



COMMISSARIAT A
L'ENERGIE ATOMIQUE

SEEC n°96
Décembre 1970

DIRECTION DE LA PROTECTION
ET DE LA SURETE RADIOLOGIQUES

EXPERIENCES
CRAC.37.38
RESULTATS

F. BARBRY _ J. C. BOULY _ D. MANGIN _ H. REVOL

SERVICE D'ÉTUDES DE CRITICITÉ
Section Expérimentale d'Études de Criticité

S O M M A I R E

- 1 - POINT SUR LES EXPERIENCES C.R.A.C.
 - 1 - 1 - Cuve de diamètre 300 mm
 - 1 - 2 - Expériences de visualisation
 - 1 - 3 - Etude d'une nouvelle cuve de diamètre 800 mm
 - 1-3-1 - But
 - 1-3-2 - Résultats des premières approches critiques

- 2 - ENSEMBLE DE DETECTION

- 3 - EXPERIENCE C.R.A.C. 37
 - 3 - 1 - Caractéristiques expérimentales
 - 3 - 2 - Résultats

- 4 - EXPERIENCE C.R.A.C. 38
 - 4 - 1 - Caractéristiques expérimentales
 - 4 - 2 - Résultats

- 5 - CONCLUSIONS

1 - POINT SUR LES EXPERIENCES C.R.A.C. :

1 - 1 - Cuve de diamètre 300 mm

Les expériences d'accidents de criticité réalisées sur la cuve de diamètre 300 mm se sont achevées avec la manipulation CRAC 30 (reproductibilité de la CRAC 29).

Cette série de 30 expériences a fourni une masse considérable de résultats expérimentaux dont on a effectué l'enregistrement, la mise en forme ainsi qu'une partie du traitement sur ordinateur CII 90-10 (planche 1).

Par suite d'améliorations apportées tant aux méthodes de dépouillement qu'à l'ensemble de détection, certaines valeurs expérimentales ont dû être corrigées.

Un rapport de synthèse dans lequel figureront les résultats expérimentaux définitifs ainsi que des conclusions théoriques et pratiques est en cours d'élaboration.

1 - 2 - Expériences de visualisation :

Il est apparu intéressant de visualiser les phénomènes physiques secondaires accompagnant l'évolution d'un accident de criticité, à savoir l'apparition des gaz de radiolyse et l'effet lumineux "Cerenkov".

Dans cet objectif, la cuve en acier inoxydable a été remplacée par une cuve en pyrex de diamètre intérieur 300 mm et d'épaisseur 10 mm. Une caméra contenant un film couleur a été disposée à l'extrémité d'un périscope coudé dont l'objectif se situait à l'emplacement d'un hublot de l'enceinte de sécurité (fig. 2).

Pour protéger le film contre les rayonnements, une protection mixte (20 cm paraffine + Cadmium + 15 cm Plomb) enveloppait la caméra. En outre, une caméra de télévision placée derrière un hublot permettait de suivre en direct l'expérience avec enregistrement sur magnétophone.

Malheureusement, cette campagne de visualisation (expériences CRAC 31 à 35) n'a pas donné satisfaction. Parmi les inconvénients rencontrés citons :

- coloration brunâtre de la cuve pyrex sous l'effet des rayonnements et ceci très rapidement (transformation dans le pyrex du Fe^{++} incolore en Fe^{+++} brun-rouge)
- luminosité insuffisante du phénomène vis à vis du film couleur et surtout absorption préférentielle de la lumière bleue dans le chemin optique : un verre pyrex irradié se charge en Fe^{+++} et il se produit une absorption préférentielle de la lumière vers le violet et le bleu.
- enfin, déformation de l'image par suite du dioptre cylindrique constitué par la cuve remplie de solution.

De meilleurs résultats ont été obtenus par la caméra de télévision placée latéralement, mais malheureusement sous une mauvaise incidence, le hublot de l'enceinte n'étant pas dans le plan médian de la cuve expérimentale.

Les photos de la planche 2 essaient d'illustrer les différentes phases de l'évolution observée :

- apparition de la lueur "Cerenkov"
- naissance et montée des gaz de radiolyse
- courants de convection créant un brassage de la solution.

Ces photos ayant été réalisées par la suite à l'aide d'un magnétoscope leur qualité est relativement médiocre.

1 - 3 - Etude d'une nouvelle cuve de diamètre 800 mm :

1-3-1 - But :

Pour compléter l'étude expérimentale de divers types d'accidents de criticité possibles, il était nécessaire de réaliser au moins quelques expériences sur une cuve beaucoup plus volumineuse du type cuve à effluents (cas fréquent dans les installations nucléaires). Une cuve en acier inoxydable (nuance NS 22 S) de 800 mm de diamètre extérieur (paroi de 4 mm d'épaisseur) a donc été mise en place dans l'enceinte de sécurité. (cuve en figure 1 - implantation générale en figure 3).

Outre l'aspect radiologique inhérent aux autres services de la D.P.S.R. travaillant autour de C.R.A.C., la courte campagne d'expérimentations (8 manipulations) envisagées sur cette nouvelle cuve présente pour le Service d'Etudes de Criticité

les intérêts principaux suivants :

- . Etude d'accidents sur de gros volumes de solution fissile à faible concentration
- . Etude d'une introduction accidentelle d'une solution fissile dans une cuve contenant de l'acide
- . Etude de la validité des modèles théoriques et pratiques trouvés sur la cuve de diamètre 300 mm

1-3-2 - Résultats des premières approches critiques :

Quelques approches critiques ont d'abord été réalisées sur la cuve de diamètre 800 mm avec des solutions d'Uranium à faible concentration. Les résultats obtenus sont les suivants :

Concentration U total en g/l	Concentration ²³⁵ U en g/l	Densité	H ⁺	NO ₃ ⁻	Hauteur critique H _c cm	Volume critique V _c l	Masse critique ²³⁵ U en kg
31,8	29,6	1,1113	2,04	2,31	26,63	131,3	3,89
26,5	24,7				32,10	158,3	3,91
21,4	19,9	1,0974	2,05	2,23	46,77	230,6	4,60

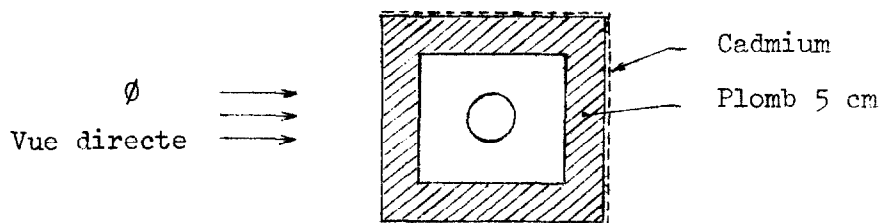
2 - ENSEMBLE DE DETECTION :

Deux types de détecteurs sont utilisés pour suivre l'évolution de la puissance :

- des chambres d'ionisation "neutrons" à dépôt de bore (type CCC 2 B - sensibilité : $2,2 \cdot 10^{-14}$ A/n/cm²/s) avec ou sans écrans.
- des chambres d'ionisation à haut flux gamma (type CGHF - sensibilité moyenne : $1,8 \cdot 10^{-11}$ A/r/h) à remplissage d'air, placées derrière des écrans appropriés. Ces mêmes chambres sans écran donnent l'évolution de la fluence gamma.

Les écrans utilisés sont de diverse nature :

- Ecran pour chambre à bore

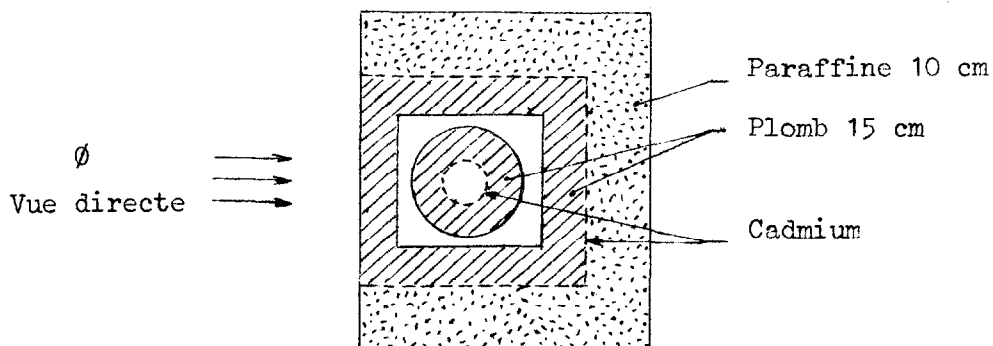


PROPRIETES /

Le plomb arrête les rayonnements gamma qui pourraient perturber la mesure.

La cadmium élimine l'influence des neutrons diffusés.

- Ecran pour chambre gamma



PROPRIETES /

Le plomb arrête les gamma de vue directe

Le détecteur compte principalement :

- . des gamma de capture
- . des gamma de diffusion inélastique
- . des neutrons épithermiques et rapides (par réaction sur l'air de la chambre)
- . les gamma de capture du cadmium qui l'entoure

La protection paraffine + cadmium élimine l'effet des neutrons diffusés.

Une chambre d'ionisation gamma placée derrière un tel écran donne une réponse proportionnelle à la puissance et ne subit en aucune façon l'influence des gamma de produits de fission.

L'implantation des détecteurs est donnée en figure 2.

=====

2 - EXPERIENCE C.R.A.C. 37

3 - 1 - Caractéristiques expérimentales :

- Géométrie étudiée : cylindre de diamètre extérieur 800 mm
- Composition chimique de la solution de nitrate d'uranyle

Densité	Concentration U total g/l	Concentration ^{235}U g/l	H^+ N	NO_3^- N
1,0974	21,8	20,3	2,0	2,2

- Hauteur critique (en neutrons retardés) ≈ 45 cm
- Hauteur de début d'introduction 44 cm
- Hauteur en fin d'introduction 52,1 cm
- Volume critique 222 l
- Volume total 257 l
- Masse d'Uranium (total) introduite 5,60 kg
- Masse d'Uranium 235 introduite 5,22 kg
- Temps d'introduction 322 s
- Débit moyen d'introduction 448 l/h
- Durée de l'expérience (après passage à H_c) 8 mn

3 - 2 - Résultats :

3-2-1 - Radiochimie :

Les analyses radiochimiques effectuées par spectrométrie gamma (sonde Ge - Li associée à un sélecteur 4000 canaux) ont donné les résultats suivants :

Produit de fission P. F.	Nombre de fissions
Tc 99	$2,92 \cdot 10^{18}$
Ce 143	$3,26 \cdot 10^{18}$
Te 132	$3,25 \cdot 10^{18}$
Ru 103	$3,30 \cdot 10^{18}$
Mo 99	$3,31 \cdot 10^{18}$
Zr 95 (724 kev)	$3,15 \cdot 10^{18}$

Moyenne : $3,20 \cdot 10^{18}$ fissions
 Ecart type $\pm 4,6 \%$

3-2-2 - Evolution de divers paramètres :

Le temps 0 représente l'instant de passage de la solution fissile à l'état critique retardé Hc.

3-2-2-1 - Puissance - nombre de fissions intégré :

Les figures 4 et 5 donnent l'évolution de la puissance ainsi que du nombre de fissions intégré.

