

Contribution to Long Term Minor Actinides
Management through Transmutation in Accelerator
Driven Systems (ADS)

B.Calgaro and B.Vezzoni

Dicembre 2006

Ai miei pensieri felici:
mamma, papà, Giulio
e Luca

A chi avrò sempre di fianco:
mamma, babbo e Simone

Un ringraziamento particolare è rivolto all'Ing. Wim Haeck, uno fra gli ideatori del codice ALEPH-1.1.2 che ci ha messo a disposizione la sua esperienza durante la nostra permanenza presso il centro SCK-CEN e il suo aiuto anche dopo il nostro ritorno in Italia. Insieme a lui ci teniamo a ringraziare anche l'Ing. Vitaly Sobolev e l'Ing. Edouard Mbala Malambu che ci hanno fornito dati importanti per portare avanti la presente tesi. Un pensiero particolare viene rivolto anche all'Ing. Guglielmo Lomonaco per i preziosi consigli.

... un ringraziamento affettuoso viene rivolto a Giovanni Bonny, Massimiliano Lagala e Alessio Artoni per l'aiuto fornitoci per l'utilizzo di Linux e di altri linguaggi di programmazione ...

... e se siamo arrivate fin qui lo dobbiamo in gran parte a tutti i nostri amici che ci hanno 'salvato' lungo la strada ...

..... Un ringraziamento reciproco non può comunque mancare!!! Barbaras

:)))

Sommario

Il presente lavoro nasce a seguito di un'attività di 6 mesi di tesi presso il centro per lo studio dell'energia nucleare 'Studiecentrum voor Kernenergie-Centre d'Etude de l'Energie Nucléaire' SCK-CEN di Mol, Belgio.

La questione del management dei rifiuti nucleari è uno fra i problemi attualmente rilevanti per l'industria nucleare, soprattutto per quanto riguarda l'accettabilità di questa fonte energetica. La maggiore sfida, attualmente aperta, per quanto riguarda il nucleare è la riduzione della radiotossicità potenziale dello SNF. Per raggiungere tale obiettivo la via effettivamente da intraprendere è la distruzione degli Attinidi Minori (MAs), cercando di ridurre il tempo necessario al pareggio con il livello di radiotossicità di miniera. Il presente lavoro si è soffermato sull'utilizzo di un ADS per la trasmutazione degli attinidi minori.

L'uso di un ADS, reattore sottocritico iniettato, svincola dai problemi legati al raggiungimento delle condizioni di criticità comuni negli altri reattori, permettendo anche un certo grado di sicurezza intrinseca del sistema. La Comunità Europea stessa, sulla base di queste caratteristiche, attualmente supporta internamente al '6th Framework Programme-EURATOM' svariati progetti di R&D finalizzati allo studio di un trasmutatore su scala industriale.

Gli obiettivi del presente lavoro sono:

- valutare la capacità di bruciamento degli attinidi minori, caricati all'interno di una matrice inerte di combustibile, attraverso l'uso di un ADS da 400MWth (600MeV) e $k_{eff}=0.97$, con burn-up allo scarico di 150 GWd/toniHM;
- valutare una stima più appropriata per il 'Reference Level' e una valutazione qualitativa e quantitativa dell'evoluzione delle Pubblicazioni dell'ICRP, della loro influenza sulla radiotossicità potenziale del combustibile irraggiato, del loro impatto sulla soluzione del 'Partitioning & Transmutation (P&T)' e sul corpo di legge europeo e statunitense.

Per sviluppare queste valutazioni sono stati usati un codice evolutivo Monte Carlo (ALEPH-1.1.2) in sviluppo al centro SCK-CEN all'interno del progetto MYRRHA, MCNPX-2.5.0 e ORIGEN-2.2 ed è stato rivisto lo stato dell'arte della dosimetria interna a partire dal 1959 attraverso le Pubblicazioni dell'ICRP, del 10 CFR 20, 96/29/EURATOM e la legge belga in materia di radioprotezione del 2001.

Abstract

A six months activity has been performed in the "“Studiecentrum voor Kernenergie-Centre d’Etude de l’Energie Nucléaire”” SCK-CEN in Mol, Belgium.

The question of waste management is a well known problem in nuclear industry for the present century. Reducing the potential radiotoxicity or the time that potential hazard exists is the main challenge and the most effective way is, probably, destroying Minor Actinides (MAs). This work focuses on the use of an ADS for minor actinides transmutation.

The use of an ADS allows a waste loading without criticality and safety constraints that are normally present in a critical reactor. In this direction, the European Community supports inside "“6th Framework Programme - EURATOM””, lots of R&D projects finalized to an industrial scale transmuter. The objectives of the present work are:

- to evaluate the capability of burning (using inert matrix fuel) of minor actinides core content in an 600 MeV, 400 MWth ADS and a 150 GWd/toniHM burn-up;
- to evaluate the best estimation of Reference Level and the qualitative and quantitative evolution of the ICRP Publications, their influence on the potential radiotoxicity of spent fuel, their impact on Partitioning & Transmutation (P&T) solution and on the European and US body of laws.

For these purposes we used a Monte Carlo evolution code (ALEPH-1.1.2) in development in SCK-CEN inside MYRRHA Project, MCNPX-2.5.0 and ORIGEN-2.2 and we review the state of art of internal dosimetry, since 1959, in ICRP Publications, 10 CFR 20, 96/29/EURATOM and 2001 Belgium law on Radiological Protection.

Indice

1	Introduzione	18
1.1	Aspetti generali	18
1.2	Obiettivi e Finalità della Tesi	22
1.3	Organizzazione della Tesi	24
2	La Gestione dei Rifiuti Nucleari: Problematiche Collegate al Combustibile Esaurito	27
2.1	Composizione del Combustibile Esaurito in Uscita dagli Attuali Reattori . . .	27
2.1.1	Classificazione dei Rifiuti Radioattivi	36
2.2	Strategie di Gestione del Combustibile Nucleare	41
2.2.1	Il Ciclo ‘Aperto’	42
2.2.2	Il Riciclo del Plutonio e la Trasmutazione dei MAs: Confronto tra Diverse Strategie di Chiusura del Ciclo del Combustibile	44
2.3	Fisica della Trasmutazione	50
2.4	Il Concetto di ADS	57
2.4.1	La Spallazione	65
2.4.2	Applicazione dell’Equazione del Trasporto: κ_{eff} e κ_s	65
2.4.3	La Sorgente di Neutroni in un ADS	67
2.5	Il Progetto MYRRHA	68
2.5.1	Caratteristiche generali del progetto MYRRHA	70
2.5.2	Il Vessel e le Strutture di Sostegno degli Elementi Interni	73
2.5.3	Il Circuito di Spallazione	74
2.5.4	Il Core Sottocritico	76

2.5.5	Il Sistema Primario di Raffreddamento	79
2.5.6	Sistema Remotizzato per la Movimentazione del Combustibile nel Vessel	83
3	Applicazione del codice di calcolo ALEPH-1.1.2 per lo studio del combustibile irraggiato in un LWR	85
3.1	Alla ricerca del modello di riferimento per un LWR	88
3.1.1	Parco reattori belga	89
3.1.2	Reattore di riferimento	94
3.2	Modellizzazione della cella elementare di un PWR	96
3.2.1	Input ALEPH 1.1.2 parte MCNPX: definizione della geometria	98
3.2.2	Input ALEPH 1.1.2: definizione della storia di irraggiamento	107
3.3	Risultati ottenuti	110
3.4	Accumulazione durante il periodo di esercizio del reattore	115
4	La Radiotossicità e le sue Unità di Misura	128
4.1	Evoluzione Storica dei Concetti di Base della Radioprotezione	128
4.1.1	Le raccomandazioni dell' 'International Commission on Radiologi- cal Protection' (ICRP)	131
4.1.2	Studio del Rischio Associato alle Radiazioni Ionizzanti: i rapporti BEIR e UNSCEAR	137
4.1.3	Il Codice di Leggi Americano sugli Standard di Protezione contro le Radiazioni: 10 CFR Part 20	142
4.2	Confronto tra Diversi Indici di Stima della Radiotossicità	147
4.2.1	Metodi di Calcolo e Applicazione del Codice ORIGEN 2.2	148
4.2.2	Definizioni	152
4.2.3	Stima della Radiotossicità Naturale	159
4.2.4	Principali risultati ottenuti	165
5	Contributo alla progettazione di un ADS industriale (EFIT)	174
5.1	Aspetti generali del progetto EFIT: Euratom 6th Framework Programme (FP6)	174

5.2	Modellizzazione di un ADS industriale (EFIT) per l'utilizzo nel codice di calcolo MCNPX	177
5.2.1	Modellizzazione della barretta di combustibile	180
5.2.2	Materiali utilizzati nella modellizzazione della cella elementare	184
5.2.3	Modellizzazione dell'elemento di combustibile	186
5.2.4	Modellizzazione del core di un reattore ADS industriale (EFIT)	189
6	Analisi dell'efficienza di Trasmutazione di un ADS industriale (EFIT)	193
6.1	Valutazione della Potenzialità Teorica di Bruciamento	193
6.1.1	Premessa	193
6.1.2	Effetto della trasmutazione sulla radiotossicità potenziale del combustibile nucleare	201
6.2	Determinazione della composizione isotopica del combustibile per l'ADS industriale (EFIT)	211
6.2.1	Determinazione della quantità di plutonio minima con reticolo infinito	216
6.2.2	Determinazione della quantità di plutonio minima con core finito	218
6.3	Elaborazione dei calcoli relativi ad un ADS industriale (EFIT) con l'uso del codice ALEPH 1.1.2	222
6.3.1	Core caricato omogeneamente e 3 cicli di irraggiamento	223
6.3.2	Core caricato omogeneamente, suddiviso in zone	224
6.4	Principali risultati ottenuti sul core di un ADS industriale da 400 MWth	225
7	Conclusioni	232
7.1	Sviluppi futuri del lavoro	238
A	Modellizzazione dettagliata del core di un ADS industriale da 400 MWth	241
A.1	Modellizzazione della barretta di combustibile	241
A.2	Modellizzazione dell'elemento di combustibile	244
A.3	Modellizzazione del core di un reattore ADS industriale (EFIT)	246
A.4	Modellizzazione della sorgente di spallazione	248

B Aggiornamenti dei coefficienti di radiotossicità per ALEPH-1.1.2. e ORIGEN2.2250

B.1 Coefficienti per ALEPH-1.1.2 nel caso di SNF proveniente da un LWR 250

B.2 Coefficienti per ALEPH-1.1.2 nel caso di SNF proveniente da un ADS caricato con combustibile in matrice inerte MgO 269

B.3 Coefficienti per ORIGEN2.2 preparati per tutti i 1306 nuclidi considerati dal programma 288

Elenco delle figure

2.1	Schema per il riciclo nei LWR di Pu o di PU + MAs.	46
2.2	Schema generale di funzionamento di un reattore sottocritico iniettato	49
2.3	Schema riassuntivo del '5th Framework Programme e 6th Framework Programme'-EURATOM	62
2.4	Progetti ADS interni al '5th Framework Programme'-EURATOM	63
2.5	MYRRHA: struttura generale	72
2.6	a) Circuito di spallazione; b) Dettaglio del core sottocritico	77
2.7	Barretta di combustibile	79
2.8	Elemento di combustibile	80
2.9	Chicane di collegamento tra la pompa e lo scambiatore del circuito primario	83
3.1	Siti nucleari sul territorio belga	89
3.2	Diagramma di lavoro del codice di calcolo ALEPH-1.1.2 [1]	97
3.3	Input ALEPH-1.1.2: identificazione delle zone presenti nella cella modellizzata	103
3.4	Sezione y-z della cella modellizzata	106
3.5	Sezione trasversale x-y della cella modellizzata	106
3.6	Input ALEPH-1.1.2: indicazioni necessarie all'esecuzione del programma di calcolo	109
3.7	Input ALEPH-1.1.2: indicazione della storia di irraggiamento applicata al combustibile	111
3.8	Evoluzione temporale della composizione in g/cm ³ dei maggiori transuranici	115
3.9	Evoluzione temporale della composizione in g/cm ³ degli isotopi del plutonio	116
3.10	Evoluzione temporale della composizione in g/cm ³ degli isotopi dell'americio	116
3.11	Evoluzione temporale della composizione in g/cm ³ di alcuni prodotti di fissione più significativi	117
3.12	Metodo costruttivo per il calcolo dell'accumulazione	120
3.13	Accumulo di americio durante la vita del reattore	125

3.14	Confronto fra l'evoluzione delle quantità di americio valutate nel caso del singolo ciclo e nel caso dell'accumulazione	126
3.15	Accumulo degli isotopi dell'Americio durante la vita del reattore	126
3.16	Accumulo di plutonio durante la vita del reattore	127
4.1	Radiotossicità del combustibile esaurito in Sv/toniHM con i valori di dose aggiornati alla legge belga del 2001	130
4.2	Confronto tra i valori di radiotossicità della vecchia edizione del 10 CFR Part20 con quelli dell'ultima edizione aggiornata al 1994.	143
4.3	Radiotossicità in Sv/GWe-y del combustibile accumulato durante i 58.5 anni di vita del reattore di riferimento (PWR) confrontata con il contributo del combustibile esaurito dopo un singolo ciclo di irraggiamento.	149
4.4	Attività in Ci/cm ³ del combustibile nucleare esaurito e di alcuni dei radioisotopi più significativi con lunghi tempi di dimezzamento.	151
4.5	Radiotossicità del combustibile esaurito in m ³ d'acqua necessari a diluire 1 toniHM con i valori di dose aggiornati alla legge belga del 2001	154
4.6	Radiotossicità del combustibile esaurito in ALI/toniHM confrontando i risultati ottenuti utilizzando i valori limite per la popolazione (1 mSv) o per i lavoratori (50 mSv) così come elencati in tabella II appendice B del 10 CFR Part 20 (1994).	157
4.7	Radiotossicità del combustibile esaurito in Sv/toniHM con i valori di dose per la popolazione aggiornati all'ICRP 72 e alla legge belga del 2001	158
4.8	Radiotossicità del combustibile esaurito in CD/GWe-y con i valori di dose aggiornati all'ICRP 72 e alla legge belga del 2001	159
4.9	Radiotossicità del combustibile esaurito in numero di morti attese per anno su ogni GWe-y prodotto considerando un valore di disponibilità annuale di radionuclidi per l'ingestione da parte dell'uomo di 10 ⁻¹² CD/GWe-y per i rifiuti vetrificati e stoccati in deposito profondo, con i valori di dose aggiornati all'ICRP 72 e alla legge belga del 2001	160
4.10	Serie di decadimento radioattivo dell'U-238	161
4.11	Radiotossicità dell'uranio naturale in equilibrio secolare usata come 'reference level'	163
4.12	Confronto tra i valori di radiotossicità assoluti del combustibile nucleare esaurito forniti da ORIGEN 2.2 e dalla tabella H1 appendice AI della legge belga del 2001, basata sull'ICRP 72.	167

4.13	Confronto tra i valori di radiotossicità relativi al corrispondente valore di radiotossicità naturale del combustibile nucleare esaurito forniti da ORIGEN 2.2 e dalla tabella H1 appendice AI della legge belga del 2001, basata sull'ICRP 72.	167
4.14	Confronto tra la radiotossicità calcolata con i valori di RCG (m ³ di acqua necessari a diluire 1toniHM) dalla legge belga (2001) e dal 10 CFR Part 20 (1994).	168
4.15	Confronto tra la radiotossicità relativa, normalizzata al valore di riferimento cioè a 8 tonnellate di uranio naturale in equilibrio, della legge belga (2001), del 10 CFR Part 20 (1994) e di ORIGEN 2.2.	169
4.16	Valori della radiotossicità percentuale secondo i valori di RCG dai coefficienti di default di ORIGEN 2.2.	170
4.17	Valori della radiotossicità percentuale calcolata secondo i valori di RCG dai coefficienti modificati di ORIGEN 2.2.	170
5.1	Schema semplificato della barretta di combustibile per l'ADS-EFIT	183
5.2	Modellizzazione MCNPX per la barretta di combustibile (sezione x-z)	183
5.3	Modellizzazione MCNPX per la barretta di combustibile (sezione x-y)	183
5.4	Composizione isotopica materiale utilizzato come riflettore [2]	186
5.5	Composizione isotopica del Pb utilizzato come refrigerante [2]	186
5.6	Schema semplificato d'elemento di combustibile di un ADS	187
5.7	Modellizzazione MCNPX dell'elemento di combustibile di un ADS industriale	188
5.8	Sezione x-z del core totale modellizzato	190
5.9	Sezione x-y del core totale	191
5.10	Sezione x-y del core all'altezza dei restringimenti troncoconici superiori degli assemblies (z=92 cm)	191
5.11	Sezione x-y del core all'altezza della griglia distanziatrice dell'assemblies (z=78 cm)	191
5.12	Sezione x-y del core ad altezza del plenum superiore dell'assemblies (z=80 cm) per mostrarne la struttura scatolata esagonale	192
5.13	Sezione x-y del core all'altezza del plenum inferiore delle barrette (z=-90 cm)	192
6.1	Serie di decadimento $4n+1, 4n+3$	197
6.2	Serie di decadimento $4n, 4n+2$	198

6.3	Andamento della concentrazione nel core del reattore Myrrha degli attinidi minori dove (A) corrisponde al materiale caricato nell'assembly più vicino alla sorgente di spallazione e (D) corrisponde al materiale caricato nell'assembly più lontano dalla sorgente di spallazione.	199
6.4	Radiotossicità del combustibile esaurito ipotizzando di separarne il 100% del plutonio iniziale, calcolata per il primo anno dallo scarico del reattore.	200
6.5	Costruzione del file input di ORIGEN 2.2 per l'analisi dell'efficienza del 'partitioning&transmutation nel caso di separazione ipotizzata del 99.9% di Pu e di bruciamento del 95% di attinidi minori	203
6.6	Valori di radiotossicità del combustibile esaurito immaginando di riuscire a separare dal resto dei rifiuti destinati al deposito il 100% del Pu e degli attinidi minori	205
6.7	Valori di radiotossicità del combustibile esaurito separando, dal resto dei rifiuti destinati al deposito, il 99.9% del Pu e alcune combinazioni di attinidi minori.	206
6.8	Valori di radiotossicità del combustibile esaurito immaginando di riuscire a separare dal resto dei rifiuti destinati al deposito il 99.9% del Pu e rispettivamente il 97%, il 95%, il 93% ed il 91% degli attinidi minori.	208
6.9	Valori di radiotossicità del combustibile esaurito immaginando di riuscire a separare dal resto dei rifiuti destinati al deposito il 99.9% del Pu e rispettivamente l'89%, l'85% e l'80% degli attinidi minori.	209
6.10	Valori di radiotossicità del combustibile esaurito immaginando di riuscire a separare dal resto dei rifiuti destinati al deposito il 99.9% del Pu e rispettivamente il 70%, il 73% e il 60% degli attinidi minori.	211
6.11	Ricerca di un possibile sufficiente valore di radiotossicità del combustibile esaurito da inviare al deposito geologico profondo dopo una parziale trasmutazione degli attinidi minori.	212
6.12	Efficienza di trasmutazione teorica in anni necessari per il raggiungimento della radiotossicità del livello di riferimento, una volta estratto il combustibile dal reattore e separato il 99.9% di Pu, in funzione della capacità percentuale di trasmutazione degli attinidi minori.	213
6.13	Andamento del k_{eff} al variare del numero di cicli attivi per il core di un ADS industriale (EFIT) caricato con un 37%at. di Pu di prima generazione	221
6.14	Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione MA	226
6.15	Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione dei vari elementi	227
6.16	Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione degli isotopi del plutonio	228

6.17	Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione degli isotopi del nettunio	229
6.18	Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione degli isotopi dell'americio	229
6.19	Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione degli isotopi del curio	230
6.20	Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione per i primi 960 efpd in due zone differenti del core	231
A.1	Descrizione del comando HEX di MCNPX	242
A.2	Descrizione dei piani usati nella costruzione della superficie esagonale	242
A.3	Modellizzazione MCNPX della barretta semplificata	244
A.4	Input MCNPX relativo al reticolo che compone l'elemento di combustibile	246
A.5	Input del reticolo del core	247

Elenco delle tabelle

2.1	Transuranici presenti in una tonnellata di combustibile SNF da LWR	32
2.2	Prodotti di fissione presenti in una tonnellata di SNF da LWR	33
2.3	Possibili strategie per realizzare la trasmutazione	45
2.4	Alcuni dettagli dei principali schemi di trasmutazione	51
2.5	Sezioni microscopiche di cattura e di fissione mediate sul flusso (termico e veloce) per alcuni TRU [3]	53
2.6	Stato di avanzamento di XT-ADS e di EFIT	64
2.7	Caratteristiche Generali del Progetto MYRRHA	71
2.8	Caratteristiche della barretta di riferimento del MYRRHA-Draft2	78
2.9	Caratteristiche delle pompe del sistema primario	82
2.10	Caratteristiche principali degli scambiatori di calore	84
3.1	Alcune caratteristiche degli impianti nucleari belga: unità di Doel	91
3.2	Alcune caratteristiche degli impianti nucleari belga: unità di Tihange	92
3.3	Rapporto F/M in un elemento di combustibile e valore associato del passo equivalente del reticolo	92
3.4	Caratteristiche del reattore di riferimento: Doel-3	95
3.5	Parametri relativi alla cella di PWR modellizzata	101
3.6	Caratteristiche dei materiali presenti all'interno della cella modellizzata	102
3.7	Concentrazioni isotopiche per i materiali presenti nella cella modellizzata	104
3.8	Composizione isotopica del Plutonio all'uscita da un LWR	113
3.9	Composizione isotopica degli attinidi minori all'uscita da un LWR	114
3.10	Composizione isotopica del plutonio in caso di accumulazione	122

3.11	Composizione isotopica degli attinidi in caso di accumulazione	123
3.12	Confronto fra le percentuali dei vari isotopi del plutonio nel caso di singolo ciclo e di accumulazione	124
3.13	Confronto fra le percentuali dei vari isotopi dei MA nel caso di singolo ciclo e di accumulazione	124
4.1	Confronto tra le definizioni introdotte dall'ICRP 26 e dall'ICRP 60	136
4.2	Confronto tra il rischio di cancro stimato dal BEIR VII con quello ottenuto da altri report. L'eccesso di morti viene stimato per una popolazione di 100,000 persone di tutte le età e di entrambi i sessi esposti ad un campo di radiazioni risultante nella dose di 0.1 Gy	139
4.3	Confronto tra il rischio di cancro stimato dal BEIR I, BEIR III, ICRP 26, UNSCEAR 1977. L'eccesso di morti viene stimato per una popolazione di 100,000 persone di tutte le età e di entrambi i sessi esposti ad un campo di radiazioni risultante nella dose di 0.1 Gy	140
4.4	Confronto tra ICRP 2 e 10 CFR Part 20 ed. 1982; e confronto tra ICRP 30 e 10 CFR Part 20 ed. 1994 per i radionuclidi più significativi	144
4.5	Confronto tra 10 CFR Part 20 ed. 1994 e ICRP 61 (1991) e ICRP 68 (1995) per i radionuclidi più significativi	146
4.6	Stima del contributo alla dose efficace dovuta alle sorgenti naturali [4].	162
4.7	Composizione isotopica dell'uranio naturale	163
4.8	'Cancer dose' per kg (CD/Kg) relativi alla radioattività media del sottosuolo dovuta al contributo dell'U-238, preso il valore di radioattività relativa dall'UNSCEAR 2000 [4].	165
4.9	Contributo percentuale dei radioisotopi più significativi dopo 20 anni di tempo di decadimento, per combustibile con burn-up allo scarico di 50GWd/toniHM irraggiato un solo ciclo, secondo i valori della legge belga (2001) e del 10 CFR Part 20 (1994)	171

4.10	Contributo percentuale dei radioisotopi più significativi dopo 1000 anni di tempo di decadimento, per combustibile con burn-up allo scarico di 50GWd/toniHM irraggiato un solo ciclo, secondo i valori della legge belga(2001) e del 10 CFR Part 20 (1994)	172
4.11	Contributo percentuale dei radioisotopi più significativi dopo 1×10^5 anni di tempo di decadimento, per combustibile con burn-up allo scarico di 50GWd/toniHM irraggiato un solo ciclo, secondo i valori della legge belga (2001) e del 10 CFR Part 20 (1994)	172
5.1	Caratteristiche tecniche principali del progetto del reattore sottocritico iniettato EFIT.	176
5.2	Confronto fra i dati geometrici di una barretta di combustibile per SPX, EFR, MYRRHA e ADS industriale (EFIT)[2]	182
5.3	Composizioni isotopiche del materiale T91 utilizzato per l'incamiciatura della barretta di combustibile e per l'isolante [2]	185
5.4	Dati relativi all'elemento di combustibile usato per un ADS industriale paragonati con i dati relativi al progetto MYRRHA [2]	188
6.1	Concentrazione del Pu durante il primo anno di decadimento dovuto al contributo dei decadimenti degli attinidi minori.	200
6.2	Concentrazioni residue ipotizzate nel quantitativo da inviare al deposito geologico profondo in g/cm^3	202
6.3	Concentrazioni residue ipotizzate inseparabili dal resto del combustibile nucleare da inviare al deposito geologico profondo di Pu allo 0.1% in g/cm^3	204
6.4	Valori del tempo necessario a raggiungere la radiotossicità dell'uranio naturale in equilibrio (RL) per diverse composizioni del combustibile nucleare da inviare al deposito profondo.	210
6.5	Composizioni isotopiche del magnesio e dell'ossigeno considerate all'interno della composizione del combustibile da noi trattata	214
6.6	Densità teoriche degli ossidi di Pu e MAs sia nel caso di rapporto stechiometrico che nel caso di rapporto non stechiometrico	215

6.7	Valori del k_{eff} ottenuti al variare della composizione di plutonio inserita per un reticolo infinito	218
6.8	Valori del k_{eff} ottenuti al variare della composizione di plutonio inserita per un nocciolo con 324 elementi di combustibile	219
6.9	Composizione isotopica del combustibile utilizzata nei calcoli MCNPX con 37%at. di plutonio di prima generazione	220
6.10	Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione MA	226
B.1	Coefficienti per il calcolo della radiotossicità con i valori ottenuti da ICRP 72 del 1996 per ALEPH-1.1.2. nel caso di studiare tutto il combustibile esaurito in uscita da un LWR	269
B.2	Coefficienti per il calcolo della radiotossicità con i valori ottenuti da ICRP 72 del 1996 per ALEPH-1.1.2. nel caso di studiare tutto il combustibile, costruito in matrice inerte di MgO, esaurito in uscita da un ADS	288
B.3	Coefficienti per il calcolo della radiotossicità con i valori ottenuti da ICRP 72 del 1996 per ORIGEN2.2 associabili con i valori di concentrazione dati in uscita dal programma per tutti i 1306 isotopi considerati.	313

Abbreviazioni

ADS	Accelerator Driven System
SNF	Spent Nuclear Fuel
HLW	High Level Waste
FP	Fission Product
LLFP	Long Lived Fission Product
TRU	TRansUranic
R&D	Research and Development
P&T	Partitioning and Transmutation
MA	Minor Actinides
MOX	Mixed OXide
PWR	Pressurized Water Reactor
LWR	Light Water Reactor
HM	Heavy Metal
IAEA	International Atomic Energy Agency
NEA	Nuclear Energy Agency
PUREX	Plutonium-URanium EXtraction
TRUEX	TRansUranic EXtraction
LILW	Low and Intermediate Level Waste
LILW-SL	Short Lived Waste
LILW-LL	Long lived waste
ILW	Intermediate Level Waste
LLW	Low Level Waste
EW	Exempt Waste
ONDRAF-NIRAS	Organisme National des Déchets RAdioactifs et des matières Fissiles enrichies

SCK-CEN	StudieCentrum voor Kernenergie-Centre d'Etude de l'Energie Nucleaire
ANL	Argonne National Laboratory
FERFICON	Ferile-to-Fissile Conversion Programme
MYRRHA	Multi-purpose hYbrid Research Reactor for High-tech Applications
LINAC	LINear ACcelerator
ATW	Accelerator Trasmutation of Waste
FEAT	First Energy Amplifier Test
TARC	Trasmutation by Adiabatic Resonance Crossing
IABAT	Impact of Accelerator Based Technologies on Nuclear Fission Safety
MAG	Minister's Advisor Group
TWG	Technical Working Group
X-ADS	eXperimental Accelerator Driven System
ETWG	European Technical Working Group
FWP	Framework Programme
PDS-XADS	Preliminary Desing Studies of an Experimental Accelerator Driven System
JAERI	Japan Atomic Energy Research Institute
AAA	Advanced Accelerator Application
EFIT	European Facility for Industrial Trasmutation
CEA	Commissariat à l'Energie Atomique
FZK	ForschungsZentrum Karlsruhe
ENEA	Ente Nazionale per l'Energia e l'Ambiente
IP-EUROTRANS	Integrated Project EUROTRANS
IP-EUROPART	Integrated Project EUROPART
ALI	Annual Limit of Intake
BEIR Report	Biological Effects of Ionizing Radiations (Report of the Advisory Committee)
CFR	Code of Federal Regulation
DAC	Derived Air Concentration
ICRP	International Commission on Radiological Protection
MPBB	Maximum Permissible Body Burden

MPC	Maximum Permissible Concentration
NCRP	National Council on Radiation protection and Measurements
RBE	Relative Biological Effectiveness
TRUs	Transuranics
UNSCEAR	United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiati
iHM	inizial Heavy Metal
efpd	effective full power days
BOC	Begin Of Cycle
EOC	End Of Cycle
ETC	End of Transmutation Cycles

Capitolo 1

Introduzione

1.1 Aspetti generali

L'industria nucleare vanta oggi uno sviluppo tecnologico durato mezzo secolo, ricordiamo in proposito che proprio l'11 Maggio 2006 è stato festeggiato presso il centro SCK-CEN in Mol il cinquantenario dalla prima criticità del reattore BR1, storicamente il primo reattore europeo (1956). Oggi quella nucleare è una delle principali risorse energetiche a disposizione dell'uomo, con la copertura sul territorio europeo del 35% del fabbisogno energetico. Gran parte dello sviluppo tecnologico del settore è stato negli anni concentrato sui reattori ad acqua leggera, pressurizzati o bollenti del tipo LWR, e sul loro ciclo del combustibile. Le quantità di scorie nucleari ad oggi coinvolte non hanno mai spinto in modo concreto alla ricerca di una soluzione socialmente accettabile del problema dei rifiuti nucleari ad alta radioattività (HLW) tra cui compare il combustibile nucleare esaurito. Lo scenario che, però, si presenta guardando con occhio critico al futuro del 21° secolo necessita di definire nuove strategie di sviluppo sostenibile, eliminando sprechi e inefficienze delle generazioni passate di reattori. Quanto detto assume particolare rilevanza se si considera il documento scritto dalla Commissione Europea nel foglio verde *'Una strategia europea per un'energia sostenibile, competitiva e sicura'*, pubblicato lo scorso 8 Marzo, in cui vengono richiamate le problematiche del nuovo millennio: sempre maggiori prezzi di olio combustibile e gas, insicurezza per le forniture di energia e cambiamenti climatici. Per arginare questi fenomeni, ormai sotto gli occhi di tutti i cittadini, l'Europa stessa si pone l'obiettivo di un'azione ur-

gente e sicura per assicurare la diversificazione delle fonti di energia e della scelta dei paesi di origine per gli approvvigionamenti.

La strategia scelta a livello europeo prevede, quindi, la stesura di linee guida chiare per rendere i paesi membri in grado di prendere decisioni corrette e sinergiche sull'utilizzo delle diverse fonti di energia ad oggi disponibili. Parte dell'attenzione viene dedicata allo sviluppo delle fonti rinnovabili disponibili sul territorio, come il vento, la biomassa e l'idroelettrico, ma non viene trascurato di ricordare che per il carbone ed il nucleare è destinato un ruolo di crescente importanza. Per quanto riguarda l'energia nucleare, in particolare, viene fornito un quadro obiettivo sul contributo reale che attualmente svolge all'interno della comunità europea, come maggiore fonte energetica esente dalla produzione di gas-serra, sottolineandone anche i punti deboli e gli aspetti ancora in corso di discussione [5]:

- la necessità di un uso più efficiente del combustibile nucleare prima di destinarlo al deposito geologico profondo;
- l'accettabilità sociale dell'energia nucleare, cercando soluzioni competitive di chiusura del ciclo del combustibile nucleare, in grado di ridurre la produzione di scorie a lunga vita.

Nella sola Comunità Europea l'energia nucleare installata è di circa 185TWh-y, con 145 reattori in funzione ed una potenza totale fornita di 125 GWe. Tutto il ciclo del combustibile è sostenuto ed alimentato da strutture europee e solo il problema della gestione dei rifiuti a lungo termine rimane ancora da risolvere.

Il combustibile nucleare scaricato ogni anno dai reattori è il contributo principale ai rifiuti ad elevata radioattività (HLW). In particolare, l'esatto quantitativo e la composizione degli stessi dipende essenzialmente dall'energia totale prodotta e misurata, per esempio, in termini di burn-up (MWd/toniHM). In un reattore ad acqua leggera di taglia comune, 1000 MWe, ogni anno vengono scaricate circa 23 tonnellate di combustibile, in metalli pesanti (HM); per un burn-up di 40 GWd/toniHM, in 40 anni vengono scaricate in tutto 900 tonnellate di combustibile.

Il problema principale associato con il combustibile nucleare esaurito è la sua radiotossicità. La radiotossicità è una misura del rischio derivato dall'ingestione di radionuclidi da

parte dell'uomo e associato in questo caso con la radioattività contenuta nel combustibile stesso e non con le sue proprietà chimiche.

Numerose sono in letteratura le definizioni e le unità di misura con cui si trovano i valori di radiotossicità: sin dai primi anni del 20° secolo è stata sentita la necessità di limitare l'esposizione dell'uomo alle radiazioni ionizzanti e di fornirne, quindi, dei valori limite. Molto spesso la radiotossicità del combustibile nucleare viene rapportata alla radiotossicità dell'uranio naturale o di un equivalente valore usato come riferimento, 'reference level (RL)', di cui però in letteratura esistono versioni diverse e discordanti.

In termini di radiotossicità del combustibile dopo lo scarico dal reattore, per alcune centinaia di anni domina il contributo dei prodotti di fissione, in particolare del Cs-137 e dello Sr-90 dopo i primi 20 anni. Nel più lungo periodo, invece, dominano i transuranici (TRU), tra cui soprattutto gli isotopi del plutonio e i prodotti di decadimento del Pu-241: tra i 1000 ed i 100,000 anni il contributo maggiore è del Pu-240; dopo i 100,000 anni domina l'Am-241.

È evidente, dunque, che l'obiettivo principale per raggiungere l'accettabilità sociale dell'energia nucleare è la diminuzione della quantità di radioisotopi a lunga vita che non permettono ai rifiuti nucleari di raggiungere livelli di radioattività paragonabili con quelli naturali, cioè la cosiddetta *chiusura del ciclo del combustibile*.

All'interno degli scenari che, in questi ultimi anni, si vanno delineando nel dibattito scientifico internazionale, le possibilità affrontabili sono:

- continuare ad adottare l'attuale strategia senza riciclo né del plutonio né degli attinidi minori, 'once-through scenario';
- riciclare il plutonio in LWR o in reattori veloci (FR), come ossidi misti PuO₂-UO₂ (MOX), senza però diminuire il problema delle scorie a lunga vita;
- riciclare, insieme al plutonio, anche gli attinidi minori (MAs) e i prodotti di fissione a lunga vita (LLFPs) destinandoli quindi a reattori dedicati di nuova concezione al bruciamento e alla trasmutazione di isotopi a lunga vita in isotopi stabili o con tempi di decadimento inferiori; questo potrebbe portare alla chiusura del ciclo del combustibile nucleare se le perdite durante i vari passaggi di riprocessamento si dimostreranno in realtà limitate;

-
- cambiare completamente l'attuale parco reattori, sostituendo i reattori esistenti con reattori veloci di nuova generazione con un ciclo chiuso del plutonio e la possibilità di bruciare anche piccole quantità di attinidi minori e prodotti di fissione a lunga vita.

Il concetto del 'partitioning and transmutation (P&T)' è stato, quindi, introdotto per cercare una soluzione al problema della radiotossicità a lungo termine, per ottenere cioè prodotti di scarto con valori il più simile possibile al livello della radiotossicità naturale, entro un tempo ridotto rispetto al normale fenomeno del decadimento radioattivo.

Perché ciò sia possibile i materiali da trasmutare vanno sottoposti a campi neutronici: per i prodotti di fissione sono necessarie reazioni di assorbimento con neutroni epitermici ($1 \text{ eV} < \text{energia} < 0.1 \text{ MeV}$); per gli attinidi minori ed i transuranici in generale il mezzo più efficace è la fissione con neutroni veloci ($\text{energia} > 0.75 \text{ MeV}$).

Attualmente la comunità internazionale è allarmata per la mancanza di risposte concrete che fino ad oggi non sono state date sulla sistemazione dei rifiuti nucleari; per questo alcuni stati hanno iniziato a guardare all'energia nucleare come un problema e non come una risorsa: ricordiamo il caso del Belgio che ha votato nel 2003 la legge per la chiusura degli impianti nucleari entro i prossimi venti anni. Questo conferma che anche se la soluzione di stoccare tutti i rifiuti in appositi siti sotterranei è ancora la principale soluzione sostenuta a livello mondiale, questa non risponde in modo soddisfacente alla richiesta di sostenibilità dell'energia nucleare.

Con la nascita degli impianti di nuova concezione, del tipo sottocritico iniettato da un acceleratore, il dibattito internazionale ha ripreso vivacità e i fondi destinati allo sviluppo di 'facility' dedicate alla trasmutazione sono aumentati in tutto il mondo: attualmente in Europa ci sono 14 diversi progetti aperti e dal 2001, anno della 'roadmap' europea presieduta da C.Rubbia, 'Technical Working Group', collaborazioni stanno partendo su più fronti per unire le conoscenze maturate negli ultimi anni ed arrivare ad un progetto comune europeo (PDS-XADS e EUROTRANS).

Negli Stati Uniti contemporaneamente è partito il progetto che armonizza tutte le attività di ricerca: le linee guida sono scritte all'interno dell' 'Advanced Accelerator Application (AAA)' [6] che descrive gli scenari e le tipologie di reattori sottocritici iniettati di concezione americana, 'Accelerator Transmutation of Waste (ATW)'.

Insieme alla discussione sulla tipologia di impianto da progettare per arrivare al raggiungimento dell'obiettivo della trasmutazione, è di uguale importanza il contesto in cui tale progetto è inserito: il parco reattori e le nuove tecnologie da integrare nel ciclo del combustibile necessarie a realizzare veramente tale risultato. Non va dimenticata, infatti, la fattibilità economica e tecnologica: per contestualizzare seriamente l'applicazione dei reattori sotto-critici iniettati è stato introdotto lo scenario a *doppio strato*, o 'double-strata scenario', in questo concetto il plutonio di seconda generazione, non più utilizzabile in modo efficiente in reattori ad acqua o veloci, viene destinato, insieme agli attinidi minori, a reattori dedicati al bruciamento come gli ADS o gli ATW.

1.2 Obiettivi e Finalità della Tesi

L'obiettivo principale di questo lavoro di tesi è fornire le basi per la valutazione della capacità di bruciamento di un ADS industriale, con l'aiuto del programma di nuova concezione ALEPH 'A Monte Carlo Burn-Up Code', ancora sotto sviluppo presso il centro SCK-CEN a Mol (Belgio), che armonizza l'uso dei codici MCNPX e ORIGEN 2.2 per lo studio del burn-up del combustibile nucleare. Inserito nel più ampio contesto del progetto MYRRHA, in studio presso il dipartimento BR1 dello stesso centro SCK-CEN, questo lavoro mira a dare un contributo teso a colmare il divario tra teoria e pratica della trasmutazione.

Il progetto MYRRHA (Multi-purpose hYbrid Research Reactor for High-tech Applications) Accelerator Driven System per R&D da 350MeV e 50 MWth, pur presentandosi come una precisa tipologia di reattore, un reattore sottocritico iniettato, è stato sempre pensato e progettato con finalità di 'Material Testing Reactor (MTR)' in grado di rimpiazzare a breve il ruolo di primato europeo avuto nei trascorsi 40 anni dal maggiore impianto di ricerca attualmente funzionante a Mol e chiamato BR2. La scelta di investire in un ADS va vista sotto l'ottica della pressante necessità di avvicinarsi alla cosiddetta 'Generation IV', cioè all'uso di processi a fissione veloci, per dare soluzioni reali alla chiusura del ciclo del combustibile nucleare, in un contesto internazionale in cui la disponibilità di reattori di ricerca veloci su ampia scala sembra lontana. Per questo è stato pensato alla costruzione di un ADS come soluzione sicura e realizzabile, sulla base in massima parte di tecnologie esistenti, fornendo

campi di irradiazione ad alto flusso veloce ($\phi_{>0.75\text{MeV}} \approx 10^{15} \text{ n/cm}^2/\text{s}$) con cui far progredire lo studio dei materiali utilizzabili in futuro nei reattori veloci.

E' in questo contesto che il presente lavoro affronta le problematiche che stanno alla base della trasmutazione utilizzando un reattore sottocritico iniettato, prendendo quindi come punto di partenza le conoscenze accumulate in campo neutronico e computazionale nel progetto MYRRHA dal 1998, anno della sua nascita, ad oggi. In questo lavoro viene però presentata una nuova ipotesi di caricamento del core del futuro ADS industriale, elaborando così un'ipotesi di scenario evolutivo per il futuro del combustibile nucleare esaurito proveniente dal parco belga di reattori attualmente in funzione. Infatti, come verrà approfondito successivamente, il core del MYRRHA non verrà realmente caricato con MAs ma solo con MOX (30% wt. Pu) e ospiterà via via campioni di diverse tipologie di materiali tra cui matrici di MgO ricche di MAs e LLFP. In ogni caso, è importante sottolineare che l'efficacia del processo del 'partitioning and transmutation (P&T)' dipende soprattutto da:

- l'efficienza del partitioning, che in questo lavoro, per semplicità, assumeremo del 99.9%;
- il contenuto di attinidi minori (MAs) e di Pu nel core;
- la durata massima di ogni ciclo limitatamente al burn-up e alla reattività;
- i tempi per il raffreddamento, il 're-partitioning' e il 're-fabrication'.

Sarà soprattutto su questi aspetti di carattere generale che il nostro lavoro verterà. Per iniziare a colmare il divario tra teoria della trasmutazione ed applicazione pratica, la giustificazione principale è la differenza nella chiusura del ciclo nucleare tra questa soluzione e la scelta, così diffusa oggi, di non riprocessare il combustibile esaurito e di mandarlo direttamente al deposito. Per valutare l'efficacia di bruciamento nello scenario scelto a riferimento, è stato usato il concetto di radiotossicità. Per valutare il tempo necessario a raggiungere il 'safe storage', cioè un livello di radiotossicità del deposito paragonabile alla radiotossicità naturale, è necessario conoscere e concordare sulla definizione di radiotossicità e sulle metodologie usate per calcolare la radiotossicità naturale. Per questo motivo, il lavoro si compone di due grandi parti, finalizzate allo stesso risultato, ma concentrate la prima sull'effettiva capacità di trasmutazione di un ADS industriale, 600 MeV e 400 MWth, la seconda

sullo studio qualitativo e quantitativo dell'evoluzione del concetto di radiotossicità seguendo in particolare il ruolo svolto dall'ICRP durante gli anni e l'influenza di questa sulle leggi europee ed americane che regolamentano il rilascio di sostanze radioattive nell'ambiente. I risultati presentati sono in larga parte di carattere qualitativo anche perché i dati di partenza, cioè il vettore isotopico costruito sulla base del combustibile esaurito in uscita dopo un ciclo dal reattore, e sui quali è stato strutturato lo scenario evolutivo degli attuali LWR Belga, sono stati ottenuti facendo delle ipotesi semplificative: i dati provengono in realtà dal reattore più significativo, Doel 3, dell'intero parco di sette reattori a disposizione. Questo soprattutto perché se volessimo avere una visione più realistica dovremmo considerare, solo per quanto riguarda il Belgio, tre diversi elementi di combustibile (14×14 , 15×15 , 17×17), tre diverse altezze attive delle barrette di combustibile, cicli da 12 o 18 mesi, burn-up variabili tra i 33 GWd/tonHM e i 55 GWd/tonHM e fattori di carico variabili dallo 0.75 allo 0.98. Per di più due reattori, Doel 3 e Tihange 2 dal 1995 al 2005 hanno funzionato con cicli misti a UO_2 / MOX [7].

Per l'obiettivo che questo lavoro si è preposto, scegliere il più significativo fra i reattori belga ed usare il plutonio di prima generazione, sotto l'ipotesi di 'phase-out' non ha comportato grosse limitazioni in seno alle conclusioni raggiunte, come verrà mostrato più avanti.

1.3 Organizzazione della Tesi

Questo lavoro di tesi si compone di 7 capitoli.

Nel Capitolo 1 viene presentato brevemente il contesto internazionale e le premesse da cui trae giustificazione lo studio dell'efficienza di trasmutazione di un core ADS e la ricerca per la corretta definizione di radiotossicità del combustibile esaurito.

Nel Capitolo 2 vengono descritti, con più dettaglio, prima di tutto la composizione del combustibile irraggiato da trattare e le strategie di gestione attualmente proposte a livello europeo, americano e mondiale in generale. Poi maggiore approfondimento viene dedicato alla scelta della trasmutazione, alla fisica che è alla base del fenomeno, e il possibile impiego di reattori sottocritici iniettati per raggiungere l'obiettivo della chiusura del ciclo del combusti-

bile nucleare. La descrizione dettagliata del progetto MYRRHA, su cui gran parte dei nostri calcoli sono basati e attualmente in studio presso il centro di ricerca SCK-CEN di Mol, che ci ha ospitato per sei mesi, chiude la parte dedicata alla contestualizzazione del lavoro.

Il Capitolo 3 è descritto più nel dettaglio lo scenario in cui il presente studio è stato inserito, il ciclo nucleare belga. A partire dunque da una ricerca preliminare sulla situazione belga, siamo andati a esaminare nel dettaglio l'ammontare dei rifiuti nucleari prodotti sul territorio. L'analisi è stata fatta prendendo a riferimento il reattore di Doel-3 un PWR da 1000 MWe considerando un burn-up allo scarico di 50000MWd/toniHM. Nel capitolo sono descritte le scelte fatte per sviluppare lo studio della composizione isotopica del combustibile in uscita dal reattore ed i mezzi utilizzati, in particolare il codice ALEPH-1.1.2, interfaccia fra il codice MCNPX ed il Codice ORIGEN2.2. Nel capitolo si presentano i risultati in termini di evoluzione della composizione isotopica espressa in g/cm³ fino a 10⁸ anni sia nel caso di evoluzione di un singolo batch (dopo un irraggiamento di 4.5 anni nel reattore) sia nell'ipotesi della possibile accumulazione dello SNF durante l'intera vita del reattore, tenendo conto nel dettaglio dei tempi differenti di uscita dal reattore propri di ogni batch.

Il Capitolo 4 è dedicato alla definizione del concetto di radiotossicità, a partire dalla sua prima definizione fino a quelle attualmente riconosciute. Particolare interesse è stato rivolto all'evoluzione del concetto nelle varie edizioni dell'ICRP, 10 CFR e UNSCEAR, particolare attenzione è stata data anche al recepimento dei valori di radiotossicità da parte della legge belga. Parte importante di questo capitolo è stata la definizione del 'reference level'. Sono presentati inoltre in questo capitolo i risultati ottenuti, in termini di curve di radiotossicità, nell'evoluzione fino a 10⁸ anni dello SNF in uscita da un LWR con burn-up di 50 GWd/toniHM.

Il Capitolo 5 vengono descritti gli aspetti generali collegati al progetto di un ADS di taglia industriale portato avanti all'interno del '6th Framework programme' dell'EURATOM come punto di arrivo dell'attuale ricerca di fattibilità di un ADS, attualmente ancora collegata allo studio dei tre prototipi sperimentali di SCK-CEN, ANSALDO NUCLEARE e FRAMATOM. Il capitolo si conclude con una descrizione del modello MCNPX di ADS industriale assunta come punto di partenza per i calcoli sviluppati. In Appendice A, per completezza, verranno descritti più nel dettaglio i metodi utilizzati per la modellizzazione.

Il Capitolo 6 è dedicato alla presentazione dei risultati ottenuti dai vari calcoli che sono stati portati avanti, partendo dalla valutazione della capacità teorica di bruciamento di un ADS, in termini di radiotossicità, valutata avvalendosi dell'uso specifico di ORIGEN2.2. A seguito di questa valutazione nel capitolo è riportata una parte che riguarda l'ottimizzazione di alcuni parametri, quali la composizione isotopica del combustibile ed il numero di 'assemblies', per rispettare il valore di keff fissato a 0.97 (calcoli MCNPX). Il capitolo si conclude con la presentazione dei risultati ottenuti a seguito di vari cicli di irraggiamento all'interno dell'ADS, in termini di quantità e di radiotossicità. Per questa parte di irraggiamento ci siamo avvalsi dell'uso del codice ALEPH-1.1.2.

Il Capitolo 7 riassume i principali risultati raccolti ed ospita alcune idee per l'avanzamento futuro degli studi in questo settore su cui ancora molte energie andranno spese.

Capitolo 2

La Gestione dei Rifiuti Nucleari: Problematiche Collegate al Combustibile Esaurito

2.1 Composizione del Combustibile Esaurito in Uscita dagli Attuali Reattori

Uno degli ostacoli maggiori per la sostenibilità e l'accettabilità, da parte dell'opinione pubblica, della fonte di energia nucleare è la scarsa conoscenza di metodi e tecniche adeguate per il trattamento dei rifiuti nucleari a lunga vita, attualmente accumulati o sotto forma di combustibile esaurito estratto dal reattore ('Spent Nuclear Fuel' - SNF) o sotto forma di rifiuti ad alta attività ('High Level Waste'-HLW) originati dal riprocessamento del combustibile esaurito, principalmente a seguito di riciclo di Uranio e Plutonio. Per tanto, risulta importante indirizzare gli sforzi della ricerca in ambito nucleare al fine di trovare un'adeguata chiusura al ciclo del combustibile. Tale problema, però, non è di facile soluzione, soprattutto perché si porta seco una grande responsabilità rispetto alla presente generazione ma soprattutto perché le scelte fatte in questo momento, su breve scala temporale, andranno ad influire pesantemente su un cospicuo numero di generazioni future.

Molti Stati, come strategia di soluzione del problema, preferiscono scegliere l'opzione di

isolare i rifiuti radioattivi dalla popolazione e dall'ambiente confinandoli in *depositi geologici profondi*, scelta che comporta, comunque, un'accanita opposizione da parte dell'opinione pubblica a seguito della percezione del rischio associato a tale decisione. In effetti questa scelta, vista sotto un occhio critico e lungimirante, non risulta essere un'adeguata soluzione del problema, perché all'interno dello SNF e degli HLW sono presenti isotopi con tempi di decadimento che arrivano anche a qualche milione di anni. Tale scelta comporta effettivamente un rischio, vista l'impossibilità di garantire, su questa scala temporale (100000 anni-milione di anni), un adeguato isolamento dalla biosfera dei rifiuti radioattivi, seppure siano stati fatti grandi passi in avanti nello studio dei depositi: tecnologia mineraria, barriere ingegneristiche, matrici chimiche per gli HLW che riducono la solubilità e la migrazione dei rifiuti. Un altro fattore che non è possibile dimenticare in questa valutazione è il *fattore uomo*, da cui si è incapaci, causa l'imprevedibilità, di assicurare il deposito contro l'intrusione, volontaria o involontaria che sia, su scala temporale così lunga.

Attualmente sia in Europa (si veda ad esempio il caso della Svezia o della Svizzera) che in altre parti del Mondo sono in atto numerosi studi di fattibilità per i depositi geologici profondi, proponendo scelte ingegneristiche da sottoporre alle autorità di regolamentazione. Un esempio, particolarmente interessante per il suo stato di avanzamento, è il caso degli Stati Uniti, dove si prevede l'apertura del deposito geologico di Yucca Mountain, nello Stato del Nevada, a partire dal 2010, pur non avendo ancora determinato appieno gli standard ambientali finali per garantire la sicurezza della popolazione e delle generazioni future [8].

L'interesse verso la *sostenibilità*, intesa come la conservazione di risorse, la protezione dell'ambiente e la preservazione dell'abilità delle generazioni future di soddisfare ai propri bisogni è parte integrante dei 'goals' della prossima generazione dei reattori nucleari (Generation IV), attualmente sotto sviluppo tecnico. Inerentemente alla gestione dei rifiuti radioattivi, infatti, fra gli obiettivi della 'Generation IV' si trova ben specificato quanto segue: *«Sustainability-2: Generation IV nuclear energy systems will minimize and manage their nuclear waste and notably reduce the long term stewardship burden in the future, there by improving protection for the public health and the environment»* [9]

a conferma del fatto che il management adeguato dei rifiuti nucleari sia uno dei nodi caldi dell'industria nucleare oggi, su cui si stanno concentrando gran parte delle forze della ricerca.

Cercare il modo migliore di gestire i rifiuti radioattivi risulta infatti di estrema importanza ed urgenza sia per quei Paesi in cui si è deciso di non utilizzare più l'energia nucleare per la produzione di energia elettrica (*phase-out*), sia per poter pensare ad uno sviluppo sostenibile di tale fonte energetica, in quei paesi in cui la scelta è ricaduta nell'utilizzo continuo anche nei prossimi anni.

A causa della mancanza di risposte concrete da parte della strategia del *once-through* (direttamente in deposito), si è andato ad aprire ulteriormente il dibattito riguardo la gestione dei rifiuti radioattivi a lunga vita, rivolgendo l'interesse verso possibili tecniche di trattamento del combustibile, prima che questo vada a finire in deposito. Una particolare attenzione è stata rivolta alla tecnica della *trasmutazione* dei transuranici ('TRansUranic'-TRU) e dei prodotti di fissione a lunga vita ('Long Lived Fission Products'-LLFP), cioè alla possibile trasformazione degli isotopi a lunga vita in altri isotopi con tempi di decadimento inferiori (par. 2.3).

Dagli studi fatti emerge che l'unico modo di bruciare efficientemente i TRU è l'utilizzo della reazione nucleare di fissione, in reattori termici o veloci, dedicati o meno. Affinché però la trasmutazione sia una strategia fattibile, sarà necessario sviluppare tecniche adeguate per il riprocessamento dello SNF. Si parla infatti di *partitioning*, cioè della rimozione per via chimica di alcuni elementi responsabili della radiotossicità a lungo termine, plutonio ed attinidi minori, dai rifiuti radioattivi, in modo tale da inserirli all'interno di un tipo di combustibile opportunamente studiato per permettere il loro bruciamento nei LWR, o in altre tipologie di reattore, quali ADS o FR.

I processi combinati di 'partitioning and transmutation' (P&T) vorrebbero avere come fini ultimi la riduzione della quantità di radiotossicità, del volume degli HLW, del tempo necessario per il 'disposal' in un deposito geologico passando da tempi dell'ordine dei milioni di anni a tempi al massimo di alcune centinaia di anni (300-500 anni), aumentando cioè la capacità e l'accettabilità del deposito stesso e riducendo l'impatto sulle generazioni future. In tal senso per una adeguata chiusura del ciclo del combustibile nucleare sarà ancora necessario affiancare al 'partitioning' e alla trasmutazione l'utilizzo di depositi geologici controllati.

Attualmente per la strategia del ‘partitioning and trasmutation’ sono stati ben definiti i ‘goals’ principali, riportati qui di seguito [10]:

- riduzione del rischio associato con lo SNF su medio e lungo termine (>300 anni) attraverso una riduzione significativa della quantità di plutonio e attinidi minori,
- riduzione dell’intervallo di tempo richiesto per raggiungere il ‘*reference level*’ dell’inventary di radiotossicità attraverso il riciclo dei transuranici,
- diminuzione del volume dello SNF a seguito di separazione dell’uranio per permettere maggiore efficienza di storage e disposal.

Tale strategia però ancora in fase di ricerca e sviluppo (‘Research and Development’ - R&D), sia per quanto riguarda l’efficienza della trasmutazione, sia per quanto riguarda le tecniche di separazione chimica, perché porta con se ancora vari problemi tecnici a cui porre adeguata soluzione.

Prima dello spingersi a spiegare i vari scenari possibili di implementazione del P&T è bene avere un’idea delle quantità e delle tipologie di ‘waste’ che devono essere prese in considerazione.

Attualmente nel Mondo la capacità elettro-nucleare installata è di circa 350 GWe, suddivisibile approssimativamente in tre grandi parti, ciascuna di 100-120 GWe, tra USA, Unione Europea e resto del Mondo. [10] La quantità totale annualmente prodotta è di circa 10500 ton di metallo pesante (‘Heavy Metal’-HM) di SNF, tale quantità solo in parte sarà riprocessata per essere riutilizzata nei LWR sotto forma di MOX, perché la capacità industriale di riprocessamento annua non supera le 3900 tonHM/anno. Questo comporta necessariamente ad un accumulo dello SNF che dovrà essere gestito in sicurezza, in attesa di essere riprocessato o stoccato definitivamente, a seconda delle scelte politiche che ogni Paese ha fatto riguardo il ‘waste management’. A tal scopo è necessario, anche, prevedere adeguate infrastrutture per un ‘*safety interim storage*’. [10]

In particolare in Europa con 145 reattori, circa 125 GWe installati, si ha una produzione media annua di 2500 tonnellate di SNF, considerando un burn-up medio allo scarico di 50GWd/toniHM (il valore totale riportato non tiene conto della frazione di ossigeno presente nell’ossido [11]). Nelle 2500 ton/anno di SNF si ha all’incirca la produzione di 25 ton/anno

di plutonio, 3.5 ton/anno di attinidi minori (Np, Am, Cm) e 100 ton/anno di prodotti di fissione, di cui solo 3.1 ton/anno di LLFP.

Il valore corretto della quantità totale, e la rispettiva composizione dipendono principalmente, oltre che dalla composizione iniziale del combustibile, dall'energia generata da tale combustibile durante la permanenza nel reattore; una misura adeguata di tale energia è data dal burn-up allo scarico. L'aumento del burn-up allo scarico, porta lo SNF ad arricchirsi in plutonio ed in attinidi minori, aumentandone la radiotossicità a lungo termine e quindi il rischio per gli esseri viventi in caso tale materiale venga rilasciato nell'ambiente o usato non per fini civili.

Le frazioni percentuali dei vari elementi, preso lo SNF dopo 10 anni di refrigeramento dall'uscita da un PWR con burn-up medio allo scarico di 33 GWd/toniHM, sono così indicabili [3] :

- Uranio: 95.5 %,
- Prodotti di fissione stabili: 3.2 %,
- Plutonio: 0.8 %,
- FP a breve vita (Cesio e Stronzio): 0.2 %
- Attinidi Minori: 0.1 %
- FP a lunga vita (Iodio e Tecnezio): 0.1 %,
- altri FP a lunga vita: 0.1 %.

Allo scopo di chiarire meglio le quantità in gioco, in tabella (2.1), sono riportate per gli isotopi dei transuranici più significativi, le quantità in grammi relative ad 1 tonnellata di SNF. Nella terza colonna sono riportati i valori per SNF da LWR, con 40 GWd/ton, dopo 15 anni di refrigerazione e di decadimento [11]. Nella quarta colonna sono riportati i valori da noi calcolati in grammi su tonnellata di iHM, riferiti a combustibile da PWR arricchito al 4.3 % in U-235, con un burn-up allo scarico di 50 GWd/toniHM e considerati dopo 20 anni dall'uscita dal reattore. Tali valori sono quelli che sono stati assunti per portare avanti il presente lavoro.

Nuclidi	half-life (anni)	Roadmap ADS *	Nostri risultati**
		Quantità (g/ton)	Quantità (g/ton)
Np-236	22.5(ore)	5.3E-04	9.55E-04
Np-237	2.1E+06	6.5E+02	7.58E+02
Pu-238	86	2.3E+02	3.07E+02
Pu-239	24.4E+03	5.9E+03	6.25E+03
Pu-240	6.58E+03	2.6E+03	2.93E+03
Pu-241	14.4	6.8E+02	6.94E+02
Pu-242	3.79E+05	6.0E+02	8.71E+02
Pu-244	8.0E+07	4.2E-02	7.21E-02
Am-241	430	7.7E+02	1.16E+03
Am-242m	141	2.5E+00	2.01E+00
Am-243	7.4E+03	1.4E+02	2.16E+02
Cm-242	0.446	5.9E-03	4.86E-03
Cm-243	28	4.3E-01	4.32E-01
Cm-244	18	3.1E+01	4.40E+01
Cm-245	8.5E+03	2.3E+00	6.80E+00
Cm-246	5.5E+03	3.2E-01	7.55E-01
Cm-247	1.56E+07	3.7E-03	1.22E-03
Cm-248	3.48E+05	2.4E-04	9.08E-04

* Risultati ottenuti per LWR-1000 MWe caricato con UO₂ con burn-up di 33000MWd/tonIHM dopo 15 anni di decadimento [11]

** Risultati ottenuti per PWR-1000 MWe caricato con UO₂ al 4.3% con burn-up di 50000MWd/tonIHM dopo 20 anni di decadimento

Tabella 2.1: Transuranici presenti in una tonnellata di combustibile SNF da LWR

Oltre ai transuranici, che forniscono il maggiore contributo alla radioattività a lungo termine dei rifiuti nucleari, ed ai prodotti di fissione a vita breve (in particolare Cs-137, Sr-90), che dominano il contributo in radiotossicità per i primi 300 anni, bisogna tener conto dei prodotti di fissione a lunga vita, come Tc-99 (vita media 2.12×10^5 y) e I-129 (vita media 1.7×10^7 y). Il contributo alla radiotossicità dei LLFP è piccolo rispetto a quello fornito dagli actinidi e dai FP a breve vita, ma è necessario considerarli con attenzione perché presentano un'elevata solubilità e dunque la facilità di essere trasportati fino all'ambiente umano, risultando pericolosi per le forme di vita. Considerando ancora le quantità relative ad una tonnellata di SNF si ottiene (tabella (2.2)):

LLFP	half-life (anni)	Report NEA-OECD [3] Quantità (g/ton)	Nostri risultati * Quantità (g/ton)
I-129	1.7E+07	2.0E+02	2.67E+02
Tc-99	2.12E+05	8.0E+02	1.13E+03
Zr-93	1.5E+06	7.0E+02	1.06E+03
Cs-135	3E+06	3.0E+02	6.61E+02
SLFP	half-life (anni)	Quantità (g/ton)[3]	Quantità (g/ton)
Cs-137	30.0	1.0E+03	1.12E+03
Sr-90	28.1	7.0E+02	4.78E+02

* Risultati ottenuti per PWR-1000 MWe caricato con UO₂ al 4.3% con burn-up di 50000MWd/tonIHM dopo 20 anni di decadimento

Tabella 2.2: Prodotti di fissione presenti in una tonnellata di SNF da LWR

Oltre allo SNF prodotto, bisogna considerare nella stima della quantità totale di rifiuti radioattivi da trattare anche i rifiuti ad alta attività, HLW, che derivano dalle operazioni di riprocessamento passate ed attualmente in opera. Tali operazioni sono state sviluppate per rimuovere il plutonio dallo SNF, nell'ottica del riutilizzo come combustibile, per fini civili. Per quanto riguarda l'uso civile del plutonio riprocessato, si considera l'utilizzo di questo all'interno di un tipo di combustibile ad ossidi misti (MOX), U e Pu, da utilizzare, in opportune percentuali, per gli attuali LWR al posto dell'UO₂ arricchito, nonché per la messa in opera dei reattori veloci attualmente sotto studio (Generation IV) ma non di imminente

messa in esercizio. Il livello di radioattività presente negli scarti del riprocessamento è abbastanza differente da quella relativa allo SNF, basti pensare alla scarsa quantità di plutonio e uranio rimasti (circa 0.1%), nonché al fatto che alcuni prodotti di fissione si sono volatilizzati durante il processo chimico di separazione, ed in grande parte emessi in aria o acqua dall'impianto di riprocessamento stesso (es. I-129) [8].

Le tecniche di riprocessamento usate a tal fine possono essere suddivise in due grandi categorie: *aqueous* e *dry*. I processi *umidi* ('aqueous'), pensati per la separazione dei radionuclidi presenti in combustibile sotto forma di ossido, prevedono l'utilizzo di un acido per la dissoluzione del materiale, controllando, poi, la tendenza a reagire degli elementi da estrarre con la generazione di differenti stati di ossidazione; l'estrazione risulta dunque possibile, noto lo stato di ossidazione raggiunto, aggiungendo un agente organico come estraente, es. tributilosfato. I processi *secchi* ('dry'), invece, sono stati pensati per radionuclidi presenti all'interno di combustibile metallico, ed utilizzano l'elettrolisi ed i differenti potenziali chimici dei vari elementi per permetterne l'estrazione dei radionuclidi interessati.

A livello industriale il più utilizzato è il processo così detto PUREX (Plutonium-URanium EXtraction), che utilizza come solvente l'acido nitrico, raggiungendo un'efficienza di separazione di 99.9%. Questa breve escursione rispetto le tecniche di separazione mostra che, nel caso si voglia implementare la trasmutazione degli attinidi minori, sarà necessario cercare processi chimici adeguati al 'partitioning' degli attinidi minori, ancora non ben sviluppati per essere implementati su scala industriale; come esempio di questi processi, a livello sperimentale, può essere citato il TRUEX (TRansUranic EXtraction), sviluppato nel 1980 dall'Argonne National Laboratory-ANL, che permette la separazione di americio e curio dai rifiuti liquidi ad alta attività, originati dalla produzione di plutonio per bombe nucleari; questo processo utilizza un agente estrattivo organico a base di fosforo (grande affinità chimica con Am, Cm e lantanidi).

A questo punto è bene ricordare che per l'implementazione della trasmutazione, con separazione isotopica d'obbligo, sarà necessaria una seria valutazione del rischio potenziale di proliferazione posto dallo sviluppo del P&T come parte integrante dell'investigazione e della valutazione di fattibilità di questa strategia. Studi inerenti a tale valutazione sono portati avanti dall'International Atomic Energy Agency-IAEA [10].

Anche il presente lavoro è legato alla strategia del P&T, andando a studiare, seppure in maniera abbastanza semplificata, le potenzialità della trasmutazione, implementata attraverso l'uso di un 'accelerator driven system-ADS', andando a valutare i bilanci di massa dei transuranici prima e dopo il processo di trasmutazione e soprattutto valutando l'evoluzione della radiotossicità su diverse scale temporali.

Per quanto riguarda i dati utilizzati, il presente studio prende in considerazione l'industria elettronucleare belga, che con 7 reattori (PWR) in esercizio, per un totale di circa 5800 MWe installati, riesce a coprire il 40% del fabbisogno energetico nazionale. Nel 2003, comunque, il Governo Belga ha deciso la *phase out* dall'energia nucleare, seppur vincolando tale scelta al rispetto del Protocollo di Kyoto e all'autosostentamento energetico del Paese. In caso però che questa decisione non venga riaperta sarà necessario stimare l'ammontare dei rifiuti radioattivi accumulati fino al 2025, anno in cui anche l'ultimo dei 7 reattori sarà fermato dopo 40 anni di esercizio. Al fine di trovare l'ordine di grandezza, e non il valore preciso, delle quantità di waste che il Belgio dovrà trattare, è possibile fare le seguenti semplificazioni:

- il totale dei 6000 MWe nucleari installati, che potremmo suddividere in 6 reattori da 1000 MWe ciascuno,
- 50 anni di esercizio per ogni impianto (una media tra la vita media di un reattore 40 anni, e la strategia del PLEX, cioè l'allungamento del periodo di esercizio dell'impianto fino ai 60 anni),
- 50 GWd/ ton burn-up medio allo scarico
- fattore di carico di 0.85
- combustibile UO₂, con arricchimento del 4.3% in U-235.

A partire da questo schema, preso un PWR da 1000 MWe con rendimento dello 33%, e considerando un tempo di permanenza nel reattore del combustibile pari a 4.5 anni (suddiviso in cicli di 1.5 anni), per raggiungere il burn-up di 50 GWd / ton, è possibile determinare, a regime, quante tonnellate di metallo pesante saranno estratte ogni ciclo (1.5 anni).

$$P_{th} = \frac{P_e}{\eta} = \frac{1000}{0.33} \simeq 3000 MW_{th}$$

$$Q_{HM} = \frac{d \cdot f \cdot P_{th} \cdot l_c}{burn - up} = \frac{365 \cdot 0.85 \cdot 3.00 \cdot 1.5}{50} = 27.9tHM/1.5anni. \quad (2.1)$$

Dove con il simbolo d indichiamo i giorni/anno, con f il fattore di carico del reattore, con P_e e P_{th} rispettivamente la potenza elettrica e termica espresse in GW, e con l_c la lunghezza del ciclo cioè ogni quanto tempo viene estratto il combustibile esaurito dal reattore. Noto questo si ricava semplicemente che le tonnellate di metallo pesante prodotte ogni anno hanno sono 18.6 ton/anno, tali da portare a fine vita ad aver accumulato circa 930 tonHM/reattore per un totale stimato su tutto il panorama belga di 5580 tonnellate totali di HM.

In questa stima approssimativa non abbiamo tenuto in considerazione le quantità di combustibile che sono state riprocessate per la produzione di MOX da utilizzare come combustibile negli impianti di Doel-3 e Tihange-2, tra il 1995 ed il 2005, e nemmeno dei rifiuti generati da questo tipo di combustibile. Per avere una stima più adeguata delle quantità di rifiuti radioattivi presenti sul territorio belga, è possibile ricavare informazioni dalla ONDRAF-NIRAS che come ente per la gestione dei rifiuti nucleari belga ne ha fatto un inventario dettagliato, tenendo conto oltre ai 7 reattori di potenza, anche di tutti gli altri impianti che utilizzano sostanze radioattive come i due impianti di fabbricazione del combustibile, Belgonucléaire (MOX), e Franco-Belge de Fabrication de Combustible International (UO₂), la centrale di trattamento dei rifiuti (Belgoprocess), la 'facility' per il riprocessamento (Eurochemic) ora in decommissioning dopo lo 'shut-down' del 1974, gli impianti di ricerca presso SCK-CEN di Mol (BR-1, BR-2 e BR-3), la 'facility' di produzione dei radioisotopi (Institut des RadioElements), le Università, nonché l'industria farmaceutica e chimica.

Note le quantità in gioco, rimangono da affrontare i vari scenari di 'waste management' proposti a livello internazionale, entrando poi nel dettaglio sulla fisica della trasmutazione (par. 2.3), usata come possibile mezzo per il trattamento dei rifiuti. Prima, però, di addentrarci in questi aspetti, ci è sembrato utile, per chiarire meglio i termini utilizzati, riportare una breve descrizione dei rifiuti nucleari alla luce delle classificazioni fatte a livello internazionale (IAEA [12]) e nazionale (caso belga-ONDRAF-NIRAS).

2.1.1 Classificazione dei Rifiuti Radioattivi

Precedentemente abbiamo parlato di potenziali strategie di soluzione al problema degli HLW e dello SNF, indicando soprattutto la necessità di ridurre i tempi di gestione di questi rifiuti.

E' opportuno, però, specificare meglio che cosa si intende per High Level Waste-HLW, andando a classificare, in modo più adeguato, le varie tipologie di rifiuti nucleari prodotti dai reattori di potenza e da tutte le altre applicazioni dei materiali radioattivi (industria, ricerca e medicina).

La necessità, da parte dell'*International Atomic Energy Agency-IAEA*[13][14][12], di dare una classificazione dei rifiuti nucleari riconosciuta a livello internazionale, nasce dal fatto che ogni Paese, nel proprio quadro legislativo, ha fornito una propria classificazione, generando discrepanze fra un paese e l'altro, anche perché nel Mondo si è di fronte a una grande varietà di differenti 'facilities' da cui i rifiuti vengono prodotti con varie concentrazioni e forme chimiche, e si hanno varie alternative per il trattamento e per il condizionamento prima dello storage definito, ed opzioni differenti per lo stoccaggio in sicurezza di questi rifiuti nel periodo intermedio.

La IAEA, a partire dagli anni '70, ha fornito vari tipi di classificazione, sempre più dettagliate a seguito delle maggiori conoscenze sviluppate nel campo delle sostanze radioattive e del loro effetto sull'uomo.

Inizialmente sono state definite tre classi di rifiuti:

High Level Waste-HLW: in questa categoria troviamo i rifiuti radioattivi liquidi che nascono dal riprocessamento chimico del combustibile irraggiato, contenenti principalmente prodotti di fissione e attinidi. Rientrano in questa categoria, anche altre tipologie di rifiuti con un livello radioattivo tale da generare significative quantità di calore attraverso il proprio decadimento radioattivo. In caso il combustibile irraggiato (SNF) venga considerato completamente un rifiuto farà parte anch'esso di questa categoria [13][14].

Intermediate Level Waste-ILW: in questa categoria troviamo rifiuti che per la propria radioattività richiedono schermature durante il trattamento od il trasporto ma che non necessitano di sistemi aggiuntivi per la rimozione del calore prodotto tramite il proprio decadimento [13][14].

Low Level Waste-LLW: in questa categoria sono presenti i rifiuti che non richiedono schermature durante il normale trattamento o trasporto [13][14].

Data la struttura troppo schematica che racchiude varie tipologie differenti di rifiuti all'interno dei rifiuti a media e bassa attività, la IAEA ha indicato come differenziare ulteriormente i rifiuti fra «short lived waste», «long lived Waste» e «alpha bearing waste». I primi sono quei rifiuti radioattivi che decaderanno ad un livello di attività, considerato accettabilmente basso dal punto di vista radiologico, in un periodo di tempo in cui i controlli amministrativi possono essere previsti. I rifiuti radioattivi a lunga vita, invece, sono quei 'waste' che nello stesso periodo di tempo degli 'short lived waste' non decadono al di sotto di un livello di attività tale da poter essere trascurato. Per quanto riguarda poi gli 'alpha bearing waste' ci si riferisce a rifiuti che contengono uno o più α emettitori (generalmente attinidi) in quantità sopra i limiti accettabili, per essere considerati trascurabili, definiti dal corpo di regolamenti dati dal ciascun paese.

Questa classificazione è stata per anni abbastanza utile a livello internazionale, ma manca in alcuni parti importanti, soprattutto per quello che riguarda chiari collegamenti con gli aspetti di sicurezza legati al management dei rifiuti radioattivi (es. 'disposal' e riprocessamento). Per colmare queste limitazioni IAEA ha proposto un nuovo sistema di classificazione [12] che affianca, ai caratteri qualitativi già presenti, alcuni aspetti quantitativi, quali i parametri radiologici, i ratei di dose, i livelli di attività, ed altro. Inoltre sono aggiunte per ogni categoria anche indicazioni inerenti il management per uno stoccaggio in sicurezza. Questo nuovo sistema di classificazione prevede ancora la divisione dei rifiuti in tre classi:

- rifiuti contenenti una così bassa concentrazione di radionuclidi che possono essere esentati dal sottostare al controllo delle regolamentazioni nucleari più restrittive, ma in accordo con livelli di sicurezza per la popolazione forniti dalle rispettive normative, ad esempio tali da permettere l'indicazione di rifiuti con rischio radiologico associato negligibile (*Exempt waste-EW*)
- rifiuti contenenti un quantitativo di materiale radioattivo tale da dover garantire la protezione dei lavoratori e della popolazione per un determinato periodo di tempo (breve o lungo che sia)(*Low and Intermediate level waste-LILW*). In questa classe sono stati racchiuse varie tipologie di rifiuti radioattivi, a partire da quelli che richiedono schermature e non refrigerazione fino a quelli che richiedono periodi di refrigerazione. A

sua volta questa classe verrà ulteriormente suddivisa in due parti (*Short lived waste, LILW-SL, Long lived waste, LILW-LL*)

- rifiuti che contengono un così alto livello di materiale radioattivo da necessitare di un isolamento dalla biosfera, utilizzando ad esempio un deposito geologico profondo, per un lungo periodo di tempo. Tali rifiuti richiedono sia schermature che refrigerazione. (*High level waste-HLW*)

I principi della classificazione sono rimasti gli stessi ma, allo stato attuale delle conoscenze è possibile fissare anche valori quantitativi di passaggio fra le varie classi. Tali valori sono fissati oltre che indicativamente dalla IAEA, dagli organi di regolamentazione di ogni Stato. I livelli quantitativi fissati sono riferiti a rifiuti radioattivi solidi, generati, per facilitarne il trasporto, stoccaggio e ‘disposal’, a seguito del trattamento e del condizionamento degli effluenti liquidi in uscita dal riprocessamento, utilizzando ad esempio la vetrificazione (matrice di boro-silicato) come tecnica di condizionamento.

I valori quantitativi di contorno per ogni classe sopra indicata sono riferiti soprattutto ai tassi di dose e alla potenza termica fornita a seguito del decadimento radioattivo:

- **Exempt Waste:** livelli di attività al di sotto dei livelli di autorizzazione che portano a valori di dose annua per i membri della popolazione al di sotto di 0.01 mSv annui. Nessuna restrizione radiologica per il ‘disposal’.
- **Low and Intermediate Level Waste:** livelli di attività al di sopra dei livelli di autorizzazione ma con potenza termica al di sotto di circa $2kW/m^3$
 - **Short Lived Waste:** basso livello di concentrazione di radionuclidi a lunga vita, limitazione di 4000Bq/g per un singolo package per α emettitori a lunga vita, ma per un valore medio massimo di 400Bq/g. Per il ‘disposal’ sono indicati depositi superficiali o geologici.
 - **Long Lived Waste:** concentrazioni di radionuclidi a lunga vita che superano i valori limite dati nel caso di Short lived waste. Il ‘disposal’ è indicato in un deposito geologico profondo.

-
- **High Level Waste:** potenza termica al di sopra di $2kW/m^3$ e concentrazioni di radionuclidi a lunga vita che superano i valori indicati per i rifiuti classificati come 'Short lived waste'. Deposito geologico profondo.

A partire da questa base, fornita dall'IAEA, ogni paese è andato ad implementare i propri regolamenti legislativi.

Prendendo il caso specifico del Belgio, è possibile trovare due tipologie differenti di classificazione dei rifiuti nucleari proposte dall'organismo nazionale che si occupa di rifiuti radioattivi, *Organisme National des Déchets Radioactifs et des matières Fissiles enrichies*-ONDRAF/NIRAS. La prima è riferita alla *gestione a breve termine* ove i criteri di classificazione sono legati principalmente al management ed al trasporto dei rifiuti. Tali criteri riguardano, infatti, il livello di attività del rifiuto, il tipo di emettitore presente e il livello di contaminazione superficiale che ne può derivare. Su questa base si distinguono tre categorie:

- **BASSA ATTIVITA':** livello di dose da contatto inferiore a 5 mSv/ora. Il loro trattamento non necessita l'utilizzo di schermature. Tali rifiuti possono provenire dall'industria nucleare per la produzione di elettricità, dalle applicazioni mediche, dall'agricoltura e dall'industria in genere.
- **MEDIA ATTIVITA':** livello di dose da contatto nell'intervallo fra 5 mSv/ora e 2 Sv/ora. Sono necessarie schermature per il loro trattamento che infatti viene fatto grazie all'utilizzo di macchine comandate a distanza.
- **ALTA ATTIVITA':** livello di dose da contatto superiore a 2 Sv/ora. Necessitano di schermature e di refrigerazione. In questa categoria si trovano quei rifiuti definiti secondo IAEA come HLW.

La seconda classificazione adottata è riferita alla *gestione a lungo termine*, con attenzione, questa volta, data al deposito, superficiale e geologico che sia. Questa classificazione risulta essere in accordo con quella riportata precedentemente e fornita dalla IAEA. I criteri dunque su cui di base sono il livello di attività e il tempo di dimezzamento dei radionuclidi presenti. Queste due caratteristiche sono state scelte perché permettono di determinare meglio le soluzioni da mettere in atto per il trattamento dei 'waste' su grande scala temporale.

Anche questo secondo caso prevede tre gruppi differenti di suddivisione dei rifiuti, si parla infatti di:

- **Categoria A:** rifiuti condizionati con concentrazioni di attività sufficientemente basse e vita media breve (minore di 30 anni) da poter essere stoccati in depositi superficiali. In questo gruppo rientrano anche rifiuti contenenti α emettitori che devono essere tenuti isolati dall'uomo e dall'ambiente per un periodo di tempo di 300 anni o fino a che la propria attività si sia ridotta di un fattore 1000.
- **Categoria B:** sono rifiuti a bassa e media attività ma contaminati da α emettitori a lunga vita con concentrazioni tali da non poter essere messi in categoria A, ma anche tali da produrre una quantità trascurabile di calore da metterli in categoria C. Tali rifiuti contengono anche β e γ emettitori, necessitando dunque di schermature durante il trasporto.
- **Categoria C:** qui si raggruppano tutti i rifiuti condizionati di alta attività contenenti grandi concentrazioni di β e γ emettitori a breve vita e α emettitori a lunga vita. La produzione di calore è superiore a $2kW/m^3$.

In aggiunta a queste tre categorie la ONDRAF/NIRAS ne affianca anche una quarta, la **Categoria R** specifica per i rifiuti contaminati da Radio prodotti durante le estrazioni di uranio dalle miniere. radiotossicità dei rifiuti a lungo termine.

2.2 Strategie di Gestione del Combustibile Nucleare

Quando si parla di gestione dei rifiuti radioattivi, in particolare di quelli provenienti dal combustibile esaurito, le strategie possibili sono in prima battuta di due tipi: a ciclo *aperto* o a ciclo *chiuso*. In entrambi i casi con la parola *ciclo* si intende tutto il percorso e le trasformazioni cui va incontro il minerale da cui si estrae l'uranio per arrivare, prima, sotto forma di pellet, più o meno arricchita in U-235, al core del reattore e per ritornare, poi, al sottosuolo da cui è stato ottenuto. In particolare, il processo di miniera è responsabile del 95% del volume di rifiuti radioattivi di tutto il ciclo e contiene già in partenza un gran numero di radioisotopi a lunga vita. L'uranio naturale è composto per il 99.284%at. di U-238, 0.711%at. di U-235

e tracce di U-234. Di questi isotopi solo l'U-235 è fissile e quindi va incontro a fenomeni di fissione anche con neutroni ad energia inferiore; per questo molto spesso il combustibile nucleare prima di essere impiegato nei reattori di potenza ha bisogno di un trattamento di arricchimento per accrescere la propria percentuale nell' isotopo 235 (valore medio 3-5% nei più diffusi reattori ad acqua leggera LWR). Questo processo va considerato parte del ciclo del combustibile nucleare, soprattutto, nel computo dei rifiuti nucleari di scarto prodotti.

Nell' ipotesi di ciclo aperto il combustibile esaurito viene stoccato in deposito senza avanzare in un secondo riutilizzo. Nel caso di ciclo chiuso, invece, la strategia è quella di riconsegnare all'ambiente un rifiuto più simile possibile al minerale di partenza (da qui la necessità di definire un livello di riferimento o reference level) dopo averne valorizzato in primo luogo il contenuto di Pu-239 attraverso riprocessamento chimico (PUREX).

La maggior parte dei reattori attualmente in funzione sta operando con la più semplice delle due soluzioni di gestione: stoccare tutto lo SNF scaricato dal reattore, dopo un eventuale 'interim storage' e condizionamento, in un deposito geologico profondo ('once-through scenario').

Come già accennato brevemente questa strategia comporta una serie di problematiche che ne fanno cercare una soluzione alternativa: è in questo contesto che si presenta interessante il confronto tra possibili soluzioni alternative o già esistenti, come ad esempio il riciclo in reattori ad acqua leggera (MOX-LWR), o ancora da realizzare appieno, come nel caso della trasmutazione in campi di flusso neutronico veloce.

Un aspetto comunque fondamentale di qualsiasi delle strategie che si vanno a delineare nel panorama scientifico internazionale è che ognuna di esse produce rifiuti altamente radioattivi (HLW) e che per ognuna vanno valutati sia gli aspetti positivi che negativi lungo tutto il ciclo del combustibile nucleare.

2.2.1 Il Ciclo 'Aperto'

Attualmente sono numerosi gli stati che stanno progettando e perfezionando depositi geologici profondi. A livello internazionale l'esempio più significativo è quello di Yucca Mountain negli Stati Uniti. Proprio gli Stati Uniti hanno ufficialmente comunicato che la strategia scel-

ta per la gestione dei rifiuti radioattivi, e in particolare degli HLW, è lo stoccaggio in un deposito nazionale, dopo averli opportunamente condizionati.

In particolare si parla di deposito *profondo* in presenza di rifiuti altamente radioattivi (Categoria C) tra cui quindi compare anche il combustibile esaurito. Una delle possibilità per stoccare lo SNF esaurito è quella di condizionarlo diluendolo in una matrice solida di boro-silicato (es. caso svedese); un'altra possibilità è quella di isolarlo tale e quale in un involucro di acciaio e cemento da spedire al deposito profondo [15]. Riassumiamo, ora, gli aspetti che nel dibattito scientifico internazionale fanno di questa pratica diffusa una soluzione troppo semplificata e, soprattutto, penalizzante per le generazioni future:

- accumulo di sostanze fortemente radioattive in grado di ritornare ai livelli della radioattività naturale solo dopo un tempo superiore ai 100,000 anni;
- impossibilità di garantire l'effettivo confinamento degli stessi rifiuti per un tempo così lungo a cui si aggiunge l'impossibilità di stoccarne grossi quantitativi nello stesso deposito che porta alla necessità di realizzare più siti dislocati in diverse parti del paese [16];
- scarso utilizzo delle risorse naturali limitate non inserito in un contesto internazionale di sviluppo economico sostenibile.

