	-23,16584	30,08840	88,22611	88,21011	-3,59404	144,8822	-150,36235	6,24366	-88,20755	8,02884	100,0%
Incerteza Expandida 95% U	0,052		0,06%									

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. Comissão Nacional de Energia Nuclear, 1999. Controle de materiais nucleares, CNEN-NN-2.02. Disponível em: <http://www.cnen.gov.br/seguranca/normas/mostra-norma.asp?op=202>, acesso em 22 de fevereiro de 2013.
2. AREZZO, B. C., 1972. Termos e definições em Salvaguardas. Rio de Janeiro. Instituto de Engenharia Nuclear, Divisão de Química.
3. International Atomic Energy Agency, 1972. The Structure and Content of Agreements Between the Agency and States Required in Connection with the Treaty on the Non-Proliferation of Nuclear Weapons, INFCIRC/153, paragraph 55, Vienna, Austria.
4. CRISTIANO, B. F. G., 2010. Implementação do Método de Titulação Potenciométrica Automatizado para Urânio Total no Laboratório de Salvaguardas da CNEN. Dissertação de M.Sc., IRD/CNEN, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.
5. CRISTIANO, B. F. G.; DELGADO, J. U. et al., 2012. Semi-automated potentiometric titration method for uranium characterization. Applied Radiation and Isotopes vol.70 pp. 1373–1375. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2011.11.025>
6. STOEPLER, M.; WOLF, W. R. and JENKS, P. J., 2001. Reference Materials for Chemical Analysis: Certification, Availability and Proper Usage, Wiley-VCH Verlag GmbH 69469 Weinheim, Germany.
7. VOEKS, A.; MASON, P. and NARAYANAN, U., 2010. A history of the United States Primary Uranium Reference Material – Origin, Production, Certification of Uranium Metal SRM 960/ CRM 112-A, Proceedings of the. Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM).
8. NBL - New Brunswick Laboratory, 2008. Certified Reference Material 112-A, Uranium (normal) Metal Assay and Isotopic Standard. Disponível em:

http://www.nbl.doe.gov/docs/pdf/CRM_112A_%20Uranium_Metal_Sept_2010.pdf,

acesso em 22 de fevereiro de 2013.

9. Chemical and isotopic reference materials in the nuclear fuel cycle. Proceedings of the Analytical Division of the Chemical Society, 1978, 15,244-247.

10. LE DUIGOU, Y., 1983. Certification of a uranium metal reference material for chemical analyses, Comission of the European Communities, EUR report 8349.

11. LE DUIGOU, Y., 1984. Certification of a uranium dioxide reference material for chemical analyses, Comission of the European Communities, EUR report 8753.

12. LE DUIGOU, Y. and VERDINGH, V., 1984. Certification of a uranium dioxide reference material for in-plant uranium determinations, COM 4146.

13. LE DUIGOU, Y. and VERDINGH, V., 1986. The characterization of uranium and plutonium reference materials by the (100-X) route; basic principle and applications, Comission of the European Communities, EUR 10814.

14. ABNT – Associação Brasileira de Normas Técnicas, 2012. ABNT ISO Guia 34: Requisitos gerais para a competência de produtores de material de referência, Rio de Janeiro.

15. ABNT – Associação Brasileira de Normas Técnicas, 2012. ABNT ISO Guia 35: Materiais de Referência – Princípios gerais e estatísticos para certificação, Rio de Janeiro.

16. ABNT – Associação Brasileira de Normas Técnicas, 2005. ABNT NBR ISO / IEC 17025:2005: Requisitos gerais para a competência de laboratórios de ensaio e calibração, Rio de Janeiro.

17. HANDIL, I. H. and SCOTT, R. G., 1961. Uranium dioxide and its application to nuclear power reactors. In: BELLE, J. ed. Uranium dioxide: properties and nuclear applications. Washington, D.C., USAEC, p. 1-32.

