





# Metodi per Analisi di Sicurezza Nocciolo – PAR 2017

K. W. Burn, P. Console Camprini, R. Pergreffi

Report RdS/PAR2017/123

Metodi per Analisi di Sicurezza Nocciolo – PAR 2017

K. W. Burn, P. Console Camprini, R. Pergreffi (ENEA)

Settembre 2018

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico - ENEA Piano Annuale di Realizzazione 2017 Area: Generazione di energia elettrica con basse emissioni di carbonio Progetto: Sviluppo competenze scientifiche nel campo della sicurezza nucleare e collaborazione ai programmi internazionali per il nucleare di IV generazione - Linea Progettuale 1 Obiettivo: Metodi e analisi per verifiche di sicurezza Responsabile del Progetto: Federico Rocchi, ENEA



Questo rapporto contiene i due seguenti Rapporti Tecnici ENEA:

- K. W. Burn, P. Console Camprini, Sviluppo e Applicazioni di Metodologie Monte Carlo per le Valutazioni Neutroniche in Supporto alle Analisi di Sicurezza dei Reattori Nucleari in Operazione, ADPFISS-LP1-120
- R. Pergreffi, Calcoli di criticità, con codici deterministici, di nuovi combustibili e/o cladding per valutazioni di safety di nocciolo, ADPFISS-LP1-113

|      |                           | Sigla di identificazione | Distrib. | Pag. | di |
|------|---------------------------|--------------------------|----------|------|----|
| ENER | Ricerca Sistema Elettrico | ADPFISS-LP1-120          | L        | 1    | 14 |
| ×.   |                           |                          |          |      |    |

### Sviluppo e Applicazioni di Metodologie Monte Carlo per le Valutazioni Neutroniche in supporto alle Analisi di Sicurezza dei Reattori Nucleari in Operazione

#### Descrittori

Tipologia del documento:

Argomenti trattati:

Rapporto Tecnico Collocazione contrattuale: Accordo di Programma ENEA-MSE su sicurezza nucleare e reattori di IV generazione Metodi Monte Carlo Neutronica Reattori Nucleari Evolutivi Calcoli di Schermaggio Tecniche Riduzione della Varianza

#### Sommario

Questo studio riguarda l'utilizzo del metodo DSA (Direct Statistical Approach) per la produzione dei coefficienti di riduzione della varianza per un calcolo Monte Carlo, qui applicato al codice di calcolo MCNP6.1 mediante patch. Lo studio proposto, svolto nell'ambito di una collaborazione con l'IRSN (Istituto per la Radioprotezione e la Sicurezza Nucleare francese) analizza l'estensione di DSA, che riguarda risposte per problemi in penetrazione. profonda durante calcoli a sorgente fissa, a una successiva versione per problemi di autovalore. Si richiede infatti un'analisi delle differenze nei risultati prodotti dalle due versioni e se ne ricercano le motivazioni: il disaccoppiamento, che consegue alla normale soluzione di problemi di autovalore con risposte di penetrazione profonda, risulta in una soluzione di un problema in sorgente fissa. È stato qui usato in un modello di reattore Gen-III, con risposte di flusso neutronico oltre 100 keV e 1 MeV, danneggiamento dpa da neutroni e fotoni in 4 posizioni angolari sulla superficie del vessel; il tutto a 3 livelli di altezza lungo la dimensione assiale: mezzeria del nocciolo, altezza dei supporti sotto la parte attiva e a una quota ancora inferiore. Queste risposte sono scelte come esempi di problemi in penetrazione profonda. Per esse sono state considerate differenti conformazioni di sorgente di fissione all'interno del nocciolo: omogenea, unico profilo assiale e scansione radiale per assemblaggio, profilo assiale dipendente dall'assemblaggio oltre alla scansione radiale per assemblaggio, una definizione "pin-by-pin" con scansione assiale, un'ulteriore scansione pin-by-pin con una scansione anche radiale a 2 raggi del pin stesso. È indagato anche l'effetto della scelta dello spettro di Watt di fissione: default del codice MCNP6.1, tipico di <sup>235</sup>U e di <sup>239</sup>Pu. Ne risulta significativo l'impatto ed emergono alcune raccomandazioni per la definizione di una sorgente congrua ad analisi di penetrazione profonda, come il danneggiamento al vessel per analisi in supporto all'estensione di vita degli impianti nucleari in esercizio.

Note

Autori:

#### K.W. Burn, P. Console Camprini

| Copia n. |             |            | In carico | a:               |            |               |
|----------|-------------|------------|-----------|------------------|------------|---------------|
| 2        | 0           |            | NOME      |                  |            |               |
|          |             |            | FIRMA     |                  |            |               |
| 1        |             |            | NOME      | ·                |            | к.<br>-       |
|          |             |            | FIRMA     |                  |            | ×             |
| 0        | EMISSIONE   | 22 11 2010 | NOME      | K.W. Burn        | F. Padoani | F. Rocchi     |
| V        | EMISSIONE   | 23-11-2018 | FIRMA     | Kall             | Theo Mai   | Sudenco Rocit |
| REV.     | DESCRIZIONE | DATA       |           | <b>REDAZIONE</b> | CONVALIDA  | APPROVAZIONE  |



### Indice

| 1. | Introduzione  | 3  |
|----|---|----|
| 2. | Estensione di vita degli Impianti Nucleari in Esercizio | 5  |
| 3  | Problema del Danneggiamento del Vessel                  | 7  |
| 4  | Modello di Reattore Gen-III                             | 8  |
| 5  | Metodologia di calcolo                                  | 11 |
| 6  | Conclusioni   | 13 |
| 7  | Riconoscimenti  | 14 |
| 8  | Bibliografia  | 14 |



#### 1. Introduzione

Lo studio sviluppato nel presente rapporto si pone in continuità rispetto all'analisi condotta durante la precedente annualità di Accordo di Programma (AdP), nell'ambito della Linea Progettuale 1 (LP1), in merito allo sviluppo e all'implementazione di metodi Monte Carlo innovativi per l'analisi neutronica a supporto dell'analisi e della progettazione di sistemi nucleari. Tali metodi sono implementati all'interno del codice di calcolo Monte Carlo MCNP6.1, che consente lo studio del trasporto di neutroni e fotoni.

La risoluzione di problemi di penetrazione profonda, per risposte distanti dalla sorgente nello spazio delle fasi, viene normalmente risolta mediante problemi in sorgente fissa con un opportuno insieme di parametri di riduzione della varianza. Mediante l'algoritmo DSA (Direct Statistica Approach), sviluppato presso ENEA, si è introdotta la possibilità di produrre questi coefficienti di riduzione della varianza mediante la minimizzazione del secondo momento associato alla funzione risposta, e inoltre la capacità di soddisfare allo stesso tempo un set di molte risposte all'interno della stessa simulazione, ancorché di sorgente fissa [1]. Questo strumento prevede la soluzione efficace di molti problemi in penetrazione profonda, a patto che sia prodotta preliminarmente una sorgente in grado di descrivere il problema: sia nel caso venga fornita dal modello, sia nel caso sia opportuno produrla. Nel caso di problemi di autovalore, risulta quindi necessario produrre, a priori, una sorgente non nota ma strettamente legata all'autofunzione del flusso neutronico (detta forma principale) nel sistema moltiplicante. Questo comporta quindi il disaccoppiamento del problema in una successione di due simulazioni, con una potenziale perdita di adesione al modello e l'introduzione di approssimazioni.

Per ovviare a questo disaccoppiamento, è stato sviluppato un ulteriore modulo del DSA che consenta di effettuare riduzione della varianza all'interno di un problema di autovalore, consentendo di ottenere la risposta desiderata, allo stesso tempo in cui viene calcolato il coefficiente di moltiplicazione effettivo del sistema, senza di fatto perturbare quest'ultimo ed effettuando un unico calcolo [2].

Questo nuovo approccio simulativo, testato su un benchmark di un reattore Gen-III ed esposto nel rapporto precedente di questa linea di attività, mostra una sensibile differenza di risultati per rivelatori ex-nocciolo (neutroni e fotoni) tale da restituire dei risultati non disaccoppiati (DSA) di circa il 10% maggiori rispetto al caso disaccoppiato (creazione della sorgente e uso del DSA in modalità di sorgente fissa) [3].

Risulta opportuno ora quindi porsi il problema della natura di queste discrepanze, nel senso in cui una differente modalità di preparare il modello e la sua procedura possa aver influito nella descrizione fisica del problema trattato.

Infatti il disaccoppiamento, mediante MCNP6.1, prevede la soluzione di un problema successivo con sorgente fissa, in cui può essere utilizzato uno spettro di sorgente di fissione utilizzato per tutte le particelle campionate: mediando e controllando fortemente la generazione della particella a prescindere dalla composizione dei nuclei del combustibile [4].

Il presente studio ha quindi lo scopo di verificare innanzitutto la dipendenza delle risposte di interesse dallo spettro di generazione, in modo da effettuare un confronto con le discrepanze presentate dal confronto fra il metodo DSA accoppiato e disaccoppiato.

Vengono risolti quindi i problemi in sorgente fissa, a seguito del disaccoppiamento, con 3 differenti spettri di generazione proposti da MCNP6.1: lo spettro di Watt di riferimento per un nuclide fissile, lo spettro di Watt per la fissione termica dell'<sup>235</sup>U, lo spettro di Watt per la fissione termica del <sup>239</sup>Pu.

Secondariamente in questa analisi, interessa poi calcolare l'impatto della rappresentazione geometrica di una sorgente di fissione diffusa nel nocciolo, rispetto alle risposte di penetrazione profonda di interesse. Vengono quindi considerate alcune forme di distribuzione di fissione, per un dato valore di potenza:

- sorgente omogenea all'interno della zona attiva
- sorgente rappresentata mediante un profilo assiale, di alcune decine di elementi, (costante) con una risoluzione radiale che dipende dall'assemblaggio
- sorgente rappresentata mediante un profilo assiale, di alcune decine di elementi, per ogni assemblaggio, nonché una distribuzione radiale che è funzione dell'assemblaggio



- sorgente rappresentata mediante una rappresentazione ago per ago, ciascun ago con la sua propria suddivisione assiale, di alcune decine di elementi
- sorgente rappresentata mediante una rappresentazione ago per ago, ciascun ago con la sua propria suddivisione assiale, inoltre una suddivisione radiale in 2 elementi in simmetria cilindrica

I risultati sono ottenuti e poi confrontati e alcune considerazioni sono esposte. Le simulazioni sono eseguite per un modello di reattore innovativo di generazione Gen-III, mediante il codice di calcolo Monte Carlo MCNP6.1.

I parametri di riduzione della varianza sono prodotto mediante il codice DSA implementato nello stesso MCNP6.1.

Lo studio proposto ha particolare rilevanza per le metodologie impiegate, utili nella determinazione per via simulativa dello stato di deterioramento del vessel di un impianto nucleare a seguito di numerosi anni di vita operativa.

Il notevole interesse tecnologico in questo frangente è motivato dall'approssimarsi alla fine della vita utile inizialmente prevista di una notevole frazione del parco di impianti nucleari presenti in tutte le principali economie mondiali che hanno ricorso a questa fonte nel loro mix energetico.



#### 2. Estensione di vita degli Impianti Nucleari in Esercizio

Un totale di 450 reattori nucleari producono circa l'11% del fabbisogno totale di elettricità in tutto il mondo. Secondo l'Agenzia internazionale per l'energia atomica (AIEA), gli Stati Uniti attualmente gestiscono 99 reattori, diventando così il paese con la maggior parte delle unità in operazione, seguito dalla Francia con 58 unità.

Queste due realtà costituiscono casi di studio e di riferimento in merito alla progettazione, realizzazione, gestione e manutenzione di un parco nucleare nazionale che costituisce una porzione importante del fabbisogno energetico elettrico: 72% per la Francia, circa 20% per gli Stati Uniti d'America (dati al 2016).

La progettazione di questi impianti è stata effettuata prevedendo una vita utile operativa di circa 30 anni. La concezione di questi impianti però doveva renderli capaci di resistere a sollecitazioni incidentali notevoli, in modo da garantire il loro esercizio in tutta tranquillità: sono stati così introdotti dei criteri di realizzazione che prevedevano notevoli coefficienti e margini di sicurezza.

A completamento della vita prevista e a seguito dell'evoluzione tecnologica di questo trentennio, si ritiene quindi possibile oggi l'estensione della vita utile dei reattori grazie alla loro comprovata capacità di fronteggiare alcuni decenni di utilizzo oltre quelli previsti, a fronte di alcune opere di ammodernamento e manutenzione ragionevolmente più convenienti di una loro demolizione e una successiva costruzione di nuove unità.

L'approccio di estensione della vita, risulta particolarmente importante nei parchi nucleari delle maggiori potenze economiche occidentali, a seguito della loro età media che è già prossima a quella massima prevista nel caso di nessun tipo di intervento o miglioria.



Fig. 1 Centrali nucleari in Europa e anno di costruzione

Fig. 2 Centrali nucleari in USA: anni di operatività

Infatti, in Francia, sono stati commissionati 34 reattori da 900 MWe, tra il 1978 e il 1988; essi costituiscono la porzione del parco nucleare francese con il maggior numero di anni di servizio. La loro età media è di 31 anni, che deve essere confrontata con i 25 anni di vita operativa per i 20 reattori di 1.300 MWe e i 15 anni che contano all'attivo i 4 reattori di 1.450 MWe [5].

Tuttavia, il processo di permessi e controlli che assicurano il funzionamento continuato dei 34 reattori da 900 MWe oltre i 40 anni non è stato ancora completato. Infatti soltanto 21 reattori hanno ricevuto l'autorizzazione dall'Autorità per la Sicurezza Nucleare (ASN) per operare fino a 40 anni.

Il problema di poter verificare l'operatività in sicurezza degli impianti nucleari, e di poterne garantire il funzionamento a seguito di un'estensione della vita inizialmente prevista, è comune a tutto il parco nucleare europeo, nonché a quello di altri grandi paesi che hanno costruito sull'energia nucleare una porzione importante del loro approvvigionamento di potenza per utilizzo civile e industriale.



Nello scenario europeo appare rilevante anche il caso del Belgio che, nonostante la normativa per la dismissione del parco nucleare nazionale risalente al 2003, ha approvato l'estensione di vita di 2 reattori della centrale nucleare di Doel, vicino Anversa (Doel1 e Doel2), che avrebbero dovuto essere definitivamente spenti nel 2015. È stata infatti varata una normativa che ne prevede il funzionamento fino al 2025, raggiungendo i 50 anni di vita operativa. Inoltre nel 2014, il governo ha deciso di prorogare per un periodo di ulteriori 10 anni l'operatività del reattore Tihange 1 (sulla Mosa, nei pressi di Liegi), entrato in funzione nel 1975.

Negli Stati Uniti poi, 84 reattori su 99 hanno già ricevuto la licenza per essere sfruttati fino a 60 anni, di cui circa una trentina della stessa tecnologia dei reattori francesi, cioè quella di reattori ad acqua in pressione (PWR, Pressurized Water Reactor) [6]

In Francia, scenario nucleare di riferimento in Europa sia per numero di impianti in operazione e sia per la maggior frazione di potenza elettronucleare prodotta, la legge non stabilisce un limite temporale a priori per il funzionamento di una centrale elettrica. L'operatore degli impianti nucleari Electricité de France (EDF) deve infatti dimostrare, con cadenza decennale, la capacità dell'impianto di funzionare correttamente fino alla prossima visita decennale, sia presupponendo un funzionamento normale sia considerando le varie possibili eventualità di danneggiamento o deperimento dell'infrastruttura.

La maggior parte dei reattori nucleari sta quindi invecchiando; i loro componenti sono influenzati dal tempo, dall'ambiente e dalle ripetute sollecitazioni relative al funzionamento dell'impianto. Affaticamento meccanico, usura, corrosione, invecchiamento termico o irradiazione possono ridurre le loro prestazioni poco a poco, con conseguenze per la sicurezza che devono quindi essere tenute in considerazione: con analisi estensive ad ogni controllo decennale e con verifiche continuate durante tutti gli istanti della vita operativa. I decreti normativi francesi sul monitoraggio del funzionamento degli impianti nucleari con dispositivi in pressione obbligano l'operatore a implementare tutti i mezzi di indagini tecnico-scientifica per caratterizzare tutti i materiali e conoscere le eventuali modifiche alle loro proprietà, nonché l'impatto potenziale che hanno sul mantenimento dell'integrità globale della centrale.

Questo processo viene eseguito sotto il controllo dell'ASN, che effettua verifiche di applicazione della normativa vigente e si avvale della collaborazione dell'istituto preposto alla consulenza tecnica e alle verifiche di sicurezza in ambito nucleare: l'Istituto per la Radioprotezione e la Sicurezza Nucleare (IRSN).

