

**INFLUENCIA DE LA QUIMICA DEL YODO
EN LA
ESTIMACION DEL TERMINO FUENTE**

por:

L.E. Herranz Puebla

I. López Díez

J.J. Rodríguez Maroto

A. Martínez López-Alcorocho

**INSTITUTO DE TECNOLOGIA NUCLEAR
CIEMAT**

MADRID, 1991

CLASIFICACION DOE Y DESCRIPTORES

220900; 400600

SOURCE TERMS

FISSION PRODUCTS

AEROSOLS

C CODE

N CODE

I CODE

IODINE

pH VALUE

REACTOR ACCIDENT

COMPUTERIZED SIMULATION

Toda correspondencia en relación con este trabajo debe dirigirse al Servicio de Información y Documentación, Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas, Ciudad Universitaria, 28040-MADRID, ESPAÑA.

Las solicitudes de ejemplares deben dirigirse a este mismo Servicio.

Los descriptores se han seleccionado del Thesaurus del DOE para describir las materias que contiene este informe con vistas a su recuperación. La catalogación se ha hecho utilizando el documento DOE/TIC-4602 (Rev. 1) Descriptive Cataloging On-Line, y la clasificación de acuerdo con el documento DOE/TIC.4584-R7 Subject Categories and Scope publicados por el Office of Scientific and Technical Information del Departamento de Energía de los Estados Unidos.

Se autoriza la reproducción de los resúmenes analíticos que aparecen en esta publicación.

Este trabajo se ha recibido para su impresión en febrero de 1991

Depósito legal: M-8086-1991
NIPO 228-91-010-0

ISSN 614-087-x
ISBN 84-7834-100-5

IMPRIME CIEMAT

INDICE DE MATERIAS

	<i>Pág.</i>
1. INTRODUCCION.....	11
2. ESCENARIO POSTULADO	12
2.1. Experimento LA-4	12
2.2. Variaciones e Hipótesis	13
3. APROXIMACION TEORICA AL ESCENARIO	13
3.1. Termohidráulica	13
3.2. Comportamiento de Aerosoles	14
3.3. Química del Yodo	15
4. ESTRATEGIA DE ANALISIS	16
5. RESULTADOS	17
5.1. Termohidráulica	17
5.2. Comportamiento de Aerosoles	18
5.3. Química del Yodo (Q)	18
5.3.1. Química Acida (QA)	19
5.3.2. Química Básica (QB)	19
6. DISCUSION DE RESULTADOS	20
6.1. Química del Yodo	20
6.1.1. Química Acida (QA)	20
6.1.2. Química Básica (QB)	21
6.1.3. Comparación QA — QB	22
6.2. Evaluación Global	23
7. CONCLUSIONES	24
REFERENCIAS	26
TABLAS	27
FIGURAS	29



INDICE DE TABLAS

	<i>Pág.</i>
Tabla 1. Propiedades de los materiales de la vasija	27
Tabla 2. Características de la vasija	27
Tabla 3. Condiciones termohidráulicas iniciales (t = -50 min, t = 0 min)	27
Tabla 4. Resultados termohidráulicos más representativos (CONTEMPT4)	27
Tabla 5. Variables más significativas del comportamiento de aerosoles (NAUA)	28
Tabla 6. Concentraciones de las especies de yodo en el sumidero y en la atmósfera a pH = 5 (IODE)	28
Tabla 7. Concentraciones de las especies de yodo en el sumidero y en la atmósfera a pH = 9 (IODE)	28

INDICE DE FIGURAS

	<i>Pág.</i>
Figura 1. Esquema de la vasija CSTF para el experimento LA-4 . . .	29
Figura 2. Diagrama de acoplamiento de códigos	30
Figura 3. Modelo químico del escenario	31
Figura 4. Enfoques del análisis	31
Figura 5. Temperatura de la atmósfera, en el sumidero y en la pared vs tiempo (CONTEMPT4)	32
Figura 6. Presión total, de vapor e incondensables vs tiempo (CONTEMPT4)	32
Figura 7. Humedad relativa vs tiempo (CONTEMPT4)	33
Figura 8. Tasa de condensación en las paredes vs tiempo (CONTEMPT4)	33
Figura 9. Tasa de fugas vs tiempo (CONTEMPT4)	34
Figura 10. Concentración de yodo en forma de Csl (aerosol) vs tiempo (NAUA)	34
Figura 11. Masa y tasa de sedimentación de Csl vs tiempo (NAUA) .	35
Figura 12. Masa fugada de Csl vs tiempo (NAUA)	35
Figura 13. Distribución de especies de yodo en el sumidero vs tiempo, pH = 5 (IODE)	36
Figura 14. Concentración de yodo en la atmósfera vs tiempo, pH = 5 (IODE)	36
Figura 15. Masa fugada de I ₂ vs tiempo, pH = 5 (IODE)	37
Figura 16. Flujos de yodo vs tiempo, pH = 5 (IODE)	37

	<i>Pág.</i>
Figura 17. Distribución de especies de yodo en el sumidero vs tiempo, pH = 9 (IODE)	38
Figura 18. Concentración de yodo en la atmósfera vs tiempo, pH = 9 (IODE)	38
Figura 19. Flujos de yodo vs tiempo, pH = 9 (IODE)	39
Figura 20. Masa fugada de I ₂ vs tiempo, pH = 9 (IODE)	39
Figura 21. Concentración de yodo total en el sumidero vs tiempo (IODE)	40
Figura 22. Concentración de yodo total en la atmósfera vs tiempo (IODE)	40
Figura 23. Coeficiente de partición total del yodo vs tiempo (IODE) .	41
Figura 24. Distribución de especies de yodo a t = 280 min (IODE) .	41
Figura 25. Concentración total de yodo en la atmósfera vs tiempo . .	42
Figura 26. Masa total de yodo fugada	42

1. INTRODUCCION

Los accidentes ocurridos hasta la fecha en plantas nucleares han puesto de manifiesto la extraordinaria importancia de la conducta química de algunos productos de fisión en su transporte y retención dentro del recinto del reactor. De entre todos los radionucleidos, el yodo presenta unas características peculiares que le conceden un papel protagonista en el campo de la química accidental (1).

Existe un reconocimiento internacional de la necesidad de investigación en este área. Fruto del trabajo realizado, se han creado herramientas de cálculo capaces de predecir cuantitativamente el comportamiento del yodo en el recinto de contención bajo condiciones accidentales. En este contexto el CIEMAT dispone del código IODE, cedido por el CEA (Commissariat a l'Energie Atomique). Su participación en el proyecto ACE, y en concreto en su fase B (2), le permitirá acceder a la extensa base de datos que en ella se espera obtener referente al comportamiento del yodo, y contra la cual se llevará a cabo parte de la validación del mencionado programa de cálculo.

A la vista del interés suscitado en los últimos años por la fenomenología de contención en caso de accidente grave, y del relieve que en este marco está adquiriendo la química, el objetivo del presente estudio es doble:

- i) Hacer un análisis físico-químico integral de la contención en un hipotético escenario accidental mediante un sistema acoplado de códigos que cubra las tres grandes áreas de estudio: termohidráulica, comportamiento de aerosoles y química del yodo.
- ii) Constatar la variación, cualitativa y cuantitativa, producida en la estimación del término fuente a la atmósfera cuando se considera la influencia de la conducta química de algunos radionucleidos.

A tales efectos se ha elegido el ensayo LA-4 del proyecto LACE para la realización del análisis (3). Este experimento, al igual que el resto de la serie, estuvo dedicado exclusivamente a la termohidráulica y al comportamiento de aerosoles, ignorándose completamente los aspectos químicos asociados a la contención en una situación accidental.

Por tanto, realizar un análisis químico del escenario ha requerido adoptar varios cambios e hipótesis en su concepción, de modo que carecería de sentido establecer comparaciones entre los resultados que a continuación se presentan y los obtenidos experimentalmente.

2. ESCENARIO POSTULADO

Dos hechos fundamentales hicieron de las experiencias LACE una elección adecuada: por un lado, su proyección hacia la fenomenología de la contención en condiciones accidentales evita la acumulación de incertidumbres asociada al análisis de núcleo y primario; por otro, su acertado planteamiento y ejecución dieron lugar a una documentación extensa y actual de la que se tenía un conocimiento previo (4).

2.1. Experimento LA-4

Las experiencias a gran escala del proyecto LACE configuraron una matriz de seis ensayos. Su objetivo general fue investigar el comportamiento inherente de los aerosoles en caso de accidente grave, y proporcionar una base de datos amplia y fiable para la validación de códigos termohidráulicos y de aerosoles en contención.

Se llevaron a cabo en la CSTF (Containment Systems Test Facility) del HEDL (Hanford Engineering Development Laboratory). Esta vasija de forma cilíndrica está limitada arriba y abajo por dos casquetes semiesféricos. Su pared está formada por tres capas de distintos materiales (Tab. 1): pintura fenólica, acero al carbono y aislante. Las características básicas se recogen en la Tabla 2. La Figura 1 ofrece un esquema de la instalación y muestra la existencia de dos fases en su interior: una gaseosa y otra acuosa.

El experimento LA-4 simuló un fallo tardío de la contención de un reactor de agua ligera bajo condiciones accidentales prototípicas de esta clase de secuencias. Se inyectaron, de forma solapada, dos especies de aerosoles: una soluble, hidróxido de cesio (CsOH), y otra insoluble, monóxido de manganeso (MnO).

Las etapas de ejecución fueron las siguientes:

- i) Calentamiento (- 50 - 0 min.) Se introdujo vapor de agua a tasa alta a través de la línea inferior.
- ii) Inyección de aerosoles (0-80 min). Se disminuyó la entrada de vapor por la línea inferior y se liberaron los aerosoles utilizando como gas portador una mezcla de vapor de agua y nitrógeno. La inyección tuvo lugar en tres fases:
 - CsOH (0-30 min)
 - $\text{CsOH} + \text{MnO}$ (30-50 min)
 - MnO (50-80 min).
- iii) Período Estacionario (80-280 min). Finalizada la liberación de aerosoles, las tasas de entrada de vapor de agua y de nitrógeno disminuyeron.
- iv) Venteo (280-600 min). Se abrió el camino de escape, y la fuga se detuvo de manera natural a los 440 min; la inyección de vapor de agua y nitrógeno permaneció constante.
- v) Enfriamiento (600-5700 min). No existió inyección alguna.

En la Tabla 3 aparecen los valores de algunas variables a $t = -50$ min (tiempo inicial en el análisis termohidráulico) y a $t = 0$ min (tiempo inicial para el estudio de los productos de fisión). Es importante destacar que durante el ensayo se observaron en la atmósfera de la contención dos celdas de volúmenes bien distintos (95% y 5%) y propiedades uniformes.

2.2. Variaciones e Hipótesis

En un accidente grave con daño al núcleo los dos contribuyentes principales al término fuente son el yodo y el cesio. Una de las diferencias esenciales entre ambos radionucleidos es que mientras el primero muestra una gran reactividad debido a sus múltiples estados de oxidación, el segundo tiene una química excepcionalmente simple. Ello hace que el análisis químico en contención se centre en el estudio del comportamiento del yodo en este recinto.

En el experimento LA-4 no se inyectó ninguna especie yodada. En este hecho radica la variación más importante del escenario a analizar: se respetó todo lo concerniente a la inyección de aerosoles (tasas y tiempos), pero se substituyó el CsOH por el CsI (yoduro de cesio), manteniéndose el aerosol insoluble (MnO). Por tanto, la etapa de inyección quedó finalmente de la siguiente manera:

- CsI (0-30 min)
- CsI + MnO (30-50 min)
- MnO (50-80 min).

Este cambio no modifica la representatividad del aerosol soluble, puesto que ambas especies (CsOH y CsI) muestran un comportamiento higroscópico similar.

El ensayo LA-4, y en general el proyecto LACE, se enfocó hacia la fenomenología de aerosoles, ignorándose aspectos químicos del escenario. Ante tal carencia hubieron de adoptarse tres hipótesis importantes:

- Simular condiciones ácidas ($\text{pH} = 5$) y básicas ($\text{pH} = 9$) de modo que el amplio margen previsto en caso de accidente esté perfectamente acotado (5).
- Asumir una tasa de dosis de $1 \text{ Mrad}\cdot\text{h}^{-1}$ en la fase acuosa, situada a modo de piscina en la parte inferior de la vasija. Este valor está incluido en el rango típico del sumidero de la contención en caso de accidente (6).
- Suponer una concentración nula de compuestos orgánicos en la vasija (procedentes de los aislamientos de las válvulas, las pinturas, los cables, etc.), dada la inexistencia de datos y la dificultad de su estimación.

3. APROXIMACION TEORICA AL ESCENARIO

En el estudio del escenario postulado se ha utilizado la siguiente secuencia de códigos: CONTEMPT4/MOD5 (análisis termohidráulico), NAUA/MOD5 (evolución temporal de aerosoles), y IODE (conducta química de yodo). La Figura 2 muestra el esquema del acoplamiento entre ellos.

3.1. Termohidráulica

El código CONTEMPT4/MOD5 (7) describe la respuesta termohidráulica de la contención multicompartimental de un reactor de agua ligera bajo condiciones accidentales. El programa predice los efectos de la adición e intercambio de masa y energía entre compartimentos, la transferencia de calor a las estructuras, la influencia de dispositivos de seguridad como los sprays y los intercambiadores de calor, etc. En general, la numérica del código es explícita. Sin embargo, para estimar el efecto de la conducción de calor a las estructuras se

utiliza un método predictor-corrector. Los cálculos de flujo en las uniones entre compartimentos se llevan a cabo de forma implícita. Como resultado el código ofrece la evolución temporal de las variables termodinámicas del sistema (temperatura, presión, humedad relativa, etc.).

La diferencia de tamaño entre las dos celdas observadas permitió modelar la vasija como un volumen homogéneo, dividiendo la instalación en sólo dos compartimentos: vasija y exterior. El primero se consideró formado por una región atmosférica de $\sim 851 \text{ m}^3$ compuesta de aire y vapor de agua, y otra líquida de $\sim 1 \text{ m}^3$ de agua ($t = -50 \text{ min}$). En ambas zonas se supuso una temperatura uniforme, coincidiendo la de la interfase con la del subsistema líquido.

Se simularon seis estructuras: cilindro, casquete superior, casquete inferior sumergido y no sumergido, y estructuras internas (tanto en la atmósfera como en el sumidero). Los coeficientes de transmisión de calor entre ellas y su entorno se definieron como sigue: se admitió la posibilidad de condensación de vapor de agua sobre las paredes en contacto con la atmósfera, y se eligió la correlación de Uchida para describir la transferencia; respecto a los internos, se consideró la existencia de convección natural turbulenta en la fase gaseosa; y finalmente, la fase líquida se asumió en equilibrio térmico con las paredes en contacto, adoptando un coeficiente igual a $57000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$.

El venteo se modeló en base a dos suposiciones: el paso de fuga fue un orificio y el flujo a su través, homogéneo (sus propiedades características son medias de aquéllas en la fase líquida y la fase gas que circulan por el camino de escape).

El resto de los datos que conforman la entrada del código fueron tomados del informe experimental del ensayo LA-4 (8).

3.2. Comportamiento de Aerosoles

El código NAUA/MOD 5 (9) simula el comportamiento de los aerosoles en la contención de reactores de agua ligera durante accidentes graves. La ecuación de la dinámica de partículas se formula en función del radio, considerando cuatro sumandos fundamentales: el término fuente, la aglomeración de partículas, la condensación de vapor de agua y los procesos de eliminación (sedimentación, difusioforesis, fugas, etc.). Su resolución se lleva a cabo discretizando el tamaño, de modo que la ecuación integro-diferencial original se transforma en un sistema acoplado de ecuaciones diferenciales de primer orden, que se resuelve por el método de Euler-Cauchy. El proceso de condensación de vapor de agua sobre aerosoles se calcula de forma analítica, definiendo un paso de tiempo propio. Los resultados dan la evolución del sistema frente al tiempo como concentración suspendida, tamaño de partículas, y masa retenida según los distintos mecanismos de deposición.

Al igual que en el tratamiento termohidráulico se consideró que la vasija estaba constituida por una sola celda y se obvió la existencia del exterior (innecesario para el cálculo de aerosoles).

La entrada de datos termohidráulica procedió enteramente del CONTEMPT4/MOD5, a excepción de la tasa de condensación de vapor de agua sobre partículas. Esta variable se tomó de las estimaciones realizadas en el marco del ejercicio europeo de comparación de códigos en torno al ensayo LA-4 (10). El código CONTEMPT4/MOD5 no tiene en cuenta la presencia de partículas en sus cálculos, estableciendo una aproximación de equilibrio en la estimación de la humedad relativa que le impide predecir correctamente esta variable y, por tanto, la tasa de condensación en volumen.

En cuanto a las propiedades de las partículas, las opciones tomadas más destacables son: el rango del radio de partículas se extendió desde 1×10^{-4} cm hasta 5×10^{-2} cm, y se dividió en 60 subintervalos; la forma se supuso esférica (factores de forma igual a 1.0); la densidad del aerosol se definió como el 50% de la teórica para los insolubles (11), y el 100% para los solubles.