- Caractéristiques du 1er pic de puissance :

- . Sommet à l'instant t_1 : 72,8 s
- . Puissance maximum P_1 : $8,6 \cdot 10^{16}$ fissions/s
- . Temps de doublement minimum T_2 : 0,34 s
- . Apparition de gaz de radiolyse à l'instant t_{gaz} : 72,8 s
- . Nombre de fissions intégré à l'instant t_{gaz} : $1,1 \cdot 10^{17}$ fis.

$$\int_{t=0}^{t=80 \text{ s}} \text{Nombre de fissions} : 3,3 \cdot 10^{17} \text{ fissions}$$

Le 1er pic représente donc environ 10 % de la totalité de l'expérience.

3-2-2-2 - Evolution de la fluence gamma :

L'évolution de la fluence gamma a été suivie par deux chambres placées respectivement à 4 m et 8 m de l'axe de la cuve expérimentale (voir fig. 6 et 7).

3-2-2-3 - Températures - pression :

Comme le montrent les évolutions (fig. 8) des deux thermocouples TC 2 (centre de la solution) et TC paroi (contre la paroi à l'extérieur de la cuve), l'ébullition a été rapidement atteinte et les conditions expérimentales du système ont changé du fait de l'augmentation de pression dans l'enceinte étanche de sécurité : il y avait en effet environ 280 g/cm² de surpression en fin d'expérience.

3-2-3 - Effets secondaires : radiolyse : Effet Cerenkov :

La caméra de télévision placée au sommet de l'enceinte a permis l'observation d'un effet Cerenkov persistant pendant une grande partie de l'expérience. Quant aux dégagements gazeux résultant de la radiolyse, leur importance est telle que parfois la réaction s'étouffe par effet de vide : on observera notamment sur l'expérience suivante toute une série de petites oscillations qui résultent de ce phénomène.

3-2-4 - Dosimétrie individuelle en salle de contrôle :

Malgré l'importance du nombre total de fissions développé, les mesures effectuées par la S.P.R. en salle de contrôle (derrière des murs en béton de 147 cm d'épaisseur) ne révèlent que de faibles doses :

- environ 15 m/rem en gamma
- et 8 m/rem en neutrons.

Nous reviendrons sur ce résultat lors de la conclusion.

3-2-5 - Réactivité :

Des expériences préliminaires de divergence ont permis d'estimer la variation de la réactivité en fonction de la hauteur de solution introduite au delà de la hauteur critique H_c .

H_c cm	H surcritique cm	$\Delta H = H_s - H_c$ cm	Temps de doublement T_2 en s	Réactivité ρ p.c.m.	$\frac{\rho}{\Delta H}$ en p.c.m./mm
46,77	47,07	0,30	33,2	120	40
46,77	47,56	0,79	6,76	288	36

Ces expériences ainsi que le calcul du coefficient de multiplication effectif K_{eff} ont été dépouillées à partir des constantes ci-après :

- Neutrons prompts :

Vitesse moyenne des neutrons thermiques $\bar{v} = 2,63 \cdot 10^5$ cm/s

$$\Sigma_{a_{th}} = 0,05044 \text{ cm}^{-1}$$

$$\Sigma_{f_{th}} = 0,02382 \text{ cm}^{-1}$$

$$L^2 = 3,48 \text{ cm}^2$$

$$\text{Temps de vie } \bar{l} = 74 \text{ } \mu\text{s}$$

- Neutrons retardés :

Groupe	1	2	3	4	5	6
β_i %	0,021	0,139	0,126	0,252	0,074	0,026
λ_i s ⁻¹	0,0124	0,0305	0,111	0,301	1,13	3,00
Efficacité ϵ_i	1,136	1,107	1,133	1,102	1,133	1,100

$$\beta_{eff} = \sum_{i=1}^6 \epsilon_i \cdot \beta_i = 711 \text{ p.c.m.}$$

L'évolution du K_{eff} est donnée en figure 9.

4 - EXPERIENCE C.R.A.C. 38

4 - 1 - Caractéristiques expérimentales :

- Composition chimique de la solution

Densité	Concentration U total g/l	Concentration ²³⁵ U g/l	H ⁺ N	NO ₃ ⁻ N
1,0973	21,4	19,9	2,08	2,26

- Hauteur critique H 46,75 cm
- Hauteur de départ H_d 44,00 cm
- Hauteur finale atteinte H_s 52,52 cm
- Volume critique 230,5 l
- Volume total 259 l
- Masse d'Uranium 235 introduite 5,15 kg
- Temps d'introduction 115 s
- Débit moyen d'introduction 1315 l/h
- Durée de l'expérience (après passage à H_c) 4 mn

4 - 2 - Résultats :

4-2-1 : Analyses radiochimiques

(Sonde Ge - Li : 4000 canaux).

Produits de fission	Nombre de fissions
Ce 143	$2,61 \cdot 10^{18}$
Tc 99	$2,46 \cdot 10^{18}$
Te 132	$2,61 \cdot 10^{18}$
Ru 103	$2,79 \cdot 10^{18}$
Mo 99	$2,67 \cdot 10^{18}$
Zr 95	$2,83 \cdot 10^{18}$

Moyenne : $2,7 \cdot 10^{18}$ fissions

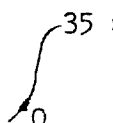
Ecart type $\pm 5 \%$

4-2-2 - Evolution de divers paramètres :

- Puissance - nombre de fissions intégré (fig. 10 et 11)

. Caractéristiques du 1er pic :

Sommet à l'instant t_1	30,4 s
Puissance maximum P_1	$2,8 \cdot 10^{17}$ fis/s
Temps de doublement minimum T_2	0,10 s
Apparition de gaz à l'instant t_{gaz}	30,52 s
Nombre de fissions intégré à l'instant t_{gaz}	$1,1 \cdot 10^{17}$ fissions


 nombre de fissions : $2,83 \cdot 10^{17}$ fissions

Le 1er pic représente 10 % de la totalité de l'expérience.

- Evolution de la fluence gamma (fig. 12 et 13)
- Evolution de la température (fig. 14)
- Evolution de la réactivité (fig. 15)

Les constantes utilisées pour le calcul du K_{eff} sont identiques à celles utilisées pour l'expérience précédente.

5 - CONCLUSIONS :

Le fait marquant de ces premières expériences est l'importance du nombre de fissions réalisé. Ce résultat constitue sans aucun doute un élément intéressant dans l'étude entreprise des accidents de criticité : il ne faut cependant pas perdre de vue l'aspect "conséquences radiologiques" d'un tel accident, et c'est dans ce domaine qu'un élément important vient d'être acquis.

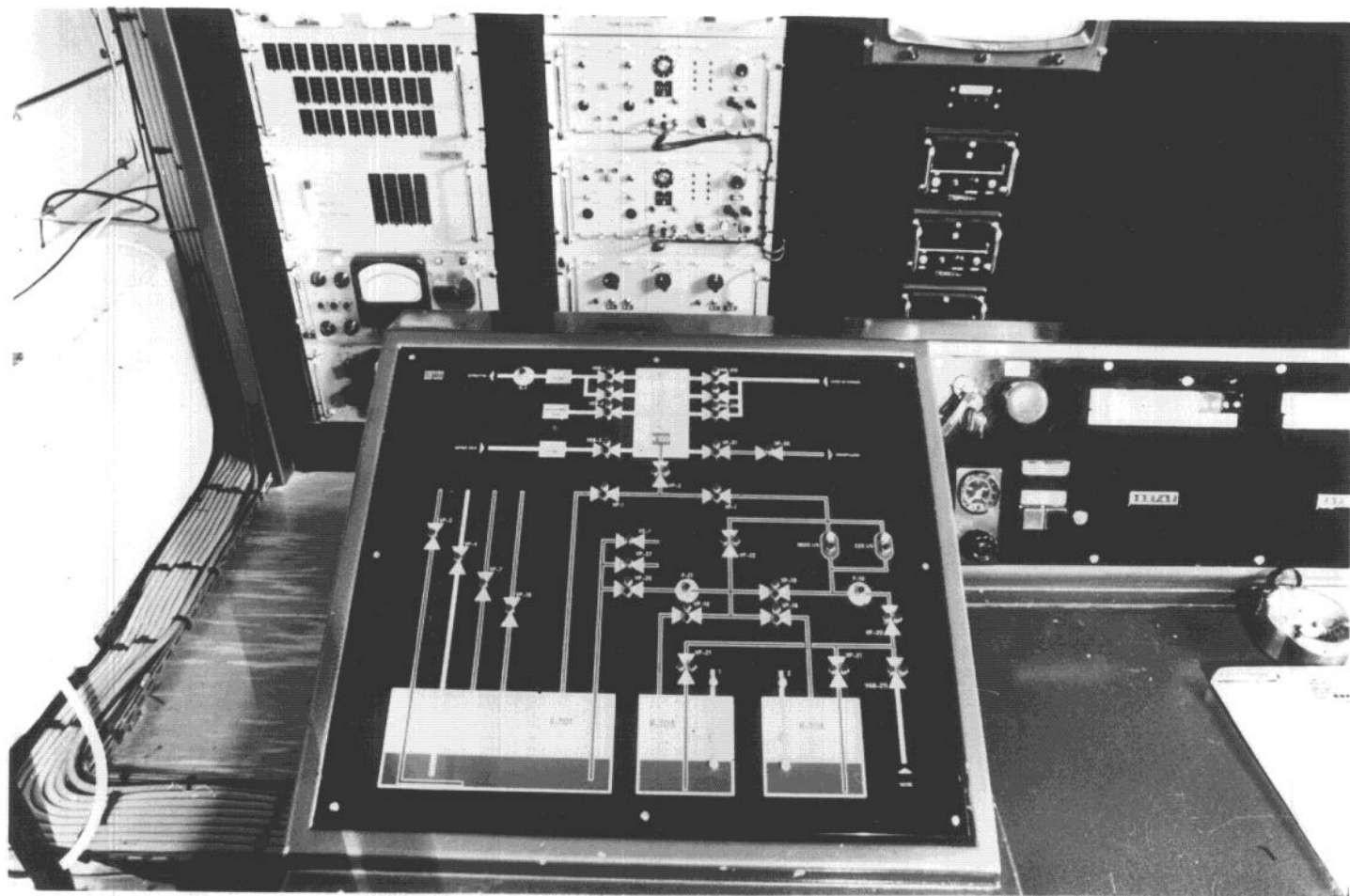
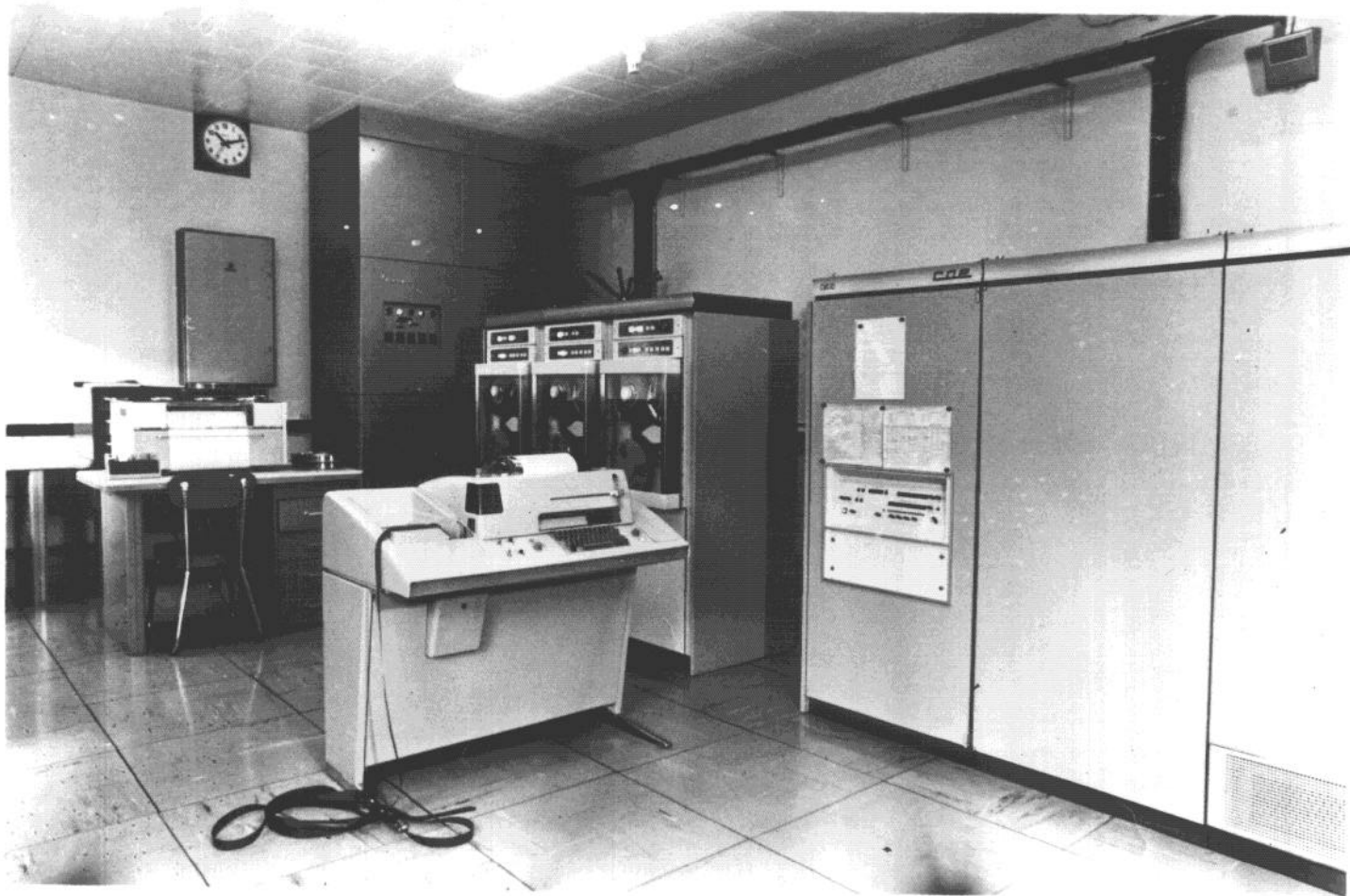
En effet, le champ de rayonnements n'est plus du tout le même et les résultats des mesures effectuées en salle de contrôle ainsi que par les détecteurs en cellule, sont là pour en témoigner : une dosimétrie fine permettra de préciser ces résultats. D'une manière générale on a observé qu'une puissance égale la dose reçue à une distance donnée est beaucoup moins importante autour de la cuve de diamètre 800 mm qu'autour de la cuve de diamètre 300 mm. En d'autres termes, le rapport :