Tutte le opere di ammodernamento e adeguamento degli impianti sono state racchiuse in un unico piano su tutto il parco nucleare francese soprannominato "Grand Carénage", che ha iniziato ad essere messo in opera nel 2014 e si prevede continuerà fino al 2025. Esso consta di un progetto di ingegneria unico nel suo genere, a partire dalle fasi di analisi e progettazione fino a quelle realizzative e di collaudo. Inoltre ha comportato l'istituzione di un opportuno organismo atto al coordinamento continuo a livello nazionale dell'amministrazione e della collocazione delle risorse economiche e infrastrutturali. EDF ha poi inaugurato una banca dati centralizzata per una gestione ottimizzata di tutta la componentistica dei vari impianti, in modo da ordinare in priorità le opere di intervento, ottimizzando l'uso delle scorte [7].

Analogamente alla Francia, anche USA e altri paesi a pesante penetrazione nucleare si stanno ponendo il problema di implementare tutta una serie di linee di attività di ricerca a supporto alle operazioni di tecnologia necessarie a far fronte a queste importanti sfide di progettazione.

#### 3 Problema del Danneggiamento del Vessel

Il principale criterio di definizione della vita utile di un impianto nucleare consiste nel valutare la durata del componente massivo che racchiude al suo interno tutta la zona attiva: l'insieme cioè del combustibile, del refrigerante e degli elementi strutturali incaricati di mantenerne l'integrità meccanica.

L'acciaio del vessel deve però essere in grado di resistere all'elevata pressione al suo interno, anche a seguito di numerosi anni di esercizio, durante i quali è sottoposto a un prolungato e intenso flusso neutronico.

L'irradiazione degli acciai da parte dei neutroni ha l'effetto di allontanare molti atomi dai loro sito iniziale, che compone la struttura cristallina. Questi atomi vengono quindi inseriti in posizioni casuali nel reticolo (vengono chiamati interstizi) e di conseguenza lasciano alcuni siti vacanti chiamati lacune.

Gli spostamenti degli atomi sono in cascata, un atomo direttamente espulso da un neutrone genera alcuni urti con altri, che a loro volta propagano l'anomalia strutturale in molti altri fino a creare quindi una densità locale di atomi interstiziali e lacune. Può poi sopravvenire una fase di ricombinazione in cui gli interstiziali e gli spazi vuoti vicini scompaiono per semplice interazione elastica dovuta alla distorsione del reticolo. L'irradiazione produce così una forte sovrasaturazione in difetti liberi che tendono a diffondersi e riunirsi in gruppi.

Questo deterioramento della struttura della materia che forma l'acciaio strutturale, ne comporta la compromissione delle proprietà meccaniche, facendo sì che la durata nel tempo sia assolutamente diversa da quella che si avrebbe nel caso di un impianto convenzionale in pressione, che non preveda l'utilizzo di radiazioni, in particolare di flussi neutronici.

La progettazione di un componente in acciaio prevede sempre l'utilizzo nella fase in cui esso offra una risposta elastica ai carichi, questo ampiamente soddisfatto dalle convenzionali condizioni operative. Esso quindi non è assunto essere fragile, cioè non può presentare rottura di schianto senza allungarsi. Questa opzione è normalmente possibile a bassa temperatura, in condizioni che si conoscono essere largamente differenti da quelle tipiche di un impianto a vapore. Gli acciai si infragiliscono normalmente al di sotto di una certa temperatura, propriamente detta "di transizione duttile-fragile".

Il caso della presenza dell'irraggiamento neutronico però pone un'eccezione in questa descrizione. Infatti si verifica sperimentalmente uno spostamento della temperatura di transizione fra lo stato di duttilità e quello di fragilità del materiale, a seguito di irraggiamento prolungato di neutroni, in particolare con energie al di sopra di 100 keV, e maggiormente per neutroni con energia maggiore di 1 MeV. Tale temperatura purtroppo aumenta, approssimandosi a quella di esercizio, al crescere dell'integrale nel tempo del flusso ricevuto; tale spostamento verso l'alto è direttamente proporzionale alla fluenza di neutroni con energia al di sopra di 100 keV-1 MeV.

Per questo motivo un filone molto importante di ricerca è sorto in questi ultimi anni, ed è costituito da tutte quelle tecniche sperimentali e simulative che consentono di analizzare approfonditamente il comportamento delle dislocazioni interstiziali, fino a produrre strumenti di simulazioni numerica che consentano di descriverne l'evoluzione e quantificarne l'entità [8].

Il danneggiamento al reticolo dell'acciaio del vessel prodotto dall'irraggiamento neutronico viene normalmente quantificato da un parametro definito come dpa (dislocazione per atomo), la cui determinazione richiede la soluzione di problemi di trasporto di particelle (neutroni ma anche fotoni) all'interno del sistema in esame. Inoltre, la determinazione del flusso neutronico in posizione esterne al nocciolo, come il vessel o addirittura in posizioni più lontane dalla regione dove i neutroni vengono prodotti, richiede la soluzione di problemi detti "di penetrazione profonda", che possono essere risolti mediante opportuni metodi numerici fra i quali le tecniche Monte Carlo.

In questo rapporto sono brevemente presentate alcune attività di ricerca e simulazioni in merito alla determinazione di alcuni parametri significativi nella determinazione del danno al vessel.



#### 4 Modello di Reattore Gen-III

Per questa analisi è stato utilizzato un modello di reattore evolutivo di terza generazione Gen-III, simile alla configurazione dell'EPR francese. Le porzioni strutturali e la componentistica di dettaglio che afferiscono al reattore sono state rappresentate in una forma semplificata, non costituendo parametri che possano avere un impatto significativo sui risultati e sulla presente trattazione.

Il nocciolo proposto è progettato per una produzione di potenza termica pari a circa 4300  $MW_{th}$ , corrispondenti a una generazione elettrica di 1650  $MW_{e}$ .

La macchina è costituita da 3 circuiti, il refrigerante è ovviamente acqua leggera che funge anche da moderatore. Il fluido entra nella parte attiva del nocciolo a una temperatura di circa 295 °C, e viene prelevato a seguito di un incremento medio di temperatura pari a 35 °C. Si assume una temperatura media all'interno del nocciolo pari a circa 315 °C.

Mediante il codice MCNP6.1 [9] è stata riprodotta la parte attiva, quindi gli elementi di combustibile, il riflettore in acciaio, il vessel interno, il circuito discendente del fluido e infine il vessel. È stato poi inserito nel modello il pozzo reattore unitamente alla struttura in calcestruzzo circostante, e sottostante.

Nella parte attiva, un ruolo di particolare importanza è svolto dal riflettore interno che si situa in questa posizione a protezione del vessel, in modo da attenuare il flusso neutronico che poi ne possa costituire elemento di indebolimento delle prestazioni meccaniche di resistenza all'elevata pressione interna (circa 150 atm), necessaria a prevenire l'ebollizione del refrigerante. Il riflettore è costituito da acciaio inossidabile 18-10, con penetrazioni di acqua, risolte a livello di modellizzazione con una frazione volumetrica di pari a circa 5%, considerata a 303°C e 150 atm.

L'ingombro diametrale della parte attiva, comprensiva del riflettore radiale, è pari a circa 4150 mm. Una sottile intercapedine di alcuni millimetri è poi seguita, procedendo verso gli involucri più esterni, dal vessel interno (barrel).

Esternamente è poi ospitato il volume di refrigerante che fluisce provenendo dagli scambiatori di calore dei fasci tubieri di caldaia e scorre verticalmente verso il basso del recipiente in pressione per poter poi essere sospinto verso l'alto e attraversare la zona attiva, sottraendo calore agli elementi di combustibile, sede delle reazioni di fissione. Questa porzione riguarda un guscio cilindrico di notevole spessore. La parte attiva di estende per un'altezza di circa 4200 mm. Nell'estensione assiale di tale dimensione, ogni elemento di combustibile ospita 8 elementi di mescolamento, costituiti da apposite griglie.

Il nocciolo è costituito da un reticolo di assemblaggi di combustibile a ossidi di uranio (UO<sub>x</sub>), nella composizione corrispondente a fine del ciclo di bruciamento (end of cycle). Si fa notare come il contenuto di plutonio sia tale da essere rilevante nella caratterizzazione neutronica della sorgente di fissione, e soprattutto del relativo spettro.

La parte attiva è formata da 241 elementi di combustibile, disposti in reticolo modulare quadrato, di passo pari a circa 21,5 cm. Nella configurazione a inizio ciclo, essi presentano 3 differenti arricchimenti nell'isotopo <sup>235</sup>U, all'interno del legame di ossido di uranio (UO<sub>x</sub>): circa 1%, 3% e 4% in composizione atomica (con densità teorica di circa 10,96 g/cm<sup>3</sup>). La configurazione che è considerata invece nella presente analisi riporta una suddivisione degli arricchimenti in 38 composizioni, ad ognuna delle quali sono associate 4 oppure 8 posizioni nella mappa degli assemblaggi, in una simmetria centrale nella disposizione del combustibile e delle sue composizioni a seguito di bruciamento. Tutti gli assemblaggi riportano combustibile drogato con concentrazioni di ossido di gadolinio (Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) pari a circa 8% in massa, tranne che per 26 posizioni (corrispondenti a 4 composizioni).

Ogni elemento di combustibile ospita le pastiglie di ossido di uranio, allineate verticalmente a costituire l'ago (pin) di combustibile propriamente detto. Queste sono arrangiate in un reticolo 17x17 a disposizione quadrata anch'essa, di passo pari a circa 1,20 cm. La dimensione globale è pari a circa 21cm x 21cm a definire l'ingombro di ogni assemblaggio. Essi sono disposti con una minima intercapedine fra di essi in modo da



accomodare le tolleranze di fabbricazione, le dilatazioni termiche e l'inserimento da parte della macchina di carico e scarico.

Ogni assemblaggio ospita quindi 265 barre (rod) di combustibile, in quanto le posizioni totali 289 (pari a 17x17) vengono diminuite di 24 unità che non contengono una barra ma che consistono in un elemento strutturale che si incarica della tenuta meccanica dell'intero assemblaggio. Per gli elementi di combustibile che ospitano drogaggio in gadolinio, le 265 barre si dividono in 253 contenenti combustibile e 12 contenenti ossido di gadolinio. I restanti 26 assemblaggi alloggiano quindi tutte le 265 barre ospitanti elementi di ossido di uranio, senza gadolinio e con la relativa composizione dovuta al periodo di bruciamento.

Il modello di calcolo è stato preparato in una modalità per cui le dimensioni siano quelle dei componenti a temperatura ambiente, con opportune semplificazioni dimensionali che però non costituiscono un parametro rilevante nelle considerazioni dei risultati ottenuti. Le temperature del nocciolo e dei componenti sono invece state considerate come da valori medi di riferimento in condizioni nominali, con il reattore in funzione.

Per questo motivo il combustibile e tutti i materiali interni al nocciolo sono stati rappresentati con una temperatura pari a 327°C (600 K): il combustibile (contenente il materiale fissile, fissionabile e i prodotti di fissione anche nella modalità drogata con il gadolinio), la guaina del combustibile in lega di zirconio (zircalloy Zy-4), gli acciai strutturali degli assemblaggi di combustibile e la scatola.

Il cemento esterno che costituisce il pozzo reattore, sia lateralmente che nella parte inferiore, è stato rappresentato con una temperatura di 20°C (293 K).

Le tabelle di interazione per i calcoli di trasporto e per i risultati sono state quelle relative ai neutroni e ai fotoni, siccome entrambe le particelle sono state simulate. I dati nucleari per i neutroni sono quelli del set di sezioni d'urto ENDF/B-VII.1x [10], rilasciate assieme al codice di calcolo MCNP6.1, mentre per i dati di interazione foto-nucleare il set utilizzato è quello MCPLIB04 [11]. I dati per le sezioni d'urto corrispondenti a stati legati delle molecole del moderatore acqua leggera,  $S(\alpha,\beta)$  sono invece quelli del set ENDF/B-VII.0 a 293 K e 600 K [12]. Il calcolo dpa è effettuato mediante funzioni di risposta opportune DPA neutroni e gamma [13].



Fig. 3 Sezione verticale del modello di reattore Gen-III, parte attiva e inferiore del vessel





Fig. 4 Sezione orizzontale parte inferiore degli assemblaggi



Fig. 5 Sezione orizzontale della piastra inferiore



Fig. 6 Sezione di elemento di combustibile (gadoliniato)



### 5 Metodologia di calcolo

Le simulazioni eseguite nell'ambito di questo studio si pongono in continuità con quanto effettuato durante la precedente annualità dello stesso progetto, in quanto si propongono di verificare l'impatto dei parametri descrittivi dello spettro di Watt utilizzato, come sorgente di fissione all'interno del nocciolo, su alcuni particolari risultati costituiti da rivelatori in posizione ex-nocciolo per flussi neutronici e di fotoni gamma.

Nei precedenti rapporti [13] è stato mostrato come il metodo Direct Statistical Approach (DSA) consenta di produrre parametri di riduzione della varianza per calcoli Monte Carlo, mediante patch applicata al codice MCNP6.1, avendo come obiettivo di calcolo delle risposte distanti dal nocciolo.

Questo poteva essere eseguito con un duplice calcolo nelle precedenti versioni di DSA:

- Step1) produzione della sorgente campionando i ratei di fissione in opportuni volumi secondo una scansione del dominio, compatibile con le incertezze statistiche richieste (calcolo di autovalore)
- Step2) esecuzione di un calcolo di trasporto a partire da questa sorgente di fissione, per poi ricavare le risposte di interesse (calcolo in sorgente fissa)

Uno sviluppo di DSA ha consentito di unire queste due fasi di calcolo, eseguendo il calcolo delle risposte exnocciolo durante lo stesso calcolo. Ciò ha consentito di non disaccoppiare le simulazioni e di non imporre quindi uno spettro di fissione nella seconda parte del calcolo. Senza il disaccoppiamento si simula fedelmente l'accadimento di fissione in quanto ogni nuclide in cui esso si verifica offre quindi il suo spettro specifico.

Per valutare quale sia l'impatto del solo fattore di spettro di Watt sulle differenze fra un calcolo disaccoppiato (step 1 + step 2) e un calcolo non disaccoppiato, sono state effettuate le seguenti simulazioni:

- SA) Preparazione della sorgente di fissione mediante un calcolo di autovalore costituito da 120 cicli da 1 milione di neutroni per ciclo: in essa è effettuato una registrazione del tasso di fissione in una scansione volumetrica con una definizione pin-per-pin in senso radiale, una suddivisione in 52 volumi in senso assiale
- SB) Preparazione della sorgente di fissione mediante un calcolo di autovalore costituito da 120 cicli da 1 milione di neutroni per ciclo: in essa è effettuato una registrazione del tasso di fissione in una scansione volumetrica con una definizione radiale che, oltre a una risoluzione pin-per-pin, aggiunge una suddivisione in 2 gusci cilindrici per la sezione del pin (raggio esterno pari a quello del pin cioè 0.41 cm e interno pari a 0.29 cm)

Una volta prodotta la sorgente di fissione A) con definizione di pin a un solo raggio e la sorgente B) con definizione pin a 2 raggi, vengono calcolate le risposte di interesse in alcuni punti del vessel.

Vengono calcolate le seguenti quantità di interesse:

- 1) Flusso neutronico per energie E > 0,1 keV
- 2) Flusso neutronico per energie E > 1 MeV
- 3) DPA fotoni gamma con suddivisione in 14 gruppi di energia [14]
- 4) DPA neutronico integrato su tutte le energie della simulazione (1e-11 MeV, 20 MeV) [15]

Le collocazioni di interesse in cui questi risultati sono valutati sono:

- P1) 4 posizioni angolari (0°, 22,41°, 36,26°, 45°) valutate sul piano di mezzeria
- P2) 2 posizioni angolari (0°, 45°) valutate alla piattaforma di supporto
- P3) 4 posizioni angolari (0°, 22,41°, 36,26°, 45°) valutate sotto la piattaforma di supporto

È stato quindi risolto un set di 10 x 4 = 40 risultati in totale, con differenti scansioni energetiche

|      |                         | Sigla di identificazione | Rev. | Distrib. | Pag. | di |
|------|-------------------------|--------------------------|------|----------|------|----|
| ENEL | Centro Ricerche Bologna | ADPFISS-LP1-120          | 0    | L        | 12   | 14 |
|      |                         |                          |      |          |      |    |



Fig. 7 Posizioni risultati a mezzeria, in rosso (P1)



Fig. 8 Posizioni risultati di calcolo sulla piattaforma, in rosso (P2)



Fig. 9 Posizioni risultati sotto la piattaforma (P3)



Fig. 10 Sezione verticale lato destro: posizioni P2 e P3

Nella ricerca di risultati ex-nocciolo a partire da una sorgente di neutroni di fissione, ha rilevanza la definizione con la quale tale sorgente viene descritta.

Per questo il calcolo di sorgente SA) è stato integrato in modo da ottenere delle differenti versioni di questa sorgente con una conformazione più lasca.

