



Agenzia Nazionale per le Nuove Tecnologie,
l'Energia e lo Sviluppo Economico Sostenibile



Ministero dello Sviluppo Economico

RICERCA DI SISTEMA ELETTRICO

Valutazione delle metodologie di calcolo degli scaling factor per rifiuti contenenti radionuclidi di difficile rilevabilità

M. Capone, A. Compagno, A. Dodaro, A. Manniello

Report RdS/2011/80

VALUTAZIONE DELLE METODOLOGIE DI CALCOLO DEGLI SCALING FACTOR PER RIFIUTI
CONTENENTI RADIONUCLIDI DI DIFFICILE RILEVABILITÀ
M. Capone, A. Compagno, A. Dodaro, A. Manniello - ENEA

Settembre 2011

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico – ENEA

Area: Governo, Gestione e sviluppo del sistema elettrico nazionale

Progetto: Nuovo nucleare da fissione: collaborazioni internazionali e sviluppo competenze in
materia nucleare

Responsabile Progetto: Paride Meloni, ENEA

Titolo

Valutazione delle metodologie di calcolo degli scaling factor per rifiuti contenenti radionuclidi di difficile rilevabilità

Descrittori

Tipologia del documento: **Rapporto Tecnico**
 Collocazione contrattuale: **Accordo di Programma ENEA-MSE**
 Argomenti trattati: **Caratterizzazione Rifiuti Radioattivi**

Sommario

La metodologia dei Fattori di Correlazione (Scaling Factor) viene impiegata per determinare la radioattività dei radionuclidi HTMR (Hard To Measure Radionuclides) usando correlazioni fra loro e nuclidi chiave (KN, key nuclides) scelti fra i radionuclidi facili da misurare, ETM (Easy To Measure).

Lo scopo del presente lavoro è lo studio dell'applicabilità dei Fattori di Correlazione sui rifiuti radioattivi.

In particolare si è verificata la possibilità di applicare tale metodologia su rifiuti quali la Grafite Irraggiata proveniente dallo smantellamento della Centrale Elettronucleare di Latina.

Note

Autori: M. Capone, A. Compagno, A. Dodaro, A. Manniello

Lavoro svolto in esecuzione della linea progettuale LP4, Obiettivo C dell'AdP ENEA-MSE

Tema di ricerca: "Nuovo nucleare da fissione"

Copia n.

In carico a:

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	12/09/2011	NOME	A. Dodaro	A. Lucé	P. Meloni
			FIRMA			
REV.	DESCRIZIONE	DATA	REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE	

<i>Premessa</i>	3
<i>1. Principi generali</i>	4
1.1. Scaling Factor	4
1.2 Scaling Factor per prodotti di attivazione	13
1.3 Metodo del Burnup	14
1.4 Metodo combinato del Burnup e Scaling factor	15
<i>2. Aspetti applicativi</i>	16
<i>3. Conclusioni</i>	20
<i>Ringraziamenti</i>	20
<i>Bibliografia</i>	21

Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
NNFISS-LP4-022	0	L	3	21

PREMESSA

I criteri di accettabilità dei rifiuti radioattivi di II e III Categoria definiscono una serie di principi o standard che devono essere rispettati da un rifiuto per essere conforme per il deposito in una struttura ingegneristica.

I criteri di accettabilità dei rifiuti radioattivi saranno specifici per un particolare sito e di natura qualitativa o quantitativa dipendentemente dal requisito richiesto; essi descrivono quelle proprietà che sono necessarie per il deposito dei rifiuti a media e alta attività.

Questi criteri devono essere seguiti per assicurare una gestione sicura dei rifiuti in modo da proteggere la salute umana e l'ambiente in concordanza con le raccomandazioni ICRP (International Commission on Radiological Protection) e le norme legislative senza imporre carichi e obblighi indebiti alle generazioni future.

Fra i criteri di accettazione del futuro sito un ruolo particolarmente rilevante viene assunto dall'Inventario dei Radionuclidi: il tipo, le caratteristiche e il contenuto di radionuclidi, presenti nel rifiuto dovrebbero essere noti con sufficiente accuratezza in modo da assicurare la conformità con i limiti autorizzati e dovrebbero, conseguentemente, essere documentati.

L'inventario dei radionuclidi rilevanti per lo smaltimento dei rifiuti radioattivi è numeroso e vario (alfa e/o beta emettitori). Alcuni di questi radionuclidi sono facili da misurare (ETM, easy to measure) tramite tecniche di analisi non distruttive (NDA) o distruttive (DA), ma molti di loro sono difficili da misurare (HTM, hard to measure) e necessitano di analisi DA in laboratorio o calcoli utilizzando speciali codici (emettitori beta puri). Alcuni di essi sono impossibili da misurare (ITM, impossible to measure) anche in laboratorio.

I γ -emettitori come ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{152}Eu ed ^{154}Eu possono essere facilmente misurati per mezzo di Spettrometria- γ (analisi non-distruttive), mentre per gli α e β -emettitori si rende necessaria una preparazione del campione in modo da separarli individualmente dalla matrice (analisi distruttive), nonché da altri radionuclidi, prima di una loro misura strumentale.

Nella Tabella 1 sono riportati i principali radionuclidi α e β -emettitori e le loro proprietà.

Il maggior contributo alla attività β presente nei rifiuti radioattivi provenienti dagli impianti nucleari è dovuto principalmente a ^3H , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{63}Ni e ^{41}Ca , nei decenni conseguenti lo "shut-down" definitivo del reattore.

Ai fini dello smantellamento e al successivo deposito dei rifiuti radioattivi in questione, occorre anche misurare altri radionuclidi: β -emettitori con tempi di dimezzamento molto grandi (^{36}Cl , ^{99}Tc , ^{129}I) oppure con elevata radiotossicità (transuranici).

A causa delle loro basse energie non penetranti o ampi spettri energetici privi di picchi caratteristici, per una perfetta determinazione strumentale si impiegano complesse analisi chimiche nonché lunghe e laboriose separazioni dalle matrici in cui sono presenti. Questi metodi risultano non pratici per analisi di routine e per la misura dei radionuclidi in un numero elevato di manufatti.

Sebbene la letteratura offra una ampia possibilità di metodi analitici, una misura accurata di questi β -emettitori puri resta tuttora una tra le maggiori problematiche nella caratterizzazione dei rifiuti in tutte le fasi. Questo anche a causa della complessità delle matrici che li contengono.

Molti di questi radionuclidi a "lunga vita", in virtù delle problematiche di determinazione qualitative e quantitative appena riportate, vengono comunemente chiamati *Hard-to-Measure Radionuclides* (HTMR, o anche *DTM Difficult-to-Measure*), ossia "radionuclidi di difficile rivelabilità".

Gli HTMR, ai fini della caratterizzazione radiologica, possono essere altresì individuati e misurati non solo tramite tecniche *dirette* come quelle citate, bensì anche attraverso metodologie *indirette*. Tuttavia queste ultime si basano, almeno *in primis*, su dati sperimentali ottenuti con i metodi diretti.

Uno tra questi metodi è l'impiego degli *Scaling Factors*, ossia di Fattori di Correlazione, che legano l'attività di uno di questi radionuclidi HTMR con un radionuclide di facile determinazione sperimentale (*Easy-to-Measure, ETM*) chiamato *Key-n* (key-nuclide).

