



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



*Ministero dello Sviluppo Economico*

## RICERCA DI SISTEMA ELETTRICO

Progetto concettuale e studio di fattibilità di una apparecchiatura  
sperimentale per la caratterizzazione del rilascio e migrazione dei prodotti  
di fissione in un sistema LFR. Specifica di prova

*Giorgio De Angelis, Mario De Salve*



Report RdS/2012/068

PROGETTO CONCETTUALE E STUDIO DI FATTIBILITÀ DI UNA APPARECCHIATURA SPERIMENTALE PER LA CARATTERIZZAZIONE DEL RILASCIO E MIGRAZIONE DEI PRODOTTI DI FISSIONE IN UN SISTEMA LFR. SPECIFICA DI PROVA

Giorgio De Angelis (ENEA), Mario De Salve (CIRTEN – Politecnico di Torino)

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: Mariano Tarantino, ENEA

**Titolo****Progetto concettuale e studio di fattibilità di una apparecchiatura sperimentale per la caratterizzazione del rilascio e migrazione dei prodotti di fissione in un sistema LFR. Specifica di prova****Descrittori**

**Tipologia del documento:** Rapporto Tecnico  
**Collocazione contrattuale:** Accordo di programma ENEA-MSE: tema di ricerca "Nuovo nucleare da fissione"  
**Argomenti trattati:**  
 Generation IV Reactor  
 Prodotti di Fissione

**Sommario**

L'attività svolta riguarda le problematiche connesse ai prodotti di fissione che si generano nel corso dell'irraggiamento di un combustibile nucleare, con riferimento ai fenomeni di rilascio e migrazione. Si presenta un progetto concettuale ed uno studio di fattibilità di una apparecchiatura sperimentale per lo studio dei rilasci e la migrazione dei prodotti di fissione in un sistema Lead Fast Reactor, LFR. Dopo aver delineato le problematiche coinvolte nell'irraggiamento di un combustibile nucleare ed i fenomeni fisici ed i dati tecnologici che intervengono nel corso dei processi di rilascio e migrazione dei prodotti di fissione, si illustra il progetto concettuale e quasi ingegneristico dell'apparecchiatura che potenzialmente è in grado di evidenziare i fenomeni di rilascio lato combustibile e lato guaina. La strumentazione di riferimento è in questa fase di tipo generale e concettuale. Non sono stati definiti i costi. L'apparecchiatura consta di una sezione di prova costituita da due camere (interna ed esterna) e da due circuiti caratteristici detti *lato gas* e *lato piombo*. Permette di operare dalla pressione ambiente sino a pressioni di 80 bar lato gas, e temperature sino a 700 °C. Il progetto di riferimento è idoneo a studiare il rilascio di prodotti gassosi intrappolati in matrici sinterizzate che simulano le pastiglie di combustibile irraggiato. La *camera di misura* consente di caratterizzare il comportamento delle guaine per quanto riguarda i fenomeni di diffusione e permeazione attraverso la guaina. La *camera esterna*, oltre a poter fornire informazioni sui fenomeni di corrosione all'interfaccia piombo liquido-guaina, poiché trasporta i rilasci gassosi, è potenzialmente in grado di fornire dati sui fenomeni di trasporto e migrazione di specie chimiche gassose rilasciate attraverso un'interfaccia liquido/gas, misurando l'evoluzione della composizione dell'atmosfera gassosa. L'apparecchiatura è progettata con lo scopo di metterla a punto e tararla in assenza di rischi di natura radiologica, e di renderla compatibile con un potenziale impiego in cella calda in prove di post irraggiamento. In appendice viene presentato anche il progetto di un impianto pilota (OGATA) per lo studio della cattura di specie gassose volatili.



**Note:** Lavoro svolto in esecuzione della linea progettuale LP3 – Obiettivo D3

**Autori:** Giorgio De Angelis (ENEA); Mario De Salve (CIRIEN – PoliTo)

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE		NOME	G. De Angelis	M. Tarantino	M. Tarantino
			FIRMA			
REV.	DESCRIZIONE	DATA		REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	2	40

## **INDICE**

<b>INDICE TABELLE</b>	<b>3</b>
<b>INDICE FIGURE</b>	<b>3</b>
<b>1. INTRODUZIONE</b>	<b>4</b>
<b>2. DESCRIZIONE DELLE ATTIVITÀ SVOLTE E RISULTATI</b>	<b>6</b>
2.1 Ipotesi progettuali	6
2.2 Vincoli progettuali	7
2.3 Specifiche tecniche per lo studio sperimentale del rilascio dei prodotti di fissione	11
2.4 Apparecchiatura di riferimento	13
2.5 Camera esterna o di controllo della temperatura della guaina	18
2.6 Specifiche di prova	22
<b>3. CONCLUSIONI</b>	<b>25</b>
<b>4. BIBLIOGRAFIA</b>	<b>26</b>
<b>APPENDICE 1: PRODUZIONE E COMPORTAMENTO DEI PRODOTTI DI FISSIONE NEI COMBUSTIBILI AD OSSIDI MISTI NEI REATTORI LFR: STIMA DEL TERMINE SORGENTE</b>	<b>28</b>
<b>ABBREVIAZIONI ED ACRONIMI</b>	<b>33</b>
<b>APPENDICE 2: IL DISPOSITIVO SPERIMENTALE OGATA (OFF-GAS TREATMENT APPARATUS) PER LA CATTURA DI SOSTANZE VOLATILI</b>	<b>34</b>
<b>DISEGNI COSTRUTTIVI DELL'IMPIANTO OGATA</b>	<b>37</b>

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	3	40

### Indice Tabelle

Tabella 1.	Gruppi di prodotti di fissione rilevanti nell'irraggiamento neutronico dei materiali fissili
Tabella 2.	Alcuni dati per la barretta di combustibile di riferimento per il reattore ELSY
Tabella 3.	Prodotti di fissione e potenziali simulanti
Tabella 4.	Dimensioni di riferimento per il componente interno della camera di prova
Tabella 5.	Materiali di riferimento per la guaina.
Tabella 6	Composizione chimica dell'acciaio AISI 316LN utilizzato per la componentistica per vuoto (Caburn-MCD)
Tabella 7	Proprietà meccaniche per l'acciaio AISI 316LN
Tabella 8	Solubilità di alcuni prodotti di fissione nelle matrici dei combustibili nucleari
Tabella 9	Dati di riferimento per il forno lineare

### Indice Figure

Figura 1:	Progetto di riferimento per la camera di misura.
Figura 2	Pastiglia di riferimento
Figura 3.	Camera esterna per il ricircolo del piombo
Figura 4	Schema del forno lineare
Figura 5	Schema dei due circuiti lato gas e lato piombo.
Figura 6	Forno fusorio per il piombo

## 1. Introduzione

I prodotti di fissione, generati nel corso dell'irraggiamento neutronico dei combustibili nucleari, si formano all'interno delle pastiglie (*pellets*) di combustibile e successivamente i prodotti gassosi diffondono, migrano verso i volumi liberi presenti nella barretta. Si tratta di radionuclidi le cui caratteristiche fisiche sono identificate attraverso:

- i meccanismi di decadimento;
- le costanti di decadimento, o meglio, il tempo di dimezzamento;
- l'energia delle particelle ionizzanti liberate nel corso del decadimento;
- la reattività chimica.

Naturalmente le specie chimiche formate e la loro reattività chimica definiscono dei dati di rilevante importanza nello studio dei fenomeni di rilascio e migrazione. Le specie chimiche più rilevanti per la reattività chimica sono iodio, cesio, idrogeno, carbonio.

Le quantità presenti all'interno di una definita massa di combustibile nucleare irraggiato dipendono:

- **dal tasso di combustione** a cui è stato sottoposto il combustibile (*burn up*),
- **dalla composizione iniziale del combustibile** in materiali fissili, fertili ecc.;
- **dallo spettro neutronico** con il quale è stato realizzato l'irraggiamento (termico, epitermico, veloce ecc.);
- **dal tempo** che è passato dal momento della fissione al tempo di osservazione;
- **dai meccanismi di rilascio** dal combustibile all'interno della guaina (*cladding*) di contenimento dei prodotti di fissione gassosi liberati dal combustibile,
- **dai tassi di rilascio** attraverso le pareti delle barrette di combustibile.

Considerando i reattori in esercizio con combustibile a base di  $UO_2$ , il progetto del *core* è teso ad ottimizzare l'utilizzo del combustibile. L'obiettivo è di progettare elementi di combustibile tali da permettere il raggiungimento di *burnup* sino a 60 – 70 MWd/kg  $UO_2$  conservando l'integrità termomeccanica della guaina. Il futuro ha l'ambizione di raggiungere elevati *burn-up* (100 – 120 MWd/kg  $UO_2$ ) [1].

In ogni caso è rilevante la resa (*yield*) in prodotti di fissione associata all'irraggiamento neutronico dei radionuclidi fissili e non, presenti nelle pastiglie di combustibile. Ogni fissione rilascia circa 200 MeV di energia cinetica disponibile nei prodotti di fissione: due, raramente tre frammenti di fissione e un certo numero di neutroni (due, tre, ...). Il numero di massa dei frammenti di fissione varia da 72 a 166 (dallo zinco all'erbio). La resa in isotopi del Krypton è stimata sino al 2%, mentre quella in Xenon è circa 8% [2]. La quantità dei prodotti di fissione generati nel corso dell'irraggiamento dipende, oltre che dalla composizione in fissile del combustibile irraggiato, dal tasso di combustione (*burn up*)

stimato sulla base della storia del flusso neutronico che ha irraggiato il combustibile, dello spettro (veloce, termico) e delle rese di fissione. Dall'integrazione rispetto al tempo del prodotto flusso neutronico per la sezione macroscopica di fissione segue il numero di eventi di fissione riferito all'unità di volume, e quindi il consumo di fissile. La produzione dei prodotti di fissione è correlata al rateo di fissione, quindi al consumo di fissile attraverso la resa di fissione. In appendice 1 si riportano alcune indicazioni operative sulla stima delle rese di fissione [3] sulla base della metodologia consigliata dalla International Atomic Energy Agency IAEA.

E' utile osservare che nel combustibile i prodotti di fissione generano una catena di processi di decadimento, oltre che processi di cattura [4]. I diversi isotopi, identificati in termini di numero atomico  $Z$ , di massa  $A$ , e simbolo chimico, richiedono la costante di decadimento (in  $s^{-1}$ ), la conoscenza del prodotto del decadimento (FP), il prodotto del processo di cattura neutronica (CP) ed infine il "*Branching ratio*" riferito alla formazione del prodotto per cattura [4].

Nell'impiego degli ossidi misti come combustibile nucleare è rilevante la produzione di elio dovuta alla fissione, detta di tipo ternario, dell'uranio e del plutonio, con produzione di elio. Rilevante anche è la cattura neutronica da parte dell'ossigeno con emissione alfa e formazione di carbonio  $^{16}\text{O}(n,\alpha)^{13}\text{C}$ , ed infine il decadimento alfa degli attinidi con produzione di elio.

E' riconosciuto in [1] che il rilascio dei prodotti di fissione può costituire un potenziale fattore limite nel progetto termomeccanico di barrette di combustibile ad elevate prestazioni, da utilizzare in reattori in un servizio continuo ed esteso (*heavy duty operation*). Inoltre l'accumulo dei prodotti di fissione nel combustibile modifica il processo di fissione in quando incide sulle sezioni microscopiche e macroscopiche d'urto nei confronti dei neutroni.

Problemi tecnici rilevanti, che coinvolgono rilevanti attività di ricerca e sviluppo [6], riguardano:

- l'evoluzione delle proprietà fisico-chimiche del combustibile durante l'irraggiamento, soprattutto agli alti *burnup*;
- la distinzione tra nuclidi solubili ed insolubili nella matrice del combustibile;
- il comportamento degli atomi di fissione gassosi lungo il contorno dei grani e nella matrice del combustibile;
- le variazioni di porosità del combustibile;
- la caratterizzazione della regione periferica detta RIM [7] e la sua crescita con il *burn up*;
- i fenomeni di diffusione – migrazione dei prodotti di fissione;
- i rilasci dei prodotti di fissione gassosi e/o semivolatili all'interno della guaina e all'esterno.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	6	40

In generale è importante tener presente che i gas nobili di fissione, quali lo Xenon e il Krypton, sono praticamente insolubili nei materiali e tendono a precipitare ed aggregarsi in bolle di gas che si distribuiscono nella matrice e diffondono verso le superfici di interfaccia [8].