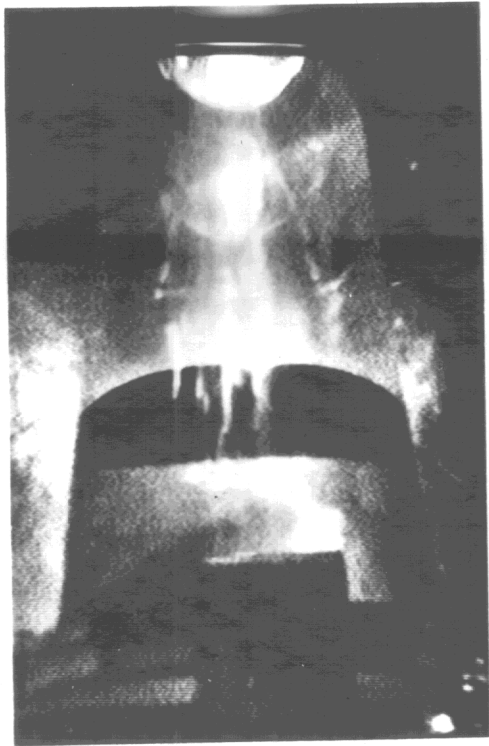
$$- \frac{\text{Puissance}}{\text{Dose}}$$

est directement lié à la géométrie de la source : il s'agit là d'un résultat logique si l'on considère que le volume important de cette source a pour conséquences deux effets immédiats :

- une autoabsorption importante d'une part
- un "amollissement" des spectres neutrons et gamma d'autre part.