Esistono ad oggi una serie di strategie di sviluppo di questo scenario che potrebbero risolvere alcuni dei punti in sospeso: per esempio lavorare con più alti burn-up allo scarico comporta minori volumi di rifiuti e minore calore di decadimento per unità di energia prodotta [17]. Di contro, però, va ricordato che ciò non aiuta ad un migliore sfruttamento delle risorse di uranio visto i maggiori arricchimenti di cui necessita ed è limitato dalle prestazioni del combustibile stesso sottoposto a prolungati ed intensi campi di radiazioni.

In questo settore di particolare efficacia potrebbe essere la realizzazione di combustibile sferoidale compatto Pu-Th, tipo TRISO, da impiegare in reattori a gas ad alta temperatura; questi reattori, con burn-up teorico di 800,000 MWd/toniHM, potrebbero risolvere anche il problema della gestione degli attini minori e dello stoccaggio a lungo termine degli HLW sempre all'interno del once-through scenario.

2.2.2 Il Riciclo del Plutonio e la Trasmutazione dei MAs: Confronto tra Diverse Strategie di Chiusura del Ciclo del Combustibile

Di contro alla possibilità di stoccare il combustibile esaurito così come esce dal reattore, rimane la possibilità di riprocessarlo e di cambiar quindi la composizione chimica dei rifiuti effettivamente spediti al deposito. L'insieme dei processi chimici che rendono possibile la separazione dei singoli radioisotopi viene spesso chiamato 'partitioning'. Tutto questo assume fondamentale importanza se la tecnica del riprocessamento è unita alla volontà di ridurre il volume dei rifiuti ad alta radioattività da stoccare nel deposito profondo.

In particolare, l'uranio, che occupa la maggior parte del volume dello SNF, è un isotopo dalla bassa radioattività e, se separato dal resto, stoccabile come rifiuto di Categoria B o reinserito nel circuito di produzione del combustibile. Il plutonio, che è circa l'1% del totale può essere usato come combustibile per qualsiasi tipo di reattore e reintegrato anch'esso nel ciclo. Per quanto riguarda la restante parte del combustibile nucleare, una volta separati i prodotti di fissione propriamente detti, solo i prodotti di fissione a lunga vita (al primo posto Tc-99 e I-129 perché fortemente solubili) e gli attini minori, cioè lo 0.2% dello SNF, necessitano veramente di essere destinati al deposito geologico profondo.

Di certo però la strategia del 'partitioning', pur riducendo il numero di depositi profondi e assicurando forme chimicamente più stabili, da sola non risponde in modo soddisfacente al problema della radioattività a breve termine che, infatti, fino a qualche decina d'anni dopo lo spegnimento del reattore è fortemente influenzata dal contributo di Cs-137 e Sr-90, ma neppure assicura nel lungo termine contro il rilascio nell'ambiente dei radioisotopi a lunga vita, e lascia inutilizzate le residue potenzialità energetiche del combustibile [17].

Per questo negli ultimi anni si è delineata la necessità di dare risposte concrete nella direzione della chiusura del ciclo del combustibile nucleare ed il dibattito internazionale si è acceso sulle possibilità a lungo e a medio termine di ridurre la quantità totale di radioisotopi a lunga vita attraverso l'utilizzo delle tecnologie ad oggi disponibili e conosciute. In tabella (2.3) vengono schematizzate le diverse possibilità su cui, attualmente, sembra concentrarsi l'attenzione degli scienziati impegnati in questo settore.

<i>Caratteristiche del sistema</i>	<i>Soluzioni possibili</i>
Spettro neutronico	veloce, termico, una combinazione dei due
Tipo di refrigerante	acqua, gas (CO ₂ , He), metalli liquidi (Pb, Pb-Bi, Na)
Tipologia di combustibile	metallico, ossido,
Composizione del combustibile	senza fertile, Th, UO ₂ (MOX)
Sorgente di neutroni	critica, iniettata (ADS)
Ciclo del combustibile	Once-Through, Recycling
Nuclidi da trasmutare	Pu, Pu + MAs, Pu + MAs + LLFPs

Tabella 2.3: Possibili strategie per realizzare la trasmutazione

Riutilizzo del Plutonio in reattori ad acqua-LWR

Prima tra le possibilità è quella di convertire i reattori oggi più diffusi sul territorio mondiale, cioè i reattori ad acqua leggera (LWR), per una migliore gestione del problema degli HLW. In questo caso il plutonio separato dal combustibile esaurito viene riutilizzato come combustibile nella tecnologia degli ossidi misti di UO₂-PuO₂ (MOX). In questa strategia gli attinidi minori (MAs) sono separati alla fine di ogni ciclo e mandati al deposito geologico, con l'ulteriore limitazione che l'uranio scaricato non venga più riutilizzato.

La massa di U+Pu caricati nel core è di 2.0425 ton/TWhe mentre la massa di prodotti di fissione è dell'ordine di 0.125 ton/TWhe [3]. Il contenuto medio di plutonio è fissato a rimanere al 10% e, perciò, U-235 deve essere aggiunto per permettere la condizione di criticità. Il burn-up ideale si aggira intorno ai 60.000 MWd/toniHM.

Il computo reale della produzione di MAs contro un bruciamento maggiore di plutonio si gioca al variare del rapporto di moderazione ed è ad esso direttamente proporzionale. In figura (2.1) vengono schematizzati le diverse trasformazioni cui va incontro il combustibile, viene indicato con $M(\text{Pu})^{in}$ la Massa di plutonio caricato; Pu^{av} il Contenuto medio di plutonio nel core e con $\text{LOSS} = 0.1\%$ le perdite.

E' attualmente in studio la possibilità di riciclare anche gli attinidi minori come parte del combustibile in ossidi misti (MOX) da aggiungere al contenuto di plutonio in reattori ad acqua in pressione del tipo PWR. In particolare sono considerate tutte le diverse possibilità di combinazione con Pu+Np, Pu+Np+Am, Pu+Np+Am+Cm; in ogni caso il contenuto totale

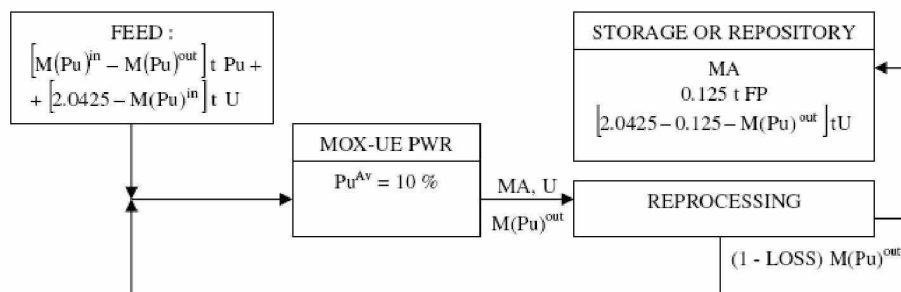


Figura 2.1: Schema per il riciclo nei LWR di Pu o di PU + MAs.

di transuranici deve essere compreso entro il 10% del totale. A fronte di una riduzione complessiva nella produzione di MAs allo scarico, il consumo totale di plutonio viene, però, drasticamente ridotto dai 56 kg/TWh ai 43 kg/TWh in presenza di Np, ai 20 kg/TWh con Np e Am, fino ad un consumo nullo in caso di riciclo di NP, Am e Cm [8]. Di contro vanno, anche, menzionati tutti gli aspetti negativi legati alla sicurezza, dati dalla riduzione dei feedback intrinseci, come il coefficiente doppler di risonanza, e del numero di neutroni ritardati.

Trasmutazione in Reattori Veloci

La seconda grande possibilità che si presenta per la chiusura del ciclo del combustibile è quella di prevedere la conversione del parco mondiale da reattori termici a reattori veloci. Questo scenario, previsto e discusso nel contesto della ‘Generation IV’, cioè della nuova generazione di impianti in grado di rispondere alle molteplici problematiche non risolte dai reattori attualmente in commercio, dovrebbe raccogliere le fila dei prototipi di ‘fast reactors’

più significativi costruiti nel mondo nel corso degli ultimi anni, tra cui ricordiamo il reattore francese Phenix, da 250 MW, e i due reattori, entrambi nei territori dell'ex Unione Sovietica, in funzione e caricati ad uranio naturale mediamente arricchito [8].

Attualmente per realizzare la trasmutazione del plutonio e degli attinidi minori (MAs) in reattori veloci, confrontabili con gli esistenti reattori ad acqua, esistono due diverse tipologie di impianto:

- reattori veloci al sodio da finalizzare principalmente al bruciamento di Pu (o Pu + MAs), in cui il combustibile è composto da ossidi di plutonio ed uranio naturale;
- reattori veloci al sodio, tipo SUPERPHENIX, autofertilizzanti, ricaricati, perciò, solo ad uranio naturale e adibiti anche al bruciamento di Pu (o Pu + MAs).

In realtà lo spettro neutronico vincola fortemente la scelta del refrigerante da utilizzare che si restringe ai metalli liquidi (Na, Pb) o al gas (He, CO₂). Diversi reattori veloci refrigerati a sodio sono stati realizzati nel mondo su piccola scala e studiati negli ultimi anni; ma attualmente la tecnologia del Pb o dell'eutettico Pb-Bi è sotto i riflettori del panorama scientifico internazionale in visione di un prossimo imminente impiego. L'esperienza di reattori per propulsione navale progettati in Russia sembra, infatti, poter a breve essere applicata anche a reattori commerciali [17].

Il vantaggio offerto dall'usare reattori veloci per la trasmutazione di isotopi transuranici è legato prima di tutto alla maggiore efficacia di trasmutazione per fissione del flusso neutronico veloce rispetto a quello termico, come spiegato nel dettaglio al Paragrafo 2.3. In presenza di un flusso termico, infatti, i neutroni vengono assorbiti prima di tutto con reazioni di cattura da parte dei nuclei fertili e, solo in seconda battuta, vengono distrutti con reazioni di fissione. Da non sottovalutare, nel rapporto di efficienza tra spettro neutronico veloce e termico, è che nel primo caso con sezioni d'urto di cattura paragonabili a quelle di fissione è inferiore il rapporto di MAs (soprattutto Cm) prodotti sul numero di fissioni realizzate.

In ogni caso, anche nei reattori veloci, andranno previsti cicli multipli prima di ottenere una soddisfacente riduzione della massa di attinidi minori. Con una possibile composizione al 66% di uranio impoverito ed al 33% di plutonio ed attinidi minori nel combustibile le percentuali di bruciamento degli attinidi minori sono maggiori di quelle ottenute con l'utilizzo

di uno spettro termico, ma ancora non tali da permettere la diminuzione della quantità di radioisotopi a lunga vita dell'88.4% in meno di 15 successive passate ed un tempo stimato di realizzazione di 225 anni [8]. Infatti, per ogni ciclo, per es. comprensivo di 5 anni nel reattore e di 12 anni di raffreddamento, si stima una riduzione della quantità di nettunio del 24-27% (contro il 3-9% ottenibile in un LWRs), ed una riduzione della quantità di americio del 18-22% (contro il 6-13% dei LWRs) [18].

Una delle maggiori problematiche legate all'uso dei reattori veloci come bruciatori di attinidi minori è legata agli aspetti di sicurezza e di funzionalità: i tentativi fatti negli anni di realizzare reattori veloci sono state molteplici ma sempre con bassi risultati. L'introduzione della questione degli attinidi minori nel progetto dei reattori veloci non fa, poi, che complicarne per ora la realizzazione.

Trasmutazione in Reattori Sottocritici

Oltre ai reattori critici l'altra possibilità al vaglio per la realizzazione della trasmutazione è l'utilizzo di reattori sottocritici affiancati ad acceleratori di particelle. Negli ultimi anni si sono moltiplicate le proposte differenti di applicazione di questo concetto di impianto; in ogni caso gli elementi basilari e a comune sono:

- un acceleratore di protoni;
- un bersaglio di spallazione;
- un reattore sottocritico, caricato a plutonio e attinidi minori e, in alcuni casi, a prodotti di fissione o materiale fertile;
- una sviluppata capacità di riprocessamento del combustibile nucleare esaurito in uscita dagli attuali reattori ad acqua leggera al fine di renderlo adatto all'ingresso nel core sottocritico.

In generale va sottolineato che, nonostante il nome di *acceleratori*, solo il core sottocritico ospita la reazione di spallazione vera e propria. La funzione dell'acceleratore è quella di produrre neutroni in grado di sostenere la reazione a catena. Uno schema molto generale, ma esemplificativo, del funzionamento di base di questo impianto è rappresentato in figura (2.2).

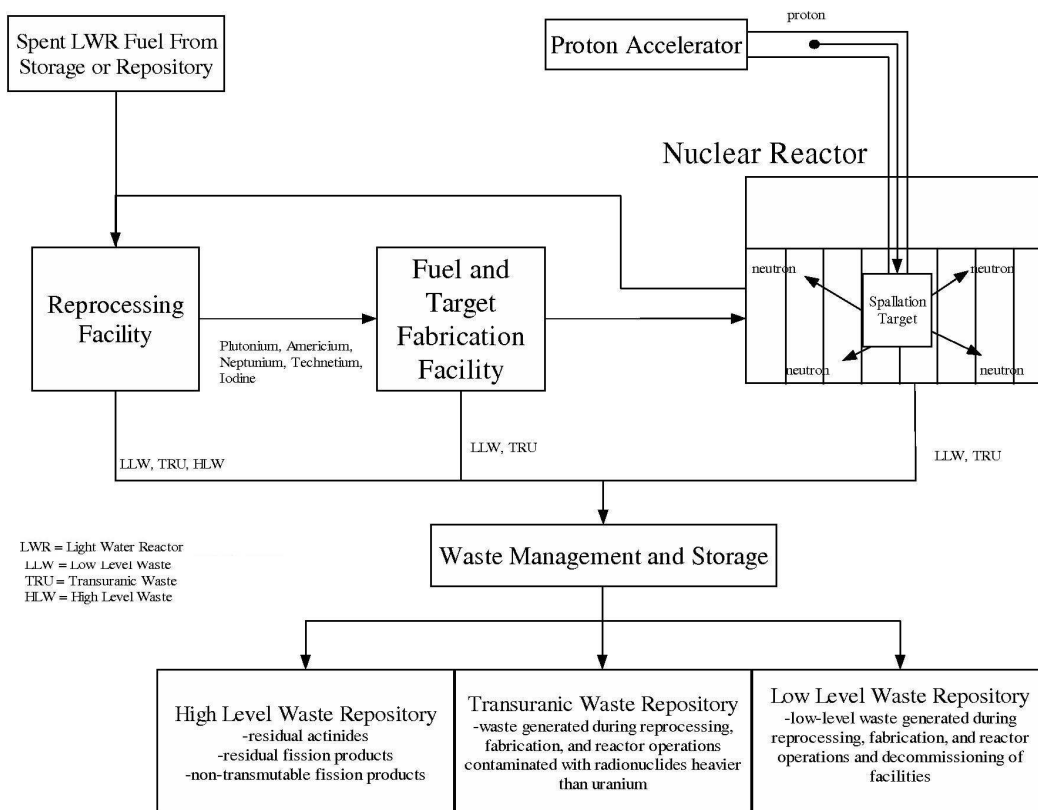


Figura 2.2: Schema generale di funzionamento di un reattore sottocritico iniettato

Le differenze che si possono evidenziare tra diverse tipologie di sistemi sottocritici iniettati riguardano poi i dettagli della scelta dello spettro neutronico, dell'acceleratore, del combustibile e delle tecnologie di riprocessamento. Per quanto riguarda gli aspetti di sicurezza questo tipo di reattore è avvantaggiato dalla condizione di sottocriticità e dall'intervento esterno dell'acceleratore. Per di più, essendo nato all'interno della tipologia di reattori di nuova generazione, viene progettato nel contesto dei *sistemi di sicurezza passivi*, azionati solo dalle leggi necessarie della fisica come accade per la refrigerazione a convezione naturale. In ogni caso anche questi sono impianti complessi che devono gestire la tecnologia dei metalli liquidi, potendo contare meno degli attuali LWRs di feedback negativi intrinseci, com'è l'esempio della diminuzione del rapporto di moderazione con aumenti di potenza e quindi di temperatura. Ad oggi sono necessari ancora molti sforzi per dichiarare pronta la generazione dei reattori sottocritici iniettati: a partire dalla disponibilità dell'acceleratore, passando attraverso l'affidabilità del circuito di spallazione, fino ad arrivare alla progettazione del core sottocritico in funzione della sicurezza ma anche dell'efficienza di trasmutazione.

Nel panorama scientifico occidentale, è possibile distinguere tra progetto europeo di sistema sottocritico iniettato, dal nome Accelerator Driven System (ADS), e analogo progetto americano, chiamato Accelerator Transmutation of Waste (ATW). Una breve panoramica delle diverse tipologie di sistemi sottocritici iniettati, la loro evoluzione storica e le applicazioni future saranno presentate più nel dettaglio nel Paragrafo 2.4.

Di seguito, concludiamo il paragrafo dedicato agli scenari possibili di gestione con una tabella riassuntiva (tabella (2.4)).

2.3 Fisica della Trasmutazione

Con il termine *trasmutazione* si definisce il cambiamento del numero di nucleoni di un nucleo, cioè la trasformazione di un nuclide, tramite assorbimento od emissione di particelle, in uno o più radionuclidi differenti.

Si può distinguere tra due processi differenti di trasmutazione: la *trasmutazione naturale*, cioè l'emissione di particelle α e β da un nuclide radioattivo, e la *trasmutazione artificiale*, che presuppone il bombardamento di un nucleo con particelle (deuteroni, protoni, neutroni

<i>Reattori e sorgente di neutroni:</i>	<i>Tipologia di riprocessamento e radionuclidi coinvolti nella trasmutazione:</i>	<i>Commenti:</i>
Light water reactors (LWRs) reattore critico e caricato con uranio naturale o ossidi misti (MOX)	Riprocessamento: acquoso. Radionuclidi: principalmente Pu, Tc-99 e I-129	La maggior parte dei MAs non viene efficacemente trasmutata, i coefficienti di feedback negativi diminuiscono e il riprocessamento comporta grandi quantità di rifiuti nucleari
Fast reactors (FR): il reattore è critico e può essere ricaricato con uranio, plutonio e contenere piccole quantità di MAs	Riprocessamento: soprattutto a secco. Radionuclidi: Pu e MAs Per Tc-99 e I-129 si ottengono risultati solo in zone a flusso moderato fuori dal reattore	La tecnologia dei reattori veloci non è ancora stata completamente sviluppata, la trasmutazione dei prodotti di fissione non è efficace, consistente produzione di transuranici
Sub-critical reactors: un sistema di spallazione associato ad un acceleratore di particelle garantisce un corretto apporto di neutroni al core sotto-critico	Riprocessamento: a umido o a secco o una combinazione dei due. Radionuclidi: Pu, MAs, Tc-99 e I-129	Lo stato di avanzamento di questi reattori è solo allo stadio di research & development, i costi si prefigurano alti, i prodotti di fissione sono difficilmente trasmutati

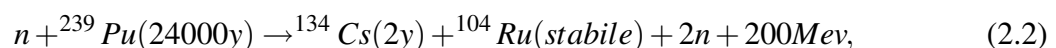
Tabella 2.4: Alcuni dettagli dei principali schemi di trasmutazione

ed elettroni) di energia opportuna fornitagli in un reattore, termico o veloce, oppure attraverso un'accelerazione in macchine dedicate, ad esempio i ciclotroni e gli acceleratori lineari di particelle (es. LINAC).

Se si utilizza, però, questo termine riferito al contesto specifico del 'management' dei rifiuti radioattivi particolare attenzione è rivolta alla conversione di Plutonio, Attinidi Minori (Nettunio, Americio, Curio) e Prodotti di Fissione a Lunga Vita-LLFP (i.e. ^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs , ...) in isotopi con caratteristiche più favorevoli, cioè più stabili o con tempi di decadimento inferiori, al fine di raggiungere l'obiettivo di riduzione dell'inventario della radiotossicità dei rifiuti radioattivi che devono essere inviati al deposito geologico.

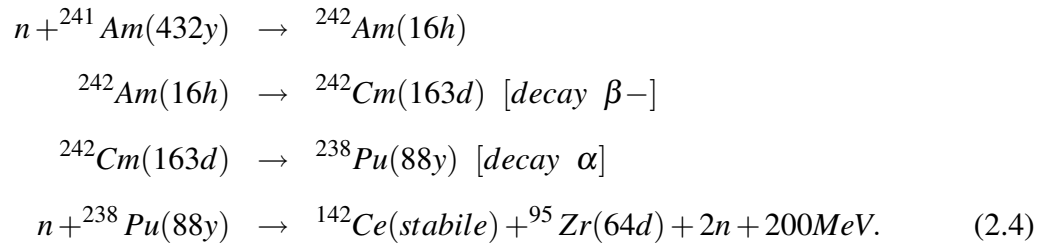
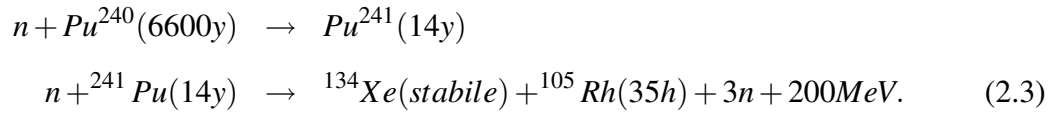
Le reazioni nucleari che permettono la trasmutazione isotopica sono principalmente la fissione e la cattura neutronica, ma a seconda del livello energetico dei neutroni considerati possono assumere importanza anche reazioni quali (n,2n), (n,3n) ed (n,p). La trasmutazione indotta da fissione avviene attraverso l'irradiazione in un reattore dei transuranici con alto flusso, comportando la formazione di frammenti di fissione che a loro volta subiranno, attraverso catture e decadimenti, un continuo cambiamento fino alla fuoriuscita dal reattore.

Si riporta, come esempio di trasmutazione tramite fissione, il caso del Pu-239 soggetto a flusso neutronico veloce (2.2), dove risulta evidente la riduzione dei tempi di decadimento fra il plutonio, prima, ed i prodotti di fissione, poi:



La trasmutazione del Pu-239 è un utile esempio perché è in grado di mostrare adeguatamente un'altra caratteristica che la trasmutazione può avere, cioè un grande fattore di riduzione dell'attività e della radiotossicità sul lungo periodo di tempo ma a discapito di un incremento della stessa a breve termine (subito di seguito alla fissione), comportando per questo un aumento del rischio per gli operatori che dovranno gestire e trattare il materiale in uscita dai reattori dedicati alla trasmutazione.

Per altri isotopi, il processo di fissione può essere preceduto da vari steps di cattura e decadimento, come nel caso del Pu-240 (2.3) e dell'Am-241 soggetti a flusso veloce di neutroni (eq.(2.4)).



Sembra evidente che la reazione nucleare più adeguata per una trasmutazione efficiente dei TRU sia la fissione sia con flusso termico (utilizzando LWR) che con flusso veloce. Volendo entrare più nel dettaglio, potremmo esaminare il rapporto fra la sezione di cattura e di fissione mediate sul flusso, rispettivamente $\bar{\sigma}_c$ e $\bar{\sigma}_f$, calcolate sia per flusso neutronico termico che per flusso veloce [3].

Isotopi	Flusso termico			Flusso veloce		
	$\bar{\sigma}_c$	$\bar{\sigma}_f$	α	$\bar{\sigma}_c$	$\bar{\sigma}_f$	α
${}^{237}Np$	0.52	33	63	0.32	1.7	5.3
${}^{238}Np$	134	13.6	0.1	3.6	0.2	0.05
${}^{239}Pu$	102	58.7	0.58	1.86	0.56	0.3
${}^{240}Pu$	0.53	210	396.6	0.36	0.57	1.6
${}^{241}Am$	1.1	110	100	0.27	2.0	7.4
${}^{243}Am$	0.44	49	111	0.21	1.8	8.6
${}^{244}Cm$	1.0	16	16	0.42	0.6	1.4

Tabella 2.5: Sezioni microscopiche di cattura e di fissione mediate sul flusso (termico e veloce) per alcuni TRU [3]

Dalla tabella (2.5) si evince il vantaggio ($\alpha = \frac{\bar{\sigma}_f}{\bar{\sigma}_c}$ più piccolo) dell'utilizzo di un flusso veloce, anziché di uno termico, per la trasmutazione dei più significativi isotopi di Americio, Nettunio e Curio. L'attenzione al tipo di flusso considerato risulta essere importante

perché permetterà, insieme ad altri fattori, di determinare l'efficienza di bruciamento per le varie tipologie di sistemi che sono stati pensati di adibire a tale scopo, cioè reattori veloci, termici o sottocritici (vedere Paragrafo 2.2.2). A questo punto dopo aver riportato solo alcuni esempi di trasmutazione a titolo esplicativo, rimane da entrare nel dettaglio delle catene di decadimento-trasmutazione che avvengono continuamente all'interno del core di un reattore, sia esso termico o veloce.

Le catene di decadimento sono descrivibili attraverso un sistema di equazioni differenziali lineari accoppiate del primo ordine, conosciute con il nome di *Bateman Equations*. La forma più generale assunta da questo sistema di equazioni differenziali è la seguente (2.5):

$$\begin{aligned} \frac{dN_i(\vec{r}, t)}{dt} = & \sum_{j>1}^N l_{ij} \lambda_j N_j(\vec{r}, t) - \lambda_i N_i(\vec{r}, t) + \sum_{k>1}^N \sum_r \int_0^\infty N_j(\vec{r}, t) Y_{k,r}(E) \sigma_{k,r}(E) \varphi(\vec{r}, E, t) dE \\ & - \int_0^\infty N_j(\vec{r}, t) \sigma_{j,a}(E) \varphi(\vec{r}, E, t) dE, \end{aligned} \quad (2.5)$$

in cui:

- N_i = numero di atomi su unità di volume dell'isotopo i
- λ_i = costante di decadimento dell'isotopo i
- l_{ij} = la frazione di decadimenti dell'isotopo j sull'isotopo i
- $Y_{i,r}$ = la resa di reazione per l'isotopo i riferita alla reazione r
- $\sigma_{i,r}$ = la sezione microscopica dell'isotopo i riferita alla reazione r
- $\sigma_{i,a}$ = la sezione di assorbimento microscopica per l'isotopo i
- φ = flusso neutronico

Se si va ad integrare il sistema riportato sopra è possibile determinare il cambiamento della composizione durante la vita del reattore, presupponendo di conoscere a priori la dipendenza del flusso dal tempo. In realtà, la distribuzione del flusso a sua volta dipende proprio dalla composizione del combustibile e quindi, in pratica, per risolvere il sistema sarà necessario fare alcune approssimazioni. In primo luogo si fa una discretizzazione temporale

andando a considerare opportuni intervalli in modo da assumere costanti in essi le proprietà dipendenti dal tempo, in più si vanno a considerare adeguate regioni in cui sono assunti indipendenti dalla posizione sia il flusso neutronico che la composizione del materiale.

Grazie a queste approssimazioni il sistema (2.5) è riducibile nella seguente forma:

$$\begin{aligned} \frac{dN_i(t)}{dt} = & \sum_{j>1}^N l_{ij} \lambda_j N_j(t) - \lambda_i N_i(t) + \sum_{k>1}^N \sum_r N_j(t) \int_0^\infty Y_{k,r}(E) \sigma_{k,r}(E) \varphi(E) dE \\ & - N_i(t) \int_0^\infty \sigma_{i,t}(E) \varphi(E) dE. \end{aligned} \quad (2.6)$$

Tale sistema (2.6) è ulteriormente semplificabile se si considera il flusso ad un unico gruppo energetico ϕ (2.9), le sezioni di cattura mediate sul flusso $\sigma_{i,r}$ (2.8) e le rese di reazione anch'esse mediate sul flusso $Y_{i,r}$ (2.7).

$$Y_{i,r} = \frac{\int_0^\infty Y_{i,r}(E) \sigma_{i,r}(E) \varphi(E) dE}{\int_0^\infty \sigma_{i,r}(E) \varphi(E) dE} \quad (2.7)$$

$$\sigma_{i,r} = \frac{\int_0^\infty \sigma_{i,r}(E) \varphi(E) dE}{\int_0^\infty \varphi(E) dE} \quad (2.8)$$

$$\phi = \int_0^\infty \varphi(E) dE. \quad (2.9)$$

così da ottenere il seguente sistema semplificato (2.10):

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \sum_{j>1}^N (l_{ij} \lambda_j + \sum_r Y_{j,r} \sigma_{j,r} \phi) N_j(t) - (\lambda_i + \sigma_{i,t} \phi) N_i(t). \quad (2.10)$$

Per risolvere questo sistema, in pratica, si calcola la distribuzione del flusso per quel particolare intervallo di tempo sulla base della composizione ad inizio intervallo, nota poi la distribuzione del flusso la si mantiene costante e si integrano le equazioni di Bateman sull'intervallo di tempo considerato, Δt_i . La composizione ottenuta, dopo l'integrazione, servirà per calcolare il flusso neutronico nell'intervallo Δt_{i+1} successivo, e così di seguito per arrivare a coprire l'intero arco di tempo considerato. Gli intervalli di tempo utilizzati per la discretizzazione avranno un'ampiezza massima funzione della rapidità di variazione della composizione dei materiali e degli effetti che tale variazione comporta per la distribuzione del flusso neutronico, tale ampiezza sarà anche funzione dell'accuratezza dello schema di integrazione numerica scelto. Se si trascurano i fenomeni su breve scala temporale, quali

ad esempio l'accumulazione di xeno e samario, per avere cambiamenti significativi della composizione e quindi del flusso neutronico è possibile arrivare ad avere intervalli di tempo di centinaia di ore.

Per calcolare il flusso neutronico all'interno del Δt_i ci possiamo avvalere di metodi deterministici o stocastici per la risoluzione del problema del trasporto; in questo lavoro, a tale scopo, si è fatto uso di calcoli Monte Carlo a energia continua (è stato utilizzato in particolare il codice MCNPX [19]). Per il calcolo delle sezioni di cattura si hanno varie possibilità quali, ad esempio, calcoli omogenizzati sulla cella, o spettri mediati.

La risoluzione delle equazioni di Bateman può essere fatta attraverso vari modi di discretizzazione spaziale più o meno precisi a seconda degli interessi dell'utilizzatore; la scelta può ricadere nell'integrazione su un gran numero di punti, dove per ogni punto sarà calcolato il flusso, oppure limitando il calcolo ad ogni fuel pin o assembly, mediando opportunamente in questi casi il flusso rispettivamente sulla 'fuel pin' e sull'elemento di combustibile stesso.

Per risolvere questo sistema di equazioni differenziali del decadimento-trasmutazione esistono attualmente vari tipi di codici evolutivi, uno fra questi è ORIGEN2.2 [20], utilizzato in questo lavoro per determinare l'evoluzione dei wastes all'uscita dal reattore. Il procedimento di risoluzione utilizzato all'interno del codice può essere schematizzato come segue. Si considera in flusso ϕ_i costante su un intervallo $\Delta t_{burn} = (t_{i+1} - t_i)$ e si pone il sistema di equazioni differenziali in forma matriciale (2.11)

$$\frac{d\mathbf{N}(t)}{dt} = \mathbf{A}(\phi(t_i))\mathbf{N}(t). \quad (2.11)$$

dove:

- $\frac{d\mathbf{N}(t)}{dt}$ è il vettore delle variazioni nel tempo delle concentrazioni dei nuclidi considerati
- \mathbf{A} è la matrice dei ratei di reazione e delle costanti di decadimento per tutti i nuclidi considerati
- \mathbf{N} è il vettore delle concentrazioni dei nuclidi

La soluzione del sistema (2.11) avrà la forma esponenziale seguente (2.12):

$$\mathbf{N}(t) = \mathbf{N}(0)e^{\mathbf{A}t}, \quad (2.12)$$

dove con $\mathbf{N}(0)$ ci si riferisce al vettore delle concentrazioni iniziali. Su piccoli intervalli di tempo l'esponenziale della matrice è sviluppabile in serie di Taylor (2.13):

$$e^{\mathbf{A}t} = 1 + \mathbf{A}t + \frac{1}{2}\mathbf{A}^2t^2 + \dots \quad (2.13)$$

Questo metodo, chiamato metodo dell'esponenziale della matrice, è quello utilizzato all'interno del codice ORIGEN2.2 [21] ed è uno dei metodi più adeguati quando si ha interesse a calcolare la composizione di un elevato numero di nuclidi (circa 1300). Se l'interesse dell'utilizzatore è invece quello di calcolare la composizione di un ristretto gruppo di isotopi, ove è possibile approssimare $\sigma_{ij}N_j = 0$ se l'isotopo j non fa parte del gruppo di nuclidi in studio, risulta essere più conveniente risolvere il sistema più ridotto di equazioni differenziali accoppiate che ne viene fuori, utilizzando direttamente un metodo alle differenze finite.

2.4 Il Concetto di ADS

Come è stato già precedentemente indicato, la *trasmutazione*, una delle possibili strategie in studio per il trattamento dei rifiuti radioattivi, è indagata per essere implementata attraverso tre tipologie di reattori: termici ad acqua leggera (LWR), veloci e sottocritici. In questa parte del lavoro l'interesse verrà rivolto verso lo studio dei reattori sottocritici, andando ad evidenziare le possibili implicazioni che essi hanno con il ciclo del combustibile, descrivendone la fisica che ne è a base (spallazione in primis) ed andando a considerare più nel dettaglio un esempio in avanzato stato di sviluppo (MYRRHA Project).

Nel 1940, era già nota la capacità di produrre materiale fissile attraverso reazioni nucleari (con resa di neutroni elevata), utilizzando acceleratori, di protoni o deuteroni, per il bombardamento di un target (es. uranio) opportunamente stabilito. A partire da quella data sono stati investigati i dettagli dell'uso di un acceleratore per la produzione di fissile, e nel 1960 è stato autorizzato, l'Electronuclear Reactor', acceleratore per la produzione di materiali che possono essere creati solo artificialmente, che utilizzava un target in uranio e torio, in grado di produrre Pu-239 e U-233. Altri studi, inerenti alla investigazione della dipendenza energetica (sopra gli 800 MeV) sulla efficienza di conversione fra fertile e fissile usando tar-

get standardizzati, sono stati portati avanti fra il 1979 ed il 1988 all'interno del programma FERFICON, 'Ferile-to-Fissile Conversion Programme'.

Il primo realistico concetto di 'Accelerator Driven System-ADS', inteso alla maniera attuale, cioè dove giocano un ruolo fondamentale gli aspetti di sicurezza e di trasmutazione dei rifiuti, è stato sviluppato alla fine degli anni '80, da un gruppo di ricerca del Brookhaven National Laboratory con a capo H.Takahashi e G. Van Tuyle; al 1991, risale invece il primo progetto statunitense dettagliato (C. Bowman's Los Alamos group) di una 'facility' utilizzante neutroni termici per la trasmutazione, dal nome di Accelerator Transmutation of Waste-ATW [11].

A livello Europeo tutto è partito dal 1993, quando un gruppo di scienziati capeggiati da Carlo Rubbia, presso il centro di ricerca CERN di Ginevra, ha presentato il concetto base di un sistema sottocritico in grado di produrre energia con la produzione di pochissime quantità di MA e LLFP, basato sul ciclo U-Th accoppiato ad un acceleratore di protoni ad alta energia, *Energy Amplifier*. La fattibilità e la verifica del principio dell'amplificazione energetica sono state provate per mezzo di due campagne sperimentali: FEAT (First Energy Amplifier Test) dell'autunno del 1994, e TARC (Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing) fra il 1997-1998.

Nel 1996 all'interno del '4th Framework Programme' dell'Unione Europea viene inserito un progetto, IABAT-'Impact of Accelerator Based Technologies on Nuclear Fission Safety', che ha lo scopo di dare una valutazione preliminare riguardo alla potenzialità di un ADS per la trasformazione dei rifiuti nucleari ed eventualmente per la produzione di energia. Questo progetto che ha dato una buona spinta in avanti verso lo sviluppo di un ADS ha visto la partecipazione di numerosi enti, 14 fra Università ed Enti europei.

Il 1998 è anno di grande importanza, a livello istituzionale, per gli ADS perché il Ministri della Ricerca francese, italiano e spagnolo si rendono conto delle potenzialità che questo sistema può avere per il trattamento dei rifiuti nucleari, e istituiscono un gruppo di lavoro, 'Ministers' Advisor Group-MAG', con il fine di determinare una piattaforma europea per la ricerca e lo sviluppo degli ADS. In aggiunta a questo gruppo legislativo, vi è stato affiancato anche un gruppo tecnico, 'Technical Working Group-TWG', per identificare gli aspetti tecnici su cui l'R&D si deve concentrare.

Con la riunione del MAG, 1 marzo 1999, viene stabilito di portare il progetto su un ambito europeo più esteso, passando da 3 a 11 Stati coinvolti (Austria, Belgio, Danimarca, Finlandia, Francia, Germania, Italia, Portogallo, Inghilterra, Spagna e Svezia), considerando il ruolo della R&D di un Accelerator Driven System come parte integrante del '5th Framework Programme-FWP' (1998-2002), e riconoscendo come goal europeo la costruzione di un 'eXperimental Accelerator Driven System (X-ADS)'. A seguito di tali decisioni il TWG si allarga e diventa ETWG-European Technical Working Group. Nel 2000 l'ETWG, con un documento chiamato 'four-page document', stabilisce la necessità, sulla base anche degli studi paralleli fatti in USA e Giappone, che l'Europa adotti anch'essa delle linee guida per la dimostrazione della fattibilità di un'impianto per la trasmutazione dei rifiuti europei (nascita della 'Roadmap' Europea che verrà pubblicata nell'aprile del 2001 [11]), evidenziando i seguenti ambiti di interesse per R&D di un ADS:

- Studi inerenti al combustibile da utilizzare all'interno degli ADS. Parte della ricerca è rivolta nel trovare soluzioni idonee per la fabbricazione ed il riprocessamento del combustibile dedicato alla trasmutazione. In prima battuta è stata comunque considerata la possibilità di utilizzare lo stesso fuel concepito per l'utilizzo nei reattori veloci. Abbiamo a che fare con 2 diverse tipologie di combustibile: MOX (tipo SNR-300, Phénix e Superphénix) e combustibile metallico (EBR-II, concezione USA). Alla luce però delle conoscenze e degli impianti già sviluppati in Europa, la scelta andrà a ricadere in un combustibile di tipo MOX [22]
- Studi inerenti la realizzabilità degli acceleratori di protoni, indicandone le performance e gli aspetti di sicurezza collegati.
- Studi inerenti ai materiali impiegati, in rispetto sia alla compatibilità chimica (in particolare corrosione) con piombo o con lega eutettica piombo-bismuto usata per la refrigerazione del core, sia rispetto alla resistenza all'irraggiamento con flusso neutronico (energie fino ai 15 MeV) o protonico.
- Studi inerenti gli aspetti di sicurezza di un ADS, con attenzione al monitoraggio ed al controllo delle escursioni di reattività possibili (coefficiente di reattività con la temperatura sfavorevole, minor numero di neutroni ritardati).

-
- Studi inerenti alla preparazione di database più aggiornati per quanto riguardano sia i dati nucleari (valori delle cross section ad alte energie) che relativi ai materiali utilizzati.

Sulla base di questi obiettivi, in Europa sono stati proposti vari prototipi di ADS, suddivisi nei seguenti ambiti principali: dati nucleari e principi fisici di base (n-TOF-ND-ADS, HINDAS, MUSE), materiali (TECLA, SPIRE, MEGAPIE, ASHLIM), combustibile (Thorium Cycle, CONFIRM, FUTURE) e riprocessamento (PYROREP, PARTNEW, CALIXPART). Si affiancano a questi prototipi anche alcuni dettagliati progetti in via di sviluppo tecnico di ADS da 100 MWth, quali XADS con Pb/Bi da 80MWth (ANSALDO NUCLEARE), XADS refrigerato ad elio anch'esso da 80MWth (Framatoma-ANP), ed un progetto specifico dove è già presente anche l'indicazione del posto di costruzione, il progetto MYRRHA presso il centro SCK-CEN di Mol (Belgio). Tutte queste facility fanno parte del progetto europeo *5th Framework Programme-FWP*, con lo scopo di sviluppare un progetto dettagliato per la costruzione entro la terza decade del 21st secolo di un experimental ADS, portando avanti un contratto di 3 anni coinvolgente 25 partners (industrie, organismi di ricerca ed università) per lo sviluppo del progetto chiamato PDS-XADS ('Preliminary Design Studies of an Experimental Accelerator Driven System').

Quello che ha portato all'interesse europeo verso un sistema sottocritico in rispetto ad un sistema critico per la trasmutazione dei rifiuti, è proprio la possibilità di lavorare con maggiore sicurezza; infatti se in un sistema critico carichiamo attinidi minori, oltre ai problemi con il coefficiente di reattività, si ha una diminuzione del numero di neutroni ritardati prodotti e quindi una più difficile gestione e controllo dell'impianto; al contrario, visto che un ADS non prevede condizioni di criticità, è possibile caricare al suo interno quasi ogni composizione di combustibile.

Altre attività significative in rispetto allo studio degli 'Accelerator Driven System' sono portate avanti anche in Giappone, Korea e negli Stati Uniti. In Giappone (2000), il Governo ha approvato un progetto (congiunto fra JAERI-Japan Atomic Energy Research Institute e KEK), relativo alla costruzione di un acceleratore di protoni ad alta intensità, che porterà avanti studi riguardo un acceleratore lineare da 400 MeV, un sincrotrone per protoni da 3 GeV con 'power rating' di 1 MW, un sincrotrone da 50 GeV con 'power rating' di 0.75 MW

e un impianto da 1 MW per la sorgente di neutroni di spallazione. Negli Stati Uniti nel 1999 viene pubblicata 'Roadmap for Developing Accelerator Transmutation of Waste (ATW) Technology' per spingere verso la creazione di un grande 'Advanced Accelerator Application (AAA)', cioè di un reattore sottocritico ADS da 20 MWth, alimentato da un acceleratore lineare di protoni ad alta energia (potenza acceleratore 8 MW). La messa in funzione di questa facility è stata pianificata a partire dal 2010.

Ritornando alla situazione Europea degli ultimi anni si fa notare come anche nel *6th Framework Programme* (2002-2006) dell'EURATOM, la priorità nella ricerca e nello sviluppo è rivolta al trattamento dei rifiuti radioattivi ad alta attività, con lo sviluppo di tecniche adeguate per la soluzione di questo problema. Le aree tematiche su cui tale progetto va a concentrarsi sono: *deposito geologico, Partitioning & Transmutation* e studi sulle *strategie del ciclo del combustibile*.

Per quanto riguarda l'area tematica della trasmutazione, gli obiettivi alla base di una adeguata e strutturata implementazione della strategia del 'Partitioning and Transmutation-P&T' rispetto al trattamento dei rifiuti radioattivi prodotti in Europa, sono divisibili in 4 parti fondamentali, chiamabili 'building blocks', perché si mira a dimostrare la fattibilità di varie installazioni:

- Dimostrazione della capacità di processamento di una grande quantità del combustibile proveniente dai reattori esistenti per la separazione di plutonio e attinidi minori.
- Dimostrazione della capacità di fabbricare a livello semi industriale un combustibile dedicato per l'utilizzo nei trasmutatori.
- Disponibilità di uno o più trasmutatori dedicati.
- Realizzazione di installazione specifica per il riprocessamento del combustibile in uscita dai reattori trasmutatori.

il numero e la taglia delle installazioni indicate sopra, dipenderà dalle scelte fatte riguardo alla politica di sviluppo della potenza nucleare.

All'interno della 'Thematic Priority Area-Management of Radioactive Waste: Transmutation', alcune associazioni Europee, capeggiate da CEA, ENEA, FZK e SCK-CEN, stanno

preparando un Integrated Project *IP EUROTRANS* per il WP04 dell'EURATOM '6th Framework Programme' mirato principalmente allo sviluppo dei trasmutatori. Gli obiettivi del progetto IP EUROTRANS sono così riassumibili:

- Sviluppo di un progetto di riferimento per un impianto industriale, 'European Facility for Industrial Transmutation (EFIT)' con una potenza al di sopra delle centinaia di MWth (circa 200-400 MWth), che utilizza la lega eutettica piombo bismuto sia come metallo di refrigerazione che come materiale per la spallazione (vengono tenuti in considerazione per la refrigerazione sia il piombo che il gas) e si basa sui risultati ottenuti dagli studi inerenti l'X-ADS.
- Dimostrabilità sperimentale della stabilità del comportamento di un ADS a potenza;
- Sviluppo e dimostrazione delle tecnologie necessarie da associare;
- Provare prima di tutto la fattibilità tecnica di questo progetto;
- Stabilire una valutazione economica di massima.

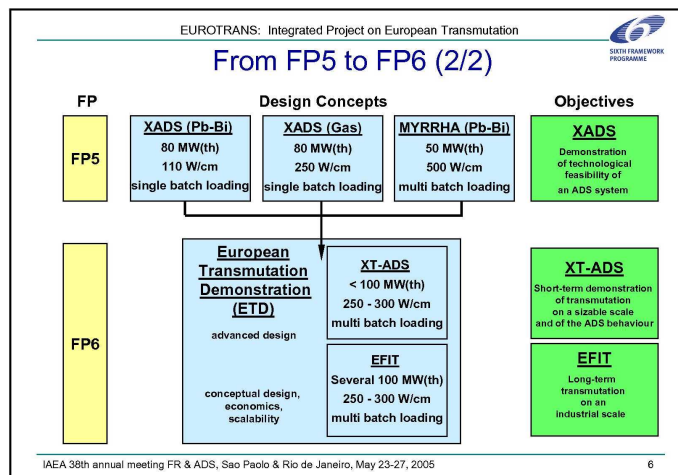


Figura 2.3: Schema riassuntivo del '5th Framework Programme e 6th Framework Programme'-EURATOM

E' evidente quanto il FP5 e l'FP6 siano collegati l'uno all'altro, figura (2.3), infatti per la progettazione di EFIT si parte dai risultati ottenuti dagli studi su l'X-ADS, aggiungendo

quelli che arrivano dalle varie campagne sperimentali satellite che abbiamo ricordato sopra; particolare rilevanza per il progetto concettuale di un PDS-XADS lo hanno i progetti di ANSALDO NUCLEARE (X-ADS refrigerato a Pb-Bi con potenza di 80 MWth), di Framatome ANP (X-ADS refrigerato a Gas con potenza di 80 MWth) e il progetto MYRRHA del SCK-CEN (50MWth raffreddato con Pb-Bi), figura (2.4).

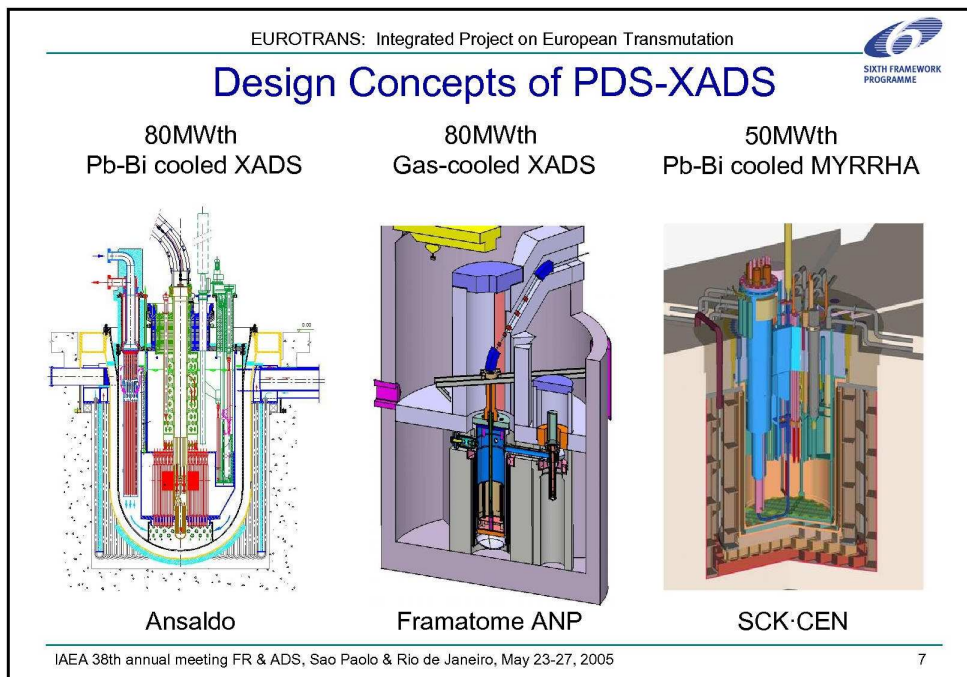


Figura 2.4: Progetti ADS interni al '5th Framework Programme'-EURATOM

In tabella (2.6) sono riportate le caratteristiche del progetto preliminare di XT-ADS e di EFIT, seppur si ricorda che per quanto riguarda EFIT il progetto è ancora a livello larvale, in cerca cioè di soluzioni tecniche adeguate:

Al progetto IP EUROTRANS si affianca anche un altro progetto integrato IP EUROPART, partito nel 2004, con l'obiettivo complementare di sviluppare tecniche adeguate per la separazione dei vari elementi, dove in particolare gli obiettivi principali sono:

- Sviluppo di metodi per la separazione degli attinidi minori presi individualmente contenuti nei rifiuti nucleari acquosi derivanti dal riprocessamento di combustibile nucleare a ossidi di uranio (UOx) o ossidi misti (MOX);

	XT-ADS	EFIT
Livello di avanzamento del progetto	Progetto avanzato	Progetto concettuale
Refrigerante	Pb-Bi(eutettico)	Pb
Sistema primario	Integrato	Integrato
Potenza	50-100 MW _{th}	circa 300 MW _{th}
Temperatura ingresso core	300°C (350°C)	400°C
Temperatura uscita core	400°C (430°C)	480°C
Interfaccia Target	Windowless	Windowless (backup:winwow)
Geometria del target	Decentrato/centrato	Centrato
Combustibile	MOX (eccetto che per pochi MA assemblies)	(Pu,Am)O ₂ +MgO (o Mo)
Densità di potenza del fuel	700 W/cm ³	450-650 W/cm ³
Spaziatori fuel pin	Grid	Grid
Tipo di assembly	Scatolato	Scatolato /non scatolato
Sezione trasversale dell'assembly	Esagonale	Quadrata
Caricamento fuel	Top/Bottom	Top
Monitoraggio del fuel	Per assembly	Per regione
Circolazione primaria durante condizioni normali	Forzata con pompe meccaniche	Forzata con pompe meccaniche
Circolazione primaria in caso incidentale	Naturale + Motori ausiliari	Naturale + Motori ausiliari
Refrigerante secondario	Acqua bollente a bassa pressione	Ciclo di acqua surriscaldata
Edificio reattore	Interrato	Interrato (in parte)
Materiale strutturale	T91 e A316L	TBD
Acceleratore	LINAC (2 - 5 MW)	LINAC
Ingresso fascio	Top	Top

Tabella 2.6: Stato di avanzamento di XT-ADS e di EFIT

- ‘Partitioning’ di tutti gli attinidi insieme per il riciclaggio ad esempio in un ADS.

2.4.1 La Spallazione

Il termine *spallazione* si riferisce al fenomeno in cui un nucleo di materiale pesante (ad esempio LBE), colpito da una particella ad elevata energia, nel nostro caso si tratta di protoni con energia tipicamente compresa tra le centinaia di MeV e un GeV, emette un certo numero di nucleoni, tra cui i neutroni, e altre particelle. Il nucleo risultato dopo l’urto si trova ad avere una struttura stabile ma con meno nucleoni. Le particelle create a seguito dell’urto sono in grado di scatenare altri tipi di reazione: se la loro energia è sufficiente possono dar luogo anche ad altre reazioni di spallazione, altrimenti possono dar luogo a reazioni del tipo (n,xn), (n, γ), (n,f), (n,n’). Come risultato di tutto questo processo si ottiene dunque una sorgente di neutroni che può essere usata come sorgente in un sistema moltiplicante. E’ questo il principio di funzionamento dell’ ADS: associare un acceleratore di protoni, che vada ad insistere su un bersaglio di spallazione, ad un core sottocritico. Nella realtà questo semplice concetto va definito e compreso fino in fondo per attribuire il corretto significato alla *sorgente* di neutroni e poter così analizzare senza fraintendimenti la fisica del reattore.

2.4.2 Applicazione dell’Equazione del Trasporto: κ_{eff} e κ_s

La fisica del reattore è collegata alla risoluzione dell’equazione di bilancio dei neutroni nel sistema considerato, attraverso la soluzione dell’equazione del trasporto, per conoscere in ogni punto dello spazio la produzione e la perdita di neutroni di energia E, posizione \vec{r} e vettore della direzione $\vec{\Omega}$.

La forma generale dell’equazione del trasporto, nota anche come equazione di Boltzmann, è:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) &= -\vec{\Omega} \nabla \phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) - \Sigma_t \phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \\ &+ \int_{4\pi} \int_0^{+\infty} \Sigma_s(\vec{r}, E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, t) \phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t) dE' d\vec{\Omega}' \\ &+ \frac{\chi(E)}{4\pi} \int_0^{+\infty} \nu(E') \Sigma_f(\vec{r}, E', t) \int_{4\pi} \phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t) d\vec{\Omega}' \end{aligned}$$

$$+ S_e(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \quad (2.14)$$

dove n è la densità di neutroni, φ è il flusso neutronico, Σ_t è la sezione d'urto macroscopica totale, $\chi(E)$ è la resa di fissione, Σ_s è la sezione macroscopica di scattering, Σ_f è la sezione macroscopica di fissione, ν è il numero di neutroni prodotti per ogni neutrone comunque assorbito di energia E , S_e è la sorgente esterna di neutroni che tiene conto di tutti i neutroni non prodotti da fissione. Questa equazione ci permette di conoscere l'evoluzione nel tempo e nello spazio della popolazione di neutroni al variare dell'energia su un volume infinitesimo. Nell'equazione del trasporto così espressa i primi due termini a secondo membro tengono conto delle perdite dei neutroni, i rimanenti tre termini tengono conto dei contributi positivi (da scattering, da fissione e dalla sorgente esterna stessa). Per semplificare le spiegazioni successive facciamo uso della notazione largamente utilizzata che raggruppa tutti i termini legati alle 'perdite' sotto l'operatore L , il termine di fissione con l'operatore F ed il termine di sorgente con il simbolo S . Quello che otteniamo è:

$$\frac{\partial}{\partial t} n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = -L\varphi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) + F\varphi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) + S \quad (2.15)$$

Se poi stiamo lavorando in condizioni stazionarie, ognuno dei termini dell'equazione perde la propria dipendenza dal tempo e otteniamo, infine, un'equazione differenziale di secondo grado in φ non omogenea per la presenza dell'operatore sorgente S che rappresenta tutti i neutroni con energia E e direzione $\vec{\Omega}$ aggiunti nel punto \vec{r} al sistema per mantenere la condizione di stazionarietà. Nel caso di sistema critico questo termine è nullo e l'equazione 2.15 diventa un'equazione omogenea in φ . Al contrario, in un sistema moltiplicante sottocritico questo termine deve essere diverso da zero per mantenere la reazione a catena.

In particolare per affrontare correttamente lo studio di criticità di un reattore sottocritico iniettato va fatta distinzione tra il fattore di moltiplicazione effettivo del sistema, κ_{eff} , ed il valore del fattore di moltiplicazione di sorgente, κ_s , entrambi coinvolti nella corretta definizione di sorgente di neutroni di un ADS. In particolare il primo si ottiene risolvendo l'equazione di criticità agli autovalori:

$$-L\varphi_0(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) + \frac{1}{\kappa_{eff}} F\varphi_0(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) = 0 \quad (2.16)$$

dove φ_0 rappresenta il flusso associato ad un sistema in condizioni di criticità.

Il secondo si calcola invece partendo dall'equazione di bilancio stazionaria per sistema sottocritico definito dagli operatori L, F e S ma con flusso φ_s :

$$-L\varphi_s(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) + F\varphi_s(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) + S = 0 \quad (2.17)$$

Per ottenere in realtà un corretto bilancio è necessario integrare sul volume dell'intero sistema, e si ottiene:

$$-\langle L\varphi_s(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) \rangle + \langle F\varphi_s(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) \rangle + \langle S \rangle = 0 \quad (2.18)$$

Il primo termine corrisponde al rateo di neutroni persi, il secondo al rateo di neutroni prodotti da fissione ed il terzo termine al rateo di neutroni prodotti dalla sorgente esterna.

Come è facile osservare il valore di κ_s è per definizione diverso dal valore dell'autovalore caratteristico del sistema κ_{eff} . In particolare, è interessante sottolineare come il valore κ_s sia veramente dipendente dalla distribuzione della sorgente, mentre il valore κ_{eff} non viene minimamente definito sulla base della sorgente. Per essere più chiari, per una sorgente puntiforme collocata nel centro di un sistema moltiplicante κ_s è maggiore di κ_{eff} ; mentre con la stessa sorgente ma collocata alla periferia del sistema moltiplicante κ_s sarà minore di κ_{eff} . Al limite, per sorgente allontanata ad una distanza infinita dal sistema moltiplicante, κ_s tenderà a zero, mentre κ_{eff} rimarrà invariato e dipendente solo dalle caratteristiche del sistema stesso.

2.4.3 La Sorgente di Neutroni in un ADS

Una delle quantità richieste per calcolare la maggior parte delle grandezze appena definite è il valore S della sorgente. Fino ad ora abbiamo sempre parlato di sorgente esterna di neutroni senza mai definirla completamente nel dettaglio, ma dicendo soltanto che è il contributo di tutti quei neutroni non prodotti da fissione. Questa definizione però deriva dal concetto di sorgente di neutroni come espressa nell'equazione di Boltzmann per un sistema sottocritico, vedi equazione 2.14 .

Nel caso di reattore sottocritico iniettato definire correttamente la sorgente di neutroni è qualcosa di particolarmente complicato: è impossibile definirla sulla base della reale sorgente, cioè i protoni del fascio incidente sul bersaglio, ma è difficile anche definirla sulla base della sola spallazione o della sola moltiplicazione nel core sottocritico. Per questo sono state avanzate ed usate nel tempo più definizioni.

La prima considera come sorgente i neutroni primari, cioè quei neutroni creati direttamente a seguito del fenomeno della spallazione con protoni ad alta energia. Il problema che qui sorge è che di questi neutroni primari, quelli più energetici, possono a loro volta fare spallazione con i nuclei vicini. Con questa definizione vengono quindi a perdersi alcune reazioni (n,xn) e si sottostima la reale potenza della sorgente.

La seconda soluzione, raramente usata nel contesto degli ADS, considera come sorgente i neutroni di fissione di prima generazione creati nel core sottocritico. Questo permette di distinguere i neutroni fortemente energetici rilasciati durante la prima fase (nelle reazioni di spallazione, (n,xn) , ...) dalla fase successiva di moltiplicazione nel core sottocritico.

Un'altra possibile definizione di sorgente considera i neutroni che attraversano la frontiera tra il condotto di spallazione ed il core sottocritico. Anche questa ha il limite di sottostimare la reale sorgente perdendo tutte le reazioni (n,xn) date in qualche caso da neutroni particolarmente energetici.

Esiste poi un'ulteriore possibilità che è quella di considerare come sorgente tutti quei neutroni con energia inferiore dell'energia di taglio ('cut-off energy') che può variare tra i 20 e i 15 MeV. Questa definizione ha il vantaggio di comprendere *tutti* i neutroni e può essere usata per separare i neutroni nati dalle prime reazioni fortemente energetiche da quelle di fissione nel core sottocritico.

Ad oggi nel campo di indagine e di ricerca sugli ADS è possibile incontrare questi diversi modi di definire la sorgente e ancora una formulazione univoca non è stata accordata.

2.5 Il Progetto MYRRHA

L'impianto MYRRHA (Multi-purpose hYbrid Research Reactor for High-tech Applications), in progetto presso il centro di ricerca SCK-CEN a Mol (Belgio), ha l'obiettivo di inserirsi

nel panorama degli esperimenti europei sui reattori sottocritici iniettati. Da sempre uno degli obiettivi del centro SCK-CEN è realizzare reattori di ricerca su ampia scala per rispondere volta volta alle contingenti esigenze del panorama scientifico internazionale. È stato questo il caso dei reattori di ricerca BR1, BR2 e BR3, e dei laboratori attrezzati per simulare al meglio la realtà delle 'hot-cell' o del 'waste disposal', al fine di elevare il livello di competenza del personale che svilupperà gli aspetti più cruciali dell'ingegneria nucleare. Dopo 40 anni di esercizio del BR2, reattore di ricerca da 50 MWth, il centro deve eleggere il progetto sostitutivo; è in questo contesto che il MYRRHA prende forma come reattore finalizzato al test di materiali da irradiare ad alto flusso, cioè come 'material test reactor (MTR)'.

Il progetto MYRRHA è nato nel 1998 come evoluzione del progetto ADONIS, studiato presso l'SCK-CEN tra il 1995 e il 1997. Quest'ultimo era un piccolo impianto per l'irradiazione basato sul concetto ADS e realizzato grazie alla collaborazione con l'IBA s.a., 'Ion Beam Application' di Louvain-La-Neuve, con la finalità ultima di produrre Mo-99 [23]. In particolare va sottolineato che l'IBA è leader nella produzione di ciclotroni, ed è per questo che inizialmente il MYRRHA era stato pensato come reattore sottocritico iniettato da un fascio di protoni generati da un ciclotrone. Dopo un periodo di stallo decisionale, attualmente la scelta sembra essere caduta su una tipologia completamente diversa di acceleratore: un acceleratore lineare (LINAC) della tipologia attualmente in studio (800Mev) presso il Los Alamos Neutron Science Center (LANSCE) in New Mexico, USA.

Al di là dell'aspetto medico, produzione di isotopi, che il MYRRHA potrebbe ereditare, quest'impianto dovrà poter supportare programmi di ricerca finalizzati allo studio dei materiali da applicare alla fissione, alla fusione nucleare e al test di varie tipologie di combustibili anche per reattori critici, ma con un più alto valore di burn-up rispetto agli attuali ora in utilizzo. Nell'aprile del 2001, infatti, si sono conclusi i lavori dell'"European Technical Working Group" (ETWG) sugli ADS con un documento chiamato '*A European Road Map for Developing Accelerator Driven System (ADS) for Nuclear Waste Incineration*' in cui è stato sottolineato come il P&T, insieme alla corretta combinazione del concetto di ADS e di deposito geologico, possano portare ad una soluzione del problema della chiusura del ciclo del combustibile nucleare che sia socialmente accettabile.

Ad ogni modo, parlare di MYRRHA è senza dubbio poter dimostrare l'applicabilità del

concetto di ADS e della possibilità di realizzare la trasmutazione degli attinidi minori e di prodotti di fissione a lunga vita. Non di meno significa affrontare lo studio del comportamento della lega eutettica Pb-Bi, come lega del piombo da applicare allo sviluppo dei reattori veloci (Generation IV).

Nel 2003 è stato ultimato il primo progetto esecutivo del MYRRHA (DRAFT-1) con core di potenza nominale 30 MWth; questo è stato sottoposto alla ITGC, International Technical Guidance Committee, per essere rivisto e, sebbene non siano state sollevate grosse obiezioni in grado di bloccare il progetto, la commissione ha raccomandato che venissero prese decisioni importanti in grado di completarne il quadro piuttosto che mostrarne dettagli. E' questo il caso dell'acceleratore che dovrebbe affiancare il reattore sottocritico vero e proprio.

Da allora il progetto del MYRRHA è cresciuto ed è stato portato fino a 50 MWth. In particolare, con le ultime revisioni pubblicate nella relazione tecnica PDS-XADS FP5, Deliverable 61 - Appendix 1 del progetto della commissione europea *'Technical option report on the Small-Scale LBE-cooled XADS'*, rilasciato nei primi mesi del 2005, il MYRRHA oltre a quanto già detto dovrà essere un impianto con ottime prestazioni: livello di flusso elevato ($\phi_{tot} > 10^{15} n/cm^2/s$ e $\phi_{>0.75MeV} \approx 5 \times 10^{15} n/cm^2/s$), e fattore di disponibilità elevato. La zona dedicata al bersaglio di spallazione, che è l'interfaccia fisica tra l'acceleratore ed il reattore sottocritico, e che verrà approfondita a breve, dovrà essere più piccola possibile compatibilmente con la necessità di riuscire ad originare un alto flusso per non togliere, quindi, spazio agli elementi di combustibile e ad eventuali campioni di materiale da testare.

2.5.1 Caratteristiche generali del progetto MYRRHA

L'impianto del progetto MYRRHA si basa sull'accoppiamento di un acceleratore di protoni che agisce su un bersaglio di spallazione senza finestra costituito dall'eutettico Pb-Bi allo stato liquido, centrato in un core sottocritico, raffreddato anch'esso con lega eutettica Pb-Bi ($T_{fus} = 123.5^\circ C$ e $T_{eb} > 1600^\circ C$), a cui fornisce i neutroni primari per raggiungere la criticità. La tipologia del reattore è a piscina con vessel poggiato a terra. La sistemazione del core immerso in piscina è stata valutata sulla base di aspetti di sicurezza: garantisce la presenza di una maggiore quantità di refrigerante disponibile in caso di necessità e usa il Pb-Bi che lo circonda sia come riflettore sia come schermo contro i neutroni veloci e i

raggi gamma generati. La sistemazione del vessel con appoggio a terra è legata all'analisi sismica per l'enorme inerzia del sistema. Tutti i componenti del circuito primario vengono inseriti dall'alto nella vasca del vessel attraverso apposite aperture nel coperchio rendendo così possibili operazioni di rimozione e di sostituzione di tutti gli internals durante normali routines di manutenzione. Farà eccezione il combustibile per cui è prevista la ricarica dal basso. Le caratteristiche principali dell'impianto vengono riassunte in tabella (2.7) e in figura (2.5) viene presentata una visione d'insieme dell'impianto stesso [24].

Diametro del core	1000 mm
Altezza del core	1800 mm
Lunghezza attiva del combustibile	600 mm
Diametro interno del vessel	4400 mm
Altezza totale del vessel (Coperchio non Compreso)	7000 mm
Volume interno del vessel	ca. 100 m ³
Volume di LBE	ca. 65 m ³
Spessore del coperchio del vessel	ca. 2 m
Altezza del gas plenum sopra il refrigerante	< 500 mm
Potenza nominale	50 MW _{th}
Refrigerante primario	LBE
Pressione del refrigerante	atmosferica + idrostatica
Temperatura ingresso core	200°C
Temperatura media uscita core	337°C
Velocità media del refrigerante nel core	2.0 m/s
Portata (nominale di refrigerante primario)	2500 kg/s
Refrigerante secondario	acqua o vapore

Tabella 2.7: Caratteristiche Generali del Progetto MYRRHA

Dove troviamo evidenziati: (1) il vessel interno, (2) il vessel esterno, (3) i tubi di raf-



Figura 2.5: MYRRHA: struttura generale

freddamento, (4) il coperchio, (5) il diaframma, (6) il circuito di spallazione, (7) il core sotto-critico, (8) le pompe del sistema primario, (9) gli scambiatori del sistema primario, (10) gli scambiatori di calore di emergenza, (11) il sistema remotizzato per lo spostamento del combustibile all'interno del vessel, (12) la zona per lo stoccaggio del combustibile all'interno del vessel e (13) il sistema per il condizionamento del refrigerante.

2.5.2 Il Vessel e le Strutture di Sostegno degli Elementi Interni

Il vessel non è appeso, come spesso accade, dalla flangia superiore ma è interrato, e circondato da un secondo vessel esterno di protezione. Tra i due è presente un sottile strato anulare senza isolante per permettere l'ispezione diretta del vessel interno. Il calore trasferito dall'uno all'altro per convezione libera ed irraggiamento, deve però essere rimosso prima di incontrare lo strato di cemento che circonda il vessel esterno. Per questo è stato previsto tra il vessel esterno e lo strato di cemento uno schermo di tubi in cui possa circolare refrigerante a bassa temperatura ($\approx 40^{\circ}\text{C}$). Il cemento, infatti, sostituito all'acqua come schermo biologico, per evitare stress termici deve mantenere la parete interna a bassa temperatura. Il fondo del vessel sarà piatto e non emisferico perché, sebbene di peggiore resistenza meccanica, garantisce la possibilità di effettuare test ad ultrasuoni sulla piastra inferiore senza necessità di accedervi dal basso e limita il volume di Pb-Bi accumulato sul fondo.

Il vessel viene chiuso con un coperchio cilindrico di 2 m di spessore, adattato ad ospitare numerose penetrazioni di diversa dimensione. Il suo scopo è principalmente quello di sostenere i componenti interni del vessel e fare da schermo contro la forte irradiazione neutronica a tutte le apparecchiature situate sopra il vessel stesso.

Il terzo elemento fondamentale della struttura di sostegno degli elementi interni, oltre al vessel e al coperchio, è il diaframma che separa la zona inferiore, ad alta pressione e bassa temperatura, dalla zona superiore, bassa pressione e alta temperatura, del volume interno del vessel. Questo grande componente conico serve da supporto a quattro gruppi di tre tubi di alimentazione delle pompe del sistema primario e degli scambiatori di calore, ai due depositi interni per il combustibile, alla piastra superiore del core, al barrel e al sistema di condizionamento del Pb-Bi. Questo elemento è una delle sfide tecnologiche maggiori ancora

sotto analisi visto che presenta numerose penetrazioni e deve assorbire una escursione di temperatura intorno ai 137°C, cioè che resista ad una differenza dai 337°C ai 200°C.

2.5.3 Il Circuito di Spallazione

Il circuito adibito all'ottimale rendimento della sorgente di spallazione (SL) è racchiuso da un proprio vessel situato a un lato del core sottocritico. In particolare solo due tubi orizzontali collegano il tubo centrale bersaglio con il mantello del circuito di spallazione vero e proprio, come mostrato in figura (2.6). La soluzione senza finestra favorisce l'uso di protoni meno energetici su un bersaglio compatto, con elevata densità di potenza per lavorare in condizioni di alto flusso. La necessità di un acceleratore economico e compatto, come già detto prima, fa cadere la scelta su un 'high power proton accelerator (HPPA)' del tipo 350 MeV, 5mA con una resa di neutroni per protone incidente di 6.0 n/p e con potenza di 1.75 MW; di questi ben l'81.7% viene depositato come calore nel bersaglio (1.43 MW). Anche se la fisica della spallazione richiederebbe energie superiori ad 1 GeV, sembra molto più realistico restare, anche nel contesto ormai prossimo di una successiva evoluzione del progetto, entro energie tra i 600 MeV ed i 1000 MeV (nel caso si passi ad energie di 600 MeV la resa di neutroni per protoni incidenti assume il valore di 15.6 n/p). L'energia del fascio deve essere scelta di compromesso tra il progetto neutronico del core e la produzione di neutroni: il numero di neutroni prodotti aumenta con l'energia del fascio, anche se non linearmente, ma un fascio più energetico richiede anche un bersaglio più grande, soprattutto radialmente, per essere assorbito. Per di più non va dimenticato che un fascio fortemente energetico, e dunque una maggiore produzione di neutroni, comporta un forte infragilimento delle strutture a causa della formazione di idrogeno ed elio. Di contro vanno certamente prodotti abbastanza neutroni primari (3×10^{17}) per portare il core a criticità con $K_{eff} = 0.95$. Ad oggi la scelta del più adatto acceleratore è fortemente vincolata dal fattore stabilità che lo stesso riesce a garantire nella produzione del fascio di protoni realmente prodotto: l'affidabilità dell'ADS dipende fortemente dal numero di possibili 'trips' dell'acceleratore. Se l'interruzione del fascio, in particolare, è superiore al secondo l'inerzia termica del sistema non riesce a far fronte al repentino calo di potenza e di temperatura negli elementi interni del reattore che sottopone le strutture ai conseguenti stress termici. Un numero accettabile di interruzioni del

fascio di protoni per più di 1 s è di 5-10 l'anno; attualmente questo numero viene superato di un ordine di grandezza.

Per rimuovere tutto il calore depositato dal fascio di protoni sul bersaglio è stato progettato un adeguato sistema di refrigerazione e condizionamento che si occupa, appunto, di refrigerare e mantenere sempre costante il livello di liquido su cui va ad insistere il fascio di protoni, e che mantiene il vuoto nel canale che collega il bersaglio all'ultimo stadio dell'acceleratore. La necessità di avere il circuito decentrato rispetto al core è legato a diverse ragioni: prima di tutto per avere un flusso di neutroni elevato nel core sottocritico è necessario avere un bersaglio centrale compatto in cui c'è spazio solo per il LBE; inoltre adottando la soluzione di bersaglio nudo è indispensabile posizionare le pompe per l'alimento dell'eutettico sotto il livello della superficie libera da mantenere sempre costante; per ultimo a causa dell'alto flusso neutronico sarebbero necessarie operazioni di manutenzione continue, impossibili in così poco spazio.

Costruendo in modo compatto e indipendente dal core tutto il circuito per la spallazione, vengono lasciate maggiori flessibilità: per esempio creando uno spazio nel diaframma, nella piastra superiore del core, e nel coperchio, per l'alloggiamento del vessel di sostegno del circuito di spallazione è possibile estrarre tutto il blocco dal vessel principale e procedere con le operazioni di ispezione e manutenzione.

Il Pb-Bi contenuto nel serbatoio di alimento cade per gravità dentro ad un tubo anulare che circonda il condotto in cui entra il fascio di protoni nel core. La portata è determinata dalla geometria del tubo e dalla differenza di altezza tra il serbatoio e la superficie libera del bersaglio. Per di più andrà prevista la presenza di una pompa a funzionamento magnetico per metalli liquidi in grado di aggiustare anche le minime oscillazioni del livello del pelo libero rispetto alla posizione ottimale del bersaglio misurata con un sistema ottico di rivelazione, 'Light Detection And Ranging (LIDAR)'.

Uno scambiatore di calore, con il compito di rimuovere tutto il calore depositato dal fascio di protoni sul bersaglio, è posizionato nella parte inferiore del circuito di spallazione. Il fluido secondario è fornito dal Pb-Bi del circuito primario del reattore che scorre attraverso il diaframma a causa della differenza di pressione ed entra quindi nei condotti di ingresso allo scambiatore di calore del circuito di spallazione: uno scambiatore a tubi dritti, ad una

sola passata ed il flusso controcorrente. Già ad una prima stima della capacità di estrazione dello scambiatore è stato calcolato che un fascio di 121 tubi, lunghi 0.79 m, con 5/8 di pollici di diametro interno e 0.065 pollici di spessore possono rimuovere il calore generato nel circuito di spallazione con una portata di 523 kg/s del fluido secondario. In realtà la differenza di temperatura prevista per il LBE del circuito di spallazione è di 335°C– 240°C raggiungibile con una portata di 104 kg/s. Altri componenti del circuito di spallazione sono: la pompa principale di circolazione, un sistema ausiliario per il controllo dell'O₂ contenuto nel refrigerante, tutta la strumentazione necessaria, il sistema per il mantenimento del vuoto, uno spesso schermo sulla parte superiore del vessel con pesi aggiunti per ovviare al problema del galleggiamento. Per evitare la contaminazione della beam line da parte dei gas rilasciati a seguito delle reazioni di spallazione nella zona della superficie libera del bersaglio tutto il circuito è mantenuto sotto condizione di vuoto.

2.5.4 Il Core Sottocritico

Il combustibile che si prevede di usare sarà composto per la maggior parte da pellets di ossidi misti (MOX) con una percentuale di plutonio del 20% o del 30%, attualmente la seconda soluzione sembra la più probabile. Le dimensioni della barretta vedono una lunghezza attiva di 600 mm e diametro di 5.4 mm, a questi vanno aggiunti, alle due estremità, il riflettore (ZrO₂), il plenum adibito alla raccolta dei prodotti di fissione gassosi e dei gas nobili, e la molla di posizionamento. Tutto questo porta ad una dimensione totale della barretta di 1200 mm racchiusa da una camicia con diametro esterno di 6.55 mm e di materiale dalle elevate caratteristiche di resistenza alla corrosione e all'infragilimento neutronico quale il FMS, 'ferritic-martensitic-steel (T91)' che per ora sembra essere il più indicato. In figura (2.7) è riportata l'immagine semplificata della barretta di riferimento del MYRRHA-Draft 2 [2], mentre in tabella (2.8) ne vengono elencate le caratteristiche principali.

Ogni elemento di combustibile contiene 91 barrette posizionate con reticolo triangolare, posizionate correttamente da una griglia interna con passo di 8.55 mm assicurato tra una barretta e l'altra. L'elemento di combustibile è un involucro di forma esagonale e di lunghezza complessiva di 1844 mm che termina alle estremità superiore ed inferiore con due bocchelli da cui entra il fluido refrigerante, come mostrato in figura (2.8). Il passo tra un elemento di

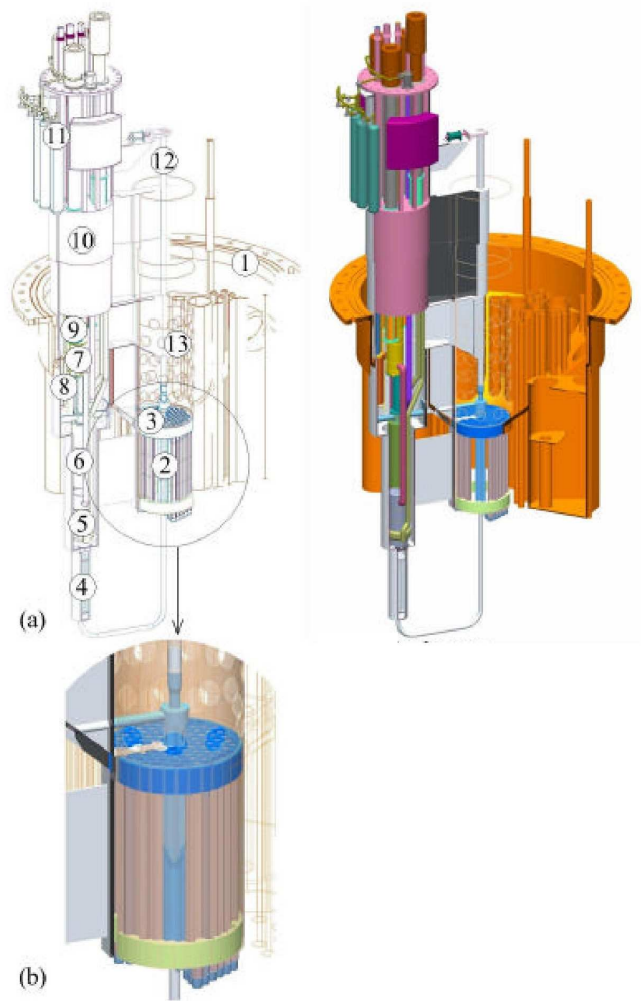


Figura 2.6: a) Circuito di spallazione; b) Dettaglio del core sottocritico

Incamicatura	
materiale	acciaio martensitico T91
diametro estero	6.55 mm
diametro interno	5.55 mm
lunghezza	1200 mm
Distanziatore elicoidale sulla superficie del clad	
numero	1
materiale	acciaio martensitico T91
diametro	1 mm
lunghezza	400 mm
Tappi all'estremità	
numero	2 (superiore ed inferiore)
materiale	acciaio martensitico T91
diametro	5.55 mm
lunghezza	20 mm
Pellets del segmento di riflettore	
numero	10 × 2 (superiore ed inferiore)
materiale	ZrO ₂
diametro	5.35 mm
lunghezza di ogni segmento	100 mm
numero	100
materiale	MOX
diametro	5.40 mm
altezza	60 mm
Plenum inferiore	
lunghezza	300 mm
Plenum superiore	
lunghezza	60 mm
materiale della molla di posizionamento	Inconel 750
diametro esterno della molla	5.4 mm
Gas di riempimento	
composizione chimica	100% He ₂
pressione interna	0.5 MPa

Tabella 2.8: Caratteristiche della barretta di riferimento del MYRRHA-Draft2

combustibile ed il successivo di 87 mm.

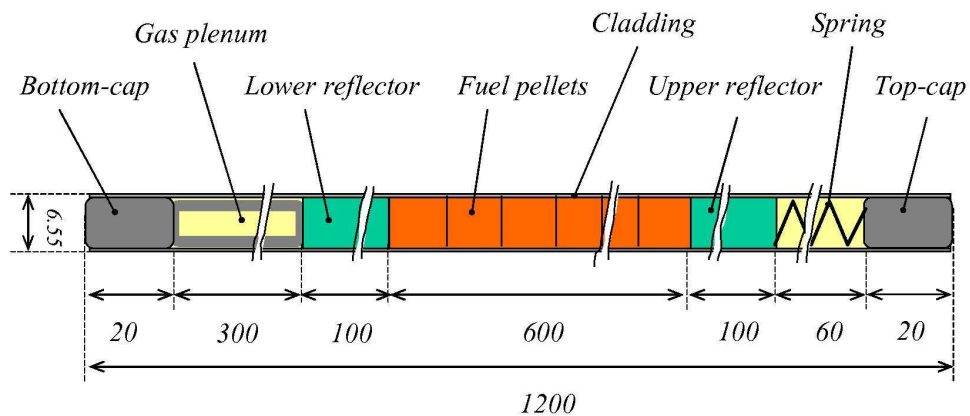


Figura 2.7: Barretta di combustibile

Gli elementi di combustibile vengono inseriti dal basso attraverso appositi fori nella piastra inferiore del core e rimangono in posizione grazie al galleggiamento. Il barrel che circonda il core sottocritico non permette che gli elementi si spostino dalla loro posizione iniziale. Il core è stato progettato per ospitare 99 elementi di combustibile attorno al condotto di spallazione anche se, per ora, il progetto si ferma al riempimento con MOX solo dei primi 45. Infatti, per garantire la sottocriticità i rimanenti alloggiamenti verranno occupati da ‘assembly’ fittizi, ‘dummy’, contenenti materiale riflettente e schermante.

2.5.5 Il Sistema Primario di Raffreddamento

La portata nominale del refrigerante primario è stata calcolata sui valori di potenza nominale del core di 50MWth e ipotizzando un aumento massimo di 200°C della temperatura del fluido nel calcolo di barretta più calda. La condizione di densità di potenza massima si

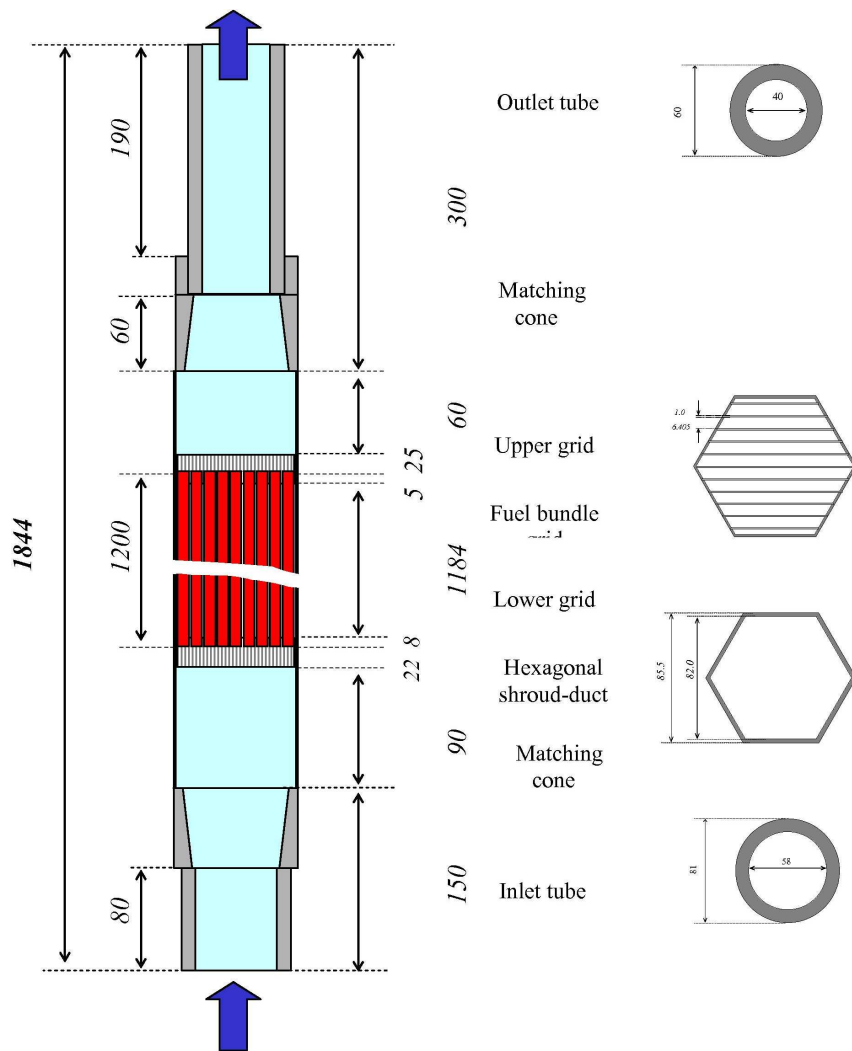


Figura 2.8: Elemento di combustibile

viene ad avere solo in prossimità di alcuni elementi di combustibile più vicini alla sorgente di spallazione. Per questo potrebbe essere presa in considerazione l'ipotesi di prevedere dei restringimenti nella parte superiore dell'elemento di combustibile o in prossimità della piastra di sostegno superiore al fine di creare le condizioni di refrigerazione adatte ad ottenere lo stesso incremento di temperatura su tutti gli elementi di combustibile indipendentemente dalla loro posizione. L'incremento nominale medio di temperatura del refrigerante primario è di 137°C con portata del fluido attraverso il core di 2500 kg/s (che comporta come già detto una velocità di 2 m/s dell'eutettico Pb-Bi). Va tenuto conto che la potenza generata all'interno del vessel non è solo data dal contributo della potenza nominale prodotta dal core (50 MWth), ma anche dal calore prodotto da altre sorgenti (1.8MWth):

- il calore di decadimento del fuel stoccato durante il periodo di interim storage (0.25 MWth);
- il calore prodotto all'interno del vessel dal prodotto di attivazione Po-210 (0.05MWth dopo tre anni di funzionamento);
- il calore prodotto sul bersaglio di spallazione dal fascio di protoni (1.4 MWth);
- il calore prodotto dal funzionamento delle pompe principali (0.1 MWth);

In ogni caso il sistema primario è stato progettato per rimuovere fino a 60 MWth.

