



INFN/TC-10/06  
1 Luglio 2010

**LA TRASMUTAZIONE DELLE SCORIE NUCLEARI PER  
LA CHIUSURA DEL CICLO DELL'ENERGIA NUCLEARE**

Viola Scanziani<sup>1</sup>, Mauro L. Bonardi<sup>1,2,3</sup>, Flavia Groppi<sup>1,4</sup>, Simone Manenti<sup>1</sup>, Paolo Pierini<sup>5</sup>

<sup>1</sup>*INFN-Sezione di Milano, Università degli Studi di Milano,*

*LASA, Radiochemistry Laboratori, Via F.lli Cervi 201, 20090 Segrate, Milano, Italy*

<sup>2</sup>*International Committee of the American Nuclear Society, at <http://www.ANS.org>*

<sup>3</sup>*Scientific Secretary of Interdivisional Group of Radiochemistry and Radiation Chemistry  
applied to environment, health and industry (GIR),*

*Italian Society of Chemistry (SCI), at <http://www.GIR.mi.infn.it>*

<sup>4</sup>*A.N.P.E.Q., Associazione Nazionale Professionale Esperti Qualificati, Italy*

<sup>5</sup>*INFN-Sezione di Milano, LASA, Via F.lli Cervi 201, 20090 Segrate, Milano, Italy*

**Abstract**

In Europa - con circa 197 reattori in funzione - con una capacità totale di 170 GWe (su un totale di 440 reattori al mondo e di circa 60 nuovi impianti in costruzione), l'energia elettrica prodotta annualmente dalla fonte nucleare costituisce circa il 23% del fabbisogno elettrico totale. Il combustibile nucleare esausto, proveniente dalle centrali nucleari adibite alla produzione di energia elettrica, costituisce la maggior parte dei rifiuti nucleari (*rad-waste*) prodotti ogni anno. Dall'inizio del programma nucleare fino al 2003, sono state prodotte 255 000 tonnellate di metalli pesanti, contenenti oltre 2 500 tonnellate di elementi transuranici. Il riprocessamento e lo smantellamento delle armi nucleari ha inoltre prodotto 170 tonnellate di metalli pesanti e 100 tonnellate di plutonio.

PACS.: 89.30.Gg nuclear fission power in energy resources

*da: Relazione dal Corso di Radiochimica di UNIMI, 2009*

## 1 INTRODUZIONE

In Europa con circa 197 reattori in funzione con una capacità totale di 170 GWe (su un totale di 440 reattori al mondo e di circa 60 nuovi impianti in costruzione), l'energia prodotta annualmente dalla fonte nucleare costituisce circa il 23% del fabbisogno totale di energia elettrica. Costituisce il 21% della produzione di energia elettrica nei paesi OCSE ed il 14% della produzione elettrica nel mondo (dati 2009) <sup>1)</sup>.

Il combustibile nucleare esausto, proveniente dalle centrali nucleari adibite alla produzione di energia elettrica, costituisce la maggior parte dei rifiuti nucleari (*rad-waste*) prodotti ogni anno. Dall'inizio del programma nucleare fino al 2003, sono state prodotte 255 000 tonnellate di metalli pesanti, contenenti oltre 2 500 tonnellate di elementi transuranici. Il riprocessamento e lo smantellamento delle armi nucleari ha inoltre prodotto 170 tonnellate di metalli pesanti e 100 tonnellate di plutonio. Nell'Unione Europea il parco di centrali nucleari produce circa 2 500 tonnellate di rifiuti esausti ogni anno, che contengono circa 25 tonnellate di Pu, 3.5 tonnellate di *attinoidi minori* (MA o radionuclidi di Pa, Np, Am e Cm), 100 tonnellate di prodotti di fissione (FP, di cui 3.1 tonnellate di prodotti di fissione a lunghissima emivita, quali ad esempio <sup>99g</sup>Tc e <sup>129</sup>I): nonostante tali elementi costituiscano meno del 5% del volume totale degli scarti radioattivi, essi rappresentano circa il 95% della radioattività emessa dai rifiuti provenienti dalle centrali nucleari, o nuclear power plant (NPP) <sup>2,3)</sup>. Pur trattandosi di piccole quantità (200 m<sup>3</sup> di MILW e 10 000 m<sup>3</sup> di HLW ogni anno su scala mondiale <sup>4)</sup>, la loro immissione nell'ambiente rappresenterebbe un rischio per tutte le forme di vita e vanno dunque predisposte strutture adatte al loro deposito provvisorio (*ad interim*) o definitivo. Al giorno d'oggi il combustibile esausto ed i rifiuti derivanti dalle operazioni di riprocessamento vengono posti in depositi atti ad isolare i rifiuti dall'ambiente. Tali rifiuti possono essere stoccati in depositi geologici in superficie, sul fondo dell'oceano, in Antartico, ma ciascuna di queste opzioni richiama problemi politici, ambientali e tecnici che devono essere affrontati e risolti. Un'opzione diversa, che permette di *chiudere il ciclo del combustibile nucleare*, è quella della *trasmutazione delle scorie a più alto livello di radioattività* (HLW): oltre alla rimozione dei radionuclidi di plutonio e uranio dal combustibile esausto, una serie complessa di operazioni chimiche separano gli attinoidi minori (MA o AM) e alcuni prodotti di fissione (FP) a lunga vita dai rifiuti nucleari prima della eventuale *vetrificazione* e dello stoccaggio. Tale processo, chiamato *partizione*, viene seguito dalla *trasmutazione* delle scorie altamente radiotossiche (HLW) in reattori nucleari dedicati per poter diminuire il livello di radiotossicità dei rifiuti da immettere nell'ambiente, anche se la maggior parte delle repository hanno una licenza d'esercizio limitata nel tempo (*e.g.* 70 anni per la Yucca Mountain, Nevada, USA).

Diverse strategie sono state proposte a livello mondiale: queste rispecchiano fortemente le politiche nazionali sulla fonte nucleare. Il punto più dibattuto riguarda il riprocessamento del Pu all'interno di reattori LWR (Light Water Reactor) modificati per operare con un combustibile composto da diossidi misti di U e Pu o MOX (tipicamente

vengono aggiunte più barre di controllo). Il Pu viene ricavato sia dal combustibile esausto, sia dal progetto di disarmo nucleare degli Stati Uniti e della Russia. Stati Uniti e Francia, i maggiori rappresentanti sulla scena del nucleare mondiale, hanno visioni opposte sul concetto di attinoidi minori, e ciò ne blocca lo sviluppo: gli Stati Uniti sono contrari alla separazione del Pu dal combustibile esausto, prevalentemente per ragioni di non proliferazione (avendo molti Paesi firmato il Nuclear Non Proliferation Treaty, NPT o NNPT del 5 Marzo 1970), mentre i francesi riutilizzano il Pu per fabbricare elementi di combustibile (MOX impiegato in percentuali fino al 30% e molto raramente fino al 50% in massa di metalli). Il radionuclide di elezione per la costruzione di bombe nucleari è infatti il  $^{239}\text{Pu}$ : nonostante il riprocessamento del combustibile nucleare abbia come scopo quello di riutilizzare il plutonio come fonte di energia, alcuni Paesi sono contrari alla sua separazione dal combustibile esausto, preoccupati per la possibile fabbricazione di armi nucleari con la diffusione delle tecnologie per la separazione e l'arricchimento.

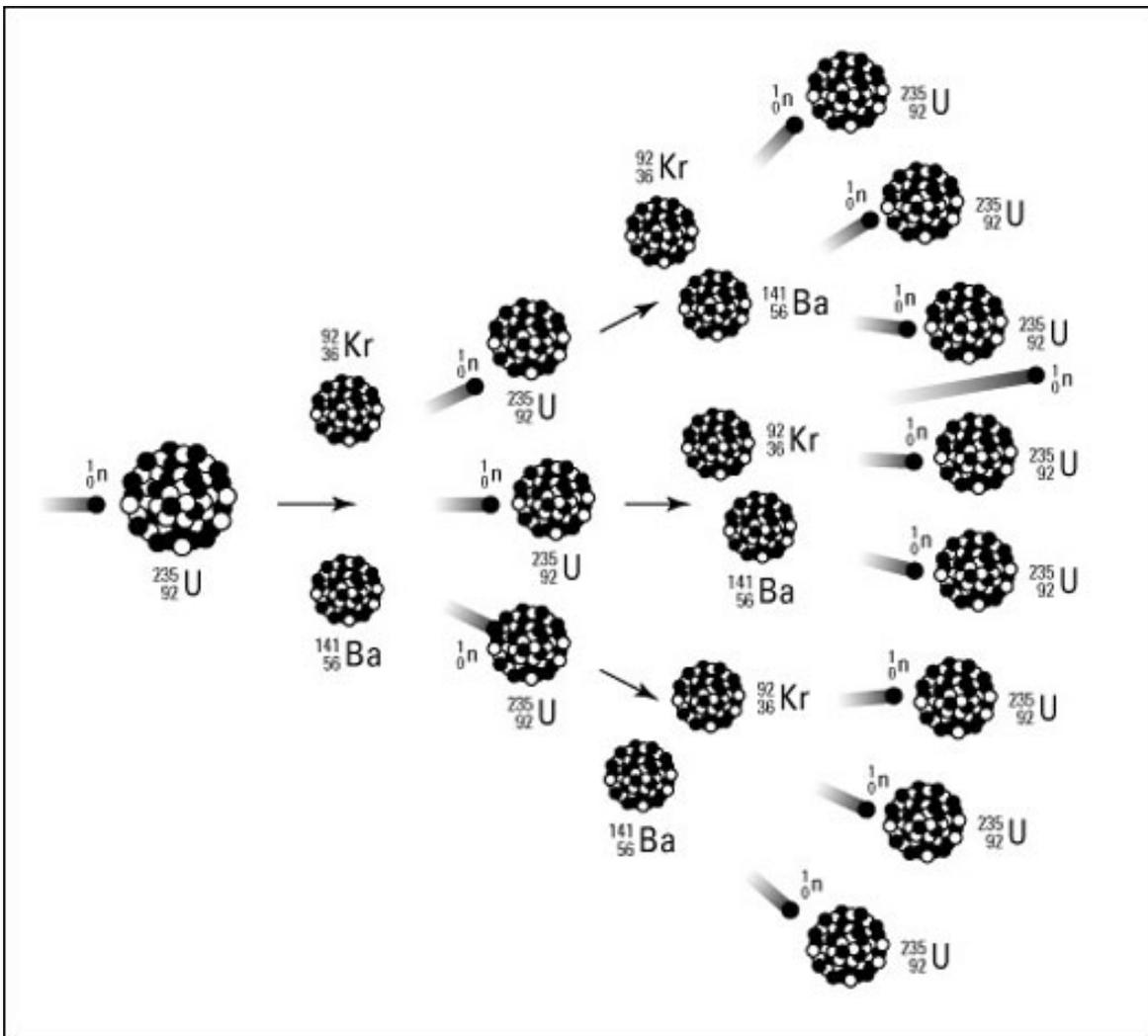
## 2. LA FONTE ENERGETICA NUCLEARE

In questo rapporto, dopo una breve introduzione sui reattori nucleari e sui principali fenomeni fisici di interesse, verranno analizzati i più importanti metodi di partizione e trasmutazione in studio, rivolgendo maggiormente l'attenzione verso i programmi di ricerca europei per la progettazione di acceleratori sperimentali XADS (eXperimental Accelerator-Driven System), fino al progetto XT-ADS (eXperimental demonstration of Transmutation in an Accelerator-Driven System) che porterà alla costruzione di un trasmutatore industriale EFIT (European Facility for Industrial Transmutation).

Lo scenario della trasmutazione risulta quindi diviso in due opzioni diverse: la prima prevede il riciclo degli scarti nucleari in reattori critici convenzionali ma dedicati a tale scopo, senza la separazione del Pu dagli altri elementi; nella seconda opzione invece (*ciclo del combustibile a double strata*), il Pu è separato dagli *attinoidi minori* che vengono poi trasmutati in appositi reattori.

### 2.1 La Fissione Indotta da Neutroni

La fissione nucleare è una reazione in cui un nucleo pesante bombardato con neutroni termici (ma anche epitermici e/o veloci) viene separato in due (o raramente più di due) nuclei di elementi più leggeri normalmente radioattivi, ma anche stabili (fissione indipendente) (FIG. 1) <sup>2)</sup>. Oltre ai prodotti di fissione vengono emessi neutroni veloci, fotoni, elettroni ed antineutrini. La fissione è energeticamente favorita per nuclei pesanti: infatti per  $A = 240$  l'energia di legame per nucleone è di circa 7.6 MeV / nucl e vale invece 8.5 MeV / nucl per  $A = 120$  (FIG. 2). Durante il processo di fissione sono prodotti  $\sim 0.9$  MeV per nucleone (quindi durante la fissione di un nucleo di  $^{235}\text{U}$  vengono liberati circa 204 MeV).



**FIG. 1:** Rappresentazione schematica della fissione indotta da neutroni dell'uranio-235 e dell'inizio di una reazione a catena.

L'energia necessaria per attivare la fissione dipende dal numero di massa dei nuclei e dall'energia dei neutroni che bombardano: l'unico nuclide naturale fissile con neutroni termici è lo  ${}^{235}\text{U}$ . Esistono anche nuclidi fissili (artificiali) con neutroni termici come il  ${}^{239}\text{Pu}$ . La fissione indotta da neutroni termici può essere descritta dalle eq. (2.1a e 2.1 b):



I prodotti di fissione B e D hanno numero di massa  $A$  compreso tra circa 70 e 160 e il numero medio di neutroni emessi per fissione  $\nu$  è 2-3. Nel caso del  $^{235}\text{U}$ , con neutroni termici  $\nu = 2.43$ .

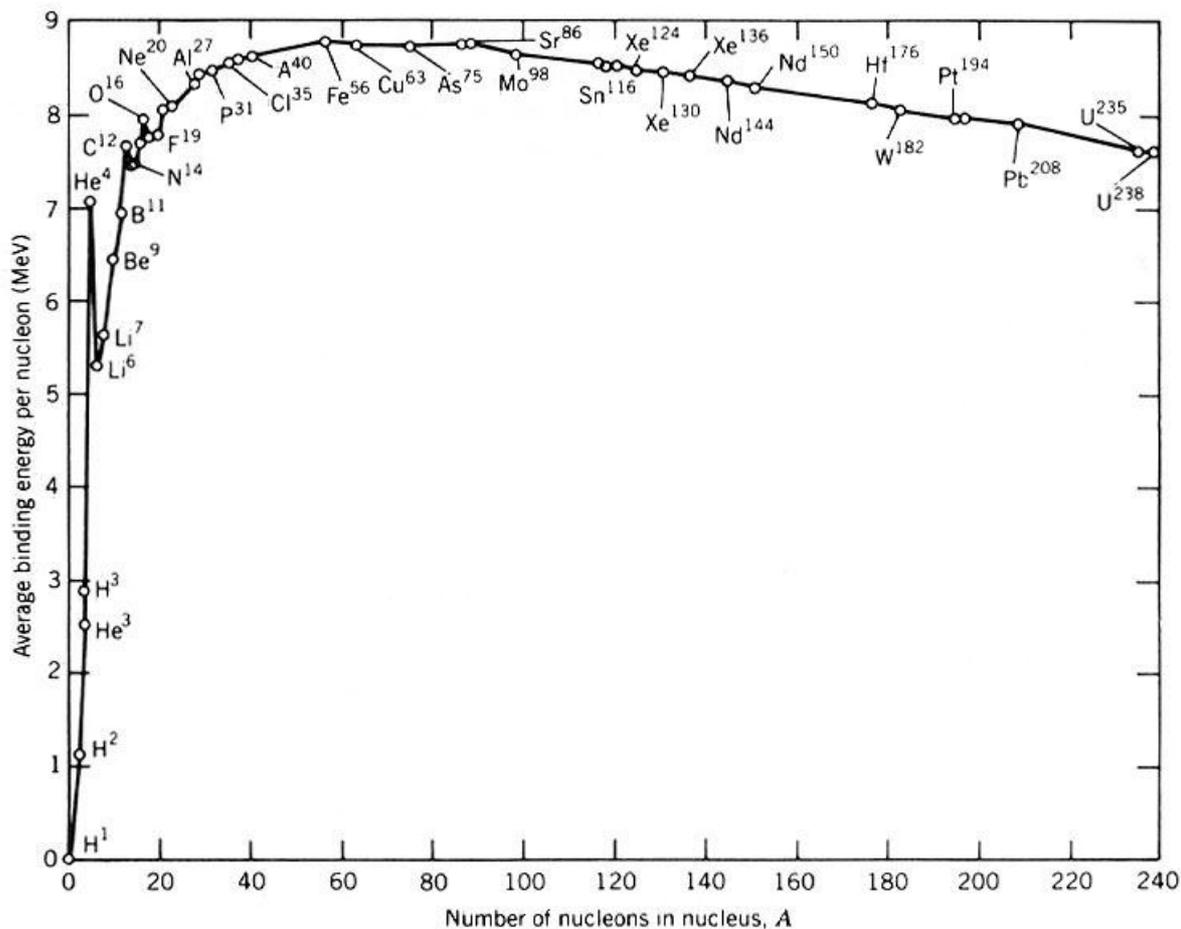
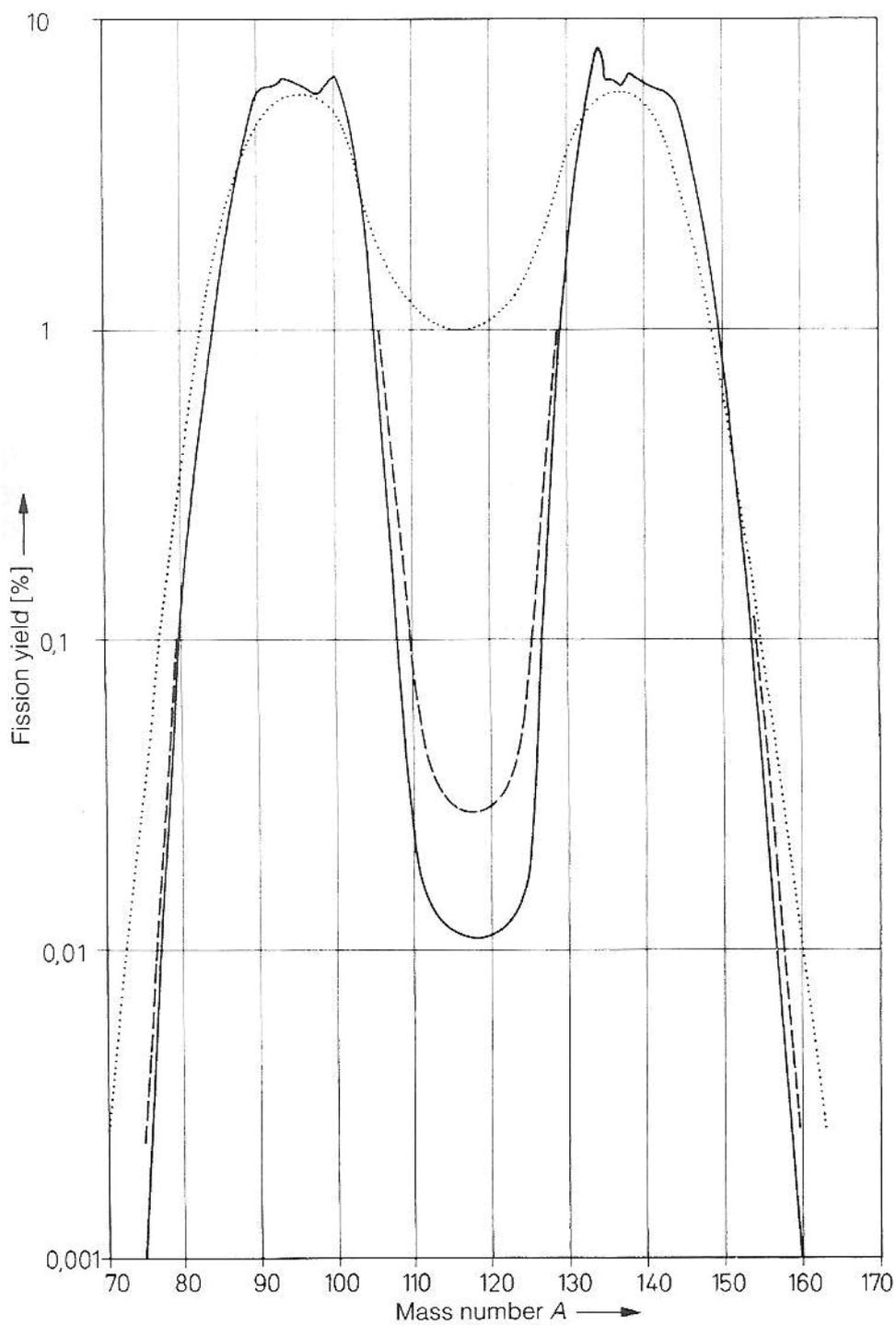
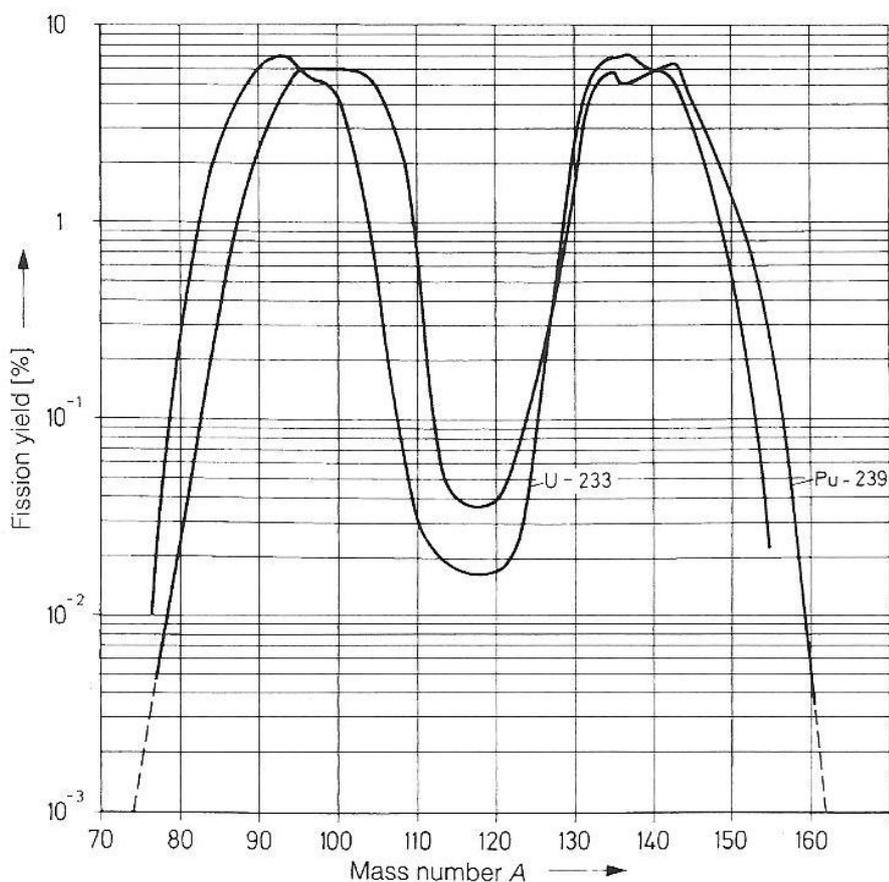


FIG. 2: Energia per nucleone in funzione del numero atomico di massa.

In FIG. 3 è rappresentata la distribuzione di massa dei prodotti di fissione per  $^{235}\text{U}$  bombardato con neutroni termici, veloci e da 14 MeV e in FIG. 4 si osserva la distribuzione di massa dei prodotti della fissione di  $^{233}\text{U}$  e  $^{239}\text{Pu}$  con neutroni termici. I massimi dello yield di produzione sono nei range di numero di massa 90-100 e 130-145. Anche nel caso di  $^{233}\text{U}$  e  $^{239}\text{Pu}$  la forma della curva è analoga. Si nota tuttavia uno spostamento verso destra del picco di produzione di nuclidi più leggeri nel caso del  $^{239}\text{Pu}$ : questa tendenza aumenta con l'aumentare della massa del nuclide fissile fino a che i due picchi si sovrappongono in un unico largo picco (ad esempio per fissione con neutroni termici di  $^{258}\text{Fm}$  <sup>2,5</sup>).



**FIG. 3:** Distribuzione di massa (yield%) dei prodotti di fissione risultanti dalla fissione di  $^{235}\text{U}$  con neutroni termici, veloci e da 14 MeV <sup>2,3</sup>. In quest'ultimo caso aumenta fortemente la probabilità di *fissione simmetrica*.

