### POLITECNICO DI MILANO

Facoltà di Ingegneria dei Processi Industriali

Corso di Laurea in Ingegneria Nucleare



Studio Della Produzione di Plutonio Protetto Tramite il Drogaggio di Attinidi Minori nel Combustibile Nucleare

Relatore: Prof. Antonio CAMMI

Tesi di Laurea di:

Daniele FERRERI

Matr. 760354

Anno Accademico 2012 - 2013

## Indice

Ι	Analisi preliminare		6
1	MCNP e il Metodo Monte Carlo1.1Introduzione a MCNP1.2Confronto tra metodo Monte Carlo e metodo Deterministico1.3Metodo Monte Carlo	 	<b>7</b> 7 8 9
2	Studio delle proprietà nucleari degli isotopi del Plutonio2.1Geometria del problema e metodo di calcolo2.2Massa critica2.3Calore di decadimento e tasso di fissione spontanea	· · · ·	<b>11</b> 11 13 17
II	Criteri per la protezionelne del Plutonio		19
3	Criterio di Kimura3.1Introduzione al criterio3.2Metodologia3.3Risultati dell'analisi termica	· · · ·	<b>20</b> 20 21 24
4	Criterio di Pellaud     4.1   Weapon-grade   .     4.2   Fuel-grade   .     4.3   Reactor-grade   .     4.4   MOX-grade   .	· · · ·	<b>32</b> 32 33 33 33
II	PPP tramite drogaggio di Attinidi Minori		35
5	Introduzione a MVP-BURN   5.1 Schemi di calcolo MVP-BURN   5.1.1 Calcolo di depauperamento   5.1.2 Calcolo di raffreddamento   5.1.3 Calcolo di branch-off	· · · ·	<b>36</b> 37 37 39 39
	b.2 Geometria e specifiche tecniche del sistema in analisi		40

6	Applicazione del criterio di Kimura		
	6.1	Protezione del Plutonio	43
	6.2 Produzione e bruciamento degli attinidi minori		
		6.2.1 Nota: Produzione di <sup>238</sup> $Pu$ per la costruzione di RTG	
		$({\rm Radioisotope\ Thermal\ Generator})\ \ldots\ \ldots\ \ldots\ \ldots\ \ldots$	61
7	7 Applicazione del criterio di Pellaud		
	7.1	Protezione del plutonio	63
	7.2	Produzione e bruciamento degli attinidi minori (Confronto con i	
		casi precedenti) $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$	66
8	6 Conclusioni		75
9	Alle	egati	79

### Sommario

Il fine di questo lavoro di tesi è quello di valutare la possibilità di incrementare la resistenza alla proliferazione del plutonio tramite il drogaggio di attinidi minori nel combustibile nucleare. Tale valutazione è stata realizzata attraverso simulazioni Monte Carlo, utilizzando come modello una cella di combustibile nucleare con una geometria tipica di un reattore ad acqua pressurizzata (PWR) e contenente combustibile nella forma di ossido di uranio (UOX). Due condizioni sono inoltre state imposte: il mantenimento della "produzione di Plutonio protetto" per tutto il ciclo vita del combustibile ed il raggiungimento di un bruciamento dell'uranio. Diversi droganti sono stati considerati e ne sono stati comparati i risultati, in modo tale da giungere ad una valutazione oggettiva su quale potesse essere il drogante favorito, sotto diversi aspetti, e quale fosse la quantità minima di esso richiesta per raggiungere tutti gli obiettivi preposti.

The aim of this thesis is to evaluate the possibility of increasing the proliferation resistance of plutonium by doping minor actinides in the nuclear fuel. This evaluation was performed using Monte Carlo simulations, having as a physical model a nuclear pin cell with a typical pressurized water reactor (PWR) geometry and containing Uranium oxide fuel (UOX). Two conditions were also imposed: the maintenance of the "production of protected Plutonium" for the entire life of the fuel and the achievement of a burn-up equal to  $25 \frac{GWd}{t}$ , while keeping the enrichment of uranium as a degree of freedom. Several dopants have been considered and they were compared in order to find out the favorite dopant, from different points of view, and to figure out how much is the minimum amount of dopant required to meet all the objectives in charge.

### Introduzione

Storicamente il primo reattore nucleare a fissione funzionante fu il B-Reactor presso l'Hanford Site negli Stati Uniti. Il B-Reactor è stato un reattore moderato a grafite e refrigerato ad acqua leggera, appartenente alla categoria dei reattori plutonigeni. In quanto reattore plutonigeno il suo funzionamento non era finalizzato alla produzione di energia elettrica, ma bensì alla produzione di Plutonio *weapon-grade*, cioè adatto da essere utilizzato per la costruzione di bombe atomiche. In effetti il Plutonio utilizzato per la bomba "Fat Man", sganciata il 9 agosto del 1945 sulla città di Nagasaki in Giappone, venne prodotto proprio nel B-Reactor.

Recentemente ci si sta avviando verso un'utilizzo dell'energia nucleare di tipo unicamente civile e verso un progressivo disarmo delle Nazioni con testate atomiche. A manifestare questa volontà c'è la continua ricerca di nuovi metodi per impedire la produzione di Plutonio *weapon-grade* come "sottoprodotto" dei reattori nucleari. Nella seguente tesi di laurea verrà analizzato uno di questi metodi sviluppato al RLNR (Research Laboratory for Nuclear Reactors) del Tokyo Institute of Technology. Tale metodo è stato da me approfondito, studiandone l'applicabilità tramite simulazioni al computer e mostrando infine risultati a livello quantitativo.

Pur non volendo considerare il Plutonio già esistente nelle testate nucleari, la crescente quantità di Plutonio proveniente dal combustibile esaurito dei reattori attualmente funzionanti ne intensifica l'onere per la sua protezione.

A tutt'oggi il metodo più semplice per per aumentare il livello di protezione alla proliferazione del Plutonio consiste nell'aumentare la frazione di<sup>238</sup>Pu rispetto agli altri isotopi. Ciò è realizzabile apportando modifiche ai cicli del combustibile<sup>1</sup>, prolungando il tempo di irradiazione<sup>2</sup>, aggiungendo  $Np^{237}$  (<sup>3</sup>) o una combinazione di altri attinidi minori (AM) al combustibile fresco<sup>4</sup>. Il<sup>238</sup>Pu, con il suo elevato calore di decadimento (DH), pari a 567  $\frac{W}{g,s}$ , e con un altrettanto elevato tasso di fissione spontanea (SFN), pari a 2660  $\frac{n}{g,s}$ , può giocare un ruolo principale nel plasmare le caratteristiche intriseche di protezione del Plutonio. In accordo con il criterio IAEA (International Atomic Energy Agency) risalente al 1972, il Plutonio contenente più dell'80% di <sup>238</sup>Pu è considerato protetto.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>(Massey et al., 1980)

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Peryoga et al., 2002

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Nikitin et al., 1999

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>Peryoga et al., 2004

Tuttavia nel 1980 è stato dimostrato che anche una piccola frazione di<sup>238</sup>Pu, circa il 5% della quantità totale di Plutonio, è in grado sciogliere il materiale esplosivo che ricopre la sfera di materiale fissile tipica di alcuni ordigni atomici<sup>5</sup>, come ad esempio la bomba Fat Man. Due decenni dopo, la frazione di<sup>238</sup>Pu considerata sufficiente a scoraggiare l'attività di proliferazione è stata rivista e suggerita pari al 12% <sup>6</sup>. Similarmente al<sup>238</sup>Pu, anche il<sup>240</sup>Pu e il<sup>242</sup>Pu hanno caratteristiche favorevoli in termini di resistenza alla proliferazione, possendendo un SFN di 1030  $\frac{n}{g.s}$  e di 1720  $\frac{n}{g.s}$  rispettiavamente. Nel corso degli ultimi anni sono stati svilupatti diversi criteri che tengono

Nel corso degli ultimi anni sono stati svilupatti diversi criteri che tengono conto della presenza degli altri isotopi pari del Plutonio oltre al<sup>238</sup>Pu, in particolare nel presente studio verranno utilizzati il criterio di Pellaud, che prende in considerazione solamente l'effetto determinato dall'alto livello di fissione spontanea del  $Pu^{240}$ , ed il criterio di Kimura, che invece considera l'effetto determinato dalla presenza simultanea del<sup>238</sup>Pu, del<sup>240</sup>Pu e del<sup>242</sup>Pu.

L'obiettivo finale di questo studio è dunque quello di valutare il tipo e la quantità di drogante da aggiungere al combustibile nucleare al fine di modificarne le proprietà intrinseche di protezione alla proliferazione e soddisfare selettivamente il criterio di Kimura e quello di Pellaud. La simulazione è stata effettuata utilizzando come modello fisico una cella di tipo PWR, contenente ossido di uranio (UOX). Si noti che si è tentato di effettuare il medesimo studio anche relativamente al caso di combustibile MOX in una cella di tipo LWR ed FBR, ma senza giungere a risultati soddisfacenti.

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>(Heising-Goodman, 1980)

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup>Kessler, 2004

# Parte I Analisi preliminare

### Capitolo 1

## MCNP e il Metodo Monte Carlo

### 1.1 Introduzione a MCNP

Com'è noto il Plutonio è, assieme all'uranio, il combustibile nucleare per eccellenza.

Sotto il punto di vista della produzione energetica gli isotopi più importanti del Plutonio sono il<sup>239</sup>Pu e il<sup>241</sup>Pu, in quanto eccellenti materiali fissili.

Tuttavia per il seguente studio l'attenzione non è incentrata sul caratteristiche che fanno del Plutonio un combustibile nucleare, bensì ci si focalizzerà su quegli aspetti spesso considerati "indesiderati" dal punto di vista della gestione, caretteristici degli isotopi pari del Plutonio ( $^{238}Pu,^{240}Pu$  e $^{242}Pu$ ), i quali se tenuti sotto controllo possono conferire al Plutonio delle interessanti proprietà intriseche per la non proliferazione. Le proprietà in questione sono ovviamente il calore di decadimento, il tasso di fissione spontanea e la massa critica.

Le proprietà in questione sono la massa critica, il calore di decadimento e il tasso di fissione spontanea.

Prima di procedere con l'applicazione vera e propria dei criteri di protezione alla proliferazione del Plutonio verrà però mostrata un'analisi preliminare relativa allo studio delle caratteristiche principali degli isotopi del Plutonio.

Per simulare il comportamento del Plutonio e svolgere tale analisi si è utilizzato un codice di calcolo MCNP. Si tratta di un codice Monte Carlo sviluppato dal Los Alamos National Laboratory e riconosciuto internazionalmente per l'analisi del trasporto di neutroni, elettroni e raggi  $\gamma$ . Può essere sfruttato per simulare il trasporto singolo o accoppiato, come ad esempio il trasporto di raggi  $\gamma$  secondari risultanti dalle interazioni neutroniche oppure il trasporto di elettroni creati dalle interazioni dei raggi  $\gamma$ . L'intervallo energetico dei neutroni va da  $10^{-11}MeV$  a 20MeV, quello dei fotoni è compreso tra 1keV a 100GeV e l'intervallo energetico degli elettroni va da 1keV a 1GeV. La capacità di calcolare il fattore di moltiplicazione efficace  $k_{eff}$  per sistemi che includono materiale fissile è inoltre una caratteristica standard.

Per effettuare la simulazione l'utente crea un file di input che è successivamente letto dal codice MCNP. Questo file contiene informazioni riguardo i seguenti campi del problema in analisi:

- la geometria del sistema
- la descrizione dei materiali e la selezione delle sezioni d'urto
- la posizione e le caratteristiche della sorgente di neutroni, fotoni o elettroni
- il tipo di risposta desiderata
- il tipo di tecnica di riduzione della varianza utilizzata per aumentare l'efficienza

### 1.2 Confronto tra metodo Monte Carlo e metodo Deterministico

I metodi Monte Carlo presentano numerose differenze rispetto ai metodi di trasporto deterministici. I metodi deterministici, il più comune dei quali è il metodo deterministico ad eventi discreti, risolvono l'equazione del trasporto operando una media sul comportamento delle particelle. Per contro, il metodo Monte Carlo risolve il problema simulando il trasporto delle singole particelle e registrando alcuni aspetti del loro comportamento medio. Il comportamento medio delle particelle nel sistema fisico viene dunque dedotto (utilizzando il teorema del limite centrale) dal comportamento medio delle particelle simulate.

Il metodo Monte Carlo e quello deterministico non sono solo differenti nella metodologia utilizzata per risolvere il problema, ma anche ciò che costituisce la soluzione è differente. Il metodo deterministico tipicamente fornisce delle informazione più complete, ad esempio relativamente al flusso neutronico e rispetto a tutto lo spazio delle fasi; il metodo Monte Carlo invece fornisce informazioni solo riguardo ad aspetti specifici richiesti dall'utente.

Quando vengono messi a confronto il metodo Monte Carlo ed il metodo ad eventi discreti, spesso si afferma che il Monte Carlo è in grado di risolvere l'equazione integrale del trasporto, laddove il metodo ad eventi discreti risolve l'equazione integro-differenziale del trasporto. In effetti ci sono due aspetti fuorvianti in quest'affermazione.

Il primo è che l'equazione integrale e l'equazione integro-differenziale del trasporto sono due differenti forme di una stessa equazione; se una forma viene risolta anche l'altra può essere ricavata. Il secondo punto ingannevole è relativo al metodo Monte Carlo, in quanto esso in realtà risolve il problema del trasporto simulando le "storie" delle particelle.

Dunque non è necessario scrivere alcun equazione del trasporto per risolvere un problema col metodo Monte Carlo, ciò nonostante è possibile derivare un'equazione che descriva la densità di probabilità delle particelle nello spazio delle fasi. Questa equazione risulta in effetti essere identica all'equazione del trasporto integrale.

Senza derivare l'equazione integrale del trasporto, è interessante investigare sul perché il metodo deterministico ad eventi discreti sia associato con l'equazione inegro-differenziale e il metodo Monte Carlo con l'equazione integrale.

Col metodo ad eventi discreti lo spazio delle fasi viene suddiviso in numerosi "volumetti" e le particelle sono libere di muoversi tra di essi. Considerando "volumetti" sempre più piccoli le particelle impiegano un intervallo di tempo dt per spostarsi di una distanza differenziale dx. In questo limite, l'equazione che descrive il trasporto delle particelle ha forma integro-differenziale, infatti presenta derivate in spazio e tempo. Di contro, il metodo Monte Carlo considera il trasporto delle particelle tramite degli eventi (ad esempio collissioni) che si susseguono e sono separati in spazio e tempo. I differenziali di spazio e tempo non sono parametri del trasporto col metodo Monte Carlo. Infatti l'equazione integrale del trasporto non presenta termini di derivate in spazio o tempo.

### 1.3 Metodo Monte Carlo

Il metodo Monte Carlo può essere utilizzato per duplicare teoricamente un processo statistico, come ad esempio l'interazione di particelle nucleari in un mezzo, ed è particolarmente utile per risolvere problemi complessi che non possono venire modellizzati con codici di calcolo che utilizzano modelli deterministici.

I singoli eventi probabilistici che compongo un processo vengono simulati sequenzialmente e le distribuzioni di probabilità che governano questi eventi sono campionati statisticamente per descrivere il fenomeno totale.

Il processo di campionamento statistico si basa sulla selezioni di variabili casuali, analogamente a ciò che si fa lanciando dei dadi, da cui il nome Monte Carlo.

Nel trasporto di particelle la tecnica Monte Carlo è preminentemente realistica, al pari di un esperimento numerico. Essa infatti consiste nel "seguire" ogni particella dalla sorgente fino alla sua scomparsa, tipicamente per assorbimento o fuga. Le distribuzioni di probabilità vengono campionate casualmente usando dati di trasporto adatti al problema in esame, al fine di determinare il risultato di ogni interazione.



Figura 1.1: Esempio di storia di una particella col metodo Monte Carlo

In figura 1.1 è rappresentata una storia casuale di un neutrone incidente su una lastra di materiale che può andare incontro a fissione.

