Fisica nucleare per i reattori di IV Generazione

Nuclear Data for Science, Technology and ... Society (Hans Blix, ND 2007)



N. Colonna INFN - Sezione di Bari





Outline

- Dati nucleari necessari per Gen IV
- I fasci di neutroni nel mondo
- La facility n_TOF al CERN
- Recenti risultati ad n_TOF
- Conclusione

I dati nucleari per i reattori di nuova generazione

L'industria nucleare chiede continuamente **dati nucleari più accurati** (e stima delle incertezze associate), sia per la progettazione dei nuovi reattori, che per migliorare l'efficienza e la sicurezza di quelli odierni.

Si stima che dati migliori porterebbero **benefici economici** dell'ordine di centinaia di milioni di dollari all'anno nella gestione dei reattori nucleari.

Dati nucleari sono richiesti, per reattori presenti e futuri, al fine di:

- operare delle scelte nella progettazione
- ottimizzare la sicurezza
- evitare scelte ingiustificatamente conservative
- minimizzare gli investimenti

Per la progettazione dei reattori di nuova generazione, necessarie sezioni d'urto neutroniche su un gran numero di isotopi.



I dati nucleari per i reattori di nuova generazione

Dati nucleari necessari per i reattori:

- sezioni d'urto su tutte le reazioni possibili in un reattore (cattura, fissione, inelastiche)
- molteplicità e spettro energetico dei neutroni
- neutroni ritardati (difficili da misurare)
- distribuzione di massa dei frammenti di fissione
- decadimenti beta

I dati attualmente esistenti riguardano perlopiù reattori termici a U/Pu. Necessario migliorare l'accuratezza dei dati per:

- energie dei neutroni più elevate (reattori veloci)
- **nuovi isotopi** che entrano nel ciclo del combustibile (scorie, in particolare attinidi minori)
- nuovo ciclo di combustibile (Th/U)



Il ciclo di combustibile Th/U

$$^{232}\text{Th} + \text{n} \longrightarrow ^{233}\text{Th} \xrightarrow{\beta^- (22 \text{ min})} ^{233}\text{Pa} \xrightarrow{\beta^- (27 \text{ d})} ^{233}\text{U}$$



Il ²³²Th è l'isotopo fertile: a seguito della cattura neutronica (e successivi decadimenti β), produce il ²³³U, isotopo fissile.

Necessarie sezioni d'urto accurate su 232 Th(n, γ) e 233 U(n,f), ma non solo.

Importante le sezioni d'urto di cattura e fissione del ²³³Pa, molto difficile da misurare direttamente.



I dati nucleari

Per le reazioni indotte da neutroni, risultati sperimentali disponibili in un file:

- nome: EXFOR (Experimental nuclear reaction data)
- a cura di: Nuclear Data Centers Network, coordinato dalla IAEA
- sito web: www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm (molti mirrors)



I database di sezioni d'urto



Accuratezze presenti e richieste per la progettazione dei reattori veloci

		Intervallo energia	Accuratezza presente (%)	Accuratezza richiesta (%)
U238	inel	0.5 ÷6.1 MeV	10 ÷20	2 ÷3
	capt	2.04 ÷24.8 keV	3 ÷9	1.5 ÷ 2
Pu241	fiss	454. eV ÷1.35 MeV	8÷20	2 ÷ 5
Pu239	capt	2.04 ÷498 keV	7 ÷15	4 ÷ 7
Pu240	fiss	0.498 ÷1.35 MeV	6	1÷3
Pu242	fiss	0.498 ÷2.23 MeV	19 ÷21	3 ÷5
Pu238	fiss	0.183 ÷1.35 MeV	17	3 ÷5
Am242m	fiss	67.4 keV ÷1.35 MeV	17	3 ÷4
Am241	fiss	2.23 ÷6.07 MeV	9	2
Am243	fiss	0.498 ÷6.07 MeV	12	3
Cm244	fiss	0.498 ÷1.35 MeV	50	5
Cm245	fiss	67.4 ÷183 keV	47	7
Fe56	inel	0.498 ÷2.23 MeV	16 ÷25	3÷6
Na23	inel	0.498 ÷1.35 MeV	28	4 ÷10
Pb206	inel	1.35 ÷2.23 MeV	14	3
Pb207	inel	0.498 ÷1.35 MeV	11	3
Si28	inel	1.35 ÷6.07 MeV	14 ÷50	3÷6
	Capt	6.07 ÷19.6 MeV	53	6