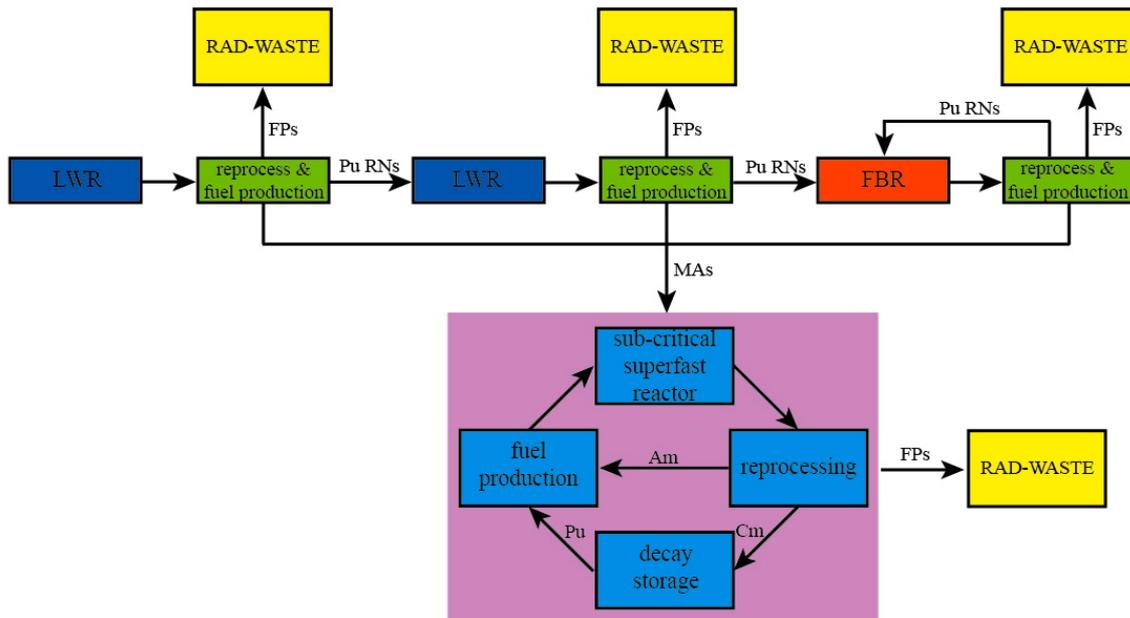


**FIG. 4:** Yield percentuale di fissione per <sup>233</sup>U e <sup>239</sup>Pu per neutroni termici <sup>2)</sup>.  
Lo yield totale è pari al 200%.

L'energia di fissione nel caso di <sup>235</sup>U è divisa come segue:

- energia cinetica dei prodotti di fissione, circa 167 MeV;  
energia cinetica dei neutroni, circa 5 MeV;
- raggi gamma emessi immediatamente (prompt gamma), circa 6 MeV;
- decadimento beta dei prodotti di fissione (nuclidi in eccesso di neutroni che decadono β<sup>-</sup> fino a raggiungere una configurazione stabile), circa 8 MeV;
- trasmutazione, dovuta ai raggi gamma, dei prodotti di fissione, circa 6 MeV;
- neutrini, circa 12 MeV.

per un totale di circa 204 MeV. A questa suddivisione va aggiunta l'energia liberata dall'assorbimento di neutroni che viene parzialmente restituita come emissione gamma. Il contributo dell'assorbimento neutronico, considerando  $\nu = 2.43$  e un'energia liberata per neutrone di 5 MeV, è di circa 12 MeV <sup>2)</sup>.



**FIG. 5:** Esempio di ciclo avanzato del combustibile nucleare (con riciclo) di un reattore ad acqua leggera, LWR (in due fasi) nel quale gli attinoidi minori (MAs) sono trattati separatamente dai radionuclidi di U and Pu. Possono essere aggiunte più fasi di riciclo a condizione che il combustibile esausto non contenga radionuclidi con elevate sezioni d'urto di assorbimento, la cui concentrazione aumenta generalmente col burn-out (*i.e.* utilizzo o invecchiamento) del combustibile stesso.

## 2.2 Reazioni nucleari di Spallazione e Frammentazione

La spallazione è una reazione nucleare in cui una particella veloce, ad esempio un protone con energia medio-alta (da centinaia di MeV a pochi GeV), bombarda un nucleo pesante. Dal nucleo vengono emessi alcuni nucleoni e pioni che hanno sufficiente energia per innescare reazioni a cascata intra-nucleari. Il nucleo è in uno stato eccitato e ritorna allo stato fondamentale per mezzo dell'evaporazione di nucleoni (principalmente di neutroni). In un secondo momento possono avvenire reazioni (n,xn) oppure la frammentazione del nucleo (reazioni di frammentazione).

Il numero di neutroni emessi (*i.e.* molteplicità neutronica) aumenta linearmente all'aumentare dell'energia del proiettile nell'intervallo tra 300 MeV / nucleone e 1 GeV / nucleone. Per energie superiori l'emissione di neutroni va a saturazione (FIG. 6) e non risulta più conveniente aumentare l'energia dei protoni: l'energia in eccesso viene infatti dissipata nel target di spallazione.

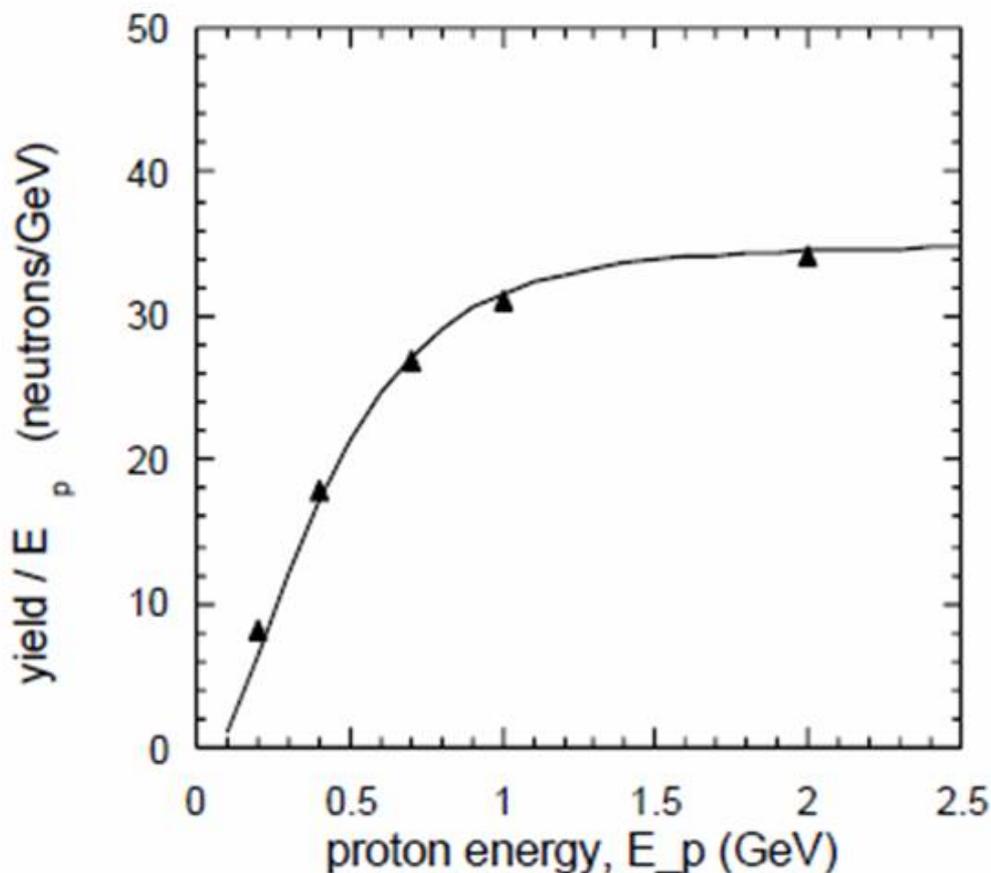


FIG. 6: Numero di neutroni emessi in funzione dell'energia dei protoni incidenti <sup>6-9)</sup>.

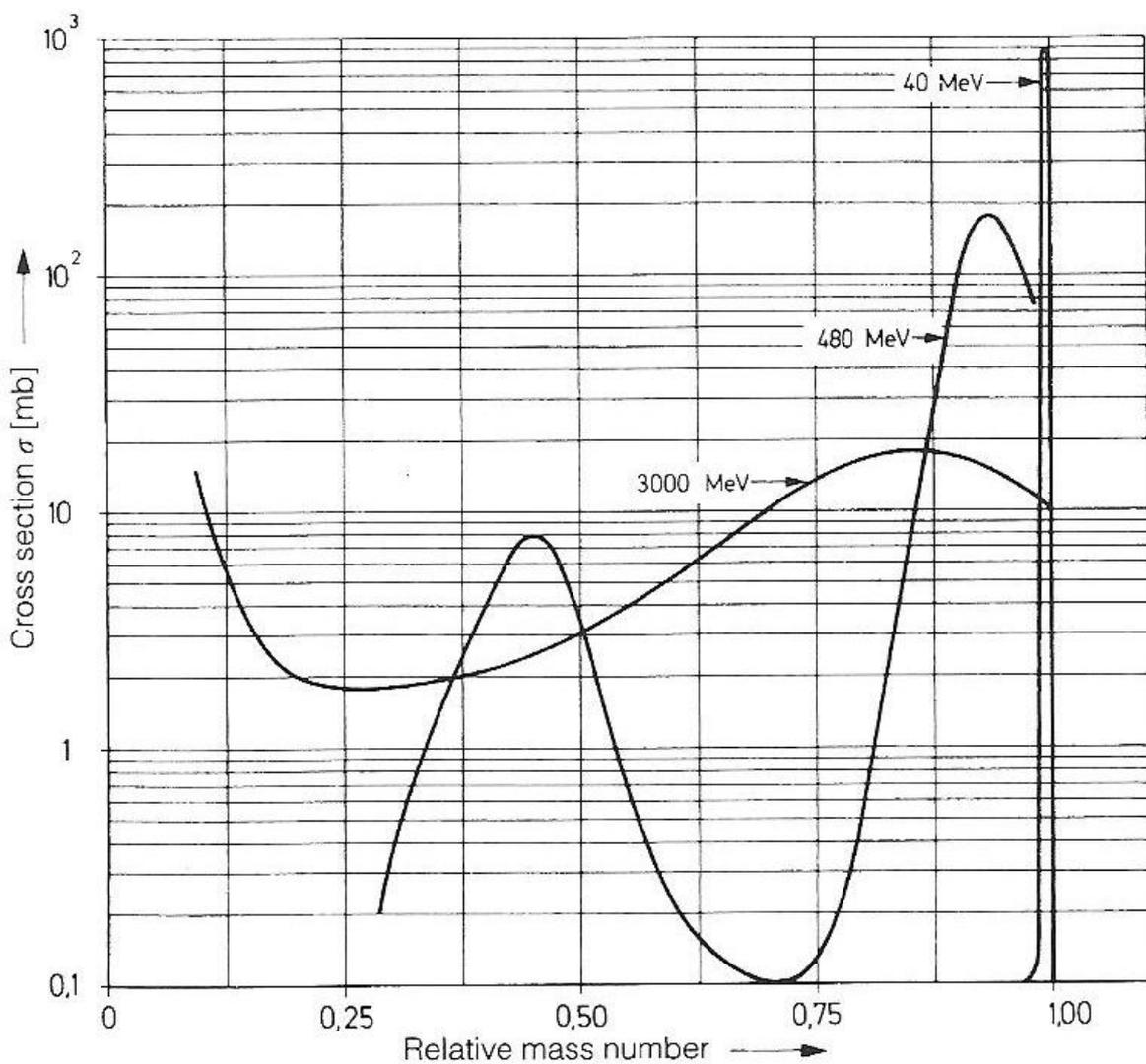
La densità di potenza  $P_D$  dissipata dal fascio in un bersaglio di massa  $m$  è pari al prodotto della perdita di energia nel bersaglio (in MeV) per la corrente di fascio di particelle di carica  $\gamma.z$  (espressa in  $\mu A$  / particella) diviso per la massa irraggiata, dove  $\gamma$  è un coefficiente  $\leq 1$  e  $\gamma.z$  è uguale a 1 per protoni, nuclei di deuterio o nuclei di trizio, mentre varia fra 1 e 2 per nuclei di elio-2 (alfa) ed elio-3:

$$P_D (W \cdot kg^{-1}) = \Delta E (MeV) \frac{I (\mu A)}{m (kg) \gamma z} \quad (2.2)$$

Inoltre la distribuzione delle masse dei prodotti si allarga all'aumentare dell'energia del proiettile mentre la sezione d'urto di ogni singolo canale diminuisce rispetto a quella tipica della formazione di nucleo composto, nonostante la sezione d'urto totale generalmente aumenti <sup>6-9)</sup>.

Per protoni con energie fino ai 50 MeV, la reazione nucleare porta all'emissione di alcune particelle, ma il numero di massa non varia apprezzabilmente. Per energie superiori

ai 100 MeV molte particelle e nucleoni vengono emessi dal nucleo target (spallazione). A energie ancora più alte (superiori a 1 GeV) il numero di prodotti di spallazione aumenta e può essere descritto dalle eq. (2.3a e 2.3b):



**FIG. 7:** Sezione d'urto di spallazione con protoni di varie energie per elementi con  $A > 70$  <sup>2)</sup>. Per elevate energie del proiettile, e' anche evidente la formazione di frammenti di basso numero di massa.

Nel caso in cui le reazioni avvengano tra protoni di alta energia e nuclei pesanti (con  $Z > 70$ ) si devono considerare anche reazioni di fissione nucleare: la distribuzione delle masse in funzione dell'energia dei protoni incidenti è riportata in FIG. 7. Per energie inferiori ai 50 MeV le masse dei prodotti finali non differiscono di molto dalla massa iniziale e ad energie superiori al GeV la differenza tra spallazione e fissione è trascurabile. Per protoni con energie superiori ai 3 GeV, gli yield relativi alle varie masse sono molto simili: questo significa che sono prodotti con la medesima probabilità tutti gli elementi che hanno numero di massa inferiore a quello dei nuclei di partenza.

La distribuzione angolare dei prodotti mostra che la spallazione è un processo divisibile in due fasi: inizialmente nucleoni, particelle alfa o altri frammenti nucleari vengono emessi con tempi di  $10^{-22} - 10^{-21}$  secondi da cascate di collisioni intra-nucleari; in una seconda fase, i nuclei eccitati si diseccitano per mezzo di processi di evaporazione o di fissione. La formazione di prodotti deficienti di neutroni come  $^{18}\text{F}$  e  $^{22}\text{Na}$  si spiega per mezzo dei processi veloci di *frammentazione*. Il risultato di tale reazione è un alto fattore di conversione neutrone / protone (per protoni incidenti di energia 1 GeV vengono emessi circa 30 neutroni), e un ampio spettro energetico di neutroni <sup>2)</sup>.

### 2.3 Reattori Nucleari

Un reattore nucleare è una macchina per iniziare, controllare e sostenere una reazione nucleare a catena indotta da neutroni con l'asportazione della potenza generata dalla perdita di energia cinetica dei prodotti di fissione che rallentano nel mezzo combustibile causandone il riscaldamento.

Dei  $\nu$  neutroni prodotti durante una fissione avremo:

$$\nu = k_{eff} + n_c + n_e \quad (2.4)$$

dove  $k_{eff}$  sono i neutroni che producono altre fissioni,  $n_e$  è il numero di neutroni che escono dal sistema e  $n_c$  è il numero di neutroni catturati senza fissione. Se il fattore di moltiplicazione effettivo  $k_{eff}$  è uguale a 1 si ha una struttura critica, se  $k_{eff} < 1$  la struttura è subcritica, se  $k_{eff} > 1$  la struttura è supercritica e si ha una reazione a catena in cui il numero di fissioni aumentano esponenzialmente.

È possibile definire la *reattività* del reattore:

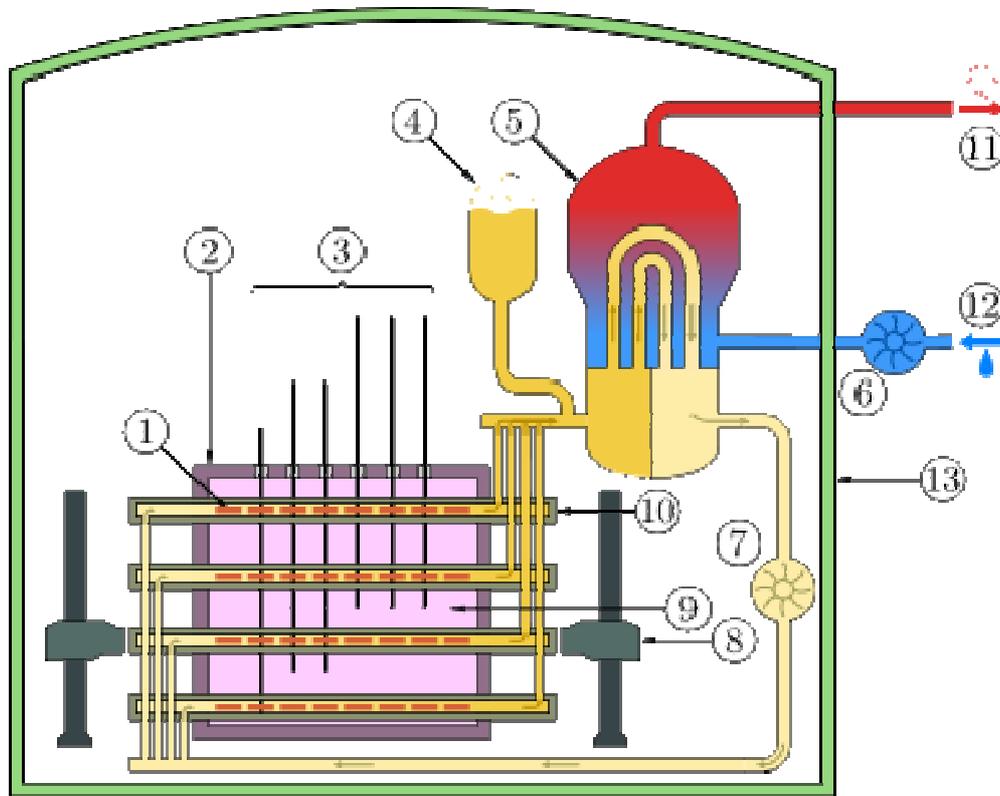
$$\rho = \frac{k_{eff} - 1}{k_{eff}} \quad (2.5)$$

Il reattore si definisce supercritico se  $\rho > 0$ , subcritico se  $\rho < 0$ , e critico se  $\rho = 0$ . Avere una reazione di fissione controllata significa avere un reattore critico, con  $\rho = 0$ . Il controllo della reattività è possibile grazie alla *frazione di neutroni emessi non istantaneamente (neutroni ritardati)*: infatti la maggior parte dei neutroni di fissione è emessa istantaneamente (*prompt neutrons*) mentre una piccola frazione è emessa con ritardo (*delayed neutrons*) che va dalle frazioni di secondo a diverse decine di secondi (per lo  $^{235}\text{U}$  questo tempo vale in media 13 secondi) dai prodotti di fissione. Se la reattività è invece positiva il reattore è praticamente incontrollabile. Sono state proposte strutture con reattività negativa funzionanti con sorgenti di neutroni esterne, i *reattori subcritici di spallazione*, che hanno un ruolo predominante nel panorama della trasmutazione delle scorie nucleari di cui si parlerà in seguito. La composizione dell'uranio naturale è riportata in TAB. 1. Se un reattore avesse combustibile costituito solo da uranio naturale sarebbe molto difficile realizzare una reazione a catena, perché i neutroni prodotti dalla fissione di  $^{235}\text{U}$  sarebbero quasi totalmente assorbiti dal  $^{238}\text{U}$ , che ha un'elevata sezione d'urto di cattura nella zona dello spettro dei neutroni delle risonanze epitermiche. Fanno eccezione i reattori CANDU e simili che utilizzano uranio naturale per il proprio funzionamento. Tre sono le soluzioni a questo problema:

1. Mescolare l'uranio con una sostanza moderatrice che rallenti i neutroni di fissione in modo da ridurre l'assorbimento da parte del  $^{238}\text{U}$ : questi sono reattori termici e utilizzano combustibile con  $^{235}\text{U}$  arricchito al 3-4% circa.
2. I neutroni emessi dalle fissioni non vengono moderati ma interagiscono con i nuclei fissili con energia prossima a quella che avevano quando sono stati emessi. Per questo tipo di reattori è necessario arricchire fortemente il combustibile, aumentando la concentrazione di  $^{235}\text{U}$  rispetto a quella dell'uranio naturale (la percentuale di arricchimento è 15-20%, *i.e.* l'uranio di arricchimento pari a  $< 20\%$  viene denominato **LEU**, in modo da ridurre la probabilità di urti dei neutroni contro  $^{238}\text{U}$  e aumentare la probabilità di fissione: questi reattori sono detti veloci.
3. Reattori ad uranio naturale moderati ad acqua pesante (HWR). Si tratta prevalentemente di reattori CANDU (CANadian Deuterium Uranium). Tale reattore è rappresentato schematicamente in FIG. 8 e gli elementi di combustibile in FIG.9.

**TAB. 1:** Radioisotopi presenti nell'uranio naturale [3].

Isotopo	Percentuale in peso nell'uranio naturale	Tempo di dimezzamento	Sezione d'urto per fissione (barn)
$^{238}\text{U}$	99.2742 %	$4.468 \cdot \text{Ga}$	$3 \cdot 10^{-6}$
$^{235}\text{U}$	0.7204 %	$0.7038 \cdot \text{Ga}$	586
$^{234}\text{U}$	0.0054 %	$0.2455 \cdot \text{Ma}$	0.07



**FIG. 8: Diagramma schematico di un reattore CANDU:** Il circuito del raffreddamento primario è di color giallo ed arancio, il secondario in blu e rosso. L'acqua pesante fredda, contenuta nella *calandria* è raffigurata in rosa, sopra di essa ed all'interno si notano le barre di controllo (assorbitori di neutroni) parzialmente inseriti in tubi all'interno del fascio di cilindri portacombustibile (per i dettagli vedi la Tabella sottostante).

**Dettaglio**

1	Fascio di cilindri portacombustibile	7	Pompa per l'acqua pesante (HW)
2	Calandria (core del reattore)	8	Macchine per il ricambio del combustibile
3	Barre di controllo	9	Acqua pesante (moderatore di neutroni)
4	Acqua pesante (serbatoio di pressurizzazione)	10	Tubo in pressione
5	Generatore di vapore	11	Vapore in afflusso alla turbina a vapore
6	Pompa per l'acqua leggera (LW)	12	Acqua fredda di ritorno dalla turbina
13	Edificio di contenimento in cemento armato		



**FIG. 9:** Due elementi di combustibile **CANDU** (*fuel bundles*): ognuno ha una lunghezza di 50 cm ed un diametro di 10 cm ed è in grado di generare circa 1 GW.h d'elettricità durante la vita operativa nel reattore

I reattori veloci, a causa della minor sezione d'urto dei neutroni rispetto a quelli termici hanno bisogno di una massa di combustibile 10-100 volte maggiore rispetto ad un reattore termico di pari potenza. Per la mancanza del moderatore i reattori veloci hanno un nocciolo con volume molto ridotto rispetto a quello di un reattore termico.

## 2.4 Combustibili Nucleari

La progettazione degli elementi di combustibile dipende dal tipo di reattore scelto. Il materiale fissile è contenuto in guaine (cladding) che devono avere buone qualità di trasferimento di calore e bassa sezione d'urto di assorbimento per i neutroni. Esistono diversi tipi di combustibile nucleare: si utilizzano miscele ad alto contenuto di radionuclidi fissili (principalmente  $^{235}\text{U}$  o  $^{239}\text{Pu}$ ).

Un combustibile frequentemente utilizzato è costituito da pellet cilindriche (1 cm OD x 1 cm di altezza) di polvere pressata (o sferiche, *e.g.* TRISO o QUADRISO) e sinterizzata di ossido di uranio  $\text{UO}_2$  poste in tubi di una lega di zirconio (Zircaloy) a formare le barre di combustibile denominato UOX (Uranium OXide). Talvolta si usano altre leghe metalliche a base di Mg ed Al o acciaio (SS).

Un secondo tipo di ossido utilizzato come combustibile nucleare è il MOX (Mixed OXide) che è un miscela di diossidi di plutonio e uranio (naturale o impoverito, prodotto secondario del processo di arricchimento dell'uranio). Il combustibile di tipo MOX può in teoria contenere quantità di plutonio superiori al 50% ma questo richiederebbe la progettazione di reattori appositi. In pratica è possibile utilizzare un combustibile contenente circa il 5-7% di plutonio all'interno di reattori LWR modificati (come ne esistono in Francia, Germania, Svizzera, Belgio, Giappone) <sup>7-9</sup>. Durante il processo di produzione di tale combustibile, è fondamentale considerare il tempo trascorso tra la lavorazione e l'ultima separazione del plutonio dall'americio. Il  $^{241}\text{Pu}$  decade con un

tempo di dimezzamento di 14.4 a in  $^{241}\text{Am}$  (nuclide che decade  $\alpha$  con  $T_{1/2} = 432.2$  a <sup>5)</sup>) che emette  $\gamma$  con energia di 60 keV. Ogni anno il contenuto di  $^{241}\text{Am}$  aumenta dello 0.5%: se il plutonio è stato riprocessato molto tempo prima sono richieste schermature aggiuntive e un controllo remoto se il contenuto di  $^{241}\text{Am}$  supera il 5-6% del materiale totale. Altri tipi di combustibili nucleari sono i combustibili metallici (ad esempio UZrH utilizzato nei reattori TRIGA o i combustibili a base di attinoidi minori), combustibili ceramici (carburi di uranio come i composti UC,  $\text{U}_2\text{C}_3$ ,  $\text{UC}_2$ ) o in ultimo i combustibili liquidi (ad esempio sali fusi che vengono dissolti nel moderatore).

