



Ricerca di Sistema elettrico

Sicurezza Intrinseca di Elementi di Combustibile Irraggiati

F. Rocchi, A. Guglielmelli, R. Pergreffi

SICUREZZA INTRINSECA DI ELEMENTI DI COMBUSTIBILE IRRAGGIATI

F. Rocchi, A. Guglielmelli, R. Pergreffi - ENEA

Settembre 2016

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico - ENEA

Piano Annuale di Realizzazione 2015

Area: Produzione di energia elettrica e protezione dell'ambiente

Progetto: Sviluppo competenze scientifiche nel campo della sicurezza nucleare e collaborazione ai programmi internazionali per il nucleare di IV Generazione

Obiettivo: Sviluppo competenze scientifiche nel campo della sicurezza nucleare

Responsabile del Progetto: Felice De Rosa, ENEA

Titolo

Sicurezza intrinseca di elementi di combustibile irraggiati

Descrittori

Tipologia del documento: Rapporto Tecnico

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

Argomenti trattati: Calcoli di bruciamento di un FA, decadimento, sorgente fotonica e rateo di dose

Sommario


Viene presentata un'analisi completa delle proprietà di sicurezza intrinseca di un elemento di combustibile PWR UOX nudo, irraggiato a 33 GWd/MTU e lasciato decadere per 30 anni, in termini di rateo di dose gamma ad un metro di distanza. Il rateo di dose risulta da 2 a 3 volte inferiore rispetto a quello disponibile in letteratura e valutato circa 20 anni fa. Vengono infine presentate alcune considerazioni fisiche sull'ottimizzazione del calcolo di rateo di dose in funzione della struttura a gruppi della sorgente fotonica.

Autori: A. Guglielmelli, R. Pergreffi, F. Rocchi

Copia n.


In carico a:

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	19/09/2016	NOME	F. Rocchi	F. Padoani	F. De Rosa
			FIRMA	<i>Federico Rocchi</i>	<i>F. Padoani</i>	<i>F. De Rosa</i>
REV.	DESCRIZIONE	DATA		REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	2	32

Indice

1. Introduzione.....	3
2. Proprietà di autoprotezione di un FA bruciato	3
3. Benchmark AFCS.....	4
4. Alcune osservazioni sui fattori di conversione da utilizzare per il calcolo del rateo di dose	7
5. Strategie di calcolo ENEA	10
6. Risultati del bruciamento.....	17
7. Risultati del decadimento	18
8. Risultati per il rateo di dose	24
9. Modello analitico semplificato per il calcolo del rateo di dose.....	28
Riferimenti.....	32
Ringraziamenti.....	32

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	3	32

1. Introduzione

Il Gruppo di Lavoro **Advanced Fuel Cycle Scenarios (AFCS)** della Nuclear Energy Agency dell'OECD, di cui anche ENEA fa parte, sta svolgendo da alcuni mesi attività di ricerca finalizzata allo studio delle proprietà di autoprotezione degli elementi di combustibile (fuel assembly, FA) di reattori LWR, bruciati, lasciati decadere, ed infine stoccati, al fine di determinare se il rateo di dose ad un metro di distanza dall'elemento nudo sia sufficientemente alto, anche dopo molti anni di decadimento, da costituire una barriera contro la diversione dell'elemento stesso e dunque rappresentare in pieno una caratteristica di sicurezza (in senso di security) intrinseca per il materiale in esso contenuto. E' infatti emerso recentemente che le valutazioni di rateo di dose fatte negli anni '90, ed alla base della normativa di riferimento per l'applicazione delle salvaguardie contro la diversione per gli elementi bruciati, erano state prodotte con metodologie di calcolo estremamente conservative, derivate dall'approccio tipico della radioprotezione, ed affette da sovrastima che è stata preliminarmente valutata in un fattore almeno 2 rispetto ai valori reali. Se da un lato tale sovrastima è utile ai fini della protezione fisica delle persone e/o degli operatori impegnati nella manipolazione degli elementi bruciati, dall'altro costituisce un indebolimento della barriera contro la diversione precedentemente menzionata. Scopo di questo rapporto è presentare lo stato dell'arte della questione, mostrare le attività di calcolo e valutazione effettuate da ENEA, ed i risultati ottenuti sinora.

2. Proprietà di autoprotezione di un FA bruciato

Un FA bruciato che abbia raggiunto la condizione di fine vita viene dapprima stocato nella piscina del combustibile del reattore ove è stato utilizzato, tipicamente per tempi tali da raggiungere un valore sufficientemente basso della potenza di decadimento, tale da consentirne il trasferimento o lo stoccaggio a secco, e poi, qualora il sito lo consenta, estratto, allo scopo di liberare la piscina, e stocato in un sito intermedio ("interim storage") prima del suo destino finale. In molti casi i tempi di permanenza nella piscina del reattore sono non inferiori ai 5 anni, mentre i tempi di permanenza nei siti intermedi possono arrivare anche a 20 o 30 anni. Dopo 20 o 30 anni, tuttavia, il decadimento dei prodotti di fissione può essere stato tale da ridurre notevolmente le emissioni neutroniche e gamma di un dato FA; assieme a tale riduzione si assiste anche ad una modifica sostanziale ed importante dello spettro fotonico associato, di modo che il rateo di dose ad un metro di distanza dal FA risulta notevolmente ridotto. L'IAEA e l'US-NRC [1] considerano sufficiente come barriera intrinseca di autoprotezione per un FA un rateo di dose gamma ad un metro di 1 Sv/h. Tale valore è anche quello preso come riferimento dalla National Academy of Sciences (NAS) americana [2] come condizione per cui il plutonio contenuto nel FA diviene non accessibile o comunque molto poco attraente per attività di diversione.

Sulla base di uno studio condotto nel 1994 [3], i valori tipici del rateo di dose gamma, calcolato per un FA PWR UOX bruciato e lasciato decadere per 30 anni, erano stati internazionalmente assunti tra 13.0 e 15.2 Sv/h circa, quindi ampliamenti eccedenti il valore di sicurezza di 1 Sv/h.

Recenti calcoli svolti da CEA ed ANL [4] hanno tuttavia messo in dubbio la validità di tali stime che sembrano essere da due a tre volte più grandi rispetto ai valori effettivi.

Per dare un ulteriore esempio numerico, nella seguente Tabella 1 vengono riportati i valori calcolati per il rateo di dose gamma e neutronica per un FA MOX di reattore PWR irraggiato a 45 GWd/MTU e poi fatto decadere per un certo numero di anni. Come si può vedere, tranne che per un FA MOX fresco, il contributo del rateo di dose neutronica al rateo di dose totale è sempre trascurabile rispetto al contributo gamma. Il rateo di dose totale può dunque essere approssimato dal solo rateo gamma senza commettere errore significativo.

Tabella 1. Ratei di dose da un FA MOX PWR irraggiato.

Tempo di decadimento (y)	FA fresco	FA PWR MOX irraggiato a 45 GWd/MTU			
	N/A	0.5	3	10	30
Rateo di dose neutronica ($\mu\text{Sv/h}$)	1.62E+02	2.75E+04	2.05E+04	1.56E+04	7.43E+03
Rateo di dose gamma ($\mu\text{Sv/h}$)	5.48E+01	2.37E+08	4.91E+07	1.44E+07	6.37E+06
Rateo di dose totale ($\mu\text{Sv/h}$)	2.17E+02	2.37E+08	4.92E+07	1.44E+07	6.38E+06

Emerge inoltre con chiarezza come il rateo di dose non ecceda i 6.4 Sv/h e sia dunque decisamente inferiore ai 13.0 Sv/h assunti in passato a riferimento.

Da queste discrepanze nasce pertanto la necessità di effettuare nuovi ed accurati calcoli finalizzati all'assessment, per quanto possibile preciso, del rateo di dose, al fine di verificare se siano ancora valide, e con quale margine, le proprietà di autoprotezione di un FA bruciato, specialmente se lasciato decadere per molti anni.


3. Benchmark AFCS

Il gruppo di lavoro AFCS della NEA ha proposto lo svolgimento di un benchmark, suddiviso in varie parti, finalizzato al calcolo del rateo di dose gamma ad un metro di distanza dal centro di un FA bruciato e fatto decadere.

La prima parte di tale benchmark, i cui risultati per parte ENEA sono l'oggetto di questo Rapporto Tecnico, consiste nel bruciare un FA PWR UOX, farlo decadere per 30 anni, valutare l'intensità dell'emissione gamma di decadimento, lo spettro fotonico associato, ed infine la dose gamma ad un metro di distanza dal centro del FA, vedi Fig. 1.

Le specifiche del benchmark sono declinate come segue:

- FA PWR UOX 15x15
- 17 tubi guida
- Arricchimento: 3.11 w%
- Burnup: 33 GWd/MTU
- Tempo di decadimento: 30 anni
- Contenuto iniziale di ^{234}U : 303 ppm
- Temperatura del combustibile supposta uniforme e costante: 821°C

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	5	32

- Temperatura del cladding supposta uniforme e costante: 342°C
- Temperatura dell'acqua supposta uniforme e costante: 305.6°C
- Pressione dell'acqua: 155 bar
- Contenuto di boro nell'acqua supposto costante: 456 ppm
- Potenza specifica di bruciamento supposta costante: 48 W/g
- Diametro interno/esterno dei tubi guida: 1.242 cm / 1.382 cm
- Diametro della pastiglia di combustibile: 0.925 cm
- Diametro interno del cladding: 0.9398 cm
- Diametro esterno del cladding: 1.0668 cm
- Pitch delle pin: 1.4224 cm
- Altezza attiva: 365.76 cm
- Pitch dell'assembly: 21.4 cm
- Lamina d'acqua: 0.064 cm
- Densità UO₂: 10.412 g/cm³
- Massa totale iniziale di metalli pesanti: 469.22 kg

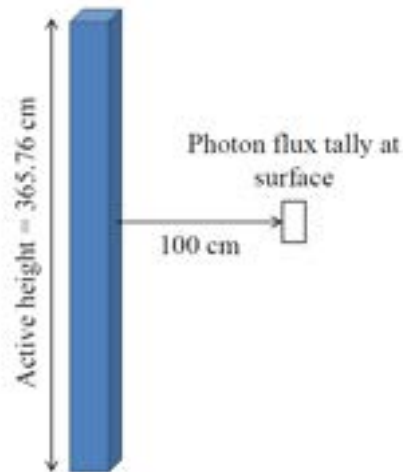


Fig. 1 Schema del FA irraggiato e del punto di calcolo del rateo di dose.

Si ipotizza inoltre un bruciamento uniforme nelle tre dimensioni del FA. Uno schema della geometria del FA in questione è mostrato in Fig. 2.

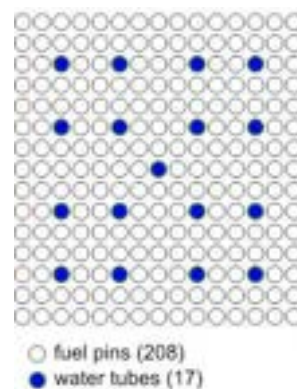



Fig. 2. Schema del FA irraggiato.

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	6	32

Il benchmark richiede di calcolare le seguenti quantità:


1) Masse in grammi dei seguenti metalli pesanti a EOL:

U-234	Am-241
U-235	Am-242
U-236	Am-242m
U-237	Am-243
U-238	Am-244
Np-236	Cm-242
Np-236m	Cm-243
Np-237	Cm-244
Np-238	Cm-245
Np-239	Cm-246
Pu-236	Cm-247
Pu-237	Cm-248
Pu-238	Bk-249
Pu-239	Cf-249
Pu-240	Cf-250
Pu-241	Cf-251
Pu-242	Cf-252
Pu-243	
Pu-244	

2) Masse in grammi dei seguenti prodotti di fissione a EOL:

Kr-83	Pm-147
Rh-103	Pm-148
Rh-105	Pm-149
Ag-109	Sm-147
I-135	Sm-149
Xe-131	Sm-150
Xe-135	Sm-151
Cs-133	Sm-152
Cs-134	Eu-153
Cs-135	Eu-154
Cs-137	Eu-155
Ba-137m	Eu-156
Ba-140	Gd-155
La-140	
Nd-143	
Nd-145	
Nd-148	

3) Masse in grammi dei seguenti metalli pesanti dopo 30 anni di decadimento:

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	7	32

U-234	Am-241
U-235	Am-242
U-236	Am-242M
U-237	Am-243
U-238	Am-244
Np-237	Cm-244
Pu-238	Cm-245
Pu-239	Cf-251
Pu-240	Cf-252
Pu-241	
Pu-242	

4) Masse in grammi dei seguenti prodotti di fissione dopo 30 anni di decadimento:

Sr-90
Y-90
Cs-137
Ba-137m
Sm-154
Eu-153
Eu-154
Eu-155

5) Intensità di emissione fotonica dopo 30 anni di decadimento, secondo una struttura energetica a gruppi scelta dal partecipante.