Necessaria accuratezza elevata (~3 %) per Pu e Attinidi Minori, da qualche keV a molti MeV

Lo strano caso del ²⁴³Am(n,f)



I database sezioni d'urto neutroniche (ENDF, JENDL, JEFF, BRONDL, etc...) per molti isotopi coinvolti nei Gen IV / ADS sono **incompleti**, presentano **discrepanze** fra loro o con i dati sperimentali (soprattutto per gli attinidi). **Dati sperimentali innattendibili.**

Chiaramente inadatti per le necessità connesse allo sviluppo di sistemi nucleari avanzati.

Necessari nuovi dati (in particolare per reazioni di **cattura e fissione**) per molti isotopi, molti dei quali radioattivi.

Lista delle richieste continuamente aggiornata da vari organismi internazionali. Ad esempio, la Nuclear Energy Agency (NEA-OECD) pubblica un report periodico: **THE HIGH PRIORITY NUCLEAR DATA REQUEST LIST.**



I dati nucleari

Attualmente in corso nel mondo una notevole attività di raccolta dei dati necessari per i reattori di IV Generazione, nonché per la compilazione di "evaluations" più accurate. Attività di ricerca supportata da diversi organismi nazionali ed internazionali.

La **Commissione Europea** incentiva e finanzia ricerca in Fisica Nucleare applicata alla realizzazione di reattori innovativi (EURATOM).

FP VII EURATOM

Topic: Fission-2009-2.3.2: Improved nuclear data for advanced reactor systems.

The combination of advanced simulation systems and more precise nuclear data will allow optimising the use of and need for experimental and demonstration facilities in the design and deployment of new reactors. A concerted effort including new nuclear data measurements, dedicated benchmarks (i.e. integral experiments) and improved evaluation and modelling is needed in order to achieve the required accuracies. The project shall aim to obtain high precision nuclear data for the major actinides present in advanced reactor fuels, to reduce uncertainties in new isotopes in closed cycles with waste minimisation and to better assess the uncertainties and correlations in their evaluation.



Le misure di sezioni d'urto

Le misure di sezioni d'urto sono affette da numerose incertezze:
massa, uniformità e purezza dei bersagli
efficienza di rivelazione
background e contaminazione del fascio di neutroni
Per la misura di isotopi radioattivi, problemi aggiuntivi:
elevato background "naturale" dovuto alla radioattività del bersaglio
disponibilità di bersagli adeguati (problemi di radioprotezione, separazione isotopica, etc...)

Non è facile misurare sezioni d'urto per "scorie radioattive" con accuratezze (richieste) di qualche percento.

Le misure più difficili richiedono **miglioramenti nelle tecniche sperimentali e nelle facilities** (ma non è chiaro se alcune misure potranno mai essere fatte).

Alcune misure attulamente "impossibili" possono essere eseguite con metodi alternativi (surrogate methods), o ricavati da modelli teorici.

Dove fare le misure

Per le applicazioni ai reattori (presenti e futuri) è fondamentale misurare sezioni d'urto neutroniche in un largo intervallo di energia, dal termico fino a molte decine di MeV, con alta accuratezza.

Importante misurare le risonanze (per i stima del self-absorption).

Neutroni termici

- Reattori
- Time of Flight facilities
- Regione delle risonanze risolte
 - TOF facilities (fotonucleari e spallazione)
- Regione delle risonanze non risolte
 - TOF facilities (fotonucleari e spallazione)
 - Fasci di neutroni monoenergetici da acceleratori di bassa energia

Alta energia (> 20 MeV)

- TOF facilities (sorgenti di spallazione)
- Fasci di neutroni da ciclotrone



Nel mondo esistono diverse facilities per neutroni, con caratteristiche diverse. Numerosi gruppi teorici (evaluators) collegati.