## 2.5 Rifiuti Nucleari o Rad-Waste

La vita del combustibile è inferiore a quella del reattore e quindi deve essere periodicamente sostituito (tradizionalmente il 33% ogni 18 mesi, anche se recentemente si tende ad utilizzare cicli di utilizzo più prolungati nel tempo): le barre con il passare del tempo diventano sempre più povere di materiale fissile e si ha un danneggiamento della struttura esterna delle barre dovuto all'alta densità di flusso di neutroni e ai processi di fissione. Il combustibile irraggiato emette grandi quantità di radiazione e di calore e va lasciato raffreddare in apposite piscine nel sito del reattore: l'acqua assicura un'adeguata schermatura della radiazione e permette la dissipazione del calore di decadimento. Dopo un adeguato tempo di permanenza nei bacini di raffreddamento (circa 7-10 anni <sup>2)</sup>), il combustibile esausto viene trasportato verso i siti di trattamento o di deposito. Le scorie nucleari vengono divise in diverse categorie in base al loro livello di radioattività <sup>7,12)</sup>:

1. Rifiuti al di sotto dei limiti imposti dalle normative: contengono una concentrazione molto bassa di radioattività: i rischi radiologici associati sono trascurabili o comunque minori di quelli associati al fondo naturale.
2. Rifiuti a basso livello (**LLW**): costituiscono circa il 90% del volume delle scorie prodotte a livello mondiale. Sono generati ad esempio da ospedali, laboratori e industrie, e comprendono carta, oggetti, indumenti usa e getta forniti durante le visite a centrali nucleari, filtri e altri materiali contaminati da piccole quantità di radionuclidi generalmente con tempi di decadimento brevi. Nonostante la loro abbondanza costituiscono solo l'1% della radioattività associata a tutti i rifiuti radioattivi.
3. Rifiuti di livello medio e/o intermedio (**ILW** e **MILW**): contengono alti livelli di radioattività e potrebbero richiedere l'uso di speciali schermature per assicurare la sicurezza del lavoratore. Contengono tipicamente materiali come resine, filtri, liquami, componenti del reattore e materiali contaminati derivanti dalle procedure di smantellamento di reattori. Generalmente i rifiuti contenenti radionuclidi con vite corte vengono bruciati ma quelli a vite lunghe sono spesso soggetti a uno smaltimento in siti profondi per tempi geologici. Rappresentano circa il 7% del volume e circa nel 4% della radioattività.

4. Rifiuti di alto livello (**HLW**): sono in materiali che richiedono isolamento permanente dall'ambiente, derivano dalle centrali nucleari, dal riprocessamento del combustibile nucleare o dalla produzione di armi nucleari. Gran parte dei rifiuti HLW creati dal Progetto Manhattan sono tuttora stoccati in depositi sotterranei in attesa di essere vetrificati: i fondi per il riprocessamento non erano stati stanziati nel programma originale del progetto. Nonostante la quantità di HLW sia piccola rispetto al volume totale prodotto dal ciclo nucleare, contiene circa il 95% della radioattività. I rifiuti HLW hanno un alto livello di radioattività e sono estremamente caldi (sia dal punto di vista radioattivo, sia termico): richiedono schermature speciali durante il trasporto e la manipolazione.

### 2.5.1 Composizione del combustibile esausto

Due sono i parametri principali che determinano la composizione del combustibile esausto:

1. **Burn-up o bruciamento:** è il numero di atomi di combustibile hanno generato energia liberata in calore dopo aver subito fissione in una unità di combustibile nucleare. L'unità di misura è il GW.d.MTU<sup>-1</sup>.

Un alto burn-up comporta minori periodi di interruzione della produzione di energia e permette di aumentare il fattore di carico della centrale, si riduce il numero di elementi di combustibile da riprocessare ma aumenta la presenza di prodotti di fissione, plutonio e attinoidi nelle scorie che quindi diventano più radiotossiche (confrontare la massa dei vari nuclidi prodotti per due diversi burn-up con combustibile formato da UOX nella TAB. 2 e nella TAB. 3).

2. **Spettro neutronico del reattore:** dipende principalmente dal tipo di reattore in esame, include l'energia (neutroni termici o veloci), la densità di flusso dei neutroni (numero di neutroni per unità di area e di tempo), tipo di moderatore usato.

All'interno del combustibile esausto si trova una grande varietà di specie nucleari:

- Prodotti di fissione (TAB. 2): costituiscono circa il 3 - 4% del combustibile esausto.
- Radioisotopi di plutonio: costituiscono circa l'1% del volume totale del combustibile esausto.
- Attinoidi minori (TAB.3): gli attinoidi minori (Np, Am, Cm) sono circa lo 0.1% del volume totale. La sequenza di catture neutroniche che portano alla produzione di attinoidi minori è riportata in FIG. 7.
- Radioisotopi di uranio (<sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U principalmente ma anche <sup>232</sup>U, <sup>233</sup>U, <sup>234</sup>U, <sup>236</sup>U): rappresentano circa il 95% del combustibile esausto di un reattore LWR <sup>2</sup>).

**TAB. 2:** Caratteristiche di alcuni prodotti di fissione a lungo  $T_{1/2}$ <sup>5,10,13-15</sup>.

Nuclide	$T_{1/2}$	Principale radiazione emessa	UOX 41.2 GW.d.t <sup>-1</sup> (kg/tHM)	UOX 50 GW.d.t <sup>-1</sup> (kg/tHM)	$E_{50}^{imp}$ (10 <sup>-8</sup> Sv.Bq <sup>-1</sup> )		
					< 1 a	adulti	lavoratori
<sup>93</sup> Zr	1.5·Ma	$\beta$	0.87	1.05	0.12	0.11	0.028
<sup>99</sup> Tc	0.21·Ma	$\beta$	1.00	1.2	1.0	0.064	0.078
<sup>107</sup> Pd	6.5·Ma	$\beta$	0.27	0.34	0.044	0.0037	0.0037
<sup>126</sup> Sn	0.2345·Ma	$\beta$	0.03	0.03	5.0	0.47	0.47
<sup>129</sup> I	15.7·Ma	$\beta$	0.21	0.26	18	11	11
<sup>135</sup> Cs	2·Ma	$\beta$	0.46	0.59	0.41	0.20	0.20

**TAB. 3:** Parametri di base per i radionuclidi di uranio, plutonio e attinoidi minori<sup>2,9)</sup>.

Nuclide	$T_{1/2}$	Principale radiazione emessa	UOX 41.2 GWd.t <sup>-1</sup> (kg/tHM)	UOX 50 GWd.t <sup>-1</sup> (kg/tHM)	MOX 43 GWd.t <sup>-1</sup> (kg/tHM)	$E_{50}^{imp}$ (10 <sup>-8</sup> Sv.Bq <sup>-1</sup> )	
						< 1 a	adulti
<sup>235</sup> U	703.8·Ma	$\alpha$	6.6	6.5	N/A	35	4.7
<sup>238</sup> U	4.468·Ga	$\alpha$	938	929	N/A	34	4.5
<sup>237</sup> Np	2.144·Ma	$\alpha, \gamma$	0.55	0.71	0.16	200	11
<sup>238</sup> Pu	87.74 a	$\alpha, \gamma$	0.27	0.42	2.5	400	23
<sup>239</sup> Pu	24.11·ka	$\alpha$	5.9	6.2	21.5	420	25
<sup>240</sup> Pu	6.563·ka	$\alpha$	2.6	2.9	17.9	420	25
<sup>241</sup> Pu	14.35 a	$\alpha, \beta, \gamma$	1.4	1.5	8.3	5.6	0.48
<sup>242</sup> Pu	375.0·ka	$\alpha$	0.74	0.95	7.2	400	24
<sup>241</sup> Am	432.2 a	$\alpha$	0.34	0.38	3.0	370	20
<sup>243</sup> Am	7.37·ka	$\alpha$	0.19	0.28	1.9	360	20
<sup>243</sup> Cm	29.1 a	$\alpha$	< 10 <sup>-3</sup>	< 10 <sup>-3</sup>	0.014	320	15
<sup>244</sup> Cm	18.1 a	$\alpha$	0.056	0.098	0.8	290	12
<sup>245</sup> Cm	8.5·ka	$\alpha, \gamma$	0.004	0.007	0.1	370	21
<sup>246</sup> Cm	4.73·ka	$\alpha$	< 10 <sup>-3</sup>	0.002	0.006	370	21

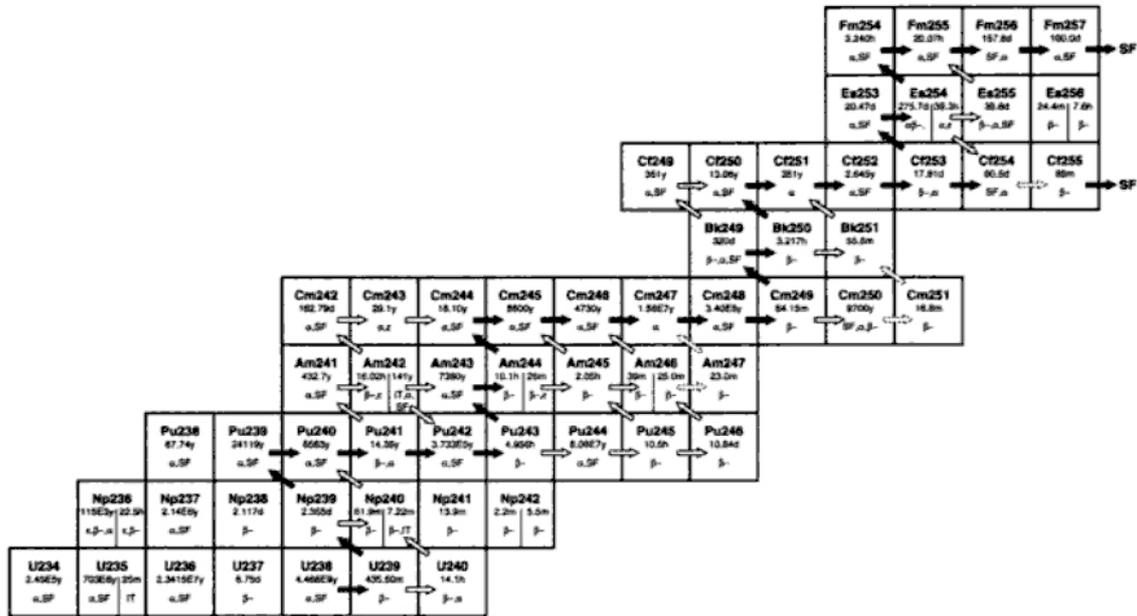


FIG. 10: Sequenza di catture neutroniche e decadimenti di importanza per la produzione di attinoidi minori in un reattore nucleare <sup>11)</sup>.

### 2.5.2 Inventario Radiotossicologico

L'inventario radiotossicologico è la *misura della dose equivalente* a cui è esposta una persona a seguito dell'incorporazione di una data quantità di un elemento radioattivo. Questo parametro dipende dalle caratteristiche fisiche e chimiche del radionuclide in esame (quali tempo di dimezzamento, numero atomico, forma chimica), ma anche dalla modalità di incorporazione all'interno del corpo umano (per via inalatoria, attraverso ferite o per ingestione) e dai modelli usati per descrivere la permanenza del nuclide all'interno degli organi (uptake, clearance).

La dose assorbita viene corretta per un fattore di peso che tiene conto della qualità della radiazione che impartisce la dose, denominato  $\omega_R$ . La dose equivalente è dunque definita come:

$$H_T = \sum_R \omega_R D_{T,R} \quad (2.6)$$

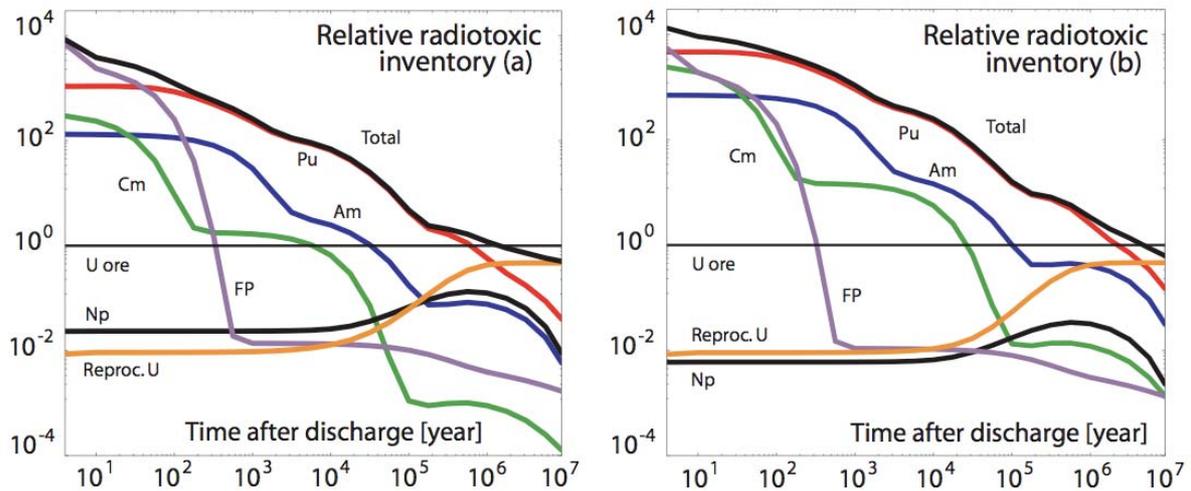
Viene definita *dose efficace*, la dose equivalente moltiplicata per un fattore di peso  $\omega_T$  che rappresenta il contributo dell'organo in esame al *detrimento totale* dovuto agli effetti stocastici a seguito di panirraggiamento:

$$E = \sum_T \omega_T H_T \quad (2.7)$$

Considerando un'esposizione a corpo intero per *un periodo di 50 anni*, si definisce *dose efficace impegnata* (Committed Effective Dose) [7]:

$$E_{50} = \sum_T \omega_T H_T^{50} \quad (2.8)$$

I coefficienti e i limiti annuali di intake (ALI) sono riportati in diverse direttive dell'Unione Europea e pubblicazioni ICRP <sup>13-15</sup>.

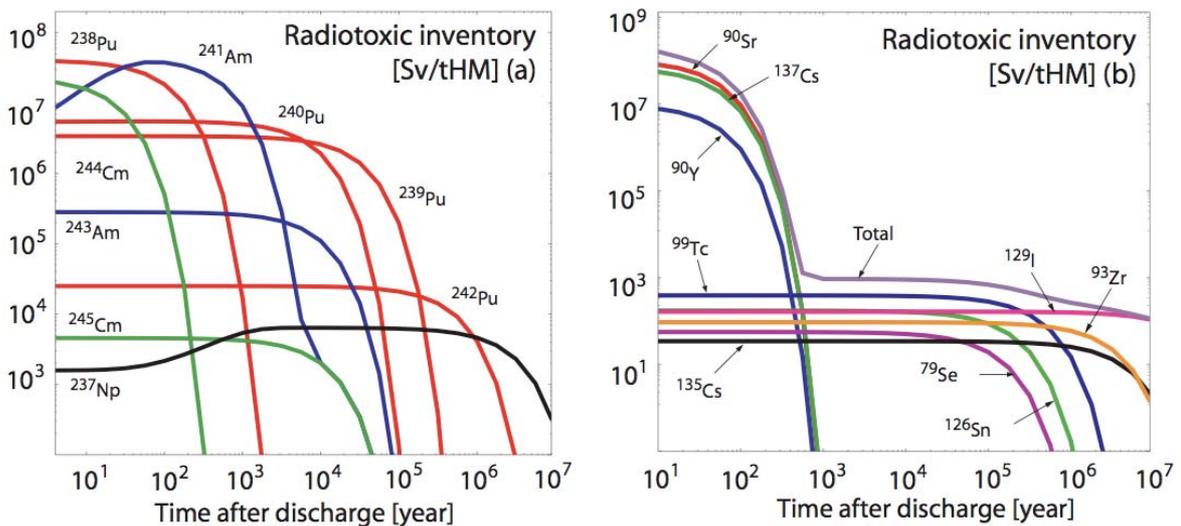


**FIG. 11:** Inventario radiotossicologico in funzione del tempo per combustibile esausto di tipo UOX (a) e MOX (b). Il valore  $10^0 = 1$  indicato nella figura come “U ore” rappresenta il livello di radioattività dell’uranio naturale usato per fabbricare il combustibile appena estratto dalla miniera. Il burn-up considerato per il combustibile UOX è di  $41.2 \text{ GW.d.tHM}^{-1}$ , con arricchimento in  $^{235}\text{U}$  al 3.7%, mentre per il combustibile MOX il burn-up è  $33.5 \text{ GW.d.tHM}^{-1}$  con un contenuto di plutonio del 5.3% (fabbricato dopo 3 anni a partire da combustibile UOX esausto) <sup>6</sup>.

L’inventario radiotossicologico relativo al combustibile UOX esausto (FIG. 11) per i primi 40 anni è dominato dai prodotti di fissione con tempi di dimezzamento dell’ordine di 30-50 anni che rappresentano il principale impedimento nella progettazione di un deposito per le scorie: questo dipende dall’intensità della radiazione gamma o beta emessa (e dal calore di conseguenza generato) dal decadimento dei prodotti di fissione a breve tempo di dimezzamento, tra cui  $^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Y}$  (decade  $\beta^-$  con  $T_{1/2} = 28.64 \text{ a}$ ) e  $^{137}\text{Cs}$  (decade  $\beta^-$  con  $T_{1/2} = 30.17 \text{ a}$  <sup>5</sup>).

Dopo circa 100 anni, l'emissione di calore da parte delle scorie proviene principalmente (circa al 99% <sup>2)</sup>) dagli attinoidi minori. Il contributo degli isotopi del plutonio e dei suoi figli inizia a dominare l'inventario radiotossico fino a raggiungere dopo un tempo dell'ordine del milione di anni il livello dei minerali estratti contenenti uranio usati per produrre il combustibile.

Nel caso del combustibile esausto di tipo MOX, l'inventario radiotossico è circa 4 volte superiore a quello del combustibile UOX. Il plutonio è predominante insieme ai suoi figli (<sup>241</sup>Am) da 50 anni dopo lo scarto del combustibile fino a circa 1.5 milioni di anni, tempo in cui raggiunge il livello di radiotossicità dell'uranio naturale (FIG. 12).



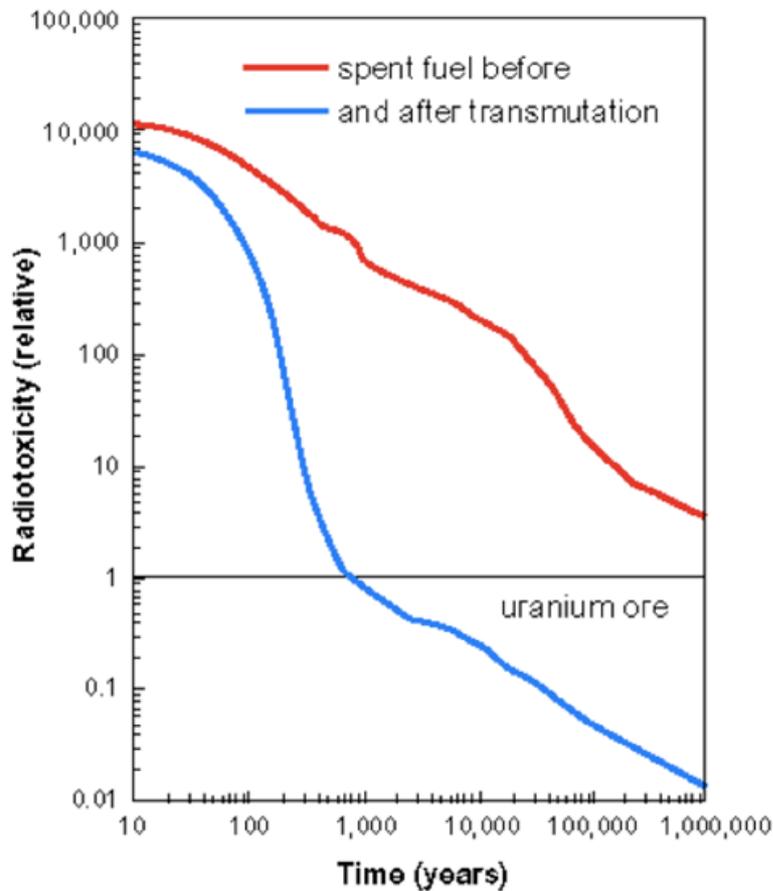
**FIG. 12:** Inventario radiotossicologico per elementi transuranici (a) e prodotti di fissione (b) nel combustibile UOX esausto proveniente da un LWR con burnup di 41.2 GW.d.tHM-1 <sup>6)</sup>.

### 2.5.3 Chiusura del ciclo del combustibile

Per la gestione dei rifiuti, vengono utilizzati due principi generali:

1. **Concentrare** e isolare i rifiuti.
2. **Diluire** e disperdere nell'ambiente (in modo che la concentrazione del rifiuto sia inferiore alla soglia regolamentata).

Nel caso di rifiuti nucleari però, vi è una terza opzione che consiste nell'isolare i rifiuti radioattivi in siti appositamente designati e aspettare il loro decadimento, finché il livello di radioattività del materiale è sceso al di sotto di un valore più gestibile o addirittura fino al livello di fondo naturale.



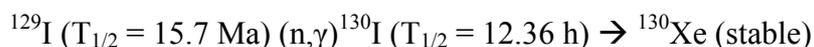
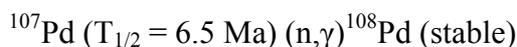
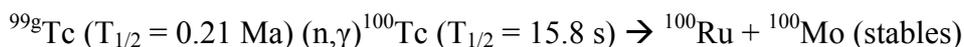
**FIG. 13:** Radiotossicità derivante da 1 tonnellata di combustibile nucleare esausto. Con un'efficienza di partizione del 99.9% dei prodotti a lunga vita dai rifiuti seguita da trasmutazione, il livello di radiotossicità di riferimento può essere raggiunto entro 700 anni [5].

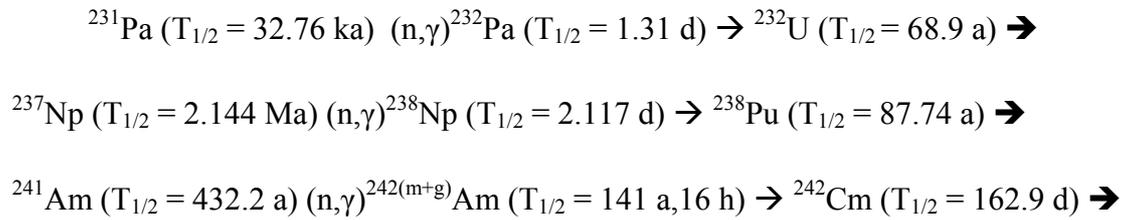
Il deposito deve soddisfare requisiti di sicurezza per tempi lunghi (qualche centinaia di migliaia di anni), dati i tempi di dimezzamento dei nuclidi presenti nelle scorie. Diverse sono state le obiezioni ai siti di stoccaggio geologico proposti sia negli Stati Uniti sia in Europa: le aree designate devono presentare attività sismica e vulcanica nulle, alta stabilità geologica, lontananza da falde acquifere, fiumi, laghi, da centri abitati o da zone dove si prevede uno sviluppo urbano, deve essere lontano da giacimenti di gas o petrolio. Il deposito delle scorie HLW è un problema urgente di natura politico-economica: è evidente la necessità di una comunità scientifica che dimostri la fattibilità e dia garanzie della sicurezza di depositi di tali rifiuti e sviluppi normative adeguate per regolamentare tali depositi. Molti paesi dell'Unione Europea, gli USA e il Giappone hanno programmi dedicati allo stoccaggio delle scorie nucleari in depositi geologici.

Pochi Paesi però hanno iniziato o solo approvato la costruzione di un deposito definitivo o a tempo determinato per le scorie nucleari: un esempio è il deposito della Yucca Mountain, Nevada, USA. Per altri paesi ad alta densità di popolazione o con alta attività sismica (come Corea o Giappone) tuttavia, è difficile localizzare località adatte per il deposito definitivo delle scorie nucleari. Inoltre vanno valutate per periodi lunghi la resistenza alla corrosione delle barriere, la migrazione dei radionuclidi nell'ambiente e aspetti non modellizzabili quali l'intrusione umana. Perciò trattamenti che consentono di ridurre il volume delle scorie da stoccare presentano diversi vantaggi nell'ambito del deposito a lungo termine, e rappresentano anche un bene di valore riutilizzabile nel processo di produzione di energia.

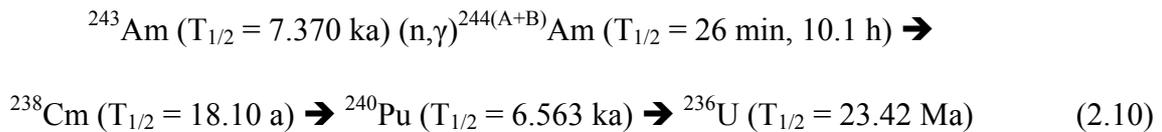
Un tipo di riprocessamento attualmente in utilizzo è la separazione dal combustibile esausto di uranio e plutonio: il volume delle scorie HLW da stoccare viene significativamente ridotto dato che questi due elementi costituiscono circa il 97% della massa del combustibile esausto. Per ragioni di proliferazione nucleare, e per la facilità di reperimento dell'uranio, gli USA però non hanno predisposto questo tipo di programma di riprocessamento. Paesi che invece riprocessano le scorie esauste sono il Regno Unito (Sellafield, THORP), la Francia (La Hague, Marcoule) e la Russia (Chelyabinsk-Mayak).

