



Ricerca di Sistema elettrico

Elementi per la sostenibilità del ciclo del combustibile nucleare – PAR 2016

R. Calabrese, R. Pergreffi, F. Rocchi

ELEMENTI PER LA SOSTENIBILITÀ DEL CICLO DEL COMBUSTIBILE NUCLEARE

R. Calabrese, R. Pergreffi, F. Rocchi (ENEA)

Settembre 2017

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico - ENEA

Piano Annuale di Realizzazione 2016

Area: Generazione di energia elettrica con basse emissioni di carbonio

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

Obiettivo: Progettazione di sistema e analisi di sicurezza

Responsabile del Progetto: Federico Rocchi, ENEA

Questo rapporto contiene i due seguenti Rapporti Tecnici ENEA:

- R. Calabrese, Molecular Dynamics Approaches to the Determination of MOX Thermophysical Properties, ADPFISS-LP1-091
- R. Pergreffi, F. Rocchi, Caratteristiche di sicurezza intrinseca di elementi di combustibile, ADPFISS-LP1-094

Titolo
**Molecular Dynamics Approaches to the Determination
 of MOX Thermophysical Properties**
Descrittori

Tipologia del documento: Rapporto tecnico

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

Argomenti trattati: Energia nucleare; Combustibile nucleare; Reattori nucleari veloci

Sommario

MOX fuel is already used in commercial reactors and it is a fundamental issue for the potential deployment of fast breeder reactors. A deep and sound knowledge of the thermo physical properties is crucial for its safe, reliable, and economic use. MD offers a fruitful opportunity for the acquisition of knowledge and competence in a research field of great interest. For the purpose, preliminary actions have been undertaken and presented in this document. In particular, the report provides a review of the MD studies on PuO₂ and MOX fuel, a description of the interatomic potentials applied in the literature, a description of the LAMMPS code that turned out to be a viable option for the continuation of research as preliminary planned in the next PAR 2017.

Il combustibile MOX è già impiegato nei reattori commerciali ed è un elemento fondamentale per il potenziale sviluppo dei reattori veloci. Una conoscenza profonda e solida delle proprietà termofisiche è fondamentale per un utilizzo sicuro, affidabile ed economico. MD offre interessanti opportunità per acquisire conoscenze e competenze in un campo di ricerca di grande interesse. A tal fine, sono state intraprese e presentate in questo documento alcune azioni preliminari. In particolare, il rapporto fornisce una review delle analisi MD sui combustibili PuO₂ e MOX, una descrizione dei potenziali interatomici applicati in letteratura, una descrizione del codice LAMMPS che si è rivelato un'opzione valida per la continuazione di questa linea di ricerca come previsto in via preliminare nel prossimo PAR 2017.

Note

Copia n.

In carico a:

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	15.4.2017	NOME	R. Calabrese	F. Rocchi	F. Rocchi
			FIRMA	<i>Roberto Calabrese</i>	<i>Federico Rocchi</i>	<i>Federico Rocchi</i>
REV.	DESCRIZIONE	DATA	REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE	

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione ADPFISS – LP1 – 091	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 2	di 22
--	--	------------------	----------------------	------------------	-----------------


 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	3	22

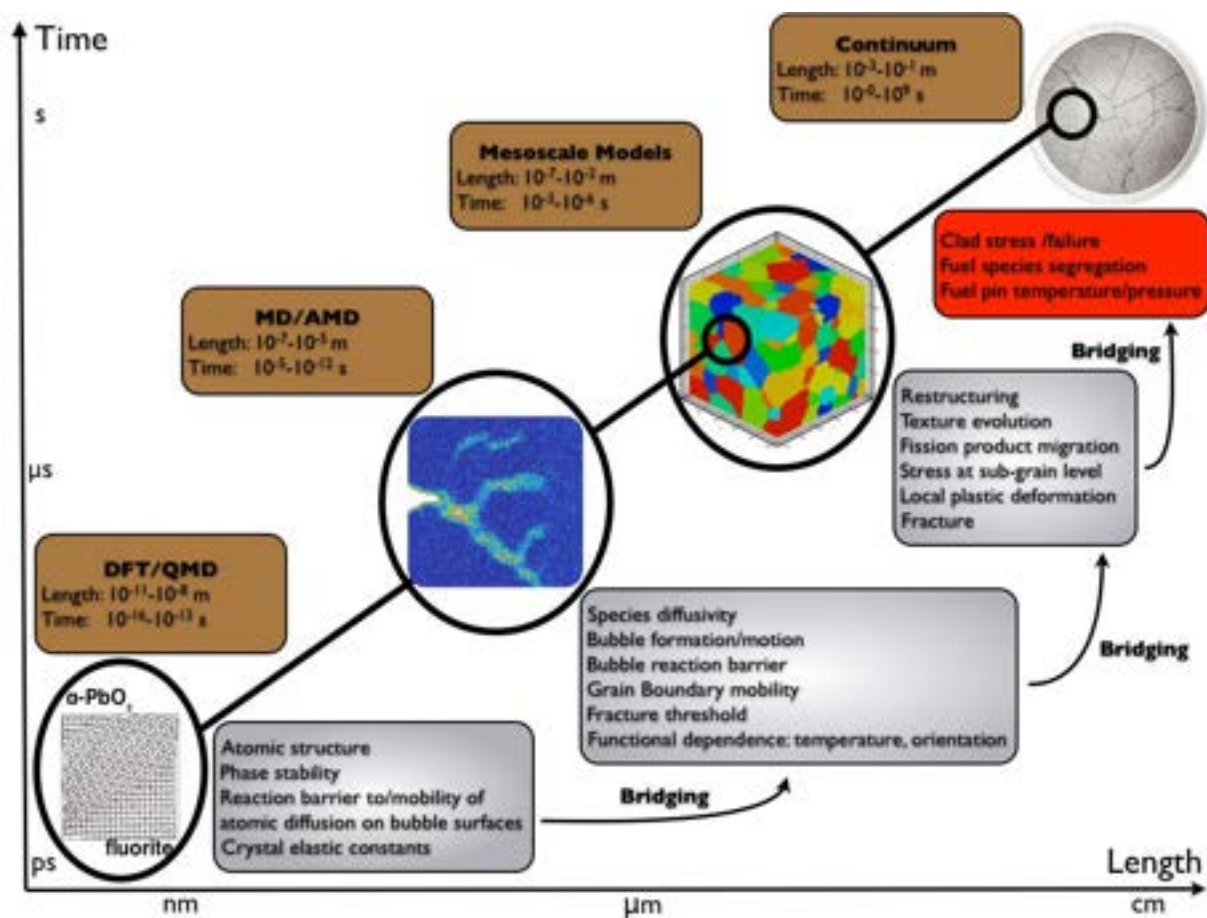
TABLE OF CONTENTS

1	Introduction	5
2	Molecular Dynamics literature: PuO ₂ and MOX fuel.....	8
3	Interatomic potentials	15
4	LAMMPS code	18
5	Conclusions	20
6	References.....	21

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione ADPFISS – LP1 – 091	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 4	di 22
--	--	------------------	----------------------	------------------	-----------------

1 INTRODUCTION

The classical molecular dynamics (CMD) simulation of nuclear fuel occupies an important research area between the density functional theory (DFT) and the coarse grained mesoscale models (NEA15). The most important methodologies considered in a Multi-Scale approach to the simulation of nuclear fuel behaviour are presented in Fig. 1.1.




DFT: Density Functional Theory (*ab initio*); QMD: Quantum Molecular Dynamics (electronic structure); MD: Molecular Dynamics (atomistic); AMD: Accelerated MD (atomistic); Mesoscale models: grain-level techniques such as Monte Carlo, Phase Field, Mean Field; Continuum: Finite Element-like techniques.

Figure 1.1: Multi-Scale modelling of nuclear fuel behaviour (NEA15).

Thanks to its capabilities, MD gives the opportunity to study relevant phenomena for the description of the thermo-mechanical behaviour of nuclear fuel such as:

- thermal-mechanical properties;
- radiation damage;

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	6	22

- fission gas bubbles formation/resolution;
- dislocation loops formation/motion;
- grain boundary motion;
- fuel densification.


With regard to PuO₂ and MOX fuel, the efforts of the scientific community have been mostly devoted to develop proper interatomic potentials for the description of the thermophysical properties. In comparison with UO₂, the development of MOX fuel simulations is somehow constrained by the scarce experimental data that makes difficult the assessment of results (e.g., thermal conductivity). The relevance of the methodology for the development of nuclear performance codes is acknowledged. For example, the analysis of the resolution coefficient that is a key parameter in fission gas release models could be an achievable objective of MD (Uff15).

As aforementioned, interatomic potentials play a central role in CMD. This function describes the force field acting between the atoms/ions of the system under consideration. They are analytical functions whose parameters are usually set to predict with good accuracy the available experimental data (e.g., lattice parameter and thermal expansion, bulk modulus). The determination of the parameters could be based on *ab initio* calculations.

A number of well-established classical MD tools can be applied for the simulation of very large number of atoms (e.g., LAMMPS, CHARM, DL_POLY, NAMD, MOLDY (Ack11)). The review has shown that the MXDRTO code has been used in the majority of the references presented here. Beside this, the MOLDY and LAMMPS codes are the most frequently used.


A Molecular Dynamics simulation consists of the numerical step-by-step solution of the classical equations of motion. Atoms basically interact with each other through van der Waals attractive forces, short-range repulsive forces, and electrostatic forces. If they are covalently bonded, strong forces hold them together as stable chemical groups. Position, velocity and acceleration of each atom are calculated using numerical methods (e.g. Verlet method, Runge-Kutta method) to solve the Newton's equations of motion (Bin04). From this microscopic information a series of macroscopic observables like pressure, temperature, heat capacity, stress tensor etc. are determined using statistical mechanics through time averages. The validity of this approach is based on the hypothesis that the system is ergodic so that time averages are equivalent to ensemble averages. One fundamental ensemble is called the micro-canonical ensemble and is characterized by constant number of particles N, constant volume V, and constant total energy E (NVE). Other examples include the canonical or NVT ensemble and the isothermal-isobaric or NPT ensemble (feasible by introducing a coupling to appropriate 'thermostats' and 'barostats') (Bin04).

Following this brief introduction, the report describes some preliminary actions that have been undertaken in view of a future involvement in this research area. As already anticipated, the focus of the document is on (U,Pu)O₂ fuel. MOX fuel is already used in commercial reactors and it is a fundamental issue for the potential

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	7	22

deployment of fast breeder reactors. A deep and sound knowledge of the thermophysical properties is crucial for its safe, reliable, and economic use. Therefore, MD offers a fruitful opportunity for the acquisition of knowledge and competence in a research area of great interest.

The report presents a review of the MD studies on PuO₂ and MOX fuel. This section aims at giving the state-of-the-art of MOX simulations providing information on codes, details of simulations, and topics most debated by the scientific community. The review is presented in Section 2. In Section 3, the potentials more frequently applied in the literature are briefly presented. In Section 4, the capabilities of the LAMMPS code are resumed. The code has been downloaded and installed. For testing purpose, preliminary calculations on the thermal conductivity of UO₂ have been performed. The presentation of this data has been postponed to a separate technical report under preparation.

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	8	22

2 MOLECULAR DYNAMICS LITERATURE: PuO₂ AND MOX FUEL


The work of Yamada et al. (2000) is one of the first studies dealing with the thermophysical properties of PuO₂ and MOX fuel (Yam00). The authors considered a system composed of 324 ions arranged in a CaF₂ type crystal structure. Calculations were performed in NPT and NVT ensembles. The thermal conductivity was calculated in the NPT ensemble by means of the Green-Kubo correlation.

The pair potential is partially ionic with a component that takes into account the cation-anion covalent bond. The authors present results about the lattice parameter, specific heat, compressibility, oxygen diffusivity, and thermal conductivity of PuO₂ (Yam00). The authors evaluated these quantities also in the case of MOX fuel. The analysis of (U_{0.8}Pu_{0.2})O₂ shows that the Bredig transition occurs in the specific heat and oxygen diffusivity at about 2350 K. With regard to the thermal conductivity of MOX fuel, the authors show results obtained at 360 K that suggest a decrease in conductivity with increasing plutonium content (Yam00). The behaviour of the thermal conductivity with temperature showed good agreement with the experimental data.

In (Kur01), MD calculations have been carried out on a low plutonium content MOX (20 at.%). Most of the hypotheses assumed in the analysis are quite consistent with the calculations described in (Yam00). Simulations have been performed in the temperature interval 300-2500 K while pressure ranges from 0.1 MPa up to 1.5 GPa. They employed the semi-empirical potential discussed in (Yam00). The authors calculated the thermal expansion, compressibility, heat capacity, and thermal conductivity of UO₂, PuO₂ and MOX. Results are in general good agreement with the values published in the open literature and confirm the existence of a premelting transition (2350 K). The occurrence of the Bredig transition was not confirmed in the case of PuO₂ (Kur01).

In (Ari05), the thermal properties of UO₂ and PuO₂ have been studied using two different pair potentials: Born–Mayer–Huggins (BMH) fully ionic and BMH partly ionic. The ionicity employed in the partially ionic model was 67.5%. The authors showed results of the lattice parameter and compressibility that supported the choice of the BMH-PIM pair potential. Based on this assumption, the specific heat and thermal conductivity have been evaluated (Ari05). Results showed some deviation between the predicted and experimental heat capacity of PuO₂. In their analysis, the thermal conductivity of UO₂ turned out to be lower than PuO₂. The accuracy seen in these results is better at high temperature while at low temperature (<500 K) the deviation of calculations is more significant. Authors argue that this effect could be due to impurities, lattice defects, grains boundaries that are not taken into account in calculations that consider a perfect crystal.

Arima et al. discussed the thermal conductivity of stoichiometric and hypo-stoichiometric MOX fuel (Ari06). This study intends to extend the analysis presented in (Yam00) and (Kur01) focusing on the effect of the O/M ratio on thermal conductivity. The temperature interval of interest is 300-2000 K. The authors applied the Born–Mayer–Huggins (BMH) potential with the partially ionic model. The ionicity of atomic bonds was 67.5%. The period used for the equilibration of the system was


 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	9	22

40 ps. Thermal expansion and bulk modulus have been determined in the NPT ensemble. Thermal conductivity was determined in NVE (micro-canonical ensemble). The evaluations of the $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_2$ lattice parameter and bulk modulus showed good agreement with the experimental data. The thermal conductivity has been tested in the interval of plutonium oxide concentration 0.0-30.0 mol.% with stoichiometry varying in the domain 1.94-2.00. The authors show a theoretical approach supporting the hypothesis that the concentration of plutonium has an impact on the thermal conductivity of MOX fuel. However, they conclude that in stoichiometric MOX this effect is small especially at high temperatures (Ari06). On the contrary, the effect of the O/M ratio on the thermal conductivity of $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_2$ is pronounced especially at low temperature. Their calculations are in better agreement with the modelling presented in (Dur00) while the correlation given in (Phi92) seems to overestimate the effect of the O/M ratio predicted in simulations.