Sono state ricavate quindi le seguenti sorgenti all'interno del nocciolo (unitamente a quelle già ottenute):

- S1) sorgente omogenea all'interno della zona attiva (ottenuta da SA)
- S2) sorgente definita assialmente con un unico profilo (52 suddivisioni) e radialmente descritta assegnando un valore ad ogni elemento di combustibile (ottenuta da SA)



- S3) sorgente definita assialmente con un profilo (52 suddivisioni) che varia a seconda dell'elemento di combustibile in considerazione, radialmente la caratterizzazione è effettuala assegnando un valore ad ogni assemblaggio (ottenuta da SA)
- S4) sorgente definita da una risoluzione pin-per-pin e da una suddivisione assiale (52 suddivisioni) per ognuno dei pin stessi (equivalente a SA descritta in precedenza).
- S5) sorgente definita da una risoluzione pin-per-pin, da una suddivisione assiale (52 porzioni) in cui la risoluzione della superficie del pin è ottenuta suddividendo la sezione in un cilindro e un guscio cilindrico attorno ad esso (equivale alla soluzione SB descritta in precedenza).

Mediante le sorgenti di nocciolo ottenute in accordo con le descrizioni S1, S2, S3, S4 (uguale a SA) e S5 (uguale a SB) sono stati calcolate le 4 quantità elencate.

Le sorgenti sono stati utilizzate a seguito per un problema di trasporto di tipo "sorgente fissa" congiuntamente con l'impiego di parametri di riduzione della varianza concepiti per questo tipo di problema.

Ulteriore oggetto di interesse è stato la definizione dello spettro di Watt che caratterizza la produzione, simulando una sorgente di fissione. Sono state utilizzate le seguenti distribuzioni in energia:

- E1) spettro di Watt "default" per il codice MCNP6.1 con parametri a = 0.965 MeV, b=2.29 1/MeV
- E2) spettro di Watt per <sup>235</sup>U da fissione in zona termica con parametri a = 0.988 MeV, b= 2.249 1/MeV

E3) spettro di Watt per <sup>239</sup>Pu da fissione in zona termica con parametri a = 0.966 MeV, b= 2.842 1/MeV

I risultati ottenuti mediante questi approcci disaccoppiati sono stati poi confrontati con le simulazioni ottenute in un unico passaggio, all'interno di un calcolo di autovalore. Le differenze sono quindi state considerate alla luce delle precedenti considerazioni. Una dettagliata esposizione seguirà questo rapporto in ambito di una particolare pubblicazione. Attualmente si sta estendendo il ragionamento a benchmark e casi di studio tipici per i reattori di Gen-II, caratterizzanti il parco di centrali nucleari in esercizio.

### 6 Conclusioni

Le simulazioni eseguite nell'ambito di questo studio si pongono in continuità con quanto effettuato durante la precedente annualità dello stesso progetto, studiando le modalità di definizione della sorgente di fissione in un calcolo disaccoppiato mediante un calcolo di autovalore e un successivo calcolo in sorgente fissa.

Si è notato come la scelta di variare lo spettro, per data conformazione della sorgente, possa costituire oggetto di variazione su risultati ex-nocciolo di un ordine di grandezza comparabile con le differenze osservate fra calcolo DSA disaccoppiato e calcolo DSA integro (non disaccoppiato): in un intervallo fra il 10% e il 20% circa.

Questa valutazione, significativa per i casi con definizione pin-by-pin (sorgenti S4 e S5), illumina in merito alle spiegazioni fisiche sottese nelle differenze fra due metodiche.

Inoltre, la definizione geometrica della sorgente (S1, fino a 5) per dato spettro ha ovviamente un impatto rilevante sulle risposte dei rivelatori esterni: in particolare il caso omogeneo costituisce una valutazione che maggiora notevolmente, non considerando la forma radiale del flusso e dunque dei ratei di fissione.

Per contro, non si osserva una sostanziale e significativa differenza fra il caso in cui il profilo assiale considerato sia comune a tutti gli assemblaggi oppure vari con essi (sorgenti S2 e S3).

Resta significativa l'approssimazione pin-by-pin rispetto a tutte le precedenti, sia nel caso a 1 raggio che a 2 raggi (sorgenti S4 e S5).

Non è possibile quindi prescindere da una definizione della sorgente nel calcolo di sorgente fissa che tenga conto della geometria del pin e da una descrizione dello spettro di fissione, se si intende valutare correttamente risultati collocati in posizioni profonde, fuori dalla zona attiva.



### 7 Riconoscimenti

Il presente studio è stato sviluppato nell'ambito di collaborazione fra ENEA e IRSN (Istituto per la Radioprotezione e la Sicurezza Nucleare francese) in merito alla valutazione di risposte ex-nocciolo per quanto riguarda reattori di tipo Gen-II e Gen-III. Inoltre IRSN ha fornito il modello MCNP del sistema Gen-III utilizzato in questa valutazione.

Le risorse di calcolo e il relativo supporto tecnico utilizzato per il completamento delle simulazioni è stato fornito dallo staff di CRESCO/ENEAGRID e le infrastrutture di High Performance Computing [16]. CRESCO/ENEAGRID "High Performance Computing infrastructure" e sostenuto e finanziato da ENEA, Ente Nazionale per le Nuove Tecnologie, l'Energia e lo Sviluppo Economico Sostenibile e da programmi di ricerca italiani ed europei, si rimanda alla pagina <u>http://www.cresco.enea.it/</u> per informazioni.

### 8 Bibliografia

- [1] K.W. Burn, Nucl. Technol. 175-1 138-145 (2011)
- [2] K.W. Burn, Ann. Nucl. Energy, 85, 776 (2015)
- [3] P. Console Camprini and M. Brovchenko, "Advanced Techniques for Monte Carlo simulations of ex-core responses supporting safety analysis: damage to Pressure Vessel", in EUROSAFE Forum, 6-7 November, Paris (2017)
- [4] K.W. Burn and P. Console Camprini, "Radiation Transport out from the core: to decouple or not to decouple", European Physical Journal Conferences, 153:05007 (2017)
- [5] Istituto di Radioprotezione e Sicurezza Nucleare francese: https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations\_nucleaires/Pages/Home.aspx
- [6] World Nuclear Association: <u>http://www.world-nuclear.org/</u>
- [7] SFEN Société Française pour l'Energie Nucleaire: http://www.sfen.org/rgn/grand-carenage-cour-comptes-interroge
- [8] A. Ballesteros et al., "The Role of Pressure Vessel Embrittlement in the Long Term Operation of Nuclear Power Plants", Nuclear Engineering and Design, 234 (2012) 63-68
- [9] T. Goorley et al., "Initial MCNP6 Release Overview MCNP6 version 1.0", LA-UR-13-22934, (2013)
- [10] M.B. Chadwick et al., "ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data", Nuclear Data Sheets, 112 (2011), 2887-2996
- [11] M. C. White, "Photoatomic Data Library MCPLIB04: A New Photoatomic Library Based On Data From ENDF/B-VI Release 8," LANL internal memorandum X-5:MCW-02-111 and LA-UR-03-1019 (2002).
- [12] M.B. Chadwick et al., "ENDF/B-VII.0: Next Generation Evaluated Nuclear Data Library for Nuclear Science and Technology", Nuclear Data Sheets, 107 (2006), 2931-3060
- [13] K.W. Burn and P. Console Camprini, "Development and Applications of Monte Carlo Neutronics Methodologies for Safety Studies of Current Operating Reactors", Rapporto Tecnico ENEA, ADPFISS-LP1-093, PAR2016, (2017)
- [14] E.D. Blakeman, "Neutron and Gamma Fluxes and dpa Rates for HFIR Vessel Beltline Region (Present and Upgrade Designs)", ORNL/TM-13693 (Nov. 2000)
- [15] A. Konobeyev and K. Voukelatou, "Displacement Cross-Sections for Materials Irradiated with Neutrons and Protons at the Energies up to 1 GeV". Private communication, April 2003
- [16] G. Ponti et al., Proc. of the 2014 International Conference on High Performance Computing and Simulation, HPCS 2014, 1030



1

#### Title

### Calcoli di criticità, con codici deterministici, di nuovi combustibili e/o cladding per valutazioni di safety di nocciolo

#### Descrittori

Tipologia del documento: Rapporto tecnico

Collocazione contrattuale: Accordo di programma ENEA-MSE su sicurezza nucleare e reattori di IV generazione

Argomenti trattati: ATC, ATF, FeCrAl

#### Sommario

Dopo l'incidente di Fukushima, la volontà di aumentare ulteriormente i margini di sicurezza nei reattori di tipo LWR di generazione II e III si sta esprimendo ed orientando verso lo sviluppo di nuove soluzioni tecnologiche in grado di ridurre ulteriormente il rischio di incidenti severi. Ad oggi le soluzioni più promettenti fanno riferimento a ATF (Accident Tolerant Fuel) e ATC (Accident Tolerant Cladding) cioè nuovi combustibili e nuovi cladding in grado di prolungare il tempo di grazia a disposizione dell'operatore, aumentare la ritenzione dei prodotti di fissione e ridurre il tasso di produzione del calore e di idrogeno dovuti ai processi di ossidazione ad alta temperatura. Dato il carattere innovativo delle tecnologie in oggetto, scopo di questo rapporto è quello di documentare, limitatamente al caso degli ATC, lo stato dell'arte di queste nuove soluzioni tecnologiche. Inoltre per il solo cladding in FeCrAI è stata operata, mediante codici di calcolo neutronico deterministici, una valutazione dell'impatto che questo nuovo cladding ha sulla criticità del sistema.

#### Note

Autori: R. Pergreffi

#### Copia n. In carico a: NOME 2 FIRMA NOME 1 FIRMA NOME F. Padoani F. Rocchi R. Pergreffi 0 **EMISSIONE** 26/11/2018 Niboer **FIRMA** REV. DESCRIZIONE DATA REDAZIONE CONVALIDA APPROVAZIONE



## Sommario

| 1. Introduzione                                       |
|---|
| 2. Stato dell'arte di ATC e ATF4                      |
| 3. Materiali per cladding e nocciolo7                 |
| 3.1 Leghe di zirconio rivestiste7                     |
| 3.2 Metalli refrattari: lega di molibdeno rivestita12 |
| 3.3 Acciai avanzati: FeCrAl15                         |
| 3.4 Cladding in materiale composito SiC/SiC22         |
| 3.5 Componenti non-fuel25                             |
| 4. Calcoli di criticità con cladding in FeCrAl        |
| Bibliografia  |



### 1. Introduzione

Dopo l'incidente di Fukushima nel marzo 2011 la volontà di aumentare i margini di sicurezza nei reattori di tipo LWR di generazione II e III minimizzando ulteriormente probabilità e conseguenze di eventuali incidenti severi è condivisa da molti programmi internazionali di R&D. Tale esigenza è stata orientata allo sviluppo di nuove soluzioni tecnologiche in grado di ridurre il rischio di incidenti severi nei reattori commerciali in attività. Ad oggi le soluzioni più promettenti fanno riferimento a ATF (Accident Tolerant Fuel) e ATC (Accident Tolerant Cladding) cioè nuovi combustibili e nuovi cladding in grado di:

- ✓ prolungare, in situazioni di emergenza, il tempo di grazia (*coping time*<sup>1</sup>) a disposizione dell'operatore;
- ✓ aumentare la ritenzione dei prodotti di fissione;
- ✓ ridurre il tasso di produzione del calore e di idrogeno dovuti ai processi di ossidazione ad alta temperatura.

A dimostrazione dell'impatto che queste nuove tecnologie potrebbero presto avere sul sistema nucleare nel suo complesso, ci si limita a citare, a titolo di esempio, quanto previsto dal programma EATF (Enhanced Accident Tolerant Fuel) del Dipartimento dell'Energia degli Stati Uniti (DOE) secondo cui entro la primavera del 2019 l'unità 2 della centrale nucleare di Vogtle in Georgia sarà caricata con quattro nuovi elementi di combustibile che avranno, al posto del tradizionale UOx, una miscela di ossido di uranio e ossido di cromo Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> e sulle pareti del cladding un rivestimento in cromo.

Dato il carattere innovativo delle tecnologie in oggetto, il principale scopo di questo rapporto è quello di documentare, limitatamente al caso degli ATC, lo stato dell'arte delle soluzioni tecnologiche più promettenti.

Secondariamente si è scelto di operare, con il codice di cella APOLLO2, una valutazione dell'impatto sulla criticità del sistema dei cladding in lega di FeCrAl dato che il loro impiego, in combinazione con combustibile UO<sub>2</sub>, sembra essere ormai solo questione di tempo. Questi cladding, infatti, pur essendo caratterizzati da un maggiore assorbimento neutronico parassitico e da non trascurabili quantità di trizio rilasciate nel refrigerante, rappresentano una soluzione tecnologica alternativa a quelli in lega di Zirconio comunemente utilizzati nei reattori LWR in attività dal momento che, da una parte, migliorano la ritenzione dei prodotti di fissione e la cinetica dei processi ossidativi sia in condizioni operative standard che in condizioni incidentali (il tasso di ossidazione del FeCrAl è almeno mille volte più lento di quello dello Zircaloy) e, dall'altra, aumentano il tempo di grazia del reattore.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Il *coping time* è definito come il tempo prima che la barretta di combustibile fonda o in alternativa il tempo in cui il vessel del reattore si rompe per effetto dell'aumento della temperatura e della pressione interne.



### 2. Stato dell'arte di ATC e ATF

La maggior parte dei dati tecnologici riportati in questo documento è tratta dal rapporto NEA del 2018 interamente dedicato a nuove soluzioni tecnologice per Light Water Reactor [1]. In tale rapporto una serie di soluzioni attualmente in fase di studio sono presentate distinguendo tra quelle per cladding e nocciolo (ATC) e quelle per nuovi combustili (ATF). Alla stesura del rapporto hanno contribuito le seguenti istituzioni ordinate per paese di apparenenza:

- 1. Belgio: SCK-CEN
- 2. Cina: CGN
- 3. Francia: CEA, AREVA, EDF, IRSN
- 4. Germania: KIT
- 5. Giappone: Toshiba, JAEA, CRIEPI, NNFD, Muroran Institute of Technology
- 6. Norvegia: IFE
- 7. Olanda: NRG
- 8. Repubblica ceca: ALVEL, Czech Technical University in Prague
- 9. Russia: Kurchatov Institute
- 10. Sud Corea: KAERI
- 11. Svezia: Westinghouse
- 12. Svizzera: PSI
- 13. UK: National Nuclear Laboratory
- 14. USA: INL, EPRI, Exelon Nuclear, ORNL, Westinghouse, GE, University of Illinois and University of Florida.

Una nuova tecnologia nucleare, sia essa ATC o ATF, presuppone sin dalla fase di progettazione una attenta valutazione della sua performance. Questo avviene da una parte mediante l'utilizzo di codici di calcolo e dall'altra grazie ad opportuni test sperimentali in reattori di ricerca o di potenza.

Relativamente ai codici di calcolo, molti di quelli attualmente in uso hanno richiesto opportune modifiche per estendere la loro capacità analitica e previsionale ai nuovi materiali contenuti in ATC e ATF. Di seguito sono elencati alcuni dei principali codici distinguendo tra quattro diversi tipi di analisi:

- ✓ <u>analisi di screening standard</u> (cioè analisi di neutronica e termoidraulica, di performance del combustibile e analisi dettagliata di sistema):
  - a. TRITON/NEWT: codice di neutronica deterministica a livello di fuel assembly;
  - b. MCNP: codice di neutronica Montecarlo;
  - c. Serpent: codice di neutronica Montecarlo;
  - d. PARCS: codice di neutronica 3D a livello di nocciolo;
  - e. DeCART2D/MASTER: codice di neutronica a livello di fuel assembly;
  - f. VIPRE: codice a sottocanale per l'analisi termoidraulica di stato stazionario, transitori operativi ed eventi incidentali di moderata severità;



**ENEN** Ricerca Sistema Elettrico

- ✓ analisi di screening in presenza di transitori:
  - a. TRACE PARCS e PARCS-TRACE: codici di termoidraulica 3D e neutronica di nocciolo accoppiata;
  - b. CATHARE: codice di termoidraulica di sistema per analisi di safety di PWR;
  - c. ALCYONE RIA: codice multidimensionale di valutazione della performance del combustibile nei PWR anche in presenza di RIA;
  - d. SCANAIR: codice che simula il comportamento termomeccanico della barretta di combustibile di un PWR durante un RIA;
  - e. DRACCAR: codice di elemento di combustibile per l'analisi di LOCA in PWR;
  - f. RELAP5: codice di termoidraulica di sistema;
- ✓ modellizzazione della performance del combustibile (con misure dettagliate delle proprietà e del comportamento dei nuovi materiali):
  - a. BISON: codice in fase di sviluppo che opera mediante accoppiamento tra termomeccanica e diffusione delle specie atomiche;
  - b. MAMOT: codice che valuta gli effetti delle radiazioni sull'evoluzione delle microstrutture;
  - c. FRAPCON/FRAPTRAN: codice di analisi della performance del combustibile in stato stazionario o in presenza di transitori;
  - d. Falcon: codice in fase di sviluppo per l'analisi della performance del fuel e degli incidenti severi (accoppiato con TRACE per analisi LOCA e SBO);
  - e. FEMAXI: codice di analisi della performance del combustibile LWR in stato stazionario o in presenza di transitori;
  - f. Copemic: codice di analisi della performance della barretta di combustibile 1.5D;
  - g. ALCYONE: codice multidimensionale di analisi della performance del fuel;
  - h. Cyrano: codice di analisi della performance della barretta di fuel;
  - i. TRANSURANUS: codice di analisi della performance della barretta di combustibile in stato stazionario o in stato incidentale (DBA);
  - j. MACROS: codice di analisi della performance del combustibile in stato stazionario, in presenza di transitori, di LOCA e di RIA;
- 🖌 <u>analisi di incidenti severi</u> (cioè analisi di quanto i nuovi materiali incidono sul BDBA Beyond Design Basis Accident)
  - a. MELCOR: codice per l'analisi di incidenti severi a livello di sistema;
  - b. MAAP: codice per l'analisi di incidenti severi dovuti a LOCA o ad altri transitori incidentali;
  - c. ASTEC: codice per l'analisi di incidenti severi a livello di sistema;
  - d. SOCRAT: codice in fase di sviluppo per l'analisi di incidenti severi a livello di sistema.