I numeri tra 0 e 1 sono selezionati casualmente per determinare se e quale interazione interesserà il neutrone e dove ciò avverrà, basandosi sulle regole fisiche e le probabilità, fornite dai dati sul trasporto inerenti al caso studiato, le quali governano i processi e i materiali interagenti.

Nell'esempio di figura 1.1 una collisione neutronica avviene all'evento 1. Il neutrone diffonde quindi nella direzione mostrata, la quale è selezionata casualmente utilizzando la distribuzione di probabilità di *scattering*. Un fotone viene inoltre prodotto ed è temporaneamente immagazzinato per le analisi successive. All'evento 2 avviene la fissione del neutrone, portando alla sua scomparsa ed alla nascita di due nuovi neutroni ed un fotone. Uno dei due neutroni ed il fotone vengono immagazzinati in attesa delle successive analisi. Il primo neutrone viene catturato all'evento 3 e termina la sua esistenza. A questo punto il neutrone precedentemente immagazzinato viene adesso recuperato e, a seguito di un campionamento casuale, fugge dalla lastra all'evento 4. Il fotone prodotto dalla fissione ha una collisione all'evento 5 e fugge dal sistema all'evento 6. Il fotono rimanente, generato all'evento 1, è adesso al centro dell'analisi e subisce cattura all'evento 7. Si noti che MCNP recupera le particelle immagazzinate in modo che l'ultima particella immagazzinata sia la prima a venire recuperata.

La storia del neutrone è adesso completa.

Col susseguirsi di numerose storie, le distrubizioni dei neutroni e dei fotoni nel sistema diventano ben note e le quantità di interesse vengono calcolate, assieme alle stime dell'incertezza statistica dei risultati.

### Capitolo 2

## Studio delle proprietà nucleari degli isotopi del Plutonio

### 2.1 Geometria del problema e metodo di calcolo

Prima di procede con la parte principale di questo studio verranno mostrati i risultati dell'analisi preliminare relativa alle proprietà nucleari degli isotopi del Plutonio. In tale analisi si è in particolare studiato come ogni isotopo possa incidere sulla massa critica, il calore di decadimento e il tasso di fissione spontanea del contenuto totale di Plutonio.

La geometria considerata è la più semplice possibile, una sfera costuita da Plutonio metallico, in fase allotropica  $\delta$  con densità di massa costante e pari a 19.8  $\frac{g}{cm^3}$ , in assenza di riflettore o moderatore.

La procedura che si è utilizzata per il calcolo MCNP è la seguente:

- 1. Il codice viene scritto impostando le caratteristiche di default della sfera (Plutonio super-grade:  $100\%^{239}Pu$ , raggio: valore di default)
- 2. Vengono eseguiti quattro calcoli mantenendo invariata la composizione isotopica del Plutonio e variando di volta in volta il raggio della sfera (in modo tale che per per il 50% delle volte il valore del  $k_{eff}$  calcolato dal codice MCNP risulti maggiore di 1 e per il restante 50% ne risulti minore)
- 3. Viene determinato il valore del raggio critico, cioè il valore del raggio della sfera per il quale il  $k_{eff}$  sia uguale a 1, tramite un'interpolazione lineare dei valori di raggio trovati in precedenza, come mostrato in figura 2.1.
- 4. Viene modificata la composizione isotopica del Plutonio riducendo del 5% il quantitativo di<sup>239</sup>Pu ed aumentando del 5% la quantità dell'isotopo ausiliario considerato per la seguente serie di calcoli (solo uno per serie).
- 5. Se la percentuale di<sup>239</sup>Pu è ancora superiore al 5% si torna al punto 2, altrimenti la serie di calcoli è finita e si ricomincia utilizzando un altro isotopo ausiliario.



Figura 2.1: Esempio di interpolazione lineare per ricavare il valore del raggio critico

Una volta ricavato il dato sul raggio critico per una determinata composizione isotopica del Plutonio, è possibile risalire alla massa critica semplicemente moltiplicando il volume critico della sfera (ottenuto in corrispondenza del raggio critico) per la sua densità.

$$V_{cr} = \frac{4}{3}\pi R_{cr}^3 \rho$$

 $M_{cr} = V_{cr} \cdot \rho$ 

dove:

 $\rho$ : densità del Plutonio metallico in fase allotropica  $\delta$ 

 $R_{cr}$ : raggio critico

 $V_{cr}$ : volume critico

 $M_{cr}$ : massa critica

A questo punto è possibile ricavare i valori del calore di decadimento (DH) e del tasso di fissione spontanea (SFR) semplicemente moltiplicando i valori noti di DH e di SFR di ogni isotopo per la proporzione in massa (W) con cui è presente.

Per meglio comprendere questo passaggio si guardi l'esempio seguente.

#### Esempio di calcolo del DH:

Composizione isotopica del Plutonio:  $80\%^{239}Pu$ ,  $20\%^{242}Pu$   $M_{cr} = 12.5 \ kg$   $DH(^{239}Pu) = 1.92 \ \frac{W}{kg}$   $DH(^{242}Pu) = 0.1 \ \frac{W}{kg}$  $W(^{239}Pu) = \frac{0.8.239}{0.8.239+0.2.242} = 0.798$  
$$\begin{split} W(^{242}Pu) &= \frac{0.2.242}{0.8.239 + 0.2.242} = 0.202 \\ DH_{tot} &= DH(Pu^{239}) \boldsymbol{\cdot} M_{cr} \boldsymbol{\cdot} W(^{239}Pu) + DH(^{242}Pu) \boldsymbol{\cdot} M_{cr} \boldsymbol{\cdot} W(^{242}Pu) = 19.40 \\ W \end{split}$$

Risulta quindi chiaro che l'obiettivo di questo studio preliminare sia in effetti quello di analizzare in che modo sia possibile cambiare la composizione isotopica di una sfera di Plutonio *super-grade* (costituita al 100% da  $Pu^{239}$ ), drogandola con gli altri isotopi del Plutonio, per far sì che diventi meno appetibile dal punto di vista della proliferazione nucleare.

Andiamo quindi ad analizzare i dati ottenuti tramite le simulazioni MCNP.

### 2.2 Massa critica

La massa critica di un materiale fissile rappresenta la quantità minima di tale materiale per la quale sia possibile il sostenimento autonomo della reazione a catena di fissione, cioè quella quantità di materia per la quale il fattore di moltiplicazione del sistema sia uguale ad 1.

Come si è detto nella sezione precedente, il primo passaggio di questo studio preliminare è stato proprio quello di determinare l'andamento della massa critica di una sfera di Plutonio, partendo da una situazione di Plutonio super-grade  $(100\%^{239}Pu)$  per poi drogare la stessa con una quantità via via crescente di un altro isotopo del Plutonio.

La figura 2.2 mostra 4 andamenti della massa critica, ognuno relativo ad un differente isotopo utilizzato come drogante.



Figura 2.2: Massa critica

Prima di procedere ad una discussione dei risultati ottenuti è fondamentale notare che al centro di questo studio è una sfera di Plutonio "nuda", cioè in assenza di un materiale moderatore, di conseguenza lo spettro energetico dei neutroni risulta spostato verso le alte energie.

Ciò che si può notare dalla figura 2.2 è che l'aggiunta di<sup>240</sup>Pu,<sup>241</sup>Pu e<sup>242</sup>Pu comporta un aumento della massa critica, mentre l'aggiunta di<sup>238</sup>Pu ne comporta una diminuzione.

Come già accennato, la giustificazione di questo comportamento si spiega ricordando che i neutroni presenti nel sistema possiedono un'elevata energia.

Andando in effetti ad analizzare le sezioni d'urto degli isotopi del Plutonio si può verificare che per le alte energie il<sup>239</sup>Pu presenta una sezione d'urto di fissione mediamente più grande di quella del<sup>240</sup>Pu,<sup>241</sup>Pu e del<sup>242</sup>Pu e d'altra parte il<sup>239</sup>Pu ha anche una sezione d'urto di cattura più piccola di quella degli isotopi maggiori. Sempre conformemente ai risultati ottenuti si ha che invece la sezione d'urto di fissione del<sup>238</sup>Pu per le alte energie superi quelle del<sup>239</sup>Pu mentre le sezioni d'urto di cattura siano paragonabili.

Per i grafici delle sezioni d'urto si faccia riferimento alla figura 2.3.







Figura 2.3: Sezioni d'urto degli isotopi del Plutonio (JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering)

### 2.3 Calore di decadimento e tasso di fissione spontanea

Una volta ottenuta la massa critica è possibile ricavare il calore di decadimento totale e il tasso di fissione spontanea totale della sfera con il semplice calcolo mostrato nell'esempio della sezione 2.1.



Figura 2.4: Calore di decadimento totale



Figura 2.5: Tasso di fissione spontanea totale

Ciò che si può notare dalla figura 2.4 è che il contributo dominante è dato dal<sup>238</sup>Pu, non a caso il<sup>238</sup>Pu è l'isotopo principale attorno a cui ruota la protezione alla proliferazione del Plutonio.

Analizzando la figura 2.5 si può invece realizzare perché anche gli isotopi<sup>240</sup>Pu e<sup>242</sup>Pu svolgano un ruolo importante nella protezione del Plutonio, difatti essi non solo possiedono un relativamente elevato calore di decadimento e contribuiscono ad aumentare la massa critica del Plutonio, ma sono anche caratterizzati dall'avere i più elevati tassi di fissione spontanea tra tutti gli isotpi del Plutonio.

## Parte II

## Criteri per la protezionelne del Plutonio

### Capitolo 3

## Criterio di Kimura

#### 3.1 Introduzione al criterio

Fin dai primi anni '80, numerosi sforzi sono stati fatti per evitare l'utilizzo del Plutonio come materiale per la costruzione di ordigni nucleari o NED (Nuclear Explosive Devices). Recentemente il professor Saito Masaki del Tokyo Institute of Technology ha proposto il concetto di Produzione Protetta del Plutonio o PPP (Protected Plutonium Production). In tale concetto gli Attinidi Minori o AM vengono utilizzati come una fonte di $^{238}Pu$ , in modo tale da aumentare la resistenza alla proliferazione del Plutonio nel combustibile nucleare. La composizione isotopica del Plutonio è una dei fattori chiave per determinare le caratteristiche intrinseche di resistenza alla proliferazione del ciclo del combustibile nucleare. Esistono alcuni criteri relativi alla composizione isotopica del Plutonio, tuttavia ad oggi l'unico criterio ufficialmente riconosciuto è quello dell'IAEA. Tale criterio sancisce che il Plutonio contenente una frazione di $^{238}Pu$ maggiore dell'80% è esente dalle salvaguardie. Come si è detto, tale criterio è l'unico ufficialmente riconosciuto a livello internazionale, tuttavia il professor Kessler, ex-direttore dell'Institute of Neutron Physics and Reactor di Karlsruhe (Germania), ha proposto di abbassare la soglia del livello minimo di<sup>238</sup>Pu, al 9%, considerando che in tale condizione sarebbe tecnicamente impossibile creare un NED di tipo implosivo. anche

Isotopo	<b>DH</b> $\frac{W}{kg}$	SFN $\left(\frac{n}{g.s}\right)$	BCM $(kg)$
$Pu^{238}$	567	2660	13.1
$Pu^{239}$	1.93	0.0226	14.8
$Pu^{240}$	7.06	1030	44.8
$Pu^{241}$	3.4	0.0493	17.6
$Pu^{242}$	0.12	1720	87.8

Tabella 3.1: Proprietà nucleari degli isotopi del Plutonio (DH = Calore di decadimento, SFN = Tasso di fissione spontanea, BCM = Massa critica)

La tabella 3.1 richiama le principali caratteristiche degli isotopi del Plutonio. Le proprietà più importanti del<sup>238</sup>Pu per la non-proliferazione sono l'elevato calore di decadimento (567  $\frac{W}{kq}$ ) e l'elevato tasso di fissione spontanea (2660  $\frac{n}{q_s}$ ). Un elevato calore di decadimento rende il Plutonio meno gestibile e dunque rende tecnicamente più difficile la costruzione di un NED, inoltre la presenza di un'intensa sorgente di neutroni, causata da un elevato tasso di fissione spontanea, ostacola l'assemblaggio del Plutonio all'interno del NED e ne riduce la resa d'esplosione. La maggior parte delle precedenti ricerche sull'impoverimento del Plutonio sono state focalizzate sull'ottenimento di tale obbiettivo agendo sul $^{238}Pu$ . Ad ogni modo la proprietà intrinseca del Plutonio di resistenza alla proliferazione può essere raggiunta non solo sfruttando le caratteristiche  $del^{238}Pu$ , ma dipende anche fortemente dalla quantità  $di^{240}Pu e^{242}Pu$  presente. Come si è già anticipato nell'introduzione,  $il^{240}Pu$  e  $il^{242}Pu$  infatti hanno un elevato tasso di fissione spontanea ed una grande massa critica. Per la formulazione del criterio di Kimura la resistenza alla proliferazione del Plutonio si è basata essenzialmente sul calore di decadimento e per effettuare una valutazione si è utilizzato un modello fisico con una geometria dettagliata di un tipico NED. Sebbene l'isotopo più influente dal punto di vista del calore di decadimento sia ovviamente il<sup>238</sup>Pu, gli effetti del<sup>240</sup>Pu e del<sup>242</sup>Pu sulla resistenza alla proliferazione del Plutonio sono stati tenuti in considerazione.

### 3.2 Metodologia

Nel presente studio la caratteristica intrinseca di resistenza alla proliferazione del Plutonio è stata valutata sulla base del profilo di temperatura del modello fisico di valutazione di un tipico NED. Il profilo di temperatura è stato valutato basandosi su varie frazioni degli isotopi pari del Plutonio.



Figura 3.1: Ipotetico ordigno nucleare o HNED (Hypotetical Nuclear Explosive Device)

#### 1

Il modello di un ipotetico ordigno nucleare (HNED) proposto da Kessler è stato utilizzato come modello fisico di valutazione nel seguente studio.

In figura 3.1 è mostrata la geometria dell'HNED. Esso è costituto da una sfera di Plutonio metallico e da 4 ulteriori strati concentrici, un riflettore di uranio naturale metallico, uno strato di alluminio, uno strato altamente esplosivo ed uno strato d'acciaio. La massa della sfera di Plutonio è stata decisa imponendo un fattore di moltiplicazione effettivo pari a 0.98, considerando la presenza di 5 cm del riflettore di uranio naturale. Nella trattazione successiva ci si riferirà ad essa col nome di Massa Sottocritica o SCM. Verranno ora considerate 3 classi tecnologiche di HNED, di basso, medio e alto livello. Ogni classe sarà caratterizzata da dimensioni geometriche del modello diverse e da materiali altamente esplosivi con caratteristiche differenti. La dimensione geometrica in una classe tecnologicamente superiore richiede uno spessore inferiore dei vari materiali e le caratteristiche del materiale esplosivo sono più stabili alle alte temperature rispetto a ciò che si ha per una classe inferiore.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Coefficiente termico del gap  $Pu - U = 700 \frac{W}{m^2 K}$ 

Materiale	Conduttività termica $(\frac{W}{m.K})$
Plutonio	19
Uranio	27.6
Alluminio	232
Acciaio	25.7
Coefficiente termico del gap Pu-U $\left(\frac{W}{m^2 \cdot K}\right)$	700

Tabella 3.2: Proprietà termiche dei materiali mettalici nell'HNED

Classe Tecnologica	Conduttività termica
Bassa	0.496
Media	0.407
$\operatorname{Alta}$	0.546

Tabella 3.3: Proprietà termiche del materiale altamente esplosivo nell'HNED

Nelle tabelle 3.2 e 3.3sono mostrate le proprietà termiche dei materiali costituenti l'HNED. I materiali esplosivi possono fondere, auto-esplodere o subire la pirolisi ad una certa temperatura essendo composti da materiali organici. Nel seguente studio, una determinata temperatura è descritta come temperatura critica ed è scelta selezionando il più piccolo valore tra punto di fusione, temperatura di auto-distruzione o di pirolisi per il materiale esplosivo per ogni classe tecnologica (tabella 3.4).