A series of MD calculations focused on MOX fuels containing americium oxide is presented in (Kur06). The effect of americium turned out to be not significant for the evaluation of thermal properties. Temperature and pressure have been controlled separately aiming to perform calculations in the NPT ensemble. The interatomic potential applied by the authors has been derived from the literature (Ida76). The ionicity was 60%. In the article, evaluations of the lattice parameter, heat capacity and thermal conductivity are presented. Results agree on the existence of Bredig transition in MOX fuel. This transition could explain the markedly increase in the heat capacity seen beyond 2000 K and the increase in the oxygen displacement around 2500 K (Kur06). The authors point out that the characteristics of americium are consistent with the limited effect noted in simulations. However, non-stoichiometry, atomic scale point defects, grain boundaries, cracks and pores may change the conclusions drawn in the case of perfect crystal lattice (Kur06).

The thermal properties and the mobility of oxygen defects of UO_2 , PuO_2 , and 30%-MOX have been calculated in (Ter07). The potential used for these calculations is modelled in the articles (Yam00; Kur01). The author confirms that the addition of PuO_2 in MOX decreases the thermal conductivity. Besides the verification of the capabilities of this pair potential to describe the thermal properties, the analysis is also focused on the effect of the addition of plutonium on the diffusion and energy migration of defects. In MOX, the diffusion coefficient of interstitials increases showing a different behaviour beyond 1500 K (Ter07).

In (Ari08), the authors apply the homogeneous non-equilibrium molecular dynamics (NEMD) comparing its outcomes with the indications of experiments and equilibrium molecular dynamics (EMD) simulations. The interatomic potential is coincident with the model used in previous studies (Ari06). The details of calculations are pretty much the same of those presented in previous studies. Their analysis deals with the thermal conductivity of MOX fuel as a function of temperature and stoichiometry (Ari08). Both methods agree on the fact that the thermal conductivity decreases with increasing deviation from stoichiometry. In comparison with stoichiometric UO_2 , the addition of plutonium in MOX fuel has a limited effect. The use of NEMD proved to give results with better accuracy and lower computational costs.


 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	10	22

Tiwary et al. (2011) developed an interatomic potential for MOX and advanced fuels. The potential is composed of a short-range term and a long-range term. The first one is based on the Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL). Parameters have been fitted against a large database of *ab initio* calculations and experimental data (e.g., thermal expansion). The authors show MD results of PuO₂ and NpO₂. The results of lattice parameter and enthalpy proved in be in good agreement with the experimental measurements (Tiw11).

Basak and Kolokol (2012) adopt a pseudo-ion approach to discuss the thermophysical properties of MOX fuel. The radius and mass of plutonium and uranium cations are quite similar, for this reason, the authors judged that the average dynamic behaviour of MOX solid solution could be properly described though the use of a pseudo-ion. This choice reduces the inaccuracy due to the construction of the supercell through the random substitution of uranium with plutonium cations. The pseudo-ion resumes the physical properties of U_{0.8}Pu_{0.2}. The ionicity adopted in calculations is 60%. The authors discuss the inherent high temperature instability of the oxygen sub-lattice in fluorite-type structures (Bredig transition). This transition is often characterized by a sudden rise in the anionic diffusivity. Based on their simulations, the onset of the Bredig transition lies at a temperature around 2400 K. They claim that the use of a pseudo-ion approach avoids the scatter seen in the results obtained through a random construction of the MOX lattice permitting a more accurate determination of the temperature at which the Bredig transition occurs (Bas12). Evaluations of the lattice parameter, thermal expansion, isothermal compressibility, and specific heat proved to be in reasonable good agreement with the experimental data.

Nichenko and Staicu focus their analysis on the effect that plutonium concentration has on the thermal conductivity of MOX fuel (Nic13). First of all, the authors state that the experimental measurements of the thermal conductivity in the case of PuO₂ do not give consistent indications. Similarly, the review of MOX thermal conductivity results published in the literature does not permit to draw agreed conclusions. Therefore, a proper modelling of the separate effects of plutonium content, plutonium distribution and stoichiometry is still unfeasible (Nic13). They employ the potential developed in the studies of Arima et al. using a refined analytical treatment that considers a truncation of the Coulomb potential beyond cutoff. Authors propose a filtering of the heat current autocorrelation function to improve the evaluation of the thermal conductivity done by means of the Green-Kubo correlation. The isothermal-isobaric (NPT) statistical ensemble was applied to simulate the lattice at constant temperature and pressure (Berendsen thermostat and barostat). Their results indicate the existence of a minimum in MOX thermal conductivity at a plutonium concentration of 45 at.%. In this case, the thermal conductivity is about 14% lower than UO₂.

The article of Matsumoto et al. focuses on the effect of the O/M ratio on the thermal conductivity of MOX fuel containing a concentration in plutonium of 20 at.% (Mat13). Authors considered in their analysis the interval of O/M ratio 1.90-2.00. They determined the thermal conductivity through the Fourier's law using a non-equilibrium MD approach. The decrease due to the O/M ratio seen in the thermal conductivity is


 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	11	22

significant especially at low temperature where the phonon-lattice scattering is dominant. Their evaluations are in agreement with the indications given in (Phi92). Results tend to underestimate the predictions of the Duriez's correlation (Dur00). At a given level of stoichiometry, the addition of plutonium degrades the thermal conductivity of MOX fuel (Mat13).

Ma et al. studied the effect of the O/M ratio on the thermal conductivity of $(U_{0.75}Pu_{0.25})O_{2-x}$ (Ma14). In addition, they showed evaluations of the lattice parameter, compressibility, and thermal expansion. Besides the consideration of the O/M ratio, they discussed the effect of plutonium content on the thermal conductivity of a stoichiometric MOX (plutonium concentration 15-30 at.%). Their results confirm previous experimental indications and show that the O/M ratio has a significant effect on the lattice parameter and the linear thermal expansion coefficient. In this latter case, this statement is valid especially at high temperatures. Their evaluations on the thermal conductivity of MOX fuel support the hypothesis that the effect of plutonium concentration is by far lower than the deviation from stoichiometry. However, the consistency of the results with the experimental data is confirmed by the authors in the low temperature and for values of the O/M ratio higher than 1.94 (Ma14).

Cooper et al. proposed an alternative potential for the description of the properties of actinide oxides (Coo14). The authors employ a many-body potential using the embedded atom method (EAM). This new potential adopts a semi-empirical approach that determines the parameters used in calculations by fitting the experimental data of material properties. This model is composed of two parts: the first one deals with a pair potential where coulombic, Buckingham, and Morse terms are applied; the second is a contribution depending on the simultaneous interaction with all ions (many-body). The pair potential contribution remains dominant where a cutoff is used to avoid that the many-body interaction could overcome the effect of the short-range forces. The model adopts a ionicity of 56%. This model, mostly developed on the thermal expansion experimental data, has been applied to predict the specific heats and bulk moduli as a function of temperature (Coo14). The evaluations presented in this article, in good agreement with the literature, deal with the following actinide oxides: AmO_2 , CeO_2 , CmO_2 , NpO_2 , PuO_2 , ThO_2 and UO_2 . In addition, the authors discuss the evaluations of the UO_2 melting temperature and the energy needed for the formation of defects (Coo14).

In (Liu15), the authors aim at discussing the MOX thermal conductivity as a function of PuO_2 concentration. For the purpose, they apply a non-equilibrium MD approach. The temperature profiles of the calculated gradients are then averaged to determine the thermal conductivity. The positions of plutonium ions are randomly distributed in the uranium sub-lattice. Their results support the hypothesis that the thermal conductivity of PuO_2 is higher than UO_2 at 300 K while they are comparable at higher temperature. These results do not take into account the spin-phonon scattering in UO_2 . The reduction in the thermal conductivity of $(U_{0.5}Pu_{0.5})O_2$ at 300 K is estimated between 11% and 20% in comparison with the thermal conductivity of pure components (Liu15). In general, the thermal conductivity of MOX turned out to be smaller than the pure components. The absolute deviations decrease with increasing temperature. The use of the EAM potential gave values generally lower than the


 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	12	22

Buckingham potential, however, the indications given by these two different hypotheses are in general good agreement. The use of the EAM potential confirms the decrease of MOX thermal conductivity at 300 K (11%). The decrease becomes insignificant at higher temperatures. At low temperature, the difference in lattice parameter and mass has an impact in the phonon-lattice scattering mechanism. In their analysis, the inclusion of the spin scattering, has a significant impact on the thermal conductivity of UO_2 that turns out to be much lower than PuO_2 . As such, the addition of plutonium has a beneficial effect on the thermal conductivity of MOX fuel that now increases in comparison with the thermal conductivity of UO_2 .

Matsumoto et al. employ a non-equilibrium molecular dynamics (NEMD) approach to determine the thermal conductivity of UO_2 , PuO_2 , and MOX fuel (Mat15). The authors evaluate these quantities using the Busing-Ida pair potential with a ionicity of 67.5%. The thermal conductivity decreases with increasing supercell length. Their results agree on the hypothesis that the thermal conductivity of MOX fuel is comparable with UO_2 and lower than PuO_2 . However, the effect of the addition of PuO_2 is small (Mat15). According to these results, the thermal conductivity of PuO_2 is higher than UO_2 . Their results are in satisfactory agreement with the experimental measurements in the whole range of temperature considered in the study.

In (Coo15a), the authors study the degradation of the thermal conductivity of MOX fuel by means of non-equilibrium MD simulations. The topic of the article is on the effect of plutonium concentration. This quantity is studied in the interval 0.0-100.0 at.%. The authors use a potential that includes a many-body contribution besides the pair potential term (Coo14, Coo14b). Results indicate that the thermal conductivity of plutonium dioxide is higher than uranium dioxide. The addition of plutonium has a little effect on the thermal conductivity of uranium oxide. A minimum in the thermal conductivity is noted at a concentration of uranium of 75 at.% rather than 50 at.%. Inhomogeneity in plutonium distribution has a positive effect on the thermal conductivity but this effect should be compared with the effects of the phenomena occurring under irradiation (Coo15a).

Cooper et al. studied the thermophysical properties of the $(\text{U}_x\text{Pu}_{1-x})\text{O}_2$ system (Coo15b). The interval of temperature of interest is 300-3200 K considering 3 concentrations of plutonium (25, 50, 75 at.%). Their analysis is focused on the lattice parameter, linear thermal expansion coefficient, enthalpy and specific heat at constant pressure as a function of temperature. The diffusivity of oxygen is also discussed. The authors applied the many-body potential presented in (Coo14). For the purpose, the parameters of the PuO_2 model have been refined to achieve a better agreement with the experimental data of melting temperature. The tuning of coefficients caused a decrease in predictions down to an interval 2750-2850 K much more consistent with the experimental findings. In this article, the energy characterisation of oxygen defects is discussed as well. The introduction of defects in the supercell is carried out once the system energy has been minimized. An evaluation of the enthalpy of the defective supercell is then carried out. The comparison of this quantity with an ideal supercell has been used to determine the enthalpies of oxygen vacancies and interstitials. In calculations, 10 supercells are randomly generated and their results averaged. The results of the lattice parameter

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	13	22

and thermal expansion show a deviation from the Vergard's law at high temperature. In addition, an influence of the concentration of plutonium is noted, however, the authors underline that these results are not validated because of lacking in the experimental data (available up to 1700 K). The behaviour of the thermal expansion noted at high temperature is confirmed in the simulations of the enthalpy and specific heat. The enthalpy increment as a function of temperature increases more significantly between 2000 and 3000 K (Coo15b). Similarly, the results of oxygen diffusivity confirm the existence of a superionic transition. The increase in uranium concentration leads to an increase in the temperature of transition. The authors note that the diffusivity of oxygen in MOX fuel is higher than the interpolation of the values corresponding to the pure components. Based on these results an enhanced diffusivity of oxygen is predicted at the level of fuel temperatures used in operating reactors.

In (Gho16), the melting temperature, enthalpy increments, and density of solid and liquid ThO_2 , UO_2 , and PuO_2 are studied. Authors employ the many-body potential described in (Coo14) and (Coo15b). Different strategies have been applied for the creation of the initial supercell where a random substitution of atoms is considered. The melting temperature was determined by means of a two-phase supercell where half of it is initially in the solid phase while the other is in the liquid phase. The melting temperature was estimated setting a final temperature at which the supercell turns to a single phase system. The melting temperature of PuO_2 was estimated lying in the interval 2800-2825 K. The agreement noted between calculations and experimental values up to high temperatures confirms the capability of the applied potential to be used for the simulation of MOX fuel (Gho16).

The information published in the literature has been resumed in Tab. 2.1 and 2.2. Tables contain the information dealing with MOX fuel published within a specific article and do not resume all the information provided by the authors.

Reference	Fuel	Temperature (K)	Code	Property	Potential
Yamada, 2000	PuO_2 $(\text{U}_{1-x}\text{Pu}_x)\text{O}_2$ x 0.0-1.0	300-2500	MXDRTO	LP, SH, COM, OD, TC	BMH-PIM MORSE
Kurosaki, 2001	PuO_2 $(\text{U}_{0.8}\text{Pu}_{0.2})\text{O}_2$	300-2500	MXDRTO	TE, COM, SH, TC	BMH-PIM MORSE
Arima, 2005	PuO_2	300-2000	MXDRTO	LP, COM (bulk modulus) , SH, TC	BMH-FIM BMH-PIM
Arima, 2006	$(\text{U}_{1-x}\text{Pu}_x)\text{O}_{2-y}$ x 0.1, 0.2, 0.3 (y=0.0) y 0.02, 0.04, 0.06 (x=0.2)	300-2000	MXDRTO	LP, TE, COM, bulk modulus, TC	BMH-PIM
Kurosaki, 2006	$(\text{U}_{0.7-x}\text{Pu}_{0.3}\text{Am}_x)\text{O}_2$ x 0, 0.016, 0.03, 0.05, 0.10, 0.15	300-2500	MXDRTO	LP, HC, TC	BMH-PIM MORSE
Terentyev, 2007	PuO_2 $(\text{U}_{0.7}\text{Pu}_{0.3})\text{O}_2$	300-2500	MOLDY	LP, HC, TC, TE, OD	BMH-PIM MORSE
Arima, 2008	$(\text{U}_{0.8}\text{Pu}_{0.2})\text{O}_{2-y}$ y 0, 0.02, 0.04, 0.06	300-2000	MXDRTO	TC	BMH-PIM
Tiwary, 2011	$\text{PuO}_2, \text{NpO}_2$	500-1300	-	LP, E	ZBL + long- range term
Basak, 2012	$(\text{U}_{0.8}\text{Pu}_{0.2})\text{O}_2$	300-3000	MOLDY	LP, TE, SH, OD, COM	BMH-PIM MORSE
Nichenko, 2013	$(\text{U}_{1-x}\text{Pu}_x)\text{O}_2$ x 0.0-1.0	300-1600	-	LP, TC	BMH-PIM MORSE
Matsumoto, 2013	$(\text{U}_{0.8}\text{Pu}_{0.2})\text{O}_{2-x}$ x 0.0, 0.02, 0.04, 0.10	300-2000	MXDRTO	TC	BMH-PIM
Cooper, 2014	PuO_2	300-3000	LAMMPS	bulk modulus, SH	Many- body EAM
Ma, 2014	$(\text{U}_{0.75}\text{Pu}_{0.25})\text{O}_{2-y}$ y 0.0, 0.02, 0.06, 0.10, 0.15, 0.20, 0.25 $(\text{U}_{1-x}\text{Pu}_x)\text{O}_2$ x 0.15, 0.20, 0.25, 0.30	300-3000	LAMMPS	LP, TE, COM, bulk modulus, TC	BMH-PIM