Per quanto riguarda i test di irraggiamento volti ad esaminare la performance delle nuove soluzioni tecnologiche in condizioni stazionarie e in presenza di transitori (quindi sia in condizioni operative off-normal sia in presenza di ipotetici scenari incidentali), svariati reattori di ricerca sono attualmente coinvolti nel mondo. A titolo di esempio e senza alcuna pretesa di esaustività è possibile citare le seguenti 12 facilities (ordinate per paese):

- 1. Belgio  $\rightarrow$  BR-2 Materials Test Reactor, reattore per test in presenza di alti flussi composto da blocchi di berillio esagonali con canali centrali utilizzato per irraggiare materiale fissile e strutturale;
- 2. Cina  $\rightarrow$  The China Mianyang Research Reactor (CMRR), situato in provincia di Sichuan, è un reattore di ricerca a piscina con sorgente neutronica a idrogeno liquido;
- 3. Francia  $\rightarrow$  CABRI, situato presso il centro di ricerca di Cadarache, è un reattore sperimentale a piscina arricchito in <sup>235</sup>U al 6% utilizzato per studiare il comportamento del fuel in condizioni incidentali (Reactivity Initiated Accidents - RIA);
- 4. Francia  $\rightarrow$  JULES HOROWITZ (attualmente in costruzione), situato presso il centro di ricerca di Cadarache, è un reattore a piscina da 100 MW<sub>th</sub> raffreddato da un circuito primario debolmente pressurizzato (10 bars);
- 5. Giappone  $\rightarrow$  Nuclear Safety Research Reactor (NSRR) è un reattore TRIGA (Training, Research, Isotope, General Atomic) situato presso la JAEA;
- 6. Norvegia  $\rightarrow$  Halden Boiling Water Reactor (HBWR) è un reattore bollente ad acqua pesante in circolazione naturale di potenza massima 25 MW<sub>th</sub> e temperatura dell'acqua di 240°C;
- 7. Olanda  $\rightarrow$  HFR Materials Test Reactor è un reattore da 45 MW<sub>th</sub> con nocciolo flessibile a griglia quadrata, situato a Petten, utilizzato anche per la produzione di molibdeno 99 e di altri radiofarmaci;
- 8. Repubblica ceca  $\rightarrow$  LVR-15 Research reactor è un reattore di ricerca da 10 MW moderato ad acqua demineralizzata e con riflettore in acqua o in blocchi di berillio a seconda della configurazione;
- 9. Sud Corea  $\rightarrow$  HANARO (High flux Advanced Neutron Application Reactor), reattore di ricerca con combustibile in siliciuro di uranio a bassi arricchimenti e acqua pesante come riflettore;
- 10. USA  $\rightarrow$  Advanced Test Reactor (ATR), reattore pressurizzato ad acqua leggera con riflettore in berillio situato presso INL;
- 11. USA  $\rightarrow$  Transient Reactor Test Facility (TREAT) presso INL;
- 12. USA  $\rightarrow$  High Flux Isotope Reactor (HFIR), presso ORNL, è un reattore di tipo flux-trap moderato ad acqua leggera, con riflettore in berillio, che usa <sup>235</sup>U altamente arricchito.



### 3. Materiali per cladding e nocciolo

Da un punto di vista ideale i requisiti tecnologici che si vorrebbero per un nuovo cladding sono i seguenti:

- ✓ riduzione della corrosione e dell'inventario di idrogeno durante il normale funzionamento dell'impianto;
- ✓ conservazione o se possibile miglioramento delle proprietà fisiche e meccaniche a fine ciclo;
- ✓ impatto trascurabile sull'economia neutronica di nocciolo;
- ✓ significativa riduzione della cinetica dei processi ossidativi ad alta temperatura in modo da aumentare il tempo di grazia delle leghe di zirconio utilizzate nei LWR;
- ✓ miglioramento della resistenza meccanica (mechanical strength) ad alta temperatura per mantenere una geometria raffreddabile.

A questi requisiti ne vanno aggiunti almeno due: quello di fabbricabilità e quello di economicità.

Individuare un cladding in grado di soddisfare tutti i requisiti indicati è impresa alquanto improbabile. In questo capitolo descriveremo alcune alternative tecnologiche attualmente in fase di studio mostrando, per ciascuna di esse, tanto i punti di forza quanto quelli di debolezza. Le alternative tecnologiche ritenute più promettenti sono:

- 1. Leghe di zirconio rivestiste;
- 2. Acciai avanzati: FeCrAl;
- 3. Metalli refrattari: lega di molibdeno rivestita;
- 4. Cladding in materiale composito SiC/SiC;
- 5. Componenti non-fuel.

### 3.1 Leghe di zirconio rivestiste

Per quanto riguarda i rivestimenti delle leghe di zirconio questi possono essere ricondotti a due categorie:

- 1. Rivestimenti di tipo metallico:
  - a. puro Cr
  - b. lega binaria Cr-Al
  - c. multistrato FeCrAl e Cr/FeCrAl
- 2. Rivestimenti di tipo ceramico:
  - a. nitruri (CrN, TiN, TiAIN, CrAIN o multistrati di diversi nitruri)
  - b. MAX phases (Ti<sub>2</sub>AlC, Cr<sub>2</sub>AlC, Zr<sub>2</sub>AlC, Zr<sub>2</sub>SiC)

I rivestimenti ceramici in nitruro, e tra questi in modo particolare TiN e TiAlN, sono utilizzati per indurire i materiali e migliorarne il comportamento all'usura. CrN è inoltre utilizzato per aumentare la protezione alla corrosione. I rivestimenti in  $M_{n+1}AX_n$  (MAX) phases, dove M è



un metallo di transizione (ad esempio Ti, Cr, Zr<sup>2</sup>), A è un elemento dei gruppi 13-16<sup>3</sup> e X è C e/o N, sono una famiglia di carburi e nitruri ternari che combinano proprietà metalliche e ceramiche. Studi recenti hanno dimostrato che il Ti<sub>2</sub>AlC è resistente all'irraggiamento neutronico.

#### Fabbricazione

Le proprietà e il comportamento del rivestimento dipendono dalla tecnologia di fabbricazione utilizzata. Le tre principali tecnologie di rivestimento della guaina sono: Physical Vapor Deposition (PVD) cioè la deposizione atomica del materiale che, vaporizzato in una camera a bassa pressione, condensa sul substrato; Thermal Spray Deposition in cui polvere o gocce di materiale sono spruzzate e accelerate ad alta velocità in modo da aderire al substrato; 3D laser coating che è una deposizione di polvere sciolta da un laser sulla superficie del cladding. Tra queste, la tecnologia PVD che forma un rivestimento denso e sottile e di bassa rugosità superficiale sembra essere quella industrialmente più matura. Un vantaggio del trattamento superciale è dovuto al fatto che gli impianti di fabbricazione non devono essere significativamente modificati o rimpiazzati. Inoltre poiché il cladding continua ad essere costitutito in gran parte da lega di zirconio utilizzata negli impianti nucleari da oltre 50 anni, il licesing di queste nuove soluzioni tecnologiche dovrebbe essere più semplice e rapido.

#### Condizioni operative non incidentali

Lo spessore del rivestimento è di estrema importanza per il mantenimento delle proprietà del substrato in zirconio. Nei rivestimenti inferiori a 20 µm l'impatto sulla neutronica è così piccolo da poter essere compensato con piccoli cambiamenti in fase di progettazione. Anche l'impatto sulla termica della barretta sembra essere trascurabile per le soluzioni tecnologiche in oggetto. Infatti pur essendo caratterizzate da una bassa conducibiltà termica (in modo particolare le soluzioni ceramiche) l'aumento di temperatura di centropellet non sembra essere un problema rilevante se si tiene conto del fatto che i rivestimenti più spessi sono metallici e quelli ceramici hanno frequentemente uno spessore nell'ordine dei 10  $\mu$ m. Un vantaggio nell'applicare un rivestimento alla lega di Zirconio è dovuto al fatto che le proprietà meccaniche risultano governate dal substrato e non dal rivestimento, ancor più se sottile. Dalle analisi di tipo out-of-pile attualmente disponibili (non c'è alcuna analisi specifica sul comportamento meccanico dei cladding rivestiti dopo irraggiamento ad oggi pubblicata) sembra di poter affermare che tutti i rivestimenti in oggetto con spessori superiori a 30 µm conferiscono al cladding maggiore resistenza (strength) e minore duttilità (ductility).

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Lo zirconio, avendo una bassa sezione di assorbimento, è già impiegato in materiali per il rivestimento degli elementi di combustibile. Più del 90% di tutto lo zirconio metallico prodotto viene usato nelle centrali nucleari sparse per il mondo. I moderni reattori nucleari commerciali possono usare fino a 150 km di tubazioni in lega di zirconio.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> 13 gruppo del boro, 14 del carbonio, 15 dell'azoto e 16 dei calcogeni.



ENEN Ricerca Sistema Elettrico

In generale con rivestimenti metallici (ad esempio con Cr) il comportamento meccanico del cladding rivestito dovrebbe essere molto simile a quello non rivestito a condizione che le tecniche di deposizione non modifichino la microstruttura della lega in zirconio e lo spessore del rivestimento sia sufficientemente sottile. Ad esempio il cladding M5® rivestito con Cr ha mostrato proprietà meccaniche simili a quelle che si hanno in assenza di rivestimento (Figura 1). I rivestimenti ceramici sono al contrario molto più fragili, ragion per cui cracking e danneggiamenti dovrebbero essere assai più probabili che in quelli metallici. Ad oggi però non esiste alcuna evidenza del comportamento meccanico dei rivestimenti ceramici applicati alla lega di Zirconio.



Figura 1. Prove a tensione a temperatura ambiente e a 400°C del cladding M5<sup>®</sup> con e senza rivestimento in Cr.

Riguardo alla compatibilità del rivestimento col refrigerante in condizioni operative non incidentali, sono stati eseguiti sia test di corrosione in acqua a 360°C con la chimica di un PWR ([Li] = 2,2 ppm e [B] = 600-1000 ppm) sia test di ossidazione in vapore a 415°C. Ciò che si osserva è una significativa riduzione della cinetica della corrosione in presenza di rivestimenti metallici quali Cr e Cr-Al e di rivestimenti ceramici quali CrN e TiN. In particolare un rivestimento in Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> determina un livello di corrosione della lega di zirconio prossimo allo zero e conseguentemente una riduzione dell'infragilimento (embrittlement) del cladding dovuta alla produzione di idrogeno. Non esistono al contrario dati affidabili per i rivestimenti in FeCrAl e MAX phases in ambienti LWR rappresentativi.

#### Condizioni operative incidentali (Design Basis Accident and Design Extension Conditions)

La maggior parte delle attività sperimentali svolte per valutare cladding rivestiti in condizioni incidentali si concentra sul loro comportamento in presenza di vapore ad alta temperatura (HT steam) in condizioni di tipo LOCA (Loss of Coolant Accident). D'altronde il principale scopo di un rivestimento è quello di contrastare l'ossidazione con vapore ad alta temperatura in modo da ridurre significativamente la produzione di calore e idrogeno.



ENEN Ricerca Sistema Elettrico

Alcuni rivestimenti di tipo metallico e tra questi in modo particolare quello in Cr sono in grado di ridurre i tassi di ossidazione con vapore ad alta temperatura come mostrato in Figura 2 e Figura 3.

Come si vede in entrambi i casi il guadagno in peso (weight gain) misurato nei campioni di rivestimento è ordini di grandezza più basso rispetto a quello di un cladding tradizionale (Zircaloy) e questo perché il rivestimento agisce da efficace barriera contro l'ossigeno. Ulteriori test condotti con rivestimenti molto sottili (1 µm) di tipo Cr-Al e FrCrAl non hanno al contrario mostrato alcun significativo miglioramento rispetto allo Zircaloy ad eccezione di un piccolo ritardo nella cinetica dell'ossidazione. Sembra quindi di poter affermare che il rivestimento richieda uno spessore minimo per fornire benefici significativi sull'ossidazione da vapore ad alta temperatura.



Figura 2. Risultati del guadagno in peso da test di ossidazione con vapore ad alta temperatura a 1200°C su rivestimenti in Cr, Cr-Al e FeCrAl condotti da KAERI.

Come mostrato in Figura 3 un'ossidazione di 600 s a 1200° C non provoca alcuna diffusione di ossigeno nel substrato di zirconio rivestito da Cr cosa che invece accade in un cladding tradizionale dove l'ossigeno penetra ad una profondità di circa 150 µm. Questa mancata diffusione dell'ossigeno nel substrato ha un impatto significativo sulla duttilità del cladding in caso di post-quench. Infatti il cladding rivestito da Cr esibisce una maggiore resistenza e una accresciuta duttilità residua allo spegnimento come verificato da KAERI e dal CEA.

Per quanto riguarda i rivestimenti di tipo ceramico, il KIT ha condotto svariati test di ossidazione con vapore ad alta temperatura per alcuni MAX phases. Il risultato è stato che se con Cr<sub>2</sub>AlC è stata apprezzata una lieve riduzione della cinetica dei processi ossidativi, con Ti<sub>2</sub>AlC il guadagno in peso è risultato equivalente o addirittura inferiore a quello di un cladding senza rivestimento. Per gli altri tipi di rivestimenti ceramici i dati a disposizione sono ancora insufficienti.

Test di creep e ballooning su rivestimenti ceramici di tipo Cr eseguiti da KAERI e da AREVA/CEA/EDF hanno mostrato un'ottima adesione del rivestimento anche dopo eventi significativi di ballooning, un effetto di consolidamento (strengthening) ad alta temperatura



con riduzione del tasso di creep e aumento del tempo di rottura (Figura 4) e una riduzione della dimensione dei balloon.



Figura 3. Risultati del guadagno in peso da test di ossidazione con vapore ad alta temperatura a 1200°C su rivestimenti in Cr condotti da AREVA/CEA/EDF.



Figura 4. Tempo di rottura a differenti temperature in funzione della sollecitazione di compressione iniziale.

#### Back-end: stoccaggio del combustibile esausto/trasporto/smaltimento/riprocessamento

Basse produzioni di idrogeno durante il normale funzionamento permettono grandi benefici nelle fasi di trasporto, di stoccaggio temporaneo in piscine di combustibile esausto e di riprocessamento. Inoltre bassi livelli di corrosione rendeno il cladding più protetto in caso di smaltimento a lungo termine. Infine il Cr, non dissolvendosi in acido nitrico, non dovebbe avere impatto sulla qualità dei rifiuti vetrificati.



#### 3.2 Metalli refrattari: lega di molibdeno rivestita

Il progetto di un cladding in lega di Mo rivestita nasce dalla necessità di assicurare, data la notevole resistenza del molibdeno a temperature elevate, l'integrità delle barre di combustibile e il raffreddamento del nocciolo in condizioni incidentali. Il rivestimento della superficie esterna mediante uno strato legato metallurgicamente o in lega di Zr o in acciaio inossidabile (FeCrAl) contenente alluminio viene fatto per fornire, in condizioni operative, maggiore resistenza alla corrosione e migliorare, in condizioni incidentali, la resistenza all'ossidazione del vapore tramite uno strato protettivo in ZrO<sub>2</sub> o in (Al,Cr)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. E' stato infatti dimostrato che un tale cladding metallico in Mo-Zr o Mo-FeCrAl con strato esterno formato da deposizione fisica del vapore mantiene una buona integrità col vapore ad alta temperatura a 1200° C per 12-24 ore.

Il molibdeno ha una sezione d'urto di assorbimento dei neutroni relativamente elevata vicina a quella degli acciai inossidabili. Lo spessore dello strato in lega di Mo è quindi limitato a ~ 0,20-0,25 mm e lo strato esterno in lega di Zr o in FeCrAl è progettato per avere uno spessore totale di 0,36 - 0,41 mm (rispetto ai 0,57 mm dei cladding di PWR in Zircaloy). Recentemente è stato fabbricato mediante pressatura isostatica a caldo (HIPing) un cladding triplex con un sottile strato intermedio di niobio con l'obiettivo di migliorare la solidità del legame. Cladding in lega di Mo rivestita possono essere prodotti con lo stesso diametro esterno degli attuali cladding (9,5 mm per un fuel assembly 17×17 di PWR) ma con uno spessore più piccolo in modo da alloggiare quantità di UO<sub>2</sub> più grandi. Infatti per avere una reattività neutronica comparabile le pellet con cladding in lega di Mo devono avere il 15-20% di UO<sub>2</sub> in più rispetto a quelle convenzionali (cioè con cladding in lega di Zr).

