



Ricerca di Sistema elettrico

## Utilizzo del reattore TAPIRO a supporto dello sviluppo dei sistemi LFR

*Marco Ciotti*

## UTILIZZO DEL REATTORE TAPIRO A SUPPORTO DELLO SVILUPPO DEI SISTEMI LFR

Marco Ciotti (ENEA)

Settembre 2013

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico - ENEA

Piano Annuale di Realizzazione 2012

Area: Produzione di energia elettrica e protezione dell'ambiente

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

Obiettivo: Sviluppo competenze scientifiche nel campo della sicurezza nucleare

Responsabile del Progetto: Mariano Tarantino, ENEA

**Titolo**

**Utilizzo del reattore TAPIRO  
a supporto dello sviluppo dei sistemi LFR**

**Descrittori**

**Tipologia del documento:** Rapporto Tecnico  
**Collocazione contrattuale:** Accordo di programma ENEA-MSE su sicurezza nucleare e reattori di IV generazione  
**Argomenti trattati:** Neutronica  
 Reattori nucleari veloci  
 Generation IV reactors

**Sommario**

Il reattore veloce TAPIRO è stato utilizzato per una campagna di irraggiamenti su tre campioni di materiale strutturale in acciaio 15 15 Ti, ricoperti con coating di diverso materiale. L'attività ha previsto il calcolo di fluenza e spettro attesi sulle targhette. Inoltre ha comportato la progettazione e realizzazione di un porta-campioni ad hoc strumentato con delle targhette di calibrazione al fine di confrontare, al termine dell'irraggiamento, la corrispondenza fra i flussi previsti e misurati, e l'estrazione delle targhette che saranno successivamente analizzate al fine di valutare eventuale cambiamenti dei materiali di coating.

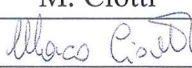
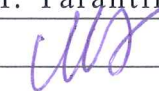
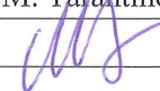
**Note:**

**Autori:**

M. Ciotti (ENEA)

**Copia n.**

**In carico a:**

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	25/09/2013	NOME	M. Ciotti	M. Tarantino	M. Tarantino
			FIRMA			
REV.	DESCRIZIONE	DATA		REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE

## **INDICE**

<b>1. INTRODUZIONE</b>	<b>3</b>
<b>2. IL REATTORE TAPIRO</b>	<b>4</b>
<b>3. I CANALI DI IRRAGGIAMENTO</b>	<b>6</b>
<b>4. REALIZZAZIONE DEL PORTA-CAMPIONI E MONTAGGIO</b>	<b>8</b>
<b>5. I CAMPIONI</b>	<b>11</b>
<b>6. SCELTA DEI COATING</b>	<b>12</b>
<b>7. IRRAGGIAMENTO DEI CAMPIONI</b>	<b>15</b>
<b>8. DIFFUSIONE DEI RISULTATI</b>	<b>16</b>

## 1. INTRODUZIONE

Lo sviluppo di una nuova filiera di reattori nucleari innovativi per la produzione di energia elettrica in rete e/o di calore per altre applicazioni sarà, in previsione della diminuzione di disponibilità di fonti fossili, un passaggio fondamentale per la sopravvivenza del benessere economico.

Le necessarie esigenze di sostenibilità per l'approvvigionamento energetico non possono che far confluire la ricerca sui reattori di IV generazione, con cicli del combustibile innovativo e con l'eliminazione "by design", ovvero a partire dalla architettura stessa del progetto, delle possibili cause di incidente.

In questo contesto, l'Italia è fortemente coinvolta nella ricerca di soluzioni tecnologiche completamente affidabili e che possano far raggiungere i dati di progetto in termini di prestazioni.

Per i reattori raffreddati con piombo liquido oltre alle possibili migliorie di tipo ingegneristico (by design) si aggiungono caratteristiche migliorative in termine di sicurezza intrinseca, anche alla luce dei recenti eventi correlati con l'incidente di Fukushima, già sulla base delle caratteristiche fisiche del refrigerante.

La ricerca in ambito dei materiali è uno dei temi chiave verso la possibilità di raggiungere ulteriori margini di sicurezza e una maggiore economicità dei progetti.

Al di là dei requisiti generali per le proprietà dei materiali comuni per tutti i reattori veloci, nel caso di specie si richiedono delle caratteristiche specifiche dovute alla compatibilità con il refrigerante. La elevata solubilità degli elementi presenti nell'acciaio in piombo liquido alle temperature di interesse per il funzionamento del reattore, rappresenta un limite. Al momento si considera la possibilità di ostacolare questo fenomeno mediante lo strato di ossido presente sulle superfici dei materiali strutturali che forma una barriera alla dissoluzione dell'acciaio. Purtroppo queste barriere smettono di essere efficaci al di sopra dei 500 °C e per valori di temperatura superiori è indispensabile ricorrere a barriere addizionali come strati di allumina che formano una lega superficiale. Danneggiamenti dovuti a stress meccanico quali fenomeni di creeping o fretting possono però ristabilire gli effetti della corrosione.

