



Agenzia nazionale per le nuove tecnologie, l'energia
e lo sviluppo economico sostenibile



Ministero dello Sviluppo Economico

RICERCA DI SISTEMA ELETTRICO

Validazione di una metodologia per lo studio del burn-up del
combustibile nucleare

*D. Alloni, J. Bruni, M. Cagnazzo, G. Magrotti, S. Manera, F. Panza, M. Prata,
A. Salvin, Andrea Borio*

RdS/2012/167

VALIDAZIONE DI UNA METODOLOGIA PER LO STUDIO DEL BURN-UP DEL COMBUSTIBILE NUCLEARE

*D. Alloni, J. Bruni, M. Cagnazzo, G. Magrotti, S. Manera, F. Panza, M. Prata,
A. Salvin, Andrea Borio* Università di PAVIA

Settembre 2012

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico - ENEA

Area: Governo, Gestione e Sviluppo, del Sistema Elettrico Nazionale

Progetto: Nuovo Nucleare da Fissione: Collaborazioni Internazionali e sviluppo Competenze in Materia Nucleare

Responsabile del Progetto: Massimo Sepielli, ENEA

Titolo

Validazione di una metodologia per lo studio del *burn-up* del combustibile nucleare

Descrittori

Tipologia del documento:

Collocazione contrattuale: ACCORDO DI PROGRAMMA Ministero dello Sviluppo Economico – ENEA sulla Ricerca di Sistema Elettrico PIANO ANNUALE DI REALIZZAZIONE 2011 Progetto 1.3.1: “Fissione nucleare: Nuovo Nucleare da Fissione: collaborazioni internazionali e sviluppo competenze in materia nucleare”.

Argomenti trattati: Fisica dei reattori nucleari, Combustibile nucleare

Sommario

Il Progetto di ricerca ha come obiettivo sviluppare e validare, mediante codici di calcolo e misure dirette, metodologie flessibili per lo studio dell’evoluzione del combustibile nucleare.

La conoscenza della composizione del combustibile nucleare è di fondamentale importanza sia per quanto riguarda gli aspetti di esercizio degli impianti (dinamica dell’avvelenamento del nocciolo, margini di controllo e di spegnimento), sia per quanto riguarda la gestione del combustibile post-irraggiamento (*back-end* del ciclo del combustibile). Lo sviluppo di una metodologia di analisi flessibile dal punto di vista della composizione del combustibile nucleare e della geometria del nocciolo del reattore risulta quindi di particolare importanza ed utilità.

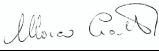
E’ stata sviluppata una metodologia di analisi, mediante impiego di codici di calcolo Monte Carlo (MCNP ver. 4C e MCB) e misure dirette, per lo studio del *burn-up* del combustibile nucleare del reattore TRIGA Mark II del LENA. La metodologia è stata validata confrontando i valori calcolati di *burn-up* del combustibile nucleare con i valori ricavati dai dati e dai parametri di esercizio dell’impianto.

Note

Co-autori: D. Alloni, J. Bruni, M. Cagnazzo, G. Magrotti, S. Manera, F. Panza, M. Prata, A. Salvini

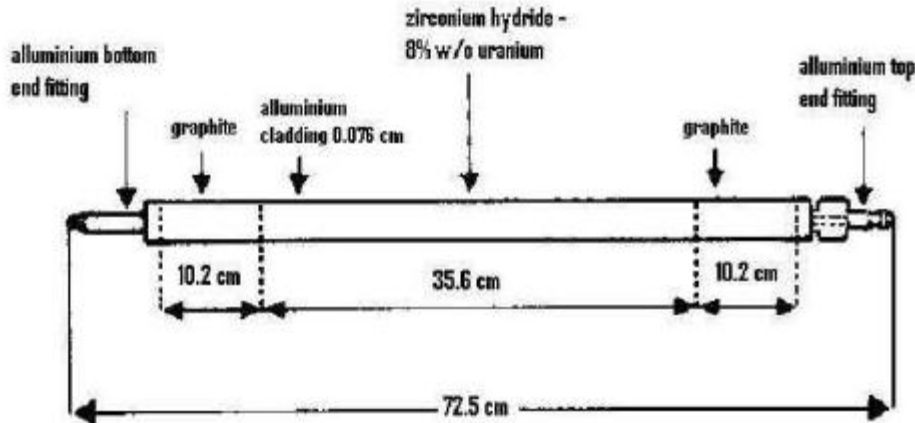
Copia n.

In carico a:

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	23.07.12	NOME	Andrea Borio		
			FIRMA			
REV.	DESCRIZIONE	DATA		REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE

INDICE

1. Introduzione 6
 2. Il reattore TRIGA MARK II del LENA..... 7
 2.1 Il combustibile TRIGA..... 7



..... 8
 Figura 1 : Elemento di combustibile TRIGA 8
 2.2 Struttura del reattore..... 8
 Figura 2 : Nocciolo del reattore TRIGA del LENA 9
 Figura 3 : Sezioni del reattore TRIGA del LENA [3] 12
 3. Burn-up del combustibile..... 13
 3.1 Definizione di *burn-up*..... 13
 3.2 Calcoli dei nuclidi prodotti dal bruciamento del combustibile..... 14
 3.3 Equazioni di Bateman..... 14
 3.4 Formazione dei prodotti di fissione 17
 3.5 Soluzioni delle equazioni di Bateman 18
 3.6 Effetti del burn-up sul funzionamento del reattore 18
 4. SIMULAZIONE MONTE CARLO PER IL CALCOLO DEL BURN-UP 20
 4.1 Il Codice ORIGEN 20
 4.2 Il codice MCB 23
 4.3 Calcolo del burn-up 25
 5. Risultati 34
 5.1 Validazione del codice MCB 34
 Per verificarne il corretto funzionamento, il codice MCB è stato validato attraverso un confronto con misure sperimentali e risultati provenienti da formule teoriche di attività di alcuni nuclidi formati dall'irraggiamento neutronico di targhette sottili di Uranio e Torio naturale nel reattore TRIGA Mark II del LENA e nel complesso moltiplicante sottocritico SM1 dell'Università di Pavia..... 34
 Le simulazioni degli irraggiamenti in reattore hanno le seguenti caratteristiche:... 34
 • la geometria è costituita da un cilindro di Uranio D e Torio G con diametro 0.635 cm, spessore e massa rispettivamente di 0.0161 cm, 0.0095 cm, 0.3889 g e 0.1412 g;..... 34
 • l'irraggiamento è del tipo *inward cosine*, dove i neutroni sono generati sulla superficie esterna di una sfera di raggio 2 cm, diretti verso il centro e con energia pari a 0.0253 eV;..... 34

- l'irraggiamento è di 6 ore ad un flusso di 2.16×10^{10} n/cm²s (flusso in Canale Centrale del reattore a 250 W, Figura 7)..... 34
- Gli irraggiamenti nel complesso sottocritico presentano le seguenti caratteristiche: 34
- la geometria è costituita da un cilindro di Uranio J e Torio B con diametro 0.635 cm, spessore e massa rispettivamente di 0.0162 cm, 0.0087 cm, 0.3921 g e 0.1298 g; 34
- l'irraggiamento è del tipo *inward cosine*, dove i neutroni sono generati sulla superficie esterna di una sfera di raggio 2 cm, diretti verso il centro e con energia pari a 0.0253 eV;..... 34
- l'irraggiamento è pari a 341 ore con un flusso all'interno della targhetta di Uranio di 5.9×10^4 n/cm²s (flusso in Canale A, Figura 8a) mentre la targhetta di Torio è stata irraggiata ad un flusso di 2.59×10^4 n/cm²s (flusso in Canale B, Figura 8b)..... 34

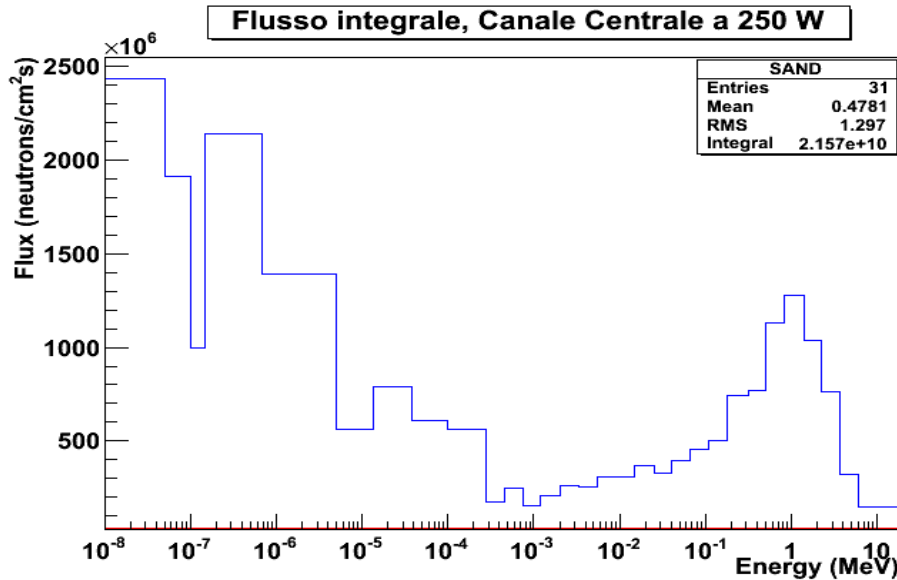
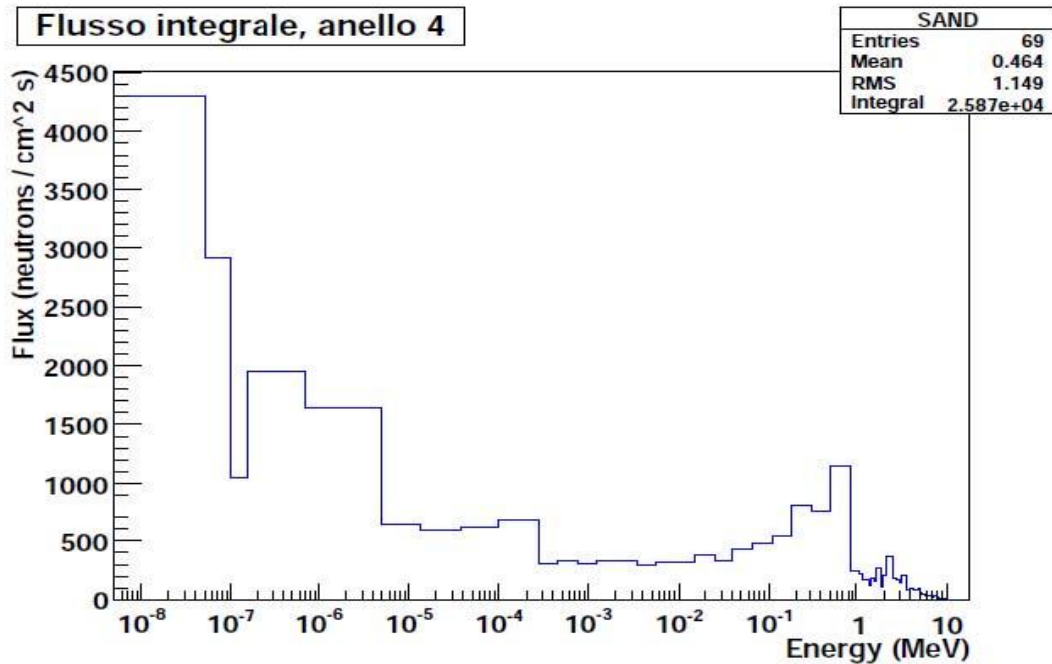


Figura 7: Spettro energetico del flusso nel Canale Centrale del TRIGA(250 W)[8]. 34

Figura 8a: Spettro energetico del flusso nel canale A del complesso SM1 [9]..... 35



..... 35

Figura 8b: Spettro energetico del flusso nel canale B del complesso SM1 [9]..... 35

Confronto con misure sperimentali 36

Le targhette irraggiate sono state analizzate, dopo adeguato tempo di raffreddamento, sempre a mezzo di spettrometria gamma ad alta risoluzione, nella stessa geometria di conteggio impiegata nell'analisi delle stesse targhette prima dell'irraggiamento [10]. L'attività specifica delle targhetta D di Uranio naturale ha reso necessario di distanziare la targhetta di 23.5 cm per ridurre il tempo morto del rivelatore (DT = 7 %). 36

Nelle tabelle 4a, 4b, 4c e 4d sono presentati i risultati delle misure confrontati con quelli dati dalla simulazione con MCB, per i quali è assunta un'incertezza pari al 10 % del valore di attività calcolato. Questo valore di incertezza è dato dall'errore sulla misura del flusso nel Canale Centrale del reattore TRIGA e nei canali A e B del complesso moltiplicante SM1..... 36


Confronto con formule teoriche..... 37

Per un'ulteriore validazione del codice, le masse di altri prodotti di fissione provenienti dalle simulazioni con MCB dell'irraggiamento della targhetta D di Uranio in reattore sono state confrontate con valori calcolati da formule analitiche soluzioni delle equazioni di Bateman (paragrafo 3.3). 37

Dalla tabella 5b si può notare un ottimo accordo fra gli attinidi calcolati mediante codice MCB e quelli calcolati a partire dalle equazioni di Bateman. Per quanto riguarda invece i prodotti di fissione (Tabella 5a) l'accordo è buono per la maggior parte dei nuclidi, ad eccezione di alcuni, come ad esempio il ¹³⁷Cs, per cui la discrepanza è abbastanza elevata. Questa differenza è attribuibile al tipo di librerie utilizzate in MCB delle sezioni d'urto, delle costanti di decadimento e soprattutto degli *yield*, per i quali c'è una elevata incertezza per alcuni nuclidi. Tuttavia questo fatto non influisce sui risultati di questo lavoro poiché l'obiettivo principale è determinare il consumo di ²³⁵U e la produzione di ²³⁹Pu nel combustibile irraggiato. 37

Tabella 5a: Risultati per alcuni prodotti di fissione. 37

Tabella 5b: Risultati per alcuni attinidi.....	37
5.2 Risultati del calcolo del burn-up	38
Dal calcolo del <i>burn-up</i> di ogni elemento di combustibile risulta che, dal 16/11/1965 al 31/12/2011, sono stati consumati complessivamente circa 444.7 g di ^{235}U , dei quali ne sono stati fissionati 372.3 g per un totale di energia prodotta pari a 354.5 MWd. Il <i>burn-up</i> medio degli elementi risulta essere pari al 10.32 % (corrispondente a 19.69 MWd/kg) con un massimo pari al 17.86 % (corrispondente a 33.66 MWd/kg).....	
La General Atomics, ditta produttrice del combustibile, raccomanda di non superare un <i>burn-up</i> pari al 50 % e a 100 MWd/kg. Pertanto sulla base dei risultati delle simulazioni, tutti gli elementi di combustibile, sia quelli scaricati sia quelli ancora presenti nel nocciolo del reattore del LENA, soddisfano ampiamente tali requisiti. Dai calcoli risulta inoltre che, nello stesso periodo, sono stati consumati complessivamente circa 94.5 g di ^{238}U che hanno prodotto circa 86 g di ^{239}Pu al 31/12/2011. Nell'ipotesi che tutto l' ^{238}U trasmutato abbia prodotto ^{239}Pu , si può dedurre che sono stati fissionati complessivamente 6.2 g di ^{239}Pu che hanno pertanto contribuito con una percentuale di circa 1.7 % al totale dell'energia prodotta.....	38
Al fine di validare la metodologia di calcolo nel suo insieme si sono simulate, sempre mediante il codice MCB, tre configurazioni del nocciolo (dove la composizione di ogni elemento è data dal <i>burn-up</i>) per le quali è stato calcolato l'eccesso di reattività. I valori di reattività calcolati sono stati confrontati con misure di tale grandezza realizzate presso l'impianto, mostrando un ottimo accordo (Tabella 6). In particolare, dalla simulazione dell'eccesso di reattività nella configurazione di prima carica del reattore (1965) si è stimata una discrepanza con la misura pari a 0.24 \$ (su 3.02 \$), dovuta principalmente ad approssimazioni nella geometria del reattore e al fatto che i materiali reali presentano delle impurezze difficilmente quantificabili. Pertanto, questo offset (k) di reattività è stato sottratto ai risultati di tutte le altre simulazioni, al fine di ottenere un valore di reattività ρ direttamente confrontabile con quello misurato.....	38
6. OTTIMIZZAZIONE DELLA CONFIGURAZIONE DEL NOCCIOLO.....	40
7. Conclusioni	44
8. Bibliografia	45

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-UNI_PV-LP1-001	0		6	45

1. INTRODUZIONE

Il Progetto di ricerca ha come obiettivo sviluppare e validare, mediante codici di calcolo e misure dirette, metodologie flessibili per lo studio dell'evoluzione del combustibile nucleare.

La conoscenza della composizione del combustibile nucleare è di fondamentale importanza sia per quanto riguarda gli aspetti di esercizio degli impianti (dinamica dell'avvelenamento del nocciolo, margini di controllo e di spegnimento), sia per quanto riguarda la gestione del combustibile post-irraggiamento (*back-end* del ciclo del combustibile). Infatti, durante il funzionamento del reattore, la valutazione del *burn-up* di ogni elemento di combustibile, permette di ottemperare ai vincoli imposti dalle Prescrizioni Tecniche di esercizio dell'impianto, ottimizzando l'utilizzazione del combustibile stesso. Allo scarico del combustibile irraggiato, la conoscenza del *burn-up* è un'informazione indispensabile per pianificare ed attuare una corretta gestione del combustibile al fine del suo riprocessamento, ovvero, del condizionamento per il confinamento definitivo.

Risulta quindi di particolare importanza ed utilità lo sviluppo di una metodologia di studio dell'evoluzione del combustibile nucleare flessibile sia dal punto di vista della composizione del combustibile nucleare che della geometria del nocciolo del reattore.

Scopo di questa attività di ricerca è stato quello di sviluppare una metodologia per la valutazione del *burn-up* del combustibile del reattore di ricerca TRIGA Mark II del Laboratorio Energia Nucleare Applicata (LENA) dell'Università degli Studi di Pavia utilizzando il codice Monte Carlo MCNP (Versione 4C [1]) e il codice MCB [2].