18. SIMNAD, M. T., 1988. A Brief History of Power Reactor Fuels. 3. Nucl. Mater. 100, 93-107.

19. SAUTERON, J, 1965. Les Combustibles Nucléaires. Paris, Hermann, p. 65-74. (Les Actualités scientifiques et industrielles 1322).
20. PERROTA, J. A., 1987. Engenharia do Núcleo de Reatores. São Paulo, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (Curso de introdução à energia nuclear).
21. SANTOS, T. D. S., 1961. Combustíveis cerâmicos e grafita. Rio de Janeiro, CNEN, Série engenharia nuclear, p. 7-11.
22. KUMMERER, K., 1980. Werkstoffe der Kerntechnik, Editions Braun, Karlsruhe.
23. ABNT – Associação Brasileira de Normas Técnicas, 2005. ABNT NBR ISO 9000: Sistemas de gestão da qualidade –Fundamentos e vocabulário, Rio de Janeiro.
24. ISRAELIAN, E.; BECKER, K. S.; SEIXAS, M. L. S. A.; RÖPKE, S., “Uma Introdução às Normas da Série ISO 9000”, Disponível em: <http://allchemistry.iq.usp.br/sedimentando/iso.htm>, acesso em 5 de novembro de 2012.
25. INMETRO - Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial, 2012. Vocabulário Internacional de Metrologia: conceitos fundamentais e gerais e termos associados (VIM 2012), 1ª edição luso-brasileira. Rio de Janeiro.
26. ABNT – Associação Brasileira de Normas Técnicas, 2011. ABNT ISO Guia 30: Termos e definições relacionados com materiais de referência, Rio de Janeiro.
27. MILNER, G. W. C, 1982. Certified Reference Materials for Safeguards - A Review of Their Preparation, Characterization and Certification, Proc. 4th Annual ESARDA Symposium Special Meeting on Harmonization and Standardization in Nuclear Safeguards, Petten, 27-29.
28. ILAC – International Laboratory Accreditation Cooperation, 2000. Guidelines for the requirements for the competence of reference material producer. Disponível em: https://www.ilac.org/documents/ILAC_G12-2000_guidelines_for_the_requirements_for_the_competence_of_reference_material_producers.pdf, acesso em 5 de novembro de 2012.

29. THOMPSON, M.; ELLISON, S. L. R.; WOOD, R., 2006. The International Harmonized Protocol for the Proficiency Testing of Analytical Chemistry Laboratories Pure Appl. Chem., vol. 78, nº 1, pp. 145–196.
30. ASTM - American Society for Testing and Materials, 2008. ASTM E 178:2008, Standard Practice for Dealing with Outlying Observations, USA.
31. INMETRO - Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial, 2008. Avaliação de dados de medição: Guia para a expressão de incerteza de medição – GUM 2008, Rio de Janeiro.
32. VAN DER VEEN, A. M. H.; LINSINGER, T P. J.; LAMBERTY, A.; PAUWELS. J, 2001. Uncertainty calculations in the certification of reference materials. 3. Stability study. Accreditation and Quality Assurance, vol. 6, pp. 257-263.
33. LAMBERTY, A, SCHIMMEL, H.; PAUWELS, J., 1998. The study of the stability of reference materials by isochronous measurements Fresenius Journal of Analytical Chemistry, vol. 360, pp. 359-361.
34. EURACHEM/CITAC Guide, 2003. Traceability in Chemical Measurement - A guide to achieving comparable results in chemical measurements.
35. ABNT – Associação Brasileira de Normas Técnicas, 2011. ABNT NBR ISO/IEC 17043: Avaliação de conformidade — Requisitos gerais para ensaios de proficiência, 1 ed. Rio de Janeiro.
36. VOGEL, A. I., 2002. “Análise Química Quantitativa”, 6ª edição, editora LTC, Rio de Janeiro.
37. DAVIES, W., GRAY, W., 1964. “A rapid and specific titrimetric method for the precise determination of uranium using iron (II) sulphate as reductant”, Talanta, vol.11, pp. 1203-1211.
38. EBERLE, A. R., LERNER, M. W., GOLDBECK, C. G., RODDEN, C. J., 1970. “Titrimetric determination of uranium in product, fuel and scrap materials after ferrous ion reduction in phosphoric acid”, NBL 252.

39. RAO, G. G., SAGI, S. R., 1962. "A new reductimetric reagent: ironII in a strong phosphoric acid medium: titration of uraniumVI with iron II at room temperature", Talanta, vol.9, nº 8, pp. 715-722.
40. EBERLE, A. R., LERNER, M.W., 1971. Effect of added vanadyl ion on the accuracy of the New Brunswick Laboratory titrimetric method (ferrous ion reduction) of determining uranium, NBL-258, pp. 22-25.
41. MARATHE, S. G., PATIL, B. N., BHANDIWAD, V., CHANDER, K., 1983. Studies on the nature of the reactions and species involved in potentiometric titrimetric determination of uranium, Talanta, vol.30, nº 3, pp. 151-154.
42. KUHN, E.; DERON, S.; AIGNER, H., et al., 1979. Destructive Analysis of Safeguarded Materials", IAEA/RL/62, pp 1-45.
43. National Institute of Standards and Technology Certificate of Analysis, 2000. Standard Reference Materials 136e Potassium Dichromate ($K_2Cr_2O_7$) Oxidimetric Standard. Disponível em <http://www-s.nist.gov/srmors/certificates/archive/136E.pdf>, acesso em 10 de fevereiro de 2013.
44. Analytical Methods Committee, 1965. Sodium carbonate as a primary standard in acid-base titrimetric Analyst vol. 90, nº 1070, pp. 251-255. Disponível em: <http://pubs.rsc.org/en/content/articlelanding/1965/an/an9659000251>, acesso em 10 de fevereiro de 2013.
45. CRISTIANO, B. F. G.; SILVA, J. W. S. et al., 2009. Evaluation of the performance of a Metrhom titrator Titrand-836 in potentiometric analysis of uranium for safeguards purposes. Proceedings of the International Nuclear Atlantic Conference (INAC).
46. VERDINGH, V., MICHIELS, A., 1988. A computer controlled potentiometric titrator for quantitative determination of uranium, Journal of Nuclear Materials, vol.153, pp. 96-101.