Per Alfred sono stati individuati come materiali da utilizzare per la maggior parte dei componenti "in core" degli acciai austenitici, 316 e 15-15Ti. Il 15-15Ti è indicato per il fuel cladding mentre l'acciaio ferritico/martensitico T91 è indicato per il clad del reattore ELFR. In entrambi i progetti il T91 è il materiale da utilizzare per gli scambiatori di calore. Il trattamento mediante una lega superficiale di allumina è preso in considerazione al fine di assicurare la funzionalità dei materiali ed è destinata alla ricopertura del fuel cladding e dei tubi dello scambiatore di calore dell' ELFR.

Queste soluzioni devono essere sottoposte a tutte le possibili prove preliminari per poterne valutare appieno il comportamento soprattutto in relazione alla adesività del coating nelle più disparate condizioni possibili.

In questo contesto si inquadrano le prove di irraggiamento campioni che sono state effettuate sul reattore Tapiro, il cui spettro neutronico si avvicina molto a quello di un reattore di IV generazione.

## 2. IL REATTORE TAPIRO

La facility che verrà utilizzata per la sperimentazione è il RSV TAPIRO, Reattore Sorgente Veloce TARatura Pila Rapida a potenza 0 (zero). TAPIRO è un reattore a spettro veloce con caratteristiche simili (vedi tabelle) a quelle del AFSR (Argonne Fast Source Reactor - Idaho Falls), costruito nel 1958, ma con potenza aumentata a 5 kW. Il TAPIRO, progettato dai ricercatori dell'ENEA, entrò in operazione nel 1971 con il fine di essere utilizzato principalmente per esperimenti concettuali e calibrazioni.

CORE	Cilindrico di diametro 125.8 mm, altezza 109.5 mm
COMBUSTIBILE	Lega Uranio-molibdeno (98.5% U – 1.5% Mo), Densità: $18.5 \text{ g cm}^{-3}$ , combustibile fortemente arricchito, 93.5 % U <sub>235</sub>
CLADDING	Acciaio, 0.5 mm di spessore
RIFLETTORE	Riflettore interno cilindrico, diametro 348 mm. Riflettore esterno diametro 800 mm. Altezza totale 700 mm. Materiale rame. Peso 2600 kg
SISTEMA DI RAFFREDDAMENTO	Mediante circolazione forzata di He, 100 g/sec @ 7.5 ata.
SCHERMO BIOLOGICO	Sferico (vedi (fig. 2); 1.75 m. Materiale, : cemento ad alta densità. Density: $3.7 \text{ kg dm}^{-3}$
SPETTRO NEUTRONICO	Veloce . Massimo: $5.0 \cdot 10^{12} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ @ 5kW

Tabella 1 – Caratteristiche generali del reattore TAPIRO

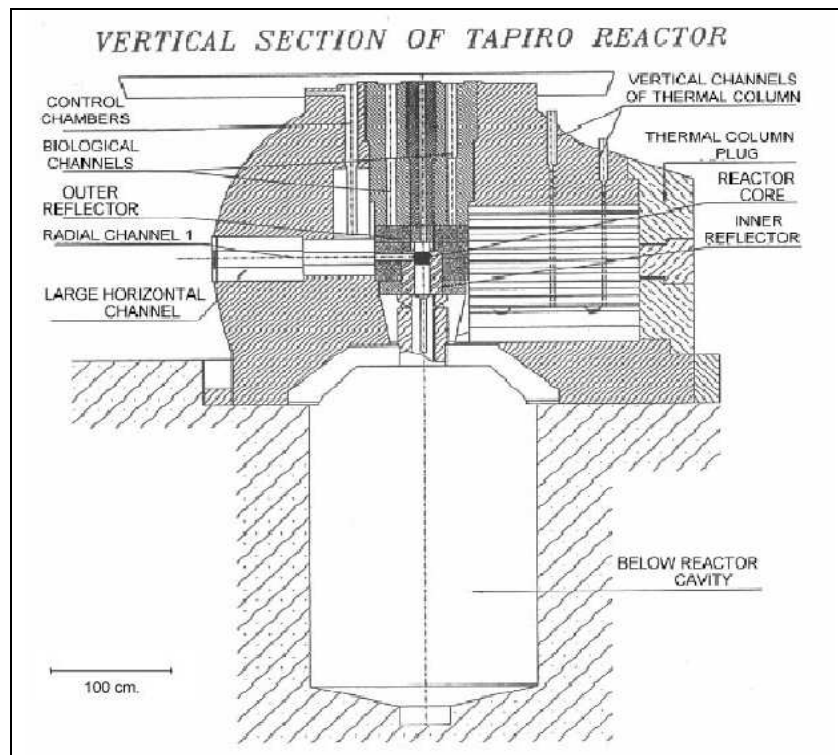
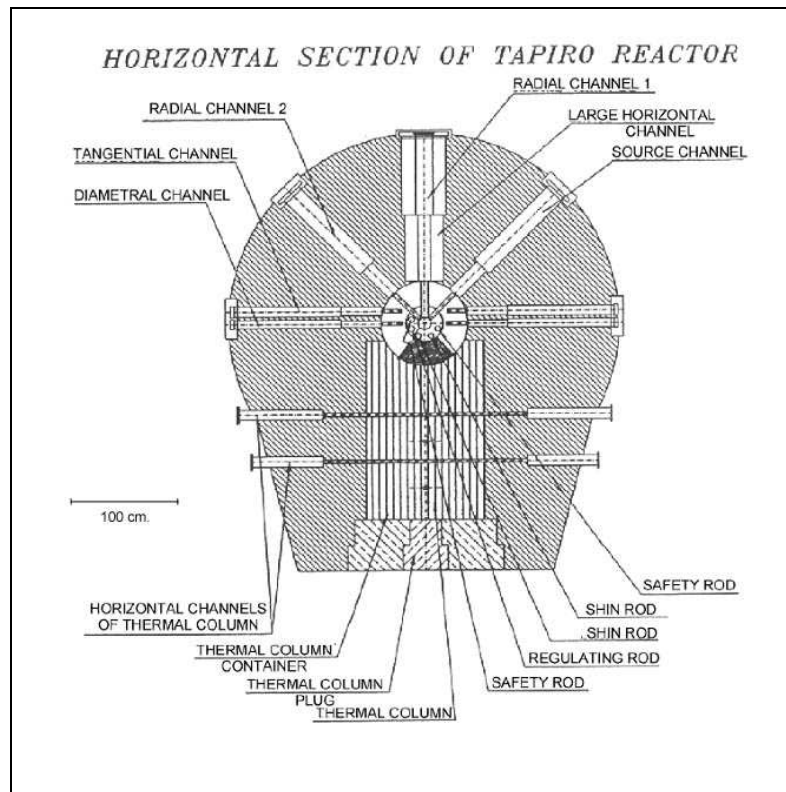