Il codice MCB è stato validato attraverso il confronto dei valori di attività provenienti dalle simulazioni con quelli dati da misure sperimentali e formule analitiche. I risultati del *burn-up* sono stati confrontati attraverso la misura dell'eccesso di reattività del nocciolo nella configurazione attuale.

L'obiettivo finale del Progetto di ricerca è lo studio di una nuova configurazione del nocciolo del reattore TRIGA del LENA nella quale viene ottimizzato l'utilizzo del combustibile a disposizione per garantire il massimo margine di controllo nel rispetto delle Prescrizioni di Esercizio. Questo permette di prolungare l'esercizio dell'impianto rispettando comunque le Prescrizioni Tecniche, senza dover necessariamente acquistare combustibile fresco.

2. IL REATTORE TRIGA MARK II DEL LENA

Il reattore TRIGA (Training Research and Isotope Production General Atomics) MARK II del LENA di Pavia è un reattore di ricerca moderato e raffreddato ad acqua leggera, progettato e costruito dalla General Atomics. Il reattore è stato predisposto per permettere studi avanzati di neutronica, per produzione di isotopi e per l'attivazione di campioni; raggiunge una potenza termica di 250 kW se fatto operare in regime stazionario. Nei paragrafi successivi si analizzeranno le componenti principali dell'impianto.

2.1 Il combustibile TRIGA

Il combustibile del reattore è composto da una lega di uranio arricchito al 20% circa e di idruro di zirconio, ZrH, nelle seguenti percentuali:

elemento	% in peso
Zr	91
H	1
²³⁵ U	1.6
²³⁸ U	6.4

La funzione dell'idruro di zirconio è quella di fungere da moderatore e di stabilizzare il reattore rispetto alle variazioni di reattività provocate da escursioni di potenza (e, quindi, di temperatura): esso è un efficace moderatore di neutroni veloci, mentre il suo reticolo cede energia ai neutroni lenti ($E \leq 0.13$ eV) con una probabilità crescente con la temperatura; dunque un aumento di T provoca nel nocciolo una diminuzione della popolazione di neutroni termici e di conseguenza del tasso di fissione (coefficiente di temperatura negativo). Questa proprietà gioca un ruolo importante nel rendere il sistema intrinsecamente sicuro rispetto a variazioni incontrollate di reattività. Ciascun elemento di combustibile (Figura 1) consiste di una barra centrale di combustibile-moderatore (ZrH), agli estremi della quale si presentano dei dischi di acciaio, utilizzati come matrici per il veleno bruciabile (ossido di samario), e dei riflettori assiali di grafite; il tutto è racchiuso da una guaina di alluminio. Il veleno consumabile consiste in pastiglie di ossido di samario di spessore 1.3 mm, questo veleno man mano che viene bruciato rilascia attività nel sistema così da compensare la perdita di reattività dovuta all'accumulo dei prodotti di fissione ed al burn-up del combustibile (vedi paragrafo 2.3.2). Il rivestimento di alluminio ha uno spessore di 0.76 mm e copre tutto l'elemento compresi i riflettori assiali di grafite. Nei combustibili più recenti l'alluminio è sostituito dall'acciaio inossidabile per la sua miglior resistenza alle alte temperature e non è presente il veleno bruciabile. Anche la frazione in peso dell'idrogeno rispetto allo zirconio è superiore. A ciascuna estremità della guaina sono attaccati piedini di fissaggio terminali anch'essi in alluminio. Il contenuto medio di ²³⁵U per ogni barra di combustibile è di circa 36-38 grammi.

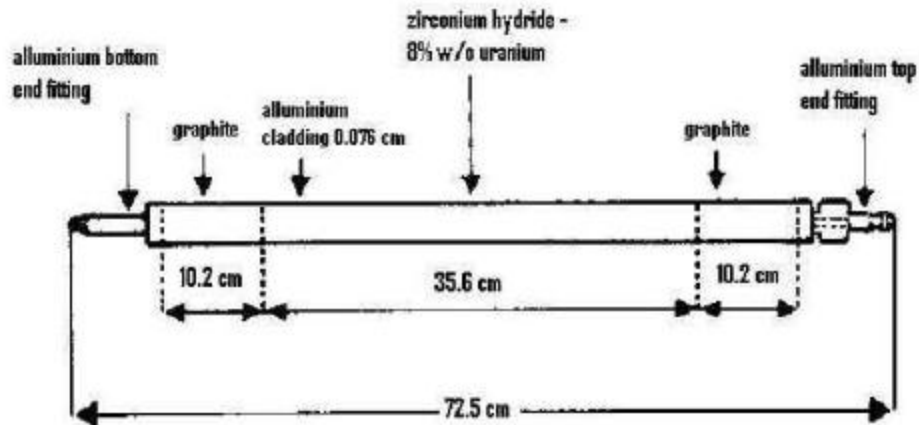


Figura 1 : Elemento di combustibile TRIGA

2.2 Struttura del reattore

Il contenitore del reattore

Il contenitore del reattore, *tank*, consiste di un recipiente di alluminio contenente acqua leggera deionizzata (conducibilità $< 5 \mu\text{S/cm}$), installato all'interno dello schermo biologico del reattore. Il contenitore ha un diametro di circa 2 m ed una profondità di 6.25 m; essendo il nocciolo posto a circa 60 cm dal fondo, al di sopra di esso più di 5 m di acqua costituiscono lo schermo verticale. Il *tank* è attraversato dai quattro canali di irraggiamento radiali, dalla colonna termica e dalla colonna termalizzante.

Il nocciolo

Il nocciolo del reattore (Figura 2) non poggia sul fondo del *tank* ma è rialzato grazie a dei piedini di sostegno. Gli elementi di combustibile sono disposti lungo cinque anelli concentrici (da B a F). Il nocciolo ha la geometria di un cilindro retto. L'anello più interno, A, presenta unicamente il canale centrale di irraggiamento dove si raggiunge il flusso massimo di neutroni di circa $10^{13} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$. Nel primo anello, B, ci sono 6 elementi di combustibile, nell'anello C vi sono 11 elementi più una barra di controllo (SHIM), nel D sono presenti 17 elementi più una barra di controllo (TRANSIENT), nell'anello E giacciono 23 elementi e un'ulteriore barra di controllo (REGULATING). Nell'ultimo anello, F, vi sono 26 elementi, il contenitore per la sorgente di neutroni (radio-berillio con attività di 10^6 neutroni/s) e un canale d'irraggiamento verticale (Canale Rabbit). Due degli elementi nell'anello B sono muniti di termocoppie per misurare la temperatura del combustibile e tenere, quindi, sotto controllo possibili variazioni strutturali degli elementi legate alla

temperatura. Complessivamente il nocciolo risulta avere una forma cilindrica di diametro di 45.7 cm e altezza pari a 55.9 cm.

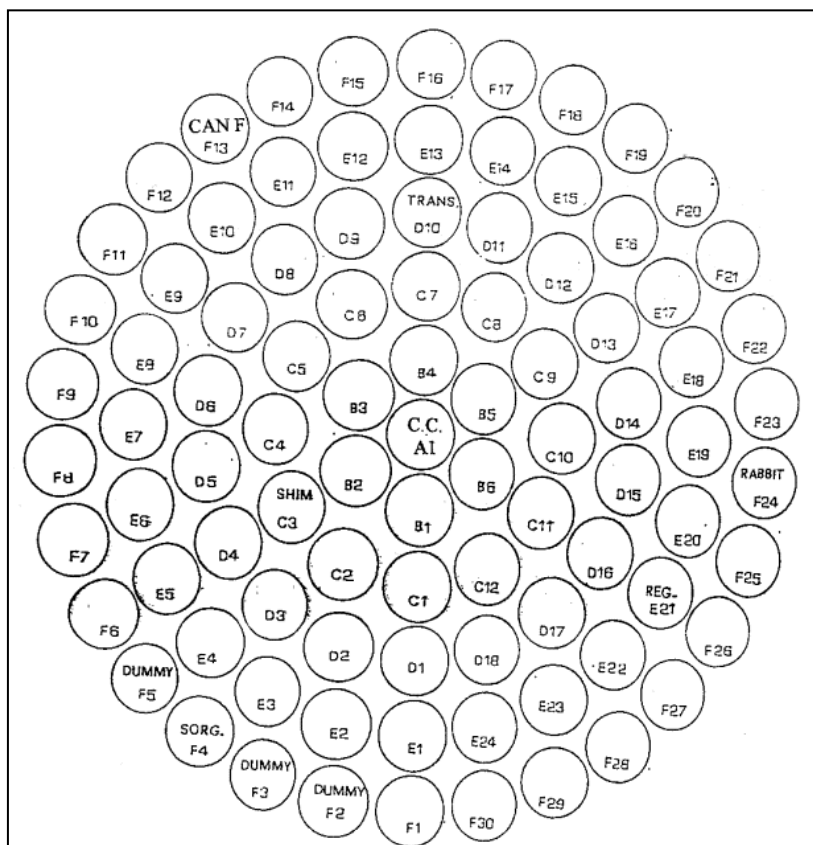


Figura 2 : Nocciolo del reattore TRIGA del LENA

I canali radiali

Dei quattro canali che penetrano attraverso lo schermo di calcestruzzo e l'acqua del contenitore del reattore, tre sono canali radiali. Ciascun canale è costituito da due parti: quella interna, verso il nocciolo, è costituita da un tubo di alluminio di 15.2 cm di diametro; mentre la parte esterna è costituita da un tubo di acciaio di 20.3 cm di diametro. In ciascun canale, in corrispondenza del gradino fra il primo ed il secondo tratto, è inserito un diaframma-schermo, formato da una lastra di acciaio dello spessore di circa 10 cm, che riduce la quantità di radiazioni attraverso il calcestruzzo. Oltre il gradino, nella zona in cui il canale ha dimensioni maggiori, si collocano quattro componenti, che assicurano la funzione di schermatura: un tappo-schermo interno, un tappo-schermo esterno, uno sportello di piombo (*shutter*) ed un portellone rivestito di piombo. Il tappo-schermo interno ha una lunghezza di 1.22 m ed un peso di circa 80 kg; esso è costituito da un foglio di boral dello spessore di 3.18 mm sulla faccia interna, seguito da uno strato di piombo, da uno di calcestruzzo borato e da uno di acciaio. Il tappo-schermo esterno, di legno, ha un diametro di 20.3 cm ed una

lunghezza di 1.22 m e pesa circa 20 kg. Lo *shutter* in piombo ed il portellone costituiscono lo schermo per i raggi γ quando i tappi vengono rimossi.

Il riflettore

Il nocciolo del TRIGA è interamente circondato da un riflettore di grafite allo scopo di minimizzare le fughe radiali di neutroni dall'interno del nocciolo del reattore. Esso consiste di un blocco di grafite a forma di anello con spessore radiale di 30.5 cm, diametro interno di 45.7 cm ed altezza di 55.9 cm. Per impedire che l'acqua penetri nella grafite, deteriorandola, il riflettore è incapsulato in alluminio. Una sede anulare è ricavata in cima al riflettore per il porta-campioni rotante (*Lazy Susan*). Esso consiste di un contenitore di forma anulare, saldata a tenuta, contenente un telaio di alluminio montato su speciali supporti. Il telaio sostiene quaranta recipienti tubolari di alluminio, regolarmente intervallati, che possono ospitare i contenitori dei campioni. La grafite e la superficie esterna del recipiente di alluminio sono attraversate dal canale di irraggiamento radiale che penetra nel nocciolo. L'insieme del riflettore e del nocciolo sono posti sopra una piattaforma quadrata appoggiata sul fondo del tank tramite quattro piedi assicurati da bulloni di fissaggio in alluminio, saldati sul fondo della vasca.

Gli elementi di grafite

Nel nocciolo del reattore sono inseriti degli elementi che sono per dimensioni e geometria identici a quelli di combustibile, solo che contengono unicamente della grafite. Essi occupano tutte quelle posizioni della griglia che non sono occupate da elementi che contengono combustibile. Tali elementi vengono definiti *dummy*, ed hanno la funzione di estendere la geometria del riflettore.

Le griglie

All'interno del nocciolo sono posizionate due griglie che permettono il corretto posizionamento degli elementi di combustibile. La griglia superiore è una piastra di alluminio di 49.5 cm di diametro e di 1.9 cm di spessore. La griglia presenta 90 fori del diametro di 3.82 cm allo scopo di garantire il posizionamento degli elementi e i tubi guida delle barre di controllo. Al centro della griglia si presenta un foro di dimensioni maggiore rispetto agli altri poiché permette l'alloggiamento del canale centrale. La griglia superiore è attraversata anche da 16 fori per permettere l'irraggiamento di campioni, disposti in varie posizioni e per permettere di effettuare misure di flussi di neutroni nel nocciolo. La griglia inferiore sorregge l'intero peso del nocciolo e provvede alla accurata spaziatura tra gli elementi di combustibile; essa consiste in una piastra di alluminio di 40.7 cm di diametro e di 1.9 cm di spessore. Essa è sostenuta da 6 alette a forma di L saldate alla parte inferiore del recipiente di alluminio che contiene il riflettore. I 90 fori della griglia inferiore si sovrappongono esattamente a quelli dell'altra griglia con l'unica differenza che i fori hanno dimensioni minori, poiché devono permettere l'alloggiamento dei soli piedini degli elementi, riuscendo così a

bloccarli da un'eventuale caduta sul fondo del contenitore. Il foro attraverso il quale passa il canale centrale ha un diametro di 3.99 cm; altri 36 fori di 1.59 cm di diametro sono disposti su tre cerchi concentrici e permettono il passaggio di acqua attraverso la griglia per una miglior raffreddamento del nocciolo.

La colonna termica e termalizzante

La colonna termica consiste in un recipiente di alluminio di dimensioni $1.22 \times 1.68 \times 1.22 \text{ m}^3$ rivestito di boral e riempito con blocchi di grafite. Essa penetra nello schermo biologico e nel contenitore del reattore fino a raggiungere il riflettore di grafite dove ne accompagna il bordo per un angolo di 100° . L'asse della colonna termica coincide con il piano equatoriale del nocciolo. Il contenitore di alluminio è aperto sul lato esterno dello schermo biologico del reattore. Nella colonna termica il flusso neutronico è fortemente termalizzato (rapporto di cadmio pari a circa 200).

La colonna termalizzante invece è posizionata agli antipodi della colonna termica, anch'essa consiste in una cavità riempita di grafite di dimensioni $63.5 \times 63.5 \times 132 \text{ cm}^3$. La colonna termalizzante termina in una piscina di acqua nella quale è possibile immergere campioni di notevoli dimensioni a distanze variabili. In questo modo è possibile variare la termalizzazione dei neutroni che investono il campione da irraggiare.

Il sistema di controllo

Il sistema di controllo della reattività del reattore è costituito da tre barre di controllo denominate: di sicurezza (TRANSIENT), di protezione (SHIM) e di regolazione (REGULATING). Esse operano all'interno dei tubi di guida, che sono costituiti da alluminio. Le barre di protezione e regolazione sono di carburo di boro, quella di sicurezza a moto rapido per il funzionamento pulsato è di grafite borata. Ciascuna barra consiste in un tubo di alluminio sigillato contenente carburo di boro in polvere, o grafite borata solida, che agiscono da veleno per i neutroni (vedi paragrafo 3.3), infatti la sezione d'urto di cattura per i neutroni del ^{10}B è di circa 3800 barn. Le barre sono lunghe 51 cm, ed hanno rispettivamente un diametro esterno di: 2.22 cm quella di regolazione, 3.2 cm quella di protezione, 2.54 cm quella di sicurezza. Lo spostamento verticale delle barre di controllo è di circa 38.1 cm. Dalla Figura 2 si può osservare che le tre diverse barre di controllo sono posizionate circa a 120° l'una dall'altra nel piano radiale del nocciolo.