Tabella 1: Radionuclidi importanti ai fini del decommissioning e loro proprietà

Nuclide	Tempo di dimezzamento (anni)	Tipo di Decadimento	Produzione	Metodo di Misura
³ H	12.33	β ⁻	Attivazione di ² H, Li	LSC
¹⁴ C	5730	β ⁻	Attivazione di ¹⁴ N, ¹³ C, ¹⁷ O	LSC
³⁶ Cl	3.01x10 ⁵	β ⁻	Attivazione di ³⁵ Cl	LSC
⁴¹ Ca	1.03x10 ⁵	EC	Attivazione di ⁴⁰ Ca	LSC, TIMS
⁵⁵ Fe	2.73	EC	Attivazione di ⁵⁴ Fe, ⁵⁶ Fe	LSC
⁶³ Ni	100	β ⁻	Attivazione di ⁶² Ni, ⁶³ Cu	LSC, AMS
⁵⁹ Ni	7.6x10 ⁴	EC	Attivazione di ⁵⁸ Ni	LSC, AMS
⁹⁰ Sr	28.8	β ⁻	Prodotto di fissione	LSC, β-Counting
⁹⁴ Nb	2.03x10 ⁴	β ⁻ , γ	Prodotto di fissione	LSC, γ-Spectroscopy
⁹⁹ Tc	2.11x10 ⁵	β ⁻	Prodotto di fissione	LSC, ICP-MS
¹²⁹ I	1.57x10 ⁶	β ⁻	Prodotto di fissione	LSC, NAA
⁹³ Zr	1.53x10 ⁶	β ⁻	Attivazione di ⁹² Zr	LSC
⁹³ Mo	4.0x10 ⁵	EC	Attivazione di ⁹² Mo, ⁹³ Nb	LSC, AMS
²³⁹ Pu	2.4x10 ⁴	α	Prodotto di fissione ²³⁸ U	α-Spectroscopy, ICP-MS
²⁴⁰ Pu	6.56x10 ³	α	Prodotto di fissione ²³⁹ Pu	α-Spectroscopy, ICP-MS
²⁴¹ Pu	14.35	β ⁻	Prodotto di fissione ²⁴⁰ Pu	LSC
²⁴¹ Am	432.2	α	Prodotto del decadimento di ²⁴¹ Pu	α-Spectroscopy
²³⁷ Np	2.14x10 ⁶	α	Cattura neutronica di ²³⁸ U	α-Spectroscopy, ICP-MS
²⁴³ Cm	29.1	α	Cattura neutronica e Prodotto di decadimento	α-Spectroscopy

LSC: Liquid Scintillation Counting

TIMS: Thermal Ionisation Mass Spectrometry

AMS: Accelerator Mass Spectrometry

NAA: Neutron Activation Analysis

ICP-MS: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry

1. PRINCIPI GENERALI

1.1. SCALING FACTOR

La metodologia degli Scaling Factor è basata sulla determinazione della radioattività dei radionuclidi HTMR usando correlazioni fra ciascuno di loro con un nuclide chiave (KN, key nuclides) scelto fra i radionuclidi facili da misurare, ETM.

L'idea alla base del Metodo è che radionuclidi aventi origine dalla medesima sorgente e caratterizzati dallo stesso comportamento chimico-fisico (speciazione, carica, solubilità,

volatilità, ecc.) all'interno di un qualsiasi manufatto o rifiuto, mantengano un rapporto costante nelle loro concentrazioni finali di attività.

La correlazione tra il Key-n ed il radionuclide da determinare (HTMR) è calcolata attraverso metodi matematici.

Affinché ci sia una reale correlazione tra i due radionuclidi dovranno essere rispettate le seguenti condizioni:

- la concentrazione di attività del Key-n deve essere misurabile e molto al di sopra del limite di rivelazione;
- i campioni scelti per la misura devono essere rappresentativi di tutto il materiale: il numero di campioni deve essere tale da coprire tutte le zone di impianto interessate al processo e contemporaneamente per ciascun campione devono essere effettuate sufficienti ripetizioni della misura al fine di ottenere risultati statisticamente validi;
- bisogna assicurarsi che i risultati tra i differenti flussi di rifiuti o tipi di impianto siano comparabili affinché siano validi i risultati ottenuti;
- ci sia una relazione funzionale tra le attività misurate dei due radionuclidi correlati.

In riferimento a quest'ultimo punto, se la natura di questa relazione è nota, attraverso i dati disponibili è possibile ricavare, mediante un *best fit* dei valori, una opportuna retta di regressione. Se invece la natura della relazione non è conosciuta, per la determinazione dell'attività del rifiuto viene assunta una dipendenza lineare tra un Key-n e l'HTMR, limitatamente a particolari condizioni e per un limitato *range* di attività, nonché per alcuni radionuclidi chimicamente simili.

In questo caso il fattore di correlazione (o "scaling factor" SF) tra due generici radionuclidi A e B in una generica corrente di rifiuto è definito dal rapporto delle rispettive attività specifiche nella corrente di rifiuto in questione:

$$SF \left(\frac{A}{B} \right) = \frac{a_s(A)}{a_s(B)}$$

Si è visto sperimentalmente che esistono in certe condizioni dei rapporti costanti tra le concentrazioni di alcuni radionuclidi per ogni specifica corrente di rifiuto. Una volta noto questo rapporto, si può arrivare alla valutazione della concentrazione dell'HTMR, attraverso la quantificazione del key-nuclide.

E' disponibile un'ampia letteratura che fornisce una serie di SF per le diverse correnti di rifiuto e per i diversi radionuclidi di interesse. L'utilizzo dei valori di letteratura ha un limite dovuto al fatto che esiste un'ampia variabilità degli SF, oltre che da corrente a corrente di rifiuto, anche da impianto ad impianto e spesso, per un determinato impianto, da modalità a modalità di funzionamento dello stesso impianto. Da ciò consegue che i valori di SF reperibili in letteratura possono trovare applicazioni in *screening* di massima da cui sono ricavabili indicazioni di carattere generale.

Vi è la necessità quindi di effettuare valutazioni mirate e specifiche degli SF tramite indagini sperimentali, quando occorre un'informazione tecnica di maggiore precisione necessaria ai fini della classificazione del rifiuto o comunque ai fini di un'accurata determinazione dell'inventario di radioattività.

Formalmente, l'applicazione del metodo si traduce, quindi, nella definizione di espressioni del seguente tipo:

$$A_{RN} = c \cdot A_{KN} \quad (1)$$

in cui A_{RN} rappresenta l'attività incognita di un generico nuclide di interesse, A_{KN} rappresenta l'attività misurata di un opportuno nuclide chiave e c , rappresenta il fattore di correlazione tra i due nuclidi.

La determinazione di fattori di correlazione segue un preciso programma di campionamento e misura, condotto su materiali e componenti appartenenti ad un dato sistema operativo dell'impianto. Il campionamento può, di fatto, riguardare ogni sistema, mantenuto, durante il normale funzionamento dell'impianto, in condizioni operative standard e tale che in esso, i fenomeni di contaminazione o di attivazione mantengano un decorso approssimativamente uniforme.

La derivazione di un generico fattore di correlazione, a partire dai risultati di rilievi radiochimici effettuati su un determinato insieme di campioni, segue dal calcolo di una media del tipo:

$$c = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{A_{xi}}{A_{ki}} \quad (2)$$

in cui:

- n , rappresenta il numero di campioni analizzati;
- A_{xi} , rappresenta l'attività misurata del nuclide di interesse x , nel campione i -esimo;
- A_{ki} , rappresenta l'attività misurata del nuclide chiave k , nel campione i -esimo.

Affinché l'approccio semiempirico alla caratterizzazione, realizzato utilizzando fattori di correlazione, possa risultare efficiente, i nuclidi chiave gamma-emettitori, selezionati nella definizione di fattori di correlazione, devono potersi individuare e possibilmente, quantificare, tramite misure dirette.

Una singola valutazione condotta su di uno specifico radionuclide può così fornire un'indicazione indiretta sull'entità delle concentrazioni di diversi altri nuclidi, senza richiedere ulteriori accertamenti. Si evince che fondamentale e indispensabile nel metodo dello SF è la scelta del Key- n , da cui dipende la riuscita e la bontà della soluzione trovata. Il Key- n viene selezionato in base a caratteristiche ben precise:

- deve essere facilmente misurabile in modo non distruttivo (questo implica, in molti casi, che sia un forte emettitore γ);
- deve avere proprietà chimiche e fisiche simili all'HTMR in questione.

Con queste caratteristiche normalmente solo due radionuclidi possono essere considerati appropriati come nuclidi chiave, il ^{60}Co e ^{137}Cs .