Gli studi teorici richiedono necessariamente un supporto sperimentale e soprattutto **lo sviluppo di metodologie che permettano di misurare e/o caratterizzare il trasporto delle specie chimiche, radioattive e non, presenti dall'interno dei combustibili nucleari e che migrano all'esterno del combustibile nucleare, delle guaine, sino a coinvolgere il refrigerante dei reattori.**

Progettare e realizzare dei dispositivi sperimentali atti a studiare i fenomeni di trasporto delle specie chimiche rappresentative dei prodotti di fissione in dispositivi sperimentali, ed eventualmente utilizzare gli stessi o le stesse metodologie in celle calde e in fase di post-irraggiamento, rappresenta una attività di notevole importanza nei processi di innovazione tecnologica e di crescita del *know-how*.

Per un **progetto concettuale e di studio di fattibilità di un'apparecchiatura sperimentale per la caratterizzazione del rilascio e migrazione dei prodotti di fissione in un sistema LFR** si osserva che l'apparecchiatura in questione richiede la definizione e la discussione di alcune **ipotesi progettuali e vincoli**.

## 2. Descrizione delle attività svolte e risultati

### 2.1 Ipotesi progettuali

Il progetto di riferimento riguarda un reattore veloce (F fast) in cui il refrigerante è piombo liquido (L Lead), in cui la guaina, in termini di materiali candidati, è costituita da acciai inossidabili austenitici, mentre i combustibili di riferimento sono degli ossidi misti uranio-plutonio (MOX).

La *prima ipotesi* progettuale riguarda lo studio dei rilasci dei gas contenuti e/o intrappolati in oggetti che simulano le pastiglie di combustibile all'interno di una camera di misura. Si ipotizza di rilasciare una massa di gas dalle pastiglie all'interno del volume noto e disponibile e, tramite un ciclo termico di temperatura, analizzare l'evoluzione della pressione nella camera di misura. Operando in condizioni di volume libero costante (volume chiuso), si analizzano le pressioni osservate al variare della temperatura con l'applicazione sistematica della legge dei gas perfetti. Deviazioni dalle trasformazioni isocore mettono in evidenza processi di rilascio di massa dalle pastiglie al volume di misura ed eventualmente dal volume di misura al circuito di ricircolazione del piombo.

La *seconda ipotesi* progettuale consiste nello studio della diffusione/permeazione di gas attraverso la guaina verso un circuito in cui fluisce del piombo liquido. Si ipotizza di realizzare un circuito in cui fluisce del piombo liquido in condizioni stazionarie di pressione e temperatura ed in presenza di un pressurizzatore con una atmosfera di argon.

Dall'analisi della composizione dell'atmosfera si intende esplorare la possibilità di misurare le specie gassose trasferite dal circuito lato gas al circuito lato piombo liquido.

Le precedenti ipotesi presuppongono di sviluppare una tecnologia di sinterizzazione delle pastiglie in atmosfera pressurizzata, in modo da realizzare delle porosità tali che i gas contenuti nei pori siano controllati in termini di pressione, dimensione dei pori e composizione della miscela gassosa. Per quanto riguarda gli additivi da introdurre nelle pastiglie, per un insieme discreto di tassi di combustione (*burn-up*), occorre stimare le rese di fissione, la composizione dei prodotti di fissione accumulati sulla base della durata del processo di irraggiamento e di raffreddamento.

Le rese di fissione elementari per uno spettro veloce nei LMFBR, come suggerito da Olander [6] sono riportate in tabella 1.

<b>Gruppo chimico</b>	<b>Fissile <math>^{235}\text{U}</math></b>	<b>Fissile <math>^{239}\text{Pu}</math></b>	<b>15% <math>^{239}\text{Pu}</math>; 85% <math>^{238}\text{U}</math></b>
Zr + Nb	0.298	0.204	0.210
Y + terre rare	0.534	0.471	0.493
Ba + Sr	0.149	0.096	0.109
Mo	0.240	0.203	0.206
Ru + Tc + Rh + Pb	0.263	0.516	0.456
Cs + Rb	0.226	0.189	0.209
I + Te	0.012	0.070	
Xe + Kr	0.251	0.248	

Tabella 1. Gruppi di prodotti di fissione rilevanti nell'irraggiamento neutronico dei materiali fissili.

In quanto segue si presentano le considerazioni e le scelte effettuate per definire:

- un disegno preliminare per la realizzazione di una “sezione di prova”;
- la potenziale strumentazione;
- le considerazioni e l'attività da svolgere per la messa a punto.

Seguono anche alcune considerazioni sui problemi da affrontare nella realizzazione dei campioni da provare (pastiglie e guaine) e sull'ingegnerizzazione dell'apparecchiatura (flange, forni, componenti per il vuoto ecc.).

## 2.2 Vincoli progettuali

I vincoli progettuali sono derivati da considerazioni su problematiche di sicurezza, semplicità e costi di realizzazione ed esercizio. Si fa presente che l'utilizzo di materiali radioattivi comporta sempre dei costi di sicurezza e di esercizio relativamente elevati e quindi non sostenibili in assenza di un'adeguata giustificazione.

Un *primo vincolo* progettuale segue dalla necessità di mettere a punto il processo di caratterizzazione dei rilasci senza le limitazioni poste dall'operare in presenza di rischi di natura radiologica. Si esclude quindi l'impiego di materiali combustibili nucleari irraggiati e/o considerati dalla normativa radiotossici.

Occorre sviluppare dei campioni di riferimento che permettano di simulare le barrette di combustibile irraggiate (**Simfuel**) in termini di comportamento fisico-chimico (pressioni,

temperature, densità, porosità, concentrazioni di specie chimiche), utilizzando solo componenti chimici (**simulanti**) non radioattivi o con rischi di origine radiologica assolutamente trascurabili. Ciò significa che bisogna considerare delle pastiglie di materiale sinterizzato con adeguate porosità e densità e con intrappolati dei gas all'interno dei pori. Strutture ceramiche che per densità, porosità, strutture cristalline, capacità di intrappolare dei gas, resistenza meccanica alle alte temperature, elevate temperature di fusione, si ritengono utili e potenzialmente idonee per le procedure di messa a punto dell'apparecchiatura. Materiali con comportamenti simili agli ossidi ceramici di uranio e plutonio semplificano il processo di messa a punto.

Il comportamento deve essere tale da simulare quello delle pastiglie ad ossidi misti uranio-plutonio dal punto di vista della struttura cristallina, delle dimensioni, delle proprietà termofisiche. *Si ritiene che l'impiego di ossido d'uranio impoverito, oppure l'impiego di ossido di cerio lavorati con la tecnologia delle polveri ed additivati con specie chimiche non radioattive, simulanti i prodotti di fissione stabili, possano raggiungere l'obiettivo proposto.*

Un *secondo vincolo* riguarda la scelta della guaina della barretta di combustibile. In questo caso non sussistono rischi di natura radiologica e si può far riferimento ai materiali candidati per le guaine previste nei reattori LFR. Le dimensioni di riferimento possono essere le stesse degli impianti reali per quanto riguarda diametri e spessori. La lunghezza potrà essere scelta in relazione ai vincoli sui volumi gassosi necessari per avere una adeguata accuratezza nella misura delle pressioni, dei volumi, del numero delle moli, ecc. Prevedere di avere una sezione di misura intercambiabile per modificare solo i materiali di guaina può essere considerato un obiettivo progettuale.

Per i reattori di nuova generazione del tipo LFR uno dei problemi chiave è l'interazione con il piombo liquido. Si ritiene importante verificare la diffusione di prodotti dalla pastiglia verso la guaina, e da questa al refrigerante. La diffusione è fortemente influenzata dalla temperatura e quindi è importante operare in un intervallo di temperatura che descriva il comportamento delle guaine in un intervallo esteso di temperature di esercizio, ed inoltre operare in presenza di piombo.

Una temperatura massima di riferimento per la guaina che operi con piombo è di circa 550 °C, mentre il combustibile concettualmente può operare sino a temperature massime dell'ordine di 2100 °C [9]. Si ricorda che la temperatura di fusione del piombo [10] è pari a circa 600.6 K (333.54 °C) ed aumenta di 0.0792 K per ogni MPa di aumento della pressione. Il vincolo progettuale si traduce nel progetto di un dispositivo che possa operare ad alta temperatura, ovvero sino a 600 – 800 °C in presenza di piombo liquido.

Un *terzo vincolo* progettuale riguarda la strumentazione. In prima approssimazione si ritiene che questa debba essere convenzionale, quindi poco costosa nella valutazione dei rilasci dal punto di vista termofluidodinamico, ovvero in termini di portata in massa e in volume. I rilasci sono studiati misurando pressioni, temperature, volumi di accumulo di prodotti gassosi di specie chimiche non radioattive. Il comportamento dei gas o delle sostanze semivolatili rilasciate dalle pastiglie si potrà analizzare con strumentazione complessa ma convenzionale, quale analizzatori di gas, gascromatografi, spettrometri di massa.

Un *quarto vincolo* progettuale è che il campo di temperatura e il suo controllo sia effettuato con sistemi elettrici per quanto possibile di tipo commerciale (forni), con regolazione della sola potenza fornita.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	9	40

Sia per i reattori ad acqua che per i reattori della generazione IV sono importanti i combustibili a base di ossido d'uranio ( $UO_2$ ) ed a base di ossidi misti uranio, plutonio ((U, Pu),  $O_2$ ).

Si tratta di materiali sinterizzati nella forma di *pellets*, il cui comportamento interessa al variare del *burn-up* sino a raggiungere valori estremamente elevati (oltre 100 GWd/tM).

Alcuni dati di riferimento per le barrette di combustibile (*fuel pin*), con riferimento al progetto ELSY, sono sintetizzate in tabella 2.

<b>Grandezza</b>	<b>valore</b>	<b>unità di misura</b>
diametro esterno della pastiglia di combustibile	9	mm
pastiglia con cavità centrale di diametro	2	mm
diametro interno della guaina	9.30	mm
gap radiale pastiglia-guaina	0.15	mm
diametro esterno della guaina	10.5	mm
spessore della guaina	0.60	mm
altezza della colonna di combustibile	900	mm

Tabella 2. Alcuni dati per la barretta di combustibile di riferimento per il reattore ELSY

Probabilmente in sede di fabbricazione delle pastiglie il rapporto altezza/diametro potrà variare tra 1 e 1.5.

Queste dimensioni sono interessanti, poiché si prestano per concepire delle apparecchiature che testino il comportamento delle pastiglie e delle guaine in scala 1:1 nelle dimensioni radiali.

La lunghezza può essere scalata, ma non è proibitivo operare sino a lunghezza del metro ed anche oltre. In questa fase si ritiene utile limitarsi a lunghezze comprese tra i 250 mm sino a 450 mm.

Per quanto riguarda le pressioni è utile operare nell'intervallo delle pressioni di esercizio di riferimento per il progetto termomeccanico delle barrette di combustibile. Si può andare da pressioni di riempimento con elio, dalla pressione atmosferica a circa 2.25 MPa a temperatura ambiente [11].

I prodotti di fissione sono confinati, nel corso del processo d'irraggiamento, nella pastiglia stessa (prima barriera) e nel volume delimitato dalla guaina e dai tappi di estremità della barretta (*gap* e *plenum*): quindi la seconda barriera è la guaina.

Il comportamento, ai fini del rilascio, dei prodotti di fissione all'interno della prima e seconda barriera fisica di contenimento dei prodotti (pastiglia e guaina), è influenzato dai fenomeni di *cracking* (macro e micro), dalla *porosità* delle pastiglie, dimensioni, struttura metallurgica (grani e loro dimensioni, stechiometria, additivi utilizzati nel processo di fabbricazione), ecc.

Dal punto di vista fisico-chimico si osserva che le problematiche connesse al comportamento dei prodotti di fissione ed al loro rilascio derivano dal fatto che:

- le concentrazioni dei prodotti di fissione aumentano gradualmente con il tempo durante i processi di irraggiamento in *core*;

- i prodotti di fissione caratterizzati da un decadimento  $\alpha$  modificano le loro proprietà chimiche nel corso del tempo, sia durante che dopo l'irraggiamento nel reattore. Infatti l'incremento di una unità del numero atomico dovuta al decadimento porta ad una modifica della specie chimica e quindi ad una, in genere, non trascurabile variazione della reattività chimica.
- Il rapporto ossigeno O metallo fissile M, cioè O/M, con  $M=U+Pu$ , e il potenziale dell'ossigeno si modifica con il *burn-up* e con il crescere del rapporto O/M;
- i gradienti radiali ed assiali di temperatura nella pastiglia (*fuel pin*) comportano fenomeni di trasporto di massa e processi di diffusione termica con formazione di gradienti di concentrazione.