La tecnica del tempo di volo



INFN

I fasci di neutroni

Fasci di neutroni termici:

- Flussi elevati disponibili ai reattori nucleari
- Prodotti con acceleratori (vedi sotto), e moderati

Sorgenti di neutroni monoenergetici:

- tipicamente si usano reazioni con protoni o deutoni
 - D(d,n), T(p,n), T(d,n), ⁷Li(p,n), ⁹Be(p,n), ec...,
- necessari acceleratori di energia medio-bassa (qualche MeV, tipo VdG)
- l'energia dei neutroni dipende dall'energia del fascio primario
- In questo modo si possono produrre neutroni fino a 20 MeV

Facilities per tempi di volo (ToF):

- Largo spettro energetico
- richiede acceleratori impulsati
- Base di volo trade-off fra risoluzione energetica e flusso

 $(p,n)^{3}He$

D (d,n)³He

Time-of-flight facilities

Due tipi principali di facilities per tempi di volo

Fasci di neutroni prodotti con fasci di elettroni di alta intensità:

- gli elettroni producono raggi γ per bremmstrahlung
- i raggi γ producono neutroni attraverso le reazioni (γ,n) (reazioni fotonucleari)
- utilizzati bersagli ad alto Z (per esempio U)
- spettro di neutroni da termico fino a 20 MeV

Sorgenti di neutroni da spallazione:

- neutroni prodotti da fasci di **protoni di alta energia** (GeV)
- grossi blocchi di materiale pesante usati come bersagli di spallazione
- moderazione per largo spettro energetico dei neutroni



Sorgenti di neutroni per spallazione



Neutroni prodotti da una serie di **reazioni nucleari** (intranuclear cascade, preequilibrio, evaporazione, etc...) Necessita fasci di protoni di alta energia e bersagli di spallazione di grosse dimensioni.

La produzione di neutroni dipende dal **peso atom**ico e dalla **densità** del materiale → preferibile materiale ad alto Z.

Dipende dall'energia di protoni





Fasci di neutroni prodotti con acceleratori di elettroni



ORELA (Oak Ridge Electron Linear Accelerator, Oak Ridge, Tennessee, USA):

- fascio di elettroni da 180 MeV, su Ta, moderato ad acqua
- elettroni producono raggi γ per bremsstrahlung, e i raggi γ producono neutroni per reazioni fotonucleari (γ,n).
- 11 linee di fascio (distanza da 9 a 200 m)

GELINA (GEel **LIN**ear **A**ccelerator), Geel, Belgio:

- fascio di elettroni da 140 MeV, su U, raffreddato a mercurio
- 10 linee di fascio (base di volo fino a 200 m)
- energia dei neutroni da 5 meV a 20 MeV



The Los Alamos Neutron Science Center (LANSCE)

Utilizza **spallazione** di protoni da **800 MeV** su bersaglio di Tungsteno.



Due configurazioni per permettere misure in un largo spettro energetico:

- target con moderatore per misure a bassa energia
- target senza moderatore per misure fino a 200 MeV

Moltissime misure negli ultimi anni fatte a LANSCE. Fino a poco tempo fa LANSCE era la facility per spallazione migliore al mondo (ma non l'unica, per esempio GNEIS in Russia).

Fino a quando, su idea di Rubbia, nel 2000 è stata costruita n_TOF al CERN



La facility n_TOF

n_TOF è una sorgente di **spallazione** basata su protoni da **20 GeV/c** del PS su un blocco di Piombo (prodotti 360 neutroni per ogni protone), e unica base di volo di 200 m.



Basso repetition rate

Basso background

 1 pulse/2.4 s (0.8 Hz)
 bersagli radioattivi.

