

AAEC-LIB/Trans-611

AAEC-LIB/Trans-611

AN EXPERIMENTAL STUDY OF THE BEHAVIOUR OF
FISSION PRODUCTS FOLLOWING AN ACCIDENT ON
A SWIMMING POOL REACTOR

by

J. DADILLON

(Bulletin d'Informations Scientifiques et
Techniques, no.112, February 1967,
pp.13-18)

Translated from the French by
A. Bicevskis
November 1976

AUSTRALIAN ATOMIC ENERGY COMMISSION RESEARCH ESTABLISHMENT

AN EXPERIMENTAL STUDY OF THE BEHAVIOUR OF
FISSION PRODUCTS FOLLOWING AN ACCIDENT ON
A SWIMMING POOL REACTOR

by

J. Dadillon

(Bulletin d'Informations Scientifiques et Techniques,

No. 112, February 1967, pp. 13-18)

Translated from the French by A. Bicevskis

November, 1976

AUSTRALIAN ATOMIC ENERGY COMMISSION

LIB/TRANS SERIES

Translations in this series were prepared as working documents for the use of research scientists at the Australian Atomic Energy Commission.

In order that they might be made available with the least possible delay, no attempt has been made to edit them, nor have all typing errors necessarily been identified and corrected.

Copies of translations in this series are made available to interested organizations and individuals only on the express understanding that they may be imperfect and do not aim to meet the standards of a published document. The Commission will not be held responsible for any inaccuracies in the translated text or for any errors resulting therefrom.

If any further reproduction of this translation is made by the recipient thereof, this note must be reproduced together with the text of the translation.

AN EXPERIMENTAL STUDY OF THE BEHAVIOUR OF FISSION PRODUCTS

FOLLOWING AN ACCIDENT ON A SWIMMING POOL REACTOR

by J. DADILLON, Radiation Protection Study Group.

Etude experimentale du comportement des produits de fission en cas
d'accident sur un reacteur piscine.

par J. DADILLON, Service d'Etudes de Surete Radiologique Bulletin
d'Informations Scientifiques et Techniques No. 112, February
1967, pp. 13-18.

SUMMARY: (supplied with the original):

In the estimation of nuclear risks connected with the running of a reactor an essential factor, sometimes neglected because insufficiently known, is the knowledge of the type, amount and behaviour of the contamination actually released inside the containment in the case of an accident.

In the special case of swimming pool reactors the cooling fluid proves to be a very efficient barrier against contamination.

Three experiments were carried out in the reactor CABRI, during which several fuel element plates were melted inside the core itself.

Without making any assumptions about the possible extent of fuel plate melting in a reactor core, it is important to know, first, the order of magnitude of the relevant release rate from fuel of the most dangerous fission products, and, second, the retentive power of the coolant.

The general problems presented are quite complex, but they can considerably be reduced if the discussion is restricted to a specific reactor type.

As regards swimming pool reactors, it was decided to start this investigation under close to realistic conditions, which renders less critical the application of the results. Unfortunately, the kinetics and the conditions associated with an accidental melting of part of a reactor core are not always strictly identical: some extrapolation may thus prove to be necessary.

The three tests completed on the reactor CABRI have allowed to determine the release rate from molten fuel for iodine and tellurium as well as the retentive power of water. The irradiation level of the fuel elements, which is always very low for this reactor (some tens of MWd/t), and the extent of melting, deliberately restricted to a few fuel plates (one for the first and three plates for the subsequent tests), forced us to limit the investigation to the more volatile fission products, paying particular attention to iodine, this being the most dangerous.

The first two tests were carried out under certain reactor flow and temperature conditions, whilst the third was specially designed for investigating the diffusion of the contamination, released by the fuel melting. During all tests, the mean water temperature was 30°C, its flow rate through the core being about 400m³/h with the flow direction downwards in all cases. The water level ranged from 5.30 to 6.10m which corresponds to a water height above the core of 2.50 to 3.30 m.

Numerous samples, taken from the water at various intervals after the melting, showed that the contamination was very homogeneous.

I Fission Products Emission Rate from Molten Fuel

It will be recalled that a complete CABRI charge consists of about 300 plates of uranium-aluminium alloy (20% uranium and 80% aluminium by weight), representing a total of 4kg of 93% enriched uranium (90% at the time of the tests).

At the completion of the two last tests, several samples were taken from the fuel plates, covering both the sound and molten sections. Their analysis allowed to determine the weight loss of the alloy as well as the concentration of iodine before each melting. In addition, calculations supplied as a comparison the values for iodine 131 as well as the activities of other iodines and tellurium 132.

The transmission through water being very weak as will be shown later, the release rate of a fission product from fuel is equal to the ratio of its activity in water to its activity in the fuel plates before melting. It is clear that the undamaged part of the core does not affect the assessment.