Il rilascio dei prodotti di fissione verso l'ambiente esterno, ovvero verso il refrigerante nel reattore, è correlato ai *fenomeni di diffusione/permeazione attraverso la guaina* e ai fenomeni che pregiudicano l'integrità della barretta di combustibile, con formazione di cricche sia micro che macro in corrispondenza della guaina e delle sue estremità.

L'apparecchiatura in progetto deve poter caratterizzare le proprietà di trasporto e migrazione dei prodotti di fissione attraverso la guaina e le pastiglie in condizioni termomeccaniche rappresentative delle condizioni di funzionamento nel reattore (pressioni e temperature). I materiali utilizzati per le pastiglie, guaine, fluidi termovettori, devono essere caratterizzati per quanto riguarda i coefficienti di diffusione delle specie chimiche gassose e solide rappresentative dei prodotti di fissione.

Rilasci e misure in condizioni degradate delle barriere di confinamento è opportuno studiarle con apparecchiature *ad hoc* che caratterizzino le condizioni di degradazione in termini di interazione combustibile/guaina, realizzazione di cricche controllate in termini di processo di formazione e di innesco del meccanismo di degradazione.

Per i materiali di guaina si può far riferimento ai materiali candidati per essere selezionati ad operare con piombo. In particolare si tratta di acciai austenitici.

La temperatura di guaina può essere controllata con l'ausilio di un forno elettrico, oltre che con un circuito di ricircolo di un metallo liquido (piombo), con temperature controllate in alcuni punti caratteristici.

Le temperature delle pastiglie possono essere imposte e controllate con l'ausilio di un sistema di riscaldamento esterno (forno), di un circuito di riscaldamento con metallo liquido (piombo ricircolato) ed un sistema di riscaldamento elettrico costituito da una barretta, per esempio di grafite, installata all'interno delle pastiglie (forate).

Per quanto riguarda le pastiglie occorre prevedere dei materiali sinterizzati (**simfuel**) atti a simulare il comportamento delle pastiglie di combustibile (ossidi d'uranio, ossidi misti di uranio e plutonio) con assenza di rischi di natura radiologica. Si fa presente che la struttura cristallina degli ossidi di uranio e plutonio è quella tipica della fluorite (fluoruro di calcio,  $CaF_2$ ) designata con il simbolo cF12, in cui l'elemento metallico definisce una cella cubica, mentre l'ossigeno si dispone descrivendo una struttura tetraedrica.

Un materiale che abbia un comportamento simile al materiale irraggiato, minimizzando i rischi di natura radiologica (SIMFUEL), si ritiene che possa essere realizzato con la sinterizzazione di **polvere di ossido d'uranio impoverito con additivi (solidi, semivolatili, gassosi) non radioattivi, che simulano i prodotti di fissione ai diversi burn-up**. In alternativa si può pensare all'ossido di cerio.

In accordo a Laux et al. [12] le diverse categorie dei prodotti di fissione da simulare con il loro simulante sono riportate in tabella 3:

<b>Prodotti di fissione da simulare</b>	<b>simulante</b>	<b>Forma chimico -fisica</b>
Americo (Am), Curio (Cm)	Lantanio La	sotto forma di ossido
Nettunio Np	cerio Ce	sotto forma di ossido
Praseodimio Pr, Promezio Pm, Samario	Neodimio Nd	
Elio	elio	gas di riempimento
Krypton e Xenon	Isotopi stabili $^{36}\text{Kr}$ 84,86 ; $^{54}\text{Xe}$ 129, 132	gas intrappolato
Trizio	Idrogeno	

Tabella 3. Prodotti di fissione e potenziali simulanti

Questi non simulano i prodotti gassosi e l'effetto dei difetti. Per simulare i gas di fissione si può pensare di realizzare il processo di sinterizzazione in una atmosfera controllata e pressurizzata con miscele di argon, elio, neon, in modo da modificare il contenuto di gas nei pori. In questo modo si evita di utilizzare gas rari e costosi.

Si ha quindi l'esigenza di mettere a punto un processo di fabbricazione (sinterizzazione) di pastiglie con accumulo nei pori di una atmosfera di gas di composizione nota. Si tratta di una attività collaterale allo sviluppo e messa a punto dell'apparecchiatura di misura, poiché riguarda la preparazione dei campioni da sperimentare.

Realizzando delle pastiglie sinterizzate con un foro centrale, l'allineamento delle pastiglie in una barretta cilindrica, per esempio di grafite, riscaldata elettricamente, consente di simulare la temperatura di centro barra, e quindi simulare i campi termici nelle pastiglie.

L'uso di semplici pastiglie piene o con una cavità centrale, impilate, permette di studiare, in condizioni quasi isoterme, i fenomeni di rilascio.

## **2.3 Specifiche tecniche per lo studio sperimentale del rilascio dei prodotti di fissione**

I potenziali obiettivi tecnici da raggiungere nel corso delle prove si possono sintetizzare nella valutazione dei ratei di rilascio e nella composizione dei gas rilasciati. Si ipotizza che sia nota la composizione dei gas intrappolati nelle pastiglie preparate nell'attività collaterale di fabbricazione delle pastiglie campione. Un ciclo termico dalla temperatura ambiente ad una temperatura di esercizio porta al rilascio dei gas intrappolati nelle pastiglie. Si può studiare il transitorio di pressione nel volume libero della guaina, oppure

le perturbazioni della concentrazione dei componenti gassosi di una piccolissima portata di gas flussato in modo continuo nella guaina che contiene le pastiglie.

Per la permeazione attraverso la guaina è importante definire i materiali di guaina, le loro proprietà termofisiche e dimensionali, e caratterizzare i gas rilasciati nel metallo liquido in ricircolo. Il metallo liquido è da caratterizzare in termini di capacità solubilizzante dei gas in funzione della temperatura.

Poichè i rilasci sono controllati dai transitori di temperatura e pressione che si instaurano all'interno della barretta simulante il combustibile, oltre che dai processi di diffusione, gli elementi chiave che definiscono la procedura di prova e il disegno dell'apparecchiatura si riassumono in quanto segue.

- a) Caratterizzazione dei rilasci gassosi (rateo di rilascio e composizione dei gas rilasciati) da una pastiglia cilindrica di materiale ceramico di massa  $M$ , diametro  $D$ , altezza  $H$ , all'interno di un volume noto  $V_0$  inertizzato con un definito gas (azoto, argon, elio) alla pressione  $p_0$ , quando la pastiglia è riscaldata dalla temperatura ambiente  $T_0$  alla temperatura  $T_{prova}$  con una rampa spezzata e per una durata della prova :  $t_{prova} = C(T_{prova} - T_0) + t_{ss}$ , dove  $C$  in °C/minuto, pendenza della rampa di riscaldamento,  $t_{ss}$  durata della fase stazionaria.

La pressione  $p$  è correlata alla temperatura  $T$  con la legge dei gas perfetti. Nelle condizioni di prova in cui il volume della camera di misura  $V_m$  è costante ed isolato, dalla :

$$p(t)V_m = m(t)RT(t) \quad (1)$$

segue:

$$m(t) = \frac{p(t)V_m}{RT(t)} \quad (2)$$

Derivando la (2) rispetto al tempo, segue il rateo di rilascio, soprattutto se le condizioni di prova sono tali da avere  $V_m$ ,  $R$  e  $T$  costanti rispetto al tempo.

Quindi l'analisi dei transitori pressione  $p(t)$  e di temperatura  $T(t)$  nella camera di misura consente di caratterizzare i rilasci, introducendo eventualmente dei fattori correttivi che caratterizzino dilatazioni termiche e perdite.

- b) Permeazione (tasso di permeazione e composizione) dei prodotti gassosi attraverso le pareti di una geometria cilindrica di volume  $V_0$ , spessore della parete  $s_0$ , diametro interno  $D_i$ , diametro esterno  $D_e$ , definito materiale in termini di caratteristiche di *bulk* e di superficie quando la parete è mantenuta alla temperatura  $T$  di prova. All'interno del volume  $V_0$  è imposta una pressione, temperatura e composizione di una miscela gassosa. All'esterno è misurata l'evoluzione della composizione dell'atmosfera, oltre che della pressione, in un ambiente a temperatura controllata. In questo tipo di analisi è importante lo studio della diffusione attraverso la guaina, considerando la

temperatura e la variazione dei coefficienti di diffusione. La permeazione può anche essere studiata realizzando il vuoto nella camera esterna, e misurando in transitorio di pressione nella camera isolata. Il flussaggio di questa camera con un gas di trasporto (per esempio elio o argon) e l'analisi della composizione del gas di flussaggio permette di risalire alle specie chimiche permeate. Questo tipo di prove deve essere accompagnato da un processo di simulazione teorica che descriva il comportamento termofluidodinamico del circuito lato piombo.

- c) *Prove quasi stazionarie di lunga durata* a definite temperature di riferimento, con caratterizzazione ed analisi dei transitori di pressione nella camera di misura e nella atmosfera del circuito lato piombo.

I dati sperimentali (evoluzione delle concentrazioni dei gas rilasciati) di queste prove sono da elaborare in modo da stimare i tassi di rilascio da correlare alle caratteristiche metallurgiche dei materiali utilizzati.

Procedure di flussaggio con gas dei due ambienti (lato combustibile e lato refrigerante) ed analisi delle perturbazioni della composizione dei gas di flussaggio permettono di discutere in termini qualitativi e quantitativi i meccanismi di rilascio.

## 2.4 Apparecchiatura di riferimento

Si ipotizza di realizzare una barretta che simuli il combustibile in termini di materiale di guaina, pastiglia e dimensioni radiali. Si tratta di realizzare un elemento cilindrico che descrive la guaina in termini di diametro interno  $d_i$ , diametro esterno  $d_e$ , lunghezza  $L$ , materiale definito ed uguale ad uno dei materiali candidati. All'interno sono da inserire un definito numero di pastiglie, possibilmente con cavità centrale di diametro  $d_0$ , centrate con una barretta riscaldante e compresse da una molla. Si ha quindi (fig. 1) una **camera di prova lato gas**, detta **camera interna**, all'interno della quale si possono o meno inserire delle pastiglie che simulino un adeguato volume di combustibile irraggiato. Le due estremità della barretta sono da connettere, tramite un sistema di flange e valvole di intercettazione a tenuta per il vuoto, ad un circuito esterno, *detto di off gas*. Questo è da progettare in modo da consentire il flussaggio di gas noti all'interno della barretta, il trasferimento dei gas accumulati nella barretta in temperatura all'interno di volumi noti ed isolabili, oltre che verso un gascromatografo. Nei volumi caratteristici del circuito lato gas: barretta di prova, volume di misura, volume totale del circuito, è importante misurare la pressione, oltre che la temperatura delle atmosfere realizzate. Il circuito lato gas è interconnesso al gascromatografo e/o ad uno spettrometro di massa. La camera interna è da strumentare in modo da certificare le temperature lato interno ed esterno del materiale di guaina, e l'uniformità del campo termico. Le pastiglie inserite nella camera sono da caratterizzare in termini di volume occupato, geometria, sistema di impilamento e temperatura di centro barra (temperatura nella cavità).

Con riferimento alle dimensioni di tab. 2, si ipotizzano come scelte preliminari i dati di tabella 4.

Grandezza	simbolo	valore	unità di misura
diametro interno guaina	$d_i$	9.30	mm
diametro esterno guaina	$d_e$	10.50	mm
spessore guaina	t	0.6	mm
lunghezza	L	250	mm
materiale	AISI 316LN		
spessore flange di estremità	b	30	mm
Volume nominale camera di prova priva di pastiglie	$V_b$	19.70	cm <sup>3</sup>

Tabella 4. Dimensioni di riferimento per il componente interno della camera di prova

Le scelte progettuali per i materiali di guaina, ovvero del canale di contenimento delle pastiglie, sono importanti ai fini del **trasporto dei gas di fissione per permeazione attraverso la guaina**.

Per i reattori della generazione IV refrigerati a piombo i materiali di guaina candidati sono gli acciai inossidabili a base di ferro cromo.