Quantities (MT=melting temperature; E=enthalpy; D=density; LP=lattice parameter; TE=thermal expansion; COM=compressibility; TC=thermal conductivity; SH=specific heat; OD=oxygen diffusivity; HC=heat capacity)

Table 2.1: PuO_2 and MOX literature

Liu, 2015	(U _{1-x} Pu _x)O ₂ x 0.0, 0.25, 0.50, 0.75, 1.0	300-1500	LAMMPS	TE, TC	BMH-FIM Many-body EAM
Matsumoto, 2015	PuO ₂ (U _{0.8} Pu _{0.2})O ₂	300-2000	MXDRTO	TC	BMH-PIM
Cooper, 2015a	(U _x Pu _{1-x})O ₂ x 0.0, 0.25, 0.50, 0.75, 1.0	300-2000	LAMMPS	TC	Many-body EAM
Cooper, 2015b	(U _x Pu _{1-x})O ₂ x 0.0, 0.25, 0.50, 0.75, 1.0	300-3200	LAMMPS	LP, TE, E, SH, OD	Many-body EAM
Ghosh, 2016	PuO ₂	300-6000	LAMMPS	MT, E, D	Many-body EAM

Quantities (MT=melting temperature; E=enthalpy; D=density; LP=lattice parameter; TE=thermal expansion; COM=compressibility; TC=thermal conductivity; SH=specific heat; OD=oxygen diffusivity; HC=heat capacity)

Table 2.1 (continued): PuO₂ and MOX literature

3 INTERATOMIC POTENTIALS


The review presented in previous section has shown that few types of potentials are applied in simulations. In this section, a brief description of the interatomic potentials discussed in the literature is given. All the correlations are featured by a number of parameters that are usually fitted on the experimental data of specific properties such as the lattice parameter, bulk modulus, elastic properties etc. Therefore, the models used in MD are referred as semi-empirical potentials. They aim at reproducing the force field existing among the elementary compounds of the materials under consideration (atoms, ions).

The model mentioned in Tab. 2.1 as BMH-PIM is presented in Eq. 1. It is the partial ionic model of the Born-Mayer-Huggins pair potential (BMH). The first term accounts for the long-range Coulomb potential, the following two terms corresponds to the short-range interactions due to Pauli repulsion and van der Waals. In this correlation the f_0 coefficient is an empirical parameter used to adjust the model. The parameters z_i and z_j are the effective electronic charges according to the level of ionicity adopted for the description of the atomic bonds. Finally, r_{ij} is the distance between atom i and atom j . The remaining parameters (a , b , c) are fitted on the experimental data and are specific of the type of atoms/ions interacting. In the studies of MOX fuel, these coefficients are referring to the fuel components: oxygen, uranium, and plutonium. If the fuel is hypostoichiometric the different valence of cations should be properly considered.

$$U_{ij}(r_{ij}) = \frac{z_i z_j e^2}{r_{ij}} + f_0 (b_i + b_j) \exp\left(\frac{a_i + a_j - r_{ij}}{b_i + b_j}\right) - \frac{c_i c_j}{r_{ij}^6} \quad (1)$$

Reference	Ions	Ensembles	Equilibration (Calculation) (ps)	Time step (fs)	Coefficients
Yamada, 2000	324	NPT, NVT	20	2	literature and fitting LP, TE
Kurosaki, 2001	324	NPT, NVT	20	2	Literature and fitting LP(T, P)
Arima, 2005	324	NPT, NVE	40 (40 and 1000 for TC in NVE)	2	literature and fitting TE, COM at room temperature
Arima, 2006	324	NPT, NVE	40 (40 and 1000 for TC in NVE)	2	literature and fitting TE, COM (Pu ³⁺)
Kurosaki, 2006	768	NPT	20	2	literature
Terentyev, 2007	40500	NVT, NPT	10 (15)	0.5	literature
Arima, 2008	324	NVE (EMD)	40 (1000)	2	literature
Tiwary, 2011	324	NPT	10 (100)	<1 >0.5	GGA + U ab initio and experimental TE
Basak, 2012	12000	NPT, NVT	20	1	Literature and fitting of lattice parameter at 300, 800, 1300, 1800 K
Nichenko, 2013	2592	NPT	-	-	literature
Matsumoto, 2013	4320	NPT	40 (1000 for TC in NPT)	2	literature
Cooper, 2014	768	NPT	16 (4)	0.2	Fitting LP, elastic constants, bulk modulus, TE
Ma, 2014	2592	NPT, NVT	-	-	literature
Liu, 2015	-	NPT (thermal expansion) NVE	100 (13000)	-	literature
Matsumoto, 2015	4320-17280	NPT (0.1 MPa)	-	2	literature
Cooper, 2015a	4500-72000	-	-	-	literature
Cooper, 2015b	12000	NPT NVT (for OD)	20 (4; 1000 for OD)	2 (1 for OD)	Literature, refitting based on PuO ₂ MT
Ghosh, 2016	12000, 15552 (for MT)	NPT	40 (10)	2	literature

Table 2.2: PuO₂ and MOX literature

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	17	22

The Born–Mayer–Huggins potential used in the fully ionic model (BMH-FIM) is presented in Eq. 2. The second term represents Pauli repulsion, the third term the short-range van der Waals interaction. In the Coulomb term, the full electronic charges should be considered. The meaning of symbols is coincident with the previous description where A_{ij} , ρ_{ij} , and C_{ij} are the empirical coefficients of the interacting pair of ions.

$$U_{ij}(r_{ij}) = \frac{z_i z_j e^2}{r_{ij}} + A_{ij} \exp\left(-\frac{r_{ij}}{\rho_{ij}}\right) - \frac{C_{ij}}{r_{ij}^6} \quad (2)$$

The covalent part of the atomic bond is modelled by means of the Morse potential (Eq. 3). It is applied only to cation–anion pairs and r_{ij}^* is the anion–cation bond length. In this equation, D_{ij} and β_{ij} denote the depth and the shape of the potential. Eq. 1 and Eq. 3 are applied together to form the potential BMH-PIM MORSE in Tab. 2.1.

$$U_{ij}(r_{ij}) = D_{ij} \left\{ \exp\left[-2\beta_{ij}(r_{ij} - r_{ij}^*)\right] - 2 \exp\left[-\beta_{ij}(r_{ij} - r_{ij}^*)\right] \right\} \quad (3)$$

Finally, the potential developed by Cooper et al. (2014) is shown in Equations 4, 5, 6, and 7. This potential is indicated in Tab. 2.1 as many-body EAM potential. As presented in Eq. 4, the potential is composed of one term expressing the pair component while the second term accounts for many-body interactions. The pair potential is composed of three terms: Coulomb, Buckingham, and Morse potentials to describe short- and long-range interactions (Eq. 5). The analytical expression of the first two terms of the pair potential is presented in Eq. 6. With regard to previous indications, an effective ionicity is applied in the definition of the ionic charges. The term expressing the covalent part of the atomic bonds $\Phi^{(M)}$ is consistent with the correlation presented in Eq. 3.

$$E_i = \frac{1}{2} \sum_j \Phi_{\alpha\beta}(r_{ij}) - G_\alpha \left(\sum_j \sigma_\beta(r_{ij}) \right)^{1/2} \quad (4)$$

$$\Phi_{\alpha\beta}(r_{ij}) = \Phi_{\alpha\beta}^{(C)}(r_{ij}) + \Phi_{\alpha\beta}^{(B)}(r_{ij}) + \Phi_{\alpha\beta}^{(M)}(r_{ij}) \quad (5)$$

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	18	22

$$\Phi_{\alpha\beta}^{(C)}(r_{ij}) + \Phi_{\alpha\beta}^{(B)}(r_{ij}) = \frac{z_{\alpha}z_{\beta}}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} + A_{\alpha\beta} \exp\left(-\frac{r_{ij}}{\rho_{\alpha\beta}}\right) - \frac{C_{\alpha\beta}}{r_{ij}^6} \quad (6)$$

The embedding function accounting for the many-body perturbation is proportional to the square root of the sum of the contributions described in Eq. 7. G_{α} is the constant of proportionality. This effect is a function of the inverse of the 8-th power of the distance between ions where n_{β} is an empirical coefficient. A short range cut-off at 1.5 angstrom is applied to avoid that the forces due to the EAM term could overcome the short-range pair repulsion (Coo14).

$$\sigma_{\beta}(r_{ij}) = \frac{n_{\beta}}{r_{ij}^8} \quad (7)$$


4 LAMMPS CODE

The LAMMPS code (Large-Scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator) is one of the three codes used in the literature presented in Section 2. Therefore, it has the capabilities suitable for the analysis of MOX fuel. The code has been downloaded and a stand-alone version for WINDOWS has been installed and applied to the calculation of UO₂ thermal conductivity by means of the Green-Kubo correlation. The results of this initial testing phase will be presented in a report under preparation.

LAMMPS is a classical molecular dynamics code capable of modelling an ensemble of particles in a liquid, solid, or gaseous state. It can model atomic, polymeric, biological, metallic, granular, and coarse-grained systems using a variety of force fields and boundary conditions (Pli95).

The code runs on single-processor machines, but it is designed for parallel computing on any parallel machines with a C++ compiler and supporting the message passing interface (MPI). LAMMPS is a freely-available open-source code distributed under the terms of the GNU Public License. The code was originally developed under the US Department of Energy CRADA (Cooperative Research and Development Agreement) in collaboration with three private companies. It is now distributed by the Sandia National Laboratories.

LAMMPS integrates the Newton's equations of motion for collections of atoms, molecules, or macroscopic particles that interact via short- or long-range forces with a variety of initial and/or boundary conditions. The code uses lists of neighbors to keep track of nearby particles. The lists are optimized for systems with particles that are repulsive at short distances, so that the local density of particles never becomes too large.

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	19	22


Some key features of the code are briefly listed.

Particles and model types

- atoms;
- coarse-grained particles (e.g. bead-spring polymers);
- united-atom polymers or organic molecules;
- metals;
- granular materials;
- coarse-grained mesoscale models;
- finite-size spherical and ellipsoidal particles;
- finite-size line segment (2d) and triangle (3d) particles;
- point dipole particles;
- rigid collections of particles;
- hybrid combinations of these.

Force fields

- pairwise potentials: Lennard-Jones, Buckingham, Morse, Born-Mayer-Huggins, Yukawa, soft, class 2 (COMPASS), hydrogen bond, tabulated;
- charged pairwise potentials: Coulombic, point-dipole;
- many-body potentials: EAM, Finnis/Sinclair EAM, modified EAM (MEAM), embedded ion method (EIM), EDIP, ADP, Stillinger-Weber, Tersoff, REBO, AIREBO, ReaxFF, COMB, SNAP, Streitz-Mintmire, 3-body polymorphic;
- long-range interactions for charge, point-dipoles, and LJ dispersion: Ewald, Wolf, PPPM;
- polarization models: QEq, core/shell model, Drude dipole model;
- charge equilibration: QEq via dynamic, point, shielded, Slater methods;
- coarse-grained potentials: DPD, GayBerne, RESquared, colloidal, DLVO;
- mesoscopic potentials: granular, Peridynamics, SPH;
- electron force field: eFF, AWPMD;
- bond potentials: harmonic, FENE, Morse, nonlinear, class 2, quartic (breakable);
- angle potentials: harmonic, CHARMM, cosine, cosine/squared, cosine/periodic, class 2 (COMPASS);
- dihedral potentials: harmonic, CHARMM, multi-harmonic, helix, class 2 (COMPASS), OPLS;
- improper potentials: harmonic, cvff, umbrella, class 2 (COMPASS);
- polymer potentials: all-atom, united-atom, bead-spring, breakable;
- water potentials: TIP3P, TIP4P, SPC;
- implicit solvent potentials: hydrodynamic lubrication, Debye;
- force-field compatibility with common CHARMM, AMBER, DREIDING, OPLS, GROMACS, COMPASS options;
- access to KIM archive of potentials via pair kim;
- hybrid potentials: multiple pair, bond, angle, dihedral, improper potentials can be used in one simulation;

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	20	22

- overlaid potentials: superposition of multiple pair potentials.

Atom creation

- read in atom coords from files;
- create atoms on one or more lattices (e.g., grain boundaries);
- delete geometric or logical groups of atoms (e.g. voids);
- replicate existing atoms multiple times;
- displace atoms.

Ensembles, constraints, and boundary conditions


- 2d or 3d systems;
- constant NVE, NVT, NPT, NPH, Parinello/Rahman integrators;
- thermostatting options for groups and geometric regions of atoms;
- pressure control via Nose/Hoover or Berendsen barostatting in 1 to 3 dimensions;
- simulation box deformation (tensile and shear);
- rigid body constraints;
- Monte Carlo bond breaking, formation, swapping;
- atom/molecule insertion and deletion;
- walls of various kinds;
- non-equilibrium molecular dynamics (NEMD);
- variety of additional boundary conditions and constraints.

5 CONCLUSIONS

The report presents some preliminary actions aimed at a future use of the Molecular Dynamics methodology for the study of MOX fuel. For the purpose, a review of the literature has been carried out. The MD simulations of MOX fuel published in the literature are resumed. The review has indicated a set of codes, interatomic potentials, and simulations details specific for the analysis of MOX fuel.


This has permitted to determine the domain in which MOX fuel have been investigated by the scientific community. Based on these indications, most of the possible applications of MD recalled in (NEA15) have not yet been exploited in the case of MOX fuel. Among the codes mentioned in the literature, the LAMMPS code has been used in many recent studies. In addition, the code is freely-available making simpler the perspective of a deeper involvement in this field of research. For this reason, the code has been downloaded and preliminary simulations performed.

These initial steps have confirmed the importance of the methodology, its current use in the study of MOX fuel and its future application as a realistic opportunity. However, it is also confirmed the efforts needed to achieve an adequate level of knowledge and competence. It is expected that in the near future, new steps forwards will be accomplished.