La terza opzione denominata Advanced fuel cycle (AFC) consiste nella rimozione selettiva di uranio, plutonio, attinoidi minori e alcuni prodotti di fissione dal combustibile esausto prima della vetrificazione e dello stoccaggio delle scorie HLW che sarebbero dunque ridotte in volume e radiotossicità (FIG. 2). Questo processo è chiamato partizione. Successivamente tali elementi vengono, per mezzo di opportune reazioni nucleari, trasformati in elementi meno radiotossici o addirittura stabili, nel processo denominato trasmutazione. Nel report della Nuclear Energy Agency del 2002 <sup>16)</sup>, viene indicato che, con un'efficienza di separazione dell'ordine del 99.9% delle scorie a lunga vita media, dopo la trasmutazione il livello di radiotossicità dell'uranio naturale viene raggiunto entro circa 700 anni (FIG. 11). Questo dato è da comparare con il valore di diverse centinaia di migliaia di anni nel caso di combustibile direttamente stoccato dopo l'utilizzo. Nel caso in cui vengano inseriti negli schemi di partizione e trasmutazione solo uranio e plutonio invece, la radiotossicità a lungo termine viene ridotta solo di un fattore cinque.





Risulta evidente dalle reazioni (2.9) che molti radionuclidi a lunga emivita possono essere trasmutati o in nuclide a emivita più breve o addirittura stabili. Ovviamente, se il radionuclide a emivita più breve decade a sua volta su un radionuclide a emivita molto lunga, come nell'eq. (2.10), il problema iniziale non si ripresenta, perché ogni qual volta un radionuclide a emivita molto lunga viene caricato da uno a vita più breve, l'attività del secondo  $A_B = N_B \cdot \lambda_B$  aumenta molto lentamente, spesso in maniera trascurabile, seguendo la legge limite del non-equilibrio (*i.e.* mentre ovviamente il numero di atomi del radionuclide a lunga emivita aumenta molto più rapidamente, in accordo con la legge limite del non equilibrio:  $N_B \rightarrow N_A \cdot \lambda_A / \lambda_B = N_A \cdot t_B / t_A$ ).



### 3 PARTIZIONE (P)

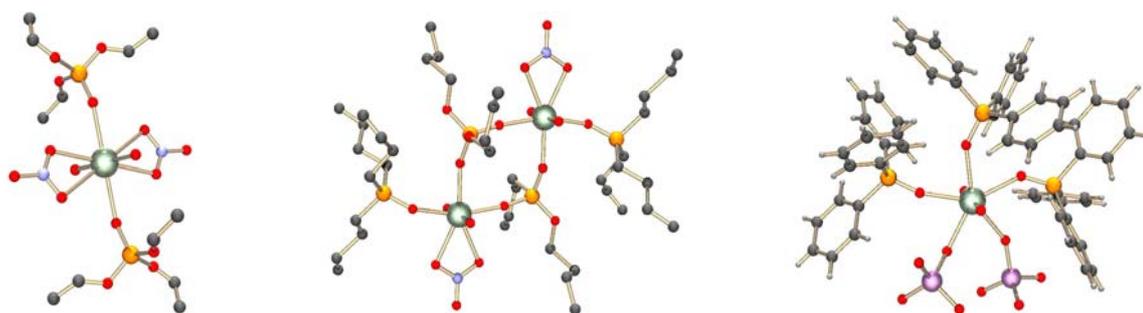
Per evitare la creazione di nuovi elementi transuranici nel corso della trasmutazione, le varie specie nucleari all'interno delle scorie vanno separate. Plutonio e uranio vengono inizialmente separati dagli altri radionuclidi presenti nelle scorie nucleari; in seguito devono essere separati gli attinoidi minori (curio, americio, nettunio). Due sono gli approcci considerati per la separazione: **processi acquosi e processi non acquosi**.

#### 3.1 Processi Acquosi

Il problema da risolvere è quello di trovare un solvente organico che permetta di separare gli attinoidi minori dai lantanoidi (la serie elettronica 4f dei radionuclidi appartenenti alla categoria dei prodotti di fissione): essi catturano efficacemente i neutroni e questa è una caratteristica non desiderata durante il processo di trasmutazione.

Le specifiche del U e del Pu purificati per essere riciclati sono molto stringenti. Ad un  $t_{\text{cooling}}$  di circa 1 anno, l'attività dei PF deve essere ridotta di un fattore  $10^7$  ed il contenuto di U nel Pu deve essere inferiore di un fattore  $\sim 2 \cdot 10^4$ , rispetto ai più puri U e Pu di grado nucleare (per *UOT ciclo*). L'ampio numero di elementi chimici coinvolti (PF, An, prodotti di attivazione e corrosione) rende la separazione radiochimica una procedura di estrema difficoltà. Complicazioni ulteriori vengono generate dalla decomposizione radiolitica e da

rischi di criticità, nonché dalla necessità di compiere tutte le fasi di riprocessamento mediante sistemi remotizzati in ambienti pesantemente schermati dalle radiazioni, sotto intensive disposizioni e controlli di Fisica Sanitaria e Radioprotezione. Alcuni vantaggi sono costituiti dalla relative stabilità dello stato di ossidazione (VI) del U e dalla stabilità di numerosi prodotti di fissione, e per altro verso dalla instabilità redox di Pu(III, IV e VI)<sup>17)</sup>. Nei processi più datati nel tempo, veniva isolato il solo Pu mediante precipitazione negli stati di ossidazione ridotti come PuF<sub>3</sub> o PuF<sub>4</sub> assieme a tutti i fluoruri insolubili dei PF. Questa fase veniva seguita da un secondo stadio, dissolvendo il precipitato mediante ossidazione del Pu a Pu(IV) e successive nuova precipitazione dei fluoruri degli altri radioelementi, lasciando nel surnatante il Pu relativamente puro. Nello stadio finale il Pu(IV) veniva ridotto e ri-precipitato come PuF<sub>3</sub>. Questo principio viene adottato anche per i fosfati di Pu(III) e Pu(IV), ma non di U(VI) che non forma fosfati insolubili. Poiché il Bi(III) era impiegato come carrier iso-dimorfo per la precipitazione, la procedura viene chiamata *bismuth phosphate process* e tale principio è tuttora mantenuto nella tecnologia attuale. Nessun altro elemento presenta lo stesso insieme di proprietà redox e radiochimiche del Pu, ma alcuni elementi si comportano come il Pu(III) (e.g. i Ln), ed alcuni come il Pu(IV), e.g. Zr e altri come il catione plutonile Pu<sup>(VI)</sup>O<sub>2</sub><sup>2+</sup>, e.g. U(VI). Sono stati testati numerosi agenti redox, e.g. K<sub>2</sub>Cr<sub>2</sub>O<sub>7</sub> a PuO<sub>2</sub><sup>2+</sup>, NO<sub>2</sub> a Pu(IV), Fe(III) sulfamato, idrazina e U(IV) a Pu(III). Questa tecnica di precipitazione fu rimpiazzata alla fine degli anni 40 dall'estrazione con solventi, durante la quale il combustibile viene disciolto in acido nitrico HNO<sub>3</sub> e posto a contatto con un solvente organico, il quale estrae selettivamente gli elementi desiderati.



**FIG. 14:** Sx) struttura del  $[(U^{(VI)}O_2)(NO_3)_2] \cdot TEP_2$ ; Centro) struttura del  $[(U^{(VI)}O_2)(NO_3)_2] \cdot DBP_2 \cdot TBP_2$ ; Dx) struttura del  $[(U^{(VI)}O_2)(NO_3)_2] \cdot TBPO_3$ , in questo caso gli anioni sono collocati nella prima sfera di coordinazione del metallo. Notazione: **TEP** trietil-fosfato, **DBP** dibutil-fosfato, **TBP** tributil-fosfato, **TBPO** tributil-fosfano-ossido (gli atomi di U sono le sfere più grandi, in ordine di dimensioni decrescenti: P, N, C, O and H).

Il primo solvente utilizzato fu il metil-isobutil-chetone (MIBK or Hexone); tale solvente forma composti di coordinazione con composti insaturi coordinativamente quali i nitrati degli attinoidi, *e.g.*  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4\text{S}_2$ , dove **S** rappresenta la molecola addotta.

Nonostante le innumerevoli possibilità mostrate in FIG. 14, attualmente il tri-buttil-fosfato (**TBP**), è l'estrattore d'impiego in tutti gli impianti di riprocessamento; da solo agisce anche come complessante e viene utilizzato normalmente in soluzione al 30% in kerosene. Il TBP forma le basi del processo PUREX (Pu U Redox EXtraction). Altri agenti chelanti, come il tenoil-trifluoroacetone (HTTA), formano complessi in maniera molto selettiva con  $\text{Pu}^{4+}$  e  $\text{UO}_2^{2+}$ , mentre l'acido di-2-etil-esil-fosforico (**HDEDP**) è stato utilizzato in quanto è molto selettivo per la separazione dei radiolantanoidi, come cationi  $\text{Ln}^{3+}$ . Sia le ammine terziarie ( $\text{R}_3\text{N}$ ) quali la tri-ottilammina (TOA) e le tri-alcilammina ossido ( $\text{R}_3\text{NO}$ ) come la tri-normal-ottilammina ossido (TNOA) ed i fosfani terziari ( $\text{R}_3\text{P}$ ) ed i loro ossidi ( $\text{R}_3\text{PO}$ ), come il tri-ottil-fosfano (TOP) ed il tri-ottil-fosfano ossido (TPOA), sono state utilizzate in varie fasi del riprocessamento <sup>17)</sup>. Tali composti mostrano tra l'altro una spiccata resistenza alla radiolisi. Le ammine formano metallo-complessi solubili carichi negativamente (usati nella purificazione dello U). L'impiego infine del processo **PUREX** con un agente complessante secondario, incrementa fortemente il fattore di decontaminazione, **DF** (*i.e.* rapporto fra le concentrazioni dello ione metallico prima e dopo l'estrazione).

### 3.1.1 Processo PUREX

Una tecnica usata nel riprocessamento industriale è il processo PUREX (Plutonium Uranium Recovery by EXtraction) sviluppato negli anni '50 che utilizza composti organici del fosforo. Questa tecnica, sviluppata sulla base di esistenti tecniche di separazione usate in ambito militare, è usata su scala industriale in Francia (La Hague, che ha una capacità di riprocessamento di 1 600 tHM.a<sup>-1</sup>), Regno Unito (Sellafield, 680 tHM.a<sup>-1</sup>). Altre strutture sono in fase di messa a punto in Giappone, India e Russia <sup>9)</sup>.

Il combustibile esausto viene dissolto in acido nitrico. In seguito uranio e plutonio sono estratti tramite una soluzione al 30% di tributitil-fosfato (TBP) in cherosene che estrae cationi nello stato di ossidazione (IV) o (VI): uranio e plutonio, che in acido nitrico esistono principalmente nello stato di ossidazione (VI) e (IV) rispettivamente, si legano al TBP formando gli ioni complessi metallo-tributitil-fosfato, mentre gli altri elementi presenti in soluzione restano nella fase acquosa nitrica. Composti volatili o gassosi quali iodio, xenon e kripton sono rilasciati nei filtri assoluti. In seguito vengono separati uranio e plutonio per mezzo di un'estrazione con una soluzione acquosa di sali di ferro(II) o uranio(IV).

Un problema più complesso è quello di separare Am e Cm dai rifiuti nucleari e in secondo luogo di separarli tra di loro: infatti entrambi hanno natura chimica trivalente e sono simili ai prodotti di fissione appartenenti alla famiglia dei lantanoidi che hanno una

concentrazione 10-20 volte maggiore a quella degli attinoidi minori. È necessario separare gli attinoidi minori dai lantanoidi per evitare che questi ultimi si comportino come veleni, assorbendo durante la trasmutazione gran parte dei neutroni incidenti. La separazione di Am e Cm dai lantanoidi è perciò un argomento di ricerca molto interessante, che ha portato allo sviluppo di diversi processi di partizione di cui si parlerà in seguito.

Infine la separazione dei più importanti prodotti di fissione può essere ottenuta tramite modificazioni del processo PUREX con efficienze superiori al 99% per lo iodio-129 e di circa il 99.8% per il cesio. Un problema connesso con questa procedura è l'ingente quantità di rifiuti a basso livello di radioattività che consiste di radionuclidi con lungo tempo di dimezzamento. Un'alternativa è fornita dall'utilizzo di reagenti che possono essere successivamente bruciati, contenenti solo carbonio, idrogeno, ossigeno e azoto: per questo motivo sono chiamati CHON. Questi metodi sono stati dimostrati in laboratorio ma vanno anche applicati su scala industriale.

Esistono delle varianti del processo PUREX che consentono di ridurre il rischio di proliferazione: un processo di questo tipo consiste nella co-estrazione degli attinoidi. Il processo denominato **COEX**, sviluppato in Francia, non separa completamente il plutonio dall'uranio. Al termine del processo, la frazione separata di plutonio e uranio viene riprocessata per ottenere combustibile MOX per reattori LWR, mentre rimane un rifiuto liquido altamente radioattivo e molto caldo che contiene circa il 3% del combustibile iniziale con prodotti di fissione e attinoidi minori. Tale scarto deve essere condizionato e stoccato dopo vetrificazione in un deposito.

Nell'ambito del programma internazionale **GNEP** (Global Nuclear Energy Partnership) negli Stati Uniti si stanno sviluppando altri processi per separare solamente l'uranio dalle scorie nucleari, mentre il plutonio e gli altri elementi transuranici restano all'interno degli scarti radioattivi che vengono riciclati in un secondo momento nei reattori veloci di *IV generazione*. Anche in questo caso la logica è ridurre fortemente il rischio di proliferazione, dando la possibilità a paesi in via di sviluppo di produrre parte dell'energia elettrica con centrali nucleari senza permetter loro di utilizzare tecnologie di arricchimento o separazione delle scorie per ottenere  $^{235}\text{U}$  o  $^{239}\text{Pu}$ , materiali fissili in uso nell'industria militare per la produzione di ordigni.

### 3.1.2 *Processo TRUEX*

All'inizio degli anni '80 nel laboratorio ANL (Argonne National Laboratory, Illinois) venne sviluppato un processo, denominato TRUEX (TRAns Uranium EXtraction), che consentiva di separare efficientemente gli An(III) e Ln(III) dai rifiuti ad alto livello di radioattività provenienti da reattori nucleari. Questo processo utilizza un derivato di un fosfato ossido, **CMPO** (normal-octil-fenil-di-isobutil-carbamoil-metil-phosphano ossido), per co-estrarre gli An(III) e Ln(III) da una soluzione di acido nitrico. E' possibile dunque applicare questa procedura direttamente ai rifiuti provenienti dal processo di estrazione

PUREX. Diverse sono però le controindicazioni all'utilizzo di questa tecnica: innanzitutto alcuni dei prodotti di degradazione radiolitica del solvente scambiano cationi in soluzione e quindi impediscono la separazione di An(III) e Ln(III); inoltre U(VI) e Pu(IV) presentano un'alta affinità con il composto CMPO e sono difficilmente estraibili dal solvente; il volume dei rifiuti secondari è grande ed, in ultimo, è difficile separare i lantanoidi dagli attinoidi minori. Per separare gli An(III) dai Ln(III) sono disponibili diversi sistemi, quali ad esempio <sup>16)</sup>:

**DIDPA:** processo sviluppato in Giappone: usa acido DIDPA (acido di-isodecil-fosforico) 0.5M e TBP 0.1M. Lantanoidi e attinoidi minori sono estratti dal DIDPA e in seguito viene selettivamente *strippato* An(III). Sono state osservate efficienze superiori al 99.9% per la separazione degli attinoidi e successivamente di Am e Cm.

**TALSPEAK:** sviluppato nel laboratorio di Oak Ridge negli anni '60: è simile al processo DIDPA, viene usato come estraente l'acido HDEHP (acido di-2-etil-esil-phosforico)

**TRPO:** sviluppato in Cina (Tsinghua University) alla fine degli anni '80. Il solvente è una miscela di TRPO (tri-alcil-phosfano ossido) solubile in diluenti di idrocarburi alifatici. L'affinità dell'estrattore TRPO per An(III) e Ln(III) è alta per basse concentrazioni di acido nitrico (1 M), mentre è bassa per alte concentrazioni di acido nitrico (5 M).

**CYANEX301:** acido *bis*-(2,4,4-trimetil-fenil)ditio-fosfinico. Il prodotto commerciale dopo essere stato purificato mostra una grande selettività nella separazione di An(III)/Ln(III), a valori di pH tra 3.5 e 4.

**DIAMEX** (DIAMide EXtraction): sviluppato da Regno Unito e Francia a partire dagli anni '90. E' basato sull'utilizzo di estraenti a base di malonammide che sono totalmente inceneribili. Viene usato come reagente DMDBTDMA (di-metil-di-butyl-tetradecil-malonammide) in una soluzione con un solvente alifatico. Presenta il vantaggio di non produrre rifiuti secondari solidi perché, dopo l'estrazione, essi vengono distrutti totalmente tramite incenerimento, producendo solo diossido di carbonio ed acqua.

**SESAME:** sviluppato da Francia e Giappone a partire dagli anni '90: in condizioni di forte ossidazione lo Am(III) è ossidato in Am(IV) e poi separato dal Cm(III) per mezzo di estrazione liquido/liquido.

Durante la Dimostrazione Internazionale del Ciclo Globale degli Attinoidi **GACID**, (Francia, USA, Giappone), è stato mostrato il sistema **GANEX**, in cui sono separati uranio

e plutonio, ma anche gli attinoidi minori (che possono diventare combustibile nucleare per reattori di *IV Generazione*) ed una parte del contenuto di lantanoidi.

### 3.1.3 Processo UREX+

Una promettente variante dei processi PUREX è il processo UREX (URanium EXtraction): uranio e tecnezio vengono co-estratti per mezzo di TBP da una soluzione di acido nitrico contenente il combustibile esausto proveniente da reattori LWR. Alla soluzione viene aggiunto l'acido acetil-idrossammico (AHA) che impedisce l'estrazione di plutonio e trattiene alcuni prodotti di fissione (per esempio Mo, Zr, Ru) che potrebbero contaminare la fase organica. Il tecnezio viene estratto in una fase acquosa molto acida, l'uranio rimasto nella fase organica può essere separato, mentre lo iodio è rilasciato sotto forma di gas nella fase di dissoluzione del combustibile esausto e viene quindi separato tramite filtrazione. L'uranio è separato con efficienza del 99.9%, mentre il tecnezio con efficienza del 95%. I liquidi di rifiuto contengono tutti gli elementi transuranici e i prodotti di fissione tranne tecnezio e gli elementi volatili o gassosi: iodio, xenon e kripton. A partire da questo sistema è stato sviluppato un processo denominato UREX+ che, per mezzo di cinque step di estrazione, consente di:

1. Separare Tc e U (processo UREX classico).
2. Separare Cs e Sr (con efficienza almeno del 97%).
3. Separare Pu e Np (con efficienza almeno del 99%).
4. Separare Am, Cm e prodotti di fissione di terre rare (TRUEX).
5. Separare Am e Cm (con efficienza superiore al 99.5%) dai prodotti di fissione (CYANEX).

Se risulterà possibile utilizzarlo su scala industriale, tale sistema presenta il vantaggio di poter separare tecnezio e iodio per uno stoccaggio sicuro, l'uranio è separato in forma di  $U_3O_8$  per essere riutilizzato o stoccato come rifiuto LLW, Np e Pu sono utilizzabili per la produzione di combustibile MOX, Am e Cm possono essere trasmutati in reattori veloci e i restanti radionuclidi possono essere stoccati nei depositi.

Tutti questi processi però, pur mostrando numerosi vantaggi, presentano due problemi principali: nei reagenti sono contenute molecole poco resistenti al danneggiamento causato dalla radiazione ionizzante (che provoca la radiolisi delle molecole organiche) e, a causa della necessità di aggiungere diversi cicli per la separazione dei vari radionuclidi, generano grandi quantità di rifiuti secondari da gestire.

## 3.2 Processi Non Acquosi

Per risolvere i problemi connessi con la separazione per mezzo di metodi acquosi, sono stati sviluppati nuovi processi non acquosi, chiamati *pirochimici*: in questi processi

sono usati come carrier metalli, ossidi e sali.

I *processi pirochimici* sono basati sulla dissoluzione del combustibile esausto in sali fusi (cloruri, fluoruri con temperature di 700-1 000 K). Grazie alla resistenza dei sali fusi alla radiazione, è possibile diminuire i tempi di raffreddamento delle scorie nucleari e riprocessare combustibile ad alto contenuto di attinoidi minori. Un altro vantaggio è rappresentato dal fatto che potenzialmente producono minor quantità di rifiuti secondari ed in forma più adatta ad uno stoccaggio a lungo termine. Inoltre l'impianto ha dimensioni ridotte e questo si traduce in centrali per il riprocessamento più piccole ed in una diminuzione dei costi. Oltre alla competitività economica, processi di questo tipo sono in grado di contribuire alla non proliferazione di armamenti nucleari.

Bisogna considerare però che la separazione avviene in molti passaggi perché il fattore di separazione per ciascun ciclo è ridotto, i processi devono avvenire in atmosfera controllata (ad esempio argon) per evitare idrolisi e reazioni di precipitazione e i solventi usati sono molto corrosivi ed ostili per l'ambiente esterno.

Già negli anni '60 in Russia vennero studiati processi pirochimici come possibilità per il riprocessamento delle scorie provenienti da reattori LWR. Venne studiata la miscela eutettica di sali fusi NaCl/KCl con combustibile fortemente irradiato composto da UO<sub>2</sub> e PuO<sub>2</sub> raggiungendo separazioni di 99.8% per il plutonio e 99.7% per l'uranio. Nel caso invece di combustibile metallico sono state raggiunte in laboratorio efficienze di separazione di 95% per l'uranio e del 99% per miscele di uranio e attinoidi minori.

Schemi di separazione non acquosi sono in studio in diversi paesi tra cui USA, Russia, Giappone e Corea. Lo schema più avanzato è in studio dal 1995 nell'Idaho National Laboratory con strumentazione disegnata, costruita ed installata nel laboratorio ANL come variazione di una tecnica usata sul combustibile prodotto dall'**EBR-II** chiamata Integral Fast Reactor (**IFR**)<sup>17)</sup>. Il combustibile esausto viene disciolto in una miscela di sali fusi LiCl/KCl e l'uranio viene raccolto su un catodo solido. Gli altri elementi rimangono nei sali fusi che vengono poi solidificati, incorporati in una matrice di zeolite incapsulata a caldo in un rivestimento ceramico, formando un rifiuto HLW da stoccare. L'uranio raccolto invece viene separato e riutilizzato.

Un'evoluzione attualmente in studio presso il laboratorio delle Argonne usa un catodo liquido di cadmio (o bismuto) in aggiunta al catodo solido su cui viene raccolto l'uranio. Il combustibile esausto dopo essere stato ridotto in piccoli frammenti di circa 6-7 mm<sup>17)</sup>, viene posto all'anodo in un cestello d'acciaio all'interno dell'*elettroraffinatore* contenente una miscela eutettica LiCl/KCl a 500°C. Viene aggiunto un ossidante (tipicamente CdCl<sub>2</sub> o UCl<sub>3</sub>) al sale prima di procedere all'elettrolisi. Con il passaggio di corrente tra anodo e catodo, l'uranio viene raccolto ad un catodo solido, mentre una miscela di plutonio, americio, curio, uranio, alcuni prodotti di fissione delle terre rare (elementi che formano composti stabili con il cloro) si dissolvono nel sale e si depositano su un catodo di cadmio (o bismuto) liquido sospeso nell'elettrolita salino. Gli altri elementi si raccolgono nel sale o nel cestino dell'anodo. Durante il processo sono emessi anche

rifiuti gassosi (T, He, Kr), rifiuti metallici (metalli nobili) e salini (elementi rimasti nell'elettrolita salino). In FIG. 15 è riportato lo schema del processo.