Classe	Punto di	Temperatura	Temperatura	Temperatura
tecnologica	fusione (°C)	di auto-	di pirolisi (°C)	critica (°C)
		distruzione		
		(°C)		
Bassa	80	300	180	80
Media	286	259	285	259
Alta	448	347	395	347

Tabella 3.4: Temperature critiche del materiale altamente esplosivo

Nella classe tecnologia bassa il punto di fusione è stato selezionato come temperatura critica, mentre le temperature di auto-distruzione sono state selezionate per la classe media e alta. Per le varie frazioni isotopiche di Plutonio è stato calcolato il fattore di moltiplicazione effettivo utilizzando il codice di calco-lo Monte Carlo MCNP4C accoppiato con la libreria di sezioni d'urto basata sul JENDL3.3. L'errore statistico dell'autovalore è ridotto allo 0.2%. Per i calcoli inoltre si è considerata la densità del Plutonio metallico in fase allotropica  $\delta$  (15.8  $\frac{g}{cm^3}$ ) e la densità dell'uranio metallico in fase allotropica  $\delta$  (18.9  $\frac{g}{cm^3}$ ). Il profilo

di temperatura dell'HNED è stato calcolato con un approccio 1-dimensionale sotto la condizione al contorno di trasferimento di calore per convezione naturale d'aria e trasferimento di calore per irraggiamento dalla superficie dell'HNED. Per quanto riguarda il trasferimento di calore per irraggiamento la superficie dell'HNED e la struttura attorno ad esso sono stati assimilati ad un corpo nero. La temperatura dell'aria e della struttura attorno all'HNED è stata posta a 300 K. L'espansione termica e la transizione di fase dei materiali all'interno dell'HNED non sono stati considerati, inoltre la resistenza termica è stata presa in considerazione solamente tra la sfera di Plutonio e il riflettore di uranio. A seguito dell'analisi del profilo di temperatura è stato valutato la caratteristica intrinseca di resistenza alla proliferazione del Plutonio. L'effetto di ogni isotopo pari del Plutonio è stato discusso ed è stata valutata quantitativamente la proporzione di ognuno di essi necessaria a rendere l'HNED tecnicamente irrealizzabile, cioè valutando in quali condizioni la temperatura interna dello strato di materiale altamente esplosivo eccedesse il valore critico corrispondente alla classe tecnologica considerata.

### 3.3 Risultati dell'analisi termica

La figura 3.2 mostra un tipico esempio di profilo di temperatura all'interno dell'HNED per un modello di classe tecnologica alta contenente Plutonio costituito per il 20% di<sup>238</sup>Pu e per il restante 80% di<sup>239</sup>Pu, si potrebbe quindi parlare di drogaggio di<sup>238</sup>Pu in una sfera di<sup>239</sup>Pu.



Figura 3.2: Profilo di temperatura all'interno dell'HNED (classe tecnologica alta, composizione isotopica del Plutonio: 20% di<sup>238</sup>Pu, 80% di<sup>239</sup>Pu)

Il profilo di temperatura è governato principalmente dalla generazione di calore ad opere della sfera di Plutonio. Tale profilo, specialmente all'interno dello strato di materiale altamente esplosivo, aumenta proporzionalmente alla potenza generata dalla sfera di Plutonio. In figura 3.3 si può vedere la potenza totale generata dalla sfera di Plutonio all'interno dell'HNED nelle medesime condizioni di composizione isotopica del Plutonio.



Figura 3.3: Drogaggio di<sup>238</sup>Pu



Figura 3.4: Drogaggio di<sup>240</sup>Pu e<sup>242</sup>Pu

Dato che il<sup>238</sup>Pu ha il più grande calore di decadimento tra gli isotopi del Plutonio, il calore di decadimento della Sfera di Plutonio aumenta proporzionalmente alla frazione isotopica del<sup>238</sup>Pu. Inoltre si è trovato che la potenza generata aumenta ulteriormente nel caso in cui sia presente anche il<sup>240</sup>Pu e il<sup>242</sup>Pu come sostanze droganti "ausiliarie" (figura 3.4). Questo comportamento è spiegabile considerando gli effetti del<sup>240</sup>Pu e del<sup>242</sup>Pu sulla SCM di una sfera di Plutonio.

In tabella 3.5 sono elencate le SCM degli isotopi del Plutonio presenti all'interno dell'HNED.

Isotopo	<b>SCM</b> $kg$
$^{238}Pu$	7.14
$^{239}Pu$	7.23
$^{240}Pu$	28.71
$^{241}Pu$	7.93
$^{242}Pu$	59.11

Tabella 3.5: SCM degli isotopi del Plutonio  $(k_{eff} = 0.98)$ 

Dato che le SCM del<sup>240</sup>Pu e del<sup>242</sup>Pu sono le più grandi di quella del<sup>239</sup>Pu, se essi sono presenti come droganti la SCM complessiva aumenta e la potenza totale generata dalla sfera di Plutonio aumenta anch'essa, sebbene il calore di decadimento del<sup>240</sup>Pu e del<sup>242</sup>Pu sia molto inferiore rispetto a quello del<sup>238</sup>Pu. D'altra parte l'effetto di un drogaggio "puro" di<sup>238</sup>Pu sulla potenza generata è circa lineare dato che la sua SCM è circa uguale a quella del<sup>239</sup>Pu (figura 3.3). Nelle Figure 3.5, 3.6 e 3.7 si possono notare gli andamenti della temperatura della sfera di Plutonio all'interno dell'HNED in funzione al rapporto di drogaggio degli isotopi pari del Plutonio rispetto al<sup>239</sup>Pu per le tre classi tecnologiche considerate.



Figura 3.5: Temperatura del centro della sfera di Plutonio all'interno dell'HNED per la classe tecnologica bassa



Figura 3.6: Temperatura del centro della sfera di Plutonio all'interno dell'HNED per la classe tecnologica media



Figura 3.7: Temperatura del centro della sfera di Plutonio all'interno dell'HNED per la classe tecnologica alta

Per ogni classe tecnologica la temperatura della sfera di Plutonio aumenta in funzione della frazione isotopica di<sup>238</sup>Pu e supera il punto di fusione del Plutonio metallico (circa 640 °C) per un certo valore della quantità di<sup>238</sup>Pu, a causa del suo grande calore di decadimento. I profili di temperatura sono differenti tra le classi tecnologiche dato che cambiano le dimensioni geometriche e le proprietà termiche del materiale esplosivo. Nel caso del drogaggio di<sup>238</sup>Pu "puro" nel<sup>239</sup>Pu si ha che la temperatura della sfera di Plutonio eccede il punto di fusione del materiale esplosivo per un valore della frazione di<sup>238</sup>Pu  $\geq 24\%$  per la classe tecnologica alta,  $\geq\!\!15\%$  per la classe media e $\geq\!\!22\%$  per la classe bassa. Nel caso di drogaggio di<sup>240</sup>Pu e di<sup>242</sup>Pu in aggiunta al<sup>238</sup>Pu si osserva una diminuzione della frazione minima richiesta di quest'ultimo (Figure 3.5, 3.6 e 3.7). Finora si è discusso genericamente circa le problematiche tecniche legate alla costruzione di un HNED che potrebbero nascere considerando variazioni nella composizione isotopica del Plutonio utilizzato come nucleo della bomba stessa, valutate effettuando una comparazione tra la temperatura della sfera di Plutonio e il punto di fusione del Plutonio metallico. Adesso queste difficoltà tecniche saranno valutate effettuando una comparazione tra la temperatura interna dello strano altamente esplosivo all'interno dell'HNED e la temperatura critica dello stesso. Una volta che la temperatura interna dello strato di materiale esplosivo eccede la temperatura critica, tale materiale non è più in grado di funzionare correttamente a causa della fusione dello stesso, dell'auto-esplosione o per l'inizio del processo di pirolisi, e dunque l'HNED diventa tecnicamente irrealizzabile . Le Figure 3.8, 3.9 e 3.10 mostra l'andamento della temperatura interna dello strato esplosivo in funzione della variazione di combinazione di drogaggio degli isotopi pari del Plutonio  $nel^{239}Pu$ .



Figura 3.8: Temperatura interna dello strato altamente esplosivo per la classe tecnologica bassa



Figura 3.9: Temperatura interna dello strato altamente esplosivo per la classe tecnologica media



Figura 3.10: Temperatura interna dello strato altamente esplosivo per la classe tecnologica alta

Nello strato di materiale esplosivo la temperatura interna aumenta in funzione all'aumento della frazione di<sup>238</sup>Pu, così come avviene per la temperatura della sfera di Plutonio. Inoltre il<sup>240</sup>Pu e il<sup>242</sup>Pu giocano ancora un ruolo ausiliario per l'aumento di temperatura. Nel caso della classe tecnologica alta la temperatura interna aumenta meno rispetto alle altre classi in quanto lo strato esplosivo presenta una conduttività termica maggiore ed uno spessore minore. Nelle classi tecnologiche inferiori le temperature interne eccedono le temperature critiche in corrispondenza di una frazione isotopica di<sup>238</sup>Pu perché le temperature critiche stesso sono inferiori. Nel caso in cui il<sup>238</sup>Pu sia il solo drogante, la temperatura interna dello strato esplosivo eccede il suo valore critico per una frazione isotopica del<sup>238</sup>Pu superiore al 15% per la classe tecnologica alta, al 6% per quella media e al 2% per quella bassa.

Sembra dunque che lo strato di materiale esplosivo smetta di funzionare correttamente, a causa del raggiungimento della temperatura critica, per una frazione di<sup>238</sup>Pu inferiore rispetto a quella richiesta per portare la sfera di Plutonio alla fusione. Dunque il vincolo sulla temperatura dello strato esplosivo è più stringente e verrà scelto come base del criterio per valutare la resistenza alla proliferazione del Plutonio.

Recentemente Kessler ha proposto un criterio che pone la barriera isotopica del<sup>238</sup>Pu al 9%, considerando come sempre il caso di un HNED reso tecnicamente inutilizzabile.

Questo criterio, ad ogni modo, non tiene conto della presenza di piccole frazioni di<sup>240</sup>Pu e<sup>242</sup>Pu, le quali come si è visto sono tuttavia di notevole importanza come ausilio al drogaggio di<sup>238</sup>Pu.

Gli effetti del<sup>240</sup>Pu e del<sup>2420</sup>Pu come drogante d'ausilio possono essere notate in figura 3.11.



Figura 3.11: Effetto  $\mathrm{del}^{240}Pu$ e  $\mathrm{del}^{242}Pu$  per rendere l'HNED tecnicamente inutilizzabile

In presenza del 10% di<sup>240</sup>Pu e<sup>242</sup>Pu sul totale di Plutonio si osserva una diminuzione della frazione necessaria di<sup>238</sup>Pu necessaria a rendere l'HNED inutilizzabile pari all'1.1% per la classe tecnologica alta, allo 0.5% per quella media e allo 0.1% per quella bassa.

A questo punto è possibile approssimare linearmente gli andamenti di figura 3.11, ricavando 3 equazioni, una per ogni classe tecnologica.

Tali equazioni forniscono dunque un'indicazione quantitativa di quale sia la frazione minima di<sup>238</sup>Pu, tenendo conto dell'effetto ausiliario del<sup>240</sup>Pu e del<sup>242</sup>Pu, tale per cui l'HNED sia tecnicamente irrealizzabile.

Le equazioni in questione sono le seguenti:

Classe tecnologica	Frazione degli isotopi pari del Plutonio (%)
Bassa	${}^{238}Pu = 1.9 - 0.02 \cdot ({}^{240}Pu + {}^{242}Pu)$
Media	$^{238}Pu = 6.2 - 0.05 \cdot (^{240}Pu + ^{242}Pu)$
Alta	${}^{238}Pu = 15.0 - 0.11 \cdot ({}^{240}Pu + {}^{242}Pu)$

Nello studio relativo alla *Produzione di Plutonio Protetto* (PPP) tramite drogaggio di Attinidi Minori si è utilizzato il criterio di Kimura riferito alla classe tecnologica alta in modo da avere un approccio al problema il più conservativo possibile.

### Capitolo 4

## Criterio di Pellaud

Il fisico Bruno Pellaud, ex-direttore generale dell'International Atomic Energy Agency (IAEA), ha proposto di considerare il Plutonio esente dalle salvaguardie nucleari se contenente più del 30% di<sup>240</sup>Pu.

Come si è visto nel capitolo relativo al criterio di Kimura, il<sup>240</sup>*Pu* ha importanti proprietà per la resistenza alla proliferazione del Plutonio, tra le quali un elevato tasso di fissione spontanea (1030  $\frac{n}{g \cdot s}$ ), un elevato calore di decadimento (7.06  $\frac{W}{kq}$ ) ed un'elevata massa critica (44.8 kg).

Lo studio effettuato da Pellaud per la valutazione del valore minimo di<sup>240</sup>Pu tale da rendere la realizzazione di un HNED tecnicamente impossibile è simile a quella vista per il criterio di Kimura, cioè basata sul profilo di temperatura.

Al fine di avere un'interpretazione più immediata delle caratteristiche del Plutonio in funzione della frazione di<sup>240</sup>Pu rispetto al totale, Pellaud ne considera diversi gradi (tabella 4.1), a secondo del potenziale utilizzo a cui il Plutonio potrebbe andare incontro.

Grado	Frazione di <sup>240</sup> $Pu$ (%)	${f Realizzabilita}$
Super-grade (SG)	$\leq 3$	Materiale di migliore qualità
Weapon-grade (WG)	3-7	Materiale standard
Fuel-grade (FG)	7-18	Tecnicamente realizzabile
Reactor-grade (RG)	18-30	Teoricamente realizzabile
MOX-grade	$\geq 30$	Tecnicamente irrealizzabile

Tabella 4.1: Miscele di Plutonio per la realizzazione di ordigni nucleari

### 4.1 Weapon-grade

Il materiale di tipo standard per la costruzione di ordigni nucleari è il Plutonio *weapon-grade*. Una bomba creata con questo tipo di Plutonio è in genere caratterizzata da un elevato rendimento dell'esplosivo, un basso livello di radiazioni emesse ed una scarsa generazione di calore. Il super-grade ha caratteristiche addirittura migliori.

#### 4.2 Fuel-grade

Fino al 1970 la definizione di *reactor-grade* partiva da una frazione di<sup>240</sup>Pu pari al 7% del totale di Plutonio, e cioè includeva quel che avrebbe successivamente fatto parte della categoria del *fuel-grade*.

A quel tempo nessuno provava alcun interesse nel Plutonio *fuel-grade* per uso bellico a causa dell'elevato livello di radiazioni e del calore di decadimento. Tutto ciò che si trovava oltre il "confine" del *weapon-grade* era etichettato genericamente come *reactor-grade*.

Un vecchio test di origine Americana viene talvolta menzionato come prova che il Plutonio *reactor-grade* è utilizzabile come materiale esplosivo. Nel 1977, e nuovamente nel 1994, il Dipartimento dell'Energia degli Stati Uniti d'America (US-DOE) annunciò che nel 1962 gli Stati Uniti fecero esplodere un ordigno nucleare utilizzando Plutonio *reactor-grade* fornito dal Regno Unito. Effettivamente tale annuncio fu fuorviante, in quanto in seguito si scoprì che il Plutonio utilizzato era di tipo *fuel-grade* contenente una piccola frazione di<sup>240</sup>Pu, intorno al 12%.

In definitiva il plutonio *fuel-grade* non è considerato come "qualificato" per un programma bellico, tuttavia se l'utilizzo di tale materiale viene affiancato ad un'adeguata tecnologia dell'implosione, esso potrebbe divenire un materiale utilizzabile per la costruzione di un potenziale ordigno nucleare, sebbene il rendimento dell'esplosivo sarebbe parzialmente imprevedibile.