Alcuni acciai austenitici di riferimento sono riportati in tabella 5 in termini di composizione percentuale.

elementi di lega	D9	14Cr-16Ni-2Mo	1.4970	316L		1.4984		304L
C	0.04	0.058	0.46	0.012	0.02	0.06		0.020
Cr	13.6	14.14	16.5	16	18	17	19	18.50
Ni	13.6	15.85	13.8	10	17.392	10	12	8.31
Mo	1.67	2.29	0.66	2	2.75			0.39
Mn	2.1	1.54	1.91	0.2	2	0	2	1.67
Si	0.85	0.50	0.89	0.1	1	0	0.75	0.49
P			0.012	0.024	0.19			0.026
S			0.009	0.0005	0.03			0.003
Co				0.06	0.14			
N		0.003		0.02	0.1			0.069
Ti	0.30	0.22	0.43					
V		0.03						
W		0.010						
Al		0.012						

Tabella 5. Materiali di riferimento per la guaina [10]

Le due estremità della **camera di prova lato gas** sono da caratterizzare nel rispetto, per esempio, della compatibilità con impianti che operano in condizioni di vuoto spinto, come le flange “Varian ConFlat”, a partire dalle dimensioni nominali DN16 CF, DN40CF,

modificate per garantire la tenuta, il contenimento delle pastiglie, l'inserimento di una molla di compressione.

In ogni caso la tenuta è da garantire con guarnizioni di rame ricotto. Questo componente (**camera interna**) è progettato, dal punto di vista ingegneristico, in modo che sia intercambiabile senza modificare anche la camera esterna. Ciò implica un sistema di flange che garantisca la tenuta in condizioni spinte sia di vuoto che di campi di temperatura.

Un esempio di possibile realizzazione ingegneristica è riportato in figura 1.

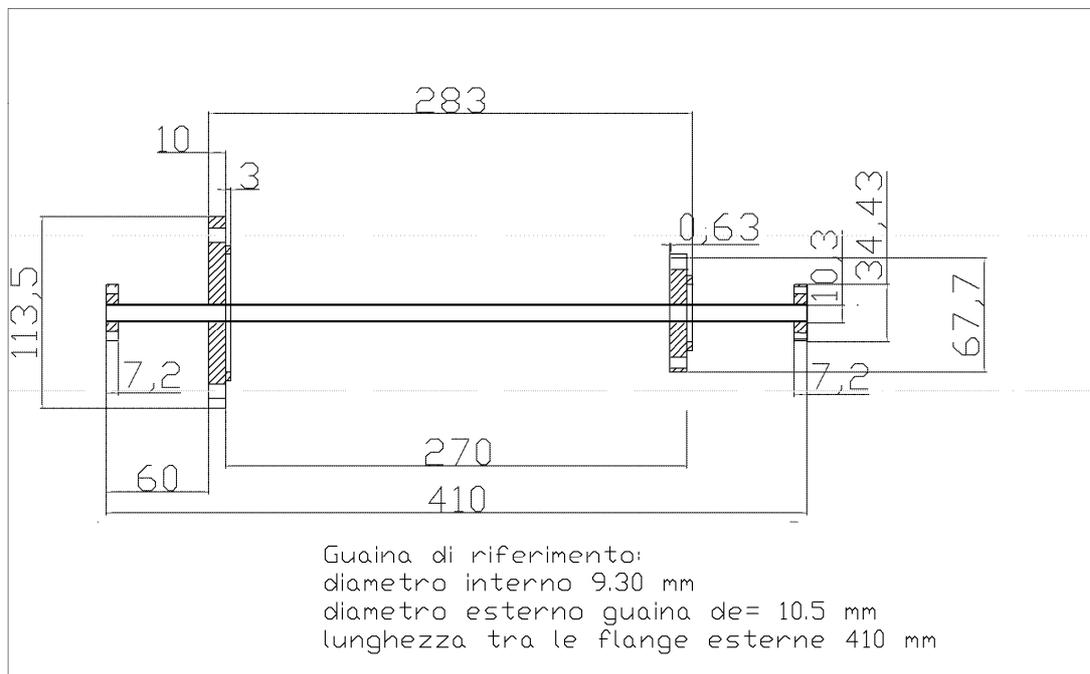


Figura 1: Progetto di riferimento per la camera di misura

Si tratta di un tubo in AISI 316LN (*camera di misura*), di diametro interno  $d_i = 9.30$  mm, diametro esterno  $d_e = 10.5$  mm, lunghezza 410 mm, con all'estremità due flange DN 16 CF. A 60 mm dalle estremità della camera di misura sono saldate due flange fuori standard che si accoppiano con una camera di misura esterna da inserire in un forno elettrico lineare (diametro della camera di lavoro del forno 6", ovvero circa 152 mm).

Il materiale di riferimento per le flange può essere l'acciaio AISI 304 o l'AISI 316LN, che può operare con il vuoto sino a  $10^{-13}$  mbar, e lavorare nel campo di temperature tra  $-196$  °C e  $450$  °C. Le guarnizioni sono da realizzare in rame OFHC (*Oxygen Free High Conductivity*). Per temperature superiori è opportuno utilizzare delle leghe di nichel, come l'inconel. La composizione chimica e le proprietà meccaniche di riferimento per i componenti a contatto con il piombo, e che devono operare anche sottovuoto, e realizzati a base di acciaio AISI 316LN, sono riportate nelle tabelle 6 e 7.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	16	40

La camera di misura è intercambiabile, realizzando le flange con i diametri nominali delle flange ConFlat DN 63 CF (diametro esterno 114 mm) e DN 40 CF (diametro esterno 70 mm).

Elemento chimico	simbolo	% in peso
Cromo	Cr	16-18.5
Nichel	Ni	12-14
Carbonio	C	0.030 max
Silicio	Si	1 max
Manganese	Mn	2 max
Molibdeno	Mo	2 -3
Azoto	N	0.14 -0.20
Fosforo	P	0.045 max
Zolfo	S	0.030 max
Cobalto	Co	0.22 max
Ferro	Fe	bilancio a 100

Tabella 6. Composizione chimica dell'acciaio AISI 316LN utilizzato per la componentistica per vuoto (Caburn-MCD)

Proprietà	Valore	Unità di misura
sollecitazione unitaria di rottura per trazione	600 min	N/mm <sup>2</sup>
Sollecitazione unitaria allo snervamento	300 min	N/mm <sup>2</sup>
Allungamento a rottura	35 min	%
Durezza Brinell	160 - 190	

Tabella 7. Proprietà meccaniche per l'acciaio AISI 316LN

All' interno della camera di misura è possibile inserire delle pastiglie cilindriche di materiale sinterizzato, in un numero variabile da zero a circa 15, nell'ipotesi di realizzarle con una altezza massima di 15 mm. Il diametro di riferimento è di 9 mm. Si può considerare il caso di pastiglie con foro centrale di 2 mm o anche piene. Il centraggio/bloccaggio delle pastiglie è previsto con l'ausilio di un sistema di molle e piastrine centrate con una flangia esterna, connesso attraverso un attacco a T alla frangia DN16 CF. In figura 2 si riporta lo schema tipico di una pastiglia.

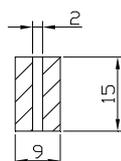


Figura 2. Pastiglia di riferimento

Il problema principale della pastiglia, per gli aspetti connessi alla ricerca e sviluppo, è rappresentato non dalle dimensioni e dalla geometria, ma dal processo di lavorazione per ottenere dal punto di vista metallurgico una porosità controllata in termini di dimensione dei pori, di densità e di tipologia dei pori (chiusi, aperti).

Per quanto riguarda la composizione delle pastiglie da realizzare, è utile osservare che i prodotti di fissione sono distinti in:

- gassosi o volatili (Krypton, Xenon, Bromo, Iodio);
- prodotti che formano precipitati metallici (Molibdeno Mo, Tecnezio Tc, Rutenio Ru, Palladio Pd, Argento Ag, Cadmio Cd, Indio In, Stagno Sn, Antimonio Sb, Tellurio Te);
- prodotti che formano precipitati nella forma di ossidi (Rubidio Rb, Cesio Cs, Bario Ba, Zirconio Zr, Niobio Nb, Molibdeno Mo, Tellurio Te);
- prodotti che si dissolvono come ossidi nella matrice (Stronzio Sr, Zirconio Zr, Niobio Nb, e le terre rare Ittrio Y, Lantanio La, Cerio Ce, Promezio Pr, Neodimio Nd, Samario Sm, Promezio Pm).

che possiamo raggruppare in gas nobili, alogeni, metalli alcalini (Cs, Rb), metalli alcalino-terrosi (Sr, Ba), metalli nobili (Ru, Mo, Pa, Th, Tc), metalli del gruppo del tellurio (Te, Se, Sb) ed infine terre rare (La, Nd, Eu, Y, Ce, Pr, Sm, Zr, Nb). Importante è la loro solubilità, che è funzione della temperatura e del tipo di matrice. In accordo a Kleykamp, alcuni valori di riferimento per la solubilità sono riportati in tabella 8.

prodotto di fissione	solubilità in peso %	solubilità atomica %, come ossido	solvente	temperatura °C
Cs	0.5	1.2	UO <sub>2</sub>	1000
Cs	0.16	0.3	UO <sub>2</sub>	1900
Sr	4	12	UO <sub>2</sub>	1500
Ba	1.6	3.1	U <sub>0.8</sub> Pu <sub>0.2</sub> O <sub>2</sub>	1450
Ba	0.6	1.2	U <sub>0.8</sub> Pu <sub>0.2</sub> O <sub>2</sub>	2800
Ba	0.3	0.6	UO <sub>2</sub>	>2000
Nb	1	3	U <sub>0.7</sub> Pu <sub>0.2</sub> O <sub>2-x</sub>	>2000
Mo	<0.002	<0.006	UO <sub>2</sub>	1900
Mo	0.02	0.06	U <sub>0.85</sub> Pu <sub>0.015</sub> O <sub>2+x</sub>	>1700
Te	0.27	0.6	UO <sub>2</sub>	1000

Tabella 8: Solubilità dei prodotti di fissione nelle matrici dei combustibili nucleari  
 (Fonte: H. Kleykamp)

Per gli aspetti connessi alle specifiche di prova si osserva che in assenza di pastiglie nella camera di misura occorre controllare in sede di matrice sperimentale la composizione del gas immesso nella camera, la pressione di carica e quindi la massa di riempimento. L'analisi dei transitori di pressione e temperatura, seguiti da misure di conducibilità della miscela gassosa, oltre che di composizione con il gas cromatografo, permette di caratterizzare la permeazione attraverso la guaina, oltre che tarare il processo di misura con il gascromatografo.

## 2.5 Camera esterna o di controllo della temperatura della guaina

La camera di misura è accoppiata con una camera cilindrica coassiale con diametro interno  $D_{1i}$  e diametro esterno  $D_{2e}$  in inconel, delimitata da due pareti di spessore  $t_1$  connesse tramite saldatura. La camera è a contatto con la parete del forno. In questa camera fluisce il metallo liquido in un circuito esterno. Il diametro esterno di riferimento è pari a 152 mm. Questo permette di inserire la camera esterna di prova in un forno lineare con diametro nominale DN6". La parete della camera di misura è riscaldata per conduzione dal forno attraverso due parti di AISI 316LN oppure di Inconel, di spessore pari a circa 30 mm, oltre che da un flusso di piombo liquido ricircolante. Molto probabilmente per queste due pareti, in fase di messa a punto della procedura di prova, potrà essere opportuno coibentare le due facce per rendere più uniforme il profilo radiale ed assiale di temperatura, ed inoltre per ridurre le dispersioni termiche.

La figura 3 illustra il progetto della **camera esterna** nella quale può fluire del piombo liquido o un altro fluido di riferimento. Il diametro interno è quello tipico dei condotti da 6", ovvero di una tubazione con spessore di 3 mm e diametro interno di 146.3 mm. Le due estremità sono lavorate per consentire l'assemblaggio delle flange di fig. 1. La lunghezza è di circa 600 mm e sono previsti due condotti di 10 mm di diametro interno da connettere al circuito lato piombo. In questa camera, regolando la portata di ricircolo del piombo, è possibile controllare la velocità media del piombo, e quindi il trasporto dei prodotti permeati e/o solubilizzati. Il diametro interno della camera di misura è 146 mm, la lunghezza interna della camera è di circa 240 mm. Si ha un volume della camera di circa 4.02 dm<sup>3</sup>. Ipotizzando per il piombo liquido delle velocità medie dell'ordine di qualche cm/s, nella camera esterna si hanno dei tempi di residenza del refrigerante dell'ordine delle decine di secondi.

Tra 500 K (circa 227 °C) e 1900 K (circa 1627 °C) la densità del piombo si riduce secondo la relazione [10]:

$$\rho_{pb} = 11367 - 1.1944T \quad (3)$$

con T in K e la densità in kg/m<sup>3</sup>. Nell'intervallo 300 – 600 °C, la densità varia tra 10682 e 10324 kg/m<sup>3</sup>. Si stimano delle portate massime di riferimento dell'ordine dei 2 kg/s, più opportune si ritengono le portate dell'ordine di 1 kg/s. Nei condotti del circuito lato piombo si hanno velocità del piombo di poco più di 2 m/s.