I fuel assembly che utilizzano cladding in lega di Mo rivestita possono essere progettati per cicli di funzionamento di circa 18 mesi con UO<sub>2</sub> arricchito al 5%. Questi cladding hanno un impatto trascurabile sulla termoidraulica del fuel assembly.

#### **Fabbricazione**

A causa delle grandi differenze tra Mo e Zr in termini di proprietà fisiche e meccaniche, la fabbricazione di cladding in Zr-Mo rivestiti è assai più impegnativa di quella di cladding in lega di zirconio duplex e triplex utilizzati nelle applicazioni per BWR e PWR. I tubi in lega di Mo della lunghezza di una fuel pin (circa 5 metri) dovranno essere fabbricati mediante processi termomeccanici per garantire economie di scala e requisiti di qualità. Sebbene ci siano alcuni dati disponibili in letteratura sulle leghe di Mo per applicazioni ad alta temperatura in reattori nucleari, i tubi in lega di Mo a parete sottile di spessore <0,5 mm non sono ancora disponibili in commercio.



#### Condizioni operative non incidentali

#### Risistenza alla corrosione dei tubi in Mo rivestiti

La compatibilità del cladding in lega di Mo con i refrigeranti utilizzati negli LWR è di fondamentale importanza per garantire l'integrità del cladding e impedire la diffusione di prodotti radiativi fuori dal nocciolo. Nei cladding in lega di Mo rivestita, si prevede che il rivestimento esterno in lega di Zr o in acciaio inossidabile (FeCrAI) abbia un'elevata resistenza alla corrosione e alla hydriding<sup>4</sup> fino a valori di burnup che nel caso dei PWR sono superiori a 62 GWd/MTU. Inoltre, un rivestimento esterno di 0,10 mm di Zr-2.5Nb sul cladding in Zircaloy-4 di PWR ha dimostrato di avere, fino a 80 GWd/MTU, un'eccellente resistenza alla corrosione e alla hydriding. Si prevede inoltre che il rivestimento esterno in lega FeCrAl abbia un'eccellente resistenza alla corrosione con concentrazioni di Cr > 18%, sebbene ulteriori dati da test di irraggiamento siano richiesti per convalidare tale proprietà. Prodotti di attivazione

Tramite assorbimento neutronico e successiva trasmutazione molti materiali generano isotopi radiottivi che, a causa della corrosione del cladding, possono essere rilasciati fuori dal nocciolo (come nelle tubazioni e nelle turbine) causando problemi di funzionamento all'impianto. I cladding in zircaloy, a causa delle basse sezioni d'urto dello Zr, hanno un basso tasso di produzione di <sup>95</sup>Zr e <sup>95</sup>Nb e il trasporto di questi isotopi in componenti esterni al nocciolo è fortemente limitato dalla stabilità del ZrO<sub>2</sub>. Per i cladding in lega di Mo la situazione è più complessa. Infatti se per i cladding in lega di Mo con rivestimento in Zr non si prevede alcun cambiamento sul rilascio dei prodotti di attivazione, per quelli con rivestimento in FeCrAl la situazione non è ancora chiara e ulteriori dati da test su LWR si rendono necessari. Altro possibile problema nei cladding in lega di Mo è associato al rilascio di <sup>99</sup>Tc qualora il Mo venisse rilasciato nel refrigerante. Il <sup>99</sup>Tc, prodotto dall'attivazione del <sup>98</sup>Mo a <sup>99</sup>Mo mediante reazione (n,  $\gamma$ ) e successiva trasmutazione, è un emettitore  $\beta$  con emivita molto lunga (211.000 anni) ed è, al pari di isotopi quali <sup>3</sup>H e <sup>14</sup>C, dovutamente monitorato per prevenire contaminazioni dell'acqua potabile. Tuttavia, il tasso di produzione del <sup>99</sup>Tc è molto lento a causa della bassa sezione d'urto del <sup>98</sup>Mo (0.06 barns, ~ 1/3 di quella dello Zr). Inoltre, con una resa del 6,05% il <sup>99</sup>Tc è il prodotto di fissione più abbondante nel combustibile esausto. Quindi, anche se l'effetto dovuto a qualsiasi ulteriore rilascio di radioisotopi deve essere opportunamente valutato, quello del <sup>99</sup>Tc dovuto all'uso di nuovi cladding sembra essere modesto.

#### Proprietà di irraggiamento

L'utilizzo di cladding in lega di Mo rivestita negli LWR necessita di ulteriori dati sulle proprietà di irraggiamento del molibdeno.

#### Affidabiltà del fuel

Le attuali barre di combustibile con cladding in zircaloy utilizzate nei LWR statunitensi hanno raggiunto tassi di fallimento piuttosto bassi (inferiori a 2-5x10<sup>-6</sup>). Per poter raggiungere o

<sup>4</sup> Processo di riduzione di un minerale in un metallo mediante trattamento con idrogeno ad alta temperatura.



addirittura superare una tale affidabilità è necessario migliorare i metodi di fabbricazione dei cladding in lega di Mo di alta qualità con rivestimento in Zr o in FeCrAl. Risultato non scontato se si considera che l'infrastruttura disponibile per supportare la fabbricazione di metalli refrattari è attualmente limitata.

#### Condizioni operative incidentali

#### Incidente da inserzione di reattività (RIA)

Durante un evento RIA, un rapido transitorio di potenza nell'ordine dei 20-50 ms determina un'espansione del volume del fuel dell'1-2% che provoca, per interazione meccanica, una rapida sollecitazione del cladding (PCMI). I cladding in zircaloy con alte concentrazioni di idrogeno possono non sopravvivere ad un RIA se tale evento si verifica durante lo spegnimento a freddo quando la temperatura del cladding è bassa e il cladding, quindi, più fragile.

Il molibdeno presenta cedimenti duttili fino a ~ 300° C, mentre fallisce a temperature più basse. Per poter valutare il comportamento di un cladding in lega di Mo con rivestimento esterno in zircaloy e strato intermedio in Nb durante un RIA sono necessari opportuni test con transitori simulati. Inoltre a causa della conducibilità termica del Mo (che è sette volte più alta di quella dello Zr, cioè 138 vs 22,6 W/m\*K), e della parete più sottile, è ragionevole pensare che la temperatura del Mo durante un RIA aumentaterà più rapidamente di quella dello zircaloy.

#### LOCA

Diversamente da quanto avviene nello Zircaloy già a ~ 800-900° C (rottura con episodi di balloning), il cladding in lega di Mo con rivestimento in lega di Zr o FeCrAl dovrebbe poter sopravvivere alla rottura di un tubo a ~ 1200° C (LOCA di progetto) ma in assenza di significativi episodi di balloning. Inoltre grazie alla resistenza residua di questo cladding a temperature superiori a 1200° C, il nocciolo dovrebbe conservare una configurazione geometrica raffreddabile.

#### **Design extension condition**

Lo scopo principale dei cladding in lega di Mo è quello di permettere al nocciolo di mantenere una configurazione geometrica raffreddabile sia durante i design basis accidents sia durante i design basis conditions quando la temperatura del cladding supera i 1000° C e le leghe in Zr perdono tutta la loro resistenza o risultano completamente ossidate. Il Mo ha mostrato una resistenza a trazione di ~ 60 MPa a 1500° C.

Da stime preliminari sui dati dell'ossidazione da vapore ad alta temperatura, il margine di sicurezza aggiuntivo (o coping time) di un cladding in lega di Mo rivestita durante i design basis conditions, come in caso di station blackout (SBO), è nell'ordine delle ore. L'idrogeno prodotto può essere ridotto di oltre l'80% se il rivestimento esterno in Zr è inferiore a 0,11 mm (20% dei 0,57 mm di spessore di un attuale cladding di PWR). Si prevede che la riduzione dell'idrogeno sarà ancora più elevata se si utilizza FeCrAl come rivestimento esterno.



#### Back-end: stoccaggio del combustibile esausto

L'attivazione del <sup>98</sup>Mo porta alla produzione di <sup>99</sup>Tc che in quanto isotopo a lunga vita è contenuto (al pari di <sup>14</sup>C, <sup>129</sup>I, <sup>59</sup>Ni e <sup>94</sup>Nb) nel documento sui requisiti di stoccaggio dei rifiuti nucleari da regolamento NRC 10CFR61. La quantità di <sup>99</sup>Tc nel cladding dovrebbe comunque essere inferiore a quella contenuta nel combustibile esausto.

### 3.3 Acciai avanzati: FeCrAl

Sia in condizioni operative standard che in condizioni incidentali, i cladding in lega FeCrAl in combinazione con combustibile UO<sub>2</sub> sembrano rappresentare una soluzione tecnologica alternativa a quelli in lega di Zirconio comunemente utilizzati nei reattori PWR. Inoltre data la loro compatibilità con i requisiti meccanici neutronici e termoidraulici degli assembly esistenti, ma pure con quelli della chimica del Reactor Coolant System (RCS) di PWR e BWR, il loro impiego in reattori commerciali in attività sembra essere solo questione di tempo. Del resto GE/GNF e Southern Nuclear prevedono di inserire il primo prototipo di combustibile con FeCrAl in un reattore commerciale già entro il 2018. Il reattore scelto è l'Unità 1 della centrale nucleare di Hatch in Georgia (USA), nel quale durante il refueling del 29° ciclo verranno inserite da 2 a 8 barrette di combustibile segmentate (Lead Fuel Rods – LFRs) per ciascuno dei 2/4 assembly di prova (Lead Test Assemblies – LTAs) previsti.

Il ricorso a cladding in lega FeCrAl si spiega innanzitutto con la possibilità di migliorare la ritenzione dei prodotti di fissione e la cinetica dei processi ossidativi in condizioni incidentali. Il tasso di ossidazione del FeCrAl infatti, essendo almeno mille volte più lento di quello dello Zircaloy, permette una significativa riduzione nella generazione di calore e di idrogeno in condizioni incidentali. E sebbene la temperatura di fusione (melting temperature) del FeCrAl sia più bassa di quella dello Zircaloy (1500°C vs 1850°C), quest'ultimo incorre in fenomeni di ossidazione autocatalitica già a temperature di 1200°C. Come conseguenza lo Zircaloy viene ossidato dal vapore e reagisce catastroficamente con il combustibile prima della fusione del FeCrAI. Altrettanto importante il fatto che l'utilizzo di cladding in lega FeCrAI dovrebbe aumentare il tempo di grazia del reattore. Le analisi dei benefici in un BWR in condizioni di station blackout hanno confermato un aumento del tempo di grazia del reattore con cladding in FeCrAl rispetto a quello in Zircaloy. Analoghi risultati emergono anche da un recente studio del MIT [2] su PWR nel quale si evidenzia però che il guadagno sul tempo di grazia per effetto del cladding in FeCrAl è complessivamente marginale.

Restano aperte principalmente due sfide. La prima riguarda il maggiore assorbimento neutronico parassitico della lega FeCrAl rispetto allo Zircaloy che causerebbe un aumento dei costi sul ciclo del combustibile nell'ordine del 20%. Inoltre eventuali modifiche in fase di design che potrebbero rendersi necessarie, come ad esempio quelle dei sottocanali, avrebbero un impatto ulteriormente negativo sull'economia del ciclo del combustibile. La seconda è dovuta alle maggiori quantità di trizio (prodotto dalla fissione) rilasciate nel refrigerante. L'assenza di idruri stabili, cioè di composti dell'idrogeno con altri elementi



(particolarmente quelli dei gruppi 1–16) che nello Zircaloy si producono proprio per effetto delle reazioni con l'idrogeno, permetterebbe infatti al trizio una maggiore permeabilità attraverso il cladding in lega FeCrAl. Questo è un problema che riguarda in particolar modo i BWR nei quali il fluido refrigerante del circuito primario va direttamente in turbina. Altri aspetti tecnici che meritano ulteriore approfondimento hanno a che fare con la fabbricazione, con eventuali nuovi provvedimenti normativi e col comportamento del materiale irraggiato.

Per ciascuno di questi aspetti si stanno cercando opportune strategie di mitigazione quando non vere e proprie soluzioni. Sul fronte neutronico queste strategie vanno dall'utilizzo di materiali alternativi nel fuel assembly come materiali compositi in carburo di silicio nei canali di flusso (silicon carbide composite channel materials) fino ad un maggiore tasso di generazione del calore passando per un rilassamento dei vincoli normativi in virtù delle migliori performance sia in condizioni operative standard che in condizioni incidentali. Sul fronte trizio una possibile strategia di mitigazione, attualmente in fase di sviluppo, potrebbe essere quella di rivestire il cladding, internamente ed esternamente, con uno strato di allumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Sul fronte fabbricazione, studi recenti hanno escluso che processi di metallurgia tradizionali come il metodo del pellegrino (pilgering) lo stampaggio (drawing) l'estrusione (extruding) e la saldatura (welding) non siano anche applicabili alle leghe FeCrAl. In merito ad eventuali cambiamenti normativi, sebbene alcuni di questi siano inevitabili per

la commercializzazione del nuovo cladding, la loro portata dovrebbe essere ragionevolmente contenuta. Infine programmi di sviluppo attuali e futuri dovrebbero presto fornire dati e proprietà del materiale irraggiato, e tra questi quello, attualmente in corso presso i Laboratori Nazionali di Idaho (INL), in cui un combustibile con cladding in lega FeCrAl irraggiato nel reattore ATR (Advanced Test Reactor) subirà analisi di post-irraggiamento (post irradiation examination – PIE) già entro il 2018.

#### Fabbricazione

Sebbene il processo di fabbricazione del cladding in FeCrAl non sia stato ancora sperimentato su larga scala, non sembrano esserci ostacoli significativi alla sua realizzazione. Prove preliminari hanno dimostrato la compatibilità di FeCrAl con processi di qualità, saldatura e manifattura utilizzate per lo Zircaloy. Recentemente sono stati fabbricati tubi in APMT e C26M<sup>5</sup> di 3 m di lunghezza e 0,4 mm di spessore attraverso il metodo del pellegrino e lo stampaggio. La fase successiva riguarderà la fabbricazione di tubi in FeCrAl lunghi (4-5 m) e sottili (350 µm) per assembly di *Lead Fuel Rods*. Anche la fabbricazione della barretta di combustibile UO<sub>2</sub>/FeCrAl sembra essere compatibile con le tecnologie attualmente in uso. D'altronde la pastiglia di combustile per un assembly con cladding in lega FeCrAl è la stessa di quella utilizzata per gli attuali LWR, quindi con arricchimento massimo in <sup>235</sup>U al 5%.

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> APMT e C26M sono due diverse leghe in FeCrAl attualmente in commercio.



Il processo di licensing della tecnologia UO<sub>2</sub>/FeCrAl da parte della US NRC sembra quindi essere diretto e raggiungibile. Il sistema UO<sub>2</sub>/FeCrAl dovrebbe avere inoltre un impatto minimo o addirittura nullo sulla movimentazione (handling) e sul trasporto (shipping) del fuel come su tutte le altre operazioni in impianto.

#### Condizioni operative non incidentali

Gli effetti del cladding in FeCrAl sulla termoidraulica, quali ad esempio l'emissività (emissivity) e la rewet temperature, sono minori e del tutto irrilevanti nelle applicazioni di LFR/LFA. In Figura 5 sono riportati i risultati ottenuti dal Brookhaven National Laboratory relativamente al flusso di calore normalizzato (relative heat flux), alla temperatura media del combustibile (average fuel temperature) e alla temperatura del refrigerante (coolant temperature) in funzione della quota assiale di una barretta media di PWR. Come si vede non ci sono effetti rilevanti che differenziano i due sistemi. A breve verranno realizzate misure di critical heat flux utilizzando uno strato di alluminia per la ritenzione del trizio.



Figura 5. Effetti sulla termoidraulica del cladding in lega FeCrAl.

Riguardo alla resistenza meccanica della lega FeCrAl, questa a inizio vita (BoL) e senza irraggiamento è superiore a quella dello Zircaloy. La Figura 6 mostra che lo sforzo di snervamento longitudinale del APMT è quasi quattro volte superiore a quello dello Zircaloy. Risultati analoghi valgono anche per il carico di rottura longitudinale (UTS – ultimate tensile stress) e per l'allungamento a rottura (elongation to failure) (Figura 7).

A fine vita (EoL) la resistenza meccanica dovrebbe aumentare così come la duttilità decrescere analogamente a quanto accade in altre leghe meccaniche (come la lega 304SS) a causa dei difetti indotti dall'irraggiamento. Studi per determinare le proprietà meccaniche ad un livello di irraggiamento di 15 dpa sono attualmente in corso.



ENEN Ricerca Sistema Elettrico



Figura 6. Sforzo di snervamento (yield strength) di Zircaloy-2 e APMT.



Figura 7. Proprietà meccaniche di Zircaloy-2 e APMT senza irraggiamento e a inizio vita (BoL).