#### 4.3 Reactor-grade

Più di 2000 esplosioni nucleari sono avvenute in tutto il Mondo dal 1945; nessuna di queste è nota per aver utilizzato Plutonio *reactor-grade*, nessuna utilizzando Plutonio proveniente da reattori moderati ad acqua leggera (LWR).

In linea di principio il Plutonio *reactor-grade* può essere utilizzato per creare ordigni esplosivi rudimentali; cionondimeno le difficoltà realizzative sono considerevoli, come puntualizzato in precedenza.

Ad ogni modo sarebbe più corretto puntualizzare il tipo di reattore quando si applica la definizione di *reactor-grade*: reattori raffreddati a gas e reattori moderati ad acqua pesante operano a differenti bruciamenti e producono differenti miscele di Plutonio, le quali cadono frequentemente in categorie di combustibile differenti.

#### 4.4 MOX-grade

Tale è il Plutonio proveniente dal combustibile MOX esaurito di un LWR prodotto a sua volta da Plutonio LWR-*reactor-grade*. In altre parole, questa categoria proviene dalla fase di riciclo del Plutonio.

Il Plutonio MOX-grade contiene una così elevata quantità di<sup>240</sup>Pu, e congiuntamente anche di<sup>238</sup>Pu (intorno al 2% o superiore), che la sua gestione diventa estremamente difficoltosa in termini di radiazioni emesse e calore di decadimento e di conseguenza un suo possibile utilizzo per la creazioni di ordigni nucleari praticamente irrealizzabile.

Sarà di conseguenza il valore soglia di tale categoria che verrà preso per definire il criterio di Pellaud, per il quale il Plutonio può considerarsi protetto se presenta una frazione isotopica di $^{240}Pu$  pari almeno al 30% del totale.

## Parte III

## PPP tramite drogaggio di Attinidi Minori
## Capitolo 5

# Introduzione a MVP-BURN

Un esame della catena di transizione nuclidica in un ambiante di tipo reattore moderato ad acqua leggera rivela che l'accumulo di<sup>238</sup>Pu proviene principalmente dalle reazioni del nettunio, i.e.<sup>237</sup>Np  $\rightarrow$  <sup>238</sup>Np( $\beta$ )<sup>238</sup>Pu e dal decadimento  $\alpha$  del<sup>242</sup>Cm, due isotopi di elementi appartenenti agli attinidi minori. Gli altri isotopi pari del Plutonio sono maggiormente prodotti dalla successione di catture neutroniche da parte degli isotopi più leggeri in aggiunta al decadimento  $\alpha$  del<sup>242</sup>Cm che produce<sup>240</sup>Pu.

Il seguente studio è quindi incentrato sul drogaggio di attinidi minori all'interno del combustibile nucleare fresco di tipo UOX per una cella di tipo PWR, al fine di aumentare il livello di resistenza alla proliferazione del combustibile, tramite l'incremento della frazione di<sup>238</sup>Pu e degli altri isotopi pari nel Plutonio totale. Nel seguito verranno analizzati alcuni casi di drogaggio utilizzando elementi differenti.

L'analisi degli effetti del drogaggio di attinidi minori è stata sviluppata per mezzo di un codice di calcolo Monte Carlo di tipo MVP-BURN, del quale viene ora data una breve panoramica.

Il metodo Monte Carlo ad energia continua è il metodo più affidabile nel campo dei problemi del trasporto neutronico grazie alla possibilità di ottenere una precisa modellizzazione geometrica e di trattare l'energia dei neutroni in maniera continua.

I progessi recenti dei computer hanno reso possibile di applicare tale metodo anche ai problemi di bruciamento o burnup.

Il codice MVP-BURN permette calcoli di *burn-up* usando un codice Monte Carlo MVP ad energia continua e un codice ausiliario BURN, il quale calcola la produzione e il decadimento di nuclidi nei materiali irradiati (da qui in avanti ci si riferirà a questo tipo di calcoli come calcoli di depauperamento, per distinguerli dai calcoli di *burn-up*).

Per eseguire MVP è necessario conoscere la geometria e il materiale del sistema. Come risultato dell'esecuzione MVP vengono calcolati i tassi di reazione microscopici per ogni nuclide; d'altra parte il calcolo di depauperamento è possibile solo se sono noti proprio i tassi di reazione microscopici. Di conseguenza l'accoppiamento di MVP e BURN può essere realizzato solo implementando un programma di interfaccia tra i due codici.

Il codice BURN ha le funzioni di effettuare il calcolo di depauperamento e di interfacciarsi col codice MVP. Esecuzioni alternate di MVP e BURN costituiscono un intero calcolo di *burn-up*.

Il codice MVP-BURN ha la capacità di risolvere problemi che sarebbero altrimenti difficilmente trattabili dai convenzionali codici deterministici, come ad esempio:

- Calcoli di *burn-up* per problemi agli autovalori e problemi con sorgente fissata.
- Normalizzazione del flusso neutronico rispetto al parametro d'interesse definito dall'utente, come anche la tipica normalizzazione rispetto alla potenza termica totale o all'intensità della sorgente.
- Calcoli di raffreddamento a potenza zero tra i periodi di bruciamento e post-bruciamento. Questa funzione è indispensabile per le analisi di post-irraggiamento.
- Calcoli di *burn-up* per materiali non fissionabili o bruciabili, come ad esempio veleni neutronici bruciabili e non fissionabili o materiali assorbitori nelle barre di controllo degli LWR.
- Calcoli di *burn-up* con cambiamenti di dimensione geometrica, composizione del materiale e temperatura. Questo permette, ad esempio, cambiamenti della posizione delle barre di controllo, della frazione di vuoto, della concentrazione del boro e dell'espensione termica durante tutto il bruciamento.
- Calcoli di reattività
- Calcoli di *burn-up* per sistemi con particelle di combustibile distribuite casualmente utilizzando un modello geometrico statistico di MVP, come ad esempio per il caso delle particelle di Plutonio nei pellet di combustibile MOX.

### 5.1 Schemi di calcolo MVP-BURN

#### 5.1.1 Calcolo di depauperamento

Come mostrato in figura 5.1, il codice MVP-BURN impiega due tipi di sottrazioni temporali dato che il metodo Monte Carlo ad energia continua necessità di molto tempo. Uno è uno *step di burn-up* con una durata temporale relativamente lunga, e il calcolo MVP è effettuato al punto iniziale di ogni *step di bruciamento*. Ogni *step di burn-up* è diviso in molto *sotto-step* per il calcolo di depauperamento usando il codice BURN.



Figura 5.1: Step e sotto-step in MVP-BURN

Per evitare confusione d'ora in poi si indicheranno gli intervalli di tempo coi termini *step* o *sotto-step*, mentre si chiameranno punto iniziale dello *step* e punto finale dello *step* i momenti di inizio e fine di ogni intervallo temporale, i quali sono indicati in figura 5.1 da un pallino pieno e da un triangolo capovolto, rispettivamente.

Ad ogni punto iniziale dello step di burn-up i dati della composizione dei materiali sono dati e il calcolo MVP è eseguito per un problema agli autovalori. Conseguentemente, il tasso di reazione microscopico  $(F_i^z)$ , il tasso di reazione di cattura  $(C_i^z)$  ed il tasso di reazione (n, 2n)  $(W_i^z)$  del nuclide *i*-esimo esistente nella regione z sono ottenute dalla stima della lunghezza di percorso o dalla stima della collisione. Ad ogni modo questi tassi di reazione sono valori relativi nel problema agli autovalori ed è dunque necessario per il calcolo di depauperamento operare una nomalizzazione rispetto alla potenza termica totale del sistema.

Adesso è necessario assumere che:

- 1. la potenza termica totale rimanga costante durante ogni step di burn-up
- 2. la distribuzione relativa dei tassi di reazione microscopici non cambi durante ogni *step di burn-up*

Sotto queste condizioni l'equazione di depauperamento per il nuclide *i*-esimo durante l'*n*-esimo step di burn-up  $(t_n \leq t \leq t_{n+1})$  viene espressa come segue:

$$\frac{dN_i^z(t)}{dt} = \sum_{j \neq i} f_{j \to i} \lambda_j N_i^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} F_k^z + h_{k \to i} W_k^z \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \neq i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} Fact(t) \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \to i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} Fact(t) \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \to i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} Fact(t) \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \to i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} Fact(t) \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \to i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} Fact(t) \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \to i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} Fact(t) \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \to i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} Fact(t) \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \to i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} Fact(t) \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \to i} Fact(t) \left\{ g_{k \to i} C_k^z + \gamma_{k \to i} Fact(t) \right\} N_k^z(t) + \sum_{k \to i} Fact(t) +$$

$$-\left[\lambda_i + Fact(t)\left\{A_i^z + W_i^z\right\}\right]N_k^z(t)$$

dove:

i, j, k: nuclide che si depaupera

z: regione di bruciamento

N: densità atomica del nuclide

 $\lambda$ , f: costante di decadimento e branching ratio

 $g, \gamma, h$ : efficienza di ogni trasmutazione

F: tasso di fissione microscopico relativo calcolato con MVP al tempo  $t = t_n$ 

A:tasso di assorbimento microscopico relativo calcolato con MVP al tempo  $t=t_n$ 

C: tasso di cattura microscopico relativo calcolato con MVP al tempo  $t = t_n$ 

 $W{:}\,$ tasso di reazione(n,2n)microscopico relativo calcolato con MVP al tempo $t=t_n$ 

Fact(t): fattore di normalizzazione per convertire tassi di reazione relativi nei valori assoluti

#### 5.1.2 Calcolo di raffreddamento

Con MVP-BURN è possibile eseguire un calcolo di raffreddamento per uno *step* di burn-up a potenza zero, come mostrato in figura 5.2. Da qui in avanti ci si riferirà a tale *step* come *step* di raffreddamento.



Figura 5.2: Calcolo di *burn-up* con step di raffreddamento

Durante uno step di raffreddamento tutti i tassi di reazione indotti dai neutroni sono impostati a zero nell'equazione del depauperamente vista nella sezione precedente. In questo modo la composizione nuclidica at punto finale dello *step* di raffreddamento può essere calcolata risolvendo la seguente equazione di decadimento.

$$\frac{dN_i^z(t)}{dt} = \sum_{j \neq i} f_{j \to i} \lambda_j N_i^z(t) - \lambda_i N_i^z(t)$$

Sebbene il calcolo MVP al punto iniziale dello *step* di raffreddamento non è necessario per risolvere l'equazione sopracitata essa è stata citata in quanto l'utente potrebbe necessitare dei risultati relativi al punto finale dello *step di burn-up* precedente. In tal caso le condizioni allo *step* di raffreddamento dovrebbe essere poste uguali alle quelle che si hanno allo *step di burn-up* precedente, fatta eccezione per la potenza termica.

#### 5.1.3 Calcolo di branch-off

Il calcolo di *branch-off* è utilizzato per investigare cambiamenti nella reattività del sistema al punto iniziale di ogni *step di burn-up* dovuto a cambiamenti istantanei dei parametri interni quali frazione di vuoto del refrigerante, temperatura del combustibile, posizione delle barre di controllo e così via. La figura 5.3 illustra un esempio di cambiamento nella reattività del sistema, a causa di una perturbazione della frazione di vuoto del 10%, all'inizio del ciclo (BOC), a metà del ciclo (MOC) e alla fine del ciclo (EOC).



Figura 5.3: Calcolo di *burn-up* (cerchi pieni) a calcoli di *branch-off* (cerchi bianchi)

## 5.2 Geometria e specifiche tecniche del sistema in analisi

Il fine ultimo di questo studio, come si è detto, è quello di simulare il drogaggio di attinidi minori all'interno di una tipica cella PWR con combustibile nucleare costituito da UOX.

La scelta migliore dal punto di vista dell'affidabilità dei risultati sarebbe stata quella di simulare il comportamento di un nocciolo completo di reattore, tuttavia una tale simulazione avrebbe comportato la necessità di svolgere un'analisi per un estremamente lungo periodo di tempo, seppur avendo a disposizione un potente super-computer<sup>1</sup>. Di conseguenza si è optato per un'analisi ridotta alla singola cella di combustibile, comunque in grado di fornire risultati quantitativi verosimilmente vicini alla più complessa situazione reale.

La geometria del sistema considerato è mostrata in figura 5.4.

 $<sup>^1\</sup>mathrm{TSUBAME}$  (Tokyo-tech Supercomputer and UB iquitously Accessible Mass-storage Environment)



Figura 5.4: Cella di combustibile adottata per il calcolo MVP-BURN

Le dimensioni caratteristiche della geometria utilizzata per il calcolo MVP-BURN sono quelle tipiche di una cella PWR e sono elencate in tabella 5.1.

$R_1$	0.412~cm
$R_2$	$0.476\ cm$
D	$0.888 \ cm$
Pitch	$1.265\ cm$
$\frac{P}{D}$	1.42

Tabella 5.1: Specifiche geometriche

Al fine di ottenere un'incertezza la più piccola possibile, per il calcolo MVP-BURN si è impostato un numero di "storie" dei neutroni pari a 315000 (63 "pacchetti" costuiti da 5000 particelle ciascuno) ed un numero di step di burn-up uguale a 11 (0-0.1-1-5-10-15-20-25-30-40-50  $\frac{GWd}{t}$ ).

La deviazione standard relativa percentuale così ottenuta è inferiore allo 0.1%.

Nella figura 5.5 sono rappresentati i modelli di catene di reazione utilizzate dal codice MVP-BURN.



Modello di catena di reazione utilizzata da MVP-BURN per la gestione dei nuclidi pesanti



Modello di catena di reazione utilizzata da MVP-BURN per la gestione dei veleni bruciabili

Figura 5.5: Modelli di catene di reazione

## Capitolo 6

# Applicazione del criterio di Kimura

### 6.1 Protezione del Plutonio

Per soddisfare il criterio di Kimura la percentuale di<sup>238</sup>Pu deve essere intorno al 15%, sebbene questo limite possa essere ridotto se sono presenti anche gli altri isotopi pari del plutonio (<sup>240</sup>Pu e <sup>242</sup>Pu), per i motivi precedentemente citati. Nel corso dello studio sono state effettuate numerose prove al fine di risalire al tipo di drogante più efficace e alla minima quantità necessaria a soddisfare il criterio. Di seguito sono riportati ed analizzati tutti i casi di interesse.

#### Caso UOX puro

Tutta la ricerca svolta per questo studio trova il suo fondamento nell'impossibilità da parte di un comune combustibile ad ossido d'uranio di soddisfare qualsivoglia criterio di protezione del Plutonio. Si è preso come caso di confronto una cella di combustibile UOX puro (cioè in assenza di sostanze droganti) arricchita al 4% in <sup>235</sup>U e che presenta un bruciamento allo scarico di 25  $\frac{GWd}{t}$ . Volendo ora considerare il criterio di Kimura si faccia riferimento alla figura 6.1, nella quale è mostrato l'andamento della percentuale di<sup>238</sup>Pu e l'andamento del livello minimo per il soddisfacimento del suddetto criterio.



Figura 6.1:  $\%^{238}Pu$  e limite inferiore del criterio di Kimura (caso UOX puro)

Si può facilmente notare come la percentuale di<sup>238</sup>Pu sia molto inferiore al livello minimo richiesto e risulta dunque impossibile soddisfare il criterio di Kimura in una tale situazione.

#### Caso UOX + $^{237}Np$

La seguente, per i motivi che verranno spiegati in seguito, è la situazione di maggiore importanza tra tutte quelle analizzati.  $II^{237}Np$  è il più stabile isotopo del nettunio, un elemento appartenente alla classe degli attinidi minori. Inoltre il nettunio è l'elemento genericamente maggiormente presente tra gli attinidi minori ricavabili dal riprocessamento del combustibile esaurito dei LWR.

Il<sup>237</sup>Np all'interno del reattore genera<sup>238</sup>Np per cattura neutronica, il quale a sua volta decade  $\beta$  in<sup>238</sup>Pu.