El modelo de condensación sobre partículas aplicado fue el original del código NAUA/MOD5. Este trata el fenómeno a través de la ecuación de Mason, que describe el crecimiento de los aerosoles por este mecanismo en función de la humedad relativa, la tasa de condensación y otros parámetros termodinámicos. En la estimación de la razón de saturación se tiene en cuenta el efecto de la curvatura, pero no el del soluto.

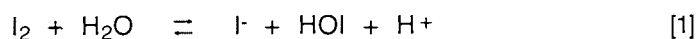
Del mismo modo que en el estudio termohidráulico, los datos no correspondientes a hipótesis o resultados del CONTEMP4/MOD5 se tomaron del informe experimental del LA-4 (8).

3.3. Química del Yodo

El código IODE (12) trata de reproducir la conducta química del yodo en la contención de un reactor de agua a presión bajo condiciones de accidente. Para ello distingue en el recinto dos subsistemas, líquido y gaseoso, formulando un total de 14 reacciones químicas posibles con distintos materiales (agua, plata, compuestos orgánicos, etc.). Además considera fenómenos como la deposición (tanto química como física) de especies gaseosas sobre superficies, las fugas, la transferencia de masa entre ambas fases, etc. El resultado es un sistema acoplado de 24 ecuaciones diferenciales que se resuelve mediante una técnica numérica del tipo predictor-corrector. Los resultados se ofrecen en términos de concentraciones, masas y flujos.

El modelo propuesto para el análisis tuvo en cuenta seis reacciones, todas ellas en fase acuosa:

- Hidrólisis del yodo molecular (I_2),



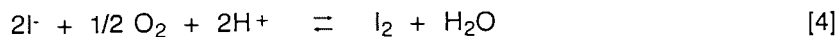
- Disociación del ácido hipoyodoso (HOI),



- Desproporción del ácido hipoyodoso,



- Oxidación térmica del yoduro (I^-),



- Oxidación por radiación del yoduro,



- Reducción por radiación del yodato (IO_3^-),



El principal fenómeno de eliminación que actuó sobre los aerosoles suspendidos fue la sedimentación, de modo que se identificó la velocidad de este proceso (según la predicción del NAUA/MOD5) con la de incorporación de Csl al sumidero. Adicionalmente, el código supone que toda la masa de yodo depositada sobre las paredes por efecto de la condensación de vapor de agua se incorpora de manera inmediata a la piscina del fondo de la vasija.

La Figura 3 resume el escenario químico modelado. La notación ϕ_i representa el flujo de los siguientes procesos: transferencia de I_2 entre el sumidero y la atmósfera (ϕ_1), deposición de I_2 en superficies (ϕ_2), transporte de I_2 a la pared (ϕ_3), y fuga de I_2 por efecto del venteo (ϕ_4). Referente a ϕ_1 , sólo se tienen en cuenta las formas químicas de elevada volatilidad (I_2), y no aquéllas otras cuyo coeficiente de partición(*) es nulo (I^- , IO_3^-), o está sujeto a grandes incertidumbres (HOI).

4. ESTRATEGIA DE ANALISIS

Si se quiere evaluar el impacto de la química en la estimación del término fuente, es obligado llevar a cabo dos tipos de cálculos para su posterior comparación: sin considerar efectos de esta índole (NQ) y considerándolos (Q). La Figura 4 es una simplificación de la 2 para cada uno de los enfoques expuestos. Además, en virtud de las opciones de pH elegidas, el último caso se desglosó en dos: uno ácido (QA) y otro básico (QB). En total fueron tres los estudios efectuados.

A excepción del análisis termohidráulico que tuvo en cuenta el período de calentamiento de la instalación, el transitorio calculado comprendió sólo 450 min desde el inicio de la entrada de aerosoles. El motivo de este acortamiento del tiempo, respecto al total del ensayo, fue la detención de las fugas a los 440 min, instante en el que la concentración de aerosoles suspendidos ya había disminuido varios órdenes de magnitud.

Dada la notable influencia en una situación accidental real y a pesar de haber sido citadas anteriormente, conviene recordar las hipótesis adoptadas respecto al escenario:

- Constancia del pH durante todo el análisis. La propia química del sistema y el aporte de materiales a lo largo del tiempo cambian de forma continua esta variable, hasta alcanzar un estado físico-químico estacionario. En cualquier caso, los valores atribuidos acotan la fenomenología predecible en caso de accidente.
- Constancia de la tasa de dosis de radiación. La principal fuente de radiación en contención proviene del decaimiento de los productos de fisión que se incorporan a ella durante el suceso accidental. Es, por tanto, una variable en el tiempo. No obstante, la magnitud asignada ($1 \text{ Mrad}\cdot\text{h}^{-1}$) es adecuada como valor medio.

(*) Se define el Coeficiente de Partición de una especie X, $H(X)$, como la relación de sus concentraciones en fase líquida y fase gas,

$$H(X) = \frac{[X]_{\text{ac}}}{[X]_{\text{g}}}$$

- Concentración nula de compuestos orgánicos tanto en fase líquida como en fase gas. Este hecho es especialmente significativo dado que su interacción química con especies de yodo conduce a la formación de yoduros orgánicos, algunos de ellos de elevada volatilidad. Por consiguiente, su inclusión en el modelo destacaría la actuación de los fenómenos químicos como potenciadores del inventario de productos de fisión susceptibles de escapar desde la contención en caso de fuga.

5. RESULTADOS

Una descripción exhaustiva de todas y cada una de las variables significativas de los tres campos (termohidráulica, aerosoles y química) sería demasiado extensa y estaría fuera de lugar a la vista del alcance del presente estudio. Por ello, se han elegido aquéllas que o bien son imprescindibles por su acoplamiento con el resto de las áreas, o bien son necesarias para la posterior discusión de resultados.

5.1. Termohidráulica

Las Figuras 5-9 recogen la evolución temporal de las variables termohidráulicas más representativas, asimismo la Tabla 4 presenta los valores de éstas al final de cada etapa del ensayo.

En la Figura 5 aparecen la temperatura en la atmósfera (T_g), en el sumidero (T_l) y en las paredes (T_w). A través de los cambios de pendiente en T_g pueden identificarse los distintos períodos del ensayo: calentamiento, inyección de aerosoles, estacionario y venteo. Durante el calentamiento se observa la rampa más pronunciada de todo el transitorio; al comenzar la inyección de aerosoles se aminoró la entrada de vapor a través de la línea inferior, lo que ocasiona una pequeña disminución momentánea de la temperatura, que rápidamente se recupera al introducir vapor de agua y nitrógeno por la línea de liberación de aerosoles, hasta alcanzar 374.15 K a los 80 min; en los 200 min de estacionario apenas aumenta un grado. La despresurización de la vasija se tradujo en un decrecimiento de la T_g , que dibuja un mínimo a ~ 400 min, aumentando a continuación en función del flujo continuo de vapor de agua y nitrógeno a la vasija.

La temperatura del sumidero aumenta suavemente hasta alcanzar un máximo a 280 min (comienzo de las fugas). Su desarrollo en el tiempo, dado que no existe calentamiento directo, es exclusivamente dependiente de los procesos de transferencia de energía con la atmósfera y las paredes del recinto.

La temperatura de las paredes presenta una conducta semejante a T_g ; las principales diferencias suceden en los períodos de calentamiento y fugas debido a la inercia térmica de los muros, que conduce a una respuesta más lenta a cambios en las condiciones.

La Figura 6 muestra el comportamiento de la presión total (P_T), del vapor de agua (P_{H_2O}) y de los gases no condensables (P_{nc}). Al igual que T_g , cada una de ellas experimenta modificaciones de su pendiente según el período del ensayo. Se observa que mientras el vapor de agua domina la rampa de la P_T en el calentamiento de la instalación, el nitrógeno entrante como componente mayoritario del gas de arrastre lo hace durante la inyección.

Respecto a la humedad relativa (HR), el código predice rápidamente un estado de saturación a partir del valor inicial (91%). No se debe olvidar la limitación en la estimación

de esta variable, debido al tratamiento de equilibrio utilizado. Al llegar a los 400 min disminuye por el aumento de la presión de saturación causado por el incremento de T_g (Fig. 7).

En la Figura 8 se observa un alta tasa de condensación en pared (WCR) durante el período de calentamiento que rápidamente declina debido a la transmisión de calor desde la atmósfera a las paredes del recinto, cuya principal consecuencia es la disminución de la diferencia $T_g - T_w$. Así, al inicio de la inyección de aerosoles la tasa es un orden de magnitud menor que la correspondiente al máximo (0.296 Kg.s^{-1}), y decrece suavemente hasta anularse a los 330 min. A los 430 min toma de nuevo valores distintos de cero.

Las fugas comienzan a los 280 min de acuerdo con el procedimiento del ensayo, momento en el que la tasa (LR) aumenta instantáneamente hasta su valor máximo (0.451 Kg.s^{-1}); a continuación disminuye hasta desaparecer a los 450 min (Fig. 9).

5.2. Comportamiento de Aerosoles

En las Figuras 10-12 se muestran las variables más significativas de los aerosoles para la evaluación global del término fuente. La Tabla 5 recoge los valores de estas magnitudes al final de cada etapa (nótese que se ha escogido 50 min como término del período de inyección por corresponder éste al Csl).

La concentración de partículas de Csl evoluciona de la forma esperada (Fig. 10). Durante el período de inyección experimenta un fuerte incremento que termina con la consecución, a ~ 50 min, de su valor máximo (2.76 g.m^{-3}). A continuación disminuye de forma aproximadamente exponencial hasta ~ 280 min; a partir de este tiempo las fugas se suman al resto de los procesos naturales de eliminación, provocando una aceleración del decaimiento. Sin embargo, la pendiente negativa de la tasa de fugas (Fig. 9) y su anulación final a los ~ 450 min hacen que el decrecimiento de la concentración se amortigüe durante los últimos 50 min.

El proceso principal de eliminación fue la sedimentación. Las condiciones de humedad del ensayo (sobresaturación) posibilitaron en el experimento una activa condensación de vapor de agua sobre las partículas. Este hecho se pone de manifiesto en la Figura 11, en la que se representan la masa depositada por sedimentación (M_{sed}) y la tasa (V_{sed}) en función del tiempo. En ella se aprecia que la intensidad del proceso es máxima a ~ 60 min, ocurriendo entre 50 y 100 min la mayor parte de esta deposición. A partir de los 250 min la masa sedimentada muestra un crecimiento suave, llegando a ser cuasi asintótico para tiempos superiores a 400 min. El inicio de las fugas también repercute en la tasa de sedimentación, que tiende a disminuir más rápidamente. A 450 min la masa total de Csl sedimentada es ~ 2380 g.

Durante el venteo el mecanismo principal de eliminación es el escape a través del camino de fugas. La masa total de Csl liberada en forma de partículas es ~ 220 g (Fig. 12).

5.3. Química del Yodo (Q)

Los resultados se dividen en dos grupos según el pH utilizado en el análisis: ácido ($\text{pH} = 5$) y básico ($\text{pH} = 9$). Asimismo, debe recordarse que desde el punto de vista químico, el yodo se inyecta directamente en el sumidero en forma de yoduro, a una tasa igual a la de sedimentación de partículas (Fig. 11).

5.3.1. Química Acida (QA)

En la Figura 13 aparecen la concentración de yodo total ($[I_{total}]$) y la de cada una de las especies ($[I_2]$, $[HOI]$, $[I^-]$, $[IO_3^-]$) en el sumidero. El yodo se encuentra principalmente como I^- e I_2 , siendo la concentración del primero mayor que la del segundo. Ambas aumentan notablemente durante el período de inyección; posteriormente atenúan su crecimiento hasta dibujar un máximo, a partir del cuál disminuyen suavemente. A pesar de su comportamiento semejante, la situación y magnitud del máximo difieren: el I^- lo alcanza a ~ 200 min ($\sim 3 \times 10^2$ g.m $^{-3}$) y el I_2 a ~ 235 min ($\sim 3 \times 10^1$ g.m $^{-3}$). Por el contrario, la $[IO_3^-]$ experimenta un crecimiento continuo en el tiempo, pero al igual que la $[HOI]$ su valor es tan bajo que la $[I_{total}]$ apenas siente sus fluctuaciones.

La Figura 14 muestra la concentración del yodo en la atmósfera del recinto. Debido al modelo químico propuesto, el I_2 es la única especie química de yodo (además de las partículas de Csl) en la fase gas. Su conducta guarda un claro paralelismo con la del I_2 en el sumidero debido a los procesos de transferencia agua-atmósfera, pero su magnitud es tres órdenes inferior. A los 260 min alcanza su valor máximo ($\sim 3.5 \times 10^{-2}$ g.m $^{-3}$), y 20 min más tarde, el inicio del venteo provoca un súbito descenso.

La Tabla 6 recoge la concentración de todas las formas químicas vistas al final de cada período del ensayo.

La masa fugada (Fig. 15) de I_2 se comporta de manera análoga a la de aerosoles de Csl. A los 280 min aumenta bruscamente, suaviza su pendiente hasta llegar a un valor de 10 g y, finalmente, se amortigua. A los 450 min la masa total que ha escapado es ~ 36 g.

En la Figura 16 se representan los flujos ϕ_i referidos en el apartado 3.3. A partir de ellos puede explicarse la evolución de la concentración de I_2 en la fase gas. Las transferencias más significativas ocurren entre sumidero y atmósfera, (ϕ_1), y entre ésta y las paredes (ϕ_2) (por interacción con las pinturas); las fugas dejan sentir su influencia a partir de los 280 min, pero la condensación de yodo en la pared queda enmascarada durante todo el análisis.

5.3.2. Química Básica (QB)

Las especies iónicas (I^- , IO_3^-) son las predominantes en el sumidero (casi el 100% del yodo se encuentra en forma de I^-). Dos son las diferencias más sobresalientes entre la $[I^-]$ y la $[IO_3^-]$: por un lado, la primera es cuando menos diez veces mayor que la segunda; por otro lado, aunque ambas aumentan progresivamente, la de I^- alcanza su orden de magnitud final en los instantes iniciales del transitorio, mientras que la de IO_3^- asciende suavemente. Las especies moleculares (I_2 y HOI) tienen concentraciones despreciables frente a la de I^- (Fig. 17).

Las principales observaciones concernientes al I_2 gaseoso se refieren a su aumento desde el instante inicial (paralelo al de la fase acuosa), su disminución a causa de las fugas (280 min), y su posterior crecimiento (Fig. 18). En cualquier caso, sus fluctuaciones obedecen a las variaciones en el tiempo de los flujos (Fig. 19).

En la Tabla 7 se muestran las concentraciones de todas las especies de yodo citadas en los párrafos anteriores.

La masa fugada de I₂ responde a la tasa de escape calculada en el CONTEMPT4/MOD5 (al igual que en los casos NQ y QA). Según la Figura 20, aumenta instantáneamente desde cero (t = 280 min) y después suaviza su pendiente, alcanzando un valor máximo de 0.01 g a los 450 min.

6. DISCUSION DE RESULTADOS

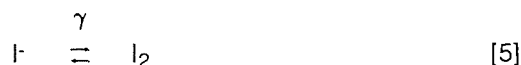
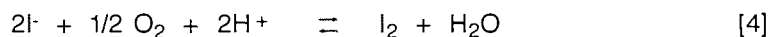
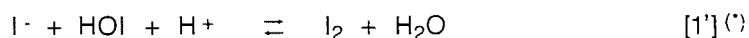
El objetivo fundamental del presente trabajo radica en los aspectos químicos asociados al término fuente. Por tanto, son éstos los que se van a racionalizar a continuación, de acuerdo con las suposiciones adoptadas y el modelo propuesto.

6.1. Química del Yodo

En este apartado se intenta justificar el comportamiento químico presentado en la sección anterior en los dos casos analizados. Finalmente, se ofrece un estudio comparativo de ambos que fundamentará las conclusiones del capítulo siguiente.

6.1.1. Química Acida (QA)

El yodo, que llega al sumidero en forma de CsI, se ve afectado por las siguientes reacciones:



Es decir, una fracción del I⁻ se transforma en I₂. Sin embargo, no todas las reacciones tienen la misma efectividad: el equilibrio [1'] se halla desplazado hacia la izquierda; la oxidación térmica [4] tiene una velocidad tan lenta que su influencia en las condiciones simuladas es despreciable; al contrario, la oxidación radiolítica [5] muestra una elevada velocidad directa que la convierte en el mecanismo principal de conversión de I⁻ a I₂.