The release rate of iodine varied between 2 and 10%, depending on the test, whilst that of tellurium ranged from 0.2 to 5%.

As already mentioned, the fission product release processes following fuel melting are far too complex to be quantified accurately with the present state of knowledge, in particular, as regards the more volatile products. It is only possible to provide an approximate estimate. Thus, in the case of a water reactor, even an extensive core melting, but limited in time to a few tens of seconds should not bring about a release of iodine and tellurium in excess of 10%. On the other hand, the release of gases could approach 100%, as estimated from their solid daughter products. The fission products in the form of solids or with little volatility were not detected in the water at the completion of the test series. However, their release rate from a given fuel is much less influenced by the conditions of melting and always remains very low. The values obtained from small scale tests, carried out mainly in the U.S.A., can be considered as perfectly acceptable.

The samples from the fuel plates indicated a loss of uranium of the order of 70% even at positions where the cladding had not melted. The presence of alloy runs between the plates suggested that the fuel could melt without the better cooled cladding melting. Thus, the alloy would run out at the points where the cladding had actually melted.

II. Trapping of Fission Products in Water

Only the retention of iodine by water could be determined during the tests. In fact, as this factor is quite substantial, only very weak activities reach the reactor hall. As regards the gases, which are not retained as effectively, the available trapping techniques did not allow to obtain selective samples over sufficiently long periods.

The iodine transmission factor through the water can be expressed as follows:

$$K = \frac{AH}{AE + AH}$$

AH = iodine activity released in the turbine hall

AE = iodine activity in water.

This coefficient was calculated to be between 5×10^{-6} and 5×10^{-5} , in the light of the isotopic concentrations sampled during the tests. In other words, only a fraction of between 0.0005% and 0.005% of the iodine released to the water would reach the reactor hall itself.

In addition, a series of out of pile near full scale tests (PIREE) has shown that, even in the case where iodine is entrained in water by a gas under a pressure of 20 kg/cm^2 and temperature of 400°C with a substantial flow of 20g/s , during one minute only a fraction equal to 0.1% would traverse a water layer of 3 m.

As a result, in case of a fuel melting accident on a swimming pool reactor, one can assume a probable value of 0.005% for the coefficient of iodine transmission through water with an upper limit of 0.1%, our case being sufficiently far removed from this limiting value.

III Behaviour of Iodine on the Filters

Two experimental trapping arrangements were used during the series of tests:

- simple arrangements consisting of "Delbag" filter paper followed by 5cm of charcoal :
- composite sets comprising, depending on the case, a variable number of asbestos filter paper, silver activated copper mesh, carbon impregnated paper, and 1cm layers of charcoal.

The asbestos paper and charcoal were of the same type as used in industrial nuclear plants.

Only the simple arrangement was used during the two first tests; its constitution did not allow to obtain data on the behaviour of iodine. It is only possible to state that the quantity of iodine retained by "Delbag" paper is less than 10% of that absorbed by the charcoal, which indicates that less than 10% of the iodine is associated with the aerosols.

For the third test an enclosure was placed above the reactor core, reducing the free volume above the water to only 150m³, instead of the normal total volume of the reactor hall of about 2500m³. In this case the composite filter sets were used.

During the rise in power, quite a large quantity of vapour appeared above the reactor, the relative humidity reaching 95% inside the enclosure.

The quantities of iodine trapped on successive layers of charcoal within the same filter set were often of the same order. This behaviour was due, in the first place, to the high relative humidity which reduced considerably the efficiency of the charcoal. Under these conditions it is not possible to determine the true stopping power of these filter sets, but several charcoal filters showed efficiencies in general lower than 95%, related to a 5cm charcoal layer. The relative humidity is probably not the only reason for the reduction in the charcoal absorptivity - another likely explanation could be the formation of compounds that are absorbed less than molecular iodine.

IV Conclusions

It appears that the consequences of an accident, which leads to fuel melting in part of the core of a swimming pool reactor, would not be as serious as has been thought up to now. This series of tests has shown that the fuel itself, water and structural materials within the core retain 99.9995% of the iodine present in the damaged core section. It is not possible, at this stage, to generalise the conclusions to an extensive core melting, liberating large quantities of vapour. Nevertheless, it is not unreasonable to assume that in most of the accidents leading to a partial core melting, only 0.1% of the iodine would be released above the pool.

As regards the filter sets, the incomplete results obtained so far indicate the need to improve the charcoal beds. It is known that various impregnations (potassium iodide or triethylene diamine) have been extensively studied by C.E.A. and in other countries, in particular, England, and that the charcoal beds proposed are already able to trap most of the penetrative iodine compounds. However, both tests on complete industrial filter sets and more detailed investigations should provide further insight on the complex problem concerning the more penetrative forms of iodine as well as guidance to possible improvements that could be made on the filters currently available.