Recenti valutazioni, in effetti, hanno evidenziato che misure di attività per ^{137}Cs , non consentirebbero stime affidabili per nuclidi transuranici e per alcuni importanti prodotti di fissione come ^{99}Tc e ^{129}I . I processi all'origine di tali nuclidi, infatti, avrebbero luogo in condizioni differenti rispetto a quelli alla base della produzione del ^{137}Cs . Da ciò seguirebbe che, a differenza di quanto avviene per il ^{137}Cs , perdite a livello degli elementi di combustibile non dovrebbero influenzare le concentrazioni dei suddetti nuclidi nei sistemi di refrigerazione del reattore, rendendo in tal modo inattendibile la definizione, in tali condizioni, di fattori di correlazione basati sul ^{137}Cs . Diverse correnti

di rifiuto contengono, inoltre, quantità scarsamente rilevanti di ^{137}Cs , il che rende, in generale, stime di concentrazione di tale isotopo notevolmente imprecise.

La combinazione di tali aspetti fa sì che, attualmente, numerosi studi ed indagini radiochimiche siano dirette all'individuazione ed al calcolo di fattori di correlazione tra ^{60}Co , transuranici, ^{99}Tc e ^{129}I . Poiché, in particolare, diversi transuranici evidenziano forti correlazioni con il ^{239}Pu , appare vantaggioso determinare correlazioni tra tale isotopo ed il ^{60}Co , in modo da estendere l'impiego del ^{60}Co come nuclide chiave ad un vasto elenco di isotopi di difficile individuazione. Dall'esame dell'espressione (1), si può comprendere come la ricerca di fattori di correlazione tra due nuclidi x e k , a partire dalle misure di concentrazione A_{xi} e A_{ki} , ricavate da un determinato insieme di campioni, corrisponda essenzialmente alla ricerca di una precisa relazione di linearità tra i valori A_{xi} e A_{ki} .

Alla luce di tale considerazione, un'interessante generalizzazione del metodo dei fattori di correlazione può essere formulata stabilendo di correlare i risultati delle misure di concentrazione, piuttosto che in termini dell'espressione (1), mediante regressioni lineari del tipo:

$$A_{RN} = a + b \cdot A_{KN} \quad (3)$$

in cui **a** e **b** rappresentano costanti.

Attraverso questo approccio, al posto di un singolo fattore di correlazione **c**, sono introdotti due distinti parametri di interpolazione **a** e **b**, oltre ad un "coefficiente di correlazione" **R**, in grado di fornire una valutazione del livello di correlazione tra le concentrazioni dei nuclidi considerati. Nella (3), l'introduzione di un grado di libertà in più rispetto a (1), consente, in generale, di porre in maggior risalto connessioni lineari tra le attività di due radionuclidi poiché sono sensibilmente migliorate le condizioni generali di interpolazione.

In pratica, approfonditi rilievi radiochimici hanno evidenziato che la ricerca di correlazioni lineari tra concentrazioni di nuclidi può considerarsi valida entro l'intero intervallo di concentrazioni di attività, solo per un numero assai limitato di nuclidi.

Ciò che si osserva, in effetti, è che i risultati sperimentali tendono tipicamente a distribuirsi in modo "log-normale", piuttosto che secondo modalità gaussiane ("normali"), il che impone di sostituire al calcolo di medie aritmetiche, il calcolo di medie di tipo geometrico

$$\ln \bar{x}_{geom} = \left(\sum_{i=1}^n \ln x_i \right) / N$$

L'espressione che le indagini sperimentali suggeriscono di utilizzare nella correlazione di concentrazioni di attività di radionuclidi, risulta, dunque, del tipo:

$$\ln(A_{RN}) = d + f \cdot \ln(A_{KN}) \quad (4)$$

$$A_{RN} = h \cdot (A_{KN})^f$$

in cui **d**, **f** e **h**, sono costanti.

Facendo riferimento alla formula (4), il grado di correlazione tra le concentrazioni A_{xi} e A_{ki} di due radionuclidi x e k , presenti in un determinato insieme di campioni, può essere evidenziato riportando i valori (A_{ki}, A_{xi}) entro un grafico in scala logaritmica ed

esaminando la distribuzione dei dati risultante. Se questa manifesta l'evidenza di una correlazione, con una dispersione dei dati attorno alla retta di interpolazione contenuta, diviene possibile introdurre un opportuno fattore di correlazione, calcolando la media geometrica dei rapporti A_{xi}/A_{ki} valutati per ogni campione considerato:

$$FC = e^{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \ln \left(\frac{A_{x,i}}{A_{k,i}} \right)} \quad (5)$$

in cui **FC** è il fattore di correlazione e **N** il numero di campioni raccolti.

In effetti, la deduzione dei parametri associati alla retta di interpolazione della distribuzione dei dati (si tenga presente l'espressione 4), imporrebbe, a rigore, il ricorso al metodo dei minimi quadrati, il quale consentirebbe la determinazione delle costanti **a** e **b** nonché, come precedentemente illustrato, di un coefficiente di correlazione lineare **R**. Nella pratica, tuttavia, la limitatezza dell'intervallo entro cui solitamente si trovano i valori sperimentali di concentrazione dei radionuclidi, permette di semplificare il trattamento analitico dei dati, riconducendolo alla sola stima del fattore di correlazione (5), senza, con ciò, introdurre nel risultato finale, incertezze significative.

Una stima della dispersione dei dati attorno al valore della media geometrica (5) può essere ottenuta mediante il computo della seguente deviazione standard:

$$\sigma_{FC} = e^{\sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N [\ln(FC)_i - \ln(FC)]^2}{N-1}}} \quad (6)$$

in cui σ_{FC} rappresenta la deviazione standard associata alla dispersione degli **N** fattori di correlazione sperimentali $(FC)_i$, ottenuti a partire dalle analisi condotte su ciascuno degli **N** campioni esaminati.

Vari Paesi hanno ritenuto opportuno sperimentare differenti tecniche statistiche per poi utilizzare quelle che ritenevano più inerenti alle proprie esigenze: sono state utilizzate la media aritmetica, geometrica e la regressione lineare, a ciascuna tecnica statistica è stata associata un'espressione analitica, di seguito riassunte:

Scaling Factor	$A_{RN} = a \cdot A_{KN}$	$a = \text{cost}$
Regressione lineare	$A_{RN} = a + b \cdot A_{KN}$	$a, b = \text{cost}$
Media geometrica	$A_{RN} = c \cdot A_{KN}$	$c = \text{cost}$
Regressione lineare del logaritmo	$A_{RN} = c \cdot (A_{KN})^d$ $\log(A_{RN}) = c' + d \cdot \log(A_{KN})$	$c, c', d = \text{cost}$

Una significativa correlazione è raggiunta tra RN e KN per valori del coefficiente di regressione d compresi tra 0.5 e 1.5; d descrive anche la linearità o non della funzione di correlazione.

Questa correlazione è tipicamente determinata attraverso analisi distruttive di un certo numero di campioni appartenenti ad una specifica corrente di rifiuto.

Sono messi a confronto tramite grafici le stime della distribuzione dell'attività da cui si evince la migliore o peggiore corrispondenza con la misura reale.

La Figura 1 mostra un primo miglioramento tra lo Scaling Factor (SF) calcolato con la media aritmetica e lo stesso calcolato con la media geometrica.