El yodo molecular formado puede sufrir hidrólisis [1] y oxidación radiolítica [6']. El equilibrio de hidrólisis se establece instantáneamente, y su constante viene dada por:

$$K_{eq} = \frac{[I^-] [HOI] [H^+]}{[I_2]}$$

Su tendencia a la generación de HOI, debido a la creación continua de I₂, está fuertemente limitada por el bajo valor del pH y la incorporación de I⁻ durante todo el transitorio. Estos fac-

(*) Se denotan como (n') aquellas reacciones que se han invertido respecto a su presentación en la sección 3.3.

tores aminoran considerablemente el desplazamiento del equilibrio facilitando la acumulación de I_2 en el entorno ácido. La oxidación radiolítica del I_2 ,

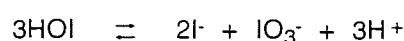


está desfavorecida cinéticamente respecto a su reacción inversa, de modo que parte del yodato existente se transforma en I_2 ; no obstante, la diferencia entre las concentraciones de I^- y IO_3^- , hace que la contribución del IO_3^- a la generación de I_2 sea secundaria frente a la del I^- .

El ácido hipoyodoso, producido en la reacción [1], puede disociarse según la ecuación [2],



y desproporcionarse de acuerdo con la [3]:



Si bien el primer equilibrio es irrelevante en este estudio, el último es el responsable de la evolución creciente de la $[IO_3^-]$ (Fig. 13).

En virtud de la volatilidad del yodo molecular se establece su partición entre el sumidero y la atmósfera según,



y puesto que en la fase gas no se han tenido en cuenta reacciones químicas, la evolución de su concentración depende exclusivamente de los procesos de deposición y fugas que aparecen en la Figura 16.

6.1.2. Química Básica (QB)

Al igual que a pH ácido, el yodo que se incorpora al sumidero puede convertirse en I_2 por tres reacciones: la inversa de la hidrólisis del I_2 [1'], la oxidación térmica [4], y la oxidación radiolítica [5]. El elevado pH actúa en detrimento de todas ellas, desplazando el equilibrio de hidrólisis hacia el yoduro, y disminuyendo las velocidades de oxidación. La vía más activa de formación del I_2 es la radiolítica.

Dos son las reacciones de desaparición del I_2 que se podrían considerar: la hidrólisis [1] y la oxidación radiolítica [6']. En el equilibrio de la interacción del I_2 con el H_2O el alto valor del pH favorece la generación de HOI; este desplazamiento está contrarrestado parcialmente por la alta $[I^-]$. Tanto la oxidación de I_2 a IO_3^- como su reacción inversa, reducción de IO_3^- a I_2 [6], manifiestan velocidades muy pequeñas; la baja concentración de I_2 condiciona la tasa de [6'] y la baja $[H^+]$ la de [6]; el balance final de la ecuación cinética es favorable a la reducción a I_2 . Por consiguiente, de las dos posibles vías químicas de eliminación del I_2 la única efectiva es la hidrólisis.

Una fracción mínima del ácido hipoyodoso procedente de la hidrólisis del I_2 está disociada. El resto está vinculado al equilibrio de desproporción [3], responsable del aumento paulatino de la $[IO_3^-]$ (Fig. 17).

De los párrafos anteriores ha de quedar claro que de los dos mecanismos potenciales de creación de IO_3^- , oxidación radiolítica del I_2 y desproporción del HOI, sólo el último es efectivo en la acumulación de esta especie, siendo su tasa de generación dos órdenes de magnitud superior a la de la oxidación, que además está inhibida por su propia reacción inversa (reducción de IO_3^- a I_2).

La conducta del I_2 en fase gaseosa depende exclusivamente de la transferencia desde el sumidero, de la deposición sobre superficies y de las fugas (Fig. 19).

6.1.3. Comparación QA — QB

En los dos epígrafes previos se ha justificado la evolución de las especies químicas en medios ácido (QA) y básico (QB). Se trata ahora de examinar las analogías y diferencias en sus resultados.

En ambos casos la especie mayoritaria es el I^- . Sin embargo, mientras que en QA la evolución de su concentración dibuja un máximo, en QB tiende a alcanzar un valor asintótico. El proceso más activo que sufre el yoduro es la oxidación radiolítica [5], cuya velocidad directa depende del pH según,

$$V \propto [\text{H}^+]^{0.25}$$

Por tanto, en QA la conversión a I_2 es más intensa, siendo en este caso la segunda especie predominante en fase acuosa. Esta relación $\text{I}^- \rightarrow \text{I}_2$ hace que en un instante determinado la tasa decreciente de incorporación de I^- al sumidero no compense las pérdidas en su concentración vía oxidación. En este momento la pendiente de la curva cambia de signo y la $[\text{I}^-]$ disminuye. En QB el elevado pH estabiliza las especies iónicas, de modo que la $[\text{I}_2]$ es tan baja que la pequeña tasa de transformación apenas afecta la $[\text{I}^-]$.

Las curvas correspondientes a la $[\text{IO}_3^-]$, si bien presentan una forma análoga, no son comparables a nivel cuantitativo. En ambos casos la reacción [3] es la responsable de la acumulación de IO_3^- , cuya velocidad directa es función de la $[\text{HOI}]$:

$$V \propto [\text{HOI}]^2$$

A partir de la formulación de la constante de equilibrio de la hidrólisis del I_2 , se puede expresar la $[\text{HOI}]$ como:

$$[\text{HOI}] = \frac{K_{\text{eq}} [\text{I}_2]}{[\text{I}^-] [\text{H}^+]}$$

Es decir, es inversamente proporcional al pH. Así, una disminución de cuatro órdenes de magnitud en la $[\text{H}^+]$ conduce a una $[\text{HOI}]$ más alta que, finalmente, se traduce en una $[\text{IO}_3^-]$ diez veces mayor en QB que en QA.

Como se mencionó en 6.1.1. y 6.1.2. tanto en QA como en QB el equilibrio de partición [7], caracterizado por el coeficiente $H(\text{I}_2)$, es la única fuente de I_2 en fase gas. La concentración existente y su evolución está determinada por un balance entre la transferencia de I_2 desde el sumidero (ϕ_1), y los flujos de deposición (ϕ_2 y ϕ_3) y fugas (ϕ_4), conducentes a la retirada de I_2 de la atmósfera. A partir del venteo, este planteamiento general se concreta en una tendencia opuesta: decreciente en QA y creciente en QB. La razón de este distinto

comportamiento yace en la intensidad con que se producen los procesos competitivos en cada uno de los casos. La magnitud de ϕ_1 , calculado mediante la aproximación adimensional de la analogía transferencia de calor — transferencia de masa,

$$\phi_1 \propto \left(\frac{[I_2]_{ac}}{H(I_2)} - [I_2]_g \right)$$

viene impuesta por el orden de la $[I_2]$, lo que significa

$$\phi_1(QA) > \phi_1(QB)$$

Ello hace que mientras la generación química de I_2 en fase líquida es superior que ϕ_1 en QB, es mucho menor en QA. Esto explica que $[I_2]_{ac}$ aumente en el primer caso y disminuya en el segundo. Como se puede observar en las figuras de la sección anterior, las variaciones de $[I_2]_{ac}$ se transmiten a ϕ_1 y $[I_2]_g$.

Como consecuencia de las diferencias señaladas, la concentración de yodo en el sumidero (Fig. 21), casi coincidente durante los primeros 80 min, muestra una tendencia divergente a partir de ese instante: en QA dibuja un máximo y decrece, mientras que en QB la pendiente de la curva es siempre positiva. En la atmósfera del recinto la concentración de yodo durante gran parte del análisis es tres órdenes de magnitud mayor en QA que en QB (Fig. 22).

La Figura 23 muestra el Coeficiente de Participación Total del yodo en QA y QB en función del tiempo. Esta variable se formula como,

$$H_T(I) = \frac{\Sigma [I]_{ac}}{\Sigma [I]_g}$$

de modo que la inversa de $H_T(I)$ es una estimación de la volatilidad global del yodo en el sistema. El hecho de que sea $H_T(I)$ mayor en QB que en QA es congruente con todas las observaciones hechas previamente.

Desde el punto de vista de la seguridad, y dado que la masa fugada obedece una ley de primer orden con la concentración de yodo en fase gas,

$$M_{fugada} \propto [I_2]_g$$

la distribución de especies al comienzo de las fugas es un dato de especial interés. En la Figura 24 se aprecia que mientras que QA el $I_2(g)$ es una forma química del yodo de relativa importancia a los 280 min, en QB es minoritaria. Este hecho y la evolución decreciente del flujo de fugas (ϕ_4) son la base de que la masa de yodo que escapa en QA sea mucho mayor que en QB.

6.2. Evaluación Global

Para evaluar conjuntamente el comportamiento de aerosoles y la conducta química se han sumado los resultados de ambos estudios a efectos de concentración de yodo en la atmósfera del recinto (Fig. 25).

Las curvas correspondientes al yodo suspendido como partículas y a la consideración global (partículas + yodo volátil) en caso de pH básico, prácticamente coinciden. Ello indica que en condiciones básicas fuertes los procesos químicos que ocurren en el sumidero favorecen la formación de especies iónicas (I^- , IO_3^-) de volatilidad nula.

Al contrario, cuando se comparan las mismas curvas en caso de pH ácido, se aprecia una divergencia creciente con el tiempo desde el final de la inyección de CsI . Esta diferencia se acentúa durante el venteo, ya que el flujo de transferencia entre el sumidero y la atmósfera restablece el equilibrio de partición [7], y como en este caso la $[I_2]_{ac}$ tiene una magnitud sustancial, la masa de I_2 que pasa a la fase gas contrarresta la influencia de las fugas. Se puede afirmar, por tanto, que en condiciones ácidas la química de la fase líquida concede mayor estabilidad a las formas moleculares (I_2), de alta volatilidad, que en el caso anterior.

Estas conductas distintas se traducen en un aumento de la masa fugada a pH ácido respecto a la calculada sin consideraciones químicas, y una inapreciable repercusión a pH básico (Fig. 26).

7. CONCLUSIONES

Fruto de las observaciones y discusiones llevadas a cabo en los anteriores capítulos, se pueden establecer las siguientes conclusiones:

- La metodología de cálculo utilizada, basada en el acoplamiento de los códigos CONTEMP4/MOD5, NAUA/MOD5 y IODE, es apropiada para el análisis global de la fenomenología que tiene lugar en la contención en una situación accidental, permitiendo ponderar la contribución química en la evaluación del término fuente a la atmósfera.
- En el marco del escenario postulado y bajo las hipótesis adoptadas, se ha encontrado que la contribución de los factores químicos a la masa fugada podría alcanzar valores en torno al 25% en las condiciones más desfavorables.
- A pH básico, el sumidero de la contención retiene la casi totalidad del yodo que se incorpora a él, transformándose una fracción mínima del inventario en fase líquida en especies volátiles como el yodo molecular.
- A pH ácido, la eficacia del sumidero como dispositivo de retención de yodo se hace menor, debido a la estabilidad que tales condiciones otorgan a las especies volátiles. Esta observación está de acuerdo con la evidencia experimental del crecimiento del Coeficiente de Partición del yodo con el pH.
- La mayor parte de la componente gaseosa del término fuente tiene su origen en la intensa reactividad de algunos radionucleidos, y en particular el yodo, en el sumidero del recinto. Una reproducción adecuada de esta fracción requiere tener en cuenta los aspectos químicos asociados a la conducta de ciertos elementos.

Estas afirmaciones tienen una implicación directa desde el punto de vista de la seguridad, tanto en la reducción de la cantidad de material susceptible de ser liberado en caso de escape, como en la adecuada atenuación del impacto radiológico que ésta podría causar. Por un lado, la circunstancia química a imponer dentro del recinto corresponde a condiciones básicas (en coherencia con la filosofía de actuación de los sistemas de aspersión en las contenciones de reactores de agua a presión). Por otro lado, el sistema de filtración a interpo-

ner entre el recinto y el medio ambiente en caso de venteo controlado para evitar sobrepresiones ha de ser capaz de retener tanto la fracción condensada (aerosoles) como la gaseosa del término fuente; para ello se han de elegir técnicas cuya eficacia sea independiente del estado físico del material a filtrar, o cadenas de varias estaciones de efectos complementarios.

En resumen, el presente estudio ha puesto de manifiesto que, en caso de accidente grave, tanto el inventario radiactivo en la atmósfera de la contención como su naturaleza están estrechamente ligados a las características físico-químicas del recinto. Una estimación correcta del término fuente a la atmósfera en tal situación exige considerar la química del sistema como un factor indispensable.

REFERENCIAS

- (1) HERRANZ, L.E., RODRIGUEZ, J.J., LOPEZ, I., MARTINEZ, A.; "Análisis Global del Comportamiento del Yodo en Situaciones Accidentales" (Versión 1). ITN/TS-41/SP-90 (1990).
- (2) RITZMAN, R.L.; "Summary of International R & D Work on Behavior in Containment During Reactor Accidents". ACE-TR-B9. (1990).
- (3) RAHN, F.J.; "Summary of the LWR Aerosol Containment Experiments (LACE) Program". LACE TR-012. (1988).
- (4) HERRANZ, L.E.; "Experiencia Adquirida por el Grupo de Apoyo Analítico del CIEMAT en el Análisis del Comportamiento de los Aerosoles en Contención durante Accidentes Severos". LACE-ESPAÑA, VJ-89-003. (1989).
- (5) BELL, J.T., LIETZKE, M.H., PALMER, D.A.; "Predicted Rates of Formation of Iodine Hydrolysis Species at pH Levels, Concentrations, and Temperatures Anticipated in LWR Accidents". NUREG/CR-2900. (1982).
- (6) POSTMA, A.K., ZAVADOSKI, R.W.; "Review of Organic Iodine Formation under Accident Conditions in Water Cooled Reactors". WASH-1233. (1972).
- (7) LIN, C.C.; "CONTEMPT4/MOD5: An Improvement to CONTEMPT4/MOD4 Multicompartiment Containment System Analysis Program for Ice Condenser Analysis". NUREG/CR-4001. (1984).
- (8) McCORMACK, J.D., HILLIARD, R.K., SALGADO, J.M.; "Final Report of Experimental Results of LACE Test LA-4 - Late Containment Failure with Overlapping Aerosol Injection Periods". LACE TR-025. (1977).
- (9) BUNZ, H., KOYRO, M., SHOCK, W.; "NAUA/MOD5 und NAUA/MOD5 5-M Zwei Computerprogramme zur Berechnung des Aerosolverhaltens im Containment Systems eines LWR nach einem Kernschmelzunfall". KfK 4278. (1987).
- (10) DUNBAR, I.H.; "Support to Aerosol Analysis for the CEC Benchmark on LACE LA-4". Contract nº 3037-86-09 ED ISP GB. (1988).
- (11) BUNZ, H., SCHOCK, W.; "Measurements of the Condensation of Steam on Different Aerosols under LWR Core Melt Down Conditions". NUREG/CR-1724. (1980).
- (12) GAUVAIN, J., PEPIN, P., FILIPPI, M.; "Transferts d'Iode dans L'enceinte d'un Reacteur lors d'un Accident Grave". Rapport Technique SASC nº 89/66. (1989).

TABLA 1
Propiedades de los materiales de la vasija

Material	Conductividad (W.m⁻¹.K⁻¹)	Capacidad Calorífica (J.m⁻³.K⁻¹)
Pintura fenólica	3.00E-1	1.60E+6
Acero al carbono	5.12E+1	3.85E+6
Aislante	4.67E-2	7.23E+4

TABLA 2
Características de la vasija

Presión de diseño	517. KPa a 433.15 K
Fuga Nominal.....	2%/d a 69 KPa sobrepresión
Diámetro interno.....	7.62 m
Altura	20.3 m
Area de transferencia	741 m ²
Volumen total	852 m ³

TABLA 3
Condiciones termohidráulicas iniciales
(t = -50 min, t = 0 min).