Fig. 1 – Schemi del reattore TAPIRO



*Fig. 2 – lo schermo biologico del reattore TAPIRO*

### 3. I CANALI DI IRRAGGIAMENTO

La facility tapiro è dotata di vari canali per l'irraggiamento dei campioni. Ad ogni canale in funzione della posizione e della distanza dal centro del reattore corrisponde uno spettro ed un flusso neutronico con caratteristiche diverse. Una dettagliata modellizzazione è stata effettuata mediante l'utilizzo del codice di calcolo Montecarlo MCNPX e la conseguente ricostruzione degli spettri secondo la metodologia riportata in dettaglio nei riferimenti bibliografici.

Di seguito sono riportati i principali risultati così ottenuti.

Il canale scelto per gli irraggiamenti dei campioni è stato il CR1, Canale Radiale 1 in quanto, penetrando fino a pochi centimetri dal centro del reattore, presenta uno spettro più duro che si avvicina maggiormente a quello dei reattori di IV generazione.

In aggiunta alle simulazioni, sono state inserite nel canale delle foglioline di calibrazione[2]. Nella tabella seguente sono riportate le caratteristiche delle varie foglioline utilizzate ed i risultati delle misure effettuate dopo un tempo di irraggiamento di 10 minuti alla potenza di 2 kW.



Foil	Reazione	Isotope target atoms	Saturated activity (Bq)
Al	$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	$5.497 \cdot 10^{21}$	$7.26 \cdot 10^4$ (3.6%)
Au	$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	$6.465 \cdot 10^{20}$	$5.64 \cdot 10^6$ (10.6%)
In	$^{115}\text{In}(n,n')^{115m}\text{In}$	$2.146 \cdot 10^{20}$	$3.41 \cdot 10^7$ (1.4%)
Fe	$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	$8.474 \cdot 10^{19}$	$6.57 \cdot 10^4$ (14.1%)
Ti	$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	$1.411 \cdot 10^{20}$	$2.39 \cdot 10^4$ (20.8%)
Ti	$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	$1.287 \cdot 10^{20}$	$3.06 \cdot 10^4$ (3.7%)
Ti	$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	$1.301 \cdot 10^{21}$	$4.23 \cdot 10^3$ (3.78%)

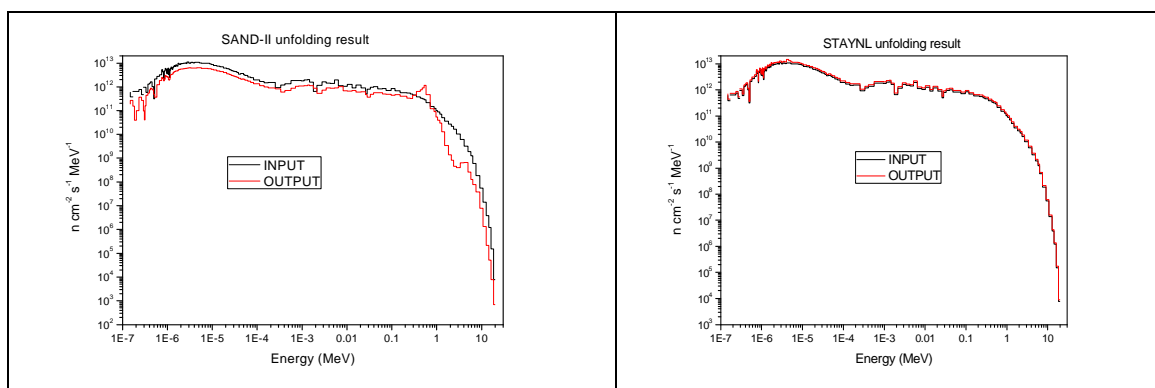
*Tabella 2 – reazioni di attivazione utilizzate per la caratterizzazione del CR1*

Sulla base delle misure così effettuate e con l'aiuto dei codici SAND-II e STAYNL, si è ricostruito il valore assoluto del flusso neutronico ed il suo spettro sulla base delle sezioni d'urto riportate, in dalla IAEA databank.