47. DELGADO, J. U., 2000. Probabilidades de Emissão X e Gama Determinadas por Espectrometria em Regiões Complexas. Tese de D.Sc., COPPE-UFRJ, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.
48. DELGADO, J. U., MOREL, J. and ETCHEVERRY, M., 2002. Measurements of photon emission probabilities from the decay of ^{226}Ra and daughters. Applied Radiation and Isotopes vol.56 pp. 137–143.
49. Le Laboratoire National Henri Becquerel. 2006. NUCLÉIDE Gamma and Alpha Library. Disponível em: <http://laraweb.free.fr>, acesso em 10 de fevereiro de 2013.
50. KULL, L. A. and GINAVEN, R. O., 1974. Guidelines for Gamma-Ray Spectroscopy Measurements of U-235 Enrichment, NBL-50414, Safeguards Nuclear Materials Security - TID-4500.
51. KNOLL, G. F., 1989. Radiation Detection and Measurement, 2 ed., John Wiley & Sons, Inc., New York.
52. SAMPSON, T. E; GOLDMAN A., 1987. Analysis of NDA Instrument Calibration Data, LA- 11316-MS, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico.
53. ALMEIDA, S. G., 1996. Preparação de Referências para Medidas Não Destrutivas em Salvaguardas de Materiais Nucleares. Tese de M.Sc., IME - Instituto Militar de Engenharia, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.
54. DIAS, F. C., GRUND, M. S. et al., 2007. Validation of a high resolution gamma-ray spectrometry method for determination of ^{235}U isotopic abundance. Apresentado no INMM Annual Meeting, EUA.
55. GRUND, M. S and DIAS, F. C., 2009. Application of the MGAU code for measuring ^{235}U enrichment at the Brazilian safeguards laboratory. Apresentado no INAC (International Nuclear Atlantic Conference), Rio de Janeiro, RJ, Brasil.
56. CRISTIANO, B.F.G.; DELGADO, J.U. et al., 2012. Semi-automatic version of the potentiometric titration method for characterization of uranium compounds. Applied Radiation and Isotopes vol.70 pp. 1952–1954 <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2012.02.051>

57. EBERLE, A. R. and LERNER, M. W., 1972. High-precision Determination of Total Uranium, Uranium (IV), and Uranium (VI) in U_3O_8 - Analyses of National Bureau of Standards 950a U_3O_8 after Ignition at Various Temperatures, NBL-262, pp. 5-16.
58. NICHIPORUK, W.; SCHEIDELMAN, K. S. and SMITH, M. M., 1993. Determination of Uranium by the NBL High Precision Titrimetric Method at the One-gram Level, NBL-327, pp. 30-35.
59. INB – Indústrias Nucleares Brasileiras. Disponível em: http://www.inb.gov.br/pt-br/WebForms/interna2.aspx?secao_id=58, acesso em 22 de fevereiro de 2013. ISO - International Organization for Standardization, 1987.
60. ISO 3696:1987 Water for analytical laboratory use — Specifications and test methods, 1^a ed.
61. IAEA - International Atomic Energy Agency, 2010. International Target Values 2010 for Measurement Uncertainties in Safeguarding Nuclear Materials, IAEA Technical Reports Series nº.327.
62. GUNNINK, R. et al., 1994. MGAU: A New Analysis Code for Measuring U-235 Enrichments in Arbitrary Samples, IAEA Symposium on International Safeguards, Vienna, Austria.
63. BERLIZOV, A. N. and TRYSHYN, V. V. Study of the MGAU applicability to accurate isotopic characterization of uranium samples, IAEA-SM-367/14/05/P.
64. NBL - New Brunswick Laboratory, 2003. Certified Reference Material 129-A, Uranium Oxide U_3O_8 Assay and Isotopic Standard.
65. KRAGTEN, J, 1994. Calculating standard deviations and confidence intervals with a universally applicable spreadsheet technique, Analyst, 119, 2161-2166.