Il sistema secondario prevede l'utilizzo di acqua come fluido negli scambiatori di calore. La scelta dell'acqua vanta di una affermata tecnologia ed di ampia esperienza. Ad oggi sono due le scelte tecnologiche per realizzare questi scambiatori LBE-acqua: acqua sotto raffreddata o acqua in ebollizione. La prima soluzione nel caso di rotture del condotto di alimentazione agli scambiatori potrebbe portare a condizioni prontoscritiche nel core. La seconda ipotesi vedrebbe utilizzata acqua in ebollizione con conseguente minore pressione e minore portata di fluido in caso di rottura. Per di più in tal caso andrebbe prevista una chicane nel tubo di collegamento tra l'uscita del LBE dallo scambiatore di calore e l'ingresso della pompa, che permetterebbe al separazione dell'acqua dal flusso principale di LBE in caso di rottura di qualche tubo dello scambiatore di calore, vedi anche figura (2.9) . Questo permetterebbe la facile rivelazione di tale rottura con sensori in grado di registrare la presenza di vapore nella chicane.

Il progetto di riferimento del MYRRHA prevede ad oggi l'impiego di quattro pompe ciascuna collegata a due scambiatori di calore installati alla periferia del vessel. Le pompe impiegate saranno verticali con girante situata all'estremità superiore dell'asse. Il motore elettrico di ognuno è posto sul coperchio del vessel, riparato dall'elevato flusso neutronico interno. Una pompa è in grado di garantire un terzo della portata totale del fluido in condizioni di potenza nominale. Le caratteristiche principali delle pompe sono riportate in tabella (2.9).

Numero di pompe	4
RHS	0.5 bar
Portata per ciascuna pompa:	
nominale	625 kg/s
di progetto	700 Kg/s
massima	1000 kg/s
Temperatura alla girante	200°C

Tabella 2.9: Caratteristiche delle pompe del sistema primario

Gli scambiatori di calore del sistema primario saranno del tipo a tubi dritti, 'once-trough', in flusso controcorrente; le principali caratteristiche sono riportate in tabella (2.10). La pressione dell'acqua sotto raffreddata, circolante all'esterno dei tubi contenenti il LBE, è di 25 bar. Vengono escluse condizioni seppur locali di solidificazione anche durante eventuali 'trips' dell'acceleratore di protoni dato che il fluido secondario stesso è mantenuto ad una temperatura di 124°C.

L'entrata in funzione del sistema di refrigerazione di emergenza (ECCS) in caso di perdita del funzionamento delle pompe del circuito primario e conseguente perdita di funzionalità degli scambiatori di calore del circuito primario, è sempre accompagnata dallo spegnimento del fascio di neutroni. In ogni caso deve essere progettato per smaltire il 7% della potenza nominale e il calore di attivazione nelle strutture dovuto al Po-210. Più nei dettagli, il sistema di refrigerazione di emergenza lavora indipendentemente dal sistema di raffreddamento primario ed è composto da tre circuiti: il primo a LBE, il secondo ad acqua ed il terzo ad aria. In aggiunta il sistema di emergenza è stato progettato per funzionare in base ad un principio

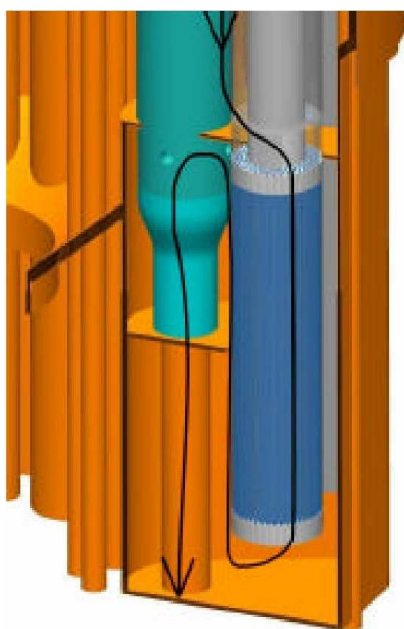


Figura 2.9: Chicane di collegamento tra la pompa e lo scambiatore del circuito primario

fisico che non necessita né dell'intervento umano né di potenza, semplicemente in base alla convezione naturale.

2.5.6 Sistema Remotizzato per la Movimentazione del Combustibile nel Vessel

E' stato deciso di stoccare il combustibile nel vessel per permettergli di esaurire parte del calore di decadimento che è massimo soprattutto appena dopo lo shut-down del reattore. Per questo sono state progettate due zone per il deposito temporaneo degli elementi di combustibile all'interno del vessel; ognuna di queste è in grado di contenere il carico di un intero core. Questo tipo di movimentazione, comprese poi le operazioni di carico e scarico vere e proprie, saranno effettuate da due macchine, numero necessario per superare l'ostacolo rappresentato dal circuito di spallazione, a controllo remotizzato computerizzato in grado di caricare, o scaricare, il combustibile dal basso, vista la penuria di spazio nella zona superiore che non permette simili operazioni. La struttura della macchina si presenta come un corpo principale in rotazione su una base di supporto, cui è attaccato un braccio meccanico. Il braccio può,

Prestazioni di un solo scambiatore:	
nominali	6.25 MW
design	7.5 MW
maximum	10 MW
Prestazioni generali: nominale	50 MW
progetto	60 Mw
Diametro esterno dei tubi	5/8 inch
Spessore dei tubi	0.042 inch
Passo dei tubi	1.4 × 5/8 inch
Materiale dei tubi	Cr2 _{1/4}
Materiale del mantello	A316L

Tabella 2.10: Caratteristiche principali degli scambiatori di calore

oltre che ruotare con la base, spostarsi in alto o in basso con un'escursione di due metri, arrivando ad estrarre così gli elementi di combustibile dal core. Altri bracci meccanici e manipolatori remotizzati saranno situati nella camera ad atmosfera controllata priva di ossigeno che ospita tutto il vessel. Dovranno essere in grado di estrarre definitivamente gli elementi di combustibile dal core e di realizzare tutte le operazioni di ispezione e manutenzione evitando l'esposizione del personale e mantenendo elevato il fattore di disponibilità dell'impianto.

Capitolo 3

Applicazione del codice di calcolo

ALEPH-1.1.2 per lo studio del

combustibile irraggiato in un LWR

Il principale scopo del presente lavoro è andare a fornire una valutazione della capacità di bruciamento degli attinidi minori utilizzando, come possibile mezzo, un reattore sottocritico iniettato del tipo Accelerator Driven System-ADS; tale valutazione, a causa della complessità propria del problema che è stato affrontato unita al tempo disponibile (6 mesi) per lo sviluppo di questa tesi, è stata affrontata attraverso alcune scelte semplificative che hanno portato a focalizzare l'attenzione solo su determinati aspetti, lasciando ad altri un carattere più qualitativo e approssimativo da approfondire con uno studio futuro.

La prima scelta che è stata affrontata è relativa al tipo di reattore sottocritico su cui basare l'investigazione ed i calcoli. In tale senso sarebbe stato possibile concentrarsi ad utilizzare le caratteristiche tecniche pensate per il progetto MYRRHA-'Multi-purpose hybrid Research Reactor for High-tech Applications', un ADS sperimentale in stato di progetto avanzato in studio presso il centro 'Studiecentrum voor Kernenergie-Centre d'étude de l'énergie nucléaire'SCK-CEN di Mol (Belgio) dove anche il presente lavoro è stato sviluppato, oppure rivolgere l'attenzione ai progetti, attualmente in stato di avanzamento, di altri eXperimental-ADS (quali ad esempio i prototipi per l'X-ADS presentati da Framatome-ANP ed ANSALDO NUCLEARE all'interno del FP5-'5th Framework Programme-(1998-

2002)'). Si è preferito, però, prendere in considerazione un reattore con lo scopo di diventare un prototipo su scala industriale e non puramente sperimentale, quindi con potenze di centinaia di MWth (nella fattispecie 400 MWth) anziché i 50 MWth previsti per il MYRRHA, o gli 80 MWth degli altri prototipi attualmente sotto sviluppo. Prendendo, comunque, come punto di partenza le conoscenze accumulate in campo neutronico e computazionale a seguito del progetto MYRRHA, ci siamo concentrati sullo studio del progetto del prototipo di reattore industriale sottocritico '*EFIT-European Facility for Industrial Transmutation*', parte centrale del 'Integrated Project EUROTRANS (IP EUROTRANS-2004) interno al FP6-'6th Framework Programme-(2002-2006)' dell'EURATOM. Le ricerche, per lo sviluppo di EFIT, sono attualmente portate avanti da 45 partecipanti provenienti da 14 Paesi Europei differenti (10 industrie, 18 centri di ricerca nazionali e 17 università all'interno del network ENEN-European Nuclear Education Network). Rimandando al Capitolo 5 per una descrizione più dettagliata delle caratteristiche considerate per questo reattore, è utile, al fine di giustificare appieno fin da ora la ricerca fatta, ricordare che il progetto considerato (EFIT) è ancora a livello larvale, privo cioè di una lista completa di specifiche tecniche ben definite su cui i vari partners in gioco siano in accordo. Questo, da un lato, ha lasciato vari gradi di libertà per l'implementazione della nostra ricerca, come ad esempio il poter scegliere il numero di 'assemblies' che formano il core, le concentrazioni di attinidi minori e di plutonio presenti nel combustibile da caricare e la lunghezza dei cicli di irraggiamento, ma dall'altra parte ci ha permesso solo di dare una stima qualitativa della capacità di bruciamento degli attinidi minori e più in generale, dell'efficienza del processo di trasmutazione, dato che queste due caratteristiche dipenderanno fortemente dai parametri scelti nel progetto finale del reattore, e solo dopo aver ben definito questi sarà possibile sviluppare ricerche più dettagliate a riguardo. Dunque, il presente lavoro viene ad essere parte delle preliminari valutazioni che vengono fatte inerentemente a questo progetto.

Per avere un'idea più chiara dei benefici che la tecnica della trasmutazione può apportare, in primo luogo in riferimento al trattamento degli attinidi minori, è utile rendersi conto del punto di partenza, cioè di cosa effettivamente, in termini di percentuali isotopiche, viene prodotto dai reattori oggi in esercizio, per poterlo utilizzare come termine di paragone rispetto alle quantità di radionuclidi che vengono prodotte/bruciate a seguito di trasmutazione.

Questo termine di paragone, utilizzando opportune ‘unità di misura’, permette di quantificare l’efficienza di trasmutazione dell’ADS in confronto alla situazione attuale. In questo lavoro è stato scelto di considerare la *radiotossicità* del combustibile esaurito (o degli HLW) come unità di misura per sviluppare questa valutazione. Si rimanda al Capitolo 4 per una dettagliata analisi della definizione e dell’evoluzione che il concetto di radiotossicità ha subito nel corso degli anni, nonché per l’applicazione di tale analisi alla valutazione della radiotossicità del combustibile esaurito in uscita da un reattore ad acqua leggera di tipo PWR, considerato come riferimento.

Il presente capitolo, dunque, ha lo scopo di descrivere le scelte e gli strumenti che sono stati utilizzati per valutare le quantità di radionuclidi in uscita dai reattori attualmente in esercizio, mostrandone, poi, i risultati ottenuti in termini di concentrazioni dei vari isotopi (g/cm^3 o anche g/ton). Tali concentrazioni sono servite come input per il calcolo della radiotossicità del combustibile esaurito, presentato nel prossimo capitolo (Capitolo 4).

Non potendo, però, affrontare tutte le varie tipologie di reattori in esercizio ed i vari cicli del combustibili utilizzati, è stato necessario fare alcune scelte ponderate al fine di fornire una stima qualitativa adeguata delle quantità in gioco. Per questo motivo è stato scelto un unico tipo di reattore come riferimento (PWR da 1000 MWe-Westinghouse) su cui costruire due valutazioni leggermente differenti che riescono a spiegare al meglio aspetti complementari, come verrà spiegato meglio in seguito. La prima di esse è in grado di fornire una stima di ciò che esce effettivamente da un reattore dopo 4.5 anni di irraggiamento (burn-up allo scarico di 50 GWd/toniHM), allargando lo studio anche all’evoluzione di tale combustibile esaurito fino a 10^8 anni per trovare il valore in cui la radiotossicità dello SNF arriva ad eguagliare la radiotossicità relativa al minerale estratto da miniera (vedi Capitolo 4) raggiungendo il ‘reference level’, ci teniamo a sottolineare che su questo primo tipo di approccio sono state sviluppate la maggior parte delle considerazioni presentate in questo lavoro, soprattutto per quanto riguarda la valutazione e l’evoluzione della radiotossicità. La seconda di essa permette di stabilire, invece, le quantità di combustibile accumulato, da un singolo PWR, durante un’intera vita di esercizio dell’impianto (58.5 anni, considerando la strategia PLEX-PLan EXtension life); a questa scelta si fa capo per la determinazione del vettore isotopico (Pu, Np, Am e Cm) usato per la valutazione della composizione in ingresso dell’ADS

come verrà spiegato più nel dettaglio nel Capitolo 5. Valutazione utile se si pensa all'inserimento del ADS nel ciclo del combustibile sotto l'opzione di 'phase-out' dalla produzione elettrica-nucleare.

Il fatto di considerare un unico reattore, permettendo di portare avanti più agevolmente le nostre valutazioni, non ha comportato sostanziali errori, perché, come mostrato in seguito, i risultati ottenuti risultano essere coerenti con i dati che attualmente si possono trovare in letteratura, per quanto riguarda, sia le concentrazioni medie di isotopi prodotte a seguito di irraggiamento in un LWR, sia il confronto fra le curve di radiotossicità ottenute a seguito dei nostri calcoli e quelle che è possibile trovare in letteratura (vedi Capitolo 4).

Ci si è avvalsi, per la valutazione delle quantità isotopiche, di calcoli sviluppati utilizzando un codice di nuova generazione, ALEPH-1.1.2 [1], particolare tipo di codice di calcolo evolutivo Monte Carlo, che utilizza al suo interno MCNPX, o MCNP [19], ORIGEN2.2 per l'evoluzione isotopica [20] ed NJOY99.112 [25] per il trattamento delle librerie di dati nucleari in formato ENDF. Tale codice, su cui sono stati sviluppati anche i calcoli relativi al progetto MYRRHA, è attualmente sotto sviluppo presso il centro SCK-CEN di Mol.

3.1 Alla ricerca del modello di riferimento per un LWR

Di seguito sono presentate le scelte fatte per l'individuazione del modello di reattore da utilizzare. Fermo restando che ci siamo soffermati sulla tipologia dei reattori ad acqua leggera, data la loro supremazia di utilizzo a livello mondiale, si è partiti restringendo ancora di più l'attenzione allo scenario nucleare belga, non solo perché il presente lavoro è stato sviluppato presso il centro SCK-CEN in Belgio, ma anche perché ci ha permesso di avere a disposizione alcuni dati precedentemente elaborati, da poter utilizzare come punto di partenza e come possibile verifica ai calcoli fatti in questo lavoro.

Per poter prendere una adeguata decisione per quanto riguarda il modello di reattore da considerare, si è partiti da una breve ricerca preliminare inerentemente alle tipologie e alle caratteristiche degli impianti presenti sul territorio belga. Il filo conduttore di questa ricerca è stato quello di trovare il modo più adeguato per poter schematizzare questo caso particolare, che sia, comunque, abbastanza significativo al fine di considerare un livello più generale

possibile. E' stato preso, infatti, a riferimento il reattore di Doel-3, PWR da 1000 MWe, caricato con UO_2 arricchito al 4.3% in U-235, con burn-up allo scarico di 50 GWd/toniHM raggiunto dopo 3 cicli di irraggiamento di 18 mesi ciascuno. Ci accingiamo ora a descrivere le motivazioni che hanno portato a tale scelta, partendo dal restringere l'interesse al parco dei reattori belga.

3.1.1 Parco reattori belga

La potenza nucleare installata sul territorio belga è di 5800 MWe, tale da coprire il 40% del totale di potenza elettrica, fornita da 7 reattori costruiti in due siti dedicati, Doel (4 reattori) e Tihange (3 reattori) (figura (3.1)), in aggiunta a questi, il Belgio ha una compartecipazione per il 25% a due unità francesi, B1 e B2 (Chooz), arrivando ad un totale di 6485 MWe nucleari installati.



Figura 3.1: Siti nucleari sul territorio belga

Tali reattori sono tutti di tipo pressurizzato (PWR-Westinghouse), messi in esercizio in un

arco di tempo abbastanza limitato, fra il 1975 ed il 1985, ma presentano comunque differenze abbastanza significative l'uno dall'altro, riguardanti soprattutto:

- la potenza elettrica (e termica),
- l'arricchimento iniziale del combustibile,
- la geometria dell'elemento di combustibile (dimensioni barrette, passo del reticolo, etc.),
- il burn-up allo scarico raggiunto dal combustibile,
- la lunghezza del ciclo di irraggiamento subito dal combustibile,

tutti parametri necessari per un'adeguata costruzione del modello di impianto su cui andare a sviluppare i calcoli. Per non dilungarsi nella descrizione dettagliata dei singoli reattori, non particolarmente significativa per lo sviluppo di tale studio, si riportano due tabelle riassuntive, una riferita al sito di Doel, tabella (3.1) e l'altra al sito di Tihange, tabella (3.2), delle caratteristiche più significative necessarie ai nostri scopi.

Un parametro particolarmente importante per la corretta modellizzazione della cella elementare, elemento base su cui sono stati implementati i calcoli del core del PWR, è il rapporto *combustibile/moderatore*-(F/M) riferito ad un singolo elemento di combustibile. Infatti, la conoscenza di tale rapporto permette di ricavare le dimensioni da imporre al *passo equivalente* del reticolo (vedi Paragrafo (3.2.1)), grandezza base su cui è stata sviluppata la modellizzazione geometrica del core di un PWR al fine di svolgere i relativi calcoli Montecarlo necessari ai nostri scopi.

Il rapporto 'combustibile/moderatore' e quindi il valore che ne consegue per il passo equivalente è stato calcolato per tutti reattori belga, portando ad una possibile suddivisione in 3 grandi famiglie, nate dal solo utilizzo di questo parametro come agente discriminante (vedi tabella (3.3)).

Alla luce dei valori del passo equivalente calcolato per i vari reattori, che indicano come non sia possibile schematizzarli tutti contemporaneamente, e del fatto che la maggior parte dei reattori belga carica elementi di combustibile con 17*17 alloggiamenti, si è presa la decisione di sviluppare i calcoli solo sulla base dei dati tecnici relativi al reattore Doel-3,

Proprietà	Doel-1	Doel-2	Doel-3	Doel-4
BOL	1975	1975	1982	1985
Potenza elettrica (MWe)	392	433	1008	985
Combustibile	UO ₂	UO ₂	UO ₂ , MOX	UO ₂
Arricchimento	3.95%	3.95%	3.9%-4.3%	3.85%
Tipo 'assembly'	14*14	14*14	17*17	17*17
no. fuel pin/assembly	176	176	264	264
no. tubi guida/assembly	20	20	24	24
no. tubi strumentazione/assembly	0	0	1	1
Raggio delle barrette (mm)	4.728	4.728	4.095	4.095
Raggio in. clad (mm)	4.928	4.928	4.180	4.180
Raggio out. clad (mm)	5.588	5.588	4.750	4.750
Passo (mm)	14.732	14.732	12.60	12.60
Burn-up medio (GWd/toniHM)	45	45	50	50
Lunghezza del ciclo (mesi)	11	11	11-18	12
Consumo annuo (ton IHM)	8.2	8.2	19.34	20.6

Tabella 3.1: Alcune caratteristiche degli impianti nucleari belga: unità di Doel

Proprietà	Tihange-1	Tihange-2	Tihange-3
BOL	1975	1982	1982
Potenza elettrica (MWe)	962	1008	1015
Combustibile	UO ₂	UO ₂ , MOX	UO ₂
Arricchimento	3.9%	3.8%	3.8%
Tipo 'assembly'	15*15	17*17	17*17
no. pin/assembly	204	264	264
no. tubi guida/assembly	20	24	24
no. tubi strumentazione/assembly	1	1	1
Raggio delle barrette (mm)	4.647	4.095	4.095
Raggio in. clad (mm)	4.742	4.180	4.180
Raggio out. clad (mm)	5.359	4.180	4.180
Passo (mm)	14.30	12.60	12.60
Burn-Up medio (GWd/toniHM)	45	45	45
Lunghezza del ciclo (mesi)	18	15	18
Consumo annuo (ton IHM)	19.75	21.1	21.2

Tabella 3.2: Alcune caratteristiche degli impianti nucleari belga: unità di Tihange

Proprietà	Caso A	Caso B	Caso C
	Doel-1,2	Tihange-1	Doel-3,4 Tihange-2,3
F/M	0.50911	0.508647	0.51937
Passo equivalente	1.5466	1.4955	1.3127

Tabella 3.3: Rapporto F/M in un elemento di combustibile e valore associato del passo equivalente del reticolo

PWR da 1000 MWe in funzione dal 1982. Questo ha permesso di snellire la prima parte del lavoro, relativa alla determinazione del termine di paragone per l'ADS, mantenendo però una buona coerenza con i dati trovabili in letteratura per quanto riguarda le percentuali stimate dei vari isotopi in uscita da un reattore ad acqua leggera.

La semplificazione più importante che è stata fatta, però, riguarda l'aver ipotizzato un core come se fosse formato da un reticolo infinito di celle elementari identiche (modellizzate a partire dall'elemento di combustibile) con un passo pari al passo equivalente considerato. In questa prima parte del lavoro, dunque, non si andrà a simulare la geometria reale del core di un LWR, con una geometria ben definita, perché non risulta essere strettamente necessario per raggiungere l'obiettivo previsto, cosa che invece dovrà essere fatta nel caso di un reattore ADS, ove la presenza della sorgente di spallazione fa sentire il suo peso, imponendo calcoli su una geometria del core ben precisata che portano a complicare, in modo non trascurabile, l'analisi da svolgere. L'errore commesso in tale approssimazione, considerare un reticolo infinito di celle elementari anziché un sistema multiassemblies, può essere considerato trascurabile ai fini della nostra valutazione [7].

La scelta di studiare una sola cella, come se fosse inserita in un reticolo infinito, è stata possibile perché il codice di calcolo utilizzato, ALEPH-1.1.2 [1], fornisce in uscita i valori delle densità dei vari isotopi, espresse in g/cm^3 , permettendo di trovare una stima adeguata delle quantità totali rilasciate da un reattore, con la semplice moltiplicazione del valore ottenuto per il volume relativo alle quantità totali di combustibile inizialmente inserito nel reattore, o rilasciate ad ogni ciclo.

Sulla base di questo approccio è stato possibile sviluppare un calcolo analogo, come è stato fatto nella determinazione della radiotossicità relativa allo SNF, prendendo i valori delle concentrazioni ottenute per i vari elementi, espresse in g/cm^3 , valutando il volume relativo ad *una tonnellata di metallo pesante* che viene inizialmente caricata nel reattore, e andando a moltiplicare tali concentrazioni isotopiche per il valore del volume, ottenendo così le concentrazioni esprimibili in grammi di isotopo per ogni tonnellata di IHM caricata, unità di misura che spesso si trova in letteratura inerentemente alla determinazione delle quantità prodotte. Tale scelta nasce soprattutto per essere coerente con quanto espresso attraverso la dettagliata analisi sulle unità di misura utilizzate negli anni per esprimere la radiotossicità

(vedere Capitolo 4).

3.1.2 Reattore di riferimento

Il reattore Doel-3, preso a riferimento nelle valutazioni presenti in questo lavoro, ha caratteristiche comuni alla maggior parte dei reattori PWR installati nel Mondo (vedi tabelle (3.1), (3.4)), ed è per tale ragione che sostanzialmente è stato scelto; permettendo così di avere una visione la più generale possibile. In aggiunta, se restringiamo l'interesse al particolare caso belga, a seguito di tale scelta sarà abbastanza facile schematizzare l'intero parco nucleare per avere, oltre a ciò che esce da un singolo reattore, anche una valutazione del totale dei rifiuti nucleari prodotti ogni anno sul territorio nazionale, grandezza utile da determinare quando si voglia stimare l'ammontare dei rifiuti radioattivi accumulati in vista dell'implementazione corretta di una strategia di trattamento che miri alla completa riduzione dei rifiuti.

E' possibile, infatti, suddividere l'intero parco nucleare belga (circa 6000 MWe) come se fosse prodotto da 6 reattori da 1000 MWe ciascuno identici al reattore di Doel-3; così una volta note le percentuali in uscita da un singolo reattore sarà istantaneo valutare quelle dell'intero parco nucleare.

Partendo dai dati riportati nelle tabelle (3.1), (3.2) e (3.4), si fa presente che sono state necessarie ulteriori approssimazioni, più specifiche, relativamente al burn-up medio allo scarico, considerando un valore massimo di 50 GWd/toniHM, all'arricchimento del combustibile, scelto del 4.3% in U-235 perché è l'arricchimento presente nel combustibile attualmente caricato, e alla lunghezza del ciclo presa pari a 4.5 anni (3 cicli di 18 mesi ciascuno), lunghezza che si usa indicare quando ci si riferisce ad un generico PWR da 1000 MWe. Inoltre, essendo Doel-3 uno dei due reattori belga che fra il 1995 ed il 2005, ha caricato combustibile ad ossidi misti di uranio e plutonio (MOX), è opportuno ricordare che per i calcoli fatti in questa tesi, non è stato preso in considerazione questo ulteriore aspetto, perché sarebbe stato troppo specifico al caso belga, ed anche perché, si torna a ripetere, questa parte non ha la pretesa di essere così rigorosa da giustificare questa valutazione aggiuntiva che porterebbe solo ad un affinamento dei risultati e non ad un sostanziale cambiamento di ciò che è stato ottenuto.

Combustibile	
Materiale	UO ₂
Arricchimento	4.3% in U-235
Temperatura media	900 K
Densità	10.582 g/cm ³
Incamicatura	
Materiale	Zr-4 (alloy Zr- Nb)
Temperatura media	600 K
Densità	6.56 g/cm ³
Moderatore	
Materiale	H ₂ O
Temperatura media	600 K
Densità	0.7295 g/cm ³
Concentrazione media di Boro	600 ppm
Parametri di irradiazione	
Burn-Up	50 GWd/toniHM
Lunghezza ciclo	18 months

Tabella 3.4: Caratteristiche del reattore di riferimento: Doel-3

3.2 Modellizzazione della cella elementare di un PWR

Brevemente, prima di andare a descrivere in che modo è stata modellizzata la cella elementare per il calcolo del core di un PWR, si richiamano le caratteristiche principali del codice di calcolo ALEPH-1.1.2 [1], un codice evolutivo Montecarlo per lo studio del burn-up, nato all'interno del progetto MYRRHA, per velocizzare i calcoli neutronici relativi al core. Più propriamente ALEPH-1.1.2 è un codice di interfaccia, scritto in linguaggio C++, che utilizza sia il codice MCNP che il codice MCNPX [19] per il calcolo del flusso neutronico, ORIGEN2.2 per i calcoli evolutivi della composizione [20] e NJOY 99.112 [25] per processare, in modo adeguato per il Montecarlo, i dati nucleari presenti nei databases di formato ENDF. I calcoli eseguiti nello svolgimento di questa tesi utilizzano la versione del Montecarlo MCNPX-2.5.0 (2005)[19], l'ultima versione del progetto MCNPX, iniziato nel 1994 come estensione di MCNP a tutte le particelle e a tutte le energie, perché ci permette di accoppiare agevolmente la simulazione dell'acceleratore di particelle con il core dell'ADS, e per analogia è stata utilizzata anche in questa prima parte riguardante i reattori termici. I dati utilizzati provengono dalle librerie europee interne al progetto JEFF-3, 'Joint Evaluated Fission and Fusion file project' sviluppato dall'OECD/NEA al fine di fornire un più estensivo set di dati, in confronto alle librerie esistenti vedi ad es. JEF 2.2, da poter essere utilizzato non solo per i reattori ed i cicli di combustibile già esistenti ma anche per le nuove applicazioni quali i concetti innovativi presenti nella Generation-IV, i reattori dedicati alla trasmutazione ed i reattori a fusione. In particolare è stata utilizzata l'ultima versione delle librerie rilasciata, JEFF3.1 (Maggio 2005), che attualmente è la più dettagliata in quanto prevede un gran numero di isotopi che sono stati inseriti a seguito di revisioni negli ultimi anni, quali ad esempio alcune modifiche sostanziali riguardano l'U-238 (0-30 MeV), il Pu-239 e Pu-240 (0-30 MeV) e l'Am-241 (range termico). A tal proposito il confronto fra i dati calcolati con ALEPH-1.1.2 in questo lavoro inerentemente ai reattori termici ed i dati valutati con la precedente versione di ALEPH (ALEPH-1.0.1) rispecchiano per l'americio-241 le differenze percentuali dei valori delle sezioni d'urto che sono stati implementati nel passaggio fra JEF 2.2 e JEFF 3.1, a conferma della grande flessibilità e versatilità del codice utilizzato.

In figura (3.2) è riportato il diagramma a blocchi relativo al modo di lavoro del codice ALEPH-1.1.2, dove è evidente che il codice stesso al suo interno genera gli input MCNPX

e ORIGEN necessari all'implementazione dei vari step del calcolo, lasciando all'utilizzatore solo il compito di creare un file input iniziale non molto diverso da un input MCNPX.

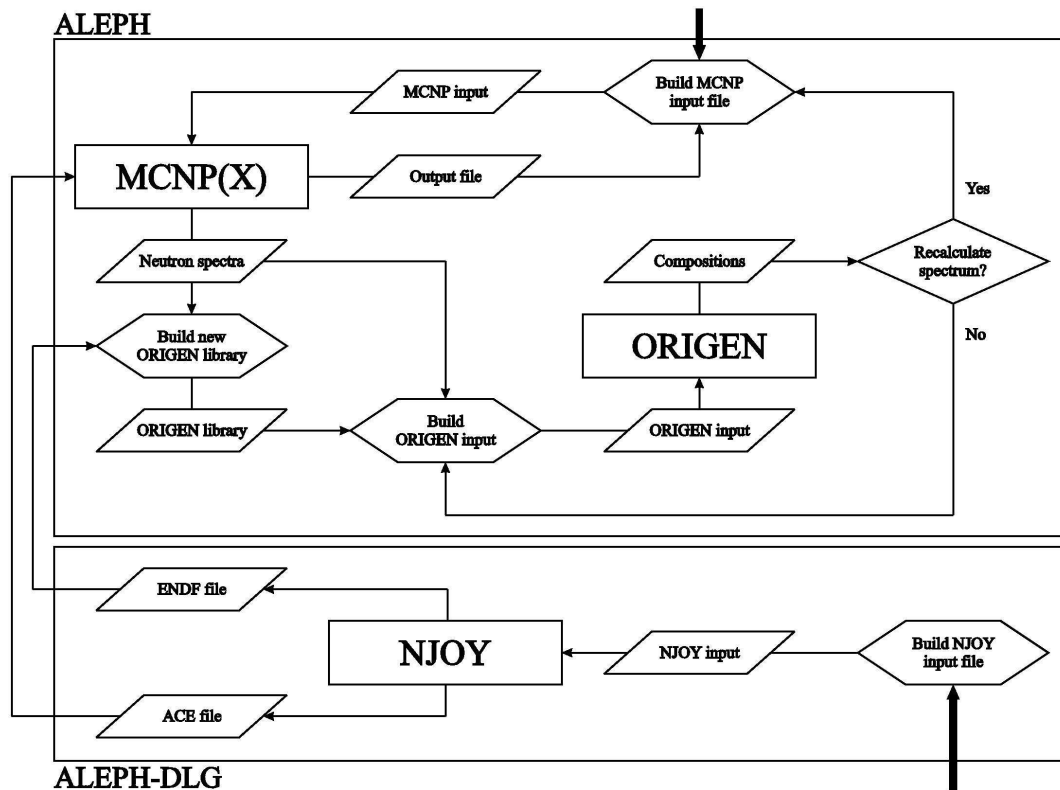


Figura 3.2: Diagramma di lavoro del codice di calcolo ALEPH-1.1.2 [1]

Rimane ora da entrare nel dettaglio del procedimento seguito per la modellizzazione del reattore (elemento di combustibile-PWR) con particolare attenzione ai dati necessari alla costruzione dell'input del codice ALEPH-1.1.2. La spiegazione relativa a tale modellizzazione, per rispettare al meglio la struttura del codice, sarà divisa in due parti distinte, in analogia all'input ALEPH-1.1.2 che prevede una prima parte specifica del codice ALEPH-1.1.2 dove sono indicati i parametri principali che fissano la storia di irraggiamento e di decadimento a cui si sottopone il materiale ed una seconda parte che consiste in un vero e proprio input MCNPX, caratterizzato, dunque, dalla descrizione della geometria (definizione di superfici e zone) e dalle composizioni dei materiali inizialmente inseriti, nonché dall'indicazione del tipo di calcolo da eseguire (criticità o a sorgente fissa). Ove si ritenga necessario, verranno fatti riferimenti specifici alle parole chiave presenti all'interno del codice, per fornire anche indi-

cazioni riguardo alla parte più applicativa seguita in questo studio. Il calcolo che è stato fatto è un calcolo in serie sviluppato su una macchina Dual XEON da 3 GHz. Verrà presentata per prima, cioè in ordine opposto a quello seguito nell'input, la parte relativa al Montecarlo, perché si ritiene utile, a fini esplicativi, iniziare a descrivere la geometria in gioco.

3.2.1 Input ALEPH 1.1.2 parte MCNPX: definizione della geometria

A questa parte della modellizzazione compete l'obbligo di trovare il modo migliore per simulare all'interno del codice di calcolo le caratteristiche specifiche del reattore reale preso in considerazione, limitando al massimo le approssimazioni in modo da rispecchiare il più possibile la realtà.

La modellizzazione fatta si riferisce ad un elemento di combustibile di PWR (Doel-3), ed è unita ad una simulazione di un reticolo infinito formato dal ripetersi dell'unica cella modellizzata, fatta tramite l'aggiunta, una volta definite le superfici esterne di delimitazione di essa, di opportune condizioni MCNPX di riflessione, in particolare il comando che lo specifica è un * posto prima dell'indicatore della superficie. In realtà questo porta a studiare l'evoluzione del materiale di una sola barretta e quindi delle storie dei vari neutroni interni ad essa, ma l'aver messo le condizioni di riflessione al contorno, come se il risultato fosse quello di un reticolo infinito, permette un guadagno nella statistica dei risultati grazie alla limitazione dei neutroni persi durante il processo, perché per ogni neutrone che esce con una certa direzione ce ne sarà un altro che entra, dal sistema infinito che circonda la cella, con la stessa direzione (ma verso opposto) e quindi come se fosse perfettamente riflesso.

L'input MCNPX a sua volta si suddivide in zone: TITLE, CELL CARDS, SURFACE CARDS e DATA CARDS, dove in modo strutturato verranno riportati i parametri che verranno descritti qui di seguito. Prima però di partire con la descrizione della modellizzazione è bene ricordare che per far girare MCNPX bisogna fornirgli l'indicazione del file particolare che contiene i dati nucleari necessari; questo file è chiamato `xmdir`, che contiene opportuni dati nucleari ed in particolare il riferimento ai files delle librerie in formato ENDF per ciascun materiale. nel nostro caso il comando specifico che è stato fornito, prima dell'input Montecarlo, è `xmdir=xmdir31` che richiama il file relativo alla libreria JEFF 3.1 utilizzata.

In primo luogo è indispensabile definire la forma della cella elementare da considerare,

dove per cella elementare si considera la barretta di combustibile in abbinamento al moderatore/refrigerante che le compete. Dato che gli elementi di combustibile di un reattore pressurizzato sono di sezione quadrata, è conveniente scegliere la stessa forma della sezione anche per il modello che si vuole costruire. La scelta è stata dunque quella di una sezione quadrata, dove al cui interno è posizionata, in modo centrato, la barretta di combustibile. In riferimento alla barretta è stata fatta un'ulteriore approssimazione, infatti, non viene considerato il gap fra l'incamiciatura e il combustibile al fine di semplificarne la modellizzazione geometrica, portando ad avere soltanto 3 zone di materiale differente da considerare (combustibile, incamiciatura e moderatore), come verrà mostrato meglio anche in seguito. Tale semplificazione apportata alla geometria, presuppone che si tenga conto da un'altra parte della presenza del gap imponendo opportune correzioni in grado da rispettarne le condizioni reali. La presenza dell'intercapedine (gap) nella struttura reale della barretta si ripercuote nel modello con una modifica alla densità dell'incamiciatura, prevedendo l'introduzione di un coefficiente moltiplicativo che ponderi la densità effettiva dell'incamiciatura sul rapporto fra il volume dell'incamiciatura e il volume totale dell'incamiciatura più il clad (eq: 3.1).

$$\rho_{clad,u} = \rho_{clad,r} \frac{V_{clad}}{V_{clad} + V_{gap}}, \quad (3.1)$$

dove: $\rho_{clad,u}$ è la densità dell'incamiciatura (modificata) che verrà utilizzata all'interno della modellizzazione, $\rho_{clad,r}$ è la densità reale dell'incamiciatura, V_{clad} è il volume dell'incamiciatura, riferita ad una barretta di combustibile e V_{gap} è il volume del 'gap' riferito ad una barretta di combustibile.

Nota questa prima correzione, è indispensabile porre l'attenzione sul fattore principale scelto per la modellizzazione dell'elemento di combustibile, cioè **la costanza del rapporto combustibile su moderatore (F/M)**. Tale rapporto è un noto per l'elemento di combustibile reale, che ci permette di ricavare i parametri mancanti per la cella da modellizzare. Per poter, però, sviluppare questo calcolo, è necessario aver fissato preliminarmente alcune dimensioni della cella, la scelta ricade nel lasciare invariato sia il raggio delle 'pellets' di combustibile sia il raggio esterno dell'incamiciatura, una volta noti questi, imponendo l'uguaglianza del F/M, si ricava il valore del passo equivalente del reticolo (pari alla dimensione del lato della cella quadrata) che è in grado di lasciare invariato il rapporto di combustibile/moderatore

(eq: 3.2).

$$\frac{F}{M} = \frac{N_{fpin}V_f}{N_{fpin}V_{w,fpin} + N_{gt+it}V_{w,gt}} = \frac{V_f}{Lp_1^2 - \pi R_{c,out}^2 L} \quad (3.2)$$

dove:

- N_{fpin} è il numero complessivo di barrette di combustibile all'interno di un 'assembly';
- N_{gt+it} è il numero totale dei tubi guida per le barre di controllo e dei tubi guida per la strumentazione all'interno di un 'assembly';
- L è l'altezza della cella;
- V_f è il volume di combustibile presente in un barretta ($V_f = \pi R_{fpin}^2 L$);
- $V_{w,fpin}$ è il volume di acqua relativo ad una barretta di combustibile ($V_{w,fpin} = p^2 L - \pi R_{c,out}^2 L$);
- $V_{w,gt}$ è il volume di acqua relativo ai tubi guida per barre di controllo e strumentazione ($V_{w,gt} = p^2 L - \pi R_{tg,out}^2 L + \pi R_{tg,in}^2 L$);
- R_{fpin} è il raggio delle 'pellets' di combustibile;
- $R_{c,out}$ è il raggio esterno dell'incamiciatura;
- $R_{tg,out}$ è il raggio esterno dei tubi guida per le barre (strumentazione);
- $R_{tg,in}$ è il raggio interno dei tubi guida per le barre (strumentazione);
- p è il passo reale del reticolo di barrette in un 'assembly';
- p_1 è il passo *equivalente* che deve essere determinato.

In tabella (3.5), vengono riportati i valori reali e quelli calcolati per la modellizzazione fatta.

Noti tali parametri siamo in grado di andare a costruire la geometria necessaria all'implementazione nel codice Montecarlo, individuando gli assi di riferimento che ci permettono di definire le superfici che delimitano la cella e le zone che vengono così create; la scelta degli

Parametri	Elemento di combustibile	Cella modellizzata
Raggio pellet di combustibile	4.095 mm	4.095 mm
Raggio esterno dell'incamiciatura	4.75 mm	4.75 mm
Rapporto F/M	0.51937	0.51937
Densità dell'incamiciatura	6.56 g/cm ³	5.76356 g/cm ³
Passo del reticolo	12.60 mm	13.127 mm

Tabella 3.5: Parametri relativi alla cella di PWR modellizzata

assi è ricaduta su una terna cartesiana x,y,z viste le simmetrie considerate. La descrizione delle superfici viene riportata nella zona SURFACE CARDS, in questa particolare applicazione abbiamo avuto solo bisogno di sei piani ortogonali agli assi di riferimento ($p_x a, p_x -a; p_y b, p_y -b; p_z c p_z -c$) dove 'a', 'b', 'c' sono collegate alle dimensioni della cella che vogliamo modellizzare, avente una forma finale di parallelepipedo, e di due cilindri con asse coincidente all'asse z e di raggio pari rispettivamente al raggio del combustibile e al raggio esterno dell'incamiciatura (indicati con c_z che corrisponde all'equazione della superficie $x^2 + y^2 - R^2 = 0$).

Note le superfici si determinano le zone (combustibile, incamiciatura e moderatore) e dobbiamo fissare le temperature di esercizio per ciascuna di esse e le densità dei materiali utilizzati (tabella (3.6)), in modo che il codice possa andare a ricavarsi le relative sezioni d'urto dalle librerie ENDF.(Tali parametri sono riportati all'interno della zona di input denominata CELL CARDS)

Il codice infatti deve andarsi a calcolare la probabilità che il neutrone faccia un'interazione internamente al materiale considerato. Viene infatti determinata la probabilità che ci sia collisione fra l e $l + dl$ come (eq. (3.3)):

$$p(l)dl = \Sigma_T e^{-\Sigma_T l} dl, \quad (3.3)$$

dove Σ_T è la sezione macroscopica totale. Per stimare poi la distribuzione di probabilità, il Montecarlo vi abbina un numero random ξ uniformemente distribuito fra $[0,1[$. Tale probabilità dipende dal tipo di interazione, e quindi il Montecarlo richiede la conoscenza di alcuni parametri per una migliore determinazione. Tali parametri macroscopici sono la temperatura

del mezzo, il tipo di materiale (composizione isotopica) e la densità totale. In effetti questi parametri servono al Montecarlo per determinarsi i dati necessari nella valutazione della probabilità [26]. Ad esempio, il codice necessita del calcolo della velocità dei nuclei del target che si determina sulla base della conoscenza della temperatura. Se si hanno neutroni di alta energia ($E_n > 4$ eV) e materiali differenti dal moderatore (grafite, acqua, ...), il mezzo sarà considerato attraverso il modello di gas libero e la sezione microscopica di scattering elastico sarà calcolata attraverso la relazione (3.4)

$$\sigma(T) = \sigma_o \left(1 + \frac{kT}{2AE_n}\right), \quad (3.4)$$

dove A è il peso atomico del moderatore, E_n l'energia del neutrone e σ_o è la sezione microscopica di scattering elastico a temperatura 0 MeV considerata indipendente dalla temperatura. Nel nostro caso però è stato utilizzato il programma NJOY [25] che direttamente ha processato la sezione microscopica di scattering alla temperatura (del moderatore) richiesta e il valore della temperatura serve solo per modificare ove necessario il valore calcolato da NJOY. Nel caso, invece, di neutroni a bassa energia ($E_n < 4$ eV) e moderatori quali la grafite o l'acqua, non è possibile applicare il modello di gas libero, perché viste le velocità relative in gioco fra neutroni ed atomi del mezzo, sarà necessario tenere conto della struttura cristallina della molecola del moderatore e dei legami chimici, il codice tiene conto di questo introducendo un opportuno parametro $S(\alpha, \beta)$ specifico per il materiale, che indica a quale libreria ENDF riferirsi per i dati nucleari. Nel nostro caso avendo a che fare con acqua leggera a 600K è stata usata l'indicazione seguente `mt3 lwtr.62t` dove `mt3` è l'indicazione del materiale del moderatore (nella fattispecie designato con il numero 3).

Materiali	Densità (g/cm³)	Temperatura (MeV)
Combustibile	10.582	7.756E-08 (900K)
Incamicatura (lega Zr-Nb)	5.76356	5.17E-08 (600K)
Moderatore (H ₂ O + B)	0.072651	5.17E-08 (600K)

Tabella 3.6: Caratteristiche dei materiali presenti all'interno della cella modellizzata

Per completare l'input MCNPX rimangono da inserire le concentrazioni dei singoli isotopi inizialmente presenti per i vari materiali (zona DATA CARDS). Tali concentrazioni dipen-

```

TITLE:MCNP input
c
-----
c
c Cell specification
c exterior world
4 0 (1 -2 3 -4 7 -8) imp:n=0
c fuel pin
c fuel temperature 900K
1 1 -10.582 (-5 -7 8) imp:n=1 tmp=7.756E-08
c clad
c clad temperature 600K
2 2 -5.76356 (5 -6 -7 8) imp:n=1 tmp=5.17E-08
c moderator (water and boro)
c moderator temperature 600K
3 3 7.265121E-02 (-1 2 -3 4 6 -7 8) imp:n=1 tmp=5.17E-08
c exterior world 999 0 #1 #2 #3 imp:n=0
c
-----

```

Figura 3.3: Input ALEPH-1.1.2: identificazione delle zone presenti nella cella modellizzata

dono dall'arricchimento in U-235 considerato per il combustibile inserito, dal tipo di lega scelto per l'incamiciatura (Zr-Nb) e dalle concentrazioni di boro disciolto all'interno del moderatore (acqua leggera). In tabella (3.7) si riportano le concentrazioni inserite per i vari isotopi espresse in *frazioni in peso* per combustibile e l'incamiciatura ed in *frazioni atomiche* per il moderatore. In tabella è riportato anche il parametro indicato con Z AID che è relativo al numero di identificazione che il codice di calcolo Montecarlo riconosce per ogni isotopo ($Z AID = Z * 1000 + A$, con Z numero atomico ed A massa atomica). Si ricorda fin da ora che nella parte di input relativa ad ALEPH-1.1.2 gli isotopi sono individuati attraverso un'indicazione analoga, seppur leggermente differente e tipica del codice evolutivo utilizzato, ORIGEN2.2; tale indicazione ha il nome di ZAMID, con $ZAMID = Z * 10000 + 10 * A + M$, dove M può avere solo due valori, 0 per lo stato stabile e 1 per il caso metastabile.

Dopo aver completato la modellizzazione della geometria (figura (3.4) e figura (3.5)) ed indicato i materiali presenti (3.7), rimane da indicare al codice di calcolo Montecarlo di andare a calcolare il flusso prodotto nel combustibile (imponendo uno specifico comando-Tally), ed indicando gli estremi per il processo di iterazione che deve essere eseguito quali il numero di cicli attivi e di particelle simulate che il codice di calcolo deve utilizzare per convergere al keff del sistema (calcolo di criticità-KCODE). In questo caso infatti sarà effettuato un calcolo

Combustibile UO₂ arr. 4.3%		
Isotopi	ZAID	frazioni in peso
¹⁶ O	8016	1.18551E-01
²³⁴ U	92234	2.73249E-04
²³⁵ U	92235	3.79023E-02
²³⁸ U	92238	8.43045E-01
Incamicatura lega Zr-Nb		
Isotopi	ZAID	frazioni in peso
¹⁶ O	8016	1.25000E-03
⁹⁰ Zr	40090	5.01357E-01
⁹¹ Zr	40091	1.10551E-01
⁹² Zr	40092	1.70837E-01
⁹⁴ Zr	40094	1.76898E-01
⁹⁶ Zr	40096	2.91067E-02
⁹³ Nb	41093	1.00000E-02
Moderatore H₂O + 600ppm Boro		
Isotopi	ZAID	frazioni atomiche
H	1001	6.66389E-01
¹⁰ B	5010	6.59259E-05
¹¹ B	5011	2.67360E-04
¹⁶ O	8016	3.33277E-01

Tabella 3.7: Concentrazioni isotopiche per i materiali presenti nella cella modellizzata

di criticità, dove solo la geometria e il materiale hanno una loro importanza (da notare che il caso collegato all'ADS, sarà molto differente in quanto verrà fatto un calcolo a sorgente fissa, per questo si rimanda al Capitolo 6), inoltre per sviluppare questo tipo di calcolo, ALEPH necessita solo del flusso e quindi è possibile imporre al Montecarlo di calcolarsi solo il flusso mediato sulla cella, istruzione che possiamo imporgli attraverso il comando specifico `tally-4`, o meglio più precisamente `f4:n` che in uscita fornirà proprio il flusso di neutroni (n) mediato sulla cella (fuel) espresso dunque in neutroni/cm³. Per poter sviluppare questo calcolo iterativo è necessario prendere un valore iniziale del keff in modo da fare la prima ipotesi sulla sorgente di fissione, il valore che è stato preso nei nostri calcoli è di 1.30.

Per quanto riguarda gli altri parametri relativi al calcolo iterativo si ha che sono state considerate 1000 particelle e 300 cicli totali di cui 250 attivi per permettere di individuare la convergenza del keff, lasciando dunque 50 cicli per una migliore individuazione della sorgente di neutroni.

Per terminare la modellizzazione rimane da stabilire poi la geometria e l'energia della sorgente di neutroni. Nel presente studio, che prende a riferimento una barretta di combustibile associata al proprio moderatore, è stata presa una sorgente di neutroni distribuita con una distribuzione geometrica tale da considerare tutto il volume occupato dal combustibile della cella elementare (un cilindro con asse coincidente all'asse z , di raggio 0.4095 cm ed altezza totale di 1 m) e una distribuzione energetica tale da seguire la distribuzione energetica dello spettro di fissione di Watt (3.5).

$$p(E) = C \exp(-E/a) \sinh(bE)^{1/2} \quad (3.5)$$

dove i valori di ' a ' e ' b ' sono tabulati nel manuale di MCNPX [19]. Nel nostro caso avendo a che fare con neutroni termici e combustibile arricchito in U-235 i valori da utilizzare risultano essere rispettivamente $a = 0.988$ MeV e $b = 2.249$ MeV⁻¹ per .

Ormai nota la geometria ed i materiali coinvolti è necessario andare a determinare i parametri relativi alla storia del combustibile, cioè relativi agli step di irraggiamento e di decadimento che vogliamo che subisca durante la vita nel reattore, specifica nella prima parte dell'input ALEPH-1.1.2[1].

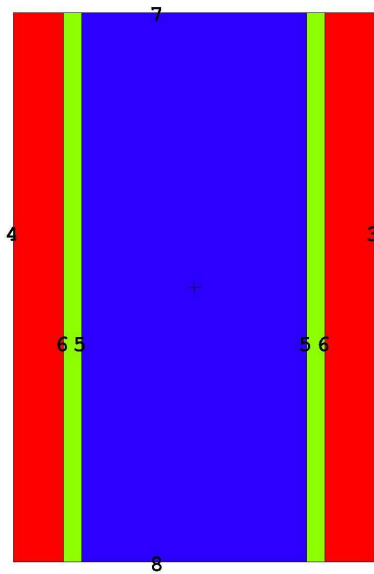


Figura 3.4: Sezione y-z della cella modellizzata

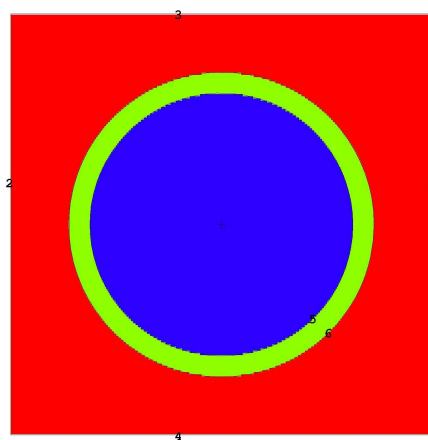


Figura 3.5: Sezione trasversale x-y della cella modellizzata

3.2.2 Input ALEPH 1.1.2: definizione della storia di irraggiamento

Prima di soffermarci sulla ‘radiation history’ è bene richiamare l’attenzione anche su tutti gli altri parametri che devono essere forniti al codice di interfaccia ALEPH-1.1.2 perché possa implementare il calcolo correttamente [1]. In figura (3.6) è riportata la parte di input del codice relativa a tali parametri, ed una descrizione un po’ più dettagliata è riportata qui di seguito. Tali parametri riguardano infatti:

- le librerie delle sezioni d’urto scelte per essere utilizzate nel calcolo. Nel presente lavoro sono state utilizzate opportune librerie stoccate nel file `xmdiraleph31`, corrispondenti alle sezioni d’urto delle librerie JEFF3.1, ma aggiornate nella forma in modo che il codice di calcolo le possa leggere adeguatamente a seguito di studi precedentemente fatti con il codice stesso [DAT], tali librerie sono opportunamente elaborate a seguito di studi portati avanti presso il centro SCK-CEN di Mol,
- le librerie relative ai fotoni, reazioni (n,γ) [LIB],
- le librerie per il decadimento dei vari isotopi [LIB],
- temperatura di interesse per il materiale da bruciare (tale valore è quello che dice al programma in che parte della libreria andare a cercare) [TMP],
- volume totale del materiale bruciabile [VOL]. Tale indicazione serve perché al Montecarlo, è stato scelto di far calcolare un flusso su un volume unitario (riducendo i tempi di calcolo, esonerando cioè il Montecarlo a farsi un calcolo del flusso mediato sul volume effettivo). Il valore del flusso ottenuto dovrà poi essere corretto attraverso l’effettivo valore del volume che viene ricordato fin dall’inizio,
- quantità di materiali da bruciare, indicando ben specificato a quale materiale viene fatto riferimento (stesso numero di materiale messo nella parte di input Montecarlo) [BURN],
- suddivisione dei gruppi energetici da indicare a MCNPX [EGS] per implementare il calcolo delle sezioni a multigruppo. Viene indicato in quanti gruppi energetici debba

essere suddiviso l'intervallo individuato da due valori di energia fissati con un approccio a letargia costante (il valore iniziale di energia, E_0 su cui è settato è di $1E-11$ MeV ed il valore finale scelto è di $2E+01$ MeV). I valori di energia, E_k fra E_{g_i} ed $E_{g_{i-1}}$ calcolati a letargia costante seguono la relazione $E_k = E_{g_{i-1}} \exp\left(-\frac{k}{N_g} * \log\left(\frac{E_{g_i}}{E_{g_{i-1}}}\right)\right)$ dove k varierà fra 1 ed $N_g(i)-1$.

- modo utilizzato per passare dalle sezioni a multi gruppi ad un valore medio. Nel nostro caso la pesatura è stata scelta per essere fatta sul flusso [GWS],
- eseguibile di ORIGEN2.2 [ORI],
- eseguibile del codice Montecarlo scelto [MCNP], nel nostro caso viene usata la versione di MCNPX-2.5.0[19],
- criterio di troncamento scelto per il codice ORIGEN2.2, necessario per non considerare quei materiali per i quali il codice ha calcolato una composizione molto esigua [ABS]; si basa sul calcolo per ogni isotopo dell'assorbimento che poi viene valutato in confronto dell'assorbimento totale, quei nuclidi che hanno un'importanza di assorbimento molto bassa, cioè al di sotto del valore fissato, non vengono considerati, (il valore che è stato fissato è 0.999).

Come già evidenziato precedentemente, la parte fondamentale dell'input ALEPH-1.1.2 è l'indicazione della storia di irraggiamento del materiale; dato che ALEPH-1.1.2 utilizza per la determinazione delle composizioni del materiale ORIGEN2.2, si ritrovano in questa parte le stesse parole chiave utilizzate da ORIGEN2.2 stesso quali ad esempio la parola DEC che indica un intervallo di decadimento da far seguire al materiale, IRP che specifica uno step di irradiazione a potenza costante, e IRF uno step di irradiazione a flusso costante. Nel caso particolare è stato simulato l'irraggiamento del combustibile all'interno di un reattore per un periodo di 4.5 anni, seguito da decadimento fino a 10^8 anni.

Per poter costruire la storia di irraggiamento abbiamo bisogno di determinare parametri su cui conformare gli steps necessari per tale evoluzione in grado di chiedere ad MCNPX dove calcolare il flusso neutronico ed a ORIGEN2.2 di fornire in uscita le composizioni del materiale e quindi di risolvere le equazioni di Bateman fino a quell'istante temporale considerato (vedere per le equazioni di Bateman Paragrafo 2.3).

```

c nuclear data
DAT /xs-aleph/aleph xsdiraleph31          data is JEFF 3.1
TMP 7.756e-08                             temperature set to 7.756E-08 eV = 900 K
c material information
BURN 1 1                                   read 1 spectra
VOL 52.6814
c group structure
EGS 1000 1e-10 1000 1e-09 1000 1e-08 1000 1e-07 1000 1e-06 4000 1e-05 4000 0.0001
10000 0.001 10000 0.01 4000 0.1 4000 1 1000
10 1000 20 $ the group structure
c ORIGEN information
ORI O2-THERM
LIB PWRU50.LIB 219 220 221 GXUO2BRM.LIB DECAY.LIB
c MCNPX information
ABS 0.999                                 produce MCNPX material composition, responsible for 99%
absorption
TAL 4                                     the tally number that contains all the spectra
MCNP mcnp250-lfc -1
c weigh the multigroup cross sections
GWS -1                                    use constant flux weighing
c output
OUT 0 0 0

```

Figura 3.6: Input ALEPH-1.1.2: indicazioni necessarie all'esecuzione del programma di calcolo

Nel nostro lavoro sono stati considerati steps a potenza costante chiedendo per ogni step al Montecarlo di andarsi a calcolare il flusso, dato che fisicamente all'interno del reattore le composizioni dei materiali cambiano con il burn-up e quindi varia anche il livello di flusso raggiunto. Per tener conto di tali cambiamenti e soprattutto della velocità di cambiamento, si è cercato di costruire step tali da poter essere approssimabili ad una composizione costante. Una buona approssimazione per considerare la composizione invariabile è sviluppare step da 1 GWd/toniHM, chiedendo dunque al codice di calcolarsi il flusso ogni GWd/toniHM, flusso che verrà considerato costante per l'intervallo successivo. Scelto questo parametro, e fissato il totale di giorni di irradiazione, è possibile ricavare a quanti giorni corrisponde un GWd/toniHM, valore necessario per impostare i singoli step del codice.

Partendo dai seguenti dati è possibile risalire alla costruzione di un'adeguata storia dell'irradiazione del combustibile:

- burn-up di 50 GWd/toniHM dopo 4.5 anni di permanenza nel reattore,
- 3 cicli di 510 giorni di effettiva irradiazione (efpd-'effective full power days'),
- intervalli intermedi di 30 giorni fra un ciclo ed un altro per il ricaricamento del reattore,

In primo luogo si determina il numero di giorni per ogni step, dividendo il numero totale di giorni a piena potenza (3*510 d) per il valore totale di burn-up raggiunto (50 GWd/toniHM), ottenendo un valore di circa 30 giorni per ogni GWd/toniHM e quindi per ogni step simulato. Noto questo valore riusciamo a determinare il numero di step per ogni ciclo, in particolare si costruiscono 3 cicli di 17 step a potenza costante ciascuno, che verranno intervallati da cicli di decadimento di 30 giorni. Per calcolare il valore della potenza a partire dal burn-up totale si è ricorso alle seguente semplice relazione:

$$P_{th} = \frac{BU * \rho * V_f}{efpd} \quad (3.6)$$

dove P_{th} è la potenza termica da calcolare espressa in MWth, BU è il burn-up allo scarico espresso in MWd/kgiHM (50 MWd/kgiHM), ρ è la densità del metallo pesante inizialmente presente nel combustibile (9.33g/cm³), V_f è il volume del fuel considerato espresso in cm³ e $efpd$ sono i giorni di effettivo irraggiamento (1530 d). Il valore che si ottiene e che va inserito come input per ogni step di irraggiamento è di 1.6059E-02 MWth.

Dopo aver determinato questa parte relativa alla storia di irraggiamento inerente dunque al periodo di permanenza nel reattore, per concludere la storia del combustibile che ci eravamo prefissi, rimane da costruire una scala di decadimento logaritmica che arrivi fino a a 10⁸ anni, in tal caso non è richiesto che il codice si calcoli il flusso ad ogni step perché avremo solo un decadimento naturale dello SNF. In figura (3.7) è riportato un esempio di alcuni step implementati nella storia di irraggiamento, i primi IRP riguardano esempi di step di irraggiamento a potenza costante, i secondi, DEC, riguardano step che fanno parte della scala di decadimento logaritmica che è stata costruita.

3.3 Risultati ottenuti

Come precedentemente evidenziato, questa parte del lavoro è mirata alla determinazione effettiva delle quantità prodotte di plutonio, attinidi minori e prodotti di fissione su una tonnellata di combustibile nucleare esaurito per poter stimare l'evoluzione della radiotossicità del combustibile dopo l'estrazione dal reattore (Capitolo 4). Questi calcoli ci permetteranno di fare una stima oggettiva delle quantità in uscita da un reattore ad acqua leggera, in modo da

```

HIS
STP 1
  IRP -1 0.016059 4 30
STP 1
  IRP -1 0.016059 4 30
STP 1
  IRP -1 0.016059 4 30
STP 1
  IRP -1 0.016059 4 30
STP 1
  IRP -1 0.016059 4 30
.....
.....
.....
  IRP -1 0.016059 4 30
STP 0
  DEC 5 1
STP 0
  DEC 5 1
STP 0
.....
.....
DEC 5 1
STP 0
  DEC 5 10
STP 0
  DEC 5 10
.....
.....
STP 0
  DEC 5 1e+07
STP 0
  DEC 5 1e+08

```

Figura 3.7: Input ALEPH-1.1.2: indicazione della storia di irraggiamento applicata al combustibile

determinare agevolmente le percentuali di Pu, MAs e FPs sul totale del combustibile estratto e in particolare anche quelle dei singoli nettunio, americio e curio sul totale degli attinidi minori, valori che hanno una loro importanza nella stima delle quantità che gli impianti di riprocessamento si trovano a trattare. Inoltre tali valori sono stati utilizzati per fornire una valutazione del vettore isotopico da cui partire nella costruzione di un tipo di combustibile adeguato da mettere in pasto ad un reattore sottocritico.

Infatti in un paese, quale ad esempio il Belgio, nell'ipotesi che si voglia implementare uno scenario che veda la presenza dell'ADS come mezzo per la trasmutazione, andrà calibrata la concentrazione del combustibile da inserire in un ADS, sulla base delle concentrazioni presenti effettivamente nei rifiuti nucleari, in modo che non ci siano sproporzioni di un isotopo rispetto ad un altro. In particolare se si avrà l'implementazione della 'phase-out' dal nucleare. Uno degli scopi del presente lavoro è stato proprio, al fine di arrivare a dare una composizione adeguata per il combustibile per un ADS, il miglioramento di questa valutazione andando a valutare l'accumulazione dei vari isotopi durante la vita di un reattore.

Per far questo è stata strutturata un'analisi pensando che ogni 1.5 anni venga estratto dal

reattore combustibile esaurito e che da lì inizi il suo processo di decadimento, arrivando a fine vita del reattore ad avere varie composizioni dello SNF in funzione del tempo in cui è stato estratto; tale ciclo di 1.5 anni sarà l'elemento base utilizzato per l'accumulazione stessa. Ma prima di entrare nel dettaglio di questo altro aspetto preso in esame nel presente studio, è bene andare ad avere un'idea più precisa riguardo alle concentrazioni isotopiche in uscita da un ciclo di irraggiamento nel reattore.

E' utile anche determinare le percentuali dei singoli elementi per avere un'idea della relativa pericolosità che i vari isotopi od elementi hanno rispetto al totale dello SNF in modo da confrontare poi tali percentuali con quelle calcolate a fine accumulazione.

Come è già stato indicato, considereremo, in questa prima parte dello studio, una tonnellata di metallo pesante e riferiremo ad essa tutte le considerazioni. Dato che i valori delle composizioni isotopiche che si hanno in uscita dal codice ALEPH-1.1.2 sono espresse in g/cm^3 , per ricavare le quantità presenti all'interno di una tonnellata di SNF andremo a considerare il volume relativo a tale tonnellata. Nota infatti la densità del metallo pesante inserito all'interno del reattore pari a 9.33 g/cm^3 , si ricava che il volume relativo ad una tonnellata risulta essere pari a $1.0718\text{E}+05 \text{ cm}^3$. In tabella (3.8) sono riportate le quantità di plutonio che si sono formate a seguito di irraggiamento e i valori relativi ai vari isotopi presenti in una tonnellata di SNF. I valori fanno riferimento al momento di uscita dal reattore, non considerando i periodi di tempo di raffreddamento e di decadimento che generalmente si hanno prima del trattamento dello SNF. Una tabella analoga, tabella (3.9), mostra le quantità di attinidi minori prodotti.

Noti tali valori delle quantità in uscita, è possibile ricavare le percentuali in peso ('weigh fractions') relative di ogni isotopo sul totale del combustibile esaurito, in particolare:

- plutonio 1.06%wt. del totale,
- attinidi minori 0.108%wt. del totale, con 0.072%wt. di nettunio, 0.025%wt. di americio e 0.011%wt. di curio.

percentuali che sono in accordo con i valori che è possibile trovare in letteratura [11],[3].

Noto poi il consumo annuo medio di combustibile (vedi tabella (3.1)) pari a 19.34 tonnellate di metallo pesante è possibile risalire agevolmente alla determinazione delle quantità che

Isotopo	ALEPH in g/cm ³	g/(1 ton IHM)
942360	2.73356E-08	2.92983E-03
942370	6.55624E-09	7.02698E-04
942380	3.10177E-03	3.32448E+02
942390	5.75241E-02	6.16543E+03
942400	2.68864E-02	2.88168E+03
942410	1.69469E-02	1.81637E+03
942420	8.12824E-03	8.71185E+02
942430	1.98386E-06	2.12630E-01
942440	6.73035E-07	7.21359E-02
942450	3.39589E-11	3.63971E-06
942460	2.42379E-13	2.59782E-08
Totale	1.12590E-01	1208 g

Tabella 3.8: Composizione isotopica del Plutonio all'uscita da un LWR

ogni anno vengono buttate fuori dal reattore totale corrispondendo a: 0.205 ton di plutonio, 0.0208 ton di attinidi minori di cui 0.0139 ton di nettunio, 0.0048 ton di americio e 0.0021 ton di curio. Note queste quantità si potrebbe dare un stima approssimativa del totale prodotto durante la vita del reattore, ma si cadrebbe nell'errore di non considerare il decadimento subito dal materiale a seguito dall'uscita dal reattore, che porta, come sarà indicato in seguito ad una arricchimento in americio rispetto al singolo ciclo di irraggiamento.

In questa fase si è ritenuto essere più importante il soffermarci sugli andamenti delle concentrazioni dei vari elementi ricavate da questo calcolo, perché saranno, come già più volte ricordato, da input alle valutazioni della radiotossicità presentate nel Capitolo 4 . Si è scelto di utilizzare i g/cm^3 come unità di misura per le quantità isotopiche, utilizzando direttamente i valori che escono in output al codice di calcolo ALEPH-1.1.2.

In figura (3.8) è riportata l'evoluzione temporale dell'uranio, del plutonio e degli attinidi più significativi (nettunio, americio e curio) dove è evidente che il contributo maggiore, fra gli elementi prodotti a seguito di fissione, è dato dal plutonio che fa sentire il suo peso fino a milioni di anni.

Isotopo	ALEPH in g/cm ³	g/(1 ton IHM)
932350	1.03665E-10	1.11108E-05
932360	8.91517E-09	9.55528E-04
932361	2.52778E-10	2.70927E-05
932370	6.74860E-03	7.23315E+02
932380	1.93271E-05	2.07148E+00
932390	7.96972E-04	8.54195E+01
932400	2.12485E-08	2.27741E-03
932401	5.16237E-10	5.53303E-05
932410	1.47195E-18	1.57764E-13
952390	3.78621E-15	4.05806E-10
952400	2.94771E-11	3.15936E-06
952410	5.93554E-04	6.36171E+01
952420	1.47452E-06	1.58039E-01
952421	2.05225E-05	2.19960E+00
952430	2.01675E-03	2.16155E+02
952440	8.88066E-08	9.51829E-03
952441	7.26142E-08	7.78279E-03
952450	3.14619E-11	3.37209E-06
952460	3.87919E-16	4.15772E-11
962410	1.47182E-10	1.57750E-05
962420	2.32579E-04	2.49278E+01
962430	6.55396E-06	7.02453E-01
962440	8.81806E-04	9.45120E+01
962450	6.35798E-05	6.81448E+00
962460	7.06628E-06	7.57364E-01
962470	1.13677E-07	1.21839E-02
962480	8.46425E-09	9.07198E-04
962490	1.17132E-13	1.25542E-08
962500	1.34917E-15	1.44604E-10
962510	7.93517E-24	8.50492E-19
Totale MA	1.13891E-02	1.22068E+03

Tabella 3.9: Composizione isotopica degli attinidi minori all'uscita da un LWR

In figura (3.9) a maggior chiarimento è riportata l'evoluzione dei vari isotopi del plutonio presi singolarmente dove il contributo maggiore sul totale dell'elemento è dato dal Pu-239 (tempo di dimezzamento di $2.44E+04$ anni) e dal Pu-242 (tempo di dimezzamento di $3.79E+05$ anni). Come esempio di evoluzione degli attinidi minori si riporta, in figura (3.10), l'evoluzione degli isotopi dell'americio, mentre in figura (3.11) è riportato l'andamento di alcuni dei prodotti di fissione più significativi dove solo lo I-129 ha un'influenza per tempi più lunghi delle centinaia di anni. Gli altri isotopi hanno una maggiore influenza nel periodo subito dopo lo scarico dal reattore (vedi Capitolo 4) ma decadono in tempi molto brevi (al massimo 300-400 anni) e quindi sono tali da non dare più contributo al rischio associato al combustibile esaurito sul lungo periodo.

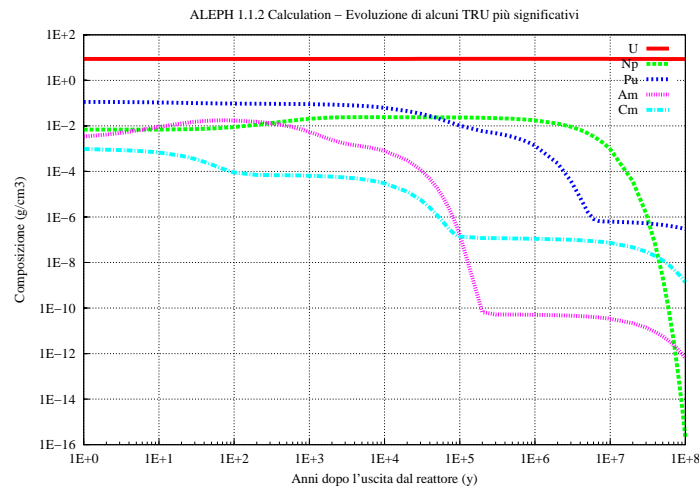


Figura 3.8: Evoluzione temporale della composizione in g/cm^3 dei maggiori transuranici

3.4 Accumulazione durante il periodo di esercizio del reattore

E' stata presentata precedentemente nel dettaglio una valutazione che ha la sua validità nel confronto diretto fra quello che esce da un reattore LWR e quello che uscirà invece da un ADS, e che può essere utilizzata per determinare l'ammontare dei rifiuti prodotti ogni anno

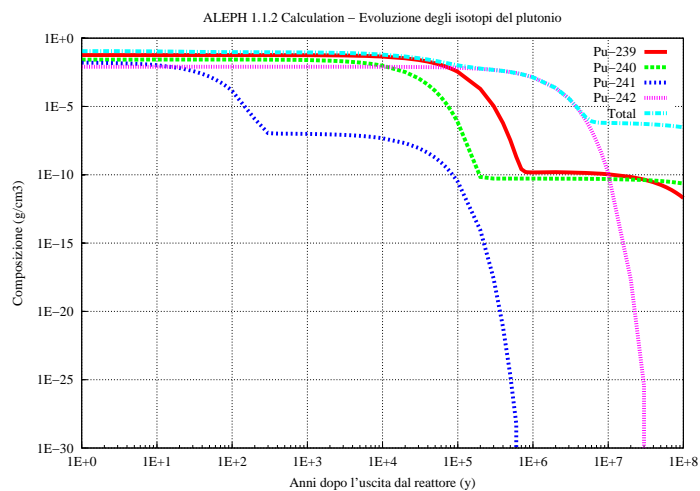


Figura 3.9: Evoluzione temporale della composizione in g/cm^3 degli isotopi del plutonio

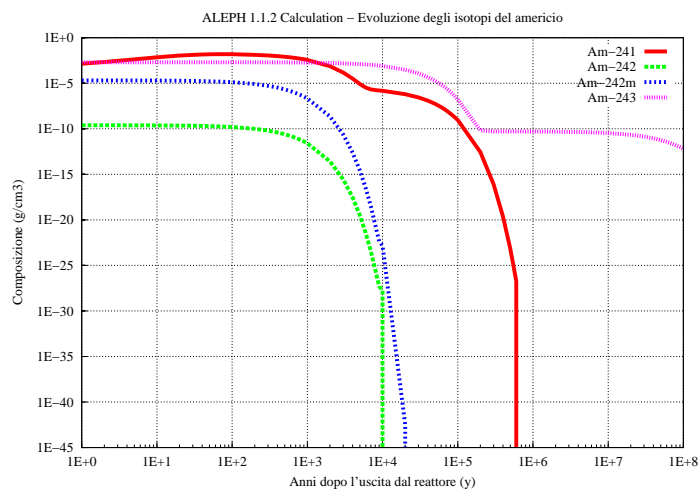


Figura 3.10: Evoluzione temporale della composizione in g/cm^3 degli isotopi dell'americio

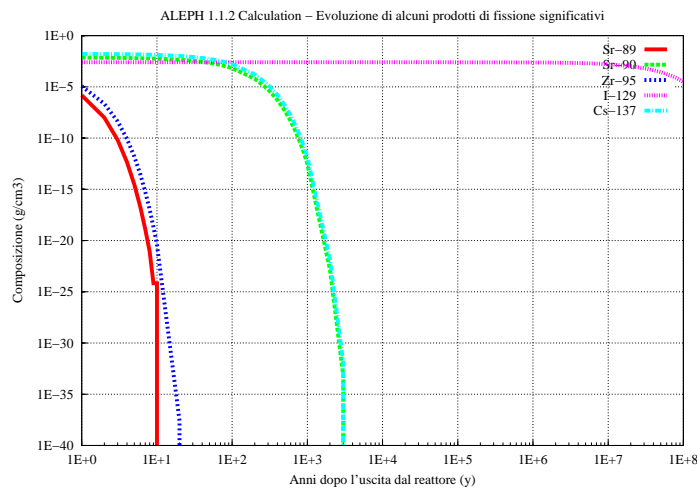


Figura 3.11: Evoluzione temporale della composizione in g/cm^3 di alcuni prodotti di fissione più significativi

dai reattori nucleari in esercizio, ma tale approccio semplificato perde di significato se si cambia punto di vista, spostando l'attenzione sul problema generale del trattamento di tutti i rifiuti radioattivi che sono stati prodotti dall'inizio dell'utilizzo dell'energia nucleare ad oggi.

Infatti, i rifiuti prodotti nel passato si trovano attualmente stoccati (in 'interim storage'), sotto forma di combustibile esaurito o di rifiuti ad alta attività (HLW) già condizionati, e sono soggetti al proprio decadimento naturale. Quindi nell'ipotesi di voler affrontare in modo più adeguato il trattamento dei rifiuti nucleari è necessario aver ben presente che il materiale nucleare si presenterà eterogeneo cioè avente diversi livelli di concentrazione dei vari isotopi che lo compongono, sulla base dell'effettivo tempo trascorso dalla fuoriuscita dal reattore fino al momento di indagine.

Per tener conto di quest'altra possibilità di studio, nel presente lavoro, è stata valutata proprio questa concentrazione isotopica nel caso si vadano a trattare i rifiuti radioattivi solo dopo l'accumulazione di questi per un intero periodo di esercizio di un reattore.

Per portare avanti questa indagine è stata considerata una vita di esercizio di un reattore pari a 58.5 anni, cioè pari a 13 cicli completi di 4.5 anni, considerando cioè la strategia PLEX-Plant Lifetime EXTension e l'accumulazione in questo caso. Generalmente la vita di un reattore è considerata fra i 30 ed i 40 anni ma attualmente nel Mondo si sta diffondendo l'uso della strategia di allungamento del periodo di esercizio degli impianti (strategia del

PLEX), possibile grazie allo sviluppo di maggiori conoscenze nel campo dei materiali e delle tecniche per la manutenzione delle strutture (vedi controlli ultrasonori di vessel ed internals più affidabili, e maggiori conoscenze in campo della meccanica della frattura), ma anche per la necessità di garantire nelle prossime decadi la copertura di energia elettrica attraverso l'uso di questa fonte in attesa che vengano sviluppati i reattori 'intrinsecamente sicuri' della Generation IV.

Nel nostro studio è stata considerata questa specifica possibilità perché potrebbe essere una soluzione adeguata da applicare al caso belga nell'ipotesi che non venga attuata la 'phase out', decisa dal Governo belga nel 2003, necessitando dunque di sviluppare uno scenario che preveda l'implementazione e la costruzione di reattori sottocritici per il bruciamento degli attinidi e del successivo utilizzo di reattori veloci (dal 2045), in grado di sostituire gli attuali reattori ad acqua leggera, per la produzione elettrica. Viste le tempistiche di sviluppo dei reattori veloci (presenti come punto forza dei reattori proposti nella 'Generation IV' [9]), non previsti in tempi brevi, il PLEX di 20 anni per i reattori belga sarebbe l'unica soluzione allo sviluppo di uno scenario adeguato per il mantenimento della produzione elettrica nucleare nel Paese [27].

Per determinare i valori di concentrazione relativi all'accumulazione, si è partiti dal considerare qual'è l'effettivo ciclo interno del combustibile nel reattore, cioè la presenza di una divisione in tre zone del combustibile tale da prevedere una movimentazione interna, ogni 1.5 anni, di ogni zona ('shuffling radiale') che porta ad una permanenza totale del combustibile nel reattore di 4.5 anni.

Dato che dopo i primi 4.5 anni di vita del reattore si arriva ad avere condizione di regime, tali da portare ad estrarre dal reattore, ogni 1.5 anni, un terzo del totale del combustibile, rimasto l'interno per 4.5 anni e quindi tale da aver raggiunto un burn-up medio di 50 GWd/toniHM, lo studio si è soffermato sul ciclo ormai a regime, senza considerare i primi 4.5 anni all'interno della valutazione. Dunque ogni 1.5 anni si avrà in uscita dal reattore la stessa composizione isotopica che abbiamo descritto nel paragrafo precedente, cioè riferita ad un unico ciclo di irraggiamento completo nel reattore, se si fa l'ipotesi che durante la vita del reattore tutte le caratteristiche rimangano invariate, è possibile costruire un'opportuna scala temporale che ci permetta agevolmente di valutare l'accumulazione a partire da

ciò che è già stato calcolato con ALEPH-1.1.2 . Tale scala prevederà steps di decadimento da valutarsi ogni 1.5 anni (uguale all'intervallo di tempo fra un'estrazione ed un'altra del combustibile irraggiato).

Per fare questo cambiamento di scala è stato usato il codice evolutivo ORIGEN2.2 [20] direttamente senza ripetere un calcolo con ALEPH-1.1.2, perché per determinare le catene di decadimento dei vari isotopi non si necessita della conoscenza del flusso ricalcolabile con calcoli Montecarlo, ma è necessaria solo la risoluzione del sistema di equazioni di Bateman dedicate al decadimento dei vari isotopi 2,3, che quindi non giustificerebbe l'uso di uno strumento così potente come ALEPH-1.1.2. Questa scelta inoltre ha comportato una riduzione dei tempi di calcolo totali senza aggravare il lavoro. L'uso di ORIGEN2.2, infatti, è risultato abbastanza immediato date le conoscenze acquisite dall'uso precedente di ALEPH-1.1.2 che come descritto ne fa uso internamente; in effetti la parte di ALEPH-1.1.2 dedicata alla descrizione della storia di irraggiamento richiama alcuni aspetti inerenti alla struttura preparatoria di un input ORIGEN2.2, quali in primo luogo le parole chiave della 'radiation history' IRP, IRF e DEC. Vista la struttura di ORIGEN2.2 che permette in uscita al massimo 12 composizioni differenti relative ciascuna ad uno step di irraggiamento, è stato necessario costruire 5 input per coprire tutta la scala temporale necessaria per andare da 0 a 58.5 anni, con unità di 1.5 anni. Tali input risultano essere identici a parte per gli step che ogni volta vengono chiesti in uscita. Alla fine i 5 input sono stati elaborati per dare la composizione finale step per step dello SNF e su tale composizione è stata costruita l'accumulazione. Per stabilire la composizione del combustibile esaurito da inserire come input ad ORIGEN2.2, che altro non è che la composizione alla fine degli step di irraggiamento nel reattore, e le librerie delle sezioni microscopiche, per i materiali strutturali e per i prodotti di attivazione, aggiornate da ALEPH-1.1.2 durante il calcolo da utilizzare nel calcolo ORIGEN2.2, ci siamo avvalsi di una funzione presente in ALEPH-1.1.2 in grado di fornire in output in modo separato i vari input di preparazione che internamente il codice si prepara per ogni step e che generalmente non vengono chieste nell'output totale. Tale comando si applica imponendo, nella parte iniziale dell'input ALEPH, attraverso la notazione `OUTPUT 0 0 1 1[1]` ed in particolare sono state chieste le librerie aggiornate all'ultimo step di irradiazione e l'output ORIGEN dell'ultimo step di irradiazione che per ALEPH-1.1.2 corrisponde proprio all'input

(per quanto riguarda la composizione isotopica) che andrà lui stesso a costruirsi per il primo step di decadimento, quindi proprio quello necessario per i nostri scopi in questa fase del lavoro. Per fare uscire questi dati è stato fatto girare ancora una volta l'input ALEPH-1.1.2 inizialmente utilizzato, ma dato che il codice nel calcolo precedente aveva già calcolato tutti gli step per il Montecarlo, non necessita di far girare ancora il MCNPX per la determinazione del flusso neutronico, risultando dunque molto più veloce nella determinazione di tali dati. Infatti se si guarda al 'timing report' riportato in calce all'output ALEPH-1.1.2 si nota che inerentemente al 'running' del Montecarlo si hanno tempi nulli, portando al codice solo la necessità di leggere lo spettro, calcolare le librerie e far girare ORIGEN2.2 per un totale di 171.1 minuti (calcolo fatto in una macchina dual XEON da 3GHz).

Una volta pronto il calcolo ORIGEN2.2 con questa nuova scala di 1.5 anni in 1.5 anni, è stato costruito il file di accumulazione, avvalendosi di un foglio di calcolo Excel, sommando per ogni isotopo la scala di evoluzione temporale delle composizioni ottenute, trasladandola ogni volta di un intervallo (pari a 1.5 anni) fino ad arrivare a coprire i 58.5 anni necessari alla valutazione (vedi figura (3.12)). Alla fine il risultato ottenuto è la composizione, espressa in g/cm^3 , di ogni isotopo tenuto conto sia dell'accumulazione durante la vita che del decadimento naturale di questo, quindi con valore finale che dipenderà dai tempi di decadimento di ogni isotopo.

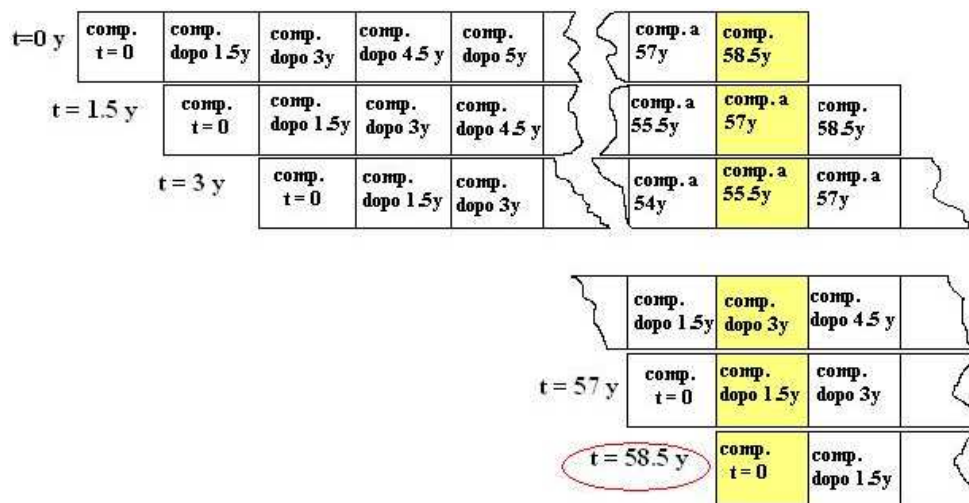


Figura 3.12: Metodo costruttivo per il calcolo dell'accumulazione

Ottenuta tale composizione, è stato utilizzato ancora una volta ORIGEN2.2, imponendo una scala temporale logaritmica per simulare l'evoluzione in solo decadimento di queste quantità accumulate fino ai 10^8 anni, in grado così di poterne valutare anche la radiotossicità a lungo termine comparabile con la parte del lavoro precedentemente presentata (vedi Capitolo 4).