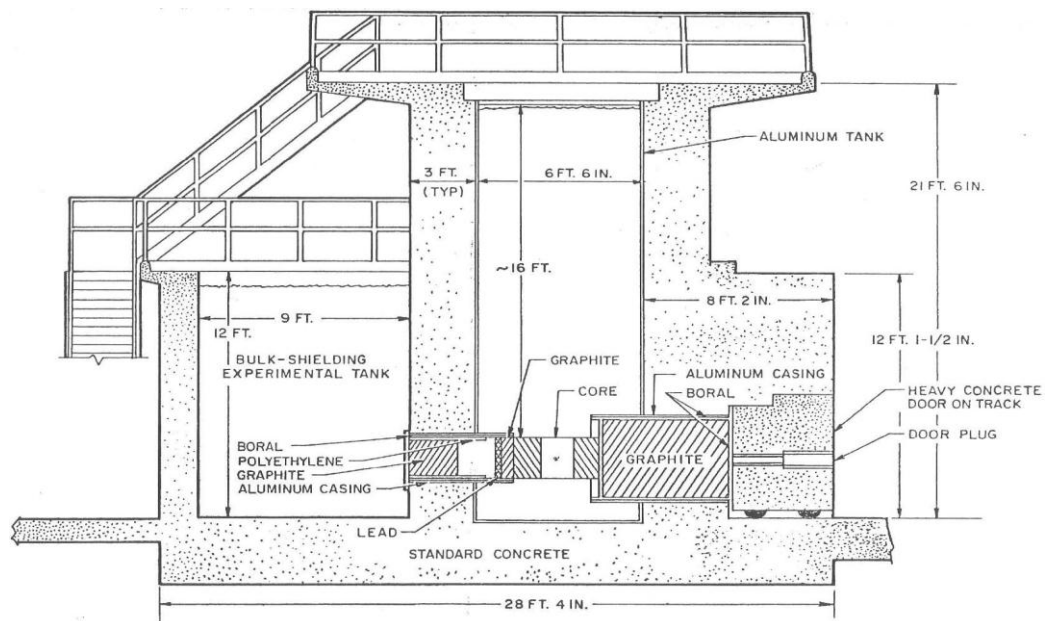
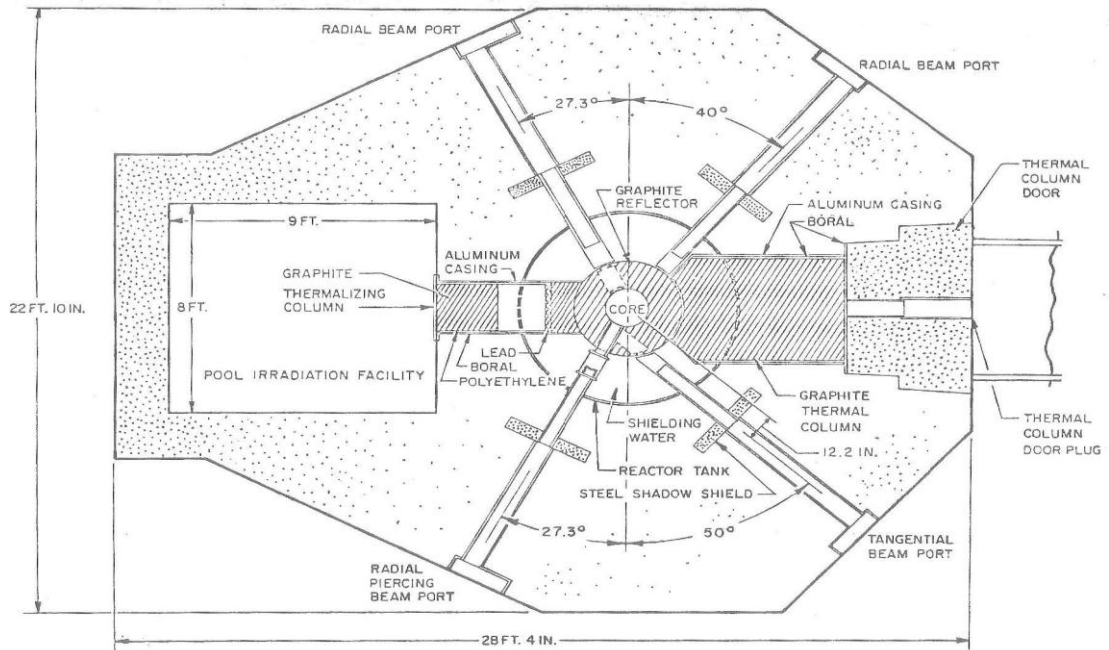


Figura 3 : Sezioni del reattore TRIGA del LENA [3]

3. BURN-UP DEL COMBUSTIBILE

Il fattore che condiziona in modo maggiore il funzionamento di un reattore a fissione è il bruciamento del combustibile, ovvero il *burn-up*. In questo capitolo saranno descritte le variazioni nella composizione del combustibile, quali la produzione dei materiali fissili e fertili, dei veleni e i loro effetti sul funzionamento del reattore.

3.1 Definizione di *burn-up*

Si consideri un reattore che lavori a una potenza termica P (in MegaWatt). Se l'energia media disponibile generata da una fissione è E_R (MeV), il tasso di fissione è definito come:

$$R_f = \text{Fission rate } (s^{-1}) = \frac{P(MW)}{E_R(MeV)} \cdot \frac{10^6(J/MW s)}{1.6 \times 10^{-13}(J/MeV)}$$

Se si considera che ogni fissione libera circa 200 MeV di energia, è possibile calcolare il tasso di fissione giornaliero come:


$$\begin{aligned} P(MW) \times 10^6 \left(\frac{J}{MW s} \right) \times \frac{\text{fission}}{200(MeV)} \times \frac{1}{1.6 \times 10^{-13}(J/MeV)} \times \frac{86400 s}{\text{day}} = \\ = 2.71 \times 10^{21} P \text{ fission/day} \end{aligned}$$

Si definisce *burn-up* del combustibile l'energia rilasciata per fissione di un'unità di massa del combustibile stesso (calcolata come somma dell'isotopo fissile e dell'eventuale isotopo fertile). Il *burn-up* si misura solitamente in megawatt-days per tonnellata di combustibile, abbreviato MWd/ton; in un reattore termico si possono avere da 10000 a 50000 MWd/ton mentre in un reattore veloce si arriva fino a 100000-150000 MWd/ton.

Se indichiamo il numero di massa del nucleo fissile con A , si può definire il tasso di burn-up in termini di massa (in g) di ^{235}U fissionato nell'unità di tempo, cioè:

$$\text{Burn - uprate} = \frac{\text{Fission rate} \times A}{\text{Numero Avogardo}} = 0.895 \frac{P A}{E_R} \text{ g/day}$$

Utilizzando come combustibile l' ^{235}U e con un'energia disponibile da fissione di 200 MeV, l'equazione precedente fornisce un *burn-up* di 1.05 P g/day: in un

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-UNI_PV-LP1-001	0		14	45

reattore di 1 MW si consuma 1.05 g/day di ^{235}U per la fissione. Il consumo del combustibile, tuttavia, è maggiore a causa della possibilità di avere cattura dei neutroni senza innescare il processo di fissione:

$$\text{Consumption rate} = 0.895 (1 + \alpha) \frac{P A}{E_R} \text{ g/day}$$

quindi il consumo di ^{235}U in un reattore termico di 1 MW diventa di 1.24 g/day.

3.2 Calcoli dei nuclidi prodotti dal bruciamento del combustibile

Nella Figura 4 sono mostrate le catene di trasmutazione e decadimento per il ^{232}Th e l' ^{238}U , i quali hanno rispettive abbondanze isotopiche pari al 100% e al 99.28 %. Si può osservare che questi due nuclidi sono nuclei fertili in quanto a partire da loro vengono prodotti, mediante cattura neutronica e decadimento, isotopi fissili del plutonio come il ^{239}Pu , ^{241}Pu (dall' ^{238}U) e l' ^{233}U (dal ^{232}Th). Il tasso di trasmutazione da un nucleo fertile ad uno fissile dipende dal numero di neutroni in eccesso rispetto a quello necessario per autosostenere la catena di fissione. Inoltre le caratteristiche di conversione da nucleo fertile a fissile dipendono dal ciclo del combustibile e dallo spettro energetico dei neutroni. Un parametro importante è il rapporto di conversione, ossia il rapporto fra il tasso di formazione di nuovi elementi fissili e il tasso di distruzione dei nuclei fissili del combustibile: quando questo rapporto è maggiore dell'unità, il reattore produce una maggior quantità di materiale fissile di quanto ne stia consumando e il reattore si definisce *breeder* (autofertilizzante).

3.3 Equazioni di Bateman

Le concentrazioni dei nuclei che si possono formare in un reattore sono descritte da un sistema di equazioni differenziali, denominate equazioni di Bateman, che descrivono la produzione e la distruzione di questi elementi. Per non appesantire la formulazione si è adottata una convenzione a 2 cifre per identificare i nuclidi: la prima rappresenta l'ultima cifra del numero atomico Z mentre la seconda rappresenta l'ultima cifra del numero di massa A. Per il ciclo dell'uranio-plutonio si ha quindi [4]:

$$\frac{\partial n^{24}}{\partial t} = -\sigma_a^{24} \phi n^{24}$$

$$\frac{\partial n^{25}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{24} \phi n^{24} - \sigma_a^{25} \phi n^{25}$$

$$\frac{\partial n^{26}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{25} \phi n^{25} - \sigma_a^{26} \phi n^{26} + \lambda_{ec}^{36} n^{36}$$

$$\frac{\partial n^{27}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{26} \phi n^{26} + \sigma_{n,2n}^{28} \phi n^{28} - \lambda^{27} n^{27}$$

$$\frac{\partial n^{28}}{\partial t} = -\sigma_a^{28} \phi n^{28}$$

$$\frac{\partial n^{29}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{28} \phi n^{28} - (\lambda^{29} + \sigma_a^{29} \phi) n^{29}$$

$$\frac{\partial n^{36}}{\partial t} = \sigma_{n,2n}^{37} \phi n^{37} - (\lambda^{36} + \sigma_a^{36} \phi) n^{36}$$

$$\frac{\partial n^{37}}{\partial t} = \lambda^{27} n^{27} - \sigma_a^{27} \phi n^{37}$$

$$\frac{\partial n^{38}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{37} \phi n^{37} - (\lambda^{38} + \sigma_a^{38} \phi) n^{38}$$

$$\frac{\partial n^{39}}{\partial t} = \lambda^{29} n^{29} - (\lambda^{39} + \sigma_a^{39} \phi) n^{39}$$

$$\frac{\partial n^{48}}{\partial t} = \lambda^{38} n^{38} - \sigma_a^{48} \phi n^{48}$$

$$\frac{\partial n^{49}}{\partial t} = \lambda^{39} n^{39} - \sigma_a^{49} \phi n^{49} + \sigma_\gamma^{48} \phi n^{48}$$

$$\frac{\partial n^{40}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{49} \phi n^{49} - \sigma_a^{40} \phi n^{40} + \sigma_\gamma^{29} \phi n^{29} + \sigma_\gamma^{39} \phi n^{39}$$

$$\frac{\partial n^{41}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{40} \phi n^{40} - (\lambda^{41} + \sigma_a^{41} \phi) n^{41}$$

$$\frac{\partial n^{42}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{41} \phi n^{41} - \sigma_a^{42} \phi n^{42}$$

$$\frac{\partial n^{43}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{42} \phi n^{42} - (\lambda^{43} + \sigma_a^{43} \phi) n^{43}$$

$$\frac{\partial n^{51}}{\partial t} = \lambda^{41} n^{41} - (\lambda^{51} + \sigma_a^{51} \phi) n^{51}$$

$$\frac{\partial n^{52}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{51} \phi n^{51} - \sigma_a^{52} \phi n^{52}$$

$$\frac{\partial n^{53}}{\partial t} = \lambda^{43} n^{43} - \sigma_a^{53} \phi n^{53} + \sigma_\gamma^{52} \phi n^{52}$$

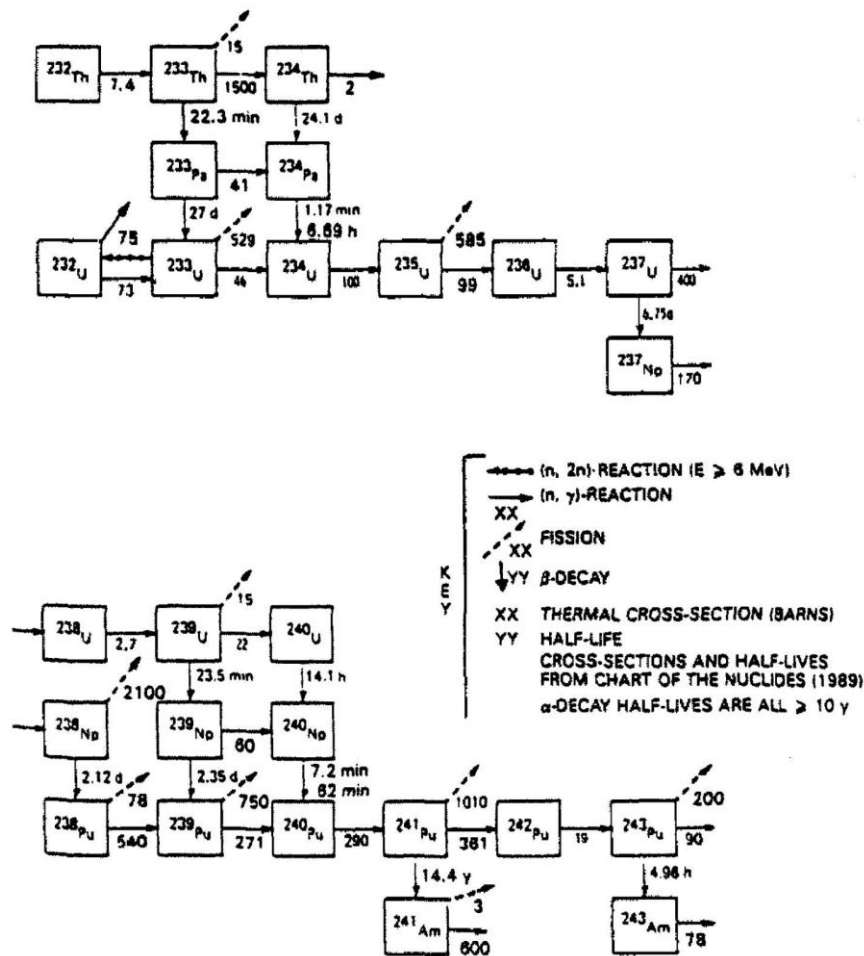


Figura 4: Catene di trasmutazione e decadimento per ^{232}Th e ^{238}U . [4]

Per la produzione di ^{239}Pu e ^{240}Pu sono state applicate delle approssimazioni: infatti la cattura neutronica sull' ^{239}U per produrre ^{240}U seguita dal decadimento ($T_{1/2} = 14$ h) in ^{240}Np e il successivo decadimento ($T_{1/2} = 7$ min) in ^{240}Pu è trattata come produzione diretta di quest'ultimo da cattura neutronica su ^{239}U . Lo stesso discorso vale per la produzione di ^{240}Pu considerata come produzione diretta da cattura neutronica su ^{239}Np .

Per reattori che utilizzano torio come combustibile si ha [4]:

$$\frac{\partial n^{02}}{\partial t} = -\sigma_a^{02} \phi n^{02}$$

$$\frac{\partial n^{03}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{02} \phi n^{02} - (\lambda^{03} + \sigma_a^{03} \phi) n^{03}$$

$$\frac{\partial n^{13}}{\partial t} = \lambda^{03} n^{03} - (\lambda^{13} + \sigma_a^{13} \phi) n^{13}$$

$$\frac{\partial n^{22}}{\partial t} = -(\lambda^{22} + \sigma_a^{22} \phi) n^{22}$$

$$\frac{\partial n^{23}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{22} \phi n^{22} + \lambda^{13} n^{13} - \sigma_a^{25} \phi n^{23}$$

$$\frac{\partial n^{24}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{23} \phi n^{23} + \sigma_\gamma^{13} \phi n^{13} - \sigma_a^{24} \phi n^{24}$$

$$\frac{\partial n^{25}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{24} \phi n^{24} - \sigma_a^{25} \phi n^{25}$$

$$\frac{\partial n^{26}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{25} \phi n^{25} - \sigma_a^{26} \phi n^{26}$$

$$\frac{\partial n^{27}}{\partial t} = \sigma_\gamma^{26} \phi n^{26} - (\lambda^{27} + \sigma_a^{27} \phi) n^{27}$$

$$\frac{\partial n^{37}}{\partial t} = \lambda^{27} n^{27} - \sigma_a^{37} \phi n^{37}$$

In questo caso la produzione di ^{234}U è stata approssimata come diretta a partire dal ^{233}Pa .

3.4 Formazione dei prodotti di fissione

Gli isotopi formati dal processo di fissione possono essere trasmutati a causa del loro decadimento oppure dall'assorbimento di neutroni, come è descritto dall'equazione:

$$\frac{dn_j}{dt} = y_j \Sigma_f \phi + \sum_i (\lambda^{i \rightarrow j} + \sigma^{i \rightarrow j} \phi) n_i - (\lambda^j + \sigma_a^j \phi) n_j$$

dove y_j è lo yield del prodotto di fissione, $\lambda_{i \rightarrow j}$ è il tasso di decadimento dell'isotopo i per produrre l'isotopo j (comprensivo di tutti i tipi di decadimento), $\sigma_{i \rightarrow j}$ è la sezione d'urto di cattura per la produzione dell'isotopo j dall'isotopo i .

3.5 Soluzioni delle equazioni di Bateman

Per determinare le variazioni nella composizione del combustibile su tutta la vita del reattore, le equazioni differenziali descritte in precedenza possono essere integrate, se la dipendenza del flusso dal tempo è nota. Tuttavia la distribuzione del flusso all'interno del nocciolo dipende a sua volta dalla composizione del combustibile e ciò comporta un particolare approccio al problema.

In un primo step viene calcolata la distribuzione del flusso con combustibile fresco e barre di controllo posizionate in modo da avere la criticità: questo flusso viene utilizzato per integrare le equazioni su un intervallo di tempo Δt_{burn} . Nel secondo step si calcola nuovamente la distribuzione del flusso con una nuova configurazione delle barre di controllo e si procede con l'integrazione per un altro intervallo Δt_{burn} e così via, fino alla fine della vita del combustibile. Il valore massimo di Δt_{burn} dipende da vari fattori come la velocità di cambiamento nella composizione del combustibile, l'effetto di questa variazione sulla distribuzione del flusso e la precisione che si richiede nell'integrazione.

Il calcolo della distribuzione del flusso è stato eseguito con l'utilizzo di un codice di simulazione Monte Carlo (MCB, vedi paragrafo 4.2) e si è considerato un unico intervallo Δt_{burn} che comprende il tempo di funzionamento del reattore dal 16/11/1965 al 31/12/2011. Questa scelta è giustificata dal fatto che il consumo di combustibile non è elevato (Burn-up medio del 10 %) e che l'obiettivo è quello ottenere un risultato medio. I risultati della simulazione del *burn-up* (paragrafo 4.3) sono stati poi validati attraverso misure sperimentali delle attività di alcuni isotopi e confrontati anche con la risoluzione delle equazioni differenziali presentate in questo paragrafo per alcuni isotopi di interesse.

3.6 Effetti del burn-up sul funzionamento del reattore

Variazioni positive di reattività

Le catene di trasmutazione e decadimento di nuclei fertili presenti nel combustibile producono alcuni nuclei fissili, i quali sono responsabili di una variazione positiva di reattività. L'entità di questo effetto positivo dipende dall'arricchimento iniziale del combustibile: inizialmente si può avere una produzione di nucleo fissile più elevata del consumo del combustibile ma successivamente viene raggiunto l'equilibrio di produzione del nuclide fertile.

Ad esempio nei reattori termici $\eta_{Pu} < \eta_U$, perciò per avere una reattività positiva la produzione di ^{239}Pu dovrebbe essere superiore al consumo di ^{235}U ; nei reattori veloci invece, $\eta_{Pu} > \eta_U$, ci può essere un'iniziale reattività positiva anche se la produzione di plutonio è inferiore al consumo di combustibile. Questo effetto però si esaurisce a causa della saturazione della concentrazione del plutonio determinata dall'equilibrio tra il tasso di produzione per trasmutazione dell'uranio ed il tasso di consumo per fissione del plutonio stesso.