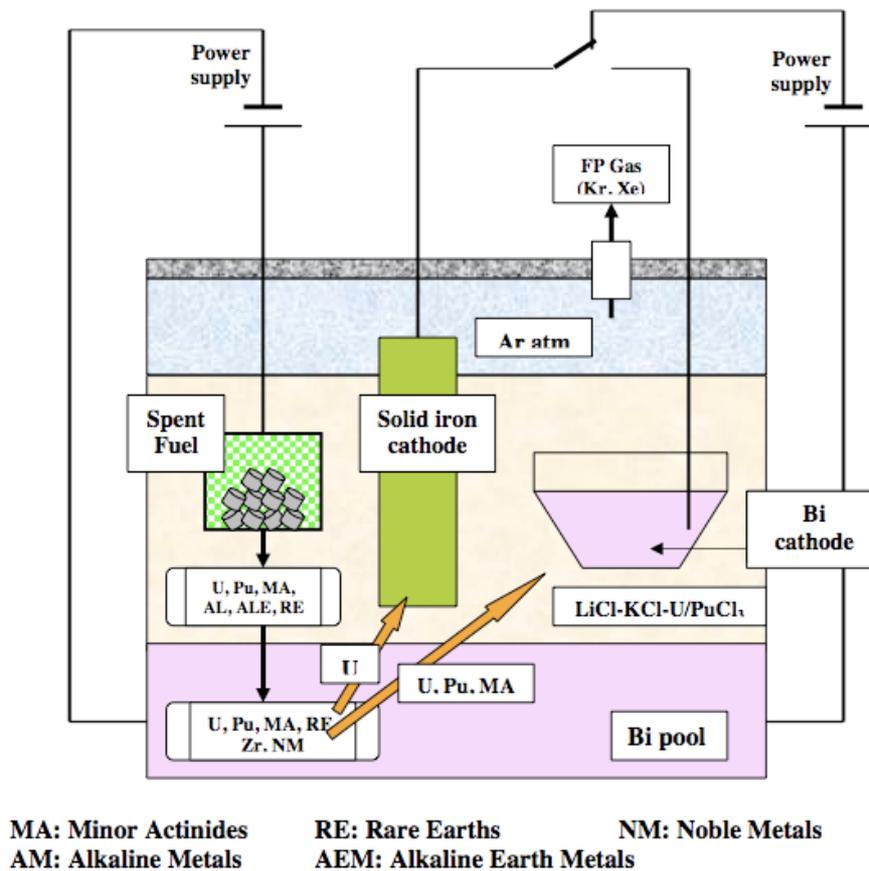


FIG. 15: Schema del processo di elettro-raffinazione delle scorie nucleari.

Gli elementi raccolti al catodo vengono processati per produrre lingotti da mandare al deposito o nuovi elementi di combustibile. Per essere compatibile con questo tipo di trattamento, il combustibile deve essere in forma metallica.

Un altro sistema *elettro-metallurgico* è stato sviluppato in Corea a KAERI (Korean Atomic Energy Institute). Questo sistema utilizza un bagno di sali fusi LiCl/Li<sub>2</sub>O ad alta temperatura che separa uranio, plutonio, altri prodotti di fissione e i lantanoidi partendo dal combustibile di ossido di uranio arricchito al 3.5% con un burnup di 43 GW.d.MtU<sup>-1</sup> dopo una permanenza nei bacini di raffreddamento di 10 anni. Con l'assistenza degli Stati Uniti, il KAERI ha costruito nel 2005 la ACPF (Advanced Spent Fuel Conditioning Process Facility), entro il 2012 ha in progetto di costruire un impianto dimostrativo ed entro il 2025 di costruire impianti per la commercializzazione.

Anche la Russia presso l'Atomic Reactors a Dimitrovgrad (RIAR) ha sviluppato

nell'ambito del programma di cooperazione dell'Unione Europea per la non proliferazione e il disarmo nella Federazione Russa un impianto pilota basato sul *piro-processamento* che utilizza combustibile per reattori veloci<sup>19-23</sup>).

#### 4 TRASMUTAZIONE

Con il termine trasmutazione si intende qualsiasi cambiamento del contenuto di nucleoni nel nucleo atomico. Nel caso particolare della trasmutazione dei rifiuti nucleari, indica la trasformazione degli attinoidi minori presenti nel combustibile esausto in prodotti di fissione e dei prodotti di fissione a lunga vita in nuclidi a vita molto più breve per mezzo di catture di neutroni, decadimenti  $\beta$  e transizioni isomeriche.

Quando si considerano sostanze radioattive all'interno di un reattore, il rateo di scomparsa di tali elementi non è più dipendente esclusivamente dalla legge di decadimento radioattivo, ma da una legge modificata che tiene in considerazione la scomparsa del nuclide dovuta alla trasmutazione. Nel caso di radionuclidi con tempo di dimezzamento medio-lungo esposti alla densità di flusso neutronico presente all'interno dei reattori, i due fenomeni vanno considerati contemporaneamente per poter prevedere la quantità di un dato radionuclide all'interno del nocciolo al tempo  $t$ . La trattazione delle equazioni differenziali per il caso di irraggiamento neutronico è stata sviluppata da W. Rubinson<sup>24,2</sup>.

Si considerino  $N$  atomi della stessa specie radioattiva con costante di decadimento  $\lambda$ , sezione d'urto totale di interazione con i neutroni  $\sigma$  in una densità di flusso neutronico  $n.v = \phi$  (neutroni  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ), dove  $n$  è la densità neutronica e  $v$  è la velocità media dei neutroni. La velocità di decadimento radioattivo o attività è  $\lambda.N(\tau)$ , il rateo di trasformazione dovuto alle reazioni con neutroni è  $n.v.\sigma.N(\tau)$  e il rate totale di trasformazione del nuclide è:

$$-\frac{dN(\tau)}{d\tau} = (\lambda + n v \sigma) N(\tau) = \Lambda N(\tau) \quad (4.1)$$

dove è stata definita la costante:

$$\Lambda = \lambda + n v \sigma = \lambda + \phi \sigma \quad (4.2)$$

Integrando l'equazione (4.1) si ottiene:

$$N = N_0 e^{-\Lambda \tau} \quad (4.3)$$

Consideriamo solamente una coppia padre – figlio: il padre scompare sia per trasmutazione sia per decadimento, secondo l'equazione (4.1):

$$-\frac{dN_1}{d\tau} = (\lambda_1 + \phi \sigma_1) N_1 = \Lambda_1 N_1 \quad (4.4)$$

Il decadimento del padre accresce il numero di radionuclidi figlio; ma il nuclide figlio scompare per decadimento e trasmutazione come nel caso del padre. L'equazione che descrive la variazione del numero di radio nuclidi figlio nel reattore è:

$$\frac{dN_2}{d\tau} = \lambda_1 N_1 - \Lambda_2 N_2 \quad (4.5)$$

In forma più generale:

$$\frac{dN_{i+1}}{d\tau} = \lambda_i N_i - \Lambda_{i+1} N_{i+1} \quad (4.6)$$

La situazione è più complessa nel caso in cui i radionuclidi non vengono prodotti solo per decadimento del padre, ma anche per reazioni di trasmutazione differenti. Viene introdotta la costante modificata  $\Lambda_1^*$  che considera solo la formazione del nuclide 2 a partire dal nuclide 1, mentre le costanti  $\Lambda_1$  e  $\Lambda_2$  includono tutte le reazioni che portano ad una diminuzione del numero di  $N_1$  e  $N_2$ . Per ogni nuclide  $i$  nella catena di reazioni mononucleari (decadimento) e binucleari (trasmutazione o reazione nucleare generica) vale la seguente relazione:

$$\frac{dN_{i+1}}{d\tau} = \Lambda_i^* N_i - \Lambda_{i+1} N_{i+1} \quad (4.7)$$

Considerando il caso particolare con condizione iniziale  $N_j^0 = 0$  (esiste anche il caso più generale, basato sulla *trattazione di Bateman*<sup>2)</sup>), cioè quando al tempo  $\tau = 0$  esiste solo il nuclide padre, la soluzione generale è data da:

$$N_n(\tau) = \Lambda_1^* \Lambda_2^* \dots \Lambda_{n-1}^* N_1^0 \sum_{i=1}^n C_i e^{-\Lambda_i \tau} \quad (4.8)$$

$$C_i = \prod_{j=1}^n \frac{1}{(\Lambda_j - \Lambda_i)} \quad (i \neq j) \quad (4.9)$$

Per un dato reattore, lo spettro neutronico è quasi costante, o viceversa si può utilizzare il suo *valor medio*  $\langle \phi \rangle = \Phi$ : la variabile che influenza il rateo di trasformazione è la densità di flusso neutronico  $\Phi$ : per avere un rateo di scomparsa dei nuclidi per i processi nucleari apprezzabilmente più grande di quello dovuto al decadimento radioattivo sono necessarie intense densità di flusso neutronico. Si consideri il caso del <sup>242</sup>Cm. Questo radionuclide decade con un tempo di dimezzamento di 2 Ma. Quindi si avranno:

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} = 4.9 \cdot 10^{-8} \text{ decadimenti.s}^{-1} \quad (4.10)$$

La sezione d'urto per assorbimento di neutroni termici è 8.7 barn. In una densità di flusso neutronico  $\Phi = 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  si hanno:

$$\sigma_a \Phi = 2.1 \cdot 10^{-8} \text{ assorbimenti.s}^{-1} \quad (4.11)$$

In questo caso il rateo di scomparsa del radionuclide per effetto della trasmutazione è circa 0.4 volte il rateo di scomparsa dovuto al decadimento radioattivo. Quindi per poter trasmutare tale radionuclide sarà necessario utilizzare densità di flusso neutronico maggiori rispetto a quelle di un PWR standard (circa  $10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ).

In linea di principio la trasmutazione di nuclidi può essere ottenuta per mezzo di qualsiasi fascio di particelle cariche, neutroni o raggi gamma, per mezzo di reazioni (n,fiss), (n, $\gamma$ ), (n,2n), ( $\gamma$ ,n), (p,xn), ( $\alpha$ ,xn), etc. In pratica però la trasmutazione indotta dalla radiazione  $\gamma$  è inapplicabile date le basse sezioni d'urto degli elementi d'interesse per la reazione considerata, alle energie presenti, molto inferiori a quelle di risonanza gigante di dipolo (GDR) che si verifica attorno ai 10-30 MeV. Inoltre le alte densità di flusso richieste escludono qualunque altra sorgente che non siano neutroni. Il bruciamento basato su alte densità di flussi neutronici risulta essere superiore agli altri sistemi grazie alle talora alte sezioni d'urto e alla possibilità di costruire strumenti moltiplicativi che permettono di migliorare lo schema di trasmutazione.

E' utile introdurre il parametro di consumo neutronico **D** per confrontare metodi che utilizzano diversi tipi di combustibile e reattori con diversi spettri e flussi neutronici. Il parametro **D** è definito come il numero di neutroni richiesti per trasformare un nucleo nello stato di arrivo richiesto, comprese tutte le reazioni intermedie (ad esempio trasformare un attinoide in un prodotto di fissione).

Valori negativi di **D** indicano che c'è un eccesso di neutroni nel reattore rispetto alla quantità richiesta, mentre se **D** assume valori positivi vanno forniti neutroni dall'esterno per permettere la trasmutazione. In TAB. 4 sono riportati valori di **D** per diversi sistemi di trasmutazione. Un altro parametro interessante per la valutazione dell'equilibrio neutronico nel nocciolo è  $\eta_{ec}$  ovvero il rapporto tra la produzione di neutroni e l'assorbimento degli stessi da parte degli attinoidi nel nocciolo. Un valore di  $\eta_{ec}$  inferiore a 1 indica che il reattore non può autosostenere una reazione a catena.

Da tali valutazioni risulta evidente che un combustibile di soli attinoidi non può essere trasmutato in un reattore con spettro neutronico termico, a causa del bilancio neutronico sfavorevole. Rifiuti contenenti elementi transuranici possono essere bruciati con uno spettro termico o veloce, mentre un combustibile ad alto contenuto di attinoidi minori è trasmutabile solo con uno spettro neutronico veloce.

Nelle seguenti sezioni saranno descritte le diverse strategie proposte per la

trasmutazione delle specie nucleari più radiotossiche presenti nel combustibile esausto.

**TAB. 4:** Valori dei parametri  $D$  e  $\eta_{ec}$ . L'ADS termico è un reattore a sali fusi moderato con grafite; il **TRU ADS** veloce è una proposta di reattore con nocciolo raffreddato a Pb/Bi funzionante con combustibile metallico; il **MA ADS** è un inceneritore proposto da JAERI mentre il reattore veloce critico (FR) è sul modello ALMR.

Combustibile	TRU burner termico (ADS)		TRU burner veloce (ADS)		MA burner (ADS)		Reattore veloce critico	
	$D$	$\eta_{ec}$	$D$	$\eta_{ec}$	$D$	$\eta_{ec}$	$D$	$\eta_{ec}$
$^{238}\text{U}$	+0.24	0.92	-0.64	1.28	-0.64	1.28	-0.85	1.41
Pu	-0.40	1.15	-1.34	1.80	-1.28	1.74	-1.53	2.03
MA	+0.37	0.89	-0.86	1.37	-0.79	1.33	-1.10	1.52
TRU	-0.30	1.11	-1.29	1.75	-1.23	1.69	-1.48	1.96

#### 4.1 Reattori Termici

Appartengono a questa categoria sia i reattori ad acqua leggera (LWR, sia PWR sia BWR), sia i reattori ad acqua pesante (HWR, CANDU).

##### 4.1.1 Plutonio

A partire dal combustibile UOX esausto utilizzato in reattori LWR, a livello industriale è in atto la trasmutazione in reattori ad acqua leggera del plutonio sottoforma di combustibile MOX: il plutonio viene estratto insieme all'uranio dal combustibile esausto e vengono poi creati elementi di combustibile con arricchimenti di  $^{235}\text{U}$  dell'ordine di 0.25-0.3%. Nella prassi industriale però viene utilizzato l'uranio impoverito (DU) proveniente dai numerosi cicli di arricchimento dell'uranio per la fabbricazione del combustibile UOX piuttosto che utilizzare l'uranio riprocessato dal combustibile esausto. Ciò è anche dovuto alla presenza di veleni (poison) per neutroni quali  $^{236}\text{U}$  e di nuclidi gamma emittenti quali  $^{208}\text{Tl}$  ( $\gamma$  da 500 keV e 2.615 MeV) e  $^{228}\text{Th}$ , figli di  $^{232}\text{U}$  ( $T_{1/2} = 70$  a).

Ma al termine del primo riciclo del combustibile MOX, la frazione di plutonio trasformata in prodotti di fissione è solo del 25% mentre il 10% è trasformato in attinoidi minori: se la massa di plutonio da stoccare è diminuita, l'inventario radiotossico risulta invece aumentato a causa della maggior presenza di attinoidi minori.

Un ulteriore problema connesso con questo sistema è la scarsità di neutroni ritardati, che richiede risposte più veloci del reattore alle variazioni di potenza e alla reattività. Questo non permette, per ragioni di sicurezza, di usare combustibili con grande contenuto di  $^{239}\text{Pu}$  (ad esempio quello proveniente dalle armi nucleari).

#### 4.1.2 Attinoidi minori

Gli attinoidi minori di interesse per le strategie di trasmutazione sono principalmente americio, curio e nettunio (anche protoattinio  $Z = 91$ ). Nonostante ciò, all'interno del combustibile nucleare esausto sono presenti, seppur in minime quantità, altri attinoidi minori con numero di protoni maggiore quali il berkelio (Bk,  $Z = 97$ ), il californio (Cf,  $Z = 98$ ), l'einstenio (Es,  $Z = 99$ ) e il fermio (Fm,  $Z = 100$ , ultimo elemento producibile mediante cattura neutronica).

Il contenuto di attinoidi nel combustibile deve essere limitato: oltre a problemi simili a quelli già elencati per il plutonio, il decadimento  $\alpha$  di  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  e  $^{238}\text{Pu}$  porta alla produzione di *elio* che causa un *rigonfiamento* e quindi un'eccessiva pressione all'interno degli elementi di combustibile.

Il bruciamento del curio da solo risulta essere tecnicamente impraticabile a causa della grande produzione di calore dei nuclidi alfa-emittenti  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ . È possibile tuttavia trasmutare contemporaneamente americio e curio oppure trasformare il curio in  $^{240}\text{Pu}$  lasciando che  $^{244}\text{Cm}$  questo decada (con  $T_{1/2} = 18.1$  a), ma  $^{245}\text{Cm}$  resta non trasmutato.

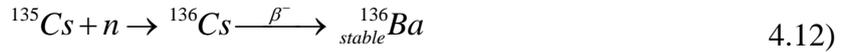
La trasmutazione del nettunio, che esiste sottoforma di un unico isotopo, il  $^{237}\text{Np}$  (con  $T_{1/2} = 2.144 \cdot \text{Ma}$ ), è possibile sia nei reattori termici sia nei reattori veloci. La trasmutazione del nettunio è considerata di primaria importanza: si ritiene infatti che il  $^{237}\text{Np}$  contribuisca in modo dominante alla dose dei rifiuti HLW a lunghi periodi dalla loro produzione. Tuttavia, la fabbricazione del combustibile (che può essere sia combustibile UOX sia MOX) risulta essere difficoltosa a causa del decadimento alfa del  $^{237}\text{Np}$  in  $^{233}\text{Pa}$  che causa emissione di gamma penetranti (312, 300, 341 keV) che richiedono schermature aggiuntive. Nel caso del combustibile UOX, l'aggiunta del  $^{237}\text{Np}$  aumenta significativamente il livello della radioattività alfa e gamma dell'elemento di combustibile, mentre per quanto riguarda il MOX è aumentato solo il livello della radiazione gamma. Dopo diversi ricicli del combustibile MOX, la cattura neutronica del  $^{237}\text{Np}$  porta alla formazione dell'isotopo del plutonio a vita breve  $^{238}\text{Pu}$  (con  $T_{1/2} = 87.74$  anni). Il plutonio  $^{238}\text{Pu}$  decade  $\alpha$  con un alto Q value ( $Q = 5.449, 5.456$  MeV) e quindi contribuisce notevolmente all'innalzamento della temperatura del combustibile. Altre complicazioni seguono dalle reazioni ( $\alpha, n$ ) su nuclei leggeri, che rendono il trasporto, la fabbricazione del combustibile e lo stoccaggio complessi.

In conclusione, l'inventario radiotossico aumenta a causa della produzione di curio e altri attinoidi minori che, insieme ai problemi di reattività e di sovra-pressione, rendono i reattori LWR inadatti alla trasmutazione degli attinoidi minori.

#### 4.1.3 Prodotti di fissione

I prodotti di fissione a lunga vita da considerare negli schemi di trasmutazione sono:  $^{129}\text{I}$  (rateo di produzione: 5 kg.a / GWe),  $^{99\text{g}}\text{Tc}$  (rateo di produzione: 21 kg.a / GWe) e  $^{135}\text{Cs}$

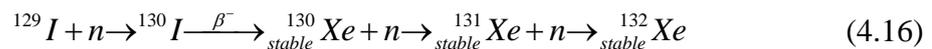
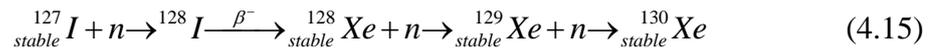
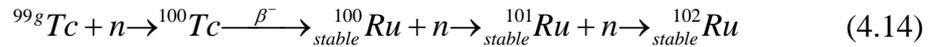
(rate di produzione: 12 kg.a / GWe). Per la trasmutazione del cesio è necessaria una separazione isotopica di  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{135}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ . Infatti è possibile trasmutare  $^{135}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$  con le seguenti modalità, eq. (4.1 e 4.2):



mentre il  $^{133}\text{Cs}$  (isotopo stabile del cesio), esposto ad elevate densità di flusso neutronico, viene trasmutato nell'isotopo  $^{134}\text{Cs}$  che ha una tempo di dimezzamento di oltre 2 anni (TAB. 5). Dato che il  $^{134}\text{Cs}$  dopo essere stato prodotto non decade immediatamente, è molto probabile che catturi un ulteriore neutrone aumentando la quantità di  $^{135}\text{Cs}$  nel reattore.

Inoltre l'intensa radiazione gamma emessa dal  $^{137}\text{Cs}$  rende molto difficile la fabbricazione di elementi di combustibile per la sua trasmutazione. Queste ragioni conducono alla necessità della separazione isotopica per il cesio, procedura complessa e molto costosa.

Per il tecnezio-99g e lo iodio-129, la trasmutazione può essere effettuata in reattori termici grazie alle seguenti reazioni, eq. (4.14-4.16, vedi anche 2.9):



**TAB. 5:** Tempi di dimezzamento dei principali prodotti di fissione citati <sup>5)</sup>.

RadioNuclide	T <sub>1/2</sub>
$^{99g}\text{Tc}$	0.21·Ma
$^{100}\text{Tc}$	15.8 s
$^{130}\text{I}$	12.36 h
$^{129}\text{I}$	15.7·Ma
$^{128}\text{I}$	25.0 min
$^{134}\text{Cs}$	2.06 a
$^{135}\text{Cs}$	2 Ma
$^{137}\text{Cs}$	30.17 a

Sia per il tecnezio-99g sia per lo iodio-129 (vedi anche eq. (2.9), la cattura di un neutrone porta alla formazione di un isotopo beta emittente con tempi di dimezzamento brevi. In TAB. 5 sono riportati i tempi di dimezzamento dei nuclidi di interesse. Anche la doppia o tripla cattura neutronica porta a nuclei stabili. Inoltre la sezione d'urto per cattura neutronica è maggiore per neutroni termici, con risonanze significative nella zona epitermica. Per quanto riguarda lo iodio-129, l'isotopo d'interesse per la trasmutazione è presente all'80% insieme all'isotopo stabile  $^{127}\text{I}$ . Lo iodio è un elemento volatile dunque vanno considerati composti binari solidi ai fini della trasmutazione. Esperimenti di irraggiamento di diversi composti binari, hanno indirizzato la scelta verso composti come NaI.

In pratica però l'utilizzo di reattori termici convenzionali per la trasmutazione di prodotti di fissione a lunga vita risulta essere inapplicabile: innanzitutto i tre elementi considerati sono prodotti con un grande yield e ciò si traduce in grandi frazioni di prodotti di fissione da separare dai rifiuti HLW e da trasmutare. Inoltre nonostante la sezione d'urto per assorbimento di neutroni presenti un massimo nella regione termica, i valori non sono particolarmente elevati e quindi sono richiesti grandi flussi neutronici per ridurre in maniera significativa l'inventario radiotossico dovuto all'emissione di tali radionuclidi: la densità di flusso neutronico in un reattore LWR convenzionale è dell'ordine di  $10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} - 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , troppo basso per consentire la trasmutazione di questa frazione di rifiuti in un ragionevole lasso di tempo.

Per questo motivo, sono state proposte strutture diverse appositamente costruite, con densità di flusso neutronico di  $10^{16} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . La sezione d'urto di cattura per neutroni veloci è più bassa di alcuni ordini di grandezza rispetto a quella di cattura per neutroni lenti e questo rende poco conveniente l'utilizzo di reattori con spettro neutronico veloce. Inoltre i prodotti di fissione consumano neutroni e non ne producono altri, utili ai fini della trasmutazione. Senza una separazione radiochimica isotopica quindi la trasmutazione di prodotti di fissione è difficilmente realizzabile, eccetto che per iodio-129 e tecnezio-99m.

Come risultato finale, i reattori termici risultano poco adatti alla trasmutazione in quanto il contenuto di attinoidi minori tende a crescere in funzione del tempo (specialmente gli isotopi non fissili del plutonio con numero di massa dispari). A causa dell'aumento del contenuto di attinoidi minori nel combustibile esausto, l'inventario radiotossico aumenta, e ciò va contro gli scopi del processo di trasmutazione. Inoltre i processi di trasmutazione per alcuni nuclidi richiedono un'accurata separazione isotopica che aumenta di molto i costi della procedura.

## 4.2 Reattori Veloci

Il primo reattore veloce fu costruito negli Stati Uniti a Los Alamos (Clementine) nel 1946 e aveva una potenza di 150 kW. Il primo reattore al mondo in grado di produrre

energia elettrica fu l'EBR-I, un reattore veloce costruito nel 1951 negli Stati Uniti <sup>29,11)</sup>.

Negli anni successivi diversi altri reattori veloci furono costruiti in tutto il mondo. Ma difficoltà tecniche di realizzazione (soprattutto riguardanti l'uso del sodio come moderatore), non competitività economica del plutonio (l'uranio era molto meno costoso) e sospetto di proliferazione, rallentarono notevolmente la ricerca nel settore. Al giorno d'oggi gli unici reattori veloci in funzione su scala industriale sono il reattore BN-600, Phénix e Superphénix. Recentemente, è stato rinnovato l'interesse per tale tecnologia, utile dal punto di vista della trasmutazione per bruciare il plutonio e gli attinoidi minori presenti nei rifiuti HLW.

#### 4.2.1 Plutonio

La ricerca nel corso degli anni '90 si indirizzò prevalentemente nella direzione di sviluppo di reattori veloci raffreddati a sodio per la fissione del plutonio. Il principale studio in questo ambito portò alla progettazione del reattore **CAPRA**: all'interno del nocciolo si poteva ridurre la frazione di <sup>238</sup>U fino al 65%, consumando così una buona quantità di plutonio, a patto di introdurre degli elementi di moderatore all'interno del nocciolo. Ma, a causa dell'alta produzione di attinoidi minori, la radiotossicità del combustibile esausto diminuiva solo di un fattore 3 per diverse centinaia di anni e di un fattore 5-6 negli anni successivi.

#### 4.2.2 Attinoidi minori

Gli attinoidi minori sottoposti ad una densità di flusso di neutroni veloci hanno un valore di **D** positivo, per valori oltre ai  $10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  <sup>6)</sup>.

Il limite del contenuto di nettunio e americio è il 2.5%: a causa della produzione di <sup>238</sup>Pu infatti, all'interno del reattore si osservano danni da radiazione nelle strutture del nocciolo senza che vi sia una significativa diminuzione del contenuto degli attinoidi nel combustibile. Inoltre la presenza di americio nelle barre di combustibile porta alla *riduzione della frazione di neutroni ritardati*, con conseguenti problemi nel controllare la reazione di fissione in tempo reale.