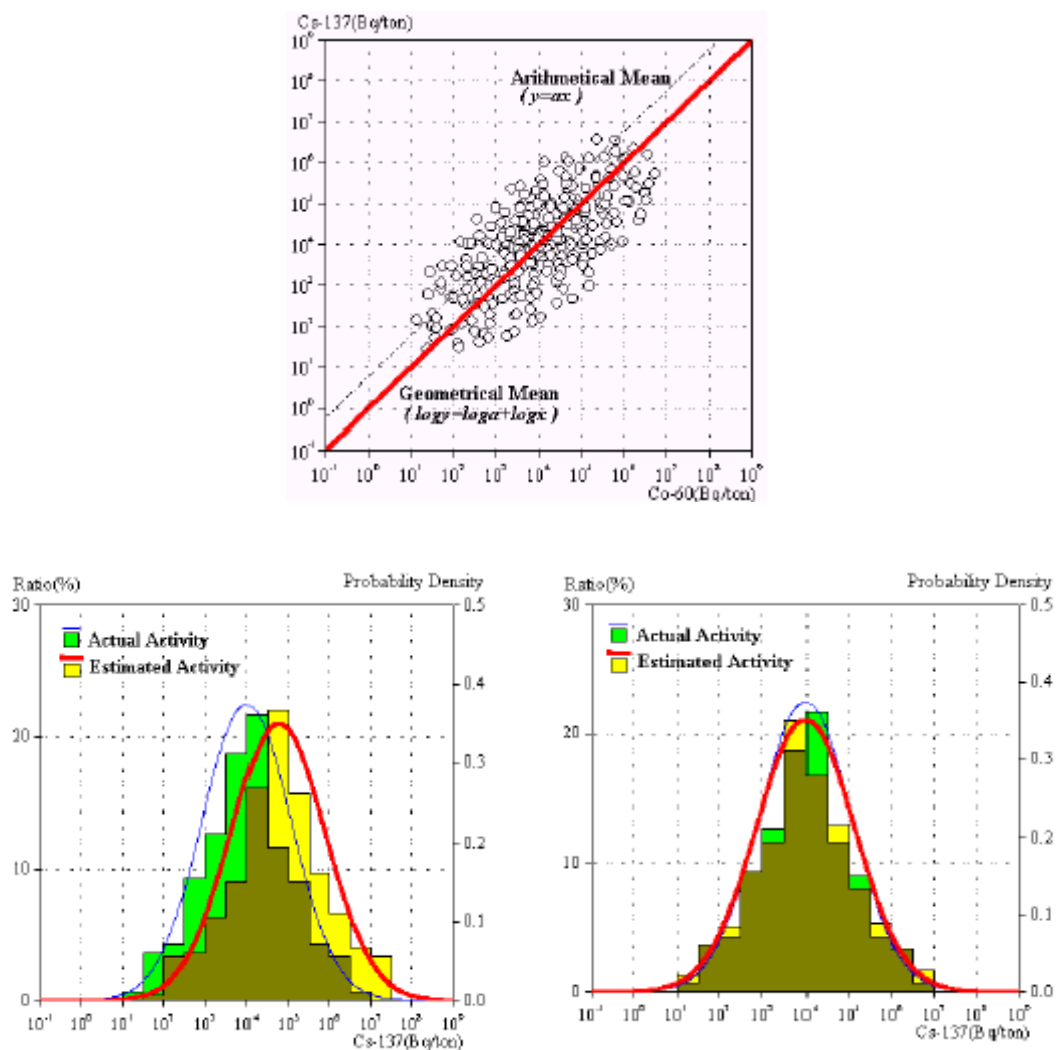


Figura 1: Stime delle Distribuzioni di Attività

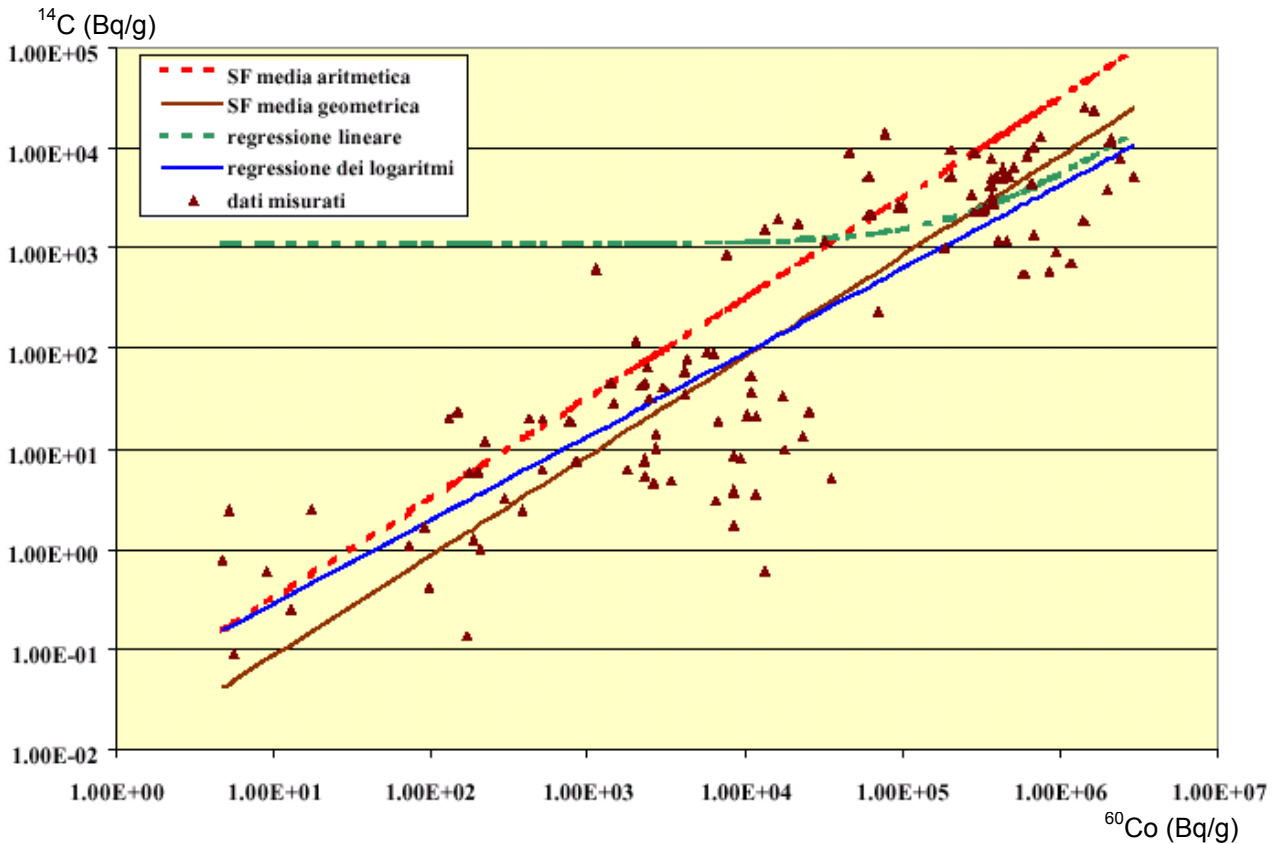


Figura 2: Correlazione fra le diverse distribuzioni statistiche.

E' evidente dalla Figura 2 che le migliori approssimazioni dei dati sperimentali sono ottenute con la media geometrica e con la regressione lineare del logaritmo; quest'ultima viene utilizzata in quasi tutti i Paesi europei e non, ad eccezione del Giappone e della Corea che preferiscono usare la media geometrica.

E' necessario sottolineare che un'analisi di regressione fornisce solo un indicatore numerico della qualità della correlazione ma questo non implica che la correlazione valutata sia applicabile e per questa ragione sono stati introdotti criteri empirici e matematici. Matematicamente sarebbero necessarie un minimo di 5 coppie di risultati delle misure per valutare una correlazione mentre empiricamente una correlazione basata su un numero così basso di risultati sarebbe piuttosto instabile.

Si è giunti quindi ad un numero di 15 risultati per avere un'applicazione corretta della correlazione.

La Figura 3 mostra come il coefficiente di correlazione calcolato e quello misurato abbiano un comportamento asintotico all'aumentare dei dati disponibili.