6) Intensità di emissione fotonica totale dopo 30 anni di decadimento.

7) Calcolo della dose gamma (Sv/h) associata all'emissione fotonica dopo 30 anni di decadimento, usando i due seguenti fattori di conversione flusso/rateo di dose:

ANSI/ANS-6.1.1-1977
ANSI/ANS-6.1.1-1991

4. Alcune osservazioni sui fattori di conversione da utilizzare per il calcolo del rateo di dose

In merito ai fattori di conversione flusso fotonico / rateo di dose specifici per il benchmark, occorre precisare che la normativa di riferimento statunitense attualmente valida è quella del 1977, i cui fattori erano stati valutati ricorrendo ad un cilindro di acqua (tessuto-equivalente) di 30 cm di diametro e 60 cm di lunghezza. I coefficienti proposti nel 1991 erano invece stati calcolati ricorrendo a modelli computerizzati del corpo umano; tali coefficienti sono disponibili per diverse geometrie di irraggiamento rispetto al corpo umano

stesso: antero-posteriore (AP), postero-anteriore (PA), laterale (LAT), rotatoria (ROT), isotropa (ISO). I coefficienti richiesti dal benchmark sono quelli antero-posteriori, nell'ipotesi che il diversore del FA sia prevalentemente affacciato al FA stesso.

La proposta di coefficienti di conversione del 1991 non è mai stata tramutata in normativa e dunque ufficialmente è ancora in vigore la versione del 1977.

In Fig. 3 sono riportate 4 delle 5 possibili configurazioni geometriche di irraggiamento della proposta di normativa del 1991.

In Fig. 4 sono graficati al variare dell'energia tre set di coefficienti di conversione: quello ANSI/ANS del 1977, quello ANSI/ANS del 1991, e quello dell'ICRP-21. Si può notare come per alte energie ($E > 0.5$ MeV circa) i tre set coincidano; ANSI/ANS del 1977 ed ICRP-21, sebbene numericamente un po' diversi alle basse energie, presentano la caratteristica comune di avere un minimo attorno a 0.06 MeV, per poi risalire alle basse energie; ANSI/ANS del 1991 decresce sempre al decrescere dell'energia. Notando che la scala delle ordinate è logaritmica si può concludere che occorre valutare con precisione l'emissione fotonica sopra 0.4 MeV e sotto 0.02 MeV circa. Se anche la zona energetica intermedia è affetta da un piccolo errore, la sua propagazione alla valutazione della dose sarà minima. Considerando poi che fotoni di energia inferiore a 0.02 MeV sono particolarmente soggetti all'autoschermo da parte della matrice di UO₂, e dunque difficilmente saranno emessi dal combustibile, si può concludere che la zona energetica di effettivo interesse è quella al di sopra di 0.4 MeV. In Fig. 5 è riportato, per il solo U, il coefficiente di attenuazione massica per i fotoni al variare dell'energia; il contributo dell'ossigeno nella miscela UO₂ all'assorbimento dei fotoni di bassa energia è minore rispetto a quello di U, data la forte differenza di numero atomico Z tra i due atomi. In ogni caso è possibile considerare la presenza dell'ossigeno in maniera esatta (vedi Par. X).

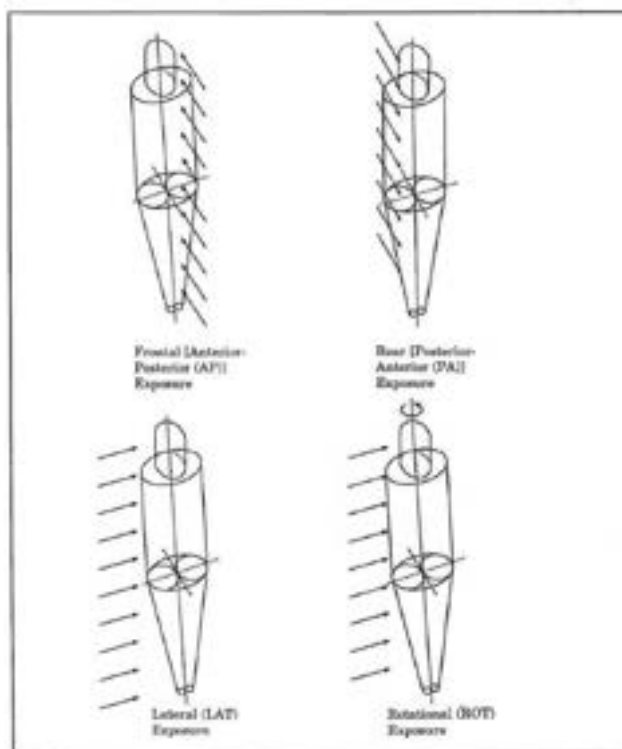


Fig. 3. Quattro schemi di irraggiamento secondo ANSI/ANS-6.1.1-1991.

In definitiva si può dire che ai fini della valutazione della dose fotonica operano congiuntamente due operatori di convoluzione (autoschermo del fuel e coefficiente di dose) che filtrano lo spettro (filtro passa alto) fotonico lasciando operare solo quelli al di sopra di 0.4 MeV circa.

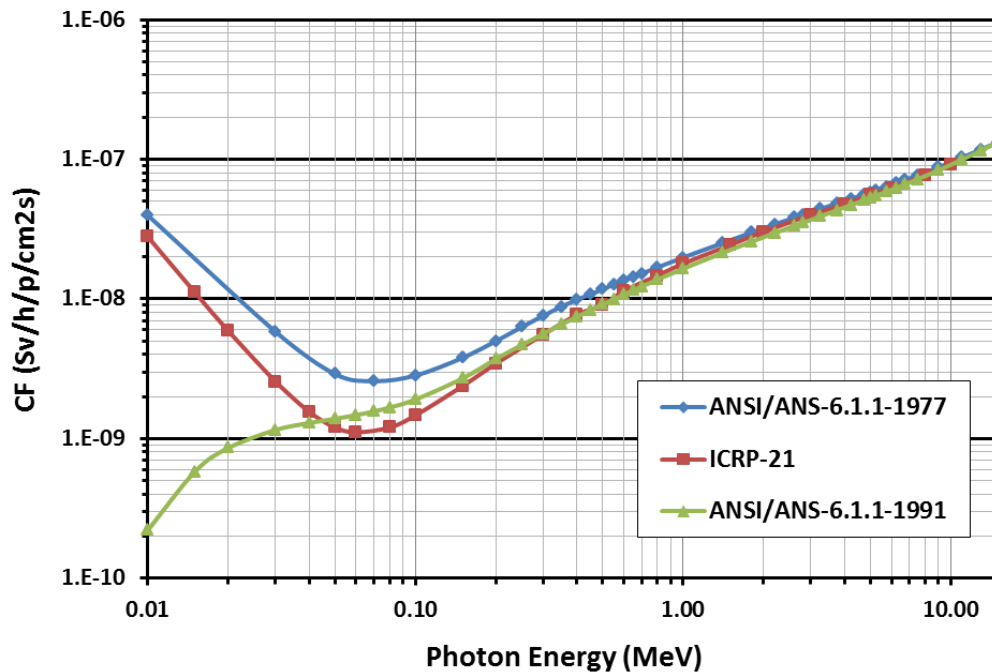


Fig. 4. Andamento in funzione dell'energia di tre set di fattori di conversione flusso / rateo di dose.

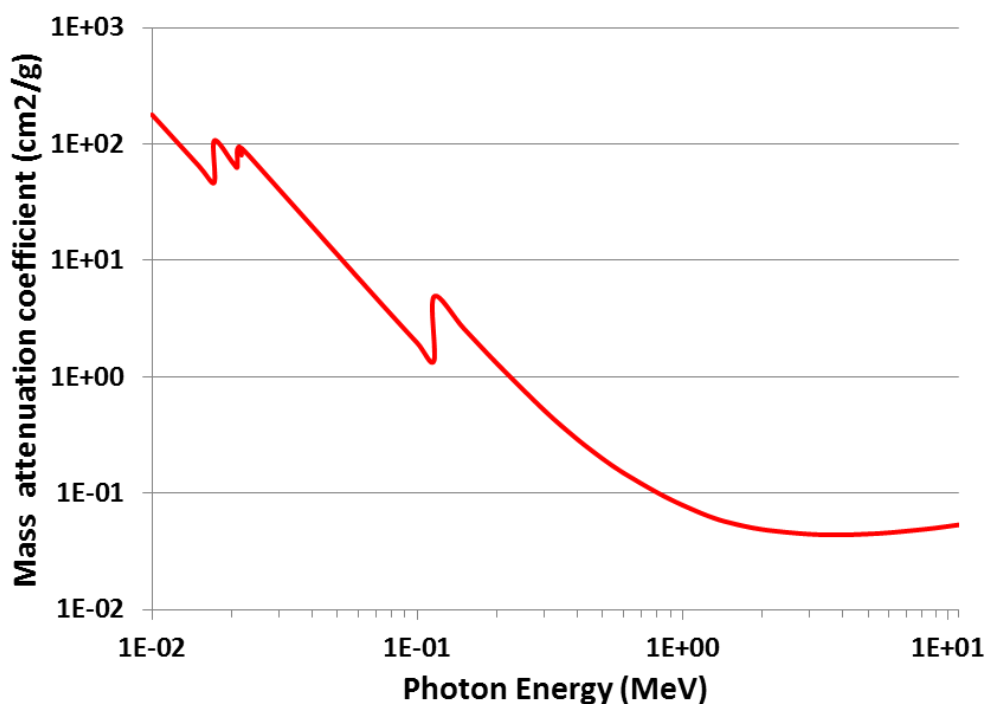


Fig. 5. Coefficiente di attenuazione fotonica massica di U.

5. Strategie di calcolo ENEA

Il problema viene decomposto nelle sue tre parti elementari costitutive: bruciamento, decadimento e calcolo dell'emissione fotonica, trasporto fotonico e calcolo del rateo di dose. Al fine di mettere a confronto le performance di vari codici, è stato deciso di adottare 5 diversi percorsi di calcolo come dettagliato nella seguente Tab.1.

Tabella 2. Matrice di calcolo ENEA.

CASE PHASE	1	2	3	4	5
Burn-up & Depletion	Apollo2 CEA 2D Det	NEWT SCALE T-Depl 2D Det	Serpent2 VTT 2D ce MC	KENO-VI SCALE T6-Depl 3D mg MC	Origen-ARP SCALE 0D Det
Decay & Photon Source	Origen-S	Origen-S	Origen-S	Origen-S	
Photon Transport	MCNPX	MCNPX	MCNPX	MCNPX	MCNPX

Come si può vedere, il trasporto fotonico ed il calcolo del rateo di dose è sempre affidato ad MCNPX (montecarlo continuous-energy 3D sviluppato da LANL). Il calcolo del decadimento e dell'emissione fotonica è affidato o ad Origen-S (bruciamento 0D della suite Scale) od ad Origen-ARP (bruciamento 0D della suite Scale con sezioni d'urto efficaci precalcolate). Il calcolo di bruciamento è invece affidato o ad Apollo2 (codice 2D deterministico sviluppato da CEA), o a NEWT (codice 2D deterministico della suite Scale 6.3.1), o a Serpent2 (codice montecarlo 2D sviluppato da VTT), o a Keno-VI (codice montecarlo multigruppo 3D della suite Scale 6.1.3), o, infine, ad Origen-ARP (bruciamento 0D della suite Scale 6.3.1).

I calcoli con Apollo2 sono stati realizzati ricorrendo alla libreria a 281 gruppi con struttura SHEM CEA2005V4.1.2.patch, basata su JEFF 3.1.1. Il metodo di calcolo è stato quello delle Probabilità di Collisione, suddividendo il fuel in 4 zone concentriche pari al 50%, 30%, 15% e 5% dell'area della pin. Il modello utilizzato per l'autoschermo è il TR, tenendo in conto gli isotopi U238, U235, Pu239 e Pu240. La catena di decadimento standard è stata incrementata, a causa della richiesta esplicita del Benchmark di valutare anche attinidi minori ad alto numero di massa, mediante due procedure, una sviluppata dal CEA per Bk249, Cf249, Cf250, Cf251 e Cf252, ed una sviluppata appositamente da ENEA per Np236, Pu237, Pu243 ed Am241. Ogni 3 step di bruciamento, riportati in Tab. 3, è stato ricalcolato l'autoschermo.


 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	11	32

Tabella 3. Step di bruciamento per Apollo2.