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	21	22

6 REFERENCES

- [Ack11] Ackland G.J., D’Mellow K., Daraszewicz S.L., Hepburn D.J., Uhrin M., Stratford K., 2011, The MOLDY short-range molecular dynamics package, *Computer Physics Communications* 182, 2587–2604.
- [Ari05] Arima T., Yamasaki S., Inagaki Y., Idemitsu K., 2005, Evaluation of thermal properties of UO_2 and PuO_2 by equilibrium molecular dynamics simulations from 300 to 2000K, *Journal of Alloys and Compounds* 400, 43–50.
- [Ari06] Arima T., Yamasaki S., Inagaki Y., Idemitsu K., 2006, Evaluation of thermal conductivity of hypostoichiometric $(\text{U,Pu})\text{O}_{2-x}$ solid solution by molecular dynamics simulation at temperatures up to 2000 K, *Journal of Alloys and Compounds* 415, 43–50.
- [Ari08] Arima T., Yamasaki S., Idemitsu K., Inagaki Y., 2008, Equilibrium and nonequilibrium molecular dynamics simulations of heat conduction in uranium oxide and mixed uranium–plutonium oxide, *Journal of Nuclear Materials* 376, 139–145.
- [Bas12] Basak C.B., Kolokol A.S., 2012, A Novel Pseudo-Ion Approach in Classical MD Simulation: A Case Study on $(\text{U}_{0.8}\text{Pu}_{0.2})\text{O}_2$ Mixed Oxide, *Journal of the American Ceramic Society* 95 [4], 1435–1439.
- [Bin04] Binder K., Horbach J., Kob W., Paul W., Varnik F., 2004, Molecular dynamics simulations. *Journal of Physics: Condensed Matter* 16, S429–S453.
- [Coo14] Cooper M.W.D., Rushton M.J.D., Grimes R.W., 2014, A many-body potential approach to modelling the thermomechanical properties of actinide oxides, *Journal of Physics: Condensed Matter* 26, 105401–105411.
- [Coo15a] Cooper M.W.D., Middleburgh S.C., Grimes R.W., 2015, Modelling the thermal conductivity of $(\text{U}_x\text{Th}_{1-x})\text{O}_2$ and $(\text{U}_x\text{Pu}_{1-x})\text{O}_2$, *Journal of Nuclear Materials* 466, 29–35.
- [Coo15b] Cooper M.W.D., Murphy S.T., Rushton M.J.D., Grimes R.W., 2015, Thermophysical properties and oxygen transport in the $(\text{U}_x\text{Pu}_{1-x})\text{O}_2$ lattice, *Journal of Nuclear Materials* 461, 206–214.
- [Dur00] Duriez C., Alessandri J.-P., Gervais T., Philipponneau Y., 2000, Thermal conductivity of hypostoichiometric low Pu content $(\text{U,Pu})\text{O}_{2-x}$ mixed oxide, *Journal of Nuclear Materials* 277, 143–158.
- [Gho16] Ghosh P.S., Kuganathan N., Galvin C.O.T., Arya A., Dey G.K., Dutta B.K., Grimes R.W., 2016, Melting behavior of $(\text{Th,U})\text{O}_2$ and $(\text{Th,Pu})\text{O}_2$ mixed oxides, *Journal of Nuclear Materials* 479, 112–122.
- [Ida76] Ida Y., 1976, Interionic Repulsive Force and Compressibility of Ions, *Physics of the Earth and Planetary Interiors* 13, 97–104.
- [Kur01] Kurosaki K., Yamada K., Uno M., Yamanaka S., Yamamoto K., Namekawa T., 2001, Molecular dynamics study of mixed oxide fuel, *Journal of Nuclear Materials* 294, 160–167.

 Centro Ricerche Bologna	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS – LP1 – 091	0	L	22	22

- [Kur06] Kurosaki K., Adachi J., Katayama M., Osaka M., Tanaka K., Uno M., Yamanaka S., 2006, Molecular Dynamics Studies of Americium-Containing Mixed Oxide Fuels, *Journal of Nuclear Science and Technology* 43(10), 1224–1227.
- [Liu15] Liu X.-Y., Cooper M.W.D., Stanek C.R., Andersson D.A., 2015, The thermal conductivity of mixed fuel $U_xPu_{1-x}O_2$: molecular dynamics simulations, LA-UR-15-28079, Los Alamos Laboratories, Los Alamos, NM, USA.
- [Ma14] Ma J., Zheng J., Wan M., Du J., Yang J., Jiang G., 2014, Molecular dynamical study of physical properties of $(U_{0.75}Pu_{0.25})O_{2-x}$, *Journal of Nuclear Materials* 452, 230–234.
- [Mat13] Matsumoto T., Arima T., Inagaki Y., Idemitsu K., Kato M., Uchida T., 2013, Investigation of O/M ratio effect on thermal conductivity of oxide nuclear fuels by non-equilibrium molecular dynamics calculation, *Journal of Nuclear Materials* 440, 580–585.
- [Mat15] Matsumoto T., Arima T., Inagaki Y., Idemitsu K., Kato M., Uchida T., 2015, Molecular dynamics calculations of heat conduction in actinide oxides under thermal gradient, *Progress in Nuclear Energy* 85, 271–276.
- [NEA15] State-of-the-Art Report on Multi-scale Modelling of Nuclear Fuels, 2015, NEA/NSC/R/(2015)5, OECD/Nuclear Energy Agency, Paris.
- [Nic13] Nichenko S., Staicu D., 2013, Molecular Dynamics study of the mixed oxide fuel thermal conductivity, *Journal of Nuclear Materials* 439, 93–98.
- [Phi92] Philipponneau Y., 1992, Thermal conductivity of $(U,Pu)O_{2-x}$ mixed oxide fuel, *Journal of Nuclear Materials* 188, 194–197.
- [Pli95] Plimpton S., 1995, Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics, *Journal of Computational Physics* 117, 1-19.
- [Ter07] Terentyev D., 2007, Molecular dynamics study of oxygen transport and thermal properties of mixed oxide fuels, *Computational Materials Science* 40, 319–326.
- [Tiw11] Tiwary P., van de Walle A., Jeon B., Grønbech-Jensen N., 2011, Interatomic potentials for mixed oxide and advanced nuclear fuels, *Physical Review B* 83, 094104-1 to -6.
- [Uff15] Van Uffelen P., 2015, Use of advanced simulations in fuel performance codes, NEA/NSC/R/(2015)5, OECD/Nuclear Energy Agency, 352–358.
- [Yam00] Yamada K., Kurosaki K., Uno M., Yamanaka S., 2000, Evaluation of thermal properties of mixed oxide fuel by molecular dynamics, *Journal of Alloys and Compounds* 307, 1–9.

Caratteristiche di sicurezza intrinseca di elementi di combustibile

Descrittori

Tipologia del documento: Rapporto Tecnico

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

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

Sommario

Viene di seguito presentata l'attività svolta da ENEA nell'ambito del Benchmark NEA del gruppo AFCS finalizzata alla validazione della procedura adottata per i calcoli del rateo di dose di un elemento di combustibile irraggiato e poi lasciato decadere per 1,8 anni. I valori di rateo di dose misurati sperimentalmente rispetto a cui si è operato il confronto si riferiscono all'elemento di combustibile D04 dell'unità 3 della centrale americana Turkey Point 3 del 1974. I risultati ottenuti mostrano, soprattutto per la direzione assiale, un buon accordo con i valori misurati.


Note

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

Copia n.

In carico a:

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	01/12/2017	NOME	Roberto Pergreffi	Franca Padoani	Federico Rocchi
			FIRMA	<i>Roberto Pergreffi</i>	<i>Franca Padoani</i>	<i>Federico Rocchi</i>
REV.	DESCRIZIONE	DATA	REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE	

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-094	0	L	2	22

Sommario

1. Introduzione	3
2. Descrizione del FA D04 dell'unità Turkey Point 4	3
3. Sorgente e spettro fotonico	5
4. Risultati del confronto tra ratei di dose gamma	10
5. Distribuzione assiale della sorgente fotonica e rim effect.....	14
6. Nuovi risultati con distribuzione non uniforme della sorgente	19
Riferimenti bibliografici.....	22
Ringraziamenti.....	22

1. Introduzione

Recenti valutazioni sulle proprietà di autoprotezione degli elementi di combustibile (fuel assembly, FA) bruciati hanno suggerito la necessità di verificare i valori del rateo di dose gamma ad essi associati calcolati nei primi anni novanta [Lloyd, 1994] su cui si basa tutta la normativa di riferimento per l'applicazione delle salvaguardie contro la diversione. Tali valori infatti, forse per effetto delle metodologie di calcolo estremamente conservative tipiche della radioprotezione, risulterebbero essere sovrastimati di almeno un fattore due. Al fine quindi di determinare l'effettivo livello di autoprotezione degli elementi di combustibile bruciati contro il pericolo di diversione, nel 2015 è stato costituito, in seno alla Nuclear Energy Agency (NEA) dell'OECD, un gruppo di lavoro dell'Advanced Fuel Cycle Scenarios (AFCS), di cui ENEA fa parte. Dell'attività sin qui svolta è possibile distinguere due fasi.

La prima fase, per la quale si rimanda al rapporto della precedente annualità¹, ha avuto come principale obiettivo quello di calcolare analiticamente per un elemento di combustibile PWR UOx bruciato e poi lasciato decadere per 30 anni, l'intensità dell'emissione gamma, lo spettro fotonico associato e il rateo di dose gamma ad un metro di distanza dal centro del FA. I risultati ottenuti, tra le due e le tre volte inferiori ai valori di dose calcolati negli anni '90, confermano le valutazioni di sovrastima di cui si è dato conto.

L'esigenza di validare la procedura adottata per il calcolo del rateo di dose gamma ha poi richiesto un confronto tra valori analitici e misure sperimentali. Originariamente la scelta del fuel assembly su cui operare tale confronto era caduta sull'elemento di combustibile B03 della centrale americana Turkey Point. Ma la totale asimmetria dei valori di rateo di dose misurati sperimentalmente² oltre che la scarsità dei dati disponibili in letteratura sulla storia di irraggiamento dell'elemento, ne hanno comportato la sostituzione in favore dell'elemento D04. Tutte le principali informazioni relative a questo fuel assembly sono state recuperate in letteratura (e riportate in bibliografia).

Scopo del presente rapporto è quello di documentare l'attività svolta da ENEA in questa seconda fase del Benchmark.

2. Descrizione del FA D04 dell'unità Turkey Point 4

La stazione nucleare di Turkey Point, di proprietà della Florida Power & Light Company, si trova in Florida, a 40 km da Miami e si compone di due reattori ad acqua pressurizzata (PWR), denominati Turkey Point 3 e 4, ciascuno con una potenza di 693 MWe (2300 MWth). La criticità dei due impianti è stata raggiunta, rispettivamente, il 20 ottobre 1972 e l'11 giugno 1973, mentre il loro spegnimento è previsto tra il 2032 e il 2033.

Una descrizione dei principali parametri relativi all'elemento di combustibile D04 irraggiato nell'unità Turkey Point 3 è contenuta in Tabella 1. L'assembly in questione è di tipo Westinghouse 15x15 con arricchimento in U²³⁵ al 2,55% in peso e con massa di uranio pari a 456,9 kg. È interessante osservare la differenza tra i valori, entrambi calcolati, del burnup di

¹ A. Guglielmelli, R. Pergreffi, F. Rocchi, *Sicurezza intrinseca di elementi di combustibile irraggiati*, Rapporto Tecnico ENEA ACPFISS-LP1-077, 2016.

² C. E. Willingham, *Radiation dose rates from commercial PWR and BWR Spent fuel Elements*, Battelle, October 1981.

picco e di quello medio: il fatto che tale differenza sia di soli 2800 MWd/MTU è una diretta conseguenza dei quasi tre anni di irraggiamento subito dall'assembly.

Parametro	Valore ³
Tipo	W15x15-21 LOPAR
Dimensione [cm]	21,4x21,4
Passo dell'elemento [cm]	21,5
Mezza lamina d'acqua [cm]	0,05
Passo della cella elementare [cm]	1,427
Raggio del combustibile [cm]	0,4492
Spessore del gap [cm]	0,025
Spessore del clad [cm]	0,0618
Altezza zona attiva [cm]	365,76
Volume totale di UO ₂ [cm ³]	52710,77
Massa di UO ₂ [kg]	518,32
Massa di U [kg]	456,9
Arricchimento in U ²³⁵ [%]	2,55
Densità effettiva [g/cm ³] (89.72%)	9,833
Densità teorica [g/cm ³]	10,96
Materiale del clad	Zr-4
Densità del moderatore [g/cm ³]	0,731
Burnup medio (calcolato) [MWd/MTU]	28430
Burnup di picco (calcolato) [MWd/MTU]	31240
Tempo di irraggiamento [EFPD]	851
Potenza specifica [W/g]	31,203
Tempo di decadimento [d]	657 (= 1,8 y)

Tabella 1. Descrizione dell'elemento di combustibile D04.

I tre cicli di irraggiamento dell'unità 3 della centrale di Turkey Point⁴ (cicli 2, 3 e 4), per un totale di 953 giorni, e gli intervalli di decadimento intermedi, sono riportati in Figura 1.

	Sample	Cycle 2	Cycle 3	Cycle 4
Cycle Start	all	12/16/74	12/23/75	1/16/77
Cycle End	all	10/26/75	11/15/76	11/24/77
Uptime, days	all	314	327	312
Downtime, days	all	58	62	927

Figura 1. Cicli di irraggiamento dell'unità Turkey Point 3.

³ S. D. Atkin, *Destructive examination of 3-cycle LWR fuel rods from Turkey Point unit 3 for the climax*, Hanford Engineering Development Laboratory, June 1981.

⁴ M. Nichol, *SAS2H Analysis of Radiochemical Assay Samples from Turkey Point PWR Reactor*, B0000000-01717-0200-00141 REV 00, CRWMS/M&O, February 1997.

3. Sorgente e spettro fotonico

Un calcolo di rateo di dose può essere scomposto, per comodità, in tre parti distinte: da principio, un calcolo di bruciamento con cui determinare la composizione isotopica dell'assembly al momento dello scarico, a seguire un calcolo di decadimento che permette di conoscere sorgente e spettro fotonico dopo un periodo di decadimento dato e, da ultimo, un calcolo di trasporto fotonico e di dose con cui determinare il danno provocato dall'assorbimento di radiazioni gamma su un determinato bersaglio. Le prime due parti, bruciamento e decadimento, sono state eseguite con il codice Origen-ARP della suite Scale 6.3.1, mentre la terza parte, quella del trasporto fotonico, è stata effettuata mediante il codice MCNPX (si veda il paragrafo 4). Dei valori di Tabella 1, quelli effettivamente utilizzati in Origen-ARP nei calcoli di bruciamento e di decadimento hanno a che fare con la massa di uranio, l'arricchimento in U^{235} , il burnup medio di assembly e la potenza specifica. Proprio in riferimento alla potenza specifica, è necessario precisare che il valore effettivamente utilizzato in Origen-ARP – e cioè 33,41 W/g – differisce da quello in tabella – 31,203 W/g – di un 6-7%. Il problema nasce dal fatto che quest'ultimo valore non è coerente con i valori del burnup medio di assembly e del tempo di irraggiamento a partire dai quali dovrebbe poter essere derivato. La sorgente e lo spettro fotonico sono stati calcolati utilizzando in Origen-ARP entrambe le strutture a 18 e 19 gruppi energetici esplicitamente previste dal Benchmark. Il contributo del Bremsstrahlung, relativamente ai soli decadimenti, è stato incluso nel calcolo. I risultati di sorgente e spettro fotonico sono riportati in Tabella 2.