La camera di misura è da installare all'interno di un forno lineare, e tramite questo sarà sollecitata dai transitori di temperatura definiti in sede di standard di prova.

Si ipotizza di strumentare la camera esterna con *termocoppie per misura della temperatura delle pareti esterne della camera di misura, pareti interne della camera esterna ed eventualmente delle flange al fine di caratterizzare i campi di temperatura.*

La camera cilindrica esterna è all'interno di un **forno elettrico lineare** le cui caratteristiche di riferimento sono tali da permettere di realizzare un ambiente con temperature regolabili sino a 1000 °C, in una atmosfera confinata in cui possono fluire piccole portate di argon, elio, neon, o metallo liquido.

Il forno di riferimento, in questo progetto base, è di tipo lineare tubolare commerciale, quale per esempio uno della serie **LFH, prodotta dalla Trent Incorporation (USA)** [14]. Esso è schematizzato in figura 4.

Consente di realizzare nella camera di lavoro temperature sino a 1093 °C. La camera di lavoro può presentare dei diametri compresi tra 32 mm (1" e ¼) e 152 mm (circa 6"),

mentre la lunghezza varia tra 305 mm (circa 12") e 1220 mm (circa 48"). Le potenze elettriche disponibili sono comprese tra 0.55 e circa 10.80 kW. Per gli obiettivi dello studio connesso con il rilascio dei prodotti di fissione, si ritiene che la scelta di uno dei due modelli: LHF 536, ovvero 5" (127 mm) e lunghezza 36" (914 mm), potenza 6.7 kW; o meglio LHF 636, ovvero 6" (152 mm), lunghezza 36" (914 mm), potenza 8.1 kW, consente di realizzare diverse sezioni di prova da inserire all'interno della camera di lavoro, ed anche di accoppiarle con la strumentazione di laboratorio idonea per la caratterizzazione dei rilasci (gascromatografo, spettrometro di massa). La lunghezza della camera di lavoro e la potenza disponibile, insieme ad un adeguato sistema di regolazione della potenza fornita, consente di realizzare programmi di riscaldamento-controllo della temperatura lungo il forno.

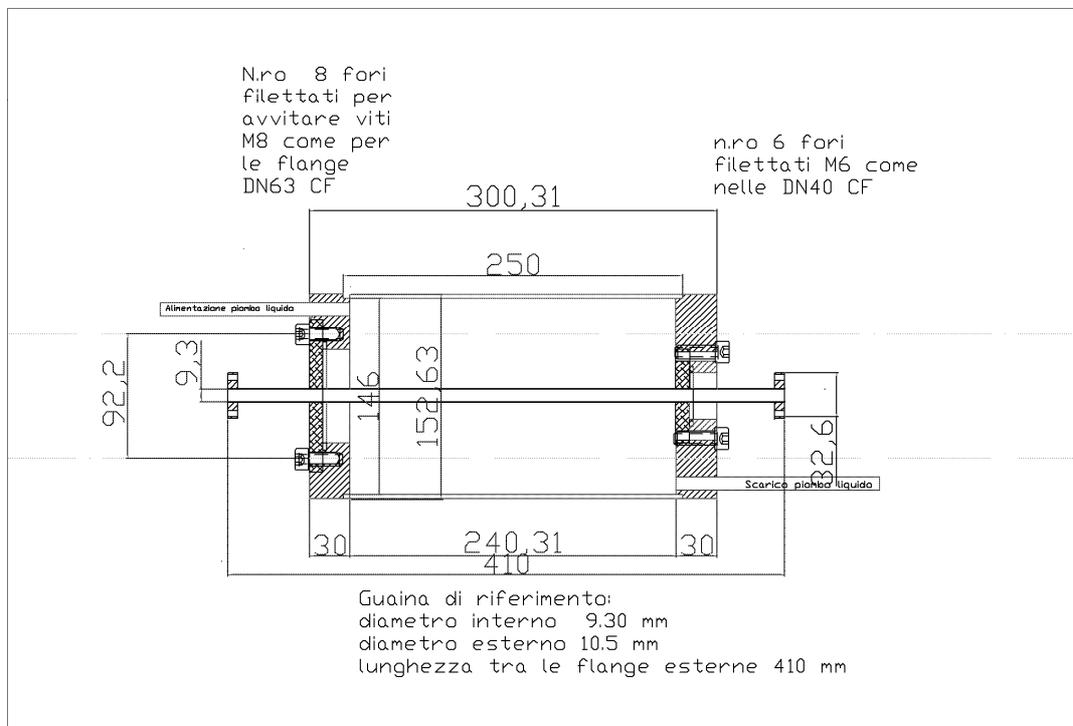


Figura 3. Camera esterna per il ricircolo del piombo

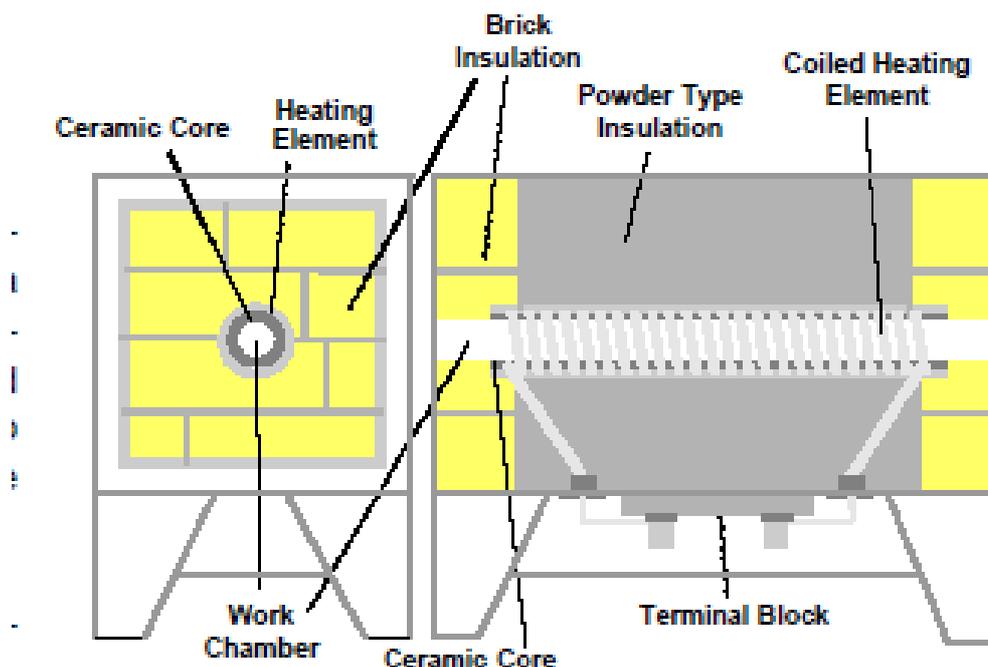


Figura. 4 Schema del forno lineare

In sintesi, i dati di riferimento per il forno che si ritengono ottimali in questa fase della progettazione, sono riportati in tabella 9, con i modelli dei due forni lineari, rispettivamente per una potenza di 6.7 e 8.1 kW, diametro della camera del forno 127 mm e 152.4 mm:

modello	potenza	tensione alimentazione	diametro	lunghezza	W	H	D
	kW	V	“	“	“	“	“
LHF-536	6.7	240	5	36	12 ¼	17 9/16	39 1/8
LHF-636	8.1	240	6	36	13 1/4	18 9/16	39 1/8

Tabella 9 Dati di riferimento per il forno lineare

Il progetto dell'apparecchiatura fa riferimento al forno LHF-636.

Nell'apparecchiatura si distinguono due circuiti caratteristici: *il circuito lato gas ed il circuito lato piombo*.

Il circuito lato gas è interfacciato, con l'ausilio di valvole di intercettazione, volumi di controllo, bombole per il flussaggio dei gas, ed anche per la calibrazione della composizione dei gas, con un gas cromatografo o con uno spettrometro di massa.

Lo schema di riferimento per i due circuiti è riportato in figura 5:

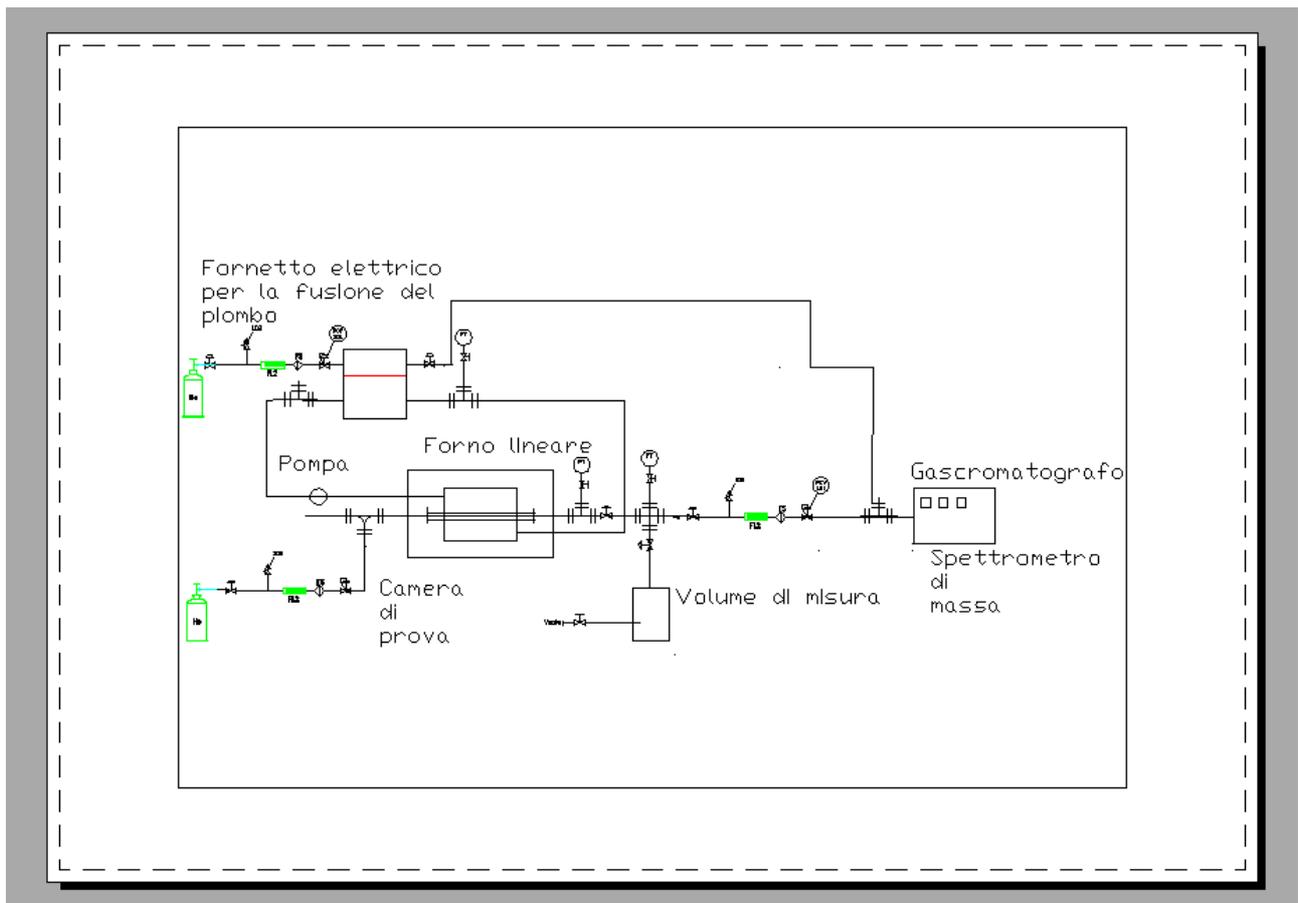


Figura. 5 Schema dei due circuiti lato gas e lato piombo

Si osserva un circuito lato piombo in cui un fornello elettrico assicura la fusione di una massa relativamente piccola di piombo in atmosfera controllata di elio o argon, una pompa o circolatore per il ricircolo del piombo, un sistema per la misura della portata del piombo, ed un sistema per la regolazione della temperatura. Naturalmente le tubazioni sono tracciate con cavi elettrici scaldanti per impedire la solidificazione del piombo in qualsiasi circostanza operativa. Il volume della camera interna, tubazioni comprese, e il volume della camera di misura, sono circa uguali, per cui nel corso di un processo di rilascio isoterma verso il volume di misura, la pressione si dimezza. Transitori di temperatura dalla temperatura ambiente a circa 800 °C per le pastiglie, comportano un aumento della pressione, in assenza di rilasci di gas nel volume ed in presenza di trascurabili aumenti del volume per effetto delle dilatazioni termiche, di circa 4 volte. Con pressioni iniziali di circa 20 bar di elio si può arrivare, nella camera interna, a pressioni dell'ordine di 80 bar.