Diversamente dalla lega di Zirconio che, com'è noto, riduce la propria duttilità a causa della presenza di idruri stabili prodotti dalle reazioni con l'idrogeno precedentemente assorbito, la lega FeCrAl non reagisce con l'idrogeno che quindi conserva un'alta mobilità al suo interno. Analisi sullo scorrimento viscoso (creep) del cladding in lega FeCrAl sono attualmente in corso.

In Tabella 1 sono confrontati Zircaloy-2 e APMT su conduttività termica (thermal conductivity), calore specifico (specific heat) e punto di fusione (melting point). Come si vede le conduttività termiche dei due materiali sono tra loro comparabili. Al contrario APMT ha un calore specifico quasi doppio di quello dello Zircaloy-2 (è cioè necessaria una maggiore quantità di calore, sotto forma di energia nel fuel, per far crescere la temperatura del cladding). La temperatura di picco del cladding durante un LOCA sarà pertanto inferiore a quella dello Zircaloy-2. Infine il punto di fusione dello Zircaloy-2 è di circa 350°C più alto di quello del APMT. Aspetto questo che ha purtuttavia un effetto modesto sulla progettazione dal momento che lo Zircaloy si ossida a una temperatura inferiore a quella in cui APMT fonde.



| Logo        | Conduttività termica | Calore specifico  | Punto di fusione |  |
|-------------|----------------------|-------------------|------------------|--|
| Lega        | [W/mK]               | [kJ/kgK]          | [°C]             |  |
| Zircalov 2  | 14,5 - 14,2          | 0,285 – 0,368     | 1849             |  |
| 211 Caloy-2 | (da 25°C a 425°C)    | (da 25°C a 700°C) |                  |  |
|             | 11 – 21              | 0,48 - 0,71       | 1500             |  |
| APIVII      | (da 50°C a 600°C)    | (da 20°C a 600°C) | 1300             |  |

Tabella 1. Proprietà termiche di Zircaloy-2 e APMT.

La lega FeCrAl offre sia in acqua ad alta temperatura che in vapore una resistenza alla corrosione (corrosion resistance) superiore a quella dello Zircaloy-2. Un recente esperimento in cui due campioni di Zircaloy-2 e APMT sono rimasti esposti per un anno ad acqua ad alta temperatura per simulare le condizioni di PWR e BWR, ha mostrato che la lega in FeCrAl presenta uno strato ossidato 4/5 volte più sottile e un tasso di ossidazione tre ordine di grandezza inferiore rispetto a quelli dello Zircaloy-2.

Non ci sono al momento elementi da cui inferire la compatibilità chimica tra cladding in lega FeCrAl e refrigerante.

La produzione di gas di fissione e l'aumento della pressione interna al cladding ad essi imputabile non dovrebbe differire dal caso UO<sub>2</sub>/Zircaloy-2 e questo perché il combustibile UO<sub>2</sub> opera a condizioni di temperatura e irraggiamento simili. E' viceversa una fonte potenziale di rischio l'alta concentrazione di trizio che si avrebbe nel rifrigente con un cladding in FeCrAl. Una possibile strategia di minimizzazione sembra essere quella di preossidare il cladding per 2 h in modo da formare in superfice uno strato di allumina in grado di ridurre di oltre tre ordini di grandezza il tasso di permeazione (permeation) dell'idrogeno.

#### Condizioni operative incidentali

#### Design Basis Accident

La tecnologia UO<sub>2</sub>/FeCrAl mostra un comportamento del tutto analogo a quella convezionale in caso di arresto di emergenza del reattore (SCRAM). Un confronto tra le due tecnologie ha mostrato valori finali di deformazione delle pellet del tutto analoghi (mentre i tassi di deformazione della pellet con cladding in FeCrAl sono più rapidi).

La resistenza meccanica del cladding in FeCrAl dopo irraggiamento necessita di ulteriore approfondimento. Attualmente sono in corso alcuni test per valutare gli effetti del quenching sul cladding irraggiato.

Come visto il cladding in FeCrAl fonde a 1500°C che è una temperatura più alta della temperatura limite per DBA<sup>6</sup> (Design Basis Accident). Le leghe in FeCrAl resistono agli attacchi del vapore fino al loro punto di fusione. Gli elementi contenuti nella lega non

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup> DBA è un evento postulato utilizzato per determinare i requisiti di performance accettabili di strutture, sistemi, componenti.



di

37

reagiscono con l'idrogeno a formare idruri stabili. Ma quando la temperatura aumenta, aumentano sia la solubilità che il tasso di diffusione dell'idrogeno (non essendo legato) all'interno della lega.

Eventuali reazioni tra FeCrAl e vapore potrebbero portare alla produzione di diidrogeno (H<sub>2</sub>) che, com'è noto, è un gas altamente infiammabile. In realtà ai regimi di temperatura tipici dei DBA le quantità di diidrogeno effettivamente prodotte sembrano essere modeste.

Ridotti fenomeni di ossidazione esotermica tra FeCrAl e vapore sembrano permettere, in eventi di tipo DBA quali il LOCA, temperature del cladding più alte che, a loro volta, si traducono in tempi di attivazione degli ECCS (Emergency Core Cooling Systems) più lunghi. E' comunque bene sottolineare che l'utilizzo di leghe in FeCrAl non rimuove in alcun modo la necessità di sistemi di sicurezza ingegnerizzati.

#### **Design Extension Conditions**

Il comportamento meccanico del FeCrAl ad alte temperature in condizioni incidentali per le quali sono richieste un'aggiunta di prevenzione e un piano di mitigazione (Design Extension *Conditions*) è eccellente. Dati sul comportamento meccanico del APMT sotto irraggiamento non sono ancora disponibili, così come quelli sulla resistenza alla frammentazione della pastiglia di combustibile dopo allagamento (flooding) ad inizio vita e con irraggiamento.

Conduttività termica e calore specifico del APMT a 1200°C sono rispettivamente pari a 29 W/mK e 0,70 kJ/kgK.

La compatibilità chimica tra combustibile e cladding in FeCrAl durante l'irraggiamento non è attualmente nota ad eccezione di quella ricavata in test out-of-pile alle temperature tipiche dei Design Extension Conditions.

La produzione di gas di fissione e l'aumento della pressione nel cladding non dovrebbe differire dal caso Zircaloy-2 e questo perché il combustibile UO<sub>2</sub> opera a condizioni di temperatura e irraggiamento simili.

Uno dei maggiori vantaggi del FeCrAl se confrontato con lo Zircaloy-2 è dovuto alla cinetica dei processi ossidativi in presenza di vapore surriscaldato. A 1200°C il tasso di ossidazione dellla lega FeCrAl è approssimativamente 1000 volte inferiore a quella dello Zircaloy-2. Una cinetica più lenta riduce il tasso di produzione dell'idrogeno e quello di crescita della pressione nel vessel. Test di ossidazione intensivi con campioni di FeCrAl presso il KIT hanno dimostrato che il comportamento di queste leghe è significativamente influenzato dalla loro composizione. Quantità critiche di Cr e Al sono necessarie per creare uno strato protettivo in allumina a varie temperature durante test isotermici. Una rapida e completa usura della lega senza formazione di allumina è stata osservata in test di ossidazione a temperature superiori ai 1300°C o durante test a rampa con vapore ad alta temperatura e repentini aumenti dei tassi di produzione del calore. Una pre-ossidazione a bassa temperatura crea uno strato di allumina che permette una protezione effettiva oltre la temperatura di fusione della lega. L'aggiunta di elementi reattivi (ad esempio l'ittrio) può migliorare la compatibilità tra FeCrAl e vapore specialmente durante test a rampa. In Figura 8 sono riportati, per diverse leghe in



di

37

FeCrAl (P10-Fe12Cr5Al, P11-Fe12Cr8Al, P14-Fe16Cr8A10.3Y, APM-Fe22Cr5.8Al), il loro tasso di produzione dell'idrogeno durante test isotermici a differenti temperature (sinistra) e il loro aspetto a test ultimato (destra).

Le leghe in FeCrAl, riducendo la formazione di gas infiammabile, riducono anche la dipendenza da sistemi come gli ignitori (hydrogen igniters) e i ricombinatori passivi autocatalitici (passive utocatalytic recombiners) disposti nel contenimento e nel reactor building. Anche le strategie di venting potrebbero diventare più flessibili dal momento che le pressioni del contenimento sono minori essendo minore il contributo dovuto all'idrogeno. Resta comunque la necessità di predisporre adeguati sistemi di raffreddamento per la rimozione del calore di decadimento.



Figura 8. Tasso di produzione dell'idrogeno durante l'ossidazione per leghe a T>1200°C.

#### Back-end: stoccaggio del combustibile esausto/trasporto/smaltimento/riprocessamento

E' ragionevole pensare che la resistenza meccanica e la duttilità dei bundle di combustibile esausto con cladding in FeCrAl siano tali da permetterne una facile rimozione dal reattore e un altrettanto facile trasporto prima nelle piscine di raffreddamento (cooling pools) e poi nelle aree dedicate allo storage a secco (dry cask storage area). E' plausibile inoltre che geometria e proprietà meccaniche dei bundle si mantengano anche oltre i 100 anni di permanenza nello storage. Grazie alla presenza di Cr e Mo, le leghe in FeCrAl sono protette dai fenomeni corrosivi tipici delle piscine di raffreddamento. Si ritiene infine che le barrette di combustibile con cladding in FeCrAl possano essere riprocessate mediante tecnologie convenzionali.



#### 3.4 Cladding in materiale composito SiC/SiC

I materiali ceramici in carburo di silicio (silicon carbide – SiC) ad alta purezza e i loro compositi, come le fibre di SiC in matrice SiC (compositi SiC/SiC), hanno dimostrato di avere ottime proprietà ad alte temperature, eccellente resistenza all'irraggiamento, bassa attivazione e altre notevoli proprietà chimico-fisiche. Per la loro elevata tolleranza all'irraggiamento neutronico, questi compositi sono considerati di grande interesse sia per future applicazioni in reattori a fusione e in sistemi avanzati a fissione (reattori di IV generazione), sia per nuove soluzioni tecnologiche negli LWR.

I cladding in composito SiC si basano su strutture multistrato in cui tutti gli strati sono compositi SiC/SiC o sulla combinazione di strati in compositi SiC/SiC e strati in SiC CVD monolitico o, in alcuni casi, strati in metallo.

Per la loro eccezionale resistenza all'ossidazione da vapore ad alta temperatura questi cladding dovrebbero contribuire in modo significativo alla safety passiva dell'impianto tanto in caso di Design Basis Accidents quanto di Design Extension Condition (o Beyond Design Basis). Inoltre, rispetto alle leghe in zirconio, ulteriori benefici sono dovuti alla minore sezione d'urto di assorbimento che permetterebbe un minore arricchimento in uranio e un aumento della durata del ciclo del combustibile; alla possibilità di raggiungere burnup e potenze più elevati; alla eccezionale resistenza alle radiazioni e alla mancanza di crescita progressiva dell'irraggiamento. Infine, i cladding in composito di SiC aumenterebbero significativamente i margini sul combustibile in presenza di LOCA, eliminerebbero il problema dovuto al departure from nucleate boiling (DNB) e fornirebbero margini aggiuntivi alle Design Extension Condition.

Esistono per contro aspetti che meriterebbero approfondimenti ulteriori. Tra questi, quelli più direttamente coinvolti in applicazioni per LWR hanno a che fare con la corrosione idrotermica (*idrothermal corrosion*) e la loro capacità di ritenzione dei prodotti di fissione.

#### **Fabbricazione**

La fabbricazione è fattibile essendo stata dimostrata la capacità di modellare preforme fibrose tubolari dalla terza generazione di fibre di SiC (Hi-Nicalon Tipo S e Tyranno SA3). Il processo CVI è inoltre una tecnologia matura per produrre una matrice di carburo di silicio, perfettamente cristallizzata e con elevata purezza in grado di garantire la resistenza all'irraggiamento neutronico. Tuttavia, il concetto di progettazione strutturale dei cladding in composito SiC/SiC deve essere ulteriormente ottimizzato e rimane da creare un nuovo network industriale specificatamente dedicato alla produzione di tubi di lunghezza richiesta. Inoltre, non essendo possibile saldare la ceramica SiC, è necessario sviluppare una tecnologia per la chiusura delle estremità in grado di garantire la tenuta dei gas di fissione e un'adeguata resistenza.

Nuove linee guida per il licensing devono essere prodotte in conformità alle specifiche modalità di failure del cladding SiC/SiC. E' quindi di grande importanza lo sviluppo di



di

37

procedure standard per testare e valutare strutture e materiali compositi (definendo ad esempio un indice di danno termomeccanico).

La questione del costo relativamente elevato delle fibre SiC deve essere affrontata tenendo conto della produzione su larga scala e del beneficio dovuto al minore arricchimento in UO<sub>2</sub>.

#### Condizioni operative non incidentali

In condizioni operative standard, la compatibilità chimica del SiC con il refrigerante a circa 300° C porta a una recessione in acqua con una velocità che dipende dalle caratteristiche dell'ambiente chimico. La corrosione idrotermica del SiC irraggiato e l'effetto della radiolisi devono essere dovutamente esaminati. Dovrebbero essere proposte soluzioni di mitigazione; molti di queste, come rivestimenti, trattamenti specifici della superficie o modificazioni della chimica dell'acqua, sono attualmente oggetto di indagini intensive da parte della comunità scientifica.

La bassa pseudo-duttilità può causare problemi di interazione meccanica tra pellet e cladding (PCI) che devono essere opportunamente valutati. Così come è necessario valutare le proprietà di failure statistico dei cladding in composito SiC/SiC, definendo in modo adeguato gli sforzi ammissibili di progettazione nell'ambito di un approccio probabilistico.

La relativamente bassa conducibilità termica sotto irraggiamento nel normale intervallo operativo dei LWR può causare notevoli sollecitazioni meccaniche che portano ad un prematuro multi-cracking. Il rivestimento ad alta temperatura del cladding SiC/SiC è sottoposto a elevati carichi di rottura a causa dello swelling differenziale del SiC irraggiato. Inoltre la diminuzione nel SiC della conducibilità termica indotta dall'irraggiamento potrebbe peggiorare la situazione.

Poiché il comportamento termico dei compositi SiC/SiC sembra dipendere fortemente dal processo di elaborazione della matrice SiC, dalla natura della fibra SiC e dalla disposizione fibrosa, la presenza di un rivestimento monolitico in ceramica o in metallo nel design multistrato induce resistenze termiche interfacciali che ostacolano la conduzione del calore.

Tanto lo swelling indotto dall'irraggiamento quanto la bassa conducibilità termica dei cladding in compositi SiC sotto irraggiamento portano ad un aumento del gap tra fuel e pellet causando un aumento della temperatura del carburante. Questo problema richiede lo sviluppo di combustibili alternativi con maggiore conducibilità termica e geometria modificata (come la pellet anulare).

Per contro i compositi SiC/SiC hanno presentato innegabili vantaggi:

- ✓ trasparenza neutronica per la bassa sezione d'urto di cattura (nel design multistrato maggiore *neutron penalty* a causa della presenza del rivestimento metallico);
- $\checkmark$  Critical heat flux (CHF) più elevato rispetto alle leghe a base di Zr per la migliore bagnabilità della superficie che dipende dalla rugosità superficiale;
- elevata rigidità e comportamento a fatica competitivo;
- ✓ proprietà meccaniche praticamente indipendenti dal tempo in transitori ad alta temperatura.



Inoltre il carburo di silicio si gonfia per effetto dell'irraggiamento neutronico con temperature superiori ai 125° C fino a una dose di saturazione di pochi dpa. Per un carburo di silicio di grado nucleare, il rigonfiamento volumetrico raggiunge un valore massimo vicino al 2% a 300° C (vedi Figura 9).



Figura 9. Evoluzione dipendente dalla fluenza dello swelling volumetrico e della conducibilità termica del SiC CVD.

#### Condizioni operative incidentali (Design Basis Accident and Design Extension Conditions)

Diversi studi dimostrano che i compositi SiC, a differenza delle attuali leghe in Zr, hanno un'eccezionale resistenza all'ossidazione al vapore ad alta temperatura. Anche se la produzione di idrogeno (e di altri gas) e il rilascio di energia sono paragonabili o addirittura più elevati rispetto alle leghe di zirconio, la cinetica di ossidazione estremamente bassa in aria e vapore produrrà, fino a circa 1800° C, una quantità di idrogeno e di energia di 2-3 ordini di grandezza inferiore. Da recenti esperimenti di ossidazione è possibile concludere che i cladding SiC/SiC forniscono ulteriori margini di sicurezza in presenza di LOCA, garantendo fino a 3 giorni di raffreddamento in atmosfera di vapore a 1600° C e alcune ore a 1700° C e 1800° C. Altro aspetto molto interessante è dovuto al fatto che i cladding in SiC/SiC mostrano una migliore integrità strutturale in caso di incidente severo mantenendo di fatto inalterata la geometria di raffreddamento anche ad alte temperature.

La bassa pseudo-duttilità solleva al contrario numerosi interrogativi sul comportamento termomeccanico dei compositi SiC in caso di transitorio di RIA. Diverse soluzioni sono attualmente in fase di studio e tra queste quella che prevede l'inserimento di uno strato



paracolpi in grado di accogliere lo swelling delle pastiglie di combustibile attenuando così il rischio PCMI (Pellet/Clad Mechanical Interaction).