Variazioni negative di reattività

La fissione dei nuclei di ^{235}U produce due effetti negativi sulla reattività: il numero di nuclei di combustibile si riduce e vengono prodotti frammenti di fissione, alcuni dei quali hanno un'elevata sezione d'urto di cattura neutronica. Talvolta anche la produzione di attinidi influisce negativamente sulla reattività poiché alcuni di essi fungono da grandi assorbitori di neutroni. Ad esempio, mentre ^{239}Pu e ^{241}Pu sono fissili nei reattori termici, la formazione di ^{240}Pu e ^{242}Pu provoca una diminuzione della reattività in quanto possiedono un'elevata sezione d'urto di cattura neutronica. Lo stesso discorso vale per alcuni isotopi dell'americio, del nettunio e dell'uranio che si formano nel reattore come si vede dalla Tabella 1.

$\sigma_{(n,\gamma)} (b)$	$\sigma_f (b)$	Nuclide	Vita media	Massa* (g)
1231	6400	^{242m}Am	141 y	1.7×10^{-6}
618.8	3.14	^{241}Am	432 y	1.5×10^{-4}
560.9	17.0	^{238}Pu	87.7 y	1.8×10^{-4}
363.1	1012	^{241}Pu	14.3 y	3.5×10^{-3}
286.6	0.064	^{240}Pu	6564 y	3×10^{-2}
270.7	747.9	^{239}Pu	2.4×10^4 y	5.2×10^{-1}
200.7	0.021	^{231}Pa	3.3×10^4 y	1.2×10^{-7}
161.7	0.02	^{237}Np	2.1×10^6 y	7×10^{-3}
100.9	0.067	^{234}U	245.5 y	1.7×10^{-4}
45.26	531.4	^{233}U	1.6×10^5 y	1.5×10^{-7}
19.17	10^{-3}	^{242}Pu	3.7×10^5 y	9.4×10^{-5}
7.34	/	^{232}Th	stabile	5.2×10^{-8}
5.13	0.047	^{236}U	2.3×10^7 y	9.5×10^{-1}

Tabella 1: Attinidi ordinati secondo la sezione d'urto termica di cattura neutronica (*=quantità proveniente da 6 grammi di ^{235}U fissionati). [5]

4. SIMULAZIONE MONTE CARLO PER IL CALCOLO DEL BURN-UP

4.1 Il Codice ORIGEN

ORIGEN è un codice che permette di calcolare l'evoluzione temporale di un numero elevato di nuclidi dovuta a processi come la trasmutazione neutronica, la fissione e il decadimento. Il codice fu creato principalmente per stimare le caratteristiche del combustibile esausto e delle scorie, con lo scopo di ottimizzare rispettivamente il loro riprocessamento e trattamento in sicurezza. Attualmente esistono cinque versioni del programma; per questo lavoro di tesi si è utilizzata la versione ORIGEN-JR [6].

Metodo di calcolo

Il codice utilizza un metodo a matrice esponenziale per risolvere le equazioni di formazione e decadimento radioattivo per un elevato numero di nuclei. Le concentrazioni di ciascun nuclide sono descritte dalla seguente formula:

$$\frac{dX_i}{dt} = \sum_{j=1}^N l_{ij} \lambda_j X_j + \bar{\phi} \sum_{k=1}^N f_{ik} \sigma_k X_k - (\lambda_i + \bar{\phi} \sigma_i) X_i, \quad (i=1 \dots N)$$

dove X è la concentrazione atomica del nuclide, λ è la costante di decadimento, l_{ij} e f_{ik} sono i tassi di disintegrazione e produzione di altri isotopi che portano alla formazione del nuclide i , $\bar{\phi}$ è il flusso neutronico mediato sullo spazio e sull'energia (assunto costante in un breve intervallo di tempo), σ è la sezione d'urto media di assorbimento neutronico. L'equazione si può rappresentare in forma matriciale con la sua soluzione:

$$\frac{dX}{dt} = AX$$

$$X(t) = X(0) \exp(At)$$

dove $X(0)$ è la densità atomica iniziale e A è la matrice di trasmutazione contenente i coefficienti di decadimento e di produzione.

Applicando lo sviluppo in serie di Taylor all'ultima equazione si ottiene:

$$X(t) = X(0) \left\{ I + At + \frac{(At)^2}{2} + \dots \right\}$$

$$= X(0) \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(At)^m}{m!}$$

$$X(t) = \sum_{n=0}^{\infty} C^n$$

Sostituendo l'ultima espressione di $X(t)$ nello sviluppo in serie si ottengono le seguenti espressioni per la funzione C :

$$C^0 = X(0)$$

$$C^{n+1} = \frac{t}{n+1} AC^n$$

Per calcolare le concentrazioni di tutti i nuclidi, ORIGIN non applica solamente le equazioni appena descritte ma utilizza anche un altro metodo matematico dipendente dalla natura della serie di decadimenti. Se, ad esempio, la costante di decadimento di un nuclide B (prodotto da A) è molto grande, allora si assume che l'isotopo C sia prodotto direttamente da A mentre B è ottenuto con una tecnica alternativa. Inoltre, nel caso in cui la costante di decadimento di A sia molto grande, il valore di B nella matrice di transizione è sostituito da $A+B$ e viene considerata solo la transizione da B a C . I nuclei a breve vita media che sono presenti all'inizio dell'intervallo temporale vengono trattati con le equazioni di Bateman (vedi paragrafo 3.3).

Validazione del codice

In questo paragrafo sono presentati i risultati del codice ORIGIN confrontati con le seguenti formule per i prodotti di fissione e per gli attinidi:

$$N^{fp} = \frac{N_0^{fiss} y_{fp} \sigma_f^{fiss} \phi}{\lambda + (\sigma_a^{fp} - \sigma_a^{fiss}) \phi} (\exp(-\sigma_a^{fiss} \phi t) - \exp(-(\lambda + \sigma_a^{fp} \phi) t)) \quad (4.1.1)$$

$$N^{at} = \frac{N_0^{fiss} \sigma_{(n,\gamma)}^{fiss} \phi}{(\sigma_a^{at} - \sigma_a^{fiss}) \phi} (\exp(-\sigma_a^{fiss} \phi t) - \exp(-\sigma_a^{at} \phi t)) \quad (4.1.2)$$

Sono state effettuate diverse tipologie di simulazioni variando il tipo di combustibile, con un flusso termico pari a $3.47 \times 10^{12} \text{ n cm}^2 \text{ s}^{-1}$ e un tempo di irraggiamento di 1300 giorni. In questo paragrafo vengono presentati i risultati del *burn-up* del combustibile utilizzato nel reattore TRIGA Mark II del LENA e di un combustibile al Torio naturale.

Nel caso del combustibile del TRIGA si sono utilizzati 4210 grammi atomo (1 grammo atomo è equivalente ad un numero di grammi pari al numero di massa dell'elemento) di Uranio arricchito al 20 % in ^{235}U . I risultati per alcuni nuclidi sono mostrati in Tabella 2; è interessante osservare che il contributo del ^{239}Pu alla fissione non è trascurabile.

Nuclide	$M_{origen}(g)$	$M_{teor}(g)$	Scostamento
^{86}Kr	243.04	239.96	+ 1.28 %
^{90}Sr	693.99	707.00	-1.84 %
^{131}I	4.38	4.38	+ 0.01 %
^{133}Xe	6.53	6.71	-2.80 %
^{137}Cs	1138.61	1133.78	+ 0.43 %
^{239}Pu	1119.00	1122.19	-0.28 %

Tabella 2: Confronto tra le masse di alcuni nuclidi formati da un combustibile di Uranio.

Nel secondo caso (Tabella 3) si sono utilizzati come combustibile 100 grammi atomo di Torio naturale (100% ^{232}Th); poiché la sezione d'urto di fissione a energie termiche è bassa il contributo alla fissione è essenzialmente dato dall' ^{233}U , prodotto per cattura neutronica dal ^{232}Th e dal successivo decadimento del ^{233}Th e ^{233}Pa .

Nuclide	$M_{origen}(g)$	$M_{teor}(g)$	Scostamento
^{86}Kr	0.1782	0.1646	+ 8.26 %
^{90}Sr	0.3562	0.4112	-13.38 %
^{137}Cs	0.5561	0.6227	-10.70 %
^{233}U	138.61	142.73	-2.89 %

Tabella 3: Confronto tra le masse di alcuni nuclidi formati da un combustibile di Torio.

Nelle tabelle M_{origen} è il risultato della simulazione con ORIGEN mentre M_{teor} rappresenta la massa del nuclide calcolata con le formule 4.1.1 e 4.1.2.

Conclusioni

Come si è visto dal paragrafo precedente, il codice ORIGEN produce dei risultati in buon accordo con i valori dati dalle formule teoriche. Nonostante questo, però, il codice risulta non adatto al calcolo del *burn-up* nel reattore TRIGA Mark II del LENA. Infatti le sezioni d'urto di fissione presenti nelle librerie sono collassate secondo uno spettro energetico di un reattore di potenza e non possono essere modificate *ad hoc* per lo spettro energetico del TRIGA Mark II. Inoltre la tipologia di combustibile implementata nel codice presenta un arricchimento in ^{235}U inferiore a quello presente nel reattore del LENA. Per questi due principali motivi si è scelto di adottare un codice più flessibile per le nostre esigenze e più facilmente gestibile.

4.2 Il codice MCB

MCB (**M**onte **C**arlo **C**ontinuous **E**nergy **B**urn-up **C**ode [2]) è un codice di simulazione Monte Carlo che consente di calcolare l'evoluzione temporale di un particolare nuclide dovuta al bruciamento o al decadimento. Il codice provvede al calcolo degli autovalori di sistemi critici e sottocritici, oltre al trasporto neutronico nella configurazione a sorgente fissa (*sdef*) o in regime di criticità (*kcode*), per ottenere i tassi di reazione e la deposizione di energia, necessari per il calcolo del *burn-up*. MCB implementa in modo integrale il codice MCNP (versione 4C [1]) utilizzato per il calcolo del trasporto dei neutroni e il codice TTA (Transmutation Trajectory Analysis) che fornisce il calcolo dell'evoluzione temporale della concentrazione di un particolare nuclide. La sua compatibilità con MCNP permette di ottenere un calcolo del *burn-up* completo modificando leggermente un file di input di MCNP, in modo da facilitare notevolmente la gestione del codice.

Caratteristiche del codice

Ecco alcune delle caratteristiche principali del codice MCB:

- I tassi di reazione sono calcolati in tempo reale nel momento in cui avviene un'interazione di neutroni in celle dove è presente del combustibile.
- E' possibile utilizzare sezioni d'urto dipendenti dalla temperatura per materiali diversi, considerare gli effetti termici e applicare una distribuzione dipendente dall'energia per la formazione dei prodotti di fissione.
- E' possibile effettuare un calcolo preliminare in cui viene determinato solo il flusso; in seguito il codice effettua una stima di quali nuclidi si potrebbero formare dal materiale iniziale a causa del bruciamento senza calcolare tassi di reazione.
- E' previsto un trattamento semplificato, per i nuclidi che hanno un tempo di dimezzamento minore di un certo valore scelto dall'utente, che prevede il decadimento istantaneo appena vengono formati.
- L'utente può scegliere liberamente la lunghezza degli step temporali di irraggiamento e decadimento, se lavorare a potenza o a flusso costante, se utilizzare una sorgente esterna o il *kcode*.

Calcolo delle trasmutazioni degli isotopi

Per calcolare le trasmutazioni di un nuclide formato durante il bruciamento del combustibile consideriamo una catena di 4 decadimenti con rispettive costanti di decadimento λ_1 , λ_2 , λ_3 , λ_4 . Le equazioni differenziali che governano il fenomeno sono (equazioni di Bateman):

$$\left\{ \begin{array}{l} dN_1 = -\lambda_1 N_1 dt \\ dN_2 = \lambda_1 N_1 dt - \lambda_2 N_2 dt \\ dN_3 = \lambda_2 N_2 dt - \lambda_3 N_3 dt \\ dN_4 = \lambda_3 N_3 dt - \lambda_4 N_4 dt \end{array} \right.$$

Nel caso che all'inizio ci siano solo nuclei di tipo N_0 si ha la seguente soluzione:

$$A_n = N_0 \cdot \sum_{i=1}^n c_i e^{-\lambda_i t} dt = N_0 \cdot (c_1 e^{-\lambda_1 t} + c_2 e^{-\lambda_2 t} + \dots + c_n e^{-\lambda_n t})$$

$$c_m = \frac{\prod_{i=1}^n \lambda_i}{\prod_{i=1, i \neq m}^n (\lambda_i - \lambda_m)} = \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3 \dots \lambda_n}{(\lambda_1 - \lambda_m) \cdot (\lambda_2 - \lambda_m) \dots (\lambda_n - \lambda_m)}$$

Una volta calcolate le probabilità di transizione A_n il codice genera la catena di trasmutazione che dipende dal materiale e dallo step temporale. Il processo della formazione delle catene è effettuato con la risoluzione delle equazioni di Bateman attraverso un metodo lineare. La catena di trasmutazione viene espansa in una serie di traiettorie di trasmutazione durante il processo di analisi. Ogni traiettoria contribuisce alla densità del nuclide finale con un valore uguale al prodotto tra la densità iniziale del nucleo e la probabilità di trasmutazione.

La prima traiettoria consiste in un solo nuclide e rappresenta il nucleo iniziale. Nello step successivo viene formata la seconda generazione di traiettorie, le quali sono estensioni della prima, create dalla trasmutazione del nuclide iniziale a un suo figlio considerando tutti i possibili decadimenti. Il processo di formazione delle traiettorie termina quando tutte le estensioni possibili sono state considerate.

Definizione dei materiali

In MCB sono definite tre tipologie di materiali:

- Materiali di trasporto, che sono utilizzati nelle simulazioni di trasporto delle particelle e nei calcoli.
- Materiali di *burn-up*, i quali non vengono coinvolti nel calcolo del trasporto fino a quando la loro densità non si accumula fino ad un livello di soglia determinato dall'utente, dove vengono promossi a materiali di trasporto.
- Materiali residui, che non hanno densità definita e sono utilizzati solo per il calcolo delle trasmutazioni, perciò non sono consumati a causa del *burn-up*. Questi materiali non contribuiscono alla formazione di altri nuclidi fino al momento in cui vengono accumulati come nuclei figli a causa del *burn-up* di altri materiali.

Per semplificare la definizione del sistema di input, questi tipi di materiale possono essere uniti in un unico materiale attraverso la card MIX.

4.3 Calcolo del burn-up

Per calcolare con MCB il *burn-up* di ciascun elemento di combustibile è necessario conoscere lo spettro neutronico e il tempo di irraggiamento che hanno caratterizzato ciascuna barra di combustibile nel corso della sua vita all'interno del nocciolo. Dalla configurazione di prima carica del 16/11/1965 al 31/12/2011 il nocciolo ha assunto 30 configurazioni diverse ottenute variando le posizioni di alcuni elementi e con l'introduzione di elementi nuovi. Per simulare il *burn-up* utilizzando una geometria completa del reattore sarebbe quindi stato necessario riprodurre tutte le configurazioni del nocciolo e cambiare ogni volta la composizione del combustibile in base al bruciamento in ciascuna configurazione. Questo lavoro avrebbe richiesto un tempo molto lungo ed è stato quindi deciso di sviluppare una metodologia di calcolo alternativa basata su una geometria semplificata della simulazione dell'irraggiamento di ogni elemento di combustibile.

Determinazione dei flussi in ogni elemento di combustibile

Per il calcolo del *burn-up* è stata determinata, con una simulazione completa del reattore nella configurazione di prima carica del 16/11/1965 effettuata con MCB, la distribuzione energetica del flusso all'interno del combustibile in ciascuna posizione del nocciolo, sia per gli elementi con rivestimento in alluminio che per quelli con guaina in acciaio inossidabile. La configurazione di prima carica prevedeva la presenza di 61 elementi in alluminio in tutte le posizioni degli anelli B, C, D, E (escluse le posizioni in cui sono allocate le barre di controllo) e in F25, F26, F27 e F28 (Figura 5). I flussi negli elementi in alluminio sono stati calcolati nelle altre posizioni dell'anello F, spostando tutti i 4 elementi già presenti nell'anello nelle posizioni mancanti esclusa F4, nella quale è presente la sorgente di neutroni.

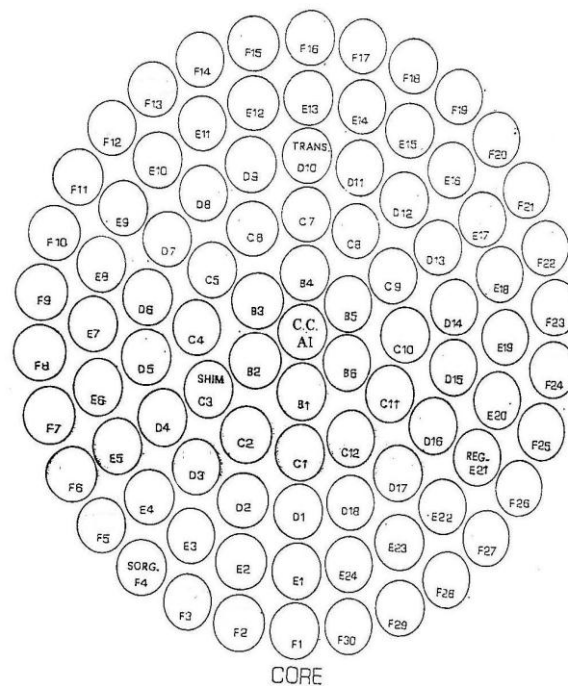


Figura 5: Struttura del nocciolo.

Per quanto riguarda le barre con rivestimento in acciaio inossidabile il flusso è stato calcolato sostituendo uno alla volta un elemento in alluminio per ciascuna posizione del nocciolo in cui le barre sono state (principalmente negli anelli B, C e D). La scelta di sostituire uno alla volta ciascun elemento ha l'obiettivo di minimizzare variazioni della neutronica del nocciolo dovute al cambiamento della composizione del combustibile e del materiale per il rivestimento (cambia la sezione d'urto di assorbimento dei neutroni). Nella tabella seguente sono mostrati i risultati del calcolo dei flussi.