Non si ritiene di sviluppare un progetto di dettaglio per il forno fusorio del piombo e per la pompa, in quanto si ipotizza di utilizzare dei componenti commerciali utilizzati nel contesto delle tecnologie di lavorazione del piombo e delle sue leghe. Il volume totale si può ipotizzare, per il volume occupato dal piombo, circa 3 volte il volume della camera esterna, ovvero circa 12 litri, pari a 135 kg di piombo. Il calore latente di fusione è di circa 24 kJ/kg, occorre fornire per la fusione una energia di circa 3240 kJ. questa massa di piombo può essere agevolmente fusa con un forno fusorio della TRENT Incorporation tipo MB-500 [15] da 10 kW, avente una capacità massima di circa 500 lb, ovvero circa 227 kg. Il vessel del forno è caratterizzato da un diametro di circa 11 e 3/4" (circa 298.45 mm). ed una altezza di

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	22	40

12 e ½” (circa 317 mm). Si tratta di un forno che richiede alcune modifiche in modo da renderlo ad atmosfera controllata, con massa fusa ricircolante e regolazione fine della potenza elettrica.



Figura 6 Forno fusorio per il piombo

## 2.6 Specifiche di prova

Queste specifiche sono riferite a tre fasi caratteristiche dell'attività di ricerca e sviluppo:

- la fase di messa a punto e calibrazione dell'apparecchiatura a freddo lato gas;
- messa a punto e calibrazione a caldo lato piombo;
- e infine la fase di esecuzione delle prove dimostrative di funzionalità e confronto con simulazioni teoriche.

Il progetto proposto prevede una **camera interna** costituita da un condotto con diametro interno di 9.3 mm e distanza tra le valvole di intercettazione/isolamento alle estremità dell'ordine di 500 mm. Il volume corrispondente è di circa 34 cm<sup>3</sup>. Il volume associato ad una pastiglia cava con diametro esterno di 9 mm, diametro della cavità 2 mm, altezza 15 mm, è di circa 907 mm<sup>3</sup>. Il volume associato alla cavità è di circa 47 mm<sup>3</sup>. Si ipotizza che la massima lunghezza delle pastiglie presenti nella camera di misura sia pari a 225 mm, ovvero 15 pastiglie. Segue un volume disponibile per i gas dell'ordine di 20 cm<sup>3</sup>.

### a) Prove di messa a punto a freddo

In questa fase l'apparecchiatura è da caratterizzare in termini di volumi della camera interna  $V_i$ , del volume di misura  $V_M$  e del volume del circuito lato gas, esclusi bombole e spettrometro di massa  $V_c$ . Si tratta di volumi compresi tra le valvole di intercettazione delle regioni indicate. In presenza di pastiglie nella camera

interna si valuta anche il volume occupato dalle pastiglie e dagli organi di centraggio delle stesse. In condizioni isoterme e di temperatura definita, si misura la pressione. Da questa è possibile stimare il numero delle moli accumulate nei diversi volumi.

Stimati i volumi del circuito, pressurizzando la camera di prova a diverse pressioni e realizzando il vuoto nel volume di misura, si analizza la pressione che si ottiene nel volume di misura, connettendo questo volume alla camera interna. Questi dati permettono di correlare la massa di gas contenuta nella camera interna alla pressione del volume di misura. Seguono anche una serie di prove realizzate con miscele di gas di composizione nota, per verificare la calibrazione del gascromatografo e/o spettrometro di massa.

b) Prove di messa a punto a caldo

Sono finalizzate alla verifica delle tenute delle flange, connessioni, valvole e alla verifica del buon funzionamento del sistema di regolazione e controllo nel realizzare specifici cicli termici di riscaldamento forno e camera di prova, mantenimento delle temperature a regime, raffreddamento. L'analisi dei transitori di pressione dei volumi della camera interna e di misura insieme alle temperature consentirà di valutare i trasferimenti di massa tra i diversi comparti.

In questa fase si prova la stabilità di funzionamento a regime del circuito lato piombo, caratterizzando i campi termici lungo il circuito e le dispersioni termiche verso l'ambiente, in assenza di potenza termica introdotta in camera di misura. In particolare si verificherà il sistema di tracciatura delle tubazioni in modo che in nessun punto del circuito la temperatura assuma valori inferiori alla temperatura di fusione del piombo, ed inoltre si verificherà un sistema di drenaggio del circuito verso un sistema di stoccaggio del piombo.

c) Prove di funzionamento a regime di tipo isoterma

Queste prove hanno lo scopo di verificare il funzionamento a caldo dell'apparecchiatura, effettuando l'analisi delle composizioni dei gas lato camera interna e lato circuito del piombo, in modo da caratterizzare i rilasci di specie chimiche diverse dal gas di riempimento del circuito (elio o argon), dovute alle pastiglie presenti in camera di misura, al trasporto diffusivo attraverso la parete della guaina nel piombo, ed infine attraverso l'interfaccia piombo/gas di pressurizzazione. In questa fase il circuito di prova è caratterizzato in termini di pressioni, temperature, ore di funzionamento, campionamento dei gas presenti nei due circuiti.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	24	40

d) Prove di funzionamento con riscaldamento delle pastiglie

Si tratta ancora di prove a regime con fornitura di potenza all'interno della camera di misura, con regolazione della temperatura della pastiglia; regolazione del forno lineare per fissare la temperatura della parete esterna della camera; regolazione della potenza del forno fusorio per mantenere costante la temperatura del piombo all'ingresso della camera esterna, compensando le perdite. Qualora il sistema di regolazione non sia adeguato per realizzare una accurata compensazione delle perdite di calore (in quanto troppo piccole), si provvederà ad inserire nel circuito uno scambiatore di calore ed aumentare il livello di potenza di esercizio.

Nel corso delle prove si dovranno caratterizzare i campi di temperatura e di pressione, oltre che il campionamento dei gas presenti nei due circuiti, con caratterizzazione della loro composizione.

Naturalmente tutte queste prove dovranno essere accompagnate da simulazioni teoriche, atte a caratterizzare il campo di temperatura nelle pastiglie e nelle guaine, oltre che la pressione e la composizione dei gas nei volumi di misura.

La logica con cui è stata delineata l'apparecchiatura si presta sia per lo studio sperimentale dei rilasci e dell'interazione refrigerante/guaina, ma anche per la validazione di strumenti teorici di modelli di comportamento del combustibile e guaina, se le prove sono accompagnate da verifiche dimensionali ed ispettive sul comportamento delle pastiglie ceramiche all'interno della camera di misura.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b> NNFISS – LP3 – 058	<b>Rev.</b> 0	<b>Distrib.</b> L	<b>Pag.</b> 25	<b>di</b> 40
--	---	------------------	----------------------	-------------------	-----------------

### 3. Conclusioni

Si è sviluppato un progetto concettuale per la realizzazione di un'apparecchiatura finalizzata allo studio del rilascio di prodotti gassosi per diffusione e permeazione attraverso una guaina, e per diffusione e migrazione in matrici sinterizzate all'interno di un volume di misura definito.

L'apparecchiatura progettata richiede l'impiego di un forno lineare di tipo commerciale, così come un forno fusorio ed una pompa per la ricircolazione del piombo liquido. Richiede altresì delle attrezzature di base tipiche dei laboratori di ricerca avanzata, quali un gascromatografo ed uno spettrometro di massa, un sistema di pompe per la realizzazione del vuoto in definiti volumi campione.

La strumentazione specifica dell'apparecchiatura è costituita da termocoppie per la misura delle temperature, trasduttori di pressione assoluta per la misura della pressione durante i transitori termici e di rilascio.

Apparecchiatura e circuiti si prestano per acquisire le competenze necessarie per caratterizzare la composizione di atmosfere gassose in presenza di elementi in traccia ed anche caratterizzare i fenomeni di trasporto dalle pastiglie sinterizzate alla camera di misura; di permeazione dalla guaina alla camera esterna.

La camera di misura è progettata in modo che sia intercambiabile con riferimento a diversi materiali di guaina e di pastiglie ed anche dimensioni.

## 4. Bibliografia

1. IAEA, Technical and economic limits to fuel burnup extension, IAEA-TECDOC-1299, July 2002
2. R.J.White,S.B.Fisher et. al., Measurement and analysis of fission gas release from BNFL's SBR MOX fuel, Journal of Nuclear Materials 288 (2001) 43-56
3. IAEA, Compilation and Evaluation of fission yield nuclear data, IAEA-TECDOC-1168, December 2000
4. WIMS-D Library Update, IAEA STI/PUB/1264, 2007
5. K. Katsuyama, A. Ishimi, K. Maeda, T. Nagamine, T. Asaga, Helium release from the uranium-plutonium mixed oxide (MOX) fuel irradiated to high burn-up in a fast breeder reactor (FBR) , Journal of Nuclear Materials 401 (2010) 86-90
6. D. R. Olander, Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements, Report TID-26711-P1.1976
7. Koo et al., COSMOS: a computer code to analyze LWR UO<sub>2</sub> and MOX fuel up to high burnup, annals of Nuclear Energy 26 (1999) 47-67
8. G.L. Hofman, Y. S., Kim, A classification of uniquely different types of nuclear fission gas behavior, Nuclear Technology, vol. 37, no.4, August 2005
9. M. Sarotto, C. Artioli et al., ELSY European Lead-cooled System, Report ENEA FPN-P9IX-006, 2009, Contract no. FI6W-036439, WP-2, Task 2.2
10. OECD/NEA, Handbook on Lead-bismuth Eutectic Alloy and Lead Properties, Materials Compatibility, Thermal-hydraulics and Technologies, Edizione 2007, ISBN 978-92-64-99002-9, NEA-6195
11. H.Kleykamp, Post-irradiation studies on LWR-MOX fuel fabricated by optimized co-milling process, Journal of Nuclear Materials 324 (2004) 198-202
12. D. Laux, D. Baron, G. Despaux, A.I. Kellerbauer, M. Kinoshita, Determination of high burn-up nuclear fuel elastic properties with acoustic microscopy, Journal of Nuclear Materials 420 (2012) 94-100
13. H. Kleykamp, The chemical state of the fission products in oxide fuels, Journal of Nuclear Materials 131 (1985) 221-246
14. TRENT-Incorporation, Electric Furnace, bollettino n.ro 20, **Website:** [www.trentheat.com](http://www.trentheat.com)
15. TRENT Incorporation, Electric Kettles and Melters, bulletin 52/62, **Website:** [www.trentheat.com](http://www.trentheat.com)

<b>ENEA</b>	<b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b> NNFISS – LP3 – 058	<b>Rev.</b> 0	<b>Distrib.</b> L	<b>Pag.</b> 27	<b>di</b> 40
-------------	----------------------------------	---	------------------	----------------------	-------------------	-----------------

16. T.J. Battisti, K.M. Goff, K.J. Bateman, M.F. Simpson, J.P. Lind, “Ceramic waste from production and development at ANL-West”, presentato al Quinto Topical Meeting dell’American Nuclear Society, Charleston, SC, 17-20 settembre 2002
17. D.R. Haefner e T.J. Tranter, *Methods of Gas Phase Capture of Iodine from Fuel Reprocessing Off-Gas: A Literature Survey*, INL/EXT-07-12299, febbraio 2007
18. U. Backman, M. Lipponen, R. Zilliacus, A. Auvinen, e J. Jokiniemi, “Ruthenium behaviour in severe nuclear accident conditions – progress report”, NKS-92, ISBN 87-7893-150-9, marzo 2004.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	28	40

## Appendice 1: Produzione e comportamento dei prodotti di fissione nei combustibili ad ossidi misti nei reattori LFR: stima del termine sorgente

Il tasso di combustione dei combustibili nucleari o *Burn-up* esprime l'energia rilasciata per effetto dei processi di fissione subiti, ed è espresso in energia rilasciata per unità di massa dei metalli fissili pesanti (GWd/tM), oppure in frazione percentuale di atomi fissili fissionati. Poiché per ogni evento di fissione si ha, prevalentemente, la formazione di due frammenti di fissione ed emissione di neutroni e radiazione gamma, la stima del termine di sorgente per i prodotti di fissione richiede necessariamente la caratterizzazione delle fissioni realizzate nel combustibile in termini sia di rateo che cumulate nel tempo. Richiede anche l'analisi delle rese (*yield*), in termini di tipologia dei prodotti di fissione, per ogni fissione.