Np-237 
$$\xrightarrow{(n,\gamma)}$$
 Np-238  $\xrightarrow{(\beta)}$  Pu-238

Come è stato spiegato in precedenza, il criterio di Kimura determina un valore minimo della percentuale di<sup>238</sup>Pu che può però essere ulteriormente diminuito se sono presenti anche gli isotopi<sup>240</sup>Pu e<sup>242</sup>Pu. In figura 6.2 sono mostrati l'andamento della percentuale di<sup>238</sup>Pu presente nella cella di combustibile e il valore minimo di<sup>238</sup>Pu necessario per soddisfare il criterio per il caso in cui la quantità di<sup>237</sup>Np sia uguale allo 0.4% della massa del combustibile complessivamente presente nella cella. Come per ogni altro caso in analisi, l'intervallo temporale considerato ha principio con l'inizio dell'irradiazione neutronica e termina al momento in cui la reattività del combustibile raggiunge il valore unitario.



Figura 6.2:  $\%^{238}Pu$  e limite inferiore del criterio di Kimura (caso UOX  $+^{237}Np$ )

La percentuale di drogante qui utilizzata è uguale allo 0.4%. Tale valore è stato ritenuto essere il minimo tale per cui si ha il soddisfacimento del criterio di Kimura, avendo una protezione del plutonio verificata per tutto il ciclo vita del combustibile nella cella. Il bruciamento allo scarico del combustibile è stato fissato, come sempre, pari a  $25 \frac{GWd}{t}$  e si è riscontrato che il valore di arricchimento dell'uranio necessario è del 4.5%. Sarà indubbiamente interessante confrontare tale valore con quelli che si troveranno per casi successivi.

#### Caso UOX + AM

La sostanza drogante adesso considerata è una combinazione di attinidi minori (AM) composta da miscele isotopiche di nettunio, americio e curio. La proporzione con la quale i vari isotopi sono presenti nella miscela è stata scelta prendendo ad esempio il caso degli attinidi minori tipicamente presenti nel combustibile di tipo UOX arricchito al 5% in  $U^{235}$  irradiato fino ad un bruciamento di 50  $\frac{GWd}{t}$  e raffreddato per un anno. La composizione considerata è la seguente:

- 65.5% Nettunio (di cui  $100\%^{237}Np$ )
- 28.3% Americio (di cui  $40.9\%^{241}Am$ ,  $0.36\%^{242M}Am$ ,  $58.74\%^{243}Am$ )
- 6.2% Curio (di cui 6.45%  $^{242}Cm$ , 89.64%  $^{244}Cm$ , 3.91%  $^{245}Cm$ )

Questi elementi contribuiscono alla produzione di $^{238}Pu$  in quanto vanno incontro alle seguenti catene di reazione: e decadimento

Np-237 
$$(n, \gamma)$$
 Np-238  $(\beta)$  Pu-238  
Am-241  $(n, \gamma)$  Am-242  $(\beta)$  Cm-242  $(\alpha)$  Pu-238  
Cm-242  $(\alpha)$  Pu-238

Per effettuare un confronto diretto con il caso precedente, nella figura 6.3 sono mostrati contemporaneamente gli andamenti della percentuale di<sup>238</sup>Pu e dei livelli minimi dettati dal criterio di Kimura relativi al caso in cui il drogante sia il solo<sup>237</sup>Np oppure nel caso in cui il drogante sia la combinazione sopracitata di attinidi minori.



Figura 6.3:  $\%^{238}Pu$  e limite inferiore del criterio di Kimura (casi UOX +  $^{237}Np$  e UOX + AM)

La percentuale minima di attinidi minori necessaria a soddisfare il criterio di Kimura per tutto il periodo di irraggiamento si è ritenuta essere uguale allo 0.6% della massa del combustibile complessivamente presente. Un'immediata analisi permette di osservare che nei due casi il livello minimo di percentuale di<sup>238</sup>Pu determinato dal criterio di Kimura è pressoché identico, dunque sotto questo aspetto non si può favorire un drogante rispetto all'altro. Si può però notare come la percentuale di<sup>238</sup>Pu a "regime" sia leggermente superiore nel caso della miscela di attinidi minori, fornendo dunque un livello di protezione leggermente superiore. Un confronto molto interessante risulta anche nel paragonare l'andamento della quantità di<sup>237</sup>Np presente nella cella in funzione del tempo di irradiamento. Come si può vedere dalla figura 6.4 l'andamento di<sup>237</sup>Np è praticamente coincidente, nonostante in uno dei due casi siano presenti anche altri elementi oltre al nettunio sebbene la protezione del plutonio sia pressocché coicidente. Si può quindi affermare che l'elemento principale per la protezione del Plutonio è il nettunio.



Figura 6.4: Densità atomica del  $Np^{237}$ (casi UOX +  $Np^{237}$ e UOX + AM)

In ultima analisi si può notare come al fine di ottenere il livello prefissato di bruciamento a fine vita di 25  $\frac{GWd}{t}$  è necessario fornire un arricchimento dell'uranio pari al 4.75%, dunque superiore rispetto al caso del <sup>237</sup>Np come drogante, ciò è giustificato dalla presenza di ulteriori veleni neutronici oltre al nettunio, in particolare l'<sup>241</sup>Am.

Giunti a questo punto, a seguito di numerose simulazioni utilizzando diversi canditati come possibile sostanza drogante, si è concluso che per una cella di tipo PWR, utilizzando del combustibile di tipo UOX, sotto i vincoli e gli obiettivi preposti, non esistano altri casi per cui il criterio di Kimura possa essere soddisfatto. Tuttavia è importante citare un ultimo caso. Il quale, seppur non pienamente soddisfacente, è di grande interesse.

#### Caso UOX + Am

Tenendo conto di quanto realizzato finora, si è visto che il contributo principale alla produzione di<sup>238</sup>Pu è dato dal<sup>237</sup>Np. A tal proposito è stato posto l'obiettivo di trovare un drogante che non contenesse nettunio, ma comunque in grado di soddisfare il criterio di Kimura per tutto il ciclo vita del combustibile. È doveroso ammettere che, sotto i vincoli imposti a priori, non è stato possibile trovare un drogante non contente il nettunio. Tuttavia, per i motivi che verranno spiegati tra breve, è importanza citare il tentativo effettuato utilizzando l'americio. Al fine di considerare dei casi tecnicamente realizzabili si è deciso di utilizzare come drogante una miscela isotopica di americio con le abbondanze tipiche dei rifiuti nucleari proveniente da reattori LWR ( $40.9\%^{241}Am$ ,  $0.36\%^{242M}Am$ ,  $58.74\%^{243}Am$ ). Per spiegare il motivo dell'importanza di tale situazione, nonostante il fallimento dell'obiettivo, si faccia riferimento a quanto mostrato in figura 6.5.



Figura 6.5:  $\%^{238}Pu$  e limite inferiore del criterio di Kimura (caso UOX + Am)

Come si può notare il soddisfacimento del criterio di Kimura non è garantito per tutto il ciclo vita del combustibile, ma è solo dopo circa 450 giorni dall'inizio dell'irraggiamento che la percentuale di<sup>238</sup>Pu supera il valore minimo. Si noti che nel caso seguente la quantità di drogante utilizzata è stata uguale all'1% della massa del combustibile e che, al fine di garantire il solito valore di bruciamento allo scarico, si è dovuto portare l'arricchimento dell'uranio al 5.25%.

Com'è evidente l'obiettivo di ottenere la protezione del plutonio per tutto il ciclo vita non è stato raggiunto, tuttavia ciò che si ottiene è quantomeno la protezione del combustibile esaurito. È dunque per tale ragione che questo caso assume un'importanza non indifferente, in quanto se fosse possibile "accontentarsi" della protezione del solo combustibile esaurito, in tale situazione questo caso potrebbe essere ritenuto soddisfacente. Effettivamente da un punto di vista pratico ciò potrebbe sembrare ragionevole, in quanto considerando ad esempio la probabilità di furto del combustibile, questa è realisticamente presente sono nelle fasi di trasporto, dunque in presenza del combustibile fresco o esaurito. E si potrebbe considerare perciò di secondaria importanza la condizione del plutonio durante il ciclo vita.

Nel paragrafo successivo viene mostrata un'analisi comparativa dei 3 casi fin qui presentati sotto il punto di vista della produzione e del bruciamento degli attinidi minori presenti nel combustibile.

## 6.2 Produzione e bruciamento degli attinidi minori

Questo tipo di analisi esula da quella strettamente legata allo studio della semplice protezione del plutonio, tuttavia è in grado di mostrare un aspetto finora inedito delle conseguenze del drogaggio di attinidi minori nel combustibile, cioè la possibilità di bruciare le scorie nucleari.

 $^{237}Np$ 

 $\mathrm{II}^{237}Np$  è un degli isotopi principali del nettunio, un elemento transuranico con numero atomico 93 appartenente alla serie degli attinoidi, come d'altronde tutti gli elementi qui analizzati.  $\mathrm{II}^{237}Np$  decade $\alpha$  con un tempo di dimezzamento particolarmente elevato, pari a 2.144.10<sup>6</sup>y ed è prodotto all'interno del reattore nucleare tramite la seguente catena di reazioni e decadimenti:

$$^{235}U(n,\gamma)^{236}U(n,\gamma)^{237}U(\beta^{-})^{237}Np$$

Quest'isotopo del nettunio assieme all'<sup>241</sup>Am costituiscono la parte principale del problema delle scorie nucleari, a causa della loro grande abbondanza nel combustibile esaurito e per il lungo tempo di dimezzamento.

Per quanto riguardo l'andamento della quantità di<sup>237</sup>Np durante il ciclo vita della cella di combustibile si denotano due diverse tendenze a secondo del tipo di drogante iniettato, una di tipo crescente ed una decrescente. L'andamento crescente è tipico dei casi in cui non è presente<sup>237</sup>Np nel combustibile fresco e cioè per l'ossido di uranio puro e per il caso del drogaggio di americio, mentre l'andamento decrescente si presenta nel momento in cui il nettunio (abbondanza isotopica del<sup>237</sup>Np è del circa il 100%) è utilizzato come drogante; dunque nei casi UOX +<sup>237</sup>Np e UOX + AM.



Figura 6.6: Densità atomica del<br/>237 $Np({\rm casi}$ UOX puro, UOX +<br/>237Np,UOX + AM, UOX + Am)



Figura 6.7: Differenza della densità atomica del<sup>237</sup>Np tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am)

In questi due ultimi casi la quantità  $di^{237}Np$  presente nel combustibile fresco è pressoché la stessa ed inoltre come mostrato in figura 6.8 ne coincide anche il bruciamento a fine ciclo, pari a circa il 40% della quantità iniziale.



Figura 6.8:  $\%^{237}Np$  rispetto al valore iniziale (casi UOX +  $^{237}Np$  e UOX + AM)

## $^{241}Am$

 $L'^{241}Am$ , assime all' $^{242M}Am$  e all' $^{243}Am$ , è uno degli isotopi più stabili dell'americio. Tutti gli isotopi dell'americio sono sintentici e vengono generati all'interno

dei reattori nucleari. In particolare l'<sup>241</sup>Amè l'isotopo presente con la più grande abbondanza isotopica e viene prodotto per decadimento  $\beta$  del<sup>241</sup>Pu.

 $L'^{241}Am$ è soggetto a decadimento  $\alpha$  con una vita media di 432.6y.

Come per il caso del<sup>237</sup>Np anche qui si denotano due tendenze opposte dell'andamento della quantità di quest'isotopo durante il ciclo vita del combustibile. Si ravvisa una crescita continua della sua quantità se nel combustibile fresco esso non è presente (casi UOX e UOX + Np), mentre si ha una decrescita se al contrario esso è presente come drogante (casi UOX + AM e UOX + Am).



Figura 6.9: Densità atomica dell'<br/>  $^{241}Am({\rm casi~UOX~puro,~UOX}+^{237}Np,~{\rm UOX}+{\rm AM},~{\rm UOX}~+~Am)$ 



Figura 6.10: Densità atomica dell'<sup>241</sup>Am(casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np)



Figura 6.11: Differenza della densità atomica dell'<sup>241</sup>Amtra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am)

Percentualmente il bruciamento è del tutto simile nei casi UOX + AM e UOX + Am, portando ad un bruciamento dell'<sup>241</sup>Am di circa l'84% (figura 6.12).



Figura 6.12:  $\%^{241}Am$  rispetto al valore iniziale (casi UOX + AM, UOX + Am)

## $^{242M}Am$

 ${\rm L'}Am^{242M}$ è, come già detto, uno degli isotopi più stabili dell'americio.

Come l'<sup>241</sup>Am anch'esso è sintetico e viene prodotto in reattore per cattura neutronica proprio da parte dell'<sup>241</sup>Am.

 $L^{242M}Am$  ha diversi canali di decadimento, esso infatti può decadere  $\alpha$  con un tempo di dimezzamento di 141y, può decadere  $\beta^-$  con un tempo di dimezzamento di 16.02h oppure può andare incontro a cattura elettronica con un tempo di dimezzamento ancora di 16.02h.

Anche in questo caso è interessante analizzare in particolare le situazioni in cui l'isotopo in questione è presente come parte della sostanza drogante, dunque nel caso dell'americio e degli AM. L'andamento rilevato è non monotono, a differenza di quanto analizzato finora, e presenta un massimo per poi tendere ad un valore minimo a fine ciclo.



Figura 6.13: Densità atomica dell' $^{242M}Am({\rm casi}$ UOX puro, UOX + $^{237}Np,$ UOX + AM, UOX + Am)



Figura 6.14: Densità atomica dell' $^{242M}Am$ (casi UOX puro, UOX + $^{237}Np$ )



Figura 6.15: Differenza della densità atomica dell' $^{242M}Am$  tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX  $+^{237}Np$ , UOX + AM, UOX + Am)

Sebbene in valore assoluto le quantità  $di^{242M}Am$  siano differenti nei casi dell'americio e degli AM tuttavia percentualmente le quantità sono molto simili, portando a fine ciclo del combustibile ad un bruciamento pari a circa il 47% del valore iniziale per gli AM e del 43% per l'americio (figura 6.16).



Figura 6.16:  $\%^{242M}Am$ rispetto al valore iniziale (casi UOX + AM, UOX + Am)

 $^{243}Am$ 

 ${\rm L}^{;243}Am$  è l'ultimo degli isotopi dell'americio presi in considerazione in questo studio.

Ovviamente anche quest'isotopo è di origine sintetica e nasce per cattura neutronica da parte dell'^{242M} Am.

L'unico canale di decadimento di quest'isotopo è di tipo  $\alpha$  con un tempo di dimezzamento di 7370y.

L'andamento di questo isotopo è del tutto simile a quello riscontrato per l' $^{241}Am.$ 



Figura 6.17: Densità atomica dell'^{241} Am<br/>(casi UOX puro, UOX  $+^{237}Np,$  UOX + AM, UOX + Am)



Figura 6.18: Differenza della densità atomica dell'<sup>243</sup>Amtra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am)

Il bruciamento nel caso dell'americio come drogante è del 57%, mentre nel caso degli AM è del 62% (figura 6.19).



Figura 6.19:  $\%^{243}Am$  rispetto al valore iniziale (casi UOX + AM, UOX + Am)

### $^{242}Cm$ - $^{244}Cm$ - $^{245}Cm$

Il curio, l'ultimo degli attinidi minori tenuti in considerazione in questo studio, ha numero atomico 96 e presenta elevati problemi di gestione in sicurezza a causa dell'elevato calore di decadimento degli isotopi con numero di massa 242 e 244 ed a causa del livello radiattivo generato soprattutto per via del grande tasso di fissione spontanea di tutti e 3 gli isotopi principali qui considerati (^{242}Cm,^{244}Cm e^{245}Cm).