No.	Step	Burn-up MWd/tU	No.	Step	Burn-up MWd/tU	No.	Step	Burn-up MWd/tU
1	1	9.375	10	1	1000	19	1	8000
2	1	18.75	11	1	1500	20	1	10000
3	1	37.5	12	1	2000	21	1	12000
4	1	75	13	1	2500	22-24	3	18000
5	1	112.5	14	1	3000	25-27	3	24000
6	1	150	15	1	4000	28-30	3	30000
7	1	325	16	1	5000	31	1	33000
8	1	500	17	1	6000			
9	1	750	18	1	7000			

I calcoli con NEWT sono stati fatti usando la libreria V7-238 basata su ENDF/B-VII.0. L'area del fuel è stata suddivisa in 5 zone concentriche equivolumiche, come vuole la Fisica del Reattore di base. Il processamento delle sezioni d'urto è avvenuto mediante il modulo CENTRM (Bonami per il range delle risonanze non risolte e Centrm-PMC per le risonanze risolte); il modello geometrico per l'autoschermo è stato il multi-region cilindrico. Le catene di decadimento sono state le più estese possibili (addnux=4, 230 nuclidi). Sono stati usati 62 step di bruciamento, vedi Tab. 4, ad ognuno dei quali è stato ricalcolato l'autoschermo.

Tabella 4. Step di bruciamento per NEWT.

Step	Cumulative Burn-up	Step	Cumulative Burn-up
[-]	[MWd/tU]	[-]	[MWd/tU]
1	3.1	32	1500.0
2	6.2	33	1750.0
3	9.4	34	2000.0
4	12.5	35	2250.0
5	15.6	36	2500.0
6	18.7	37	2750.0
7	25.0	38	3000.0
8	31.2	39	3500.0
9	37.5	40	4000.0
10	50.0	41	4500.0
11	62.5	42	5000.0
12	75.0	43	5500.0
13	87.5	44	6000.0
14	100.0	45	6500.0
15	112.5	46	7000.0
16	125.0	47	7500.0
17	137.5	48	8000.0
18	150.0	49	9000.0
19	208.3	50	10000.0
20	266.7	51	12000.0

21	325.0	52	14000.0
22	383.3	53	16000.0
23	441.7	54	18000.0
24	500.0	55	20000.0
25	583.3	56	22000.0
26	666.7	57	24000.0
27	750.0	58	26000.0
28	833.3	59	28000.0
29	916.7	60	30000.0
30	1000.0	61	32000.0
31	1250.0	62	33000.0

In Fig. 6 è riportata la mappa di flusso termico a BOL valutata da NEWT.

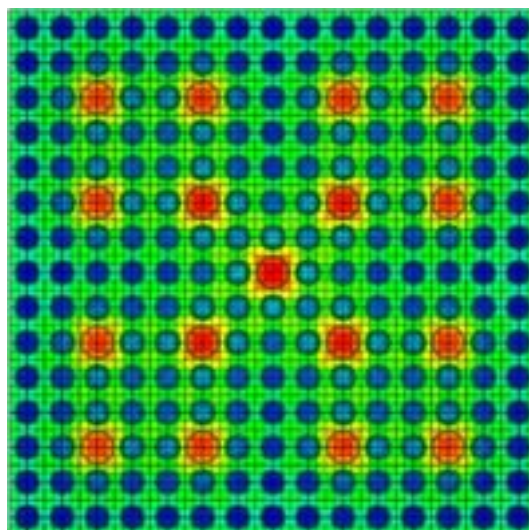


Fig. 6. Mappa di flusso termico a BOL di NEWT.

Per Serpent2 le sezioni d'urto in formato ACE utilizzate sono basate su ENDF/B-VII.0. La regione di fuel è stata modellizzata come un solo volume. E' stata utilizzata un'appropriata libreria di dati di scattering termico per l'acqua. Sono stati usati 300 cicli di calcolo, i primi 50 tralasciati, ognuno con 150000 particelle. Le equazioni di Bateman sono state risolte con il metodo CRAM, su un totale di 32 step di bruciamento (metodo predictor/corrector ad ogni step), come in Tab. 5. In Fig. 7 è riportata la mappa di flusso termico valutata da Serpent2 a BOL.

Tab. 5. Step di bruciamento per Serpent2.

Step	Cumulative Burn-up	Step	Cumulative Burn-up
[-]	[MWd/tU]	[-]	[MWd/tU]
1	9.4	17	6000.0
2	18.7	18	7000.0
3	37.5	19	8000.0
4	75.0	20	10000.0
5	112.5	21	12000.0
6	150.0	22	14000.0

7	325.0	23	16000.0
8	500.0	24	18000.0
9	750.0	25	20000.0
10	1000.0	26	22000.0
11	1500.0	27	24000.0
12	2000.0	28	26000.0
13	2500.0	29	28000.0
14	3000.0	30	30000.0
15	4000.0	31	32000.0
16	5000.0	32	33000.0

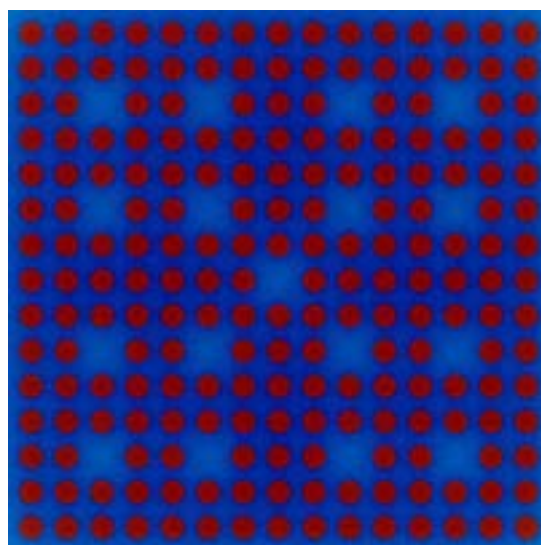


Fig. 7. Mappa di flusso termico valutata da Serpent2 a BOL.

I calcoli con Keno-VI multigruppo sono stati eseguiti con le stesse opzioni di autoschermo di NEWT. Sono stati implementati 300 cicli, 50 dei quali esclusi, da 150000 particelle ciascuno per ogni step di bruciamento. Sono stati implementati 32 step di bruciamento, per ognuno dei quali è stato rivalutato l'autoschermo. In Tab. 6 sono riportati gli step di bruciamento.

Tabella 6. Step di bruciamento per Keno-VI.

Step	Cumulative Burn-up	Step	Cumulative Burn-up
[-]	[MWd/tU]	[-]	[MWd/tU]
1	9.4	17	6000.0
2	18.7	18	7000.0
3	37.5	19	8000.0
4	75.0	20	10000.0
5	112.5	21	12000.0
6	150.0	22	14000.0
7	325.0	23	16000.0
8	500.0	24	18000.0
9	750.0	25	20000.0
10	1000.0	26	22000.0
11	1500.0	27	24000.0
12	2000.0	28	26000.0

13	2500.0	29	28000.0
14	3000.0	30	30000.0
15	4000.0	31	32000.0
16	5000.0	32	33000.0

In Fig. 8 sono riportati gli andamenti a BOL ed EOL del flusso per unità di letargia.

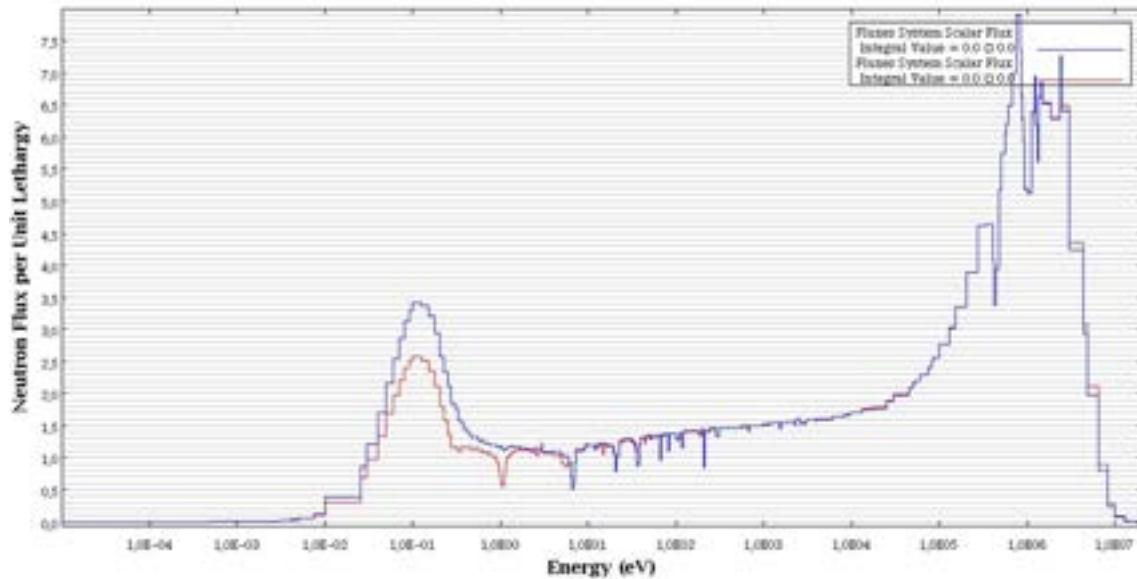


Fig. 8. Flusso per unità di letargia a BOL (blu) e ad EOL (rosso).

In Fig. 9 e 10 sono riportate le reaction rate di assorbimento e fissione rispettivamente.

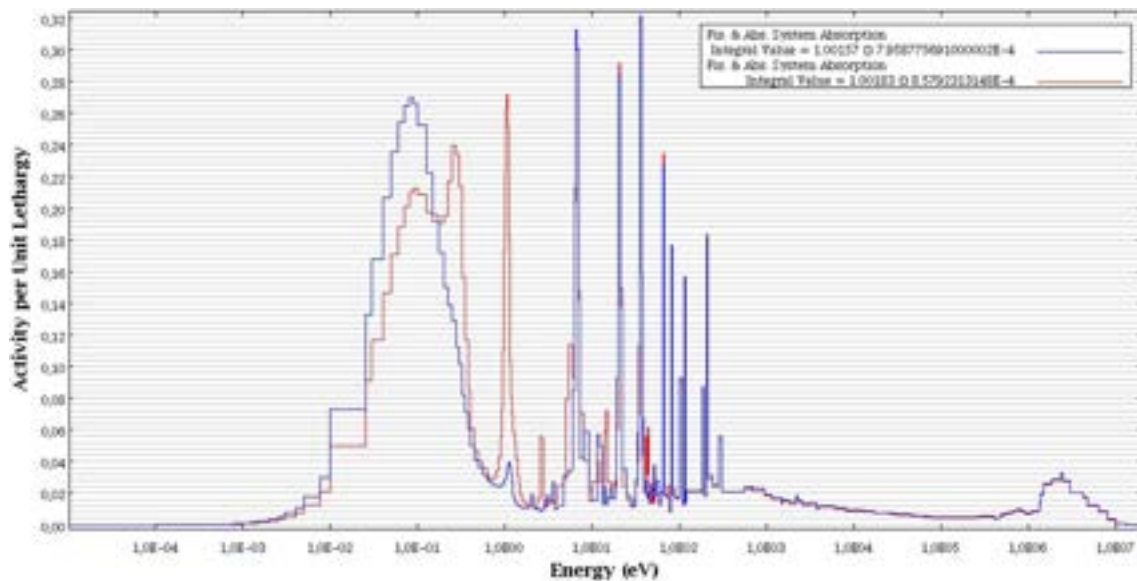


Fig. 9. Reaction rate di assorbimento per unità di letargia a BOL (blu) e ad EOL (rosso).

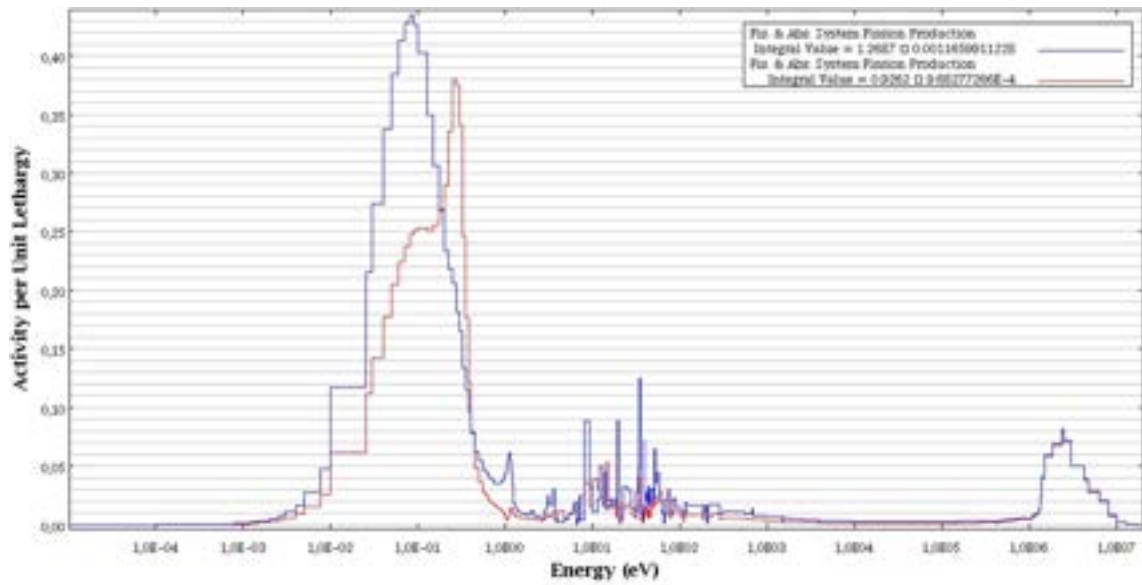


Fig. 10. Reaction rate di fissione per unità di letargia a BOL (blu) e ad EOL (rosso).