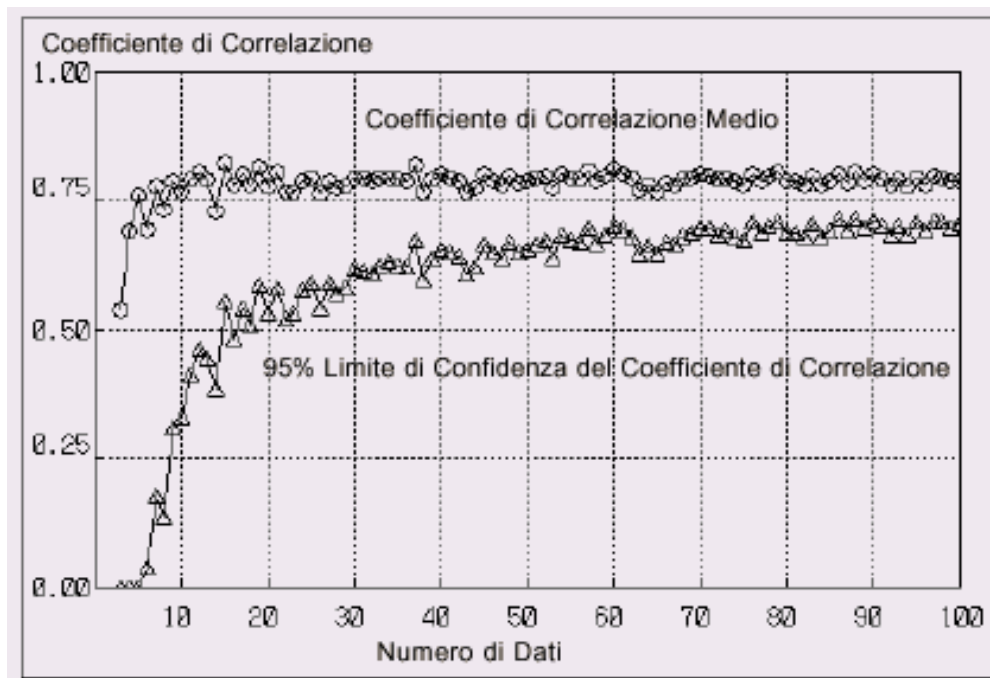


Figura 3: Coefficiente di correlazione in funzione dei dati misurati.

Questo numero può comunque essere ridotto se vi è un elevato coefficiente di correlazione R (cioè quasi uguale ad uno). Se R è uguale a $+1$ o -1 c'è una correlazione ideale tra i due nuclidi, i valori compresi tra -1 e 1 indicano lo scostamento da questa correlazione ideale, se R è uguale a 0 non è possibile trovare una correlazione tra i due nuclidi che sia accettabile.

Nelle tabelle seguenti sono riportati i nuclidi con i corrispondenti nuclidi chiave, il coefficiente di correlazione R , i valori di a e b , per le due filiere di reattori, PWR e BWR.

Tabella 2: Valori di a , b , R , per rifiuti provenienti dalle centrali europee di tipo PWR

Nuclide	Key Nuclide	N	a	a _{max}	b	b _{max}	R	a _{max} /a
α-emitters								
Am-241	Co-60	73	5,90E-4	1,52E-2	6,60E-1	6,52E-1	0,82	25,8
	Cs-137	67	1,61E-3	3,89E-2	6,38E-1	6,29E-1	0,84	33,5
	Pu-239	70	1,20E+0	1,02E+1	7,77E-1	7,73E-1	0,91	8,5
	α	49	2,46E-1	2,18E+0	8,54E-1	8,40E-1	0,92	8,9
Cm-242	Co-60	89	2,92E-5	1,10E-3	5,59E-1	5,54E-1	0,76	37,7
	Pu-239	85	1,55E-2	6,46E-1	6,09E-1	6,04E-1	0,70	41,7
Cm-244	Co-60	99	1,63E-4	4,08E-3	7,43E-1	7,37E-1	0,84	25
	Pu-239	98	6,54E-1	7,68E+0	9,20E-1	9,16E-1	0,91	11,7
	α	48	1,12E-1	1,16E+0	1,03E+0	1,02E+0	0,90	10,4
Pu-238	Co-60	88	2,79E-4	7,31E-3	7,61E-1	7,53E-1	0,85	26,2
	Pu-239	80	1,33E+0	3,47E+0	9,78E-1	9,76E-1	0,99	2,6
	α	49	1,07E-1	1,31E+0	1,17E+0	1,16E+0	0,91	12,2
Pu-239	Co-60	110	2,26E-4	6,36E-3	7,57E-1	7,53E-1	0,84	28,1
	α	49	8,84E-2	1,11E+0	1,11E+0	1,10E+0	0,90	12,6
U-234	Cs-137	17	2,52E-4	3,46E-3	5,34E-1	5,40E-1	0,81	13,7
	Pu-239	16	1,14E-1	2,36E+0	7,79E-1	7,63E-1	0,74	20,7
U-238	Cs-137	18	1,75E-5	5,58E-4	6,40E-1	6,48E-1	0,77	31,9
β/γ-emitters								
Ag-110m	Co-60	56	4,18E-2	1,81E+0	8,77E-1	8,76E-1	0,90	43,3
C-14	Co-60	102	3,41E-2	8,19E-1	8,83E-1	8,81E-1	0,85	24
Co-58	Co-60	62	3,18E-4	3,02E-2	1,00E+0	1,00E+0	0,89	95
Cs-134	Cs-37	122	3,01E-1	2,97E+0	9,22E-1	9,18E-1	0,93	9,9
Cs-135	Cs-137	19	3,19E-6	4,59E-6	1,05E+0	1,05E+0	1,00	1,4
Fe-55	Co-60	93	1,92E+1	3,50E+2	6,03E-1	5,98E-1	0,76	18,2
I-129	Cs-137	state or plant specific correlations recommended						
Mn-54	Co-60	80	1,74E-2	3,51E-1	9,78E-1	9,78E-1	0,94	20,2
Nb-94	Co-60	42	9,78E-4	7,64E-2	9,20E-1	9,33E-1	0,80	78,1
Ni-59	Co-60	34	1,16E-2	2,03E-1	8,82E-1	8,89E-1	0,86	17,5
Ni-63	Co-60	131	1,88E+0	2,23E+1	8,86E-1	8,86E-1	0,91	11,9
Pu-241	Co-60	32	1,70E-1	4,73E+0	6,57E-1	6,47E-1	0,86	27,8
	Pu-239	31	1,15E+2	6,04E+2	8,14E-1	8,15E-1	0,96	5,3
	α	14	3,58E+1	1,33E+2	8,85E-1	8,77E-1	0,97	3,7
Sb-125	Co-60	42	7,46E-2	6,68E-1	9,18E-1	9,18E-1	0,97	9
	Cs-137	37	6,50E-1	2,25E+1	8,29E-1	8,22E-1	0,90	34,6
Sr-90	Co-60	110	2,32E-2	7,37E-1	7,97E-1	7,97E-1	0,78	31,8
	Cs-137	108	1,09E-1	3,82E+0	7,52E-1	7,51E-1	0,77	35
Tc-99	Co-60	20	1,82E-1	1,22E+0	5,27E-1	5,23E-1	0,84	6,7
	Cs-137	20	5,11E-1	3,67E+0	4,49E-1	4,49E-1	0,82	7,2
Zr-95	Co-60	16	1,55E-5	7,92E-4	1,23E+0	1,25E+0	0,95	51,1

Tabella. 3: Valori di a , b ed R , per rifiuti provenienti dalle centrali europee di tipo BWR