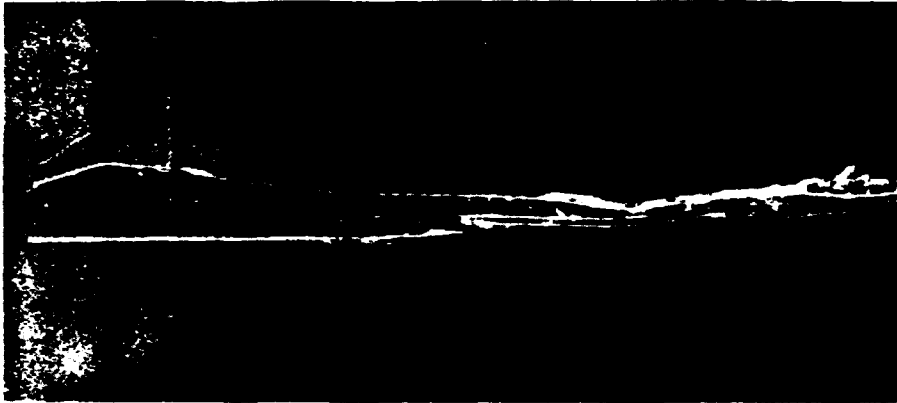
Figure Headings

Fig.1 Power as a Function of Time (First Tests)

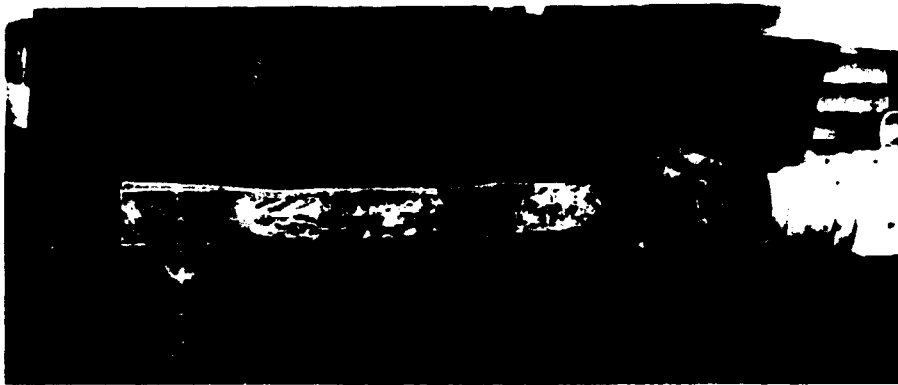
Fig.2 " " " " " " (Second Test)

Fig.3 " " " " " " (Third Test)

Illustrations on page 15 of the original ; control plate after melting.



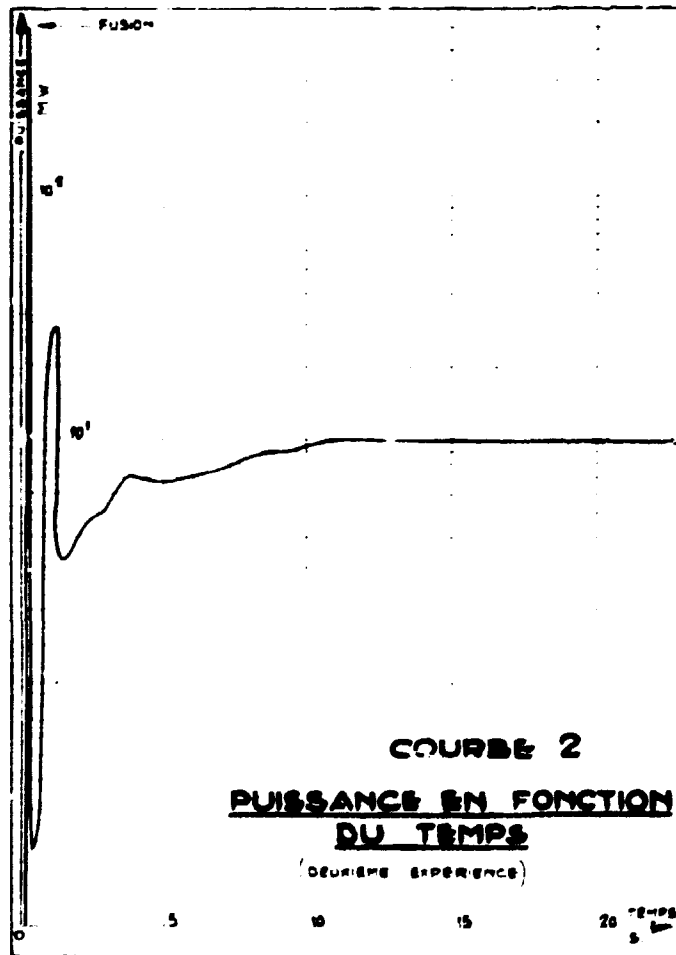
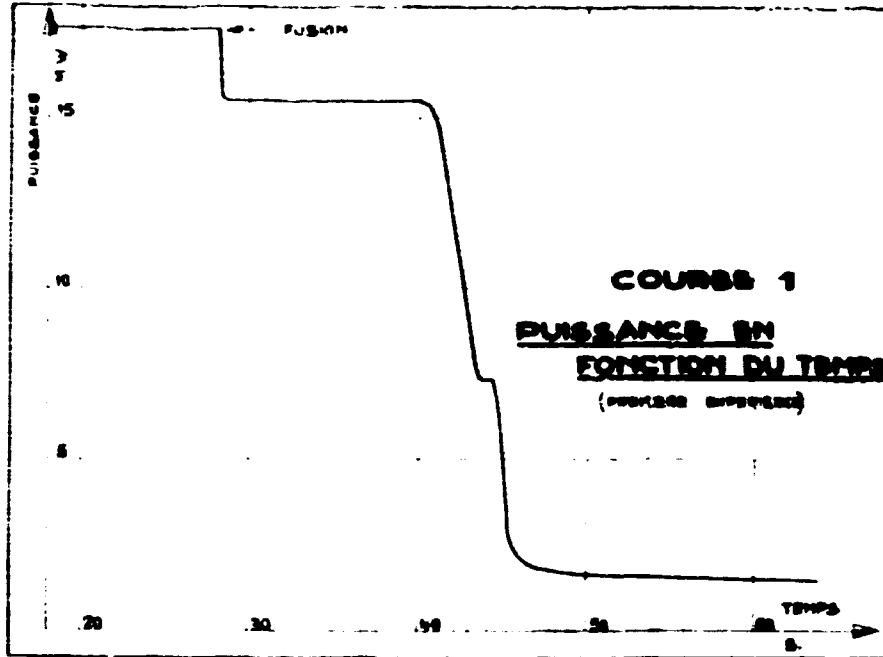
Plaque de controle apres leur fusion.