In Fig. 11 sono riportati gli andamenti di k_{inf} per i quattro codici di trasporto menzionati; sono essenzialmente equivalenti.

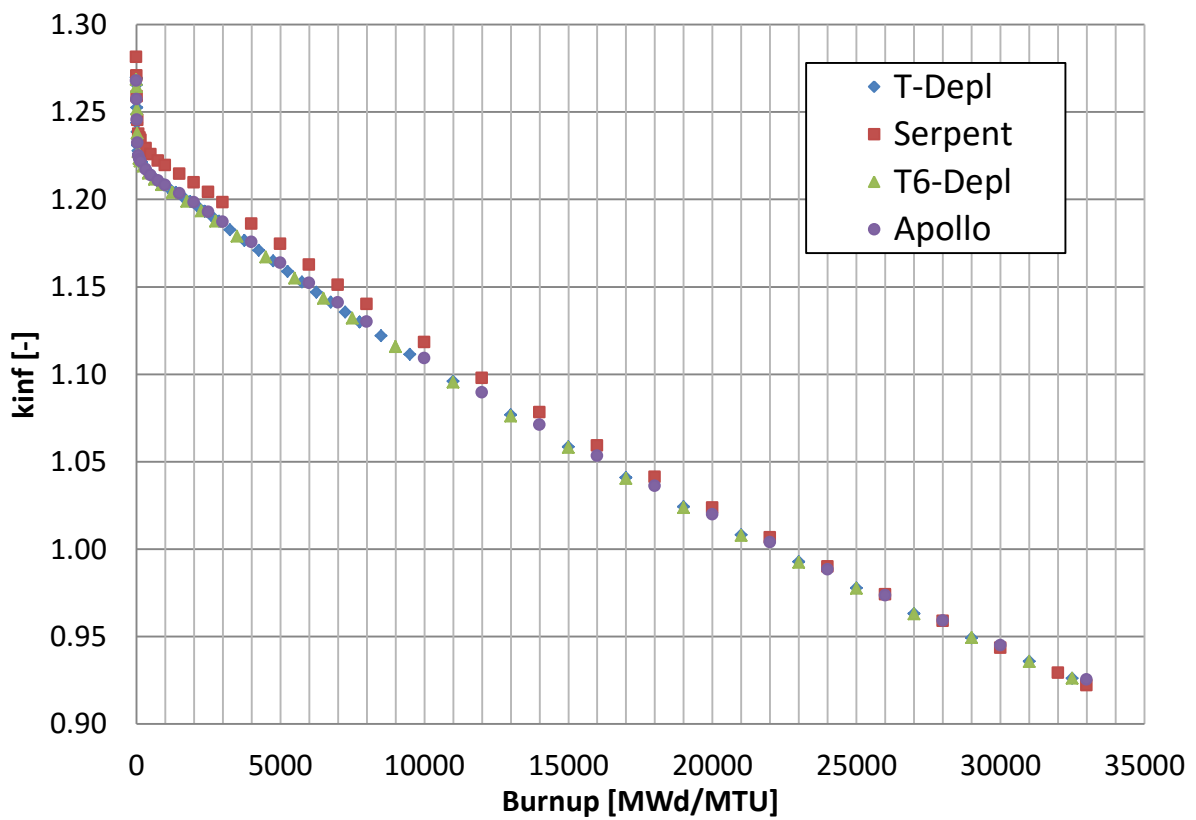



Fig. 11. Andamenti di k_{inf} per NEWT (T-Depl), Serpent2, Keno-VI (T6-depl) ed Apollo2.

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	16	32

I calcoli eseguiti con Origen-ARP sono stati effettuati con la libreria ad 1 gruppo W15x15, preparata da ORNL usando NEWT a 44 gruppi, ed a sua volta basata su ENDF/B-V. I parametri di interpolazione sono stati:

- Densità del moderatore: 0.7135 g/cm³
- Temperatura del moderatore: 579 K
- Concentrazione di boro: 653 ppm

Il bruciamento è stato fatto con 64 step e 32 cicli; nessun cut-off è stato introdotto. Il decadimento è invece stato fatto con 10 step logaritmici.

Per i calcoli di emissione fotonica è stata usata la libreria a 18 gruppi 18GrpScale5; il contributo di Bremsstrahlung, relativamente ai soli decadimenti, è stato incluso nel calcolo.

Il calcolo del trasporto fotonico e della dose è stato effettuato con MCNPX 2.7.0 usando le librerie .04p per fotoni. Non è stato considerato alcun rim-effect, come da specifiche del Benchmark, e la sorgente fotonica è stata uniformemente distribuita nelle pellet di combustibile. Il calcolo è stato fatto ricorrendo ad un tally di tipo F4 su un volume rettangolare di 20x20x0.5 cm³ ad 1 metro di distanza dal centro del FA, parallelo alla superficie laterale. Sono stati impiegati 1E8 fotoni primari, cui corrisponde una deviazione standard sulla dose di circa il 3%. E' stata usata una tecnica di riduzione della varianza del tipo "source bias" nella card ERG (è stata settata imp=2 per le E>0.4 MeV, coerentemente con quanto evidenziato precedentemente). I fotoni secondari da eventuali reazioni (n,g) nel fuel risultano completamente trascurabili nel contribuire al rateo di dose gamma

Il Bremsstrahlung dovuto agli elettroni secondari è stato tenuto in conto con il modello semplificato di Thick-Target.

Nelle Figg. 12, 13, 14 e 15 sono riportate alcune immagini della geometria e della sorgente implementate in MCNPX.

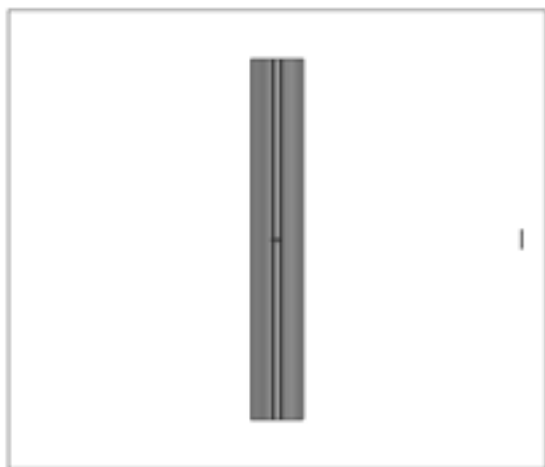


Fig. 12. Vista laterale della geometria MCNPX.

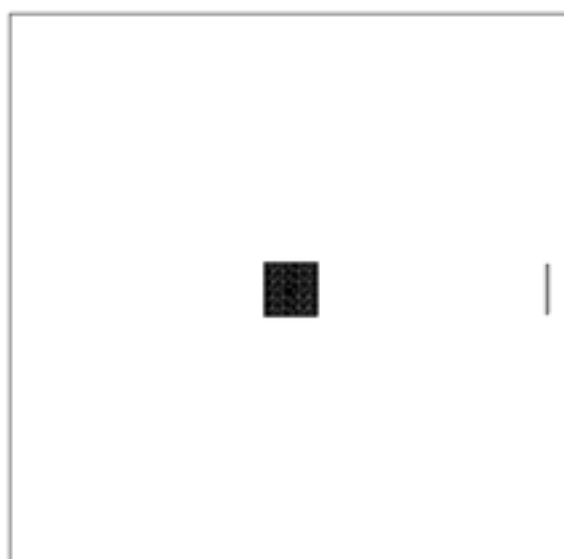


Fig. 13. Vista dall'alto della geometria MCNPX.



Fig. 14. Distribuzione assiale della sorgente in MCNPX.

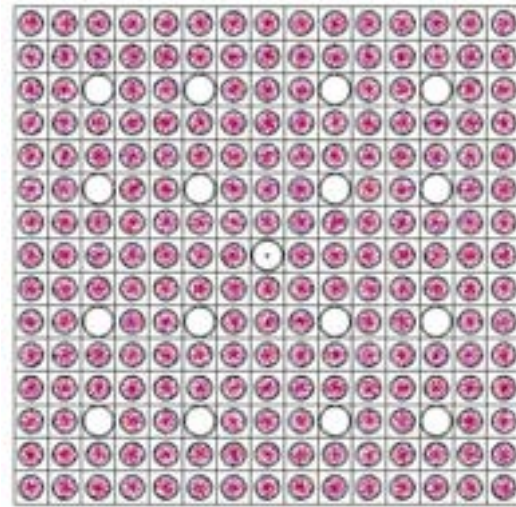


Fig. 15. Distribuzione radiale della sorgente in MCNPX.

6. Risultati del bruciamento

Nella seguente Tab. 7 sono riportati i risultati a EOL per i metalli pesanti.

Tabella 7. Masse in grammi ad EOL per i metalli pesanti.

	ENEA 1	ENEA 2	ENEA 3	ENEA 4	ENEA 5		ENEA 1	ENEA 2	ENEA 3	ENEA 4	ENEA 5
U-234	8.14E+01	8.38E+01	8.31E+01	8.26E+01	8.19E+01	Pu-244	8.99E-03	1.52E-02	1.40E-02	1.54E-02	9.72E-03
U-235	3.69E+03	3.83E+03	3.64E+03	3.93E+03	3.66E+03	Am-241	1.17E+01	1.31E+01	1.20E+01	1.37E+01	1.22E+01
U-236	1.80E+03	1.81E+03	1.81E+03	1.80E+03	1.83E+03	Am-242	5.06E-02	4.90E-02	4.73E-02	5.00E-02	4.36E-02
U-237	5.49E+00	5.77E+00	5.81E+00	5.90E+00	6.04E+00	Am-242m	2.36E-01	1.82E-01	1.24E-01	1.96E-01	2.44E-01
U-238	4.43E+05	4.42E+05	4.43E+05	4.42E+05	4.43E+05	Am-243	4.48E+01	4.94E+01	4.62E+01	4.97E+01	5.08E+01
Np-236	5.24E-04	1.62E-04	6.88E-04	1.76E-04	7.91E-05	Am-244	5.84E-02	4.05E-03	3.69E-03	4.12E-03	6.18E-02
Np-236m	-	1.06E-05	2.86E-09	1.11E-05	4.05E-06	Cm-242	5.60E+00	5.26E+00	5.03E+00	5.36E+00	4.63E+00
Np-237	1.75E+02	1.85E+02	1.84E+02	1.90E+02	1.88E+02	Cm-243	1.15E-01	1.08E-01	1.00E-01	1.12E-01	1.16E-01
Np-238	7.83E-01	7.80E-01	7.78E-01	8.00E-01	8.42E-01	Cm-244	1.36E+01	1.49E+01	1.32E+01	1.53E+01	1.44E+01
Np-239	5.92E+01	6.01E+01	5.94E+01	6.11E+01	5.90E+01	Cm-245	6.94E-01	8.38E-01	7.26E-01	8.99E-01	5.37E-01
Pu-236	4.50E-04	6.96E-04	1.12E-05	7.31E-04	2.67E-04	Cm-246	6.05E-02	7.03E-02	6.39E-02	7.19E-02	4.70E-02
Pu-237	1.29E-04	1.79E-04	1.56E-04	1.93E-04	1.55E-04	Cm-247	6.52E-04	7.50E-04	6.49E-04	7.94E-04	4.45E-04
Pu-238	5.80E+01	5.73E+01	5.49E+01	5.97E+01	6.00E+01	Cm-248	3.41E-05	4.14E-05	3.47E-05	4.44E-05	2.40E-05
Pu-239	2.51E+03	2.65E+03	2.45E+03	2.80E+03	2.52E+03	Bk-249	3.42E-07	4.20E-07	3.25E-07	4.74E-07	2.44E-07
Pu-240	1.10E+03	1.11E+03	1.11E+03	1.13E+03	1.10E+03	Cf-249	3.09E-08	3.82E-08	2.78E-08	4.37E-08	2.17E-08
Pu-241	6.32E+02	6.44E+02	5.98E+02	6.71E+02	6.06E+02	Cf-250	1.84E-07	1.73E-07	1.46E-07	1.86E-07	5.54E-08
Pu-242	2.49E+02	2.35E+02	2.33E+02	2.33E+02	2.41E+02	Cf-251	4.03E-08	6.67E-08	5.26E-08	7.39E-08	2.96E-08
Pu-243	8.77E-02	9.74E-02	9.29E-02	9.78E-02	9.88E-02	Cf-252	2.07E-08	3.33E-08	2.73E-08	3.53E-08	1.53E-08
						Total	4.53E+05	4.53E+05	4.53E+05	4.53E+05	4.53E+05

Si può notare un sostanziale accordo tra i codici usati. In Tab. 8 sono riportati i risultati ad EOL per i prodotti di fissione.