I valori ottenuti sono riportati nella tabella 4 ed in figura 3 il confronto fra gli spettri ottenuti.

Code	Flux from unfolding (n/cm <sup>2</sup> /s)		Input MCNPX flux(n/cm <sup>2</sup> /s)	
	Total	E>0.1 MeV	Total	E>0.1 MeV
SAND-II	$5.04 \cdot 10^{11}$	$4.42 \cdot 10^{11}$	$5.0 \cdot 10^{11}$	$4.18 \cdot 10^{11}$
STAYNL	$5.73 \cdot 10^{11}$	$4.55 \cdot 10^{11}$	$5.0 \cdot 10^{11}$	$4.18 \cdot 10^{11}$

*Tabella 3: - Risultati dei flussi di neutroni ottenuti mediante l'utilizzo della metodologia di deconvoluzione*



*Fig. 3 – Spettri deconvoluti*

Al momento sono stati eseguiti irraggiamenti per un numero di 140 ore corrispondenti ad una fluensa misurata di  $6.0 \cdot 10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> s (par. 7).

Si prevede una continuazione della campagna di irraggiamenti per raggiungere una fluensa totale almeno pari a  $10^{17}$  n/cm<sup>2</sup> s.

## 4. REALIZZAZIONE DEL PORTA-CAMPIONI E MONTAGGIO

Per tenere in posizione i campioni si è proceduto alla progettazione e realizzazione di una struttura idonea che potesse essere ancorata al cilindro di rame normalmente utilizzato per la chiusura dell'accesso del canale radiale (vedi fig 4)



*Figura 4: Il porta campioni ancorato al cilindro in rame per la chiusura del canale del reattore*

Per ottimizzare l'utilizzo della macchina il porta campioni è stato realizzato con la possibilità di alloggiare un motore piezoceramico da testare sotto irraggiamento neutronico ed un provino per la prova di resistenza alle radiazioni di coating ottici.

Il disegno progettuale, realizzato mediante CAD dal dipartimento FUS dell'ENEA, è riportato in figura 5, 6 e 7.

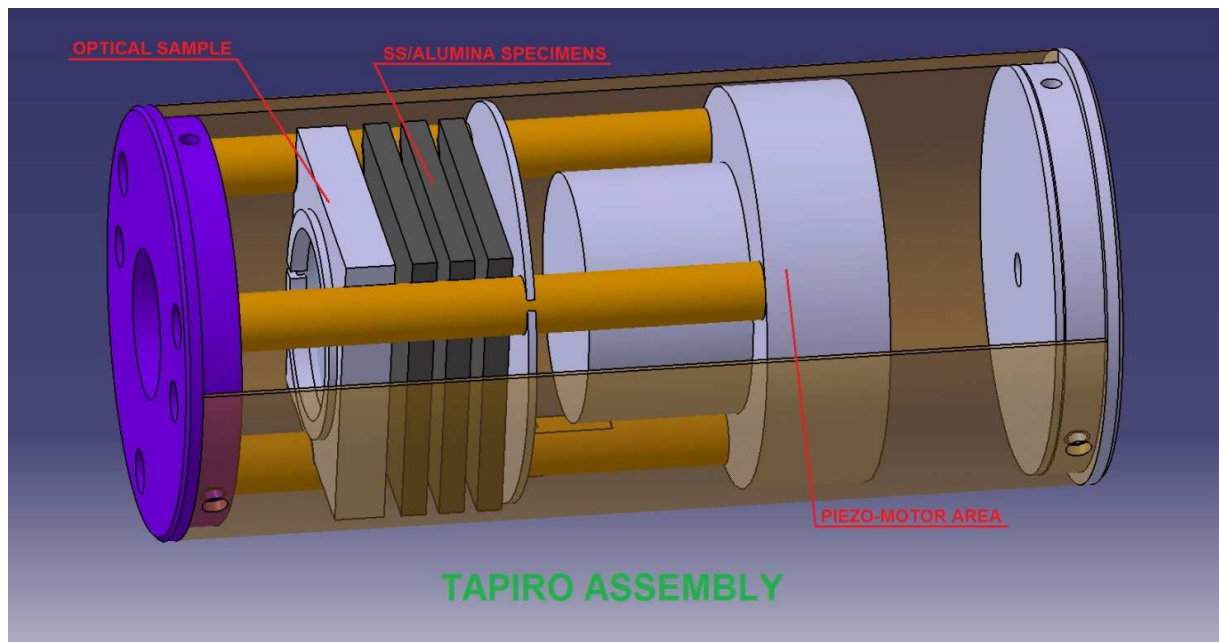


Figura 5. Il disegno CAD del portacampioni con in grigio scuro le lamine da irraggiare [2]