Struttura a 18 gruppi				Struttura a 19 gruppi			
E_{min} [MeV]	E_{max} [MeV]	Fotoni al secondo	% di gamma totali	E_{min} [MeV]	E_{max} [MeV]	Fotoni al secondo	% di gamma totali
0,00	0,02	6,01E+15	32,48	0,00	0,05	6,55E+15	41,49
0,02	0,03	1,31E+15	7,08	0,05	0,07	1,08E+15	6,83
0,03	0,05	1,46E+15	7,92	0,07	0,11	8,32E+14	5,27
0,05	0,07	1,10E+15	5,96	0,11	0,16	9,76E+14	6,18
0,07	0,10	8,32E+14	4,50	0,16	0,23	5,55E+14	3,51
0,10	0,15	1,14E+15	6,15	0,23	0,34	4,50E+14	2,85
0,15	0,30	7,95E+14	4,30	0,34	0,51	7,06E+14	4,47
0,30	0,45	4,21E+14	2,27	0,51	0,75	3,39E+15	21,48
0,45	0,70	3,95E+15	21,35	0,75	1,25	1,12E+15	7,07
0,70	1,00	1,21E+15	6,56	1,25	1,75	9,55E+13	0,60
1,00	1,50	2,06E+14	1,11	1,75	2,25	3,71E+13	0,23
1,50	2,00	2,43E+13	0,13	2,25	2,75	3,21E+12	0,02
2,00	2,50	3,09E+13	0,17	2,75	3,50	3,31E+11	0,00
2,50	3,00	6,13E+11	0,00	3,50	4,50	4,10E+07	0,00
3,00	4,00	5,55E+10	0,00	4,50	5,50	2,45E+06	0,00
4,00	6,00	5,36E+06	0,00	5,50	6,50	8,26E+05	0,00
6,00	8,00	6,18E+05	0,00	6,50	7,50	2,78E+05	0,00
8,00	11,00	7,10E+04	0,00	7,50	8,65	1,04E+05	0,00
Totale		1,85E+16	100,00	8,65	20,00	2,10E+04	0,00
				Totale		1,58E+16	100,00

Tabella 2. Sorgente e spettro fotonico usando le due strutture previste dal Benchmark.

Il fatto che, come si evince dai dati di Tabella 2, le due strutture conducano a risultati piuttosto distanti, con una differenza sul valore della sorgente fotonica di quasi il 15%, impone una verifica sul grado di affidabilità dei risultati ottenuti⁵. A tal fine i risultati di Tabella 2 sono stati confrontati con quelli ottenuti mediante una nuova struttura – che potremmo chiamare “ottimizzata” – in cui l’ampiezza e la centratura dei singoli gruppi è determinata a partire dalle energie di emissione degli isotopi maggiormente responsabili dell’emissione fotonica. In Tabella 3 sono stati riportati, per ciascuno dei 19 gruppi energetici, l’energia di centro gruppo, la sua intensità in fotoni al secondo e in percentuale sul totale e i principali isotopi emettitori ognuno con il proprio contributo percentuale all’intensità del gruppo. In giallo sono stati evidenziati i gruppi energetici più rilevanti. Ai fini di un calcolo di dose, infatti, gli intervalli energetici più importanti sono quelli superiori a 0,4 MeV e questo per effetto di due diversi contributi: da una parte i coefficienti di conversione da flusso a rateo di dose che proprio nell’intervallo 0,02 - 0,4 MeV sono di almeno un ordine di grandezza inferiori; dall’altra l’autoschermo del fuel, che determina una attenuazione fotonica tanto maggiore quanto minore è l’energia del fotone incidente (quindi per energie inferiori a 0,02 MeV è molto elevata).

1	2	3	4	5	6	7
0.0241 MeV	0.0597 MeV	0.0887 MeV	0.131 MeV	0.1935 MeV	0.2865 MeV	0.4245 MeV
Tot Gr 5.9E+15 % tot 37.94% Pr144 42.4% Rh106 35.7% Ce144 10.7% Y90 8.9% Ba137m 2.3%	Tot Gr 1.0E+15 % tot 6.34% Pr144 48.6% Rh106 41.4% Y90 9.98%	Tot Gr 7.9E+14 % tot 4.99% Pr144 45.2% Rh106 38.8% Y90 9.1% Ce144 6.9%	Tot Gr 9.6E+14 % tot 6.06% Ce144 44.9% Pr144 25.3% Rh106 21.9% Y90 5.0% Eu154 2.9%	Tot Gr 5.4E+14 % tot 3.40% Pr144 48.2% Rh106 42.5% Y90 9.3%	Tot Gr 4.4E+14 % tot 2.78% Pr144 48.0% Rh106 43.1% Y90 8.9%	Tot Gr 7.03E+14 % tot 4.45% Rh106 67.5% Pr144 21.2% Sb125 5.1% Y90 3.6% Cs134 2.6%
8	9	10	11	12	13	14
0.6285 MeV	1 MeV	1.5 MeV	2 MeV	2.5 MeV	3.125 MeV	4 MeV
Tot Gr 3.3E+15 % tot 20.9% Ba137m 40.3% Cs134 38.6% Rh106 17.4%	Tot Gr 1.1E+15 % tot 6.95% Cs134 78.6% Rh106 11.0% Pr144 4.2%	Tot Gr 9.5E+13 % tot 0.60% Cs134 32.0% Eu154 25.1% Pr144 20.7%	Tot Gr 3.7E+13 % tot 0.23% Pr144 81.6% Rh106 18.4%	Tot Gr 3.2E+12 % tot 0.02% Rh106 90.4% Pr144 9.6%	Tot Gr 3.3E+11 % tot 0.00% Rh106 95.2% Pr144 4.8%	Tot Gr 4.1E+07 % tot 0.00% Rh106 83.3% Cm244 16.7%
15	16	17	18	19		
5 MeV	6 MeV	7 MeV	8.975 MeV	14.325 MeV		
Tot Gr 2.4E+06 % tot 0.00% Cm244 95% Cm242 5%	Tot Gr 8.1E+05 % tot 0.00% Cm244 95% Cm242 5%	Tot Gr 2.7E+05 % tot 0.00% Cm244 95% Cm242 5%	Tot Gr 1.0E+05 % tot 0.00% Cm244 95% Cm242 5%	Tot Gr 2.1E+04 % tot 0.00% Cm244 95% Cm242 5%		

Tabella 3. Principali contributori all’emissione fotonica primaria dopo 1,8 anni di decadimento.

Sommando opportunamente le emissioni fotoniche dei soli isotopi presenti in Tabella 3 per energie inferiori e superiori al valore di 0,4 MeV si ottengono i risultati di Tabella 4 dove, a fianco del valore emissivo in fotoni al secondo, è stato riportato tra parentesi il suo valore percentuale rispetto al totale della sorgente fotonica (1,58E+16). In giallo sono stati evidenziati i quattro isotopi che da soli determinano oltre l’80% della sorgente fotonica complessiva ma soprattutto la quasi totalità di quella superiore a 0,4 MeV. Per ciascuno di essi si è poi verificato che le tre strutture utilizzate nel Benchmark – quindi a 62, a 19 e a 18

⁵ Sugli aspetti rilevanti di una struttura a gruppi si veda: A. Guglielmelli, R. Pergreffi, F. Rocchi, *Sicurezza intrinseca di elementi di combustibile irraggiati*, Rapporto Tecnico ENEA ACPFISS-LP1-077, 2016.

gruppi rispettivamente – contenessero gruppi ben centrati e stretti attorno alle loro principali energie di emissioni.

Isotopo	Fotoni al secondo per E < 0,4 MeV	Fotoni al secondo per E > 0,4 MeV	Fotoni al secondo sull'intero spettro energetico
Y90	8,43E+14 (5,34%)	2,56E+13 (0,16%)	8,68E+14 (5,50%)
Rh106	3,48E+15 (22,06%)	1,20E+15 (7,58%)	4,68E+15 (29,65%)
Ba137m	1,41E+14 (0,90%)	1,33E+15 (8,43%)	1,47E+15 (9,32%)
Ce144	1,12E+15 (7,11%)	0,00E+00 (0,00%)	1,12E+15 (7,11%)
Pr144	4,10E+15 (25,93%)	3,66E+14 (2,32%)	4,46E+15 (28,25%)
Eu154	2,82E+13 (0,18%)	5,65E+13 (0,36%)	8,46E+13 (0,54%)
Sb125	0,00E+00 (0,00%)	3,61E+13 (0,23%)	3,61E+13 (0,23%)
Cs134	0,00E+00 (0,00%)	2,19E+15 (13,84%)	2,19E+15 (13,84%)
Nb95	0,00E+00 (0,00%)	3,44E+13 (0,22%)	3,44E+13 (0,22%)
Ag110m	0,00E+00 (0,00%)	3,08E+12 (0,02%)	3,08E+12 (0,02%)
Cm244	0,00E+00 (0,00%)	1,02E+07 (0,00%)	1,02E+07 (0,00%)
Totale	9,72E+15 (61,51%)	5,24E+15 (33,15%)	1,50E+16 (94,67%)

Tabella 4. Raggruppamento a 2 gruppi dei principali contributori.

La Tabella 5 riporta, per singolo isotopo, la o le energie di emissione gamma a cui l'isotopo decade nonché, per ognuna delle tre strutture considerate, l'intervallo la centratura e l'ampiezza dei gruppi in cui quelle energie sono contenute. Il risultato è il seguente:

- ✓ per l'energia di emissione del Rh106, il gruppo più stretto e meglio centrato è quello della struttura a 18 gruppi (intervallo 0,03 - 0,045 MeV);
- ✓ per l'energia di emissione del Ba137m, il gruppo più stretto e meglio centrato appartiene alla struttura a 62 gruppi (intervallo 0,65 - 0,68 MeV);
- ✓ per quanto riguarda l'isotopo Cs134, delle quattro diverse energie a cui l'isotopo decade gamma, tre sono contenute nella struttura a 62 gruppi mentre una in quella a 18 gruppi;
- ✓ per quanto riguarda l'isotopo Pr144, nessun gruppo delle tre strutture prese in esame risulta essere centrato e stretto rispetto alla sua energia di emissione.

Isotopo	Energia di emissione [MeV]	Intervallo [MeV]			Centratura [MeV]			Ampiezza [MeV]		
		62 gr.	19 gr.	18 gr.	62 gr.	19 gr.	18 gr.	62 gr.	19 gr.	18gr.
Rh106	0,0394	0,01-0,1	0,00-0,05	0,03-0,045	0,055	0,025	0,0375	0,09	0,05	0,015
Ba137m	0,6617	0,65-0,68	0,51-0,75	0,45-0,7	0,665	0,63	0,575	0,03	0,24	0,25
Pr144	2,9974	2,80-3,0	2,75-3,5	2,5-3	2,9	3,125	2,75	0,2	0,75	0,5
Cs134	0,08906	0,01-0,1	0,07-0,11	0,07-0,1	0,055	0,09	0,085	0,09	0,04	0,03
	0,41564	0,40-0,45	0,34-0,51	0,3-0,45	0,425	0,425	0,375	0,05	0,17	0,15
	0,65839	0,65-0,68	0,51-0,75	0,45-0,7	0,665	0,63	0,575	0,03	0,24	0,25
	1,45426	1,45-1,50	1,25-1,75	1-1,5	1,475	1,5	1,25	0,05	0,05	0,5

Tabella 5. Ricerca di una struttura a gruppi ottimizzata.

A partire dai risultati sin qui ottenuti è stata quindi costruita la nuova struttura "ottimizzata" di Tabella 6. Con sfondo giallo sono stati evidenziati i sei gruppi che dall'analisi precedente sono risultati essere quelli più rilevanti ai fini dell'emissione fotonica.

	Numero del gruppo	Energia min [MeV]	Energia max [MeV]	Fotoni al secondo	% di gamma totali
come nella struttura a 18 gruppi	1	0	0,02	6,01E+15	32,74
	2	0,02	0,03	1,31E+15	7,14
	3	0,03	0,045	1,46E+15	7,98
	4	0,045	0,07	1,10E+15	6,01
	5	0,07	0,1	8,32E+14	4,53
	6	0,1	0,15	1,14E+15	6,20
	7	0,15	0,30	7,95E+14	4,33
Come nella struttura a 62 gruppi	8	0,30	0,40	3,01E+14	1,64
	9	0,40	0,45	1,23E+14	0,67
	10	0,45	0,50	7,35E+13	0,40
	11	0,50	0,55	5,82E+14	3,17
	12	0,55	0,60	3,13E+14	1,71
	13	0,60	0,63	1,40E+15	7,65
	14	0,63	0,65	9,35E+12	0,05
	15	0,65	0,68	1,27E+15	6,91
	16	0,68	0,70	8,10E+13	0,44
	17	0,70	0,73	5,21E+13	0,28
	18	0,73	0,75	3,58E+11	0,00
	19	0,75	0,78	6,06E+13	0,33
	20	0,78	0,80	9,70E+14	5,29
	21	0,80	0,82	1,15E+14	0,63
	22	0,82	0,84	4,55E+09	0,00
	23	0,84	0,86	5,91E+11	0,00
	24	0,86	0,88	2,08E+13	0,11
	25	0,88	0,90	1,94E+13	0,11
	26	0,90	0,92	1,40E+13	0,08
	27	0,92	0,94	2,57E+12	0,01
	28	0,94	0,96	1,60E+10	0,00
	29	0,96	0,98	1,97E+10	0,00
	30	0,98	1,00	1,75E+13	0,10
	31	1,00	1,05	5,54E+13	0,30
	32	1,05	1,10	2,87E+13	0,16
	33	1,10	1,15	1,89E+13	0,10
	34	1,15	1,20	2,71E+13	0,15
	35	1,20	1,25	5,84E+12	0,03
	36	1,25	1,30	2,93E+13	0,16
	37	1,30	1,35	3,89E+12	0,02
	38	1,35	1,40	3,83E+13	0,21
	39	1,40	1,45	2,81E+12	0,02
	40	1,45	1,50	1,48E+13	0,08
Nuovo gruppo	41	1,50	2,95	4,72E+13	0,26
Nuovo gruppo	42	2,95	3,05	5,80E+10	0,00
Nuovo gruppo	43	3,05	11,00	8,03E+09	0,00
Totale				1,83E+16	100,00

Tabella 6. Nuova struttura a gruppi costruita a partire dalle energie di emissione degli isotopi rilevanti.

La nuova struttura è così composta:

- ✓ i gruppi 1-7, al cui interno ricadono le energie di emissione di Rh106 e Cs134, appartengono alla struttura a 18 gruppi;
- ✓ i gruppi 8-40, con i tre gruppi contenenti le energie di emissione di Ba137m e Cs134, fanno parte della struttura a 62 gruppi;
- ✓ il gruppo 42, da cui i gruppi 41-43, è stato costruito attorno all'energia di emissione dell'isotopo Pr144.

Utilizzando la struttura 'mista' di Tabella 6, si è eseguito un nuovo calcolo di sorgente fotonica per verificare il grado di affidabilità dei due valori di Tabella 2. Il risultato ottenuto, pari a $1,83E+16$ fotoni al secondo, permette di concludere che il valore più affidabile è senza dubbio quello calcolato con la struttura a 18 gruppi ($1,85E+16$ fotoni al secondo).