Tabella 8. Masse in grammi ad EOL per i prodotti di fissione.

	ENEA 1	ENEA 2	ENEA 3	ENEA 4	ENEA 5		ENEA 1	ENEA 2	ENEA 3	ENEA 4	ENEA 5
Kr-83	1.87E+01	1.92E+01	1.94E+01	1.92E+01	1.92E+01	Nd-145	3.15E+02	3.10E+02	3.11E+02	3.10E+02	3.15E+02
Rh-103	2.05E+02	2.05E+02	2.03E+02	2.05E+02	2.04E+02	Nd-148	1.77E+02	1.75E+02	1.74E+02	1.75E+02	1.73E+02
Rh-105	8.45E-01	7.66E-01	7.91E-01	7.67E-01	7.55E-01	Pm-147	9.53E+01	9.22E+01	9.38E+01	9.42E+01	8.95E+01
Ag-109	3.67E+01	3.76E+01	3.70E+01	3.76E+01	3.67E+01	Pm-148	7.75E-01	8.02E-01	7.92E-01	7.80E-01	6.53E-01
I-135	3.29E-01	3.36E-01	3.38E-01	3.36E-01	3.38E-01	Pm-149	8.63E-01	8.51E-01	8.66E-01	8.43E-01	9.67E-01
Xe-131	1.92E+02	2.00E+02	2.01E+02	2.00E+02	1.96E+02	Sm-147	2.39E+01	2.34E+01	2.37E+01	2.37E+01	2.31E+01
Xe-135	8.68E-02	9.22E-02	8.47E-02	9.26E-02	8.83E-02	Sm-149	9.70E-01	1.08E+00	9.78E-01	1.07E+00	1.13E+00
Cs-133	5.15E+02	5.24E+02	5.22E+02	5.24E+02	5.28E+02	Sm-150	1.39E+02	1.38E+02	1.39E+02	1.39E+02	1.45E+02
Cs-134	6.13E+01	6.15E+01	6.08E+01	6.15E+01	5.57E+01	Sm-151	5.29E+00	5.61E+00	5.09E+00	5.45E+00	7.05E+00
Cs-135	1.26E+02	1.31E+02	1.23E+02	1.30E+02	1.33E+02	Sm-152	5.13E+01	5.13E+01	5.05E+01	5.02E+01	6.11E+01
Cs-137	5.67E+02	5.72E+02	5.74E+02	5.72E+02	5.78E+02	Eu-153	5.43E+01	5.49E+01	5.37E+01	5.42E+01	5.38E+01
Ba-137m	-	8.82E-05	8.82E-05	8.82E-05	8.91E-05	Eu-154	1.11E+01	1.14E+01	1.07E+01	1.14E+01	1.06E+01
Ba-140	-	1.42E+01	1.43E+01	1.42E+01	1.43E+01	Eu-155	3.71E+00	3.75E+00	3.84E+00	3.74E+00	2.56E+00
La-140	1.93E+00	1.92E+00	1.94E+00	1.92E+00	1.94E+00	Eu-156	2.61E+00	2.65E+00	2.69E+00	2.64E+00	2.59E+00
Nd-143	3.58E+02	3.63E+02	3.58E+02	3.63E+02	3.62E+02	Gd-155	1.81E-02	1.88E-02	1.74E-02	1.88E-02	1.32E-02
						Total	2.08E+03	2.13E+03	2.11E+03	2.13E+03	2.13E+03

Si può anche in questo caso notare un sostanziale accordo tra i codici usati.

7. Risultati del decadimento

In Tab. 9 sono riportati i risultati dopo 30 anni di decadimento per i metalli pesanti.

Tabella 8. Masse in grammi dopo 30 anni per i metalli pesanti.

	ENEA 1	ENEA 2	ENEA 3	ENEA 4	ENEA 5
U-234	9.48E+01	9.69E+01	9.57E+01	9.57E+01	9.55E+01
U-235	3.70E+03	3.84E+03	3.65E+03	3.83E+03	3.66E+03
U-236	1.80E+03	1.81E+03	1.82E+03	1.81E+03	1.83E+03
U-237	4.60E-06	4.69E-06	4.35E-06	4.71E-06	4.31E-06
U-238	4.43E+05	4.42E+05	4.43E+05	4.42E+05	4.43E+05
Np-237	1.94E+02	2.06E+02	2.03E+02	2.06E+02	2.08E+02
Pu-238	5.08E+01	5.00E+01	4.79E+01	4.79E+01	5.17E+01
Pu-239	2.57E+03	2.71E+03	2.51E+03	2.73E+03	2.58E+03

Pu-240	1.10E+03	1.12E+03	1.11E+03	1.12E+03	1.11E+03
Pu-241	1.48E+02	1.50E+02	1.40E+02	1.51E+02	1.42E+02
Pu-242	2.49E+02	2.35E+02	2.33E+02	2.34E+02	2.41E+02
Am-241	4.82E+02	4.92E+02	4.57E+02	4.95E+02	4.62E+02
Am-242	2.63E-06	2.03E-06	1.34E-06	2.04E-06	2.72E-06
Am-242M	2.04E-01	1.57E-01	1.04E-01	1.58E-01	2.11E-01
Am-243	4.48E+01	4.93E+01	4.62E+01	4.85E+01	5.07E+01
Am-244	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
Cm-244	4.32E+00	4.71E+00	4.18E+00	2.21E+00	4.59E+00
Cm-245	6.92E-01	8.36E-01	7.24E-01	3.99E-01	5.36E-01
Cf-251	3.94E-08	6.52E-08	5.18E-08	6.20E-08	2.89E-08
Cf-252	7.98E-12	1.28E-11	1.05E-11	1.20E-11	5.87E-12
Total	4.53E+05	4.53E+05	4.53E+05	4.53E+05	4.53E+05

In Tab. 10 sono riportati i risultati dopo 30 anni di decadimento per i prodotti di fissione.

Tabella 10. Masse in grammi dopo 30 anni per i prodotti di fissione.

	ENEA 1	ENEA 2	ENEA 3	ENEA 4	ENEA 5
Sr-90	1.19E+02	1.21E+02	1.22E+02	1.21E+02	1.20E+02
Y-90	3.01E-02	3.07E-02	3.10E-02	3.08E-02	3.12E-02
Cs-137	2.84E+02	2.86E+02	2.87E+02	2.86E+02	2.89E+02
Ba-137m	4.34E-05	4.37E-05	4.39E-05	4.37E-05	4.41E-05
Sm-154	1.79E+01	1.79E+01	1.77E+01	1.79E+01	1.72E+01
Eu-153	5.43E+01	5.49E+01	5.37E+01	5.42E+01	5.45E+01
Eu-154	9.89E-01	1.02E+00	9.53E-01	1.01E+00	9.38E-01
Eu-155	4.67E-02	4.72E-02	4.83E-02	4.70E-02	3.01E-02
Total	4.76E+02	4.81E+02	4.82E+02	4.81E+02	4.82E+02

Si può notare un sostanziale accordo nei risultati.

Nelle Tab. 11 e 12 sono riportati i tassi di emissione fotonica multigruppo. Ancora una volta si registra un ottimo accordo.

Tabella 11. Tassi di emissione fotonica multigruppo (casi 1-3).

ENEA 1				ENEA 2				ENEA 3			
E_{low} [MeV]	E_{high} [MeV]	Gamma release rate [photons/s]	Percent of total gammas	E_{low} [MeV]	E_{high} [MeV]	Gamma release rate [photons/s]	Percent of total gammas	E_{low} [MeV]	E_{high} [MeV]	Gamma release rate [photons/s]	Percent of total gammas
0.00	0.02	5.19E+14	2.66E-01	0.00	0.02	5.29E+14	2.68E-01	0.00	0.02	5.31E+14	2.68E-01
0.02	0.03	1.01E+14	5.19E-02	0.02	0.03	1.03E+14	5.22E-02	0.02	0.03	1.04E+14	5.24E-02
0.03	0.05	1.34E+14	6.86E-02	0.03	0.05	1.36E+14	6.87E-02	0.03	0.05	1.36E+14	6.88E-02
0.05	0.07	1.04E+14	5.35E-02	0.05	0.07	1.06E+14	5.39E-02	0.05	0.07	1.05E+14	5.32E-02
0.07	0.10	5.52E+13	2.84E-02	0.07	0.10	5.64E+13	2.85E-02	0.07	0.10	5.69E+13	2.87E-02
0.10	0.15	4.81E+13	2.47E-02	0.10	0.15	4.92E+13	2.49E-02	0.10	0.15	4.93E+13	2.49E-02
0.15	0.30	4.78E+13	2.46E-02	0.15	0.30	4.89E+13	2.47E-02	0.15	0.30	4.92E+13	2.48E-02
0.30	0.45	2.00E+13	1.03E-02	0.30	0.45	2.05E+13	1.04E-02	0.30	0.45	2.06E+13	1.04E-02
0.45	0.70	9.03E+14	4.64E-01	0.45	0.70	9.11E+14	4.61E-01	0.45	0.70	9.14E+14	4.61E-01
0.70	1.00	9.15E+12	4.70E-03	0.70	1.00	9.38E+12	4.75E-03	0.70	1.00	9.08E+12	4.58E-03
1.00	1.50	6.14E+12	3.15E-03	1.00	1.50	6.30E+12	3.19E-03	1.00	1.50	6.00E+12	3.03E-03
1.50	2.00	3.07E+11	1.58E-04	1.50	2.00	3.15E+11	1.59E-04	1.50	2.00	3.03E+11	1.53E-04
2.00	2.50	2.06E+09	1.06E-06	2.00	2.50	2.11E+09	1.07E-06	2.00	2.50	2.12E+09	1.07E-06
2.50	3.00	1.05E+08	5.38E-08	2.50	3.00	1.60E+08	8.11E-08	2.50	3.00	8.16E+06	4.12E-09
3.00	4.00	5.30E+06	2.72E-09	3.00	4.00	5.76E+06	2.92E-09	3.00	4.00	5.12E+06	2.58E-09
4.00	6.00	2.27E+06	1.16E-09	4.00	6.00	2.46E+06	1.25E-09	4.00	6.00	2.19E+06	1.11E-09
6.00	8.00	2.61E+05	1.34E-10	6.00	8.00	2.84E+05	1.43E-10	6.00	8.00	2.52E+05	1.27E-10
8.00	11.00	3.00E+04	1.54E-11	8.00	11.00	3.26E+04	1.65E-11	8.00	11.00	2.90E+04	1.46E-11
Total		1.95E+15	100%	Total		1.98E+15	100%	Total		1.98E+15	100%

Tabella 12. Tassi di emissione fotonica multigruppo (casi 4-5).

ENEA 4				ENEA 5			
E_{low} [MeV]	E_{high} [MeV]	Gamma release rate [photons/s]	Percent of total gammas	E_{low} [MeV]	E_{high} [MeV]	Gamma release rate [photons/s]	Percent of total gammas
0.00	0.02	5.28E+14	2.67E-01	0.000	0.020	5.38E+14	2.69E-01
0.02	0.03	1.03E+14	5.22E-02	0.020	0.030	1.05E+14	5.26E-02
0.03	0.05	1.36E+14	6.87E-02	0.030	0.045	1.38E+14	6.88E-02
0.05	0.07	1.07E+14	5.39E-02	0.045	0.070	1.07E+14	5.33E-02
0.07	0.10	5.64E+13	2.86E-02	0.070	0.100	5.74E+13	2.87E-02
0.10	0.15	4.91E+13	2.49E-02	0.100	0.150	4.96E+13	2.48E-02
0.15	0.30	4.89E+13	2.48E-02	0.150	0.300	4.96E+13	2.48E-02
0.30	0.45	2.05E+13	1.04E-02	0.300	0.450	2.08E+13	1.04E-02
0.45	0.70	9.11E+14	4.61E-01	0.450	0.700	9.19E+14	4.60E-01
0.70	1.00	9.36E+12	4.74E-03	0.700	1.000	9.02E+12	4.51E-03
1.00	1.50	6.28E+12	3.18E-03	1.000	1.500	5.94E+12	2.97E-03
1.50	2.00	3.14E+11	1.59E-04	1.500	2.000	3.01E+11	1.51E-04

2.00	2.50	2.10E+09	1.06E-06	2.000	2.500	2.13E+09	1.07E-06
2.50	3.00	1.57E+08	7.97E-08	2.500	3.000	8.44E+07	4.22E-08
3.00	4.00	2.83E+06	1.44E-09	3.000	4.000	5.59E+06	2.80E-09
4.00	6.00	1.21E+06	6.12E-10	4.000	6.000	2.39E+06	1.20E-09
6.00	8.00	1.39E+05	7.03E-11	6.000	8.000	2.75E+05	1.38E-10
8.00	11.00	1.60E+04	8.08E-12	8.000	11.000	3.17E+04	1.58E-11
Total		1.97E+15	100%	Total		2.00E+15	100%

In Fig. 16 è riportato, a titolo di esempio, il grafico dell'emissione fotonica per il caso 5.