Pos	Flusso Al	Flusso SST	Pos	Flusso Al	Flusso SST	Pos	Flusso Al	Flusso SST	Pos	Flusso Al	Flusso SST
B1	1.78×10 ¹³	1.73×10 ¹³	D6	1.32×10 ¹³	1.28×10 ¹³	E11	1.05×10 ¹³	/	F11	9.40×10 ¹²	/
B2	1.69×10 ¹³	1.63×10 ¹³	D7	1.36×10 ¹³	1.32×10 ¹³	E12	1.04×10 ¹³	/	F12	9.43×10 ¹²	/
B3	1.76×10 ¹³	1.71×10 ¹³	D8	1.38×10 ¹³	1.34×10 ¹³	E13	1.04×10 ¹³	/	F13	9.63×10 ¹²	/
B4	1.82×10 ¹³	1.76×10 ¹³	D9	1.41×10 ¹³	1.35×10 ¹³	E14	1.01×10 ¹³	/	F14	9.42×10 ¹²	9.17×10 ¹²
B5	1.85×10 ¹³	1.79×10 ¹³	D11	1.42×10 ¹³	1.36×10 ¹³	E15	1.02×10 ¹³	/	F15	8.87×10 ¹²	8.56×10 ¹²
B6	1.85×10 ¹³	1.79×10 ¹³	D12	1.42×10 ¹³	1.38×10 ¹³	E16	1.06×10 ¹³	/	F16	8.44×10 ¹²	/
C1	1.63×10 ¹³	1.58×10 ¹³	D13	1.45×10 ¹³	1.40×10 ¹³	E17	1.09×10 ¹³	/	F17	8.29×10 ¹²	/
C2	1.53×10 ¹³	1.47×10 ¹³	D14	1.47×10 ¹³	1.42×10 ¹³	E18	1.11×10 ¹³	/	F18	8.10×10 ¹²	/
C4	1.52×10 ¹³	1.46×10 ¹³	D15	1.45×10 ¹³	1.40×10 ¹³	E19	1.09×10 ¹³	/	F19	8.05×10 ¹²	/
C5	1.60×10 ¹³	1.55×10 ¹³	D16	1.44×10 ¹³	1.38×10 ¹³	E20	1.08×10 ¹³	/	F20	8.53×10 ¹²	/
C6	1.65×10 ¹³	1.60×10 ¹³	D17	1.45×10 ¹³	1.39×10 ¹³	E22	1.09×10 ¹³	/	F21	9.09×10 ¹²	/
C7	1.68×10 ¹³	1.62×10 ¹³	D18	1.44×10 ¹³	1.39×10 ¹³	E23	1.09×10 ¹³	/	F22	9.13×10 ¹²	/
C8	1.69×10 ¹³	1.64×10 ¹³	E1	1.05×10 ¹³	/	E24	1.07×10 ¹³	/	F23	8.64×10 ¹²	/
C9	1.71×10 ¹³	1.66×10 ¹³	E2	1.03×10 ¹³	/	F1	8.59×10 ¹²	/	F24	8.68×10 ¹²	/
C10	1.73×10 ¹³	1.68×10 ¹³	E3	9.87×10 ¹²	/	F2	8.56×10 ¹²	/	F25	7.78×10 ¹²	7.53×10 ¹²
C11	1.70×10 ¹³	1.66×10 ¹³	E4	9.61×10 ¹²	/	F3	8.70×10 ¹²	/	F26	7.63×10 ¹²	/
C12	1.70×10 ¹³	1.64×10 ¹³	E5	9.64×10 ¹²	/	F5	8.35×10 ¹²	/	F27	7.56×10 ¹²	/
D1	1.39×10 ¹³	1.35×10 ¹³	E6	9.81×10 ¹²	/	F6	8.81×10 ¹²	/	F28	7.43×10 ¹²	/
D2	1.34×10 ¹³	1.29×10 ¹³	E7	1.01×10 ¹³	/	F7	8.78×10 ¹²	/	F29	7.67×10 ¹²	/
D3	1.25×10 ¹³	1.22×10 ¹³	E8	1.03×10 ¹³	/	F8	9.09×10 ¹²	/	F30	8.24×10 ¹²	/
D4	1.21×10 ¹³	1.16×10 ¹³	E9	1.04×10 ¹³	/	F9	9.49×10 ¹²	/			
D5	1.26×10 ¹³	1.21×10 ¹³	E10	1.05×10 ¹³	/	F10	9.61×10 ¹²	/			

Per brevità non è mostrata la distribuzione energetica, ma viene riportato il valore del flusso integrale (errore statistico $\sigma = 2.5 \times 10^9$ n/cm²s). Si può inoltre osservare che negli elementi in acciaio inossidabile il flusso è minore del 3-4 % rispetto a quello negli elementi in alluminio: questo scostamento è dovuto al fatto che l'acciaio ha una sezione d'urto di assorbimento dei neutroni superiore a quella dell'alluminio.

Le ore di funzionamento a potenza nominale (250 kW) e la relativa posizione nel nocciolo degli elementi di combustibile dal 16/11/1965 al 31/12/2011 sono state ricavate dal Registro di Operazione del reattore (*Log-Book*) e sono riportate nelle tabelle seguenti. Gli elementi con guaina in alluminio sono identificati dalle lettere iniziali A, B e C, mentre le barre con camicia in acciaio inossidabile iniziano con le lettere S e T. Il valore del flusso pesato riportato in tabella per ciascun elemento è stato ottenuto come la media pesata sulle ore di funzionamento della distribuzione energetica del flusso in ogni posizione del nocciolo in cui è stato l'elemento:

$$\phi_w = \frac{\sum_i \phi_i t_i}{t_{totj}}$$

dove ϕ_i e t_i rappresentano rispettivamente il flusso e il tempo di irraggiamento dell'elemento nella posizione i-esima, mentre t_{totj} è il tempo totale di irraggiamento dell'elemento j-esimo.

Il flusso pesato rappresenta lo spettro energetico del flusso che ha caratterizzato ogni elemento di combustibile, prendendo in considerazione il tipo di rivestimento e i vari spostamenti all'interno del nocciolo. Questo valore del flusso è stato utilizzato per la simulazione dell'irraggiamento di ciascuna barra di combustibile.

FE	Pos	T (h)	Pos	T (h)	Pos	T (h)	Pos	T (h)	Pos	T (h)	Pos	T (h)	T tot (h)	Φ_{w_2} (n/cm ² s)
AA	B3	12842.0											12842.0	1.76x10 ¹³
AB	B6	18522.0											18522.0	1.85x10 ¹³
AC	E1	32971.9											32971.9	1.05x10 ¹³
AD	D1	29786.0	E17	3185.9									32971.9	1.36x10 ¹³
AE	B4	1741.8	C8	10989.0	F17	6373.4	E12	4188.9	D7	4222.1	F10	5456.7	32971.9	1.28x10 ¹³
AF	E7	32971.9											32971.9	1.01x10 ¹³
AG	E6	32971.9											32971.9	9.81x10 ¹²
AH	D2	24557.0	F28	8414.9									32971.9	1.19x10 ¹³
AI	D18	1741.8	C12	10989.4	C2	2796.3	D6	14258.3	E9	2236.2	F13	949.9	32971.9	1.44x10 ¹³
AJ	D5	24557.0	F20	8414.9									32971.9	1.15x10 ¹³
AK	C6	1741.8	D7	7080.2									8822.0	1.42x10 ¹³
AL	C7	652.3	F25	6584.2									7236.5	8.60x10 ¹²
AM	C10	1741.8	F26	1585.5	D18	6705.5	F20	9029.2	D5	2149.2	F8	3079.9		
	E4	949.9											25241.0	1.11x10 ¹³
AN	E3	32971.9											32971.9	9.87x10 ¹²
AO	D12	24557.0											24557.0	1.42x10 ¹³
AP	C2	652.3	F26	1089.0	F28	21016.6	D2	5229.1	F1	3186.9			31173.9	8.80x10 ¹²
AQ	E24	19671.7											19671.7	1.07x10 ¹³
AR	F25	652.3	C7	1089.5	F17	1166.2	E17	10487.2	F21	18944.5			32339.7	9.88x10 ¹²
AS	F26	6147.0	C2	1089.5									7236.5	8.78x10 ¹²
AT	F28	1284.3	C12	1089.5	F16	30598.1							32971.9	8.69x10 ¹²
AU	C8	1741.8	F15	5282.0	D7	14471.5	F11	9678.2					31173.5	1.17x10 ¹³
AV	E14	29786.0	F19	3185.9									32971.9	9.94x10 ¹²
AW	D6	15527.5	F7	17444.4									32971.9	1.09x10 ¹³
AX	B1	1741.8	D8	5494.7									7236.5	1.48x10 ¹³

FE	Pos	T (h)	Pos	T (h)	Pos	T (h)	Pos	T (h)	Pos	T (h)	T tot (h)	Φ_w (n/cm ² s)
AY	C12	652.3	F28	1089.5	D18	7080.2	F26	20963.8			29785.8	9.43x10 ¹²
AZ	E5	32971.9									32971.9	9.64x10 ¹²
BA	E23	32971.9									32971.9	1.09x10 ¹³
BB	C5	1741.8	D15	13785.7	E17	11178.4	F30	3080.0	F2	2084.9	31870.8	1.23x10 ¹³
BC	C1	1741.8	C2	10989.4	F6	5791.0	D9	5920.9	F25	8528.8	32971.9	1.20x10 ¹³
BD	E22	32971.9									32971.9	1.09x10 ¹³
BE	D3	24557.0	F22	8414.9							32971.9	1.17x10 ¹³
BF	E4	32022.0									32022.0	9.61x10 ¹²
BG	D7	1741.8	C6	10989.4	F15	20240.7					32971.9	1.16x10 ¹³
BH	D9	18522.1	F6	6034.6	D4	5229.1	E24	3186.1			32971.9	1.25x10 ¹³
BI	D16	19104.6	F12	13867.3							32971.9	1.23x10 ¹³
BJ	D13	26706.0	E17	3080.0	F26	3185.9					32971.9	1.35x10 ¹³
BK	F27	32971.9									32971.9	7.43x10 ¹²
BL	B5	1741.8									1741.8	1.85x10 ¹³
BM	E18	32971.9									32971.9	1.11x10 ¹³
BN	E9	29786.0	F8	3185.9							32971.9	1.03x10 ¹³
BO	E17	3540.0	F22	21016.7	D3	5229.1	E14	3186.1			32971.9	9.96x10 ¹²
BP	E19	32971.9									32971.9	1.09x10 ¹³
BQ	E11	32971.9									32971.9	1.05x10 ¹³
BR	D17	19737.8	F19	10048.0							29785.8	1.23x10 ¹³
BS	E20	32971.9									32971.9	1.08x10 ¹³
BT	E10	32971.9									32971.9	1.05x10 ¹³
BU	E8	32971.9									32971.9	1.03x10 ¹³
BV	E13	32971.9									32971.9	1.04x10 ¹³

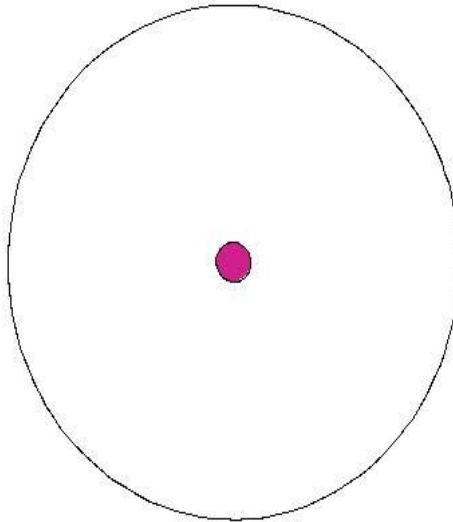
FE	Pos	T (h)	Pos	T (h)	Pos	T (h)	Pos	T (h)	Pos	T (h)	T tot (h)	Φ_w (n/cm ² s)
BW	D14	19737.8	F11	3555.7	E12	9678.4					32971.9	1.28x10 ¹³
BX	E16	32971.9									32971.9	1.06x10 ¹³
BY	E2	32971.9									32971.9	1.03x10 ¹³
BZ	D8	1741.8	C11	10989.4	F29	20240.7					32971.9	1.11x10 ¹³
CA	D11	26706.0	F9	6265.9							32971.9	1.33x10 ¹³
CB	C9	12731.2	F18	10562.3	D17	6492.3	F30	3186.1			32971.9	1.28x10 ¹³
CC	D4	24557.0	F26	7465.0	F6	949.9					32971.9	1.10x10 ¹³
CD	D15	1741.8	C5	10989.4	F14	20240.7					32971.9	1.19x10 ¹³
CE	B2	8822.0	F25	6791.0	F24	8830.0	F1	5343.0			29786.0	1.12x10 ¹³
CF	E12	19104.6	F17	13867.3							32971.9	9.49x10 ¹²
CG	C4	1741.8	F7	5494.7	F19	6940.5	E24	10114.1	E9	949.9	25241.0	9.84x10 ¹²
CH	F23	6266.4									6266.4	8.64x10 ¹²
CI	E15	32971.9									32971.9	1.02x10 ¹³
CJ	C11	1741.8	F29	5494.7	D8	12501.3	D17	3555.7	F18	9678.4	32971.9	1.13x10 ¹³
SA	F25	1585.5	F15	3909.2	C8	20240.6					25735.3	1.47x10 ¹³
SB	F14	5494.7	C6	11825.5	B4	2149.2	D5	6265.9			25735.3	1.37x10 ¹³
SC	C4	28044.0	D6	3185.9							31229.9	1.45x10 ¹³
SD	B1	22814.9	D9	8415.0							31229.9	1.62x10 ¹³
SE	B4	22814.9	C6	5229.1	D4	3185.9					31229.9	1.67x10 ¹³
SF	C10	24964.0	D14	4180.9	D8	2085.0					31229.9	1.62x10 ¹³
SG	C1	28044.0	D1	3185.9							31229.9	1.56x10 ¹³
SH	B5	17929.9	D13	6265.9							24195.8	1.69x10 ¹³
SI	B2	15734.7	D12	8415.0							24149.7	1.54x10 ¹³
SJ	C7	24964.0	D18	6265.9							31229.9	1.57x10 ¹³

FE	Pos	T (h)	Pos	T (h)	Pos	T (h)	T tot (h)	Φ_w^2 (n/cm ² s)
SK	D8	11149.0	B3	6895.3			18044.3	1.48x10 ¹³
SL	B6	14449.9					14449.9	1.79x10 ¹³
SM	C5	18155.6	C4	2085.0			20240.6	1.54x10 ¹³
SN	C11	20240.6					20240.6	1.66x10 ¹³
SO	C2	9029.2	D11	6265.9			15295.1	1.43x10 ¹³
SP	C9	20240.6					20240.6	1.66x10 ¹³
SQ	D16	567.1	B5	4885.0	C2	8415.1	13867.2	1.58x10 ¹³
SR	C12	20240.6					20240.6	1.64x10 ¹³
SS	D16	13300.0					13300.0	1.39x10 ¹³
ST	D15	17444.3					17444.3	1.40x10 ¹³
SU	D18	11178.4	B4	3080.0	D3	3185.9	17444.3	1.43x10 ¹³
SV	B3	10471.0	D7	2763.4			13234.4	1.63x10 ¹³
SW	D14	6968.5	B5	6265.9			13234.4	1.60x10 ¹³
SX	B2	5229.1	C4	1100.9	C6	2085.1	8415.1	1.60x10 ¹³
SY	D9	113.7	B1	8415.1			8528.8	1.72x10 ¹³
SZ	D7	2692.6	B3	2763.5			5456.1	1.52x10 ¹³
TA	B5	2149.2	C10	3080.0	B2	3185.9	8415.1	1.69x10 ¹³
TB	C7	3080.0	B4	3185.9			6265.9	1.69x10 ¹³
TC	C6	1100.9	C5	2085.0			3185.9	1.56x10 ¹³
TD	C10	3185.9					3185.9	1.67x10 ¹³
TE	C7	3185.9					3185.9	1.62x10 ¹³
TF	D2	3185.9					3185.9	1.29x10 ¹³
TG	C1	3185.9					3185.9	1.58x10 ¹³
TH	D17	3185.9					3185.9	1.39x10 ¹³
TI	D14	2085.0					2085.0	1.42x10 ¹³

Simulazione degli irraggiamenti

L'irraggiamento di ciascun elemento di combustibile ha le seguenti caratteristiche:

- la geometria (Figura 6) consiste in una sfera di materiale combustibile di raggio 1.5 cm circa, che corrisponde al raggio delle barre di combustibile (1.47 cm per gli elementi in alluminio e 1.54 cm per quelli in acciaio inossidabile) racchiusa in una sfera di raggio arbitrario (20 cm) nella quale c'è il vuoto;
- il combustibile della sfera consiste in una lega di uranio e idruro di zirconio (con percentuali variabili a seconda dell'elemento preso in considerazione); la densità del materiale è stata ridotta di un fattore 100 rispetto a quella vera per ridurre gli effetti di autoassorbimento all'interno del combustibile;
- l'irraggiamento della sfera di combustibile è del tipo *inward cosine*. Una sorgente di neutroni è distribuita uniformemente sulla superficie esterna della sfera di 20 cm ed emette neutroni verso il suo centro determinando uno spettro energetico nel combustibile pari allo spettro pesato calcolato per ciascun elemento;
- il tempo di irraggiamento è variabile a seconda dell'elemento di combustibile;
- il numero di neutroni generati per ogni simulazione è pari a 10⁸.


Figura 6: Geometria delle simulazioni

Risultati

La simulazione dell'irraggiamento di ciascun elemento di combustibile genera nell'output di MCB numerosi prodotti di fissione e attinidi prodotti durante il bruciamento. Tra questi nuclidi ne sono stati selezionati solo alcuni che influiscono in modo sensibile sulla neutronica del reattore, in particolare sulla reattività.

In primo luogo sono stati selezionati gli elementi che compongono il combustibile nucleare, ovvero l'idruro di zirconio (ZrH), l' ^{235}U , l' ^{238}U e in aggiunta il ^{239}Pu , che contribuisce in modo non trascurabile alla fissione all'interno del reattore.