Da un'osservazione di AREVA è sorta infine la necessità di quantificare l'errore che è stato commesso nel calcolo della sorgente fotonica ad avere trascurato i tempi di decadimento tra cicli. Questa approssimazione, è giusto precisare, è stata fatta a partire dalla considerazione fisica che i decadimenti tra un ciclo e l'altro, da cui dipendono una certa variazione della composizione isotopica del combustibile e dello spettro neutronico, possano essere trascurati in un calcolo di dose a 1,8 anni dallo scarico del combustibile, cioè laddove il tempo sia sufficientemente lungo da smorzare gli effetti dei decadimenti intermedi sulla composizione isotopica finale. Assai diverso sarebbe stato il caso di un calcolo di sorgente fotonica dopo un tempo di decadimento, ad esempio, di pochi giorni dallo scarico. La validità di questa approssimazione è stata comunque verificata.

I risultati di Tabella 7, ottenuti modificando direttamente il file di input di Origen-S con i tempi di decadimento di Figura 1 (pari a 58 giorni tra il primo e il secondo ciclo e a 62 giorni tra il secondo e il terzo), confermano, come si vede, la sostanziale correttezza dell'assunzione fatta.

	Senza cicli intermedi	Con cicli intermedi ciclo1 = 58 g , ciclo2 = 62 g
Sorgente fotonica [fot/s]	1,83E+16	1,75E+16
Differenza relativa [%]	-	-4,4

Tabella 7. Confronto di sorgenti fotoniche con e senza cicli intermedi.

4. Risultati del confronto tra ratei di dose gamma

Di seguito sono riportati i risultati del confronto tra i valori dei ratei di dose gamma misurati secondo lo schema di Figura 2 e quelli calcolati da ENEA. Il trasporto fotonico e i calcoli del rateo di dose sono stati eseguiti con MCNPX 2.7.0 usando le librerie .04p per fotoni. Non è stato considerato alcun *rim effect* e la sorgente fotonica è stata uniformemente distribuita nelle pellet di combustibile. Il calcolo è stato fatto ricorrendo a più tally di tipo F4 su volumi rettangolari di $5 \times 5 \times 0,5 \text{ cm}^3$ posizionati, assialmente, a 30,48 cm dalla superficie superiore e, radialmente, in direzione ortogonale a una distanza di 183 cm dall'inizio della zona attiva. Sono stati impiegati 6E9 fotoni primari, cui corrisponde una deviazione standard sulla dose mai superiore al 3%. E' stata usata una tecnica di riduzione della varianza di tipo "source bias" nella card ERG (è stata settata $\text{imp}=2$ per $E > 0,4 \text{ MeV}$). Il contributo dei fotoni prodotti da eventuali reazioni (n,g) nel combustibile è stato completamente trascurato, mentre il Bremsstrahlung dovuto agli elettroni secondari è stato tenuto in conto tramite il modello semplificato di Thick-Target.

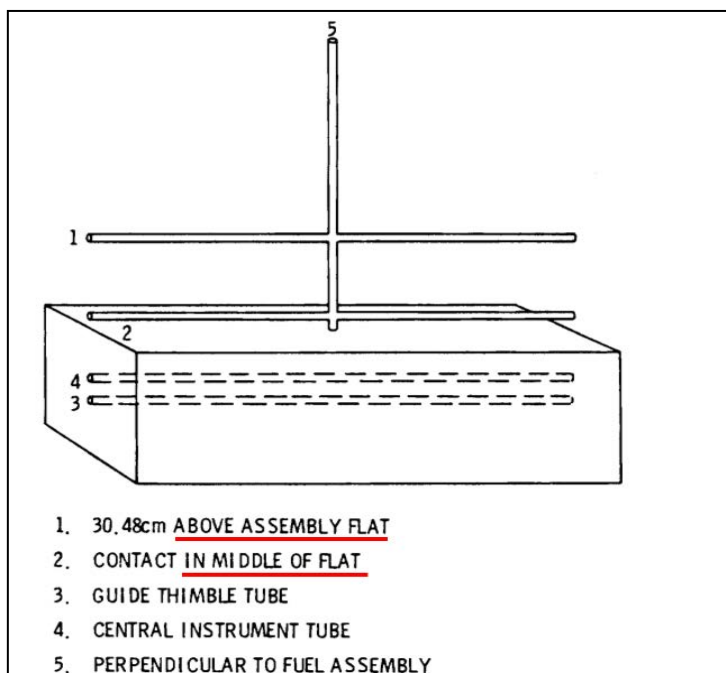


Figura 2. Layout di sistema per le misure di dosimetria gamma.

L'effettiva collocazione dei rilevatori implementata in MCNPX è riportata in Tabella 8. In Figura 3 è mostrata una vista laterale della geometria secondo quanto elaborato da Vised.

Rilevatori assiali (a 30,48 cm dalla superficie superiore dell'assembly)													
Distanza dall'inizio della zona attiva [cm]	30	61	91	122	152	183	213	244	274	305	335	366	396
Rilevatori radiali (lungo il piano di mezzeria dell'assembly)													
Distanza dal piano di mezzeria [cm]	31	61	91	122	152	183	213	244					

Tabella 8. Collocazione dei rilevatori assiali e radiali.

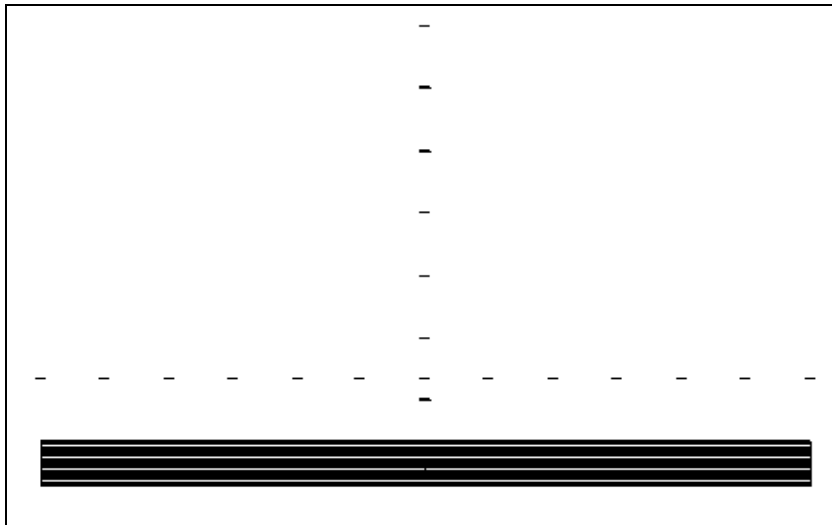


Figura 3. Vista laterale della geometria MCNPX.

In Tabella 9 sono riportati, per ciascuno dei 13 rilevatori assiali, i valori del confronto tra misure sperimentali e dati calcolati in Sv/h. Come mostrato nell'ultima colonna di Tabella 9, la differenza relativa tra i valori misurati e quelli calcolati è assai modesta eccetto che a una distanza di 366 cm dall'inizio della zona attiva. Tali valori sono poi stati graficati in Figura 4.

Rilevatori assiali			
Distanza dalla parte bassa del fuel assembly [cm]	Rateo di dose gamma		Differenza relativa [%]
	Misurati [Sv/h]	Calcolati [Sv/h]	
30	74,2	80,2	8,1
61	121	135,5	12,0
91	149	152,1	2,1
122	162	157,2	-3,0
152	162	159,6	-1,5
183	171	159,7	-6,6
213	163	158,6	-2,7
244	158	158,2	0,1
274	161	157,3	-2,3
305	154	157,6	2,2
335	142	152,0	7,1
366	110	132,8	20,7
396	72,9	81,3	11,5

Tabella 9. Confronto tra ratei di dose gamma in direzione assiale.

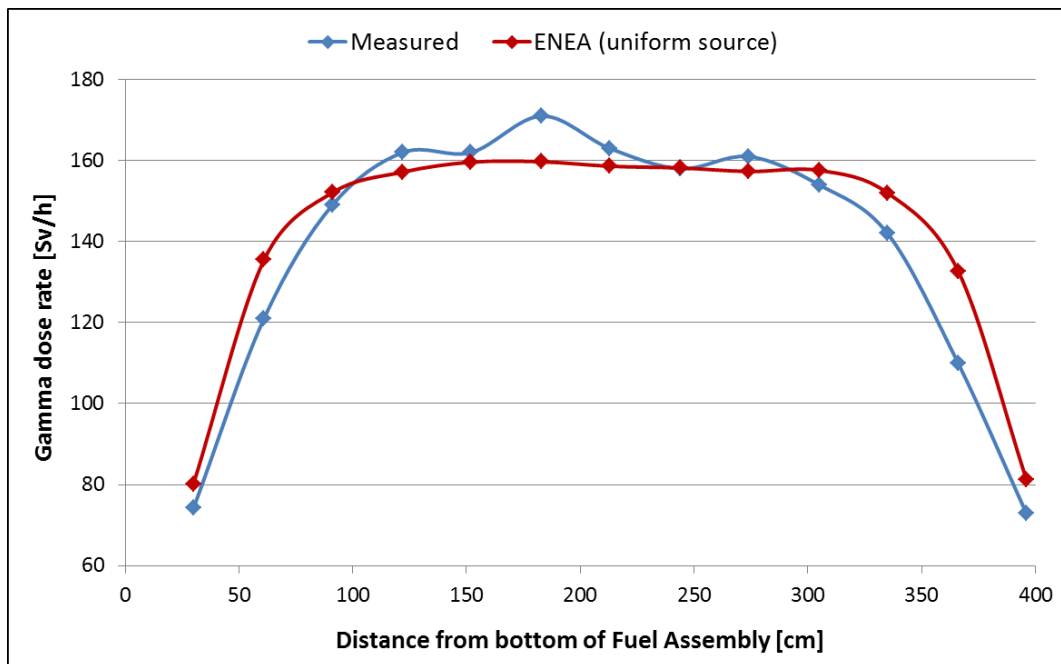


Figura 4. Grafico del confronto tra ratei di dose in direzione assiale.

E' ragionevole supporre che il profilo dentellato del rateo di dose misurato assialmente e ben visibile nell'intervallo 100-300 cm, possa essere dovuto alla presenza delle grigliette spaziatrici. Le grigliette utilizzate nell'elemento di combustibile D04 dell'unita Turkey Point 3 sono in INCONEL 718. Un materiale che, a causa dell'attivazione delle impurita di Co59 (circa lo 0,05% in peso dell'intera griglietta) e quindi dei due effetti neutronici ad esso correlati quali l'indurimento dello spettro e la diminuzione locale del burnup, potrebbe spiegare la riduzione dell'intensita e quindi del rateo di dose gamma nei dintorni delle posizioni occupate dalle grigliette.

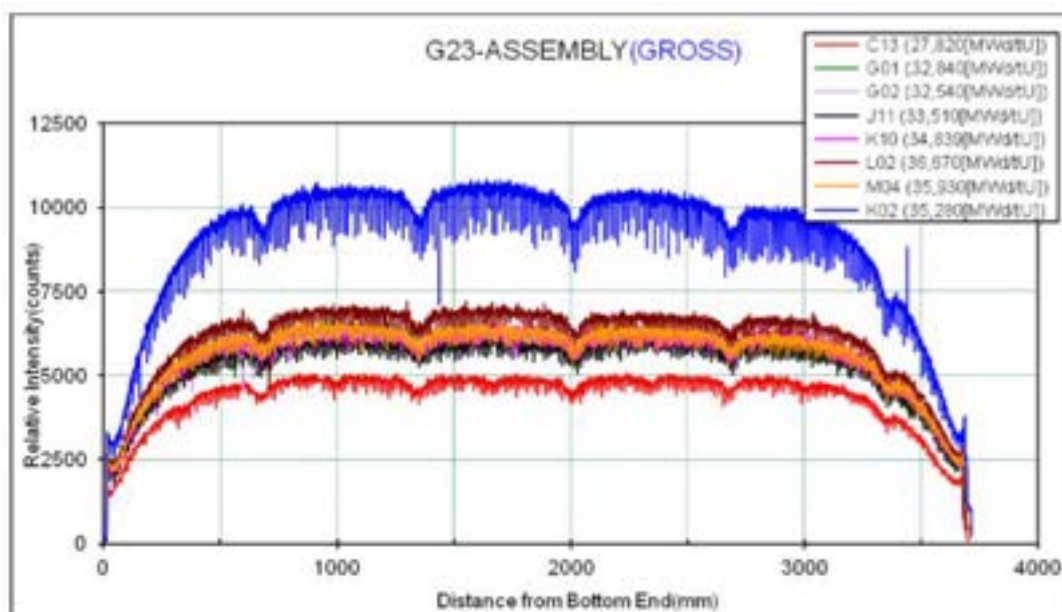


Figura 5. Scansione assiale gamma di un elemento di tipo PWR a diversi burnup.

La riduzione dell'intensità gamma per effetto delle grigliette spaziatrici è ben visibile nei grafici di Figura 5 relativi alla scansione gamma in direzione assiale di un elemento di combustibile per PWR a differenti burnup⁶.

In Tabella 10 sono invece riportati i valori in Sv/h del confronto tra misure sperimentali e dati calcolati per ciascuno degli 8 rilevatori radiali. La fonte delle incertezze indicate a fianco dei valori misurati è il documento di Davis del 1980 riportato in bibliografia. Diversamente dal caso assiale, in direzione radiale la differenza relativa tra i valori misurati e quelli calcolati è decisamente più marcata con la sola eccezione della posizione a 61 cm dal piano di mezzeria. Come si vede dal grafico di Figura 6, in tale punto le due curve si intersecano per poi divergere per distanze superiori ai 100 cm.

Rilevatori radiali			
Distanza dal piano di mezzeria [cm]	Rateo di dose gamma		Differenza relativa [%]
	Misurati [Sv/h]	Calcolati [Sv/h]	
31	186 ±3	229,2	23
61	98,8 ±3	96,9	-2
91	68,1 ±5	57,0	-16
122	49,1 ±4	38,0	-23
152	39,2 ±4	27,0	-31
183	33,4 ±3	20,6	-38
213	28,5 ±2	15,7	-45
244	22,4 ±3	12,3	-45

Tabella 10. Confronto tra ratei di dose gamma in direzione radiale.