Nell'esperimento denominato **EFTTRA-T4** venne irraggiato un target contenente americio in una matrice MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (con una percentuale in peso di <sup>241</sup>Am 10-12%) [18]. Test condotti dopo un periodo di irraggiamento di 18 mesi mostrarono che la concentrazione di americio era ridotta del 4% rispetto al valore iniziale, mentre la frazione di atomi di americio inizialmente presente nel combustibile che erano stati fissionati era del 28%.

Ma lo spettro neutronico porta anche alla formazione di curio e californio e i rifiuti contenenti *elementi che emettono neutroni per fissione spontanea* sono difficilmente maneggiabili. Una possibilità è quella di posizionare il target di americio nella periferia del

nocciolo in modo tale da avere un burnup inferiore. Ciò si traduce anche in tempi molto lunghi di permanenza nel reattore con conseguente non competitività del processo dal punto di vista economico.

A causa della forte emissione  $\alpha$  del curio, la fabbricazione di elementi di combustibile di curio risulta essere proibitiva e quindi tale elemento viene diluito con americio. Una strategia alternativa consiste nel lasciare decadere  $^{244}\text{Cm}$  in  $^{240}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}=18.1$  a) prima di procedere con la fabbricazione del target.

### 4.3 ADS o ADT

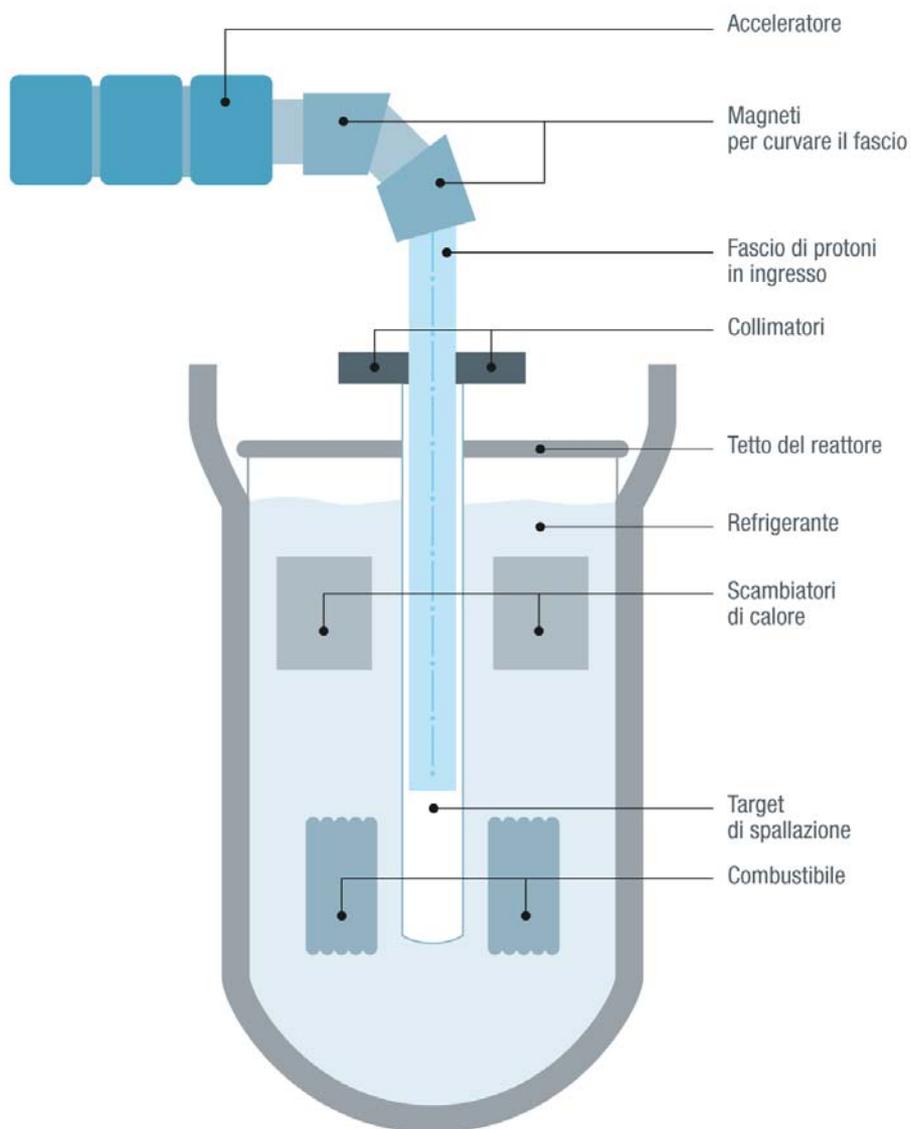
Oltre ai reattori critici (termici o veloci) descritti in precedenza, sono in studio per la trasmutazione delle scorie radioattive reattori sottocritici associati ad acceleratori di particelle, gli ADS (Accelerator Driven System for transmutation, o ADT). L'idea fu proposta inizialmente dal Premio Nobel Erbert O. Lawrence nel 1950 ed è stata rivista da un altro Premio Nobel, Carlo Rubbia, nel 1993 (Energy Amplifier, EA). Proprio per la loro caratteristica di essere sottocritici, questi reattori permettono di operare in modo più sicuro soprattutto per quanto riguarda la trasmutazione di combustibile ad alto contenuto di attinoidi minori; un altro vantaggio di questo sistema è che, non essendoci alcun livello di criticità da soddisfare essi possono essere usati con praticamente qualunque tipo di combustibile regolando la densità di flusso protonico dell'acceleratore in modo da mantenere il tasso di trasmutazione al livello richiesto.

In un reattore critico sono presenti sufficienti neutroni per sostenere la reazione a catena; in un sistema sottocritico invece è necessaria una fonte esterna di neutroni per sostenere le reazioni di fissione: tali neutroni sono prodotti per spallazione da un fascio di protoni che incide su un apposito target di spallazione, refrigerato con metallo pesante liquido. In FIG. 16 è rappresentata schematicamente la struttura di un ADS.

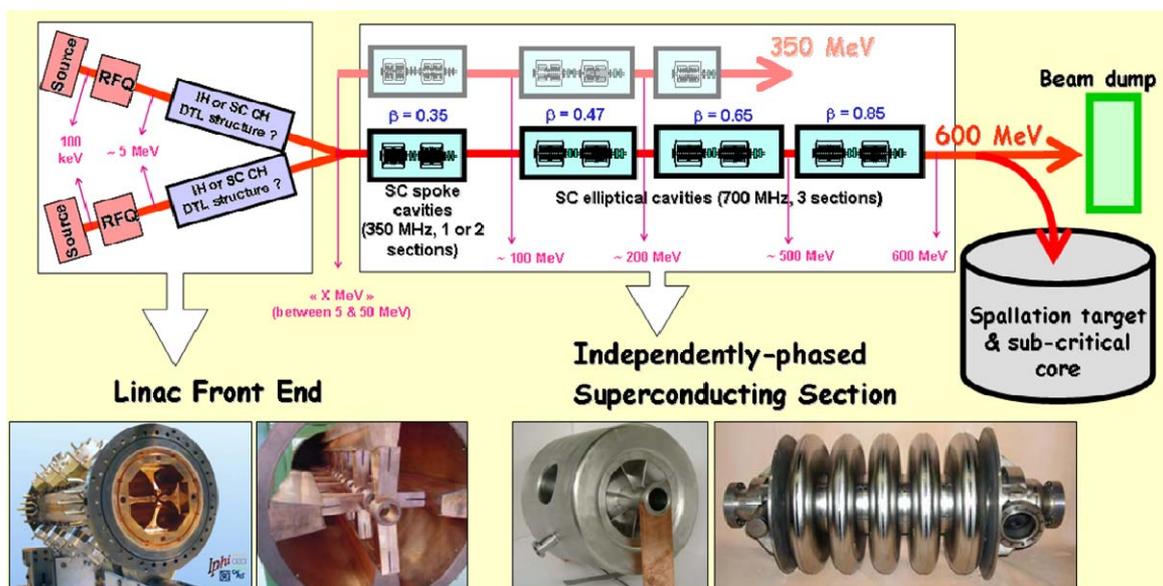
Il fascio di protoni in ingresso proviene da un acceleratore, che può essere un ciclotrone o un acceleratore lineare (Linac, FIG. 17). Un problema connesso con tali dispositivi è l'affidabilità delle prestazioni richiesta nel caso siano usati a livello industriale (dovranno essere in grado di operare in modo continuo) e la loro competitività economica. Possono essere utilizzati sia ciclotroni sia acceleratori lineari, ma entrambi devono essere modificati in modo tale da soddisfare i requisiti imposti dalle necessità industriali. Interruzioni nel flusso protonico della durata del millisecondo non implicano danni a combustibile, target e strutture del reattore.

Se le interruzioni invece sono più lunghe (superiori al secondo) possono esserci transitori dannosi per i componenti del reattore. Va aggiunto che il reattore deve essere in grado di operare alla potenza nominale, ma anche con caricamenti parziali (dal 20 al 100% della potenza nominale) senza grandi penalità e a potenze molto basse (inferiori al 3%) durante le operazioni di mantenimento e di caricamento del combustibile. Si ritiene che ciclotroni sul modello di quello in uso al PSI debbano essere utilizzati per esperimenti preliminari (come nell'esperimento **MEGAPIE**) con basse potenze: hanno costi di

costruzione e dimensioni ridotti rispetto agli acceleratori lineari e in fase di sperimentazione le richieste di affidabilità sono meno stringenti. In un secondo momento invece, verranno appositamente costruiti acceleratori lineari (*e.g.* LANL e ORNL), più adatti ai requisiti imposti dall'utilizzo su scala industriale grazie alle loro caratteristiche di affidabilità, disponibilità del fascio e possibilità di aumentare la potenza in uscita. In particolare, ricordando le considerazioni sulla produzione di neutroni di spallazione fatte nella sezione 2.2, si utilizzeranno potenze di fascio di alcuni  $MW_{th}$  per i sistemi dimostrativi e fino a  $30 MW_{th}$  per ADS industriali.



**FIG. 16:** Schema semplificato di un ADS o ADT.



**FIG. 17:** Schema di un acceleratore di protoni da 600 MeV, con un linac superconduttivo da accoppiare ad un reattore sub-critico. Si notano i due iniettori a RFQ atti ad evitare transitori estremamente pericolosi per le strutture del reattore sub-critico. In basso sono mostrati alcuni dettagli del front end del linac e le cavità SC per la sezione di alta energia.

Il target di spallazione è formato da metalli pesanti, ad esempio tantalio, tungsteno, bismuto: la prima scelta è rappresentata dalla lega eutettica di piombo e bismuto (44.5% Pb e 55.5% Bi, percentuali in peso, oppure in frazione molare 0.447 Pb e 0.553 Bi) detta Lead Bismuth Eutectic (LBE) che ha punto di fusione  $123.5 - 125^{\circ}\text{C}$  <sup>11)</sup>. Quando la corrente protonica incide sul target provoca l'emissione, per reazione di spallazione, di diverse particelle leggere. La sorgente di neutroni di spallazione è una componente fondamentale di un ADS: deve essere resistente ad alti flussi di radiazione, ad alte temperature e a pressioni fortemente variabili. Il materiale costituente dovrà essere scelto ottimizzando l'efficienza neutronica, le proprietà fisiche e chimiche del materiale e il comportamento nelle condizioni del nocciolo del reattore in modo da garantire sicurezza, affidabilità e durata, malgrado la nota produzione di ingenti quantità di polonio.

Due diversi approcci sono studiati, ovvero presenza di *una finestra resistente* alla radiazione o sorgente di spallazione *senza la protezione della finestra*: queste soluzioni differiscono nell'ambito della barriera di separazione adottata all'interfaccia tra il tubo sotto vuoto in cui passa il fascio di protoni e il target. La configurazione con finestra prevede una barriera meccanica il più possibile trasparente a fascio di protoni e fatta in modo tale da sopportare temperature e pressioni elevate; la miscela eutettica di piombo e bismuto circola in maniera naturale ed è raffreddata nella parte superiore del target da un fluido diatermico circolante in un sistema ausiliario. La configurazione senza finestra

invece prevede che il fascio di protoni incida direttamente sul target di LBE, che circolando sotto l'azione di un flusso di gas, viene raffreddato nello scambiatore di calore posto nella parte inferiore del target. In linea di principio il target di spallazione deve avere una vita comparabile a quella degli elementi di combustibile (circa 2 o 3 anni) nel caso di presenza di una finestra. Se nel progetto è inclusa una finestra, si dovrà considerare che la vita attesa per la finestra del fascio è di circa 6 mesi.

Il sistema di raffreddamento è un altro aspetto in studio: essendo richiesti alte densità di flusso neutronico, l'utilizzo dell'acqua (pesante o leggera) è un'opzione da scartare. Un'alternativa per il sistema di raffreddamento primario è rappresentata dall'utilizzo di gas (per esempio l'He o CO<sub>2</sub>) o metalli liquidi. I metalli liquidi presentano degli indubbi vantaggi se confrontati con i gas: infatti questi ultimi necessitano di pressioni molto alte (5-7 MPa) e quindi operazioni quali caricamento del vessel e del target devono essere svolte meccanicamente. Per quanto riguarda i metalli liquidi, sodio e potassio sono altamente corrosivi per la struttura del reattore, hanno alta reattività con aria e acqua e sono quindi da scartare. Sono quindi in studio metalli liquidi diversi, tra cui in particolare il piombo, con punto di fusione 327.4 °C, e la sua lega eutettica con il bismuto LBE<sup>17)</sup>, che ha punto di fusione 123.5 – 125 °C. Piombo e bismuto presentano una bassa reattività chimica con aria, ossigeno e vapore acqueo se confrontata con metalli alcalini quali Na e K e hanno alta temperatura di ebollizione e bassa pressione di vapore. Una controindicazione è invece la solubilità di diverse componenti metalliche (soprattutto quelle di nichel) dei materiali strutturali. Un ulteriore vantaggio nell'utilizzo del composto LBE è che può essere usato nella sorgente di spallazione, e ciò semplifica la struttura del sistema. Per il sistema di raffreddamento secondario **IHX** (Intermediate Heat eXchanger), sono stati proposti due cicli che in condizioni standard dissipano il calore generato dal reattore in atmosfera. Il materiale scelto per tale sistema di raffreddamento è un fluido diatermico sintetico, che è compatibile con le temperature di utilizzo (le temperature dei due cicli di raffreddamento sono 280° C e 320° C) e non ha reazioni chimiche distruttive, in caso di perdita, con la lega **LBE** o l'aria. I fluidi diatermici hanno proprietà di scambio di calore inferiori a quelle dei metalli fusi: infatti la conduttività termica degli *oli diatermici* è di ~ 0.1 W.m<sup>-2</sup>.K<sup>-1</sup> da confrontare con quella del piombo che vale ~ 15 W.m<sup>-2</sup>.K<sup>-1</sup>. Ma la capacità termica degli oli è circa 17 volte superiore a quella del piombo ed inoltre può essere pompata all'interno del circuito di raffreddamento secondario con una velocità maggiore: ciò permette di far circolare una massa circa 50 volte inferiore di oli nel sistema di raffreddamento rispetto al piombo fuso<sup>19,11)</sup>.

In ultimo, il nocciolo sottocritico è composto da barre di combustibile nucleare disposte esagonalmente in maniera tale da non avere abbastanza materiale fissile nella sua parte centrale (vicino al target di spallazione) da raggiungere la condizione di criticità. Il combustibile inizialmente è lo stesso utilizzato dal reattore Superphénix (combustibile MOX arricchito al 20% circa in plutonio). Il livello di sottocriticità deve essere stabilito in modo da ottimizzare due aspetti contrastanti: basso livello di sottocriticità implica una

piccola corrente del fascio di protoni ma aumenta il rischio di raggiungere la criticità durante incidenti. Un alto livello di sottocriticità richiede un'alta corrente di fascio di protoni ma permette di ridurre il rischio di avvicinarsi alla criticità.

## 5 EUROPA & ADS

La tecnologia degli ADS è basata su caratteristiche innovative che devono essere sviluppate in dettaglio affinché siano assicurate efficienza e sicurezza. Sono studiati separatamente i seguenti componenti:

1. Acceleratore
2. Modulo di spallazione
3. Combustibile e ciclo del combustibile
4. Reattore sottocritico

Inoltre vanno studiate le interfacce e le connessioni tra queste componenti. Una valutazione preventiva dei costi risalente al 2001 stimava una spesa di circa 600 M€ escluse le spese per il combustibile nucleare <sup>8)</sup>.

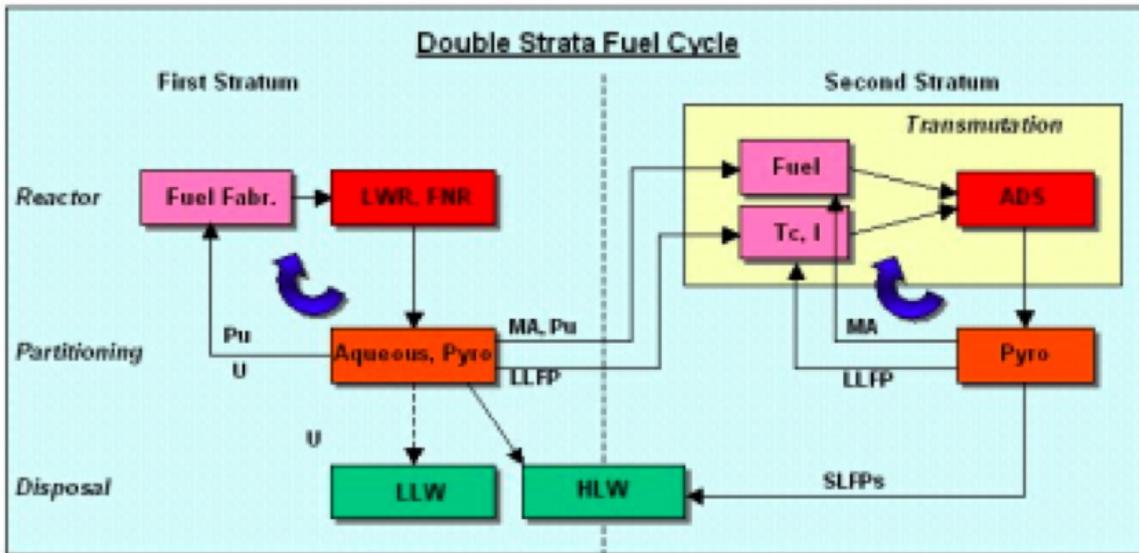
Molti dei radionuclidi di interesse per la trasmutazione delle scorie nucleari non erano inoltre stati sufficientemente studiati dal punto di vista della loro interazione con i neutroni: sono stati finanziati dei programmi da parte della Commissione Europea (European Commission's 5<sup>th</sup> Framework Programme) per la misura delle sezioni d'urto di interazione nucleare. Due dei principali programmi sono **GELINA** in Belgio e **nTOF** (neutron Time Of Flight) al CERN, attivo dal marzo 2002. Nel programma nTOF i neutroni sono creati per reazioni di spallazione indotte da un fascio di protoni pulsati di 20 GeV.c<sup>-1</sup> (un impulso ogni 6 ns) con un flusso fino a 7.10<sup>12</sup> protoni per impulso, incidenti su un target di piombo di dimensioni 80x80x60 cm<sup>3</sup>, raffreddato con uno strato di 5 cm d'acqua. Le misure riguardano le sezioni d'urto con neutroni di energie tra 1 eV e 20 MeV per i principali nuclidi di interesse per la trasmutazione, sia per gli elementi transuranici, sia per gli appartenenti alla *catena del torio*, sia per i prodotti di fissione non fissionabili.

Un altro programma europeo sviluppato per studiare le interazioni dei neutroni ad energie tra 20 MeV e 2 GeV è il programma **HINDAS** (High and Intermediate Energy Nuclear Data for ADS), attivo dal 2000 al 2003.

### 5.1 Double Strata (o Doppio Strato)

Una rappresentazione schematica di come un ADS può essere utilizzato in

congiunzione con reattori convenzionali nell'approccio a “doppio strato” è rappresentato in FIG. 18.



**FIG. 18:** Descrizione schematica della trasmutazione di rifiuti nucleari in un ciclo del combustibile a *double strata*.

Il primo strato è basato su un ciclo del combustibile tradizionale con reattori LWR e reattori veloci (in figura indicati con FNR), strutture per la fabbricazione del combustibile e per il riprocessamento. Il plutonio separato è riciclato per formare combustibile MOX da bruciare in reattori termici o veloci.

Il plutonio rimanente, gli attinoidi minori e i prodotti di fissione a lungo tempo dimezzamento vengono trasmutati nel secondo strato. L'utilizzo di riprocessamento non acquoso in questo strato permette di riprocessare il combustibile più volte. Inoltre i sali fusi hanno una maggiore tolleranza alla radiazione e ciò consente di diminuire fino a circa un mese i tempi di stoccaggio del combustibile esausto al termine del primo irraggiamento.

L'utilizzo di ADS permetterebbe quindi di bruciare grandi quantità di attinoidi minori in condizioni di maggiore sicurezza rispetto ai reattori veloci. Durante il processo inoltre potrebbero essere generati calore e forse energia elettrica (Energy Amplifier).

Sono stati proposti schemi in cui anche i prodotti di fissione a lunga vita vengono distrutti: un vantaggio degli ADS è che, non essendoci condizioni di criticità da soddisfare, possono essere caricati con quasi qualunque tipo di combustibile nucleare.

#### 5.4 5th Framework Programme of EU: Progetti X-ADS

Nell'ambito del 5<sup>th</sup> Framework Programme of EU per la ricerca e lo sviluppo nel settore della fissione nucleare, è stata riconosciuta la necessità di progettare e costruire un eXperimental Accelerator-Driven System (XADS) come precursore del trasmutatore industriale. Il progetto era stato proposto dal gruppo tecnico TWG (Technical Working Group) stabilito dai Ministeri per la Ricerca di Francia, Italia e Spagna.

Sono stati proposti tre progetti differenti:

1. DESIGN A: XADS raffreddato con LBE, di 80 MW<sub>th</sub>
2. DESIGN B: XADS raffreddato a gas, di 80 MW<sub>th</sub>
3. DESIGN C: MYRRA raffreddato con LBE, di 50 MW<sub>th</sub>

In TAB. 6 sono riportate le caratteristiche nominali dei tre progetti.

##### 5.4.1 Design A: X-ADS raffreddato con LBE

Fin dal 1998 la sezione italiana dell'ENEA, l'INFN, CRS4 e Ansaldo hanno dato vita ad un gruppo per progettare un XADS di 80 MW<sub>th</sub> in vista della costruzione di un prototipo di ADS. Il progetto è rappresentato in FIG. 19 e le caratteristiche nominali del progetto sono riportate in TAB. 6.

Il sistema di raffreddamento primario si basa sull'utilizzo della miscela fusa LBE, compatibile con il fluido diatermico di raffreddamento usato nel sistema secondario. La configurazione è a piscina (il nocciolo del reattore è immerso in una piscina di LBE: ciò consente di schermare efficientemente la radiazione proveniente dal nocciolo e permette di dissipare il calore generato dalle reazioni nucleari), analoga a quella della maggior parte dei reattori raffreddati con sodio fuso. Questo tipo di configurazione presenta dei vantaggi rispetto a quella in cui la miscela di raffreddamento viene fatta circolare: infatti la miscela LBE dovrebbe essere pompata a velocità molto bassa per limitare la corrosione e l'erosione delle strutture del reattore e questo porterebbe alla necessità di tubi con diametro più grandi per un dato flusso volumetrico e quindi costi e dimensioni della struttura aumentati. L'eliminazione del sistema di pompaggio per il raffreddamento primario inoltre permette di semplificare ulteriormente la struttura interna del reattore e di ridurre i materiali immersi nella miscela eutettica piombo-bismuto per minimizzare il rischio di fallimenti e la richiesta di ispezioni interne, difficili nel caso di metalli fusi.

La miscela eutettica viene fatta circolare per mezzo di un flusso di gas argon: l'LBE lascia il nocciolo in direzione radiale ed entra nei canali di risalita che si trovano alla periferia del vessel interno. L'argon iniettato alla base dei canali di risalita permette di aumentare la differenza di densità tra l'LBE freddo che torna nel nocciolo lungo i canali di

discesa e la mistura di LBE caldo e gas argon che entra nei canali di risalita. Il gas abbandona in seguito il sale fuso e viene concentrato nell'apposita area di raccolta per il gas. All'interno del vessel inoltre ci sono tubi a forma di U che servono da scambiatori di calore per raffreddare i muri di cemento del vessel interno.