Per quanto riguarda il contributo all'avvelenamento del reattore si è scelto di considerare separatamente il contributo dei veleni saturabili e dei veleni non saturabili. Per i veleni saturabili sono stati considerati il ^{149}Sm e il ^{151}Sm che hanno una sezione d'urto di assorbimento pari rispettivamente a 4×10^4 e 1.5×10^4 barn. Non sono stati invece presi in considerazione lo ^{135}Xe , poiché ha un tempo di dimezzamento pari a circa 9 ore, e il ^{157}Gd , perché presente in quantità trascurabile nella barre di combustibile. In realtà il ^{151}Sm ha un tempo di dimezzamento pari a circa 90 anni, ma MCB non ha potuto considerare il suo decadimento nel corso dei 46 anni di vita del reattore all'interno del calcolo del *burn-up* poiché l'irraggiamento delle barre di combustibile non è stato continuo nel tempo ma è condensabile in un periodo di tempo pari a circa 3 anni e 9 mesi. E' stato quindi calcolato per il ^{151}Sm il contributo alla sparizione sia per assorbimento che per decadimento:

$$R_{\text{ass}} = \sigma_a \phi t_{\text{irr}}$$

$$R_{\text{dec}} = \lambda t_{\text{tot}}$$

dove $\sigma_a = 1.52 \times 10^4$ barn, $\phi = 1.38 \times 10^{13}$ n cm⁻² s⁻¹ è il flusso medio nell'anello D del reattore, $t_{\text{irr}} = 32971.9$ ore è il tempo di irraggiamento del combustibile, $\lambda =$

$2.44 \times 10^{-10} \text{ s}^{-1}$ e $t_{\text{tot}} = 46$ anni è il tempo trascorso dal primo giorno di funzionamento del reattore al 31/12/2011. Il rapporto tra i due contributi fornisce un peso relativo del decadimento rispetto all'assorbimento pari a circa l'1.4 %, il che giustifica il fatto di trascurare il decadimento del ^{151}Sm .

Per quanto concerne i veleni saturabili, come descritto in letteratura [7], si è scelto di introdurre un isotopo virtuale con σ_a pari a circa 50 barn per ogni fissione di ^{235}U . Questo isotopo è stato individuato nello ^{45}Sc il quale ha una σ_a pari a circa 27 barn: la determinazione del peso di questo tipo di veleni è spiegata nel paragrafo 5.2.

In seguito sono riportate le tabelle che presentano la composizione esatta dovuta alla *burn-up* alla data del 31/12/2011 di ciascun elemento di combustibile. I valori delle masse riportati nelle tabelle presentano un errore statistico inferiore all'1 %, valore che rappresenta l'incertezza statistica sulla determinazione dei flussi con MCB.

FE	$^{235}\text{U}_{in}$ (g)	$^{235}\text{U}_{fin}$ (g)	$^{235}\text{U}_{cons}$ (g)	$^{235}\text{U}_{fis}$ (g)	Burn-up (%)	Burn-up (MWDkg)	$^{238}\text{U}_{in}$ (g)	$^{238}\text{U}_{fin}$ (g)	^{239}Pu (g)	^{45}Sc (g)	^{149}Sm (g)	^{151}Sm (g)
AA	35.30	32.06	3.23	2.71	7.67	14.42	143.41	142.72	0.69	1.40	1.66×10^{-3}	3.74×10^{-3}
AB	35.72	30.95	4.77	4.00	11.19	21.04	145.14	144.07	1.02	2.06	1.65×10^{-3}	4.35×10^{-3}
AC	35.78	30.45	5.33	4.46	12.48	23.47	145.38	144.41	0.94	2.31	1.64×10^{-3}	4.41×10^{-3}
AD	36.32	30.04	6.27	5.25	14.46	27.21	147.56	146.22	1.26	2.71	1.64×10^{-3}	4.70×10^{-3}
AE	38.14	31.82	6.33	5.30	13.89	26.12	154.99	153.51	1.36	2.74	1.73×10^{-3}	4.87×10^{-3}
AF	35.53	30.30	5.23	4.38	12.32	23.17	144.35	143.34	0.92	2.26	1.64×10^{-3}	4.33×10^{-3}
AG	35.56	30.43	5.12	4.29	12.06	22.68	144.47	143.49	0.90	2.21	1.63×10^{-3}	4.32×10^{-3}
AH	36.30	30.73	5.56	4.66	12.83	24.14	147.48	146.19	1.21	2.41	1.67×10^{-3}	4.55×10^{-3}
AI	36.33	29.69	6.64	5.55	15.29	28.76	147.60	146.14	1.34	2.87	1.64×10^{-3}	4.73×10^{-3}
AJ	36.18	30.56	5.62	4.70	12.99	24.44	147.00	145.63	1.23	2.43	1.64×10^{-3}	4.54×10^{-3}
AK	36.53	34.68	1.85	1.55	4.25	7.99	148.44	148.00	0.39	0.80	1.76×10^{-3}	2.77×10^{-3}
AL	36.60	35.53	1.06	0.89	2.43	4.58	148.71	148.54	0.18	0.46	1.73×10^{-3}	1.84×10^{-3}
AM	36.57	32.34	4.24	3.55	9.69	18.23	148.60	147.71	0.80	1.83	1.71×10^{-3}	4.21×10^{-3}
AN	35.67	30.58	5.09	4.26	11.95	22.48	144.96	143.87	0.94	2.20	1.64×10^{-3}	4.33×10^{-3}
AO	36.45	31.47	4.98	4.17	11.45	21.53	148.11	146.95	1.04	2.15	1.69×10^{-3}	4.46×10^{-3}
AP	36.49	32.32	4.18	3.50	9.58	18.01	148.29	147.40	0.83	1.80	1.71×10^{-3}	4.17×10^{-3}
AQ	35.85	32.56	3.29	2.75	7.68	14.45	145.68	145.05	0.60	1.42	1.70×10^{-3}	3.77×10^{-3}
AR	35.30	30.59	4.70	3.94	11.15	20.98	143.41	142.46	0.88	2.03	1.63×10^{-3}	4.25×10^{-3}
AS	35.37	34.35	1.01	0.85	2.40	4.51	143.70	143.55	0.20	0.44	1.69×10^{-3}	1.77×10^{-3}
AT	35.06	30.79	4.28	3.58	10.21	19.20	142.48	141.65	0.83	1.85	1.63×10^{-3}	4.10×10^{-3}
AU	36.59	31.26	5.33	4.46	12.20	22.94	148.67	147.52	1.08	2.30	1.68×10^{-3}	4.53×10^{-3}
AV	36.10	30.83	5.27	4.42	12.23	23.00	146.70	145.69	0.92	2.28	1.65×10^{-3}	4.41×10^{-3}
AW	36.17	30.84	5.33	4.46	12.33	23.20	146.98	145.88	1.06	2.30	1.66×10^{-3}	4.48×10^{-3}
AX	36.61	34.98	1.63	1.37	3.73	7.02	148.75	148.41	0.34	0.71	1.76×10^{-3}	2.52×10^{-3}

FE	²³⁵ U _{in} (g)	²³⁵ U _{fin} (g)	²³⁵ U _{cons} (g)	²³⁵ U _{fis} (g)	Burn-up (%)	Burn-up (MWDkg)	²³⁸ U _{in} (g)	²³⁸ U _{fin} (g)	²³⁹ Pu (g)	⁴⁵ Sc (g)	¹⁴⁹ Sm (g)	¹⁵¹ Sm (g)
AY	36.55	32.18	4.37	3.66	10.01	18.82	148.52	147.57	0.86	1.89	1.71×10 ⁻³	4.24×10 ⁻³
AZ	35.65	30.65	5.00	4.19	11.74	22.08	144.88	143.93	0.89	2.16	1.64×10 ⁻³	4.31×10 ⁻³
BA	35.89	30.56	5.32	4.46	12.42	23.35	145.82	144.70	1.04	2.30	1.65×10 ⁻³	4.43×10 ⁻³
BB	36.53	30.73	5.80	4.85	13.29	24.99	148.41	147.17	1.16	2.51	1.66×10 ⁻³	4.60×10 ⁻³
BC	36.55	30.59	5.96	4.99	13.65	25.68	148.51	147.22	1.18	2.58	1.66×10 ⁻³	4.61×10 ⁻³
BD	35.90	30.46	5.43	4.55	12.67	23.84	145.85	144.73	1.03	2.35	1.64×10 ⁻³	4.45×10 ⁻³
BE	36.30	30.80	5.50	4.60	12.68	23.85	147.51	146.26	1.15	2.38	1.67×10 ⁻³	4.53×10 ⁻³
BF	35.67	30.86	4.81	4.02	11.28	21.22	144.93	143.99	0.89	2.08	1.65×10 ⁻³	4.27×10 ⁻³
BG	36.48	30.84	5.64	4.72	12.94	24.34	148.21	146.91	1.23	2.44	1.67×10 ⁻³	4.58×10 ⁻³
BH	36.50	30.22	6.28	5.26	14.40	27.09	148.32	146.99	1.20	2.72	1.66×10 ⁻³	4.63×10 ⁻³
BI	36.41	30.35	6.05	5.07	13.92	26.18	147.93	146.65	1.16	2.62	1.65×10 ⁻³	4.62×10 ⁻³
BJ	36.42	30.14	6.28	5.26	14.44	27.16	147.97	146.56	1.24	2.72	1.64×10 ⁻³	4.71×10 ⁻³
BK	35.28	31.61	3.67	3.07	8.71	16.38	143.34	142.60	0.73	1.59	1.66×10 ⁻³	3.90×10 ⁻³
BL	36.92	36.44	0.48	0.40	1.09	2.05	150.04	149.97	0.09	0.21	1.44×10 ⁻³	9.31×10 ⁻⁴
BM	35.74	30.03	5.71	4.78	13.38	25.16	145.22	144.11	1.00	2.47	1.63×10 ⁻³	4.46×10 ⁻³
BN	35.44	30.15	5.29	4.43	12.50	23.50	143.98	142.92	0.99	2.29	1.62×10 ⁻³	4.36×10 ⁻³
BO	35.84	31.01	4.83	4.04	11.28	21.21	145.64	144.52	1.02	2.09	1.66×10 ⁻³	4.33×10 ⁻³
BP	35.86	30.33	5.52	4.62	12.90	24.26	145.69	144.53	1.08	2.39	1.64×10 ⁻³	4.45×10 ⁻³
BQ	35.97	30.46	5.51	4.61	12.82	24.12	146.14	145.10	0.97	2.38	1.65×10 ⁻³	4.43×10 ⁻³
BR	36.40	31.04	5.35	4.48	12.31	23.16	147.89	146.76	1.04	2.31	1.68×10 ⁻³	4.50×10 ⁻³
BS	35.92	30.36	5.55	4.65	12.94	24.35	145.94	144.88	1.01	2.40	1.64×10 ⁻³	4.45×10 ⁻³
BT	35.43	30.07	5.37	4.49	12.68	23.84	143.97	142.97	0.94	2.32	1.63×10 ⁻³	4.37×10 ⁻³
BU	35.51	30.20	5.31	4.45	12.52	23.55	144.28	143.21	0.99	2.30	1.63×10 ⁻³	4.36×10 ⁻³
BV	36.11	30.14	5.97	5.00	13.85	26.05	146.74	145.69	0.95	2.58	1.64×10 ⁻³	4.46×10 ⁻³

FE	²³⁵ U _{in} (g)	²³⁵ U _{fin} (g)	²³⁵ U _{cons} (g)	²³⁵ U _{fis} (g)	Burn-up (%)	Burn-up (MWDkg)	²³⁸ U _{in} (g)	²³⁸ U _{fin} (g)	²³⁹ Pu (g)	⁴⁵ Sc (g)	¹⁴⁹ Sm (g)	¹⁵¹ Sm (g)
BW	36.33	30.15	6.18	5.18	14.25	26.80	147.64	146.34	1.23	2.67	1.65×10 ⁻³	4.64×10 ⁻³
BX	35.83	30.43	5.40	4.52	12.62	23.74	145.58	144.45	1.02	2.34	1.64×10 ⁻³	4.42×10 ⁻³
BY	35.81	30.46	5.35	4.48	12.51	23.52	145.50	144.46	0.99	2.31	1.64×10 ⁻³	4.40×10 ⁻³
BZ	36.49	31.23	5.26	4.40	12.06	22.68	148.25	147.07	1.09	2.27	1.68×10 ⁻³	4.52×10 ⁻³
CA	36.47	29.74	6.73	5.63	15.44	29.05	148.18	146.87	1.18	2.91	1.65×10 ⁻³	4.67×10 ⁻³
CB	36.58	30.72	5.86	4.90	13.40	25.21	148.61	147.23	1.23	2.53	1.66×10 ⁻³	4.67×10 ⁻³
CC	36.22	30.94	5.28	4.42	12.21	22.97	147.17	146.07	1.01	2.28	1.67×10 ⁻³	4.45×10 ⁻³
CD	36.41	30.88	5.53	4.63	12.72	23.92	147.93	146.61	1.20	2.39	1.66×10 ⁻³	4.59×10 ⁻³
CE	36.60	31.60	5.01	4.19	11.45	21.53	148.72	147.64	0.99	2.16	1.69×10 ⁻³	4.42×10 ⁻³
CF	36.03	31.10	4.93	4.12	11.44	21.53	146.38	145.45	0.87	2.13	1.66×10 ⁻³	4.33×10 ⁻³
CG	36.52	32.59	3.93	3.29	9.02	16.96	148.40	147.63	0.73	1.70	1.72×10 ⁻³	4.08×10 ⁻³
CH	34.95	34.07	0.88	0.74	2.10	3.96	142.01	141.81	0.17	0.38	1.64×10 ⁻³	1.54×10 ⁻³
CI	35.94	30.74	5.20	4.35	12.11	22.77	146.01	145.00	0.99	2.25	1.66×10 ⁻³	4.40×10 ⁻³
CJ	36.56	31.17	5.39	4.51	12.34	23.21	148.54	147.33	1.07	2.33	1.68×10 ⁻³	4.55×10 ⁻³
SA	38.00	31.92	6.08	5.09	13.39	25.25	154.00	152.71	1.20	2.63	1.66×10 ⁻³	4.79×10 ⁻³
SB	38.00	32.30	5.70	4.77	12.56	23.67	154.00	152.81	1.13	2.46	1.67×10 ⁻³	4.71×10 ⁻³
SC	38.00	30.73	7.27	6.09	16.02	30.19	154.00	152.56	1.32	3.14	1.64×10 ⁻³	4.92×10 ⁻³
SD	38.00	29.95	8.05	6.74	17.74	33.43	154.00	152.25	1.49	3.48	1.61×10 ⁻³	4.99×10 ⁻³
SE	38.00	29.89	8.11	6.79	17.86	33.66	154.00	152.18	1.66	3.50	1.61×10 ⁻³	5.01×10 ⁻³
SF	38.00	30.22	7.78	6.51	17.13	32.29	154.00	152.25	1.58	3.36	1.63×10 ⁻³	4.99×10 ⁻³
SG	38.00	30.63	7.37	6.17	16.24	30.61	154.00	152.38	1.47	3.19	1.62×10 ⁻³	5.01×10 ⁻³
SH	38.00	31.54	6.46	5.41	14.23	26.82	154.00	152.71	1.20	2.79	1.65×10 ⁻³	4.85×10 ⁻³
SI	38.00	31.89	6.11	5.11	13.45	25.35	154.00	152.68	1.21	2.64	1.67×10 ⁻³	4.78×10 ⁻³
SJ	38.00	30.02	7.98	6.68	17.58	33.14	154.00	152.28	1.56	3.45	1.62×10 ⁻³	4.97×10 ⁻³

FE	$^{235}U_{in}$ (g)	$^{235}U_{fin}$ (g)	$^{235}U_{cons}$ (g)	$^{235}U_{fis}$ (g)	Burn-up (%)	Burn-up (MWDkg)	$^{238}U_{in}$ (g)	$^{238}U_{fin}$ (g)	^{239}Pu (g)	^{45}Sc (g)	^{149}Sm (g)	^{151}Sm (g)
SK	39.00	34.49	4.51	3.77	9.68	18.62	154.00	153.01	0.89	1.95	1.75×10^{-3}	4.48×10^{-3}
SL	37.90	33.71	4.20	3.51	9.27	17.62	152.47	152.78	0.79	1.82	1.71×10^{-3}	4.32×10^{-3}
SM	37.84	32.95	4.89	4.09	10.82	20.52	152.20	150.99	0.98	2.11	1.68×10^{-3}	4.57×10^{-3}
SN	37.79	32.57	5.21	4.36	11.55	21.87	152.00	150.67	1.08	2.25	1.67×10^{-3}	4.65×10^{-3}
SO	37.84	34.03	3.81	3.19	8.42	15.97	152.20	151.35	0.64	1.65	1.72×10^{-3}	4.09×10^{-3}
SP	37.85	32.68	5.18	4.33	11.45	21.72	152.27	150.99	1.05	2.24	1.67×10^{-3}	4.65×10^{-3}
SQ	37.85	34.19	3.66	3.07	8.10	15.37	152.27	151.34	0.72	1.58	1.72×10^{-3}	4.06×10^{-3}
SR	37.77	32.48	5.29	4.43	11.72	22.19	151.93	150.65	1.03	2.29	1.69×10^{-3}	4.65×10^{-3}
SS	37.75	34.60	3.15	2.64	6.98	13.21	151.87	151.17	0.58	1.36	1.73×10^{-3}	3.79×10^{-3}
ST	37.82	33.81	4.01	3.36	8.87	16.82	152.14	151.18	0.74	1.73	1.71×10^{-3}	4.23×10^{-3}
SU	37.75	33.10	4.65	3.90	10.32	19.53	151.87	150.84	0.81	2.01	1.71×10^{-3}	4.25×10^{-3}
SV	38.66	35.04	3.62	3.03	7.84	14.87	155.52	154.84	0.66	1.57	1.75×10^{-3}	4.09×10^{-3}
SW	38.52	34.97	3.55	2.97	7.71	14.60	155.28	154.61	0.70	1.53	1.75×10^{-3}	4.04×10^{-3}
SX	38.55	36.17	2.38	1.99	5.17	9.78	155.45	154.96	0.45	1.03	1.78×10^{-3}	3.26×10^{-3}
SY	38.61	36.41	2.20	1.85	4.78	9.04	155.71	155.33	0.38	0.95	1.79×10^{-3}	3.11×10^{-3}
SZ	37.66	36.27	1.39	1.17	3.10	5.83	152.95	152.74	0.26	0.60	1.74×10^{-3}	2.25×10^{-3}
TA	37.84	35.43	2.41	2.01	5.32	9.99	154.13	153.61	0.45	1.04	1.75×10^{-3}	3.26×10^{-3}
TB	37.92	36.07	1.85	1.55	4.08	7.66	154.44	154.09	0.33	0.80	1.75×10^{-3}	2.76×10^{-3}
TC	38.31	37.45	0.86	0.72	1.88	3.54	155.68	155.42	0.16	0.37	1.68×10^{-3}	1.51×10^{-3}
TD	38.04	37.13	0.91	0.76	1.99	3.75	154.57	153.19	0.18	0.39	1.70×10^{-3}	1.60×10^{-3}
TE	37.55	36.64	0.91	0.76	2.03	3.83	152.55	152.40	0.17	0.39	1.69×10^{-3}	1.63×10^{-3}
TF	37.97	37.26	0.71	0.59	1.56	2.94	154.26	154.11	0.13	0.31	1.62×10^{-3}	1.30×10^{-3}
TG	38.72	37.86	0.86	0.72	1.86	3.50	157.34	157.11	0.17	0.37	1.69×10^{-3}	1.52×10^{-3}
TH	38.81	38.02	0.79	0.66	1.69	3.19	157.67	157.52	0.14	0.34	1.68×10^{-3}	1.41×10^{-3}
TI	37.08	36.57	0.51	0.42	1.14	2.15	150.68	150.52	0.10	0.22	1.42×10^{-3}	9.43×10^{-4}

5. RISULTATI

5.1 Validazione del codice MCB

Per verificarne il corretto funzionamento, il codice MCB è stato validato attraverso un confronto con misure sperimentali e risultati provenienti da formule teoriche di attività di alcuni nuclidi formati dall'irraggiamento neutronico di targhette sottili di Uranio e Torio naturale nel reattore TRIGA Mark II del LENA e nel complesso moltiplicante sottocritico SM1 dell'Università di Pavia.