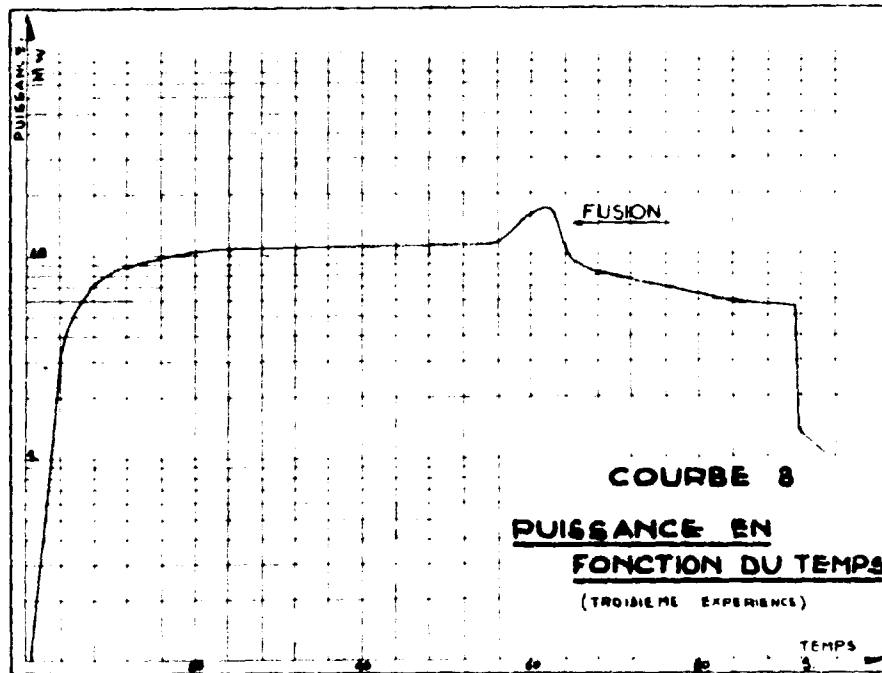


Plaque de controle apres leur fusion.



Plaque de controle apres leur fusion.





Dans le domaine des dispositifs de piégeage, les résultats partiels obtenus confirment bien la nécessité d'une amélioration des charbons. On sait que des imprégnations diverses (iodure de potassium ou triéthylène diamine) ont fait l'objet d'études importantes au C.E.A. ou à l'étranger, particulièrement en Angleterre et que les charbons proposés sont déjà à même de piéger la plupart

des formes pénétrantes d'iodes. Néanmoins, des essais sur éléments industriels complets, ou des analyses plus détaillées ne manqueront pas d'apporter des enseignements plus approfondis sur la question complexe de l'apparition des formes pénétrantes d'iodes et, en tout état de cause, de guider sur le choix des améliorations éventuelles qu'il y aurait lieu d'apporter à certains dispositifs de piégeage existant sur les installations.