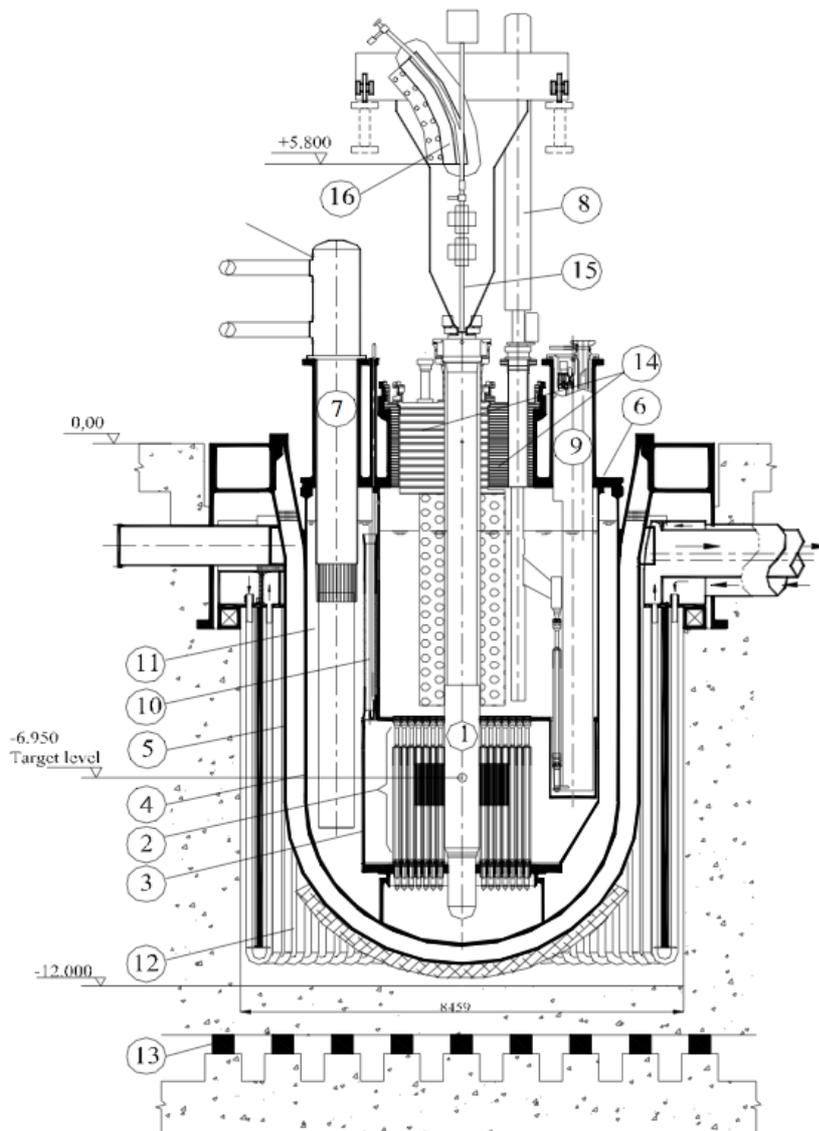
TAB. 6: Caratteristiche (nominali) dei tre design di XADS <sup>25-31</sup>).

	<b>Design A</b>	<b>Design B</b>	<b>Design C</b>
<b>Potenza (<math>MW_{th}</math>)</b>	80	80	50
<b>Raffreddamento primario</b>	LBE	elio	LBE
<b>Temperatura all'interno del nocciolo (<math>^{\circ}C</math>)</b>	300	200	200
<b>Temperatura all'esterno del nocciolo (<math>^{\circ}C</math>)</b>	400	450	350
<b>Rate di flusso del refrigerante nel nocciolo (<math>kg.s^{-1}</math>)</b>	5471	61,1	2500
<b>Velocità del refrigerante nel nocciolo (<math>m.s^{-1}</math>)</b>	$\sim 0.42$	$\sim 30$	$< 2$
<b>Raffreddamento secondario</b>	<i>Diphyl-THT</i> <sup>1</sup>	acqua	acqua
<b>Temperatura all'esterno dell'IHX (<math>^{\circ}C</math>)</b>	270	25	140
<b>Temperatura all'esterno dell'IHX (<math>^{\circ}C</math>)</b>	312	65	170
<b><math>k_{eff}</math></b>	0.97 – 0.93	0.95	0.9552
<b>Energia dei protoni (MeV)</b>	600	600	600
<b>Corrente massima del fascio (mA)</b>	6	6	2.5
<b>Target in configurazione con finestra</b>	S1	S3	
<b>Target in configurazione senza finestra</b>	S2		S5
<b>Target solido</b>		S4	

Tra il vessel del reattore e il vessel secondario di sicurezza è lasciato uno spazio sufficiente al passaggio del veicolo a controllo remoto per ispezioni di sicurezza ISI (In-Service Inseption). Entrambi i vessel sono di forma cilindrica con parte inferiore emisferica e sono privi di ugelli di scarico. Il sistema meccanico per maneggiare il combustibile consiste in un meccanismo di trasferimento e uno di sollevamento che trasferiscono il materiale da/a un contenitore posizionato sul tetto del reattore.

Le fondamenta del reattore sono costituite da due piattaforme separate da strati di acciaio e gomma con la funzione di attutire vibrazioni ed eventuali attività sismiche.

<sup>1</sup>Nome commerciale di una mistura di terfenili sintetici, parzialmente idrogenati



**FIG. 19:** Design A. 1: target; 2: nocciolo sottocritico; 3: vessel interno; 4: vessel del reattore; 5: vessel di sicurezza; 6: tetto del reattore; 7: scambiatore di calore intermedio; 8,9: meccanismo di trasferimento e sollevamento; 10,11: canali di risalita e discesa; 12: sistema di raffreddamento del vessel del reattore; 13: piattaforma di supporto per terremoti; 14: blocchi rotanti; 15: canale per il fascio di protoni; 16: magneti per curvare il fascio <sup>23)</sup>.

Il problema riguardante la scelta dell'acceleratore è ancora attuale: diverse soluzioni sono state proposte, che includono l'utilizzo di ciclotrone, di un Linac o di una combinazione di entrambi. La ricerca condotta finora ha portato alla conclusione che le performance richieste possono essere ottenute aumentando di un fattore 2-4 la potenza di

strutture già esistenti, quali il ciclotrone del PSI o il Linac installato a Los Alamos. Come già sottolineato precedentemente, il problema principale risiede nel dimostrare la stabilità e l'affidabilità di tali tecnologie. Per quanto riguarda l'unità contenente il target sono proposte due soluzioni, una con finestra (soluzione S1) e una senza finestra (soluzione S2). Nel primo caso il calore è rimosso dalla miscela LBE in circolazione naturale attraverso lo scambiatore di calore collocato nella sommità del reattore.

L'utilizzo di un fluido diatermico secondario permette di selezionare con maggiore accuratezza il ciclo termico da adottare e di limitare la temperatura del punto più caldo della finestra. La seconda soluzione invece prevede che il fascio di protoni incida direttamente sulla superficie libera dell'LBE liquido. Il fatto che nessun materiale sia direttamente esposto al flusso di protoni permette di evitare severi danneggiamenti delle strutture e ciò allunga la vita dell'unità contenente il target. L'LBE riscaldato è mosso verso lo scambiatore di calore sottostante da *due pompe meccaniche in serie*.

Il nocciolo consiste di 120 barre di combustibile esagonali disposte in cinque file concentriche. Ogni barra è costituita da 90 pellet carichi con combustibile MOX. Nelle prime due file vi sono 42 barre arricchite al valore standard del reattore Superphénix, mentre le restanti 78 barre più esterne sono arricchite in plutonio al 28.25%: ciò consente di stabilire un fattore di moltiplicazione nominale all'inizio del ciclo di 0.97. Dopo circa 1 000 giorni di operatività al massimo della potenza, il cambiamento di reattività non supera il 4%, riducendo  $k_{\text{eff}}$  a 0.93: ciò richiede un fascio di protoni di circa 6 mA. Attorno alle barre di combustibile vi è una regione occupata da 174 elementi fittizi che proteggono le strutture dallo spettro veloce di neutroni, mentre la miscela LBE si comporta come un riflettore di neutroni per limitare il numero di neutroni che lasciano il nocciolo senza aver interagito.

#### 5.4.2 Design B: XADS raffreddato a gas

Questo progetto è stato ideato da un gruppo con a capo il Ministero della Ricerca francese e comprendente associazioni quali CEA (Commissariat à l'énergie atomique) CNRS (Centre National de la Recherche Scientifique), EDF (Électricité de France) e Framatome.

La scelta di utilizzare come refrigerante un gas è dovuta al fatto che il gas è meno reattivo nei confronti delle strutture del reattore che non vanno quindi incontro a corrosione; inoltre le operazioni di ispezione e riparazioni grazie alla trasparenza del gas e della temperatura di spegnimento (prossima alla temperatura ambiente) sono avvantaggiate. L'elio rappresenta pertanto la scelta primaria dato che possono essere esclusi i rischi di interazioni chimiche, radiolisi e attivazione a causa del flusso radiativo. Il progetto è rappresentato in FIG. 19 e le sue caratteristiche nominali sono riportate in TAB. 6. Il refrigerante primario in questo caso è gas elio ad una pressione di circa 6 MPa. Il reattore è costituito da due vessel pressurizzati collegati da una conduttura: uno contiene il nocciolo sottocritico e il target mentre l'altro contiene il sistema di conversione di potenza.

All'interno del primo vessel vi sono i meccanismi di maneggiamento del combustibile e il sistema di raffreddamento SCS (Shutdown Cooling System) che ha la funzione di rimuovere il calore di decadimento nel caso di un'inefficiente circolazione del refrigerante primario. Nel secondo vessel, non rappresentato in FIG. 19, il refrigerante primario che circola forzatamente durante il funzionamento del reattore cede il calore ad un circuito esterno raffreddato ad acqua. L'intera buca in cui è costruito il reattore è raffreddata con aria che circola naturalmente in un circuito specifico.

L'acceleratore scelto dal gruppo di ricerca Francese è un Linac, essendo più semplice ottenere una potenza di fascio superiore a quella ottenibile con i ciclotroni. Il fascio di protoni incide verticalmente sul target di spallazione costituito dalla lega LBE che circola, guidato da una pompa elettromagnetica ad una velocità di  $2 \text{ m.s}^{-1}$ . Attorno alla cavità del target sono disposte le 37 barre di combustibile in struttura esagonale. Il livello di criticità è stabilito a 0.95, per ragioni di sicurezza; inoltre un assorbitore di neutroni è predisposto in caso di spegnimento del reattore per evitare di raggiungere le condizioni di criticità. Nella parte superiore del vessel del reattore sono inoltre presenti due ventilatori e due scambiatori di calore aggiuntivi ridondanti: questi assicurano, in caso di incidente, la rimozione del calore di decadimento quando la pressione dell'elio è insufficiente. Anche in questo progetto sono state studiate due soluzioni alternative per la configurazione dell'unità contenente il target. La soluzione S3 prevede che la finestra sia raffreddata per mezzo di una circolazione di gas forzata con sistemi di pompaggio che conducono il gas agli scambiatori di calore all'esterno del vessel del reattore. La seconda opzione (soluzione S4) invece prevede l'utilizzo di un target solido raffreddato con elio.

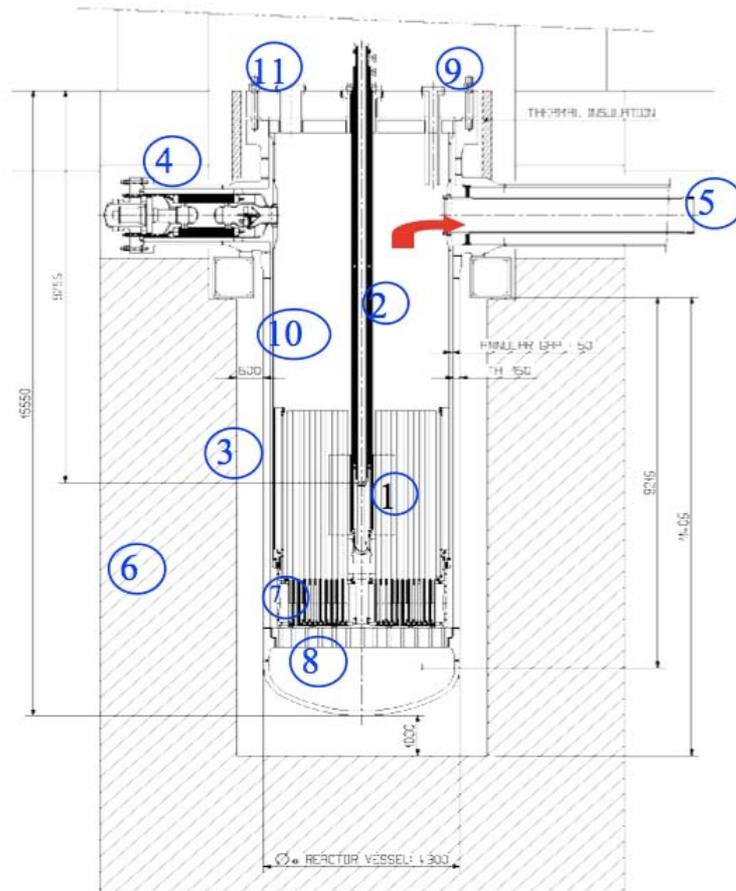
Il nocciolo è costituito da file concentriche all'unità che ospita il target di 90 elementi di combustibile. Attorno al nocciolo vi sono un riflettore di alluminio e una schermatura di carburo di boro  $\text{B}_4\text{C}$ , materiale che assorbe i neutroni senza formare radionuclidi con lungo tempo di dimezzamento. Nella periferia del nocciolo sono posizionate tre barre di assorbitori di neutroni da usare solo in caso di accidentale ingresso di acqua nel nocciolo o di errori nel maneggiamento del combustibile.

#### 5.4.3 Design C: MYRRHA raffreddato con LBE

MYRRHA (Multi-purpose hYbrid Research Reactor for High-tech Application) è un ADS sperimentale in sviluppo a Mol in Belgio fin dal 1997.

L'acceleratore lineare di protoni fornisce un fascio in ingresso di 350 MeV (5 mA) o 600 MeV (2.5 mA) che incide sul target di spallazione costituito dalla miscela LBE, raffreddato con la stessa sostanza in configurazione senza finestra. Nell'ambito del progetto MEGAPIE la fattibilità di una configurazione con finestra era stata dimostrata per basse intensità di fascio protonico. Ma per le intensità di fascio richieste dal progetto MYRRHA, un target con finestra risultava inaccettabile a causa della sua breve vita e della sua forte inaffidabilità. Il progetto è rappresentato in FIG. 20 e le sue caratteristiche

nominali sono riportate in TAB. 6. La piscina del reattore è contenuta in un doppio muro all'esterno del quale è costruita una barriera con la funzione di schermare il suolo dalla radiazione: il progetto prevede infatti che il reattore sia costruito nel sottosuolo. La schermatura è chiusa sopra il coperchio del reattore per formare una cella calda per le operazioni remote di mantenimento del reattore.



**FIG. 20:** Design B. 1: nocciolo sottocritico; 2: target; 3: vessel del reattore; 5: conduttura; 10: vessel interno<sup>25-27</sup>).

Dal coperchio del reattore scende verso il centro del vessel una colonna centrale, su cui è montato il nocciolo, che viene stabilizzata dalla struttura conica chiamata *diaframma*. Il diaframma è il setto separatore tra il refrigerante LBE caldo e a bassa pressione, che si trova nella parte superiore della piscina, dal refrigerante freddo ma a più alta pressione che si trova nella parte inferiore. In questo progetto, analogamente alla soluzione S2 presentata per il design A, il fascio protonico incide direttamente sulla superficie libera dell'LBE liquido. Il nocciolo di MYRRHA è costituito da 99 assemblaggi esagonali: non tutti

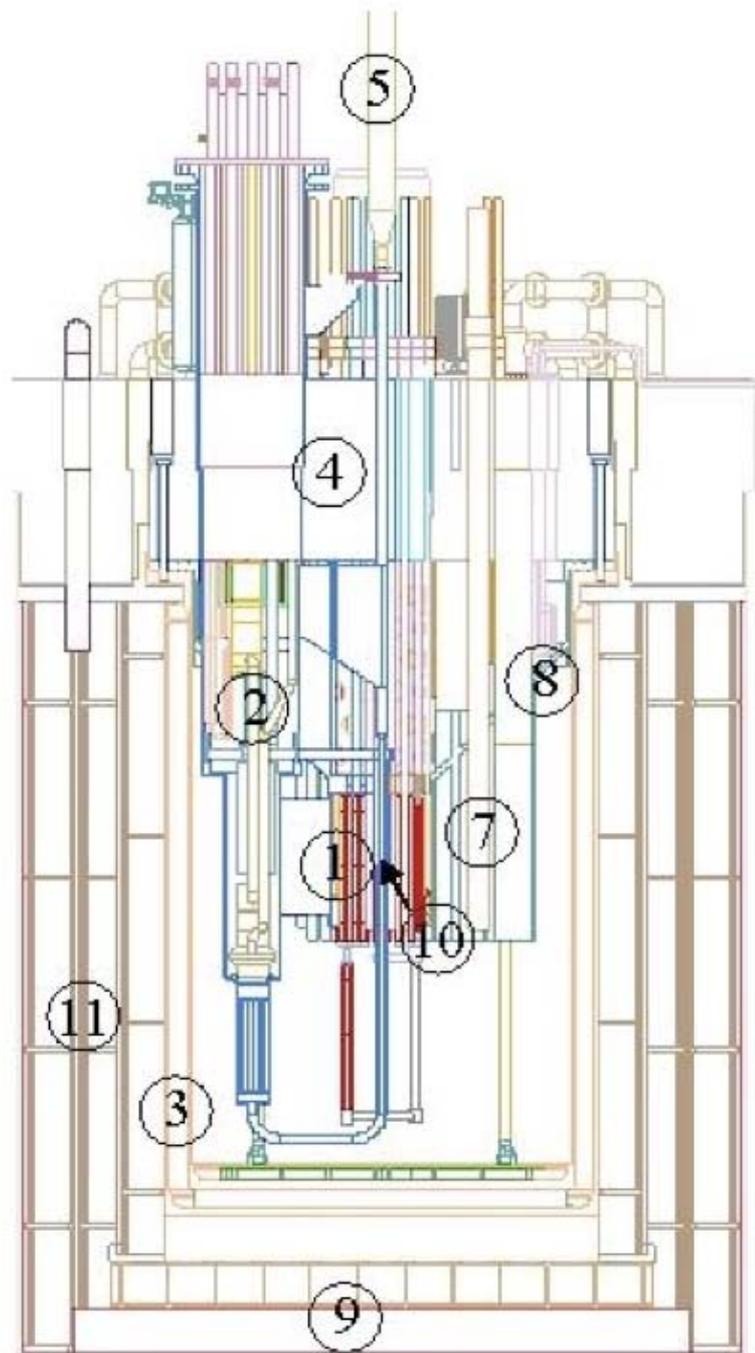
vengono riempiti con combustibile MOX come si può osservare in FIG. 21. In rosso sono rappresentati i 54 settori riempiti di barre di combustibile MOX arricchito al 30% in plutonio. Gli attinoidi minori sono inseriti nel reattore in sei settori disposti in forma triangolare (esagoni arancione in FIG. 22).

**TAB. 7:** Composizione delle barre di combustibile usate nel reattore MYRRHA.

<b>Elemento</b>	<b>Isotopi</b>	<b>Frazione in peso (ripartita per isotopi)</b>	<b>Frazione in peso (totale)</b>
Uranio	<sup>234</sup> U	0.002	61.77
	<sup>235</sup> U	0.25	
	<sup>236</sup> U	0.062	
	<sup>238</sup> U	61.456	
Plutonio	<sup>238</sup> Pu	0.336	26.47
	<sup>239</sup> Pu	16.380	
	<sup>240</sup> Pu	6.220	
	<sup>241</sup> Pu	2.369	
	<sup>242</sup> Pu	1.165	
Ossigeno	-	11.76	11.76

Ogni assemblaggio di prodotti di fissione a lunga vita è costituito da 37 barre di combustibile circondate da due anelli di barre di acciaio. Per ammorbidire lo spettro neutronico, favorendo la risonanza nello spettro per la cattura di neutroni da parte del <sup>99g</sup>Tc, sono posizionate delle barre di acciaio nelle zone di transizione tra gli assemblaggi di barre di combustibile e le aree dove sono alloggiati le barre contenenti prodotti di fissione.

In TAB. 7 e TAB. 8 sono riportate le composizioni in peso degli elementi costituenti le barre di combustibile e le barre per la trasmutazione di attinoidi minori. I primi risultati di irraggiamento degli attinoidi minori contenuti nelle barre hanno mostrato una diminuzione del contenuto di plutonio e americio e una netta crescita del contenuto di curio. Al termine del ciclo di esposizione durato un anno, il contenuto di plutonio era diminuito del 4%, il contenuto di americio era diminuito del 10% mentre il contenuto di curio era aumentato del 19%. I risultati di tale ciclo sono riportati in TAB. 9 <sup>25-27</sup>.



**FIG. 21:** Design C. 1: nocciolo sottocritico; 2: ciclo di spallazione; 3: doppio muro del vessel; 4: coperchio del reattore; 5: tubo del fascio di protoni; 6: braccio meccanico per la manipolazione del combustibile; 7: pompa primaria e scambiatore di calore; 8: diaframma; 9: struttura di supporto 10: target senza finestra; 11: buca in cui è alloggiato il reattore.

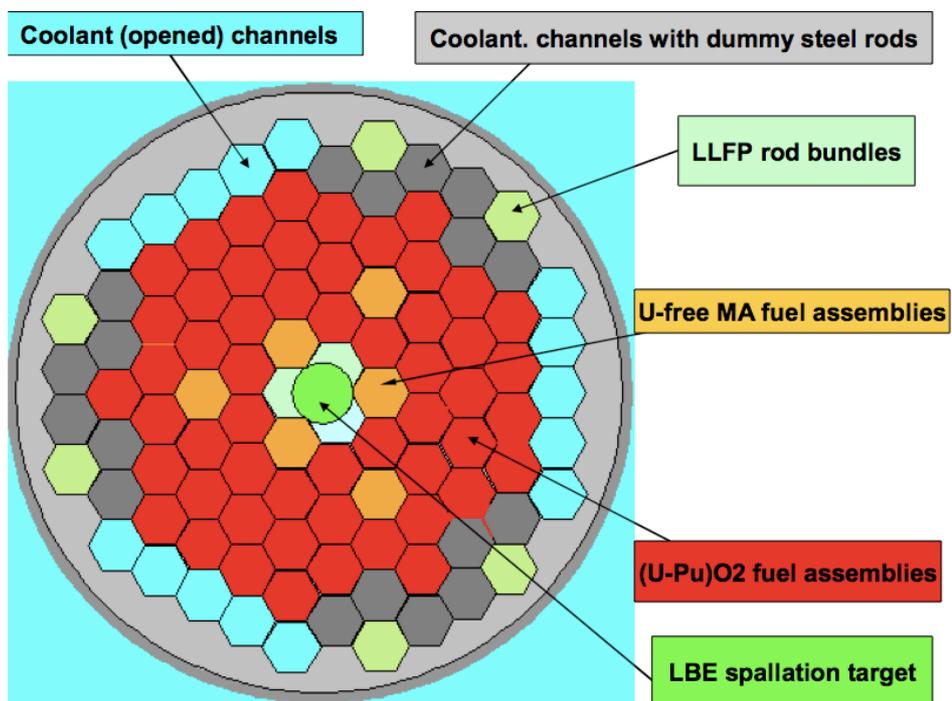


FIG. 22: Configurazione del nocciolo in MYRRHA.

TAB. 8: Composizione delle barre di attinoidi minori usate nel reattore MYRRHA.

Elemento	Isotopi	Frazione in peso (ripartita per isotopi)	Frazione in peso (totale)
Plutonio	$^{238}\text{Pu}$	1.177	23.25
	$^{239}\text{Pu}$	8.814	
	$^{240}\text{Pu}$	7.047	
	$^{241}\text{Pu}$	3.071	
	$^{242}\text{Pu}$	3.141	
Americio	$^{241}\text{Am}$	20.21	30.32
	$^{243}\text{Am}$	10.11	
Curio	$^{244}\text{Cm}$	5.454	6.06
	$^{245}\text{Cm}$	0.606	
Magnesio	-	19.18	19.18
Ossigeno	-	20.19	20.19

**TAB. 9:** Risultati del ciclo d'irraggiamento per la trasmutazione degli attinoidi minori nel reattore MYRRHA.

Elemento	Massa del componente (g)				
	BOC		$\Delta$ Massa = massa(EOF) – massa (BOC)		
	Posizione A	Posizione D	Posizione A	Posizione D	somma
<sup>238</sup> Pu	183.05	183.05	73.68	64.04	137.72
<sup>239</sup> Pu	1 371.43	1 371.43	-195.87	-168.75	-364.62
<sup>240</sup> Pu	1 096.49	1 096.49	-6.91	-1.65	-8.56
<sup>241</sup> Pu	477.88	477.88	-72.56	-65.80	-138.36
<sup>242</sup> Pu	488.74	488.74	35.46	31.09	66.55
<b>Pu</b>	<b>3 617.60</b>	<b>3 617.60</b>	<b>-166.21</b>	<b>-141.06</b>	<b>-307.27</b>
<sup>241</sup> Am	3 015.55	3 015.55	-392.50	-355.65	-728.15
<sup>242m</sup> Am			60.13	52.77	112.9
<sup>243</sup> Am	1 509.40	1 509.40	-159.44	-136.91	-296.35
<b>Am</b>	<b>4 524.95</b>	<b>4 524.95</b>	<b>-491.82</b>	<b>-419.78</b>	<b>-911.6</b>
<sup>242</sup> Cm			116.49	101.16	217.65
<sup>243</sup> Cm			2.01	1.47	3.48
<sup>244</sup> Cm	813.62	813.62	57.85	46.52	104.36
<sup>245</sup> Cm	90.40	90.40	9.21	7.85	17.06
<sup>246</sup> Cm			1.84	1.55	3.38
<b>Cm</b>	<b>904.03</b>	<b>904.03</b>	<b>185.56</b>	<b>156.99</b>	<b>342.55</b>
<b>TOTALE</b>	<b>18 093.16</b>				<b>-876.32</b>

#### 5.4 6th Framework Programme of EU: Da XT-ADS a EFIT

Nell'ambito del progetto EUROTRANS nel 6th Framework Programme of EU è stato finanziato lo sviluppo del progetto di ADS sperimentale, XT-ADS (eXperimental demonstration of Transmutation Accelerator Driven System), con lo scopo di dimostrare la fattibilità tecnica di sistema ADS per la trasmutazione. Inizialmente verrà utilizzato combustibile convenzionale MOX e le operazioni saranno condotte a temperature ridotte utilizzando come liquido primario di raffreddamento la miscela eutettica LBE. In questo contesto verranno dunque verificate le componenti degli **EFIT** (European Facility for Industrial Transmutation), reattori di centinaia di MW<sub>th</sub> di potenza raffreddati a piombo, da realizzare in seguito. Lo XT-ADS sarà operativo nel 2017 – 2018 e dovrà dimostrare l'operabilità del reattore ADS (effettuando con successo l'accoppiamento tra acceleratore, target di spallazione e nocciolo sottocritico), dovrà permettere di testare le varie componenti per EFIT e dovrà dimostrare la possibilità di realizzare strutture per la trasmutazione delle scorie nucleari. EFIT è progettato per lavorare con combustibile composto da attinoidi minori e si progetta di renderlo operativo intorno al 2040: oltre alla capacità di bruciare efficientemente parte delle scorie radioattive dei reattori convenzionali (la componente di attinoidi minori), produrrà energia elettrica ad un costo non eccessivo.