Tiempo (min)	T_g (K)	T_w (K)	T_l (K)	P (KPa)	M_l (Kg)	X_{H₂O}
-50.	315.66	315.05	315.66	107.00	950.	0.071
0.	371.09	329.33	366.82	212.52	1760.	0.443

TABLA 4
Resultados termohidráulicos más representativos (CONTEMPT4)

Variables	Tiempo (min)			
	0.	80.	280.	450.
T _g (K)	371.09	374.15	375.73	364.26
T _l (K)	329.33	339.06	351.77	346.56
T _w (K)	366.82	373.42	375.40	360.88
P _T (KPa)	212.52	271.77	285.84	105.60
P _{H₂O} (KPa)	94.11	105.02	111.02	61.53
P _{nc} (KPa)	118.41	166.75	174.82	44.07
HR (%)	99.99	99.99	99.99	83.98
WCR (Kg.s ⁻¹)	0.22	0.02	0.01	0.00
LR (Kg.s ⁻¹)	0.00	0.00	0.45	0.00

TABLA 5

Variables más significativas del comportamiento de aerosoles (NAUA)

Tiempo (min)	Concentración (g.m ⁻³)	Sedimentación		Masa fugada (g)
		Masa (g)	Tasa (g.s ⁻¹)	
50.	2.745E + 0	4.576E + 2	2.37E-1	0.
280.	4.521E-1	2.237E + 3	7.32E-2	0.
450.	3.961E-2	2.363E + 3	1.82E-3	2.209E + 2

TABLA 6

Concentraciones de las especies de yodo en el sumidero y en la atmósfera a pH = 5 (IODE)

Tiempo (min)	FASE LIQUIDA (g.m ⁻³)				FASE GAS (g.m ⁻³)
	I ₂	HOI	I ⁻	IO ₃ ⁻	I ₂
50.	6.152E + 0	3.086E-3	9.606E + 1	4.968E-4	2.104E-3
280.	5.316E + 1	2.121E-2	2.811E + 2	3.915E-1	3.508E-2
450.	3.175E + 1	1.809E-2	1.504E + 2	8.529E-1	2.497E-2

TABLA 7

Concentraciones de las especies de yodo en el sumidero y en la atmósfera a pH = 9 (IODE)

Tiempo (min)	FASE LIQUIDA (g.m ⁻³)				FASE GAS (g.m ⁻³)
	I ₂	HOI	I ⁻	IO ₃ ⁻	I ₂
50.	1.230E-2	5.685E-2	1.042E + 2	1.759E-1	4.310E-6
280.	3.145E-2	6.208E-2	5.682E + 2	9.721E + 0	3.103E-5
450.	5.756E-2	8.250E-2	5.975E + 2	1.951E + 1	4.173E-5

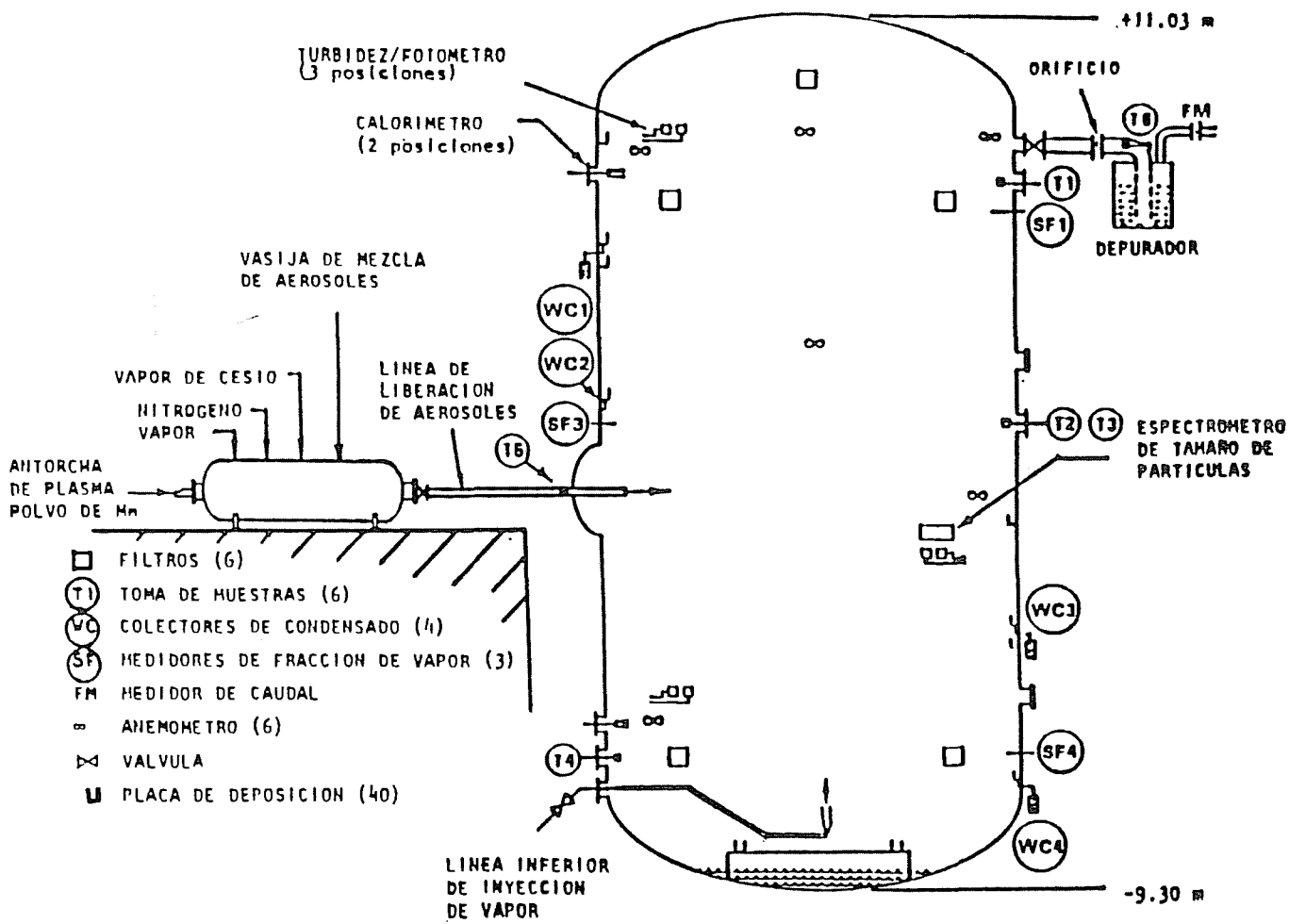


Fig. 1
Esquema de la vasija CSTF para el experimento LA-4.

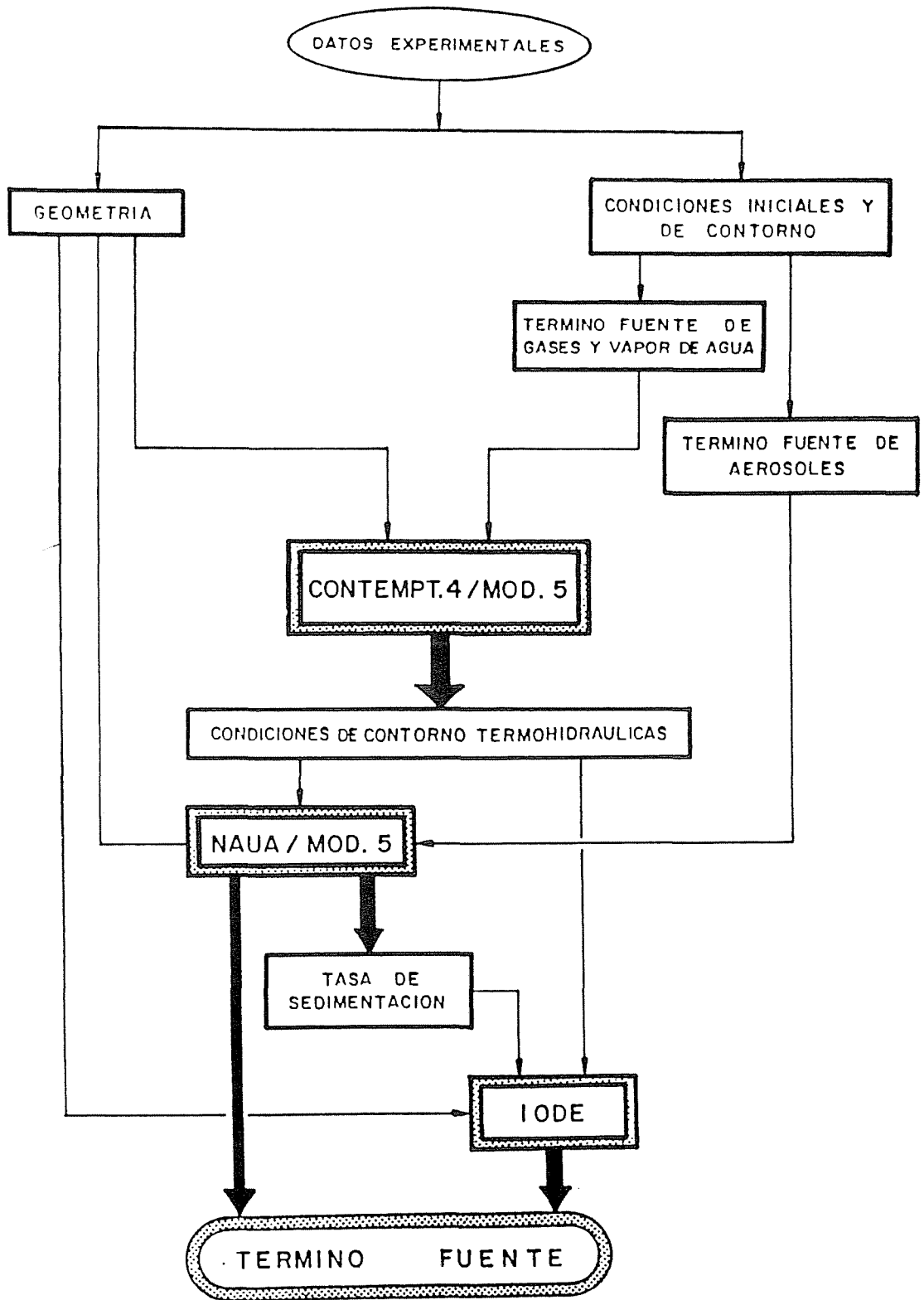


Fig. 2
Diagrama de acoplamiento de códigos.

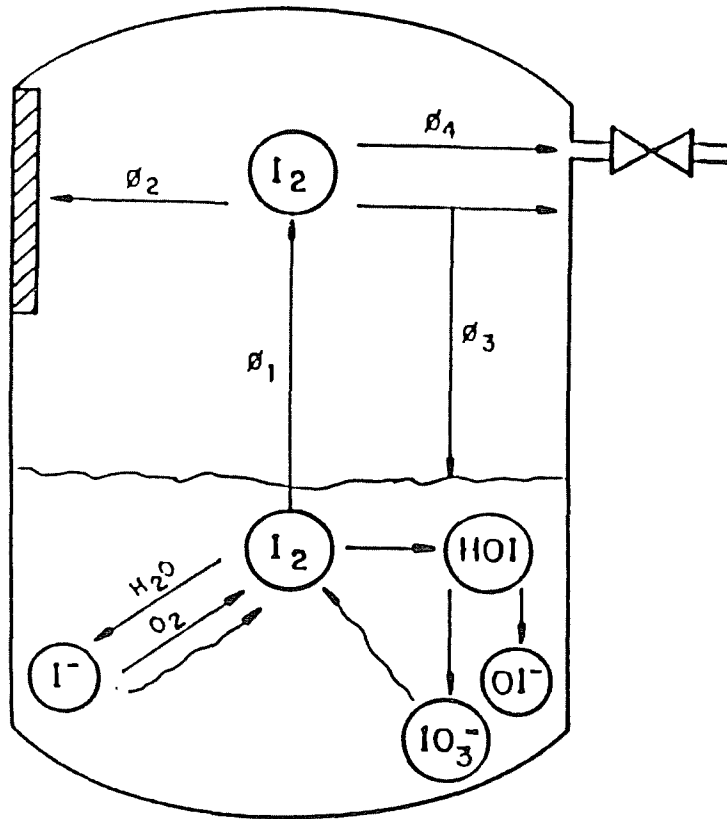


Fig. 3
Modelo químico del escenario.

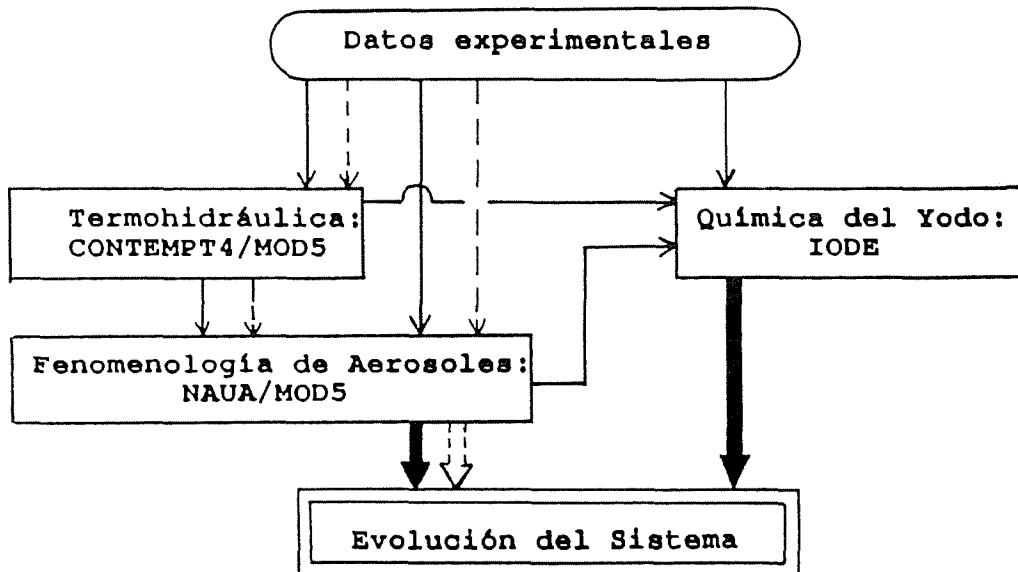


Fig. 4
Enfoques del análisis.
 - - - - sin química (NQ)
 ——— con química (Q)

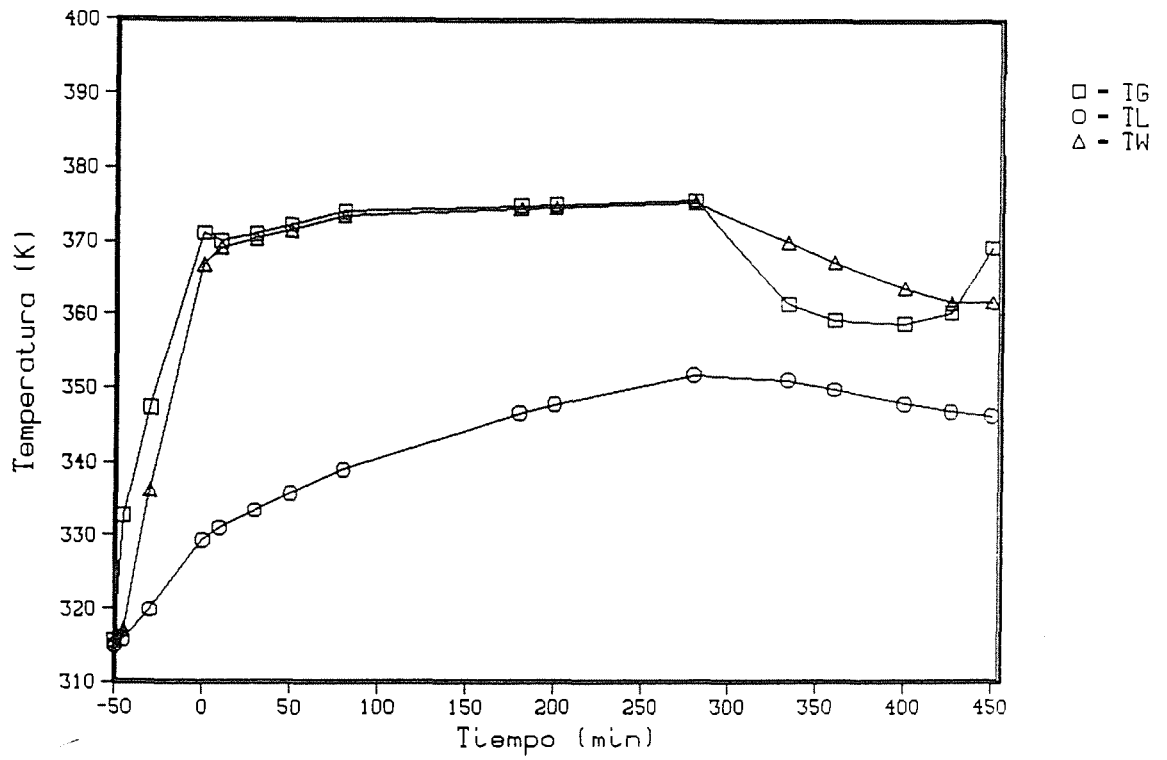


Fig. 5
 Temperatura en la atmósfera, en el sumidero y en la pared vs tiempo (CONTEMP4).