 $II^{242}Cm$ ,  $iI^{244}Cm$  ed  $iI^{245}Cm$  inoltre decadono tutti  $\alpha$  con tempi di dimezzamento rispettivamente di 162.94d, 18.11y e 8500y.

Per quel che concerne l'andamento della quantità di tali isotopi si ha, diversamente da quel che è verificato per gli elementi precedenti, un aumento della produzione anziché un bruciamento nel caso dell'americio come drogante e nel caso degli AM. In particolare la produzione è particolarmente consistente nel caso dell'americio. Per quanto riguarda il nettunio non si verificano particolari scostamenti da quel che si ottiene in assenza di drogaggio.



Figura 6.20: Densità atomica del<br/> $^{242}Cm({\rm casi}$ UOX puro, UOX + $^{237}Np,$ UOX + AM, UOX + <br/> Am)



Figura 6.21: Differenza della densità atomica del<sup>242</sup>Cm tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am)



Figura 6.22: Densità atomica del<br/>  $^{244}Cm$ (casi UOX puro, UOX  $+^{237}Np,$  UOX <br/>+ AM, UOX + Am)



Figura 6.23: Differenza della densità atomica del<sup>244</sup>Cm tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am)



Figura 6.24: Densità atomica  ${\rm del}^{245}Cm$  (casi UOX puro, UOX  $+^{237}Np,$  UOX + AM, UOX + Am)



Figura 6.25: Differenza della densità atomica del<sup>245</sup>Cmtra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am)

### 6.2.1 Nota: Produzione $di^{238}Pu$ per la costruzione di RTG (Radioisotope Thermal Generator)

Com'è ormai evidente, il motivo principale del drogaggio di attinidi minori nel combustibile nucleare sta nel tentare di aumentare la percentuale di<sup>238</sup>Pu oltre una certa soglia. Effettivamente, come si può notare dalle Figure 6.26 e 6.27, anche in termini di quantità assoluta si ha un incremento della produzione di<sup>238</sup>Pu rispetto al caso senza sostanza drogante.



Figura 6.26: Densità atomica del<br/>  $^{238}Pu$  (casi UOX puro, UOX  $+^{237}Np,$  UOX + AM, UOX + <br/> Am)



Figura 6.27: Differenza della densità atomica del<sup>238</sup>Pu tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am)

Si potrebbe dunque pensare di sfruttare quest'abbondanza in situazioni dove tale isotopo è fortemente richiesto. Come ad esempio per la costruzione dei generatori termoelettrici a radioisotopi. Un generatore termoelettrico a radioisotopi o RTG fornisce energia elettrica per i veicoli spaziali convertendo il calore generato dal decadimento del<sup>238</sup>Pu in elettricità utilizzando delle termocoppie.

## Capitolo 7

# Applicazione del criterio di Pellaud

## 7.1 Protezione del plutonio

Per soddisfare il criterio di Pellaud la percentuale di<sup>240</sup>Pu deve essere uguale al 30% del contenuto totale di plutonio. A differenza di quanto avvenuto per il criterio di Kimura, per soddisfare questo criterio è stato particolarmente difficile trovare un drogante adatto. A seguito di numerose simulazioni si è in effetti giunti ad una soluzione, seppure non priva di forti dubbi sull'effettiva applicabilità in un caso reale.

#### Caso UOX

Si riprende ora il caso della cella di combustibile di UOX puro e si analizza se in tale condizione sia possibile soddisfare il criterio di Pellaud.



Figura 7.1:  $\%^{240}Pu$  e limite inferiore del criterio di Pellaud (casi UOX puro)

In figura 7.1 è mostrato l'andamento della percentuale di<sup>240</sup>Pu rispetto al contenuto totale di plutonio ed livello minimo che esso deve raggiungere al fine di soddisfare il criterio di Pellaud.

Com'è immediato notare, una cella di combustibile contenente UOX puro non è in grado di garantire la protezione del plutonio secondo il criterio di Pellaud.

#### Caso UOX + Cm

La sostanza drogante qui considerata, nonché l'unica valutata come adeguata a soddisfare il criterio di Pellaud, è il curio. In questo studio, al fine di considerare una situazione più realistica possibile, si è considerata la composizione isotopica del curio tipica di questo elemento quando presente nel combustibile esaurito di un reattore di tipo LWR ( $6.45\%^{242}Cm$ ,  $89.64\%^{244}Cm$ ,  $3.91\%^{245}Cm$ , similmente a quanto concerne i droganti nei casi precedentemente analizzati. In questo studio l'isotopo del curio su cui si focalizza l'attenzione è il<sup>244</sup>Cm, in quanto in seguito a decadimento  $\alpha$  contribuisce fortemente alla produzione di<sup>240</sup>Pu.

Nella figura seguente è mostrato l'andamento della percentuale di<sup>240</sup>Pu rispetto alla quantità complessiva di plutonio relativo relativo al drogaggio di una quantità di curio pari all'8.5% della massa coplessiva del combustibile.



Figura 7.2:  $\%^{240}Pu$  e limite inferiore del criterio di Pellaud (casi UOX + Cm)

Come si può notare effettivamente l'obiettivo è stato raggiunto ed il plutonio risulta essere protetto per tutto il ciclo vita del combustibile, tuttavia l'utilizzo di una quantità così elevata di curio desta molti dubbi sull'effettiva realizzabilità in sistema reale, in quanto sono noti i numerosi problemi relativi alla gestione in sicurezza di tale elemento.

Un aspetto positivo nell'utilizzo del curio si trova però notando che imponendo un bruciamento allo scarico pari a 25  $\frac{GWd}{t}$ , come per tutti gli altri casi, l'arricchimento necessario dell'uranio è del 2.75%, dunque minore di quello relativo all'UOX puro. La motivazione di ciò si ritrova analizzando il decadimento di un altro isotopo del curio, il<sup>245</sup>Cm, il quale decadendo  $\alpha$  in<sup>241</sup>Pu contribuisce alla produzione di materiale fissile nella cella, oltreché lo stesso<sup>245</sup>Cm costituisce un eccellente materiale fissile.

Facendo riferimento alla figura 7.3, si noti in effetti come si abbia una forte produzione di<sup>241</sup>Pu solo nel caso del drogaggio di curio.



Figura 7.3: Densità atomica del<sup>241</sup>Pu(casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)

## 7.2 Produzione e bruciamento degli attinidi minori (Confronto con i casi precedenti)

Come già fatto relativamente al criterio di Kimura verrà adesso analizzato il drogaggio di Curio sotto il punto di vista del bruciamento o della produzione di attinidi minori all'interno del combustibile. I dati relativi al caso UOX + Cm verranno confrontati con quelli relativi a tutti i casi precendenti, al fine di fornire un panoramica più generale.

Per quel che concerne il<sup>237</sup>Np e tutti gli isotopi dell'americio non si rivelano grosse differenze rispetto al casso dell'UOX puro, si faccia fede alle figure seguenti che mostrano l'andamento della quantità durante il ciclo vita ed il bilancio di produzione/bruciamento tra fine ed inizio irraggiamento relativo ai vari attinidi minori.



Figura 7.4: Densità atomica del<sup>237</sup>Np(casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)



Figura 7.5: Differenza della densità atomica del<sup>237</sup>Np tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)



Figura 7.6: Densità atomica dell'<sup>241</sup>Am (casi UOX puro, UOX +<br/>  $^{237}Np,$ UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)



Figura 7.7: Differenza della densità atomica dell'<sup>241</sup>Am tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)



Figura 7.8: Densità atomica dell' $^{242M}Am$  (casi UOX puro, UOX  $+^{237}Np$ , UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)



Figura 7.9: Differenza della densità atomica dell' $^{242M}Am$  tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX + $^{237}Np$ , UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)



Figura 7.10: Densità atomica dell'<sup>243</sup>Am (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)



Figura 7.11: Differenza della densità atomica dell'<sup>243</sup>Am tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)

La vera divergenza rispetto ai casi precedenti si riscontra nell'andamento degli isotopi del curio. In effetti a differenza di quanto ottenuto finora si riesce ad ottenere un bruciamento quasi totale del  $Cm^{242}$ , circa del 95% (figura 7.14) e parziale del  $Cm^{244}$ , circa del 21% (figura 7.17).



Figura 7.12: Densità atomica del  $^{242}Cm$  (casi UOX puro, UOX  $+^{237}Np,$  UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)



Figura 7.13: Differenza della densità atomica del  $^{242}Cm$  tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX  $+^{237}Np$ , UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)


Figura 7.14:  $\%^{242}Cm$  rispetto al valore iniziale (caso UOX + Cm)



Figura 7.15: Densità atomica del $^{244}Cm$ (casi UOX puro, UOX + $^{237}Np$ , UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)



Figura 7.16: Differenza della densità atomica del  $^{244}Cm$  tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX  $+^{237}Np$ , UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)



Figura 7.17:  $\%^{244}Cm$  rispetto al valore iniziale (caso UOX + Cm)

Fino a questo punto l'utilizzo del curio come drogante sembrerebbe portare diversi benefici di bruciamento delle scorie tuttavia un elemento negativo sta nella grande produzione di  $Cm^{245}$ , molto superiore rispetto a tutti i casi precedenti.



Figura 7.18: Densità atomica del<br/> $^{245}Cm$  (casi UOX puro, UOX  $+^{237}Np,$  UOX <br/>+ AM, UOX + Am, UOX + Cm)



Figura 7.19: Differenza della densità atomica del<sup>245</sup>Cm tra inizio e fine vita del combustibile (casi UOX puro, UOX +<sup>237</sup>Np, UOX + AM, UOX + Am, UOX + Cm)

#### Capitolo 8

## Conclusioni

Al fine di concludere questo studio ed offrire una linea guida di quale possa essere la sostanza drogante favorita per la *Produzione di Plutonio Protetto*, verranno ora riassunte e comparate le caratteristiche principali di tutti casi presi in esame.

In tabella 8.1 sono mostrati i risultati ottenuti relativamente all'arricchimento dell'uranio necessario a raggiungere il bruciamento allo scarico prefissato (25  $\frac{GWd}{t}$ ), relativamente al soddisfacimento del criterio di Kimura e di quello di Pellaud ed infine relativamente alla quantità di drogante necessaria, espressa come percentuale rispetto alla massa totale del combustibile.

Caso	Arr. U (%)	Cr. di Kimura	Cr. di Pellaud	% drog.
UOX	4	No	No	0
$UOX+^{237}Np$	4.5	Intero ciclo	No	0.4
UOX+AM	4.75	Intero ciclo	No	0.6
UOX+Am	5.25	Fine ciclo	No	1
UOX+Cm	2.75	No	Intero ciclo	8.5

Tabella 8.1: Tutti i casi studiati a confronto rispetto all'arricchimento dell'uranio, al soddisfacimento dei criteri ed alla quantità di drogrante necessaria.

Prima di commentare i risultati si noti che in tabella 8.2 sono riportati i bilanci di produzione/bruciamento degli attinidi minori per tutti i casi studiati.

Caso	$\Delta^{237}Np$	$\Delta^{241}Am$	$\Delta^{242M}Am$	$\Delta^{243}Am$
UOX	8.48.10 <sup>-1</sup>	$7.49.10^{-2}$	$1.48.10^{-3}$	$1.15.10^{-1}$
$UOX+^{237}Np$	$-4.29.10^{\circ}$	$7.77.10^{-2}$	$1.56.10^{-3}$	$9.59.10^{-2}$
UOX+AM	$-4.13.10^{\circ}$	$-1.46.10^{0}$	$-7.26 \cdot 10^{-3}$	$-1.55.10^{0}$
UOX+Am	$9.70.10^{-1}$	$-8.63.10^{0}$	$-3.88.10^{-2}$	$-8.31.10^{0}$
UOX+Cm	$7.81.10^{-1}$	$2.43.10^{-1}$	$5.25.10^{-3}$	$3.25 \cdot 10^{-1}$

Caso	$\Delta^{242}Cm$	$\Delta^{244}Cm$	$\Delta^{245}Cm$
UOX	$2.15.10^{-2}$	$3.22.10^{-2}$	$3.02.10^{-3}$
$UOX+^{237}Np$	$1.95.10^{-2}$	$2.50.10^{-2}$	$1.36.10^{-3}$
UOX+AM	$1.58.10^{-1}$	$1.02.10^{0}$	$2.65.10^{-1}$
UOX+Am	$9.12.10^{-1}$	$7.12.10^{0}$	$7.30.10^{-1}$
UOX+Cm	$-1.43.10^{0}$	$-4.24.10^{1}$	$7.29.10^{0}$

Tabella 8.2: Bilancio di produzione/bruciamento (dimensione: $10^{19} \frac{atomi}{cm^3}$ ) tra fine ed inizio irraggiamento relativamente a tutti gli attinidi minori presi in considerazione e per tutti i casi studiati

Si analizza adesso quanto riassunto in tabella 8.1:

- Arricchimento del combustibile: l'unico caso a comportare una diminuzione dell'arricchimento dell'uranio è l'UOX + Cm, mentre per tutti i casi rimanenti l'aumento di arricchimento è limitato intorno all'1% rispetto al caso UOX puro.
- Criterio di Kimura: risulta soddisfatto per tutto il ciclo vita del combustibile per i casi UOX + Np e UOX + AM, mentre per il caso UOX + Am il criterio è soddisfatto solo per la parte terminale del ciclo e per il caso UOX + Cm non viene soddisfatto.
- Criterio di Pellaud: risulta soddisfatto per tutto il ciclo vita del combustibile solamente per il caso UOX + Cm, mentre per gli altri casi non viene soddisfatto.
- Quantità di drogante: per il caso UOX + Cm la percentuale di drogante necessaria è molto elevata, tanto da destare forti dubbi sull'effettiva realizzabilità pratica, mentre per tutti gli altri casi la percentuale è limitata intorno allo 0.5% della massa totale del combustibile.

Per quanto concerne i risultati mostrati in tabella 8.2 si svolge la seguente analisi:

- $\Delta^{237}Np$ : si ha bruciamento per i casi UOX + Np e UOX + AM, mentre per tutti gli altri casi la produzione è simile al caso UOX puro.
- $\Delta^{241}Am$ : si ha bruciamento per i casi UOX + AM e UOX + Am, mentre per tutti gli altri casi la produzione è simile al caso UOX puro.
- $\Delta^{242M}Am$ : si ha bruciamento per i casi UOX + AM e UOX + Am, mentre per tutti gli altri casi la produzione è simile al caso UOX puro.
- $\Delta^{243}Am$ : si ha bruciamento per i casi UOX + AM e UOX + Am, mentre per tutti gli altri casi la produzione è simile al caso UOX puro.

- $\Delta^{242}Cm$ : si ha bruciamento per il caso UOX + Cm, mentre per i casi UOX + AM e UOX + Am si ha una produzione di 1 e quasi 2 ordini di grandezza superiore al caso UOX puro, rispettivamente, e per il caso UOX + $^{237}Np$  la produzione è simile al caso UOX puro.
- $\Delta^{244}Cm$ : si ha bruciamento per il caso UOX + Cm, mentre per i casi UOX + AM e UOX + Am si ha una produzione di 1 e quasi 2 ordini di grandezza superiore al caso UOX puro, rispettivamente, e per il caso UOX + $^{237}Np$  la produzione è simile al caso UOX puro.
- $\Delta^{245}Cm$ : per i casi UOX + AM e UOX + Am si ha una produzione di circa 2 ordini di grandezza superiore al caso UOX puro e per il caso UOX + Cm di circa 3 ordini di grandezza superiore, mentre per il caso UOX + $^{237}Np$  la produzione è simile al caso UOX puro.

Sebbene non sia un'operazione semplice giungere a delle conclusioni certe su quale tra i droganti canditati per la *Produzione di Plutonio Protetto* sia il "migliore", è possibile però fare delle osservazioni oggettive relativamente ai vari casi.