Étude expérimentale du comportement des produits de fission en cas d'accident sur un réacteur piscine

Par J. DADILLON *

RÉSUMÉ :

Un élément essentiel et cependant parfois négligé parce que mal connu, dans l'évaluation des risques nucléaires associés au fonctionnement d'un réacteur, est la connaissance, en cas d'accident, de la nature, de l'importance et du comportement de la contamination réellement libérée, à l'intérieur de l'enceinte.

Dans le cas particulier des réacteurs piscines, le fluide de refroidissement s'avère être une barrière, très efficace vis-à-vis de la contamination.

Trois expériences ont été faites dans le réacteur CABRI au cours desquelles, a été provoquée au sein même du cœur, la fusion de quelques plaques d'éléments combustibles.

SUMMARY :

In the estimation of nuclear risks connected with the running of a reactor an essential factor, sometimes neglected because insufficiently known, is the knowledge of the type, amount and behaviour of the contamination actually released inside the container in the case of an accident.

In the special case of swimming-pool reactors the cooling fluid proves to be a very efficient barrier against contamination.

Three experiments were carried out in the reactor CABRI, during which several fuel element plates were melted inside the core itself.

Sans présumer de l'ampleur maximale de la fusion susceptible de se produire dans le cœur du réacteur, il est primordial de connaître, en premier lieu, l'ordre de grandeur du taux d'émission à partir du combustible, des produits de fission les plus dangereux et, en second lieu, le pouvoir de rétention du fluide de refroidissement. Le problème, extrêmement complexe dans son ensemble, se trouve

simplifié lorsqu'il s'adresse à un type de réacteur déterminé.

En ce qui concerne les réacteurs piscines, il a été choisi de commencer cette étude dans des conditions très voisines de la réalité, ce qui rend l'utilisation des résultats beaucoup moins délicate. Malheureusement, la cinétique et les conditions

* Service d'Études de Sécurité Radiologique.

d'une fusion accidentelle d'une partie du cœur d'un réacteur risquent de ne pas être toujours rigoureusement identiques : une extrapolation peut alors s'avérer nécessaire.

Les trois expériences réalisées dans le réacteur CABRI ont permis de déterminer les taux d'émission de l'iode et du tellure à partir du combustible fondu, ainsi que le pouvoir de rétention de l'eau. Le niveau, toujours très bas du taux d'irradiation des éléments combustibles de la pile (quelques dizaines de MWJ/T) et l'ampleur de la fusion volontairement limitée à quelques plaques (une pour la première expérience, trois pour les suivantes), nous ont contraints à nous limiter aux produits les plus volatils en portant toute notre attention sur l'iode qui est le plus dangereux d'entre eux.

Les deux premières expériences ont été faites au cours de tests du comportement de la pile dans certaines conditions de température et de débit, la troisième a été spécialement préparée pour l'étude de la diffusion de la contamination libérée par la fusion du combustible.

Lors de chaque test, la température moyenne de l'eau était de 30° C et son débit, à travers le cœur de 400 m³/h environ, la circulation se faisant toujours de haut en bas. Le niveau d'eau a varié de 5,30 m à 6,10 m, ce qui correspond à des hauteurs d'eau au-dessus du cœur de 2,50 m à 3,30 m.

De nombreux prélèvements effectués dans l'eau, à différents instants après la fusion, ont montré que la contamination était très homogène.

I. TAUX D'ÉMISSION DES PRODUITS DE FISSION A PARTIR DE COMBUSTIBLE FONDU

Nous rappellerons qu'un chargement complet du cœur de CABRI se compose d'environ 300 plaques d'alliage uranium-aluminium (en poids : 20 % d'uranium - 80 % d'aluminium) représentant au total 4 kg d'uranium enrichi à 93 % en U-235 (90 % à l'époque où s'est déroulée la présente expérimentation).

À l'issue des deux dernières expériences, plusieurs échantillons de combustible ont été prélevés sur les plaques, tant dans les parties intactes que dans les parties fondues. Leur analyse a permis de déterminer le poids d'alliage disparu et les quantités d'iode présentes avant chaque fusion. Par ailleurs, le calcul a fourni des valeurs comparatives

concernant l'iode 131 ainsi que les activités des autres iodes et du tellure 132.

La transmission à travers l'eau étant très faible comme on le verra, le taux d'émission d'un produit de fission à partir du combustible, est égal au rapport de son activité dans l'eau à celle qui se trouvait dans les plaques avant leur fusion. Il est bien évident que la partie, non endommagée du cœur, n'entre pas dans ce calcul.

Le taux d'émission de l'iode a varié de 2 à 10 % suivant l'expérience. Celui du tellure de 0,2 à 5 %.