==--s--s--s--s--s--s--s==





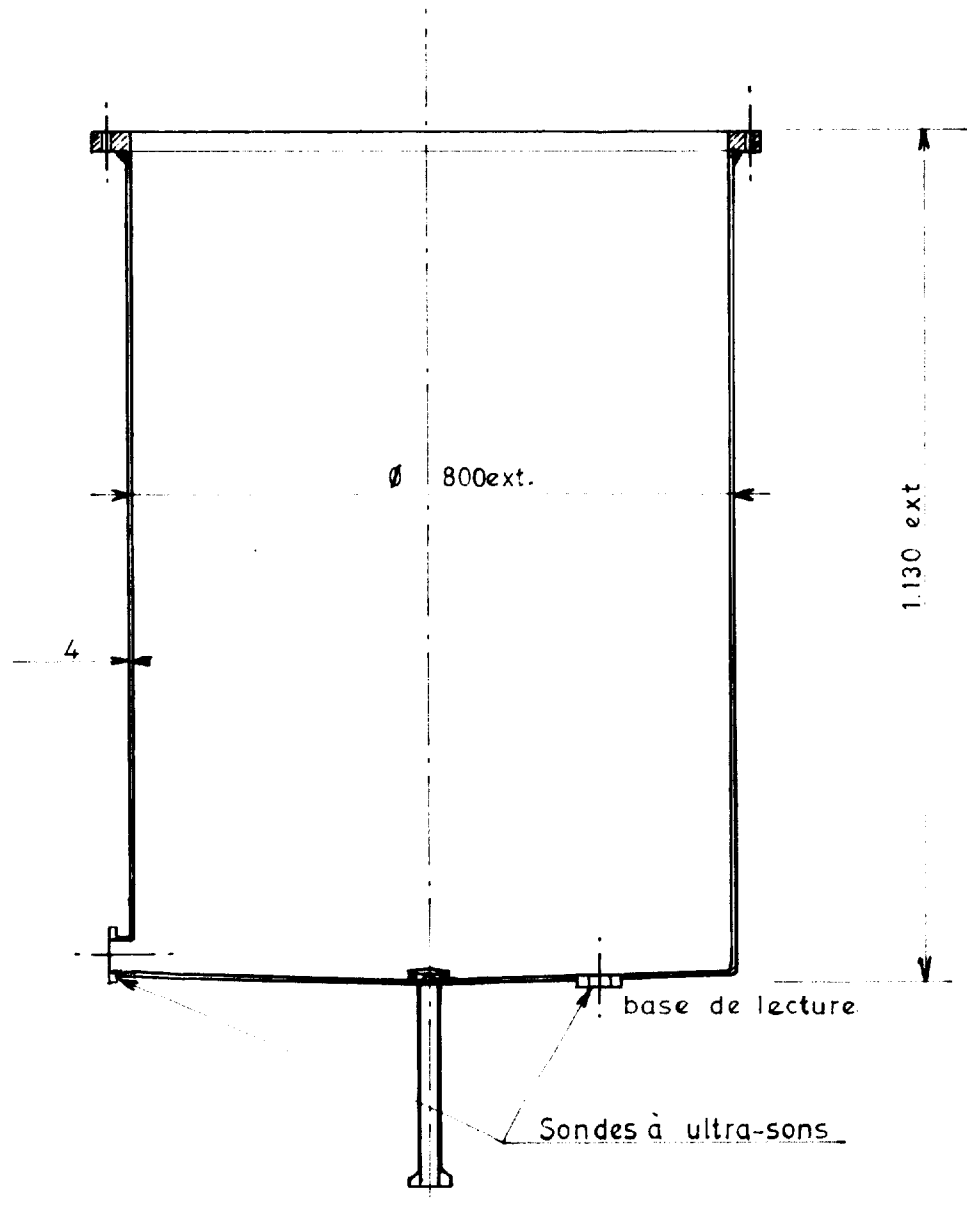



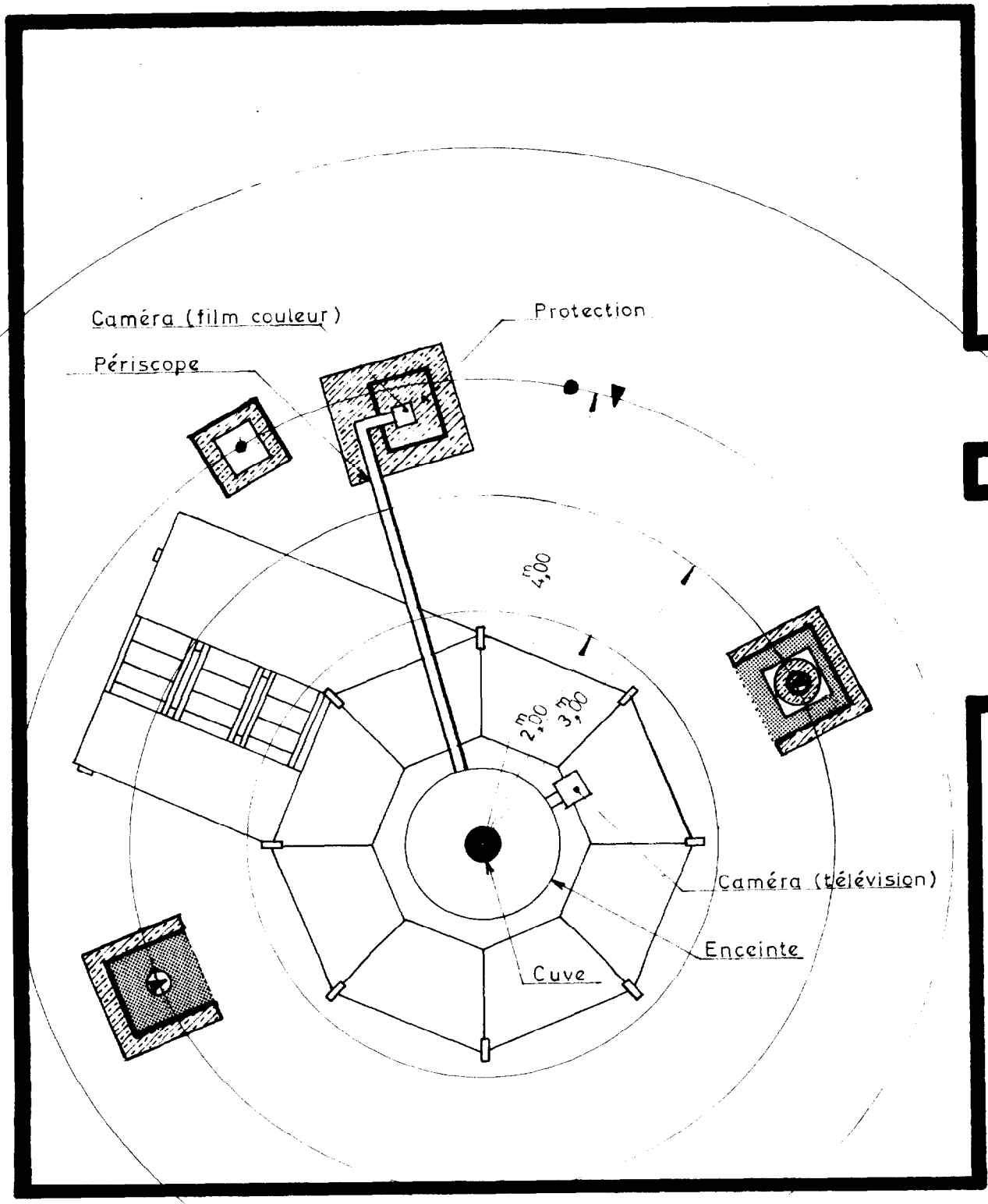


Fig. 1 - Schéma de la cuve expérimentale

-  Plomb
-  Cadmium
-  Paraffine



▼ chambre d'ionisation CGHF
 • " " CCCBB

Fig. 2 - Implantation des détecteurs
 - Ensemble de visualisation

Fig. 3 - Zone d'expérience

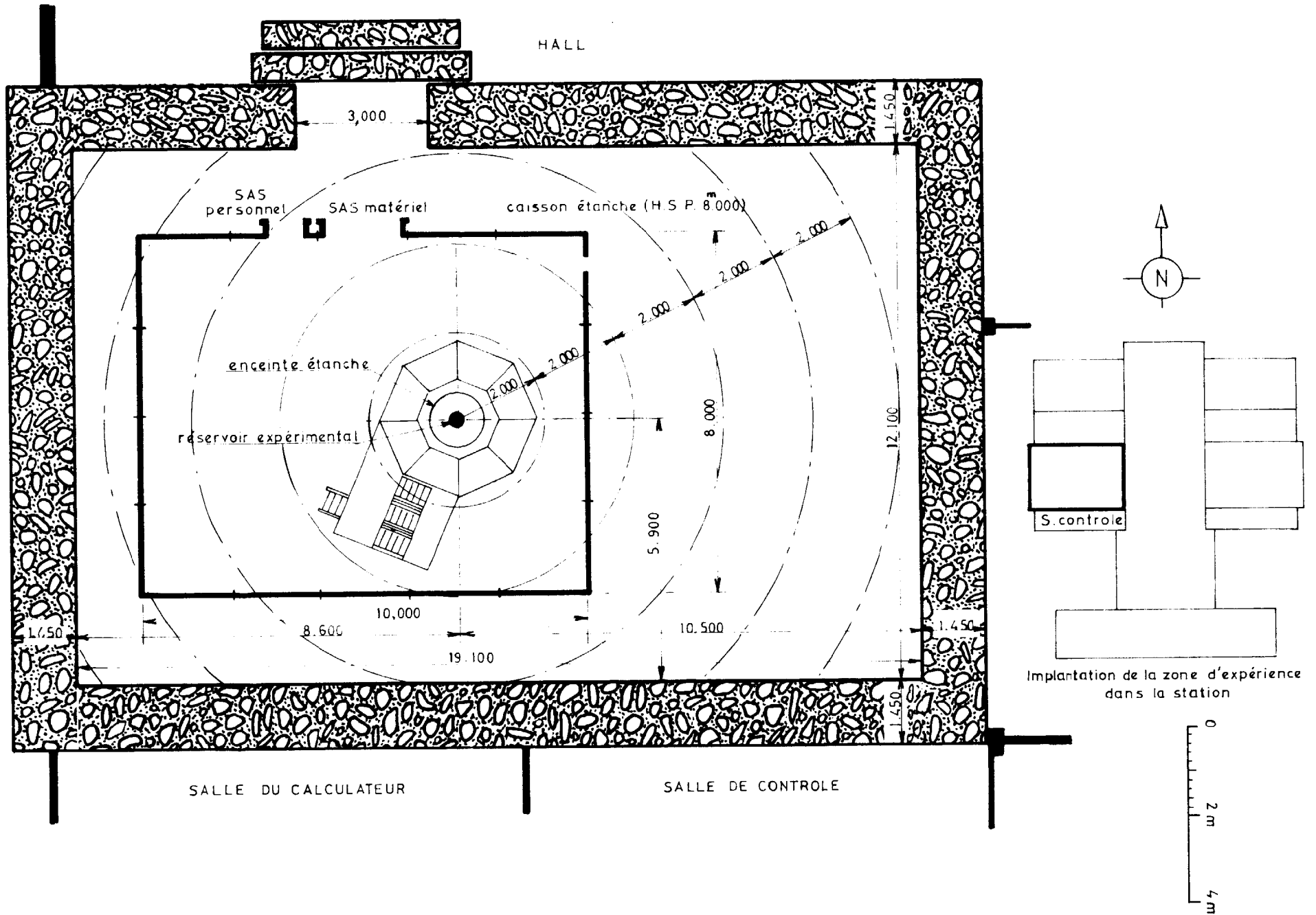
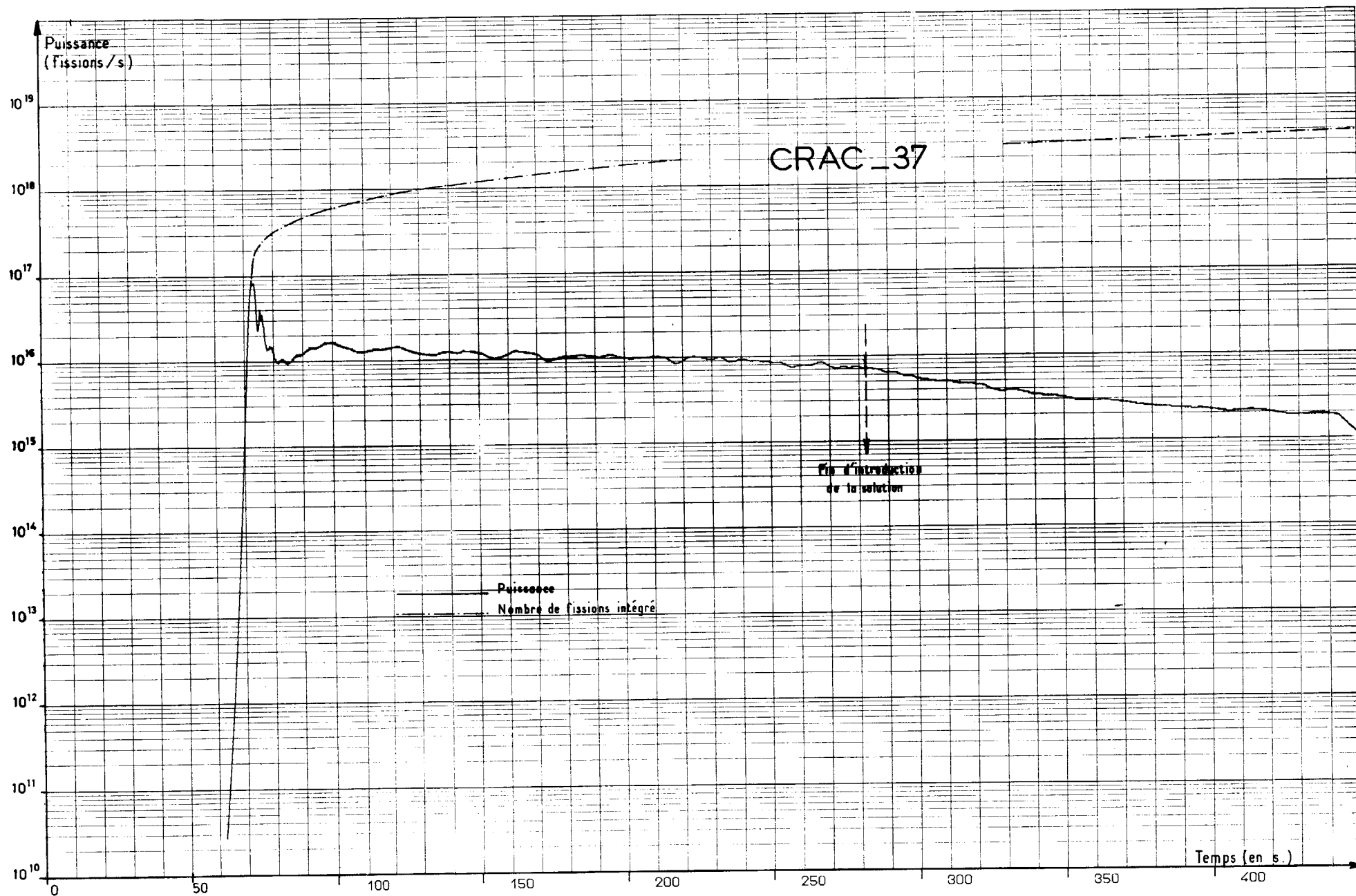