 10⁻⁵ (1 particella/cm²/pulse)

La facility n_TOF al CERN



Dettagli tecnici

- Bersaglio di spallazione: blocco di Pb 80x80x40 cm³
- Moderatore: 5 cm di acqua (usata anche per raffreddamento)
- Base di volo di 200 m (in un tunnel preesistente)
- Muri di ferro e cemento per schermaggio da n, γ , μ , etc...
- Magnete deflettore per particelle cariche nel fascio

INFN

Collimatori (2 cm per la reazioni di cattura e 8 cm per la fissione)





La Collaborazione n_TOF

Collaborazione n_TOF composta da 120 ricercatori da 40 Istituti (perlopiù europei)

Technische Universitat Wien	Austria
IRMM EC-Joint Research Center, Geel	Belgio
CEA, IN2P3	Francia
FZK – Karlshrue	Germania
Univ. Atene, Iannina, Demokritos	Grecia
Bhabha Atomic Research Center (BARC)	India
ENEA, INFN	Italia
LIP - Universitade de Coimbra, Politecnico Lisbona	Portogallo
Univ. Lodz	Polonia
Univ. Praga	Rep. Ceca
INR – Dubna, IPPE – Obninsk	Russia
CIEMAT, IFIC, USC, UC	Spagna
CERN, University of Basel	Svizzera
Univ. Notre Dame, ORNL, LANL	USA

Sezioni INFN coinvolte: Bari – Bologna – LNL – Trieste

15 ricercatori

Cofinanziamento CE: **FP5**: n-TOF-ND-ADS, **FP6**: EUROTRANS, **FP7**: ANDES



L'attività sperimentale ad n_TOF

Cattura

¹⁵¹Sm

^{204,206,207,208}Pb, ²⁰⁹Bi

^{24,25,26}Mg

90,91,92,94,96**Zr**, ⁹³**Zr**

^{186,187,188}Os, ¹³⁹La

²³²Th, ^{233,234}U

²³⁷Np,²⁴⁰Pu,²⁴³Am

Fissione

233,234,235,236,238

²³²Th, ²⁰⁹Bi

²³⁷Np

^{241,243}Am, ²⁴⁵Cm

Campagna sperimentale 2002-4

- Misure di reazioni di cattura neutronica:

- 25 Isotopi (8 radioattivi)
- Interesse anche per l'Astrofisica
- Numerose pubblicazioni e risultati interessanti

Measure di fissione:

- 11 isotopi (10 radioattivi)
- rilevanti per il ciclo Th/U, transmutazione e Gen IV
- forte interesse ai dati da parte delle Agenzie Atomiche Internazionali
- risultati immediatamente disponibili attraverso normali canali (pubblicazioni, EXFOR, conference, etc...)



Gli apparati sperimentali ad n_TOF



Le reazioni di cattura





Le reazioni di cattura

Le misure delle sezioni d'urto di cattura neutronica sono effettuate rivelando i raggi γ emessi a seguito della diseccitazione del nucleo composto formato nella cattura.

Due metodi:

- 1. Rivelazione del singolo γ pochi rivelatori, ma bassa efficienza (da correggere)
- 2. Rivelazione dell'intera cascata alta efficienza, ma più complicato e costoso

1. Rivelazione del singolo γ

- basso costo
- bassa sensibilità ai neutroni
- efficienza bassa e dipendente dalla cascata
- rechiede grosse correzioni (incertezze)
- non permette buona discriminazione del background

2. Rivelazione dell'intera cascata

- alta efficienza
- ottima discriminazione del background
- sensibilità ai neutroni
- costi
- sistemi complicati (anche per l'analisi)

Metodo calorimetrico: identifica la reazione di cattura sulla base dell'energia totale della cascata ($E_{tot} = E_n + S_n$) e della **molteplicità**.

Per rivelare l'intera cascata, è necessario avere un rivelatore che copra l'intero angolo solido (rivelatore a 4π), e alta efficienza intrinseca ai raggi γ .

Le misure di cattura con rivelatori C₆D₆





A,**A**





La sezione d'urto di cattura del ²³²Th

Le sezioni d'urto di cattura del ²³²Th fondamentali per la progettazione dei reattori che sfruttano il ciclo **Th/U** (attualmente allo studio in India).



La misura ad n_TOF ha permesso di risolvere una **discrepanza del 40 %** (ad alta energia) e di determinare i **parametri delle risonanze** (utili anche per modelli statistici).

Il metodo calorimetrico



Il total absorption calorimeter (TAC)





Utilizzate capsule in fibra di carbonio borata (brevetto INFN), per minimizzare la sensibilità ai neutroni.