Il caso UOX + Cm è fortemente scoraggiato dall'eccessiva quantità di drogante richiesta (8.5%), a causa delle problematiche connesse alla gestione in sicurezza di questo elemento, ed inoltre sebbene durante il ciclo vita del combustibile si osserva un bruciamento sostanziale di<sup>242</sup>Cm e di<sup>244</sup>Cm si ha però una forta produzione di<sup>245</sup>Cm. Un aspetto positivo è però la diminuzione dell'arricchimento del combustibile a parità di bruciamento allo scarico rispetto agli altri casi. Alla luce di quanto poc'anzi riassunto, l'utilizzo di curio come drogante presenta forti perplessità.

Il caso UOX + AM offre molti aspetti positivi. Si ha infatti una protezione del plutonio garantita sull'intero ciclo vita del combustibile utilizzando una quantità di drogante molto limitata (0.6%), inoltre l'arricchimento dell'uranio è relativamente poco superiore a quello per il caso UOX puro. Utilizzando questo drogante è inoltre possibile bruciare il<sup>237</sup>Np e tutti gli isotopi principali dell'americio. L'aspetto negativo connesso a questo caso è la forte produzione di curio.

Il caso UOX + Am è simile a quanto visto relativamente al caso UOX + AM per quanto riguardo il bruciamento e la produzione degli attinidi minori, tranne che per il<sup>237</sup>Np, la cui produzione è simile a quella in assenza di drogante. L'arricchimento dell'uranio è superiore al caso UOX + AM e la quantità di drogante richiesta è limitata all'1%. Tuttavia la maggiore perplessità nasce dalla mancata protezione del plutonio sull'intero ciclo vita del combustibile.

Infine il caso UOX  $+^{237}Np$  è forse quello più semplice dal punto di vista dell'analisi. La *Produzione di Plutonio Protetto* è verificata sull'intero ciclo vita utilizzando una quantità di drogante minima (0.4%), inoltre anche l'arricchimento del combustibile è molto limitato. L'utilizzo di questo drogante comporta tra l'altro il bruciamento del drogante stesso, mentre la produzione degli altri attinidi minori è simile al caso UOX puro. Ciò che si può concludere è che i casi di maggiore interesse siano l'UOX  $+^{237}Np$  e l'UOX + AM, in quanto comportano un minor numero di problematiche e maggiori benefeci. Ricordando però che nel caso del droaggio della combinazione di AM si ha una forte produzione di curio, il caso UOX  $+^{237}Np$  potrebbe essere quello maggiormente favorito. Sebbene sia necessario notare che nella realtà l'utilizzo del solo<sup>237</sup>Np come sostanza drogante comporterebbe un riprocessamento più complesso del combustibile esaurito e quindi costi maggiori.

### Capitolo 9

# Allegati

Nelle seguenti tabelle sono elencati i dati numerici per tutti i casi analizzati relativi alle densità atomiche degli elementi di interesse, il valore dell'arricchimento dell'uranio, la percentuale di<sup>238</sup>Pu e di<sup>240</sup>Pu rispetto al totale di plutonio presente con i relativi valori minimi dettati dai criteri di Kimura e di Pellaud e la percentuale di alcuni elementi particolarmente importanti per il caso corrispondente. Queste quantità sono valutate ad intervalli temporali prefissati, per tutta la durata del ciclo vita del combustibile. È inoltre riportato il valore della differenze tra inizio e fine ciclo della densità atomica di tutti gli elementi considerati.

Nota: Tutte le quantità non percentuali sono espresse con unità di misura  $10^{19} \frac{atomi}{cm^3}$ .

Caso UOX

Cr.Pellaud	%Pu-240/Putot	Cr.Kimura	%Pu-238/Putot	arr(U-235)	Cm-245	Cm-244	Cm-242	Am-243	Am-242M	Am-241	Np-237	U-238	U-235	Pu-242	Pu-241	Pu-240	Pu-239	Pu-238	
1	1	1	1	4,00%	0,00E+00	2,16E+03	9,01E+01	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0 giorni						
30,00%	0,36%	14,96%	0,00%	3,99%	1,49E-20	8,95E-17	2,63E-14	1,54E-13	1,20E-14	6,38E-11	8,38E-05	2,16E+03	8,98E+01	4,03E-10	6,70E-07	1,41E-04	3,94E-02	6,41E-08	3 giorni
30,00%	1,90%	14,79%	0,00%	3,89%	2,18E-13	1,43E-10	9,22E-09	2,28E-08	1,65E-09	9,19E-07	4,85E-03	2,16E+03	8,74E+01	5,87E-06	9,70E-04	1,99E-02	1,02E+00	4,19E-05	30 giorni
30,00%	4,98%	14,45%	0,02%	3,67%	5,20E-10	1,11E-07	2,36E-06	5,66E-06	3,48E-07	7,11E-05	2,57E-02	2,16E+03	8,23E+01	4,60E-04	2,45E-02	1,61E-01	3,05E+00	6,93E-04	89 giorni
30,00%	8,32%	14,07%	0,06%	3,37%	6,01E-08	6,31E-06	5,92E-05	1,53E-04	7,57E-06	8,88E-04	7,44E-02	2,15E+03	7,52E+01	5,88E-03	1,51E-01	5,11E-01	5,47E+00	3,97E-03	178 giorni
30,00%	10,68%	13,80%	0,13%	3,09%	9,68E-07	6,36E-05	3,39E-04	9,72E-04	3,88E-05	3,42E-03	1,40E-01	2,15E+03	6,86E+01	2,33E-02	3,82E-01	9,36E-01	7,41E+00	1,12E-02	267 giorni
30,00%	12,57%	13,56%	0,21%	2,84%	6,23E-06	3,09E-04	1,07E-03	3,40E-03	1,11E-04	8,20E-03	2,19E-01	2,15E+03	6,26E+01	5,80E-02	6,82E-01	1,40E+00	8,98E+00	2,37E-02	356 giorni
30,00%	14,07%	13,36%	0,32%	2,60%	2,64E-05	1,02E-03	2,45E-03	8,58E-03	2,33E-04	1,53E-02	3,08E-01	2,14E+03	5,71E+01	1,13E-01	1,03E+00	1,88E+00	1,03E+01	4,24E-02	445 giorni
30,00%	15,35%	13,18%	0,45%	2,37%	8,34E-05	2,65E-03	4,62E-03	1,79E-02	4,09E-04	2,46E-02	4,08E-01	2,14E+03	5,19E+01	1,89E-01	1,40E+00	2,36E+00	1,14E+01	6,86E-02	534 giorni
30,00%	16,45%	13,01%	0,60%	2,17%	2,19E-04	5,81E-03	7,65E-03	3,22E-02	6,30E-04	3,57E-02	5,13E-01	2,13E+03	4,71E+01	2,86E-01	1,77E+00	2,84E+00	1,23E+01	1,03E-01	623 giorni
30,00%	17,42%	12,85%	0,77%	1,97%	4,85E-04	1,12E-02	1,15E-02	5,28E-02	8,89E-04	4,80E-02	6,23E-01	2,13E+03	4,28E+01	4,04E-01	2,14E+00	3,31E+00	1,30E+01	1,46E-01	712 giorni
30,00%	18,26%	12,70%	0,96%	1,79%	9,63E-04	1,96E-02	1,61E-02	8,01E-02	1,18E-03	6,13E-02	7,35E-01	2,12E+03	3,87E+01	5,40E-01	2,50E+00	3,77E+00	1,36E+01	1,98E-01	801 giorni
30,00%	18,97%	12,57%	1,17%	1,63%	3,02E-03	3,22E-02	2,15E-02	1,15E-01	1,48E-03	7,49E-02	8,48E-01	2,11E+03	3,50E+01	6,94E-01	2,85E+00	4,21E+00	1,42E+01	2,60E-01	890 giorni

Cm-245	Cm-244	Cm-242	Am-243	Am-242M	Am-241	Np-237	U-238	U-235	Pu-242	Pu-241	Pu-240	Pu-239	Pu-238	Isotopo
3,02E-03	3,22E-02	2,15E-02	1,15E-01	1,48E-03	7,49E-02	8,48E-01	-4,80E+01	-5,52E+01	6,94E-01	2,85E+00	4,21E+00	1,42E+01	2,60E-01	Δ

Caso	UOX	$+^{237}Np$
Caso	UUA	$+ n_{I}$

	<mark>0 giorni</mark>	<mark>3 giorni</mark>	30 giorni	89 giorni	179 giorni	268 giorni	358 giorni	447 giorni	536 giorni	626 giorni	715 giorni	804 giorni
Pu-238	0	2,09E-02	2,10E-01	6,11E-01	1,17E+00	1,69E+00	2,18E+00	2,62E+00	3,03E+00	3,41E+00	3,75E+00	~
Pu-239	0,00E+00	3,92E-02	1,02E+00	3,07E+00	5,60E+00	7,70E+00	9,43E+00	1,09E+01	1,22E+01	1,32E+01	1,42E+01	-
Pu-240	0,00E+00	1,32E-04	1,80E-02	1,47E-01	4,73E-01	8,72E-01	1,32E+00	1,78E+00	2,25E+00	2,72E+00	3,19E+00	
Pu-241	0,00E+00	6,19E-07	8,56E-04	2,16E-02	1,35E-01	3,50E-01	6,35E-01	9,73E-01	1,34E+00	1,72E+00	2,10E+00	
Pu-242	0,00E+00	3,34E-10	4,64E-06	3,62E-04	4,67E-03	1,88E-02	4,73E-02	9,27E-02	1,57E-01	2,40E-01	3,41E-01	
Np-237	1,03E+01	1,02E+01	1,00E+01	9,65E+00	9,10E+00	8,59E+00	8,12E+00	7,68E+00	7,28E+00	6,91E+00	6,57E+00	_
Am-241	0,00E+00	5,94E-11	8,17E-07	6,31E-05	7,99E-04	3,15E-03	7,70E-03	1,47E-02	2,40E-02	3,53E-02	4,84E-02	_
Am-242M	0,00E+00	1,03E-14	1,36E-09	2,89E-07	6,50E-06	3,44E-05	1,02E-04	2,20E-04	3,93E-04	6,24E-04	9,00E-04	
Am-243	0,00E+00	1,29E-13	1,82E-08	4,42E-06	1,22E-04	7,73E-04	2,74E-03	6,97E-03	1,44E-02	2,63E-02	4,33E-02	0
Cm-242	0,00E+00	2,26E-14	7,53E-09	1,92E-06	4,87E-05	2,82E-04	9,05E-04	2,10E-03	4,00E-03	6,72E-03	1,02E-02	1
Cm-244	0,00E+00	8,07E-17	1,10E-10	8,29E-08	4,81E-06	4,79E-05	2,36E-04	7,83E-04	2,03E-03	4,46E-03	8,61E-03	
CM-245	0,00E+00	1,05E-20	1,71E-13	3,91E-10	4,66E-08	7,37E-07	4,85E-06	2,05E-05	6,39E-05	1,66E-04	3,71E-04	~
U-235	1,01E+02	1,01E+02	9,86E+01	9,34E+01	8,62E+01	7,95E+01	7,32E+01	6,74E+01	6,20E+01	5,70E+01	5,23E+01	4
U-238	2,15E+03	2,15E+03	2,15E+03	2,15E+03	2,14E+03	2,14E+03	2,13E+03	2,13E+03	2,12E+03	2,12E+03	2,11E+03	2
arr(U-235)	4,50%	4,49%	4,39%	4,17%	3,87%	3,58%	3,32%	3,07%	2,84%	2,62%	2,41%	
%Pu-238/Putot	1	34,77%	16,77%	15,88%	15,88%	15,93%	15,99%	15,99%	15,99%	15,98%	15,92%	
Cr.Kimura	1	14,98%	14,84%	14,58%	14,29%	14,08%	13,90%	13,74%	13,60%	13,47%	13,35%	
%Pu-240/Putot	1	0,22%	1,44%	3,81%	6,40%	8,20%	9,69%	10,85%	11,87%	12,75%	13,56%	
Cr.Pellaud	1	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	
%Np-237/No	100,00%	99,79%	97,96%	94,09%	88,70%	83,72%	79,11%	74,87%	70,94%	67,34%	64,04%	

U-238	U-235	CM-245	Cm-244	Cm-242	Am-243	Am-242M	Am-241	Np-237	Pu-242	Pu-241	Pu-240	Pu-239	Pu-238	Isotopi
-4,70E+01	-5,75E+01	1,36E-03	2,50E-02	1,95E-02	9,59E-02	1,56E-03	7,77E-02	-4,29E+00	5,93E-01	2,84E+00	4,12E+00	1,56E+01	4,36E+00	Δ

01-220	0 giorni	3 giorni	30 giorni	90 giorni	179 giorni	269 giorni	358 giorni	448 giorni	538 giorni	627 giorni	717 giorni	806 giorni
Pu-238	0	2,06E-02	2,10E-01	6,39E-01	1,28E+00	1,90E+00	2,49E+00	3,03E+00	3,52E+00	3,96E+00	4,36E+00	4,72E+00
Pu-239	0,00E+00	4,03E-02	1,04E+00	3,15E+00	5,78E+00	7,96E+00	9,79E+00	1,13E+01	1,26E+01	1,38E+01	1,47E+01	1,56E+01
Pu-240	0,00E+00	4,18E-04	2,00E-02	1,48E-01	4,69E-01	8,67E-01	1,31E+00	1,77E+00	2,25E+00	2,73E+00	3,21E+00	3,68E+00
Pu-241	0,00E+00	2,67E-06	1,01E-03	2,19E-02	1,34E-01	3,41E-01	6,21E-01	9,59E-01	1,32E+00	1,70E+00	2,08E+00	2,47E+00
Pu-242	0,00E+00	1,30E-03	1,76E-02	4,94E-02	8,96E-02	1,28E-01	1,72E-01	2,26E-01	2,92E-01	3,72E-01	4,65E-01	5,73E-01
Np-237	1,02E+01	1,02E+01	1,00E+01	9,64E+00	9,11E+00	8,62E+00	8,17E+00	7,75E+00	7,37E+00	7,01E+00	6,68E+00	6,38E+00
Am-241	1,74E+00	1,73E+00	1,62E+00	1,40E+00	1,13E+00	9,21E-01	7,51E-01	6,17E-01	5,11E-01	4,29E-01	3,67E-01	3,20E-01
Am-242M	1,53E-02	1,62E-02	2,27E-02	2,96E-02	3,02E-02	2,68E-02	2,26E-02	1,88E-02	1,56E-02	1,30E-02	1,09E-02	9,31E-03
Am-243	2,50E+00	2,50E+00	2,42E+00	2,27E+00	2,05E+00	1,86E+00	1,67E+00	1,51E+00	1,36E+00	1,24E+00	1,12E+00	1,03E+00
Cm-242	6,59E-03	1,27E-02	8,55E-02	2,04E-01	2,97E-01	3,28E-01	3,24E-01	3,03E-01	2,75E-01	2,44E-01	2,14E-01	1,88E-01
Cm-244	9,16E-01	9,23E-01	9,84E-01	1,11E+00	1,28E+00	1,43E+00	1,55E+00	1,66E+00	1,75E+00	1,81E+00	1,87E+00	1,91E+00
Cm-245	4,00E-03	4,92E-03	1,35E-02	3,30E-02	6,26E-02	9,30E-02	1,23E-01	1,51E-01	1,79E-01	2,04E-01	2,28E-01	2,49E-01
U-235	1,07E+02	1,07E+02	1,04E+02	9,91E+01	9,18E+01	8,50E+01	7,88E+01	7,29E+01	6,74E+01	6,23E+01	5,75E+01	5,30E+01
U-238	2,15E+03	2,15E+03	2,14E+03	2,14E+03	2,14E+03	2,13E+03	2,13E+03	2,12E+03	2,12E+03	2,11E+03	2,11E+03	2,10E+03
arr(U-235)	4,75%	4,74%	4,64%	4,42%	4,12%	3,83%	3,57%	3,32%	3,08%	2,86%	2,65%	2,46%
6Pu-238/Putot	1	32,86%	16,28%	15,96%	16,54%	17,00%	17,29%	17,48%	17,58%	17,60%	17,55%	17,48%
Cr.Kimura	1	14,70%	14,68%	14,46%	14,21%	14,02%	13,86%	13,73%	13,60%	13,49%	13,37%	13,27%
%Pu-240/Putot	/	0,67%	1,55%	3,70%	6,05%	7,75%	9,12%	10,23%	11,25%	12,11%	12,92%	13,62%
Cr.Pellaud	1	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%
%Am-241/No	100,00%	99,28%	93,00%	80,47%	65,06%	52,82%	43,10%	35,37%	29,32%	24,64%	21,04%	18,34%
6Am-242M/No	100,00%	105,80%	148,15%	193,14%	196,59%	174,38%	147,45%	122,80%	101,70%	84,44%	70,97%	60,67%
%Am-243/No	100,00%	99,67%	96,78%	90,60%	82,04%	74,10%	66,90%	60,32%	54,50%	49,35%	44,91%	41,19%
%Np-237/No	100,00%	99,80%	98,01%	94,25%	89,02%	84,22%	79,80%	75,73%	71,98%	68,50%	65,31%	62,39%