Nous l'avons déjà dit, le taux d'émission des produits de fission, au cours d'une fusion de combustible, est un phénomène beaucoup trop complexe pour qu'il soit possible, actuellement, d'en fixer les valeurs avec certitude, surtout quand il s'agit des produits les plus volatils. Seule une valeur probable peut être avancée : ainsi, dans le cas d'un réacteur à eau, une fusion même très étendue du cœur, mais limitée dans le temps à quelques dizaines de secondes, ne devrait pas provoquer une émission d'iode et de tellure dans l'eau, supérieure à 10 %. Par contre, le taux d'émission des gaz mesuré de façon peu précise à partir de leurs descendants solides, pourrait avoisiner 100 %. Quant aux produits solides ou peu volatils, ils n'ont pas été détectés dans l'eau, à l'issue des présentes expériences. Cependant, leur taux d'émission à partir d'un combustible déterminé est beaucoup moins influencé par les conditions de fusion et demeure, de toute façon, très faible. Les valeurs déterminées au cours d'expériences à petite échelle, effectuées notamment aux États-Unis, peuvent être considérées comme parfaitement acceptables.

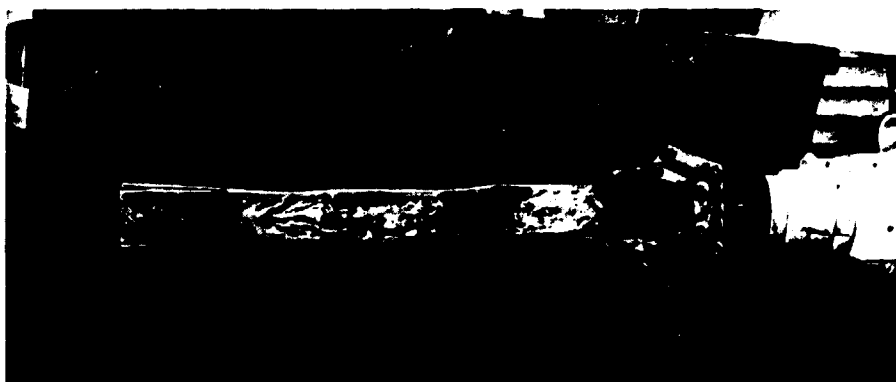
L'analyse des échantillons prélevés sur les plaques a fait apparaître une perte d'uranium de l'ordre de 70 %, même en des endroits où la gaine n'avait pas fondu. La présence entre les plaques, de coulées d'alliage, laisse supposer que celui-ci peut se trouver en fusion sans que la gaine, plus refroidie, ne soit fondue et que, de ce fait, il s'écoule par les points où la gaine a réellement fondu.

II. PIÉGEAGE DES PRODUITS DE FISSION DANS L'EAU

Seule la rétention de l'iode dans l'eau a pu être déterminée au cours de ces expériences. En effet, ce facteur étant très important, les activités qui



Plaque de contrôle après leur fusion.



Plaque de contrôle après leur fusion.



Plaque de contrôle après leur fusion.

atteignent le hall-pile sont très faibles. En ce qui concerne les gaz, dont la rétention est moins grande, les systèmes de piégeage dont nous pouvions disposer, ne permettaient pas de faire des prélèvements sélectifs suffisamment longs.

Le facteur de transmission de l'iode à travers l'eau s'exprime de la façon suivante :

$$k = \frac{AH}{AE + AH}$$

AH activité de l'iode émis dans le hall-pile.

AE activité de l'iode dans l'eau.

Suivant les expériences, les isotopes et les prélèvements à partir desquels il a été calculé, ce coefficient se situe entre $5 \cdot 10^{-6}$ et $5 \cdot 10^{-5}$. Autrement dit, seule une partie comprise entre 0,0005 % et 0,005 % de l'iode émis dans l'eau pendant la fusion du combustible, atteint le hall-pile lui-même.

En outre, une série d'expériences hors pile (PI-RFE) à une échelle voisine de la réalité, a montré que, même dans le cas où l'iode était entraîné dans l'eau par un gaz sous une pression de 20 kg/cm², à une température de 400° C et suivant un débit important de 20 g/s pendant une minute, seule une partie égale à 0,1 % traversait une couche d'eau de 3 mètres.

Par conséquent, dans le cas d'un accident de fusion de combustible survenant dans un réacteur piscine, on peut considérer comme valeur probable du coefficient de transmission de l'iode à travers l'eau 0,005 % et comme limite supérieure 0,1 % étant précisé qu'à notre sens, on resterait certainement assez éloigné de cette valeur limite.

III. COMPORTEMENT DE L'IODE DANS LES FILTRES

Deux dispositifs expérimentaux de piégeage ont été utilisés au cours de cette expérimentation :

- des dispositifs simples composés d'un papier Delbag suivi de 5 cm de charbon ;
- des ensembles composites comprenant en nombre variable suivant les cas :
 - papiers d'amiante, laine de cuivre activée à l'argent, papiers imprégnés au charbon, couches de 1 cm de charbon.