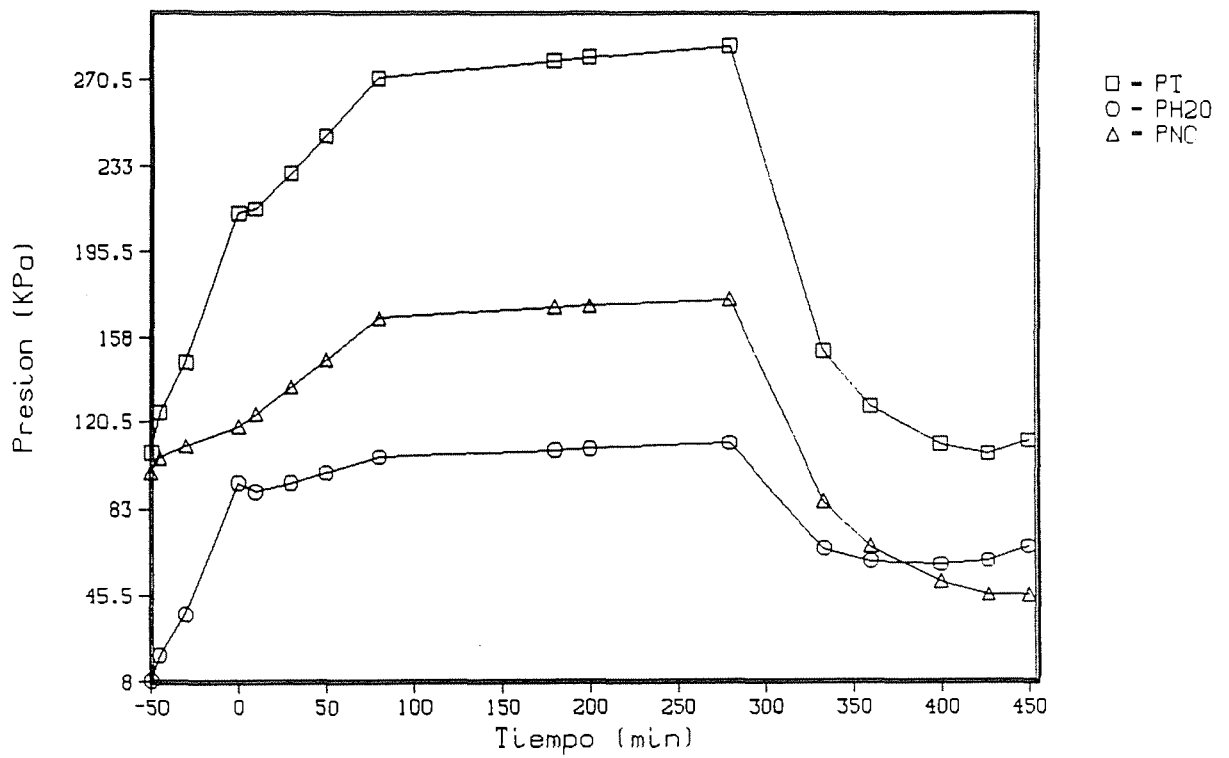


Fig. 6
 Presión total, de vapor e incondensables vs tiempo (CONTEMP4).

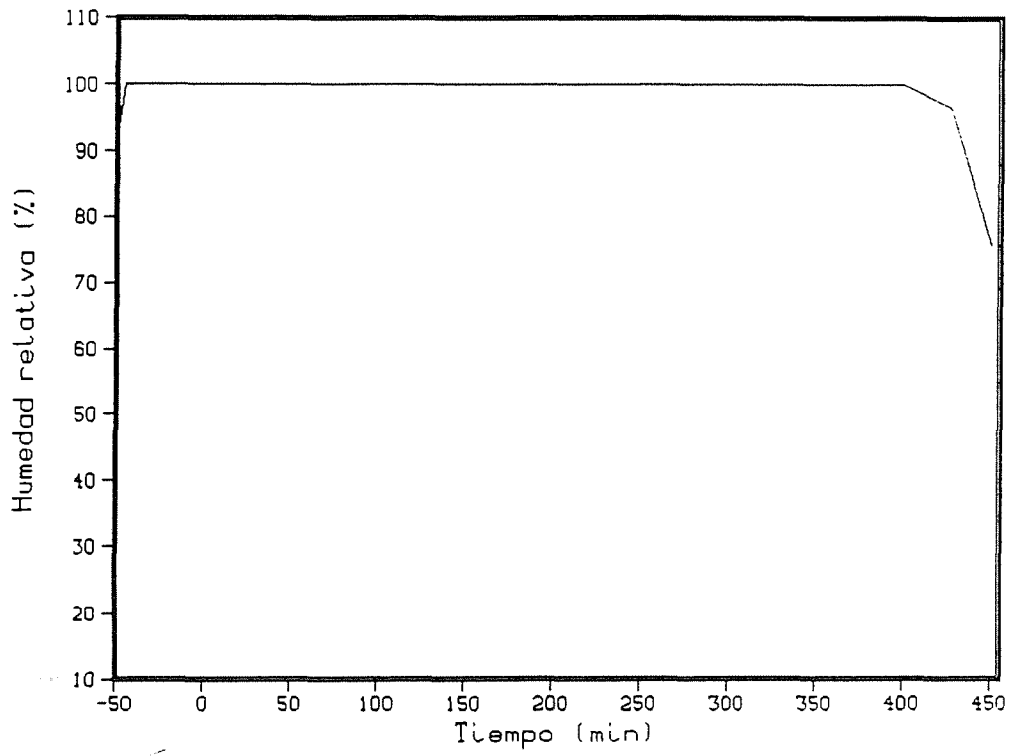


Fig. 7
Humedad relativa vs tiempo (CONTEMPT4).

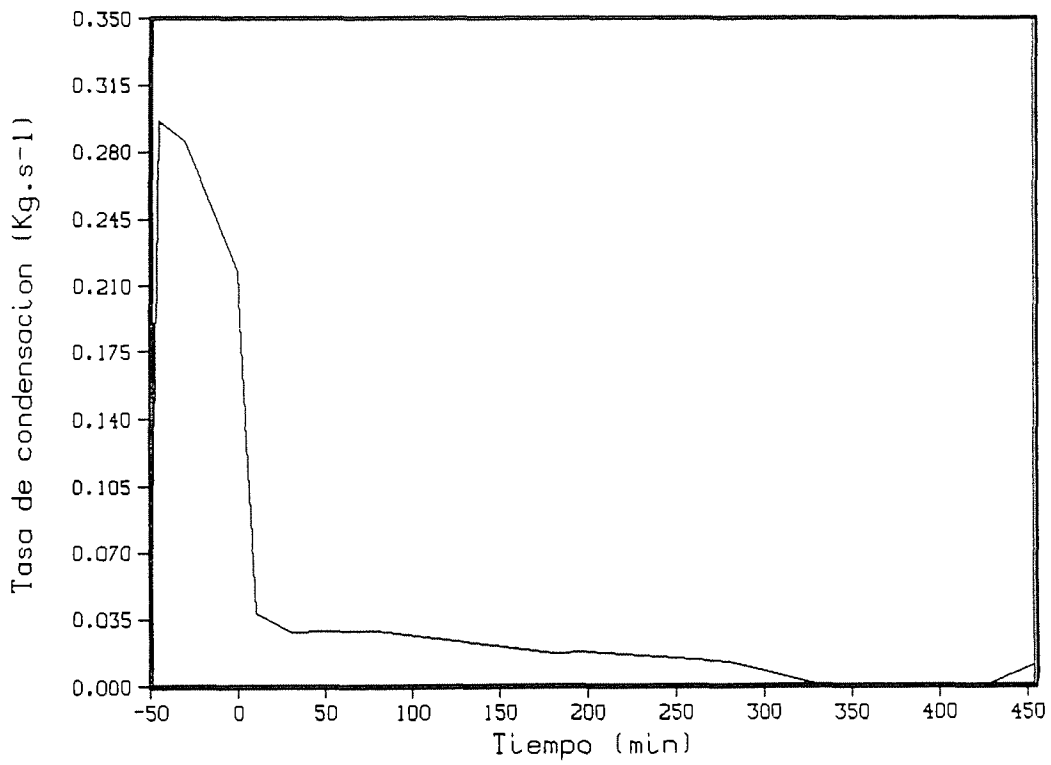


Fig. 8
Tasa de condensación en las paredes vs tiempo (CONTEMPT4).

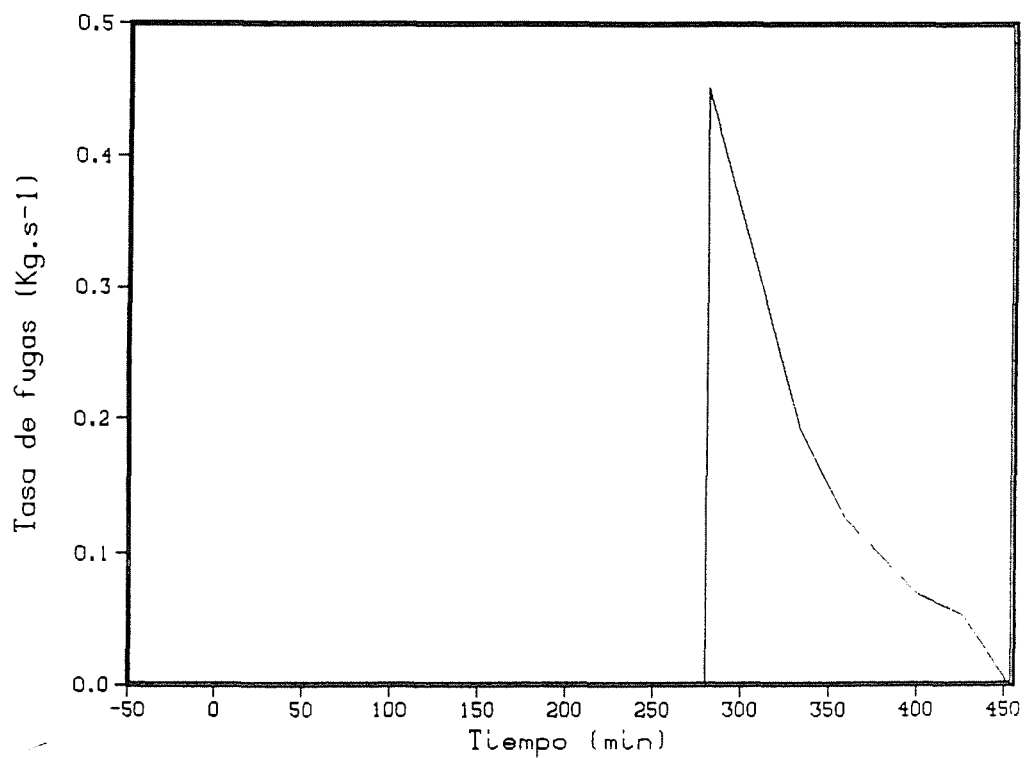


Fig. 9
Tasa de fugas vs tiempo (CONTEMPT4).

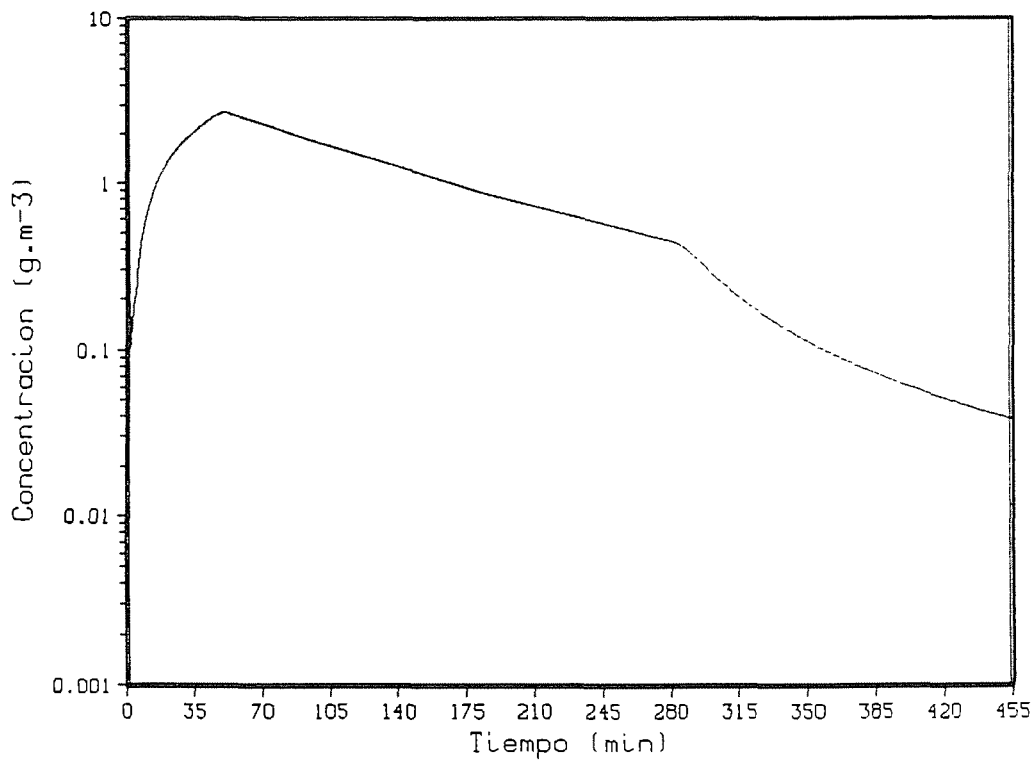


Fig. 10
Concentración de yodo en forma de CsI (aerosol) vs tiempo (NAUA).

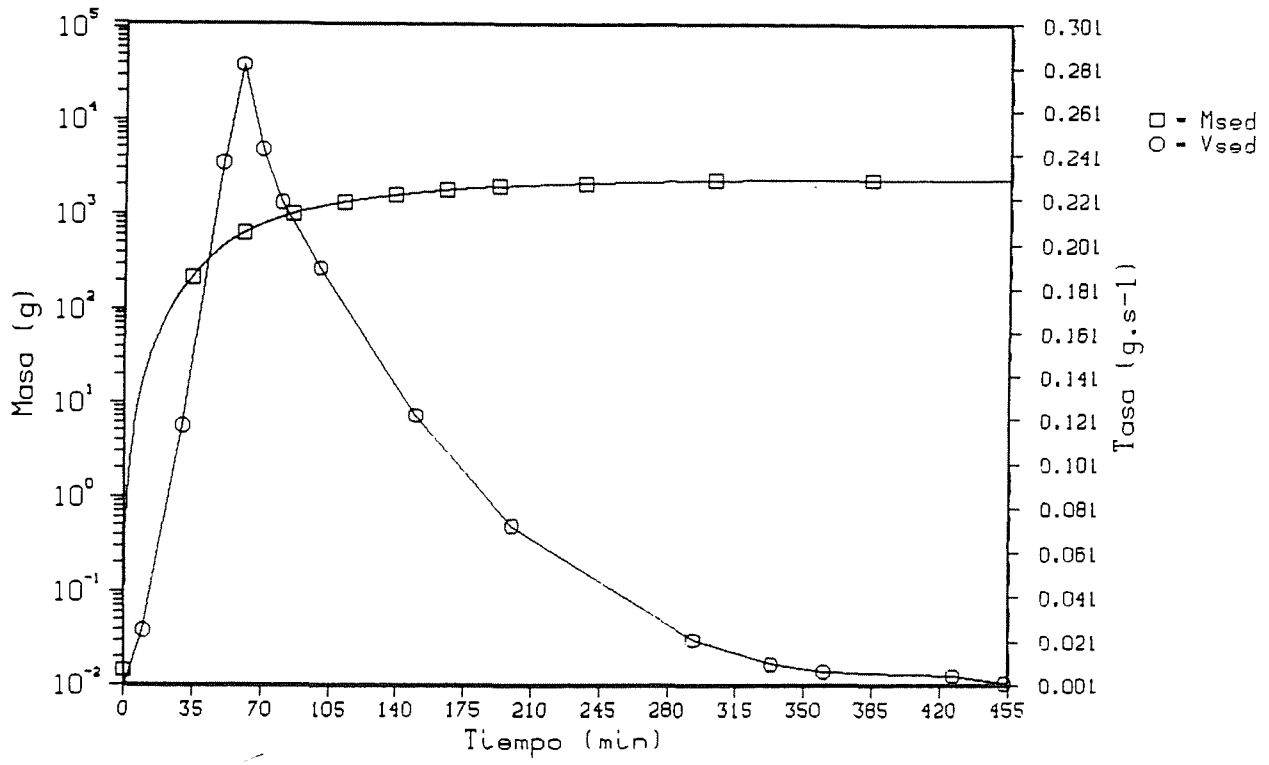


Fig. 11
Masa y tasa de sedimentación de CsI vs tiempo (NAUA).