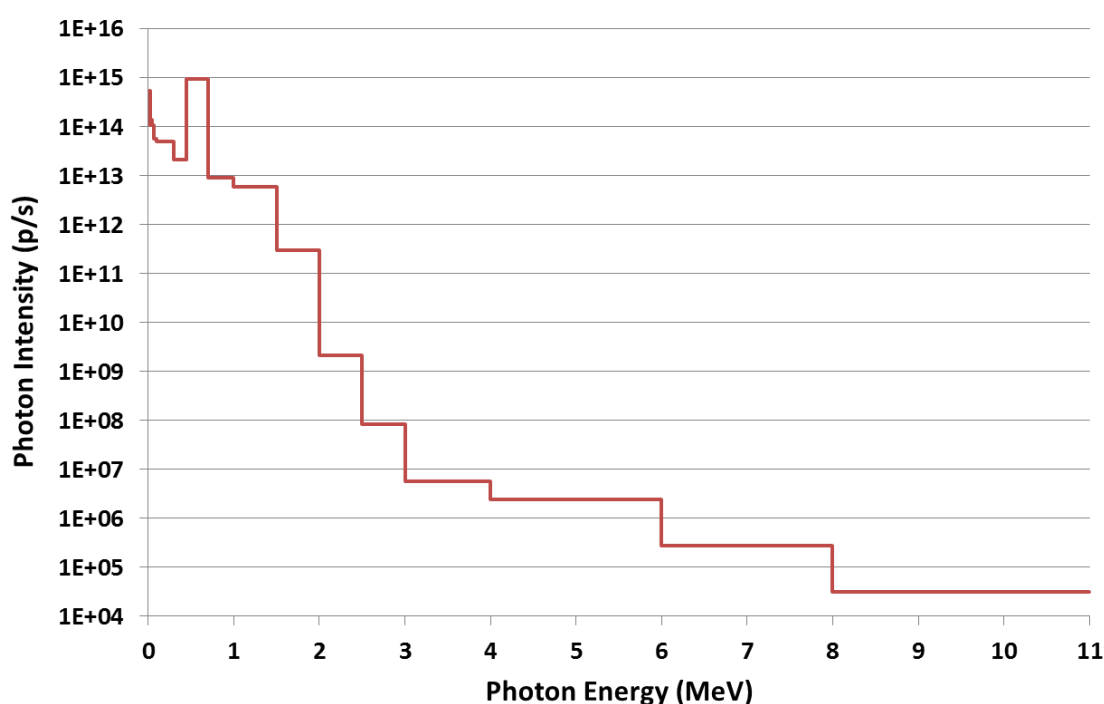


Fig. 16. Emissione fotonica per il caso 5.

In Fig. 17 è riportato un interessantissimo confronto tra due risultati ENEA (nero e verde) ed i risultati CEA (blu) e DOE (rosso) per l'emissione fotonica [4]. Va subito detto che i risultati CEA non includono, erroneamente, il contributo del Bremsstrahlung. I risultati DOE sono invece affetti da assenza dei contributi di Y-90, Sr-90 e Sm-154. Il caso ENEA nero è senza il Bremsstrahlung mentre quello verde è con Bremsstrahlung. Si nota che circa il 50% dell'emissione totale è sotto 0.4 MeV e l'altro 50% sopra i 0.4 MeV, concentrato principalmente tra 0.5 e 0.7 MeV, con una componente modesta sopra i 0.7 MeV. Si comprende facilmente che i risultati ENEA sono notevolmente più precisi in quanto contemplano sia il Bremsstrahlung (miglioramento alle basse energie rispetto a CEA) che gli isotopi Y-90, Sr-90 e Sm-154 (miglioramento alle energie intermedie rispetto a DOE). In maniera del tutto fortuita CEA e DOE riescono ad ottenere risultati tra loro coerenti, ed essenzialmente corretti, per il rateo di dose, come dettagliato oltre, grazie al fatto che la componente sopra i 0.4 MeV non è affetta né da Bremsstrahlung né dal contributo di Y-90, Sr-90 e Sm-154. Inoltre tale componente è essenzialmente pari alla metà del totale che,

numericamente ed ancora una volta fortuitamente, coincide con l'effetto del Bremsstrahlung stesso, cosicché non solo la distribuzione energetica alle alte energie ma anche l'intensità totale è quella sufficiente a fare un calcolo corretto del rateo di dose.

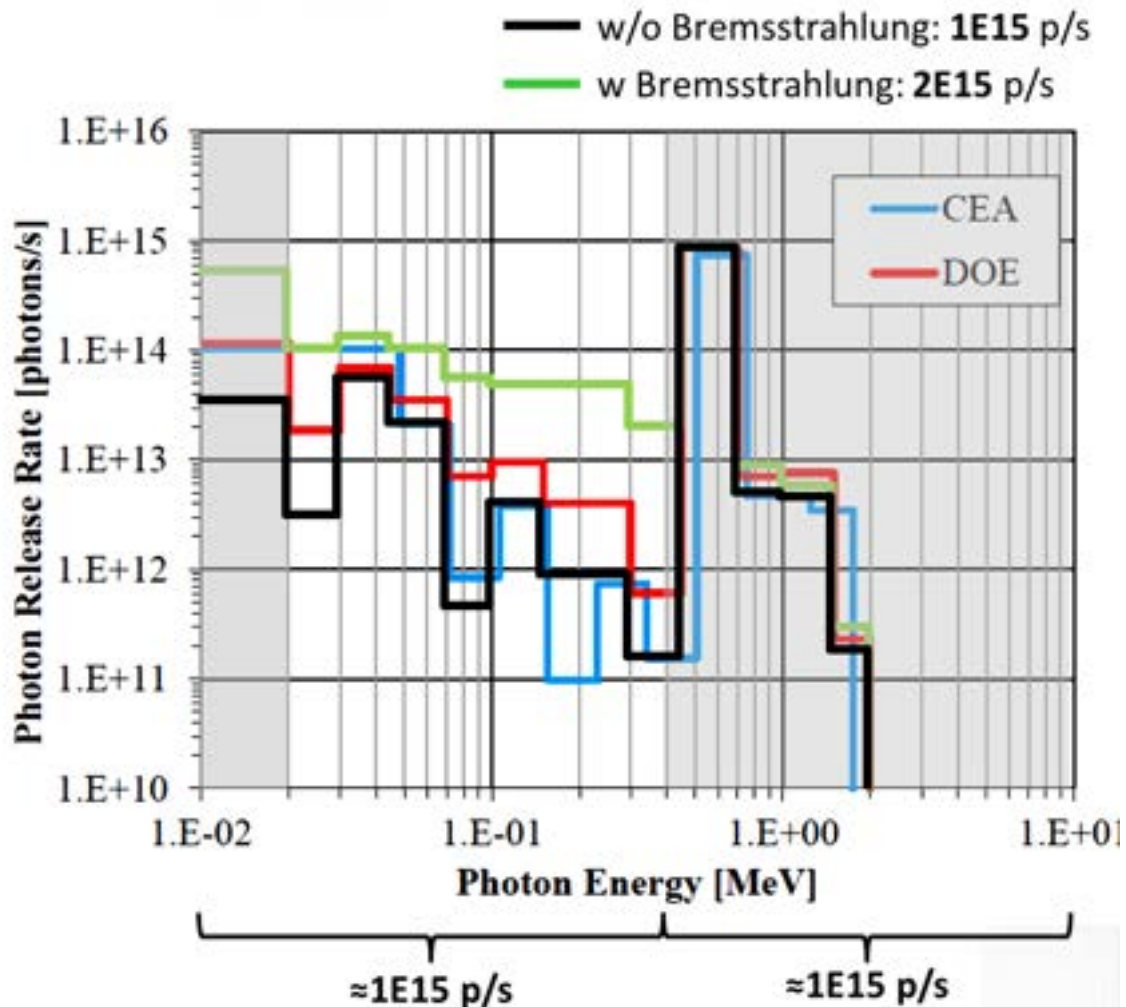


Fig. 17. Confronto ENEA/CEA ed ENEA/DOE per l'emissione fotonica.

E' oltremodo interessante indagare su quali siano gli isotopi maggiormente responsabili dell'emissione fotonica tra 0.4 e 0.7 MeV in modo da targettare al meglio l'accuratezza dei successivi calcoli di rateo di dose. La seguente Tab. 13 riporta i risultati di tale indagine, gruppo energetico per gruppo energetico. Per ogni gruppo è riportata l'energia di centro gruppo ed i principali isotopi emettitori, ognuno con il proprio contributo all'intensità in fotoni al secondo. Con sfondo giallo sono evidenziati i gruppi potenzialmente importanti per il calcolo del rateo di dose. Il gruppo più importante, il 9, è popolato essenzialmente solo dal Ba137m, che dunque risulta essere il maggior contributore in assoluto alla dose gamma. In ordine decrescente di importanza possiamo elencare dunque i seguenti isotopi come maggiormente contribuenti alla dose finale: Ba137m, Y90, Eu154, Tl208, Cm244, Pu240. E' evidente come DOE, trascurando Y90, commetta un gravissimo errore. L'isotopo Tl208 non è tra quelli contemplati dal Benchmark, ma avrebbe dovuto esserlo, in quanto contributore minoritario ma non trascurabile.

Tabella 13. Principali contributori all'emissione fotonica.

1	2	3	4	5	6
0.0100 MeV	0.0250 MeV	0.0375 MeV	0.0575 MeV	0.0850 MeV	0.1250 MeV
am241 2.17E+13	am241 2.60E+12	sr 90 9.57E+12	am241 2.18E+13	sr 90 5.50E+12	sr 90 3.65E+12
sr 90 6.91E+13	sr 90 1.30E+13	y 90 5.69E+13	sr 90 9.33E+12	y 90 4.42E+13	y 90 3.72E+13
y 90 3.39E+14	y 90 7.14E+13	cs137 1.21E+13	y 90 6.26E+13	cs137 6.74E+12	cs137 4.39E+12
cs137 8.87E+13	cs137 1.65E+13	ba137m 5.57E+13	cs137 1.16E+13		eu154 3.82E+12
7	8	9	10	11	12
0.2250 MeV	0.3750 MeV	0.5750 MeV	0.8500 MeV	1.2500 MeV	1.7500 MeV
sr 90 2.32E+12	y 90 1.99E+13	ba137m 9.08E+14	y 90 3.88E+12	y 90 1.31E+12	y 90 1.13E+11
y 90 4.33E+13	cs137 4.19E+11		eu154 5.02E+12	eu154 4.62E+12	eu154 1.88E+11
cs137 2.81E+12					
13	14	15	16	17	18
2.2500 MeV	2.7500 MeV	3.5000 MeV	5.0000 MeV	7.0000 MeV	9.5000 MeV
y 90 2.12E+09	tl208 7.82E+07	pu240 1.54E+05	pu240 6.56E+04	pu240 7.54E+03	pu240 8.66E+02
	cm244 5.89E+06	cm244 5.30E+06	cm244 2.27E+06	cm244 2.62E+05	cm244 3.01E+04

La seguente Fig. 18 illustra graficamente i concetti sin qua esposti; si noti che l'ordinata è in scala logaritmica e si noti la struttura del gruppo 9 (popolato dal solo Ba137m). In Tab. 14 i contributori sono stati raggruppati a 2 gruppi (confine E=0.4 MeV). Si nota come un errore su Y90 e Sr90 sia trascurabile poiché il loro contributo al gruppo ad alta energia è trascurabile (cfr. celle con sfondo giallo); il loro contributo all'emissione sotto i 0.4 MeV è invece preponderante.