Les papiers amiante et le charbon étaient du même type que ceux utilisés dans les installations nucléaires industrielles.

Seul, le premier dispositif a été utilisé lors des deux premières expériences ; sa constitution même ne permettait pas d'obtenir des informations sur le comportement de l'iode. Il est seulement possible de dire que le papier Delbag retient des quantités d'iode inférieures à 10 % de celles adsorbées dans le charbon, ce qui signifierait que moins de 10 % de l'iode se trouvent associés à des aérosols.

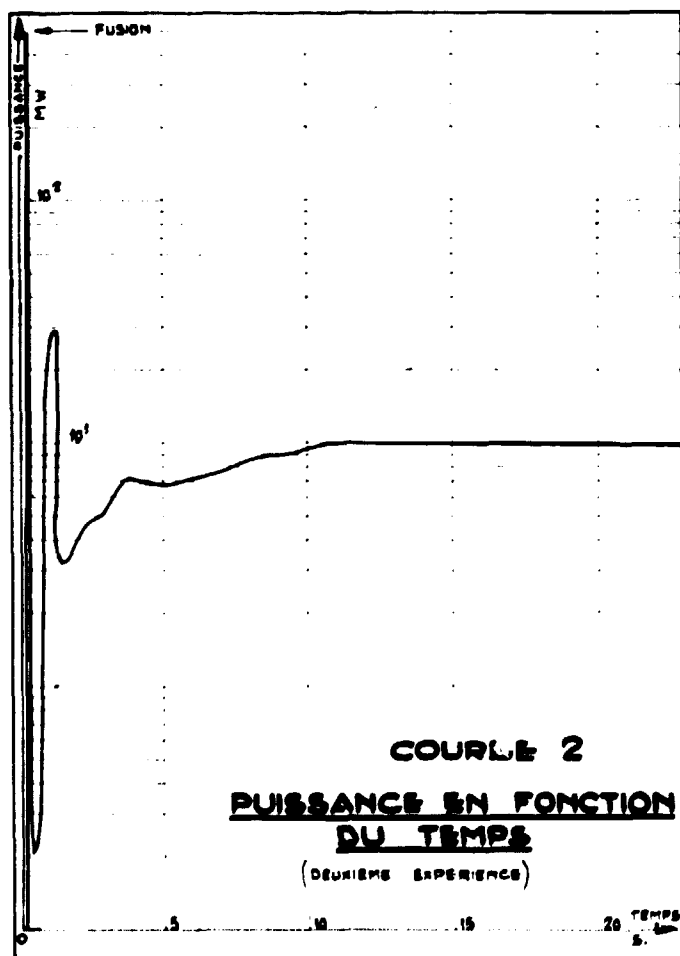
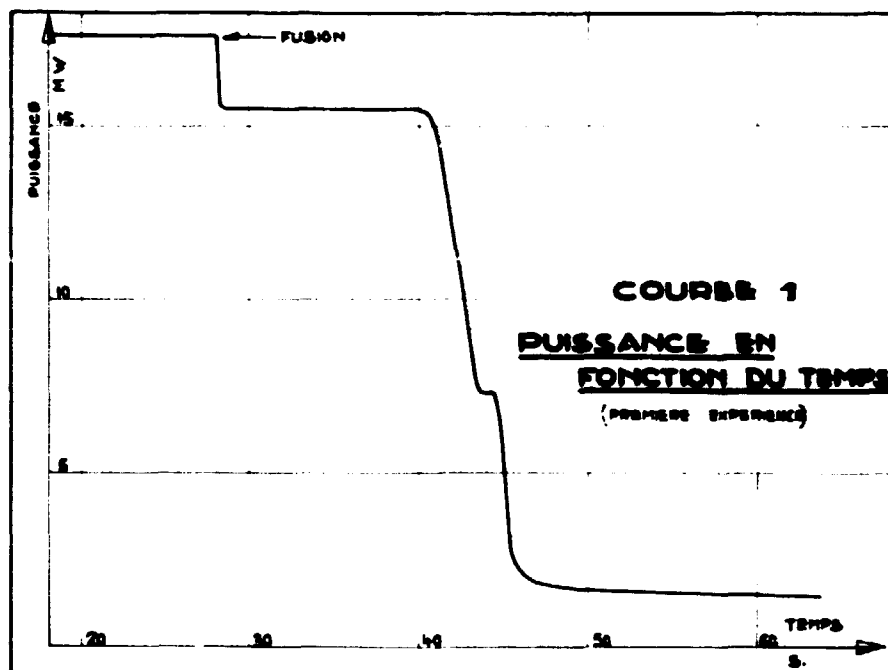
Pour la troisième expérience, une enceinte de confinement était placée au-dessus de la cuve du réacteur, réduisant le volume libre, au-dessus de l'eau, à 150 m³ seulement au lieu de 2.500 m³ qui représentent, approximativement, le volume total du hall. En outre, des ensembles composites étaient cette fois utilisés.