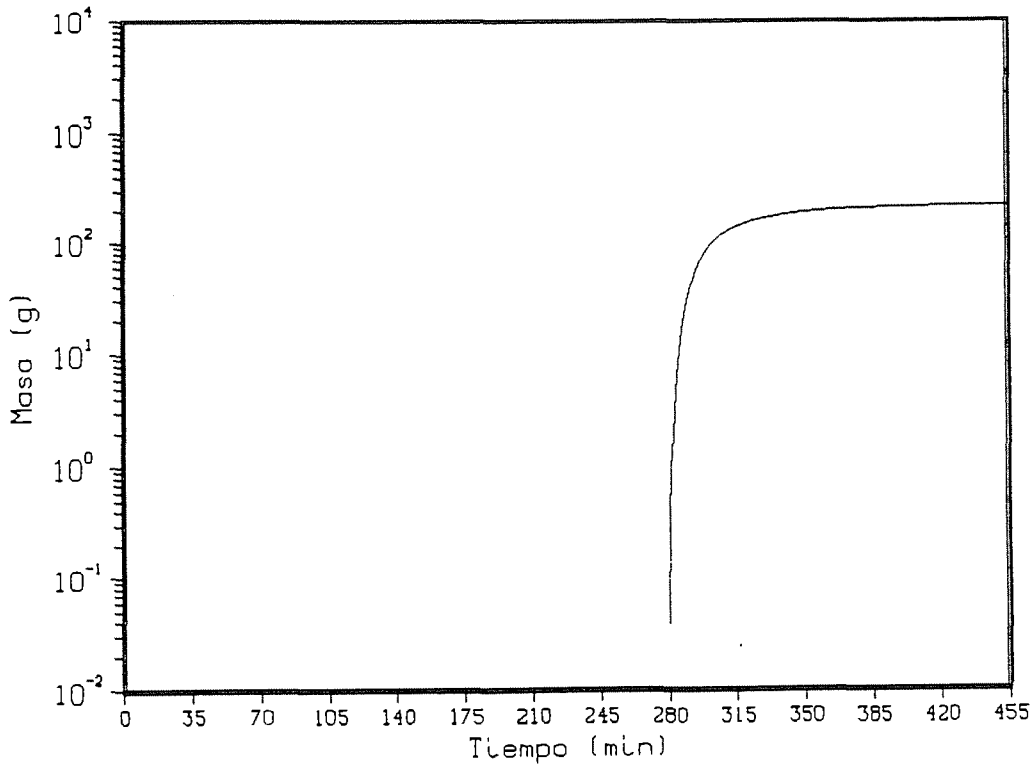


Fig. 12
Masa fugada de CsI vs tiempo (NAUA).

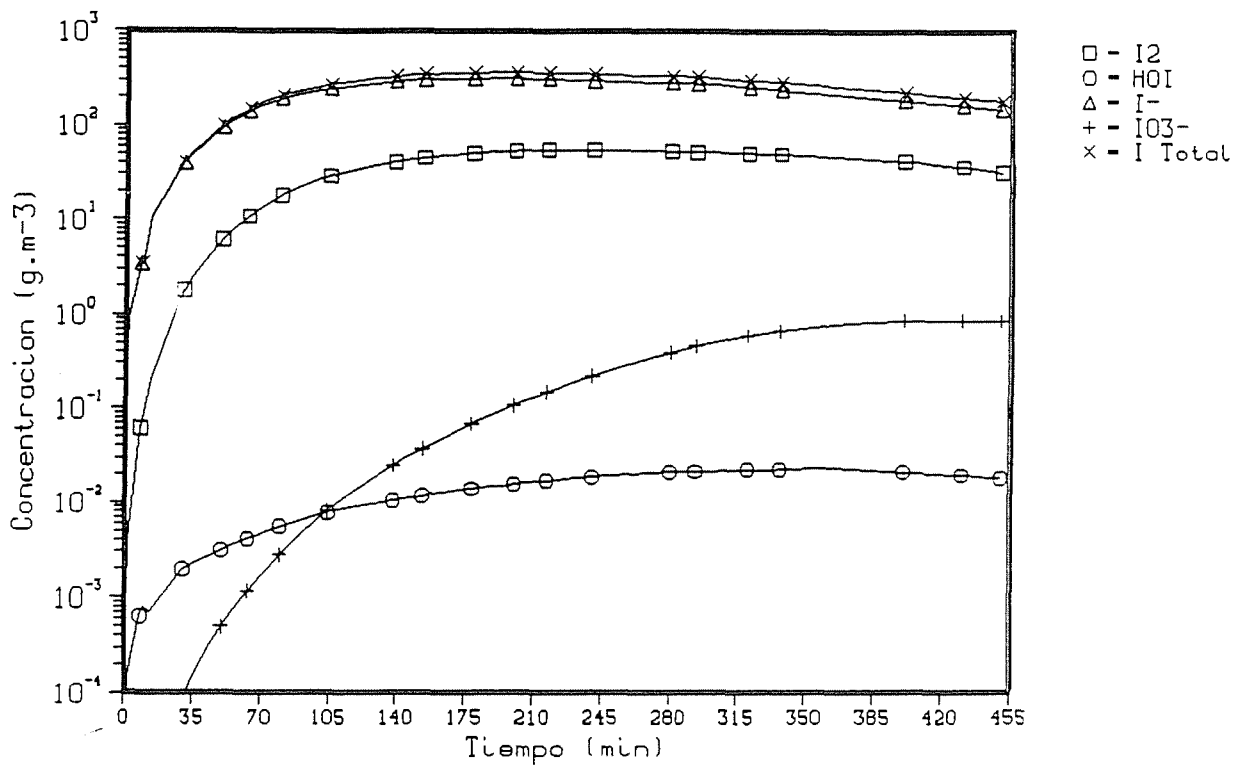


Fig. 13
Distribución de especies de yodo en el sumidero vs tiempo, pH-5 (IODE).

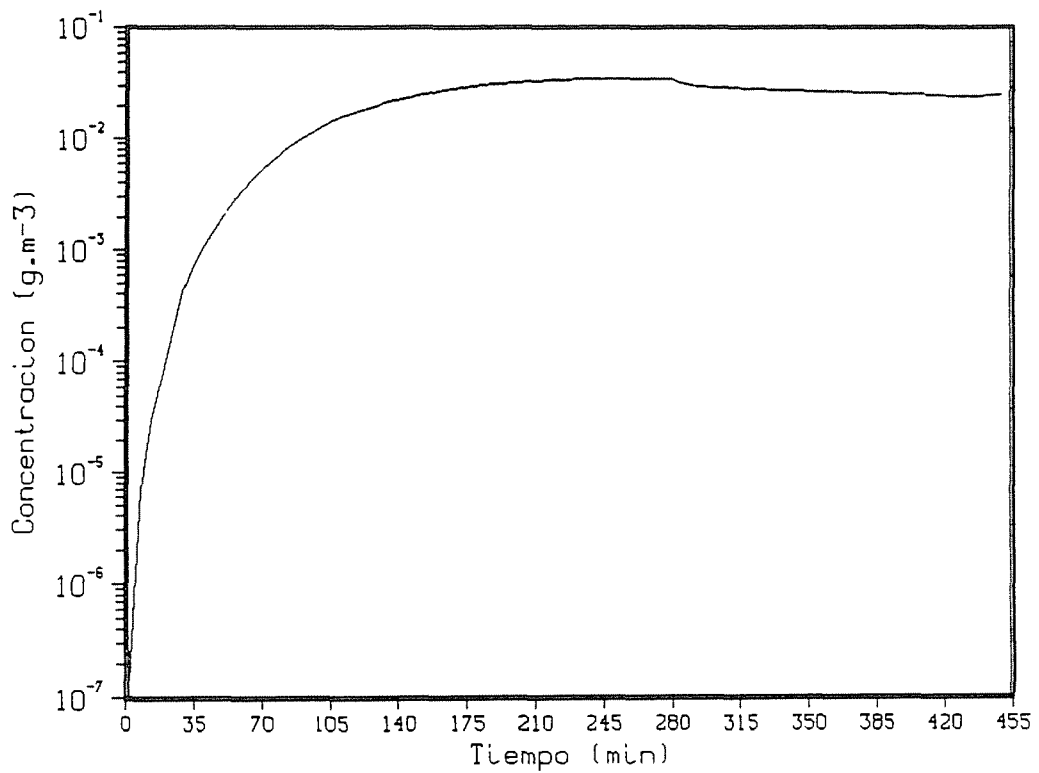


Fig. 14
Concentración de yodo en la atmósfera vs tiempo, pH-5 (IODE).

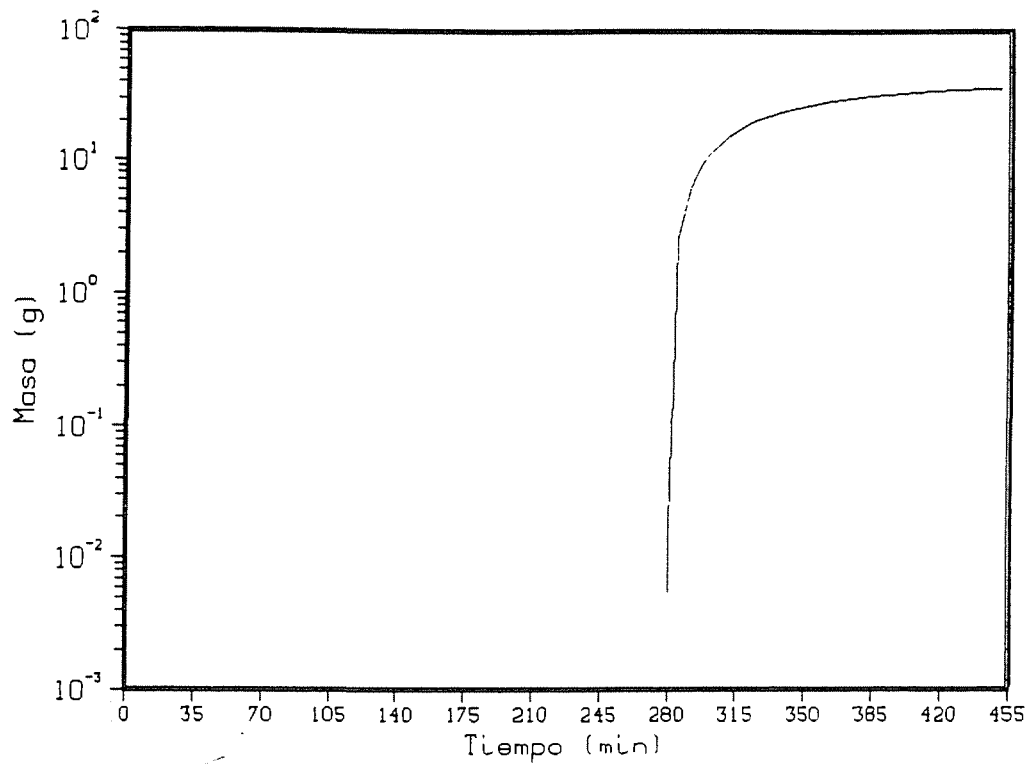


Fig. 15
Masa fugada de I₂ vs tiempo, pH-5 (IOE).

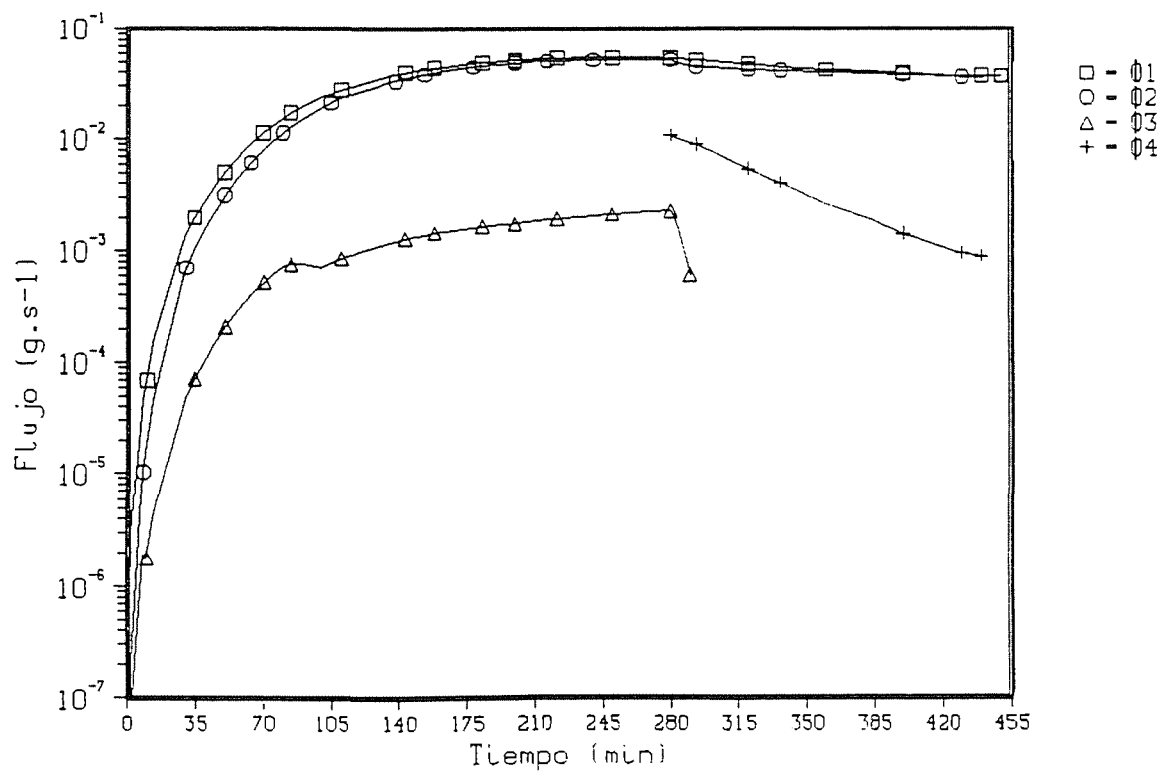


Fig. 16
Flujos de yodo vs tiempo, pH-5 (IOE).

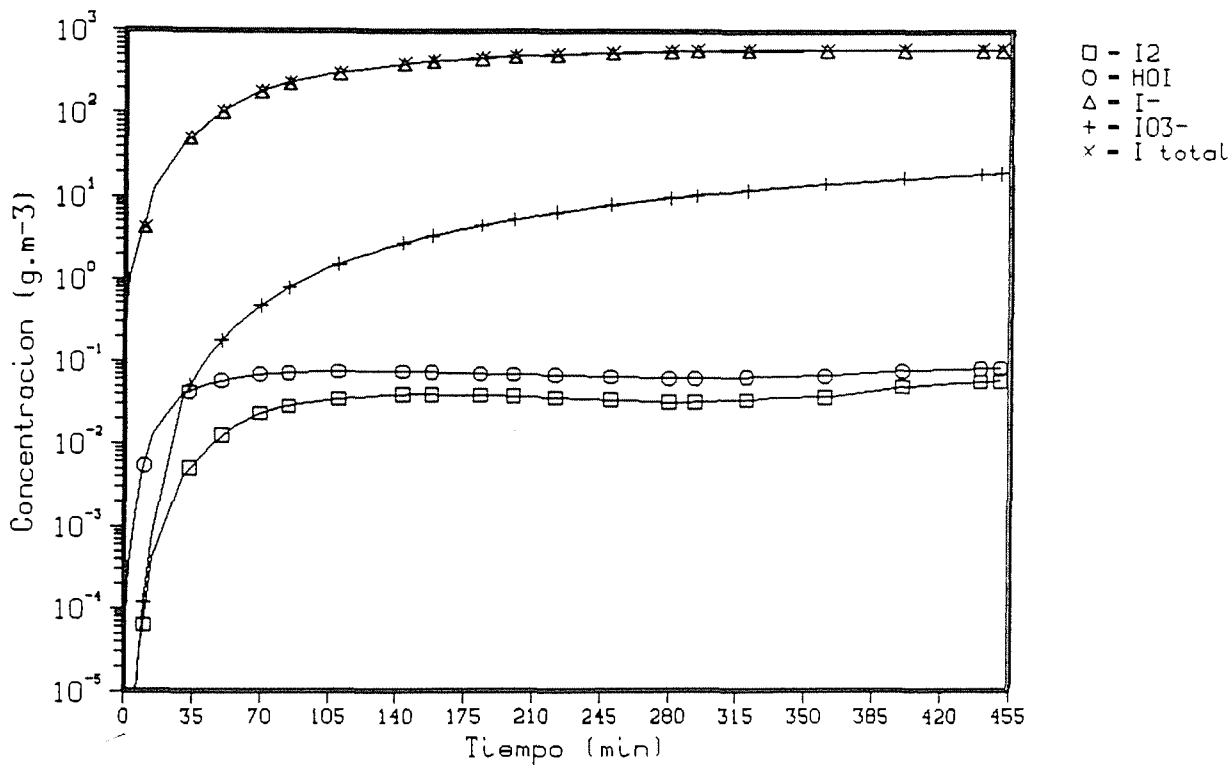


Fig. 17
Distribución de especies de yodo en el sumidero vs tiempo, pH-9 (IOE).