Nuclide	Key Nuclide	N	a	a_{max}	b	b_{max}	R	a_{max}/a
α-emitters								
Am-241	Co-60	35	8,69E-5	7,55E-3	7,12E-1	6,90E-1	0,67	86,9
Am-241	Cs-137	34	1,84E-4	7,62E-3	7,45E-1	7,51E-1	0,63	41,4
Am-241	Pu-239	32	5,26E-1	1,14E+1	8,15E-1	8,18E-1	0,78	21,7
Cm-242	Pu-239	43	5,47E-2	3,99E+0	1,04E+0	1,03E+0	0,76	72,9
Cm-244	Co-60	44	5,55E-5	5,57E-3	8,00E-1	7,80E-1	0,67	100
Cm-244	Cs-137	42	1,09E-4	7,00E-3	8,09E-1	8,10E-1	0,62	64,2
Cm-244	Pu-239	42	7,70E-1	1,22E+1	9,13E-1	9,06E-1	0,85	15,8
Pu-238	Co-60	35	2,86E-4	1,74E-2	7,14E-1	7,18E-1	0,63	60,8
Pu-238	Cs-137	34	5,53E-4	3,27E-2	7,54E-1	7,62E-1	0,62	59,1
Pu-238	Pu-239	33	2,08E+0	7,46E+0	1,00E+0	9,98E-1	0,97	3,6
Pu-239	Co-60	44	1,11E-4	3,74E-3	7,56E-1	7,60E-1	0,69	33,7
Pu-239	Cs-137	43	1,15E-4	5,95E-3	8,07E-1	8,09E-1	0,65	51,7
β-emitters								
Ni-59	Co-60	12	4,04E-2	4,62E-1	5,30E-1	5,48E-1	0,69	11,4
Co-58	Co-60	state or plant specific correlations recommended						
Cs-134	Cs-137	55	3,12E-1	1,50E+0	9,50E-1	9,56E-1	0,94	4,8
Fe-55	Co-60	35	1,31E+0	3,49E+1	8,82E-1	8,87E-1	0,78	26,6
Fe-55	Cs-137	34	2,85E+0	9,54E+1	9,26E-1	9,34E-1	0,74	33,5
Mn-54	Co-60	48	3,17E-2	3,86E-1	1,02E+0	1,02E+0	0,86	12,2
Nb-94	Co-60	19	3,33E-3	7,22E-2	7,27E-1	7,27E-1	0,73	21,7
Nb-94	Cs-137	19	2,84E-3	4,43E-2	8,24E-1	8,45E-1	0,75	15,6
Ni-63	Co-60	33	1,54E+0	1,34E+1	6,32E-1	6,35E-1	0,81	8,7
Pu-241	Co-60	17	5,81E-3	6,17E-2	8,76E-1	8,75E-1	0,84	11,9
Pu-241	Cs-137	17	1,59E-2	1,72E-1	9,06E-1	9,26E-1	0,81	10,8
Pu-241	Pu-239	17	1,07E+2	2,67E+2	8,94E-1	8,98E-1	0,98	2,5
Sr-90	Co-60	29	5,70E-3	2,82E-1	1,08E+0	1,08E+0	0,74	49,5
Sr-90	Cs-137	17	1,78E-2	5,75E-1	1,03E+0	1,03E+0	0,76	32,3
Tc-99	Co-60	15	6,20E-3	2,43E-1	8,59E-1	8,52E-1	0,75	39,2
Ag-110m	Co-60	19	5,65E-4	2,29E-2	1,33E+0	1,35E+0	0,82	40,5

1.2 SCALING FACTOR PER PRODOTTI DI ATTIVAZIONE

Per il gruppo di HTMR costituiti da ^{55}Fe , ^{63}Ni e ^{14}C , è possibile fare una stima teorica dello *Scaling Factor*. I radionuclidi ^{55}Fe , ^{63}Ni e ^{60}Co sono prodotti di attivazione da parte di neutroni termici degli elementi inattivi ^{54}Fe , ^{59}Co e ^{62}Ni e provengono dalla corrosione di varie parti degli impianti di potenza (tubi, generatori di vapore, ecc.); il ^{14}C , invece, proviene dalla reazione (n,α) del ^{17}O .

Il rateo di radionuclidi generato tramite attivazione può essere scritto come:

$$\frac{dN}{dt} = \sigma \cdot M - \lambda \cdot N - \varepsilon \cdot N \quad (7)$$

$$N_{(t=0)} = 0$$

N = numero di radionuclidi attivati nel circuito [moli]

M = numero di elementi inattivi [moli]

σ = costante di attivazione [1/s]

λ = costante di decadimento

ε = rateo di rimozione dei radionuclidi dal circuito [1/s]

Integrando tra $t = 0$ e $t = \tau$ (tempo di attivazione)

$$N = \frac{\sigma \cdot M}{\lambda + \varepsilon} \left(1 - e^{-(\lambda + \varepsilon)\tau} \right) \quad (8)$$

Per un periodo di attivazione τ più breve della vita media del radionuclide ($t_{1/2} = 0,693/\lambda$) si ha:

$$\tau \ll \frac{1}{\lambda} \ll \frac{1}{\lambda + \varepsilon} \quad (9)$$

l'equazione (8) può essere semplificata come segue:

$$N = \sigma M \tau \quad (10)$$

Dall'equazione (10) si ricava l'attività incognita:

$$A_2 = \frac{\sigma_2 \lambda_2 M_2}{\sigma_1 \lambda_1 M_1} A_1 \quad (11)$$

Ne consegue che il rapporto A_2/A_1 può essere facilmente calcolato se è noto il rapporto M_2/M_1 , mentre i termini rimanenti sono costanti.

1.3 METODO DEL BURNUP

Il metodo del "burn up" utilizza codici di calcolo per valutare e calcolare i fattori di correlazione.

Uno dei vantaggi delle procedure di calcolo rispetto alle misure dirette è la possibilità di trattare i nuclidi contenuti nei rifiuti da esaminare con la stessa precisione e in minor tempo.

Se, infatti, l'accumulo ("build-up") del radionuclide da determinare è legato al "burn-up" del combustibile nucleare nel reattore, la sua attività può essere adeguatamente stimata mediante "calcoli di burn-up", eseguibili per mezzo di diversi codici attualmente disponibili e validati.

Uno dei codici di calcolo più comunemente usati è il codice Origen-Scale.

Il codice Scale è usato per trattare problemi relativi alla caratterizzazione del combustibile irraggiato nei reattori ai fini dello smaltimento, stoccaggio e trasporto. I calcoli consistono nella determinazione della composizione isotopica di componenti al

variare del tempo; dalla composizione isotopica si è in grado di determinare l'attività dell'oggetto.

L'uso del codice per la valutazione dei nuclidi contenuti nei rifiuti è stata giustificata confrontando il rapporto calcolato degli isotopi del Pu (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu) nel combustibile di un reattore RBMK con le misure di spettroscopia α di tale rapporto.

Il codice Origen-Scale calcola le concentrazioni dipendenti dal tempo e i termini sorgente di un elevato numero di isotopi, che presentano simultaneamente un fattore di accrescimento e decremento dovuto alla trasmutazione neutronica, alla fissione, al decadimento radioattivo.

La seguente espressione descrive la produzione dell' i -esimo nuclide:

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_j \gamma_{ji} \sigma_{fj} N_j + \sigma_{c,i-1} N_{i-1} + \sum_k \lambda_k N_k - \sigma_{fi} N_i - \sigma_{ci} N_i - \lambda_i N_i$$

N_j = numero di nuclidi del j -esimo nuclide

σ_{fj} = sezione d'urto di fissione del j -esimo nuclide

γ_{ji} = probabilità del j -esimo nuclide dopo la fissione di creare il nuclide i -esimo

ϕ = flusso neutronico mediato sulla posizione e l'energia

$\sigma_{c,i-1}$ = sezione d'urto di un neutrone di cattura del $(i-1)$ -esimo nuclide

λ_k = costante di decadimento del nuclide k -esimo

Il primo termine alla destra dell'equazione descrive il rateo prodotto dall' i -esimo nuclide a causa della fissione di tutti gli altri nuclidi, il secondo termine considera il rateo prodotto dall' i -esimo nuclide figlio a causa di una cattura neutronica del suo nuclide padre. Il terzo termine descrive il rateo prodotto del j -esimo nuclide figlio a causa del decadimento radioattivo del suo nuclide padre, l'ultimo termine descrive il rateo di disintegrazione del nuclide i -esimo a causa rispettivamente della sua fissione, cattura neutronica, decadimento radioattivo.

Il modello analitico Origen-Scale rappresenta per tutti i nuclidi un set accoppiato di equazioni differenziali lineari omogenee del primo ordine a coefficienti costanti. Una completa soluzione è data da un metodo di tipo matriciale che utilizza una procedura di calcolo numerico per giungere alla soluzione delle equazioni differenziali.

1.4 METODO COMBINATO DEL BURNUP E SCALING FACTOR

Alcuni radionuclidi α emettitori, quali ^{243}Am , ^{231}Pa , ^{237}Np , alcuni Pu, Cm, Cf, U, Ra e gli isotopi del Th, non possono essere correlati direttamente ad un nuclide chiave. Per ovviare a questo problema si usa il metodo combinato del burn up e Scaling Factor.