Le misure di cattura con il calorimetro



Le misure di fissione ad n_TOF



Le misure di fissione ad n_TOF

lsotope	Total mass (mg)	Uncert. (%)	Half-life	Activity
²³⁵ U	31.8 (/2)	1.57	7.04E8 y	0.2 kBq
²³³ U	28.8 (/4)	1.73	1.6E5 y	5 MBq
²⁴¹ Am	2.26 (/8)	1.33	432 y	76 MBq
²⁴³ Am	4.8 (/8)	2.0	7370	7.4 MBq
²⁴⁵ Cm	1.71 (/4)	1.75	8500 y	0.2 GBq



INFN



Per i bersagli più radioattivi, il background dovuto alle particelle α , e al pile-up, rende difficile estrarre sezioni d'urto accurate persino ad n_TOF. Misure difficili anche per

problemi di radioprotezione.



I rivelatori per misure di fissione



La reazione ²³³U(n,f)



M. Calviani et al., Phys. Rev. C, in press

ΙΝΓΝ

Sezioni d'urto di fissione del ²³⁷Np



Scuola di formazione sull'energia nucleare, Ferrara, 28-29 Ottobre 2009 N. Colonna – INFN Bari 37

La reazione ²⁴¹Am(n,f)



INFN

Grosse discrepanze fra diversi dabases (fino al 40 % !!!).

Misura molto difficile per via della radioattività del bersaglio (200 MBq)



La fissione del ²⁴³Am



Risolta una "long-standing discrepancy" (del 15 %) I dati di n_TOF confermano le valutazioni, e smentiscono dati precedenti (anche recenti, 2004).



La fissione del ²⁴⁵Cm



Il metodo delle reazioni surrogate



Le "surrogate reactions"

```
Alcune sezioni d'urto neutroniche (di fissione) non possono essere misurate
direttamente perché bersagli non sono disponibili (radioattività elevata, alte
contaminazioni, piccole quantità disponibili).
Possibile studiarle attraverso reazioni surrogate: reazioni indotte da particelle
cariche, che portano allo stesso nucleo composto:
^{242}Cm(n,f) ^{243}Am(^{3}He,t)^{243}Cm
^{243}Cm(n,f) ^{243}Am(^{3}He,d)^{244}Cm
^{244}Cm(n,f) ^{243}Am(^{3}He,d)^{245}Cm
....
```

Problema principale associato al **momento angolare** del nucleo composto, che nelle reazioni surrogate può essere notevolmente diverso dalle reazioni indotte da neutroni.

Necessario applicare correzioni con modelli.

In alcuni casi, l'unica possibilità di stimare le sezioni d'urto di fissione.



Conclusioni

Impellente richiesta di **nuovi dati, e più accurati,** sulle sezioni d'urto di cattura e di fissione indotta da neutroni, in un largo range energetico e per numerosi isotopi di interesse per la progettazione di reattori nucleari avanzati.

Da qualche anno, rinnovato vigore nelle attività sperimentali, con varie **facilities** per neutroni, in particolare ad n_TOF (CERN).

Per il ciclo Th/U, sono ora disponibili dati su $^{233}U(n,f)$ e $^{232}Th(n,\gamma)$, di accuratezza sufficiente per permettere la progettazione di tali reattori.

Per i reattori Gen IV e ADS, si stanno facendo notevoli passi avanti (per esempio sul ²³⁷Np e ²⁴³Am), ma molto resta da fare su altri isotopi (^{240,242}Pu, ²⁴¹Am, ²⁴⁵Cm).

Questioni aperte su isotopi a breve vita media (^{238,241}Pu, vari isotopi del **Cm**). Risultati interessanti potrebbero venire dal metodo delle reazioni surrogate.

Necessari dati sulla molteplicità dei neutroni, distribuzione di massa dei frammenti di fissione, etc...

Necessaria attività di ricerca anche su teoria e valuazione.

Sforzo immane, ma necessario.



Fare ricerca oggi, per prepararsi ai bisogni energetici del futuro

Grazie per l'attenzione