 $\mathbf{Caso}\ \mathbf{UOX}\ +\ \mathbf{AM}$ 

Isotopi	Δ
Pu-238	5,05E+00
Pu-239	1,63E+01
Pu-240	4,14E+00
Pu-241	2,84E+00
Pu-242	6,93E-01
Np-237	-4,13E+00
Am-241	-1,46E+00
Am-242M	-7,26E-03
Am-243	-1,55E+00
Cm-242	1,58E-01
Cm-244	1,02E+00
Cm-245	2,65E-01
U-235	-5,82E+01
U-238	-4,68E+01

	0 giorni	3 giorni	30 giorni	90 giorni	180 giorni	270 giorni	360 giorni	450 giorni	540 giorni	630 giorni	720 giorni	810 giorni	900 giorni
Pu-238	0	1,64E-04	2,64E-02	2,16E-01	7,13E-01	1,33E+00	1,96E+00	2,56E+00	3,10E+00	3,57E+00	3,97E+00	4,31E+00	4,58E+00
Pu-239	0,00E+00	4,45E-02	1,15E+00	3,48E+00	6,37E+00	8,77E+00	1,08E+01	1,25E+01	1,39E+01	1,51E+01	1,62E+01	1,71E+01	1,78E+01
Pu-240	0,00E+00	1,49E-04	1,77E-02	1,42E-01	4,63E-01	8,69E-01	1,32E+00	1,81E+00	2,32E+00	2,84E+00	3,36E+00	3,88E+00	4,37E+00
Pu-241	0,00E+00	6,87E-07	8,33E-04	2,03E-02	1,28E-01	3,31E-01	6,12E-01	9,44E-01	1,30E+00	1,69E+00	2,09E+00	2,48E+00	2,88E+00
Pu-242	0,00E+00	6,73E-03	9,13E-02	2,55E-01	4,52E-01	6,08E-01	7,36E-01	8,47E-01	9,49E-01	1,05E+00	1,14E+00	1,24E+00	1,35E+00
Np-237	0,00E+00	2,40E-04	7,57E-03	3,61E-02	9,75E-02	1,76E-01	2,68E-01	3,70E-01	4,81E-01	5,99E-01	7,20E-01	8,43E-01	9,70E-01
Am-241	1,03E+01	1,02E+01	9,63E+00	8,49E+00	7,04E+00	5,86E+00	4,87E+00	4,05E+00	3,37E+00	2,80E+00	2,34E+00	1,96E+00	1,64E+00
Am-242M	9,04E-02	9,49E-02	1,29E-01	1,69E-01	1,79E-01	1,65E-01	1,45E-01	1,24E-01	1,05E-01	8,82E-02	7,36E-02	6,16E-02	5,16E-02
Am-243	1,47E+01	1,47E+01	1,44E+01	1,36E+01	1,26E+01	1,16E+01	1,07E+01	9,88E+00	9,09E+00	8,35E+00	7,66E+00	7,02E+00	6,43E+00
Cm-242	0,00E+00	3,21E-02	4,14E-01	1,04E+00	1,55E+00	1,75E+00	1,76E+00	1,67E+00	1,53E+00	1,37E+00	1,21E+00	1,05E+00	9,12E-01
Cm-244	0,00E+00	3,82E-02	3,81E-01	1,10E+00	2,08E+00	2,98E+00	3,79E+00	4,53E+00	5,18E+00	5,76E+00	6,27E+00	6,72E+00	7,12E+00
Cm-245	0,00E+00	2,34E-05	2,32E-03	1,92E-02	6,77E-02	1,34E-01	2,13E-01	2,97E-01	3,87E-01	4,76E-01	5,63E-01	6,51E-01	7,30E-01
U-235	1,13E+02	1,12E+02	1,10E+02	1,05E+02	9,76E+01	9,09E+01	8,47E+01	7,89E+01	7,34E+01	6,83E+01	6,35E+01	5,90E+01	5,47E+01
U-238	2,14E+03	2,14E+03	2,14E+03	2,14E+03	2,13E+03	2,13E+03	2,12E+03	2,12E+03	2,11E+03	2,11E+03	2,10E+03	2,10E+03	2,09E+03
arr(U-235)	5,00%	4,99%	4,89%	4,68%	4,38%	4,10%	3,84%	3,59%	3,36%	3,14%	2,93%	2,74%	2,55%
%Pu-238/Putot	1	0,32%	2,05%	5,25%	8,77%	11,13%	12,71%	13,73%	14,36%	14,71%	14,86%	14,87%	14,77%
Cr.Kimura	/	13,53%	14,07%	13,94%	13,76%	13,64%	13,53%	13,43%	13,33%	13,24%	13,15%	13,06%	12,97%
%Pu-240/Putot	1	0,29%	1,38%	3,46%	5,70%	7,30%	8,58%	9,70%	10,76%	11,70%	12,56%	13,39%	14,11%
Cr.Pellaud	1	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%
%Am-241/No	100,00%	99,37%	93,82%	82,72%	68,61%	57,04%	47,42%	39,44%	32,81%	27,31%	22,79%	19,04%	15,97%
%Am-242M/No	100,00%	105,03%	142,91%	186,55%	197,76%	182,51%	160,14%	137,05%	116,08%	97,57%	81,50%	68,20%	57,10%
%Am-243/No	100,00%	99,74%	97,40%	92,45%	85,51%	78,95%	72,82%	67,04%	61,68%	56,62%	51,97%	47,64%	43,61%

U-238	U-235	Cm-245	Cm-244	Cm-242	Am-243	Am-242M	Am-241	Np-237	Pu-242	Pu-241	Pu-240	Pu-239	Pu-238	Isotopi
-4,81E+01	-5,79E+01	7,30E-01	7,12E+00	9,12E-01	-8,31E+00	-3,88E-02	-8,63E+00	9,70E-01	1,35E+00	2,88E+00	4,37E+00	1,78E+01	4,58E+00	Δ

Pu-238	0 giorni 0	3 giorni 2,07E-02	<mark>33 giorni</mark> 1,92E-01	<mark>98 giorni</mark> 4,94E-01	<mark>195 giorni</mark> 7,95E-01	293 giorni 9,77E-01	390 giorni 1,09E+00	488 giorni 1,15E+00	585 giorni 1,20E+00	683 giorni 1,23E+00	781 giorni 1,26E+00	878	giorni 29E+00
Pu-239	0,00E+00	5,28E-02	1,26E+00	3,58E+00	6,26E+00	8,42E+00	1,02E+01	1,18E+01	1,32E+01	1,44E+01	1	,55E+01	,55E+01 1,66E+01
Pu-240	0,00E+00	7,10E-02	6,84E-01	1,95E+00	3,74E+00	5,44E+00	7,04E+00	8,53E+00	9,94E+00	1,13E+01	1,	25E+01	25E+01 1,36E+01
Pu-241	0,00E+00	6,47E-04	5,90E-02	3,96E-01	1,11E+00	1,88E+00	2,66E+00	3,44E+00	4,18E+00	4,89E+00	5,	57E+00	57E+00 6,23E+00
Pu-242	0,00E+00	7,49E-07	6,74E-04	1,33E-02	7,27E-02	1,79E-01	3,25E-01	5,02E-01	7,03E-01	9,23E-01	1,1	L6E+00	L6E+00 1,40E+00
Np-237	0,00E+00	1,24E-04	6,82E-03	3,24E-02	8,81E-02	1,58E-01	2,37E-01	3,23E-01	4,13E-01	5,03E-01	5,9	7E-01	7E-01 6,89E-01
Am-241	0,00E+00	9,29E-08	8,43E-05	1,71E-03	9,66E-03	2,44E-02	4,50E-02	7,05E-02	1,00E-01	1,33E-01	1,6	8E-01	8E-01 2,05E-01
Am-242M	0,00E+00	2,93E-11	2,40E-07	1,19E-05	1,06E-04	3,32E-04	7,00E-04	1,20E-03	1,82E-03	2,56E-03	3,38	3E-03	3E-03 4,28E-03
Am-243	0,00E+00	4,34E-10	3,99E-06	2,44E-04	2,86E-03	1,10E-02	2,70E-02	5,23E-02	8,78E-02	1,33E-01	1,89	9E-01	)E-01 2,53E-01
Cm-242	1,51E+00	1,48E+00	1,30E+00	9,79E-01	6,37E-01	4,17E-01	2,76E-01	1,87E-01	1,33E-01	1,02E-01	8,51	LE-02	IE-02 7,81E-02
Cm-244	2,09E+02	2,09E+02	2,08E+02	2,05E+02	2,00E+02	1,96E+02	1,92E+02	1,87E+02	1,83E+02	1,79E+02	1,75	E+02	E+02 1,71E+02
Cm-245	9,13E-01	9,69E-01	1,45E+00	2,37E+00	3,49E+00	4,42E+00	5,20E+00	5,89E+00	6,47E+00	6,99E+00	7,44	E+00	E+00 7,84E+00
arr(U-235)	2,75%	2,74%	2,64%	2,45%	2,21%	2,00%	1,83%	1,68%	1,55%	1,43%	1,	32%	32% 1,22%
%Pu-238/Putot	1	14,25%	8,76%	7,68%	6,64%	5,78%	5,09%	4,53%	4,09%	3,75%	3,	49%	49% 3,28%
Cr.Kimura	1	9,62%	11,57%	11,64%	11,50%	11,34%	11,20%	11,09%	10,99%	10,90%	10,	83%	83% 10,78%
%Pu-240/Putot	1	48,90%	31,16%	30,33%	31,25%	32,18%	32,98%	33,58%	34,06%	34,43%	34	,69%	,69% 34,82%
Cr.Pellaud	1	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30,00%	30	,00%	,00% 30,00%
%Cm-242/No	100,00%	98,57%	86,62%	65,01%	42,32%	27,67%	18,32%	12,44%	8,84%	6,75%	5,6	5%	5% 5,18%
%Cm-244/No	100,00%	99,93%	99,27%	97,84%	95,73%	93,63%	91,56%	89,51%	87,50%	85,51%	83,	56%	56% 81,64%

$\mathbf{Caso}$	UOX	+	Cm

Isotopi	>
Pu-238	1,32E+00
Pu-239	1,76E+01
Pu-240	1,47E+01
Pu-241	6,87E+00
Pu-242	1,66E+00
Np-237	7,81E-01
Am-241	2,43E-01
Am-242M	5,25E-03
Am-243	3,25E-01
Cm-242	-1,43E+00
Cm-244	-4,24E+01
Cm-245	7,29E+00

### Bibliografia

- Fukuda K., Mitsuhashi T., Sagara H., Saito M., Feasibility of Reprocessed Uranium in LWR Fuel Cycle for Protected Plutoniu, Production, "Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY", Vol. 45, No. 10, 2008.
- [2] Han C.Y., Koyama S., Sagara H., Saito M., Methodology Development for Plutonium Categorization and Enhancement of Proliferation Resistance by P<sup>3</sup> Mechanism, in "Report of the 18<sup>th</sup> Pacific Basin Nuclear Conference", Marzo 2012.
- [3] Kimura Y., Sagara H., Saito M., Evaluation of Proliferation Resistance of Plutonium Based on Decay Heat, in "Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY", Vol. 48, No. 5, 2011.
- [4] Pellaud B., From Nuclear Fuels to Waste: Current Research, in "C.R. Physique 3", 2002.
- [5] Peryoga Y., Sagara H., Saito M., Improvement of Plutonium Proliferation Resistance by Doping Minor Actinides, in "Progress in Nuclear Energy", Vol. 47, No. 1-4, 2005.
- [6] Peryoga Y., Sagara H., Saito M., Ezoubtchenko A., Inherent Protection of Plutonium by Doping Minor Actinide in Thermal Neutron Spectra, in "Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY", Vol. 42, No. 5, Maggio 2005.
- [7] Saito M., Protected Plutonium Production (P<sup>3</sup>) by Transmutation of Minor Actinides, in "Proceedings of Global", Maggio 2005.
- [8] Saito M., Protected Plutonium Production by Transmutation of Minor Actinides for Peace and Sustainable Prosperity, in "Proceedings of Global 2009", Settembre 2009.

### Ringraziamenti

A conclusione di questo lavoro di tesi desidero ringraziare tutti coloro senza i quali non sarei giunto alla fine di questo lungo cammino.

Innanzi tutto voglio esprimere la mia gratitudine verso il professor Pola, il quale con infinita cordialità e disponibilità ha assecondato fin dall'inizio la mia volontà di svolgere al Tokyo Institute of Technology l'attività di ricerca che è alla base di quest'elaborato. Voglio inoltre ringraziare il professor Cammi, che ha così gentilmente accettato di voler appoggiarmi in qualità di relatore e che prima ancora è stato un ottimo insegnante, possessore del non comune dono di infondere la curiosità e la voglia di sapere nei propri studenti. Insieme a lui voglio ovviamente ringraziare tutti gli altri professori del Politecnico di Milano che nel corso di questi anni mi hanno trasmesso ciò che oggi posso dire di conoscere.

Non posso poi esimermi dal dire grazie al professor Saito, che mi ha accettato come membro della sua "famiglia-laboratorio", ed a tutti i miei compagni, anzi "fratelli di laboratorio". Tra i quali in particolare vorrei citare Tomo e Nakamurasan, "fratelli maggiori" sempre pronti a venire in aiuto e a consigliare nella necessità.

Prima di procedere con i successivi ringraziamenti vorrei confessare qualcosa, vivere a Tokyo è stato da sempre il sogno della mia vita e quando i sogni si realizzano la gioia è sempre immensa, tuttavia essere lontani dalla propria casa è qualcosa che porta con se sentimenti contrastanti, a volte si apprezza e si vive pienamente la propria indipendenza ed altre volte l'unica cosa che si vorrebbe è di rivedere le persone lontane che si amano. È per questo motivo che voglio ringraziare la mia famiglia. Mia madre, che gioisce con me per tutte le vittorie e soffre con me per tutte le sconfitte della vita, mio padre, che qualsiasi cosa accada sarà sempre lì per me, i miei fratelli, che da bravi fratelli maggiori sono sempre stati lì davanti a me a mostrarmi la strada da seguire, e le mie cognate, alle quali sono legato da vincoli più forti del semplice legame di sangue.

Voglio poi ringraziare tutto il resto della mia famiglia ed in particolare mio cugino Carmelo, il miglior designer che conosca, che mi ha aiutato nell'impaginazione di questa tesi e che considero come mio fratello.

Subito dopo la mia famiglia vengono ovviamente i miei amici, compagni di corso e non, con i quali ho condiviso molto nella vita, la quale avrebbe un gusto ben più amaro se fosse senza di loro. Un grazie va anche a me stesso per non aver mai rinunciato a perseguire i miei stessi sogni.

Infine desidero dire grazie alla donna che vedo ogni giorno al mio risveglio e che voglio rivedere ad ogni risveglio del resto della mia vita, Ai.