Fig. 4 - Puissance



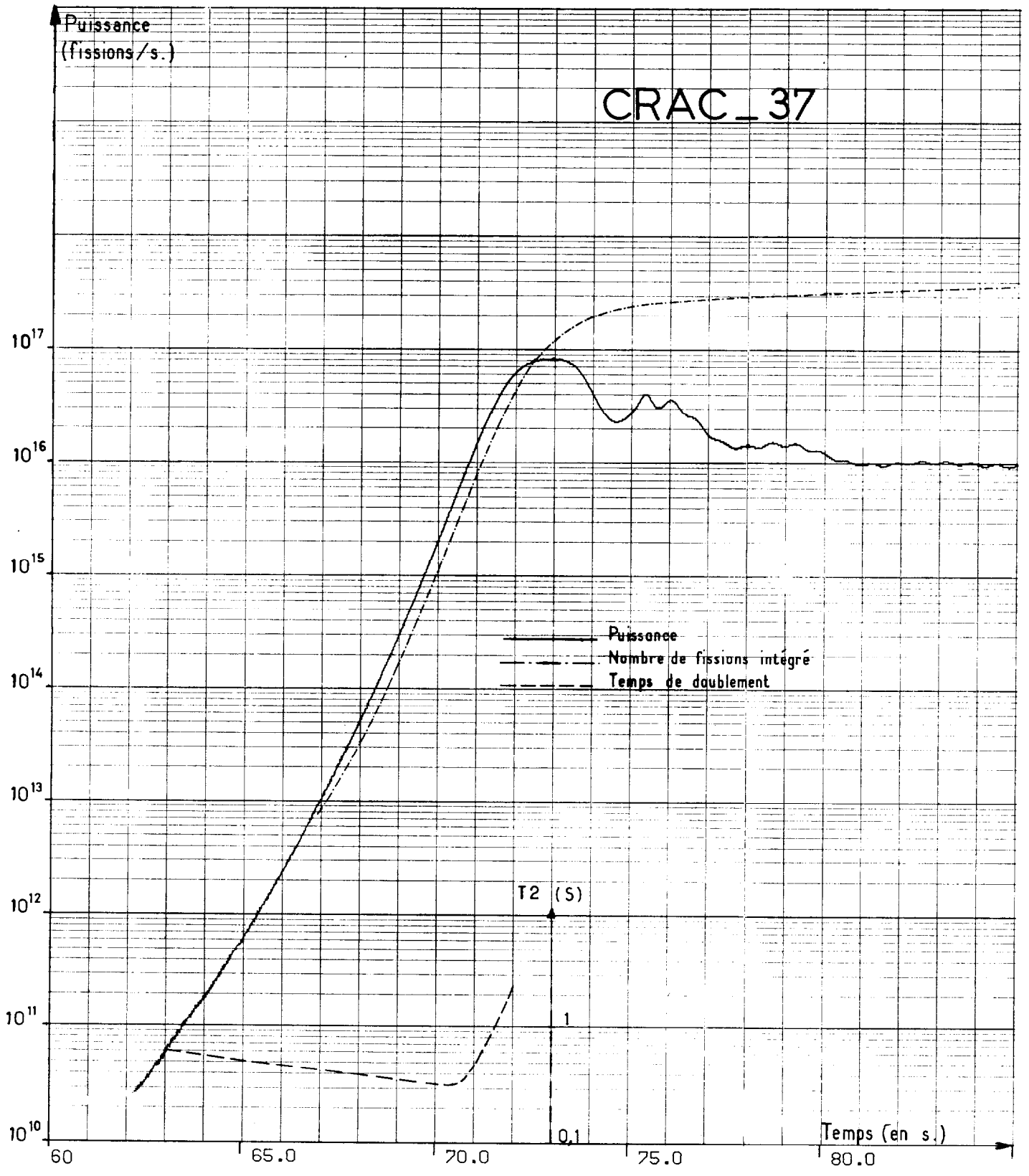
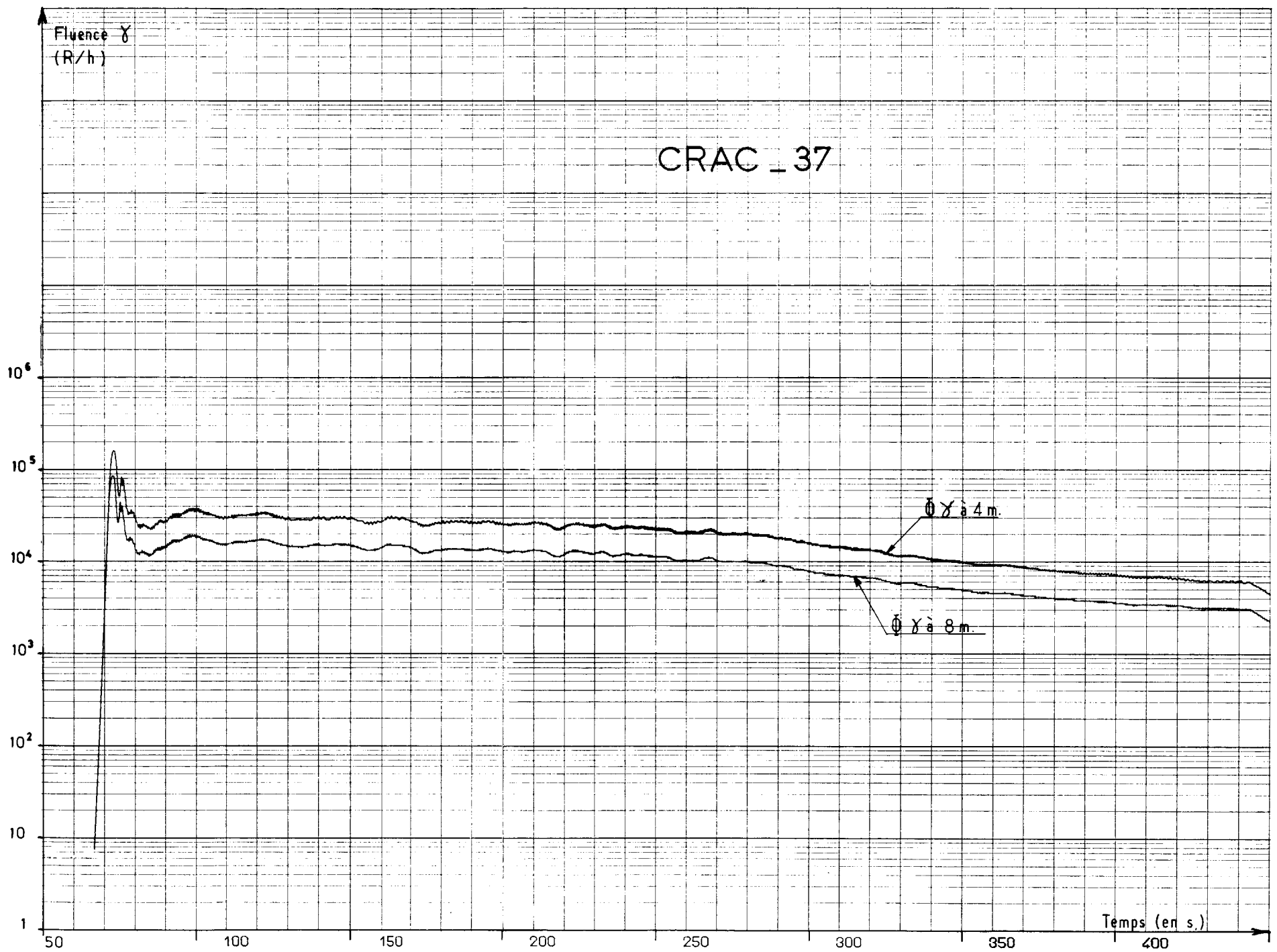


Fig.5 - Puissance (1^{er} pic)

Fig. 6 - Fluence gamma



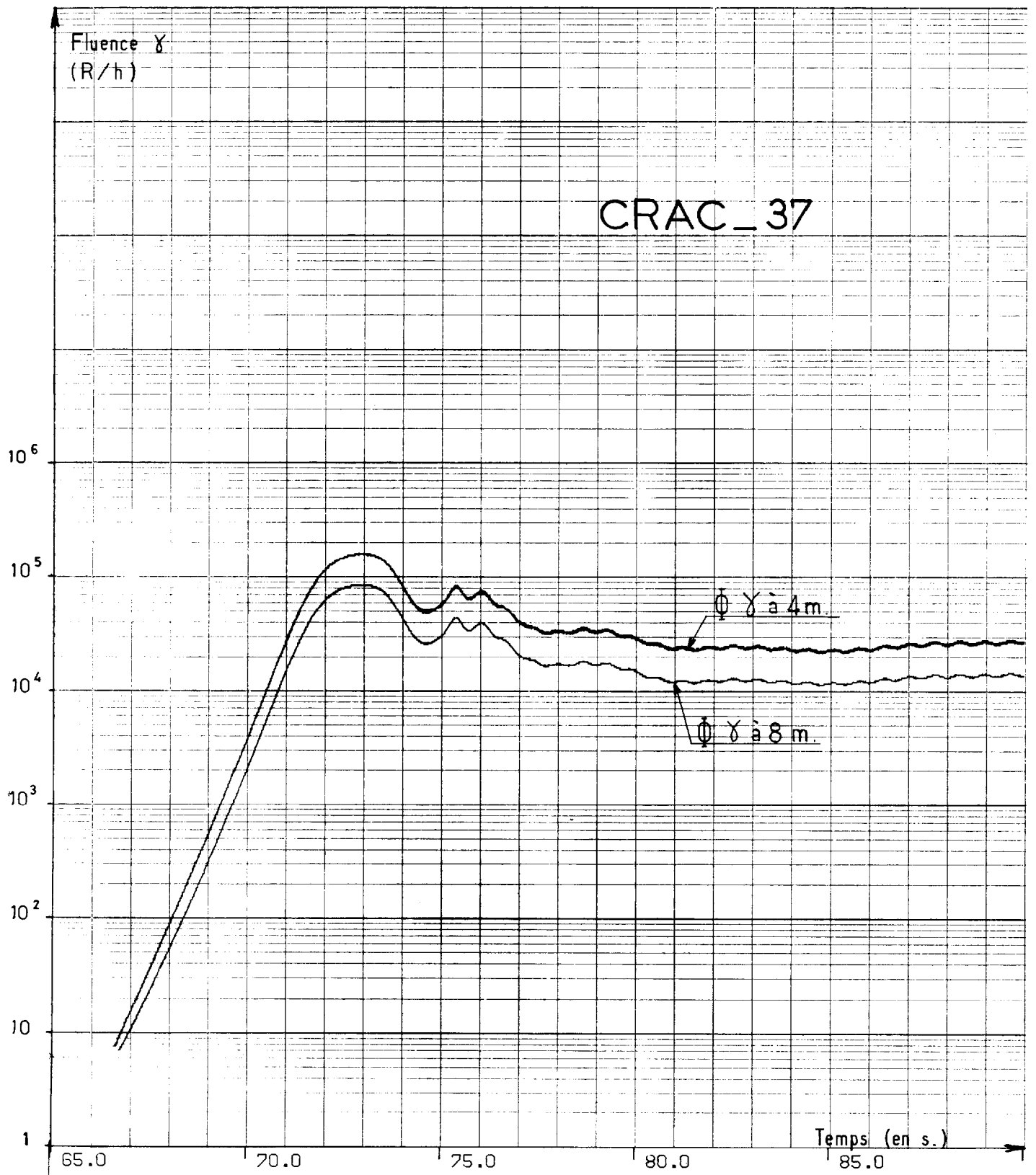


Fig. 7 - Fluence gamma (1^{er} pic)