Le caratteristiche dei due progetti sono riportate in TAB. 10.

**TAB. 10:** Caratteristiche principali dell'ADS sperimentale XT-ADS e del bruciatore industriale EFIT.

	<b>XT- ADS</b>	<b>EFIT</b>
<b>Caratteristiche</b>	Facility test per il bruciatore EFIT	Bruciatore industriale di scorie
<b>Potenza</b>	50-100 MW <sub>th</sub>	>100 MW <sub>th</sub>
<b>k<sub>eff</sub></b>	0.95	0.97
<b>Fascio protonico</b>	Circa 1.5 MW: <ul style="list-style-type: none"> <li>• 350 MeV x 5 mA</li> <li>• 600 MeV x 2.5 mA</li> </ul>	Circa 16 MW: 800 MeV x 20 mA
<b>Combustibile</b>	MOX convenzionale	Nuovo combustibile ricco di attinoidi e privo di uranio
<b>Raffreddamento</b>	Miscela eutettica LBE	Piombo (He come soluzione di backup)

L'acceleratore che fornisce il fascio protonico in ingresso, per entrambi i progetti, è un Linac basato su tecnologia RF superconduttiva operante in modalità CW (onda continua). L'acceleratore deve fornire un fascio con un numero molto basso di interruzioni inattese durante l'anno, soprattutto nel caso di un trasmutatore a livello industriale (EFIT): le interruzioni del fascio apportano danni alle strutture del reattore, al target e agli elementi di combustibile, oltre a ridurre l'operatività della centrale.

Per EFIT è stato stimato che possono avvenire al massimo 5 interruzioni all'anno con durata superiore al secondo. Per raggiungere un obiettivo così ambizioso l'acceleratore deve essere sovradimensionato e con pianificazione di ridondanze e capacità di tolleranze ai guasti.

*L'iniettore di protoni è duplicato:* nel caso di malfunzionamento di uno dei due è possibile passare velocemente all'altro. Il Linac superconduttivo ha un design modulare e ripetitivo dato che l'intera linea di fascio è formata da diverse sezioni acceleranti raggruppate in criomoduli. Tutte le componenti operano molto al di sotto del limite tecnologico ad esse associate e quindi è garantito un alto livello di tolleranza in caso di fallimento. A livello del target di spallazione le caratteristiche del fascio devono avere variazioni limitate.

#### 5.4.1 XT-ADS

Il design del 2005 di MYRRHA è servito come base di partenza per lo XT-ADS, secondo i suggerimenti di Ansaldo Nucleare, AREVA e dei partecipanti al progetto **EUROTRANS**.

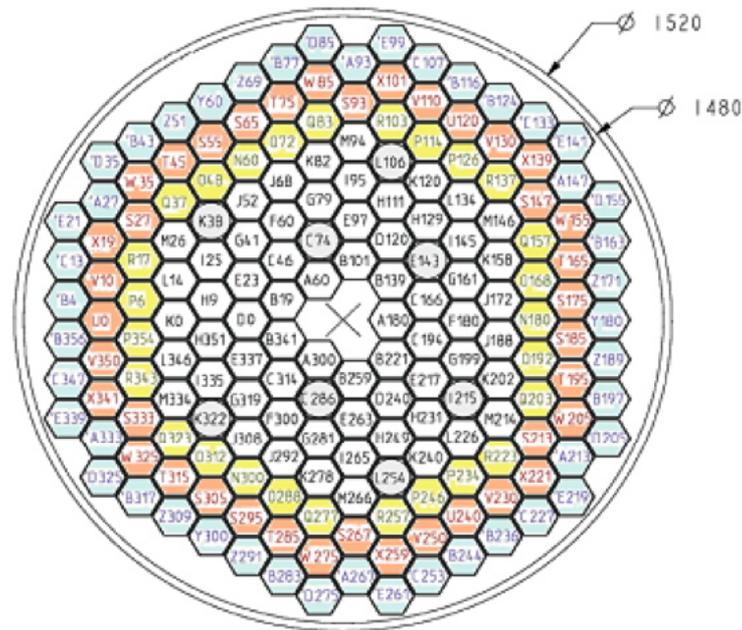
Il problema che ha ricevuto maggiore attenzione inizialmente è stato quello del danneggiamento delle componenti strutturali dovuto all'irraggiamento neutronico: il nocciolo sottocritico è stato quindi allargato di due ulteriori file di elementi di combustibile caricate con cilindretti di B<sub>4</sub>C e acciaio. L'aggiunta delle due file di elementi di combustibile e di una maggiore quantità di liquido refrigerante sono sufficienti a ridurre i danni delle strutture, nonostante le performance del nocciolo sono penalizzate. Il nocciolo dunque contiene le 99 posizioni originali più 84 posizioni, per un totale di 183 (FIG. 23). Di queste, 8 colonne sono accessibili dalla copertura del reattore: ciò consente di modificare la disposizione del nocciolo per studiarne il comportamento in diverse condizioni. Sono state proposte quattro disposizioni: due contenenti solo materiale non fissile (barre di acciaio) e due contenenti elementi di combustibile (per testare la composizione del combustibile).

Una parte del programma prevede l'accoppiamento di un reattore veloce con piombo con un acceleratore di deuteroni per:

- verificare la dinamica di un reattore sottocritico a bassa potenza (circa 100 W) accoppiato ad un acceleratore CW variando parametri quali sottocriticità, temperatura;
- determinare la relazione corrente-potenza sperimentalmente;
- studiare più approfonditamente la fisica di un reattore veloce raffreddato a piombo;
- verificare che la struttura semplificata soddisfi i requisiti di sicurezza e di licensing richiesti.

La struttura prevede l'utilizzo del reattore critico **VENUS** modificato per operare con piombo (prima era refrigerato ad acqua) e con un combustibile di uranio metallico arricchito al 30% accoppiato all'acceleratore di deuteroni **GENEPI** che fornisce un fascio in modalità continua (con e senza interruzioni di fascio) e modalità pulsata. Il progetto è denominato **GUINEVERE** (Generator of Uninterrupted Intense NEutrons at the lead VEnus REactor).

In data 04/03/10 il Primo Ministro Yves Leterme annunciò in conferenza stampa che il governo del Belgio supporterà il progetto MYRRHA con finanziamenti pari al 40% del budget totale che ammonta a 960 M€. Nello stesso giorno è stata anche inaugurata la struttura che ospita il modello test GUINEVERE.



**FIG. 23:** Disposizione del nocciolo dello XT-ADS MYRRHA.

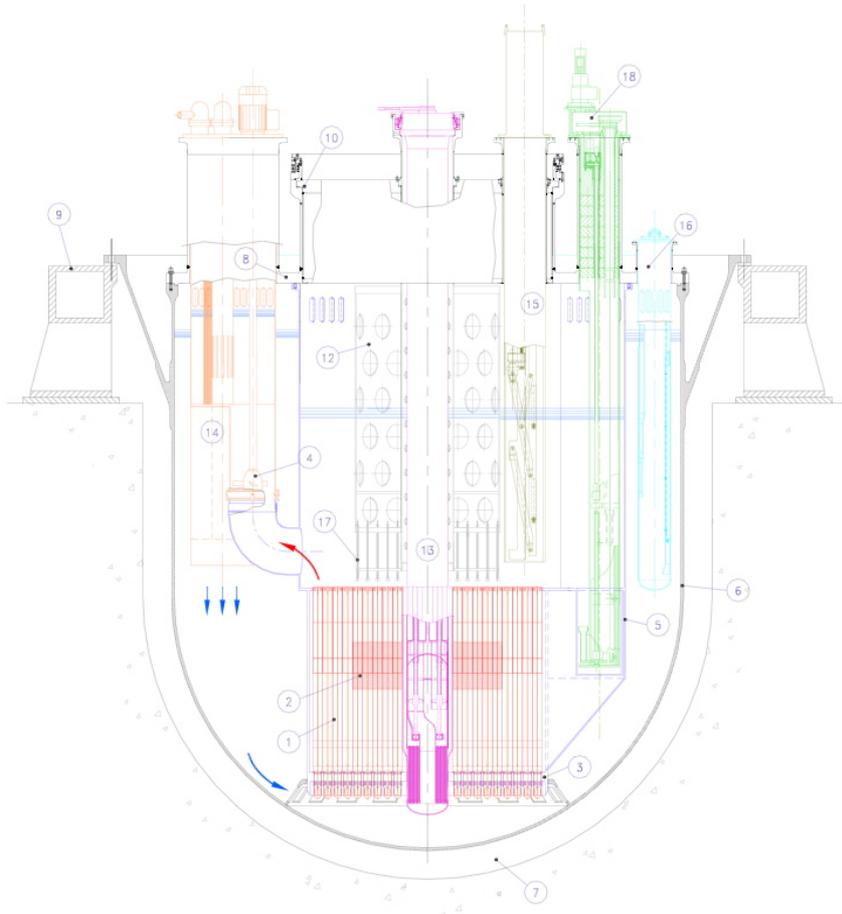
#### 5.4.2 EFIT

Il bruciatore (FIG. 24) è stato sviluppato a partire dal design Ansaldo, utilizza il piombo come liquido raffreddante nel circuito primario e nel target di spallazione. Questa scelta pone qualche problema dal punto di vista della scelta dei materiali: il piombo è altamente corrosivo per le strutture del reattore ma permette di raggiungere temperature maggiori nel nocciolo.

Il fascio di protoni viaggia in un canale mantenuto sotto vuoto. I neutroni sono generati per spallazione del fascio protonico sul target di piombo liquido mantenuto in circolazione all'interno dell'unità per mezzo di due pompe in serie collegate a generatori di energia indipendenti. La corrosione delle strutture viene limitata mantenendo la velocità del piombo a valori inferiori ai  $2 \text{ m.s}^{-1}$ .

Il reattore EFIT è in configurazione a piscina: tutto il refrigerante primario è contenuto nel vessel del reattore. La rimozione del calore di decadimento è fatta per mezzo di quattro circuiti indipendenti riempiti di fluido organico diatermico. La scelta di utilizzare il piombo liquido presenta diversi vantaggi: l'esperienza su reattori veloci raffreddati con metalli è significativa (basata sull'utilizzo di reattori raffreddati a sodio come Superphénix), il piombo presenta buone proprietà nucleari e non ha reazioni chimiche veloci con l'acqua e il fluido diatermico organico. Nonostante sia stato proposto e studiato l'utilizzo della miscela LBE, il piombo puro è più economico, più abbondante e

meno pericoloso dal punto di vista radiologico: infatti il piombo tende a trattenere i radionuclidi più pericolosi anche in caso di incidenti che causano forti danni al combustibile e il rate di *produzione di polonio* è 3-4 ordini di grandezza più basso rispetto alla miscela LBE.



**FIG. 24:** Sezione orizzontale del bruciatore EFIT. Componenti principali: 1: nocciolo; 4: sistema di pompaggio primario; 5: vessel interno cilindrico; 6: vessel del reattore; 7: cavità del reattore; 8: tetto del reattore; 9: supporto del vessel del reattore; 13: target sottocritico; 14: generatore di vapore; 15: macchinario per il maneggiamento del combustibile.

Le temperature operative sono di 400°C all'interno del nocciolo e 480°C all'esterno. La temperatura esterna è stata definita considerando che la corrosione da parte del piombo fuso aumenta con la temperatura e che mantenere una temperatura troppo bassa richiederebbe un flusso di fluido refrigerante (piombo) maggiore, che porterebbe ad aumentare la corrosione delle strutture. Le temperature proposte sono quindi un compromesso tra la protezione dalla corrosione e la performance del reattore.

EFIT utilizza combustibile *privo di uranio*: questo permette di evitare la produzione di plutonio per venire incontro alle richieste dell'opinione pubblica e degli stati preoccupati per ragioni di proliferazione nucleare. Nel progetto il tasso di smaltimento di attinoidi minori è di  $42 \frac{kg}{TW \cdot h}$  l'arricchimento del combustibile in plutonio è stabilito a circa 45.7%.

Il nocciolo di EFIT è composto da 180 elementi di combustibile composti da 168 barre ciascuno di lunghezza attiva 90 cm. Come già evidenziato in precedenza per gli XADS, il nocciolo del reattore deve rimanere sottocritico senza l'utilizzo barre di controllo. Valutazioni preliminari hanno permesso di stabilire il valore di sottocriticità del reattore EFIT  $k_{eff} = 0.97$  per operatività alla potenza nominale. La potenza del sistema primario è di 416 MW<sub>th</sub> circa di cui 395 MW<sub>th</sub> derivanti dal nocciolo e 11.2 MW<sub>th</sub> derivanti dalla spallazione.

## 5 CONCLUSIONI

La crescita della popolazione mondiale, la prosperità economica e la crescente domanda di energia si scontrano con i limiti delle risorse energetiche naturali e l'impatto ambientale dell'utilizzo della fonte fossile; una centrale nucleare da 1 000 MW richiede ogni anno 20 ton di combustibile e produce:

- 600 kg di scorie ad alta attività derivanti dal ritrattamento del combustibile esausto;
- 2 ton di rifiuti di processo ad alta attività;
- 20 ton di rifiuti di processo a bassa e media attività.

Una centrale a carbone della medesima potenza necessità di  $2 \cdot 10^6$  ton di combustibile e produce:

- $7 \cdot 10^6$  ton di CO<sub>2</sub> (con i fumi che contengono anche uranio e torio);
- $1,2 \cdot 10^5$  ton di SO<sub>2</sub>;
- $10^5$  ton di ceneri che contengono Hg e metalli pesanti in parte tossici.

L'utilizzo della fonte nucleare nel futuro fornirà quindi una percentuale sempre crescente dell'energia elettrica mondiale.

Come si legge dall'introduzione dell'allegato I al 6<sup>th</sup> PROGRAMMA QUADRO EURATOM (2002 – 2006): “il 35% dell'elettricità prodotta nell'Unione Europea deriva dall'energia nucleare che è quindi un elemento del dibattito sulla lotta contro il cambiamento climatico e sulle possibilità di ridurre la dipendenza energetica dell'Unione Europea. Le sfide da affrontare sono però notevoli. [...] A breve termine bisogna trovare soluzioni per i residui nucleari che siano sicure e accettabili per la società, in particolare

soluzioni tecniche per la gestione dei residui a lunga vita”. Questo però porta alla necessità di designare una nuova generazione di reattori, la cosiddetta *Generazione IV* (che è dovrebbe essere operativa tra il 2030 e il 2050) per cui sono richiesti uno sviluppo sostenibile della produzione di energia, soluzioni tecniche accettabili dal punto di vista politico e pubblico sull’argomento dei rifiuti radioattivi e riduzione del rischio di proliferazione. L’utilizzo su larga scala della fonte nucleare richiede il passaggio ad un ciclo di combustibile dove l’uranio viene riciclato e completamente riutilizzato. Nei reattori termici si utilizza circa l’1% dell’energia contenuta nell’uranio naturale estratto: utilizzando in gran quantità reattori veloci è possibile migliorare sensibilmente l’efficienza di utilizzo dell’uranio. Inoltre il riprocessamento di plutonio (per mezzo dell’utilizzo di combustibile MOX) e attinoidi minori permette di minimizzare i rischi a lungo termine per l’ambiente e per l’uomo. Infine processare il combustibile esausto separando tutti gli elementi transuranici e trasmutandoli in strutture innovative quali gli ADS, permette di chiudere il ciclo del combustibile apportando una netta riduzione della radiotossicità nel lungo periodo. La radiotossicità del combustibile esausto si riduce a quella di partenza (cioè la radiotossicità dell’uranio naturale estratto dalla miniera) dopo più di  $10^6$  anni: per non contaminare la biosfera è necessario stoccare tali rifiuti in depositi geologici profondi e stabili per periodi di tempo superiori al milione di anni: questa è una pesante eredità per il futuro oltre ad essere difficilmente realizzabile dal punto di vista tecnico.

La strategia P&T (partitioning and transmutation) permette di ridurre questo tempo a 700-1000 anni. Le scelte politiche nazionali inoltre interferiscono pesantemente con la missione di *Generazione IV*, sia per la gestione del combustibile esausto e delle scorie, sia per le grosse differenze nazionali riguardo al riprocessamento e al rischio di proliferazione. Gli ADS possono giocare un ruolo importante nella transizione verso la nuova generazione di ciclo nucleare sostenibile e non proliferante. Se la trasmutazione di attinoidi minori e prodotti di fissione a lunga vita risulta difficilmente realizzabile (sia dal punto di vista tecnico, sia da quello economico) nei reattori termici esistenti ad oggi, e la trasmutazione nei reattori veloci presenta inconvenienti se il contenuto di attinoidi minori nel combustibile è troppo alto, gli ADS presentano indubbi vantaggi ma sono necessari maggiori sforzi di ricerca prima che questa tecnologia possa essere disponibile su scala industriale. Non c’è inoltre uniformità di obiettivi tra gli esperti: è necessario costruire una centrale test di riprocessamento per poterne verificare le caratteristiche ed in seguito una centrale su scala industriale: è prevista l’implementazione di un prototipo entro il 2030 e l’inizio dell’utilizzo di ADS su scala industriale a partire dal 2040. La produzione di energia per mezzo di reattori nucleari deve essere inoltre competitiva con le altre fonti di energia, cioè il costo non deve eccedere i 0.03 € / kW.h (sulla base dei prezzi dell’anno 2000) e l’investimento per lo stabilimento non deve superare i 1 000 €/kWe installato.

La *Generazione IV* di reattori <sup>31,17)</sup>, con 6 diversi designs, offre prospettive per un ciclo nucleare maggiormente sostenibile sia dal punto di vista delle risorse che dell’impatto in termini di scorie da inviare ai depositi. Ma in un mercato libero che deve considerare

anche la competitività delle procedure non è detto sia possibile prendere in considerazione lo smaltimento delle scorie derivanti da 50 anni di attività di ciclo a singolo passaggio. La strategia non mira all'eliminazione dei depositi, è sinergica con quella della creazione di depositi geologici atti a contenere le scorie nucleari trasmutate: come conseguenza delle procedure di partizione e trasmutazione però, si hanno volumi minori di rifiuti radioattivi e minori tempi di stoccaggio necessari, quindi requisiti di stabilità, sicurezza del deposito inferiori

## 6 BIBLIOGRAFIA

- (1) Energy Technology Roadmaps project, at [www.iea.org/roadmaps](http://www.iea.org/roadmaps), [www.iea.org/about/copyright.asp](http://www.iea.org/about/copyright.asp) (ed. OECD/IEA and OECD/NEA, 2010).
- (2) K.H. Lieser, Nuclear and Radiochemistry: Fundamental and Applications, 2-nd ed. (ed. WILEY-VHC, Weinheim, FRG, 2001).
- (3) A. Vértes, S. Nagy, Z. Klencsár, Handbook of Nuclear Chemistry, Vol. 5: Instrumentation, Separation Techniques, Environmental Issues (ed. Kluwer Academic Publishers, Netherlands, 2003).
- (4) International Nuclear Societies Council, Current Issues in Nuclear Energy, Radioactive Waste (ed. ANS, La Grange Park, IL, USA, 2002).
- (5) J. Magill, G. Pfennig, J. Galy, Karlsruher Nuklidkarte, European Commission Joint Research Centre Institute for Transuranium Elements, Germany, 2007.
- (6) P. Pierini, Il Bruciamento delle Scorie Nucleari: Le Sfide Tecnologiche e i Programmi in Corso, presentazione INFN.
- (7) Nuclear Wastes, Technologies for Separations and Transmutation, National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
- (8) The European Technical Working Group on ADS, A European Roadmap for Developing Ads For Nuclear Waste Incineration, ENEA, Roma, 2001
- (9) K. Tuček, Neutronic and Burnup Studies of Accelerator Driven Systems dedicated to Nuclear Waste Transmutation, Royal Institute of Technology, Stockholm, 2004.
- (10) ICRP PUBLICATION 60, Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, Ann. ICRP, 1991.
- (11) Bonardi M., Groppi F., Mainardi H. S. et al., Impressioni e Considerazioni dal Winter Meeting 2001 dell'American Nuclear Society, Reno, Nevada, USA (ed. SIS-Pubblicazioni, Laboratori Nazionali di Frascati, 2001).
- (12) Commission on Geosciences, Environment and Resources, Nuclear Wastes: Technologies for Separations and Transmutation (ed. National Academy Press, Washington D.C. USA, 1996).
- (13) Council Directive laying down Basic Safety Standards for the Protection of the Health, N° 96/29/EURATOM, 1996.
- (14) Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers, (ed. pubblicazione ICRP

- 76, 1995).
- (15) Age Dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: PART 5 – Compilation of Ingestion and Inhalation Dose Coefficients (ed. pubblicazione ICRP 76, 1995).
  - (16) Accelerator Driven Systems and Fast Reactors in Advanced Nuclear Fuel Cycles, (ed. OECD, 2002).
  - (17) M.L. Bonardi, F. Groppi, S. Manenti, E. Rizzio, E. Sabbioni, Nuclear Chemistry, Radiochemistry, Radiation Chemistry, Health Physics and Sustainable Nuclear Energy Production, Rapporto INFN/TC-10/02, 18 Giugno 2010.
  - (18) M. Bonardi, F. Groppi, Presente e Futuro nell'utilizzo delle Risorse Energetiche Nucleari con una Valutazione di Rischi e Beneficii: L'anomalia del Caso Italiano, Rapporto INFN/TC-10/06, 23 Giugno 2010.
  - (19) [http://fusione.altervista.org/riprocessamento\\_del\\_combustibile\\_nucleare.htm](http://fusione.altervista.org/riprocessamento_del_combustibile_nucleare.htm)  
#La\_trasmutazione\_degli\_elementi
  - (20) G. De Angelis, Elettrorefinazione di Lantanidi Mediante Impianto Pilota PYREL II, ENEA, Report RSE/2009/142, 2008.
  - (21) <http://eur-lex.europa.eu/LexUriServ/LexUriServ.do?uri=CELEX:31999E0878:IT:HTML>
  - (22) <http://cdsweb.cern.ch/record/781330>
  - (23) B. Carlucci, L. Cinotti, ADS Status of the Studies performed by the European Industry, proceedings of international workshop on P&T and ADS development (ed. Mol, Belgium, 2003).
  - (24) W. Rubinson, The Equations of Radioactive Transformation in a Neutron Flux, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, 1948
  - (25) <http://myrrha.sckcen.be/en>
  - (26) E. Malambu, W. Haeck, V. Sobolev, H. Abderrahim, MA and LLFP transmutation performance assessment in the MYRRHA small scale ADS (ed. 8<sup>th</sup> Information Exchange Meeting, Las Vegas, Nevada USA, 2004).
  - (27) SCKCEN, MYRRHA-XT CORE DESIGN (ed. Scientific Report, Mol, Belgium, 2007).
  - (28) A. Barbensi, G. Corsini, L. Mansani C. Arttioli, G. Glinatsis, EFIT: The European Facility for Industrial Transmutation of Minor Actinides (ed. Pocatello, Idaho USA, 2007).
  - (29) G. Richard, H. Hewlett and O.E. Anderson, Jr., The New World: A History of The United States Atomic Energy Commission, Vol 1, Oak Ridge, Tennessee USA, 1962.
  - (30) L. Cinotti, B. Giraud, H. Abderrahim, The Experimental Accelerator Driven System (Xads) Designs in The Euratom 5<sup>th</sup> Framework Programme, J. Nucl. Mat. **335**, 148, (2004).
  - (31) <http://www.gen-4.org>