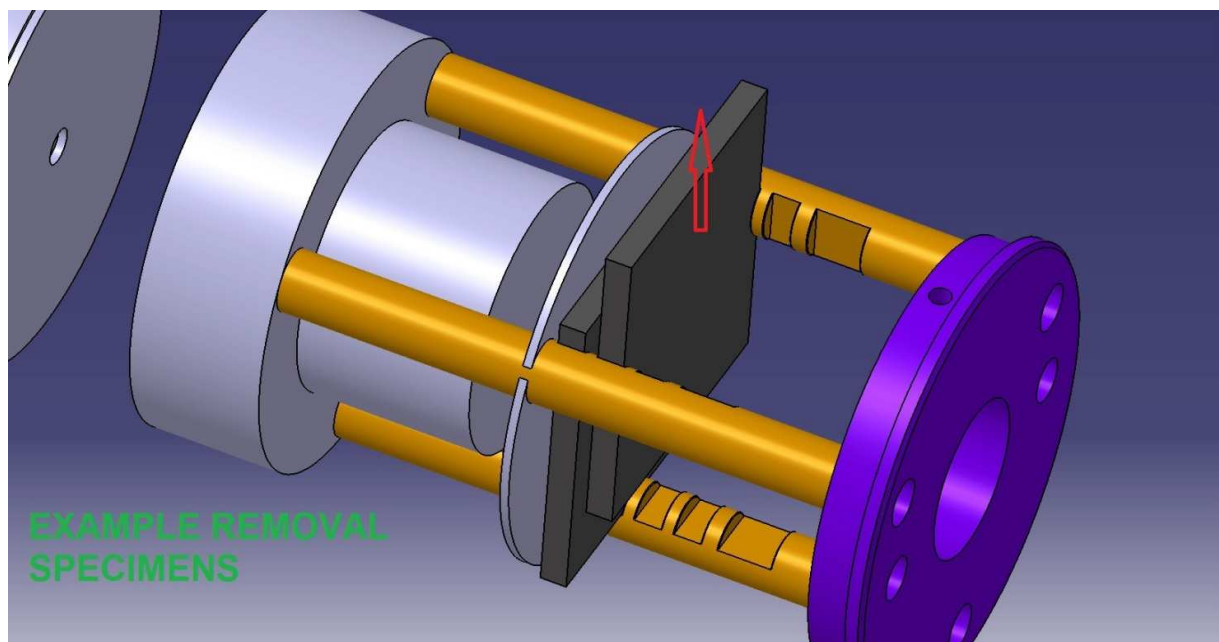


Figura 6. Il disegno CAD del portacampioni con evidenziate le modalità di inserimento delle lamine [2]

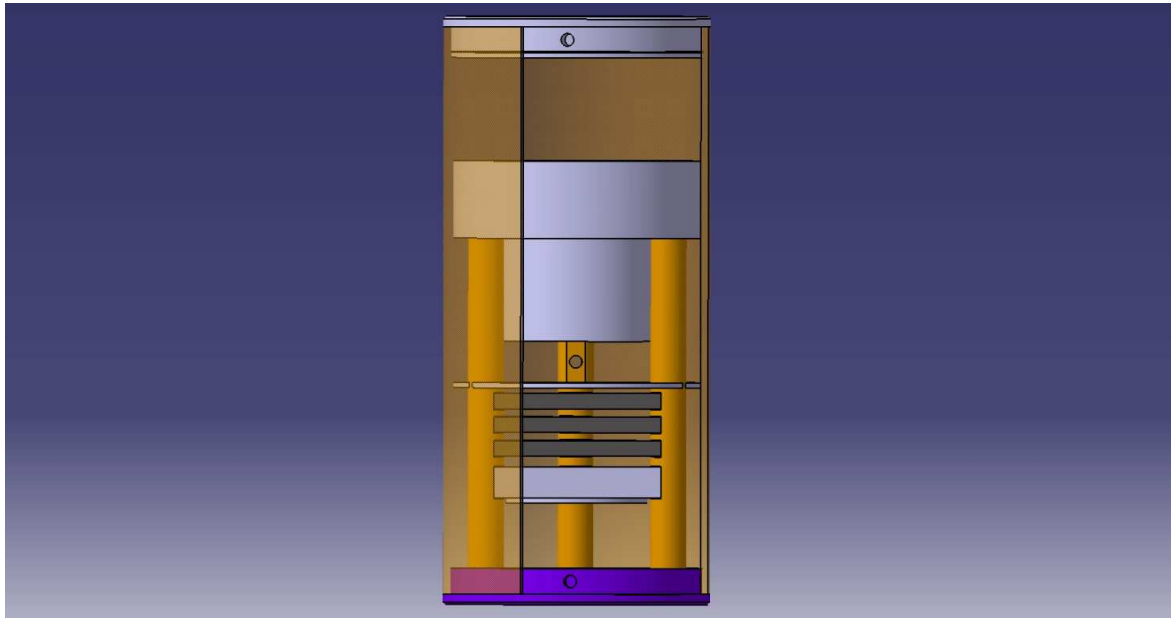
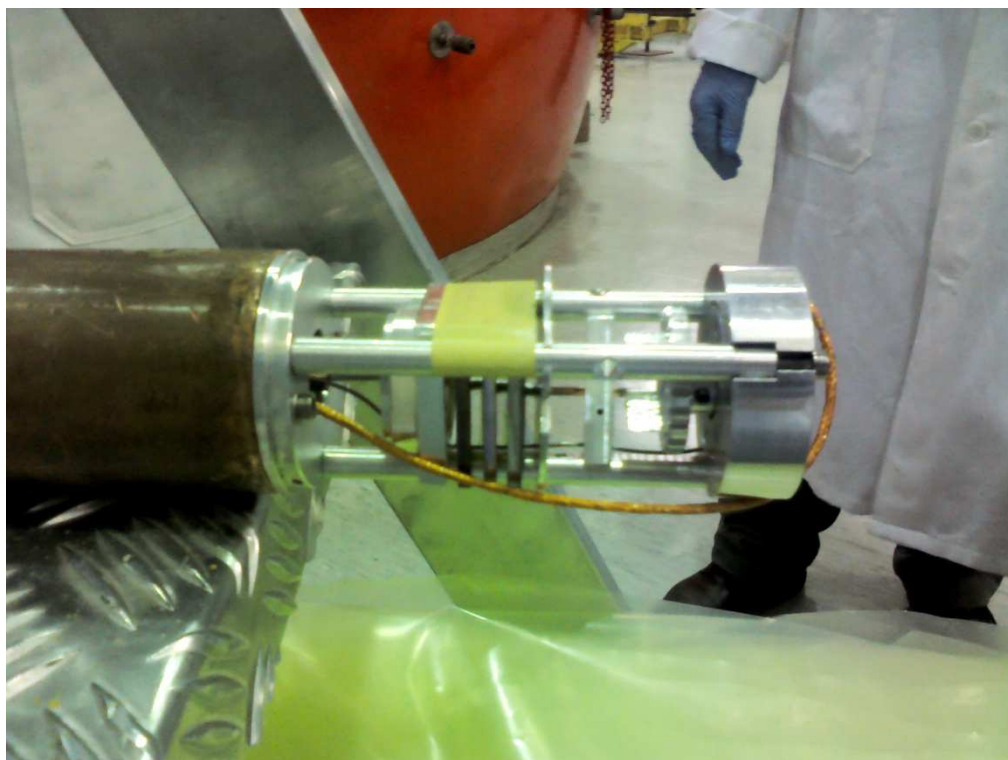