Infine per quanto riguarda la compatibilità chimica tra SiC e UO<sub>2</sub>, il margine di fusione in caso di incidente severo (fase liquida compresa tra 1850-1950 K) rende i compositi SiC/SiC più performanti degli attuali rivestimenti in lega di zirconio.

#### Back-end: stoccaggio del combustibile esausto/trasporto/smaltimento/riprocessamento

La permeazione del trizio sia durante le normali fasi operative che in quelle di stoccaggio e riprocessamento è un aspetto che merita ulteriori approfondimenti. Il fatto che il SiC non reagisca con gli acidi dovrebbe essere un vantaggio rispetto alle attuali tecniche di riprocessamento. Poiché il fuel assembly esausto viene tranciato in fase di riprocessamento, è necessario raccogliere dati specifici sul comportamento dei fasci di barre in SiC.

### 3.5 Componenti non-fuel

I materiali che assorbono i neutroni come la lega di argento-indio-cadmio (Ag-In-Cd) e il carburo di boro (B<sub>4</sub>C) in tubi di acciaio inossidabile (SS) sono ampiamente utilizzati per il controllo della reattività degli LWR. Tuttavia, il punto di fusione della lega Ag-In-Cd (~ 790° C), la temperatura eutettica di B<sub>4</sub>C e ferro (Fe) (~ 1150° C) e la temperatura eutettica di Fe e zirconio (Zr) (~ 950° C) sono inferiori alla temperatura ( $\geq$  1200-1300°C) alla quale, in condizioni di incidente severo, il cladding in Zircaloy inizia seriamente ad ossidarsi. Ciò significa che le barre di controllo possono danneggiarsi e il loro valore di antireattività mutare. Quando ad esempio le barre di controllo di un PWR si danneggiano, la lega in Ag-In-Cd fusa viene espulsa, il che comporta l'immediata volatilizzazione del Cd a causa della sua alta pressione di vapore (punto di ebollizione a pressione atmosferica a 767° C). Quando invece si danneggiano le barre di controllo di un BWR, il materiale neutronico assorbente in carburo di boro entra in contatto diretto col vapore acqueo ad alta temperatura, con possibile conseguente formazione di acido borico volatile (H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>). All'inizio di un incidente severo quindi l'Ag-In-Cd e il B<sub>4</sub>C vengono rimossi ma così facendo l'iniezione di acqua non borata o insufficientemente borata richiesta per il raffreddamento del reattore in condizioni di emergenza può portare a una inserzione di criticità incontrollabile.

Il Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI, Giappone) e AREVA NP (Francia) hanno proposto ed avviato lo sviluppo di nuove barre di controllo (Accident Tolerant Control Rod – ATCR) in modo da migliorare la sicurezza dei reattori ad acqua leggera in qualunque condizione incidentale.

Le principali caratteristiche richieste ad una ATCR sono:

 $\checkmark$  un valore di antirettività comparabile se non superiore a quello delle barre di controllo convenzionali sull'intero periodo operativo del reattore;



- ✓ il fatto di essere realizzata con materiali aventi un punto di fusione e una temperatura eutettica sufficientemente alti così da prevenire, in caso di incidente severo, la rottura della barra di controllo prima di quella del combustibile;
- ✓ una stabilità anche in acqua o vapore in modo da non disintegrarsi in caso di rottura del cladding.

L'idea principale alla base delle ATCR è quindi quella di sostituire i materiali convenzionali con materiali ceramici in grado di soddisfare tali requisiti. La densità teorica, la sezione d'urto macroscopica di assorbimento e la temperatura di fusione di alcuni materiali candidati ad ATCR e di quelli convenzionali sono riassunti in Tabella 2. In Figura 10 sono invece confrontati valore di antireattività e densità sinterizzata delle pellet di alcuni materiali assorbenti.

|  |                                | ATCR Candidate Materials        |                  |                  |           |                  |         |      | Conve<br>Abs     | entional<br>orbers |
|--|--------------------------------|---------------------------------|------------------|------------------|-----------|------------------|---------|------|------------------|--------------------|
|  | Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | $\mathrm{Eu}_{2}\mathrm{O}_{3}$ | $Gd_2O_3$        | $Dy_2O_3$        | $Er_2O_3$ | ZrO <sub>2</sub> | $HfO_2$ | HfC  | AIC <sup>6</sup> | $B_4C$             |
| Theoretical density [g/cm <sup>3</sup> ]       | 7.7 <sup>4</sup>               | 7.9 <sup>4</sup>                | 8.3 <sup>4</sup> | 9.0 <sup>4</sup> | 8.6 5     | 5.7              | 9.7     | 12.2 | 10.2             | 2.6                |
| $\Sigma_{absorption}^{1}$ [cm <sup>-1</sup> ]  |                                |                                 |                  |                  |           |                  |         |      |                  |                    |
| Thermal reactor <sup>2</sup>                   | 23.8                           | 6.5                             | 51.4             | 2.1              | 1.3       | «0.01            | 1.2     | 1.6  | 4.6              | 6.9                |
| Fast reactor <sup>3</sup> (×10 <sup>-3</sup> ) | 10                             | 35                              | 13               | 12               | 10        | 0.5              | 8       | 11   | 19               | 41                 |
| Melting temperature [°C]                       | 2270                           | 2290                            | 2340             | 2230             | 2340      | 2700             | 2800    | 3900 | 800              | 2350               |

<sup>1</sup>: One group macroscopic neutron absorption cross section, based on ORLIBJ40 [6]

<sup>2</sup>: PWR34J40

<sup>3</sup>: 600MMTOCJ40

<sup>4</sup>: Monoclinic crystal system

<sup>5</sup>: Cubic crystal system

Tabella 2. Principali proprietà dei materiali convenzionali e di quelli candidati a ATCR.

|                                       | Sigla di identificazione | Rev. | Distrib. | Pag. | di |
|---------------------------------------|--------------------------|------|----------|------|----|
| <b>ENEN</b> Ricerca Sistema Elettrico | ADPFISS-LP1-113          | 0    | L        | 27   | 37 |



Figura 10. Densità sinterizzata e valore di antireattività di alcuni materiali assorbenti.

Come nuovi materiali per gli ATCR, CRIEPI propone una miscela di sesquiossidi di terre rare (RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, RE = Sm, Eu, Gd, Dy o Er) e biossido di zirconio (ZrO<sub>2</sub>) o RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub> e diossido di afnio (HfO<sub>2</sub>) per PWR e BWR. Va notato che ZrO<sub>2</sub> o HfO<sub>2</sub> vengono aggiunti per migliorare la stabilità chimica di RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub> anche in acqua o vapore.

AREVA-NP propone la sostituzione della barra in Ag-In-Cd con una combinazione di due tipi di pellet: una pellet di carburo di afnio (HfC) e una pellet di afnato di samario ( $Sm_2HfO_5$ ) (vedere Figura 10). Per quanto riguarda la sostituzione di  $B_4C$ , l'afnato di europio ( $Eu_2HfO_5$ ) è considerato un emettitore non-alfa con interessanti proprietà nei confronti dello swelling.

I cladding delle ATCR non sono attualmente oggetto di ricerca. Tuttavia, se nuove soluzioni (come gli EATF) dovessero consentire temperature molto più elevate rispetto al punto di fusione del SS (~ 1450° C), allora anche la modifica dei cladding dovrebbe essere considerata.

#### **Fabbricazione**

Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZrO<sub>2</sub>, HfO<sub>2</sub> e HfC sono disponibili come materie prime e non sembra esserci nessun rischio su grande scala. Gli attuali forni di sinterizzazione del B<sub>4</sub>C sono compatibili con le esigenze di produzione di questi materiali. I processi di produzione delle ATCR sono perfettamente compatibili con gli attuali impianti di produzione di combustibile e barre di controllo. Le tecniche standard esistenti sono appropriate per questi materiali. Pellet in HfC, Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-HfO<sub>2</sub>, Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-HfO<sub>2</sub> e Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZrO<sub>2</sub> sono state fabbricate con successo. Le densità dei granuli sinterizzati erano sufficientemente elevate (> 95% TD). Le prime caratterizzazioni sono in linea con i dati disponibili in letteratura.

#### Condizioni operative non incidentali



Poiché le ATCR sono progettate per simulare le CR standard di BWR o PWR in normali condizioni di esercizio (incluso il valore di antireattività), non è previsto alcun impatto sul bruciamento e sull'utilizzazione dell'impianto. In realtà, le ATCR dovrebbero permettere un maggiore lifetime e una maggiore manovrabilità. Infatti a differenza di quanto avviene negli attuali LWR dove la durata delle barre di controllo è limitata dallo swelling del materiale assorbente (Ag-In-Cd o B<sub>4</sub>C), i nuovi materiali usati per le ATCR presentando per la loro struttura cubica (BCC, fluorite) un basso swelling sotto irraggiamento, consentono un considerevole aumento della durata di vita rispetto alle attuali CR. Ulteriori test di irraggiamento sono comunque necessari per quantificare lo swelling di questi nuovi materiali assorbenti e confermare l'aumento del lifetime delle ATCR.

I nuovi materiali assorbitori hanno una conducibilità termica inferiore a quella di Ag-In-Cd (circa 10 volte inferiore per HfC e 50-100 volte inferiore per RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-HfO<sub>2</sub>) e B<sub>4</sub>C (circa 10-25 volte inferiore per  $RE_2O_3$ -HfO<sub>2</sub>). Tuttavia, la bassa densità di potenza all'interno dei materiali assorbitori delle barre di controllo consente un margine sufficiente rispetto alla temperatura di fusione. Inoltre, a condizione che siano progettate con lo stesso valore di antireattività delle barre di controllo attuali, le ATCR non dovrebbero avere alcun impatto sul comportamento neutronico del nocciolo. In condizioni di normal and anticipated operation occurrence (AOO), il cladding delle barre di controllo è intatto e nessuna interazione con il refrigerante è prevista. Inoltre, il rischio di cracking dell'ATCR è ulteriormente ridotto per l'assenza di swelling e di gas nel materiale assorbente.

Pur non essendo disponibili dati a riguardo, si prevede che la procedura di licensing per le barre di controllo convenzionali sarà applicabile anche agli ATCR.



Figura 11. Valore di reattività di diversi tipi di barre di controllo di PWR al variare della profondità di inserzione.

#### Condizioni operative incidentali (Design Basis Accident and Design Extension Conditions)



Si osserva una migliorata stabilità meccanica e geometrica delle CR nei DBA dovuta sia al fatto che i materiali assorbenti rimangono solidi e non subiscono fusione (Ag-In-Cd) né vaporizzazione (Cd), sia al fatto che la reazione eutettica tra  $B_4C$  e Fe (cladding) è esclusa.

Il punto di fusione dei materiali assorbitori ATCR è significativamente più alto di quello del cladding in SS (~ 1450° C). Un esperimento di compatibilità ad alte temperature di RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe, RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SS e RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-HfO<sub>2</sub>/Fe ha mostrato che nessuna reazione significativa si è verificata a temperature inferiori al punto di fusione del cladding in SS. Data la somiglianza chimica tra i RE e tra Zr e Hf, lo stesso comportamento è previsto anche per RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZrO<sub>2</sub> e per RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-HfO<sub>2</sub>. In altri termini, i nuovi materiali assorbenti non causano, come accade al B<sub>4</sub>C, l'eutettico con il Fe.

Questi risultati indicano che in caso di incidente severo le ATCR non dovrebbero essere danneggiate prima che si verifichino gravi danni alle fuel rods. Inoltre anche dopo la fusione del nocciolo, i materiali delle ATCR (RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZrO<sub>2</sub> e RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-HfO<sub>2</sub>) dovrebbero coesistere con i materiali fusi e solidificati del combustibile e prevenire la ricriticità che potrebbe avvenire a seguito di iniezione di acqua non borata. Sebbene il RE2O3 sia ben noto per essere chimicamente instabile in acqua o aria umida, può essere stabilizzato mescolando ZrO<sub>2</sub> e/o HfO<sub>2</sub>. Queste proprietà dovranno essere verificate e confermate da test sperimentali.



### 4. Calcoli di criticità con cladding in FeCrAl

A fronte dei numerosi vantaggi derivanti in particolar modo dalla possibilità di migliorare la ritenzione dei prodotti di fissione e la cinetica dei processi ossidativi in condizioni incidentali oltre che dall'aumento del tempo di grazia, l'impiego di cladding in FeCrAl in reattori commerciali è condizionato alla risoluzione di due aspetti di cui il primo, come si è visto, ha a che fare con il maggiore assorbimento neutronico parassitico della lega FeCrAl rispetto allo Zircaloy con conseguente aumento dei costi sul ciclo del combustibile.

Un articolo del 2015 [3] propone un'analisi preliminare dei principali aspetti neutronici legati all'utilizzo di questa tecnologia in noccioli di tipo PWR. Oltre alla lega in FeCrAl, lo studio in esame si concentra anche su altri quattro cladding e in partivolare tre cladding a base di ferro – due acciai inossidabili austenitici 304SS e 310SS e una lega ferritica avanzata APMT<sup>™</sup> - e un cladding a base di carburo di silicio - fibre di SiC in matrice SiC (SiC/SiC). L'articolo si limita allo studio della singola barretta di combustibile di PWR e rimanda a studi successivi l'analisi a livello di assembly e di nocciolo. Il comportamento neutronico di questi nuovi cladding è stato studiato mediante un'analisi di cella 2D con la sequenza TRITON del pacchetto SCALE 6.1.2 che accoppia il codice di trasporto 2D NEWT con il codice di bruciamento e di decadimento ORIGEN. Il modulo di SCALE CENTRM è stato utilizzato per produrre sezioni d'urto a 238 gruppi con risonanze schermate basate sui dati nucleari ENDF/B-VII.O. In tutto lo studio, il rapporto P/D e il gap tra pellet e cladding sono stati mantenuti costanti rispettivamente a 1,326 e a 82,55 µm. Viceversa lo spessore del cladding e il raggio della pastiglia di UO<sub>2</sub> sono stati modificati in modo da soddisfare le esigenze di lunghezza del ciclo. Per simulare la curva di letdown del boro da inizio a fine ciclo è stato considerato un valore medio di boro pari a 630 ppm. In merito alle temperature, con Zircaloy e leghe metalliche 310SS e FeCrAl le temperature di fuel cladding e gap sono state fissate, rispettivamente, a 900 600 e 600 K mentre con cladding in SiC/SiC la ridotta conducibilità del materiale ceramico ha portato a considerare temperature complessivamente più alte e cioè fuel a 1100 K, cladding e gap a 700 K. La temperatura del moderatore (acqua borata) è pari a 580 K con una densità costante di 0,7119 g/cm<sup>3</sup>. La Figura 12 fornisce le composizioni elementari dei diversi cladding esaminati nello studio. In Figura 13 sono contenute, per ciascun cladding, densità e sezione d'urto di assorbimento microscopica alle energie termiche.

| Material |     | Fe    | Cr    | Al   | Zr    | Ni    | Sn   | Mn  | Mo    | Y    | Si    | Hf   | с     |
|----------|-----|-------|-------|------|-------|-------|------|-----|-------|------|-------|------|-------|
| Zircaloy | wt% | 0.15  | 0.1   |      | 98,26 |       | 1.49 |     |       |      |       |      |       |
| 304SS    |     | 71.35 | 18,9  |      | 0     | 8,35  |      | 0.7 | 0.27  |      | 0.42  |      |       |
| 310SS    |     | 52,55 | 25,22 |      | 0     | 19,51 |      | 1.9 | 0.122 |      | 0.7   |      |       |
| FeCrAl   |     | 75    | 20    | 5    | 0     |       |      |     | 0     |      | 0     |      |       |
| APMT     |     | 69.79 | 21.6  | 4.9  | 0.1   |       |      |     | 2.8   | 0.12 | 0.53  | 0.16 |       |
| SiC      |     |       |       |      |       |       |      |     |       |      | 70.08 |      | 29,92 |
| Zircaloy | at% | 0.24  | 0.17  |      | 98.43 |       | 1.15 |     |       |      |       |      |       |
| 304SS    |     | 70.44 | 20.04 |      |       | 7.84  |      | 0.7 | 0.16  |      | 0.82  |      |       |
| 310SS    |     | 51.72 | 26.66 |      |       | 18.27 |      | 1.9 | 0.07  |      | 1.37  |      |       |
| FeCrAl   |     | 70.2  | 20.11 | 9.69 |       |       |      |     |       |      |       |      |       |
| APMT     |     | 65.84 | 21.89 | 9.57 | 0.06  |       |      |     | 1.54  | 0.07 | 0.99  | 0.05 |       |
| SiC      |     |       |       |      |       |       |      |     |       |      | 50    |      | 50    |
|          |     |       |       |      |       |       |      |     |       |      |       |      |       |

Figura 12. Composizioni elementari dei cladding a confronto.



| Material | Density (g/cm <sup>3</sup> ) | Microscopic thermal neutron<br>absorption cross section (barns) |
|----------|------------------------------|---|
| Zircaloy | 6.56                         | 0.20  |
| 304SS    | 7.9                          | 2.86  |
| 310SS    | 8.03                         | 3.21  |
| FeCrAl   | 7.1                          | 2.43  |
| APMT     | 7.3                          | 2.47  |
| SiC      | 2.58                         | 0.086   |

Figura 13. Densità e sezione d'urto di assorbimento microscopica alle energie termiche dei diversi cladding.