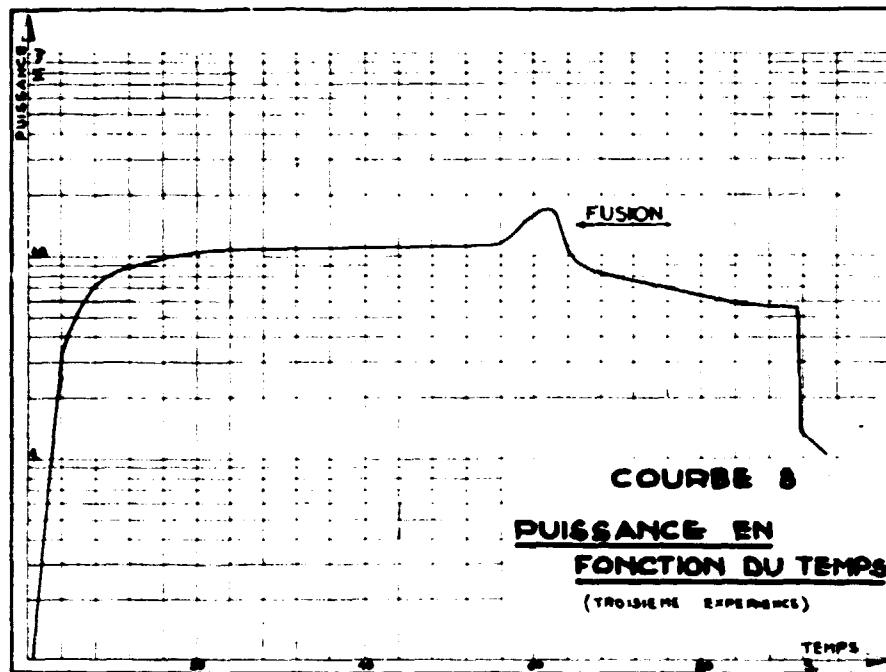
Une assez forte quantité de vapeur apparaissant au-dessus du réacteur au cours de la montée en puissance, le taux d'humidité relative atteignait 95 % à l'intérieur de l'enceinte de confinement.

Les quantités d'iode fixées sur les couches successives de charbon d'un même ensemble, étaient souvent du même ordre, ce phénomène étant dû, en premier lieu, au taux d'humidité élevé qui a diminué, dans des proportions considérables, l'efficacité des charbons. Il est impossible dans ces conditions de déterminer le pouvoir d'arrêt réel de ces ensembles, mais les diverses couches de charbon ont présenté des efficacités qui, ramenées à la valeur de 5 cm de charbon seraient généralement inférieures à 95 %. Le taux d'humidité n'est probablement pas la seule cause de cette diminution d'efficacité des charbons, la formation de composés moins bien arrêtés que l'iode moléculaire pourrait être une explication très vraisemblable.

IV. CONCLUSION

Il apparaît que les conséquences d'un accident mettant en cause la fusion d'une partie du cœur d'un réacteur piscine, ne seraient pas aussi graves que ce que l'on pouvait penser jusqu'à présent. Ces quelques expériences ont montré que le combustible, l'eau et les matériaux constitutifs à l'intérieur du cœur retenaient 99,9995 % de l'iode présent dans la portion de cœur endommagée. Il n'est pas possible de généraliser encore au cas de fusions extrêmement brutales engendrant de grandes quantités de vapeur. Néanmoins il n'est pas déraisonnable de penser que dans la très grande majorité d'accidents entraînant la détérioration d'une portion du cœur seul 0,1 % des iodes serait émis au-dessus des piscines.





Dans le domaine des dispositifs de piégeage, les résultats partiels obtenus confirment bien la nécessité d'une amélioration des charbons. On sait que des imprégnations diverses (iodure de potassium ou triéthylène diamine) ont fait l'objet d'études importantes au C.E.A. ou à l'étranger, particulièrement en Angleterre et que les charbons proposés sont déjà à même de piéger la plupart

des formes pénétrantes d'iodes. Néanmoins, des essais sur éléments industriels complets, ou des analyses plus détaillées ne manqueront pas d'apporter des enseignements plus approfondis sur la question complexe de l'apparition des formes pénétrantes d'iodes et, en tout état de cause, de guider sur le choix des améliorations éventuelles qu'il y aurait lieu d'apporter à certains dispositifs de piégeage existant sur les installations.

UNIFILE 500S—Supplied by
ILLAWARRA STATIONERY SUPPLIES PTY. LTD.
356 RAILWAY PARADE,
CARLTON, N.S.W. 2218
Phone: 587-8255 (8 Lines)