Tale composizione accumulata è stata la base di partenza per la determinazione del vettore isotopico da inserire come combustibile nell'ADS industriale studiato nei Capitoli 5 e 6, l'interesse è rivolto soprattutto alle concentrazioni, dopo 20 anni di decadimento dell'ultimo 'batch' estratto, relative al nettunio, americio e curio all'interno degli attinidi minori in totale, nonché della composizione isotopica del plutonio. Infatti è stato scelto di considerare il plutonio di prima generazione, cioè privo di un secondo passaggio sotto forma di MOX in un LWR, come fissile all'interno del combustibile per l'ADS. Note tali concentrazioni relative sarà possibile determinare le concentrazioni effettive, dei vari isotopi da bruciare, presenti nel fuel da caricare in un ADS, sulla base della percentuale in volume della matrice inerte MgO considerata e della percentuale di plutonio necessaria da inserire per avere un keff del reattore sottocritico pari a 0.97. Per una trattazione più completa di questa parte si rimanda ai Capitoli 5 e 6, dove una volta nota la geometria uno degli scopi è stata la determinazione della composizione isotopica del combustibile.

In tabella (3.10) sono riportate le concentrazioni degli isotopi del plutonio, in g/cm^3 , nel caso dell'accumulazione comparata con il singolo ciclo. Tali valori in entrambi i casi sono presi rispettivamente al tempo di uscita dal reattore nel caso del singolo ciclo e a 58.5 anni da inizio vita del reattore nel caso dell'accumulazione, cioè al tempo di uscita dell'ultimo 'batch' di combustibile irraggiato.

analogo confronto invece per gli attinidi è riportato in tabella (3.11).

Anche in questo caso ci possiamo andare a ricavare le percentuali in peso di plutonio e di attini minori presenti sul totale calcolato a seguito di accumulazione, evidenziando un aumento della percentuale soprattutto dell'americio. I valori di tali percentuali risultano essere:

- plutonio 0.9657%wt. del totale (vs. ciclo unico di 1.0638%wt.),
- attinidi minori pari allo 0.1998%wt. del totale (vs. 0.1076%wt.), con 0.0691%wt. di

Isotopo	singolo ciclo (g/cm ³)	accumulazione (g/cm ³)
942360	2.73356E-08	8.96732E-08
942370	6.55624E-09	6.56159E-09
942380	3.10177E-03	1.07200E-01
942390	5.75241E-02	2.33090E+00
942400	2.68864E-02	1.09290E+00
942410	1.69469E-02	2.29690E-01
942420	8.12824E-03	3.25200E-01
942430	1.98386E-06	1.98000E-06
942440	6.73035E-07	2.69200E-05
942450	3.39589E-11	3.40000E-11
942460	2.42379E-13	2.42000E-13
Totale	1.12590E-01	4.08592E+00

Tabella 3.10: Composizione isotopica del plutonio in caso di accumulazione

nettunio (vs. 0.07148%wt.), 0.1266%wt. di americio (vs. 0.0249%wt.) e 0.0041%wt. di curio (vs. 0.01126%wt.).

Dato l'aumento della percentuale in peso degli attinidi minori sul totale del combustibile irraggiato, è opportuno mostrare come all'interno dei soli attinidi minori a sua volta ci sia un cambiamento di percentuale fra i tre elementi, nettunio, americio e curio. In effetti la percentuale del nettunio sul totale degli attinidi minori diminuisce drasticamente dal 66.42%wt. nell'ipotesi di singolo ciclo al 34.58%wt. nel caso dell'accumulazione, analoga cosa fa il curio che passa da 10.46%wt. al 2.06%wt., un comportamento contrario invece è tenuto dall'americio che praticamente arriva quasi a triplicare la sua influenza passando da un valore di 23.11%wt. ad un valore di 63.35%wt., comportamento dovuto ai tempi di decadimento degli isotopi coinvolti.

Volendo entrare un po' più nel dettaglio riguardo agli isotopi più significativi si riportano le tabelle 3.12 e 3.13 che mostrano la variazione delle percentuali dei vari isotopi all'interno degli elementi, rispettivamente riferite al plutonio e agli attinidi minori.

Alla luce di questi risultati è evidente il grande contributo che ha l'americio nel caso

Isotopo	singolo ciclo (g/cm ³)	accumulazione (g/cm ³)
932350	1.03665E-10	1.68371E-10
932360	8.91517E-09	3.56430E-07
932361	2.52778E-10	2.53000E-10
932370	6.74860E-03	2.91530E-01
932380	1.93271E-05	1.93001E-05
932390	7.96972E-04	7.96067E-04
932400	2.12485E-08	2.12000E-08
932401	5.16237E-10	5.16000E-10
932410	1.47195E-18	1.47000E-18
952390	3.78621E-15	3.79000E-15
952400	2.94771E-11	2.95000E-11
952410	5.93554E-04	4.54294E-01
952420	1.47452E-06	1.47838E-06
952421	2.05225E-05	7.20500E-04
952430	2.01675E-03	8.05400E-02
952440	8.88066E-08	8.88000E-08
952441	7.26142E-08	7.26000E-08
952450	3.14619E-11	3.15000E-11
952460	3.87919E-16	3.88000E-16
962410	1.47182E-10	1.47004E-10
962420	2.32579E-04	2.60019E-04
962430	6.55396E-06	1.40460E-04
962440	8.81806E-04	1.42155E-02
962450	6.35798E-05	2.53710E-03
962460	7.06628E-06	2.81450E-04
962470	1.13677E-07	4.56000E-06
962480	8.46425E-09	3.38790E-07
962490	1.17132E-13	1.17000E-13
962500	1.34917E-15	5.40000E-14
962510	7.93517E-24	7.94000E-24
Totale MA	1.13891E-02	8.45341E-01

Tabella 3.11: Composizione isotopica degli attinidi in caso di accumulazione

Isotopi	% singolo ciclo	% accumulazione
942360	0.00002	0.00000
942370	0.00001	0.00000
942380	2.75492	2.62364
942390	51.09161	57.04714
942400	23.87990	26.74796
942410	15.05186	5.62150
942420	7.21932	7.95904
942430	0.00176	0.00005
942440	0.00060	0.00066
942450	0.00000	0.00000
942460	0.00000	0.00000
totale	100.00000	100.00000

Tabella 3.12: Confronto fra le percentuali dei vari isotopi del plutonio nel caso di singolo ciclo e di accumulazione

Nettunio			Americio			Curio		
Isotopi	%	% acc.	Isotopi	%	% acc.	Isotopi	%	% acc.
Np235	0.000	0.000	Am239	0.000	0.000	Cm241	0.000	0.000
Np236	0.000	0.000	Am240	0.000	0.000	Cm242	19.516	1.491
Np236m	0.000	0.000	Am241	22.547	84.827	Cm243	0.550	0.805
Np237	89.209	99.721	Am242	0.056	0.000	Cm244	73.995	81.514
Np238	0.255	0.007	Am242m	0.780	0.135	Cm245	5.335	14.548
Np239	10.535	0.272	Am243	76.611	15.039	Cm246	0.593	1.614
Np240	0.000	0.000	Am244	0.003	0.000	Cm247	0.010	0.026
Np240	0.000	0.000	Am244m	0.003	0.000	Cm248	0.001	0.002
Np241	0.000	0.000	Am245	0.000	0.000	Cm251	0.000	0.000

Tabella 3.13: Confronto fra le percentuali dei vari isotopi dei MA nel caso di singolo ciclo e di accumulazione

dell'accumulazione ed in particolare l'isotopo 241 dell'americio ($t_{1/2}$ pari a 432.7 anni) che durante la vita di esercizio subisce una forte accumulazione passando da un 22.5%wt. sull'americio totale ad un 84.8%wt. nel caso di accumulazione.

Visto il grande contributo dell'americio di segui riportiamo, figura (3.13), l'accumulazione dell'elemento durante la vita del reattore cioè durante i primi 58.5 anni. A seguire viene riportata (figura (3.14)) l'evoluzione temporale fino a 10^8 anni delle quantità totali di americio valutate con ALEPH-1.1.2 nel caso del singolo ciclo, e con ORIGEN2.2 nel caso di accumulazione, come descritto precedentemente.

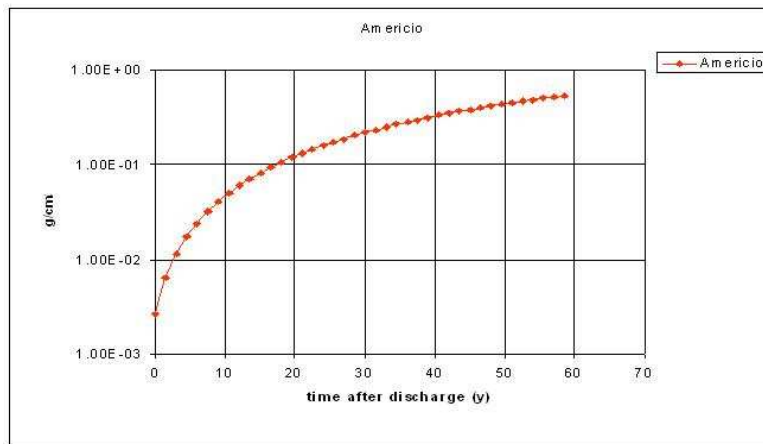


Figura 3.13: Accumulo di americio durante la vita del reattore

Al fine di individuare l'isotopo dell'americio che fornisce il maggior contributo durante l'accumulazione nei 58.5 anni, in figura(3.15) si riportano gli andamenti da cui si evince che il contributo è dato principalmente dall'isotopo 241, che risulta essere uno dei più importanti anche in termini di radiotossicità a lungo termine, a tal proposito per uno studio dettagliato del peso dei vari isotopi sulla radiotossicità si rimanda la Capitolo 4 .

Oltre all'americio attenzione va posta al plutonio, che nel caso dell'accumulazione porta ad un aumento percentuale sia nell'isotopo 239 che nell'isotopo 240. Tale incremento nell'ottica dell'utilizzo in un ADS porta ad avere una minore concentrazione totale di plutonio da inserire per raggiungere il valore di keff desiderato, perché è presente una quantità maggiore di isotopo fissile. In figura (3.16) si riportata l'accumulo del plutonio nei 58.5 anni considerati.

Note le composizioni ottenute nel caso di singolo ciclo e di accumulazione, i metodi usati

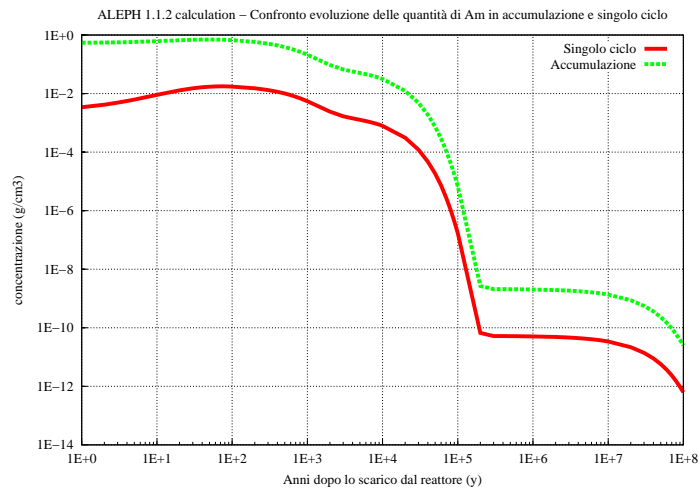


Figura 3.14: Confronto fra l'evoluzione delle quantità di americio valutate nel caso del singolo ciclo e nel caso dell'accumulazione

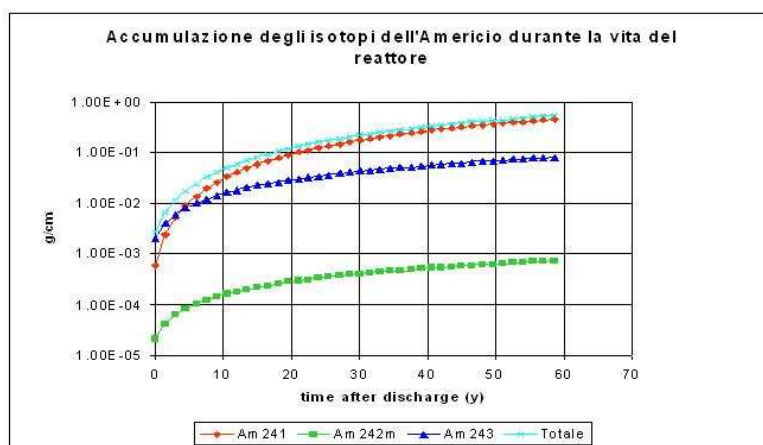


Figura 3.15: Accumulo degli isotopi dell'Americio durante la vita del reattore

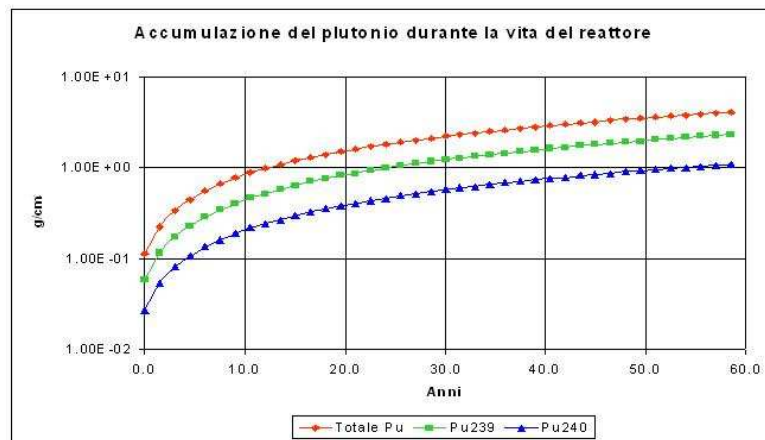


Figura 3.16: Accumulo di plutonio durante la vita del reattore

per ottenerle (il contributo sia del codice ALEPH-1.1.2 che del codice ORIGEN2.2) siamo in grado di andarne a valutare la radiotossicità per chiudere il ciclo riferito al termine di paragone dell'ADS e di andare, con l'utilizzo degli stessi mezzi, a valutare le composizioni in uscita e la radiotossicità relativa anche al caso del reattore sottocritico. A tal proposito per quanto riguarda la radiotossicità si rimanda al Capitolo 4, per le valutazioni invece sull'ADS si fa riferimento al Capitolo 6.

Capitolo 4

La Radiotossicità e le sue Unità di Misura

4.1 Evoluzione Storica dei Concetti di Base della Radioprotezione

Per risolvere le problematiche relative alla gestione dei rifiuti nucleari e della messa in sicurezza del combustibile esaurito, è necessario poter calcolare correttamente il rischio di esposizione per la popolazione relativo al deposito geologico profondo che ospiterà tutto, o solo parte, del materiale nucleare estratto dagli attuali reattori a fissione. In questo capitolo cercheremo di affrontare l'evoluzione del concetto di *radiotossicità* non solo nel tempo ma anche attraverso le diverse pubblicazioni disponibili in letteratura. Le commissioni internazionali, che si occupano di radioprotezione, da anni presentano le definizioni e i concetti di base per la stima del detrimento legato all'esposizione a campi di radiazioni ionizzanti. Noi esamineremo i metodi di stima della dose inalata o ingerita e le principali grandezze coinvolte, confrontandole con quelle presenti nelle leggi americane ed europee in materia di radioprotezione. Tutto questo assume particolare rilevanza se si considera che molto spesso l'efficienza di bruciamento degli attinidi minori e dei prodotti di fissione viene presentata in termini di radiotossicità residua, e che le curve rappresentative di questa grandezza sono costruite nei vari report e studi tecnici con unità di misura molto diverse tra loro.

Per poter confrontare quindi dati provenienti da fonti diverse ed espressi in unità di misura diverse è necessario avere conoscenza del significato che rappresentano. La sfida aperta oggi dalla trasmutazione non permette più simili incomprensioni ed inesattezze.

In generale, esistono tre principali modi di esprimere la radiotossicità, ognuno dei quali è focalizzato su differenti aspetti:

- radiotossicità intesa come ‘quantità’ di sostanza disponibile per l’ingestione o l’inhalazione umana ed espressa, molto spesso, in termini di m³ d’acqua necessari a diluire la radioattività totale, ‘maximum permissible concentration’ (MPC), entro la concentrazione massima permessa di legge per il consumo da parte dell’uomo;
- radiotossicità come stima della *dose* ed espressa, per esempio, in termini di ‘dose per unit of intake’ (DPUI) in Sv/Bq o della *probabilità di provocare tumori*, ‘cancer dose (CD)’, per unità di quantità assorbita dall’uomo. Questa misura fornisce un valore relativo e non assoluto del rischio collegato alla quantità di sostanza in esame ma facilita la stima ed il confronto tra dati di diversa provenienza perché è indipendente dal limite di legge considerato;
- radiotossicità come misura adimensionale della quantità di materiale radioattivo considerato relativa ad una grandezza presa come riferimento ed espressa, per esempio, in termini di radiotossicità dell’uranio naturale o della radiotossicità di un equivalente ‘reference level (RL)’. Questa definizione per quanto immediata e versatile nel confronto tra diverse misure pecca della non univocità della grandezza di riferimento.

Per l’obiettivo di questo lavoro la definizione più adatta, e quindi scelta per la radiotossicità, è quella che si riferisce univocamente al valore di dose prodotto da una data quantità di materiale radioattivo (Sv/Bq). In particolare, per riferirlo correttamente alle tonnellate di combustibile esaurito scaricate dal reattore è possibile passare da Sv/Bq a Sv/toniHM, cioè di Sievert per ogni tonnellata di metalli pesanti contenuti effettivamente nel combustibile, oppure come più spesso verrà fatto in Sv/GWe-y riferendo ogni tonnellata di metalli pesanti all’equivalente valore di energia prodotto in un reattore con burn-up di 50 GWd/ton e fattore di carico di 85%.

I valori di radiotossicità in Sv/toniHM del combustibile esaurito, ottenuti dalla nostra analisi basata su un reattore di riferimento tra il parco di reattori belga e singolo ciclo di irraggiamento, sono mostrati in figura (4.1): in particolare è evidenziato il confronto tra la

radiotossicità di tutto il combustibile con il contributo dei soli attinidi, dei soli prodotti di fissione e del 'reference level'.

I valori di dose da cui è ricavata la radiotossicità sono aggiornati alla pubblicazione ICRP 72 e alla tabella C dell'allegato AI della legge belga del 2001 in materia di protezione contro le radiazioni ionizzanti.

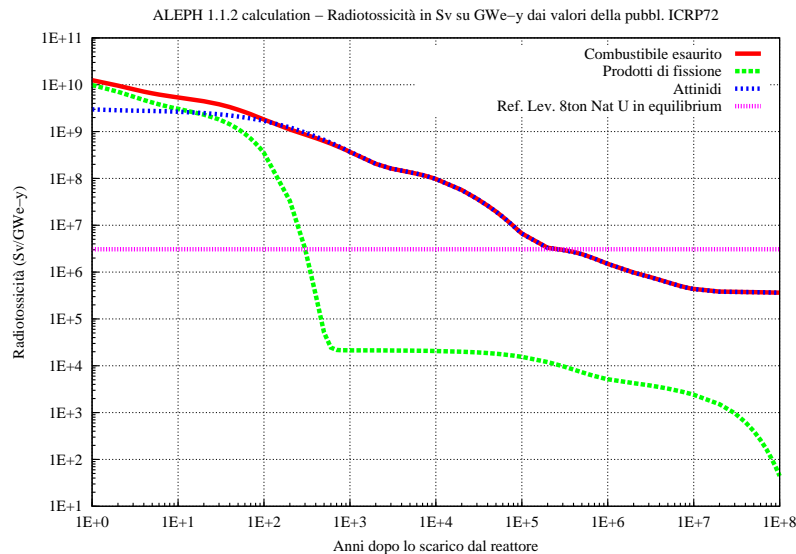


Figura 4.1: Radiotossicità del combustibile esaurito in Sv/toniHM con i valori di dose aggiornati alla legge belga del 2001

Per comprendere come relazionare il combustibile scaricato dal reattore con il detrimento fisico che è capace di causare vanno considerate le grandezze che stanno alla base della dosimetria interna e va concordato sulla loro definizione.

Sin dai primi anni del 20° secolo l'*Internazionale Commission on Radiological Protection* (ICRP) ha avuto un ruolo determinante nella promulgazione e omologazione delle scoperte scientifiche e delle definizioni in campo radioprotezionistico grazie alle sue pubblicazioni. Dagli Stati Uniti anche la *National Council on Radiological Protection and Measurement* (NCRP), con altrettante pubblicazioni, ha dato voce ad un gran numero di informazioni. Altre commissioni come la *United Nation Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation* (UNSCEAR), in seno alle Nazioni Unite, o il consiglio *Biological Effects of Ionizing Radiation* (BEIR) entro la americana *National Academic of Science* stanno aggiornando la

comunità scientifica con la presentazione della nuove scoperte sugli effetti dell'esposizione a radiazioni ionizzanti.

Lo scopo dello studio della dosimetria interna ha tre obiettivi principali [28], che in ordine di importanza sono:

- assicurare controllo e prevenzione per l'esposizione nei luoghi di lavoro;
- promuovere l'intervento di cure mediche;
- assicurare la conformità agli standard di legge.

Il significato dei primi due punti è evidente; il terzo punto invece sottolinea che una corretta comprensione delle grandezze in gioco è indispensabile per poter realizzare il confronto tra valori sperimentali ottenuti con i dispositivi tecnologici che applicano grandezze dosimetriche, come ad esempio accade usando il codice evolutivo ORIGEN 2.2, ed i limiti imposti per legge e le loro continue evoluzioni negli anni.

4.1.1 Le raccomandazioni dell' 'International Commission on Radiological Protection' (ICRP)

Nei primi anni di applicazione delle radiazioni ionizzanti gli standard di riferimento erano molto diversi da quelli di oggi. La conoscenza sul campo si basava sull'applicazione di singoli radionuclidi, come radio, uranio e plutonio, connessi agli studi del progetto Manhattan. Sin da allora la misura dell'esposizione derivata dall'ingestione o inalazione di una sostanza radioattiva riferita alla quantità o meglio alla 'concentrazione' massima è stata la più intuitiva espressione cui fare riferimento sulla base di dati raccolti dall'esperienza: da qui l'introduzione del '*maximum permissible concentration*' (MPC) o del '*maximum permissible body burden*' (MPBB) come valori limite da applicare in campo lavorativo.

Solo in un secondo momento, in particolare a partire dagli anni '50, sono stati sviluppati modelli di rappresentazione dell'evoluzione della sostanza assimilata con il metabolismo del corpo umano: va ricordato che però fino agli anni '40 la concentrazione massima permessa in aria per l'uranio era la stessa usata per tutti i metalli pesanti come il piombo.

E' immediato quindi capire la portata storica della prima pubblicazione dell'*International Commission on Radiological Protection*, [29], nel 1959, che per la prima volta presentava con evidenza scientifica la necessità di considerare concetti come 'organo critico' e 'uomo medio' con tutti i parametri che li caratterizzano.

L'organo critico è stato definito come quello limitante perché maggiormente esposto a parità di assorbimento al variare della tipologia di radionuclide. Infatti, per diverse tipologie di radionuclidi, al variare delle loro caratteristiche di solubilità o insolubilità, sono stati considerati diversi organi e tessuti critici: l'organo critico è stato studiato matematicamente con un modello a comparto singolo dove le sostanze sono introdotte sulla base di un rateo costante (esposizione rappresentativa di un assorbimento cronico) e ne sono rimossi esponenzialmente. Con il concetto di 'vita media biologica' viene descritto, poi, e misurato il processo di rimozione da parte dell'organismo della sostanza considerata.

Uno degli aspetti più significativi della *ICRP Publication 2* è stata la costruzione di un modello sia respiratorio sia del tratto gastrointestinale (GI) per l'analisi del comportamento dei radionuclidi all'interno dell'organismo. In particolare il tratto respiratorio aveva come parametro di riferimento la solubilità del radioelemento, assumendo che una frazione di sostanza era comunque assorbita all'interno del flusso sanguigno o immediatamente, 'solubile', o con vita biologica media maggiore di 120-giorni, 'insolubile'. Nel caso di sostanza insolubile i polmoni stessi erano considerati l'organo critico.

Nella definizione del modello di tratto gastrointestinale non veniva assunta la rimozione esponenziale nel passaggio da un tratto all'altro del condotto: era come se venisse considerato un tempo medio di residenza per costruire lo schema lento di assorbimento. Di notevole importanza è stata la definizione dei parametri f_1 per quantificare la frazione di radionuclide trasferita dall'intestino al flusso sanguigno e rappresentare così la solubilità del tratto GI nel caso di contaminazione per ingestione.

Per quanto riguarda la definizione di 'uomo medio', le informazioni presentate nella pubblicazione comprendevano l'altezza, il peso, il raggio e la massa degli organi, la frequenza di respirazione e il consumo medio annuale di acqua. Tutte queste informazioni servivano per conoscere le caratteristiche biologiche del modello usato e per definire tutti i parametri legati alla dosimetria interna e poterli così rapportare ai casi reali.

L'ICRP 2 entra, poi, nei dettagli dei limiti di esposizioni per ogni radionuclide per cui all'epoca erano conosciute le proprietà radiologiche e chimiche, la commissione nella stessa *ICRP Publication 2* utilizza l'unità di misura del '*maximum permissible concentration*' (MPC) esprimendo quindi in termini di $\mu\text{Ci/ml}$ i valori raccomandati. Nelle tabelle compaiono le concentrazioni in aria e in acqua (riferite quindi a contaminazione per inalazione o per ingestione) sia per esposizione di 40-h la settimana (limite di esposizione occupazionale) sia per esposizione continua di 168-h la settimana (applicabile anche ad esposizione non occupazionale).

Questi valori erano determinati sulla base dei limiti di dose conosciuti allora e chiamati '*maximum permissible annual doses*':

- 3 rem per 13 settimane alle gonadi o a tutto il corpo (0.1 rem/settimana), con limite massimo di $5(n - 18)$ rem a tutto il corpo, dove n indica l'età in anni;
- dose efficace calcolata sulla base del '*relative biological effectiveness*' (RBE) alle ossa integrata su 13 settimane, minore del valore di dose pesata con il fattore di RBE medio a tutto lo scheletro dovuto ad una esposizione di $0.1 \mu\text{Ci}$ di Ra-226 (corrispondente circa a 0.56 rem/settimana);
- 4 rem per 13 settimane o 15 rem per anno ad ogni singolo organo con eccezione delle gonadi, delle ossa, della pelle o della tiroide (0.3 rem/settimana);
- 8 rem per 13 settimane o 30 rem per anno alla pelle o alla tiroide (0.6 rem/anno).

In particolare, il fattore '*relative biological effectiveness*' è stato definito come un fattore di ponderazione delle radiazioni e aveva valore 1 per radiazioni β^- , β^+ , X e elettroni (poteva essere uguale a 1.7 se l'energia massima di queste arrivava fino a $E_m = 0.3 \text{ Mev}$), 10 per particelle alfa e 20 per le particelle di rinculo.

I valori in MPC che compaiono nella pubblicazione sono realmente interpretabili come la dose massima raggiungibile a seguito di tale esposizione per tutta la durata dei 50 anni di vita lavorativa all'uomo medio. Altri valori altrettanto significativi della misura dell'esposizione massima consentita erano espressi in termini di 'massimo detrimento ricevuto su tutto il corpo', '*maximum permissible body burden*' (MPBB), o analogamente ricevuto sull'organo

critico, *'maximum permissible organ burden'* (MPOB). Queste grandezze sono state definite con l'intento di permettere di misurare il valore massimo di dose al cinquantesimo anno di esposizione e solo dopo 50 anni di vita lavorativa ad una esposizione continuata all'MPC. Non sono affatto il limite significativo in qualsiasi altro intervallo di tempo (eccezione fatta per i radionuclidi a vita breve): spesso questo punto è stato all'origine di errori ed incomprendimenti che hanno portato la commissione internazionale, raccolta l'esperienza in seno alla prima pubblicazione, alla diffusione di una serie di pubblicazioni aggiornate e più corrette in materia.

Dagli anni '70, l'*ICRP Publication 2* è stata costantemente aggiornata: per prima la pubblicazione 23, 1975, sostituisce la definizione di 'uomo medio' con la più corretta definizione di 'uomo standard', o *'reference man'*. Successivamente, la pubblicazione 26, 1977, presenta nuovi valori per limiti di esposizione e la definizione di nuovi limiti 'secondari' quali l'*'annual limit of intake'*, (ALI), e il *'derived air concentration'*, (DAC). Introduce anche due importanti limiti di riferimento per la radioprotezione dei lavoratori, recepiti subito dalla legislazione europea ed americana del tempo: il primo limite è quello di 0.5 Sievert (SV) di equivalente di dose impegnata (H_{50}), per controllare gli effetti non-stocastici dell'esposizione a qualsiasi organo e tessuto a seguito di un valore di dose integrato in un tempo di 50 anni di esposizione continua. Il secondo limite di 0.05 Sv di equivalente di dose efficace impegnata, ($\sum w_T H_{50,T}$), riguarda la protezione da effetti stocastici legati alle radiazioni ionizzanti.

Solo con la *ICRP Publication 30* [30], 1979 e successivi, viene completamente sostituita la pubblicazione 2, 1959, e viene presentata una raccolta organica e completa di tutte le nuove scoperte, le nuove definizioni e metodologie in campo di radioprotezione.

In particolare nell'ICRP 30 compaiono informazioni dettagliate sul calcolo dei limiti secondari di esposizione, un nuovo modello del sistema respiratorio e gastrointestinale suddiviso in sotto-compartmenti. E' importante sottolineare come il modello del sistema GI e le metodologie di calcolo dei limiti secondari siano ancora quelli in uso attualmente dall'ICRP stessa.

Le definizioni di ALI, *'annual limit of intake'*, espresso in Becquerel (Bq), e DAC *'derived air concentration'*, espresso in Bq/m^3 , sono definiti come il valore di introduzione di una data sostanza durante un anno lavorativo che risulti nel limite di 0.5 Sv di equivalente di dose

efficace impegnata o di 0.05 Sv di dose efficace impegnata ad un dato organo dell'uomo di riferimento.

In particolare i valori di ALI sono forniti in tabelle sia per l'inalazione sia per l'ingestione e sono calcolati per esposizione acuta al massimo valore di assorbimento annuale 'I' espresso in Becquerel (Bq) dello specifico radionuclide, sia per l'ingestione sia per l'inalazione, in grado di soddisfare le seguenti disuguaglianze:

$$I \sum_T w_T (H_{50,T \text{ per unit intake}}) \leq 0.05 \text{ Sv} \quad (4.1)$$

$$I(H_{50,T \text{ per unit intake}}) \leq 0.5 \text{ Sv} \quad (4.2)$$

dove w_T è il fattore di ponderazione delle radiazioni e $H_{50,T}$ (in Sv) è l'equivalente di dose impegnata totale per il tessuto (T) risultante dall'introduzione nell'organismo di materiale radioattivo attraverso tutte le forme di assorbimento durante l'anno in questione. Il DAC (Sv/m³) è un limite derivato dal precedente e calcolato dividendo il corrispondente ALI, riferito all'inalazione, per la quantità di aria respirata dall'uomo di riferimento durante un anno solare, e corrispondente a 2400 m³ [30].

Sostanziali differenze sono state introdotte quindi dall''*ICRP Publication 30*' rispetto all''*ICRP Publication 2*': questo comporta anche una notevole differenza tra le leggi promulgate sulla base delle prime raccomandazioni o delle seconde.

Le conoscenze sviluppate durante gli anni '80 sul comportamento metabolico dei radionuclidi sono state raccolte e omogenizzate con l'*ICRP Publication 60*, 1990. Questa raccomandazione, insieme con la pubblicazione successiva *ICRP Publication 61*, hanno portato numerose novità fondamentali soprattutto a livello concettuale.

Numerosi sono stati i cambiamenti introdotti nelle definizioni delle diverse unità di misura e delle metodologie: tra le altre ricordiamo che da allora la dose impegnata si integra per un periodo di tempo di un anno. Le altre nuove voci introdotte sono riportate in tabella (4.1) in cui viene mostrato il confronto tra nuove e vecchie definizioni.

Anche i limiti di introduzione sono cambiati: è stato introdotto 1 Sv di dose efficace

Definizioni dall'ICRP 26	Definizioni dall'ICRP 60
Quality factor (Q)	Radiation weighting factors (w_r)
Weighting factors (w_T)	Tissue weighting factors (w_T)
Dose equivalent (H)	Equivalent dose (H_T)
Effective dose equivalent ($\sum w_T H_T$)	Effective dose (E)
Committed dose equivalent (H_{50})	Committed equivalent dose [$H_T(\tau)$]
Committed effective dose equivalent ($\sum w_T H_{50,T}$)	Committed effective dose [$E(\tau)$]
Stochastic effect	Stochastic effect
Non-stochastic effect	Deterministic effect

Tabella 4.1: Confronto tra le definizioni introdotte dall'ICRP 26 e dall'ICRP 60

annuale per i membri della popolazione e 20 mSv come limite per i lavoratori esposti di dose efficace in un anno.

Attualmente il corpo di raccomandazioni in vigore sono dunque quelle pubblicate dalla 60 in poi. Oltre ad aver pubblicato i valori di dose per i lavoratori ancora con l'ICRP 68, ritroviamo tutti i valori di dose per la popolazioni suddivisi per categorie sulla base dell'età nelle ICRP 56, 67, 69, 72.

I valori presenti sostituiscono quelli calcolati nell'ICRP 30, e sono espressi come coefficienti di dose, o 'dose per unit of intake' (DPUI) in Sv/Bq: rappresentano la dose per unità di assorbimento tenendo in considerazione il comportamento dei radionuclidi nell'organismo, il tipo e l'energia di particella coinvolte e la radiosensibilità dei tessuti [31].

Con l''*ICRP Publication 66*' viene presentato il modello di tratto respiratorio sostitutivo a quello dato dall'ICRP 30: vengono distinte le singole tipologie di deposizione, rimozione, assorbimento e dosimetria. Divide il tratto respiratorio in più di un solo organo bersaglio. Le classi di assorbimento F (fast), M (moderated) e S (slow), sono state ridefinite come D (day), W (week) e Y(year). Certamente va sottolineato che molti dei metodi usati nel calcolo, benché aggiornati e perfezionati, presentano valori molto vicini a quelli riportati dell'ICRP 30: basta ricordare che il modello del tratto gastrointestinale è lo stesso per entrambe.

In Europa la direttiva della Comunità Europea, 96/29/EURATOM, è basata proprio su questi nuovi concetti in campo radioprotezionistico e tutti gli stati membri, dovendo recepi-

re tale direttiva, hanno promulgato leggi in materia di protezione dalle radiazioni ionizzanti prendendo a riferimento l'ICRP 60, e pubblicazioni immediatamente successive. Per questo, parlare di coefficienti di dose per unità di attività assorbita (DPUI) della legge belga, o italiana, equivale riferirsi alla pubblicazione ICRP 60 e successive. Ogni stato, però, crea di conseguenza le proprie tabelle relative al rilascio di sostanze radioattive nell'ambiente (Bq/l) e, nel presente lavoro inserito nel contesto degli studi sui reattori sottocritici iniettati presso il centro SCK-CEN in MOI (Belgio), saranno spesso considerati come riferimento i valori promulgati dalla legge belga del 2001.

Siamo oggi in attesa della prossima pubblicazione riassuntiva degli aggiornamenti raccolti dell'ICRP negli ultimi quindici anni. Sembrava che questa dovesse uscire nel 2005 ma è arrivata la conferma della sua posticipazione fino al 2006-2007.

4.1.2 Studio del Rischio Associato alle Radiazioni Ionizzanti: i rapporti BEIR e UNSCEAR

Attualmente grande attenzione, sia in Europa sia negli Stati Uniti, è rivolta alla revisione dei metodi dosimetrici e allo studio degli effetti derivanti dall'esposizione a campi di radiazioni ionizzanti. I due aspetti fondamentali sono la misura dell'entità dell'esposizione e la stima degli effetti sulla salute a seguito dell'esposizione stessa.

In letteratura esistono alcuni tentativi di esprimere la radiotossicità degli 'high level waste' (HLW) attraverso l'uso della grandezza relativa del numero atteso di morti per cancro o 'cancer dose' (CD) a seguito della potenziale ingestione dei radionuclidi contenuti nel combustibile esaurito da parte dei membri della popolazione. In questa direzione, il primo tentativo di esprimere la stima della radiotossicità in 'cancer dose' risale a B. Cohen [32] nel 1980; tale valore è stato poi aggiornato dallo stesso Cohen, utilizzando le raccomandazioni dell'ICRP (1991) di utilizzare il valore di 0.05 morti per Sievert [33]. Nel Paragrafo (4.2.2) verrà presentata più nel dettaglio questa tipologia di indice di radiotossicità.

Di seguito presentiamo, intanto, le informazioni principali per capire le metodologie scientifiche alla base del concetto di rischio potenziale a seguito dell'ingestione o inalazione di radionuclidi così come presentate dalle fonti più autorevoli nello scenario scientifico internazionale.

Anche per questo particolare aspetto la fonte principale di informazione sono le pubblicazioni dell'*International Commission on Radiological Protection*, con la pubblicazione '*Risk Associated with Ionising Radiation*' del 1991 [34].

Altrettanto autorevoli documenti sono stati pubblicati nel corso degli anni tra cui, sin dal 1972, il report redatto in seno alla National Academies of Science '*Biological Effects of Ionising Radiation*' (BEIR). In particolare, proprio su richiesta della Nuclear Regulatory Commission (NRC), seguita dall'Environmental Protection Agency (EPA) e dal Department of Energy (DOE) la National Academies of Science ha iniziato nel 1996 una revisione e un aggiornamento delle attuali conoscenze in campo di effetti delle radiazioni ionizzanti: il risultato di questo lavoro è stato pubblicato qualche mese fa (Marzo 2006) come 'BEIR VII Report' [35]. La precedente versione, datata 1990, era il 'BEIR V Report' [36] che a sua volta aveva aggiornato i due precedenti 'BEIR III' [37] e 'BEIR' report. Gran parte dei documenti e delle decisioni assunte negli scorsi vent'anni sono state prese sulla base del 'BEIR III Report' che nel 1980, insieme all'ICRP 30, ha influenzato i valori adottati dal corpo di leggi dei paesi occidentali. Con la pubblicazione attesa del nuovo 'BEIR VII Report' vengono sottolineate nuovi e vecchi traguardi della radioprotezione: sempre migliori tecniche computazionali per l'analisi del rischio di esposizione e la cresciuta casistica dei malati di tumore collezionata nel data-base dei sopravvissuti ai bombardamenti in Giappone (DS02), aggiornata al 2002, confermano le teorie avanzate negli scorsi anni. Uno dei punti chiave del nuovo 'BEIR VII Report' è stata la conferma dell'evidenza scientifica della relazione lineare, non a soglia, della dose ('linear no-threshold dose response relationship) che lega l'esposizione ad un campo di radiazioni all'insorgere di tumori nell'uomo. L'uso della 'linear no-threshold theory' (LNT), applicata spesso in radioprotezione, afferma in particolare che il rischio di cancro derivante dall'esposizione a 0.001 Sievert è 0.001 volte inferiore del rischio derivante dall'esposizione a 1 Sievert. Questo significa che il rischio è direttamente dipendente dalla dose [38]. In ogni caso è chiaro che l'insorgere reale di cancro è comunque influenzato da una numerosa serie di fattori che comprendono l'età, il sesso, la razza di appartenenza ed in generale tutti i fattori ambientali. Per questo comprendere il ruolo di un'esposizione di piccola entità nell'insorgenza del cancro è da sempre un problema. A complicarne lo studio c'è anche il carattere stocastico e non deterministico dell'insorgenza del cancro stesso.

E' per questo che la commissione compilatrice del 'BERI VII Report' non esclude effetti a soglia per valori di esposizione in vita inferiori a 0.1 mSv. Nonostante le evidenti difficoltà connesse allo studio degli effetti delle radiazioni, è possibile associare quindi dei coefficienti di rischio per unità di dose assorbita: l'entità del rischio di morte, stimato dal 'BEIR VII Report', in seguito all'insorgenza di qualsiasi tipo di cancro è 5×10^{-2} per Sievert e 6×10^{-3} per Sievert per la sola leucemia. Il valore ottenuto dalla somma dei due rischi di cancro è, in ogni caso, dello stesso ordine di grandezza di quello ottenuto dieci anni prima dal 'BEIR V Report' (1990), dall'ICRP (1991) e dalla 'United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation' (UNSCEAR 2000), come riportato in tabella (4.2).

Comparison of lifetime cancer mortality estimates.					
Cancer Category	BEIR V (1990)	ICRP (1991)	EPA (1999)	UNSCEAR (2000)	BEIR VII
Leukemia	95	50	56	50	61
All cancer except leukemia (Sum)	460	450	520		
All solid cancers (Sum)				520	510

Tabella 4.2: Confronto tra il rischio di cancro stimato dal BEIR VII con quello ottenuto da altri report. L'eccesso di morti viene stimato per una popolazione di 100,000 persone di tutte le età e di entrambi i sessi esposti ad un campo di radiazioni risultante nella dose di 0.1 Gy

Va comunque sottolineato che nonostante la somiglianza dei risultati, le tecniche utilizzate da ciascuna organizzazione per stimare il rischio associato all'insorgere di cancro e leucemia sono anche molto diverse tra loro. Nei documenti UNSCEAR ed ICRP i valori ottenuti sono stati calcolati applicando il data-base dosimetrico DS86 ed un 'dose and rate effectiveness factor' (DDREF) di 2, come raccomandato anche dal 'BEIR V Report'. In questo modo viene ridotto il rischio derivato dall'esposizione a più basse dosi, o a bassi ratei di dose, rispetto all'estrapolazione lineare da valori di rischio per dosi elevate.

In particolare, il valore di rischio di cancro più spesso preso a riferimento per i membri della popolazione è, come riportato sull'ICRP del 1991, di 5 per 100 Sv, cioè 0.05 cancri attesi per ogni Sievert. E' possibile leggere, infatti, sulla pubblicazione che: *'the lifetime risk of fatal cancer for a member of the general population exposed to low-level whole-body irradiation can be assumed to average approximately 5 per cent per Sv'*.

Questi ultimi dati superano la stima avanzata nell'ICRP 26 di circa un fattore 3-4. In particolare è sembrato significativo riportare anche una tabella (4.3) con i dati del rischio di morte per cancro in una popolazione di 100,000 persone, mediati sia sull'età sia sul sesso, esposta ad un campo di radiazioni risultanti in una dose di 0.1 Gy dalle edizioni precedenti dei report considerati.

Comparison of lifetime cancer mortality estimates.				
Cancer Category	BEIR (1972)	ICRP 26 (1977)	UNSCEAR (1977)	BEIR III (1980)
Leukemia	25	20	15-25	22
All solid cancers (Sum)	180	100	120	120

Tabella 4.3: Confronto tra il rischio di cancro stimato dal BEIR I, BEIR III, ICRP 26, UNSCEAR 1977. L'eccesso di morti viene stimato per una popolazione di 100,000 persone di tutte le età e di entrambi i sessi esposti ad un campo di radiazioni risultante nella dose di 0.1 Gy

Ad oggi il BEIR VII usa il data-base dosimetrico aggiornato DS02 ed un DDREF di 1.5 e li applica al calcolo della stima del rischio per la popolazione americana. Per quanto riguarda la Nuclear American Society (NRC), attualmente sta applicando valori di DDREF di 2 e ha dato mandato alla commissione interna (SECY-05-0202) di provvedere all'analisi dei nuovi risultati appena pubblicati con il 'BEIR VII Report': per ora però sembra che passare a valori di 1.5 sia stato giudicato prematuro. Molta attesa è riposta nella futura pubblicazione quadro dell'ICRP che darà o meno definitiva conferma di valori aggiornati.

Il rapporto delle Nazioni Unite sugli effetti delle radiazioni (UNSCEAR) è l'ultimo rapporto da noi preso in esame come autorevole fonte in materia di radioprotezione. La commissione scientifica che lo redige è all'interno delle Nazioni Unite con il mandato di analizzare e stabilire i livelli e gli effetti dell'esposizione da radiazioni ionizzanti. Questa commissione è nata più di cinquant'anni fa per informare il corpo delle Nazioni Unite circa gli effetti dei continui bombardamenti nucleari e per fermarne la pratica diffusa. Così il 3 Dicembre 1955, l'Assemblea Generale ha dato vita alla '**United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation**' (UNSCEAR). Nei trascorsi vent'anni, gran parte dell'attenzione è stata rivolta all'analisi dell'eredità lasciata al mondo dalla guerra fredda in termini di

produzione di armi nucleari e di test atomici, con le conseguenze in termini di effetti delle radiazioni. L'ultima maggiore pubblicazione, dopo le edizioni del 1986, 1988, 1993, è stata quella del 2000 e del 2001.

Più recentemente, l'attenzione è stata rivolta sull'esposizione occupazionale a seguito di materiale radioattivo presente in natura e sull'esposizione da radon.

La pubblicazione UNSCEAR 2000 presenta le stime di mortalità da cancro e quelle di incidenza dei casi di leucemia basati sia su modelli di trasporto assoluti sia relativi, senza specificare una preferenza. Questi metodi sono presentati nel dettaglio in tutti i report perché stanno alla base della corretta valutazione dei valori di rischio. Con le sigle ERR, 'excess relative risk' e EAR 'excess absolute risk', usate anche dai report BEIR VII e ICRP (2005) vengono, infatti, rappresentati dall'UNSCEAR l'incremento di rischio di cancro riferito ad un gruppo non esposto, misurato su scala proporzionale e assoluta rispettivamente. Per esempio l'ERR uguale a 1, corrisponde a due volte il rischio di cancro considerato inizialmente. L'EAR esprime, invece, l'incremento nel numero di cancri attesi ogni anno su 10,000 persone. Per tutte le misure del rischio da radiazioni va sottolineato che questi valori derivano tutti dall'aver preso come ipotesi di base una risposta lineare all'esposizione. Spesso, infatti, si trova espresso il valore ERR per unità di dose, cioè per Sievert.

Il vantaggio di esprimere il rischio da radiazioni con queste grandezze, sta nella possibilità di poter confrontare dati provenienti da studi diversi, senza il problema di doverne trasformare e confrontare le unità di misura.

Un'altra definizione da tenere in considerazione è il rischio di morte associato a tutte le tipologie di cancro; viene stimato con più precisione per la maggiore disponibilità di dati rispetto al caso di cancro specifico di una particolare zona. La definizione di 'lifetime risk' è semplicemente la differenza tra la probabilità di morire per cancro in una popolazione esposta contro la stessa probabilità in una popolazione non esposta a radiazioni. Nell'UNSCEAR questo valore è stato chiamato 'excess lifetime risk' (ELR). Nell'ICRP, 1991, la stessa è chiamata 'lifetime of fatal cancer'. Nel BEIR VII viene presentata come mortalità per cancro estesa a tutto l'arco di vita, valutata per esempio per le morti aggiunte in una popolazione di 100,000 persone dall'esposizione a 0.1 Gy. Una stima dei valori medi, approssimati a tutto il corpo di tale rischio è riportata in tabella (4.2).

4.1.3 Il Codice di Leggi Americano sugli Standard di Protezione contro le Radiazioni: 10 CFR Part 20

Per poter utilizzare senza errori il codice evolutivo ORIGEN 2.2, sia da solo sia integrato nel codice di nuova definizione ALEPH-1.1.2 di interfaccia tra MCNPX e il codice ORIGEN 2.2, è stato necessario effettuare un'analisi storica per la ricerca dei valori di '*maximum permissible concentration*' (MPC) utilizzati dal codice stesso: dal manuale del codice [20] è stato evidente che i valori di '*radioactivity concentration guide*' (RCG) erano stati copiati dai valori in Appendice B tabella II del 10 CFR Part 20 del 1982 [39]. Da qui è nata l'idea di studiare l'evoluzione negli ultimi vent'anni della legislazione americana e il suo rapporto con le pubblicazioni dell'ICRP.

Quello che è stato evidenziato è che il codice di legge degli Stati Uniti sugli standard di protezione contro le radiazioni, '*Standards for Protection Against Radiations*' (10 CFR Part 20) fino ai primi anni '90 è rimasto fedele alle raccomandazioni dell'ICRP 2 e solo con la pubblicazione del 10 CFR Part 20 del 1994 sono entrate in vigore le raccomandazioni ed i valori di dose dati dall'ICRP 30. Per mostrare l'influenza di questo cambiamento sulla stima della radiotossicità del combustibile esaurito, viene presentato in figura (4.2) il confronto tra la radiotossicità del combustibile esaurito calcolata usando sia i valori originariamente presenti nel codice ORIGEN 2.2 di '*water radioactivity concentration guide*' (WRCG), in m³ di acqua, e secondo la nostra ricerca riferiti quindi ad un limite di legge per la popolazione di 5 mSv di '*equivalente di dose efficace*', sia i valori ricavati durante questo lavoro di tesi dalla versione del 10 CFR Part 20 ad oggi più aggiornata e riferiti ad un limite di legge di 1 mSv (nel caso di rischio di esposizione continuata nell'arco dell'anno il limite deve essere ridotto a 0.5 mSv l'anno). Per ognuna è stato graficato anche il rispettivo '*reference level*' per vedere chiaramente la differenza nel raggiungimento del livello corrispondente al deposito in sicurezza del combustibile esaurito o '*safe storage*' a seconda dell'utilizzo dell'uno o dell'altro data-base.

In particolare, l'ultima versione aggiornata del codice federale degli Stati Uniti in materia di protezione contro le radiazioni risale all'emendamento 56FR23391, del 21 Maggio 1991 e riporta in larga misura i principi ed i limiti consigliati nelle pubblicazioni ICRP 26 (1977) e ICRP 30 (1978). A causa della ritardata pubblicazione effettiva, 1 gennaio 1994, la nuova

versione del codice riflette in sè anche alcuni nuovi concetti introdotti dalla più recente ICRP 60: tra questi ricordiamo il cambiamento dei limiti di dose dai quartili 12.5 mSv, misurati quindi su un quarto di anno, ai 50 mSv di ‘dose equivalente’ estesa a tutto il corpo annuale per i lavoratori, che tiene in conto tutte le forme di introduzione del radionuclide considerato più l’equivalente di dose efficace impegnata relativa all’organo esposto. E’ stato anche assimilato il limite di dose efficace per i membri della popolazione di 1 mSv. I limiti annuali di esposizione (ALI) ripresi dall’ICRP 30 riflettono in oltre la metodologia di pesare la dose su tutti gli organi principali coinvolti e non solo sull’organo critico come in precedenza.

Per entrare poi nei dettagli del confronto tra Codice Federale e le pubblicazioni dell’ICRP, l’edizione superata del 10 CFR 20 aggiustava i valori dell’ICRP 2, in $\mu Ci/ml$, di un fattore 10 per riportare i valori dei limiti di esposizione occupazionale, così come elencati nella stessa ICRP 2, ai limiti di esposizione per i membri della popolazione. Invece il 10 CFR Part 20 successivo riprende sostanzialmente i valori limite di esposizione, espressi in ALI (Bq), dall’ICRP 30 del 1978 e compendi successivi. Per rendere più evidente il rapporto tra l’evoluzione nel corpo di leggi americane con le successive pubblicazioni dell’ICRP, in tabella (4.4) sono stati riportati i valori dei rispettivi coefficienti di dose per i radionuclidi più

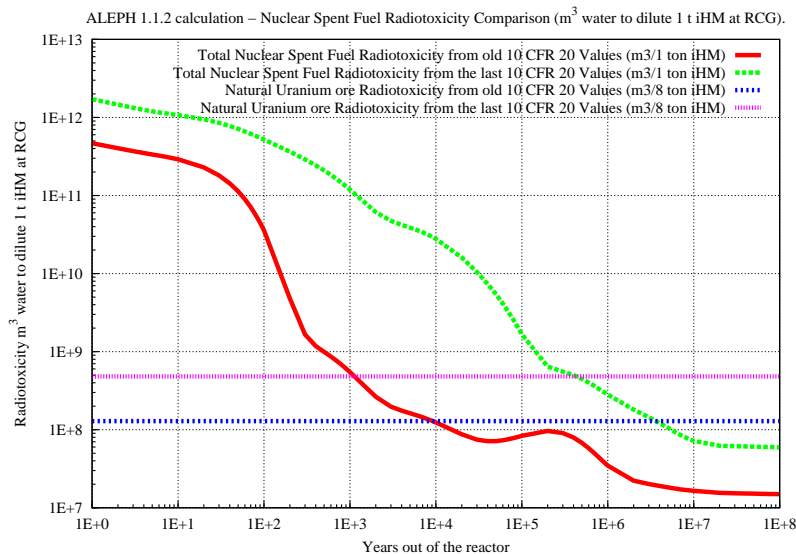


Figura 4.2: Confronto tra i valori di radiotossicità della vecchia edizione del 10 CFR Part20 con quelli dell’ultima edizione aggiornata al 1994.

significativi, cioè quelli che danno il maggior contributo alla radiotossicità del combustibile esaurito.

	ICRP 2 (1959) $\mu\text{Ci/ml}$	10 CFR 20 (1982) $\mu\text{Ci/ml}$	ICRP 30 (1978 e succ.) ALI (Bq)	10 CFR 20 (1994) ALI (Bq)
Am-241	1.0E-4.0	1.0E-4.0	5.0E+4.0	3.7E+4.0
Am-243	1.0E-4.0	1.0E-4.0	5.0E+4.0	3.7E+4.0
Cs-137	4.0E-4.0	4.0E-4.0	4.0E+6.0	3.7E+6.0
I-129	1.0E-5.0	1.0E-5.0		
I-131	6.0E-5.0	6.0E-5.0	4.0E+6.0	3.3E+6
I-133	2.0E-4.0	2.0E-4.0	2.0E+7.0	1.8E+7.0
Np-237	4.0E-3.0	4.0E-3.0	5.0E+4.0	3.7E+4.0
Pu-238	1.0E-4.0	1.0E-4.0	6.0E+4.0	7.4E+4.0
Pu-239	1.0E-4.0	1.0E-4.0	5.0E.+4.0	3.7E+4.0
Pu-240	1.0E-4.0	1.0E-4.0	5.0E+4.0	3.7E+4.0
Sr-90	4.0E-6.0	1.0E-5.0	1.0E+6.0	1.4E+6.0
Y-90	6.0E-4.0	6.0E-7.0	2.0E+7.0	1.8E+7.0

Tabella 4.4: Confronto tra ICRP 2 e 10 CFR Part 20 ed. 1982; e confronto tra ICRP 30 e 10 CFR Part 20 ed. 1994 per i radionuclidi più significativi

Per comprendere le ragioni del parziale recepimento della *'ICRP Publication 60'* va chiarito che questa, era stata emessa solo un anno prima della revisione del 10 CFR Part 20. La *'Nuclear Regulatory Commission'* (NRC), commissione incaricata di esaminare l'eventuale omologazione del Codice Federale alle raccomandazioni ICRP, non ha ancora adottato formalmente appieno l'ICRP 60, e successive, se non come già accennato per qualche concetto e per il limite di 1 mSv di dose efficace annua per i membri della popolazione. Infatti, nei documenti di informazione sulle decisioni prese dalla commissione e chiamati *'SECY papers'* viene esplicitamente dichiarato che la commissione non ritiene che la riduzione per i lavori esposti del limite annuale di dose efficace dai 50 mSv ai 20 mSv sia urgente visto che la dose media registrata per i lavoratori al 1987 era già al di sotto dei 20 mSv anno, anche

grazie all'applicazione del principio ALARA ('as low as reasonably achievable') che impone di mantenere sempre l'esposizione a livelli più bassi possibile [40].

Attualmente, secondo quanto dichiarato dalla stessa NRC è stato revisionato il 'draft 2005' delle raccomandazioni ICRP previste per lo scorso anno, ma sono stati evidenziati dei punti perfezionabili e poco chiari per cui viene rimandata la revisione definitiva alla prossima pubblicazione dell'ICRP che raccolga tutti i nuovi dati (ICRP 70 e 89), i nuovi limiti (ICRP 68), i modelli del tratto respiratorio aggiornato (ICRP 66) e i limiti di dose rivisti per la popolazione (ICRP 67, 69, 71 e 72) pubblicati per ora separatamente [41].

Per concludere, è importante sottolineare come in Kearfott et al., 1996 [42], sia stato presentato un confronto approfondito tra i valori di radiotossicità (ALI) dell'edizione attualmente in uso del 10 CFR Part 20 (1994) con quelli dell'ICRP 61 del 1990 per i lavoratori esposti. In questo articolo sono evidenziate, in particolare, le differenze dovute alle informazioni biologiche ed ai modelli fisiologici raccolti nel corso degli anni '80. Nell'analisi dei singoli radionuclidi sono state trovate consistenti differenze che comprendono circa il 50% dei radionuclidi considerati per cambiamenti nei valori di ALI (Bq) almeno del 25% in più o in meno, considerando il confronto depurato dalla diversità dei limiti di legge per i lavoratori a cui i valori di dose sono calcolati. È fondamentale a riguardo sottolineare che nell'ICRP 61 hanno valore di dose meno restrittivo tutta la famiglia degli attinidi (torio, uranio, plutonio e americio) rispetto ai valori presentati nel 10 CFR Part 20 e quindi nell'ICRP 30. Questo fatto è imputabile ad una sovrastima dei valori di dose nella pubblicazione 30 dell'ICRP (1978 e succ.).

Abbiamo ritenuto questi dati significativi anche al fine di confrontare i valori di dose tra l'ultimo 10 CFR 20 (1994) e l'ICRP 72 (1996) che riporta proprio i limiti di ingestione per la popolazione. In tabella (4.5) vengono elencati i valori in ALI (Bq) del limite di ingestione riportato nel 10 CFR 20 (1994) e nella due ICRP 61 e 72, ciascuna riferita con una semplice moltiplicazione al limite di 5 mSv. Rapportandoli, quindi, allo stesso limite, abbiamo evidenziato come il 10 CFR Part 20 contenga per alcuni nuclidi dei valori più restrittivi a parità di limite di dose efficace annuo considerato rispetto alle ultime pubblicazioni dell'ICRP.

I valori per la popolazione, essendo derivati come vedremo a breve, dai rispettivi valori di radiotossicità per i lavoratori esposti mantengono tra loro rapporti simili a quelli mostrati

	10 CFR 20 (1994) ALI (Bq)	ICRP 61 (1991 e succ.) ALI (Bq)	ICRP 68 (1998) ALI (Bq)
Am-241	3.7E+4.0	7.5E+4.0	2.6E+5.0
Am-243	3.7E+4.0	7.5E+4.0	2.5E+5.0
Cs-137	3.7E+6.0	2.5E+6.0	3.85E+6.0
I-129	7.4E+5.0	5.0E+5.0	4.5E+5.0
I-131	3.3E+6.0	2.0E+6.0	2.3E+6.0
I-133	1.8E+7.0	1.0E+7.0	1.2E+7.0
Np-237	3.7E+4.0	3.0E+4.0	4.5E+5.0
Pu-238	7.4E+4.0	1.0E+5.0	2.2E+5.0
Pu-239	3.7E+4.0	1.0E+5.0	2.0E+5.0
Pu-240	3.7E+4.0	1.0E+5.0	2.0E+5.0
Sr-90	1.4E+6.0	1.5E+6.0	1.7E+6.0
Y-90	1.8E+7.0	2.0E+7.0	1.8E+7.0

Tabella 4.5: Confronto tra 10 CFR Part 20 ed. 1994 e ICRP 61 (1991) e ICRP 68 (1995) per i radionuclidi più significativi

dalla tabella (4.5) precedente .

4.2 Confronto tra Diversi Indici di Stima della Radiotossicità

Abbiamo già scritto più volte come uno dei problemi più delicati relativi allo sviluppo dell'energia nucleare sia collegato ai rifiuti altamente radioattivi (HLW) prodotti lungo tutto il ciclo del combustibile.

L'obiettivo principale con cui oggi viene studiato il combustibile nucleare esaurito (SNF) è quello di determinarne il rischio potenziale associato per la salute dell'uomo e delle generazioni future. E' in questa direzione che oggi i governi chiedono di essere guidati nel prendere le corrette decisioni a lungo termine.

Nel corso dei passati decenni sono stati usati diversi indici e metodologie per esprimere in termini di radiotossicità il comportamento dei radionuclidi all'interno dell'organismo umano. Per questo parlare di *radiotossicità* senza definirne accuratamente le unità di misura scelte è diventato troppo generico al fine di valutare in modo chiaro ed univoco i tempi per il raggiungimento del 'safe storage': sia per la gestione del combustibile estratto dagli attuali reattori sia per dimostrare se l'efficienza di trasmutazione di reattori innovativi, come gli ADS o i reattori veloci, sia sostenibile e vantaggiosa.

La stima accurata del raggiungimento del livello di radiotossicità di miniera, cioè del livello di radiotossicità, uguale o inferiore, alla radiotossicità dell'uranio naturale, o di un equivalente valore di radiotossicità naturale, è ormai indispensabile per valutare la capacità effettiva di reattori dedicati al bruciamento dei radioisotopi a lunga vita. Questa ottimizzazione viene effettuata andando a ricercare la migliore composizione del combustibile da caricare in ingresso al reattore e ottimizzando i cicli di bruciamento in funzione del burn-up.

Come vedremo sembra che il valore teorico di trasmutazione del 99.9% di Pu, Np, Am e Cm possa portare alla riduzione del tempo per il raggiungimento del livello di miniera da circa 10^6 anni a 300 anni. Quello che ancora manca ora è di avanzare stime realistiche di sufficiente efficienza di bruciamento dei radioisotopi a lunga vita per rendere giustificata

la scelta della strategia del ‘partitioning and transmutation’ (P&T) rispetto allo stoccaggio diretto nel deposito profondo (‘once-through’).

Numerosi strumenti di misura e codici di calcolo utilizzano al loro interno questi valori e coefficienti: è il caso del codice evolutivo ORIGEN 2.2 di cui è stato analizzato il data-base relativo ai coefficienti di radiotossicità per trovarne il sostituto più corretto ed aggiornato.

Nel corso del presente lavoro abbiamo ottenuto, come descritto nel Paragrafo 3, i valori delle concentrazioni dei radioisotopi contenuti nel combustibile esaurito, una volta estratto da un reattore ad acqua leggera PWR (4.3% di arricchimento, 50GWd/toniHM e fattore di carico 0.85) sia per il caso semplificato di singolo ciclo di irraggiamento, $1.5 \text{ anni} \times 3 = 4.5 \text{ anni}$, sia per il caso dello studio dell’accumulazione dei radioisotopi durante i 58.5 anni di vita possibile del reattore considerandone anche il PLEX. Il primo calcolo, benché semplificato, è stato finalizzato alla stima della radiotossicità del combustibile una volta estratto dal reattore che ad oggi viene destinato direttamente al deposito geologico profondo.

Il valore totale di concentrazione dei radioisotopi dopo l’accumulazione è stata calcolata, invece, per ottenere l’‘inventory’ complessiva di rifiuti nucleari da gestire dopo l’intero arco di vita di un reattore ad acqua leggera PWR e per avere il vettore isotopico delle concentrazioni dei radionuclidi da usare come input per il combustibile del reattore sottocritico: tale stima valuta la quantità di tonnellate di rifiuti nucleari da dover trattare e ne viene presentata la curva di radiotossicità in GWe-y/toniHM in figura (4.3) oltre che per tutti i radioisotopi contenuti nel combustibile anche per il contributo dei soli attinidi e prodotti di fissione.

In realtà, i valori di concentrazione dei radionuclidi utilizzati per la maggior parte delle analisi e dei grafici di radiotossicità provengono dal calcolo di un singolo ciclo di irraggiamento dopo 4.5 anni calcolato con il codice ALEPH-1.1.2 che utilizza l’MCNPX per il calcolo del flusso neutronico, ORIGEN 2.2 per il calcoli evolutivi della composizione e NJOY 99.112 per processare i dati nucleari presenti nel data-base nel formato ENDF, come già descritto nel Capitolo 3.

4.2.1 Metodi di Calcolo e Applicazione del Codice ORIGEN 2.2

Per affrontare in tutti i suoi aspetti il calcolo della radiotossicità, effettuato prima per un reattore ad acqua leggera (PWR) e poi per un ADS industriale sulla base del modello dell’*European*

Facility for Industrial Transmutation (EFIT), è stato usato come supporto il codice ALEPH-1.1.2 di interfaccia tra MCNPX e il codice evolutivo ORIGEN 2.2.

In particolare, dato che ALEPH-1.1.2 fornisce nel foglio di output, per ora, solo le concentrazioni in g/cm^3 dei radionuclidi più significativi, il calcolo vero e proprio è stato costruito esternamente ad entrambi, utilizzando dei fogli di calcolo Excel a seconda dei coefficienti usati e della tipologia del materiale nucleare da studiare.

Va sottolineato che nel linguaggio del codice ALEPH-1.1.2 si intende per ‘radionuclidi più significativi’ il taglio al 99.9% nel peso dell’assorbimento totale: la composizione isotopica del materiale considerato, così come calcolata da ORIGEN 2.2 con il metodo del trasporto, viene troncata usando un valore assegnato per il rapporto di assorbimento. ALEPH calcola i valori di assorbimento per ogni radionuclide (dato dalla somma delle principali reazioni) e usa tale valore per determinare quanto il dato isotopo contribuisce all’assorbimento totale. In questo modo elenca i radionuclidi per ordine decrescente di importanza e vengono aggiunti alla lista non appena la somma del rapporto di assorbimento non è uguale o maggiore del criterio di rapporto specificato dall’utente. In questo modo solo i nuclidi inizialmente

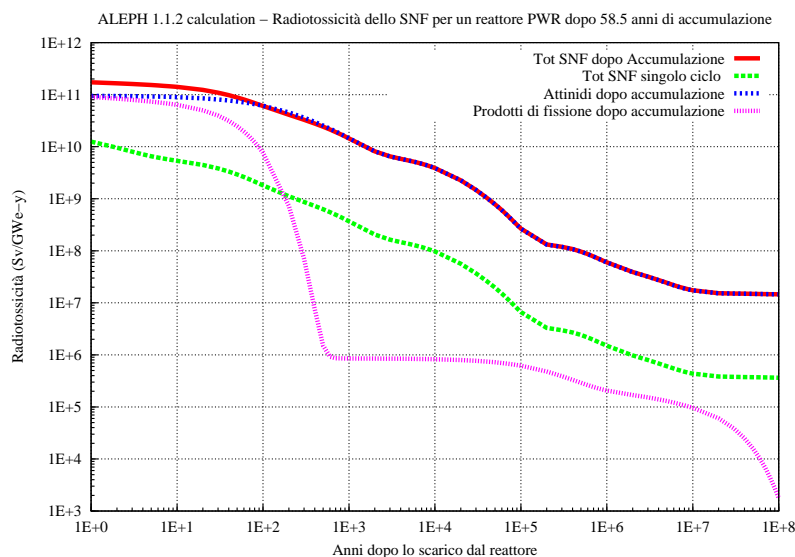


Figura 4.3: Radiotossicità in Sv/GWe-y del combustibile accumulato durante i 58.5 anni di vita del reattore di riferimento (PWR) confrontata con il contributo del combustibile esaurito dopo un singolo ciclo di irraggiamento.

presenti compaiono nella lista.

Per variare il valore del rapporto di assorbimento da specificare va utilizzato il comando ALEPH-1.1.2 'ABS FRAC'. Il valore, cioè il FRAC, dovrà essere compreso tra '0' e '1': con '0' verrà utilizzata la concentrazione iniziale per tale radionuclide senza considerarne l'evoluzione temporale; è fortemente sconsigliato lasciare indicato semplicemente '1' e il valore riportato nel manuale ed effettivamente utilizzato nel nostro caso è di 99.9%. Questi stessi valori di concentrazione andranno di conseguenza in ingresso a MCNPX.

Nel caso di tutto il combustibile nucleare, proveniente da LWR o ADS, per cui viene affrontato sia il calcolo dell'irraggiamento nel reattore sia il calcolo del decadimento una volta estratto dal reattore stesso, lo studio delle concentrazioni dei singoli radionuclidi nel combustibile dopo un singolo ciclo, arriva come output direttamente da ALEPH-1.1.2: le concentrazioni così ottenute (g/cm³) per i 1003 nuclidi più significativi sono state poi, attraverso un foglio di calcolo Excel (1003 righe × 74 colonne), trasformate in valori di radiotossicità per tutto il tempo in cui viene analizzato il decadimento radioattivo.

Nel nostro caso il tempo per cui è stata studiata l'evoluzione temporale fuori dal reattore è di 10⁸ anni, che abbiamo fatto corrispondere a 74 punti di studio della concentrazione su scala logaritmica, e in questo caso la scala temporale è gestita in automatico dal ALEPH-1.1.2 che riesce così, in un solo output, a mostrare tutti e 74 i vettori isotopici.

In questo caso è piuttosto immediato il calcolo della radiotossicità perché una volta riportato il valore della concentrazione di ogni radioisotopo, da g/cm³ a g/toniHM considerando il volume di ogni tonnellata di metalli pesanti pari a $1.0718E+5 \frac{cm^3}{toniHM}$, basta moltiplicare il valore ottenuto per l'attività relativa, Ci/g oppure Bq/g, e quindi per i valori limite di concentrazione usando i data-base di coefficienti opportunamente costruiti.

A questo proposito riportiamo di seguito il grafico, in figura (4.4) dei valori di attività su cm³ di metallo pesante usati per costruire le curve di radiotossicità tracciate di seguito.

Parte della finalità di questo lavoro è stata rivolta alla costruzione degli opportuni data-base di valori per permettere con facilità il calcolo della radiotossicità al variare dell'unità di misura scelta servendosi dei supporti ALEPH-1.1.2 e ORIGEN 2.2.

In particolare sono stati considerati: i 'radioactivity concentration guide' (RCG) sulla base dei valori del vecchio 10 CFR Part 20 ($\mu Ci/ml$) e della nuova versione del 10 CFR Part

20 ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$), gli RCG della legge belga del 2001 (Bq/l) e i ‘dose per unit intake’ dall’ICRP 72 del 1996 (Sv/Bq), gli stessi riportati in tutte le leggi europee recepimento della direttiva 96/29/EURATOM. Per tutte le informazioni riguardanti il codice di calcolo ALEPH-1.1.2 e i suoi file di input ed output rimandiamo alla lettura del Capitolo 3 e dell’Appendice A.

Per quanto riguarda però gli studi di radiotossicità del livello di riferimento naturale (RL), approfondita al Paragrafo 4.2.3, della stima dei contributi dei soli attinidi minori, dei soli prodotti di fissione e dell’analisi di efficienza del ‘partitioning and transmutation’ teorica, Capitolo 6, il tempo per ottenere i valori di radiotossicità è stato notevolmente maggiore.

Per calcolare, infatti, l’evoluzione temporale fino a 10^8 anni non è possibile utilizzare ALEPH-1.1.2 perché il calcolo non riguarda l’irraggiamento nel reattore ma solo il decadimento radioattivo e, per di più, è in ogni caso inutile coinvolgere un calcolo MCNPX. Per questo, è necessario far girare il calcolo in ORIGEN 2.2: per costruire la scala temporale logaritmica di 10^8 anni è necessario elaborare 7 successivi file di input, ognuno in grado di fornire solo 12 punti temporali, e associarne poi i contributi per i 74 punti di indagine richiesti.

Solo una volta costruita la matrice di decadimento (es. 1306 righe \times 74 colonne) è pos-

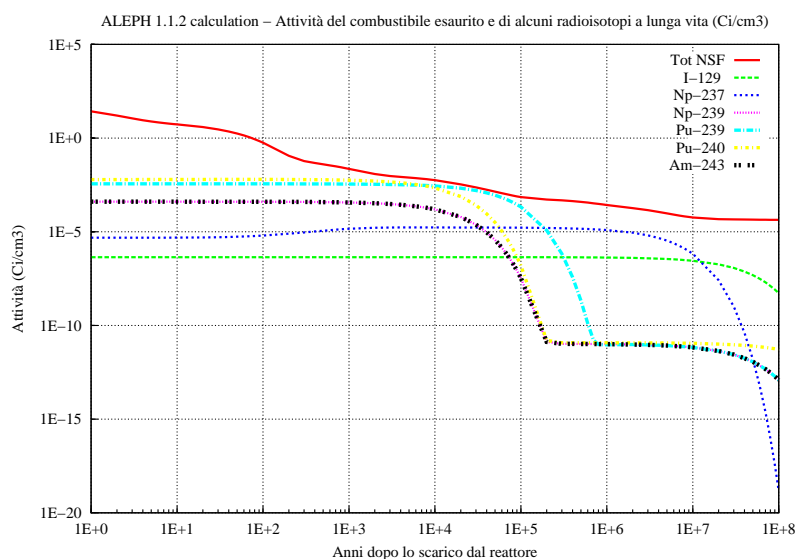


Figura 4.4: Attività in Ci/cm^3 del combustibile nucleare esaurito e di alcuni dei radioisotopi più significativi con lunghi tempi di dimezzamento.

sibile risalire, dai valori di concentrazione di tutti i radionuclidi coinvolti (g/cm^3), alla stima dell'evoluzione temporale della radiotossicità al variare dei limiti di ingestione scelti e dell'unità di misura analizzata. In particolare, considerando tutti i radioisotopi del combustibile esaurito è stato necessario costruire un data-base di 1306 nuclidi. Nel caso dell'analisi del combustibile esaurito studiato separatamente nelle tre componenti dei soli prodotti di attivazione, degli attinidi, e dei prodotti di fissione sono stati costruiti rispettivamente tre fogli di calcolo ciascuno di 688, 128 e 879 radioisotopi per ognuno dei diversi limiti di ingestione e delle unità di misura considerate. Poi questi elenchi di coefficienti sono stati utilizzati per tutti i calcoli di radiotossicità mostrati all'interno del presente capitolo.

4.2.2 Definizioni

Presentiamo di seguito un breve elenco delle definizioni di radiotossicità usate più frequentemente. Di ognuna verrà spiegato il significato e il metodo di calcolo a partire dalle informazioni che si sono susseguite negli anni sia sulle pubblicazioni dell'ICRP sia sul Codice Federale degli Stati Uniti. Per rendere facilitato il confronto tra le diverse unità di misura, verrà affiancato ad ogni definizione il grafico di radiotossicità relativo: i valori limite utilizzati in questa sede, se non diversamente menzionato, saranno quelli di esposizione per i membri adulti della popolazione; così come i coefficienti di dose utilizzati come dato di partenza, e via via trasformati in unità di misura diverse, sono quelli elencati dall'ICRP 72 (1996) e dalla stessa legge belga del 2001.

Storicamente la scelta di cambiare definizione di radiotossicità è stata, spesso, legata a maturate conoscenze in campo radioprotezionistico, che hanno portato all'introduzione di unità di misura più adeguate.

Abbiamo già descritto nel paragrafo precedente l'evoluzione dei metodi di dosimetria interna e i limiti di ingestione ed inalazione assunti per legge ed in vigore oggi nei paesi occidentali. Abbiamo anche descritto come associare la nozione di rischio al campo di indagine degli effetti delle radiazioni ionizzanti così come presentati dalle più autorevoli commissioni in materia di radioprotezione.

Prima di tutto preme sottolineare che il calcolo della radiotossicità a lungo termine del combustibile esaurito (HLW) significa calcolo del rischio potenziale derivato dall'ingestio-

ne, per i membri della popolazione, dei radionuclidi contenuti nel materiale radioattivo considerato sotto forma di cibo o acqua (LLW) [33]. Una buona stima conservativa è quella di ritenere, infatti, che tutto l'inventory' di rifiuti radioattivi entri nella catena alimentare umana.

Abbiamo già definito le tre diverse categorie con cui può essere espressa la radiotossicità di una sostanza radioattiva: come stima assoluta della quantità massima rilasciata permessa per legge; come valore di dose o di casi di cancro attesi; e, infine, come valore relativo ad una grandezza di riferimento presa in esame.

La definizione più immediata, appartenente alla prima categoria, e che è possibile ritrovare anche nelle leggi europee ed americana è quella che valuta la radiotossicità di un radionuclide in **m³ d'acqua necessari per diluire tale sostanza in modo che l'acqua stessa soddisfi i requisiti di potabilità**. Conosciuto il fabbisogno annuale di acqua dell'uomo standard' [43] è immediato ottenere il calcolo del quantitativo di sostanza rilasciabile nell'ambiente senza superare i limiti annuali di ingestione stabiliti per legge.

L'utilizzo del m³ d'acqua come unità di misura è intuitivo e versatile, ed è, per di più, immediatamente ricollegabile all'unità di misura del rilascio nell'ambiente di effluenti aeriformi o liquidi riportato dall'ICRP 2 ($\mu Ci/ml$), dal 10 CFR Part 20 ($\mu Ci/ml$) e dall'ultima legge belga in materia di radiazioni ionizzanti (Bq/l) (2001). In questo modo il confronto tra valori assoluti è immediato: vedremo infatti la differenza nell'usare l'uno o l'altro database di coefficienti nel Paragrafo 4.2.4, fermo restando che la vera misura della radiotossicità andrà depurata del contributo derivante dai diversi limiti di legge.

La superata ICRP 2 (1959) forniva il valore di radiotossicità per unità di volume di sostanza in 'maximum permissible concentration' (MPC) e lo dava in tabella in $\mu Ci/ml$. Il legame tra MPC e m³ d'acqua necessari a diluire una tonnellata di metalli pesanti scaricati dal reattore (toniHM) è:

$$\underbrace{\text{Densità del Radioisotopo nello SNF}}_{Ci/cm^3} \times \underbrace{\text{Volume 1ton SNF}}_{cm^3/toniHM} : \underbrace{\text{Valori di MPC}}_{\mu Ci/ml} = \underbrace{\text{m}^3 \text{ d'acqua per diluire 1toniHM}}_{m^3/toniHM} \quad (4.3)$$

I valori in MPC presenti nell'ICRP 2 sono stati ripresi dal 10 CFR Part 20 (1982), vec-

chia edizione, e riferiti alla popolazione come valori di ‘radioactivity concentration guide’ (RCG) tali da comportare valori di dose efficace di 5 mSv in un anno, invece che di 50 mSv dell’ICRP 2 che si riferiva ai lavoratori esposti. E’ possibile trovare quindi in tabella 2 dell’allegato B del 10 CFR Part 20 valori dei limiti di esposizione, sia per ingestione sia per inalazione, espressi in $\mu\text{Ci}/\text{ml}$.

Nonostante vadano ridefinite le ipotesi di partenza e i limiti di legge di riferimento, anche nella versione aggiornata del 10 CFR Part 20 (1994) vengono elencati i valori di ‘radioactivity concentration guide’ (RCG) per i membri della popolazione in generale in $\mu\text{Ci}/\text{ml}$, così come accade per la legge belga (2001) che elenca i valori limite per il rilascio di radioisotopi, liquidi o aeriformi, nell’ambiente similmente in termini di Bq/l. Quindi anche con le nuove tabelle di coefficienti aggiornate usare come stima della radiotossicità i m^3 d’acqua è facile e particolarmente immediato. In particolare, usando come unità di misura i m^3 d’acqua il grafico di radiotossicità che si ottiene è dato in figura (4.5).

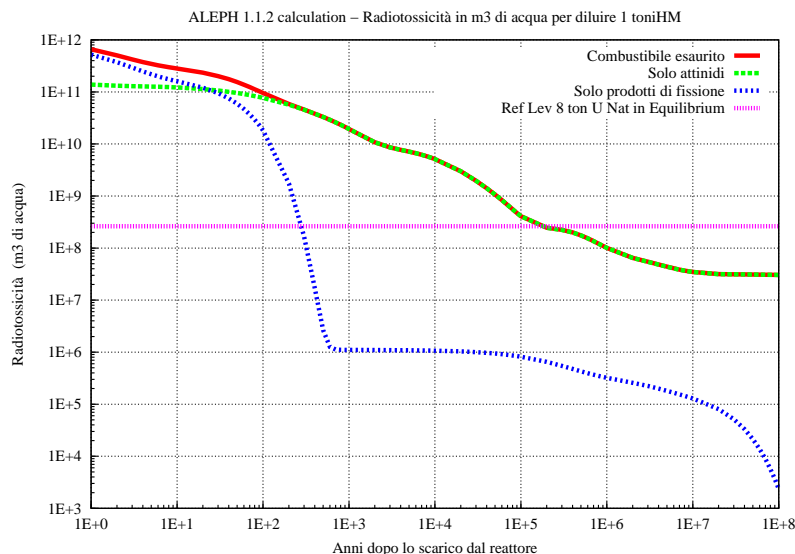


Figura 4.5: Radiotossicità del combustibile esaurito in m^3 d’acqua necessari a diluire 1 toniHM con i valori di dose aggiornati alla legge belga del 2001

Come già detto, però, la pubblicazione ICRP 30 (1978 e succ.) ha sostituito le raccomandazioni dell’ICRP 2 (1959) ed ha introdotto la definizione dei limiti secondari di ‘annual limit of intake’ (ALI) e di ‘derived air concentration’ (DAC). L’introduzione dell’ALI ha

comportato grande beneficio per evitare di cadere nell'errore concettuale di considerare l'M-CP come il valore massimo permesso, in ogni circostanza, per la concentrazione di una data sostanza radioattiva in acqua o in aria. Dal 1980, dunque, anche se i valori di limite di esposizione dei lavoratori vengono forniti sia dall'ICRP 30 sia dal 10 CFR Part 20 (ed.1994) in 'annual limit of intake' (ALI), i limiti di esposizione in aria ed acqua per i membri della popolazione compaiono, però, ancora in tabella 2 dell'allegato B del 10 CFR Part 20 in termini di $\mu Ci/ml$ e nella legge belga del 2001 in Bq/l. Il calcolo dei valori limite di esposizione per la popolazione, in particolare, come riportato nello stesso codice federale, è stato effettuato prendendo i valori più restrittivi del limite di ingestione per effetti stocastici occupazionali (ALI) e dividendoli per un fattore 50, per passare dai 50 mSv ad 1 mSv di limite di dose efficace annuale, per un fattore 2, per ottenere un valore mediato su tutte le età, e in fine per un fattore 7.3×10^5 (ml) corrispondente al consumo annuale di acqua dell'uomo standard' [44]. A questo punto, ottenuti ancora una volta i valori di 'radioactivity concentration guide' (RCG) è immediato calcolare come prima i valori di radiotossicità in m^3 d'acqua necessari a diluire la data quantità di sostanza radioattiva.

Analogamente di seguito riportiamo quanto scritto nel Belgian Arrêté Royal, 2001 [45], per ottenere i valori limite di rilascio dei radioisotopi nell'ambiente, come riportati e chiamati in tabella H1 dell'allegato AI in termini di C_L e riferiti ad un membro adulto della popolazione:

$$\begin{aligned}
 C_L &= \frac{\text{Limite annuale}(\frac{1mSv}{y}) / \text{Consumo di acqua uomo standard}(\frac{10^3 l}{y})}{h_j} \\
 &= \text{Concentrazione massima radionuclide } j\text{-esimo (Bq/l)} \quad (4.4)
 \end{aligned}$$

Dove i valori ' h_j ' sono i valori di dose efficace impegnata (Sv/Bq) per unità di ingestione del radionuclide j -esimo così come riportati anche in tabella A dello stesso documento e presi esattamente dall'ICRP 72 [46]. In particolare, la dose efficace totale 'E' per un individuo del pubblico andrà calcolata come segue:

$$E = E_{exter} + \sum_j h(g)_{j,ing} J_{j,ing} + \sum_j h(g)_{j,inh} J_{j,inh} \quad (4.5)$$

dove E_{exter} è la dose efficace risultante dall'irradiazione esterna; $h(g)_{j,ing}$ e $h(g)_{j,inh}$ sono la dose efficace impegnata per un membro della popolazione del gruppo di età g -esimo per ingestione o inalazione (Sv/Bq); $J_{j,ing}$ e $J_{j,inh}$ sono le quantità di radionuclide j -esimo assorbito (Bq).

Molto spesso, dunque, viene presentata la radiotossicità dello SNF in termini di m^3 d'acqua necessari a diluire una tonnellata di combustibile esaurito per la facile connessione con i valori di limite di ingestione e inalazione (Bq/l) elencati nelle leggi attualmente in vigore.