Le simulazioni degli irraggiamenti in reattore hanno le seguenti caratteristiche:

- la geometria è costituita da un cilindro di Uranio D e Torio G con diametro 0.635 cm, spessore e massa rispettivamente di 0.0161 cm, 0.0095 cm, 0.3889 g e 0.1412 g;
- l'irraggiamento è del tipo *inward cosine*, dove i neutroni sono generati sulla superficie esterna di una sfera di raggio 2 cm, diretti verso il centro e con energia pari a 0.0253 eV;
- l'irraggiamento è di 6 ore ad un flusso di 2.16×10^{10} n/cm²s (flusso in Canale Centrale del reattore a 250 W, Figura 7).

Gli irraggiamenti nel complesso sottocritico presentano le seguenti caratteristiche:

- la geometria è costituita da un cilindro di Uranio J e Torio B con diametro 0.635 cm, spessore e massa rispettivamente di 0.0162 cm, 0.0087 cm, 0.3921 g e 0.1298 g;
- l'irraggiamento è del tipo *inward cosine*, dove i neutroni sono generati sulla superficie esterna di una sfera di raggio 2 cm, diretti verso il centro e con energia pari a 0.0253 eV;
- l'irraggiamento è pari a 341 ore con un flusso all'interno della targhetta di Uranio di 5.9×10^4 n/cm²s (flusso in Canale A, Figura 8a) mentre la targhetta di Torio è stata irraggiata ad un flusso di 2.59×10^4 n/cm²s (flusso in Canale B, Figura 8b).

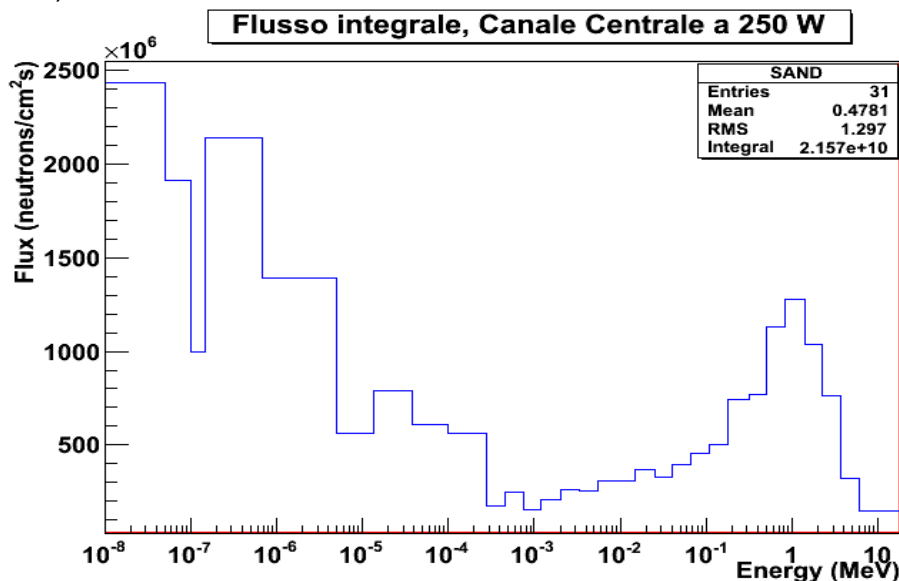


Figura 7: Spettro energetico del flusso nel Canale Centrale del TRIGA(250 W)[8].

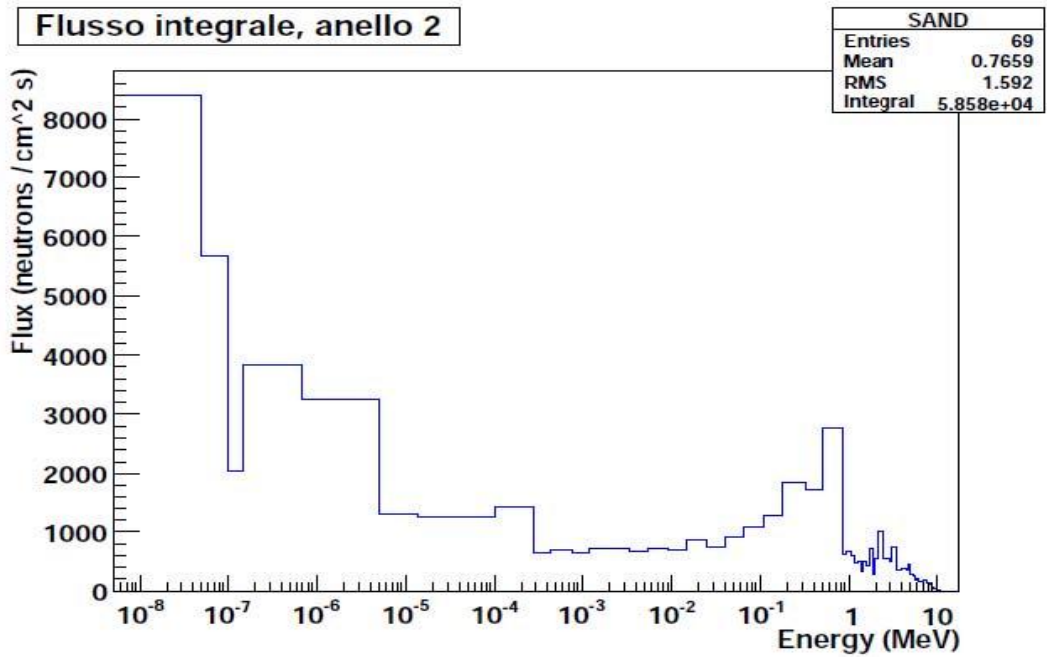


Figura 8a: Spettro energetico del flusso nel canale A del complesso SM1 [9].

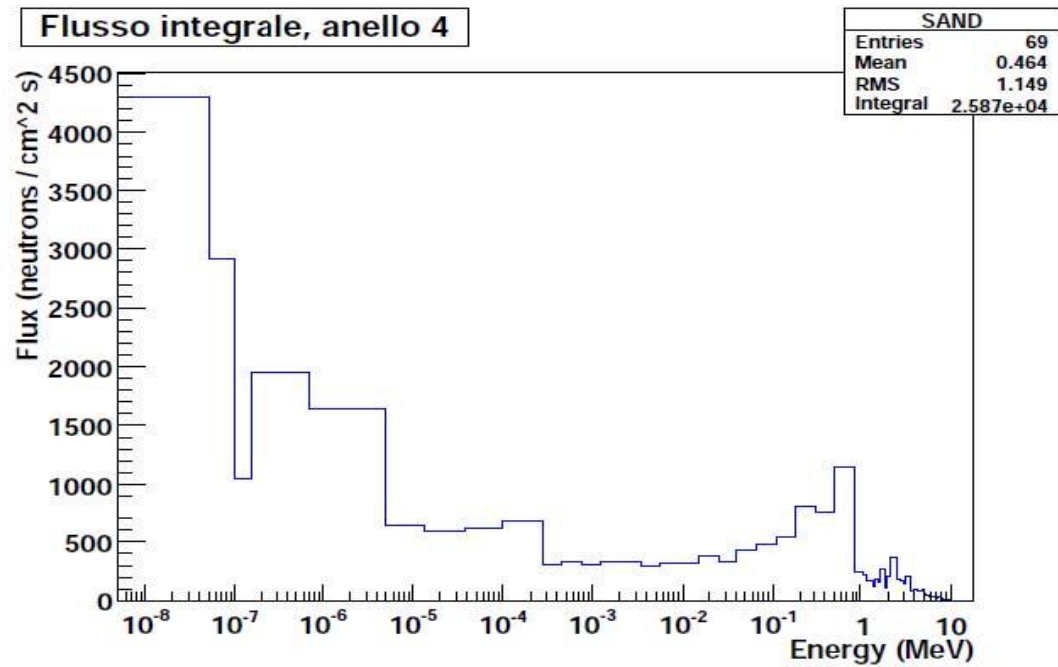


Figura 8b: Spettro energetico del flusso nel canale B del complesso SM1 [9].

Confronto con misure sperimentali

Le targhette irraggiate sono state analizzate, dopo adeguato tempo di raffreddamento, sempre a mezzo di spettrometria gamma ad alta risoluzione, nella stessa geometria di conteggio impiegata nell'analisi delle stesse targhette prima dell'irraggiamento [10]. L'attività specifica della targhetta D di Uranio naturale ha reso necessario di distanziare la targhetta di 23.5 cm per ridurre il tempo morto del rivelatore (DT = 7 %).

Nelle tabelle 4a, 4b, 4c e 4d sono presentati i risultati delle misure confrontati con quelli dati dalla simulazione con MCB, per i quali è assunta un'incertezza pari al 10 % del valore di attività calcolato. Questo valore di incertezza è dato dall'errore sulla misura del flusso nel Canale Centrale del reattore TRIGA e nei canali A e B del complesso moltiplicante SM1.

Radionuclide	$A_{mis}(Bq)$	$A_{MCB}(Bq)$	Note
^{238}U	4814±101	4799±480	Attività teorica = 4804.2 Bq
^{235}U	244±5	224±22	Attività teorica = 224.1 Bq
^{239}Np	$(3.36±0.07) \times 10^6$	$(3.95 ± 0.40) \times 10^6$	Misura diretta attivazione neutronica
^{140}Ba	21300±455	19049±1905	Diretto da fissione
^{132}Te	57115±2855	56924±5692	Diretto da fissione (misurato con ^{132}I)
^{131m}Te	17525±860	18976±1898	Diretto da fissione
^{131}I	14575±725	13058±1306	Diretto da fissione (scorporato ^{131m}Te)
^{99}Mo	94100±4700	80883±8088	Diretto da fissione
^{99m}Tc	18700±950	22219±2222	Equilibrio con ^{99}Mo

Tabella 4a: Risultati per la targhetta D di Uranio.

Radionuclide	$A_{mis}(Bq)$	$A_{MCB}(Bq)$	Note
^{232}Th	527±14	575±58	Attività teorica = 572.8 Bq
^{233}Pa	177800±3600	169625±16963	Misura diretta attivazione neutronica
^{140}Ba	127±7	136±14	Diretto da fissione
^{140}La	87±5	79±8	Equilibrio al 70 % con ^{140}Ba

Tabella 4b: Risultati per la targhetta G di Torio.

Radionuclide	$A_{mis}(Bq)$	$A_{MCB}(Bq)$	Note
^{238}U	4668±92	4835±484	Attività teorica = 4843.8 Bq
^{235}U	216±6	225±23	Attività teorica = 225.9 Bq
^{239}Np	156±12	122±12	Misura diretta attivazione neutronica
^{132}Te	3.78±0.48	3.5±0.4	Diretto da fissione (misurato con ^{132}I)
^{131}I	2.6±0.3	2.1±0.2	Diretto da fissione (scorporato ^{131m}Te)
^{99}Mo	5.4±0.8	4.3±0.4	Diretto da fissione
^{99m}Tc	4.4±1.4	3.8±0.4	Equilibrio con ^{99}Mo
^{95}Zr	0.84±0.14	0.58±0.06	Diretto da fissione

Tabella 4c: Risultati per la targhetta J di Uranio.

Radionuclide	$A_{mis}(Bq)$	$A_{MCB}(Bq)$	Note
^{232}Th	481±11	528±53	Attività teorica = 526.5 Bq (perdita Toron)
^{233}Pa	12.2±0.4	12.4±1.2	Misura diretta attivazione neutronica

Tabella 4d: Risultati per la targhetta B di Torio.

Confronto con formule teoriche

Per un'ulteriore validazione del codice, le masse di altri prodotti di fissione provenienti dalle simulazioni con MCB dell'irraggiamento della targhetta D di Uranio in reattore sono state confrontate con valori calcolati da formule analitiche soluzioni delle equazioni di Bateman (paragrafo 3.3).

Dalla tabella 5b si può notare un ottimo accordo fra gli attinidi calcolati mediante codice MCB e quelli calcolati a partire dalle equazioni di Bateman. Per quanto riguarda invece i prodotti di fissione (Tabella 5a) l'accordo è buono per la maggior parte dei nuclidi, ad eccezione di alcuni, come ad esempio il ^{137}Cs , per cui la discrepanza è abbastanza elevata. Questa differenza è attribuibile al tipo di librerie utilizzate in MCB delle sezioni d'urto, delle costanti di decadimento e soprattutto degli *yield*, per i quali c'è una elevata incertezza per alcuni nuclidi. Tuttavia questo fatto non influisce sui risultati di questo lavoro poiché l'obiettivo principale è determinare il consumo di ^{235}U e la produzione di ^{239}Pu nel combustibile irraggiato.

Radionuclide	$\frac{\text{Massa MCB}}{\text{Massa calc}}$	Scostamento
^{81}Br	1.0026	+ 0.26 %
^{90}Sr	1.0398	+ 3.98 %
^{99}Mo	0.9569	- 4.31 %
^{99}Tc	0.9419	- 5.81 %
^{132}Te	1.1246	+ 12.46 %
^{136}Xe	0.8725	- 12.75 %
^{137}Sb	1.2127	+ 21.27 %
^{137}Cs	0.7997	- 20.03 %
^{140}Ba	1.0056	+ 0.56 %
^{144}Ce	1.2552	+ 25.52 %

Tabella 5a: Risultati per alcuni prodotti di fissione.

Radionuclide	$\frac{\text{Massa MCB}}{\text{Massa calc}}$	Scostamento
^{228}Ra	1.0052	+ 0.52 %
^{232}Th	1	0 %
^{233}Th	1.0224	+ 2.24 %
^{233}Pa	0.9990	- 0.10 %
^{233}U	0.9670	- 3.30 %
^{235}U	1.0001	+ 1.5×10^{-5} %
^{238}U	1.0000	+ 4×10^{-8} %
^{239}U	1.0026	+ 0.26 %
^{239}Np	1.0020	+ 0.20 %
^{239}Pu	0.9967	- 0.32 %

Tabella 5b: Risultati per alcuni attinidi.

5.2 Risultati del calcolo del burn-up

Dal calcolo del *burn-up* di ogni elemento di combustibile risulta che, dal 16/11/1965 al 31/12/2011, sono stati consumati complessivamente circa 444.7 g di ^{235}U , dei quali ne sono stati fissionati 372.3 g per un totale di energia prodotta pari a 354.5 MWd. Il *burn-up* medio degli elementi risulta essere pari al 10.32 % (corrispondente a 19.69 MWd/kg) con un massimo pari al 17.86 % (corrispondente a 33.66 MWd/kg).


La General Atomics, ditta produttrice del combustibile, raccomanda di non superare un *burn-up* pari al 50 % e a 100 MWd/kg. Pertanto sulla base dei risultati delle simulazioni, tutti gli elementi di combustibile, sia quelli scaricati sia quelli ancora presenti nel nocciolo del reattore del LENA, soddisfano ampiamente tali requisiti. Dai calcoli risulta inoltre che, nello stesso periodo, sono stati consumati complessivamente circa 94.5 g di ^{238}U che hanno prodotto circa 86 g di ^{239}Pu al 31/12/2011. Nell'ipotesi che tutto l' ^{238}U trasmutato abbia prodotto ^{239}Pu , si può dedurre che sono stati fissionati complessivamente 6.2 g di ^{239}Pu che hanno pertanto contribuito con una percentuale di circa 1.7 % al totale dell'energia prodotta.

Al fine di validare la metodologia di calcolo nel suo insieme si sono simulate, sempre mediante il codice MCB, tre configurazioni del nocciolo (dove la composizione di ogni elemento è data dal *burn-up*) per le quali è stato calcolato l'eccesso di reattività. I valori di reattività calcolati sono stati confrontati con misure di tale grandezza realizzate presso l'impianto, mostrando un ottimo accordo (Tabella 6). In particolare, dalla simulazione dell'eccesso di reattività nella configurazione di prima carica del reattore (1965) si è stimata una discrepanza con la misura pari a 0.24 \$ (su 3.02 \$), dovuta principalmente ad approssimazioni nella geometria del reattore e al fatto che i materiali reali presentano delle impurezze difficilmente quantificabili. Pertanto, questo offset (k) di reattività è stato sottratto ai risultati di tutte le altre simulazioni, al fine di ottenere un valore di reattività ρ direttamente confrontabile con quello misurato.