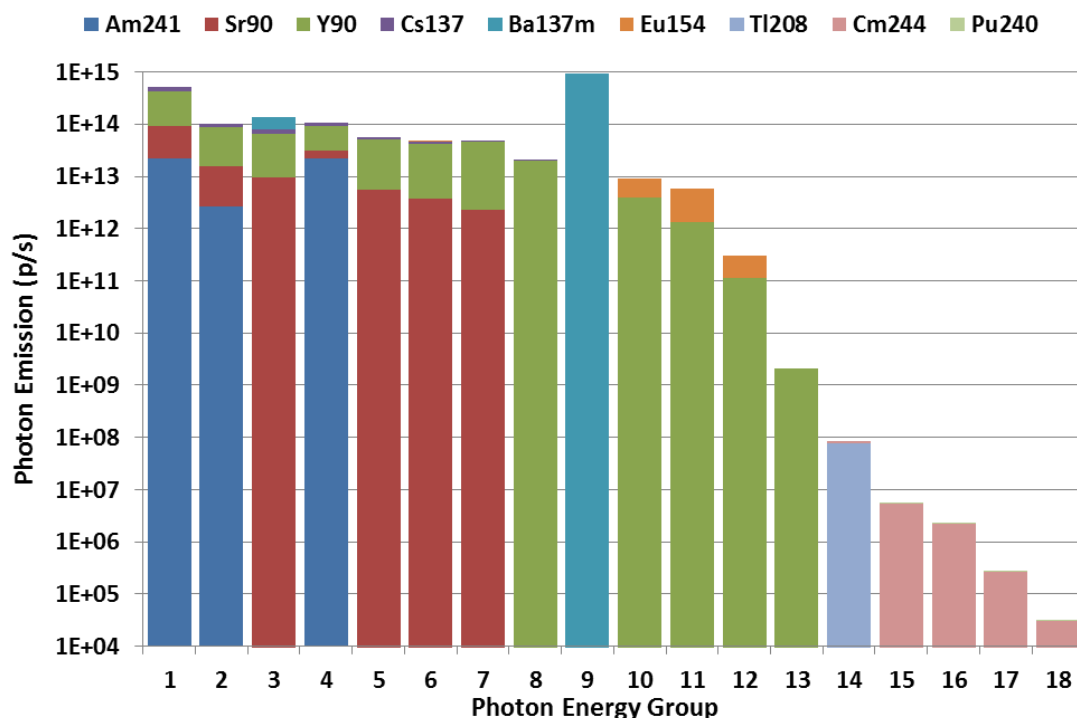


Fig. 18. Distribuzione dei contributori principali, gruppo per gruppo.

Tabella14. Raggruppamento a 2 gruppi dei contributori (in giallo il contributo di Y90 e Sr90).

	E<0.4 MeV	E>0.4 MeV	Total
Am241	4.6E+13	1.0E-09	4.6E+13
Sr90	1.1E+14	1.0E-09	1.1E+14
Y90	6.7E+14	5.3E+12	6.8E+14
Cs137	1.4E+14	1.0E-09	1.4E+14
Ba137m	5.6E+13	9.1E+14	9.6E+14
Eu154	3.8E+12	9.8E+12	1.4E+13
Ti208	8.0E-10	7.8E+07	7.8E+07
Cm244	8.0E-10	1.4E+07	1.4E+07
Pu240	8.0E-10	2.3E+05	2.3E+05
	1.0E+15	9.2E+14	2.0E+15

8. Risultati per il rateo di dose

In Tab. 15 sono riportati i risultati per il rateo di dose. Si osserva quanto segue:

1. I ratei sono tra un fattore 2 e 3 inferiori rispetto a quelli calcolati negli anni '90 ed assunti a riferimento per la salvaguardia dei FA bruciati.
2. La proposta di normativa ANSI/ANS 1991 produce valori inferiori di un 20% circa rispetto all'analogia del 1977.
3. Il Bremsstrahlung degli elettroni secondari è scarsamente significativo.
4. La norma ICRP60 fornisce valori nettamente inferiori a quelli delle norme ANSI/ANS.

Tabella 15. Ratei di dose gamma (Sv/h) calcolati.

CASO	1	2	3	4	5	Media
ANSI/ANS 1977	5.25	5.34	5.21	5.22	5.20	5.24
ANSI/ANS 1991	4.13	4.21	4.11	4.11	4.09	4.13
1977 – no BS of sec. e	5.14	-	-	-	-	-
1991 – no BS of sec. e	4.05	-	-	-	-	-
ICRP60	-	-	-	-	3.86	-

Un'analisi dei maggiori contributori al rateo di dose è presentata nella seguente Tab. 16 per il caso 5 ANSI/ANS 1991 (le conclusioni ovviamente non variano se si usa la ANSI/ANS del 1977).


 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	25	32


Tabella 16. Contributori al rateo di dose ANSI/ANS 1991 caso 5.

Gruppo energetico fotonico	Rateo di dose (Sv/h)	Rateo di dose (% wrt totale)	Nuclidi Importanti
9	3.84	93.90%	137mBa (137Cs)
11	0.11	2.66%	154Eu, 90Y
10	0.09	2.28%	154Eu, 90Y
Somma 9+11+10	4.04	98.85%	

Poiché l'emissione fotonica oltre i 0.9 MeV cala moltissimo, anche se oltre i 0.9 MeV i fattori di conversione sono molto alti, il suo contributo al rateo di dose risulta trascurabile. Il 98.85% del totale è fornito dai soli gruppi 9, 11 e 10, il 93.90% dal solo gruppo 9 (ovvero dal solo Ba137m). Y90 va ad incidere su meno del 5% del rateo di dose, contributo piccolo ma non trascurabile.

Occorre fare a questo punto un commento fondamentale per tutti i calcoli di rateo di dose che verranno condotti in futuro.

I modelli di calcolo della dose adottati da tutti i partecipanti al Benchmark prevedono di usare le strutture a gruppi esistenti, a 18 o 19 gruppi, che presentano però almeno due problemi. Il primo è connesso al fatto che, dopo molti anni di decadimento, all'interno del gruppo 9 (nel caso della struttura usata da ENEA) è essenzialmente presente un solo isotopo (nella fattispecie Ba137m) che però nella realtà costituisce una sorgente perfettamente monocromatica. Il problema nasce dal fatto che l'energia di emissione fotonica di Ba137m (662 keV) non è l'energia centrale del gruppo 9 (575 keV); questo introduce essenzialmente una sottostima del rateo di dose, poiché in questo range energetico i coefficienti di dose sono fortemente crescenti. Il secondo problema deriva dal fatto che i codici di trasporto fotonico (tra cui MCNPX) assumono generalmente un'emissione energeticamente uniforme per ogni gruppo energetico; questo vuol dire che vengono emessi lo stesso numero di fotoni al di sotto ed al di sopra del valor medio dell'energia del gruppo. Tuttavia, ai fini del calcolo del rateo di dose, tali fotoni non contribuiscono in maniera direttamente proporzionale all'energia: quelli alle energie maggiori di quella media produrranno dosi molto più alte di quelli ad energie minori alla media. A questi due fenomeni va poi aggiunto che la matrice di fuel è più trasparente ai fotoni alle alte energie, ma se i fotoni vengono equamente emessi dal codice di trasporto tra metà inferiore e metà superiore del gruppo, metà che come già detto è molto inferiore al reale valore di emissione di Ba137m, ecco che un altro errore viene introdotto sulla dose. Tutti questi fenomeni deleteri sul calcolo della dose potrebbero essere evitati se:

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	26	32

A)

- a) Il gruppo energetico 9 fosse centrato attorno all'energia di emissione del bario;
- b) Il gruppo energetico 9 fosse energeticamente molto stretto;

oppure

B)

- a) Il gruppo energetico 9 fosse popolato da molti emettitori, con energie sia inferiori che superiori all'energia di centro gruppo, in modo che, in media, si possano compensare gli errori menzionati più sopra.

Il caso B) corrisponde fisicamente ad un FA lasciato decadere per un tempo nettamente inferiore ai 30 anni; in questo caso nel gruppo 9 sarebbero presenti molti più isotopi e la struttura a gruppi standard proposta da ORNL in Origen risulterebbe assolutamente adeguata. Il caso A) è invece quello del Benchmark oggetto di questo Report.

Le seguenti tre figure (prodotte da CNL) illustrano la problematica descritta più sopra. La Fig. 19 mostra la sorgente fotonica a gruppi secondo tre strutture, quella adottata da DOE (ed ENEA, 18 gruppi), quella adottata da CEA (19 gruppi), e quella adottata da CNL (centrata attorno al Ba137m). Come si può notare, la struttura peggiore è quella DOE; la discrepanza con CNL (valutata come rapporto) è del 97%. In Fig. 20 è riportata la convoluzione delle sorgenti di Fig. 19 con la funzione di autoschermo della matrice di fuel; come si può vedere, l'emissione uniforme viene distorta in modo tale da produrre molti più fotoni alle energie superiori a quella del Ba137m per la struttura CNL, ed esattamente l'opposto per le altre due strutture.

In Fig. 21 è riportata la convoluzione delle sorgenti di Fig. 20 con i coefficienti di conversione flusso / rateo di dose; l'effetto distorsivo è ulteriormente aumentato; la sola struttura CNL, essendo centrata, minimizza l'errore.

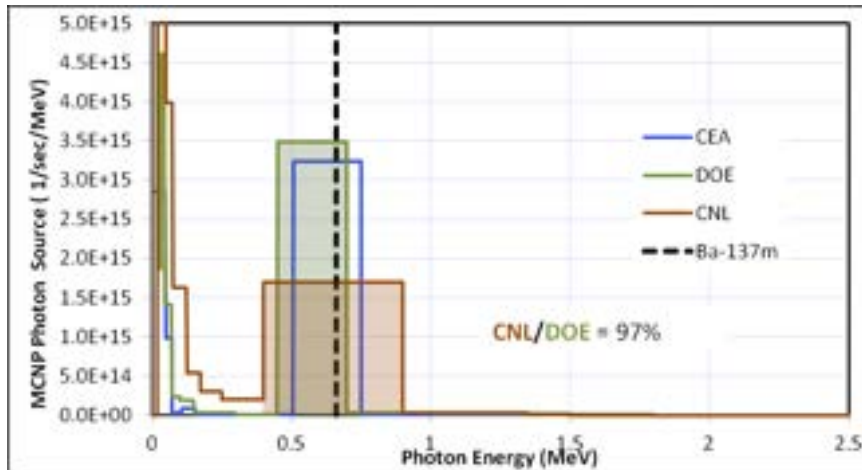


Fig. 19. Sorgente fotonica a gruppi: strutture CEA, DOE e CNL.

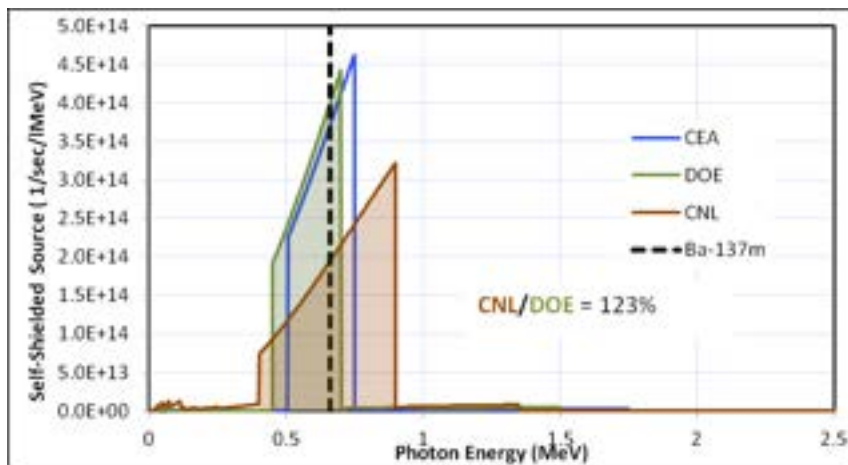


Fig. 20. Sorgente fotonica gruppi: effetto dell'autoschermo sulle sorgenti di Fig. 19.

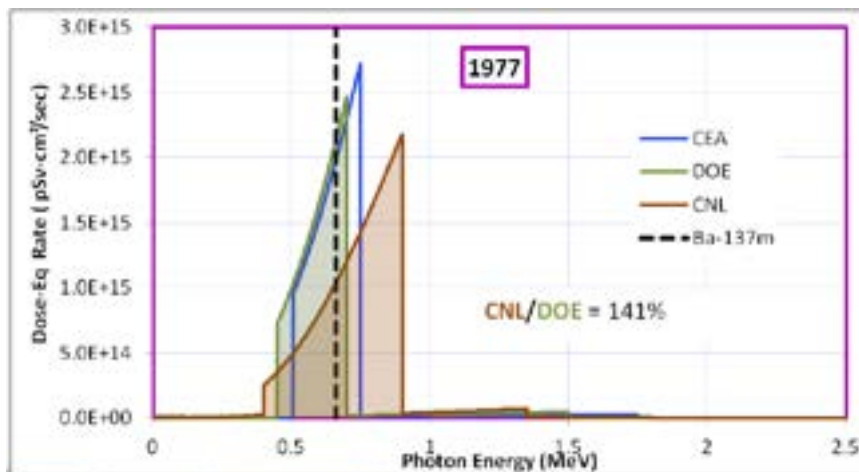



Fig. 21. Convoluzione delle sorgenti di Fig. 20 con i coefficienti di conversione ANSI/ANS-1977.

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	28	32

9. Modello analitico semplificato per il calcolo del rateo di dose

Per verificare la correttezza generale dei propri risultati, ENEA ha sviluppato una metodologia ad hoc per il calcolo analitico semplificato del rateo di dose.