Oltre però a questa definizione, è possibile trovare molto spesso i valori di radiotossicità espressi in **ALI su tonnellata di metalli pesanti contenuti nel combustibile nucleare (ALI/toniHM)**: va allora prestata attenzione al limite considerato come riferimento perché i coefficienti in ALI per ogni radionuclide sono riferiti sia nell'ICRP 30 e sia nella tabella I del 10 CFR Part 20 all'esposizione occupazionale. Cioè va prestata attenzione che non sia sottostimata la radiotossicità totale di un fattore 50 nel passare dai 50 mSv di dose efficace per i lavoratori ad 1 mSv per le persone del pubblico, come è mostrato nel grafico (4.6). In particolare per esprimere in 'annual limit of intake' (ALI) la radiotossicità associata al combustibile esaurito per un membro adulto della popolazione bisogna dividere il limite di dose efficace annuale, di 0.001 Sv, per la dose efficace impegnata data nell'ICRP 72 per l'ingestione di un Bq del radioisotopo considerato.

Quello che inizia a delinearsi è una condizione per cui a parità di definizione di radiotossicità naturale, i tempi per il raggiungimento del 'safe storage' evidenziati dall'intersezione delle due curve di radiotossicità, del combustibile esaurito e del 'reference level', costruite con gli stessi coefficienti sono sostanzialmente gli stessi; anche se, però, i valori assoluti dei diversi grafici sono molto differenti tra loro.

Fortunatamente, con la pubblicazione dell'ICRP 60 (1990) sono stati introdotti i coefficienti di dose per unità di assimilazione, o 'dose per unit of intake' (DPUI), in Sv/Bq con cui si trovano espressi i limiti di esposizione sia dei lavoratori sia della popolazione (ICRP 67, 69, 71, 72): attraverso questi coefficienti è possibile esprimere la radiotossicità del combustibile esaurito in termini di **Sievert su tonnellata di metalli pesanti nello SNF (Sv/toniHM)**. Questi coefficienti hanno il vantaggio, pur non rappresentando la radioattività totale nel combustibile, di darne il contributo alla dose reale assorbita da un membro del pubblico adulto

esposto all'ingestione di tali sostanze. Come tale, questa definizione, di radiotossicità ha il vantaggio di essere legata solo alla valutazione del comportamento all'interno dell'organismo di ogni radionuclide e non ai limiti di legge del particolare contesto in cui i dati sono ottenuti. Definizioni di radiotossicità direttamente ricavabili da questa sono i **Sv/GWe-y** o i **Sv/TWhe** spesso utilizzati in letteratura.

In figura (4.7) è riportato il valore della radiotossicità in Sv/toniHM.

Di certo, però, per raggiungere appieno la comprensione dei valori di radiotossicità anche da parte del pubblico, e sperare così in una crescente accettabilità sociale dell'energia nucleare, auspichiamo l'introduzione di una definizione di radiotossicità che, oltre ad essere indipendente dai limiti di legge considerati, sia chiara espressione del fattore rischio associabile ai rifiuti nucleari ad alta radioattività. Per questo motivo pensiamo che debba essere valutata l'introduzione della definizione di radiotossicità come **'cancer dose' su tonnellata di metalli pesanti presenti nel combustibile nucleare (CD/toniHM)**, cioè come numero di casi di cancro attesi associabili alla quantità di sostanza radioattiva in esame. In Cohen, 2005 [33] è possibile trovare la definizione di **CD/GWe-y** come

ALEPH 1.1.2 calculation – Radiotossicità dello SNF ottenuta confrontando i valori limite dei lavoratori e della popolazione–10 CFR Part 20 (1994)

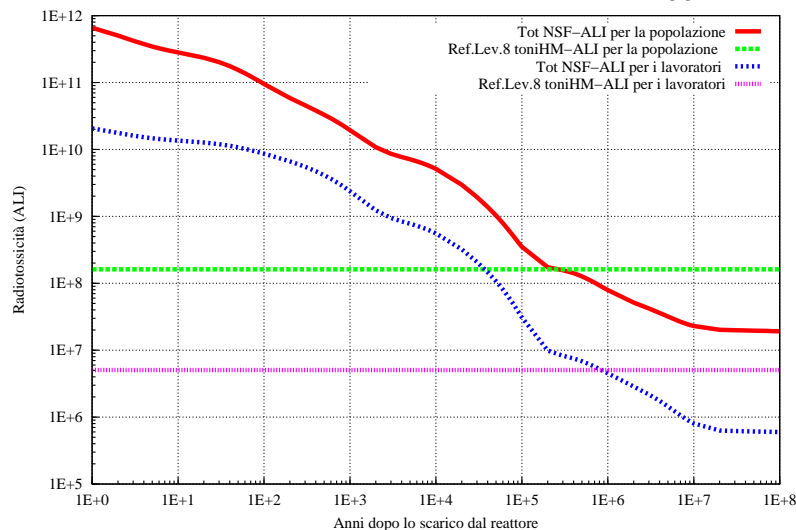


Figura 4.6: Radiotossicità del combustibile esaurito in ALI/toniHM confrontando i risultati ottenuti utilizzando i valori limite per la popolazione (1 mSv) o per i lavoratori (50 mSv) così come elencati in tabella II appendice B del 10 CFR Part 20 (1994).

$$\begin{aligned}
 CD/GW_{e-y} = & \underbrace{\text{Radioattività relativa nello SNF}}_{(Ci/toniHM)} \times n^o \left(\frac{toniHM}{GW_{e-y}} \right) \times 3.7 \times 10^{10} \left(\frac{Bq}{Ci} \right) \\
 & \times \underbrace{\text{valore di dose efficace}}_{(Sv/Bq)} \times 0.05 \left(\frac{CD}{Sv} \right)
 \end{aligned}
 \quad (4.6)$$

e in figura (4.8) ne abbiamo graficato il valore di radiotossicità del combustibile esaurito.

Dove il numero n^o di tonnellate consumate su GWe prodotto viene calcolata in funzione del burn-up allo scarico, dell'efficienza termica dell'impianto e del fattore di disponibilità. Il valore di 0.05 CD/Sv è preso direttamente dall'ultima raccomandazione dell'ICRP (1991) in materia.

A questa definizione può essere affiancata la stima della radiotossicità in termini di **Deaths-y/GWe-y** utilizzabile, però, solo nel caso di stima della radiotossicità del combustibile nucleare esaurito posto in deposito profondo, circa 600 m, dopo essere stato sottoposto a vetrificazione. Si può, infatti, stimare che il corrispondente quantitativo di 'cancer dose' (CD) resi disponibili all'ingestione umana ogni anno siano 1×10^{-12} [47]. La radiotossicità del combustibile vetrificato e messo in deposito profondo può, dunque, essere espressa in

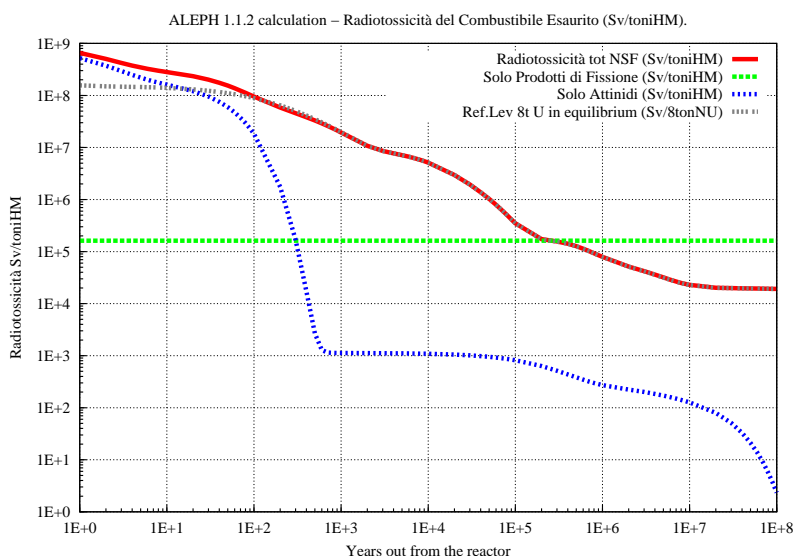


Figura 4.7: Radiotossicità del combustibile esaurito in Sv/toniHM con i valori di dose per la popolazione aggiornati all'ICRP 72 e alla legge belga del 2001

funzione del numero di morti per anno associabili al quantitativo di rifiuti nucleari contenuti nel combustibile o, meglio, associabili ad ogni GWe-y prodotto, come riportato in figura (4.9).

Oltre alle modalità di definizione già elencate, abbiamo più volte accennato alla possibilità di definire la radiotossicità come grandezza adimensionale data dal rapporto tra il valore di radiotossicità, comunque ottenuto, e la radiotossicità di una grandezza di riferimento da associare al valore di radioattività presente naturalmente nel sottosuolo senza l'intervento dell'uomo. Questa soluzione viene propriamente chiamata **radiotossicità relativa**. Il problema maggiore che si presenta con l'utilizzo di questa definizione è l'utilizzo di quantità di riferimento molto spesso diverse che rendono impossibile il confronto immediato di dati provenienti da fonti diverse.

4.2.3 Stima della Radiotossicità Naturale

La terra su cui viviamo è da sempre interessata da fenomeni di radioattività. In particolare, esistono in natura più di 60 radionuclidi. Il contributo maggiore alla dose collettiva

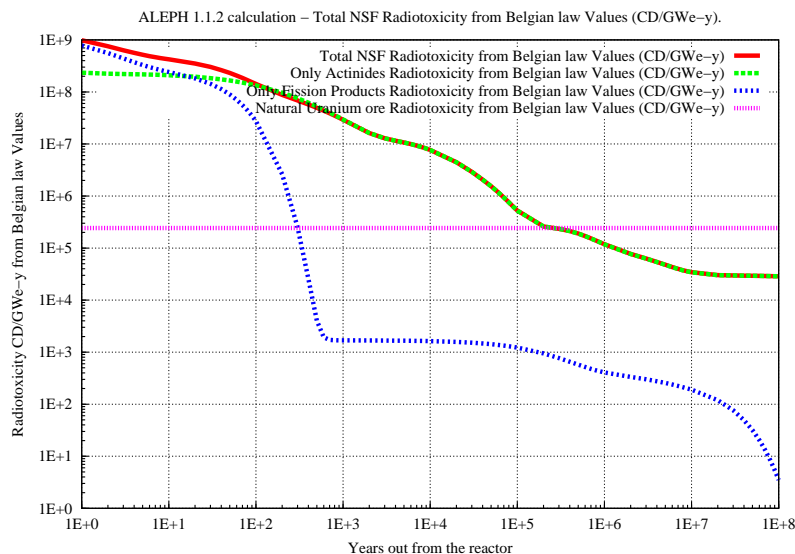


Figura 4.8: Radiotossicità del combustibile esaurito in CD/GWe-y con i valori di dose aggiornati all'ICRP 72 e alla legge belga del 2001

della popolazione mondiale è dovuto proprio alla radioattività naturale con un valore medio stimato intorno ai 2 mSv di dose efficace annua per un membro adulto della popolazione. Tale radioattività dà origine a due contributi di dose: una dose esterna e una dose interna, quest'ultima legata all'ingestione o inalazione di radionuclidi. La loro origine può essere ricondotta a due cause principali: la radiazione cosmica che arriva dallo spazio sulla terra e i radioisotopi a lunga vita presenti da sempre nel sottosuolo. Oggi a questi due contributi si aggiunge l'attività nucleare umana svolta nel corso dello scorso secolo che contribuisce alla radioattività naturale con il fallout di radioisotopi a breve e media vita prodotti durante i test e i bombardamenti nucleari. Questo contributo di dose collettiva alla popolazione è dato, per la maggior parte, da isotopi il cui peso è piccolo se paragonato a quello dei capostipiti naturali; tra gli isotopi artificiali presenti in natura ricordiamo il trizio (H-3), lo I-131, lo I-129, il Cs-137, lo Sr-90, il Tc-99 e il Pu-239.

Le radiazioni cosmiche ad alta energia penetrano attraverso l'atmosfera sotto forma di particelle pesanti, fotoni o muoni, ed interagiscono con gli elementi presenti in atmosfera

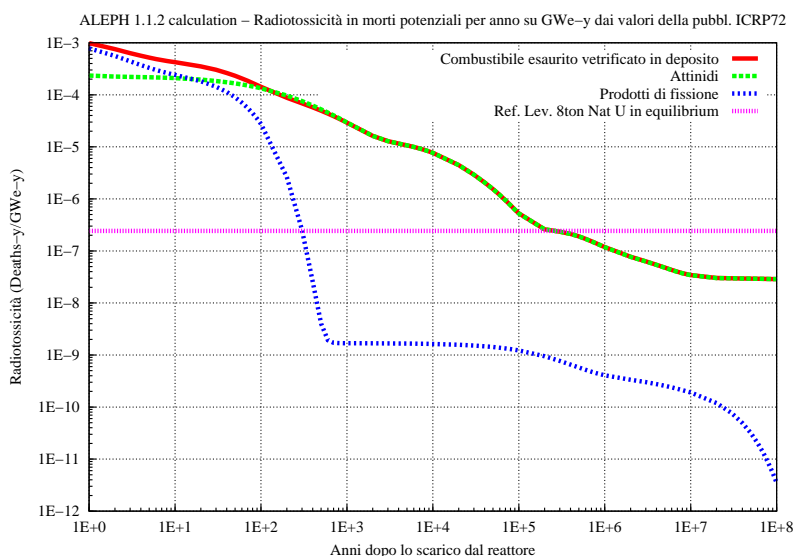


Figura 4.9: Radiotossicità del combustibile esaurito in numero di morti attese per anno su ogni GWe-y prodotto considerando un valore di disponibilità annuale di radionuclidi per l'ingestione da parte dell'uomo di 10^{-12} CD/GWe-y per i rifiuti vetrificati e stoccati in deposito profondo, con i valori di dose aggiornati all'ICRP 72 e alla legge belga del 2001

dando origine ad isotopi radioattivi secondari quali, per esempio, il C-14, il H-3, il Be-7 tra i più importanti.

Il maggior contributo alla dose è comunque legato alla presenza dei capostipiti naturali presenti da sempre nel sottosuolo e riportati spesso in superficie come materiali da costruzione. I principali capostipiti naturali sono: U-235, U-238, Th232, Ra-226, Rn-222, K-40. Oltre a questi molti altri sono presenti nelle tre serie di decadimento naturale: la serie del torio 232, la serie dell'uranio 235, la serie dell'uranio 238. I radionuclidi di queste tre serie sono rispettivamente in una condizione abbastanza vicina a quella di 'equilibrio secolare' per cui l'attività di tutti gli isotopi è la stessa all'interno di ciascuna serie. Di seguito, in figura (4.10) presentiamo come esempio la serie dell'uranio 238, applicata insieme a quella U-235 per la determinazione della radiotossicità dell'uranio naturale in equilibrio secolare.

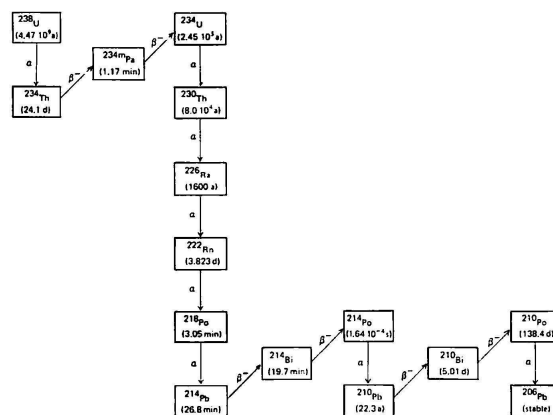


Figura 4.10: Serie di decadimento radioattivo dell'U-238

In tabella (4.6) riportiamo il contributo dei raggi cosmici, dei radionuclidi cosmogenici e dei capostipiti naturali alla dose efficace annuale mediata su tutta la popolazione mondiale. Fino a pochi anni fa tale dose veniva valutata intorno ad 1 mSv-y; successivamente, stime più accurate hanno attribuito alla dose pro capite da radiazioni naturali il valore di 2 mSv-y

[48]. Con la pubblicazione UNSCEAR 2000 [4] il valore è stato ulteriormente riaggiustato fino a valori da 1 a 3 mSv-y per circa il 65% della popolazione mondiale.

Sorgente di irradiazione	Dose efficace annua media (mSv)
Raggi cosmici	
radiazioni ionizzanti	0.28
neutroni	0.10
radiazioni cosmiche secondarie	0.01
Capostipiti naturali	
K-40	0.2
Serie dell'uranio e del torio	0.71
contributo del solo Rn-222	1.15
Totale	2.4

Tabella 4.6: Stima del contributo alla dose efficace dovuta alle sorgenti naturali [4].

Per riuscire a dare una stima sufficientemente corretta del livello di riferimento utilizzato nella valutazione del tempo necessario a raggiungere il 'safe-storage' è dunque necessario prendere in considerazione la radioattività naturale presente nel sottosuolo: gran parte del contributo è dovuto alla serie del decadimento naturale del Th-232 e dell'U-238, in particolare quest'ultimo contribuisce per i tre quarti della stessa. Come è possibile osservare dallo schema della serie di decadimento dell'U-238 rappresentata in figura, oltre all'isotopo 'padre', vanno aggiunti i contributi dei figli del decadimento come l'U-234, il Th-230, il Ra-226, il Rn-222 e il Pb-210.

Sulla base di queste considerazioni e seguendo le indicazioni date dall'IAEA nel 'Technical report serie 435' (2004) nel presente lavoro abbiamo ritenuto opportuno, e sufficientemente accurato, stimare il livello di riferimento per la radiotossicità naturale sulla base dei valori ottenuti dal codice ORIGEN 2.2 simulando il raggiungimento dell'equilibrio secolare da parte di una quantità di volume unitaria di uranio naturale, come riportato in figura (4.11). Le percentuali isotopiche prese e inserite come input nel codice sono quelle attualmente presenti in natura. Questa piccola approssimazione non influisce sul risultato finale visti i lunghi tempi di decadimento dei radioisotopi coinvolti.

nuclide	%atomica	tempi di dimezzamento (anni)
U-234	0.0055%	2.45×10^5
U-235	0.7200%	7.04×10^8
U-238	99.2745%	4.47×10^9

Tabella 4.7: Composizione isotopica dell'uranio naturale

In particolare, però, per poter confrontare correttamente la radiotossicità del combustibile esaurito con la radiotossicità di un equivalente livello di riferimento è indispensabile risalire al quantitativo di uranio naturale realmente utilizzato per ogni tonnellata di combustibile esaurito estratto dal reattore. In altre parole, vanno considerate le tonnellate di uranio naturale necessarie ad ottenere una tonnellata di combustibile nucleare arricchito. Il combustibile utilizzato nel nostro scenario viene pensato con un arricchimento del 4.3%. Attraverso un semplice bilancio di massa è stato quindi possibile risalire ad un valore di 8 tonnellate di uranio naturale necessarie per ogni tonnellata di combustibile arricchito.

$$\text{ton Nat U/ton Fuel} = (A - \varepsilon)/(C - \varepsilon) = \frac{(4.3\% - 0.2\%)}{0.710971 - 0.2\%} = 8 \quad (4.7)$$

Dove con 'A' è stato considerato il valore di arricchimento al 4.3%, con 'ε' il valore

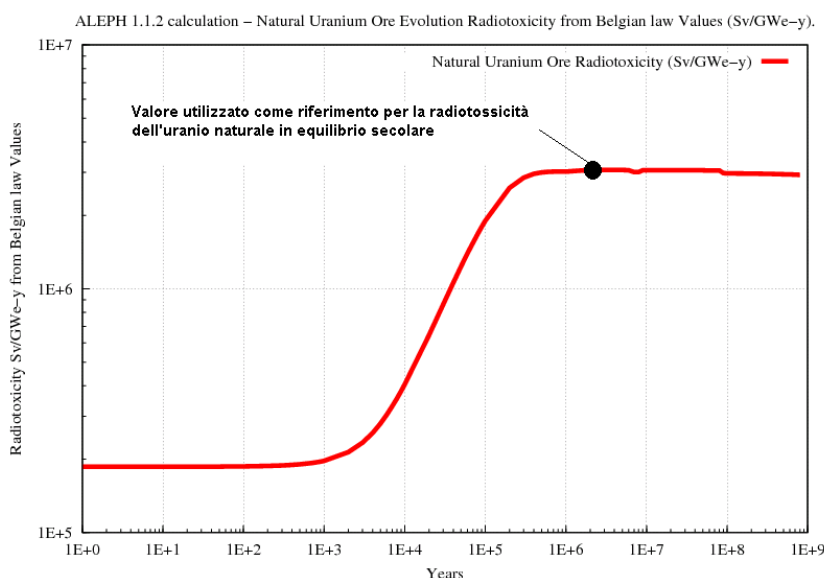


Figura 4.11: Radiotossicità dell'uranio naturale in equilibrio secolare usata come 'reference level'

dell'efficienza di arricchimento e con 'C' il valore della concentrazione di U-235 nell'uranio naturale.

Per questo il valore di riferimento, o 'reference level' (RL), calcolato per il combustibile esaurito, costruito considerando 8 tonnellate di uranio naturale per ogni tonnellata di combustibile arricchito al 4.3%, è di **3.07E+6.0 Sv/GWe-y**, equivalente a **2.0E+5.0 Sv/toniHM** valore perfettamente in sintonia con quanto pubblicato nell' IAEA 'Technical report serie 435' (2004) [10].

In letteratura è possibile trovare valori leggermente diversi del numero di tonnellate di uranio naturale necessarie a seconda del valore utilizzato per l'efficienza del processo di arricchimento.

Un approccio completamente diverso invece è quello scelto da B. Cohen [33], che considera la radiotossicità contenuta nel sottosuolo come somma del contributo dei tre radioisotopi, U-238, U235, Th-232, e dei loro prodotti di decadimento. Presa, infatti, la radioattività media del sottosuolo di riferimento è possibile moltiplicare i valori ottenuti (2.2E-6.0 Sv/Bq) per i rispettivi coefficienti di dose e quindi per il valore di conversione da 'cancer dose' a Sv. Il valore medio di concentrazione per l'U-238 nel suolo, pubblicato dall'UNSCEAR 2000, è di 35-40 Bq/kg, con un range che varia dai 16 ai 110 Bq/Kg. E' possibile, poi, noti i radioisotopi principali della catena di decadimento dell'U-238, sommare i coefficienti di dose efficace impegnata riportati dall'ICRP 72 (Sv/Bq) e, moltiplicandoli per il valore di 0.05 CD/Sv, ottenere il corrispondente valore di CD/kg per il suolo considerato, come riportato in tabella (4.8).

Un altro approccio per la stima del valore di radioattività di riferimento è analizzare la contaminazione interna da radioisotopi della popolazione di riferimento non sottoposta a contaminazione da attività industriale umana, con stime di dosimetria interna. Stime a riguardo sono state pubblicate sempre dall'UNSCEAR 2000, sia per l'inalazione sia per l'ingestione, e dai valori di (μ Sv/anno) è possibile risalire al corrispondente valore di radiotossicità di riferimento, per esempio espressa in 'cancer dose' [33] o in DARI, cioè in 'Dose Annuelle due aux Radiations Internes'. In particolare quest'ultima unità di misura, proposta dal premio nobel Georges Charpak e da Richard Garwin, corrisponde a 0.2 mSv/year di dose efficace dovuta ad irradiazione interna per un individuo della popolazione [26]. L'unità di

misura di 1 DARI viene ottenuta misurando i valori medi di radioattività presente naturalmente nell'organismo umano e dovuta ai contributi di K-40 e C-14. Prendendo a riferimento le raccomandazioni ICRP del 1991, 1 DARI corrisponde anche alla probabilità di dieci parti su milione di incorrere in cancro letale.

Radioisotopo	Coeff.di dose per unità di assimilazione da ICRP 72 (Sv/Bq)
U-238	4.4E-8.0
U-234	4.9E-8.0
Th-230	2.1E-7.0
Ra-226	2.8E-7.0
Pb-210	6.8E-7.0
Po-210	2.4E-7.0
somma	2.2E-6.0
'cancer dose' su kg	4.4E-6.0 (CD/kg)

Tabella 4.8: 'Cancer dose' per kg (CD/Kg) relativi alla radioattività media del sottosuolo dovuta al contributo dell'U-238, preso il valore di radioattività relativa dall'UNSCEAR 2000 [4].

In conclusione, le possibili scelte del valore di riferimento della radiotossicità naturale, o 'reference level' (RL), sono molteplici e molto spesso nei report delle commissioni più autorevoli in materia di 'waste management' si trovano soluzioni molto diverse. Riportiamo come esempio il caso del report NEA-OECD 'Physics and safety of transmutation systems' (2006) [3] che usa come valore di riferimento tutta la curva di decadimento radioattivo dell'uranio naturale, con una evoluzione fino al raggiungimento dell'equilibrio secolare, soluzione che non ci è sembrata, in questo caso, corretta.

4.2.4 Principali risultati ottenuti

Come abbiamo già detto, abbiamo intrapreso questo lavoro per valutare come il codice di calcolo ORIGEN 2.2 stimi i valori di radiotossicità. Dallo studio del codice è emerso che l'ultima versione aggiornata di ORIGEN 2.2 (Giugno 2002) usa i valori limite di ingestione o inalazione, chiamati 'radioactivity concentration guide' (RCG) presi dalla tabella 2

dell'allegato B del 10 CFR Part 20 edizione del 1982, o comunque precedente all'ultima versione del 10 CFR Part 20 del 1994. In particolare, come già detto, i valori di 'water radioactivity concentration guide' (WRCG) e di 'air radioactivity concentration guide' (ARCG) sono associabili in ordine di grandezza alle raccomandazioni dell'ICRP 2 (1959). In sostanza sono valori ormai obsoleti nel panorama scientifico e legislativo sia degli Stati Uniti sia dell'Europa.

Tutto questo è emerso cercando di predisporre il codice ALEPH-1.1.2 al calcolo dell'efficienza di bruciamento di un ADS industriale. Infatti ALEPH-1.1.2, lavorando come interfaccia tra MCNPX e ORIGEN 2.2, permette di ottenere in uscita i valori di radiotossicità così come predefiniti sulla base dei coefficienti di RCG nel data-base di ORIGEN 2.2.

Da subito il risultato ottenuto era sembrato anomalo e sotto i valori medi di radiotossicità riportati in altre pubblicazioni [3], [11], [10]. Allora per riuscire a verificare la bontà dei coefficienti ORIGEN 2.2 sono stati implementati prima di tutto ed esternamente al codice, attraverso il supporto di un foglio di calcolo Excel, i coefficienti di dose per unità di ingestione ed inalazione (Sv/Bq) dalla legge belga in materia di protezione dalle radiazioni ionizzanti del 2001, dopo aver verificato che coincidono esattamente con quelli pubblicati dall'ICRP 72 del 1996, e i coefficienti limite di diluizione in acqua (Bq/l) ed aria (Bq/m³) elencati nella stessa legge alle tabelle H1 e H2 dell'allegato AI.

Il risultato ottenuto è riportato in figura (4.12) e mostra il confronto tra il raggiungimento del livello di miniera utilizzando i valori di 'radioactivity concentration guide' (RCG) come riportati nel data-base del codice e i valori di RCG come ricavati dalla tabella H1 allegato AI della legge belga.

La differenza evidente nel raggiungimento del 'reference level' è di circa un ordine di grandezza e può essere imputata a due principali cause: prima di tutto il limite, che durante gli anni è stato portato dai 5 mSv ad 1 mSv, e poi l'evoluzione negli anni dei metodi e dei valori dei coefficienti che descrivono il comportamento biologico dei radionuclidi nell'organismo umano, e di conseguenza la radiotossicità dei singoli radionuclidi.

Per visualizzare le differenze dei radionuclidi in termini di radiotossicità a prescindere dall'influenza del limite di legge nei due diversi data-base (costruiti, lo ricordiamo, il primo sulle raccomandazioni ICRP 2 ed il secondo sull'ICRP 72), è stata graficata in figura (4.13) la

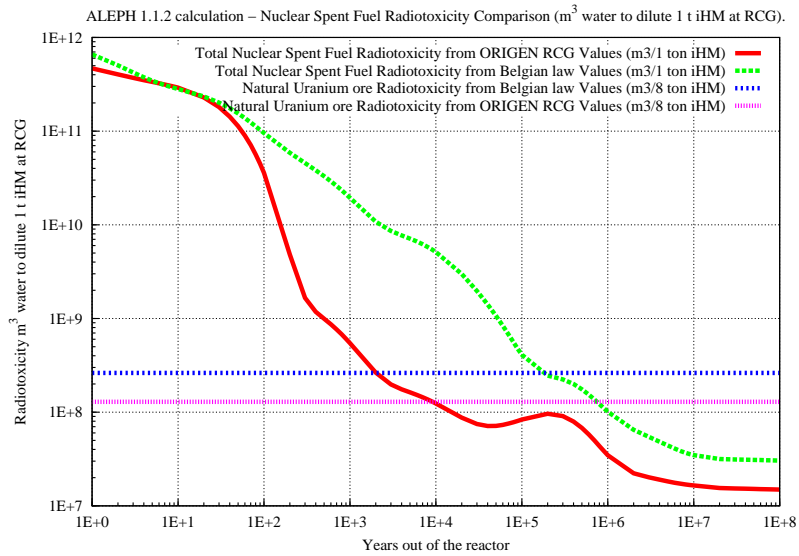


Figura 4.12: Confronto tra i valori di radiotossicità assoluti del combustibile nucleare esaurito forniti da ORIGEN 2.2 e dalla tabella H1 appendice AI della legge belga del 2001, basata sull'ICRP 72.

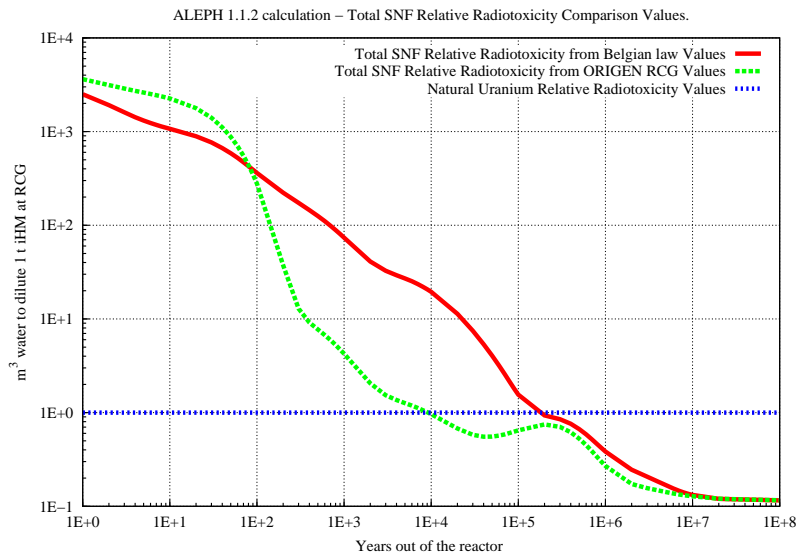


Figura 4.13: Confronto tra i valori di radiotossicità relativi al corrispondente valore di radiotossicità naturale del combustibile nucleare esaurito forniti da ORIGEN 2.2 e dalla tabella H1 appendice AI della legge belga del 2001, basata sull'ICRP 72.

radiotossicità relativa riferita alla radiotossicità di 8 tonnellate di uranio naturale in equilibrio secolare.

Similmente è stato, poi, condotto il confronto tra i valori di RCG tra il 10 CFR Part 20 (1994) e la stessa legge belga per vedere nel panorama scientifico internazionale quali differenze emergono a seconda dei paesi di origine dei dati considerati. Il risultato dell'analisi riportato in figura (4.14). mostra i valori assoluti di radiotossicità costruiti con i rispettivi 'radioactivity concentration guide'.

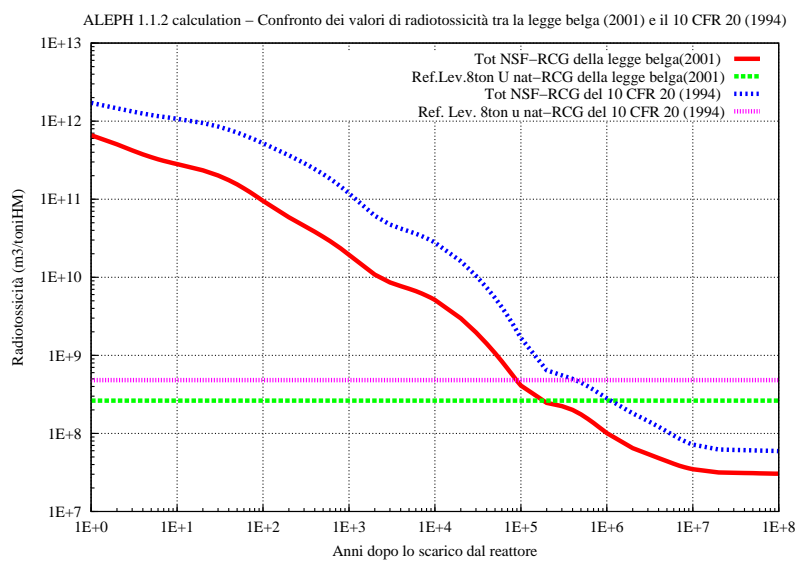


Figura 4.14: Confronto tra la radiotossicità calcolata con i valori di RCG (m^3 di acqua necessari a diluire 1toniHM) dalla legge belga (2001) e dal 10 CFR Part 20 (1994).

Il 10 CFR Part 20 (1994) presenta valori di radiotossicità per il combustibile nucleare esaurito più restrittivi di quelli attualmente in vigore nella Comunità Europea, in particolare in Belgio. Questo è spiegabile, secondo quanto riportato nel Paragrafo 4.1.3, con il fatto che il 10 CFR 20 è basato sulle raccomandazioni dell'ICRP 30 che sovrastimava rispetto all'ICRP 60 i valori limite per l'ingestione e l'inalazione di alcuni elementi, in particolare degli attinidi minori.

In figura (4.15) è riportato il confronto tra i valori di radiotossicità relativa, costruiti facendo riferimento al valore di 8 tonnellate di uranio naturale in equilibrio, tra la legge belga del 2001, basata sulle raccomandazioni dell'ICRP 69 (1994), il 10 CFR Part 20 edizione

successiva al 1994 che rispecchia le raccomandazioni dell'ICRP 30 (1978 e succ.) e i valori riportati per default in ORIGEN 2.2 del 2002, basati sui valori di MPC dall'ICRP 2 (1959).

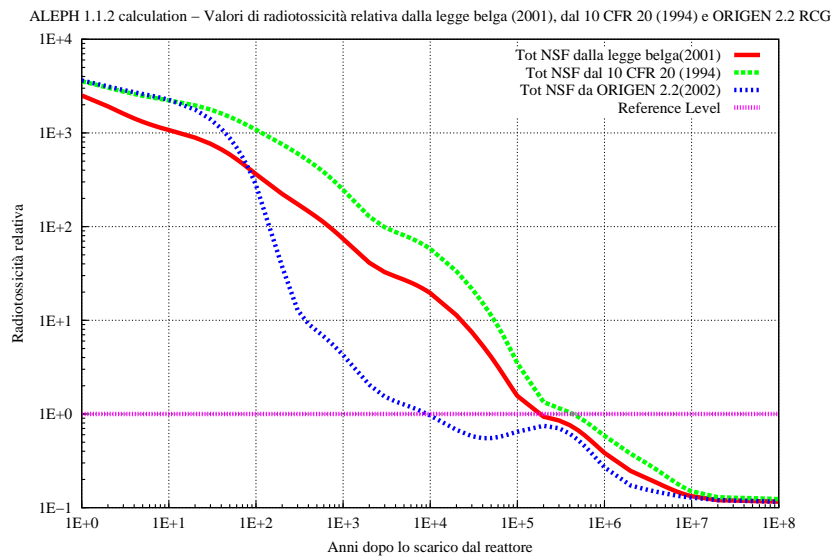


Figura 4.15: Confronto tra la radiotossicità relativa, normalizzata al valore di riferimento cioè a 8 tonnellate di uranio naturale in equilibrio, della legge belga (2001), del 10 CFR Part 20 (1994) e di ORIGEN 2.2.

Parte del lavoro è stato finalizzato poi all'analisi del peso sulla radiotossicità totale dei singoli elementi e dei radioisotopi più importanti. Nel fare questa operazione è stato scoperto che il valore riportato originariamente nel data-base di ORIGEN 2.2 per il limite di ingestione (WRCG) del Pr-143 è di $5 \cdot 10^{-9} \mu Ci/ml$ invece del $5 \cdot 10^{-5} \mu Ci/ml$ presente nel 10 CFR Part 20 (1982). L'evidenza di quest'inesattezza è stata resa evidente dai calcoli per la ricerca del peso percentuale sul totale della radiotossicità dei singoli radioisotopi al variare del tempo di decadimento fuori dal reattore.

In particolare il Pr-143, con tempo di dimezzamento di 13.57 giorni, compare in evidenza solo nel computo del peso percentuale al tempo iniziale, cioè nell'istante in cui il combustibile è estratto dal reattore. In tale istante di tempo la radiotossicità percentuale che risulta dall'analisi di tutto il combustibile estratto da un PWR dopo un singolo ciclo di irraggiamento a 50 GWd/toniHM è riportata in figura (4.16).

Questa anomalia è stata nei nostri file eliminata andando a sostituire il valore trovato nel

10 CFR Part 20 (1982). I valori ottenuti a seguito di questa sostituzione sono riportati in figura (4.17).

Il contributo dei radioisotopi più significati secondo i valori limite riportati anche sulla legge belga e sul 10 CFR Part 20 (1994) è riportato nelle tabelle seguenti. Sono stati, in par-

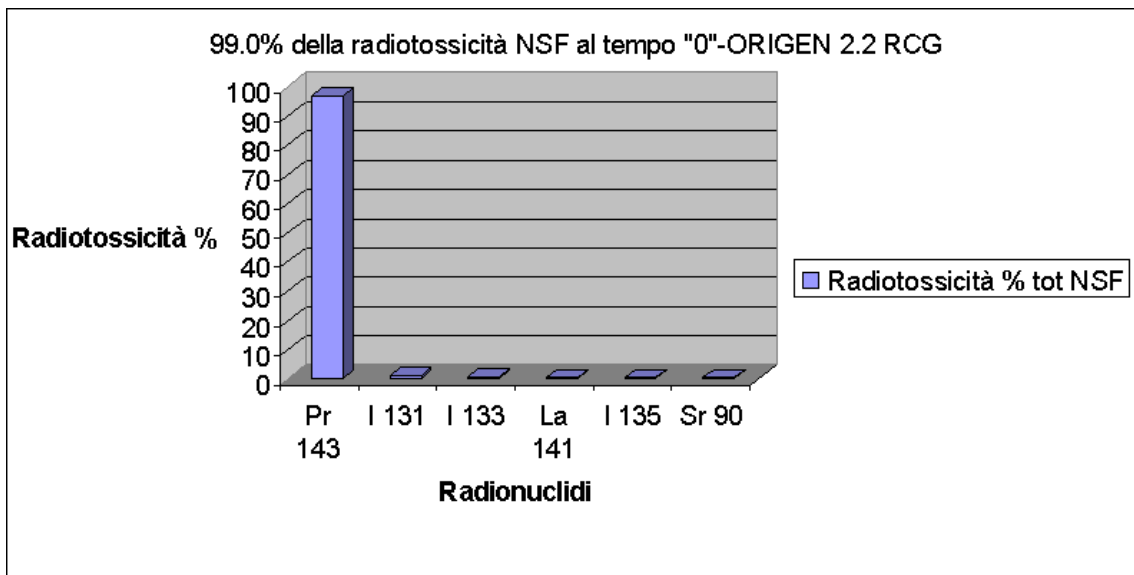


Figura 4.16: Valori della radiotossicità percentuale secondo i valori di RCG dai coefficienti di default di ORIGEN 2.2.

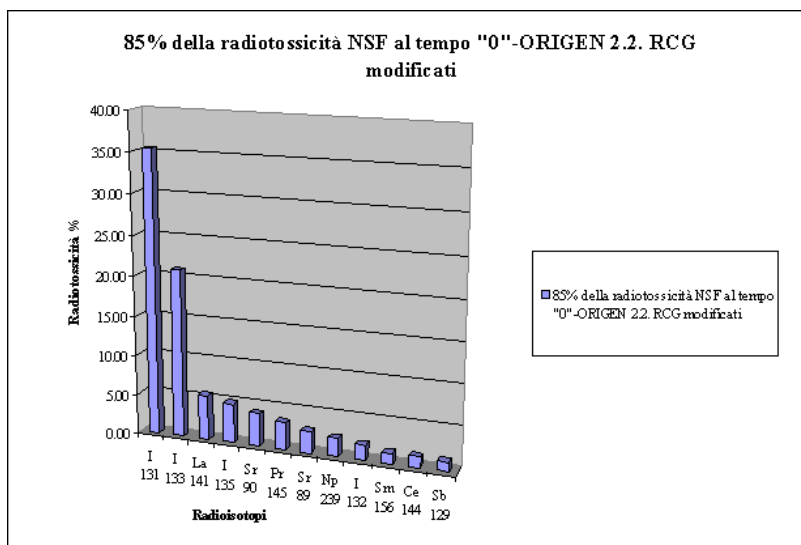


Figura 4.17: Valori della radiotossicità percentuale calcolata secondo i valori di RCG dai coefficienti modificati di ORIGEN 2.2.

ticolare, considerati i punti temporali del decadimento a 20 anni, tabella (4.9), dallo scarico del reattore in cui il contributo maggiore è dato dai prodotti di fissione con tempo di decadimento medio-breve, soprattutto Cs-137 e Sr-90; a 1000 anni, tabella (4.10), dallo scarico del reattore i più significativi contributi alla radiotossicità sono dati dagli attinidi minori, tra cui Am-241, Pu-240, Pu-239,...; nel lunghissimo periodo, cioè dopo 10^5 anni, tabella (4.11), dallo scarico del reattore, solo i prodotti di fissione a lunga vita, I-129 e Tc-99, insieme al Pu-239 e figli del decadimento degli attinidi minori accumulati (Ra-226, Po-210, Pb-210,...), danno oramai contributi non trascurabili.

Radioisotopi	Peso % legge belga (2001)	Radioisotopi	Peso % 10 CFR Part 20 (1994)
Sr-90	2.9E+01	Pu-238	2.8E+01
CS-137	2.0E+01	Am-241	2.1E+01
Pu-238	1.9E+01	Sr-90	1.4E+01
Am-241	1.3E+01	Cm-244	1.3E+01
Cm-244	6.8E+00	Cs-137	1.0E+01
Pu-241	5.4E+00	Pu-241	7.5E+00
Y-90	2.8E+00	Pu-240	3.5E+00
Pu-240	2.6E+00	Pu-239	2.1E+00
Pu-239	1.5E+00	Y-90	9.8E-01
Am-243	1.4E-01	Am-243	2.3E-01
Cs-134	1.0E-01	Am-242*	1.0E-01
Eu-154	6.6E-02	Cm-243	7.8E-02
Am-242*	5.8E-02	Cs-134	4.1E-02

Tabella 4.9: Contributo percentuale dei radioisotopi più significativi dopo 20 anni di tempo di decadimento, per combustibile con burn-up allo scarico di 50GWd/toniHM irraggiato un solo ciclo, secondo i valori della legge belga (2001) e del 10 CFR Part 20 (1994)

Concludiamo il capitolo sulla revisione dei valori di radiotossicità e sul significato fisico delle unità di misura prese a riferimento, auspicando una maggiore omologazione a valori di radiotossicità più aggiornati dei dispositivi di calcolo utilizzati per la stima della radiotossicità, in primis ORIGEN 2.2, seguendo i valori pubblicati dalle più autorevoli commissioni

Radioisotopi	Peso % legge belga (2001)	Radioisotopi	Peso % 10 CFR Part 20 (1994)
Am-241	5.1E+01	Am-241	5.6E+01
Pu-240	2.9E+01	Pu-240	2.6E+01
Pu-239	1.8E+01	Pu-239	1.6E+01
Am-243	1.5E+00	Am-243	1.7E+00
Pu-242	1.5E-01	Pu-242	1.4E-01
Pu-238	1.2E-01	Pu-238	1.1E-01
Cm-245	4.3E-02	Np-237	6.5E-02

Tabella 4.10: Contributo percentuale dei radioisotopi più significativi dopo 1000 anni di tempo di decadimento, per combustibile con burn-up allo scarico di 50GWd/toniHM irraggiato un solo ciclo, secondo i valori della legge belga(2001) e del 10 CFR Part 20 (1994)

Radioisotopi	Peso % legge belga (2001)	Radioisotopi	Peso % 10 CFR Part 20 (1994)
Pu-239	5.2E+01	Pu-239	6.8E+01
Po-210	1.7E+01	Pb-210	9.6E+00
Pb-210	1.0E+01	Pu-242	8.3E+00
Pu-242	6.0E+00	Np-237	5.3E+00
Ra-226	4.0E+00	Po-210	2.4E+00
Th-230	3.0E+00	Th-229	1.7E+00
Th-229	2.6E+00	Ra-226	1.6E+00
Np-237	1.8E+00	I-129	1.5E-02
U-234	1.1E+00	Tc-99	1.4E-02
Ra-225	5.2E-01	-	-
U-233	2.9E-01	-	-
Ac-227	2.5E-01	-	-
Tc-99	1.2E-01	-	-
I-129	7.8E-02	-	-

Tabella 4.11: Contributo percentuale dei radioisotopi più significativi dopo 1×10^5 anni di tempo di decadimento, per combustibile con burn-up allo scarico di 50GWd/toniHM irraggiato un solo ciclo, secondo i valori della legge belga (2001) e del 10 CFR Part 20 (1994)

in materia di protezione dalle radiazioni ionizzanti e dalle leggi in vigore nei diversi stati occidentali. Crediamo inoltre che la scelta di unità di misura chiare e facili da comprendere sia la base per una maggiore accettabilità dell'energia nucleare, in Europa e nel mondo, oggi che gli occhi di tutti sono puntati proprio sulla gestione dei rifiuti nucleari e sulla chiusura del ciclo del combustibile.

Capitolo 5

Contributo alla progettazione di un ADS industriale (EFIT)

5.1 Aspetti generali del progetto EFIT: Euratom 6th Framework Programme (FP6)

Nel Capitolo 2 è stato brevemente introdotto il concetto di ADS e la sua evoluzione storica; a riguardo è stato poi nominato il progetto europeo, l'Integrated Project *IP EUROTRANS* per il WP04 dell'EURATOM '6th Framework Programme' che mira alla valutazione di fattibilità della realizzazione di un ADS su scala industriale e che andremo ora a presentare più nel dettaglio.

Il progetto dell'European Facility for Industrial Transmutation (EFIT) è poco più che all'inizio e ancora non ne esistono le specifiche costruttive definitive. Le principali associazioni che vi lavorano, CEA, ENEA, FZK e SCK-CEN, insieme ad università e ad altri centri di ricerca europei, hanno stretto importanti collaborazioni con lo scopo di definire le caratteristiche di base, confrontando i numerosi studi di tentativo condotti giornalmente circa gli aspetti più importanti dell'impianto. Nel documento di presentazione del sesto programma EURATOM vengono elencate l'organizzazione del lavoro, suddiviso per competenze in diverse aree di responsabilità ai diversi centri, e le tempistiche con cui è prevista la definizione di un progetto comune europeo.

Per quanto riguarda il centro SCK-CEN in Mol (Belgio) le finalità con cui viene condotta la ricerca su EFIT sono strettamente collegate, e prima di tutto finalizzate, al consenso per la realizzazione preventiva di un prototipo di XT-ADS (vedi progetto MYRRHA, Paragrafo 2.5 ed in particolare vi sono stati affidati tutti gli aspetti, richiamati nel documento tecnico di riferimento 'Integrated Project *IP EUROTRANS*' col nome DM1-ETD Design, riguardanti:

- la prova della realizzabilità delle specifiche di base dello stesso reattore industriale EFIT una volta progettato nel dettaglio l'XT-ADS;
- l'analisi della possibile sostituzione del progetto attuale di reattore ADS refrigerato con la lega eutettica Pb-Bi con un reattore refrigerato a Pb o a gas;
- lo studio e l'applicazione della tecnologia richiesta per la costruzione di un acceleratore lineare LINAC destinato ad essere associato sia all'XT-ADS sia ad EFIT come sorgente dei neutroni di spallazione;
- lo sviluppo del progetto del condotto di spallazione senza finestra in termini termofluidodinamici e di vuoto;
- la definizione degli aspetti globali e di sicurezza per un ADS in presenza di attinidi minori nel combustibile e applicazione dei risultati ottenuti sia allo sviluppo dell'XT-ADS sia ad EFIT.

Il nostro lavoro trova la sua maggiore giustificazione proprio in collaborazione con il lavoro condotto al centro SCK-CEN stesso sulla capacità di trasmutazione di un ADS industriale e si è avvalso della consultazione dei dati forniti dalla CEA a cui era stato preventivamente affidato lo studio del combustibile (vedi documento DM3-AFTRA): l'ipotesi da cui siamo partite è stata la scelta di una matrice inerte di MgO, una tra le possibili tipologie utilizzabili in EFIT sulla base delle specifiche avanzate in seno al gruppo di lavoro del centro SCK-CEN, con Pu e MA ma senza uranio, come approfondito successivamente al Paragrafo 6.2.

Possiamo, quindi, affermare che i risultati dei precedenti capitoli sono stati sin dall'inizio finalizzati allo studio di un possibile core EFIT, per fare di questo un bruciatore su scala industriale (400 MWth, 600MeV) di attinidi minori. Infatti, ricordiamo che sono state prima

di tutto ricercate proprio le più realistiche concentrazioni del vettore isotopico da inserire in ingresso ad EFIT andando a studiare l'intero parco di reattori belga. Con questo scopo è stata progettata, quindi, la geometria e la composizione isotopica di un possibile core EFIT, utilizzando il codice ALEPH-1.1.2 associato ad MCNPX, per essere in grado di valutarne, almeno qualitativamente, la capacità di bruciamento al variare della composizione di attinidi minori in ingresso al reattore, come presentato di seguito al Paragrafo 5.2.

Sono stati in questo lavoro fissati i parametri nucleari del core tali da garantirne il rispetto dei valori della potenza termica stabilita e del valore di κ_{eff} al tempo iniziale, ipotizzati a priori: tutto questo significa che sono stati definiti il vettore isotopico del combustibile in ingresso e la quantità di plutonio, nonché la geometria del core ed il numero di 'assemblies', il burn-up allo scarico, la lunghezza ed il numero dei cicli di irraggiamento, infine il tempo di raffreddamento fuori dal reattore. Le scelte a loro volta sono state vincolate ai parametri nucleari medi raccomandati dagli studi sul combustibile e sulla potenza specifica del reattore concordati all'interno dell'IP EUROTRANS. I dati di progetto più importanti sono riassunti in tabella (5.1).

Potenza termica del core	400 MWth
Energia del fascio incidente di protoni	600 MeV
Burn-up medio allo scarico	150 GWd/toniHm
κ_{eff}	0.97
Lunghezza dei cicli di irraggiamento	2394 (efpd)
Numero di cicli successivi nel core	5
Tempo intermedio di raffreddamento	3 anni
Tipo di combustibile	(Pu,Np,Am,Cm)O _{1.88} +MgO
Frazione fuel/matrice inerte	50%
Arricchimento in Pu	36.964 (%Wt)
Numero di assemblies	324
Altezza del core	410 cm
Diametro del core	350 cm

Tabella 5.1: Caratteristiche tecniche principali del progetto del reattore sottocritico iniettato EFIT.

La valutazione della capacità di bruciamento degli attinidi minori raggiunta e del risultato

ottenuto è stata possibile solo previa definizione dello strumento più adatto a questo tipo di valutazione: per questo parte del lavoro è stato finalizzato anche alla ricerca della migliore definizione di radiotossicità del combustibile nucleare esaurito e del livello di riferimento della radiotossicità naturale.

Queste informazioni sono state poi utilizzate, come mostrato nel Paragrafo 6.1 , per analizzare i risultati in termini del tempo necessario al raggiungimento del ‘safe storage’ in funzione dell’efficienza di trasmutazione ottenuta.

Questo tipo di analisi è particolarmente significativo per permettere, come già accennato più volte, di avanzare giudizi obiettivi sulla reale sostenibilità della strategia del ‘partitioning&transmutation’ e sulla definizione dello scenario migliore per la gestione del combustibile nucleare esaurito.

5.2 Modellizzazione di un ADS industriale (EFIT) per l’utilizzo nel codice di calcolo MCNPX

Al fine di poter svolgere calcoli significativi, relativamente all’evoluzione della composizione isotopica del combustibile caricato all’interno di un reattore sottocritico ADS di taglia industriale (nella fattispecie EFIT), è necessario nella costruzione dell’input del codice di calcolo utilizzato, ALEPH-1.1.2 [1], andare a fare una modellizzazione geometrica adeguata e significativa della struttura reale del sistema, prendendo in esame nel dettaglio tutte le caratteristiche costruttive dei vari elementi del core, in particolare la struttura di ‘assemblies’ e barrette.

Si vuole far notare, fin da subito, che è stato necessario un approccio diverso nell’analisi di un ADS rispetto al PWR di riferimento studiato precedentemente; in questo caso, infatti, non è corretto approssimare il core di un ADS con un reticolo infinito di celle elementari identiche formate solo dal combustibile e dal refrigerante abbinato, perché questa tipologia di reattore presenta un elemento particolare che impone un peso geometrico a tutto il sistema: la sorgente di spallazione con protoni ad alta energia.

La presenza di tale elemento influenza fortemente sia la forma che lo spettro del flusso, sia in direzione radiale (con la formazione di un picco al centro del sistema) che in direzione

assiale (Picco di Bragg); non permette cioè di considerare ogni elemento di combustibile indistinguibile l'uno dall'altro e non permette dunque l'approssimazione ad un reticolo infinito, dovendo così scartare questa modellizzazione risultata molto utile e sbrigativa per quanto riguardava il caso di un PWR (vedere Capitolo 3).

La sorgente di spallazione nel sistema da noi considerato, cioè in un ADS industriale (EFIT), è centrata in direzione radiale, presenta un target senza finestra non centrato rispetto all'asse z e posizionato ad una distanza in modo da far coincidere con $z=0$ il picco massimo di spallazione, come verrà indicato più avanti.

Per definire numericamente questa tipologia di sistema è stato utilizzato il codice di calcolo ALEPH-1.1.2 [1], in sviluppo presso l'SCK-CEN, in grado di scegliere, per la sua implementazione, l'uso dei codici MCNP o MCNPX [19]. In particolare la scelta è ricaduta sull'uso del codice MCNPX [19] perché permette di simulare in modo adeguato la sorgente di spallazione grazie ai modelli alle alte energie che vi sono stati a tal scopo opportunamente accoppiati.

MCNPX nasce, infatti, nel 1994, all'interno del Los Alamos National Laboratory-LANL in supporto al progetto 'APT-Accelerator Production of Tritium Project' e al progetto 'AAA-Advanced Accelerator Applications', per allargare il codice MCNP con l'aggiunta del codice LAHET 2.8, rendendo possibile la considerazione di tutti i tipi di particelle, sia neutroni, anti-neutroni, fotoni, elettroni e positroni, già presenti in MCNP, sia aggiungendo leptoni, barioni (protoni, etc), mesoni e ioni leggeri (deuterio, trizio, He-3 ed He-4) e allargando l'interesse a tutte le energie (estensione delle librerie dei neutroni da 20 MeV a 150 MeV, e dei fotoni e dei protoni, da 1 MeV a 150 MeV).

Queste modifiche hanno reso più agevole la simulazione dell'accoppiamento di un acceleratore di particelle ad alta energia ad un sistema sottocritico [19] senza la necessità di utilizzare separatamente un codice dedicato solo alla modellizzazione dei sistemi ad alta energia. Infatti, internamente al codice è possibile trovare vari modelli adottabili per la simulazione della sorgente di spallazione a seconda dei livelli energetici considerati (modello a cascata-alte energie, pre-intermedio ed evaporazione). Entreremo nel dettaglio di questi modelli solo inerentemente alla spiegazione delle scelte fatte nella simulazione della sorgente di spallazione usata per svolgere il presente studio.

Prima di descrivere tali aspetti, verrà presentata brevemente la modellizzazione adottata per la geometria del sistema, avvalendosi, per una maggiore schematizzazione, della nomenclatura utilizzata all'interno del codice di calcolo MCNPX [19] e già descritta, per quanto riguarda il caso del PWR, nel Capitolo 3, fermo restando che per maggiori dettagli si rimanda alla Appendice A.

Dunque, al fine di avere una descrizione più organica della modellizzazione di un ADS industriale (EFIT), partiremo dall'elemento base (la barretta di combustibile), per poi andare a costruire l'elemento di combustibile nel complesso per giungere infine al core (comprendendo anche la geometria della sorgente di spallazione).

Conclusa questa parte descrittiva si entrerà più nel dettaglio ai calcoli fatti ed ai risultati ottenuti (Capitolo 6). Sin da ora è comunque utile ricordare e mostrare le tipologie di calcolo che sono state portate avanti per raggiungere l'obiettivo prefissato:

- Studio della concentrazione minima di plutonio da inserire nel combustibile, affinché un reticolo infinito (ipotetico) formato dal ripetersi della cella elementare (barretta + refrigerante abbinato) dia un k_{eff} ($=k_{\infty}$) pari a 0.97; tale valutazione serve solo ad avere un'idea della concentrazione isotopica di Pu e MAs da cui poter partire nello studio del caso di core reale cioè finito, ove la presenza di fughe porterà necessariamente ad avere un aumento della concentrazione di plutonio necessaria al raggiungimento del k_{eff} voluto (calcoli fatti con MCNPX);
- Studio della concentrazione minima di plutonio da inserire nel combustibile nel caso di core reale (finito) per avere un k_{eff} pari a 0.97; tale analisi è stata fatta sia variando la concentrazione di plutonio sia variando il numero di elementi di combustibile che formano il core per il raggiungimento del valore desiderato (calcoli fatti con MCNPX).

A seguito dei risultati ottenuti da queste due valutazioni preliminari, composizione isotopica finale e numero di 'assemblies' considerati, sarà possibile andare ad eseguire i calcoli di irraggiamento neutronico avvalendosi del codice di calcolo ALEPH-1.1.2 [1], per determinare l'effettiva riduzione delle quantità di attinidi minori e di plutonio rispetto alle condizioni iniziali, come sarà ampiamente illustrato nel Capitolo 6.

Rimangono da determinare i parametri fondamentali che definiscono i cicli di irraggiamento: lunghezza effettiva del ciclo, tempo che intercorre fra un ciclo ed un altro e numero totale di cicli necessari al bruciamento degli attinidi.

In letteratura si trovano come lunghezze tipiche di irraggiamento valori che vanno dai 5 agli 8 anni intervallati da un periodo di decadimento, per la refrigerazione e la rifabbricazione del combustibile, che varia dai 3 ai 10 anni, con un numero tipico di cicli di irraggiamento pari a 5.

Nel presente studio in particolare è stato preso in esame lo studio del core caricato omogeneamente con il combustibile ($\text{MgO} + (\text{Pu}, \text{Np}, \text{Am}, \text{Cm})\text{O}_{1.88}$) irraggiato attraverso 3 cicli consecutivi da 2394 efpd, circa 6.6 anni, ciascuno (150 GWd/toniHM a 400 MWth) intervallati da 3 anni di puro decadimento. La scelta dei 3 cicli è solo per poter avere una valutazione preliminare riducendo i tempi di calcolo. Oltre a questo calcolo è stato portato avanti lo studio su un altro aspetto riguardante il core totale, caricato ancora omogeneamente ma suddiviso in 35 zone differenti (5 anelli concentrici sul piano x,y e 7 zone in direzione z), irraggiato per un periodo di circa 1000 giorni terminante con 3 anni di decadimento, tale calcolo permette di fornire un'indicazione necessaria sulle capacità di bruciamento nelle varie zone di un ADS in rapporto alla singolarità sullo spettro del flusso imposta dalla sorgente di spallazione. ALEPH-1.1.2 ci aiuta in questo compito perché fornisce in uscita le concentrazioni isotopiche per ciascuna delle 35 zone, permettendo un adeguato trattamento, anche in modo separato zona per zona, dei vari aspetti di nostro interesse.

Verrà, in un secondo tempo, studiata l'evoluzione temporale di tali quantità in termini di radiotossicità, per poterla confrontare con il caso del PWR presentato precedentemente nei Capitoli 3 e 4.

Per un'approfondimento maggiore delle tecniche di modellizzazione del core di un ADS attraverso gli strumenti che il Monte Carlo ci mette a disposizione, si rimanda all'Appendice A.

5.2.1 Modellizzazione della barretta di combustibile

L'elemento base della modellizzazione del core per qualsiasi tipologia di reattore (esistente o in fase di progettazione) è la definizione della *cella elementare*, cioè l'insieme della bar-

retta di combustibile e della porzione di refrigerante che le compete. Come primo passo si andrà dunque a determinare la cella elementare presa ad esame per lo studio di un reattore sottocritico (ADS).

Il sistema da noi considerato, come già spiegato, è collegabile al progetto europeo di un ADS industriale (EFIT), interno al FP6 dell'EURATOM, in cui confluiscono i risultati ottenuti nel campo dello sviluppo di un XT-ADS (FP5), nonché nello specifico progetto MYRRHA [2], sviluppato all'interno del centro SCK-CEN di Mol (Belgio). E' dunque opportuno precisare che alcuni dati di riferimento adottati nel presente lavoro, soprattutto per gli aspetti termodinamici, derivano da studi relativi al progetto MYRRHA [2] ed altri invece sono dati di tentativo forniteci dal gruppo di ricerca e sviluppo su EFIT che si è costituito presso il centro SCK-CEN.

Per quanto riguarda le dimensioni della barretta di combustibile, e dell'elemento di combustibile stesso, sono stati presi infatti i dati proposti dai vari partners in gioco, soprattutto in accordo fra il gruppo interno all'SCK-CEN e il gruppo interno al Commissariat à l'Energie Atomique (CEA, Francia).

Le dimensioni delle barrette, come verrà mostrato in tabella (5.2), risultano essere abbastanza simili ai dati relativi alle barrette di combustibile progettate e costruite per essere utilizzate nei reattori veloci (SPX-SuperPhenix, EFR-European Fast Reactor); questo in realtà non deve sembrare del tutto strano, perché, già a partire dalla Roadmap europea per lo sviluppo degli ADS (2001)[11] e dal rispettivo report 'Fuel of XADS'(2001), specifico rispetto al combustibile da utilizzare [22], si fa riferimento all'utilizzo, per la prima fase di sviluppo degli ADS, di combustibile già esistente (costruito per i veloci), affiancandolo però con uno studio dettagliato di una nuova tipologia di combustibile, progettata in modo specifico per l'inserimento all'interno dei reattori sottocritici, si veda la parte del FP6 (AFTRA-Advanced Fuels for TRANsmutation Systems) specifica a riguardo .

In effetti, questi due aspetti di indagine portano a considerare dimensioni geometriche per l'elemento ADS che risultano essere simili a quelle pensate per i veloci (tabella (5.2)), ma ad un diverso tipo di combustibile per quel che riguarda la composizione del fissile, infatti, non si ha a che fare con combustibile MOX ma con un combustibile formato da una matrice inerte (in questo caso Ossidi di Magnesio-MgO) che ingloba ossidi di plutonio, nettunio,

americio e curio, in percentuali adeguatamente determinate. In seguito, sarà trattato in modo più adeguato tale aspetto perché uno degli scopi del presente lavoro è stata la determinazione della composizione isotopica in termini di plutonio e attinidi minori da inserire all'interno di un core di un ADS di scala industriale.

Parametri	SPX	EFR	MYRRHA	Presente studio-EFIT
Diametro (mm)	8.50	8.65	6.55	6.45
Altezza totale (mm)	2700	3600	1200	2370.0
Altezza upper plenum (mm)	162	1700	60	100.0
Altezza upper reflector (mm)	300	250	100	200.0
Altezza upper insulator (mm)	-	-	-	20.0
Altezza attiva (mm)	850	1400	600	870.0
Altezza lower insulator (mm)	-	-	-	20.0
Altezza lower reflector (mm)	300	150	100	200.0
Altezza lower plenum (mm)	852	545	300	900.0

Tabella 5.2: Confronto fra i dati geometrici di una barretta di combustibile per SPX, EFR, MYRRHA e ADS industriale (EFIT)[2]

In figura (5.1) è riportato uno schema semplificato della barretta di combustibile considerata, con evidenziate le varie zone di cui si compone: combustibile, isolante superiore ed inferiore, riflettore superiore ed inferiore, plenum superiore ed inferiore e tappi di chiusura superiore ed inferiore. La lunghezza totale della barretta è di 2370 mm, con una lunghezza attiva pari a 870 mm, per un diametro massimo (diametro esterno dell'incamicatura) di 6.45 mm e raggio delle pellets di combustibile pari a 2.7 mm.

Questa struttura, completa delle varie parti di cui si compone la barretta, è stata modellizzata per l'utilizzo nel codice MCNPX [19]; a tal proposito si vedano figura (5.2) e figura (5.3), relative alla modellizzazione Montecarlo rispettivamente per la sezione x-z e la sezione x-y della barretta di combustibile. In figura (5.3), sono riportati gli identificatori delle superfici della cella che hanno permesso la determinazione della geometria esagonale (per una descrizione più dettagliata di tali indicatori si rimanda all'appendice A).

E' evidente dalle figure (5.2), (5.3), che quello che è stato modellizzato non è la singola

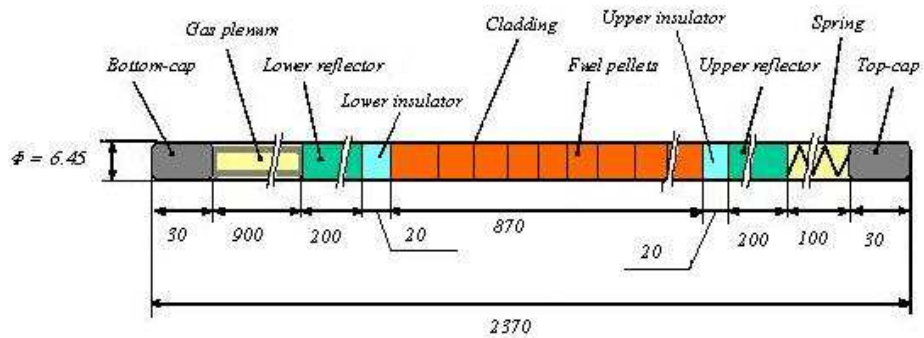


Figura 5.1: Schema semplificato della barretta di combustibile per l'ADS-EFIT

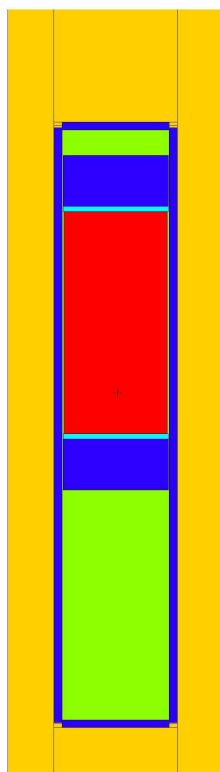
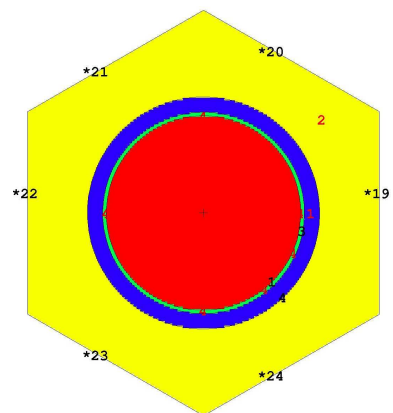


Figura 5.2: Modellizzazione MCNPX per la barretta di combustibile (sezione x-z)



2000

Figura 5.3: Modellizzazione MCNPX per la barretta di combustibile (sezione x-y)

barretta, ma la cella elementare. Note le dimensioni della barretta è stato necessario andare a determinare le dimensioni relative all'esterno della cella, cioè relative alle superfici che delimitano il refrigerante abbinato, i dati relativi a questi parametri sono stati forniti direttamente dal gruppo di lavoro su EFIT.

In primo luogo è necessario determinare la forma della cella. La scelta è ricaduta su una cella costituita da un prisma esagonale retto, perché a sua volta l'elemento di combustibile preso in esame avrà tale forma (prisma esagonale), che determinerà la forma esagonale di tutto il core (come verrà evidenziato in seguito) a seguito della formazione del reticolo di 'assembly'. Tale forma per la cella risulta utile anche perché ci permette di descrivere adeguatamente il reticolo triangolare delle barrette che viene a crearsi all'interno dell'elemento.

Nota la geometria della barretta e dunque la forma della cella elementare è importante andare a fornire la composizione isotopica dei materiali che compongono le varie parti.

5.2.2 Materiali utilizzati nella modellizzazione della cella elementare

Come descritto al Paragrafo 5.2.1, la barretta di combustibile è abbastanza articolata e comprende varie zone di materiali differenti. Per quanto riguarda il combustibile verrà fornita una descrizione più dettagliata nel Paragrafo 6.2.2, sulla base del calcolo di ottimizzazione fatto con MCNPX, seppure sia utile ricordare sin da ora che è formato da un 50% in volume da una matrice inerte (MgO) ed un 50% in volume da combustibile sotto forma di ossidi di plutonio, nettunio, americio e curio, in opportune proporzioni fra di loro.

In questa sede andremo ad indicare gli altri materiali utilizzati e le concentrazioni isotopiche relative ai vari elementi che li compongono, necessarie per un corretta implementazione del calcolo di bruciamento di un ADS.

Partiamo dalla descrizione della barretta di combustibile. L'incamiciatura della barretta ed i tappi di chiusura inferiore e superiore sono fatti in un acciaio ferritico-martensitico 'ferritic-martensitic-steel (T91)', studiato all'interno del progetto MYRRHA [2] come materiale da utilizzare per l'incamiciatura del combustibile. Il FMS-T91, da vari studi, risulta essere attualmente uno fra i materiali più resistenti alla corrosione e all'infragilimento neutronico da utilizzare accoppiato con piombo o lega eutettica piombo-bismuto come refrigerante

del core e con i flussi neutronici in gioco ($\phi_{tot} \succ 10^{15} n/cm^2/s$). La densità considerata del T91 è di 7.77 g/cm^3 e le composizioni isotopiche utilizzate nel nostro studio (riportate in tabella (5.3)) sono prese direttamente dal progetto MYRRHA [2].

ZAID	isotopi	frazioni in peso	ZAID	isotopi	frazioni in peso
6000	C	0.10000	28058	Ni-58	0.06740
7014	N-14	0.05000	28060	Ni-60	0.02670
14028	Si-28	0.50000	28061	Ni-61	0.00120
15031	P-31	0.02000	28062	Ni-62	0.00380
16032	S-32	0.01000	28064	Ni-64	0.00090
23000	V	0.20000	41093	Nb-93	0.08000
24050	Cr-50	0.37570	42092	Mo-92	0.142174367
24052	Cr-52	7.53300	42094	Mo-94	0.09054627
24053	Cr-53	0.87060	42095	Mo-95	0.157498244
24054	Cr-54	0.22070	42096	Mo-96	0.166753727
25055	Mn-55	0.50000	42097	Mo-97	0.096470347
26054	Fe-54	5.03790	42098	Mo-98	0.246265577
26056	Fe-56	81.21310	42100	Mo-100	0.100291468
26057	Fe-57	2.14900			

Tabella 5.3: Composizioni isotopiche del materiale T91 utilizzato per l'incamiciatura della barretta di combustibile e per l'isolante [2]

Il materiale T91 è stato utilizzato anche per le zone di isolante superiore ed inferiore inserite a contatto della altezza attiva del combustibile (raggio isolante 2.750 mm, altezza 20.0 mm).

Per quanto riguarda invece il materiale utilizzato per il riflettore, in ossidi di zirconio ed ittrio, si sono utilizzati ancora una volta i risultati ottenuti a riguardo all'interno del progetto MYRRHA. In in tabella (5.4) si riporta la composizione isotopica del riflettore che porta ad avere una densità pari a 6.0 g/cm^3 . La temperatura considerata per tale elemento è di 600 K, la stessa dell'isolante e del clad.

All'interno della barretta è presente anche elio (ZAID 2004) ad una temperatura di 600

Isolante		
ZAID	isotopi	frazioni in peso
8016	O-16	25.72260
39089	Y-89	4.01620
40090	Zr-90	35.62670
40091	Zr-91	7.85580
40092	Zr-92	12.13980
40094	Zr-94	12.57050
40096	Zr-96	2.06830

Figura 5.4: Composizione isotopica materiale utilizzato come riflettore [2]

ZAID	isotopi	frazioni atomiche
82204	Pb-204	0.014
82206	Pb-206	0.241
82207	Pb-207	0.221
82208	Pb-208	0.524

Figura 5.5: Composizione isotopica del Pb utilizzato come refrigerante [2]

K ed una densità di 0.00082 g/cm^3 , per riempire il lower e l'upper plenum e pressurizzare ad inizio vita la barretta di combustibile.

Per concludere la trattazione dei materiali presenti nella cella elementare è necessario considerare anche il refrigerante relativo alla barretta; in questo caso è stato utilizzato come refrigerante il piombo (T_{fus} di 327.46 °C) con densità di 10.515 g/cm^3 e temperatura media di 600 K considerata per ricavare i dati nucleari necessari dai data-bases JEFF-3.1. In tabella (5.5) è riportata la composizione isotopica del piombo utilizzato.

5.2.3 Modellizzazione dell'elemento di combustibile

L'elemento di combustibile di un ADS ha una forma esagonale, riempito da un reticolo di barrette a passo triangolare. I parametri utilizzati per la modellizzazione forniti dagli studi attualmente presenti al centro risultano in accordo fra i vari partners (dati identici a quelli utilizzati dalla CEA). Si tratta di un elemento di combustibile scatolato con un'altezza totale di 3900 mm comprendente gli ingressi e le uscite del refrigerante. Per maggiori chiarificazioni sulla struttura si rimanda alla figura (5.6) dove sono evidenziati gli elementi più significativi della struttura globale dell'assembly, cioè il bocchello di ingresso e di uscita, i raccordi conici superiori ed inferiori, il 'lower coolant plenum' e l' 'upper flow plenum', le griglie superiore ed inferiore per il posizionamento delle barrette. In tabella (5.4) si riportano i dati

utilizzati per descrivere tale geometria, entrando più nel dettaglio e paragonandoli con quelli proposti per l'elemento di combustibile del MYRRHA [2].

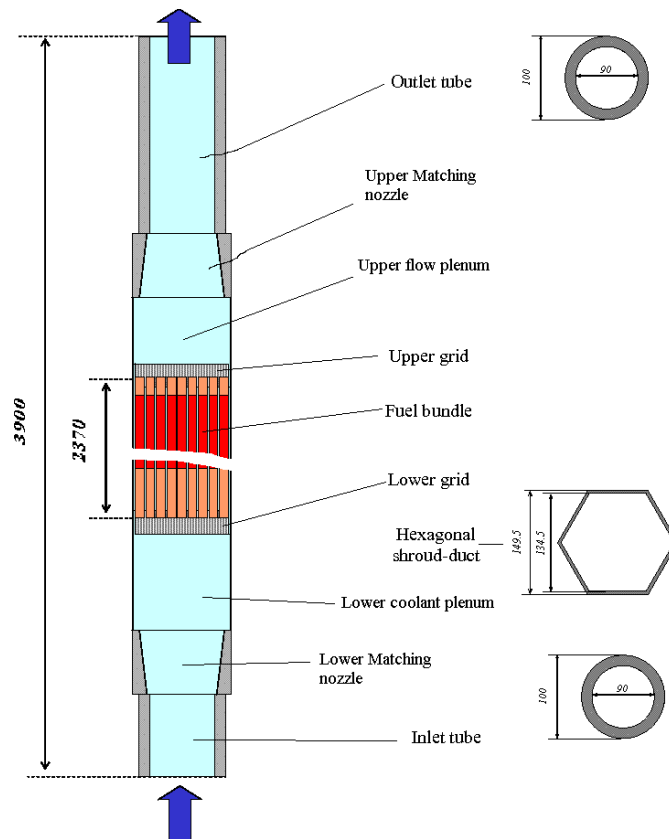


Figura 5.6: Schema semplificato d'elemento di combustibile di un ADS

Per avere un'idea della modellizzazione fatta dell'elemento in sede di MCNPX si riporta la sezione x-y sul piano $z=0$ (figura (5.7)) dell'elemento di combustibile. Tale modello prevede che l'elemento di combustibile sia costituito da 217 fuel pin con passo triangolare.

Il materiale utilizzato per le varie parti che costituiscono l'elemento di combustibile è ancora l'acciaio ferritico-martensitico T91 descritto, per quanto riguarda la composizione isotopica, precedentemente in tabella (5.3).

Parametri	Presente studio-EFIT	MYRRHA
Altezza totale assembly (mm)	3900.0	1844.0
Numero fuel pin/assembly	217	91
Tipo di passo	triangolare	triangolare
Passo barrette di combustibile (mm)	9.75	8.55
Distanza interna all'assembly (flat to flat) (mm)	134.5	82.0
Spessore scatola (mm)	3.00	1.75
Distanza esterna all'assembly (mm)	149.5	85.5
Lunghezza fuel road (mm)	2370.0	1200.0
Altezza upper coolant plenum	100.0	60.0
Altezza lower coolant plenum	167.0	90.0
Altezza matching nozzle superiore (mm)	100.0	60.0
Altezza matching nozzle inferiore (mm)	100.0	70.0
Raggio esterno tubo superiore (mm)	50.0	30.0
Raggio interno tubo superiore (mm)	45.0	20.0
Altezza tubo superiore (mm)	485.0	240.0
Raggio esterno tubo inferiore (mm)	50.0	40.5
Raggio interno tubo inferiore (mm)	45.0	29.0
Altezza tubo inferiore (mm)	588.0	80.0

Tabella 5.4: Dati relativi all'elemento di combustibile usato per un ADS industriale paragonati con i dati relativi al progetto MYRRHA [2]

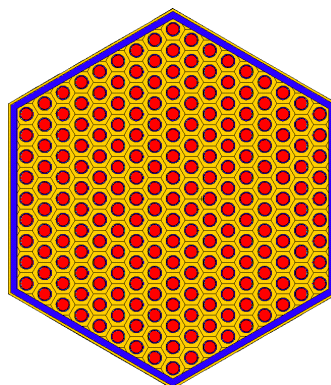


Figura 5.7: Modellizzazione MCNPX dell'elemento di combustibile di un ADS industriale

5.2.4 Modellizzazione del core di un reattore ADS industriale (EFIT)

Nota la geometria degli elementi di combustibile dovremo andare ad individuare la geometria del core in generale. In Appendice A verranno descritti nel dettaglio i vari passaggi eseguiti. In questa sede invece risulta più importante, ai fini del completamento della modellizzazione per l'implementazione dei calcoli, la visione d'insieme.

La modellizzazione fatta prevede un core di forma complessiva esagonale con un'altezza complessiva di 4100 mm, formato da 264 assembly caricati inizialmente tutti con combustibile ad uguale composizione isotopica, con una parte centrale, che corrisponde a 7 assembly equivalenti occupata dal circuito di spallazione. Dovranno essere definite infatti le dimensioni della tubazione del circuito contenente la sorgente di spallazione, circuito separato dal resto del core, identico alla soluzione proposta per il MYRRHA.

La geometria di questo elemento è molto semplice perché si tratta di un cilindro retto con asse coincidente all'asse z, il cui materiale costituente è il T91 utilizzato anche per l'incamiciatura delle barrette, con un raggio esterno di 151.5 mm ed un raggio interno di 146.5 mm. E' circondato esternamente da piombo ed al suo interno è composto da due zone, il materiale di spallazione interno al tubo (ancora piombo) e la zona al di sopra della superficie libera dove deve essere mantenuto il vuoto; queste due zone non sono separate con elementi aggiunti perché è stato considerato l'utilizzo di un target senza finestra, come proposto anche all'interno del progetto MYRRHA [2].

Nella definizione della geometria della sorgente di spallazione, ed in particolare della zona che compete al vuoto, un'attenzione particolare va posta per il posizionamento della superficie libera, funzione dell'energia dei protoni incidenti sul target. Nel nostro caso sono stati considerati protoni a 600 MeV, la superficie libera è posizionabile a 150 mm sopra l'origine degli assi scelta nel centro del reattore. La scelta è a causa del rallentamento dei protoni nel piombo, infatti, si ha il massimo rilascio di energia proprio dopo 150 mm dalla superficie libera e con tale modellizzazione questo punto di massimo (picco di Bragg) viene a coincidere con centro del reattore a $z=0$.

Le figure seguenti sono state riportate per mostrare più adeguatamente alcuni degli aspetti della geometria che sono stati modellizzati. In particolare in figura (5.8) è riportata la sezione z-x totale core, dove in rosso è evidenziata l'altezza attiva del core e dove è evidente che la

superficie di spallazione è senza finestra, con il vuoto (bianco) al di sopra di essa (target di piombo in giallo). In figura (5.9) è riportata la sezione x-y del sistema presa a $z=0$, dove si evidenzia la forma esagonale di tutto il core, circondata dal refrigerante (piombo in giallo) fino a riempire il cilindro che identifica il vessel del sistema.

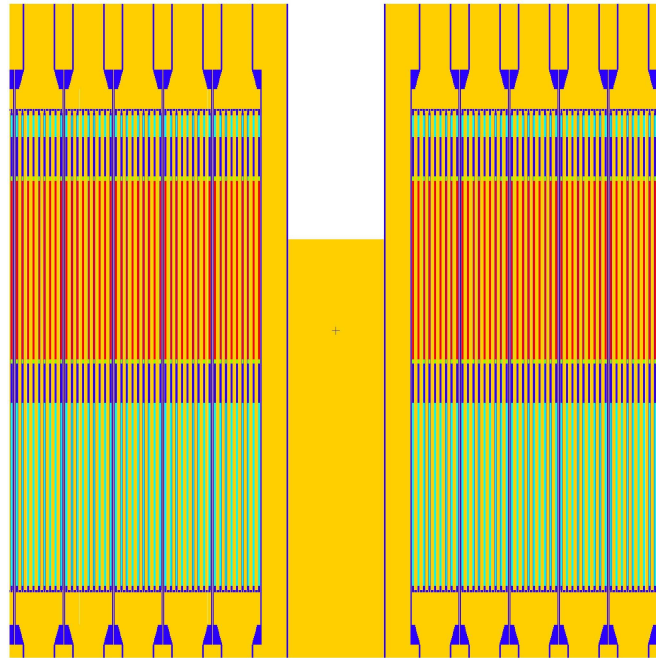


Figura 5.8: Sezione x-z del core totale modellizzato

In figura (5.10) è riportata la sezione x-y del core all'altezza del nozzle troncoconico superiore ($z=92$ cm) presente nell'elemento di combustibile, la zona in bianco rappresenta il vuoto all'interno della tubazione del circuito di spallazione. In figura (5.11) è mostrata nel dettaglio la griglia di posizionamento all'interno di un assembly per le barrette di combustibile (sezione x-y a $z=78$ cm). In figura (5.12) è riportata ancora una sezione x-y del core fatta a $z=80$ cm per mostrare la struttura scatolata a forma esagonale degli elementi di combustibile; sono riportati anche in figura gli indicatori delle celle utilizzate nella descrizione geometrica dell'elemento di combustibile e della sorgente di spallazione. In figura (5.13) è mostrata invece una sezione x-y fatta per $z=-90$ cm cioè ad un'altezza relativa al gas plenum inferiore delle barrette di combustibile, al centro si evince che la zona del circuito di spallazione a questa altezza è riempita di piombo (in giallo).