Configurazione	$\rho_{sim}(\$)$	$\rho_{mis}(\$)$	$\rho_{sim} - k (\$)$
16/11/1965	3.26 ± 0.04	3.02 ± 0.04	3.02 ± 0.04
20/01/2009	2.70 ± 0.04	2.45 ± 0.04	2.46 ± 0.04
20/01/2012	2.47 ± 0.04	2.26 ± 0.04	2.23 ± 0.04

Tabella 6: Risultati dell'eccesso di reattività in tre diverse configurazioni.

Per valutare il contributo dei veleni non saturabili, dato dall'accumulo nel tempo dei prodotti di fissione, si è deciso di adottare una scelta presente in letteratura [7], cioè quella di introdurre un isotopo virtuale (*lumped fission product*) con una sezione d'urto di assorbimento pari a circa 50 barn per ogni fissione avvenuta nel nocciolo. Questo isotopo virtuale è stato individuato nello ^{45}Sc che ha una sezione d'urto termica ($E = 0.0253$ eV) di assorbimento pari a circa 27 barn: inizialmente ne sono stati introdotti 2 atomi per fissione (in quanto ogni fissione produce mediamente due frammenti) che portano un contributo pari a circa 54 barn per fissione. In realtà il contributo dei veleni non saturabili dipende da molti

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-UNI_PV-LP1-001	0		39	45

fattori come l'arricchimento del combustibile, il *burn-up* stesso e la distribuzione energetica del flusso neutronico. Al fine di tenere conto di tutti questi contributi si è quindi deciso di valutare il peso dei veleni non saturabili variando il quantitativo di ^{45}Sc in modo che l'eccesso di reattività misurato e simulato, per una delle configurazioni del reattore più recenti, fossero compatibili tra loro. La quantità di scandio così stimata è risultata pari a 2.4 atomi per fissione che equivale ad un contributo di circa 65 barn di sezione d'urto termica di assorbimento. Per valutare il contributo reale dei veleni non saturabili all'interno del reattore TRIGA Mark II del LENA è stata calcolata con MCB la sezione d'urto efficace dello ^{45}Sc pesata sullo spettro neutronico medio e si è ottenuto un valore pari a 4.8 barn. Il contributo totale dei veleni non saturabili è quindi stimato in 11.5 barn di sezione d'urto efficace per ogni fissione di ^{235}U : si tratta di un valore coerente con quanto riportato in letteratura [11] e che ci consente di utilizzare la relazione 1 fissione = 2.4 atomi di ^{45}Sc per simulare l'avvelenamento del combustibile del reattore TRIGA del LENA.

6. OTTIMIZZAZIONE DELLA CONFIGURAZIONE DEL NOCCIOLO

Ottenuta la composizione esatta di ogni elemento di combustibile che tiene conto sia del *burn-up* che dell'avvelenamento, si è studiata una nuova configurazione del nocciolo con l'obiettivo di ottenere un maggior eccesso di reattività rispettando tuttavia le prescrizioni per la sicurezza del reattore.

Partendo dalla configurazione attuale del nocciolo (Figura 9) si sono spostati alcuni elementi e altri sono stati sostituiti con elementi che erano fuori dal nocciolo (*rack*) in modo da ottimizzare il consumo del combustibile. Nella Tabella 7 sono mostrati i valori in \$ dell'eccesso di reattività, del margine di spegnimento e di ciascuna barra di controllo nella configurazione attuale.

Grandezza	$\rho(\$)$
Core Excess	2.26 ± 0.04
Shut Down	$- 3.87 \pm 0.04$
SHIM	3.09 ± 0.04
TRANS	1.95 ± 0.04
REG	1.09 ± 0.04

Tabella 7: Dati della configurazione attuale del nocciolo

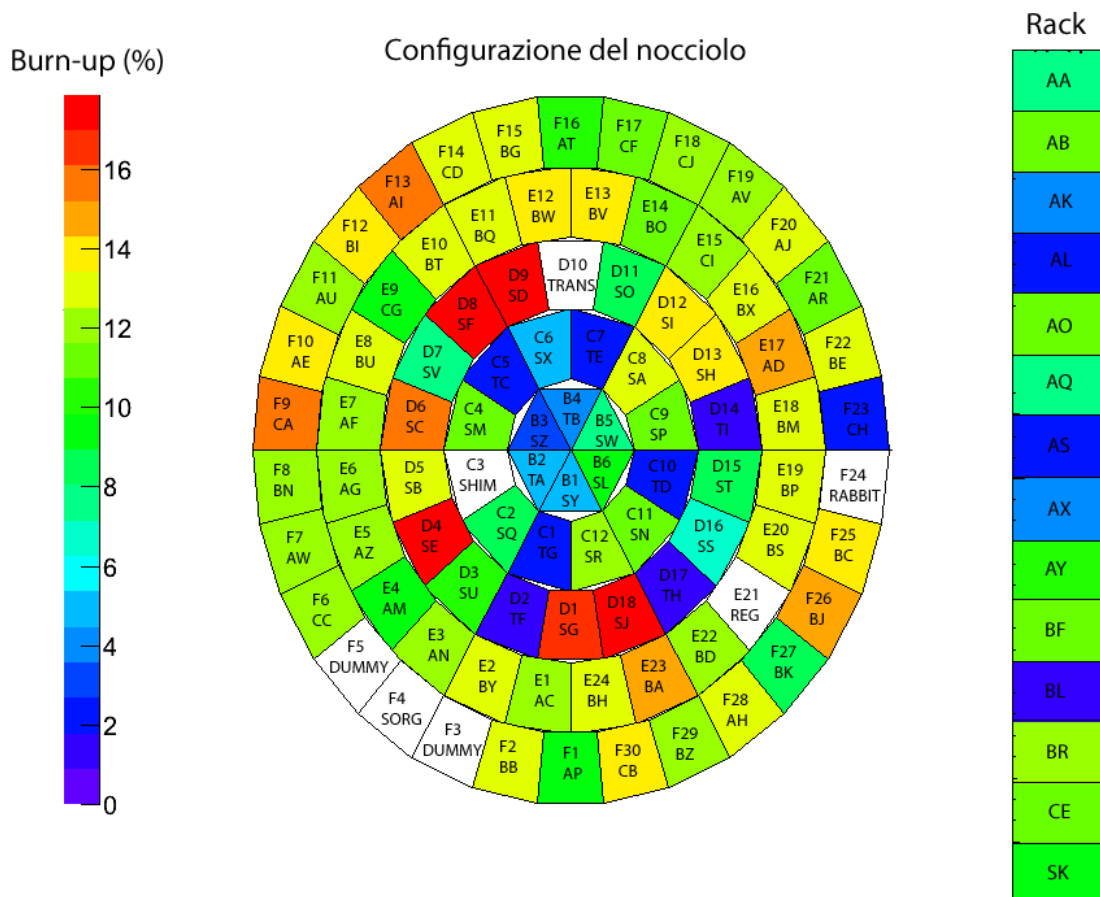



Figura 9: Burn-up degli elementi di combustibile al 31/12/2011

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-UNI_PV-LP1-001	0		41	45

Per ragioni di sicurezza e tecniche devono essere rispettate le seguenti restrizioni sugli spostamenti degli elementi:

- gli elementi strumentati con dispositivi per la misura della temperatura (termocoppie) devono rimanere nella stessa posizione;
- il massimo allungamento che può avere un elemento di combustibile è pari a 5.08 mm se posizionato negli anelli B,C e a 6.35 mm negli anelli D,E,F.

Inoltre esistono delle prescrizioni operative che riguardano i valori dell'eccesso di reattività (CE), del margine di spegnimento (SD) e delle barre di controllo:

1. l'eccesso di reattività deve essere inferiore alla metà della reattività controllata da tutte le barre di controllo e, in ogni caso, inferiore a 4.10 \$;
2. con la barra SHIM completamente estratta il margine di spegnimento deve essere superiore a 0.50 \$.

Prendendo in considerazione queste restrizioni, sono state effettuate delle simulazioni con il codice MCNP variando la configurazione del nocciolo. Inoltre per ogni simulazione è stato calcolato:

- l'eccesso di reattività, ottenuto estraendo completamente tutte le barre di controllo;
- il valore di ciascuna barra di controllo, calcolato inserendo completamente una barra per volta nel nocciolo e facendo la differenza con il valore del CE;
- il margine di spegnimento, ricavato da una configurazione con tutte le barre di controllo completamente inserite nel nocciolo.

L'obiettivo è quello di trovare una nuova configurazione del nocciolo con un eccesso di reattività maggiore di quello attuale (2.26 \$), rispettando le prescrizioni descritte in precedenza. In particolare, la prescrizione numero 2 è molto restrittiva in quanto impone la seguente relazione per il CE:

$$\text{TRANS} + \text{REG} - \text{CE} > 0.50 \$$$

Quindi per poter aumentare l'eccesso di reattività bisogna aumentare il valore delle barre TRANSIENT e REGULATING rispetto alla configurazione attuale. Questo risultato si può ottenere spostando del combustibile fresco vicino a queste due barre di controllo e togliere degli elementi di combustibile nell'anello F in modo da avere una configurazione più compatta.

Nella Figura 10 è mostrata la nuova configurazione del nocciolo ottenuta e nella Tabella 8 sono riportati i valori di reattività relativi alla nuova configurazione.

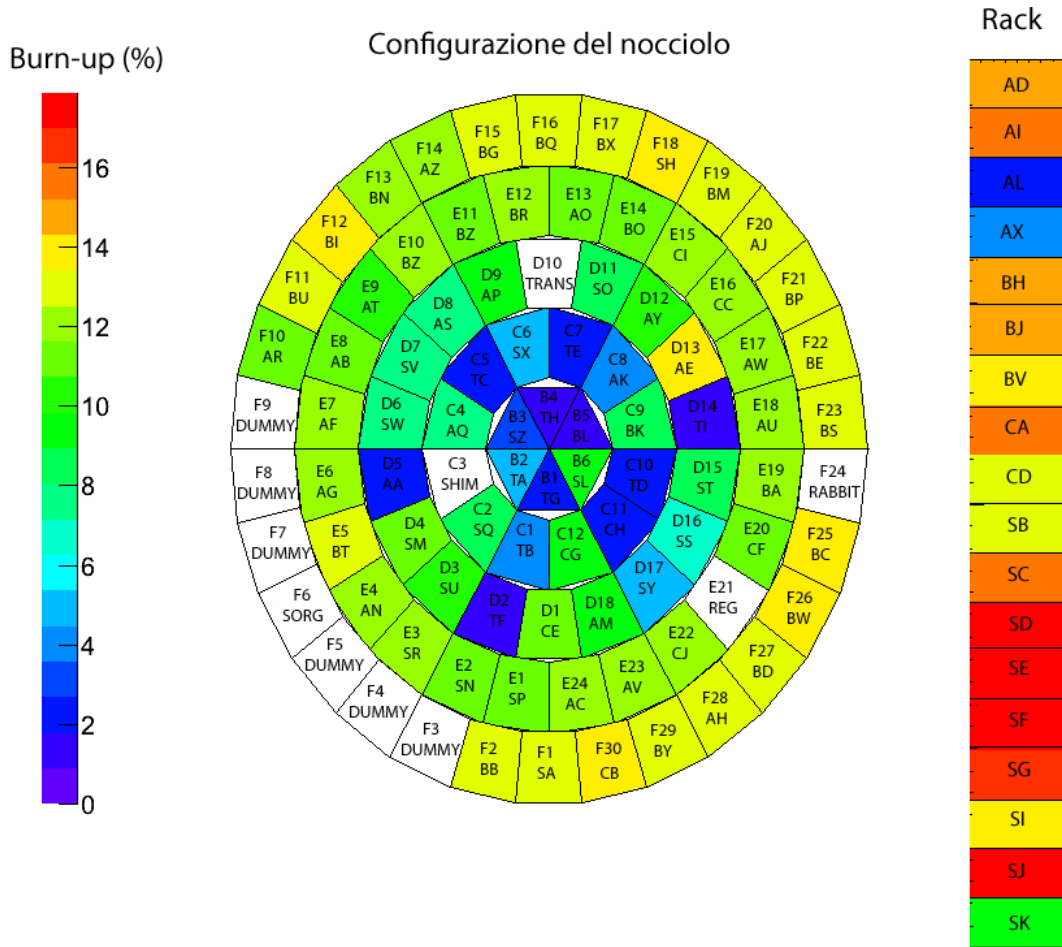



Figura 10: Nuova configurazione del nocciolo

Grandezza	$\rho(\$)$
Core Excess	3.03 ± 0.04
Shut Down	$- 4.51 \pm 0.04$
SHIM	3.05 ± 0.04
TRANS	2.39 ± 0.04
REG	1.23 ± 0.04

Tabella 8: Dati relativi alla nuova configurazione

Come si può osservare dalla figura, la nuova configurazione prevede la presenza di 79 elementi di combustibile invece degli 83 che sono presenti attualmente nel nocciolo. Dalla tabella si può verificare che in questa configurazione entrambe le prescrizioni sono rispettate, infatti:

1. $CE < (SHIM + REG + TRANS)/2 = 3.335 \$$;
2. $TRANS + REG - CE = 0.59 \$ > 0.50 \$$.


 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-UNI_PV-LP1-001	0		43	45

Per un controllo sulla bontà dei valori di reattività dati dalle simulazioni si può verificare la seguente uguaglianza:

$$\text{SHIM} + \text{TRANS} + \text{REG} = \text{CE} + \text{SD}$$

che da al primo membro un valore di 6.67 \$ e al secondo membro una reattività di 6.68 \$.

Concludendo, la nuova configurazione studiata aumenta di 0.77 \$ l'eccesso di reattività rispetto alla configurazione attuale rispettando comunque le prescrizioni operative previste. Questo permette di allungare la vita del reattore in quanto si è ottenuta una reattività maggiore nel nocciolo, la quale andrà lentamente a diminuire nel tempo a causa del consumo del combustibile. Questo risultato è stato ottenuto semplicemente ottimizzando l'utilizzo del combustibile a disposizione, senza dover necessariamente acquistare combustibile fresco.


 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-UNI_PV-LP1-001	0		44	45

7. CONCLUSIONI

Risultato dell'attività di ricerca è stato lo sviluppo di una metodologia per la valutazione del *burn-up* del combustibile del reattore di ricerca TRIGA Mark II del Laboratorio Energia Nucleare Applicata (LENA) dell'Università degli Studi di Pavia utilizzando il codice Monte Carlo MCNP (Versione 4C) e il codice MCB. Il calcolo del *burn-up* è stato effettuato per tutti gli elementi di combustibile ed è stato confrontato in modo indiretto attraverso misure dell'eccesso di reattività in varie configurazioni, confermando la bontà del risultato. Dai risultati si può inoltre osservare che il plutonio prodotto ha contribuito al totale dell'energia generata durante l'esercizio del reattore nella misura dell'1.7 %.

Per verificare ulteriormente la correttezza dei risultati, il codice MCB è stato validato confrontando i risultati delle simulazioni con le misure sperimentali dell'attività di alcuni radionuclidi prodotti dall'irraggiamento neutronico di targhette sottili di Uranio e Torio naturale sia nel reattore TRIGA Mark II del LENA che nel complesso moltiplicante sottocritico SM1 dell'Università di Pavia. Quando possibile, i risultati di alcune simulazioni sono stati anche confrontati con i valori di attività ricavati dalla risoluzione analitica delle equazioni di Bateman.

Infine, utilizzando i risultati del calcolo del *burn-up* di ogni elemento di combustibile, è stata studiata una nuova configurazione del nocciolo con l'obiettivo di aumentare l'eccesso di reattività (margine di controllo) del nocciolo rispettando le Prescrizioni di Esercizio del reattore. Questo permette di allungare il periodo di esercizio dell'impianto ottimizzando l'utilizzo del combustibile a disposizione, rispettando comunque i parametri di sicurezza. La nuova configurazione trovata ha un eccesso di reattività di 3.03 ± 0.04 \$, valore maggiore di 0.77 \$ rispetto alla configurazione attuale, e sarà implementata nei prossimi mesi.

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-UNI_PV-LP1-001	0		45	45

8. BIBLIOGRAFIA

1. RSICC COMPUTER CODE COLLECTION – MCNP4C Monte Carlo N-Particle Transport Code System, Los Alamos National Laboratory and Oak Ridge National Laboratory.
2. J. Cetnar, W. Gudowski, J. Wallenius, User Manual for Monte-Carlo Continuous Energy Burn-up (MCB) Code - Version 1C, 1997.
3. General Atomics, Rapporto finale di sicurezza del reattore nucleare TRIGA Mark II del LENA , Pavia (1965).
4. W. M. Stacey, Nuclear Reactor Physics, 2001.
5. National Nuclear Data Center, Evaluated Nuclear Data Files, 2010.
6. K. Koyama, N. Yamano, S. Miyasaka, Origen JR: A computer code for calculating radiation sources and analyzing nuclide transmutations, 1979.
7. OE-HDBK-1019/2-93, Nuclear Physics and Reactor Theory, Volume 2 of 2, p. 46, January 1993.
8. Tesi di laurea di Marco Dabbene, Interpretazione di misure di attivazione per la valutazione del flusso neutronico nel reattore sperimentale TRIGA, A.A. 2008/2009.
9. Tesi di laurea di Andrea Cazzola, Caratterizzazione del flusso neutronico nel complesso moltiplicante sottocritico SM1 dell'Università di Pavia, A.A. 2009/2010.
10. A. Borio, D. Alloni, J. Bruni, M. Cagnazzo, M. Coniglio, G. Magrotti, S. Manera, F. Panza, M. Prata, A. Salvini, Validazione di una metodologia di analisi per la valutazione dell'efficienza di trasmutazione dei prodotti di fissione a lunga emivita e degli attinidi minori in campi neutronici misti (termici e veloci) - Report ENEA 2010.
11. N. A. Hanan et al., The use of WIMS-ANL lumped fission product cross sections for burned core analysis with the MCNP Monte Carlo code, 1998.