Il metodo consiste nell'assimilare ciascuna pin ad una sorgente filiforme (cioè di spessore nullo) emettente i fotoni del solo ¹³⁷Ba, in modo da poter essere considerata una sorgente monocromatica. Per tenere conto dell'effetto dello spessore reale non nullo, e quindi dell'autoschermo della sorgente reale, è stato implementato il calcolo dell'attenuazione ATT dei fotoni prodotti dal bario causata dalla molecola UO₂ nel modo classico:

$$ATT = e^{-\rho a x}$$

in cui x è la distanza media percorsa da un fotone all'interno di una pin prima di uscire, a è il coefficiente di attenuazione massica di UO₂ per i fotoni del bario, e ρ è la densità massica di UO₂. Vale:

$$a = \frac{f_U \cdot a_U + f_O \cdot a_O}{f_U + f_O}$$

dove f_U è la frazione massica di U in UO₂, f_O è la frazione massica di O in UO₂, a_U è il coefficiente di attenuazione massica di U all'energia del bario, ed a_O il coefficiente di attenuazione massica di O all'energia del bario. Si ha, dalle Tabelle NIST:

$$a_U = 0.125 \text{ cm}^2/\text{g}$$

$$a_O = 0.081 \text{ cm}^2/\text{g}$$

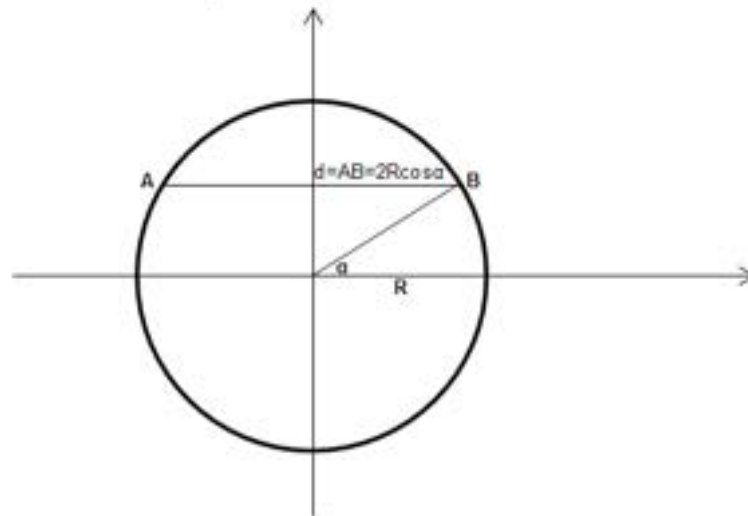
$$f_U = 238/(238+32) = 0.881 \quad f_O = 32/(238+32) = 0.119$$

Pertanto si ottiene:

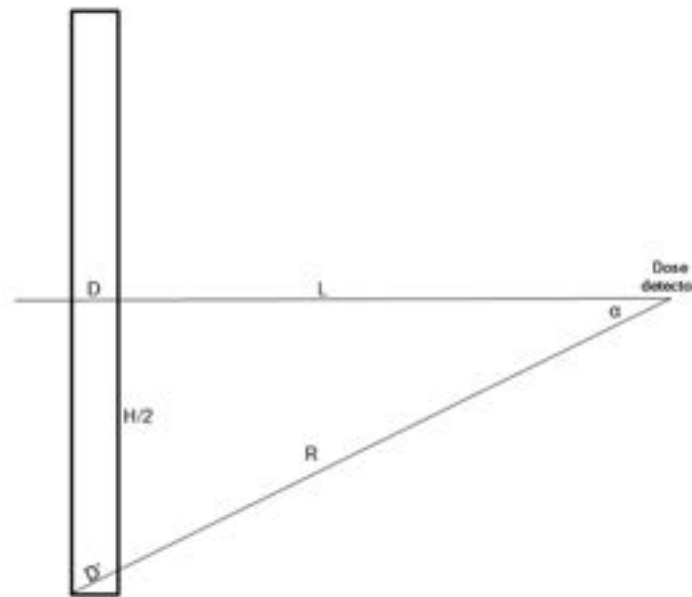
$$a = 0.120 \text{ cm}^2/\text{g}$$

La densità massica di UO₂ è 10.4 g/cm³. Rimane da calcolare x . Questo consiste di due step. Il primo è valutare il valor medio sul cerchio della lunghezza della corda d :

$$\bar{d} = \frac{2R}{\pi} \int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} \cos \alpha d\alpha = \frac{2D}{\pi} \cong 0.63D$$



Il secondo step consiste nel rimpiazzare il diametro D con un suo valor medio lungo la lunghezza della pin, calcolato come da schema seguente:




$$\bar{D}' = \frac{1}{2\alpha_{max}} \int_{-\alpha_{max}}^{\alpha_{max}} D' d\alpha = \frac{1}{2\alpha_{max}} \int_{-\alpha_{max}}^{\alpha_{max}} \frac{D}{\cos \alpha} d\alpha = \frac{D}{\alpha_{max}} \int_0^{\alpha_{max}} \frac{1}{\cos \alpha} d\alpha \cong 1.4591 \frac{D}{\alpha_{max}}$$

con

$$\alpha_{max} = \arcsin\left(\frac{H}{2R}\right) \quad R = \sqrt{L^2 + \frac{H^2}{4}}$$

Considerando che è $L = 100 - 10.7 + 0.5 = 89.8$ cm e $H = 365.76$ cm si ottiene $R = 203.74$ cm e $\alpha_{max} = 1.114$ rad, da cui

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	30	32

$$\overline{D'} \cong 1.31D$$

In ultimo quindi, combinando i due risultati, si ha che

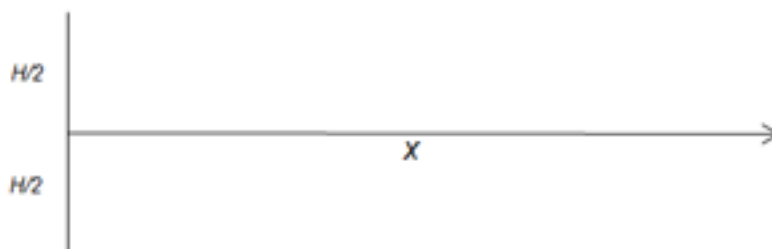
$$x \cong 1.31 \cdot 0.63 \cdot D \cong 0.83D$$

L'attenuazione media dovuta al combustibile risulta pertanto:

$$ATT = e^{-10.4 \cdot 0.12 \cdot 0.83 \cdot 0.925} \cong 0.384$$

Occorre ora valutare il flusso in aria (assimilata al vuoto) ad una distanza x , nella mezzeria del FA, dovuto ad una sorgente lineare finita di lunghezza H ed intensità S_L ; semplici calcoli di teoria del trasporto portano a:

$$\varphi(x) = \frac{S_L}{2\pi x} \arctg\left(\frac{H}{2x}\right)$$



Infine, per il Principio di Sovrapposizione degli Effetti, è possibile sommare opportunamente il contributo di tutte le pin coinvolte, secondo lo schema di Tab. 17.

Tab. 17. Ratei di dose analitici usando i coefficienti ANSI/ANS-1977.

	N_pin	ATT	N_eff	S_{tot} (s^{-1})	S_L ($cm^{-1} \cdot s^{-1}$)	x (cm)	Φ ($cm^{-2} \cdot s^{-1}$)	Rateo di dose di Ba-137 (Sv/h)	Rateo di dose totale (Sv/h)	Variazione vs MCNPX (%)
1 FILA	15	0.384	5.754	2.51E+13	6.87E+10	89.55	1.36E+08	1.99		
2 FILA	15	0.238	3.570	1.56E+13	4.26E+10	90.95	8.27E+07	1.21		
3 FILA	11	0.116	1.277	5.58E+12	1.52E+10	92.35	2.90E+07	0.42		
4 FILA	15	0.057	0.850	3.71E+12	1.01E+10	93.75	1.89E+07	0.28		
5 FILA	15	0.028	0.415	1.81E+12	4.95E+09	95.15	9.03E+06	0.13		
SOMMA	71	-	11.866	5.18E+13	1.42E+11	-	2.76E+08	4.03	4.29	-18.17

In tale tabella si sono tenuti in conto i contributi delle prime 5 file di pin; le successive sono troppo autoschermate dalle precedenti per dare un contributo effettivo, vedi Fig. 22.


 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	31	32



Fig. 22. Schema geometrico per il calcolo analitico del rateo di dose.

In Tab. 17 N_{pin} indica il numero di pin nella fila i -esima (i tubi guida non emettono fotoni), ATT indica l'attenuazione della sorgente i -esima dovuta all'autoschermo (vedi oltre), N_{eff} indica il numero "efficace" di pin emettenti (ovvero il prodotto di N_{pin} per la relativa ATT), S_{tot} indica il numero totale di fotoni di ^{137}Ba emessi al secondo dalle pin efficaci (ovvero il prodotto dell'intensità teorica di una pin moltiplicata per il numero di pin efficaci, vedi oltre), S_L indica la sorgente S_{tot} riportata all'unità di lunghezza, x indica la distanza della fila i -esima dal punto di valutazione del rateo di dose (vedi oltre), ϕ indica il flusso fotonico (monoenergetico) valutato in x , il rateo di dose è poi calcolato come prodotto di flusso per coefficiente di conversione (che per il solo ^{137}Ba vale $1.46E-8$ Sv/h/cm²/s), infine il rateo totale, dato come il rateo del solo ^{137}Ba diviso per la frazione di contributo del solo ^{137}Ba al rateo totale (0.939, cfr. Tab. 16); nell'ultima colonna è riportata la variazione percentuale relativa del calcolo analitico semplificato (4.29 Sv/h) rispetto al calcolo numerico esatto (5.24 Sv/h) del rateo di dose totale (cfr. Tab. 15, Valor Medio). Come si può vedere, l'accordo è ottimo pur nell'approssimazione usata nel metodo analitico semplificato.

Più in dettaglio, l'attenuazione ATT per le file successive alla prima, è valutata come:

$$ATT = e^{-0.745 \cdot i \cdot q \cdot a \cdot x}$$


dove i è il numero della fila ($i > 1$) e 0.745 è un coefficiente che riduce l'effetto moltiplicativo di i su x . Infatti il percorso di un fotone sarebbe $2x$ per la seconda fila, $3x$ per la terza fila, e così via, se e solo se tale fotone attraversasse nel suo cammino solo fuel; in realtà c'è una probabilità non nulla che, una volta fuoriuscito dalla pin in cui è prodotto, il fotone attraversi zone di aria prima di uscire dal FA. Tale probabilità è valutata come $1-w$, essendo w la probabilità che invece il fotone ha di attraversare solo fuel; si può porre, per semplicità:

$$w = \frac{D}{p} = 0.745$$

ovvero l'inverso del classico rapporto passo/diametro. In definitiva dunque è

$$ATT = e^{-w \cdot i \cdot q \cdot a \cdot x}$$

Relativamente all'intensità teorica di una pin, essa è facilmente calcolabile come l'intensità attribuibile al solo ^{137}Ba (ad es. da Tab. 13) diviso il numero totale di pin di un FA:

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-077	0	L	32	32

$$S_{Tot} = \frac{9.08E14}{(15 \cdot 15 - 17)} = 4.37E12 \text{ s}^{-1}$$

Infine, la distanza x varia, in maniera puramente geometrica, da fila a fila e da colonna a colonna, tuttavia il contributo di variazione da colonna a colonna viene trascurato e si lascia solo il contributo di fila ($p=1.4$ cm):

$$x = (100 + 1.4 \cdot i + 0.25) - 10.7$$

con i numero di fila e 10.7 cm pari al semi-passo di assembly.

Il modello qui presentato è in effetti molto semplificato, tuttavia, nella sua semplicità, è in grado di dar ragione, almeno in prima approssimazione, dei valori calcolati con i codici.

Riferimenti

[1] US-DoE, Nonproliferation and Arms Control Assessment of Weapons-Usable Fissile Material Storage and Excess Plutonium Disposition Alternatives, DOE/NN-0007, 1997.

[2] NAS, Committee on International Security and Arms Control, Management and Disposition of Plutonium, National Academy Press, 1994.

[3] W. R. Lloyd, M. K. Sheaffer, W. G. Sutcliffe, Dose Rate Estimates from irradiated Light-Water-Reactor Fuel Assemblies in Air, LLNL UCRL-ID-115199, 1994.

[4] B. Feng, R. N. Hill, R. Girieud, R. Eschbach, Comparison of Gamma Dose Rate Calculations for PWR spent Fuel Assembly, Physor 2014.

Ringraziamenti

The Apollo2 code is developed by CEA and co-owned by CEA, EDF and AREVA NP.

Il codice Apollo2 è sviluppato da CEA ed è di proprietà di CEA, EDF ed AREVA NP.