Come indicato più volte in questo lavoro il progetto su scala industriale di un reattore sot-

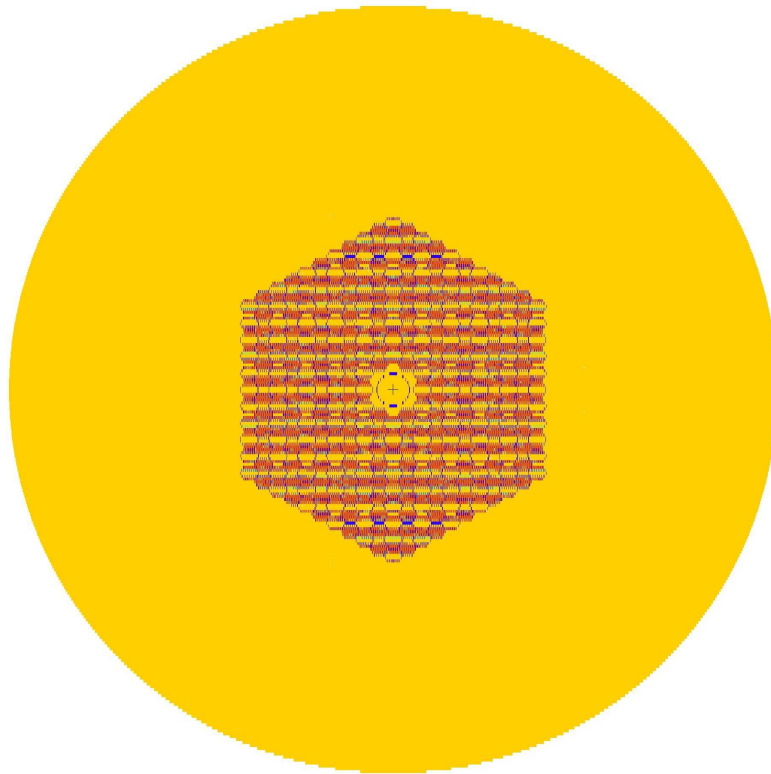


Figura 5.9: Sezione x-y del core totale

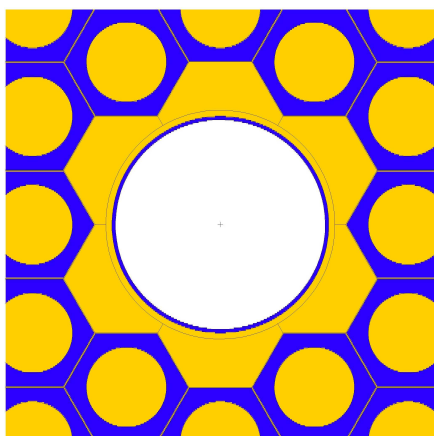


Figura 5.10: Sezione x-y del core all'altezza dei restringimenti troncoconici superiori degli assemblies ($z=92$ cm)

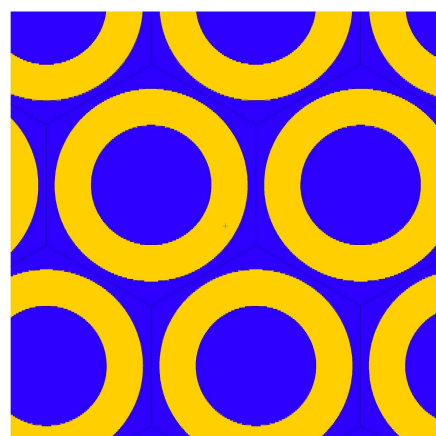


Figura 5.11: Sezione x-y del core all'altezza della griglia distanziatrice dell'assemblies ($z=78$ cm)

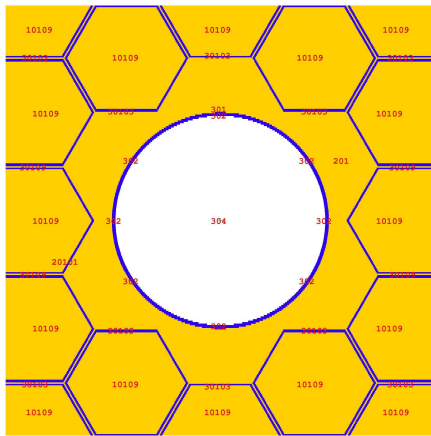


Figura 5.12: Sezione x-y del core ad altezza del plenum superiore dell'assemblies ($z=80$ cm) per mostrarne la struttura scatolata esagonale

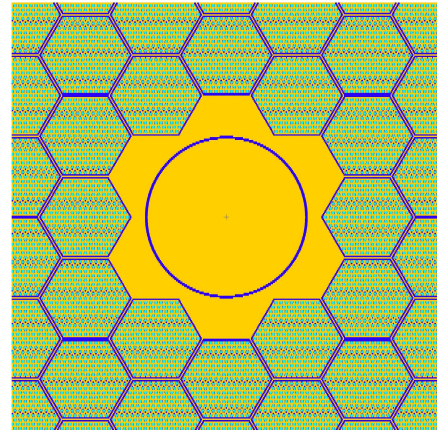


Figura 5.13: Sezione x-y del core all'altezza del plenum inferiore delle barrette ($z=-90$ cm)

to critico iniettato (EFIT) non ha ancora specifiche tecniche ben stabilite perché attualmente è in studio parallelamente in vari centri di ricerca europei (SCK-CEN, FZK, CEA, ..). Non essendo dunque ben definiti la maggior parte dei parametri è stato possibile apportare alcune modifiche alla geometria evidenziata precedentemente, sostanzialmente conformando la geometria in modo da minimizzare la quantità di plutonio da inserire all'interno dell'ADS per ottenere un keff di 0.97 nell'ottica di considerare il plutonio non come un rifiuto ma come un combustibile da usare più proficuamente all'interno dei reattori veloci, attualmente sotto studio.

Partendo dalla descrizione del calcolo della composizione andremo ad entrare più nel dettaglio delle scelte fatte per minimizzare la quantità di plutonio presente nel combustibile, parte centrale del Capitolo 6 .

Capitolo 6

Analisi dell'efficienza di Trasmutazione di un ADS industriale (EFIT)

6.1 Valutazione della Potenzialità Teorica di Bruciamento

6.1.1 Premessa

Abbiamo già richiamato nel Paragrafo 2.3 la fisica alla base del fenomeno della trasmutazione, per cui un elemento viene trasformato in un altro elemento. Di particolare importanza, nel nostro caso, sono le reazioni che cambiano il numero di neutroni nel nucleo iniziale come quelle (n,γ) e $(n,2n)$: per valutare l'efficienza di trasmutazione degli attinidi minori bisogna distinguere tra reazioni che trasformano un attinide in un altro attinide, per assorbimento di uno o più neutroni seguito da decadimento radioattivo, oppure che trasformano un attinide in un prodotto di fissione con minore tempo di dimezzamento. Spesso viene utilizzato il termine di *fissione indiretta* per reazioni del tipo $\text{Pu-238}(n,\gamma)\text{Pu-239}$ perché viene generato un isotopo fissile e di *fissioni dirette* per reazioni che coinvolgono direttamente isotopi fissili come il Pu-239 stesso.

In letteratura viene utilizzato il termine di *efficienza di trasmutazione* per descrivere l'efficienza complessiva dell'intero ciclo del 'partitioning&transmutation'. Per indagini di tipo qualitativo come quella che ci proponiamo in questa sede è però analogamente conveniente restringere il campo di applicazione dello studio dell'efficienza di trasmutazione **alla frazio-**

ne di atomi trasformati in elementi con tempi di dimezzamento minori, considerando come unità di base un singolo ciclo di irraggiamento senza il riprocessamento. In questo modo l'efficienza di trasmutazione può essere studiata sia con applicazioni sperimentali sia con simulazioni al calcolatore.

Spesso, per semplicità, l'efficienza di trasmutazione viene studiata **in condizioni di regime**, senza considerare le maggiori perdite di efficienza alla partenza e allo spegnimento del reattore. Per una completa e chiara analisi del fattore di riduzione effettivamente raggiunto alla fine della vita del reattore, rispetto alla massa totale di attinidi caricata inizialmente, è infatti preferibile confrontare l'intero 'inventory' di rifiuti scaricati dal reattore lungo tutto l'arco della sua vita per non avere brutte sorprese in fase di stoccaggio definitivo nel deposito geologico profondo. Rimandiamo ad un possibile lavoro successivo quest'analisi più approfondita dell'efficienza di trasmutazione per un reattore sottocritico iniettato che comprenda tutta l'evoluzione temporale della vita di funzionamento dell'impianto, mentre qui ci limitiamo a considerare come unità di riferimento del tempo un singolo ciclo di 6.6 anni più 3 anni di decadimento, di cui andremo ad analizzare tre serie (non più cinque, come ipotizzato inizialmente per ottimizzare l'efficienza di trasmutazione, a causa della tempistica a cui è stato vincolato il lavoro di tesi); ricordiamo, però, che il calcolo delle concentrazioni e della radiotossicità di tutto il combustibile scaricato da un reattore PWR, nel corso dei quasi 60 anni di funzionamento previsto, è già stato da noi affrontato e presentato nei capitoli precedenti.

Entrando nei dettagli, efficienza di trasmutazione uguale a 1 significa che tutti gli atomi sono stati fissionati e che non è più necessario un ciclo successivo. In generale comunque la frazione di atomi pesanti fissionati in un bersaglio in un ciclo di irraggiamento può variare più realisticamente tra lo 0.8, con flusso termico, e lo 0.2 con flusso veloce. Per questo vanno previsti più step di irraggiamento, soprattutto per reattori con flusso veloce, caratterizzati ognuno da perdite legate al riprocessamento e al 'partitioning' del combustibile.

Il totale delle perdite complessive dipende necessariamente dal numero di cicli cui viene sottoposto il combustibile e necessariamente dall'efficienza di trasmutazione. Queste grandezze ed, in particolare, il valore delle perdite totali per ciclo e l'efficienza del 'partitioning&transmutation' saranno dunque:

$$\text{Perdite totali} = 1 - \varepsilon_{PT} = R(1 - \varepsilon_P)/M \quad (6.1)$$

e

$$\text{Efficienza di trasmutazione} = \varepsilon_{PT} = \frac{\varepsilon_T}{1 - (1 - \varepsilon_T)\varepsilon_P} \quad (6.2)$$

dove M indica la quantità di attinidi, $R\varepsilon_P$ è il numero di cicli dopo ‘partitioning’, ε_T è la resa di fissione (burn-up) e ε_P è l’efficienza del ‘partitioning’ [10].

Questa semplice relazione assume che le efficienze di ogni ciclo di P&T siano le stesse per ogni step. Se poi si considera che l’efficienza di trasmutazione sia 1, allora l’efficienza dell’intero processo sarà 1, cioè $\varepsilon_{PT} = 1$.

In realtà, l’efficienza del partitioning varia tra lo 0.98 e lo 0.999, in particolare per il plutonio. Nel caso dei reattori veloci, poi, ε_T varia tra lo 0.15 e lo 0.20 per ogni ciclo di irradiazione. Con neutroni termici la resa di trasmutazione è maggiore anche se l’economia neutronica è peggiore a causa degli assorbimenti maggiori. Per questo, in generale, per la trasmutazione degli attinidi si fa riferimento soprattutto a flussi veloci. In ogni caso, circa l’80% del combustibile deve essere riprocessato e sottoposto a partitioning per almeno, $R\varepsilon_P$, cioè cinque o sette volte. Per questo, cioè per non rendere vano il lavoro svolto durante l’irraggiamento, si richiede un rendimento del processo di ‘partitioning’ tra un ciclo ed il successivo di almeno il 99.8%.

E’ interessante avere come riferimento il dato che **un reattore dedicato alla trasmutazione di attinidi potrebbe, durante un anno di funzionamento alla potenza di 1 GWe, trasformare e fissionare fino ad una tonnellata di attinidi.**

In Europa con l’attuale parco reattori vengono prodotte ogni anno circa 3.2 tonnellate di MAs: basterebbero tre reattori dedicati, FR o ADS da circa 1 GWe, per soddisfare all’esigenza di ridurre i tempi di decadimento del combustibile nucleare. Se, invece, viene considerata più nel dettaglio la possibilità di implementare il ‘double strata scenario’ con l’utilizzo del plutonio come combustibile, e quindi con maggiore produzione di attinidi minori, allora la potenza installata necessaria alla trasmutazione sarà circa di 6 GWe.

Entrando nei dettagli dei principali isotopi coinvolti ricordiamo che l'irradiazione di attinidi porta alla formazione, molto spesso, di altri attinidi e se il tempo di dimezzamento dei nuovi prodotti è minore del tempo dei precedenti allora la radiotossicità del campione irradiato aumenta. Un esempio è il caso del Np-237 che porta alla generazione di Pu-238: questo comporta un aumento della radiotossicità complessiva che è proporzionale al rapporto tra i tempi di dimezzamento dei due isotopi.

Un altro esempio è dato dal Cm-244 con tempo di dimezzamento di 18.1 anni, generato in un combustibile sottoposto ad alto burn-up. Dopo circa dieci vite medie, 180 anni, quasi tutto il Cm-244 decade in Pu-240 con tempo di dimezzamento di 6560 anni. La trasmutazione del Cm-244 in Cm-245, con tempo di dimezzamento di 8500 anni, comporta un contributo alla radiotossicità leggermente inferiore a quello dato dal Pu-240. Questi esempi possono essere significativi della **necessità di supportare il programma di P&T per almeno 70-100 anni** qualora ne venisse ritenuta efficace la realizzazione, perché altrimenti invece di raggiungere un sostanziale equilibrio tra formazione e trasmutazione di isotopi transuranici si rischierebbe una moltiplicazione della radiotossicità complessiva dell' 'inventory' di rifiuti da inviare al deposito.

Per riuscire a comprendere l'evoluzione degli isotopi all'interno del combustibile di un reattore dedicato alla trasmutazione sottoposto a campi di flusso veloce è utile conoscere le catene di decadimento radioattivo che legano tra loro gli attinidi ed i loro figli. Per questo riportiamo in figura (6.1) ed in figura (6.2) le catene più importanti: $4n+1$ che coinvolge Cm-245, Pu-241, Am-241 e Np-237; $4n+3$ che comprende Cm-243 e il Pu-239; $4n$ che include il Cm-244 ed il Pu-240.

Esperienze di modellizzazione per lo studio della capacità di bruciamento di un reattore sottocritico iniettato sono state già condotte, per esempio, in seno al progetto MYRRHA. In particolare, è rilevante lo studio che considera l'evoluzione della composizione di una tipologia di combustibile a matrice inerte, composta per il 40% in volume di $(\text{Cm}_{0.1}\text{Am}_{0.5}\text{Pu}_{0.4})\text{O}_{1.88}$ e per il 60% da MgO e sottoposta a campi di flusso neutronico veloce dell'ordine di $\approx 3 \times 10^{15}$ n/(cm²s) [49]. La campagna di irraggiamento condotta in questo caso si compone di un totale di nove cicli di 90 'effective full power days' (EFPD), intervallati da 30 o 90 giorni dedicati a manutenzione e 'refuelling', per un tempo complessivo di 3 anni.

Alla fine dell'irraggiamento viene considerato anche il decadimento per due anni, necessari al raffreddamento prima del riprocessamento.

Quello che emerge da questa analisi è che durante tutto l'irraggiamento la percentuale di americio presente rispetto a quella iniziale continua a diminuire; rimane poi sostanzialmente costante allo shutdown del reattore. In particolare parte dell'americio viene bruciato dai neutroni, e parte genera curio a causa dell'effetto combinato dell'assorbimento e del decadimento β^- . Questo fenomeno, quantificato nello studio di E.Malambu et al.,2005 [49] per lo specifico caso, è di per sè di fondamentale importanza: il curio così generato, decadendo α , contribuisce alla formazione di nuovo plutonio.

L'accumulazione del Cm-242 e del Cm-244 è sostanziale, come mostrato dalle catena di decadimento riportata di seguito, a causa del maggior tempo di dimezzamento dell'Am-242 e dell'Am-244.

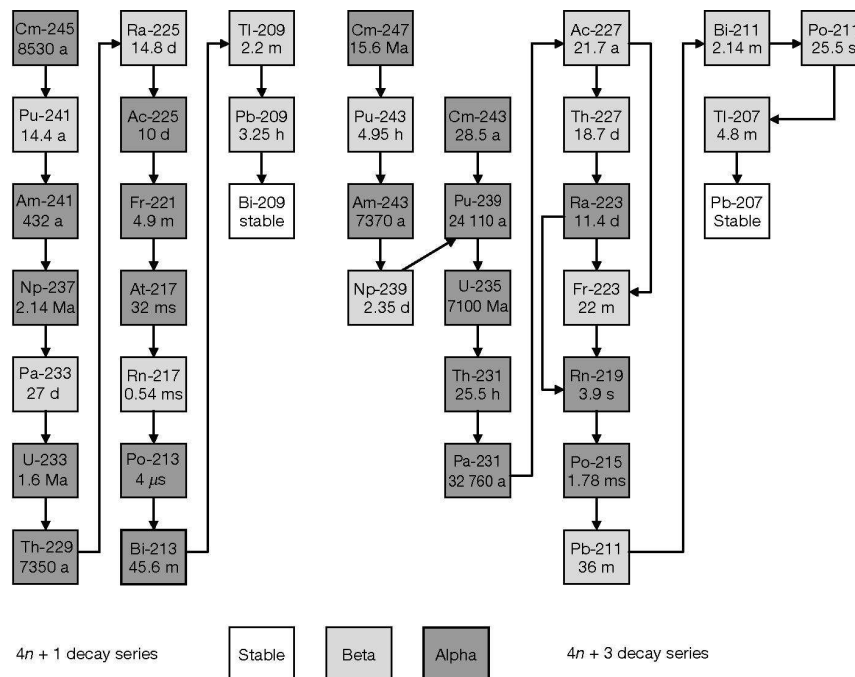
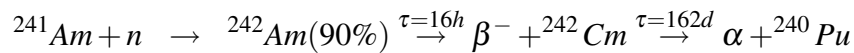


Figura 6.1: Serie di decadimento 4n+1, 4n+3

$$\dots \rightarrow {}^{242m}\text{Am}(10\%) \xrightarrow{\tau=141\text{y}} \dots \quad (6.3)$$

$${}^{243}\text{Am} + n \rightarrow {}^{244}\text{Am} \xrightarrow{\tau=10.1\text{h}} \beta^- + {}^{244}\text{Cm} \xrightarrow{\tau=18.1\text{y}} \alpha + {}^{240}\text{Pu} \quad (6.4)$$

Il dato che, quindi, emerge è che dopo un intero ciclo l'americio viene di media ridotto del 25%; il curio, invece, subisce un incremento della concentrazione fino al 27% prima del tempo di raffreddamento, ed arriva a ridursi fino a pochi punti percentuali (8-5%) dopo due anni di decadimento, come è riportato in evidenza in figura (6.3).

Per quanto riguarda il plutonio, poi, il decadimento del Cm-242 e del Cm-244 arricchisce la concentrazione degli isotopi fertili Pu-238 e Pu-240. Questo fenomeno aumenta il contenuto totale di plutonio durante lo spegnimento e lo stoccaggio intermedio del combustibile. Il Pu-238 viene prodotto da reazioni (n,2n) che accadono al Pu-239. In generale durante l'irraggiamento il decremento maggiore nella concentrazione del plutonio avviene per le fissioni del Pu-239 e Pu-241; e la loro massa è ridotta rispettivamente del 12% e del 14%. Va però

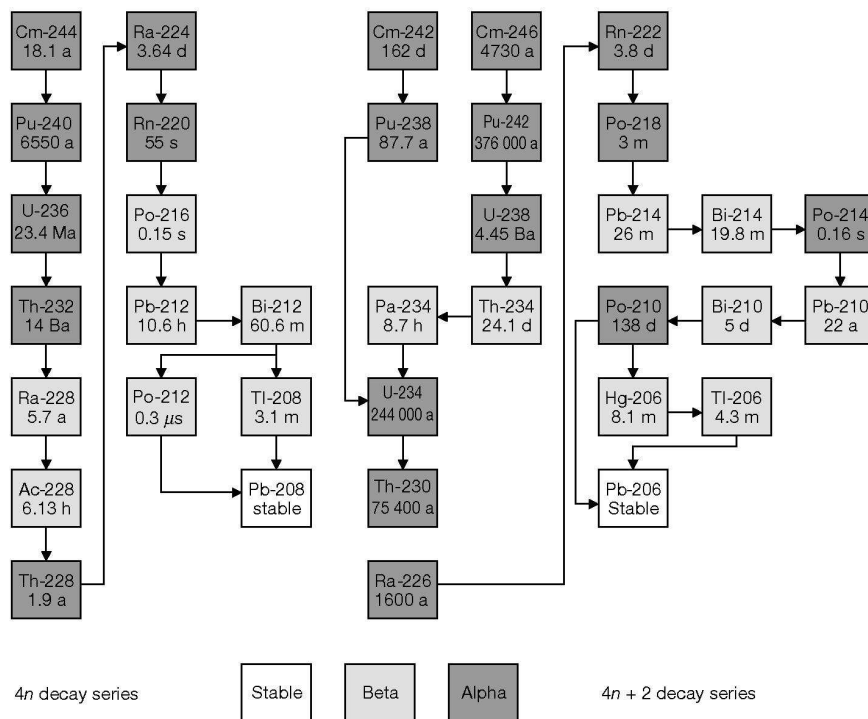


Figura 6.2: Serie di decadimento 4n, 4n+2

sottolineato che la qualità finale del plutonio è fortemente deteriorata e la massa complessiva viene ridotta, alla fine, solo di due o tre punti percentuali.

Per capire l'influenza delle reazioni di decadimento degli altri attinidi nella formazione di nuovi isotopi del plutonio è stata studiata l'evoluzione del combustibile nucleare esaurito per un anno dallo scarico dal reattore dopo aver ipotizzato di poterne eliminare il 100% del plutonio formatosi durante i 4.5 anni di irraggiamento nel reattore, e quindi valutandone per un anno la formazione dovuta solo al decadimento stesso: è stata riportata in figura(6.4) la radiotossicità del combustibile senza 100% di plutonio e in tabella (6.1) sono riportate le concentrazioni degli isotopi del plutonio a causa dei decadimenti dagli elementi vicini.

Con questa breve introduzione sui fenomeni principali che compongono la trasmutazione vera e propria, siamo in grado di comprendere parte dei risultati in uscita dal calcolatore che portano alla conoscenza della concentrazione residua dei radioisotopi coinvolti nella trasmutazione, in particolare, degli attinidi minori nel combustibile esaurito, e all'analisi dell'efficienza di trasmutazione.

E' particolarmente significativo a questo punto analizzare le curve ottenute dalla ricerca dell'andamento teorico atteso dell'efficienza di trasmutazione: parte del lavoro presentato,

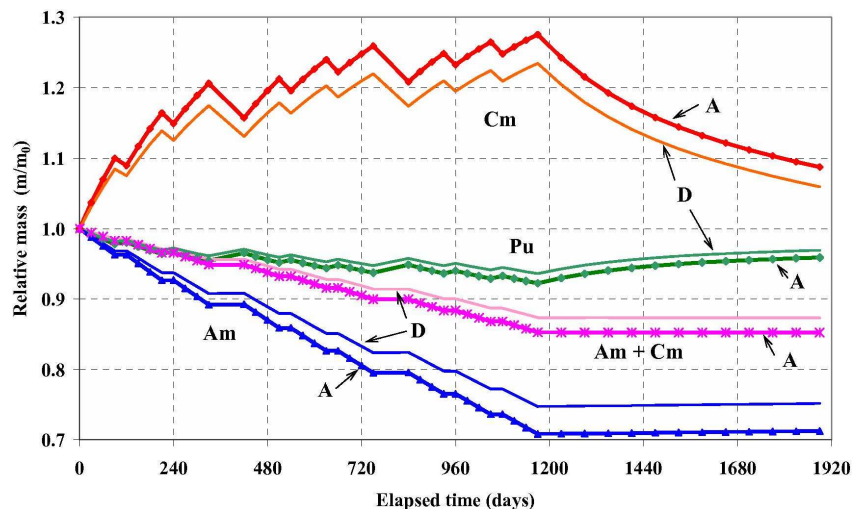


Figura 6.3: Andamento della concentrazione nel core del reattore Myrrha degli attinidi minori dove (A) corrisponde al materiale caricato nell'assembly più vicino alla sorgente di spallazione e (D) corrisponde al materiale caricato nell'assembly più lontano dalla sorgente di spallazione.

Isotopo	Concentrazioni g/cm ³			
	0 day	120 days	240 days	360 days
Pu-236	2.73E-08	2.53E-08	2.34E-08	2.16E-08
Pu-237	6.56E-09	1.06E-09	1.71E-10	2.76E-11
Pu-238	3.10E-03	3.20E-03	3.25E-03	3.28E-03
Pu-239	5.75E-02	5.83E-02	5.83E-02	5.83E-02
Pu-240	2.69E-02	2.69E-02	2.69E-02	2.69E-02
Pu-241	1.69E-02	1.67E-02	1.64E-02	1.62E-02
Pu-242	8.13E-03	8.13E-03	8.13E-03	8.13E-03
Pu-243	1.98E-06	4.05E-18	4.05E-18	4.05E-18
Pu-244	6.73E-07	6.73E-07	6.73E-07	6.73E-07
Pu-245	3.40E-11	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
Pu-246	2.42E-13	1.14E-16	5.38E-20	5.85E-22

Tabella 6.1: Concentrazione del Pu durante il primo anno di decadimento dovuto al contributo dei decadimenti degli attinidi minori.

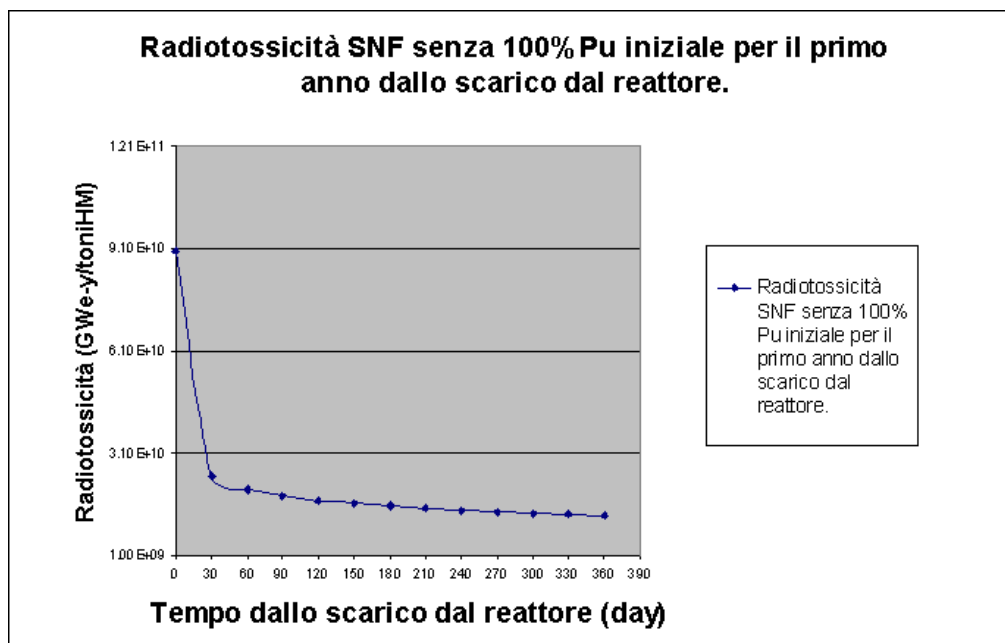


Figura 6.4: Radiotossicità del combustibile esaurito ipotizzando di separarne il 100% del plutonio iniziale, calcolata per il primo anno dallo scarico del reattore.

infatti, è stato finalizzato alla ricerca dell'influenza sul tempo per il raggiungimento del 'safe storage' della percentuale di attinidi minori potenzialmente eliminata dall'inVENTORY' del combustibile nucleare in uscita dal reattore ad acqua leggera di partenza (PWR), da cui è stato ottenuto il vettore isotopico in ingresso al core del reattore sottocritico considerato.

6.1.2 Effetto della trasmutazione sulla radiotossicità potenziale del combustibile nucleare

Per poter formulare giudizi e valutazioni obiettivi sui risultati attesi dalle simulazioni del reattore ADS industriale progettato sul modello EFIT, presentati nel paragrafo successivo, è stato necessario avanzare una serie di ipotesi comparative sulla resa di trasmutazione per valutarne l'effetto al fine della riduzione della radiotossicità complessiva dell'inVENTORY' nucleare e del tempo per il raggiungimento del 'safe storage'.

L'analisi degli effetti sulla curva di radiotossicità del combustibile esaurito della variazione della concentrazione di attinidi minori ipotizzata come effettivamente destinata al deposito geologico profondo sono stati affrontati con il supporto del codice ORIGEN 2.2, e prendendo come punto di partenza il vettore isotopico delle concentrazioni dei radioisotopi ottenute in uscita dal reattore di riferimento, un PWR da 50GWd/toniHM con fattore di carico dello 0.85, descritto nei dettagli al Capitolo 3.

Per simulare le diverse operazioni di 'partitioning&transmutation' che hanno portato a diversi valori di concentrazioni degli attinidi minori considerate, dal 99.9% al 30%, sono state cambiate ad hoc le concentrazioni, date in g/cm³, dei diversi isotopi oggetto di trasmutazione nel file di input del codice ORIGEN 2.2, come evidenziato nella figura (6.5).

Di conseguenza, sono stati poi costruiti i sette successivi file di input per un totale di 74 punti di decadimento, per ottenere la completa evoluzione temporale che su scala logaritmica corrisponde a un tempo di 10⁸ anni.

Gli isotopi di cui è stato studiato l'impatto sulla radiotossicità della variazione della concentrazione iniziale sono stati tutti quelli della famiglia del nettunio, dell'americio, del plutonio e del curio. Nel dettaglio sono presentati in tabella (6.2) alcuni dei valori di concentrazione sostituiti nei rispettivi file di input ORIGEN 2.2, con in evidenza i radioisotopi coinvolti in questo studio.

Isotopo	0.1%	5%	15%	30%	40%
Np-235	1.04E-13	5.18E-12	1.55E-11	3.11E-11	4.15E-11
Np-236	8.92E-12	4.46E-10	1.34E-09	2.67E-09	3.57E-09
Np-236*	2.53E-13	1.26E-11	3.79E-11	7.58E-11	1.01E-10
Np-237	6.75E-06	3.37E-04	1.01E-03	2.02E-03	2.70E-03
Np-238	1.93E-08	9.66E-07	2.90E-06	5.80E-06	7.73E-06
Np-239	7.97E-07	3.98E-05	1.20E-04	2.39E-04	3.19E-04
Np-240	2.12E-11	1.06E-09	3.19E-09	6.37E-09	8.50E-09
Np-240*	5.16E-13	2.58E-11	7.74E-11	1.55E-10	2.06E-10
Np-241	1.47E-21	7.36E-20	2.21E-19	4.42E-19	5.89E-19
Am-239	3.79E-18	1.89E-16	5.68E-16	1.14E-15	1.51E-15
Am-240	2.95E-14	1.47E-12	4.42E-12	8.84E-12	1.18E-11
Am-241	5.94E-07	2.97E-05	8.90E-05	1.78E-04	2.37E-04
Am-242	1.47E-09	7.37E-08	2.21E-07	4.42E-07	5.90E-07
Am-242*	2.05E-08	1.03E-06	3.08E-06	6.16E-06	8.21E-06
Am-243	2.02E-06	1.01E-04	3.03E-04	6.05E-04	8.07E-04
Am-244	8.88E-11	4.44E-09	1.33E-08	2.66E-08	3.55E-08
Am-244*	7.26E-11	3.63E-09	1.09E-08	2.18E-08	2.90E-08
Am-245	3.15E-14	1.57E-12	4.72E-12	9.44E-12	1.26E-11
Am-246	3.88E-19	1.94E-17	5.82E-17	1.16E-16	1.55E-16
Cm-241	1.47E-13	7.36E-12	2.21E-11	4.42E-11	5.89E-11
Cm-242	3.33E-07	1.66E-05	4.99E-05	9.98E-05	1.33E-04
Cm-243	6.55E-09	3.28E-07	9.83E-07	1.97E-06	2.62E-06
Cm-244	8.82E-07	4.41E-05	1.32E-04	2.65E-04	3.53E-04
Cm-245	6.36E-08	3.18E-06	9.54E-06	1.91E-05	2.54E-05
Cm-246	7.07E-09	3.53E-07	1.06E-06	2.12E-06	2.83E-06
Cm-247	1.14E-10	5.68E-09	1.71E-08	3.41E-08	4.55E-08
Cm-248	8.46E-12	4.23E-10	1.27E-09	2.54E-09	3.39E-09
Cm-249	1.17E-16	5.86E-15	1.76E-14	3.51E-14	4.69E-14
Cm-250	1.35E-18	6.75E-17	2.02E-16	4.05E-16	5.40E-16
Cm-251	7.94E-27	3.97E-25	1.19E-24	2.38E-24	3.17E-24

Tabella 6.2: Concentrazioni residue ipotizzate nel quantitativo da inviare al deposito geologico profondo in g/cm³.

Il punto di partenza è stato considerare l'efficienza delle diverse operazioni di separazione isotopica che vanno sotto il nome di 'partitioning' pari al 99.9% per il plutonio e tutti gli attinidi minori in generale. Questo significa che almeno lo 0.1% in peso degli isotopi considerati rimane nel materiale di partenza da destinare al deposito. Il plutonio, infatti, i

```

TTT ORIGIN INPUT FILE
LIP 0 0 0
LIB 0 1 2 3 701 702 703 9 3 0 4 0
PHO 101 102 103 10
OPTA 4*8 5 19*8
OPTF 4*8 5 19*8
OPTL 4*8 5 19*8
INP 1 1 0 0 1 1
BUP
DEC 1 1 2 5 2
.....
1 10010 3.35095E-08 10020 2.56309E-11 10030 1.63463E-17 20030 1.96845E-19
1 20040 4.64016E-05 20060 3.54882E-35 30060 6.24255E-23 30070 5.26743E-16
1 30080 7.62331E-28 40080 1.81076E-33 40100 1.79296E-09 40110 1.08108E-21
1 50100 2.37048E-16 50110 2.00631E-15 50120 8.26351E-30 60120 7.43918E-21
1 60130 1.50800E-04 60140 8.15273E-10 60150 2.02657E-24 70130 1.90992E-26
.....
2 892270 8.25352E-14 892280 1.02856E-16 902260 1.43479E-19 902270 3.16153E-16
2 902280 6.70042E-11 902290 1.99927E-11 902300 1.52167E-08 902310 1.69246E-11
2 902320 4.15282E-09 902330 8.53485E-15 902340 1.24479E-10 912310 5.82083E-09
2 912320 1.53381E-11 912330 2.31112E-10 912340 3.56831E-14 912341 4.29549E-15
2 912350 7.23108E-20 922300 1.39408E-16 922310 5.99915E-15 922320 1.05874E-08
2 922330 4.09050E-08 922340 1.39436E-03 922350 7.62613E-02 922360 5.38698E-02
2 922370 1.11481E-04 922380 8.59112E+00 922390 5.53850E-06 922400 3.78845E-11
2 922410 1.53329E-21 932350 5.18325E-12 932360 4.45759E-10 932361 1.26389E-11
2 932370 3.37430E-04 932380 9.66355E-07 932390 3.98486E-05 932400 1.06243E-09
2 932401 2.5811E-06 932410 7.35975E-20 942360 2.73356E-11 942370 6.55624E-12
2 942380 3.10177E-06 942390 5.75241E-05 942400 2.68864E-05 942410 1.69469E-05
2 942420 8.12824E-06 942430 1.98386E-09 942440 6.73035E-10 942450 3.39589E-14
2 942460 2.4237E-06 952390 1.89311E-16 952400 1.47386E-12 952410 2.96777E-05
2 952420 7.37260E-08 952421 1.02613E-06 952430 1.00838E-04 952440 4.44033E-09
2 952441 3.63071E-09 952450 1.57310E-12 952460 1.93960E-17 962410 7.35910E-12
2 962420 1.66290E-05 962430 3.27698E-07 962440 4.40903E-05 962450 3.17899E-06
2 962460 3.53314E-07 962470 5.68385E-09 962480 4.23213E-10 962490 5.85660E-15
2 962500 6.74585E-17 962510 3.96759E-25 972490 1.09477E-10 972500 1.76647E-13

```

Figura 6.5: Costruzione del file input di ORIGIN 2.2 per l'analisi dell'efficienza del 'partitioning&transmutation' nel caso di separazione ipotizzata del 99.9% di Pu e di bruciamento del 95% di attinidi minori

cui valori di concentrazione vengono tenuti costanti allo 0.1%, supposto come residuo minimo non separabile dal resto del combustibile da inviare al deposito geologico profondo, e riportati in tabella (6.3), non viene in questa sede considerato come un *rifiuto* da destinare al deposito ma come una risorsa combustibile, da impiegare preferibilmente per reattori dedicati sottocritici o critici veloci in uno scenario tipo ‘double strata’, come riportato nel Capitolo 2.

isotopo	0.1%
Pu-236	2.73E-11
Pu-237	6.56E-12
Pu-238	3.10E-06
Pu-239	5.75E-05
Pu-240	2.69E-05
Pu-241	1.69E-05
Pu-242	8.13E-06
Pu-243	1.98E-09
Pu-244	6.73E-10
Pu-245	3.40E-14
Pu-246	2.42E-16

Tabella 6.3: Concentrazioni residue ipotizzate inseparabili dal resto del combustibile nucleare da inviare al deposito geologico profondo di Pu allo 0.1% in g/cm³.

Gli effetti dell’influenza delle **rimanenze percentuali dopo il ‘partitioning’** degli isotopi a lunga vita sul tempo necessario al raggiungimento del ‘safe storage’ possono essere studiati confrontando tra loro i due grafici riportati in figura (6.6) e in figura (6.7): vi vengono rappresentati rispettivamente gli effetti dovuti alla possibilità di separare il 100% degli attinidi minori da destinare ai diversi processi di trasformazione e della possibilità più realistica di separarne il 99.9% ad ogni ciclo. Il risultato ottenuto, come è facile osservare, è molto simile in entrambi i casi e lascia ben prevedere che le perdite dell’ordine dello 0.1% in fase di ‘partitioning’ non rendano vani gli sforzi della trasmutazione.

E’ utile osservare come rimanga sostanzialmente invariato il tempo per il raggiungimento

del livello di riferimento e questo permette di considerare accettabile una resa di separazione del 99.9% per il successo del P&T, nonostante i numerosi cicli necessari al bruciamento di una adeguata percentuale di attinidi. Le curve che compaiono in figura (6.6) ed in figura (6.7) sono state costruite aggiungendo volta volta il contributo di un isotopo per apprezzarne il contributo in termini di radiotossicità del combustibile rimanente inviato al deposito. In entrambi i grafici lo studio viene completato con il contributo del nettunio, dell'americio e del curio.

In questo studio è stato pensato, infatti, di considerare come attinidi minori, destinati alla trasmutazione in un reattore critico o sottocritico dedicato, sia gli isotopi del nettunio, sia gli isotopi dell'americio e sia gli isotopi del curio. Il perché di questa scelta risiede nella volontà di avere uno spettro di indagine della capacità di trasmutazione di un reattore ADS industriale il più ampio possibile, quindi rivolto a tutti gli attinidi minori. In realtà esistono in letteratura numerosi esempi di progetti di reattori veloci alimentati con combustibile ad

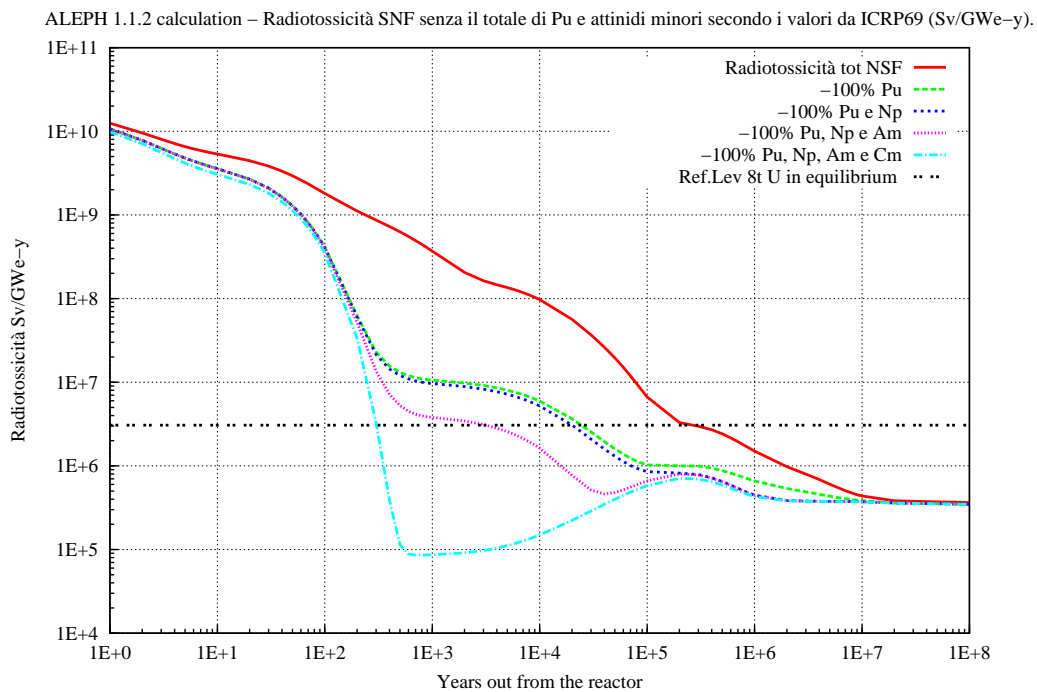


Figura 6.6: Valori i radiotossicità del combustibile esaurito immaginando di riuscire a separare dal resto dei rifiuti destinati al deposito il 100% del Pu e degli attinidi minori

ossidi misti caricati con Np, Am e Cm; però conosciamo nei dettagli l'esistenza di un'altra possibilità spesso adottata: quella di non considerare la trasmutazione del nettunio perché non particolarmente influente nel computo della radiotossicità totale.

La possibilità di non considerare la trasmutazione del curio, invece, nonostante le note difficoltà tecnologiche legate alla separazione e al riprocessamento dello stesso a causa della sua pericolosità e dell'elevato calore di decadimento, non viene preso molto in considerazione perché ancora più importante è la difficoltà di separarlo chimicamente dall'americio.

Nell'ipotesi progettuale avanzata nel contesto dell'intero lavoro sul possibile core di EFIT abbiamo, proprio per questo, preferito prendere in considerazione tutti gli isotopi possibili per la trasmutazione e li abbiamo affiancati in parti uguali alla percentuale in peso di plutonio minima necessaria a raggiungere il valore di κ_{eff} stabilito a priori.

Tutto questo servirà a stabilire in modo più completo quale sia, poi, **la concentrazione minima di isotopi a lunga vita trasmutati** in isotopi con tempi di dimezzamento infe-

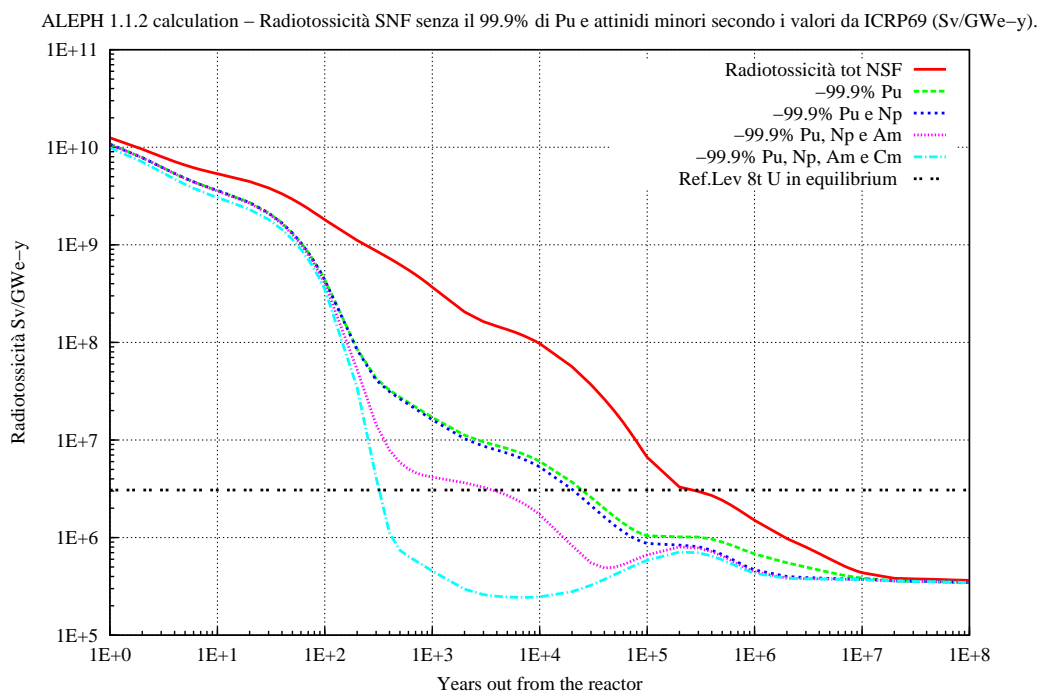


Figura 6.7: Valori di radiotossicità del combustibile esaurito separando, dal resto dei rifiuti destinati al deposito, il 99.9% del Pu e alcune combinazioni di attinidi minori.

riore per poter raggiungere l'efficienza necessaria a decretare valida la scelta del 'partitioning&transmutation': da un punto di vista puramente teorico è quanto verrà presentato nelle righe seguenti; per i risultati reali, relativi al nostro progetto di core EFIT, rimandiamo la discussione ai paragrafi successivi.

Di seguito verranno evidenziati gli effetti sulla radiotossicità del combustibile esaurito, andando a studiare l'evoluzione del tempo necessario a raggiungere il 'reference level' al variare della concentrazione residua di attinidi minori, mantenendo però costante la presenza di plutonio allo 0.1% in peso sul totale.

Destinare tutto il combustibile nucleare al deposito geologico profondo prevede tempi per il raggiungimento del 'safe storage' maggiori di 2×10^5 anni; separare solo il plutonio dal resto del combustibile porta, per valori di efficienza del 'partitioning' del 99.9%, a tempi dell'ordine di $2-3 \times 10^4$ anni.

Se si aggiunge, poi, la trasmutazione degli attinidi minori, nettunio, americio e curio, tra il 99.9% ed il 91% il risultato ottenuto è quello riportato in figura (6.8). Nonostante una resa sufficientemente elevata del processo di trasmutazione, entro valori del 90% totali, il tempo teorizzato per il raggiungimento del 'safe storage' passa dai **300** anni, corrispondenti al caso della separazione del 99.9% degli attinidi minori e del plutonio, all'ordine dei **500** anni.

Per valori dell'efficienza di trasmutazione più ridotti i risultati ottenuti iniziano a far compromettere sensibilmente il tempo per il raggiungimento del livello di riferimento e, come riportato in figura (6.9), passando da valori dell'89% a valori dell'80% la differenza è notevolmente marcata: per valori residui di attinidi minori da inviare al deposito dell'11% si arriva ad un tempo di circa **900** anni per il raggiungimento del 'safe storage'; per percentuali ancora più basse cioè per valori residui del 15% e del 20% vengono toccati e superati i **mille** anni.

Ancora un sostanziale aumento del tempo necessario al raggiungimento del 'reference level' è riportato in figura (6.10), dove sono graficati gli andamenti della radiotossicità nel caso che l'efficienza di trasmutazione sia dell'ordine rispettivamente del 79%, del 73% e del 60%.

Per poter supportare la strategia del 'partitioning&transmutation' pensiamo sia necessario guadagnare almeno un ordine di grandezza rispetto alla scelta di separare solo il plutonio

al 99.9% che a sua volta già guadagna rispetto a quella di mandare tutti i rifiuti al deposito geologico profondo un ordine di grandezza: la ricerca di un simile risultato ha portato l'analisi a focalizzarsi su di un valore di concentrazione residua degli attinidi minori intorno al 73%, fermo restando la resa di separazione del plutonio al 99.9%, come riportato in figura (6.11).

Per concludere, in figura(6.12) viene presentato il risultato dell'efficienza di trasmutazione come la trattazione teorica del tempo necessario al raggiungimento livello di radiotossicità di riferimento in funzione della percentuale effettivamente trasmutata di attinidi minori in isotopi dal tempo di decadimento minore. In particolare quella presentata è la curva temporale del combustibile cui è già stato tolto il 99.9% di Pu.

L'andamento della curva ottenuta per accostamento di 12 punti successivi; dal 60% in poi è riassumibile in due tratti di retta su scala temporale logaritmica. Il valore della curva allo

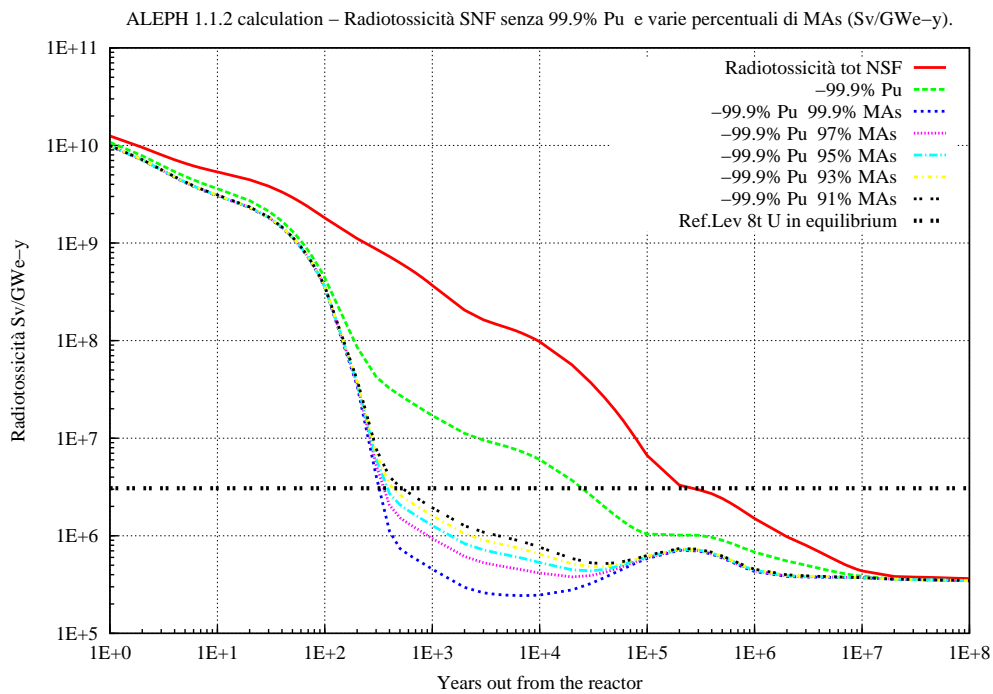


Figura 6.8: Valori di radiotossicità del combustibile esaurito immaginando di riuscire a separare dal resto dei rifiuti destinati al deposito il 99.9% del Pu e rispettivamente il 97%, il 95%, il 93% ed il 91% degli attinidi minori.

0% di trasmutazione corrisponde al valore del tempo necessario per raggiungere il ‘reference level’ in caso di aver però separato quasi tutto il plutonio, al 99.9%. Nella tabella (6.4) sono riportati i valori del tempo necessario a raggiungere la radiotossicità dell’uranio naturale in equilibrio ‘reference level’ per diverse composizioni del combustibile nucleare da inviare al deposito profondo. Tali dati sono stati utilizzati per costruire il grafico di figura (6.12)

A questo punto dopo aver descritto dettagliatamente, nel capitolo precedente, gli aspetti generali relativi alla modellizzazione del core di un ADS industriale e aver studiato nel dettaglio l’andamento delle curve di radiotossicità inerenti al ‘partitioning teorico’, si entrerà più nel dettaglio delle scelte fatte in materia di ottimizzazione di alcuni parametri geometrici relativi al core di un ADS, quali la determinazione del numero di assembly scelto per il raggiungimento del k_{eff} voluto e la determinazione della composizione isotopica assunta come primo tentativo nella valutazione della capacità di bruciamento di un ADS industriale.

Particolare attenzione verrà data all’elaborazione dei risultati ottenuti a seguito di un pe-

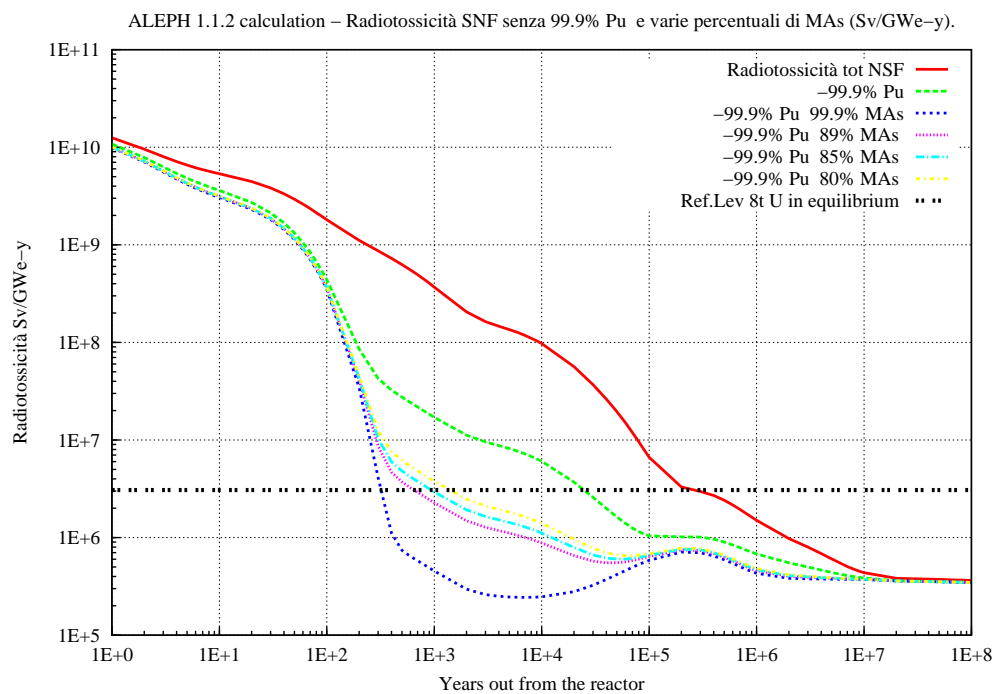


Figura 6.9: Valori di radiotossicità del combustibile esaurito immaginando di riuscire a separare dal resto dei rifiuti destinati al deposito il 99.9% del Pu e rispettivamente l’89%, l’85% e l’80% degli attinidi minori.

Composizione	Tempo (anni)
Tot SNF	250000
-99.9% Pu	25000
-99.9% Pu -30% MAs	20000
-99.9% Pu -60% MAs	7000
-99.9% Pu -70% MAs	3000
-99.9% Pu -73% MAs	2500
-99.9% Pu -80% MAs	1500
-99.9% Pu -85% MAs	950
-99.9% Pu -89% MAs	650
-99.9% Pu -91% MAs	500
-99.9% Pu -93% MAs	450
-99.9% Pu -95% MAs	300
-99.9% Pu -97% MAs	350
-99.9% Pu -99.9% MAs	300

Tabella 6.4: Valori del tempo necessario a raggiungere la radiotossicità dell'uranio naturale in equilibrio (RL) per diverse composizioni del combustibile nucleare da inviare al deposito profondo.

riodo di irraggiamento (in questa sede, 3 cicli da circa 6.6 anni ciascuno) all'interno dell'ADS industriale descritto nella modellizzazione.

6.2 Determinazione della composizione isotopica del combustibile per l'ADS industriale (EFIT)

Dopo le considerazioni teoriche svolte in precedenza sulle trasmutazioni possibili e sul modello per MCNPX dell'ADS industriale (EFIT), è necessario aggiungere la descrizione del materiale che costituisce il combustibile. La scelta è ricaduta nell'utilizzo di un combustibile ad ossidi misti di plutonio, nettunio, americio e curio inserito all'interno di una matrice inerte di ossido di magnesio (MgO). La scelta delle composizioni relative di attinidi minori da inserire all'interno del combustibile è stata stabilita sulla base della conoscenza delle fra-

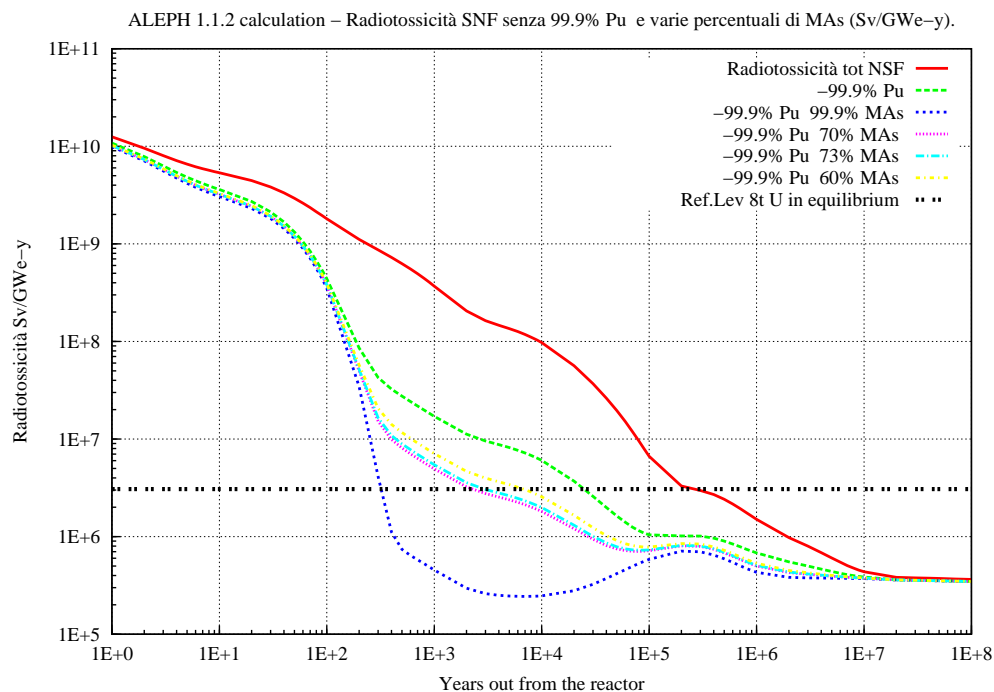


Figura 6.10: Valori di radiotossicità del combustibile esaurito immaginando di riuscire a separare dal resto dei rifiuti destinati al deposito il 99.9% del Pu e rispettivamente il 70%, il 73% e il 60% degli attinidi minori.

zioni relative degli isotopi all'interno del combustibile esaurito a seguito di accumulazione durante i 58.5 anni di vita considerati per l'impianto (strategia PLEX). Nel Capitolo 3 (par. 3.4) è stato spiegato più nel dettaglio proprio il calcolo fatto per l'accumulazione dello SNF per un reattore PWR da 1000 MWe evidenziando l'arricchimento in americio che subisce il combustibile accumulato in rispetto di quello estratto da un singolo ciclo di irraggiamento.

In questo studio però non è stata presa in considerazione la composizione raggiunta allo scarico dell'ultimo 'batch', cioè dopo 58.5 anni da inizio vita del reattore, ma sono stati considerati anche 20 anni di decadimento per l'ultimo batch che esce dal reattore, ottenendo una composizione leggermente differente da quella presentata nel Capitolo 3.

A partire dalla composizione degli isotopi del plutonio, del nettunio, dell'americio e del curio sono state calcolate le frazioni in peso (%wt.) e le frazioni atomiche (%at.), entrambe importanti nello svolgimento dei calcoli. In aggiunta ad esse sono state calcolate frazioni atomiche e in peso per il magnesio e l'ossigeno considerando gli isotopi stabili presenti in

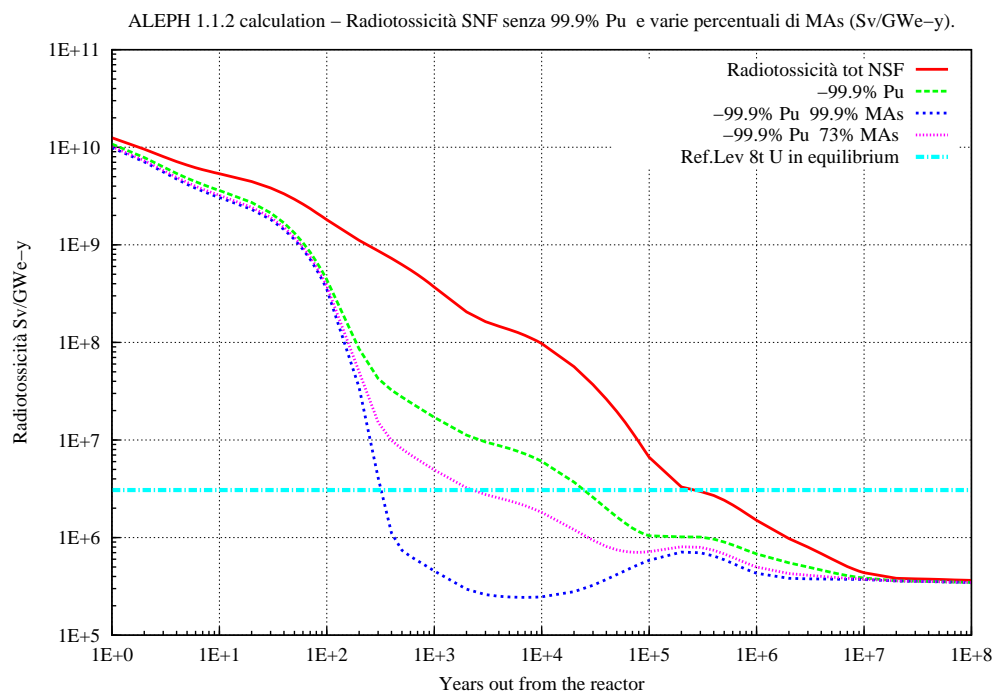


Figura 6.11: Ricerca di un possibile sufficiente valore di radiotossicità del combustibile esaurito da inviare al deposito geologico profondo dopo una parziale trasmutazione degli attinidi minori.

natura (tabella (6.5)).

In particolare sono state calcolate le frazioni relative di Np, Am e Cm sul totale degli attinidi minori (MA), risultando:

- $Np/MA=0.315$
- $Am/MA=0.675$
- $Cm/MA=0.010$

tali frazioni devono rimanere costanti all'interno del combustibile, perché vogliamo che non ci sia sproporzione fra quello che viene inserito nell'ADS e quello che si continua a produrre dai reattori ad acqua leggera, o che è stato stoccato, nell'ipotesi di inserire uno o più ADS industriali all'interno di un parco macchine esistente che utilizza LWRs per la produzione elettrica ed il sostentamento del paese .

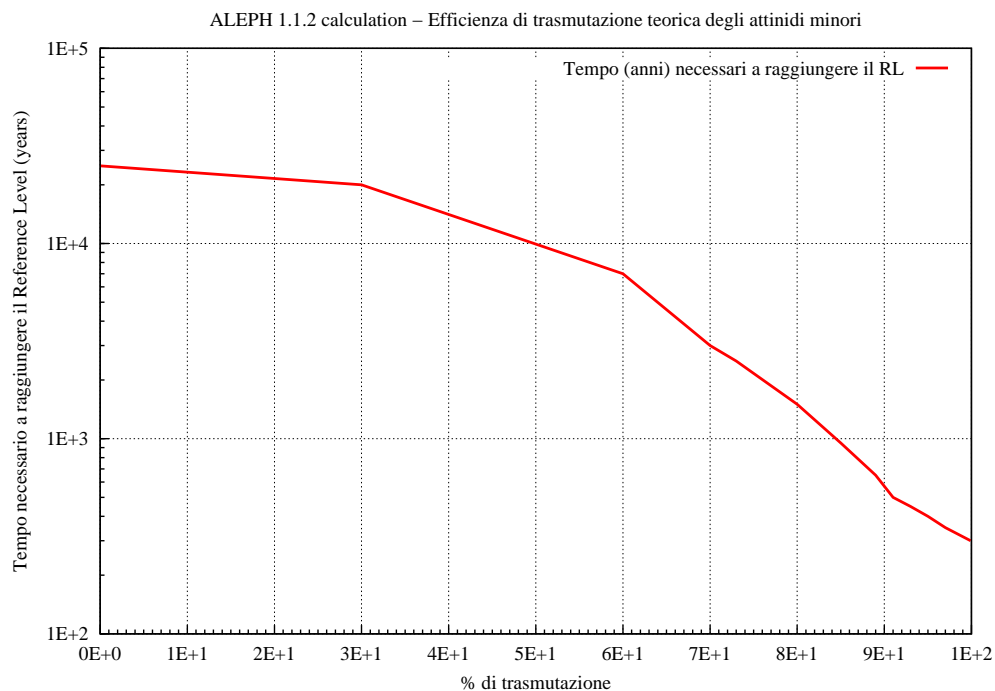


Figura 6.12: Efficienza di trasmutazione teorica in anni necessari per il raggiungimento della radiotossicità del livello di riferimento, una volta estratto il combustibile dal reattore e separato il 99.9% di Pu, in funzione della capacità percentuale di trasmutazione degli attinidi minori.

Isotopi del Magnesio	%at.	%wt.
Mg-24	78.99	77.95
Mg-25	10.00	10.28
Mg-26	11.01	11.77
Isotopi dell'Ossigeno	%at.	%wt.
O-16	99.76	99.733
O-17	0.04	0.042
O-18	0.20	0.225

Tabella 6.5: Composizioni isotopiche del magnesio e dell'ossigeno considerate all'interno della composizione del combustibile da noi trattata

Una volta noti questi valori è possibile calcolare in modo agevole le frazioni effettivamente presenti nel combustibile dei tre attinidi, al variare del parametro 'libero' cioè della composizione di plutonio scelta.

Avendo deciso di non considerare la frazione relativa al solo 'fuel', ma quella complessiva sul totale del combustibile, è necessario considerare la presenza della matrice inerte MgO che ingloba gli ossidi di plutonio, americio, curio e nettunio. In particolare è stata considerata, come primo valore di tentativo, una frazione del 50% in volume di matrice inerte ed il restante 50% di combustibile.

Una volta stabiliti questi parametri è necessario andare a determinare la composizione dei vari elementi presenti nella miscela. Si parte dalla conoscenza della composizione stechiometrica degli ossidi presenti nel combustibile e dalle relative densità teoriche, per poi cambiarla in una composizione non stechiometrica facendo l'ipotesi che i parametri di reticolo rimangano invariati per avere una maggiore stabilità degli ossidi (tabella (6.6)). I valori della densità nel caso non stechiometrico sono calcolati a partire dalla densità del caso stechiometrico, nota, moltiplicata per un opportuno coefficiente di pesatura che tiene conto della variazione del rapporto fra gli elementi.

Nota la densità in g/cm^3 nel caso non stechiometrico e la massa molare in g/mol di ogni ossido è possibile ricondurci al calcolo del *volume molare* relativo all'ossido. Fatta poi l'ipotesi di una miscela solida ideale con spots interni di combustibile e note le frazioni

Rapporto stechiometrico		Rapporto non stechiometrico	
ossidi	densità teorica	ossidi	densità teorica
NpO ₂	11.10	NpO _{1.88}	11.0208
PuO ₂	11.46	PuO _{1.88}	11.3790
AmO ₂	11.68	AmO _{1.88}	11.5979
CmO ₂	11.68	CmO _{1.88}	11.5989

Tabella 6.6: Densità teoriche degli ossidi di Pu e MAs sia nel caso di rapporto stechiometrico che nel caso di rapporto non stechiometrico

atomiche dei vari elementi è possibile calcolare la densità parziale (g/cm³) di ogni ossido. Nota anche la densità della matrice MgO (3.581 g/cm³) ed i rapporti in volume di matrice e combustibile (50%MgO e 50% fuel) si arriva a determinare la densità parziale di ogni elemento (Np, Pu, Am, Cm, O, Mg) nella miscela globale. Per ottenere i valori per noi utili è sufficiente fissare ora la *porosità* e calcolare dunque le relative densità. Nel nostro caso è stata fissata una porosità di 0.1, che porta ad una densità finale della miscela al 90% della densità teorica.

La conoscenza delle densità parziali di ogni elemento ci permette di ricavare le densità per ogni isotopo facendo una semplice moltiplicazione della densità parziale ottenuta per la frazione in peso calcolata, sulla base della composizione accumulata, per ogni isotopo dell'elemento considerato. Portando ad avere un vettore isotopico da inserire come materiale specifico per il combustibile all'interno dell'input Montecarlo.

E' bene esplicitare più chiaramente che nella nostra valutazione è stato considerato il plutonio di prima generazione, cioè quello direttamente estratto dai reattori ad acqua leggera, con l'ipotesi dell'accumulo durante un'intera vita di un reattore, e non il plutonio di seconda generazione, proveniente cioè dopo il bruciamento dei MOX nei reattori termici, perché come già evidenziato è stato preso a riferimento il caso belga dove non si ha un così grande contributo del plutonio di seconda generazione dato che i MOX sono stati inseriti solo in 2 dei 7 reattori e solo per un periodo di tempo limitato (1995-2005) portando dunque ad un contributo poco significativo.

Per ora abbiamo descritto quali sono i modi ed i metodi per calcolare la composizione.

Tutto il procedimento sopra descritto è stato strutturato all'interno di un foglio di calcolo Excel che permette la determinazione della composizione finale del combustibile (MgO+Fuel) imponendo la possibilità di variare la frazione atomica di plutonio da inserire all'interno del combustibile, la frazione in volume di matrice inerte e la porosità del materiale. La variazione di questi tre parametri nel foglio di calcolo permette un'uscita diretta della composizione voluta. Nel nostro caso abbiamo fissato la frazione in volume di matrice e la porosità e abbiamo fatto variare solo la frazione atomica di plutonio per trovarne il valore minimo per avere $k_{eff}=0.97$.

A tal scopo sono stati condotti vari calcoli MCNPX suddivisibili in due tipi: reticolo infinito formato da solo fuel e core finito con geometria descritta precedentemente. Queste due tipologie di calcolo verranno illustrate più nel dettaglio qui di seguito.

6.2.1 Determinazione della quantità di plutonio minima con reticolo infinito

Va subito precisato che i calcoli eseguiti considerando un reticolo infinito, hanno solo lo scopo di fornire un'indicazione, per un più rapido svolgimento dei calcoli successivi, rispetto al valore della concentrazione minima di plutonio necessaria al raggiungimento del valore di k_{eff} voluto. Essi sono stati fatti anche allo scopo di fornire un'idea più precisa del contributo delle perdite dovute alle fughe di neutroni dal sistema.

Per implementare questi calcoli è stata usata la geometria della cella elementare semplificata, barretta più refrigerante abbinato, descritta già precedentemente nel Paragrafo 5.2.1. La scelta fatta per le superfici laterali del prisma esagonale è stata quella di considerarlo composto da 6 piani, in modo da creare un reticolo infinito grazie all'utilizzo di condizioni di periodicità.

Per fare un calcolo MCNPX per la valutazione del k_{eff} è necessario usare l'opzione KCODE cioè fissare a priori il valore del k_{eff} che si vuole raggiungere e definire in modo adeguato la sorgente di neutroni sia energeticamente che spazialmente. Altri parametri che è necessario stabilire sono il numero di *cicli totali* ed il numero di *cicli inattivi*, cioè rispettivamente il numero di iterazioni totali ed il numero di iterazioni utili al Montecarlo per creare in modo più adeguato la sorgente neutronica ma tali da non tenerne in memoria i risultati

per la valutazione del k_{eff} medio, perché potrebbero portare ad errori a causa della grande variabilità dei primi cicli.

E' stato scelto di eseguire un calcolo di criticità, con la ricerca della soluzione stazionaria dell'equazione ($K\Phi = \frac{i}{k}F\Phi$), anche per questo caso di reattore sottocritico (con sorgente fissa) proprio per verificare che con la composizione di combustibile scelta il reattore risulti essere sottocritico cioè con $k_{eff}<1$, condizione indispensabile da verificare a seguito della scelta del tipo di reattore.

Per fare questo tipo di calcolo è necessario fissare anche il numero di particelle simulate, utili nella creazione della sorgente di partenza.

In particolare sono state fatti calcoli con:

- 1000 particelle simulate,
- $k_{eff}=0.97$,
- 50 cicli inattivi,
- 350 cicli totali,

tale scelta è stata necessaria per ridurre i tempi di calcolo del Montecarlo e velocizzare questa fase di valutazione della composizione in plutonio; con tali parametri per ogni calcolo si ha una spesa di tempo di circa 1 ora. In particolare sono stati fatti calcoli con composizioni isotopiche del combustibile con vari arricchimenti di plutonio (0%at., 22%at., 23%at., 24%at., 30%at. e 40%at.). Per arrivare ad ottenere un valore di $k_{eff}=0.97$ l'arricchimento in plutonio è di 22.3%at. considerando una frazione in volume del 'fuel' del 50% sul totale (fuel+MgO). In tabella (6.7) sono riportati le varie concentrazioni di plutonio, i relativi valori del keff e l'errore valutato nel calcolo.

Grazie a questa prima stima, utilizzata anche per la semplicità geometrica che il calcolo comportava abbiamo avuto il punto di partenza per il calcolo generale con la struttura del core complessa.

% atomica di Pu	k_{eff}	deviazione standard
0%	0.65219	0.00091
22%	0.96884	0.00084
22.3%	0.97182	0.00087
23%	0.98187	0.00088
24%	0.99806	0.00087
30%	1.08469	0.00083
40%	1.23222	0.00087

Tabella 6.7: Valori del k_{eff} ottenuti al variare della composizione di plutonio inserita per un reticolo infinito

6.2.2 Determinazione della quantità di plutonio minima con core finito

A questo punto nota la composizione in plutonio, e dunque degli altri attinidi minori, che porta a un k_{eff} di 0.97 in un reticolo infinito, è necessario andare a determinare la composizione isotopica necessaria quando si considera un core finito. I calcoli in tale direzione sono stati eseguiti utilizzando il modello MCNPX di core dell'ADS industriale descritto precedentemente. Un dato particolarmente interessante da notare è il numero di 'assemblies' considerati, perché è un parametro sul quale si è agito per minimizzare il plutonio necessario al raggiungimento del k_{eff} , nell'ottica di considerare il plutonio come un combustibile utile e non come un rifiuto. In particolare preliminarmente sono stati considerati 264 elementi di combustibile per poi passare nella forma definitiva a 324 'assemblies'. Ma andiamo per ordine e riportiamo i valori del k_{eff} ottenuti dai calcoli inerenti a 264 'assemblies'.

Anche in questo caso è stata usata l'opzione KCODE, considerando la frazione del 50% in volume sul totale e la composizione del 22.3%at. determinata per il caso di core infinito, si è ottenuto un valore del k_{eff} di 0.79065 (con standard deviation di 0.00025). Questo fatto indica il grande contributo delle fughe di neutroni.

Per raggiungere il $k_{eff}=0.97$ è stato necessario aumentare la frazione atomica di plutonio presente nel core; in particolare sono state considerate le composizioni di 35%at. e di 40%at..

- il 35%at. in Pu con 264 elementi di combustibile porta a un k_{eff} di 0.93957 ($\sigma = 0.00143$)

- il 40%at. in Pu con 264 elementi di combustibile porta a un k_{eff} di 1.00188 ($\sigma = 0.00154$)

Alla luce dei dati ottenuti si è pensato di svolgere un ulteriore calcolo con una composizione del 37%at. di plutonio ottenendo un valore per il k_{eff} del 0.96194 con $\sigma = 0.00105$, che non risulta essere ancora pari al valore da noi voluto. Volendo minimizzare la concentrazione di plutonio da inserire negli ‘assemblies’ a questo punto si è pensato di andare ad ingrandire il core aggiungendo esternamente tutto un anello di elementi di combustibile (60 elementi aggiunti) che porta ad un totale di 324 elementi. Questa scelta oltre a cercare di minimizzare il plutonio presente, mira anche a sottolineare ulteriormente il contributo delle fughe in direzione radiale. In realtà non ci aspettiamo un contributo così sostanziale perché questo anello di ‘assemblies’ è sufficientemente lontano dalla sorgente di spallazione messa al centro del reattore, infatti si troverebbero ad una distanza di circa 1.495 m.

Per vedere tale contributo sono stati ripetuti i calcoli per 35%at., 37%at. e 40%at. per un nocciolo con 324 elementi, ed i risultati sono riportati in tabella (6.8).

% atomica di Pu	k_{eff}	deviazione standard
35%	0.94522	0.00104
37%	0.96902	0.00109
40%	1.00688	0.00106

Tabella 6.8: Valori del k_{eff} ottenuti al variare della composizione di plutonio inserita per un nocciolo con 324 elementi di combustibile

Alla luce di questi calcoli eseguiti con il solito standard (1000 particelle, 50 cicli inattivi e 250 cicli totali) si è stabilito di considerare per le successive analisi:

- core con 324 ‘assemblies’,
- frazione atomica di plutonio pari a 37%, con combustibile al 50% in volume di fuel e 50% in volume di MgO.

In tabella (6.9) si riporta la composizione isotopica ottenuta con il procedimento sopra presentato, avendo ora determinato la frazione di plutonio.

Isotopo		composizione (g/cm ³)	Isotopo		composizione (g/cm ³)
932350	<i>Np</i> ₂₃₅	1.389635E-15	952430	<i>Am</i> ₂₄₃	2.361026E-01
932360	<i>Np</i> ₂₃₆	1.046686E-06	952440	<i>Am</i> ₂₄₄	0.000000E+00
932361	<i>Np</i> _{236m}	0.000000E+00	952441	<i>Am</i> _{244m}	0.000000E+00
932370	<i>Np</i> ₂₃₇	9.054779E-01	962410	<i>Cm</i> ₂₄₁	0.000000E+00
932380	<i>Np</i> ₂₃₈	3.621712E-10	962420	<i>Cm</i> ₂₄₂	4.672019E-06
932390	<i>Np</i> ₂₃₉	2.029026E-07	962430	<i>Cm</i> ₂₄₃	2.536297E-04
942360	<i>Pu</i> ₂₃₆	2.976597E-10	962440	<i>Cm</i> ₂₄₄	1.941829E-02
942370	<i>Pu</i> ₂₃₇	0.000000E+00	962450	<i>Cm</i> ₂₄₅	7.439171E-03
942380	<i>Pu</i> ₂₃₈	3.932439E-02	962460	<i>Cm</i> ₂₄₆	8.241835E-04
942390	<i>Pu</i> ₂₃₉	9.981666E-01	962470	<i>Cm</i> ₂₄₇	1.339246E-05
942400	<i>Pu</i> ₂₄₀	4.702933E-01	962480	<i>Cm</i> ₂₄₈	9.950574E-07
942410	<i>Pu</i> ₂₄₁	3.756415E-02	962490	<i>Cm</i> ₂₄₉	0.000000E+00
942420	<i>Pu</i> ₂₄₂	1.392814E-01	962500	<i>Cm</i> ₂₅₀	1.584756E-13
942430	<i>Pu</i> ₂₄₃	6.962787E-17	24Mg	<i>Mg</i> ₂₄	7.574906E-01
942440	<i>Pu</i> ₂₄₄	1.152969E-05	25Mg	<i>Mg</i> ₂₅	9.989840E-02
942460	<i>Pu</i> ₂₄₆	9.705929E-21	26Mg	<i>Mg</i> ₂₆	1.143759E-01
952410	<i>Am</i> ₂₄₁	1.701461E+00	16 O	<i>O</i> ₁₆	1.208031E+00
952420	<i>Am</i> ₂₄₂	2.310626E-08	17 O	<i>O</i> ₁₇	5.147857E-04
952421	<i>Am</i> _{242m}	1.931617E-03			

Tabella 6.9: Composizione isotopica del combustibile utilizzata nei calcoli MCNPX con 37%at. di plutonio di prima generazione

Il vettore precedentemente riportato è quello che è stato utilizzato all'interno del codice di calcolo, depurato di alcuni isotopi (quale ad esempio l'isotopo 18 dell'ossigeno) perché non presenti all'interno delle librerie JEFF 3.1 utilizzate per lo svolgimento di questi calcoli.

La densità totale del combustibile ottenuta con questa configurazione isotopica è di 6.7379 g/cm³ comprensiva anche della matrice inerte MgO.

Nota ora la composizione è stato ripetuto il calcolo aumentando sia il numero di particelle che il numero di cicli attivi considerati. Infatti sono state considerate 30000 particelle, 50 cicli inattivi e 350 cicli totali, per diminuire la 'standard deviation σ '. In particolare il calcolo ha richiesto un tempo di 3119.43 minuti, pari a circa 52 ore, che comparato con l'ordine di grandezza dei tempi di calcolo fino ad ora utilizzati (1 ora) risulta effettivamente molto grande. Tale calcolo ha portato ad avere un valore del k_{eff} calcolato pari a 0.97147 con deviazione standard di $\sigma=0.00016$. In figura (6.13) si riporta l'andamento del k_{eff} calcolato nei vari cicli.

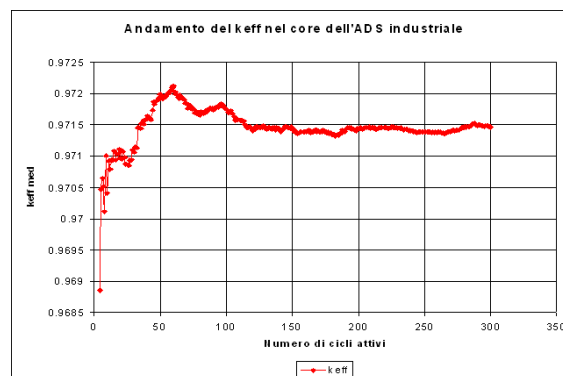


Figura 6.13: Andamento del k_{eff} al variare del numero di cicli attivi per il core di un ADS industriale (EFIT) caricato con un 37%at. di Pu di prima generazione

Dalla figura (6.13) è evidente come il codice di calcolo abbia necessità di un certo numero di cicli per stabilizzarsi, ragione per cui è necessario fissare a priori un numero di cicli inattivi, tali da non essere tenuti in memoria per il calcolo del k_{eff} finale, in modo da essere adeguato a limitare gli errori che inizialmente vengono accentuati. Procedimento buono per migliorare la statistica del calcolo, è quello di creare una buona sorgente di neutroni con i cicli inattivi settati inizialmente che permette di fornire poi una media adeguata su quelli attivi. Per avere un buon risultato che miri anche ad evitare problemi di falsa convergenza si andrà ad agire

sia sul numero di particelle simulate che sul numero di cicli, trovando un buon equilibrio fra questi due parametri.

Noti ormai tutti gli aspetti geometrici del core e la composizione isotopica di tutti i materiali che lo compongono siamo in grado di sviluppare i calcoli a sorgente fissa richiesti per la valutazione della capacità di bruciamento di un reattore ADS di taglia industriale (400 MWth) sulla base dei dati in studio presso il centro SCK-CEN all'interno del progetto europeo su EFIT.

Si ha interesse a far notare fin da ora che i calcoli che andremo a sviluppare collegati alla valutazione della capacità di bruciamento di un ADS saranno solo indicativi dato che si basano sulle ipotesi esemplificative che sono state portate avanti e descritte nella presente tesi. Consci però delle semplificazioni fatte, dopo aver presentato i risultati ottenuti, andremo a proporre quali sono secondo noi le strade di indagine da seguire per poter portare avanti questo studio.

6.3 Elaborazione dei calcoli relativi ad un ADS industriale (EFIT) con l'uso del codice ALEPH 1.1.2

In quest'ultima parte si andranno a descrivere più nel dettaglio le due tipologie di calcolo utilizzate per dare una valutazione preliminare della capacità di bruciamento di un reattore sottocritico di taglia industriale (EFIT) sulla base delle scelte, geometriche e dei materiali, presentate precedentemente. La valutazione della capacità di bruciamento è abbastanza preliminare dato che, come più volte ricordato, il progetto di un reattore sottocritico di taglia industriale è ancora ad un livello di tentativo. Infatti esso è privo di specifiche tecniche ben determinate ed è nato soprattutto come estensione dei risultati ottenuti per gli XT-ADS, nella fattispecie MYRRHA, semplicemente associati ad un livello di potenza maggiore, passando cioè dai 50 MWth ai 400 MWth.

Per i calcoli di bruciamento è stato utilizzato il codice di calcolo ALEPH-1.1.2 [1], già descritto più nel dettaglio nel Capitolo 3, scegliendo al suo interno di utilizzare la versione MCNPX-2.5.0 [19] del codice Montecarlo, più adatta alla simulazione di un reattore sottocritico.

Come già indicato l'input del codice ALEPH-1.1.2 è costruito in due parti, una prima legata alla storia di irraggiamento fatta subire al combustibile ed una seconda parte analoga in tutto ad un input Montecarlo, quindi relativa alla descrizione della geometria e della composizione isotopica dei vari materiali e celle. Tale parte è stata già descritta nei paragrafi precedenti che riportano la modellizzazione del core e la determinazione della composizione isotopica del combustibile. Rimangono da determinare la storia di irraggiamento e il tipo di calcolo.

Prima di andare a descrivere la 'radiation history' imposta al combustibile, rimane da descrivere il tipo di calcolo che MCNPX dovrà a fare. Infatti, non si parlerà più di calcolo di criticità $KCODE$, ma si avrà a che fare con un calcolo *a sorgente fissa*, per cui l'utilizzatore dovrà necessariamente fornire i parametri specifici relativi a tale sorgente.

Le modalità con le quali è stata modellizzata la sorgente di spallazione sono riportata in modo dettagliato in Appendice A.

Fissata la sorgente di spallazione rimane da descrivere la storia di irraggiamento fatta subire al reattore. Per far questo abbiamo sviluppato due calcoli leggermente differenti.

6.3.1 Core caricato omogeneamente e 3 cicli di irraggiamento

Preso il modello del core descritto precedentemente nel dettaglio, e noti, come valori fissati a priori, il burn-up allo scarico e la potenza termica, ci siamo ricavati il numero di giorni effettivi di irraggiamento (efpd) con la seguente semplice relazione 6.5.

$$(efpd) = \frac{BU * ton}{P_{th}} \quad (6.5)$$

dove è noto il burn-up ($BU=150$ GWd/toniHM), la potenza termica ($P_{th}=400$ MWth) e le tonnellate di materiale, ricavabili noto il volume totale del combustibile e la densità del metallo pesante presente ($\rho=4.5576$ g/cm³, $V=1.400887$ m³) che portano a 6.3847 tonnellate di metallo pesante. Questi dati portano ad avere un valore di giorni effettivi di irraggiamento pari a 2394.3 efpd (circa 6.6 anni).

Noto questo valore, che sarà indicativo della lunghezza di un ciclo di irraggiamento, sarà possibile andare a ricostruire la 'radiation history' necessaria al codice ALEPH-1.1.2. E' stato deciso per questo primo calcolo di fare step a potenza costante (400 MWth) della

lunghezza di 2 GWd/toniHM che corrispondono a circa 32 giorni (32 efpd). E' stato fatto un calcolo utilizzando 3 cicli da circa 6.6 anni intervallati da 3 anni di decadimento. La decisione di calcolare 3 cicli, invece dei 5 che secondo le nostre ipotesi sarebbero un numero più corretto per ottimizzare i risultati della trasmutazione, dipende da tempistiche legate alla realizzazione del lavoro di tesi e non influenza in modo sostanziale la qualità dei risultati ottenuti in questa fase preliminare.