In accordo con Olander<sup>1</sup> **la probabilità che un evento di fissione formi direttamente un radionuclide con numero atomico Z e numero di massa M è detta “resa di fissione indipendente” o “independent fission yield”**. Però lo stesso radionuclide può essere generato per trasmutazione di altri radionuclidi principalmente per decadimento beta. Questo contributo è da aggiungere a quello della resa diretta e quindi definire **la resa cumulativa dei prodotti di fissione**.

Indicando con  ${}_Z M^A$  un generico isotopo prodotto nella catena di decadimento dei prodotti di fissione, la resa cumulativa  $C_y$  è somma di tutte le rese indipendenti dei prodotti di fissione  $y_A$ :

$$(C_y)_{{}_Z M^A} = \sum_{Z'} (I_y)_{{}_Z' M^A} \quad (\text{A-1})$$

Per gli elementi stabili di una catena  $y_A$ :

$$y_A = (C_y)_{{}_Z M^A_{\text{finale}}} \quad (\text{A-2})$$

La produzione dei prodotti di fissione, in uno studio quantitativo, dipende:

- dai nuclei fissili presenti nel combustibile/materiale in esame;
- dallo spettro del campo neutronico che irraggia il combustibile, ovvero dal tipo di fissione associata all'interazione neutrone-isotopo fissile;
- dalla libreria utilizzata per descrivere le sezioni d'urto

Gli sforzi fatti dall' IAEA, a partire dal 1991, con il progetto di ricerca coordinato (*CRP Co-ordinated Research Project*) finalizzato alla compilazione e valutazione della resa di fissione, ha permesso di sistematizzare informazioni, metodi, dati nel documento IAEA-

<sup>1</sup> D. R. Olander, Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements, Report TID-26711-P1.1976.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	29	40

TECDOC-1168: “*Compilation and evaluation of fission yield nuclear data*”, del dicembre 2000<sup>2</sup>.

Gli isotopi fissili considerati appartengono al torio Th, protoattinio Pa, uranio U, nettunio Np, plutonio Pu, americio Am, curio Cm, californio Cf, einsteinium Es, fermium Fm.

Le fissioni sono classificate in spontanee S, termiche T (Energia media 0.025 Ev per i neutroni termalizzati a 20 °C), veloci o Fast F (energie medie dei neutroni tra 150-500 KeV e poco più di 1 Mev), con neutroni ad alta energia o High H (14-15 MeV). Le librerie di riferimento sono note come ENDF/B-VI (USA), JEF-2 (Gran Bretagna), CENDL (Cina).

I modelli considerati dall'IAEA sono di natura empirica e sono basati su dati misurati. Modelli importanti riguardano la distribuzione della massa dei prodotti di fissione per ogni potenziale radionuclide con carica nucleare Z, e poi la distribuzione della carica nucleare per ogni evento di fissione. Non trascurabile il problema della stima degli isomeri nei processi di fissione, soprattutto ai fini della stima del calore di decadimento. Si sottolinea che lo studio attento e corretto delle rese dei prodotti di fissione è importante nel progetto dei reattori nucleari e nella gestione dei rifiuti nucleari.

Lo spettro energetico dei neutroni di fissione è descritto con l'equazione di Watt:

$$\varphi(E) = 0.48 \exp(-E) \sinh(\sqrt{2E}) \quad (\text{A-3})$$

per E compreso tra 1 e 10 MeV.

Nella zona epitermica lo spettro è descritto con una legge del tipo 1/E, ovvero con la:

$$\varphi(E) = \frac{c}{E} \quad (\text{A-4})$$

infine in zona termica lo spettro è descritto con una maxwelliana.

La figura riporta la resa dei prodotti di fissione nel caso di uno spettro neutronico termico e veloce per l'U235 e il Pu 239.

<sup>2</sup> IAEA, COMPILATION AND EVALUATION OF FISSION YIELD NUCLEAR DATA IAEA, VIENNA, 2000, IAEA-TECDOC-1168, ISSN 1011-4289

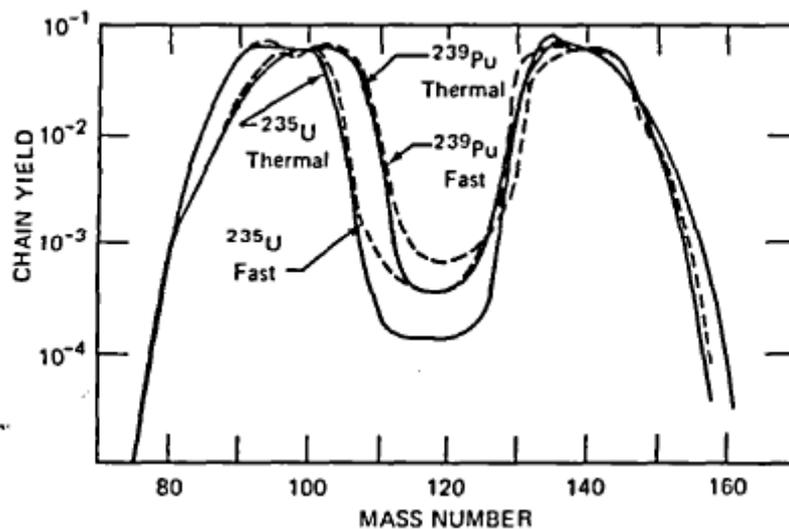


Figura A-1 Rese dei prodotti di fissione

### Processo di fissione e resa in prodotti di fissione

In letteratura<sup>3</sup> sono presenti diverse definizioni per esprimere la resa in prodotti di fissione.

- resa di fissione indipendente (%)**: numero di atomi di uno specifico radionuclide prodotto direttamente in 100 reazioni di fissione. In questa resa non si tiene conto dei nuclidi prodotti da decadimenti radioattivi).
- resa di fissione cumulativa (%)**: numero totale di atomi di uno specifico radionuclide, prodotti direttamente ed indirettamente in 100 reazioni di fissione.
- resa della catena o resa % espressa in numero di massa di un radionuclide**: somma delle rese cumulative dell'ultimo/ultimi membri della catena (stabile e/o a lunga vita). La resa espressa in numero di massa di un radionuclide è definita dalla somma di tutte le rese indipendenti dei radionuclidi di una catena.
- rapporti tra le rese indipendenti e/o cumulative e la resa della catena**.

Spesso si fa riferimento alla resa in frammenti di fissione (se non interessano le emissioni associate ai neutroni ritardati).

Si supponga di irraggiare un combustibile con flusso costante per un tempo di irraggiamento  $t_{irr}$ . Definito il rateo di fissione, la resa di fissione indipendente  $Y$  per la specie chimica  $i$ , è data da:

$$Y_i = \frac{1}{\dot{F}t_{irr}} \sum_A N_{i,A} \quad (\text{A-5})$$

<sup>3</sup> Compilation and Evaluation of fission yield nuclear data, IAEA-TECDOC-1168, December 2000

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	31	40

dove:

$N_{i,A}$  è la concentrazione della specie chimica  $i$  con numero di massa  $A$ .

Per ogni fissione si producono due prodotti di fissione, quindi:  $\sum_i Y_i = 2$

Ai fini del rilascio dei prodotti gassosi non sono da trascurare le fissioni ternarie, che oltre ai due frammenti di fissione generano trizio e particelle alfa.

Per valutare la resa totale per le particelle alfa e per il trizio dovuto alle fissioni ternarie si ha la correlazione di Nobles (1962):

$$Y = 0.561 \frac{Z^2}{A} - 18.229 \quad (\text{A-6})$$

riferita a 1000 fissioni.

Il termine  $Z^2/A$  è detto parametro di fissilità per il modello a goccia dell'atomo.

Un'altra correlazione è dovuta a Halpern (1971):

$$Y = m(A + \beta Z) \quad (\text{A-7})$$

dove:

$m = 0.125$  e  $\beta = -4$ .

Nel database UKFY2 le rese per fissione ternaria sono espresse con le:

$$Y(^4He) = 0.0647 \frac{Z^2}{A} - 2.1292 \quad (\text{A-8})$$

$$Y(^3H) = 0.06554(^4He) \quad (\text{A-9})$$

La metodologia più comune per valutare la resa isotopica nei frammenti di fissione nella fissione di U-233, U-238 e Th-232 in uno spettro neutronico veloce è di tener presente che la distribuzione dei frammenti di fissione può essere approssimata in modo sistematico con cinque funzioni gaussiane, di cui una con componenti simmetriche e quattro con componenti asimmetriche. Si ha:

$$\psi(A, E^*) = N_s \psi_s(A, E^*) + N_a \psi_a(A, E^*) \quad (\text{A-10})$$

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	32	40

dove:

$$\psi_a(A, E^*) = [\psi_{h1}(A, E^*) + \psi_{l1}(A, E^*) + F\{\psi_{h2}(A, E^*) + \psi_{l2}(A, E^*)\}] \quad (\text{A-11})$$

$N_s, N_a, F$  fattori di normalizzazione

Per la componente simmetrica e quelle asimmetriche delle componenti gaussiane si hanno le relazioni:

$$\psi_s(A, E^*) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_s} \exp\left(-\frac{(A - A_s)^2}{2\sigma_s^2}\right) \quad (\text{A-12})$$

**Per le componenti asimmetriche:**

$$\psi_{h1}(A, E^*) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{h1}} \exp\left(-\frac{(A - A_{h1})^2}{2\sigma_{h1}^2}\right) \quad (\text{A-13})$$

$$\psi_{h2}(A, E^*) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{h2}} \exp\left(-\frac{(A - A_{h2})^2}{2\sigma_{h2}^2}\right) \quad (\text{A-14})$$

Le funzioni  $\psi_{l1}(A, E^*)$  e  $\psi_{l2}(A, E^*)$  sono ottenute dalle  $\psi_{h1}(A, E^*)$  e  $\psi_{h2}(A, E^*)$  per riflessione attorno all'asse di simmetria.

Sia:

$A_f$  il numero di massa del nuclide fissile;

$E^*$  l'energia di eccitazione: somma dell'energia di legame BN e dell'energia della particella incidente (proiettile);

$\bar{\nu}$  numero medio di neutroni pronti per fissione;

si ha per gli scarti quadratici medi delle relazioni (A-12 – A-A-14) :

$$\bar{\nu}_s = 12.6$$

$$\sigma_{h1} = (-25.27 + 0.0345A_f + 0.21Z_f)(0.438 + E + 0.333BN^{0.333})^{0.0864} \quad (\text{A-15})$$

$$\sigma_{h2} = (-30.73 + 0.0394A_f + 0.285Z_f)(0.438 + E + 0.333BN^{0.333})^{0.0864} \quad (\text{A-16})$$

mentre i valori medi sono espressi con le:

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	33	40

$$A_{h1} = 0.5393(A_f - \bar{\nu}) + 0.01542A_f \left( 40.2 - \frac{Z_f^2}{A_f} \right)^{1/2} \quad (\text{A-17})$$

$$A_{h2} = 0.5612(A_f - \bar{\nu}) + 0.01910A_f \left( 40.2 - \frac{Z_f^2}{A_f} \right)^{1/2} \quad (\text{A-18})$$

## Produzione di elio nel combustibile

Il contributo delle fissioni ternarie è notevole nei MOX, ed in accordo a Rider<sup>4</sup> è stimato con la:

$$Q(\text{He}) = \sum \sigma_i \Phi N_i Y_i t \quad (\text{A-20})$$

dove:

Q(He) è la produzione nell'unità di volume da fissione ternaria nell'intervallo di tempo di irraggiamento t;

$\sigma_i$  è la sezione d'urto di fissione per l'isotopo fissile i;

$Y_i$  è la resa di elio per fissione ternaria;

$N_i$  è la densità atomica di atomi fissili i

$\Phi$  è il flusso neutronico

Il contributo dovuto ai decadimenti alfa e alle reazioni (n, $\alpha$ ) è calcolato per esempio con il codice ORIGEN-2.

## Abbreviazioni ed acronimi

Fission Product	FP
International Atomic Energy Agency	IAEA
Liquid Metal Fast Reactor	LMFBR
Lead Fast Reactor	LFR
Mixed Oxid Fuel	MOX

<sup>4</sup> B. F. Rider, Compilation of fission product yields, NEDO-12124-3(C), General Electric Co, 1981

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP3 – 058	0	L	34	40

## **Appendice 2: Il dispositivo sperimentale OGATA (Off-GAs Treatment Apparatus) per la cattura di sostanze volatili**

Presso il Centro Ricerche Casaccia dell'ENEA è stata avviata la realizzazione di un impianto pilota, denominato OGATA (Off-GAs Treatment Apparatus), per l'esecuzione di alcune prove sperimentali finalizzate alla cattura di elementi volatili, individuando i parametri di prova.