La geometria utilizzata nei calcoli di reattività è quella tipica di un assembly 17 X 17 di PWR con combustibile UO<sub>2</sub> arricchito in <sup>235</sup>U al 4.9% e densità 10,47 g/cm<sup>3</sup> (pari al 96% di quella teorica). In Figura 14 è graficata la differenza di k<sub>inf</sub> al variare del bruciamento in EFPD (Effective Full Power Days) tra la soluzione di riferimento, qui rappresentata dalla curva arancione, e le altre soluzioni prese in esame. Come si vede, con la sola eccezione del carburo di silicio, lo svantaggio neutronico associato all'utilizzo degli altri cladding è consistente. E' inoltre interessante osservare che all'aumentare del bruciamento tale differenza decresce per effetto di una maggiore produzione di plutonio in presenza di uno spettro neutronico più duro. Dopo 1475 EFPD, cioè dopo circa tre cicli ciascuno dei quali da 18 mesi, la reactivity penalty rispetto al caso di riferimento in Zircaloy è del 4,2%, 4,8%, 3,2% e 4,0% per le soluzioni, rispettivamente, con cladding in 304SS, 310SS, FeCrAl e APMT. La perdita in reattività di queste soluzioni comporta inoltre una significativa riduzione della lunghezza del ciclo.

Per compensare una tale perdità di reattività alcune variazioni alla geometria della barretta sono state introdotte mantenendo invariati il rapporto P/D e il gap tra fuel e cladding. Dei nove casi analizzati solo quello che si ottiene diminuendo lo spessore del cladding in FeCrAl a 302,2 µm e aumentando il volume della pastiglia di UO<sub>2</sub> di quasi il 14% con arricchimento al 4,9% rispetta i requisiti di durata del ciclo della soluzione standard con arricchimento in <sup>235</sup>U al 4,9% e spessore dello Zircaloy a 571,5 µm. Del resto la maggiore resistenza delle leghe metalliche rispetto a quelle a base di Zirconio permette una significativa riduzione del loro spessore. Se coerentemente con l'utilizzo di questi materiali negli impianti LWR lo spessore fosse portato a 350 µm, l'arricchimento necessario per avere un valore di criticità a EoC di 0,000 (± 0,001) sarebbe di 5,06%.



ENEN Ricerca Sistema Elettrico



Figura 14.  $\Delta k_{inf}$  al variare degli EFPD tra la soluzione di riferimento e quelle con cladding alternativi.

E' importante sottolineare che i risultati proposti nello studio sono stati calcolati a partire dallo stesso valore di conducibilità dei diversi materiali. E' sembrato quindi opportuno verificare, per la soluzione in FeCrAl, in che misura una variazione della conducibiltà potesse incidere sul  $\Delta k$  tra questa soluzione e quella di riferimento (in Zircaloy). Infatti, com'è noto, una diversa conducibilità del cladding determina una diversa distribuzione di potenza nella pellet e quindi una diversa temperatura di centro pellet da cui, a seguire, un diverso contributo dell'effetto Doppler sulla criticità del sistema. A differenza della conducibilità dello Zircaloy, pressoché costante, quella della lega in FeCrAl aumenta in maniera monotona crescente al variare della temperatura. In Figura 15 i valori di conducibilità termica di alcune leghe FeCrAl in assenza di irraggiamento aumentano di circa il 50% nel passare da 300 a 900 K (con un errore del 7% dovuto all'incertezza sperimentale su capacità termica, diffusività termica e densità). [4]

In assenza di irraggiamento, quindi, per ciascuna delle leghe di Figura 15 la conducibilità termica κ può essere espressa mediante un'equazione polinomiale del secondo ordine:

$$\kappa = A_1 T^2 + A_2 T + A_3$$

dove A<sub>1-3</sub> sono costanti (fornite in [4]) e T è la temperatura in K. Al contrario, la conducibiltà termica delle leghe FeCrAl in presenza di irraggiamento non è al momento nota. [4]





Figura 15. Conducibilità termica di alcune leghe FeCrAl a T elevate.

Dal momento che il nostro obiettivo è quello di apprezzare se una diversa conducibilità del FeCrAl possa incidere sulla criticità del sistema al punto da compensare lo svantaggio neutronico rispetto allo Zircaloy, si è proceduto ricostruendo il profilo di temperature (da quella media di bulk a quella di centro pellet) con tre diversi valori di conducibilità, due dei quali evidentemente ipotetici:

- ✓ 14 W/mK → conducibilità utilizzata nell'articolo;
- ✓ 21 W/mK → conducibilità della lega APMT a 600 °C (Tabella 1);
- ✓ 11 W/mK  $\rightarrow$  conducibilità della lega APMT a 20 °C (Tabella 1).

Lo stesso è stato fatto per la soluzione di riferimento in Zircaloy considerando un valore di conducibilità pari a 14 W/mK.

Il modello semplificato di termoidraulica di barretta utilizzato, a livello di fuel cell, per il calcolo delle temperature è documentato in [5]. La geometria della cella elementare, leggermente diversa da quella dello studio in esame, è descritta in [5]. Il combustibile è UO<sub>2</sub> con arricchimento in <sup>235</sup>U al 4.9%. L'elio nel gap tra combustibile e cladding è stato considerato solo ai fini dell'analisi termoidraulica. Per lega FeCrAl e Zircaloy sono state utilizzate le composizioni elementari riportate in Figura 12.

In Tabella 3 sono riportati i profili di temperatura per ciascuno dei quattro casi considerati. La temperatura media di bulk, essendo calcolata a parità di potenza generata, di geometria e di capacità termica del refrigerante, è la stessa in tutti e quattro i casi.

E' bene precisare che la differenza di 2 °C sulla temperatura di centro pellet tra i due cladding con uguale conducibilità (14 W/mK) non è imputabile a ragioni fisiche quanto piuttosto a ragioni di ordine numerico: per la risoluzione dell'integrale di conducibilità si è



dovuto infatti interpolare due distribuzioni di potenza leggermente diverse calcolate in APOLLO2 discretizzando la pellet in 10 corone concentriche.

|                      |       | Zircaloy |       |       |
|----------------------|-------|----------|-------|-------|
| Conducibilità [W/mK] | 11    | 21       | 14    | 14    |
| T bulk media         | 313,6 | 313,6    | 313,6 | 313,6 |
| T cladding media     | 240,4 | 333,3    | 337,2 | 337,2 |
| T esterno pellet     | 462,7 | 450,2    | 457,3 | 457,3 |
| T centro pellet      | 755,4 | 740,0    | 748,5 | 750,5 |

Tabella 3. Profilo di temperature al variare del cladding e, per la lega FeCrAl, della conducibilità.

Coi valori di temperatura così ottenuti sono stati eseguiti calcoli di criticità su un fuel assembly standard di PWR con 265 barrette di combustibile, 24 tubi guida e una potenza lineare media di 163,40 W/cm. [5]

Tutti i calcoli di neutronica sono stati compiuti con il codice di cella bidimensionale APOLLO2 versione 2.8-3.E. Le sezioni d'urto microscopiche utilizzate si riferiscono ad una libreria a 281 gruppi con una struttura di tipo SHEM basata su dati valutati JEFF 3.1.1. Per la risoluzione dell'equazione del trasporto si è utilizzato il Collision Probability method. I calcoli di autoschermo sono stati eseguiti per i seguenti isotopi: <sup>238</sup>U <sup>235</sup>U <sup>239</sup>Pu <sup>240</sup>Pu Zr nat per la soluzione in Zircaloy, <sup>238</sup>U <sup>235</sup>U <sup>239</sup>Pu <sup>240</sup>Pu Fe\_nat <sup>50</sup>Cr <sup>52</sup>Cr <sup>53</sup>Cr <sup>54</sup>Cr <sup>27</sup>Al per quella in FeCrAl. La temperatura efficace del combustibile è stata calcolata come segue [6]:

Dai risultati di Tabella 4 si deve concludere che la variazione della conducibilità del cladding in FeCrAl, determinando a inizio ciclo una variazione sul  $\Delta k$  di poche decine di pcm, risulta del tutto trascurabile ai fini del calcolo del k.

Volendo ripartire tra i diversi elementi della lega FeCrAl questi 9500 pcm di differenza, si può dire che al Fe è imputabile circa un 70%, al Cr un 30% mentre del tutto trascurabile è l'effetto di Al. E' interessante poi osservare che, al netto delle differenze, geometriche e non, tra i due sistemi, il Δk a inizio ciclo tra le due soluzioni a confronto è complessivamente in linea con quanto riportato in Figura 14 (8000 pcm con cladding in FeCrAl e quasi 10000 pcm con cladding in APTM).

|  |         | Zircaloy |         |         |
|--|---------|----------|---------|---------|
| Conduttività [W/mK]                            | 11      | 21       | 14      | 14      |
| T efficace del fuel                            | 550,5   | 537,1    | 544,6   | 545,3   |
| K <sub>inf</sub>                               | 1,26122 | 1,26179  | 1,26146 | 1,35639 |
| $\Delta k (= k_{Zircaloy} - k_{FeCrAl}) [pcm]$ | 9517    | 9460     | 9493    | -       |

Tabella 4. Confronto sul k al variare della conducibilità del cladding in FeCrAl.



In linea con quanto fatto in [3] limitatamente ai coefficienti di temperatura del moderatore (a BoC MTC della soluzione con cladding in FeCrAl, -16,5 pcm/°F, è del 15% maggiore di quello della soluzione in Zircaloy, -14,8 pcm/°F) e in [7] per un reattore di tipo CANDU-6, sono stati di seguito calcolati i coefficienti di temperatura del combustibile (FTC) dei due sistemi a confronto. Il coefficiente di temperatura di un dato materiale,  $\alpha_T$ , è calcolato come segue [8]:

$$lpha_T = rac{\Delta 
ho}{\Delta T} = rac{(k_f - k_i)/(k_f imes k_i)}{\Delta T}$$

dove  $\rho$  è la reattività, k<sub>i</sub> e k<sub>f</sub> sono i due fattori di moltiplicazione iniziale ed finale e  $\Delta$ T è la variazione della temperatura in valore assoluto. L'unità di misura è in pcm/°C. I calcoli sono stati eseguiti in assenza di bruciamento (cioè a BoC) con un unico valore di conducibilità per entrambi i cladding (14 W/mK).

| Cladding in lega FeCrAl |                     |         |                |                |        |  |  |  |
|-------------------------|---------------------|---------|----------------|----------------|--------|--|--|--|
| Т <sub>і</sub> [°С]     | T <sub>f</sub> [°C] | ΔT [°C] | k <sub>i</sub> | k <sub>f</sub> | ατ     |  |  |  |
| 544.6                   | 594.6               | 50      | 1.26146        | 1.25988        | -1.988 |  |  |  |
| 544.6                   | 644.6               | 100     | 1.26146        | 1.25837        | -1.947 |  |  |  |
| 544.6                   | 694.6               | 150     | 1.26146        | 1.25694        | -1.900 |  |  |  |
| 544.6                   | 494.6               | -50     | 1.26146        | 1.26311        | 2.071  |  |  |  |
| 544.6                   | 444.6               | -100    | 1.26146        | 1.26471        | 2.037  |  |  |  |
| 544.6                   | 394.6               | -150    | 1.26146        | 1.26639        | 2.057  |  |  |  |
| Cladding in Zircaloy    |                     |         |                |                |        |  |  |  |
| T <sub>i</sub> [°C]     | T <sub>f</sub> [°C] | ΔT [°C] | k <sub>i</sub> | k <sub>f</sub> | ατ     |  |  |  |
| 545.3                   | 595.3               | 50      | 1.35639        | 1.35469        | -1.850 |  |  |  |
| 545.3                   | 645.3               | 100     | 1.35639        | 1.35307        | -1.809 |  |  |  |
| 545.3                   | 695.3               | 150     | 1.35639        | 1.35153        | -1.767 |  |  |  |
| 545.3                   | 495.3               | -50     | 1.35639        | 1.35817        | 1.932  |  |  |  |
| 545.3                   | 445.3               | -100    | 1.35639        | 1.35989        | 1.897  |  |  |  |
| 545.3                   | 395.3               | -150    | 1.35639        | 1.36171        | 1.920  |  |  |  |

Tabella 5. Coefficiente di temperatura del combustibile.

I valori in Tabella 5 mostrano che i coefficienti di temperatura del combustibile dell'assembly con cladding in FeCrAl sono moderatamente migliori (~ 7%) di quelli della soluzione di riferimento. Questo è principalmente dovuto al fatto che i maggiori assorbimenti alle zone termiche causati da Fe e Cr determinano un indurimento dello spettro che rende la cattura delle risonanze del <sup>238</sup>U ancor più efficace rispetto al caso dello Zircaloy.

Si è voluto infine operare un confronto tra i coefficienti di temperatura dei cladding dei due sistemi. Al fine di considerare l'allargamento delle risonanze degli isotopi del cladding per effetto della temperatura, l'opzione & DOPP è stata aggiunta nel modello di Selfshielding in APOLLO2. Come si vede dai valori di Tabella 6, se il coefficciente di temperatura del caldding



in Zircaloy, essendo 15 volte inferiore a quello del fuel, è di fatto trascurabile ai fini della safety di nocciolo, non lo è affatto quello del cladding in FeCrAl.

| Cladding in lega FeCrAl   |                     |         |                |                |        |  |  |  |
|---------------------------|---------------------|---------|----------------|----------------|--------|--|--|--|
| Т <sub>і</sub> [°С]       | T <sub>f</sub> [°C] | ΔT [°C] | k <sub>i</sub> | k <sub>f</sub> | ατ     |  |  |  |
| 337.2                     | 367.2               | 30      | 1.26101        | 1.26053        | -1.007 |  |  |  |
| 337.2                     | 397.2               | 60      | 1.26101        | 1.26003        | -1.028 |  |  |  |
| 337.2                     | 427.2               | 90      | 1.26101        | 1.25954        | -1.028 |  |  |  |
| 337.2                     | 307.2               | -30     | 1.26101        | 1.2615         | 1.027  |  |  |  |
| 337.2                     | 277.2               | -60     | 1.26101        | 1.26199        | 1.026  |  |  |  |
| 337.2                     | 247.2               | -90     | 1.26101        | 1.26248        | 1.026  |  |  |  |
| Cladding in lega Zircaloy |                     |         |                |                |        |  |  |  |
| Т <sub>і</sub> [°С]       | T <sub>f</sub> [°C] | ΔT [°C] | k <sub>i</sub> | k <sub>f</sub> | ατ     |  |  |  |
| 337.2                     | 367.2               | 30      | 1.35456        | 1.35449        | -0.127 |  |  |  |
| 337.2                     | 397.2               | 60      | 1.35456        | 1.35441        | -0.136 |  |  |  |
| 337.2                     | 427.2               | 90      | 1.35456        | 1.35434        | -0.133 |  |  |  |
| 337.2                     | 307.2               | -30     | 1.35456        | 1.35464        | 0.145  |  |  |  |
| 337.2                     | 277.2               | -60     | 1.35456        | 1.35471        | 0.136  |  |  |  |
| 337.2                     | 247.2               | -90     | 1.35456        | 1.35478        | 0.133  |  |  |  |

Tabella 6. Coefficiente di temperature del cladding.



### **Bibliografia**

[1] NEA, State-of-the-art Report on Light Water Reactor Accident Tolerant Fuel, 2018.

[2] A. Gurgen, K. Shirvan, Estimation of coping time in pressurized water reactors for near term accident tolerant fuel claddings, Nuclear Engineering and Design 337 (2018) 36-50.

[3] Nathan Micheal George, Kurt Terrani, Jeff Powers, Andrew Worrall, Ivan Maldonado, Neutronic analysis of candidate accident-tolerant cladding concepts in pressurized water reactors, Annals of Nuclear Energy 75 (2015) 703-712.

[4] Kevin G. Field, Mary A. Snead, Yukinori Yamamoto, Handbook on the Material Properties of FeCrAl Alloys for Nuclear Power Production Applications, August 2017.

[5] Roberto Pergreffi, Davide Mattioli, Federico Rocchi, Neutronics characterization of an erbia fully poisoned PWR assembly by means of APOLLO2 code, EPJ Nuclear Sci. Technol. 3, 8 (2017).

[6] T. Kozlowski, T. Downar, Pressurized water reactor MPX/UO2 core transient benchmark final report, NEA/NSC/DOC (2006)20, Technical Report (OECD/NEA and US NRC, Paris, 2006).

[7] A. Naceur, G. Marleau, Neutronics analysis for accident tolerant cladding candidates in CANDU-6 reactors, Annals of Nuclear Energy 113 (2018) 147-161.

[8] R.D. Mosteller, The Doppler-defect benchmark: overview and summary of results, in Joint International Topical Meeting on Mathematics, Computation and Supercompuing in Nuclear Applications, Monterey, April 15-19, 2007 (2007).