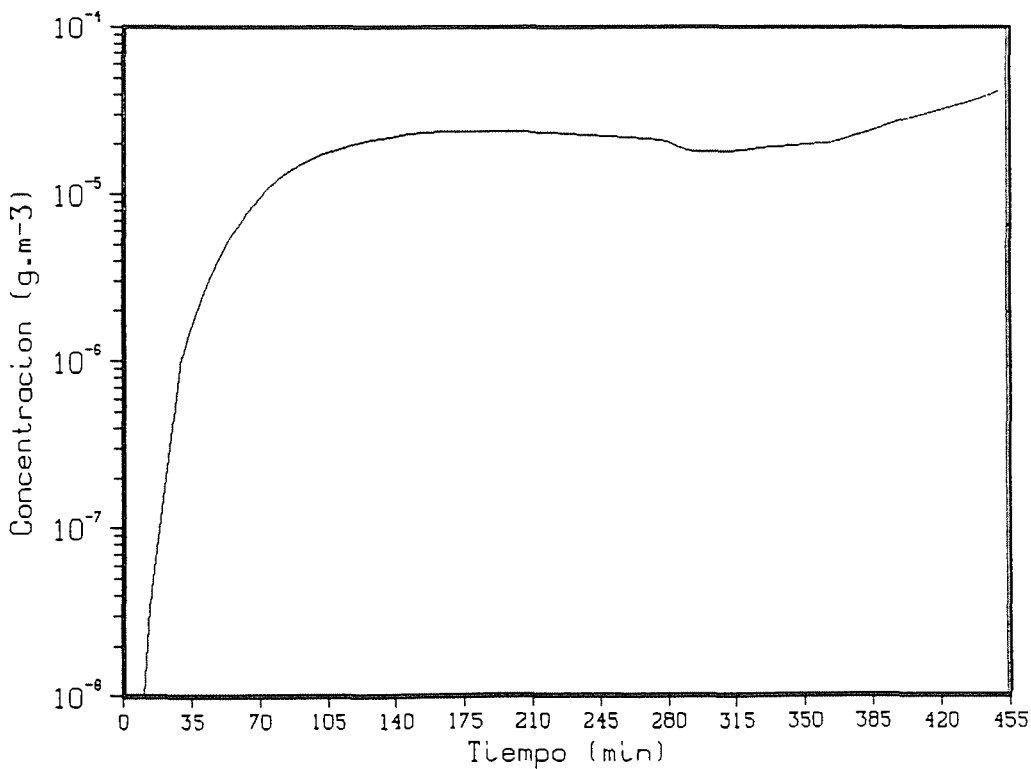


Fig. 18
Concentración de yodo en la atmósfera vs tiempo, pH-9 (IOE).

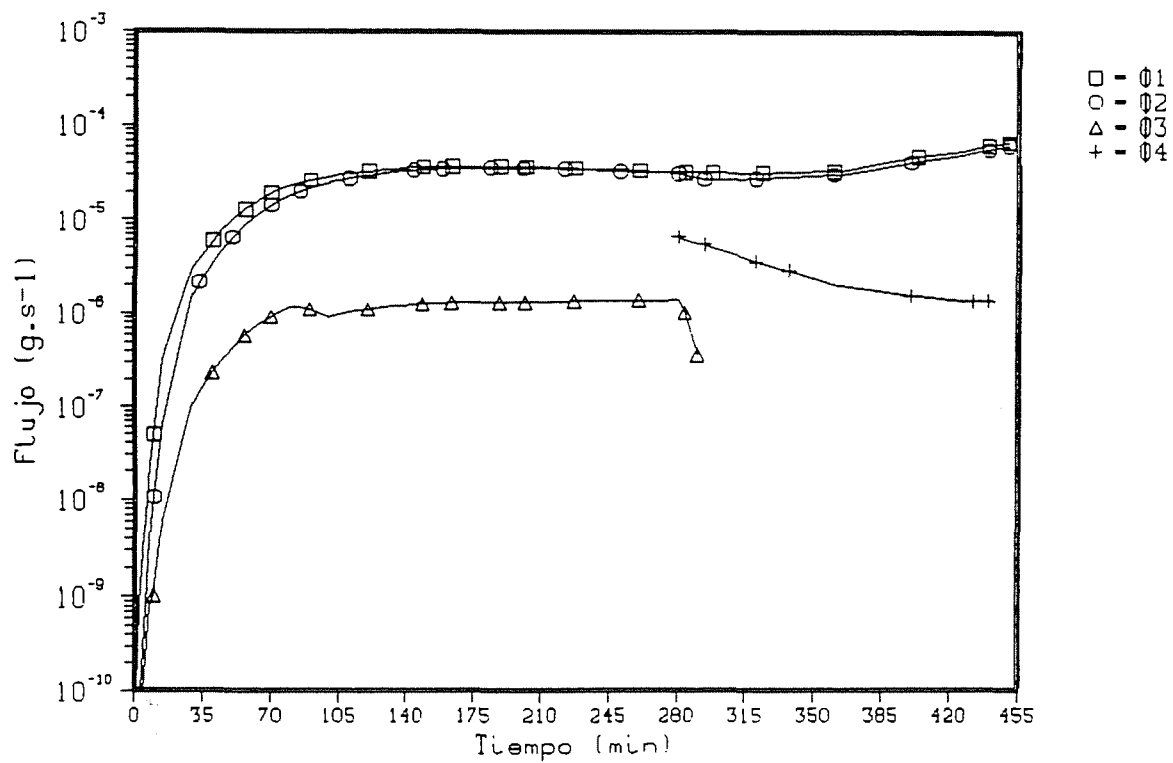


Fig. 19
Flujos de yodo vs tiempo, pH-9 (IODE).

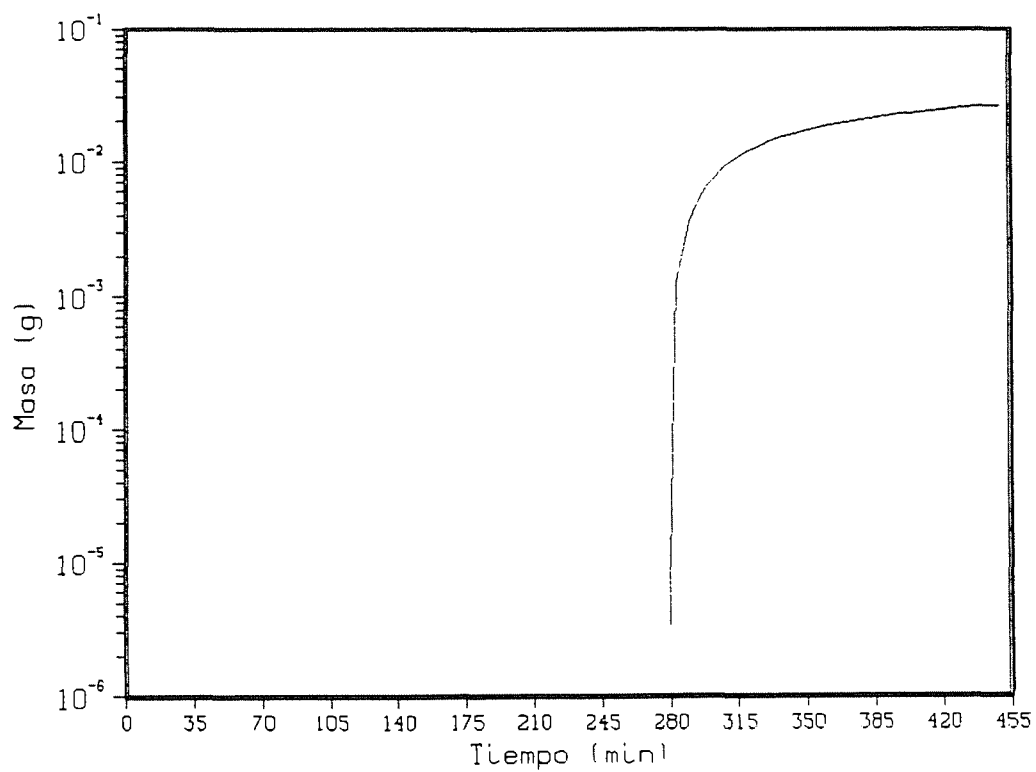


Fig. 20
Masa fugada de I_2 vs tiempo, pH-9 (IODE).

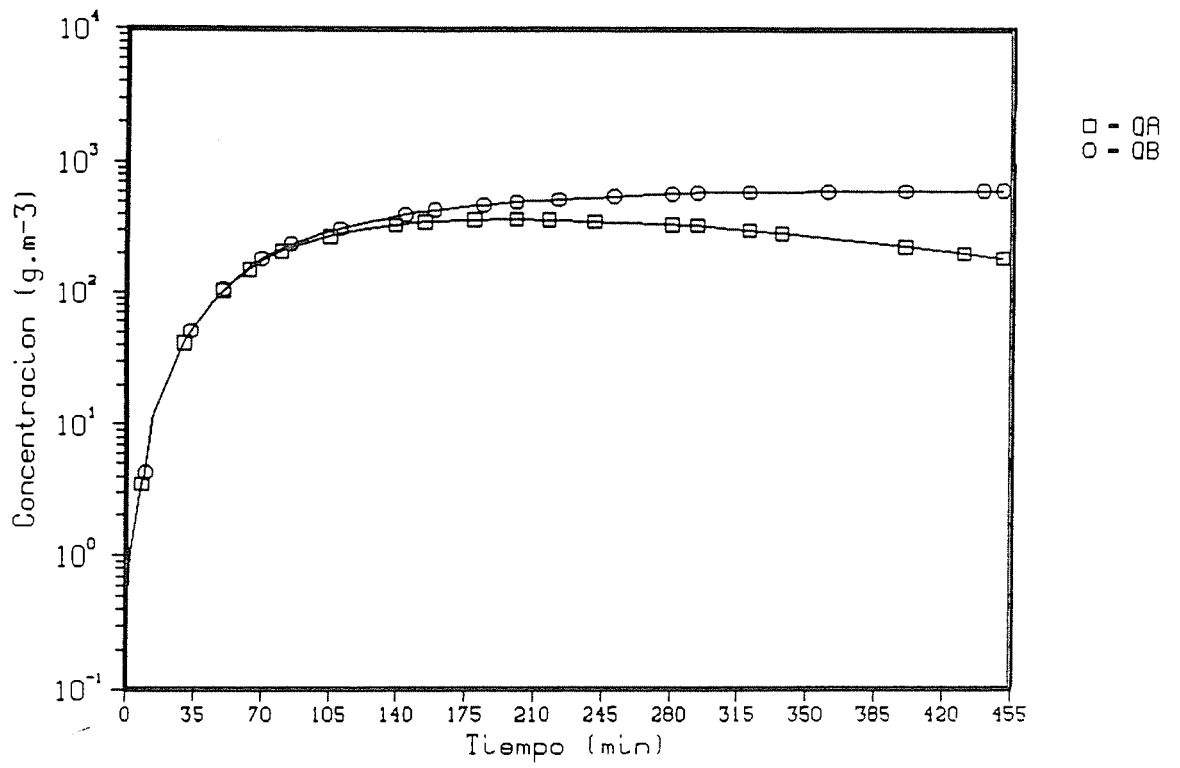


Fig. 21
Concentración de yodo total en el sumidero vs tiempo (IODE).

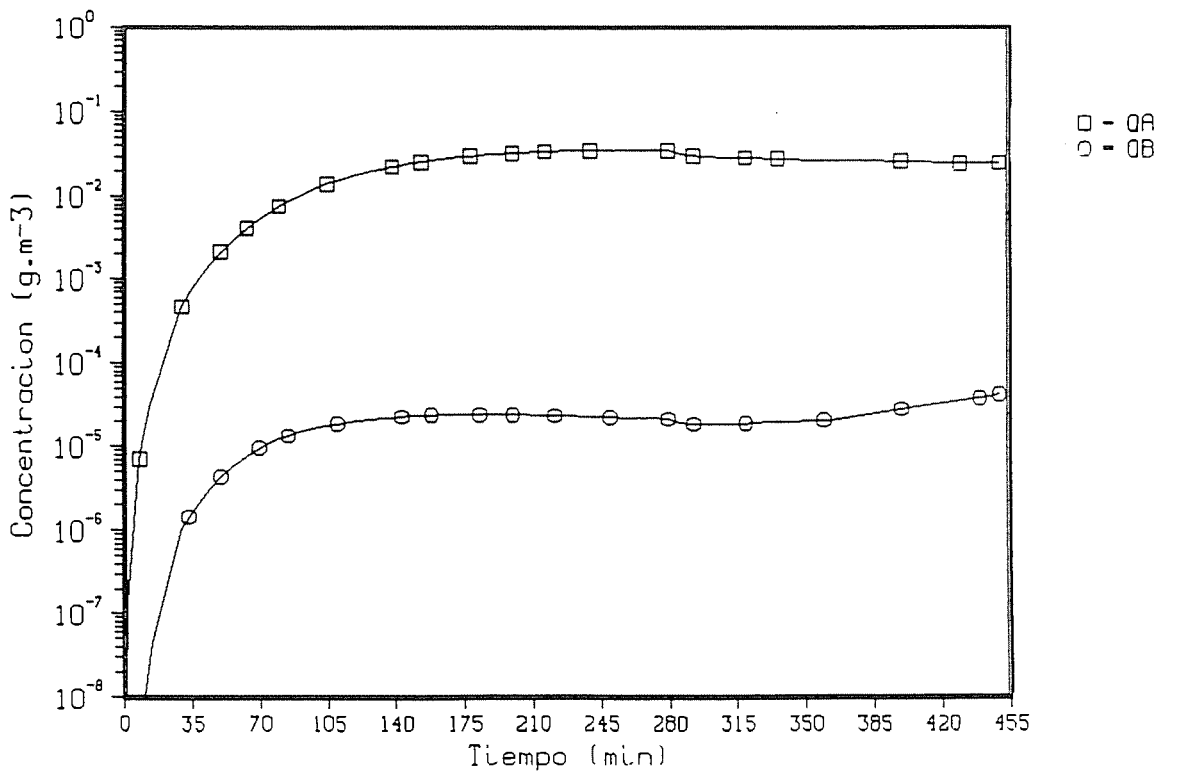


Fig. 22
Concentración de yodo total en la atmósfera vs tiempo (IODE).

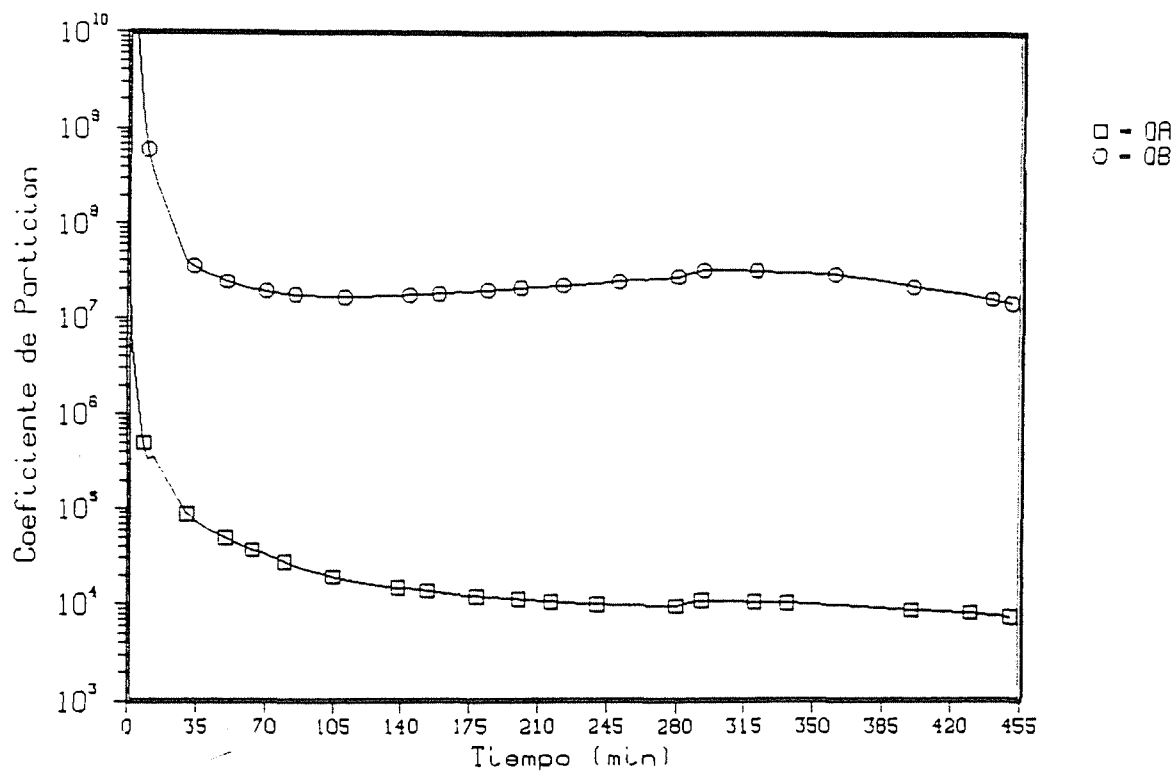


Fig. 23
 Coeficiente de Partición Total del yodo vs tiempo (IODE).