Fig. 8 - Températures

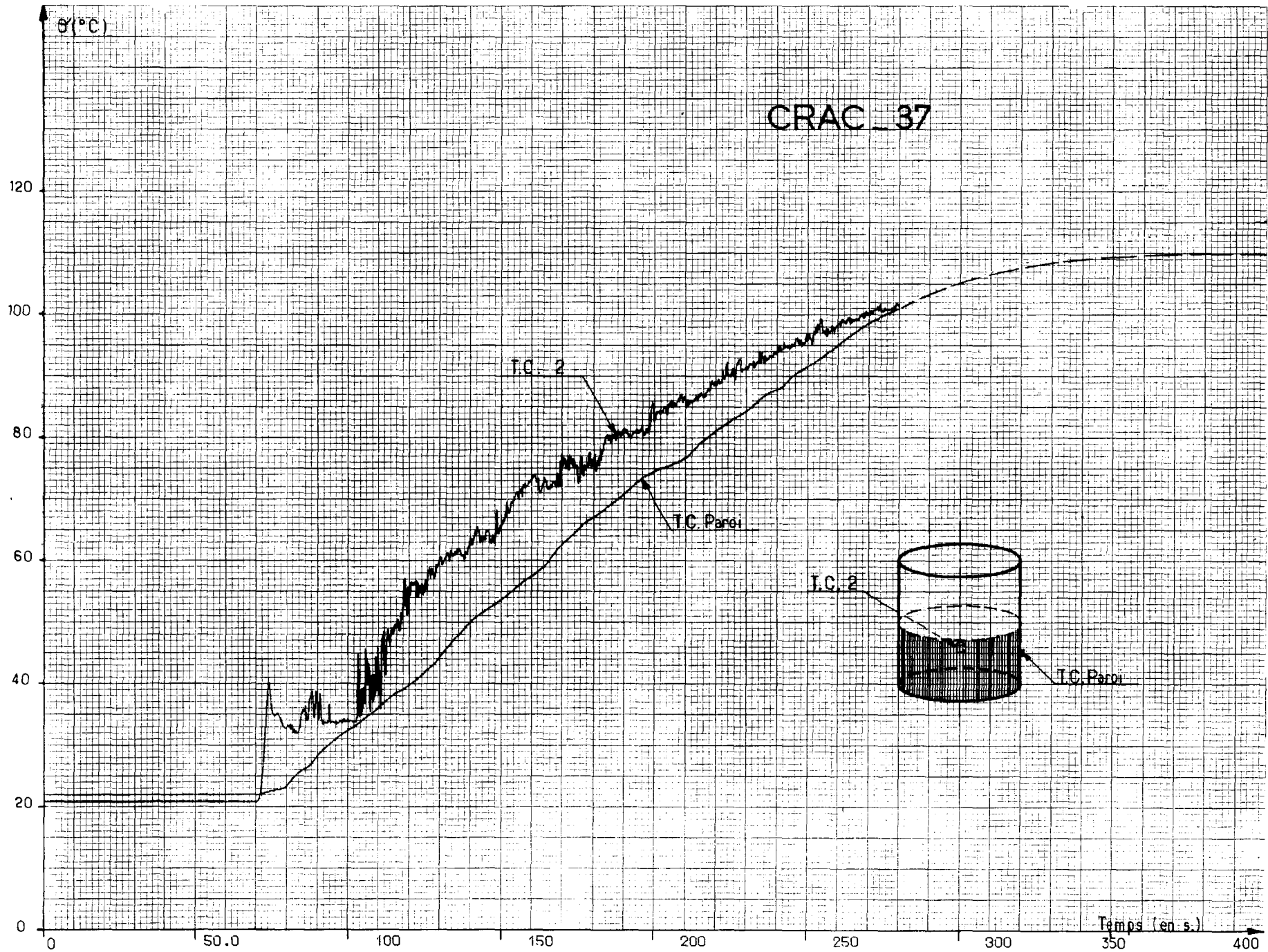


Fig. 9 - Réactivité

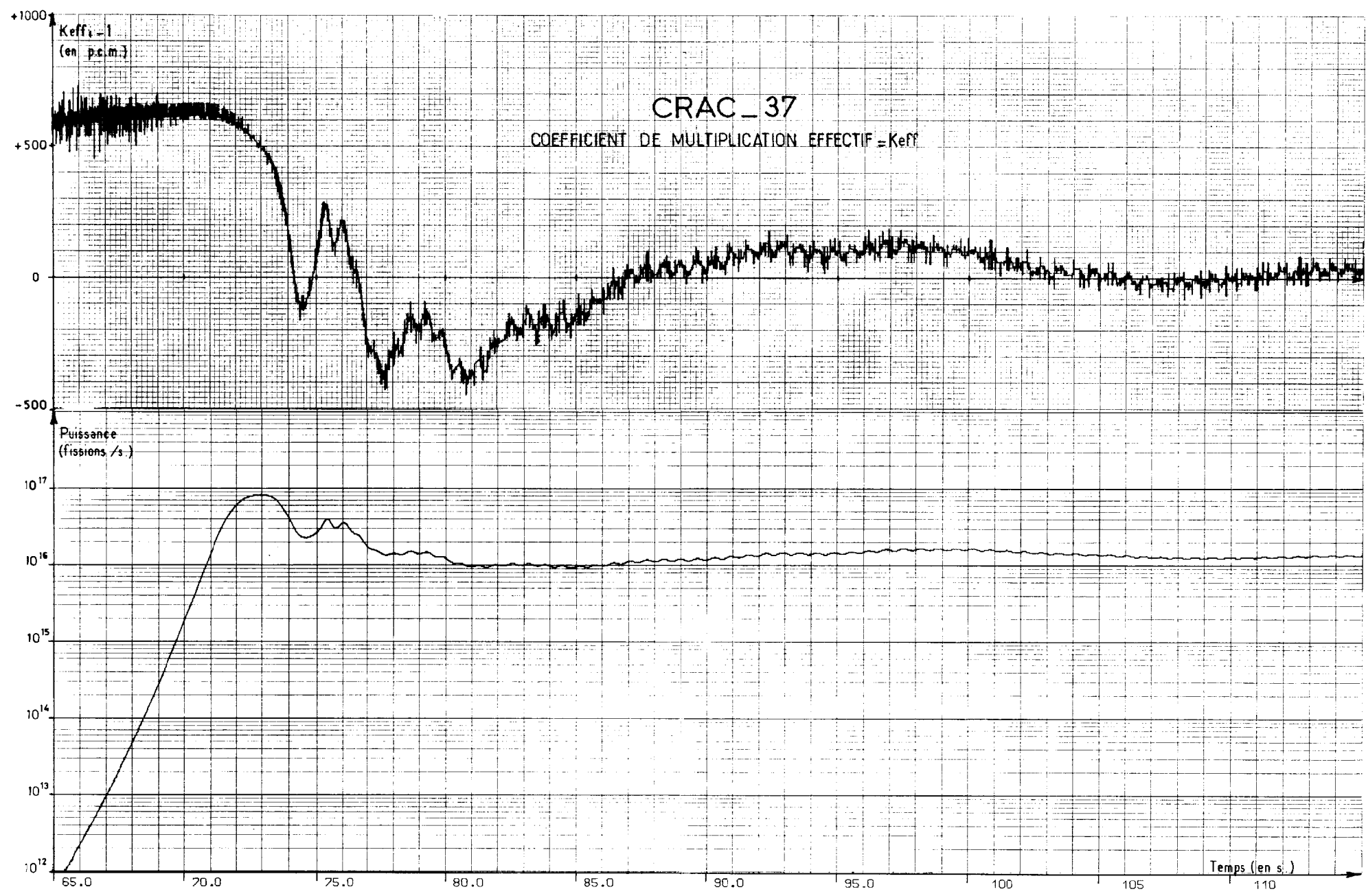


Fig. 10 - Puissance

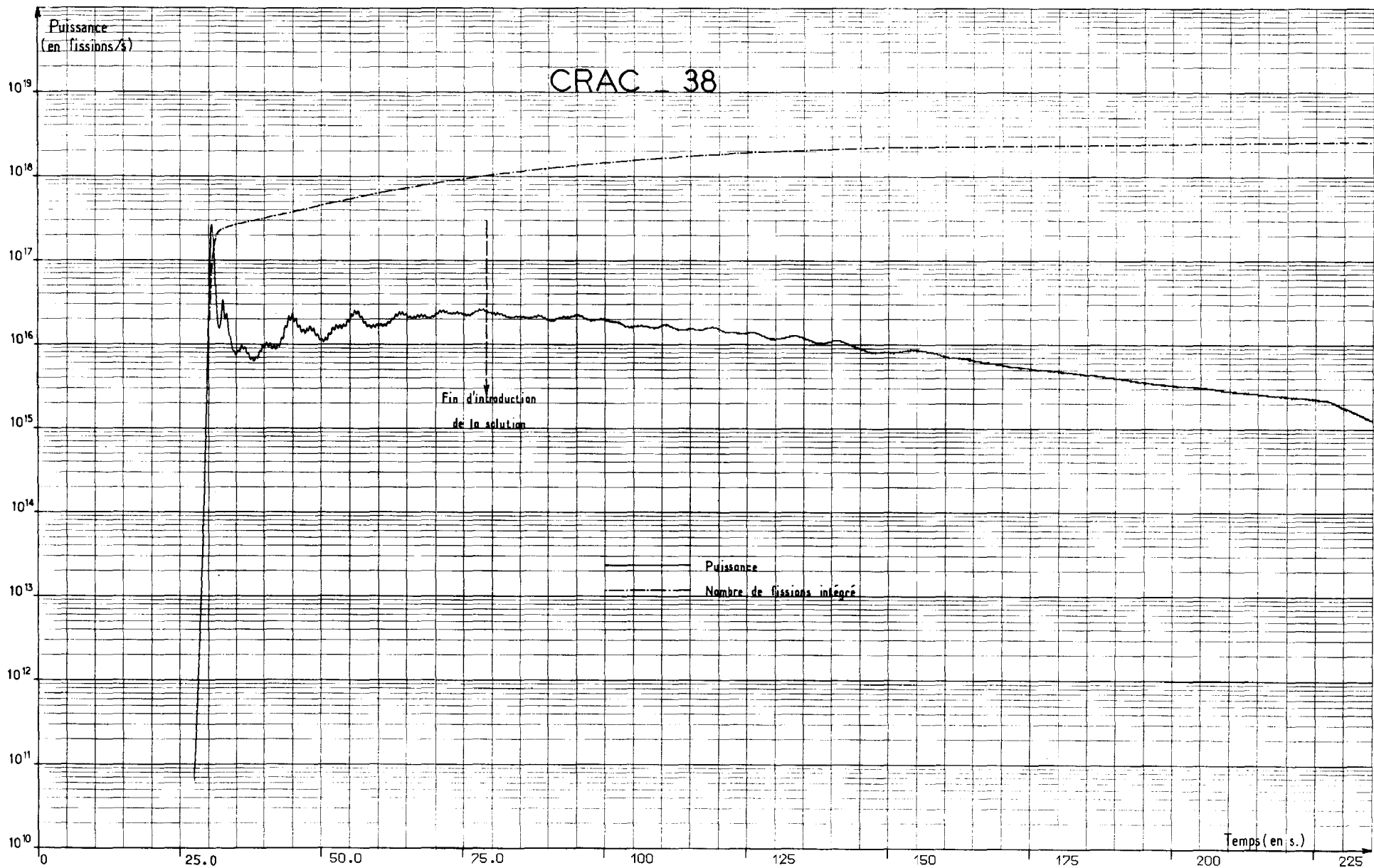


Fig. 11 - Puissance (1^{er} pic)