L'impianto consta essenzialmente di due fornetti: il primo, operante quale generatore di elementi e/o sostanze volatili; il secondo, quale "trappola" ad alta temperatura per la "cattura" di tali sostanze (Figura A-2).

E' possibile, con tale impianto, eseguire esperienze su Cesio [16], Iodio [17], e Rutenio [18].

### Cesio

Nel primo fornello viene posto del cesio cloruro, riscaldato a temperature fra 450 e 600 °C; la sostanza volatile, spinta da un gas, passa attraverso un tubo in acciaio inox e raggiunge un secondo fornello contenente Zeolite 4A in pellets (Figura A-3), mantenuta alla temperatura di 500 °C. Tale zeolite è in grado di trattenere il cesio volatile, anche se una quota parte può oltrepassarla e raggiungere una soluzione acquosa di soda 1M, capace di trattenere il residuo (Figura A-4). A valle del sistema una pompa provvede a creare un vuoto che favorisce il flusso del gas.

### Iodio

Nel primo fornello viene posto ioduro di potassio, riscaldato a temperature fra 450 e 600 °C; il secondo fornello, mantenuto a 500 °C, contiene invece una zeolite, mordenite, rivestita di argento, con cui lo iodio gassoso forma il rispettivo ioduro. A valle dell'impianto viene collegata anche in questo caso una bottiglia contenente soluzione di soda 1M, per trattenere lo iodio residuo.

### Rutenio

In un fornello viene posto ossido di rutenio, riscaldato ad una temperatura di circa 1200 °C. A differenza degli esperimenti precedenti, la sostanza volatile attraversa un tubo in acciaio (Figura A-5) fino a raggiungere direttamente una bottiglia contenente una soluzione acquosa di NaOH 1M, in grado di trattenere il metallo.

In tutte le esperienze sommariamente descritte si può utilizzare argon o aria quale gas di trasporto, al fine di valutare le eventuali differenze. Un altro parametro di interesse è il flusso del gas, come pure la temperatura del primo fornello, nonché la durata dell'esperimento (prevista fra 30 e 60 minuti).

Figura A-2 – Particolari dell’impianto OGATA



Primo fornello e pompa da vuoto



Fornello con t max di 1200°C



Trappola con zeolite

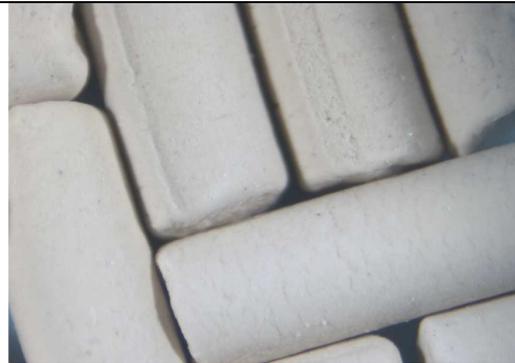


Particolari della trappola con zeolite

Figura A-3 - Zeolite 4A



Granuli di zeolite 4A allo stereomicroscopio



Granuli di zeolite 4A allo stereomicroscopio



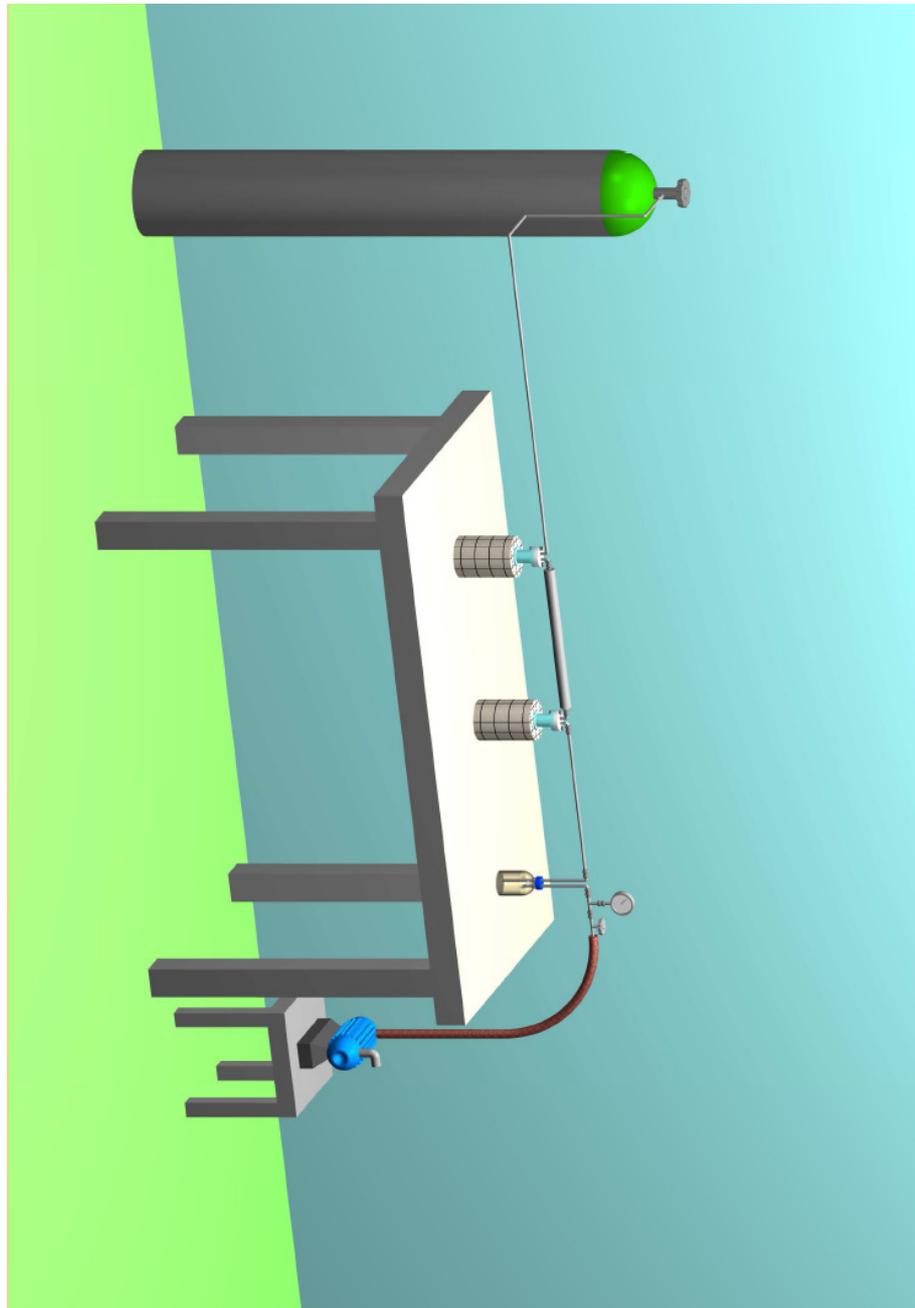
Figura A-4. Bottiglie contenenti soluzioni di NaOH 1M

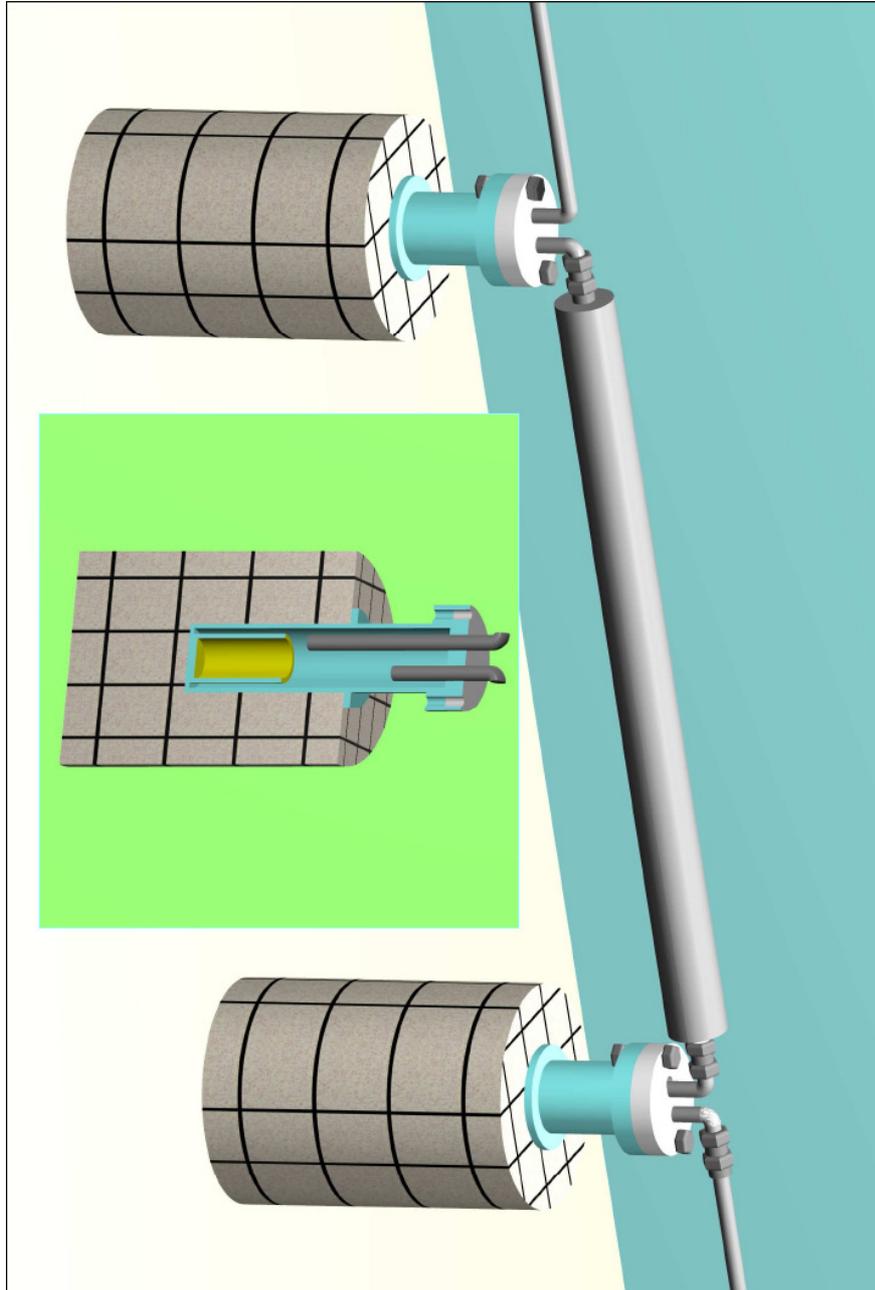


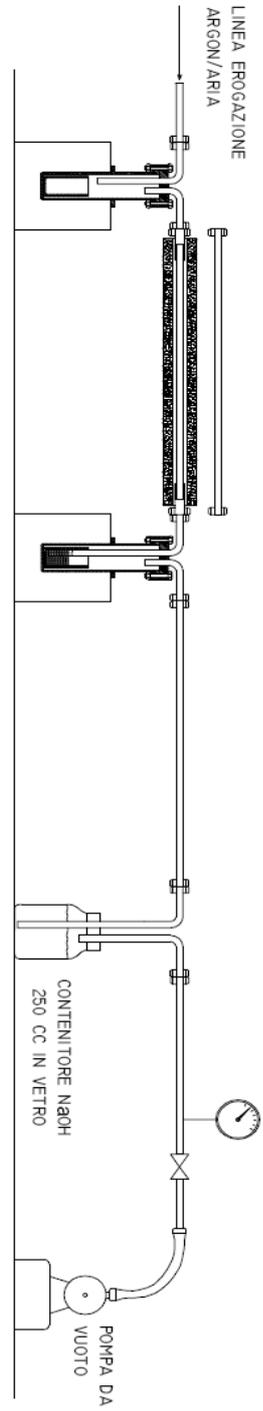
Figura A-5. Tubo in acciaio per il passaggio di rutenio volatile

Nelle pagine seguenti sono riportati alcuni disegni costruttivi dell'impianto OGATA, con i vari componenti e le relative dimensioni.

### Disegni costruttivi dell'impianto OGATA







IMPIANTO SPERIMENTALE OGATA - assemblaggio linee di flusso -