Per velocizzare il calcolo, già di per se lungo, visto il numero di particelle simulate, è stato scelto di calcolare il flusso solo all'inizio di ogni ciclo di irraggiamento. Su tale valore del flusso, sono state poi pesate le sezioni macroscopiche.

I risultati ottenuti a seguito di circa 2 mesi di calcolo in parallelo su 4 CPU Dual Xeon 3 GHz, saranno presentati più nel dettaglio nei paragrafi successivi in termini di quantità e radiotossicità.

6.3.2 Core caricato omogeneamente, suddiviso in zone

Per avere un'altro punto di vista del problema è stato preparato un altro input che parte dalla geometria descritta precedentemente ma che prevede una suddivisione del core in 35 zone, 5 cilindri cavi concentrici ognuno dei quali suddiviso in 7 zone lungo la direzione z (zone simmetriche rispetto al centro del reattore), per poter studiare al meglio l'efficienza della trasmutazione nelle varie zone. Per far questo sono state definite le 35 zone geometricamente.

Il combustibile caricato inizialmente in tutte le zone ha la stessa composizione isotopica descritta nei paragrafi precedenti e riportata in tabella (6.9). La suddivisione fatta in zone però ci permetterà di ottenere le varie composizioni separatamente alla fine dell'irraggiamento e di veder in quale zona si è avuto un maggiore bruciamento degli attinidi.

Per poter costruire tale divisione in zone è stato necessario andare a definire in modo differente, dal punto di vista dell'individuazione delle celle, 5 diversi assembly (definiti grazie alla funzione universo), identici in tutto in condizioni iniziali e diversi solo nel nome, aspetto che permetterà al codice di considerarli separatamente. A loro volta la parte relativa al combustibile di questi 5 'universi' è stata suddivisa in 7 parti sulla lunghezza, anch'esse rinominate in modo differente affinché il codice possa trattarle separatamente.

Per implementare il calcolo vale quanto riportato precedentemente (sorgente di spalla-

zione, numero di particelle simulate, modelli di spallazione) con la differenza che si è scelto di fare solo 30 step di 32 giorni ciascuno, fatti seguire da tre anni di decadimento. Tali step corrispondono ancora a step da 2 GWd/toniHM. Il flusso in questo caso viene fatto ricalcolare automaticamente da ALEPH-1.1.2, facendo partire un calcolo MCNPX, ogni 30 GWd/toniHM.

La scelta di limitare il periodo di irraggiamento è stata dovuta solo ad un aspetto pratico inerente alla velocizzazione del calcolo; volendo sviluppare ulteriormente tale valutazione ci si potrebbe spingere come minimo all'irraggiamento su un intero periodo da 2394 efpd relativo ai 150 GWd/toniHM di burn-up considerato per il combustibile. In effetti questo calcolo non ha la finalità di valutare la capacità di bruciamento di ogni zona ma di fornire una valutazione qualitativa delle zone di maggiore interesse per poter implementare in futuro altri calcoli di bruciamento.

I risultati saranno utili soprattutto al fine di decidere anche se portare avanti scelte differenti, rispetto a quella qui fatta, relativamente al caricamento del combustibile in zone differenti del core, o con composizioni isotopiche differenti a seconda di quale zona si voglia considerare.

6.4 Principali risultati ottenuti sul core di un ADS industriale da 400 MWth

Le elaborazioni al calcolatore sin qui eseguite e i calcoli preliminari atti a definire la composizione in ingresso al reattore di nuova concezione ADS di scala industriale sul modello EFIT sono stati finalizzati alla ricerca dei valori di concentrazione assunti da ciascun radioisotopo della famiglia degli attinidi minori e del plutonio durante i 3 cicli di irraggiamento, di circa 6.6 anni ognuno, intervallati da step di decadimento di 3 anni.

I risultati sull'andamento degli isotopi del nettunio, del plutonio, dell'americio e del curio sono stati graficati in funzione della scala temporale scelta: step di potenza costante 2 GWd/toniHM, corrispondenti a circa 32 giorni.

Tali elaborazioni sono state finalizzate, più nel dettaglio, alla quantificazione della resa di trasmutazione del reattore dedicato considerato. Per mostrare al meglio la resa di trasmu-

tazione sarà presentato un grafico che riporta la diminuzione attraverso i 3 cicli di trasmutazione (irraggiamento+decadimento) degli attinidi minori nel loro complesso. Tale grafico è stato redatto riportando la variazione della massa totale di MA sulla massa inizialmente caricata nell'ADS. Per un confronto migliore su tale grafico è riportato anche l'andamento in decadimento naturale degli attinidi inizialmente inseriti nell'ADS, figura (6.14). In tabella (6.10) l'effetto della trasmutazione a seconda dei vari cicli per Np, Am, Cm e per il totale degli attinidi minori.

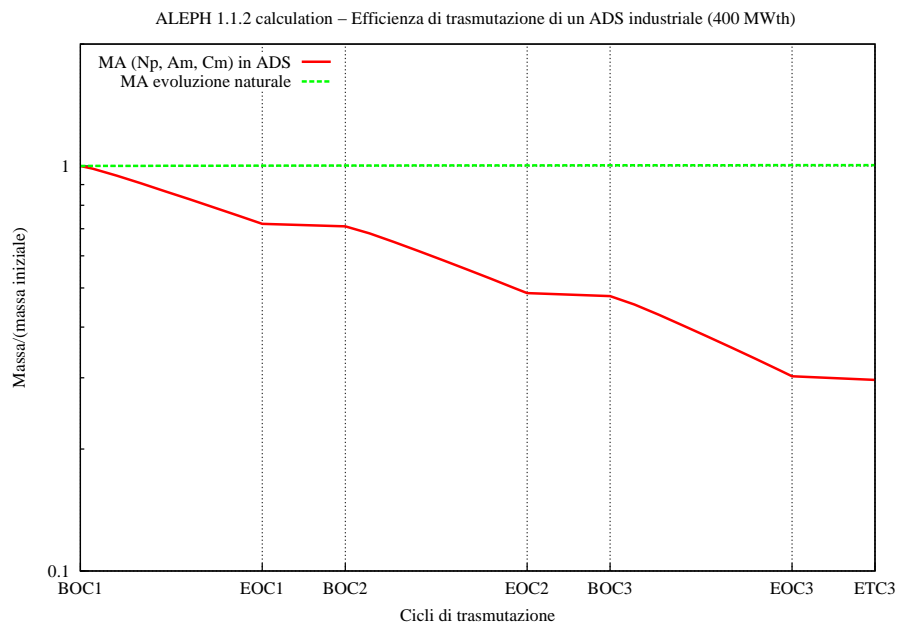


Figura 6.14: Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione MA

Isotopo	massa/massa iniziale			
	BOC ₁	EOC ₁	EOC ₂	ETC
Np	1.000	0.690	0.443	0.249
Am	1.000	0.693	0.454	0.271
Cm	1.000	2.478	3.202	3.592
totale MA	1.000	0.710	0.477	0.296

Tabella 6.10: Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione MA

Il 3 cicli di trasmutazione considerati vengono mostrati chiaramente in figura indicando, per ciascun ciclo, l'inizio (BOC-Begin Of Cycle) e la fine (EOC-End Of Cycle), è stato anche indicato il termine ultimo del periodo di trasmutazione come ETC-End of Transmutation Cycles.

Per costruire l'evoluzione naturale in decadimento del combustibile inizialmente caricato in ADS ci siamo avvalsi dell'ausilio di ORIGEN2.2, individuando solo 28 punti d'indagine, 9 per ogni ciclo, per velocizzare l'elaborazione dei dati.

La resa di trasmutazione sul primo ciclo (2394 efpd di irraggiamento+3anni decadimento) è di 0.29, in accordo con i dati trovabili in letteratura.

Per un'analisi più dettagliata dei risultati ottenuti si è pensato di graficare per ogni elemento (Np, Pu, Am e Cm) l'evoluzione in funzione della $\frac{massa}{massa_{in} + decadimento}$, ottenendo gli andamenti riportati in figura (6.15). Dove in generale si ha una diminuzione degli attinidi minori nel complesso, ma con parziale aumento di curio e plutonio.

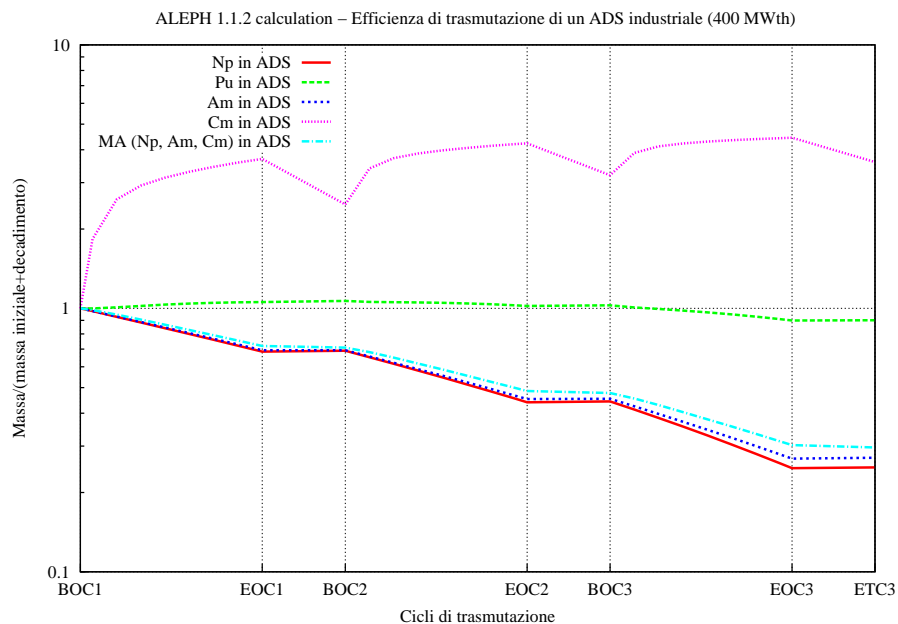


Figura 6.15: Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione dei vari elementi

Visto il comportamento particolare del curio si è pensato di andare a presentare l'andamento degli isotopi più significativi di Pu, Np, Am e Cm.

In figura (6.16) si riportano gli andamenti degli isotopi del plutonio ritenuti più significativi (Pu^{238} , Pu^{239} , Pu^{240} , Pu^{241} , Pu^{242} e Pu^{244}).

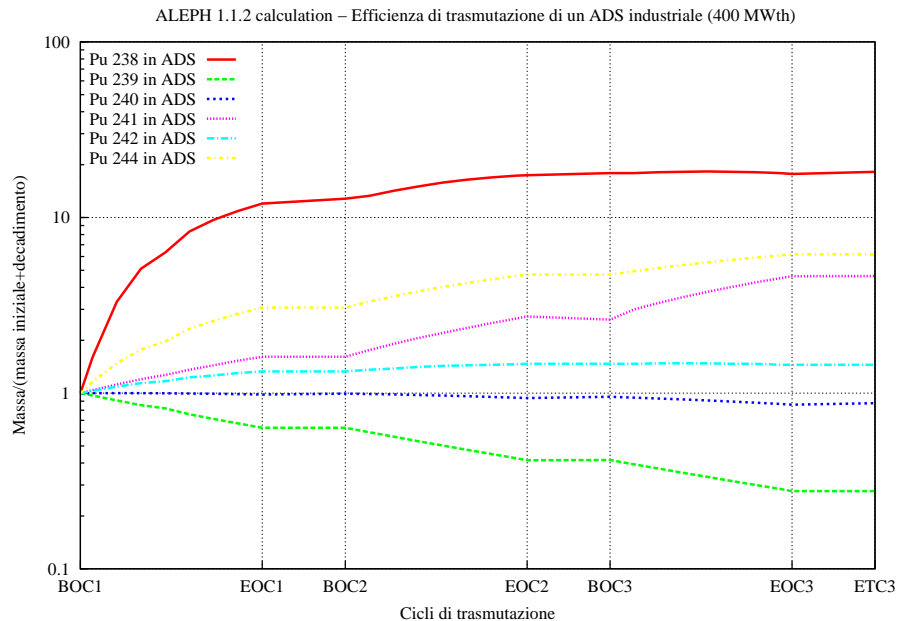


Figura 6.16: Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione degli isotopi del plutonio

In figura (6.17) si riportano gli andamenti degli isotopi del nettunio ritenuti più significativi (Np^{237} , Np^{238} e Np^{239}). Da figura è evidente che in generale gli isotopi del nettunio diminuiscono con un incremento solo del Np^{238} durante il ciclo di irraggiamento, tale isotopo però presenta un tempo di dimezzamento molto breve ($t_{1/2}=2.117$ d) non comportando incrementi di radiotossicità a lungo termine.

In figura (6.18) si riportano gli andamenti degli isotopi dell'americio ritenuti più significativi (Am^{241} , Am^{242m} e Am^{243}). Dove è evidente la riduzione dell' Am^{241} ($t_{1/2}=432.7$ y), isotopo importante indicato anche nel caso di accumulazione durante la vita del reattore, responsabile con il suo decadimento di andare in Np^{237} ($t_{1/2}=2.144\text{E}06$ y).

In figura (6.19) si riportano gli andamenti degli isotopi del curio ritenuti più significativi (Cm^{242} , Cm^{243} , Cm^{244} e Cm^{245}). Ciascuno di questi isotopi tende ad aumentare, con un particolare incremento del Cm^{242} ($t_{1/2}=162.8$ d) che va in Pu^{238} ($t_{1/2}=87.7$ y), in particolare

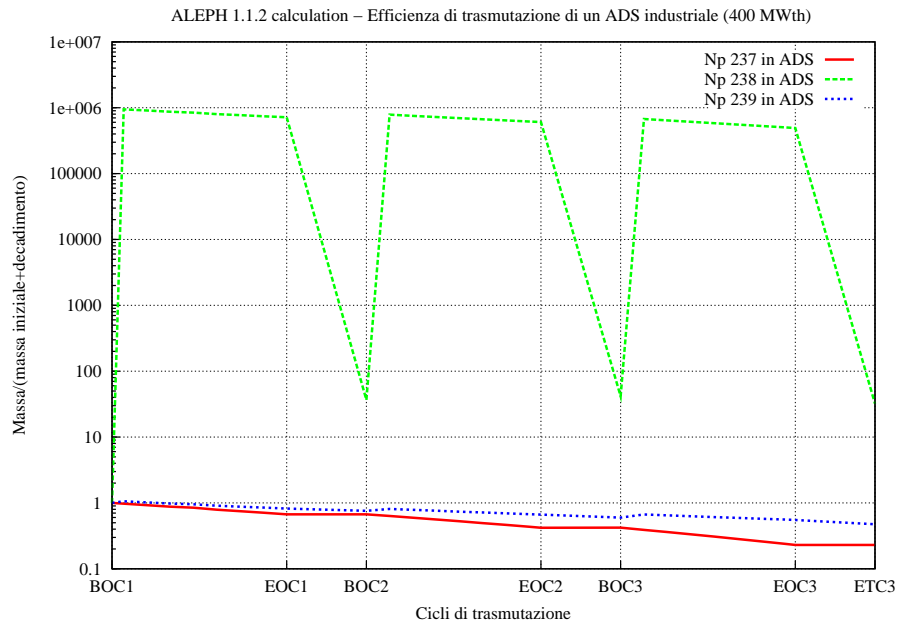


Figura 6.17: Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione degli isotopi del nettunio

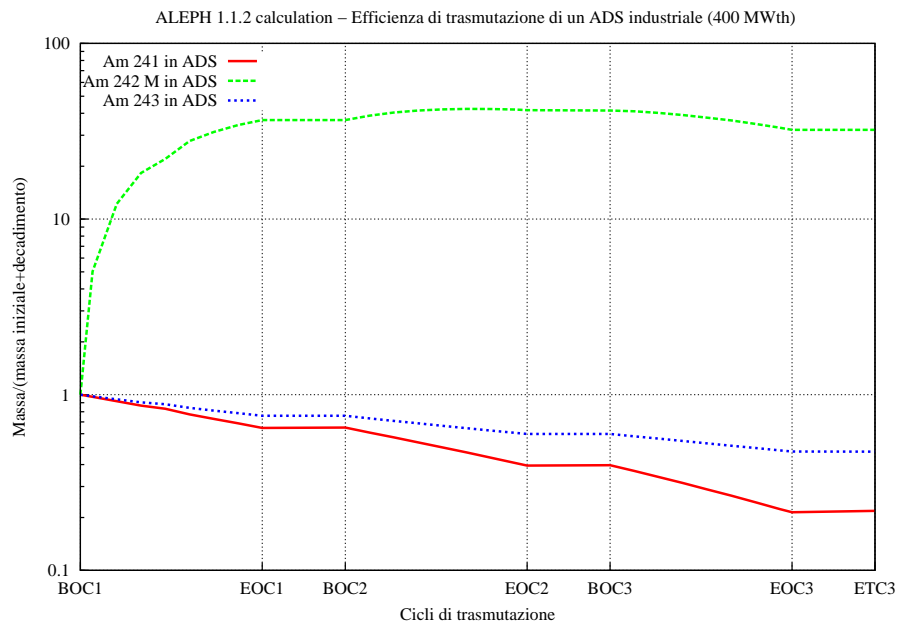


Figura 6.18: Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione degli isotopi dell'americio

però si nota l'aumento del Cm^{244} ($t_{1/2}=18.1$ y) che decadendo α va in Pu^{240} che ha un $t_{1/2}$ di $6.56E03$ anni, aggravando così la radiotossicità del combustibile esaurito a lungo termine.

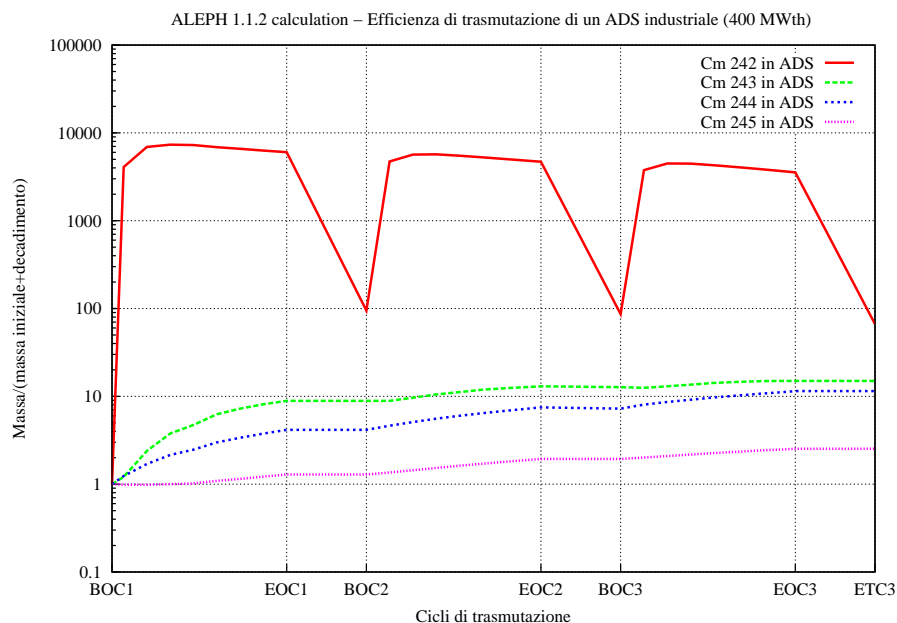


Figura 6.19: Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione degli isotopi del curio

Per concludere la presentazione dei risultati ottenuti si riporta l'andamento degli attinidi minori del plutonio per due zone differenti del core, per un periodo di irradiazione di 960 efpd nell'ADS industriale. Tale valutazione è da spunto per gli sviluppi futuri del problema. Delle 35 zone in cui è stato suddiviso il reattore andremo a considerare l'evoluzione nella zona A, zona più vicina alla sorgente di spallazione sia radialmente che assialmente e la zona B, zona radialmente ed assialmente più distante, ottenendo gli andamenti riportati in figura (6.20).

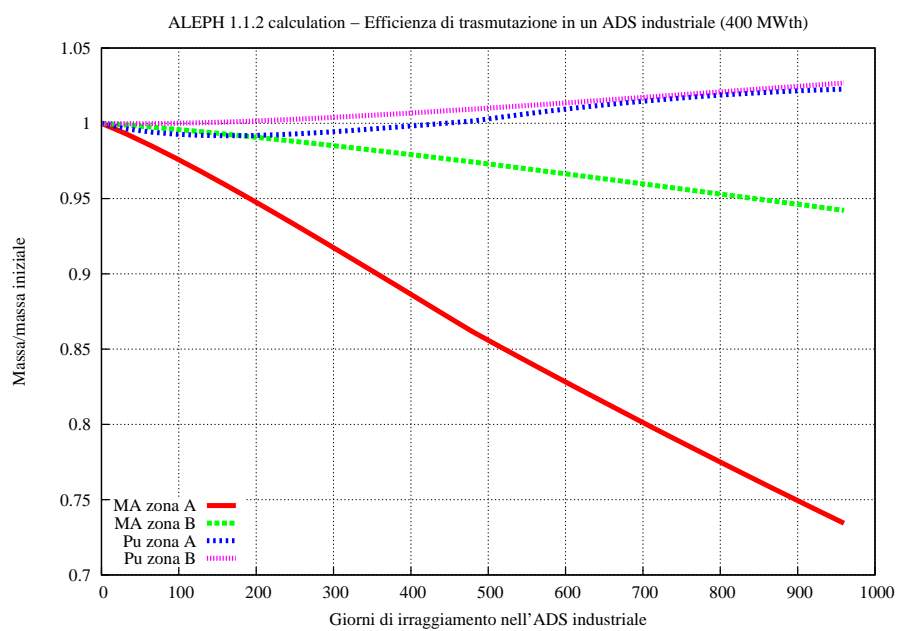


Figura 6.20: Capacità di trasmutazione dell'ADS industriale: evoluzione per i primi 960 efpd in due zone differenti del core

Capitolo 7

Conclusioni

L'obiettivo principale di questo lavoro di tesi è stato quello di fornire le basi per la valutazione della capacità di bruciamento di un ADS industriale. Si è cercato, infatti, di dare una visione di insieme più dettagliata e precisa possibile per affrontare il problema del trattamento dei rifiuti nucleari, ed in particolare dei rifiuti nucleari ad alta attività, nell'ottica di uno sviluppo sostenibile dell'uso della fonte energetica nucleare, fornendo le basi ed i mezzi necessari per una comprensione completa del problema, che parta dalla consapevolezza che per quanto riguarda il trattamento dei rifiuti nucleari c'è ancora molto da fare.

Attualmente infatti la comunità internazionale, ed in particolare l'opinione pubblica, guarda al nucleare con occhio allarmato, allarmato dal fatto che non sembrano esserci risposte concrete o globalmente accettate riguardo al problema della chiusura del ciclo del combustibile, per questo molti paesi, come ad esempio il Belgio, hanno deciso di andare verso una 'phase-out' dall'energia nucleare. Questo non è detto che sia fattibile, sia perché il fabbisogno energetico ogni anno tende ad aumentare, sia perché un utilizzo intensivo di fonti fossili, che vadano a sostituire la quota parte ad oggi del nucleare, può comportare anch'esso problemi di inquinamento ambientale, con conseguenti danni per le popolazioni e per le generazioni future. Il Belgio stesso infatti metterà in atto la fuoriuscita dal nucleare solo se riuscirà a trovare un'alternativa che permetta l'indipendenza energetica del Paese e il soddisfacimento degli accordi presi sottoscrivendo il Protocollo di Kyoto, per quanto riguarda la riduzione di emissione di CO₂ e degli altri gas serra.

Fermo restando che, al fine di raggiungere uno sviluppo energetico che sia veramente

sostenibile, ogni fonte energetica debba essere presa in giusta considerazione, ognuna collegata alla sua applicabilità e all'impatto ambientale, è bene sottolineare che il presente lavoro nasce con la consapevolezza che, essendo la fuoriuscita dall'uso dell'energia nucleare poco plausibile, visti i livelli di sviluppo attuali delle altre fonti energetiche ed in particolare delle rinnovabili, è necessario indirizzare gran parte delle ricerche per trovare una soluzione accettabile alla chiusura del ciclo del combustibile non demandando il problema alle generazioni future. Grande parte delle ricerche finanziate dalla Comunità Europea sono infatti mirate a tale obiettivo, visto anche il contributo cospicuo (185TWh-y) che il nucleare ha sulla produzione elettrica europea.

Nel presente lavoro ci siamo soffermati solo sull'analisi di una delle possibilità avanzate per la chiusura del ciclo, cioè l'utilizzo di un 'Accelerator Driven System-ADS', reattore sottocritico iniettato per il bruciamento degli attinidi minori, richiamando solo per completezza le altre possibili alternative attualmente in studio (riciclo in LWR-MOX, FR, HTGR, ...).

Il lavoro però, sempre nell'ottica della maggiore completezza possibile, non ha focalizzato solo l'interesse sulla capacità di bruciamento di un ADS, ma ha mirato a fornire un'indagine preliminare, ma fondamentale, di ciò che rimane a monte dell'ADS, cioè delle quantità effettivamente prodotte dagli attuali reattori in esercizio e dei concetti che vi sono alla base quando si vuole affrontare il problema dei rifiuti radioattivi.

Per quanto riguarda il primo punto, valutazione delle quantità effettivamente prodotte, è stato scelto di contestualizzare l'analisi al **caso belga**, che vede l'installazione sul proprio territorio di 7 reattori PWR (5800 MWe installati) tali da coprire circa il 40% del fabbisogno nazionale.

In particolare è stato scelto lo studio di un PWR da 1000 MWe, reattore Doel-3, con combustibile arricchito al 4.3% e burn-up allo scarico di 50GWd/tonIHM perché sembrato rappresentativo per l'analisi da svolgere. Una volta noto il reattore di riferimento è stata valutata la composizione isotopica del combustibile dopo un periodo di irraggiamento, simulato attraverso il codice di calcolo ALEPH-1.1.2, di 4.5 anni, che ha portato a dare una stima preliminare in particolare delle quantità di Nettunio, Plutonio, Americio e Curio in uscita da un reattore ad acqua leggera.

A seguito di tale valutazione è stata determinata la **percentuale in peso sul totale di SNF**

per plutonio e attinidi minori dopo il periodo di irraggiamento, trovando:

- 1.06%wt. per il plutonio,
- 0.072%wt. per il nettunio,
- 0.025%wt. per l'americio,
- 0.011%wt. per il curio.

Tali valori, in accordo con quelli riportati in letteratura, corrispondono 10.6kg di Pu, 0.72kg di Np, 0.25kg di Am e 0.11kg di Cm per ogni tonnellata di metallo pesante inizialmente caricato. Sapendo che il valore medio di consumo annuo per un reattore PWR da 1000 MWe, in funzione del burn-up e del fattore di carico, varia fra le 18 e le 22 tonnellate/anno (19.34 ton/y per Doel-3) segue che, se si considera la vita media di un reattore pari a 40 anni, si avranno a fine vita quantità dell'ordine delle 8.2 ton di Pu, 0.55 ton di Np, 195 kg di Am e 85 kg di Cm.

Come è evidente dai valori riportati sopra, le quantità in gioco per quello che riguarda gli attinidi minori sono piccole e corrispondono a volumi gestibili in depositi geologici profondi. Il problema però non è dato dal volume da gestire ma dal fatto che tali elementi hanno tempi di dimezzamento che arrivano fino 10^7 anni, valori che comportano un impatto negativo per quanto riguarda l'accettabilità della fonte energetica nucleare, soprattutto se si pensa all'impossibilità di garantire, su una scala temporale così ampia, il controllo del deposito profondo, in cui tali elementi andrebbero ad essere inseriti.

Nel caso si consideri la strategia 'once-through', dove l'unica chiusura del ciclo è data dallo stoccaggio in un deposito profondo, anche il plutonio dovrà essere considerato far parte dei rifiuti nucleari, aggravando ulteriormente il carico da inviare al deposito, soprattutto in termini di quantità.

In realtà è opportuno considerare il plutonio come combustibile, necessario nello sviluppo di un nuovo parco macchine nucleare che si basi sull'uso di reattori veloci autofertilizzanti per la produzione di energia elettrica, reattori che permettono di bruciare al loro interno gli attinidi minori.

La valutazione delle quantità in gioco non è però sufficiente ad inquadrare il problema nel suo complesso, infatti quando si parla di impatto del combustibile esaurito sulle popolazioni e sulle generazioni future, il concetto che viene ad essere introdotto è la **radiotossicità dello SNF**, cioè la misura del rischio derivato dall'ingestione dei radionuclidi presenti nel combustibile.

L'attenzione del presente studio si è soffermata sulla **definizione del 'reference level'**, prendendo come punto di partenza la composizione isotopica (g/cm^3) dell'uranio naturale e si è valutato attraverso il codice evolutivo ORIGEN2.2 il raggiungimento dell'equilibrio secolare. Per confrontare però la radiotossicità relativa ad una tonnellata di SNF e quella dell'uranio naturale è stato necessario determinare quante tonnellate di uranio naturale servono per costruire una tonnellata di combustibile arricchito al 4.3% in U-235, trovando un valore pari a 8 ton.

Il 'reference level' adottato nel presente lavoro è di 3.0710^6 Sv/GWe-y (pari a 2.010^5 Sv/tonIHM), in accordo con i valori proposti dalla IAEA.

E' stata svolta poi un'analisi critica delle definizioni di radiotossicità attraverso le varie pubblicazioni dell'ICRP, BEIR e UNSCEAR e delle leggi Belga e statunitensi (10 CFR Part 20) risalendo alla **creazione di data-bases di coefficienti di radiotossicità**, coefficienti differenti a seconda delle unità di misura considerate, utili per aggiornare i coefficienti utilizzati da ORIGEN2.2 all'interno del codice ALEPH-1.1.2.

Tali data-bases prevedono coefficienti opportuni per tutti gli isotopi forniti dal codice di calcolo, in particolare se si utilizza ALEPH-1.1.2 per LWR (PWR) il data-base prevede 1003 coefficienti, se si utilizza ALEPH-1.1.2 per gli ADS il data-base prevede 1029 coefficienti e se si utilizza ORIGEN2.2 il data-base prevede 1306 coefficienti. L'utilizzo di ORIGEN2.2 ha comportato anche la necessità di creare separatamente data-base specifici per gli attinidi (128 coefficienti), i prodotti d'attivazione (688 coefficienti) e i prodotti di fissione (879 coefficienti), che sono risultati utili nella creazione di curve di radiotossicità dove i prodotti di fissione e gli attinidi potessero essere graficati separatamente per valutare il loro contributo su breve e lunga scala temporale. Da questo studio è emerso un errore nei coefficienti riportati internamente ad ORIGEN2.2 per quanto riguarda il Pa-143.

Come indicato precedentemente questa prima parte del lavoro è la base solida da cui è stato possibile partire per lo studio del bruciamento degli attinidi minori attraverso l'utilizzo di un reattore sottocritico ADS.

Volendo valutare la capacità di bruciamento di un ADS, si è deciso, di prendere a riferimento un **ADS di taglia industriale (400MWth)**, soprattutto perché attualmente in Europa è in corso il '6th Framework Programme-EURATOM' che vede come punto centrale la valutazione preliminare di fattibilità di un ADS industriale (EFIT) sulla base dei risultati ottenuti inerentemente agli studi avanzati sui tre prototipi sperimentali presentati: SCK-CEN (MYR-RHA, Pb-Bi, 50 MWth), ANSALDO NUCLEARE (Pb, 80 MWth) e FRAMATOME (He, 80 MWth).

Ci siamo concentrati ancora sullo studio del panorama belga, con ADS industriale da inserire in un possibile scenario per il trattamento dei rifiuti.

Sotto l'ipotesi di introdurre l'ADS solo dopo la fermata degli attuali LWR si è deciso di fare una valutazione preliminare delle concentrazioni isotopiche che effettivamente dopo 60 anni di esercizio di un PWR (1000MWe e 4.3% arricchito) con un burn-up di 50 GWd/tonIHM allo scarico sono state prodotte e si trovano in deposito, in modo tale da avere una stima più dettagliata delle **quantità di attinidi minori accumulate** che dovranno essere inserite in un ADS.

Da tale valutazione si ottengono valori espressi in percentuali in peso sul totale di SNF che risultano essere: per il plutonio si ha 0.9657%wt. e per gli attinidi minori si ha 0.1998%wt. (0.0691%wt. di Np, 0.1266%wt. di Am e 0.0041%wt. di Cm). Percentuali diverse rispetto al caso di singolo irraggiamento.

Ai fini della valutazione della radiotossicità a lungo termine è importante far notare che:

- per quanto riguarda il nettunio si ha che il contributo è dato maggiormente dall'isotopo ^{237}Np ($t_{1/2}=2.144\text{E}06\text{y}$) che passa da una percentuale di 89.2% ad una del 99.7%,
- per quanto riguarda l'americio il contributo maggiore lo fornisce l'isotopo ^{241}Am ($t_{1/2}=432.2\text{y}$) che va in ^{237}Np con percentuale che passa da 22.5% a 84.8%,
- per quanto riguarda il curio il contributo è dato dall'isotopo ^{244}Cm ($t_{1/2}=18.1\text{y}$) che va in ^{240}Pu con $t_{1/2}=6563\text{y}$) con percentuale che passa da 73.9% a 81.5%.

Per avere un termine di paragone per i risultati ottenuti, è stato importante procedere attraverso uno **studio preliminare di ‘Partitioning&Transmutation’ teoricamente atteso**, partendo dalla definizione di efficienza di trasmutazione, che corrisponde alla frazione di atomi trasformati in elementi con tempi di dimezzamento minori, considerando il singolo ciclo di irraggiamento.

Questa indagine teorica, fatta attraverso l’utilizzo di ORIGEN2.2, è stata portata avanti facendo varie ipotesi sulla resa di trasmutazione attesa e prevedendo uno studio di evoluzione temporale fino a 10^8 y in decadimento dello SNF per determinare il pareggio con il ‘reference level’.

In tale studio è stato incluso anche il **il nettunio**, aspetto che in molti lavori a riguardo viene trascurato, per avere uno spettro di indagine della capacità di bruciamento di un ADS industriale il più ampio possibile.

Essendo la trasmutazione necessariamente legata al ‘partitioning’ si è partiti dai valori tecnicamente raggiungibili per la separazione isotopica di Pu con i processi chimici attuali.

Lo studio è andato avanti cercando quella concentrazione che renda il raggiungimento del ‘reference level’ accettabile. L’ipotesi è trovare quella *resa di trasmutazione che porti a raggiungere il ‘reference level’ almeno un ordine di grandezza prima del valore trovato separando Pu al 99.9%* e quindi che sia circa $2-3 \cdot 10^3$ anni, portando a trovare una concentrazione residua del 73%wt. per i MA che corrisponde ad un **efficienza di trasmutazione ragionevole del 27% wt.**

Per quanto riguarda il contributo alla progettazione sono stati valutati alcuni parametri: composizione isotopica in ingresso e numero di assembly.

E’ stata fatta una modellizzazione del core di EFIT, sulla base dei dati forniteci dal gruppo di lavoro presente al SCK-CEN, che si appoggia alle esperienze accumulate nello sviluppo del progetto MYRRHA. Tali dati riguardano sostanzialmente le dimensioni di barrette, elementi di combustibile e circuito di spallazione.

Il nostro scopo è stato **determinare una possibile composizione isotopica per il combustibile** da inserire nell’ADS industriale, a partire dalla composizione isotopica a seguito di accumulazione per 58.5 anni e considerando un tempo corrispondente a 20 anni dopo la fuoriuscita dell’ultimo ‘batch’.

Il combustibile scelto è dato da una matrice inerte di MgO (50% vol.) al cui interno sono omogeneamente distribuiti ossidi di Pu, Np, Am e Cm, dove il parametro libero scelto è la concentrazione di Pu.

Il fatto di lasciar libera, come parametro, la frazione di Pu ci ha permesso di ottenere al variare di essa il valore del k_{eff} del sistema.

Sono stati implementati calcoli di criticità con l'utilizzo del codice MCNPX sia utilizzando un reticolo infinito di celle elementari sia simulando l'intero core che hanno portato ad ottenere la composizione di Pu voluta per rispettare un $k_{eff}=0.97$.

Il modello preliminare di core di ADS industriale presenta 264 'assemblies' che sulla base del combustibile scelto porta ad avere un $k_{eff}=0.97$ solo se la percentuale di plutonio è intorno al 40%wt. sul 50% volume di fuel. Volendo ridurre la percentuale di Pu si è deciso di aumentare il numero di 'assemblies' che compongono il core, aggiungendo un anello esterno di elementi di combustibile, agendo sulla diminuzione delle fughe, per arrivare a 324 'assemblies' nel totale. In particolare si ottiene un $k_{eff}=0.97$ con una **percentuale di Pu del 37%wt. sul 50% in volume di combustibile.**

Scelta questa modellizzazione è stato portato avanti un primo calcolo, grazie all'utilizzo di ALEPH-1.1.2, per avere un'idea della capacità di bruciamento di un ADS industriale, simulando 3 cicli successivi di irraggiamento ognuno di una lunghezza di 2394 efpd (circa 6.6 anni) intervallati da 3 anni di decadimento.

Seppure siano calcoli di tentativo è stato ritrovato un valore della **resa di trasmutazione sul primo ciclo di 0.29**, in accordo con i valori trovabili in letteratura per quanto riguarda i reattori con flusso tendenzialmente veloce.

7.1 Sviluppi futuri del lavoro

A causa del tempo a disposizione per portare avanti il presente studio, non è stato possibile sviluppare in modo più dettagliato la parte riguardante la valutazione della capacità di bruciamento di un ADS industriale, anche perché i tempi di calcolo necessari per lo sviluppo di un ciclo di irraggiamento sono molto elevati, circa 20 giorni ogni ciclo, anche se implementati attraverso calcoli in parallelo.

Quindi fare un'analisi approfondita avrebbe richiesto un periodo molto più lungo di studio ma questo non ha compromesso il raggiungimento dell'obiettivo di questo lavoro cioè la valutazione dei vari step necessari per affrontare e studiare la chiusura del ciclo del combustibile.

Si riportano i qui di seguito i vari punti che, secondo la nostra opinione, andrebbero affrontati per uno sviluppo futuro significativo del lavoro:

- Il primo aspetto che dovrebbe essere preso ad esame è considerare 5 cicli di irraggiamento (invece dei 3) ed andare a valutare alla fine dei 5 cicli la radiotossicità residua del combustibile, dove oltre agli attinidi minori iniziali vengono bruciati anche parte dei figli che si producono a seguito di trasmutazione e che, nei primi cicli di irraggiamento, portano ad un incremento della radiotossicità.
- Un altro aspetto è cercare di minimizzare l'uso di Pu di prima generazione, per usarlo in modo più efficiente come combustibile. Ad esempio iniziando con il valutare la distribuzione radiale ed assiale del flusso neutronico e eventualmente scegliendo di costruire un core caricato a zone, con 'assembly' dedicati per i MAs o con arricchimenti differenti a seconda delle zone. Come punto di partenza per questa valutazione, nel presente lavoro, è stato implementato un calcolo su circa 1000 efpd con core suddiviso in zone, per poter verificare in quale zona si ottiene un contributo maggiore alla trasmutazione.
- Un ulteriore aspetto da valutare è la variazione di reattività del sistema da inizio ciclo a fine ciclo. Tale valutazione è importante ai fini della regolazione dell'impianto, infatti solo entro certi limiti si può regolare il sistema attraverso la variazione del flusso del fascio protonico incidente.
- Un altro aspetto che potrebbe essere preso in studio è una valutazione analoga del problema però fatta a seguito della scelta di utilizzo di plutonio di seconda generazione, prodotto dopo il bruciamento dei MOX nei LWR. Tale plutonio in effetti sarebbe meno efficiente utilizzato per lo sviluppo dei veloci e potrebbe avere un ruolo importante invece nell'utilizzo negli ADS per il bruciamento degli attinidi minori.

-
- Per ultimo si ricorda che lo studio può essere ampliato anche alla valutazione della capacità di bruciamento dei prodotti di fissione a lunga vita, magari considerando assembly dedicati, non presi in esame nel presente lavoro.

Solo dopo lo sviluppo di tali aspetti potrà essere possibile avere una valutazione più completa della capacità di bruciamento di un ADS di taglia industriale.

Appendice A

Modellizzazione dettagliata del core di un ADS industriale da 400 MWth

Si ritiene utile, al fine di avere una visione più dettagliata del lavoro svolto per la modellizzazione di un core di un ADS industriale, riportare nel dettaglio i vari passi svolti a partire dalle dimensioni e dalla forma della barretta di combustibile fino ad arrivare alla struttura completa del core.

Per semplicità di trattazione seguiremo lo stesso ordine utilizzato nella descrizione geometrica presente nel Capitolo 5, passando dunque dalla cella elementare, all'assembly e al core in totale.

A.1 Modellizzazione della barretta di combustibile

Per modellizzare la forma esagonale scelta per la cella elementare esistono più possibilità che il codice Montecarlo mette a disposizione, la prima prevede l'utilizzo di 8 piani (6 a formare l'esagono e 2 per le superfici di delimitazione superiore ed inferiore), e la seconda prevede invece l'utilizzo diretto di una funzione interna al codice stesso che genera una superficie di prisma esagonale. Nel presente lavoro sono state utilizzate entrambe, e dunque per questo descritte, per poter sviluppare tipi di calcolo differenti quali il calcolo con reticolo infinito e quello con reticolo finito descritti nelle loro finalità nel Capitolo 6.

La maggior parte dei calcoli, legati al core finito, è stata, infatti, implementata conside-

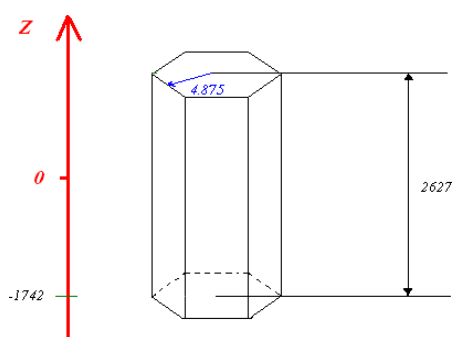


Figura A.1: Descrizione del comando HEX di MCNPX

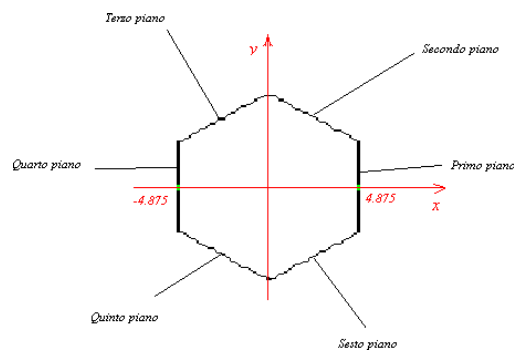


Figura A.2: Descrizione dei piani usati nella costruzione della superficie esagonale

randando una geometria completa della barretta come riportato nel Capitolo 5 nella figura (5.1) e utilizzando la funzione HEX di MCNPX che fornisce la superficie di un prisma esagonale retto. Per utilizzare tale funzione è sufficiente fornire le coordinate, rispetto agli assi di riferimento, della base inferiore (0 0 -174.2), i vettori che dalla base inferiore del prisma congiungono la base superiore (0 0 262.7) e i vettori che dal centro uniscono il centro della prima faccia, nel nostro caso daremo il vettore che unisce la faccia ortogonale all'asse x, scelta come prima faccia, (0.4875 0 0), si veda per maggior chiarimento la figura (A.1).

Grazie all'utilizzo di questa struttura, per la rappresentazione della cella elementare, sarà sufficientemente agevole costruire il reticolo di barrette necessario al riempimento dell'elemento di combustibile, come verrà descritto nel dettaglio in seguito.

Si è parlato precedentemente di un altro modo per descrivere il prisma esagonale retto, attraverso piani, utilizzato nel caso di calcolo di un reticolo infinito di celle elementari semplificate, cioè costituite da solo combustibile, clad e refrigerante che vi compete, perché si è voluto considerare solo il contributo del combustibile nella determinazione della quantità minima di plutonio per cui si abbia $k_{eff} (=k_{\infty})$ pari a 0.97, e si è preferito descrivere il prisma esagonale attraverso 8 piani di riferimento (di cui 2 che ne determinano le basi superiore ed inferiore) perché risulta più corretto, al fine di costruire il reticolo infinito, applicare ad essi delle condizioni di periodicità (richiamando per ogni superficie quella che le viene accoppiata), anziché di riflessione come nel caso utilizzato per il PWR, la cui cella elementare ha un base quadrata (vedi Capitolo 3).

I piani utilizzati, sono caratterizzati da un equazione analitica e sono indicati nell'input

con la seguente notazione:

- 19 px 0.4875 primo piano (faccia ortogonale asse x)
- 20 p 0.57733 1.0 0.0 0.5629 secondo piano (in senso antiorario)
- 21 p -0.57733 1.0 0.0 0.5629 terzo piano
- 22 px -0.4875 quarto piano
- 23 p 0.57733 1.0 0.0 -0.5629 quinto piano
- 24 p -0.57733 1.0 0.0 -0.5629 sesto piano

dove il numero iniziale è il designatore dato ad ogni superficie, px indica un piano ortogonale all'asse x e p un piano qualsiasi definito dall'equazione generica $Ax + By + Cz - D = 0$, di cui si forniscono le costanti (A,B,C,D) come parametri per il codice stesso. In aggiunta a questi devono essere considerati anche i piani ortogonali all'asse z, per chiudere il prisma esagonale, indicati come (10 pz 43.5) e (11 pz -43.5) a cui verranno imposte condizioni di riflessione pura. Tali piani ora richiamati sono gli stessi piani che nel caso della geometria più articolata, descritta sopra, delimitano l'altezza attiva del combustibile. La figura (A.2)) si riferisce dunque alla modellizzazione della cella con l'utilizzo di piani e al modo con cui tali piani sono stati costruiti. In figura (A.3) si può trovare la sezione z-x della modellizzazione MCNPX fatta nel caso di cella semplificata; per quanto riguarda la sezione x-y non ci sono variazioni rispetto a quella del modello di cella più complesso riportato precedentemente nel Paragrafo 5.2.1 e riferito alla parte che compete al combustibile. Sempre in figura (A.3) sono riportati i numeri utilizzati, all'interno del codice di calcolo, per l'identificazione delle celle e delle superfici considerate.

Fermo restando, che da ora in avanti, ci riferiremo solo alla modellizzazione più completa e completa della barretta di combustibile (figura (5.1)), salvo il caso specifico di descrizione del calcolo a reticolo infinito, per andare a descrivere la geometria dell'elemento di combustibile ed il modo che è stato utilizzato in MCNPX per modellizzarlo, cioè l'utilizzo della funzione `Universo` e del comando `fill`, non che a seguire il core di un ADS industriale (EFIT) nel suo complesso.

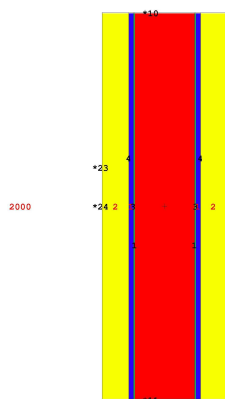


Figura A.3: Modellizzazione MCNPX della barretta semplificata

A.2 Modellizzazione dell'elemento di combustibile

Per la costruzione di tale elemento di combustibile attraverso la modellizzazione MCMPX ci siamo avvalsi di varie strutture presenti nel codice quali la definizione di `Universo` e la funzione di riempimento `fill` che ci hanno permesso di costruire un reticolo di barrette (funzione `universo`) da mettere all'interno di un elemento esagonale per costruire l'elemento di combustibile completo (funzione `fill`).

Per avere la modellizzazione finale dell'elemento sono stati necessari più passaggi, che saranno descritti qui di seguito.

- Per ogni zona definita per comporre la barretta di combustibile (isolante, riflettore, . . .) è stata specificata l'appartenenza ad un particolare universo. L'universo che nella nostra modellizzazione identifica la barretta nel suo complesso è l'universo 101. Dunque, per ogni zona della barretta è stato imposto di appartenere allo stesso universo utilizzando la notazione `u=101` nella zona di input che si riferisce alla `CELL CARDS` dopo aver individuato la cella attraverso le superfici in gioco.
- Costruito l'universo 101 si va a definire un secondo universo (201) che è relativo al reticolo di barrette di combustibile. Per definire tale universo è stato definito un reticolo esagonale sul piano x-y riempito nelle varie posizioni dall'universo 101. Particolare attenzione va fatta riguardo agli assi di riferimento, infatti in tale costruzione sono stati usati assi di riferimento non ortogonali fra loro, cioè è stato scelto l'asse α coinci-

dente con l'asse x ed ortogonale alla prima faccia dell'esagono che compone la cella elementare, ed il secondo asse (asse β) ortogonale alla seconda faccia, successiva alla prima se letta in senso antiorario, in più è considerato ancora l'asse z ortogonale al piano individuato da α e β . Indicati gli assi, per la costruzione di un reticolo esagonale, è stata usata la seguente notazione che serve a specificarlo: `LAT=2 fill=-10:10 -10:10 0:0` dove viene indicata l'estensione del reticolo lungo i tre assi presi a riferimento, e dove `LAT=2` indica la forma esagonale del reticolo. In figura (A.4) è riportata la parte di input MCNPX relativa. Dove è evidente, comando `u=201`, che tutto questo viene ad essere inserito nell'universo 201 che sarà utile per la determinazione totale dell'elemento di combustibile.

- Per costruire infatti l'elemento di combustibile nel suo complesso, denominato come universo 301, oltre al reticolo di barrette vanno considerati gli altri elementi già indicati precedentemente, allora avvalendosi delle opportune superfici è necessario andare a definire le varie zone in cui si compone e per ognuna di esse verrà, poi, data l'indicazione `u=301`, utile per determinare la struttura completa del core. In questa descrizione è presente anche la zona relativa al combustibile, che in questo caso risulta essere un reticolo di barrette, allora si userà il comando `fill` per determinarla; esattamente useremo la notazione `'30108 0 (-213 -203 -206) fill=201 u=301'` dove 30108 è il designatore per MCNPX della zona, lo 0 indica che non ne viene dato un valore specifico del materiale, la notazione `(-213 -203 -206)` indica le superfici coinvolte e il comando `fill=201` indica che tale zona sarà riempita dall'universo 201 definito precedentemente.

Tutti questi passaggi ci hanno permesso di determinare l'elemento di combustibile nel suo complesso.

Volendo essere più precisi l'universo 301 non è solo formato dall'elemento di combustibile ma comprende anche una considerazione sul passo fra un elemento ed un altro imponendo una superficie esagonale definita con la funzione `HEX` che tiene conto anche di tale passo, una sorta di macrocella esagonale che questa volta comprende per intero l'elemento di combustibile.

```

c *****
c univers 201 fuel pin lattice (other pin lattices: universe 202, 203, ...
c                               with fuel pins 102, 103, ...)
c *****
c cell number = <u> + two digit cell numbers
c hexagonal lattice of 217 fuel pins
20101 5 -10.515 -101 lat=2 fill=-10:10 -10:10 0:0
201 20r $ -10
201 20r $ -9
201 9r 101 8r 201 1r $ -8: 9 fuel pins
201 8r 101 9r 201 1r $ -7: 10 fuel pins
201 7r 101 10r 201 1r $ -6: 11 fuel pins
201 6r 101 11r 201 1r $ -5: 12 fuel pins
201 5r 101 12r 201 1r $ -4: 13 fuel pins
201 4r 101 13r 201 1r $ -3: 14 fuel pins
201 3r 101 14r 201 1r $ -2: 15 fuel pins
201 2r 101 15r 201 1r $ -1: 16 fuel pins
201 1r 101 16r 201 1r $ 0: 17 fuel pins
201 1r 101 15r 201 2r $ +1: 16 fuel pins
201 1r 101 14r 201 3r $ +2: 15 fuel pins
201 1r 101 13r 201 4r $ +3: 14 fuel pins
201 1r 101 12r 201 5r $ +4: 13 fuel pins
201 1r 101 11r 201 6r $ +5: 12 fuel pins
201 1r 101 10r 201 7r $ +6: 11 fuel pins
201 1r 101 9r 201 8r $ +7: 10 fuel pins
201 1r 101 8r 201 9r $ +8: 9 fuel pins
201 20r $ +9
201 20r $ +10
u=201 imp:n,h=1 tmp=5.170E-08
c *****

```

Figura A.4: Input MCNPX relativo al reticolo che compone l'elemento di combustibile

A.3 Modellizzazione del core di un reattore ADS industriale (EFIT)

A questo punto non rimane altro che andare a costruire il reticolo di elementi di combustibile che comporrà il core del reattore. Si tratta di una costruzione analoga a quella fatta precedentemente per costruire l'elemento di combustibile. Infatti verrà individuato un nuovo universo (universo 2), al cui interno verrà costruito un reticolo con le posizioni occupate dall'universo 301 che è quello che è stato definito per l'elemento di combustibile nel complesso; il reticolo esagonale del core è imposto dalla notazione `lat=2 fill=-14:14 -14:14 0:0` analoga a quella già presentata precedentemente. Nella parte centrale del reticolo dovrà essere lasciato lo spazio per posizionare la sorgente di spallazione. Per indicare poi la posizione nel reticolo anche in questo caso verranno utilizzati assi non ortogonali fra loro (α , β e z). In figura (A.5) viene riportata la parte di input MCNPX relativa alla determinazione del reticolo di assembly. Riempito il reticolo che compone il core viene inserito a sua volta all'interno dell'universo 2.

Dopo aver evidenziato la maniera per modellizzare il reticolo del core è necessario andare anche a fornire la geometria di riferimento della sorgente di spallazione universo 3, un cilindro con asse parallelo all'asse z che andrà ad insistere su una superficie equivalente a quella corrispondente ai 7 'assemblies' centrali.

Dopo aver definito questi due elementi, cioè la geometria della sorgente di spallazione (universo 3), ed il reticolo di elementi di combustibile che riempie il core (universo 2) è necessario andare a posizionarli rispettivamente attraverso la funzione `fill`, imponendo che la sorgente di spallazione riempia l'interno di un cilindro retto con asse coincidente all'asse z e con raggio di 160 mm (`pz 16.00`), ed il reticolo del core riempia un volume interno ad un cilindro cavo con raggio esterno di 1750 mm e raggio interno di 160 mm, delimitato sopra e sotto da superfici ortogonali all'asse z , conferendogli un'altezza totale di 4100 mm.

A.4 Modellizzazione della sorgente di spallazione

Per definire la sorgente di spallazione, ci sono varie grandezze da determinare. Si inizia con il richiamare una sorgente generica che in MCNPX è richiamata con la parola chiave `sdef`, a cui è necessario affiancare alcuni parametri specificativi. Nel nostro caso è stata definita come `sdef ccc=304 dir=-1 vec=0 0 1 x=d1 y=d2 z=399 par=h erg=600`. Di seguito andremo ad elencare i vari parametri che sono stati specificati:

- `ccc=304` identifica il volume dedicato alla sorgente ('cookie-cutter'); la cella 304 è quella relativa alla parte di vuoto al di sopra della superficie libera di spallazione;
- `dir=-1` indica l'orientazione della sorgente, nel caso di sorgente volumetrica, come utilizzata in questo studio, è sempre messo uguale a -1;
- `vec=0 0 1` vettore indicativo della direzione della sorgente, indica che è in direzione dell'asse z ;
- `x=d1` indica che in direzione x è distribuito come la distribuzione `d1`, specificata nel seguente modo `sp1 -41 10.0 0`, identificante una distribuzione gaussiana in x (-41) cioè con relazione data da $p(x) = c \exp(-(1.6651092(x-b)/a)^2)$ dove con 'a' si indica l'ampiezza a metà altezza (nel nostro caso $a=10.0$) e 'b' il valore medio (in questo caso $b=0$);
- `y=d2` indica che in direzione y si considera una distribuzione `d2` specificata come `-41 10.0 0`, e quindi gaussiana anche in tale direzione;

-
- `z=399` indica la posizione in direzione z ;
 - `par=h` serve ad indicare il tipo di particelle della sorgente, nel nostro caso avendo una sorgente di protoni dovremo mettere l'indicazione h ;
 - `erg=600` indica l'energia delle particelle prodotte dalla sorgente espressa in MeV (nel nostro caso 600 MeV).

Per implementare il calcolo deve essere anche fornito il numero di particelle che la sorgente emette e viene fatto imponendo `nps=numero voluto`, nei nostri calcoli sono state simulate 40000 particelle (protoni).

A questo punto abbiamo solo simulato i protoni nell'acceleratore, dobbiamo cioè simulare la spallazione, e per far questo esistono vari modelli all'interno del MCNPX che come già indicato è nato proprio per simulare in modo più adeguato i reattori sottocritici accoppiati agli acceleratori.

Viene infatti fissata con `mode` l'importanza legata sia ai neutroni (n) che ai protoni (p). Attraverso la parola chiave `phys` se ne definiscono i modelli utilizzati per i parametri energetici. Troviamo infatti :

- `phys:n 600 3j -1 0` relativamente ai neutroni che indica l'energia massima dei neutroni pari a 600 MeV, limite energetico inferiore di default pari a 0 MeV, viene trattato il fattore di moltiplicazione da fissione utilizzando un valore medio a seguito di distribuzione gaussiana, e non vengono considerati ioni leggeri;
- `phys:h 605 j -1` dove il limite massimo dell'energia dei protoni è 605 MeV, e si indica l'uso del modello Vavilon (MCNPX 2.2.49 per trattare 'Controls charged-particle straggling').

Si vanno poi a definire i vari modelli fisici che indicano la sorgente di spallazione, iniziando con il modello utilizzato. Nel nostro caso abbiamo la notazione `lca 2 1 2`, che indica che viene usato il modello ISABEL più il PRE-EQUILIBRIO per descrivere la sorgente. Ed inoltre viene indicato anche `lea 6j 2` che indica l'utilizzo del modello ABLA per la fase di evaporazione.

Appendice B

Aggiornamenti dei coefficienti di radiotossicità per ALEPH-1.1.2. e ORIGEN2.2

I coefficienti di radiotossicità di seguito proposti sono stati ricercati appositamente all'interno del programma svolto nel presente lavoro di tesi al fine di creare un data-base aggiornato alle ultime raccomandazioni dell'ICRP 72 del 1996 recepite a livello europeo prima dalla direttiva 96/29/EURATOM e poi con i singoli decreti legge dei rispettivi paesi membri. Questa raccolta di dati permetterà di utilizzare i due codici ALEPH-1.1.2 e ORIGEN2.2 ottenendo in uscita valori di radiotossicità in unità di misura e ordini di grandezza all'avanguardia in Europa e negli Stati Uniti.

B.1 Coefficienti per ALEPH-1.1.2 nel caso di SNF proveniente da un LWR

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
10010	0.00E+00	1.80E-11
10020	0.00E+00	
10030	3.57E+14	
20030	0.00E+00	
20040	0.00E+00	
20060	8.61E+22	
30060	0.00E+00	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
30070	0.00E+00	
30080	6.20E+22	
40080	2.61E+28	
40090	0.00E+00	
40100	8.27E+08	1.10E-09
40110	2.79E+21	
50100	0.00E+00	
50110	0.00E+00	
50120	1.71E+24	
60120	0.00E+00	
60130	0.00E+00	
60140	1.65E+11	5.80E-10
60150	1.14E+22	
70130	5.37E+19	
70140	0.00E+00	
70150	0.00E+00	
70160	3.66E+21	
80160	0.00E+00	
80170	0.00E+00	
80180	0.00E+00	
80190	7.58E+20	
90190	0.00E+00	
90200	1.83E+21	
270720	4.72E+22	
270730	4.95E+22	
270740	5.25E+22	
270750	6.94E+22	
280720	2.40E+21	
280730	1.45E+22	
280740	8.70E+21	
280750	3.10E+22	
280760	2.05E+22	
280770	5.27E+22	
280780	3.89E+22	
290660	2.07E+19	
290670	2.80E+16	3.40E-10
290720	9.66E+20	
290730	1.45E+21	
290740	9.84E+21	
290750	7.26E+21	
290760	2.48E+22	
290770	1.84E+22	
290780	4.44E+22	
290790	3.58E+22	
290800	5.73E+22	
290810	6.92E+22	
300660	0.00E+00	
300670	0.00E+00	
300680	0.00E+00	
300690	1.77E+18	3.10E-11
300691	1.22E+17	3.30E-10
300700	0.00E+00	
300710	4.08E+19	
300711	4.17E+17	2.40E-10

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
300720	3.46E+16	1.40E-09
300730	2.43E+20	
300740	5.94E+19	
300750	6.18E+20	
300760	1.02E+21	
300770	3.87E+21	
300780	2.20E+21	
300790	1.38E+22	
300800	7.34E+21	
300810	3.98E+22	
300820	3.76E+22	
300830	6.00E+22	
310690	0.00E+00	
310700	4.71E+18	3.10E-11
310710	0.00E+00	
310720	1.14E+17	1.10E-09
310730	3.25E+17	2.60E-10
310740	1.16E+19	
310750	4.88E+19	
310760	2.03E+20	
310770	4.17E+20	
310780	1.09E+21	
310790	1.85E+21	
310800	3.07E+21	
310810	7.31E+21	
310820	3.31E+22	
310830	3.41E+22	
310840	5.03E+22	
320700	0.00E+00	
320710	5.77E+15	1.20E-11
320720	0.00E+00	
320730	0.00E+00	
320731	1.08E+22	
320740	0.00E+00	
320750	1.12E+18	4.60E-11
320751	1.14E+20	
320760	0.00E+00	
320770	1.33E+17	3.30E-10
320771	9.98E+19	
320780	1.03E+18	1.20E-10
320790	1.23E+20	
320800	2.17E+20	
320810	5.10E+20	
320820	1.11E+21	
320830	2.65E+21	
320840	4.14E+21	
320850	2.10E+22	
320860	1.87E+22	
320870	3.82E+22	
320880	3.32E+22	
330750	0.00E+00	
330760	5.80E+16	1.60E-09
330770	3.88E+16	4.00E-10
330780	9.83E+17	2.10E-10

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
330790	9.78E+18	
330800	3.16E+20	
330810	1.61E+20	
330820	2.42E+20	
330821	3.92E+20	
330830	3.73E+20	
330840	8.57E+20	
330850	2.42E+21	
330860	5.39E+21	
330870	1.60E+22	
330880	3.65E+22	
330890	3.62E+22	
340760	0.00E+00	
340770	0.00E+00	
340771	3.10E+20	
340780	0.00E+00	
340790	2.58E+09	2.90E-09
340791	2.26E+19	
340800	0.00E+00	
340810	4.64E+18	2.70E-11
340811	1.50E+18	5.30E-11
340820	0.00E+00	
340830	3.73E+18	4.70E-11
340831	7.18E+19	
340840	2.51E+19	
340850	1.26E+20	
340851	2.58E+20	
340860	2.92E+20	
340870	8.57E+20	
340880	3.16E+21	
340890	1.14E+22	
340900	8.36E+21	
340910	2.49E+22	
340920	1.83E+22	
350790	0.00E+00	
350791	1.09E+21	
350800	5.00E+18	3.10E-11
350801	3.28E+17	1.10E-10
350810	0.00E+00	
350820	4.01E+16	5.40E-10
350821	1.38E+19	
350830	5.85E+17	4.30E-11
350840	2.60E+18	8.80E-11
350841	1.38E+19	
350850	2.86E+19	
350860	8.83E+19	
350861	1.08E+21	
350870	8.60E+19	
350880	2.91E+20	
350890	1.04E+21	
350900	2.90E+21	
350910	7.65E+21	
350920	1.51E+22	
350930	2.23E+22	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
350940	4.02E+22	
350950	3.77E+22	
350960	5.19E+22	
360790	4.21E+16	
360800	0.00E+00	
360810	7.78E+08	
360811	3.87E+20	
360820	0.00E+00	
360830	0.00E+00	
360831	7.63E+17	
360840	0.00E+00	
360850	1.45E+13	
360851	3.04E+17	
360860	0.00E+00	
360870	1.05E+18	
360880	4.64E+17	
360890	2.47E+19	
360900	1.44E+20	
360910	5.27E+20	
360920	2.47E+21	
360930	3.53E+21	
360940	2.11E+22	
360950	8.79E+21	
360960	9.87E+21	
360970	2.90E+22	
360980	1.90E+22	
370850	0.00E+00	
370860	3.01E+15	2.80E-09
370861	7.95E+19	
370870	3.24E+03	1.50E-09
370880	4.44E+18	9.00E-11
370890	5.14E+18	4.70E-11
370900	3.03E+19	
370901	1.80E+19	
370910	7.88E+19	
370920	1.01E+21	
370930	7.74E+20	
370940	1.65E+21	
370950	1.22E+22	
370960	2.10E+22	
370970	2.53E+22	
370980	3.04E+22	
370990	5.55E+22	
371000	4.15E+22	
380860	0.00E+00	
380870	0.00E+00	
380871	4.75E+17	3.00E-11
380880	0.00E+00	
380890	1.07E+15	2.60E-09
380900	5.05E+12	2.80E-08
380910	1.34E+17	6.50E-10
380920	4.65E+17	4.30E-10
380930	9.97E+18	
380940	5.87E+19	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
380950	1.69E+20	
380960	1.09E+21	
380970	2.15E+22	
380980	5.01E+21	
380990	7.53E+21	
381000	3.99E+21	
381010	1.64E+22	
381020	9.87E+21	
381030	2.92E+22	
381040	2.09E+22	
390890	0.00E+00	
390891	2.92E+20	
390900	2.01E+16	2.70E-09
390901	4.16E+17	1.70E-10
390910	9.07E+14	2.40E-09
390911	1.54E+18	1.10E-11
390920	3.56E+17	4.90E-10
390930	1.23E+17	1.20E-09
390940	3.87E+18	8.10E-11
390950	6.97E+18	4.60E-11
390960	3.15E+19	
390970	3.88E+21	
390980	1.42E+22	
390990	5.27E+21	
391000	5.52E+21	
391010	4.23E+21	
391020	1.50E+22	
391030	1.11E+22	
391040	2.78E+22	
391050	2.29E+22	
391070	3.73E+22	
400900	0.00E+00	
400901	5.59E+21	
400910	0.00E+00	
400920	0.00E+00	
400930	9.30E+07	1.10E-09
400940	0.00E+00	
400950	7.95E+14	9.50E-10
400960	0.00E+00	
400970	7.07E+16	2.10E-09
400980	1.37E+20	
400990	1.76E+21	
401000	5.88E+20	
401010	1.25E+21	
401020	1.43E+20	
401030	2.29E+21	
401040	1.06E+21	
401050	7.12E+21	
401060	4.02E+21	
401070	1.57E+22	
401080	9.48E+21	
401090	2.76E+22	
410920	5.17E+15	
410930	0.00E+00	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
410931	1.05E+13	1.20E-10
410940	6.93E+09	1.70E-09
410941	1.18E+19	
410950	1.45E+15	5.80E-10
410951	1.41E+16	5.60E-10
410960	5.17E+16	1.10E-09
410970	9.95E+17	6.80E-11
410971	7.17E+19	
410980	1.52E+21	1.10E-10
410981	1.38E+18	
410990	2.95E+20	
410991	2.70E+19	
411000	1.74E+21	
411001	1.73E+21	
411010	5.90E+20	
411020	1.36E+21	
411030	2.59E+20	
411040	4.01E+21	
411050	2.21E+21	
411060	7.36E+21	
411070	5.83E+21	
411080	1.74E+22	
411090	1.34E+22	
411100	3.02E+22	
411110	2.41E+22	
420950	0.00E+00	
420960	0.00E+00	
420970	0.00E+00	
420980	0.00E+00	
420990	1.77E+16	6.00E-10
421000	0.00E+00	
421010	4.71E+18	4.20E-11
421020	6.14E+18	
421030	6.75E+19	
421040	4.18E+19	
421050	7.36E+19	
421060	4.38E+20	
421070	6.10E+20	
421080	2.58E+21	
421090	3.71E+21	
421100	2.01E+21	
421110	9.60E+21	
421120	5.41E+21	
421130	1.87E+22	
421140	1.14E+22	
421150	3.13E+22	
430980	3.21E+07	2.00E-09
430990	6.27E+08	6.40E-10
430991	1.95E+17	2.20E-11
431000	2.64E+20	
431010	4.85E+18	1.90E-11
431020	7.75E+20	
431021	1.57E+19	
431030	8.11E+19	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
431040	3.68E+18	8.00E-11
431050	8.28E+18	
431060	1.06E+20	
431070	1.35E+20	
431080	7.43E+20	
431090	7.51E+19	
431100	4.57E+21	
431110	2.81E+21	
431120	1.05E+22	
431130	8.06E+21	
431140	2.11E+22	
431150	1.63E+22	
431160	3.39E+22	
431170	2.64E+22	
440990	0.00E+00	
441000	0.00E+00	
441010	0.00E+00	
441020	0.00E+00	
441030	1.19E+15	7.30E-10
441040	0.00E+00	
441050	2.49E+17	2.60E-10
441060	1.24E+14	7.00E-09
441070	1.55E+19	
441080	1.43E+19	
441090	1.09E+20	
441100	2.37E+20	
441110	2.44E+20	
441120	5.32E+21	
441130	1.34E+21	
441140	7.25E+20	
441150	4.98E+21	
441160	2.56E+21	
441170	1.15E+22	
441180	5.74E+21	
441200	1.19E+22	
451020	4.47E+13	2.60E-09
451030	0.00E+00	
451031	1.20E+18	3.80E-12
451040	9.49E+19	
451041	1.54E+19	
451050	3.12E+16	3.70E-10
451051	8.83E+19	
451060	1.32E+20	
451061	4.97E+17	1.60E-10
451070	3.00E+18	2.40E-11
451080	2.30E+20	
451081	1.09E+19	
451090	4.26E+19	
451091	7.66E+19	
451100	1.31E+20	
451101	1.26E+21	
451110	5.97E+19	
451120	7.93E+20	
451130	4.10E+21	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
451140	2.15E+21	
451150	6.03E+20	
451160	4.32E+21	
451170	3.32E+21	
451180	1.20E+22	
451190	7.84E+21	
451200	2.14E+22	
451210	1.56E+22	
451220	3.25E+22	
451230	2.54E+22	
461040	0.00E+00	
461050	0.00E+00	
461060	0.00E+00	
461070	1.90E+07	3.70E-11
461071	1.83E+20	
461080	0.00E+00	
461090	7.90E+16	5.50E-10
461091	1.36E+19	
461100	0.00E+00	
461110	2.85E+18	
461111	1.90E+17	
461120	5.15E+16	
461130	4.10E+19	
461140	2.54E+19	
461150	9.55E+19	
461160	2.57E+20	
461170	7.14E+20	
461180	1.14E+21	
461190	2.05E+21	
461200	8.14E+20	
461210	5.55E+21	
461220	2.69E+21	
461230	1.09E+22	
461240	6.01E+21	
461260	1.15E+22	
471060	5.36E+15	3.20E-11
471070	0.00E+00	
471080	2.72E+19	
471081	9.64E+11	2.30E-09
471090	0.00E+00	
471091	9.67E+19	
471100	1.54E+20	
471101	1.76E+14	2.80E-09
471110	5.84E+15	1.30E-09
471111	5.79E+19	
471120	3.31E+17	4.30E-10
471130	1.94E+17	
471131	5.60E+19	
471140	8.10E+20	
471150	3.02E+18	6.00E-11
471151	2.14E+20	
471160	2.24E+19	
471161	3.46E+20	
471170	4.87E+19	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
471171	6.73E+20	
471180	9.56E+20	
471181	1.26E+21	
471190	5.85E+20	
471200	2.97E+21	
471210	1.15E+21	
471220	3.42E+22	
471230	3.93E+21	
471240	1.25E+22	
471250	8.74E+21	
471260	2.13E+22	
471280	3.18E+22	
481080	0.00E+00	
481090	9.55E+13	2.00E-09
481100	0.00E+00	
481110	0.00E+00	
481111	1.29E+18	
481120	0.00E+00	
481130	0.00E+00	2.50E-08
481131	8.02E+12	2.30E-08
481140	0.00E+00	
481150	1.89E+16	1.40E-09
481151	9.42E+14	3.30E-09
481160	0.00E+00	
481170	3.81E+17	2.80E-10
481171	2.91E+17	2.80E-10
481180	1.17E+18	
481190	6.22E+18	
481191	1.83E+19	
481200	6.85E+19	
481210	2.70E+20	
481220	6.22E+20	
481230	4.04E+20	
481240	1.96E+20	
481250	2.06E+21	
481260	8.80E+20	
481270	4.99E+21	
481280	2.53E+21	
481290	9.58E+21	
481300	6.13E+21	
481310	2.67E+22	
481320	2.18E+22	
491130	0.00E+00	
491131	6.19E+17	2.80E-11
491140	5.09E+19	
491141	8.56E+14	4.10E-09
491150	2.30E-01	3.20E-08
491151	2.34E+17	8.60E-11
491160	2.55E+20	
491161	1.11E+18	6.40E-11
491170	1.35E+18	3.10E-11
491171	5.11E+17	1.20E-10
491180	7.07E+20	
491181	1.32E+19	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
491190	2.34E+19	
491191	3.25E+18	4.70E-11
491200	7.83E+19	
491201	1.13E+21	
491210	1.23E+20	
491211	1.74E+19	
491220	3.42E+20	
491221	2.28E+21	
491230	5.68E+20	
491231	7.07E+19	
491240	1.05E+21	
491250	1.43E+21	
491251	2.78E+20	
491260	2.17E+21	
491270	1.64E+21	
491271	9.03E+20	
491280	8.81E+20	
491290	4.04E+21	
491300	6.06E+21	
491310	1.06E+22	
491320	2.64E+22	
491330	2.76E+22	
491340	4.02E+22	
501140	0.00E+00	
501150	0.00E+00	
501160	0.00E+00	
501170	0.00E+00	
501171	2.95E+15	7.10E-10
501180	0.00E+00	
501190	0.00E+00	
501191	1.66E+14	3.40E-10
501200	0.00E+00	
501210	3.58E+16	2.30E-10
501211	2.19E+12	3.80E-10
501220	0.00E+00	
501230	3.04E+14	2.10E-09
501231	1.41E+18	3.80E-11
501240	0.00E+00	
501250	4.01E+15	3.10E-09
501251	5.85E+18	
501260	1.05E+09	4.70E-09
501270	4.35E+17	2.00E-10
501271	1.33E+19	
501280	9.21E+17	1.50E-10
501290	7.19E+18	
501291	2.16E+19	
501300	1.44E+19	
501310	5.06E+19	
501320	7.91E+19	
501330	2.14E+21	
501340	3.69E+21	
501350	1.06E+22	
501360	7.43E+21	
511210	0.00E+00	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
511220	1.47E+16	1.70E-09
511221	1.36E+19	
511230	0.00E+00	
511240	6.47E+14	2.50E-09
511241	3.62E+19	8.00E-12
511250	3.82E+13	1.10E-09
511260	3.09E+15	2.40E-09
511261	2.91E+18	3.60E-11
511270	9.88E+15	1.70E-09
511280	1.01E+17	7.60E-10
511281	5.23E+18	
511290	2.08E+17	3.30E-11
511300	1.34E+18	9.10E-11
511301	8.49E+18	
511310	2.31E+18	1.00E-10
511320	1.88E+19	
511321	1.25E+19	
511330	2.18E+19	
511340	2.83E+20	
511341	2.91E+20	
511350	1.82E+21	
511360	1.33E+22	
511370	1.07E+22	
511380	2.32E+22	
511390	1.75E+22	
521200	0.00E+00	
521230	1.08E+01	4.40E-09
521231	3.28E+14	1.40E-09
521240	0.00E+00	
521250	0.00E+00	
521251	6.66E+14	8.70E-10
521260	0.00E+00	
521270	9.76E+16	1.70E-10
521271	3.49E+14	2.30E-09
521280	0.00E+00	
521290	7.75E+17	6.30E-11
521291	1.11E+15	3.00E-09
521300	0.00E+00	
521310	2.12E+18	8.70E-11
521311	2.95E+16	1.90E-09
521320	1.12E+16	3.70E-09
521330	4.20E+18	7.20E-11
521331	9.44E+17	2.80E-10
521340	1.24E+18	1.10E-10
521350	1.61E+20	
521360	1.46E+20	
521370	8.71E+20	
521380	1.84E+21	
521390	7.09E+21	
521400	3.97E+21	
521410	1.26E+22	
521420	5.98E+21	
531270	0.00E+00	
531280	2.18E+18	4.60E-11

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
531290	6.53E+06	1.10E-07
531300	7.22E+16	2.00E-09
531301	5.95E+18	
531310	4.59E+15	2.20E-08
531320	3.82E+17	2.90E-10
531330	4.19E+16	4.30E-09
531331	3.49E+20	
531340	9.87E+17	1.10E-10
531341	1.40E+19	
531350	1.30E+17	9.30E-10
531360	3.70E+19	
531361	6.67E+19	
531370	1.24E+20	
531380	4.73E+20	
531390	1.25E+21	
531400	3.47E+21	
531410	7.40E+21	
531420	1.50E+22	
531430	8.90E+21	
531440	2.18E+22	
541270	1.04E+15	
541280	0.00E+00	
541290	0.00E+00	
541291	4.68E+15	
541300	0.00E+00	
541310	0.00E+00	
541311	3.10E+15	
541320	0.00E+00	
541330	6.93E+15	
541331	1.66E+16	
541340	0.00E+00	
541341	1.07E+22	
541350	9.45E+16	
541351	3.37E+18	
541360	0.00E+00	
541370	1.33E+19	
541380	3.56E+18	
541390	7.60E+19	
541400	2.19E+20	
541410	1.72E+21	
541420	2.41E+21	
541430	9.73E+21	
541440	2.90E+21	
541450	3.20E+21	
541460	3.05E+21	
541470	1.08E+22	
551320	5.65E+15	5.00E-10
551330	0.00E+00	
551340	4.79E+13	1.90E-08
551341	2.98E+17	2.00E-11
551350	4.26E+07	2.00E-09
551351	9.72E+17	1.90E-11
551360	2.71E+15	3.00E-09
551370	3.22E+12	1.30E-08

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
551380	1.57E+18	9.20E-11
551381	1.74E+19	
551390	5.32E+18	
551400	4.67E+19	
551410	1.18E+20	
551420	1.73E+21	
551430	1.72E+21	
551440	2.84E+21	
551450	5.14E+21	
551460	1.50E+22	
551470	5.09E+21	
551480	1.40E+22	
551500	2.24E+22	
561320	0.00E+00	
561330	9.26E+12	1.50E-09
561340	0.00E+00	
561350	0.00E+00	
561351	2.99E+16	4.30E-10
561360	0.00E+00	
561361	9.97E+21	
561370	0.00E+00	
561371	1.99E+19	
561380	0.00E+00	
561390	6.05E+17	1.20E-10
561400	2.70E+15	2.60E-09
561410	2.70E+18	7.00E-11
561420	4.58E+18	3.50E-11
561430	2.15E+20	
561440	2.64E+20	
561450	4.64E+20	
561460	1.30E+21	
561470	1.28E+21	
561480	4.78E+20	
561490	3.05E+21	
561500	1.55E+21	
561520	3.64E+21	
571380	7.10E+02	1.10E-09
571390	0.00E+00	
571400	2.06E+16	2.00E-09
571410	2.09E+17	3.60E-10
571420	5.29E+17	1.80E-10
571430	3.48E+18	5.60E-11
571440	7.25E+19	
571450	9.93E+19	
571460	3.44E+20	
571470	2.84E+20	
571480	2.17E+21	
571490	9.78E+20	
571500	4.29E+21	
571510	2.90E+21	
571520	8.88E+21	
571530	6.24E+21	
571540	1.55E+22	
581390	2.53E+14	2.60E-10

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
581400	0.00E+00	
581410	1.05E+15	7.10E-10
581420	8.88E+02	
581430	2.46E+16	1.10E-09
581440	1.18E+14	5.20E-09
581450	1.60E+19	
581460	3.36E+18	
581470	4.06E+19	
581480	6.56E+19	
581490	2.80E+21	
581500	2.78E+21	
581510	2.76E+21	
581520	1.96E+20	
581530	1.58E+21	
581540	7.55E+20	
581550	3.78E+21	
581560	2.30E+21	
581570	7.35E+21	
591400	1.47E+19	
591410	0.00E+00	
591420	4.27E+16	1.30E-09
591421	3.36E+18	1.70E-11
591430	2.49E+15	1.20E-09
591440	2.80E+18	5.00E-11
591441	6.71E+18	
591450	1.34E+17	3.90E-10
591460	1.97E+18	
591470	3.94E+18	3.30E-11
591480	2.04E+19	
591490	2.03E+19	
591500	2.24E+20	
591510	6.91E+20	
591520	3.30E+20	
591530	3.52E+20	
591540	2.07E+21	
591550	1.42E+21	
591560	5.24E+21	
591570	3.92E+21	
591580	1.00E+22	
591590	8.36E+21	
601420	0.00E+00	
601430	0.00E+00	
601440	4.38E-02	
601450	0.00E+00	
601460	0.00E+00	
601470	2.97E+15	1.10E-09
601480	0.00E+00	
601490	4.50E+17	1.20E-10
601500	0.00E+00	
601510	3.72E+18	3.00E-11
601520	3.98E+18	
601530	4.04E+19	
601540	6.78E+19	
601550	1.03E+20	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
601560	4.57E+19	
601570	6.41E+20	
601580	3.35E+20	
601590	1.86E+21	
601600	1.23E+21	
601610	4.66E+21	
611460	1.65E+13	9.00E-10
611470	3.43E+13	2.60E-10
611480	6.08E+15	2.70E-09
611481	7.90E+14	1.80E-09
611490	1.47E+16	9.90E-10
611500	2.88E+17	2.60E-10
611510	2.70E+16	7.30E-10
611520	1.12E+19	
611521	6.10E+18	
611530	8.42E+18	
611540	1.61E+19	
611541	2.51E+19	
611550	7.37E+19	
611560	2.04E+20	
611570	3.91E+19	
611580	6.95E+20	
611590	6.21E+20	
611600	2.62E+21	
611610	2.18E+21	
611620	6.44E+21	
621460	1.30E+06	5.40E-08
621470	8.41E+02	4.90E-08
621480	1.12E-02	
621490	8.88E-03	
621500	0.00E+00	
621510	9.73E+11	9.80E-11
621520	0.00E+00	
621530	1.62E+16	7.40E-10
621540	0.00E+00	
621550	2.02E+18	2.90E-11
621560	7.91E+16	2.50E-10
621570	5.54E+18	
621580	1.00E+18	
621590	1.62E+19	
621600	7.47E+18	
621610	2.01E+20	
621620	1.32E+20	
621630	9.99E+20	
621640	5.99E+20	
621650	2.73E+21	
631500	2.45E+12	1.30E-09
631510	0.00E+00	
631520	6.40E+12	1.40E-09
631521	8.19E+16	5.00E-10
631530	0.00E+00	
631540	9.99E+12	2.00E-09
631550	1.72E+13	3.20E-10
631560	2.04E+15	2.20E-09

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
631570	4.86E+16	6.00E-10
631580	9.59E+17	9.40E-11
631590	2.42E+18	
631600	5.12E+19	
631610	6.16E+19	
631620	9.55E+18	
631630	1.73E+20	
631640	1.17E+21	
631650	9.93E+20	
641520	8.06E-01	4.10E-08
641530	1.30E+14	2.70E-10
641540	0.00E+00	
641550	0.00E+00	
641551	8.69E+22	
641560	0.00E+00	
641570	0.00E+00	
641580	0.00E+00	
641590	3.92E+16	4.90E-10
641600	0.00E+00	
641610	1.17E+19	
641620	4.29E+18	
641630	2.76E+19	
641640	1.96E+18	
641650	2.52E+19	
651590	0.00E+00	
651600	4.18E+14	1.60E-09
651610	4.34E+15	7.20E-10
651620	5.75E+18	
651621	3.21E+17	
651630	2.19E+18	
651640	1.41E+19	
651650	7.72E+19	
661600	0.00E+00	
661610	0.00E+00	
661620	0.00E+00	
661630	0.00E+00	
661640	0.00E+00	
661650	2.99E+17	1.10E-10
661651	3.36E+19	
661660	8.57E+15	1.60E-09
671650	0.00E+00	
671660	2.61E+16	1.40E-09
671661	6.64E+10	2.00E-09
681660	0.00E+00	
681670	0.00E+00	
681671	1.09E+21	
681680	0.00E+00	
681690	3.04E+15	3.70E-10
681700	0.00E+00	
681710	9.02E+16	3.60E-10
681720	1.38E+16	1.00E-09
691690	0.00E+00	
691700	2.21E+14	1.30E-09
691701	5.99E+26	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
691710	4.03E+13	1.10E-10
691720	1.06E+16	1.70E-09
701700	0.00E+00	
701710	0.00E+00	
701720	0.00E+00	
812060	8.06E+18	
812070	7.05E+18	
812080	1.09E+19	
812090	1.51E+19	
822060	0.00E+00	
822070	0.00E+00	
822080	0.00E+00	
822090	1.68E+17	5.70E-11
822100	2.82E+12	6.90E-07
822110	9.13E+17	1.80E-10
822120	5.14E+16	6.00E-09
822140	1.21E+18	1.40E-10
832080	1.73E+08	
832090	0.00E+00	
832100	4.59E+15	1.30E-09
832101	2.10E+07	1.50E-08
832110	1.55E+19	
832120	5.42E+17	2.60E-10
832130	7.15E+17	2.00E-10
832140	1.63E+18	1.10E-10
842100	1.66E+14	1.20E-06
842110	3.53E+21	
842111	7.91E+19	
842120	6.56E+27	
842130	4.67E+26	
842140	1.19E+25	
842150	1.09E+24	
842160	1.29E+22	
842180	1.05E+19	
852170	5.96E+22	
862180	5.47E+22	
862190	4.81E+20	
862200	3.41E+19	
862220	5.69E+15	
872210	6.56E+18	
872230	1.43E+18	2.30E-09
882220	4.95E+19	
882230	1.89E+15	1.00E-07
882240	5.89E+15	6.50E-08
882250	1.45E+15	9.80E-08
882260	3.66E+10	2.80E-07
882280	8.66E+12	6.90E-07
892250	2.15E+15	2.40E-08
892270	2.68E+12	1.10E-06
892280	8.30E+16	4.30E-10
902260	9.93E+17	3.50E-10
902270	1.14E+15	8.90E-09
902280	3.03E+13	7.20E-08
902290	7.87E+09	4.90E-07