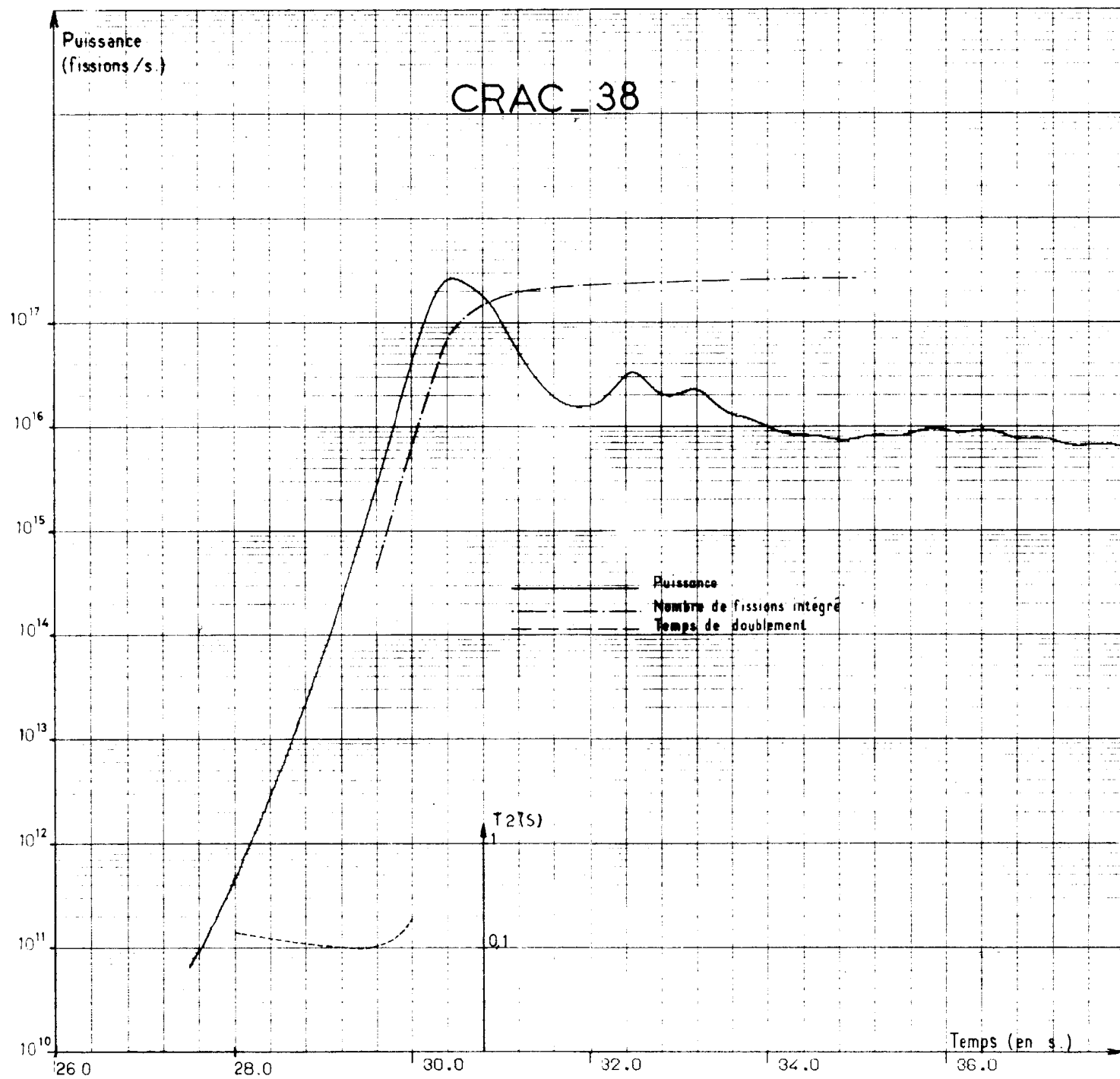
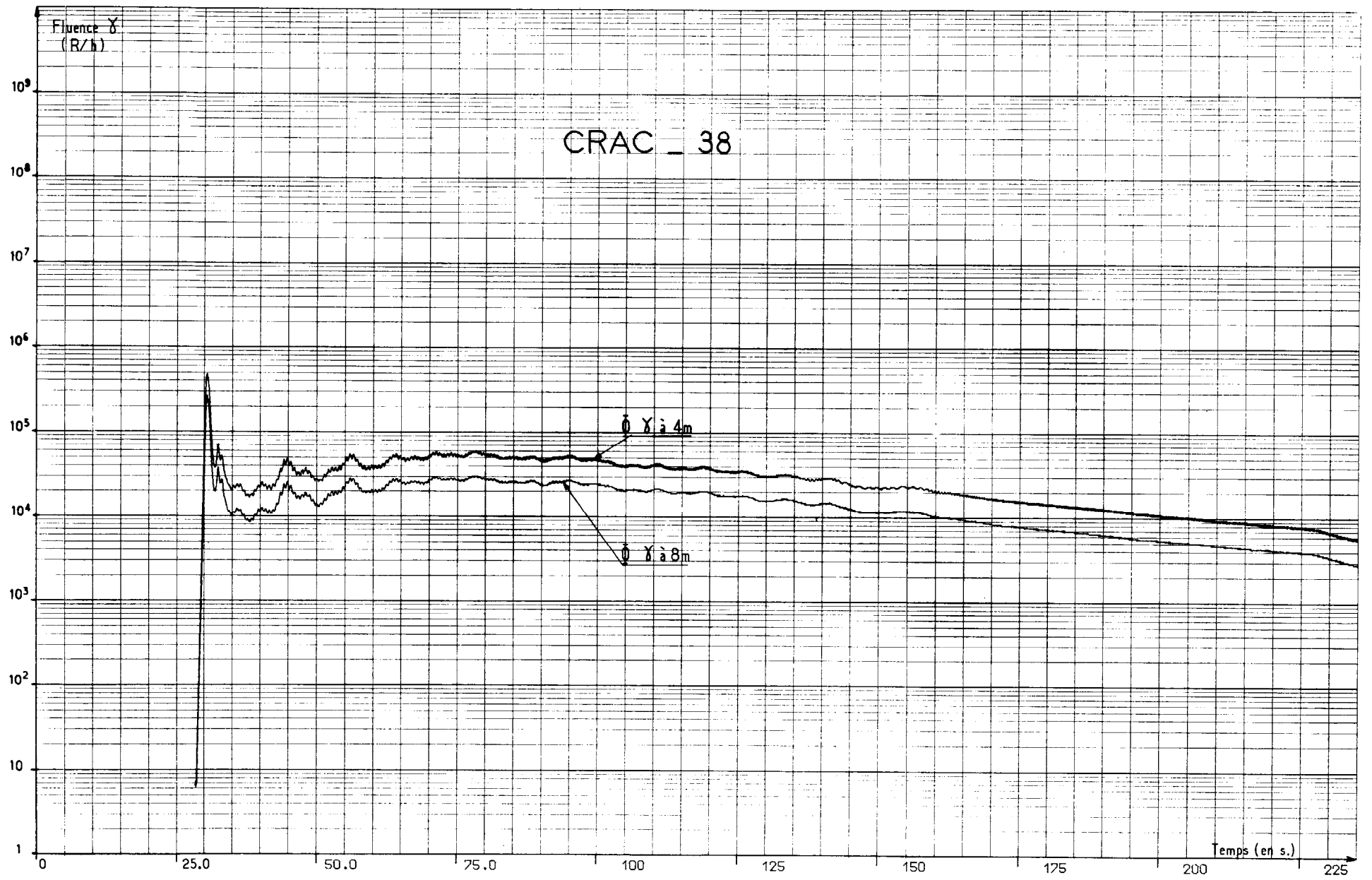


Fig. 12 - Fluence gamma



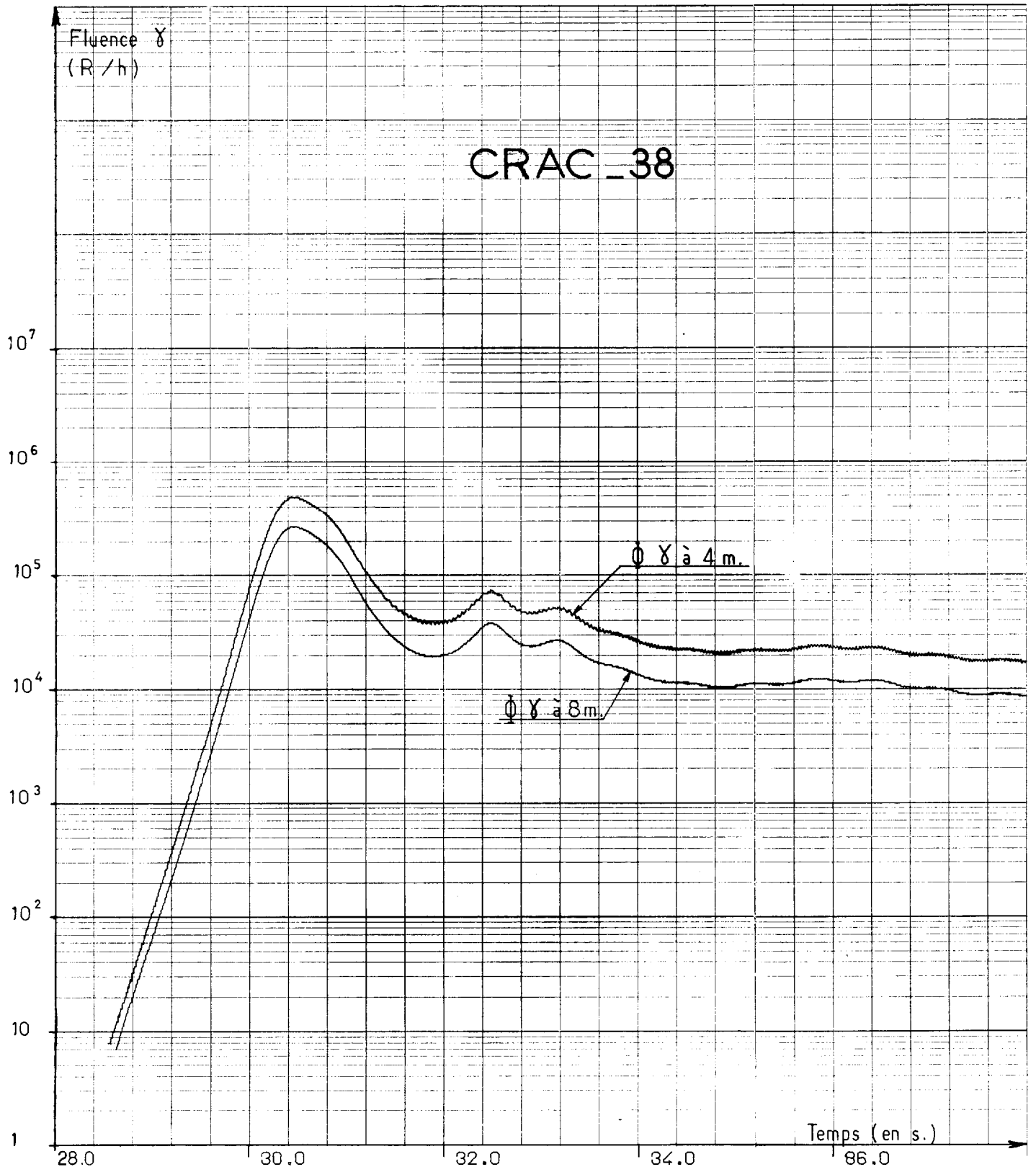
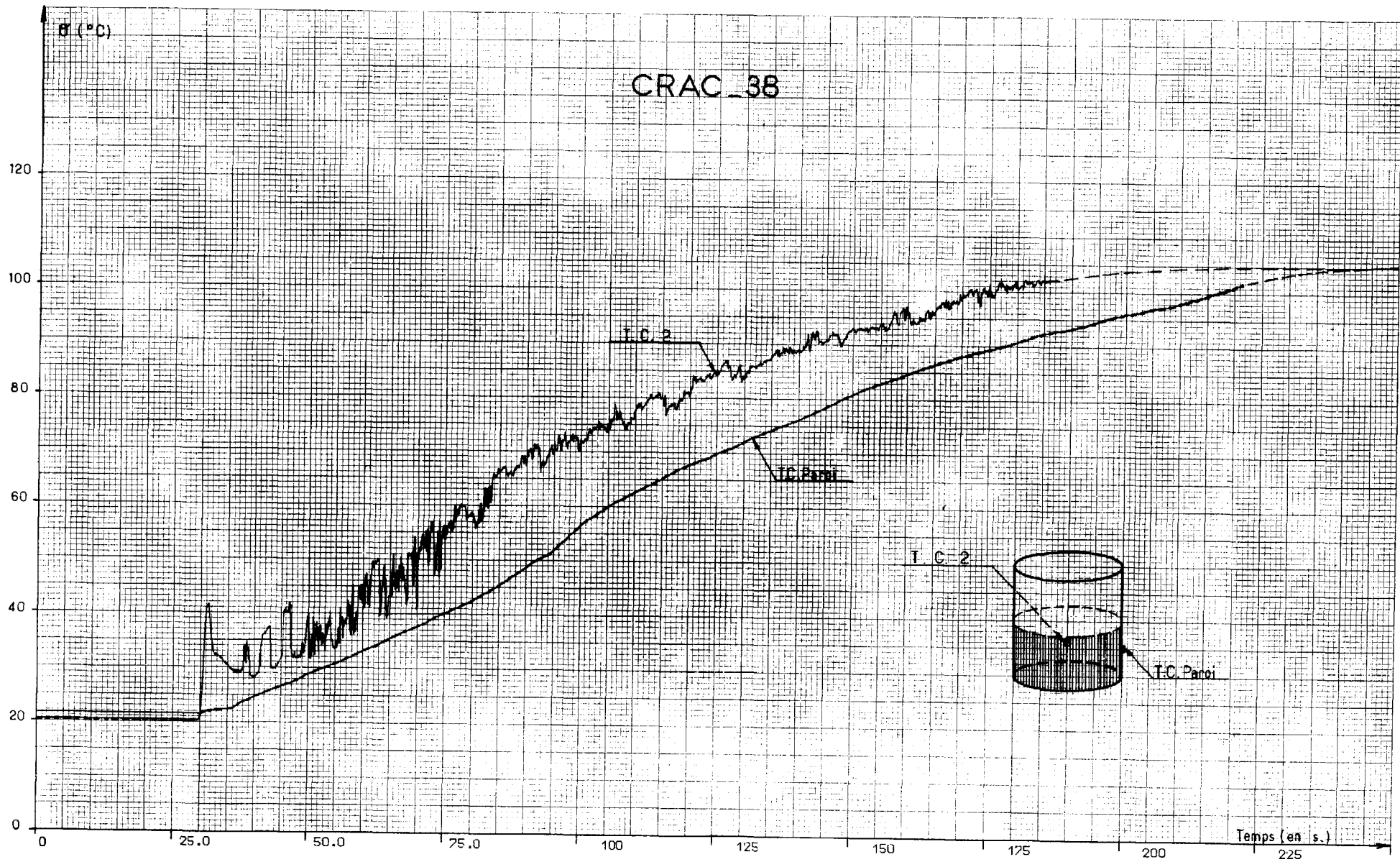