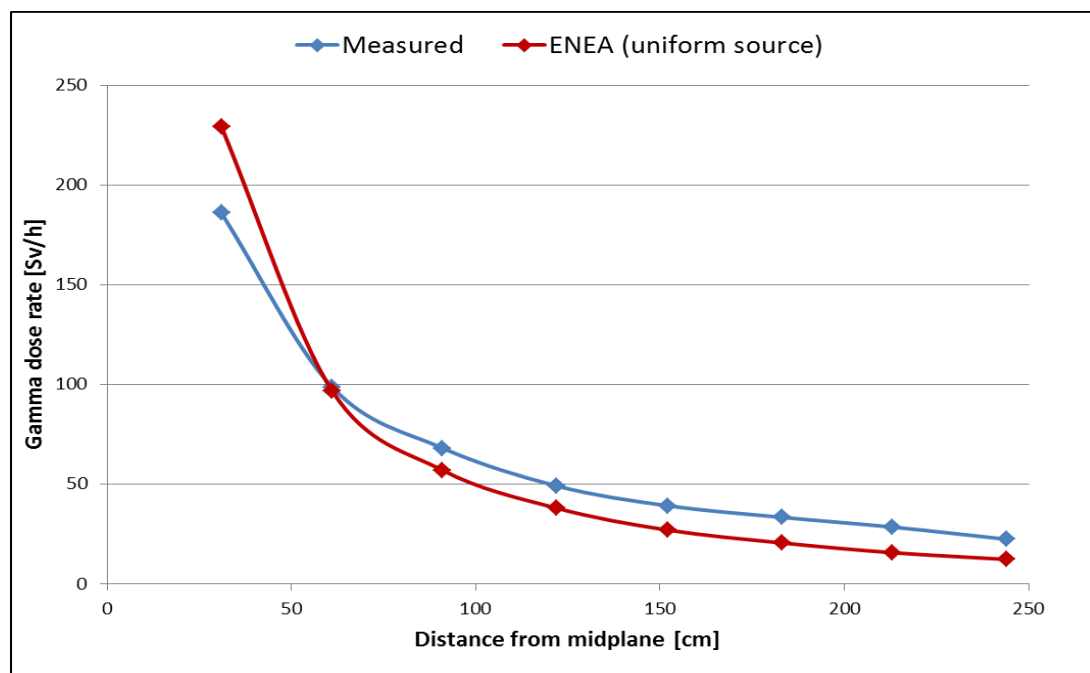


Figura 6. Grafico del confronto tra ratei di dose in direzione radiale.

⁶ H.R. Trelue, J.D. Galloway, *Description of axial detail for ROK Fuel*, Los Alamos National Laboratory, LA-UR-12-20724.

5. Distribuzione assiale della sorgente fotonica e rim effect

A conclusione di quanto sin qui mostrato si può dire che, se i risultati in direzione assiale possono essere considerati soddisfacenti, non lo sono pienamente quelli in direzione radiale. Volendo indagarne le cause, l'assunzione più problematica sembra essere quella relativa alla definizione della sorgente gamma nei calcoli di trasporto con MCNPX. Come si ricorderà, essa è stata definita uniforme sia in direzione assiale che nella regione del combustibile. Per ottenere una descrizione fisica più accurata, si è deciso di procedere introducendo in MCNPX una sorgente fotonica non uniforme, di fatto proporzionale:

- ✓ in direzione assiale, alla distribuzione di burnup tipica dei PWR;
- ✓ in direzione radiale, alla concentrazione isotopica di Rh106, Cs134, Ba137m, Pr144, Ce144 e Eu154 in ciascuna delle venti regioni equivolumiche di combustibile in cui è stata discretizzata la pellet.

Occupiamoci anzitutto delle modifiche introdotte alla distribuzione assiale della sorgente fotonica. I valori tipici del profilo assiale di burnup negli elementi di combustibile per PWR con un burnup medio di 28433 MWd/MTU sono ripresi da [4]. A partire da tale distribuzione, in Tabella 11 sono stati ricavati i valori di burnup corrispondenti alle diciotto quote, ciascuna di ampiezza 20,333 cm, in cui è stata suddivisa la zona attiva e, a fianco, le probabilità di emissione fotonica dei rispettivi intervalli poi utilizzate in MCNPX.

Numero della regione	Estremo sup. [cm]	Ampiezza [cm]	Distribuzione assiale di burnup	Valore assiale di burnup [MWd/MTU]	Probabilità
1	20,333	20,333	0,551	15665	0,0306
2	40,667	20,333	0,886	25189	0,0492
3	61,000	20,333	1,007	28629	0,0559
4	81,333	20,333	0,974	27691	0,0541
5	101,667	20,333	1,146	32581	0,0637
6	122,000	20,333	1,138	32353	0,0632
7	142,333	20,333	1,140	32410	0,0633
8	162,667	20,333	1,135	32268	0,0630
9	183,000	20,333	1,138	32353	0,0632
10	203,333	20,333	1,166	33149	0,0648
11	223,667	20,333	1,173	33348	0,0652
12	244,000	20,333	1,173	33348	0,0652
13	264,333	20,333	1,169	33235	0,0649
14	284,667	20,333	1,157	32894	0,0643
15	305,000	20,333	1,022	29055	0,0568
16	325,333	20,333	0,882	25075	0,0490
17	345,667	20,333	0,701	19929	0,0389
18	366,000	20,333	0,444	12623	0,0247
Totale			18,002	511797	1
Valore di burnup medio dell'assembly				28433	

Tabella 11. Valori di burnup assiale.

Coniugando il contenuto informativo di Figura 7 con i dati di Figura 8 [1], si ha modo di operare una prima valutazione sulla bontà dell'assunzione fatta in direzione assiale.

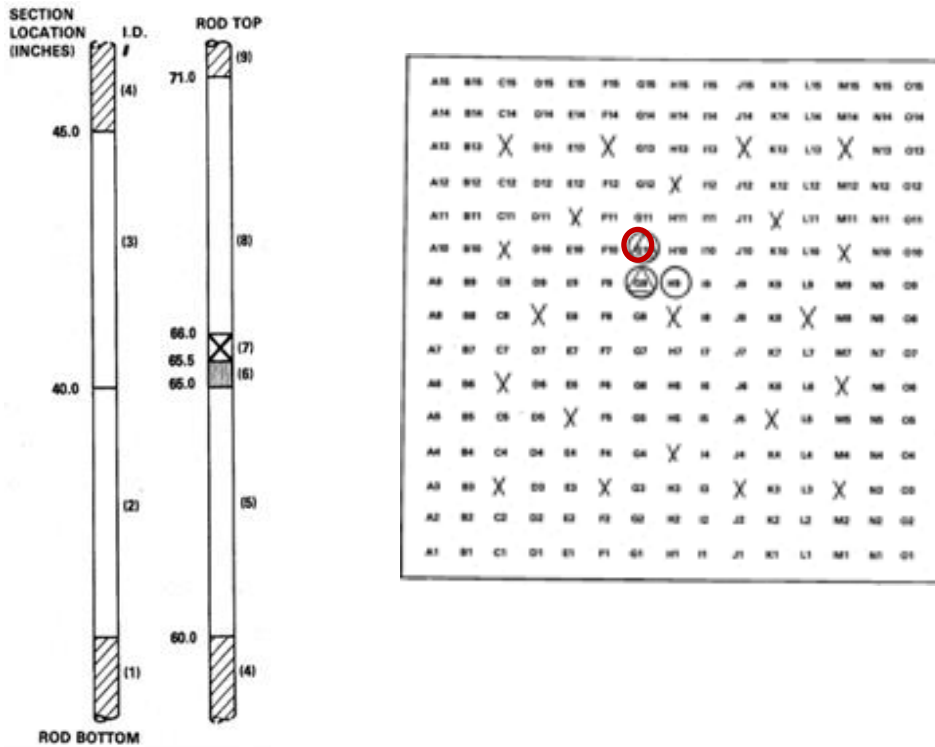


Figura 7. Barretta G01 e sua posizione nell'assembly D04 (cerchio rosso).

BURNUP ANALYTICAL RESULTS

ATOMIC PERCENT	D01-G8-15 65.75-66.25"	D01-G10-4 65.5-66.0"	D01-H8-7 65.5-66.0"	D04-G8-8 65.75-66.25"	D04-G10-7 65.5-66.0"
U-234	.014	.014	.013	.012	.014
U-235	.819	.599	.590	.582	.598
U-236	.342	.342	.334	.332	.342
U-238	99.025	99.045	99.063	99.074	99.046
Pu-238	1.561	1.546	1.692	1.535	1.570
Pu-239	55.107	54.757	54.806	54.654	54.574
Pu-240	25.701	25.946	25.411	25.563	25.861
Pu-241	11.984	11.988	12.177	12.329	12.113
Pu-242	5.647	5.664	6.014	5.529	5.892
ATOMIC RATIOS					
$\frac{Nd-148}{U-238} \times 10^{-4}$	5.66	5.62	5.62	5.76	5.77
$\frac{Pu-239}{U-238} \times 10^{-3}$	5.07	5.07	5.17	5.18	5.02
$F^{(a)} = \frac{FISSIONS}{ATOM U-238}$.0389	.0346	.0344	.0349	.0343
$U' = \frac{ATOMS U}{ATOM U-238}$	1.0096	1.0064	1.0096	1.0035	1.0093
$P' = \frac{ATOMS Pu}{ATOM U-238}$.00820	.00826	.00943	.00948	.00920
$F_T^{(b)}$ ATOMIC PERCENT BURNUP	3.200	3.179	3.298	3.256	3.262
BURNUP ^(c) MWD/MTU	30,720	30,510	31,560	31,260	31,310

Figura 8. Risultati analitici del burnup di alcune barretta dell'assembly D04.

In Figura 8 è contenuto il valore analitico del burnup (molto simile a quello misurato) di una pellet contenuta nella barretta G10 dell'assembly D04 posizionata a una distanza di 167 cm (66 in) dalla base dell'assembly (Figura 7)⁷. Come si vede, la barretta ha subito almeno un ciclo di irraggiamento in posizione centrale e lontano da tubi guida. Se confrontiamo questo valore – 31310 MWd/MTU – con quello corrispondente di Tabella 11 – 32353 MWd/MTU – la cui quota è stata ottenuta sottraendo a 167 cm i 30 cm del piede dell'assembly, scopriamo che i due valori differiscono tra loro di un 3%.

E' inoltre interessante osservare che il profilo assiale di burnup di Tabella 11 (Figura 9) e il rateo di dose gamma misurato (Figura 10), pur non essendo tra loro direttamente proporzionali a causa della presenza simultanea dei due operatori di convoluzione quali l'autoschermo del combustibile e il coefficiente di dose (si veda a tal proposito quanto documentato in [6]), mostrano un andamento molto simile a dimostrazione della comunque stretta correlazione tra i due fenomeni fisici.

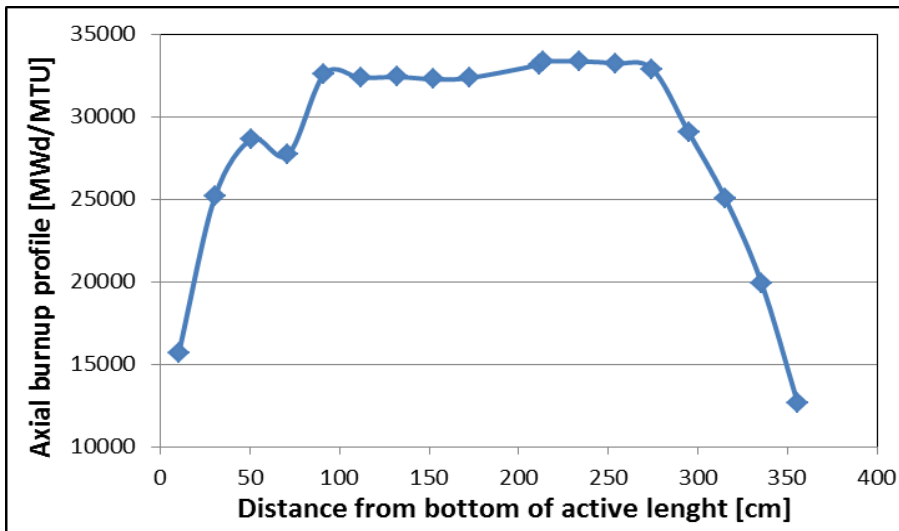


Figura 9. Grafico del profilo assiale di burnup.



Figura 10. Rateo di dose gamma misurato.

⁷ In realtà nel documento citato non è chiaro se il riferimento è a partire dal fondo dell'assembly o viceversa dall'inizio della zona attiva.

A conferma della validità della procedura di calcolo adottata, si riportano in Tabella 12 i valori di concentrazione, in percentuale atomica, dei principali isotopi di U e Pu contenuti in una pellet della barretta G9 dell'assembly D04 posizionata a una distanza di 167 cm (66 in) dalla base dell'assembly relativi ad un valore di burnup di 31200 MWd/MTU. Come si vede, il confronto tra i dati misurati e quelli calcolati da ENEA con Origen-ARP è decisamente buono.

Isotopo	Percentuale atomica [%]	Origen-ARP	
		Percentuale atomica [%]	Massa
U234	0,012	[-]	[-]
U235	0,582	0,592	2,559E+03
U236	0,332	0,353	1,531E+03
U238	99,074	99,055	4,334E+05
TOT U	100,000	100,000	4,375E+05
Pu238	1,535	[-]	[-]
Pu239	54,654	55,823	2,364E+03
Pu240	25,553	25,208	1,072E+03
Pu241	12,329	12,891	5,505E+02
Pu242	5,929	6,077	2,606E+02
TOT Pu	100,000	100,000	4,247E+03

Tabella 12. Concentrazioni isotopiche a confronto.

Passiamo ora a spiegare le modifiche introdotte alla distribuzione radiale della sorgente fotonica. Al fine di considerare il *rim effect* dovuto al fenomeno fisico dell'autoschermo, il calcolo della sorgente radiale di radiazioni gamma è stato fatto nel modo seguente:

- ✓ la pellet è stata prima suddivisa in 20 regioni equivolumiche;
- ✓ poi tramite il codice di cella APOLLO2 è stata calcolata, in ogni regione, la concentrazione isotopica di Rh106, Cs134, Ba137m, Pr144, Ce144 e Eu154 ad un valore di burnup di 28430 MWd/MTU. Per ovviare al fatto che tre isotopi, nella fattispecie Rh106, Pr144 e Ba137m, non sono contenuti nelle catene di bruciamento di APOLLO2, la loro concentrazione è stata determinata a partire dalla quantità dei loro progenitori e dal loro tempo di dimezzamento riportati in Tabella 13 (equilibrio secolare);
- ✓ infine, la concentrazione isotopica di ogni regione (in altri termini la sorgente gamma di quella regione) è stata normalizzata al valore della concentrazione totale.

Progenitore	$t_{1/2}$	Figlio	$t_{1/2}$
Ru106	374 giorni	Rh106	30,1 s
Ce144	284 giorni	Pr144	17,29 min
Cs137	30 anni	Ba137m	2,55 min

Tabella 13. Tempo di dimezzamento.

In Tabella 14 è quindi riportato, per ognuna delle venti regioni in cui è stata discretizzata la regione del combustibile, il valore ottenuto dalla somma delle concentrazioni atomiche dei diversi isotopi considerati – cioè Rh106, Cs134, Ba137m, Pr144, Ce144 e Eu154 – con, a fianco, la probabilità di emissione fotonica di quella regione, poi graficata in Figura 11.