Figura 7. Il disegno CAD del porta campioni, vista laterale [2]

Il supporto è stato successivamente realizzato (fig. 8) e si è proceduto al suo accoppiamento con la struttura da inserire all'interno del reattore (figg. 4 e 9)



Figura 8: Il supporto per i campioni



*Fig 9. La struttura di sostegno dei campioni accoppiata al tappo del canale radiale*

## 5. I CAMPIONI

I materiali strutturali convenzionali subiscono severi fenomeni di degradazione nei bagni di piombo sia per il verificarsi di processi di corrosione che di ossidazione. Attraverso la deposizione di opportuni rivestimenti è possibile incrementarne le prestazioni proteggendoli dai fenomeni di corrosione.

Come materiale strutturale sono stati selezionati tre supporti, tutti di acciaio 15 15 Ti (vedi tabella 5); si tratta di un acciaio Austenitico con una buona capacità di limitare lo swelling da radiazione e soprattutto con un comportamento prevedibile con elevata affidabilità. Per gli irraggiamenti ad alte dosi devono ancora esserne estensivamente testate le proprietà meccaniche. Su questo materiale strutturale si è provveduto a depositare diversi tipi di coating.

Weight Percent		
$0,08 \leq C \leq 0,10$		$S \leq 0,015$
$14,0 \leq Cr \leq 16,0$	Optimal 14,5	$Al \leq 0,015$
$14,0 \leq Ni \leq 16,0$	Optimal 15,5	$Zr \leq 0,03$
$1,0 \leq Mn \leq 2,0$		$V \leq 0,03$
$1,3 \leq Mo \leq 1,7$		$W \leq 0,03$
$0,30 \leq Ti \leq 0,5$	Optimal $(Ti/4 C) \geq 1,0$	$Nb + Ta$
	$\leq 0,3$	
$0,70 \leq Si \leq 0,9$	Optimal 0,85	$Cu \leq 0,03$
$0,003 \leq B \leq 0,008$	Optimal $\geq 0,004$	$Co \leq 0,03$
$0,03 \leq P \leq 0,05$	Optimal 0,045	$Ca \leq$
0,03		
$N \leq 0,015$		

Tabella 5 Composizione chimica per l'acciaio 15-15 Ti.

## 6. SCELTA DEI COATING [3]

La realizzazione di un coating è un possibile modo per proteggere il materiale dall'azione corrosiva dei metalli liquidi ad alta temperature. I coating debbono essere costituiti da materiali compatibili con i quelli di bulk, devono avere la capacità di resistere a urti senza subire danneggiamenti, devono resistere all'erosione e poter essere depositati in modo semplice.