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
902300	7.47E+08	2.10E-07
902310	1.97E+16	3.40E-10
902320	4.06E+03	2.30E-07
902330	1.35E+18	
902340	8.57E+14	3.40E-09
912310	1.75E+09	7.10E-07
912320	1.59E+16	7.20E-10
912330	7.68E+14	8.70E-10
912340	7.40E+16	5.10E-10
912341	2.54E+19	
912350	1.23E+18	
922300	1.01E+15	5.50E-08
922310	4.98E+15	2.80E-10
922320	7.92E+11	3.30E-07
922330	3.58E+08	5.10E-08
922340	2.31E+08	4.90E-08
922350	8.00E+04	4.70E-08
922360	2.39E+06	4.70E-08
922370	3.02E+15	
922380	1.24E+04	4.50E-08
922390	1.24E+18	2.70E-11
922400	3.43E+16	1.10E-09
922410	1.73E+21	
932350	5.19E+13	5.30E-11
932360	4.87E+08	1.70E-08
932361	2.18E+16	1.90E-10
932370	2.61E+07	1.10E-07
932380	9.59E+15	9.10E-10
932390	8.58E+15	8.00E-10
932400	4.46E+17	8.20E-11
932401	3.92E+18	
932410	1.80E+18	
942360	1.97E+13	8.70E-08
942370	4.47E+14	1.00E-10
942380	6.33E+11	2.30E-07
942390	2.30E+09	2.50E-07
942400	8.43E+09	2.50E-07
942410	3.81E+12	4.80E-09
942420	1.41E+08	2.40E-07
942430	9.63E+16	8.50E-11
942440	6.56E+05	2.40E-07
942450	4.46E+16	7.20E-10
942460	1.81E+15	3.30E-09
952390	4.08E+16	2.40E-10
952400	9.51E+15	5.80E-10
952410	1.27E+11	2.00E-07
952420	2.99E+16	3.00E-10
952421	3.60E+11	1.90E-07
952430	7.38E+09	2.00E-07
952440	4.71E+16	4.60E-10
952441	1.10E+18	2.90E-11
952450	2.29E+17	6.20E-11
952460	1.13E+18	5.80E-11
962410	5.57E+14	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
962420	1.22E+14	1.20E-08
962430	1.91E+12	1.50E-07
962440	2.99E+12	1.20E-07
962450	6.35E+09	2.10E-07
962460	1.14E+10	2.10E-07
962470	3.43E+06	1.90E-07
962480	1.57E+08	7.70E-07
962490	4.36E+17	3.10E-11
962500	3.04E+09	
962510	1.66E+21	
972490	6.06E+13	9.70E-10
972500	1.44E+17	1.40E-10
972510	4.86E+17	
982490	1.52E+11	3.50E-07
982500	4.04E+12	1.60E-07
982510	5.87E+10	3.60E-07
982520	1.99E+13	9.00E-08
982530	1.07E+15	1.40E-09
982540	3.14E+14	4.00E-07
982550	3.03E+17	
992530	9.33E+14	6.10E-09
992540	6.90E+13	2.80E-08
992541	1.16E+16	4.20E-09
992550	4.86E+14	

Tabella B.1: Coefficienti per il calcolo della radiotossicità con i valori ottenuti da ICRP 72 del 1996 per ALEPH-1.1.2. nel caso di studiare tutto il combustibile esaurito in uscita da un LWR

B.2 Coefficienti per ALEPH-1.1.2 nel caso di SNF proveniente da un ADS caricato con combustibile in matrice inerte MgO

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
10010	0.00E+00	
10020	0.00E+00	
10030	3.57E+14	1.80E-11
20030	0.00E+00	
20040	0.00E+00	
20060	8.61E+22	
30060	0.00E+00	
30070	0.00E+00	
30080	6.20E+22	
40080	2.61E+28	
40090	0.00E+00	
40100	8.27E+08	1.10E-09
40110	2.79E+21	
50100	0.00E+00	
50110	0.00E+00	
50120	1.71E+24	
60120	0.00E+00	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
60130	0.00E+00	
60140	1.65E+11	5.80E-10
60150	1.14E+22	
70130	5.37E+19	
70140	0.00E+00	
70150	0.00E+00	
70160	3.66E+21	
80160	0.00E+00	
80170	0.00E+00	
80180	0.00E+00	
80190	7.58E+20	
90190	0.00E+00	
90200	1.83E+21	
100200	0.00E+00	
100210	0.00E+00	
100220	0.00E+00	
100230	4.87E+20	
110220	2.31E+14	3.20E-09
110230	0.00E+00	
110240	3.22E+17	4.30E-10
110241	8.74E+23	
110250	2.80E+20	
120240	0.00E+00	
120250	0.00E+00	
120260	0.00E+00	
120270	2.72E+19	
120280	1.98E+17	2.20E-09
130270	0.00E+00	
130280	1.11E+20	
130290	3.68E+19	
130300	3.78E+21	
140280	0.00E+00	
140290	0.00E+00	
140300	0.00E+00	
140310	1.43E+18	1.60E-10
140320	6.36E+11	5.60E-10
150310	0.00E+00	
150320	1.06E+16	2.40E-09
160320	0.00E+00	
270720	4.72E+22	
270730	4.95E+22	
270740	5.25E+22	
270750	6.94E+22	
280720	2.40E+21	
280730	1.45E+22	
280740	8.70E+21	
280750	3.10E+22	
280760	2.05E+22	
280770	5.27E+22	
280780	3.89E+22	
290660	2.07E+19	
290670	2.80E+16	3.40E-10
290720	9.66E+20	
290730	1.45E+21	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
290740	9.84E+21	
290750	7.26E+21	
290760	2.48E+22	
290770	1.84E+22	
290780	4.44E+22	
290790	3.58E+22	
290800	5.73E+22	
290810	6.92E+22	
300660	0.00E+00	
300670	0.00E+00	
300680	0.00E+00	
300690	1.77E+18	3.10E-11
300691	1.22E+17	3.30E-10
300700	0.00E+00	
300710	4.08E+19	
300711	4.17E+17	2.40E-10
300720	3.46E+16	1.40E-09
300730	2.43E+20	
300740	5.94E+19	
300750	6.18E+20	
300760	1.02E+21	
300770	3.87E+21	
300780	2.20E+21	
300790	1.38E+22	
300800	7.34E+21	
300810	3.98E+22	
300820	3.76E+22	
300830	6.00E+22	
310690	0.00E+00	
310700	4.71E+18	3.10E-11
310710	0.00E+00	
310720	1.14E+17	1.10E-09
310730	3.25E+17	2.60E-10
310740	1.16E+19	
310750	4.88E+19	
310760	2.03E+20	
310770	4.17E+20	
310780	1.09E+21	
310790	1.85E+21	
310800	3.07E+21	
310810	7.31E+21	
310820	3.31E+22	
310830	3.41E+22	
310840	5.03E+22	
320700	0.00E+00	
320710	5.77E+15	1.20E-11
320720	0.00E+00	
320730	0.00E+00	
320731	1.08E+22	
320740	0.00E+00	
320750	1.12E+18	4.60E-11
320751	1.14E+20	
320760	0.00E+00	
320770	1.33E+17	3.30E-10

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
320771	9.98E+19	
320780	1.03E+18	1.20E-10
320790	1.23E+20	
320800	2.17E+20	
320810	5.10E+20	
320820	1.11E+21	
320830	2.65E+21	
320840	4.14E+21	
320850	2.10E+22	
320860	1.87E+22	
320870	3.82E+22	
320880	3.32E+22	
330750	0.00E+00	
330760	5.80E+16	1.60E-09
330770	3.88E+16	4.00E-10
330780	9.83E+17	2.10E-10
330790	9.78E+18	
330800	3.16E+20	
330810	1.61E+20	
330820	2.42E+20	
330821	3.92E+20	
330830	3.73E+20	
330840	8.57E+20	
330850	2.42E+21	
330860	5.39E+21	
330870	1.60E+22	
330880	3.65E+22	
330890	3.62E+22	
340760	0.00E+00	
340770	0.00E+00	
340771	3.10E+20	
340780	0.00E+00	
340790	2.58E+09	2.90E-09
340791	2.26E+19	
340800	0.00E+00	
340810	4.64E+18	2.70E-11
340811	1.50E+18	5.30E-11
340820	0.00E+00	
340830	3.73E+18	4.70E-11
340831	7.18E+19	
340840	2.51E+19	
340850	1.26E+20	
340851	2.58E+20	
340860	2.92E+20	
340870	8.57E+20	
340880	3.16E+21	
340890	1.14E+22	
340900	8.36E+21	
340910	2.49E+22	
340920	1.83E+22	
350790	0.00E+00	
350791	1.09E+21	
350800	5.00E+18	3.10E-11
350801	3.28E+17	1.10E-10

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
350810	0.00E+00	
350820	4.01E+16	5.40E-10
350821	1.38E+19	
350830	5.85E+17	4.30E-11
350840	2.60E+18	8.80E-11
350841	1.38E+19	
350850	2.86E+19	
350860	8.83E+19	
350861	1.08E+21	
350870	8.60E+19	
350880	2.91E+20	
350890	1.04E+21	
350900	2.90E+21	
350910	7.65E+21	
350920	1.51E+22	
350930	2.23E+22	
350940	4.02E+22	
350950	3.77E+22	
350960	5.19E+22	
360790	4.21E+16	
360800	0.00E+00	
360810	7.78E+08	
360811	3.87E+20	
360820	0.00E+00	
360830	0.00E+00	
360831	7.63E+17	
360840	0.00E+00	
360850	1.45E+13	
360851	3.04E+17	
360860	0.00E+00	
360870	1.05E+18	
360880	4.64E+17	
360890	2.47E+19	
360900	1.44E+20	
360910	5.27E+20	
360920	2.47E+21	
360930	3.53E+21	
360940	2.11E+22	
360950	8.79E+21	
360960	9.87E+21	
360970	2.90E+22	
360980	1.90E+22	
370850	0.00E+00	
370860	3.01E+15	2.80E-09
370861	7.95E+19	
370870	3.24E+03	1.50E-09
370880	4.44E+18	9.00E-11
370890	5.14E+18	4.70E-11
370900	3.03E+19	
370901	1.80E+19	
370910	7.88E+19	
370920	1.01E+21	
370930	7.74E+20	
370940	1.65E+21	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
370950	1.22E+22	
370960	2.10E+22	
370970	2.53E+22	
370980	3.04E+22	
370990	5.55E+22	
371000	4.15E+22	
380860	0.00E+00	
380870	0.00E+00	
380871	4.75E+17	3.00E-11
380880	0.00E+00	
380890	1.07E+15	2.60E-09
380900	5.05E+12	2.80E-08
380910	1.34E+17	6.50E-10
380920	4.65E+17	4.30E-10
380930	9.97E+18	
380940	5.87E+19	
380950	1.69E+20	
380960	1.09E+21	
380970	2.15E+22	
380980	5.01E+21	
380990	7.53E+21	
381000	3.99E+21	
381010	1.64E+22	
381020	9.87E+21	
381030	2.92E+22	
381040	2.09E+22	
390890	0.00E+00	
390891	2.92E+20	
390900	2.01E+16	2.70E-09
390901	4.16E+17	1.70E-10
390910	9.07E+14	2.40E-09
390911	1.54E+18	1.10E-11
390920	3.56E+17	4.90E-10
390930	1.23E+17	1.20E-09
390940	3.87E+18	8.10E-11
390950	6.97E+18	4.60E-11
390960	3.15E+19	
390970	3.88E+21	
390980	1.42E+22	
390990	5.27E+21	
391000	5.52E+21	
391010	4.23E+21	
391020	1.50E+22	
391030	1.11E+22	
391040	2.78E+22	
391050	2.29E+22	
391070	3.73E+22	
400900	0.00E+00	
400901	5.59E+21	
400910	0.00E+00	
400920	0.00E+00	
400930	9.30E+07	1.10E-09
400940	0.00E+00	
400950	7.95E+14	9.50E-10

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
400960	0.00E+00	
400970	7.07E+16	2.10E-09
400980	1.37E+20	
400990	1.76E+21	
401000	5.88E+20	
401010	1.25E+21	
401020	1.43E+20	
401030	2.29E+21	
401040	1.06E+21	
401050	7.12E+21	
401060	4.02E+21	
401070	1.57E+22	
401080	9.48E+21	
401090	2.76E+22	
410920	5.17E+15	
410930	0.00E+00	
410931	1.05E+13	1.20E-10
410940	6.93E+09	1.70E-09
410941	1.18E+19	
410950	1.45E+15	5.80E-10
410951	1.41E+16	5.60E-10
410960	5.17E+16	1.10E-09
410970	9.95E+17	6.80E-11
410971	7.17E+19	
410980	1.52E+21	1.10E-10
410981	1.38E+18	
410990	2.95E+20	
410991	2.70E+19	
411000	1.74E+21	
411001	1.73E+21	
411010	5.90E+20	
411020	1.36E+21	
411030	2.59E+20	
411040	4.01E+21	
411050	2.21E+21	
411060	7.36E+21	
411070	5.83E+21	
411080	1.74E+22	
411090	1.34E+22	
411100	3.02E+22	
411110	2.41E+22	
420950	0.00E+00	
420960	0.00E+00	
420970	0.00E+00	
420980	0.00E+00	
420990	1.77E+16	6.00E-10
421000	0.00E+00	
421010	4.71E+18	4.10E-11
421020	6.14E+18	
421030	6.75E+19	
421040	4.18E+19	
421050	7.36E+19	
421060	4.38E+20	
421070	6.10E+20	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
421080	2.58E+21	
421090	3.71E+21	
421100	2.01E+21	
421110	9.60E+21	
421120	5.41E+21	
421130	1.87E+22	
421140	1.14E+22	
421150	3.13E+22	
430980	3.21E+07	2.00E-09
430990	6.27E+08	6.40E-10
430991	1.95E+17	2.20E-11
431000	2.64E+20	
431010	4.85E+18	1.90E-11
431020	7.75E+20	
431021	1.57E+19	
431030	8.11E+19	
431040	3.68E+18	8.00E-11
431050	8.28E+18	
431060	1.06E+20	
431070	1.35E+20	
431080	7.43E+20	
431090	7.51E+19	
431100	4.57E+21	
431110	2.81E+21	
431120	1.05E+22	
431130	8.06E+21	
431140	2.11E+22	
431150	1.63E+22	
431160	3.39E+22	
431170	2.64E+22	
440990	0.00E+00	
441000	0.00E+00	
441010	0.00E+00	
441020	0.00E+00	
441030	1.19E+15	7.30E-10
441040	0.00E+00	
441050	2.49E+17	2.60E-10
441060	1.24E+14	7.00E-09
441070	1.55E+19	
441080	1.43E+19	
441090	1.09E+20	
441100	2.37E+20	
441110	2.44E+20	
441120	5.32E+21	
441130	1.34E+21	
441140	7.25E+20	
441150	4.98E+21	
441160	2.56E+21	
441170	1.15E+22	
441180	5.74E+21	
441200	1.19E+22	
451020	4.47E+13	2.60E-09
451030	0.00E+00	
451031	1.20E+18	3.80E-12

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
451040	9.49E+19	
451041	1.54E+19	
451050	3.12E+16	3.70E-10
451051	8.83E+19	
451060	1.32E+20	
451061	4.97E+17	1.60E-10
451070	3.00E+18	2.40E-11
451080	2.30E+20	
451081	1.09E+19	
451090	4.26E+19	
451091	7.66E+19	
451100	1.31E+20	
451101	1.26E+21	
451110	5.97E+19	
451120	7.93E+20	
451130	4.10E+21	
451140	2.15E+21	
451150	6.03E+20	
451160	4.32E+21	
451170	3.32E+21	
451180	1.20E+22	
451190	7.84E+21	
451200	2.14E+22	
451210	1.56E+22	
451220	3.25E+22	
451230	2.54E+22	
461040	0.00E+00	
461050	0.00E+00	
461060	0.00E+00	
461070	1.90E+07	3.70E-11
461071	1.83E+20	
461080	0.00E+00	
461090	7.90E+16	5.50E-10
461091	1.36E+19	
461100	0.00E+00	
461110	2.85E+18	
461111	1.90E+17	
461120	5.15E+16	
461130	4.10E+19	
461140	2.54E+19	
461150	9.55E+19	
461160	2.57E+20	
461170	7.14E+20	
461180	1.14E+21	
461190	2.05E+21	
461200	8.14E+20	
461210	5.55E+21	
461220	2.69E+21	
461230	1.09E+22	
461240	6.01E+21	
461260	1.15E+22	
471060	5.36E+15	3.20E-11
471070	0.00E+00	
471080	2.72E+19	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
471081	9.64E+11	2.30E-09
471090	0.00E+00	
471091	9.67E+19	
471100	1.54E+20	
471101	1.76E+14	2.80E-09
471110	5.84E+15	1.30E-09
471111	5.79E+19	
471120	3.31E+17	4.30E-10
471130	1.94E+17	
471131	5.60E+19	
471140	8.10E+20	
471150	3.02E+18	6.00E-11
471151	2.14E+20	
471160	2.24E+19	
471161	3.46E+20	
471170	4.87E+19	
471171	6.73E+20	
471180	9.56E+20	
471181	1.26E+21	
471190	5.85E+20	
471200	2.97E+21	
471210	1.15E+21	
471220	3.42E+22	
471230	3.93E+21	
471240	1.25E+22	
471250	8.74E+21	
471260	2.13E+22	
471280	3.18E+22	
481080	0.00E+00	
481090	9.55E+13	2.00E-09
481100	0.00E+00	
481110	0.00E+00	
481111	1.29E+18	
481120	0.00E+00	
481130	0.00E+00	2.50E-08
481131	8.02E+12	2.30E-08
481140	0.00E+00	
481150	1.89E+16	1.40E-09
481151	9.42E+14	3.30E-09
481160	0.00E+00	
481170	3.81E+17	2.80E-10
481171	2.91E+17	2.80E-10
481180	1.17E+18	
481190	6.22E+18	
481191	1.83E+19	
481200	6.85E+19	
481210	2.70E+20	
481220	6.22E+20	
481230	4.04E+20	
481240	1.96E+20	
481250	2.06E+21	
481260	8.80E+20	
481270	4.99E+21	
481280	2.53E+21	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
481290	9.58E+21	
481300	6.13E+21	
481310	2.67E+22	
481320	2.18E+22	
491130	0.00E+00	
491131	6.19E+17	2.80E-11
491140	5.09E+19	
491141	8.56E+14	4.10E-09
491150	2.30E-01	3.20E-08
491151	2.34E+17	8.60E-11
491160	2.55E+20	
491161	1.11E+18	6.40E-11
491170	1.35E+18	3.10E-11
491171	5.11E+17	1.20E-10
491180	7.07E+20	
491181	1.32E+19	
491190	2.34E+19	
491191	3.25E+18	4.70E-11
491200	7.83E+19	
491201	1.13E+21	
491210	1.23E+20	
491211	1.74E+19	
491220	3.42E+20	
491221	2.28E+21	
491230	5.68E+20	
491231	7.07E+19	
491240	1.05E+21	
491250	1.43E+21	
491251	2.78E+20	
491260	2.17E+21	
491270	1.64E+21	
491271	9.03E+20	
491280	8.81E+20	
491290	4.04E+21	
491300	6.06E+21	
491310	1.06E+22	
491320	2.64E+22	
491330	2.76E+22	
491340	4.02E+22	
501140	0.00E+00	
501150	0.00E+00	
501160	0.00E+00	
501170	0.00E+00	
501171	2.95E+15	7.10E-10
501180	0.00E+00	
501190	0.00E+00	
501191	1.66E+14	3.40E-10
501200	0.00E+00	
501210	3.58E+16	2.30E-10
501211	2.19E+12	3.80E-10
501220	0.00E+00	
501230	3.04E+14	2.10E-09
501231	1.41E+18	3.80E-11
501240	0.00E+00	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
501250	4.01E+15	3.10E-09
501251	5.85E+18	
501260	1.05E+09	4.70E-09
501270	4.35E+17	2.00E-10
501271	1.33E+19	
501280	9.21E+17	1.50E-10
501290	7.19E+18	
501291	2.16E+19	
501300	1.44E+19	
501310	5.06E+19	
501320	7.91E+19	
501330	2.14E+21	
501340	3.69E+21	
501350	1.06E+22	
501360	7.43E+21	
511210	0.00E+00	
511220	1.47E+16	1.70E-09
511221	1.36E+19	
511230	0.00E+00	
511240	6.47E+14	2.50E-09
511241	3.62E+19	8.00E-12
511250	3.82E+13	1.10E-09
511260	3.09E+15	2.40E-09
511261	2.91E+18	3.60E-11
511270	9.88E+15	1.70E-09
511280	1.01E+17	7.60E-10
511281	5.23E+18	
511290	2.08E+17	3.30E-11
511300	1.34E+18	9.10E-11
511301	8.49E+18	
511310	2.31E+18	1.00E-10
511320	1.88E+19	
511321	1.25E+19	
511330	2.18E+19	
511340	2.83E+20	
511341	2.91E+20	
511350	1.82E+21	
511360	1.33E+22	
511370	1.07E+22	
511380	2.32E+22	
511390	1.75E+22	
521220	0.00E+00	
521230	1.08E+01	4.40E-09
521231	3.28E+14	1.40E-09
521240	0.00E+00	
521250	0.00E+00	
521251	6.66E+14	8.70E-10
521260	0.00E+00	
521270	9.76E+16	1.70E-10
521271	3.49E+14	2.30E-09
521280	0.00E+00	
521290	7.75E+17	6.30E-11
521291	1.11E+15	3.00E-09
521300	0.00E+00	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
521310	2.12E+18	8.70E-11
521311	2.95E+16	1.90E-09
521320	1.12E+16	3.70E-09
521330	4.20E+18	7.20E-11
521331	9.44E+17	2.80E-10
521340	1.24E+18	1.10E-10
521350	1.61E+20	
521360	1.46E+20	
521370	8.71E+20	
521380	1.84E+21	
521390	7.09E+21	
521400	3.97E+21	
521410	1.26E+22	
521420	5.98E+21	
531270	0.00E+00	
531280	2.18E+18	4.60E-11
531290	6.53E+06	1.10E-07
531300	7.22E+16	2.00E-09
531301	5.95E+18	
531310	4.59E+15	2.20E-08
531320	3.82E+17	2.90E-10
531330	4.19E+16	4.30E-09
531331	3.49E+20	
531340	9.87E+17	1.10E-10
531341	1.40E+19	
531350	1.30E+17	9.30E-10
531360	3.70E+19	
531361	6.67E+19	
531370	1.24E+20	
531380	4.73E+20	
531390	1.25E+21	
531400	3.47E+21	
531410	7.40E+21	
531420	1.50E+22	
531430	8.90E+21	
531440	2.18E+22	
541270	1.04E+15	
541280	0.00E+00	
541290	0.00E+00	
541291	4.68E+15	
541300	0.00E+00	
541310	0.00E+00	
541311	3.10E+15	
541320	0.00E+00	
541330	6.93E+15	
541331	1.66E+16	
541340	0.00E+00	
541341	1.07E+22	
541350	9.45E+16	
541351	3.37E+18	
541360	0.00E+00	
541370	1.33E+19	
541380	3.56E+18	
541390	7.60E+19	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
541400	2.19E+20	
541410	1.72E+21	
541420	2.41E+21	
541430	9.73E+21	
541440	2.90E+21	
541450	3.20E+21	
541460	3.05E+21	
541470	1.08E+22	
551320	5.65E+15	5.00E-10
551330	0.00E+00	
551340	4.79E+13	1.90E-08
551341	2.98E+17	2.00E-11
551350	4.26E+07	2.00E-09
551351	9.72E+17	1.90E-11
551360	2.71E+15	3.00E-09
551370	3.22E+12	1.30E-08
551380	1.57E+18	9.20E-11
551381	1.74E+19	
551390	5.32E+18	
551400	4.67E+19	
551410	1.18E+20	
551420	1.73E+21	
551430	1.72E+21	
551440	2.84E+21	
551450	5.14E+21	
551460	1.50E+22	
551470	5.09E+21	
551480	1.40E+22	
551500	2.24E+22	
561320	0.00E+00	
561330	9.26E+12	1.50E-09
561340	0.00E+00	
561350	0.00E+00	
561351	2.99E+16	4.30E-10
561360	0.00E+00	
561361	9.97E+21	
561370	0.00E+00	
561371	1.99E+19	
561380	0.00E+00	
561390	6.05E+17	1.20E-10
561400	2.70E+15	2.60E-09
561410	2.70E+18	7.00E-11
561420	4.58E+18	3.50E-11
561430	2.15E+20	
561440	2.64E+20	
561450	4.64E+20	
561460	1.30E+21	
561470	1.28E+21	
561480	4.78E+20	
561490	3.05E+21	
561500	1.55E+21	
561520	3.64E+21	
571380	7.10E+02	1.10E-09
571390	0.00E+00	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
571400	2.06E+16	2.00E-09
571410	2.09E+17	3.60E-10
571420	5.29E+17	1.80E-10
571430	3.48E+18	5.60E-11
571440	7.25E+19	
571450	9.93E+19	
571460	3.44E+20	
571470	2.84E+20	
571480	2.17E+21	
571490	9.78E+20	
571500	4.29E+21	
571510	2.90E+21	
571520	8.88E+21	
571530	6.24E+21	
571540	1.55E+22	
581390	2.53E+14	2.60E-10
581400	0.00E+00	
581410	1.05E+15	7.10E-10
581420	8.88E+02	
581430	2.46E+16	1.10E-09
581440	1.18E+14	5.20E-09
581450	1.60E+19	
581460	3.36E+18	
581470	4.06E+19	
581480	6.56E+19	
581490	2.80E+21	
581500	2.78E+21	
581510	2.76E+21	
581520	1.96E+20	
581530	1.58E+21	
581540	7.55E+20	
581550	3.78E+21	
581560	2.30E+21	
581570	7.35E+21	
591400	1.47E+19	
591410	0.00E+00	
591420	4.27E+16	1.30E-09
591421	3.36E+18	1.70E-11
591430	2.49E+15	1.20E-09
591440	2.80E+18	5.00E-11
591441	6.71E+18	
591450	1.34E+17	3.90E-10
591460	1.97E+18	
591470	3.94E+18	3.30E-11
591480	2.04E+19	
591490	2.03E+19	
591500	2.24E+20	
591510	6.91E+20	
591520	3.30E+20	
591530	3.52E+20	
591540	2.07E+21	
591550	1.42E+21	
591560	5.24E+21	
591570	3.92E+21	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
591580	1.00E+22	
591590	8.36E+21	
601420	0.00E+00	
601430	0.00E+00	
601440	4.38E-02	
601450	0.00E+00	
601460	0.00E+00	
601470	2.97E+15	1.10E-09
601480	0.00E+00	
601490	4.50E+17	1.20E-10
601500	0.00E+00	
601510	3.72E+18	3.00E-11
601520	3.98E+18	
601530	4.04E+19	
601540	6.78E+19	
601550	1.03E+20	
601560	4.57E+19	
601570	6.41E+20	
601580	3.35E+20	
601590	1.86E+21	
601600	1.23E+21	
601610	4.66E+21	
611460	1.65E+13	9.00E-10
611470	3.43E+13	2.60E-10
611480	6.08E+15	2.70E-09
611481	7.90E+14	1.80E-09
611490	1.47E+16	9.90E-10
611500	2.88E+17	2.60E-10
611510	2.70E+16	7.30E-10
611520	1.12E+19	
611521	6.10E+18	
611530	8.42E+18	
611540	1.61E+19	
611541	2.51E+19	
611550	7.37E+19	
611560	2.04E+20	
611570	3.91E+19	
611580	6.95E+20	
611590	6.21E+20	
611600	2.62E+21	
611610	2.18E+21	
611620	6.44E+21	
621460	1.30E+06	5.40E-08
621470	8.41E+02	4.90E-08
621480	1.12E-02	
621490	8.88E-03	
621500	0.00E+00	
621510	9.73E+11	9.80E-11
621520	0.00E+00	
621530	1.62E+16	7.40E-10
621540	0.00E+00	
621550	2.02E+18	2.90E-11
621560	7.91E+16	2.50E-10
621570	5.54E+18	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
621580	1.00E+18	
621590	1.62E+19	
621600	7.47E+18	
621610	2.01E+20	
621620	1.32E+20	
621630	9.99E+20	
621640	5.99E+20	
621650	2.73E+21	
631500	2.45E+12	1.30E-09
631510	0.00E+00	
631520	6.40E+12	1.40E-09
631521	8.19E+16	5.00E-10
631530	0.00E+00	
631540	9.99E+12	2.00E-09
631550	1.72E+13	3.20E-10
631560	2.04E+15	2.20E-09
631570	4.86E+16	6.00E-10
631580	9.59E+17	9.40E-11
631590	2.42E+18	
631600	5.12E+19	
631610	6.16E+19	
631620	9.55E+18	
631630	1.73E+20	
631640	1.17E+21	
631650	9.93E+20	
641520	8.06E-01	4.10E-08
641530	1.30E+14	2.70E-10
641540	0.00E+00	
641550	0.00E+00	
641551	8.69E+22	
641560	0.00E+00	
641570	0.00E+00	
641580	0.00E+00	
641590	3.92E+16	4.90E-10
641600	0.00E+00	
641610	1.17E+19	
641620	4.29E+18	
641630	2.76E+19	
641640	1.96E+18	
641650	2.52E+19	
651590	0.00E+00	
651600	4.18E+14	1.60E-09
651610	4.34E+15	7.20E-10
651620	5.75E+18	
651621	3.21E+17	
651630	2.19E+18	
651640	1.41E+19	
651650	7.72E+19	
661600	0.00E+00	
661610	0.00E+00	
661620	0.00E+00	
661630	0.00E+00	
661640	0.00E+00	
661650	2.99E+17	1.10E-10

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
661651	3.36E+19	
661660	8.57E+15	1.60E-09
671650	0.00E+00	
671660	2.61E+16	1.40E-09
671661	6.64E+10	2.00E-09
681660	0.00E+00	
681670	0.00E+00	
681671	1.09E+21	
681680	0.00E+00	
681690	3.04E+15	3.70E-10
681700	0.00E+00	
681710	9.02E+16	3.60E-10
681720	1.38E+16	1.00E-09
691690	0.00E+00	
691700	2.21E+14	1.30E-09
691701	5.99E+26	
691710	4.03E+13	1.10E-10
691720	1.06E+16	1.70E-09
701700	0.00E+00	
701710	0.00E+00	
701720	0.00E+00	
812060	8.06E+18	
812070	7.05E+18	
812080	1.09E+19	
812090	1.51E+19	
822060	0.00E+00	
822070	0.00E+00	
822080	0.00E+00	
822090	1.68E+17	5.70E-11
822100	2.82E+12	6.90E-07
822110	9.13E+17	1.80E-10
822120	5.14E+16	6.00E-09
822140	1.21E+18	1.40E-10
832080	1.73E+08	
832090	0.00E+00	
832100	4.59E+15	1.30E-09
832101	2.10E+07	1.50E-08
832110	1.55E+19	
832120	5.42E+17	2.60E-10
832130	7.15E+17	2.00E-10
832140	1.63E+18	1.10E-10
842100	1.66E+14	1.20E-06
842110	3.53E+21	
842111	7.91E+19	
842120	6.56E+27	
842130	4.67E+26	
842140	1.19E+25	
842150	1.09E+24	
842160	1.29E+22	
842180	1.05E+19	
852170	5.96E+22	
862180	5.47E+22	
862190	4.81E+20	
862200	3.41E+19	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
862220	5.69E+15	
872210	6.56E+18	
872230	1.43E+18	2.30E-09
882220	4.95E+19	
882230	1.89E+15	1.00E-07
882240	5.89E+15	6.50E-08
882250	1.45E+15	9.80E-08
882260	3.66E+10	2.80E-07
882280	8.66E+12	6.90E-07
892250	2.15E+15	2.40E-08
892270	2.68E+12	1.10E-06
892280	8.30E+16	4.30E-10
902260	9.93E+17	3.50E-10
902270	1.14E+15	8.90E-09
902280	3.03E+13	7.20E-08
902290	7.87E+09	4.90E-07
902300	7.47E+08	2.10E-07
902310	1.97E+16	3.40E-10
902320	4.06E+03	2.30E-07
902330	1.35E+18	
902340	8.57E+14	3.40E-09
912310	1.75E+09	7.10E-07
912320	1.59E+16	7.20E-10
912330	7.68E+14	8.70E-10
912340	7.40E+16	5.10E-10
912341	2.54E+19	
912350	1.23E+18	
922300	1.01E+15	5.50E-08
922310	4.98E+15	2.80E-10
922320	7.92E+11	3.30E-07
922330	3.58E+08	5.10E-08
922340	2.31E+08	4.90E-08
922350	8.00E+04	4.70E-08
922360	2.39E+06	4.70E-08
922370	3.02E+15	7.60E-10
922380	1.24E+04	4.50E-08
922390	1.24E+18	2.70E-11
922400	3.43E+16	1.10E-09
922410	1.73E+21	
932350	5.19E+13	5.30E-11
932360	4.87E+08	1.70E-08
932361	2.18E+16	1.90E-10
932370	2.61E+07	1.10E-07
932380	9.59E+15	9.10E-10
932390	8.58E+15	8.00E-10
932400	4.46E+17	8.20E-11
932401	3.92E+18	
932410	1.80E+18	
942360	1.97E+13	8.70E-08
942370	4.47E+14	1.00E-10
942380	6.33E+11	2.30E-07
942390	2.30E+09	2.50E-07
942400	8.43E+09	2.50E-07
942410	3.81E+12	4.80E-09

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
942420	1.41E+08	2.40E-07
942430	9.63E+16	8.50E-11
942440	6.56E+05	2.40E-07
942450	4.46E+16	7.20E-10
942460	1.81E+15	3.30E-09
952390	4.08E+16	2.40E-10
952400	9.51E+15	5.80E-10
952410	1.27E+11	2.00E-07
952420	2.99E+16	3.00E-10
952421	3.60E+11	1.90E-07
952430	7.38E+09	2.00E-07
952440	4.71E+16	4.60E-10
952441	1.10E+18	2.90E-11
952450	2.29E+17	6.20E-11
952460	1.13E+18	5.80E-11
962410	5.57E+14	9.10E-10
962420	1.22E+14	1.20E-08
962430	1.91E+12	1.50E-07
962440	2.99E+12	1.20E-07
962450	6.35E+09	2.10E-07
962460	1.14E+10	2.10E-07
962470	3.43E+06	1.90E-07
962480	1.57E+08	7.70E-07
962490	4.36E+17	3.10E-11
962500	3.04E+09	
962510	1.66E+21	
972490	6.06E+13	9.70E-10
972500	1.44E+17	1.40E-10
972510	4.86E+17	
982490	1.52E+11	3.50E-07
982500	4.04E+12	1.60E-07
982510	5.87E+10	3.60E-07
982520	1.99E+13	9.00E-08
982530	1.07E+15	1.40E-09
982540	3.14E+14	4.00E-07
982550	3.03E+17	
992530	9.33E+14	6.10E-09
992540	6.90E+13	2.80E-08
992541	1.16E+16	4.20E-09
992550	4.86E+14	

Tabella B.2: Coefficienti per il calcolo della radiotossicità con i valori ottenuti da ICRP 72 del 1996 per ALEPH-1.1.2. nel caso di studiare tutto il combustibile, costruito in matrice inerte di MgO, esaurito in uscita da un ADS

B.3 Coefficienti per ORIGEN2.2 preparati per tutti i 1306 nuclidi considerati dal programma

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
10010	0.00E+00	
10020	0.00E+00	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
10030	9.65E+03	1.80E-11
10040	2.82E+15	
20030	0.00E+00	
20040	0.00E+00	
20060	2.33E+12	
30060	0.00E+00	
30070	0.00E+00	
30080	1.67E+12	
40080	7.05E+17	
40090	0.00E+00	
40100	2.23E-02	1.10E-09
40110	7.54E+10	
50100	0.00E+00	
50110	0.00E+00	
50120	4.63E+13	
60120	0.00E+00	
60130	0.00E+00	
60140	4.46E+00	5.80E-10
60150	3.07E+11	
70130	1.45E+09	
70140	0.00E+00	
70150	0.00E+00	
70160	9.90E+10	
80160	0.00E+00	
80170	0.00E+00	
80180	0.00E+00	
80190	2.05E+10	
90190	0.00E+00	
90200	4.95E+10	
100200	0.00E+00	
100210	0.00E+00	
100220	0.00E+00	
100230	1.32E+10	
110220	6.25E+03	3.20E-09
110230	0.00E+00	
110240	8.71E+06	4.30E-10
110241	2.36E+13	
110250	7.57E+09	
120240	0.00E+00	
120250	0.00E+00	
120260	0.00E+00	
120270	7.36E+08	
120280	5.35E+06	2.20E-09
130270	0.00E+00	
130280	3.00E+09	
130290	9.94E+08	
130300	1.02E+11	
140280	0.00E+00	
140290	0.00E+00	
140300	0.00E+00	
140310	3.86E+07	1.60E-10
140320	1.72E+01	5.60E-10
150310	0.00E+00	
150320	2.85E+05	2.40E-09

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
150330	1.58E+05	2.40E-10
150340	2.68E+10	
160320	0.00E+00	
160330	0.00E+00	
160340	0.00E+00	
160350	4.24E+04	1.30E-10
160360	0.00E+00	
160370	1.00E+09	
170350	0.00E+00	
170360	3.30E-02	9.30E-10
170370	0.00E+00	
170380	1.33E+08	1.20E-10
170381	4.15E+11	
180360	0.00E+00	
180370	1.01E+05	
180380	0.00E+00	
180390	3.41E+01	
180400	0.00E+00	
180410	4.18E+07	
180420	2.58E+02	
190390	0.00E+00	
190400	6.98E-06	6.20E-09
190410	0.00E+00	
190420	6.04E+06	4.30E-10
190430	3.22E+06	2.50E-10
190440	1.94E+08	8.40E-11
200400	0.00E+00	
200410	1.08E-01	1.90E-10
200420	0.00E+00	
200430	0.00E+00	
200440	0.00E+00	
200450	1.78E+04	7.10E-10
200460	0.00E+00	
200470	6.12E+05	1.60E-09
200480	0.00E+00	
200490	4.36E+08	
210450	0.00E+00	
210460	3.39E+04	1.50E-09
210461	1.31E+10	
210470	8.29E+05	5.40E-10
210480	1.49E+06	1.70E-09
210490	6.67E+07	8.20E-11
210500	2.20E+09	
220460	0.00E+00	
220470	0.00E+00	
220480	0.00E+00	
220490	0.00E+00	
220500	0.00E+00	
220510	6.40E+08	
230490	8.08E+03	1.80E-11
230500	1.79E-13	
230510	0.00E+00	
230520	9.64E+08	
230530	2.20E+09	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
230540	3.80E+09	
240500	0.00E+00	
240510	9.24E+04	3.80E-11
240520	0.00E+00	
240530	0.00E+00	
240540	0.00E+00	
240550	9.63E+08	
250540	7.74E+03	7.10E-10
250550	0.00E+00	
250560	2.17E+07	2.50E-10
250570	2.05E+09	
250580	2.98E+09	
260540	0.00E+00	
260550	2.50E+03	3.30E-10
260560	0.00E+00	
260570	0.00E+00	
260580	0.00E+00	
260590	4.92E+04	1.80E-09
270580	3.18E+04	7.40E-10
270581	5.91E+06	2.40E-11
270590	0.00E+00	
270600	1.13E+03	3.40E-09
270601	2.99E+08	1.70E-12
270610	3.11E+07	7.40E-11
270620	2.02E+09	
270720	1.28E+12	
270730	1.34E+12	
270740	1.42E+12	
270750	1.88E+12	
280580	0.00E+00	
280590	7.58E-02	6.30E-11
280600	0.00E+00	
280610	0.00E+00	
280620	0.00E+00	
280630	6.17E+01	1.50E-10
280640	0.00E+00	
280650	1.91E+07	1.80E-10
280660	8.69E+05	3.00E-09
280720	6.48E+10	
280730	3.93E+11	
280740	2.35E+11	
280750	8.38E+11	
280760	5.53E+11	
280770	1.43E+12	
280780	1.05E+12	
290620	3.11E+08	
290630	0.00E+00	
290640	3.86E+06	1.20E-10
290650	0.00E+00	
290660	5.59E+08	
290670	7.56E+05	3.40E-10
290720	2.61E+10	
290730	3.91E+10	
290740	2.66E+11	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
290750	1.96E+11	
290760	6.71E+11	
290770	4.97E+11	
290780	1.20E+12	
290790	9.69E+11	
290800	1.55E+12	
290810	1.87E+12	
300630	7.75E+07	7.90E-11
300640	0.00E+00	
300650	8.24E+03	3.90E-09
300660	0.00E+00	
300670	0.00E+00	
300680	0.00E+00	
300690	4.78E+07	3.10E-11
300691	3.30E+06	3.30E-10
300700	0.00E+00	
300710	1.10E+09	
300711	1.13E+07	2.40E-10
300720	9.36E+05	1.40E-09
300730	6.58E+09	
300740	1.60E+09	
300750	1.67E+10	
300760	2.75E+10	
300770	1.05E+11	
300780	5.95E+10	
300790	3.74E+11	
300800	1.98E+11	
300810	1.08E+12	
300820	1.02E+12	
300830	1.62E+12	
310690	0.00E+00	
310700	1.27E+08	3.10E-11
310710	0.00E+00	
310720	3.09E+06	1.10E-09
310721	3.95E+12	
310730	8.80E+06	2.60E-10
310740	3.14E+08	
310750	1.32E+09	
310760	5.48E+09	
310770	1.13E+10	
310780	2.95E+10	
310790	4.99E+10	
310800	8.30E+10	
310810	1.97E+11	
310820	8.95E+11	
310830	9.20E+11	
310840	1.36E+12	
310850	1.44E+12	
320700	0.00E+00	
320710	1.56E+05	1.20E-11
320711	7.26E+12	
320720	0.00E+00	
320730	0.00E+00	
320731	2.92E+11	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
320740	0.00E+00	
320750	3.03E+07	4.60E-11
320751	3.08E+09	
320760	0.00E+00	
320770	3.60E+06	3.30E-10
320771	2.70E+09	
320780	2.77E+07	1.20E-10
320790	3.32E+09	
320800	5.88E+09	
320810	1.38E+10	
320820	2.99E+10	
320830	7.15E+10	
320840	1.12E+11	
320850	5.67E+11	
320860	5.07E+11	
320870	1.03E+12	
320880	8.98E+11	
330750	0.00E+00	
330760	1.57E+06	1.60E-09
330770	1.05E+06	4.00E-10
330780	2.66E+07	2.10E-10
330790	2.64E+08	
330800	8.55E+09	
330810	4.35E+09	
330820	6.55E+09	
330821	1.06E+10	
330830	1.01E+10	
330840	2.32E+10	
330850	6.54E+10	
330860	1.46E+11	
330870	4.32E+11	
330880	9.87E+11	
330890	9.80E+11	
330900	1.39E+12	
340740	0.00E+00	
340750	1.45E+04	2.60E-09
340760	0.00E+00	
340770	0.00E+00	
340771	8.37E+09	
340780	0.00E+00	
340790	6.97E-02	2.90E-09
340791	6.12E+08	
340800	0.00E+00	
340810	1.25E+08	2.70E-11
340811	4.05E+07	5.30E-11
340820	0.00E+00	
340830	1.01E+08	4.70E-11
340831	1.94E+09	
340840	6.78E+08	
340850	3.40E+09	
340851	6.99E+09	
340860	7.90E+09	
340870	2.32E+10	
340880	8.55E+10	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
340890	3.09E+11	
340900	2.26E+11	
340910	6.72E+11	
340920	4.95E+11	
340930	1.14E+12	
350790	0.00E+00	
350791	2.94E+10	
350800	1.35E+08	3.10E-11
350801	8.86E+06	1.10E-10
350810	0.00E+00	
350820	1.08E+06	5.40E-10
350821	3.74E+08	
350830	1.58E+07	4.30E-11
350840	7.04E+07	8.80E-11
350841	3.73E+08	
350850	7.72E+08	
350860	2.39E+09	
350861	2.92E+10	
350870	2.32E+09	
350880	7.87E+09	
350890	2.82E+10	
350900	7.83E+10	
350910	2.07E+11	
350920	4.09E+11	
350930	6.03E+11	
350940	1.09E+12	
350950	1.02E+12	
350960	1.40E+12	
360780	0.00E+00	
360790	1.14E+06	
360791	2.60E+09	
360800	0.00E+00	
360810	2.10E-02	
360811	1.05E+10	
360820	0.00E+00	
360830	0.00E+00	
360831	2.06E+07	
360840	0.00E+00	
360850	3.92E+02	
360851	8.23E+06	
360860	0.00E+00	
360870	2.83E+07	
360880	1.25E+07	
360890	6.66E+08	
360900	3.88E+09	
360910	1.42E+10	
360920	6.66E+10	
360930	9.55E+10	
360940	5.72E+11	
360950	2.38E+11	
360960	2.67E+11	
360970	7.83E+11	
360980	5.13E+11	
370850	0.00E+00	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
370860	8.14E+04	2.80E-09
370861	2.15E+09	
370870	8.75E-08	1.50E-09
370880	1.20E+08	9.00E-11
370890	1.39E+08	4.70E-11
370900	8.19E+08	
370901	4.86E+08	
370910	2.13E+09	
370920	2.74E+10	
370930	2.09E+10	
370940	4.46E+10	
370950	3.30E+11	
370960	5.68E+11	
370970	6.84E+11	
370980	8.22E+11	
370990	1.50E+12	
371000	1.12E+12	
371010	9.86E+11	
380840	0.00E+00	
380850	2.37E+04	5.60E-10
380851	3.16E+07	6.10E-12
380860	0.00E+00	
380870	0.00E+00	
380871	1.28E+07	3.00E-11
380880	0.00E+00	
380890	2.91E+04	2.60E-09
380900	1.36E+02	2.80E-08
380910	3.62E+06	6.50E-10
380920	1.26E+07	4.30E-10
380930	2.70E+08	
380940	1.59E+09	
380950	4.57E+09	
380960	2.94E+10	
380970	5.82E+11	
380980	1.35E+11	
380990	2.03E+11	
381000	1.08E+11	
381010	4.43E+11	
381020	2.67E+11	
381030	7.90E+11	
381040	5.64E+11	
390890	0.00E+00	
390891	7.89E+09	
390900	5.44E+05	2.70E-09
390901	1.12E+07	1.70E-10
390910	2.45E+04	2.40E-09
390911	4.16E+07	1.10E-11
390920	9.63E+06	4.90E-10
390930	3.34E+06	1.20E-09
390940	1.05E+08	8.10E-11
390950	1.88E+08	4.60E-11
390960	8.52E+08	
390970	1.05E+11	
390980	3.84E+11	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
390990	1.42E+11	
391000	1.49E+11	
391010	1.14E+11	
391020	4.06E+11	
391030	2.99E+11	
391040	7.52E+11	
391050	6.19E+11	
391060	1.15E+12	
391070	1.01E+12	
400890	4.49E+05	7.90E-10
400900	0.00E+00	
400901	1.51E+11	
400910	0.00E+00	
400920	0.00E+00	
400930	2.51E-03	1.10E-09
400940	0.00E+00	
400950	2.15E+04	9.50E-10
400960	0.00E+00	
400970	1.91E+06	2.10E-09
400980	3.71E+09	
400990	4.75E+10	
401000	1.59E+10	
401010	3.38E+10	
401020	3.86E+09	
401030	6.19E+10	
401040	2.87E+10	
401050	1.92E+11	
401060	1.09E+11	
401070	4.24E+11	
401080	2.56E+11	
401090	7.46E+11	
410910	3.93E-01	
410920	1.40E+05	
410930	0.00E+00	
410931	2.83E+02	1.20E-10
410940	1.87E-01	1.70E-09
410941	3.20E+08	
410950	3.91E+04	5.80E-10
410951	3.81E+05	5.60E-10
410960	1.40E+06	1.10E-09
410970	2.69E+07	6.80E-11
410971	1.94E+09	
410980	4.11E+10	1.10E-10
410981	3.73E+07	
410990	7.97E+09	
410991	7.30E+08	
411000	4.70E+10	
411001	4.68E+10	
411010	1.60E+10	
411020	3.69E+10	
411030	6.99E+09	
411040	1.08E+11	
411050	5.97E+10	
411060	1.99E+11	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
411070	1.58E+11	
411080	4.71E+11	
411090	3.62E+11	
411100	8.15E+11	
411110	6.51E+11	
411120	1.18E+12	
420920	0.00E+00	
420930	1.10E+00	3.10E-09
420931	4.92E+06	1.10E-10
420940	0.00E+00	
420950	0.00E+00	
420960	0.00E+00	
420970	0.00E+00	
420980	0.00E+00	
420990	4.80E+05	6.00E-10
421000	0.00E+00	
421010	1.27E+08	4.10E-11
421020	1.66E+08	
421030	1.83E+09	
421040	1.13E+09	
421050	1.99E+09	
421060	1.18E+10	
421070	1.65E+10	
421080	6.96E+10	
421090	1.00E+11	
421100	5.42E+10	
421110	2.59E+11	
421120	1.46E+11	
421130	5.07E+11	
421140	3.08E+11	
421150	8.46E+11	
430970	1.42E-03	6.80E-11
430971	1.50E+04	5.50E-10
430980	8.69E-04	2.00E-09
430990	1.70E-02	6.40E-10
430991	5.26E+06	2.20E-11
431000	7.14E+09	
431010	1.31E+08	1.90E-11
431020	2.09E+10	
431021	4.24E+08	
431030	2.19E+09	
431040	9.93E+07	8.00E-11
431050	2.24E+08	
431060	2.88E+09	
431070	3.64E+09	
431080	2.01E+10	
431090	2.03E+09	
431100	1.24E+11	
431110	7.61E+10	
431120	2.84E+11	
431130	2.18E+11	
431140	5.71E+11	
431150	4.41E+11	
431160	9.16E+11	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
431170	7.13E+11	
431180	1.24E+12	
440960	0.00E+00	
440970	4.64E+05	1.50E-10
440980	0.00E+00	
440990	0.00E+00	
441000	0.00E+00	
441010	0.00E+00	
441020	0.00E+00	
441030	3.23E+04	7.30E-10
441040	0.00E+00	
441050	6.72E+06	2.60E-10
441060	3.35E+03	7.00E-09
441070	4.18E+08	
441080	3.87E+08	
441090	2.96E+09	
441100	6.41E+09	
441110	6.59E+09	
441120	1.44E+11	
441130	3.61E+10	
441140	1.96E+10	
441150	1.34E+11	
441160	6.92E+10	
441170	3.12E+11	
441180	1.55E+11	
441190	5.35E+11	
441200	3.21E+11	
451020	1.21E+03	2.60E-09
451030	0.00E+00	
451031	3.25E+07	3.80E-12
451040	2.56E+09	
451041	4.17E+08	
451050	8.44E+05	3.70E-10
451051	2.39E+09	
451060	3.56E+09	
451061	1.34E+07	1.60E-10
451070	8.10E+07	2.40E-11
451080	6.22E+09	
451081	2.95E+08	
451090	1.15E+09	
451091	2.07E+09	
451100	3.54E+09	
451101	3.42E+10	
451110	1.61E+09	
451120	2.14E+10	
451130	1.11E+11	
451140	5.82E+10	
451150	1.63E+10	
451160	1.17E+11	
451170	8.96E+10	
451180	3.24E+11	
451190	2.12E+11	
451200	5.79E+11	
451210	4.22E+11	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
451220	8.78E+11	
451230	6.87E+11	
461020	0.00E+00	
461030	7.48E+04	1.90E-10
461040	0.00E+00	
461050	0.00E+00	
461060	0.00E+00	
461070	5.14E-04	3.70E-11
461071	4.95E+09	
461080	0.00E+00	
461090	2.14E+06	5.50E-10
461091	3.68E+08	
461100	0.00E+00	
461110	7.70E+07	
461111	5.13E+06	
461120	1.39E+06	
461130	1.11E+09	
461140	6.87E+08	
461150	2.58E+09	
461160	6.95E+09	
461170	1.93E+10	
461180	3.08E+10	
461190	5.54E+10	
461200	2.20E+10	
461210	1.50E+11	
461220	7.28E+10	
461230	2.96E+11	
461240	1.62E+11	
461250	4.93E+11	
461260	3.12E+11	
471060	1.45E+05	3.20E-11
471070	0.00E+00	
471080	7.35E+08	
471081	2.61E+01	2.30E-09
471090	0.00E+00	
471091	2.61E+09	
471100	4.17E+09	
471101	4.75E+03	2.80E-09
471110	1.58E+05	1.30E-09
471111	1.56E+09	
471120	8.94E+06	4.30E-10
471130	5.23E+06	
471131	1.51E+09	
471140	2.19E+10	
471150	8.18E+07	6.00E-11
471151	5.77E+09	
471160	6.05E+08	
471161	9.35E+09	
471170	1.32E+09	
471171	1.82E+10	
471180	2.58E+10	
471181	3.41E+10	
471190	1.58E+10	
471200	8.04E+10	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
471210	3.11E+10	
471220	9.25E+11	
471230	1.06E+11	
471240	3.39E+11	
471250	2.36E+11	
471260	5.76E+11	
471270	4.33E+11	
471280	8.61E+11	
481060	0.00E+00	
481070	4.51E+06	6.20E-11
481080	0.00E+00	
481090	2.58E+03	2.00E-09
481100	0.00E+00	
481110	0.00E+00	
481111	3.48E+07	
481120	0.00E+00	
481130	0.00E+00	2.50E-08
481131	2.17E+02	2.30E-08
481140	0.00E+00	
481150	5.10E+05	1.40E-09
481151	2.55E+04	3.30E-09
481160	0.00E+00	
481170	1.03E+07	2.80E-10
481171	7.88E+06	2.80E-10
481180	3.17E+07	
481190	1.68E+08	
481191	4.94E+08	
481200	1.85E+09	
481210	7.28E+09	
481220	1.68E+10	
481230	1.09E+10	
481240	5.30E+09	
481250	5.56E+10	
481260	2.38E+10	
481270	1.35E+11	
481280	6.83E+10	
481290	2.59E+11	
481300	1.66E+11	
481310	7.22E+11	
481320	5.90E+11	
491130	0.00E+00	
491131	1.67E+07	2.80E-11
491140	1.38E+09	
491141	2.31E+04	4.10E-09
491150	6.22E-12	3.20E-08
491151	6.34E+06	8.60E-11
491160	6.90E+09	
491161	2.99E+07	6.40E-11
491170	3.65E+07	3.10E-11
491171	1.38E+07	1.20E-10
491180	1.91E+10	
491181	3.58E+08	
491190	6.32E+08	
491191	8.78E+07	4.70E-11

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
491200	2.12E+09	
491201	3.05E+10	
491210	3.33E+09	
491211	4.71E+08	
491220	9.25E+09	
491221	6.16E+10	
491230	1.54E+10	
491231	1.91E+09	
491240	2.84E+10	
491250	3.87E+10	
491251	7.52E+09	
491260	5.85E+10	
491270	4.44E+10	
491271	2.44E+10	
491280	2.38E+10	
491290	1.09E+11	
491300	1.64E+11	
491310	2.87E+11	
491320	7.12E+11	
491330	7.45E+11	
491340	1.09E+12	
501120	0.00E+00	
501130	1.00E+04	7.30E-10
501131	8.32E+07	
501140	0.00E+00	
501150	0.00E+00	
501160	0.00E+00	
501170	0.00E+00	
501171	7.97E+04	7.10E-10
501180	0.00E+00	
501190	0.00E+00	
501191	4.48E+03	3.40E-10
501200	0.00E+00	
501210	9.66E+05	2.30E-10
501211	5.91E+01	3.80E-10
501220	0.00E+00	
501230	8.22E+03	2.10E-09
501231	3.81E+07	3.80E-11
501240	0.00E+00	
501250	1.08E+05	3.10E-09
501251	1.58E+08	
501260	2.84E-02	4.70E-09
501270	1.18E+07	2.00E-10
501271	3.58E+08	
501280	2.49E+07	1.50E-10
501290	1.94E+08	
501291	5.83E+08	
501300	3.89E+08	
501310	1.37E+09	
501320	2.14E+09	
501330	5.77E+10	
501340	9.97E+10	
501350	2.87E+11	
501360	2.01E+11	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
511210	0.00E+00	
511220	3.96E+05	1.70E-09
511221	3.67E+08	
511230	0.00E+00	
511240	1.75E+04	2.50E-09
511241	9.78E+08	8.00E-12
511250	1.03E+03	1.10E-09
511260	8.36E+04	2.40E-09
511261	7.85E+07	3.60E-11
511270	2.67E+05	1.70E-09
511280	2.72E+06	7.60E-10
511281	1.41E+08	
511290	5.62E+06	3.30E-11
511300	3.62E+07	9.10E-11
511301	2.30E+08	
511310	6.24E+07	1.00E-10
511320	5.09E+08	
511321	3.39E+08	
511330	5.89E+08	
511340	7.65E+09	
511341	7.87E+09	
511350	4.92E+10	
511360	3.59E+11	
511370	2.90E+11	
511380	6.27E+11	
511390	4.72E+11	
521200	0.00E+00	
521210	6.35E+04	4.30E-10
521211	7.01E+03	2.30E-09
521220	0.00E+00	
521230	2.91E-10	4.40E-09
521231	8.87E+03	1.40E-09
521240	0.00E+00	
521250	0.00E+00	
521251	1.80E+04	8.70E-10
521260	0.00E+00	
521270	2.64E+06	1.70E-10
521271	9.43E+03	2.30E-09
521280	0.00E+00	
521290	2.09E+07	6.30E-11
521291	3.01E+04	3.00E-09
521300	0.00E+00	
521310	5.74E+07	8.70E-11
521311	7.97E+05	1.90E-09
521320	3.04E+05	3.70E-09
521330	1.14E+08	7.20E-11
521331	2.55E+07	2.80E-10
521340	3.36E+07	1.10E-10
521350	4.35E+09	
521360	3.95E+09	
521370	2.35E+10	
521380	4.98E+10	
521390	1.92E+11	
521400	1.07E+11	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
521410	3.39E+11	
521420	1.62E+11	
531250	1.75E+04	1.50E-08
531260	7.96E+04	2.90E-08
531270	0.00E+00	
531280	5.88E+07	4.60E-11
531290	1.77E-04	1.10E-07
531300	1.95E+06	2.00E-09
531301	1.61E+08	
531310	1.24E+05	2.20E-08
531320	1.03E+07	2.90E-10
531330	1.13E+06	4.30E-09
531331	9.42E+09	
531340	2.67E+07	1.10E-10
531341	3.79E+08	
531350	3.51E+06	9.30E-10
531360	9.99E+08	
531361	1.80E+09	
531370	3.35E+09	
531380	1.28E+10	
531390	3.38E+10	
531400	9.37E+10	
531410	2.00E+11	
531420	4.05E+11	
531430	2.40E+11	
531440	5.90E+11	
531450	4.17E+11	
541240	0.00E+00	
541250	1.47E+06	
541251	1.58E+09	
541260	0.00E+00	
541270	2.82E+04	
541271	1.27E+09	
541280	0.00E+00	
541290	0.00E+00	
541291	1.27E+05	
541300	0.00E+00	
541310	0.00E+00	
541311	8.38E+04	
541320	0.00E+00	
541330	1.87E+05	
541331	4.48E+05	
541340	0.00E+00	
541341	2.90E+11	
541350	2.55E+06	
541351	9.11E+07	
541360	0.00E+00	
541370	3.58E+08	
541380	9.62E+07	
541390	2.05E+09	
541400	5.93E+09	
541410	4.65E+10	
541420	6.51E+10	
541430	2.63E+11	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
541440	7.83E+10	
541450	8.64E+10	
541460	8.24E+10	
541470	2.91E+11	
551310	1.03E+05	5.80E-11
551320	1.53E+05	5.00E-10
551330	0.00E+00	
551340	1.29E+03	1.90E-08
551341	8.06E+06	2.00E-11
551350	1.15E-03	2.00E-09
551351	2.63E+07	1.90E-11
551360	7.33E+04	3.00E-09
551370	8.70E+01	1.30E-08
551380	4.23E+07	9.20E-11
551381	4.70E+08	
551390	1.44E+08	
551400	1.26E+09	
551410	3.20E+09	
551420	4.67E+10	
551430	4.64E+10	
551440	7.68E+10	
551450	1.39E+11	
551460	4.07E+11	
551470	1.38E+11	
551480	3.78E+11	
551490	2.72E+11	
551500	6.05E+11	
561300	0.00E+00	
561310	8.44E+04	4.50E-10
561311	9.57E+07	4.90E-12
561320	0.00E+00	
561330	2.50E+02	1.50E-09
561331	6.06E+05	5.40E-10
561340	0.00E+00	
561350	0.00E+00	
561351	8.09E+05	4.30E-10
561360	0.00E+00	
561361	2.69E+11	
561370	0.00E+00	
561371	5.38E+08	
561380	0.00E+00	
561390	1.64E+07	1.20E-10
561400	7.29E+04	2.60E-09
561410	7.30E+07	7.00E-11
561420	1.24E+08	3.50E-11
561430	5.80E+09	
561440	7.12E+09	
561450	1.25E+10	
561460	3.51E+10	
561470	3.45E+10	
561480	1.29E+10	
561490	8.25E+10	
561500	4.19E+10	
561510	1.71E+11	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
561520	9.83E+10	
571370	4.35E-02	8.10E-11
571380	1.92E-08	1.10E-09
571390	0.00E+00	
571400	5.57E+05	2.00E-09
571410	5.65E+06	3.60E-10
571420	1.43E+07	1.80E-10
571430	9.39E+07	5.60E-11
571440	1.96E+09	
571450	2.68E+09	
571460	9.31E+09	
571470	7.67E+09	
571480	5.86E+10	
571490	2.64E+10	
571500	1.16E+11	
571510	7.83E+10	
571520	2.40E+11	
571530	1.69E+11	
571540	4.18E+11	
571550	3.29E+11	
581360	0.00E+00	
581370	2.54E+06	2.50E-11
581371	6.65E+05	5.40E-10
581380	0.00E+00	
581390	6.83E+03	2.60E-10
581391	1.44E+09	
581400	0.00E+00	
581410	2.85E+04	7.10E-10
581420	2.40E-08	
581430	6.64E+05	1.10E-09
581440	3.19E+03	5.20E-09
581450	4.32E+08	
581460	9.07E+07	
581470	1.10E+09	
581480	1.77E+09	
581490	7.57E+10	
581500	7.52E+10	
581510	7.47E+10	
581520	5.29E+09	
581530	4.27E+10	
581540	2.04E+10	
581550	1.02E+11	
581560	6.22E+10	
581570	1.99E+11	
591390	5.12E+06	3.10E-11
591400	3.96E+08	
591410	0.00E+00	
591420	1.15E+06	1.30E-09
591421	9.07E+07	1.70E-11
591430	6.73E+04	1.20E-09
591440	7.55E+07	5.00E-11
591441	1.81E+08	
591450	3.61E+06	3.90E-10
591460	5.32E+07	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingestione
591470	1.07E+08	3.30E-11
591480	5.52E+08	
591490	5.49E+08	
591500	6.07E+09	
591510	1.87E+10	
591520	8.92E+09	
591530	9.52E+09	
591540	5.61E+10	
591550	3.85E+10	
591560	1.42E+11	
591570	1.06E+11	
591580	2.72E+11	
591590	2.26E+11	
601410	8.89E+06	8.30E-12
601420	0.00E+00	
601430	0.00E+00	
601440	1.18E-12	
601450	0.00E+00	
601460	0.00E+00	
601470	8.03E+04	1.10E-09
601480	0.00E+00	
601490	1.22E+07	1.20E-10
601500	0.00E+00	
601510	1.00E+08	3.00E-11
601520	1.08E+08	
601530	1.09E+09	
601540	1.83E+09	
601550	2.79E+09	
601560	1.24E+09	
601570	1.73E+10	
601580	9.05E+09	
601590	5.04E+10	
601600	3.32E+10	
601610	1.26E+11	
611450	1.39E+02	1.10E-10
611460	4.46E+02	9.00E-10
611470	9.27E+02	2.60E-10
611480	1.64E+05	2.70E-09
611481	2.14E+04	1.80E-09
611490	3.96E+05	9.90E-10
611500	7.80E+06	2.60E-10
611510	7.31E+05	7.30E-10
611520	3.02E+08	
611521	1.65E+08	
611530	2.28E+08	
611540	4.36E+08	
611541	6.78E+08	
611550	1.99E+09	
611560	5.52E+09	
611570	1.06E+09	
611580	1.88E+10	
611590	1.68E+10	
611600	7.08E+10	
611610	5.90E+10	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
611620	1.74E+11	
621440	0.00E+00	
621450	2.65E+03	2.10E-10
621460	3.50E-05	5.40E-08
621470	2.27E-08	4.90E-08
621480	3.02E-13	
621490	2.40E-13	
621500	0.00E+00	
621510	2.63E+01	9.80E-11
621520	0.00E+00	
621530	4.39E+05	7.40E-10
621540	0.00E+00	
621550	5.46E+07	2.90E-11
621560	2.14E+06	2.50E-10
621570	1.50E+08	
621580	2.71E+07	
621590	4.37E+08	
621600	2.02E+08	
621610	5.44E+09	
621620	3.55E+09	
621630	2.70E+10	
621640	1.62E+10	
621650	7.37E+10	
631490	9.41E+03	1.00E-10
631500	6.62E+01	1.30E-09
631510	0.00E+00	
631520	1.73E+02	1.40E-09
631521	2.21E+06	5.00E-10
631530	0.00E+00	
631540	2.70E+02	2.00E-09
631550	4.65E+02	3.20E-10
631560	5.51E+04	2.20E-09
631570	1.31E+06	6.00E-10
631580	2.59E+07	9.40E-11
631590	6.53E+07	
631600	1.38E+09	
631610	1.67E+09	
631620	2.58E+08	
631630	4.66E+09	
631640	3.17E+10	
631650	2.68E+10	
641520	2.18E-11	4.10E-08
641530	3.53E+03	2.70E-10
641540	0.00E+00	
641550	0.00E+00	
641551	2.35E+12	
641560	0.00E+00	
641570	0.00E+00	
641580	0.00E+00	
641590	1.06E+06	4.90E-10
641600	0.00E+00	
641610	3.16E+08	
641620	1.16E+08	
641630	7.46E+08	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
641640	5.29E+07	
641650	6.82E+08	
651570	1.52E+01	3.40E-11
651590	0.00E+00	
651600	1.13E+04	1.60E-09
651610	1.17E+05	7.20E-10
651620	1.55E+08	
651621	8.67E+06	
651630	5.92E+07	
651631	1.65E+08	
651640	3.82E+08	
651650	2.09E+09	
661560	0.00E+00	
661570	2.46E+06	6.10E-11
661580	0.00E+00	
661590	5.70E+03	1.00E-10
661600	0.00E+00	
661610	0.00E+00	
661620	0.00E+00	
661630	0.00E+00	
661640	0.00E+00	
661650	8.08E+06	1.10E-10
661651	9.07E+08	
661660	2.32E+05	1.60E-09
671630	6.65E+01	
671650	0.00E+00	
671660	7.04E+05	1.40E-09
671661	1.79E+00	2.00E-09
681620	0.00E+00	
681630	1.54E+07	
681640	0.00E+00	
681650	1.84E+06	1.90E-11
681660	0.00E+00	
681670	0.00E+00	
681671	2.94E+10	
681680	0.00E+00	
681690	8.22E+04	3.70E-10
681700	0.00E+00	
681710	2.44E+06	3.60E-10
681720	3.72E+05	1.00E-09
691690	0.00E+00	
691700	5.97E+03	1.30E-09
691701	1.62E+16	
691710	1.09E+03	1.10E-10
691720	2.86E+05	1.70E-09
691730	2.20E+06	3.10E-10
701680	0.00E+00	
701690	2.41E+04	7.10E-10
701700	0.00E+00	
701710	0.00E+00	
701720	0.00E+00	
701730	0.00E+00	
701740	0.00E+00	
701750	1.78E+05	4.40E-10

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
701751	9.62E+11	
701760	0.00E+00	
701770	9.32E+06	8.80E-11
711750	0.00E+00	
711760	6.78E-08	1.80E-09
711761	4.83E+06	1.70E-10
711770	1.10E+05	5.30E-10
711771	4.76E+03	1.70E-09
721740	0.00E+00	
721750	1.07E+04	4.10E-10
721760	0.00E+00	
721770	0.00E+00	
721780	0.00E+00	
721781	1.58E+10	4.70E-09
721790	0.00E+00	
721791	3.39E+09	1.20E-09
721800	0.00E+00	
721801	3.17E+06	1.70E-10
721810	1.70E+04	1.10E-09
721820	2.18E-04	3.00E-09
731800	1.24E-10	8.40E-10
731810	0.00E+00	
731820	6.24E+03	1.50E-09
731821	6.26E+07	1.20E-11
731830	1.40E+05	1.30E-09
741800	0.00E+00	
741810	5.95E+03	7.60E-11
741820	0.00E+00	
741830	0.00E+00	
741831	1.19E+10	
741840	0.00E+00	
741850	9.40E+03	4.40E-10
741851	6.09E+08	
741860	0.00E+00	
741870	7.01E+05	6.30E-10
741880	1.00E+04	2.10E-09
741890	8.65E+07	
751850	0.00E+00	
751860	1.86E+05	1.50E-09
751870	3.83E-08	5.10E-12
751880	9.82E+05	1.40E-09
751881	5.35E+07	3.00E-11
751890	6.82E+05	7.80E-10
761840	0.00E+00	
761850	7.51E+03	5.10E-10
761860	0.00E+00	
761870	0.00E+00	
761880	0.00E+00	
761890	0.00E+00	
761900	0.00E+00	
761901	1.00E+08	
761910	4.44E+04	5.70E-10
761911	1.26E+06	9.60E-11
761920	0.00E+00	

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
761930	5.24E+05	8.10E-10
761940	3.07E+02	2.40E-09
771910	0.00E+00	
771920	9.19E+03	1.40E-09
771921	7.73E+00	3.10E-10
771930	0.00E+00	
771940	8.44E+05	1.30E-09
771941	1.82E+12	2.10E-09
781900	3.14E-09	
781910	2.28E+05	3.40E-10
781920	0.00E+00	
781930	3.71E+00	3.10E-11
781931	1.57E+05	4.50E-10
781940	0.00E+00	
781950	0.00E+00	
781951	2.13E+05	6.30E-10
781960	0.00E+00	
781970	8.84E+05	4.00E-10
781971	1.19E+07	8.40E-11
781980	0.00E+00	
781990	3.15E+07	3.90E-11
781991	4.02E+09	
791970	0.00E+00	
791980	2.44E+05	1.00E-09
791990	2.09E+05	4.40E-10
792000	1.94E+07	6.80E-11
801960	0.00E+00	
801970	2.45E+05	2.30E-10
801971	6.63E+05	4.70E-10
801980	0.00E+00	
801990	0.00E+00	
801991	2.20E+07	3.10E-11
802000	0.00E+00	
802010	0.00E+00	
802020	0.00E+00	
802030	1.38E+04	5.40E-10
802040	0.00E+00	
802050	1.67E+08	
812030	0.00E+00	
812040	4.61E+02	1.20E-09
812050	0.00E+00	
812060	2.18E+08	
812070	1.90E+08	
812080	2.94E+08	
812090	4.09E+08	
822040	1.25E-14	
822050	5.82E-05	2.80E-10
822060	0.00E+00	
822070	0.00E+00	
822080	0.00E+00	
822090	4.54E+06	5.70E-11
822100	7.63E+01	6.90E-07
822110	2.47E+07	1.80E-10
822120	1.39E+06	6.00E-09

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
822140	3.28E+07	1.40E-10
832080	4.67E-03	
832090	0.00E+00	
832100	1.24E+05	1.30E-09
832101	5.68E-04	1.50E-08
832110	4.18E+08	
832120	1.46E+07	2.60E-10
832130	1.93E+07	2.00E-10
832140	4.42E+07	1.10E-10
842100	4.49E+03	1.20E-06
842110	9.55E+10	
842111	2.14E+09	
842120	1.77E+17	
842130	1.26E+16	
842140	3.21E+14	
842150	2.95E+13	
842160	3.48E+11	
842180	2.83E+08	
852170	1.61E+12	
862180	1.48E+12	
862190	1.30E+10	
862200	9.22E+08	
862220	1.54E+05	
872210	1.77E+08	
872230	3.87E+07	2.30E-09
882220	1.34E+09	
882230	5.12E+04	1.00E-07
882240	1.59E+05	6.50E-08
882250	3.92E+04	9.90E-08
882260	9.89E-01	2.80E-07
882280	2.34E+02	6.90E-07
892250	5.80E+04	2.40E-08
892270	7.23E+01	1.10E-06
892280	2.24E+06	4.30E-10
902260	2.68E+07	3.50E-10
902270	3.07E+04	8.80E-09
902280	8.20E+02	7.20E-08
902290	2.13E-01	4.90E-07
902300	2.02E-02	2.10E-07
902310	5.32E+05	3.40E-10
902320	1.10E-07	2.30E-07
902330	3.65E+07	
902340	2.32E+04	3.40E-09
912310	4.72E-02	7.10E-07
912320	4.30E+05	7.20E-10
912330	2.08E+04	8.70E-10
912340	2.00E+06	5.10E-10
912341	6.87E+08	
912350	3.32E+07	
922300	2.73E+04	5.60E-08
922310	1.35E+05	2.80E-10
922320	2.14E+01	3.30E-07
922330	9.68E-03	5.10E-08
922340	6.25E-03	4.90E-08

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
922350	2.16E-06	4.70E-08
922360	6.47E-05	4.70E-08
922370	8.16E+04	7.60E-10
922380	3.36E-07	4.50E-08
922390	3.34E+07	2.70E-11
922400	9.26E+05	1.10E-09
922410	4.68E+10	
932350	1.40E+03	5.30E-11
932360	1.32E-02	1.70E-08
932361	5.90E+05	1.90E-10
932370	7.05E-04	1.10E-07
932380	2.59E+05	9.10E-10
932390	2.32E+05	8.00E-10
932400	1.21E+07	8.20E-11
932401	1.06E+08	
932410	4.88E+07	
942360	5.31E+02	8.70E-08
942370	1.21E+04	1.00E-10
942380	1.71E+01	2.30E-07
942390	6.22E-02	2.50E-07
942400	2.28E-01	2.50E-07
942410	1.03E+02	4.80E-09
942420	3.82E-03	2.40E-07
942430	2.60E+06	8.50E-11
942440	1.77E-05	2.40E-07
942450	1.21E+06	7.20E-10
942460	4.89E+04	3.30E-09
952390	1.10E+06	2.40E-10
952400	2.57E+05	5.80E-10
952410	3.43E+00	2.00E-07
952420	8.08E+05	3.00E-10
952421	9.72E+00	1.90E-07
952430	1.99E-01	2.00E-07
952440	1.27E+06	4.60E-10
952441	2.96E+07	2.90E-11
952450	6.18E+06	6.20E-11
952460	3.06E+07	5.80E-11
962410	1.51E+04	9.10E-10
962420	3.31E+03	1.20E-08
962430	5.16E+01	1.50E-07
962440	8.09E+01	1.20E-07
962450	1.72E-01	2.10E-07
962460	3.07E-01	2.10E-07
962470	9.28E-05	1.90E-07
962480	4.25E-03	7.70E-07
962490	1.18E+07	3.10E-11
962500	8.22E-02	
962510	4.49E+10	
972490	1.64E+03	9.70E-10
972500	3.89E+06	1.40E-10
972510	1.31E+07	
982490	4.10E+00	3.50E-07
982500	1.09E+02	1.60E-07
982510	1.59E+00	3.60E-07

Nuclide	Bq/g	Sv/Bq-Ingessione
982520	5.38E+02	9.00E-08
982530	2.90E+04	1.40E-09
982540	8.50E+03	4.00E-07
982550	8.19E+06	
992530	2.52E+04	6.10E-09
992540	1.86E+03	2.80E-08
992541	3.14E+05	4.20E-09
992550	1.31E+04	

Tabella B.3: Coefficienti per il calcolo della radiotossicità con i valori ottenuti da ICRP 72 del 1996 per ORIGEN2.2 associabili con i valori di concentrazione dati in uscita dal programma per tutti i 1306 isotopi considerati.

Bibliografia

- [1] W.Haeck and B.Verboomen. *ALEPH 1.1.2 Monte Carlo Burn-Up code SCK-CEN-BLG-1003 Rev.0*. SCK-CEN, Belgium, January 2006.
- [2] H.AitAbderrhaim and D.DeBruyn(editors). *Myrrha-a new future for nuclear research, pre-design (draft2) report*. Technical report, (on CD-Rom), June 2005.
- [3] NEA-OECD. *Physics and safety of trasmutation systems-a status report*. Technical Report No. 6090, NEA-Nuclear Energy Agency OECD-Organisation for Economic Co-operation and Development, 2006.
- [4] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Source and Effects of Ionising Radiation-Annex B: Exposure from natural radiation sources*. UNSCEAR 2000, 2000.
- [5] Commission of the european communities green paper. *a european strategy for sustainable, competitive and secure energy*, SEC (2006)317.
- [6] G.J.VanTuyle and R. B. Matthews. *Candidate approaches for an integrated nuclear waste management strategy-scoping evaluations*. Technical report, Advanced Accelerators Applications-PDO, 2001.
- [7] B.Verboomen, W.Haeck, and H.AitAbderrahim. *Fuel cicle transition-a belgian implementation scenario*. *SCK-CEN*, 2005.
- [8] Annie Makhijani Hisham Zerriffi. *An assessment of trasmutation as a nuclear waste management strategy*. Technical report, the Nuclear Alchemy Gamble, August 25, 2000.

-
- [9] *TECHNOLOGY GOALS FOR GENERATION IV NUCLEAR ENERGY SYSTEMS* Approved by Generation IV Roadmap NERAC Subcommittee (GRNS) on April 13, 2001, For Presentation to NERAC on May 1, 2001.
- [10] IAEA. Implications of partitioning and transmutation in radioactive waste management. Technical Report Serie no. 435, IAEA-International Atomic Energy Agency, December, 2004.
- [11] The European Technical Working Group on ADS. A european roadmap for developing accelerator driven systems (ads) for nuclear waste incineration. Technical report, ENEA-Ente per le Nuove Tecnologie, l'Energia e l'Ambiente, April 2001.
- [12] IAEA-International Atomic Energy Agency. Classification of radioactive waste a safety guide safety series no.111-g-1.1. Technical report, IAEA, Vienna, 1994.
- [13] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY . Standardization of radioactive waste categories, technical reports series no. 101,. Technical report, IAEA, Vienna (1970).
- [14] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Underground disposal of radioactive wastes: Basic guidance, safety series no.54. Technical report, IAEA, Vienna (1981).
- [15] NAGRA. Feasibility demonstration for hlw disposal. Technical report, 2004.
- [16] L.H.Baetslé and Ch.DeRaedt. Limitations of actinide recycle and fuel cycle consequences: a global analysis part 1: Global fuel cycle analysis. *Nuclear Engineering and Design*, 168:191–201, 1997.
- [17] Evgeni Shwageraus. *Rethinking the Light Water Reactor Fuel Cycle*. PhD thesis, Massachusetts Institute of Technology, 2003.
- [18] Organisation for economic co-operation and development, nuclear energy agency actinide and fission product partitioning and transmutation: Status and assessment report ; synthèse des travaux paris: Oecd 1999.

-
- [19] Denise B. Pelowitz. *MCNPX USER's MANUAL, VERSION 2.5.0 LA-CP-05-0369*. Los Alamos National Laboratory, USA, April 2005.
- [20] A.G.Croff. *ORIGEN2: A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code, ORNL/TM-7175*. Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, USA, July 1980.
- [21] Allen G. Croff. Origen: A versatile computer code for calculating the nuclide compositions and characteristics of nuclear materials. *Nuclear Technology*, vol.62, september 1983.
- [22] The European Technical Working Group on ADS. Fuel of the xads. Technical report, ENEA-Ente per le Nuove Tecnologie, l'Energia e l'Ambiente, March 2001.
- [23] H.AitAbderrahim, P.Kupschus, PH.Benoit, and E.Malambu. Myrrha, a multipurpose accelerator driven system for r&d. state of the art of the project at mid 2003. 2003.
- [24] D.Maes. Design of the small-scale experimental ads: Myrrha. *12th International Conference on Emerging Nuclear Energy System (ICENES 2005) Brussel, Belgium August 21-26, SCK-CEN, Mol, Belgium (2005)*, 2005.
- [25] D.W. Muir R.E. Macfarlane. *The NJOY Nuclear Data Processing System Version 91 LA-12470-M*. Los Alamos National Laboratory, USA, 1994.
- [26] S.David H.Nifenecker, O.Meplan. *Accelerator Driven Subcritical Reactors*. Series in Fundamentl and aplied nuclear physics, 2003.
- [27] H.A. Abderrahim B.Verboomen, W.Haack. Working party on scientific issues of the fuel cycle the belgian implementation scenario. *SCK-CEN Mol*, October 2005.
- [28] Charles A. Potter. Internal dosimetry: a review. *Health Physics*, 88(6):565–578, 2005.
- [29] *International Commission on Radiological Protection. Permissible Dose for Internal Radiation. ICRP Publication 2*. Pergamon Press, Oxford, 1959.
- [30] *International Commission on Radiological Protection. Limits for Intake of Radionuclides by Workers. ICRP Pubblicaion 30. Part 1*. Pergamon Press, Oxford, 1978.

-
- [31] *International Commission on Radiological Protection. Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 60.* Pergamon Press, Oxford, 1990.
- [32] B.L.Cohen. Effects of icrp publication 30 and the 1980 beir report on hazard assessments of high-level waste. *Health Physics*, 42:133–143, 1981.
- [33] Bernard L. Cohen. Understanding the toxicity of buried radioactive waste and its impacts. *Health Physics*, 89 (4):355–358, 2005.
- [34] International Commission on Radiological Protection, editor. *Risk Associated with Ionising Radiations.* Pergamon Press, Oxford, 1991.
- [35] Committee to Assess Health Risks form Exposure to Low Levels of Ionising Radiations. *Health Risks from Exposure to Low Levls of Ionising Radiation-BEIR VII Phase 2.* National Academies Press, 2006.
- [36] Committee on the Biological Effects of Ionising Radiations. *Health Effects of the Exposure of Low Level of Ionising Radiation-BEIR V.* National Academy Press, 1990.
- [37] Committee on the Biological Effects of Ionising Radiations. *The Effects on Population of Exposure to Low Level of Ionising Radiation: 1980.* National Academy Press, 1980.
- [38] Bernard L. Cohen. Validity of the linear no-threshold theory of radiation carcinogenesis at low doses. *Medical Sentinel*, 5(4):128–131, 2000.
- [39] Nuclear regulatory Commission. 10 cfr part20. In *Code of Federal Regulation.* Office of the Federal Register National Archives and Records Administration, 1982.
- [40] SECY-01-0148. Processes for revision of 10 cfr part 20 regarding adoption of the occupational dose limits and dosimetric models and related parameters recommended by the international commission on radiological protection (icrp). Technical report, Nuclear regulatory Commission, 2 August 2001.
- [41] SECY-04-0223. Request for approval of staff comments on the 2005 recommendatons of the international commission on radiological protection. Technical report, Nuclear regulatory Commission, 4 Gennaio 2005.

-
- [42] K.J.Kearfott and Ming Zhu. A comparison of values of annual limits on intake presented in icrp 61 and 10 cfr part 20. *Health Physics*, 70(4):552–555, 1996.
- [43] *International Commission on Radiological Protection. Report of the Task Group on Reference Man. ICRP Publication 23.* Pergamon Press, Oxford, 1975.
- [44] Nuclear regulatory Commission. 10 cfr part20. In *Code of Federal Regulation*. Office of the Federal Register National Archives and Records Administration, 1994.
- [45] Belgian arrêté royal 20 juillet 2001: Règlement général de la protection de la population, de travailleurs et de l'environnement contre le danger des rayonnements ionisants.
- [46] *Reccomendation of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 72.* Pergamon Press, Oxford, 1996.
- [47] Bernard L. Cohen. Probabilistic risk analysis for a high-level radioactive waste repository. *Risk Analysis*, 23:909–915, 2003.
- [48] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Source and Effects of Ionising Radiation-Annex B: Exposure from natural radiation sources.* UNCEAR 1982, 1982.
- [49] E.Malambu, V.Sobolev, W.Haack, and H.AitAbderrahim. Modelling incineration of minor actinides in the experiential ads myrrha. 2005.