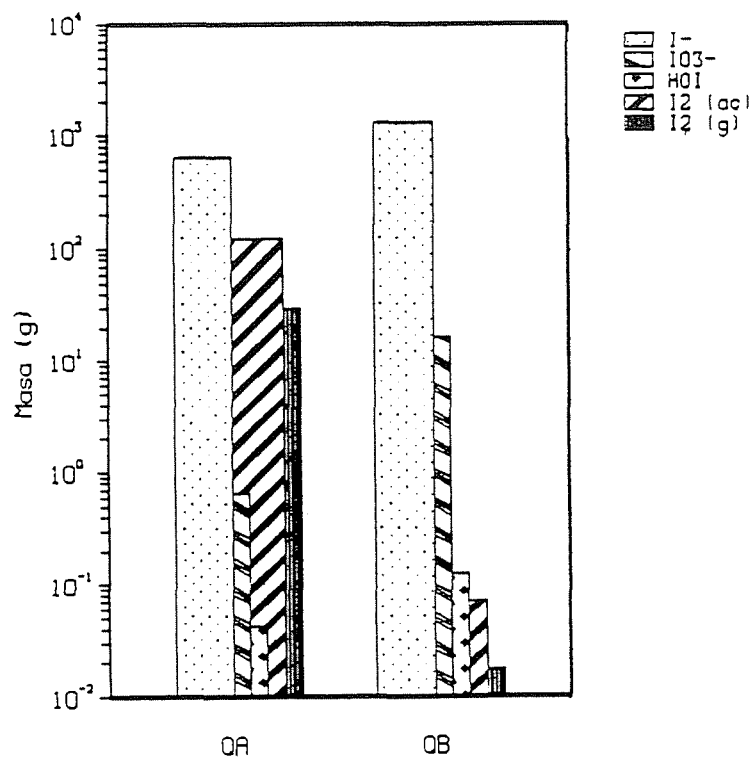


Fig. 24
 Distribución de especies de yodo a t = 280 min (IODE).

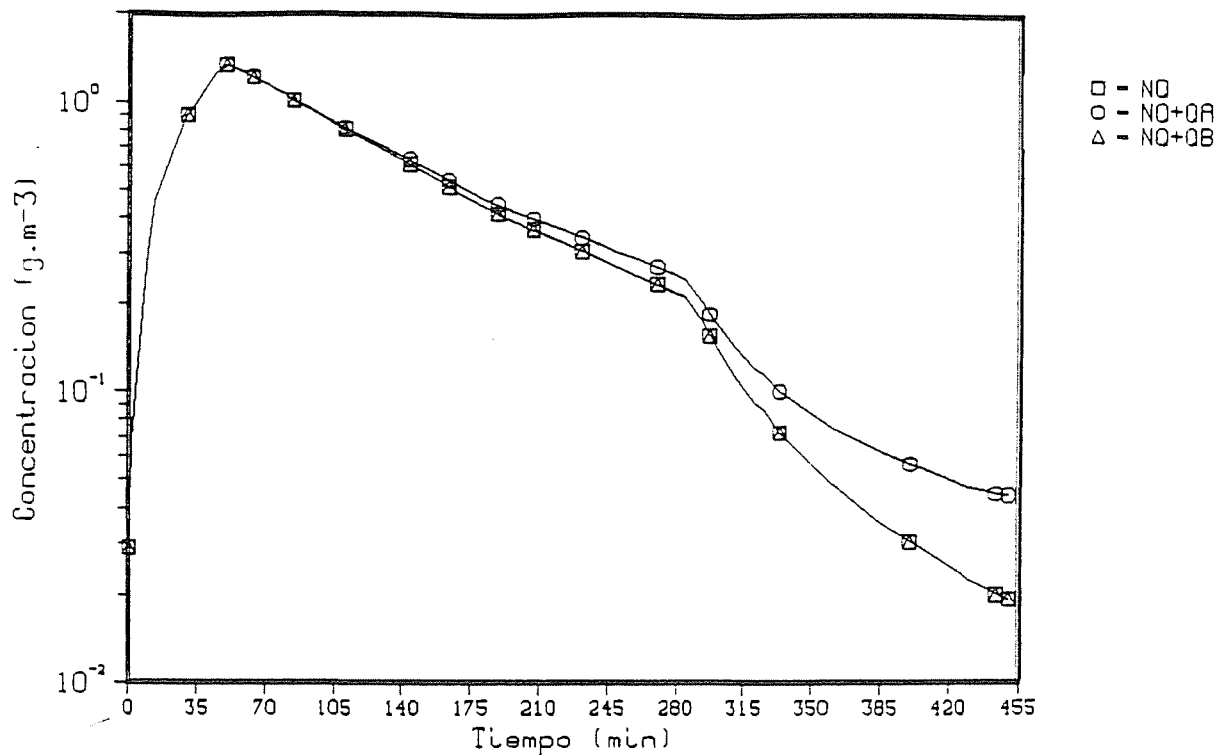


Fig. 25
Concentración total de yodo en la atmósfera vs tiempo.

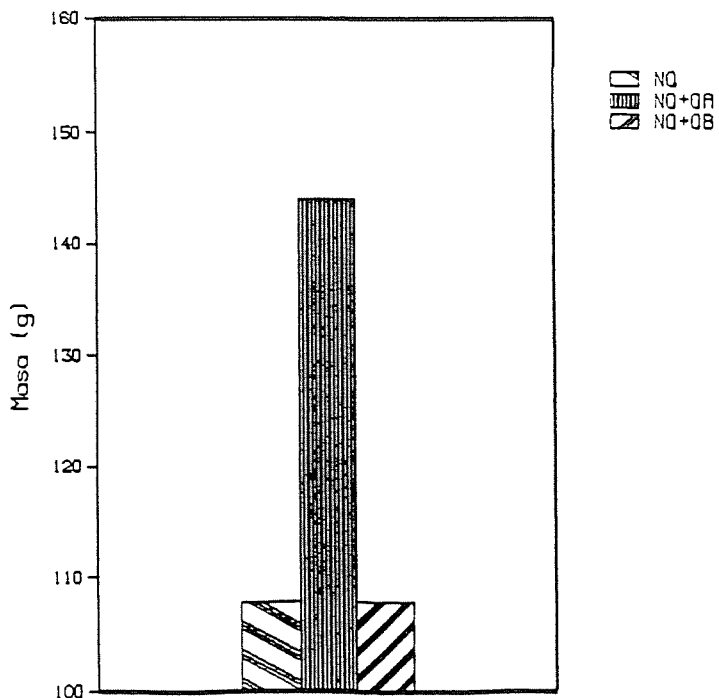


Fig. 26
Masa total de yodo fugada.

CIEMAT 672

Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas
Instituto de Tecnología Nuclear. Madrid.

"INFLUENCIA DE LA QUIMICA DEL YODO EN LA ESTIMACION DEL TERMINO FUENTE"

HERRANZ PUEBLA, L.E.; LOPEZ DIEZ, I.; RODRIGUEZ MAROTO, J.J.;
MARTINEZ LOPEZ-ALCOROCHO. A. (1991) 42 pp. 7 tab. 26 figs. 12 refs.

El fin último de cualquier análisis de la fenomenología de contención en caso de accidente grave es doble: conocer la respuesta del recinto a las diversas cargas a que puede estar sometido, y predecir de forma precisa el comportamiento de los productos de fisión y los aerosoles en su interior.

En este trabajo se presentan los principales resultados obtenidos en el estudio de un escenario accidental hipotético basado en el experimento LA-4 del proyecto LACE. Para ello se han acoplado los siguientes códigos: CONTEMP/MOD 5 (termohidráulica), NAUA/MOD5 (física de aerosoles) y IODE (química de yodo).

Se ha constatado la imposibilidad de estimar correctamente el término fuente a la atmósfera si no se consideran los aspectos químicos asociados a algunos productos de fisión, como el yodo; y, en concreto, la notable influencia de variables como el pH para la actuación del sumidero como un dispositivo de retención.

CLASIFICACION DOE Y DESCRIPTORES: 220900; 400600. Source Terms. Fission Products. Aerosols. C Code. N Code. I Code. Iodine. pH Value. Reactor Accident. Computerized Simulation

CIEMAT 672

Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas
Instituto de Tecnología Nuclear. Madrid.

"INFLUENCIA DE LA QUIMICA DEL YODO EN LA ESTIMACION DEL TERMINO FUENTE"

HERRANZ PUEBLA, L.E.; LOPEZ DIEZ, I.; RODRIGUEZ MAROTO, J.J.;
MARTINEZ LOPEZ-ALCOROCHO. A. (1991) 42 pp. 7 tab. 26 figs. 12 refs.

El fin último de cualquier análisis de la fenomenología de contención en caso de accidente grave es doble: conocer la respuesta del recinto a las diversas cargas a que puede estar sometido, y predecir de forma precisa el comportamiento de los productos de fisión y los aerosoles en su interior.

En este trabajo se presentan los principales resultados obtenidos en el estudio de un escenario accidental hipotético basado en el experimento LA-4 del proyecto LACE. Para ello se han acoplado los siguientes códigos: CONTEMP/MOD 5 (termohidráulica), NAUA/MOD5 (física de aerosoles) y IODE (química de yodo).

Se ha constatado la imposibilidad de estimar correctamente el término fuente a la atmósfera si no se consideran los aspectos químicos asociados a algunos productos de fisión, como el yodo; y, en concreto, la notable influencia de variables como el pH para la actuación del sumidero como un dispositivo de retención.

CLASIFICACION DOE Y DESCRIPTORES: 220900; 400600. Source Terms. Fission Products. Aerosols. C Code. N Code. I Code. Iodine. pH Value. Reactor Accident. Computerized Simulation

CIEMAT 672

Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas
Instituto de Tecnología Nuclear. Madrid.

"INFLUENCIA DE LA QUIMICA DEL YODO EN LA ESTIMACION DEL TERMINO FUENTE"

HERRANZ PUEBLA, L.E.; LOPEZ DIEZ, I.; RODRIGUEZ MAROTO, J.J.;
MARTINEZ LOPEZ-ALCOROCHO. A. (1991) 42 pp. 7 tab. 26 figs. 12 refs.

El fin último de cualquier análisis de la fenomenología de contención en caso de accidente grave es doble: conocer la respuesta del recinto a las diversas cargas a que puede estar sometido, y predecir de forma precisa el comportamiento de los productos de fisión y los aerosoles en su interior.

En este trabajo se presentan los principales resultados obtenidos en el estudio de un escenario accidental hipotético basado en el experimento LA-4 del proyecto LACE. Para ello se han acoplado los siguientes códigos: CONTEMP/MOD 5 (termohidráulica), NAUA/MOD5 (física de aerosoles) y IODE (química de yodo).

Se ha constatado la imposibilidad de estimar correctamente el término fuente a la atmósfera si no se consideran los aspectos químicos asociados a algunos productos de fisión, como el yodo; y, en concreto, la notable influencia de variables como el pH para la actuación del sumidero como un dispositivo de retención.

CLASIFICACION DOE Y DESCRIPTORES: 220900; 400600. Source Terms. Fission Products. Aerosols. C Code. N Code. I Code. Iodine. pH Value. Reactor Accident. Computerized Simulation

CIEMAT 672

Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas
Instituto de Tecnología Nuclear. Madrid.

"INFLUENCIA DE LA QUIMICA DEL YODO EN LA ESTIMACION DEL TERMINO FUENTE"

HERRANZ PUEBLA, L.E.; LOPEZ DIEZ, I.; RODRIGUEZ MAROTO, J.J.;
MARTINEZ LOPEZ-ALCOROCHO. A. (1991) 42 pp. 7 tab. 26 figs. 12 refs.

El fin último de cualquier análisis de la fenomenología de contención en caso de accidente grave es doble: conocer la respuesta del recinto a las diversas cargas a que puede estar sometido, y predecir de forma precisa el comportamiento de los productos de fisión y los aerosoles en su interior.

En este trabajo se presentan los principales resultados obtenidos en el estudio de un escenario accidental hipotético basado en el experimento LA-4 del proyecto LACE. Para ello se han acoplado los siguientes códigos: CONTEMP/MOD 5 (termohidráulica), NAUA/MOD5 (física de aerosoles) y IODE (química de yodo).

Se ha constatado la imposibilidad de estimar correctamente el término fuente a la atmósfera si no se consideran los aspectos químicos asociados a algunos productos de fisión, como el yodo; y, en concreto, la notable influencia de variables como el pH para la actuación del sumidero como un dispositivo de retención.

CLASIFICACION DOE Y DESCRIPTORES: 220900; 400600. Source Terms. Fission Products. Aerosols. C Code. N Code. I Code. Iodine. pH Value. Reactor Accident. Computerized Simulation



CIEMAT 672

Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas.
Instituto de Tecnología Nuclear. Madrid

"INFLUENCE OF IODINE CHEMISTRY ON SOURCE TERM ASSESSMENT"

HERRANZ PUEBLA, L.E.; LOPEZ DIEZ, I.; RODRIGUEZ MAROTO, J.J.;
MARTINEZ LOPEZ-ALCOROCHO. A. (1991) 42 pp. 7 tab. 26 figs. 12 refs.

The major goal of a phenomenology analysis of containment during a severe accident situation can be splitted into the following ones: to know the containment response to the different loads and to predict accurately the fission product and aerosol behavior.

In this report, the main results coming from the study of a hypothetical accident scenario, based on LA-4 experiment of LACE project, are presented. In order to do it, several codes have been coupled: CONTEMPT4/MOD5 (thermalhydraulics), NAUA/MOD5 (aerosol physics) and IODE (iodine chemistry).

It has been demonstrated the impossibility of assessing with confidence the Source Term if the chemical conduct of some radionuclides is not taken into account. In particular, the influence on the iodine retention efficiency of the sump of variables such as pH has been proven.

DOE CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: 220900; 400600. Source Terms. Fission Products. Aerosols. C Code. N Code. I Code. Iodine. pH Value. Reactor Accident. Computerized Simulation.

CIEMAT 672

Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas.
Instituto de Tecnología Nuclear. Madrid

"INFLUENCE OF IODINE CHEMISTRY ON SOURCE TERM ASSESSMENT"

HERRANZ PUEBLA, L.E.; LOPEZ DIEZ, I.; RODRIGUEZ MAROTO, J.J.;
MARTINEZ LOPEZ-ALCOROCHO. A. (1991) 42 pp. 7 tab. 26 figs. 12 refs.

The major goal of a phenomenology analysis of containment during a severe accident situation can be splitted into the following ones: to know the containment response to the different loads and to predict accurately the fission product and aerosol behavior.

In this report, the main results coming from the study of a hypothetical accident scenario, based on LA-4 experiment of LACE project, are presented. In order to do it, several codes have been coupled: CONTEMPT4/MOD5 (thermalhydraulics), NAUA/MOD5 (aerosol physics) and IODE (iodine chemistry).

It has been demonstrated the impossibility of assessing with confidence the Source Term if the chemical conduct of some radionuclides is not taken into account. In particular, the influence on the iodine retention efficiency of the sump of variables such as pH has been proven.

DOE CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: 220900; 400600. Source Terms. Fission Products. Aerosols. C Code. N Code. I Code. Iodine. pH Value. Reactor Accident. Computerized Simulation.

CIEMAT 672

Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas.
Instituto de Tecnología Nuclear. Madrid

"INFLUENCE OF IODINE CHEMISTRY ON SOURCE TERM ASSESSMENT"

HERRANZ PUEBLA, L.E.; LOPEZ DIEZ, I.; RODRIGUEZ MAROTO, J.J.;
MARTINEZ LOPEZ-ALCOROCHO. A. (1991) 42 pp. 7 tab. 26 figs. 12 refs.

The major goal of a phenomenology analysis of containment during a severe accident situation can be splitted into the following ones: to know the containment response to the different loads and to predict accurately the fission product and aerosol behavior.

In this report, the main results coming from the study of a hypothetical accident scenario, based on LA-4 experiment of LACE project, are presented. In order to do it, several codes have been coupled: CONTEMPT4/MOD5 (thermalhydraulics), NAUA/MOD5 (aerosol physics) and IODE (iodine chemistry).

It has been demonstrated the impossibility of assessing with confidence the Source Term if the chemical conduct of some radionuclides is not taken into account. In particular, the influence on the iodine retention efficiency of the sump of variables such as pH has been proven.

DOE CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: 220900; 400600. Source Terms. Fission Products. Aerosols. C Code. N Code. I Code. Iodine. pH Value. Reactor Accident. Computerized Simulation.

CIEMAT 672

Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas.
Instituto de Tecnología Nuclear. Madrid

"INFLUENCE OF IODINE CHEMISTRY ON SOURCE TERM ASSESSMENT"

HERRANZ PUEBLA, L.E.; LOPEZ DIEZ, I.; RODRIGUEZ MAROTO, J.J.;
MARTINEZ LOPEZ-ALCOROCHO. A. (1991) 42 pp. 7 tab. 26 figs. 12 refs.

The major goal of a phenomenology analysis of containment during a severe accident situation can be splitted into the following ones: to know the containment response to the different loads and to predict accurately the fission product and aerosol behavior.

In this report, the main results coming from the study of a hypothetical accident scenario, based on LA-4 experiment of LACE project, are presented. In order to do it, several codes have been coupled: CONTEMPT4/MOD5 (thermalhydraulics), NAUA/MOD5 (aerosol physics) and IODE (iodine chemistry).

It has been demonstrated the impossibility of assessing with confidence the Source Term if the chemical conduct of some radionuclides is not taken into account. In particular, the influence on the iodine retention efficiency of the sump of variables such as pH has been proven.

DOE CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: 220900; 400600. Source Terms. Fission Products. Aerosols. C Code. N Code. I Code. Iodine. pH Value. Reactor Accident. Computerized Simulation.