Fig. 13 - Fluence gamma (1^{er} pic)

Fig. 14 - Températures



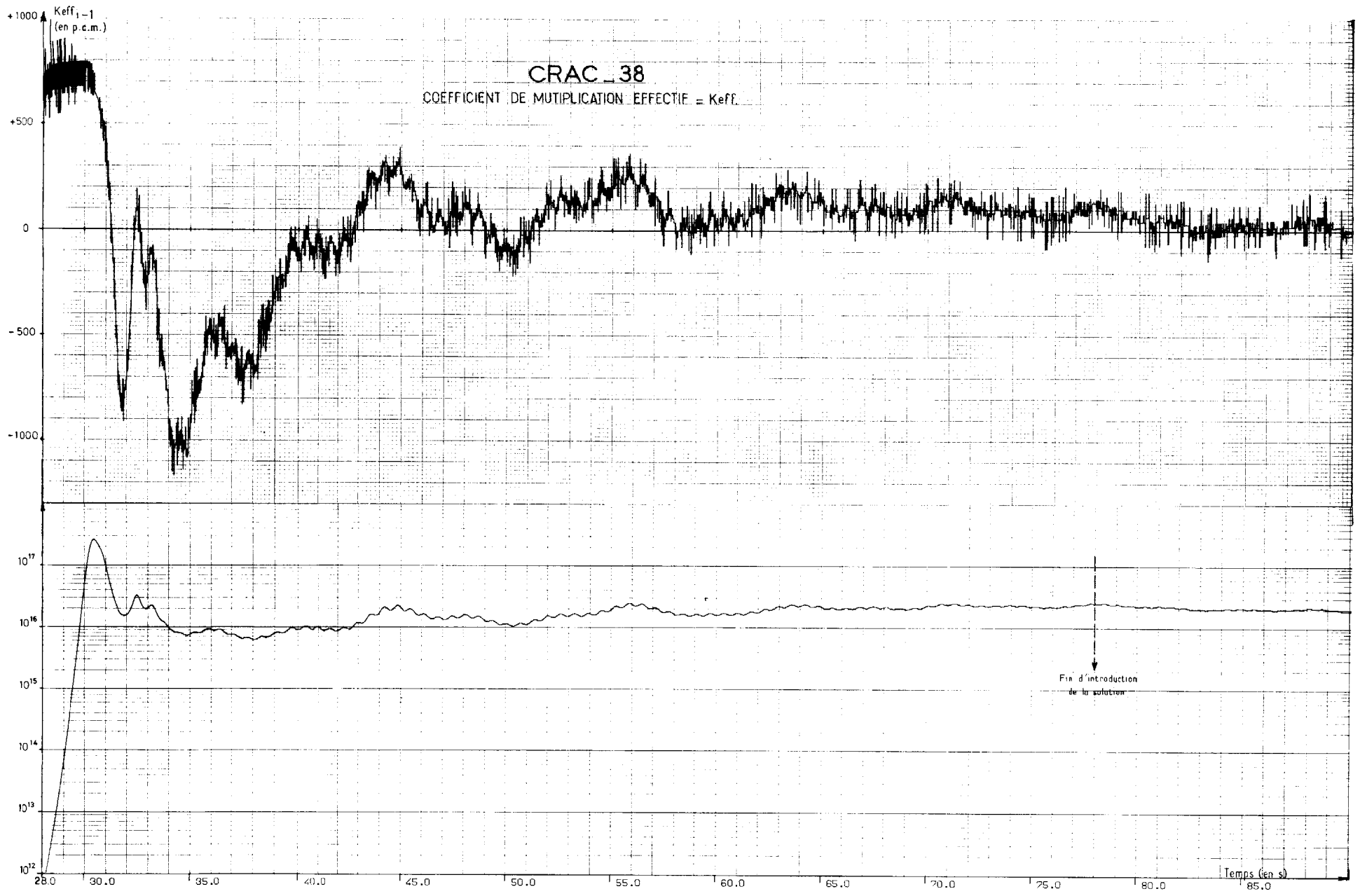


Fig. 15 - Réactivité

D E S T I N A T A I R E S

=====

- M. l'Administrateur Général	1 ex.
- M. le Haut Commissaire	1 ex.
- M. le Directeur du Cabinet du H.C.	1 ex.
- M. le Directeur de la Protection et de la Sûreté Radiologiques	2 ex.
- M. le Chef du Département de la Protection Sanitaire/F.A.R.	4 ex.
dont 1 ex. - M. DOUSSET	
1 ex. - M. LAGUERRE	
1 ex. - Mme PARMENTIER	
- M. le Chef du Service d'Etudes de Sûreté Radiologique /SACLAY	8 ex.
dont 5 ex. - CADARACHE	
- M. le Chef du Service Technique d'Etudes de Protection/F.A.R.	4 ex.
dont 1 ex. - M. SOUDAIN	
1 ex. - M. MARCHAL	
1 ex. - M. RENARD	
- M. le Conseiller Médical de la D.A.	1 ex.
- M. le Chef du Service d'Etudes de Criticité	15 ex.
- M. le Chef du Département des Programmes	2 ex.
- M. le Directeur des Productinns/F.A.R.	1 ex.
- M. le Chef du Service des Combustibles Irradiés/F.A.R.	1 ex.
- M. le Chef du Centre du BOUCHET	1 ex.
- M. le Directeur du Centre de Production de Pu de MARCOULE	3 ex.
- M. le Directeur du Centre de PIERRELATTE	3 ex.
- M. le Directeur du Centre de LA HAGUE	3 ex.
- M. le Chef du Département de l'U.S.I.	1 ex.
- M. le Directeur des Applications Militaires	3 ex.
dont 1 ex. - Sous-Direction des Recherches	
1 ex. - Sous-Direction des Fabrications	
- M. le Directeur du Centre de B. III	5 ex.
dont 2 ex. - Service Radiochimie/DAM/B III	
2 ex. - S.P.R./DAM/B III	
- M. le Directeur du Centre de SACLAY	2 ex.
dont 1 ex. - Documentation	
- M. le Chef du Service d'Electronique Industrielle	1 ex.
- M. le Directeur du Centre de GRENOBLE	1 ex.
- M. le Directeur chargé des CEN-FAR et CADARACHE (Siège)	1 ex.

DESTINATAIRES (Suite)

=====

- M. le Chef du Département des Piles Expérimentales/SACLAY 2 ex.
- M. le Directeur du Centre de FONTENAY 1 ex.
- M. le Directeur du Centre de CADARACHE 1 ex.
- M. le Directeur des Piles Atomiques/SACLAY 1 ex.
- M. le Chef du Département des Etudes de Piles/SACLAY 2 ex.
- M. le Directeur des Matériaux et Combustibles Nucléaires/F.A.R. 1 ex.
- M. le Chef du Département de Chimie/F.A.R. 3 ex.
- M. le Chef du Département de Développement des Eléments Combustibles/CADARACHE.. 1 ex.
- M. le Chef du Service de Fabrication d'Examens Radiométallurgiques/CADARACHE.... 2 ex.
- M. le Chef du Service de Construction des Usines de Traitement des
Combustibles Irradiés/F.A.R. 1 ex.
- M. le Président de la Sous-Commission des Risques de Contamination Chimique
ou Radioactive/F.A.R. 1 ex.
- M. le Président de la Sous-Commission de Sûreté des Piles/SACLAY 1 ex.
- M. le Président de la Sous-Commission des Masses Critiques/SACLAY 10 ex.
- M. le Chef du Groupe de Travail de Sûreté des Piles/DEP/CADARACHE 1 ex.
- M. le Directeur du Centre de VALDUC 4 ex.
- dont 3 ex. - C.VA/S.P.R.
- M. le Chef de l'Annexe Recherches/VALDUC..... 1 ex.
- M. le Chef de l'A.N.E.C./VALDUC 2 ex.
- M. le Chef du Groupe Médical/VALDUC 1 ex.

(A l'attention de M. DOUELLOU)

=====