In particolare requisiti richiesti dai rivestimenti sono:

- prevenire la dissoluzione del substrato
- rapida formazione della scaglia protettiva
- stabilità del sistema ad alta temperatura anche in temporanee condizioni anormali di esercizio
- ridotta influenza del processo di rivestimento sulle proprietà meccaniche del substrato
- resistenza sotto irraggiamento
- stabilità meccanica del rivestimento
- fattibilità a livello industriale
- capacità degli strati protettivi di auto sigillarsi

Il ricorso all'ossidazione selettiva di elementi che formano uno strato protettivo a lenta crescita costituisce la base dei sistemi di difesa dall'ossidazione di tutte le leghe ed i rivestimenti utilizzati ad alte temperature. Queste scaglie sono un'efficace barriera contro la diffusione dei cationi e degli anioni prevenendo così la crescita veloce del film di ossido. Elementi in grado di generare in maniera consistente scaglie protettive di ossido sono Al (scaglia di  $Al_2O_3$ ), Cr (scaglia di  $Cr_2O_3$ ), e Si (scaglia di  $SiO_2$ ). Numerosi lavori hanno evidenziato la capacità di incrementare la resistenza a corrosione degli acciai in bagno di

piombo offerta dai rivestimenti e dai trattamenti base alluminio, come il riscaldamento di fogli di alluminio, la fusione superficiale attraverso fascio elettronico pulsato, gas diffusion, pack cementation. Quando la concentrazione superficiale di Al è nell'intervallo 5 - 15 wt%, esso è in grado di proteggere la superficie dell'acciaio dai fenomeni di corrosione ed ossidazione che avvengono a contatto con leghe di piombo.

Tra i rivestimenti utilizzati per gli acciai particolare attenzione riceve anche il sistema Al - Fe, grazie alla sua capacità di formare un film protettivo stabile di allumina. Esso è in grado di proteggere l'acciaio da corrosione non solo in bagno di piombo, ma anche in atmosfera gassosa. La presenza di Cr nel rivestimento di  $\beta$  - FeAl accelera la trasformazione della fase metastabile  $\theta$  - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nella fase  $\alpha$ - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, forma più stabile come ossido protettivo, eliminando la formazioni di buchi ed incrementando l'adesione della scaglia di ossido.

I metalli con bassa solubilità nei bagni di piombo, quali tantalio, molibdeno, berillio, tungsteno e niobio, sono tutti potenziali candidati per la protezione dell'acciaio. E' stato investigato il comportamento a corrosione in bagno di piombo sia di rivestimenti di metalli refrattari che di ceramici. Resistenza a corrosione è stata evidenziata anche per i rivestimenti TiN+Cr, CrN+W e DLC. Notevole interesse tecnologico è rivestito dai depositi di TiN. Esso infatti, risulta chimicamente inerte in molti ambienti.

Sulla base dei sopra riportati principi, è stata effettuata la selezione dei materiali da depositare per incrementare la resistenza alla corrosione operando nell'ambito di entrambe le tipologie di film protettivi: 1) materiali inerti in bagno di piombo fuso

2) materiali resistenti in bagno di piombo fuso per formazione di un film stabile di Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> formers)

Nella scelta delle composizioni d'interesse è stato considerato il comportamento in presenza di irraggiamento neutronico. Nella selezione del sistema rivestimento/tecnologia di deposizione è stata valutata la necessità di protezione dei materiali strutturali non solo dalle condizioni di esercizio corrosive, ma anche dallo stress idrodinamico e termico, dove lo stress idrodinamico è generato dal flusso pesante del bagno e lo stress termico è dovuto alla distribuzione di temperatura causata dalla generazione nucleare di calore.

I materiali scelti per la deposizione di film sottili sono stati:

1. TiN
2. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>
3. FeCr(18-20wt%)Al(8-10wt%)

La prima soluzione appartiene alla famiglia dei materiali inerti, la successiva a quella degli Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> formers. Nella terza composizione la presenza di Cr agevola la formazione di Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, permettendo tenori di Al inferiori a quelli noti in sua assenza. I campioni sono mostrati in figura 10.



Fig. 10: I provini realizzati per l'irraggiamento

Quale tecnologia di deposizione di film sottili è stato selezionato il processo di deposizione da fase vapore (Physical Vapour Deposition) tramite sorgente arco (arc - PVD), in grado di permettere elevata velocità di deposizione. Tale caratteristica, congiuntamente alle possibilità offerte dall'impianto PVD operativo presso CSM di movimentare i substrati durante il processo di deposizione e di impartire opportuni BIAS, sono fattori determinanti per ottenere film di spessore uniforme e di qualità nel rivestimento di oggetti anche di grandi dimensioni, come ci si può attendere essere necessario per i componenti di un reattore.

Per la messa a punto dei parametri di processo, sono stati preparati opportuni provini in acciaio sia ferritico che austenitico, rugosità superficiale 0.8 come da indicazioni provini ENEA. Nel caso delle sorgenti arco PVD per la deposizione di film di TiN si è ricorsi a sorgenti commerciali, nel caso delle sorgenti FeAl e FeCrAl, non essendo possibile la loro acquisizione sul mercato, si è proceduto alla loro preparazione presso CSM. I rivestimenti prodotti sono stati sottoposti alla valutazione delle proprietà base, quali lo spessore, l'adesione, la durezza, le fasi formate.