Poiché calcoli di burn-up forniscono esclusivamente informazioni riguardanti l'attività totale generata del radionuclide di interesse, le problematiche relative alla determinazione della sua diffusione devono essere affrontate separatamente. Tali difficoltà possono essere superate se radionuclidi misurabili, caratterizzati da proprietà chimico-fisiche analoghe a quelle dell'isotopo di interesse (ad esempio, isotopi dello stesso elemento), possono a loro volta essere quantificati mediante calcoli di burn-up. In tal caso, a partire dall'esito di tali valutazioni, diviene possibile dedurre rapporti di concentrazione tra il radionuclide di interesse e il radionuclide misurabile, utili alla ricostruzione della diffusione attraverso l'impianto (o in specifiche correnti di rifiuto) del primo per mezzo di misure condotte sul secondo. Tali rapporti di concentrazione non

costituiscono propriamente “fattori di correlazione”, essendo valori dedotti da valutazioni computazionali invece che da rilievi sperimentali.

Esempi tipici dell’applicazione di tale metodo si hanno nelle stime di concentrazione di alfa-emettitori correlabili a ^{238}U , ^{239}Pu o ^{244}Cm , o di ^{103}Ru , misurabili a partire dal ^{106}Ru .

Viene calcolato un rapporto costante tra l’HTMR e il nuclide ausiliario, il quale può essere correlato con un nuclide chiave. Combinando questi due step si arriva ad una nuova correlazione tra l’HTMR e un Key-n.

Si eseguono dei calcoli per trovare una relazione tra gli HTMR e gli altri nuclidi provenienti dal burn up. Dall’analisi di questi risultati vengono calcolati la produzione dei prodotti di fissione e i loro rapporti di attività. Se questi calcoli producono un rapporto a' , tra l’attività dell’HTMR e l’altro nuclide, sufficientemente costante, questo rapporto può essere usato come un tipo di correlazione lineare:

$$a_{inacc} = a' a_{aux}^{b'} \quad b' = 1$$

Un passo intermedio è stato compiuto usando un nuclide ausiliario che mostra un comportamento chimico simile ad un HTMR e che può essere caratterizzato da una correlazione con un nuclide chiave.

I risultati ottenuti possono poi essere usati per una nuova correlazione tra l’HTMR e il Key-n.

$$a_{inacc} = a'' a_{Key}^b \quad a'' = a' a' \\ (a_{HTM} = a' a_{Key}^b)$$

Per ciascun nuclide α emettitore è stato selezionato un nuclide ausiliario che mostra un comportamento chimico comparabile. Come nuclidi ausiliari sono utilizzati isotopi dello stesso elemento: ad esempio per Pu \rightarrow Pu (239-240), per Am \rightarrow Am(241), per Cm \rightarrow Cm(243-244) e per U \rightarrow U(238). Per i rimanenti α emettitori, per i quali non è possibile utilizzare isotopi dello stesso elemento, vengono impiegati elementi dello stesso gruppo chimico o vicino, che abbiano un comportamento chimico confrontabile. Per esempio ^{238}U viene scelto come nuclide ausiliario per Np, Pa, Th e Ra.

2. ASPETTI APPLICATIVI

Scopo di questo documento è descrivere la possibilità di impiegare il metodo degli Scaling Factor a rifiuti radioattivi provenienti dallo smantellamento della Centrale Elettronucleare di Latina.

L’obiettivo è quello di elaborare validi SF per la Grafite Nucleare irraggiata proveniente dal moderatore della Centrale di Latina.

Sebbene la Grafite di *Grado Nucleare* (ossia di *Purezza Nucleare*, o anche detta Grafite Nucleare) venga prodotta in modo tale da essere “purificata” attraverso particolari fasi di rimozione delle impurezze per evitare la loro attivazione, in realtà essa presenta abbastanza “residui” che sono causa della produzione di numerosi radionuclidi HTMR.

Da una indagine fatta su un campione di Grafite “Vergine” proveniente dall’impianto di Latina e sottoposto ad analisi elementale mediante Spettrometria ICP-MS, previa

mineralizzazione mediante fusione alcalina in crogiolo di Platino, risultano presenti numerose impurezze, alcune delle quale sono riportate in Tabella 4.

La tecnica della fusione alcalina è impiegata per la decomposizione di campioni particolarmente refrattari ed insolubili agli acidi forti. La Grafite di tipo Nucleare (GN), a causa della sua struttura chimico-fisica dovuta alla tecnologia di produzione in funzione degli utilizzi previsti, è da considerarsi in ambito chimico-analitico quale una matrice “difficile”, diversamente dalla Grafite Naturale. A causa di questa sua inerzia nonché naturale resistenza alla disgregazione e successiva mineralizzazione da parte di acidi forti, sia pure in miscele tra loro, la GN è da considerarsi come materiale “refrattario” e quindi la tecnica della fusione alcalina risulta un metodo efficiente per la mineralizzazione e solubilizzazione in opportuna soluzione da impiegare per la determinazione elementare. Considerata un’aliquota di campione di Grafite Nucleare, questa viene riscaldato su fiamma ossidante a circa 1000°C in un crogiuolo di platino insieme a 4-5 g di KOH. A questa temperatura l’idrossido di Potassio fonde decomponendo la Grafite e formando un massa viscosa. Il crogiuolo viene successivamente raffreddato e il contenuto è dissolto in più volte con HNO₃ e quindi diluito con acqua demineralizzata ultrapura. La soluzione così ottenuta viene utilizzata per la determinazione quali-quantitativa dei singoli elementi mediante spettroscopie di emissione ICP-AES e ICP-MS

Tabella 4: Impurezze presenti in Grafite Nucleare non irraggiata - Latina NPP

	Fe	V	Ca	Ni	Co	Mn	Sb	Cd	Eu
µg/g	113.9	2.8	377.5	21.9	8.8	1.9	58.4	4.0	1.7
Incertezza µg/g	±3.0	±0.2	±5.0	±0.7	±0.2	±0.2	±5.0	±0.2	±0.2

E’ del tutto ragionevole supporre che, sottoposte a flusso neutronico, le impurezze presenti possano attivarsi dando origine a Prodotti di Attivazione (AP).

In Tabella 5 sono invece rappresentati i risultati dell’analisi mediante Spettrometria-γ su un campione di grafite irraggiata, di forma prismatica, dalle dimensioni di 1.5 x 1.0 x 0.5 cm, dal peso di 1.8 g, ricavato dalla superficie inferiore di un mattone di grafite proveniente dal Canale Centrale (A1) alla base del core.

Tabella. 5: Principali γ -emittitori misurati nella Grafite irraggiata - Latina NPP

Nuclide	Campione 04F04A1/I1	
	Concentrazione Attività (Bq/g)	Incertezza (%)
⁶⁰ Co	1604.9	0.4
¹³⁷ Cs	25.3	9.6
¹³³ Ba	51.7	4.2
¹⁵⁴ Eu	53.1	11.1
¹⁵⁵ Eu	12.5	17.1

E' probabile che alcuni radionuclidi HTMR, quali ⁵⁵Fe e ⁶³Ni, siano presenti nei campioni di grafite irraggiata, come conseguenza dell'attivazione da parte del flusso neutronico, data la esistenza dei relativi nuclidi bersaglio su campioni di grafite vergine (Tabella 4) A tale scopo, si scelgono, quindi, come radionuclidi di interesse ⁶³Ni e ⁵⁵Fe quali prodotti di attivazione da "correlare" con ⁶⁰Co, così come suggerito dalla IAEA (Doc. No. NW-T-1.18) e dalle varie esperienze riportate in letteratura.

Il calcolo degli Scaling Factor viene effettuato applicando l'equazione (11):

$$A_2 = \frac{\sigma_2 \lambda_2 M_2}{\sigma_1 \lambda_1 M_1} A_1$$

Relativamente ai soli radionuclidi "target" ⁶²Ni, ⁵⁴Fe e ⁵⁹Co, i soli di cui al momento è possibile ipotizzare la composizione molare dalla Tabella 4, si ricavano le moli, M₁ e M₂, presenti nel campione di grafite prima che questi sia stato sottoposto al flusso neutronico all'interno del reattore.