Regione	Raggio esterno	Concentrazione totale [at.]	Probabilità [%]
1	0,1060	1,3749E+18	0,0446
2	0,1500	1,3817E+18	0,0448
3	0,1837	1,3888E+18	0,0450
4	0,2121	1,3962E+18	0,0452
5	0,2371	1,4041E+18	0,0455
6	0,2597	1,4126E+18	0,0458
7	0,2805	1,4215E+18	0,0461
8	0,2999	1,4311E+18	0,0464
9	0,3181	1,4416E+18	0,0467
10	0,3353	1,4530E+18	0,0471
11	0,3517	1,4657E+18	0,0475
12	0,3673	1,4801E+18	0,0480
13	0,3823	1,4968E+18	0,0485
14	0,3967	1,5166E+18	0,0491
15	0,4107	1,5412E+18	0,0499
16	0,4241	1,5739E+18	0,0510
17	0,4372	1,6217E+18	0,0526
18	0,4499	1,7027E+18	0,0552
19	0,4622	1,8773E+18	0,0608
20	0,4742	2,4761E+18	0,0802

Tabella 14. Probabilità di emissione fotonica nella pellet in direzione radiale.

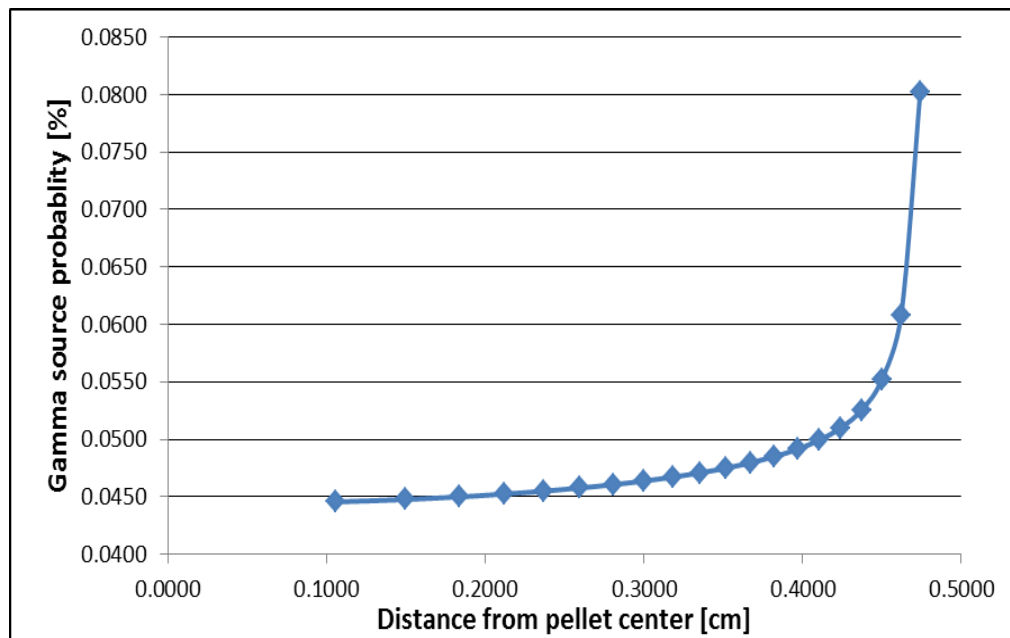


Figura 11. Probabilità della sorgente gamma nella regione del combustibile.

6. Nuovi risultati con distribuzione non uniforme della sorgente

Il presente capitolo è dedicato all'analisi dei risultati di dose gamma che si è ottenuto utilizzando una sorgente fotonica, assialmente e radialmente, non uniforme.

In Tabella 15 sono riportati, per ciascuno dei 13 rilevatori assiali, i risultati del confronto tra misure sperimentali e dati calcolati. Tali valori sono poi stati graficati in Figura 12.

Rilevatori assiali				
Distanza dalla parte bassa del fuel assembly [cm]	Rateo di dose gamma [Sv/h]		Differenza relativa [%]	Differenza relativa con sorgente uniforme [%]
	Misurati	Calcolati		
30	74,2	60,9	-17,9	8,1
61	121	120,8	-0,2	12,0
91	149	150,7	1,1	2,1
122	162	171,2	5,7	-3,0
152	162	179,6	10,9	-1,5
183	171	184,7	8,0	-6,6
213	163	184,8	13,4	-2,7
244	158	187,2	18,5	0,1
274	161	184,7	14,7	-2,3
305	154	171,9	11,6	2,2
335	142	146,5	3,2	7,1
366	110	102,4	-6,9	20,7
396	72,9	53,6	-26,5	11,5

Tabella 15. Confronto tra ratei di dose in direzione assiale con sorgente non uniforme.

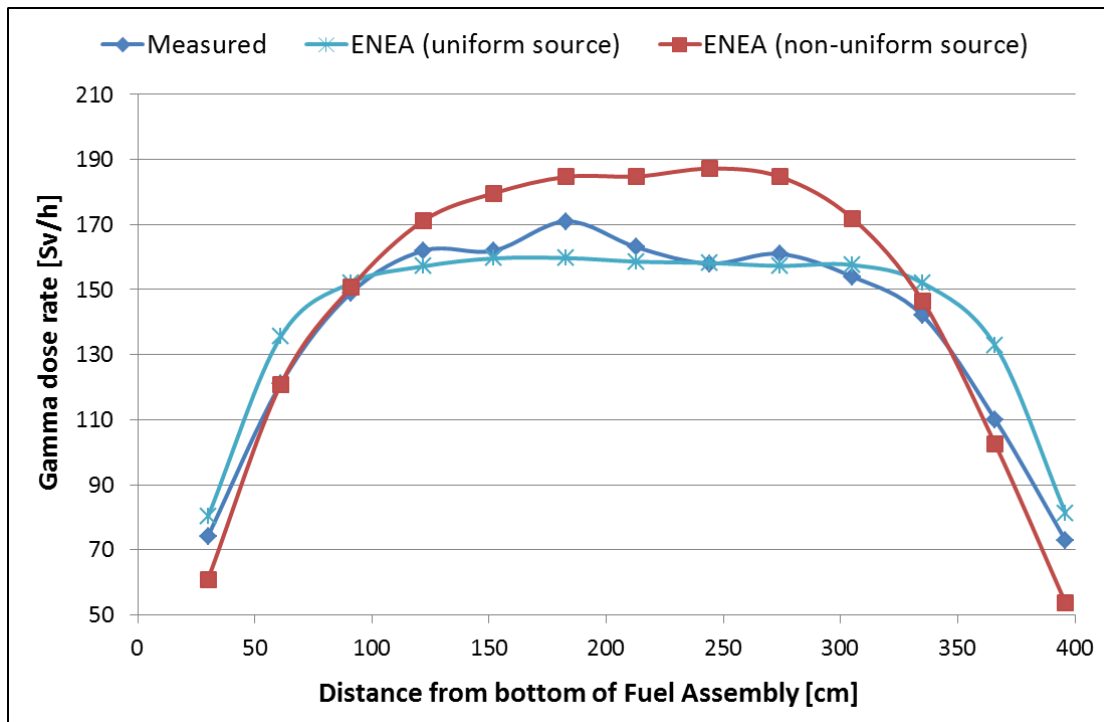


Figura 12. Grafico del confronto tra ratei di dose in direzione assiale con sorgente non uniforme.

Osservando le ultime due colonne di Tabella 15 si potrebbe pensare che una descrizione della regione del combustibile fisicamente più accurata come quella introdotta in MCNPX attraverso una distribuzione di sorgente non uniforme, non abbia determinato alcun miglioramento dei dati calcolati rispetto a quelli misurati. In realtà in Tabella 15, se si escludono i due valori alle estremità della zona attiva (cioè a 30 e a 396 cm), sono distinguibili due opposti, e tra loro simmetrici, andamenti: da una parte i quattro rilevatori evidenziati in giallo per i quali si osserva una riduzione della differenza relativa tra misure e calcoli e dall'altra i sette rilevatori centrali, di colore azzurro, per i quali al contrario tale differenza aumenta. Plausibilmente, un migliore accordo tra calcoli e misure si potrebbe avere se all'effetto della distribuzione non uniforme si sommasse quello dovuto alla presenza delle grigliette spaziatrici. Ciò avrebbe infatti due conseguenze:

- in primo luogo, proprio nella zona compresa tra 100 e 300 cm, cioè dove si concentrano le maggiori differenze tra misure e calcoli, una riduzione netta del rateo di dose gamma coerentemente alla minore intensità fotonica nei dintorni delle posizioni occupate dalle grigliette;
- in secondo luogo, come diretta conseguenza del maggiore livello di bruciamento che la presenza delle grigliette determina nelle zone periferiche dell'assembly, un leggero aumento del rateo di dose di quelle zone in linea con quanto misurato sperimentalmente.

Un simile calcolo richiede però che siano conosciuti i valori di burnup nei dintorni delle posizioni occupate dalle grigliette. Informazioni queste, magari reperibili in letteratura, ma di cui, almeno per ora, non si è potuto disporre.

Rilevatori radiali					
Distanza dal piano di mezzzeria [cm]	Rateo di dose gamma [Sv/h]		Differenza relativa [%]	Differenza relativa con sorgente uniforme [%]	Differenza [%]
	Misurati	Calcolati			
11	952	911,5	-4	[non calcolato]	[-]
31	186 ±3	266,7	43	23	+20
61	98,8 ±3	112,7	14	-2	16
91	68,1 ±5	65,6	-4	-16	-12
122	49,1 ±4	43,0	-12	-23	-11
152	39,2 ±4	30,1	-23	-31	-8
183	33,4 ±3	22,3	-33	-38	-5
213	28,5 ±2	17,2	-40	-45	-5
244	22,4 ±3	13,2	-41	-45	-4

Tabella 16. Confronto tra ratei di dose in direzione radiale con sorgente non uniforme.

Diversamente dal caso assiale, i valori riportati in Tabella 16 e graficati in Figura 13 relativi al caso radiale mostrano tra loro un andamento molto più omogeneo. Infatti, ad eccezione dei due rilevatori posti a 31 e a 61 cm dal piano di mezzzeria per i quali è lecito ipotizzare un qualche errore nel dato misurato, per tutti gli altri rilevatori si osserva una riduzione della differenza relativa tra misure e calcoli rispetto al caso della sorgente uniforme. Molto buono appare inoltre l'accordo tra misure e calcoli sul valore del rateo di dose del rilevatore a 11

cm di distanza dal piano di mezzeria⁸, cioè di un rilevatore posizionato a pochi millimetri dalla superficie laterale dell'assembly. Permangono, per contro, importanti differenze nei rilevatori radiali posti a 152 183 213 e 244 cm dal piano di mezzeria per i quali, ad ora, non si è in grado di fornire alcuna spiegazione fisicamente convincente.

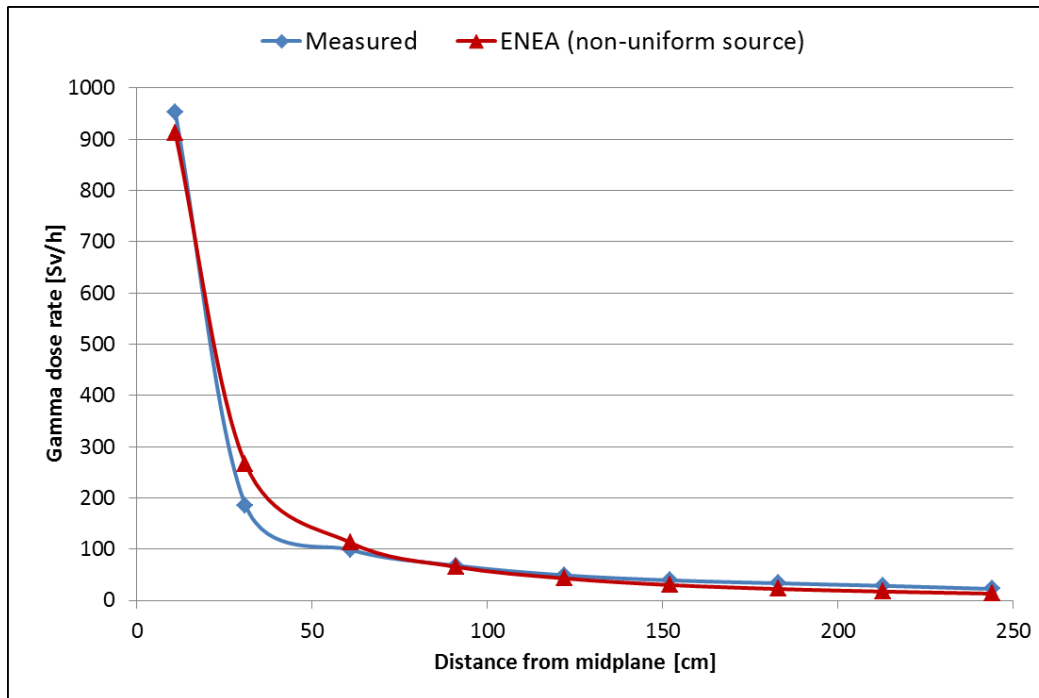



Figura 13. Grafico del confronto tra ratei di dose in direzione radiale con sorgente non uniforme.

L'analisi sin qui svolta permette quindi di concludere che, anche se non ottimale, esiste un buon accordo tra misure e calcoli del valore del rateo di dose dell'elemento di combustibile D04. Spetta ora al gruppo di lavoro AFCS il compito di indicare se il livello di divergenza che permane assialmente ma soprattutto radialmente possa essere ritenuto scientificamente accettabile.

⁸ C. E. Willingham, *Radiation dose rates from commercial PWR and BWR Spent fuel Elements*, Battelle, October 1981.

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	ADPFISS-LP1-094	0	L	22	22

Riferimenti bibliografici

- [1] S. D. Atkin, *Destructive examination of 3-cycle LWR fuel rods from Turkey Point unit 3 for the climax*, Hanford Engineering Development Laboratory, June 1981.
- [2] R. B. Davis et al., *Remote characterization of spent LWR fuel for geological disposal demonstration*, American Nuclear Society, March 1980.
- [3] A. Guglielmelli, R. Pergreffi, F. Rocchi, *Sicurezza intrinseca di elementi di combustibile irraggiati*, Rapporto Tecnico ENEA ACPFISS-LP1-077, 2016.
- [4] W.R. Lloyd, M.K. Sheaffer, W.G. Sutcliffe, *Dose Rate Estimates from irradiated Light-Water-Reactor Fuel Assembly in Air*, LLNL UCRL-ID-115199, 1994.
- [5] M. Nichol, *SAS2H Analysis of Radiochemical Assay Samples from Turkey Point PWR Reactor*, B0000000-01717-0200-00141 REV 00, CRWMS/M&O, February 1997.
- [6] H.R. Trellue, J.D. Galloway, *Description of axial detail for ROK Fuel*, Los Alamos National Laboratory, LA-UR-12-20724.
- [7] J. C. Wagner, M. D. DeHart, *Review of Axial Burnup Distribution Considerations for Burnup Credit Calculations*, Oak Ridge National Laboratory, 1999.
- [8] C. E. Willingham, *Radiation dose rates from commercial PWR and BWR Spent fuel Elements*, Battelle, October 1981.

Ringraziamenti

The Apollo2 code I developed by CEA and co-owned by CEA, EDF and AREVA NP.
 Il codice Apollo2 è sviluppato da CEA ed è in comproprietà tra CEA, EDF e AREVA NP.