## 7. IRRAGGIAMENTO DEI CAMPIONI

Si è proceduto ad irraggiare I campioni per 4 giorni per un totale di **86241 s**. La sequenza delle operazioni di irraggiamento è riportata nelle 4 figure successive. ed una fluenza totale di  **$6.58 \cdot 10^{16} \text{ n/cm}^2$**

Al momento i campioni sono nella fase di raffreddamento prima di poter essere estratti dalla macchina per verificarne lo stato del coating

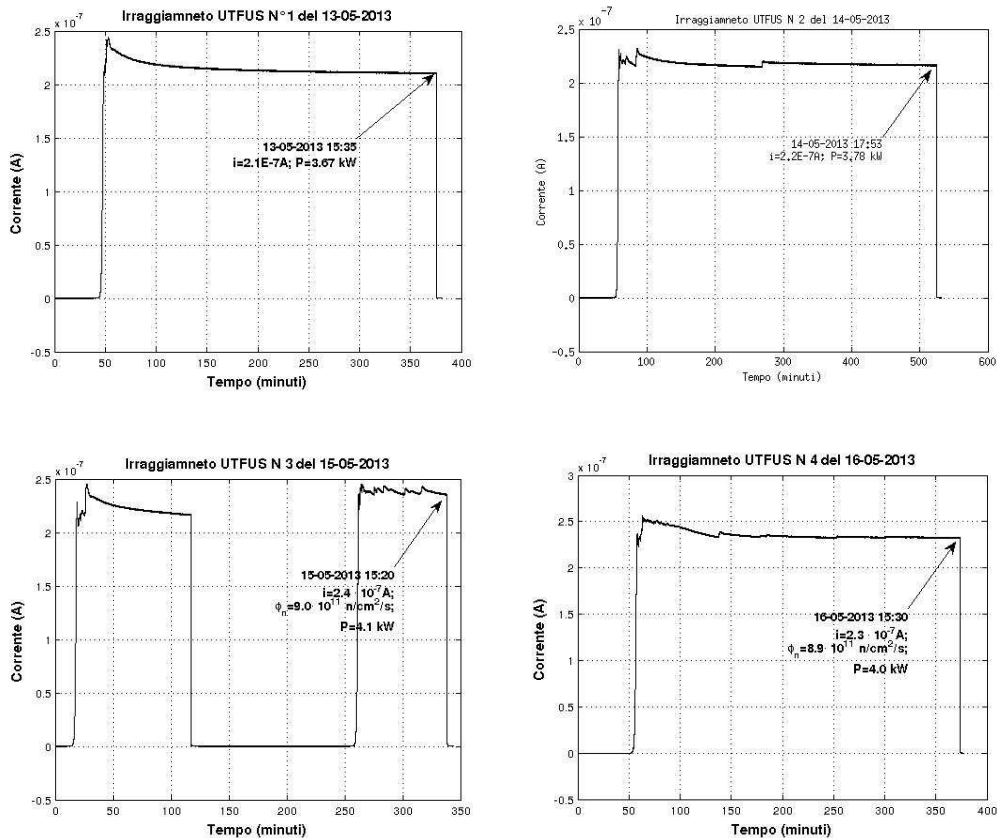


Figura 11: La sequenza temporale degli irraggiamenti .

Dalla misura della attivazione delle foglioline si è risaliti alla fluenza avuta nel canale. Sono state analizzate quattro foglioline, due di Fe , una di Co ed una di Ni. I valori ottenuti della misura sono riportati nella tabella 6, mentre i valori ottenuti di fluenza sono in tabella 7.

Material	Typical Mass (g)	Reaction	Half -life (days)	Predicted Activity after 30 days of cooling time (Bq)	90 % energy response range (MeV)	
Fe	0.1350	54FE(N,P)54MN	312	9.31E+03	2.1	8.4
		54FE(N,A)51CR	27.7	3.34E+02	5.0	12.1
Co	0.0027	59CO(N,2N)58CO	70.9	2.50E+01	11.2	16.4
		59CO(N,G)60CO	1925	1.59E+03	1E-04	0.52
Ni	0.2831	58NI(N,P)58CO	70.9	8.54E+05	1.8	8.3
		60NI(N,P)60CO	1925	4.71E+02	4.8	11.7

Tabella 6. I risultati delle misure di attivazione [4]

	Irraggiamento 1		Irraggiamento 2		Irraggiamento 3		Irraggiamento 4	
	irr.	attesa	irr.	attesa	irr.	attesa	irr.	attesa
Tempo	19752.90	66589.99219	28090.01	57914.90234	19305.09766	67907.21484	19092.79	0.00
Potenza media kW	3.71		3.79		2.14		4.08	
flusso	8.16E+11	0	8.34E+11	0	4.71E+11	0	8.98E+11	0
Fluenza	1.611E+16	0.000E+00	2.344E+16	0.000E+00	9.095E+15	0.000E+00	1.714E+16	0.000E+00

Tabella 7: I valori di fluenza e flusso ottenuti sulla base delle misure di attivazione.[4]

Dall'analisi dei risultati delle simulazioni è stato inoltre valutato il tempo di attesa prima di poter maneggiare i campioni e sottoporli ad eventuali analisi. Nella tabella precedente è riportata anche l'attività prevista a 30 giorni dal termine degli irraggiamenti.

## 8. DIFFUSIONE DEI RISULTATI

Una volta che i campioni saranno analizzati e caratterizzati, saranno effettuate pubblicazioni su riviste scientifiche specifiche.

[1] A.Santagata, "ESPERIENZA PAR2012: Studio di fattibilità, 04-2013

[2] Mario Pillon, Neutron Irradiation test procedure, ENEA document TS-IVVS2-05

[3] Alessandra Bellucci, CSM comunicazione privata

[4] Mario Pillon, comunicazione privata