Note le Sezioni d'Urto di Assorbimento Termico $\sigma_{(n,x)}$ nonché le Costanti di Decadimento λ , possiamo calcolare, relativamente alle coppie ⁶³Ni/⁶⁰Co e ⁵⁵Fe/⁶⁰Co i primi valori per gli Scaling Factor.

La Tabella 6 riporta i valori delle principali grandezze coinvolte nella valutazione degli Scaling Factor per le coppie ⁶³Ni/⁶⁰Co e ⁵⁵Fe/⁶⁰Co.

Tabella 6: Grandezze chimico-fisiche per la stima degli SF

	Moli degli elementi bersaglio	Sezioni d'urto $\sigma_{(n,x)}$ (Barns) a 0.02419 eV	Costanti di decadimento λ (s^{-1})
$^{63}\text{Ni}/^{60}\text{Co}$	^{62}Ni : $6.72 \cdot 10^{-7}$	$^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ 14.7443	^{63}Ni : $3.83 \cdot 10^{-12}$
	^{59}Co : $1.58 \cdot 10^{-5}$	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$ 38.024	^{60}Co : $4.17 \cdot 10^{-12}$
$^{55}\text{Fe}/^{60}\text{Co}$	^{54}Fe : $3.67 \cdot 10^{-6}$	$^{54}\text{Fe}(n,\gamma)^{55}\text{Fe}$ 2.30285	^{55}Fe : $8.05 \cdot 10^{-9}$

La Tabella 7 riporta i valori degli Scaling Factor calcolati secondo l'equazione (11) per le coppie sopra citate.

Tabella 7: Scaling Factor calcolati per i campioni di grafite proveniente dal moderatore della centrale di Latina

	Scaling Factor stimato
$^{63}\text{Ni}/^{60}\text{Co}$	0.0151
$^{55}\text{Fe}/^{60}\text{Co}$	27,2

Inoltre, essendo nota l'attività del ^{60}Co , ottenuta mediante spettrometria gamma, come dai risultati in Tabella 5, è possibile risalire alle concentrazioni di attività teoriche dei radionuclidi HTMR.

Utilizzando gli SF stimati della Tabella 7, si possono ricavare valori indicativi sulla concentrazione di attività degli HTMR ^{63}Ni e ^{55}Fe :

$$A(^{63}\text{Ni}) = \text{SF} \cdot A(^{60}\text{Co}) = 0.0151 \cdot 1604.9 \text{ (Bq/g)} = 24.3 \text{ (Bq/g)}$$

$$A(^{55}\text{Fe}) = \text{SF} \cdot A(^{60}\text{Co}) = 27.2 \cdot 1604.9 \text{ (Bq/g)} = 4360 \text{ (Bq/g)}$$

I valori così calcolati sono stati confrontati con i dati sperimentali ottenuti mediante un Liquid Scintillation Counting System: tale confronto ha mostrato l'accordo negli ordini di grandezza delle concentrazioni ricavate teoricamente e sperimentalmente.

I dati così ottenuti rappresentano soltanto un primo approccio all'utilizzo degli Scaling Factor e dimostrano la loro facilità di utilizzo, qualora opportunamente validati e confermati mediante procedure statistiche.

I valori ottenuti nel presente lavoro non possono essere riferiti ad equivalenti in letteratura, dal momento che fino ad oggi tale metodologia non è stata mai applicata a Grafite Irraggiata proveniente da impianti di tipo Gas Cooled Reactor o equivalenti.

3. CONCLUSIONI

La Metodologia degli Scaling Factor o dei fattori di correlazione rappresenta un valido ed utilissimo strumento per la determinazione dei radionuclidi di difficile rivelazione, evitando elaborate metodiche di analisi chimiche.

Per poter disporre di un valido elenco di SF relativamente a flussi di rifiuti generati in un determinato ambito, sia esso di smantellamento di impianti, sia solo ai fini di un inventario periodico di rifiuti in deposito, occorre validare statisticamente i valori ottenuti per ciascun SF relativi a coppie HTM/Key-nuclide.

Tale validazione, ampiamente descritta nella Pubblicazione IAEA No. NW-T-1.18 *“Determination and Use of Scaling Factors for Waste Characterization in Nuclear Power Plants”*, presuppone un ampio set di determinazioni sperimentali e/o simulate mediante opportuni codici di calcolo, su un ampio numero di campioni, tali da fornire una popolazione statistica rappresentativa ai fini della stessa validazione.

Una volta che gli SF relativi ad un certo flusso di rifiuti vengono validati e confermati, il loro utilizzo permetterà di ottenere informazioni utili sull'attività dei radionuclidi HTMR.

I valori ottenuti devono, naturalmente, essere riconfermati o rivalutati, in maniera periodica da definire in base alla natura degli stessi e al loro decadimento.

Lo scopo della prossima annualità sarà quello di calcolare un ampio set di SF su campioni provenienti da impianti elettronucleari a partire da dati sperimentali.

A tal proposito è previsto, per la prossima annualità, la disponibilità di un certo numero di campioni di Grafite Irraggiata provenienti dalla Centrale Elettronucleare di Latina. I campioni attesi saranno tutti riferiti ad una stessa corrente di rifiuto e da punti diversi del moderatore. Questi campioni costituiranno una valida base statistica ed abbastanza rappresentativa dei radionuclidi HTMR ^{55}Fe e ^{63}Ni oggetto di questo primo lavoro di validazione. Su ciascuno dei campioni si effettueranno analisi di spettrometria- γ , per la misura del key-Nuclide ^{60}Co mentre per i due HTMR ^{55}Fe e ^{63}Ni si procederà ad analisi mediante spettrometria ICP-MS e mediante Liquid Scintillation Counting LSC dopo adeguata preparazione del campione.

I risultati ottenuti, opportunamente elaborati, costituiranno un sufficiente set per la determinazione degli SF interessati, potendo così procedere alla necessaria trattazione statistica per la validazione dei risultati ottenuti.

RINGRAZIAMENTI

Ringraziamenti sono rivolti ai colleghi del Gruppo di Lavoro dell'Accordo di Programma ENEA – MSE, LP4, Task C, Ing. Nadia Cherubini, Dott. Francesco Troiani e in particolare al Responsabile della Linea Progettuale Ing. Alfredo Luce, per la disponibilità alla discussione e al confronto.

Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
NNFISS-LP4-022	0	L	21	21

BIBLIOGRAFIA

1. Determination and Use of Scaling Factors for Waste Characterization in Nuclear Power Plant – IAEA Nuclear Energy Series – Doc. No. NW-T-1.18 – April 2009;
2. Radiochemical analysis of radionuclides difficult to measure for waste characterization in decommissioning of nuclear facilities – Xiaolin Hou, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 273, No.1 (2007) 43-48;
3. Characterization of graphite sleeves from Bugey 1 EDF Plant for permanent disposal – Measurement and Calculation of Scaling Factors for Difficult-to-Measure Nuclides – B. R. Poncet, Electricité de France (EDF) – CIDEN, WM'03 Conference, February 23-27, 2003, Tucson, AZ;
4. Chemistry and Analysis of Radionuclides, Jukka Lehto and Xiaolin Hou, Wiley-VCH, 2010;
5. Study of the nuclide inventory of operational radioactive waste for the RBMK-1500 reactor, V. Remeikis et al., Nuclear Engineering and Design 239 (2009) 813-818;
6. Metodologie per la valutazione quali-quantitativa dei Radionuclidi di Difficile Rivelabilità (HTMR) ai fini della caratterizzazione radiologica dei rifiuti da smantellamento – NUCLECO, Rapporto Tecnico 018-2002;
7. Radiochemical Analysis for Nuclear Waste Management in Decommissioning – Xiaolin Hou, Risø National Laboratory for Sustainable Energy, Technical University of Denmark, NKS-222, 2010;
8. Evaluated Nuclear Data File, ENDF/B-VII.0, National Nuclear Data Center, Brookhaven Laboratory, USA.