

JAERI-M

7481

軽水炉格納容器スプレイの効果に
関する研究状況

1978年1月

田 中 貢

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

軽水炉格納容器スプレイの効果に関する研究状況

日本原子力研究所東海研究所安全工学部

田 中 貢

(1976年5月受理)

軽水型発電炉の格納容器内には、格納容器スプレイ系が設けられ、冷却材喪失事故時などに格納容器内の水蒸気を冷却凝縮させて内圧を減ずるとともに、気相中の放射性物質を水洗除去することによって、原子炉から大気中への放射性物質の放出を極力防止している。

格納容器スプレイ効果に関する試験を実施するにあたり、国内外における格納容器スプレイの効果に関する主な研究状況を調査した。また現状のPWRおよびBWRの格納容器スプレイ設備の状況についても調査し、その一部を本題に参考のため付加した。

JAERI-M 7481

A Survey of the Research Works on LWR Containment Spray Effects

Mitsugu TANAKA

Division of Reactor Safety, Tokai Research
Establishment, JAERI

(Received May, 1976)

LWR plants have a containment spray system to reduce the escape of radioactive material to the environment in a loss-of-coolant accident (LOCA) by washing out fission products, especially radioiodine, and condensing the steam to lower the pressure.

For containment spray tests with the JAERI Model Containment Vessel, a survey was made of the research works carried out on containment spray effects and containment spray systems in PWR and BWR plants. These results are described.

Keywords : Light Water Reactor, Reactor Safety, Loss-of-Coolant Accident, Containment Vessel, Spray, Iodine, Fission Product, Temperature, Pressure

目 次

1. まえがき	1
2. 格納容器スプレイ設備について	2
2.1 加圧水型原子炉	2
2.2 沸騰水型原子炉	2
3. 格納容器スプレイに関する国内外の研究調査	7
3.1 バテルメモリアル研究所	7
3.1.1 実験装置	7
3.1.2 実験結果	8
3.1.2.1 自然収着実験 (natural transport tests)	8
(i) ヨウ素	8
(ii) ウランおよびセシウム	8
3.1.2.2 スプレイによるFPの除去	9
(i) 実験条件	9
(ii) 格納容器内の温度, 圧力変化	9
(iii) 格納容器内の混合状態	9
(iv) 水洗速度定数 (washout rate constant)	10
(v) 粒子寸法の測定	11
(vi) 試料片への沈着	12
3.1.3 解析モデルおよび理論値と実測値の比較検討	12
3.1.3.1 ヨウ素の除去	12
(i) ヨウ素放出法の検討	12
(ii) 除去速度定数 λ の時間および濃度依存性の検討	13
(iii) スプレイ液滴の落下速度の検討	13
(iv) ヨウ素の吸収	13
(v) スプレイ液滴の衝突合体効果	15
(vi) 理論値と実測値の比較検討	15
3.1.3.2 エアロゾル粒子の除去	16
(i) 重力沈降 (gravitational settling)	16
(ii) ブラウン運動 (Brownian diffusion)	16
(iii) 慣性衝突 (inertial impaction)	17
(iv) インターセプション (interception)	17
(v) 拡散泳動 (diffusiophoresis)	17
(vi) 熱泳動 (thermophoresis)	18
(vii) 荷電粒子の凝集 (electrical attraction)	18
(viii) 理論値と実測値の比較検討	18

3.1.4 結 論	18
Appendix 3.1-1 Listing of Publications Issued by the CSE Program	20
3.2 オークリッジ国立研究所	69
3.2.1 実験装置	69
3.2.2 実験結果	69
3.2.2.1 元素状ヨウ素の水洗除去	69
3.2.2.2 有機ヨウ素の水洗除去	70
3.2.2.3 粒子状FPの水洗除去	70
3.2.3 解析モデル	71
3.2.3.1 スプレイによる熱除去	71
3.2.3.2 スプレイによる元素状ヨウ素の除去	71
3.2.3.3 スプレイによる有機ヨウ素の除去	73
3.2.4 結 論	73
Appendix 3.2-1 Listing of Publications Issued by the ORNL Program on Spray and Absorption Technology	74
3.3 Calolinas Virginia Tube Reactor (CVTR) による実験	84
3.3.1 実験装置	84
3.3.2 実験結果	84
3.3.2.1 スプレイノズルの配置とスプレイ水量分布	84
3.3.2.2 スプレイによる減圧効果	85
3.3.3 解析コードと実測値の比較検討	85
3.3.4 結 論	86
3.4 ピサ大学	99
3.4.1 実験装置	99
3.4.2 実験結果およびその検討	99
3.4.3 結 論	100
3.5 スウェーデン原子力公社	110
3.5.1 実験装置	110
3.5.2 実験結果	110
3.5.3 解析モデルおよび理論値と実測値の比較検討	110
(i) 気相ヨウ素が高濃度 ($C_G \geq \frac{\beta}{K^2}$) の場合	110
(ii) 気相ヨウ素が低濃度の場合	111
(iii) 気相ヨウ素が非常に低濃度の場合	111
3.5.4 結 論	112
3.6 三菱原子力工業	118

3.6.1	実験装置	118
3.6.2	実験結果およびその検討	118
3.6.2.1	ヨウ素の容器壁への収着実験	118
3.6.2.2	スプレーによるヨウ素除去	119
(i)	常圧下定常スプレーによるヨウ素除去効果	119
(ii)	冷却過程におけるヨウ素水洗効果	120
(iii)	反応性水溶液によるヨウ素水洗実験	122
(iv)	有機ヨウ素の水洗実験	122
3.6.3	結論	123
3.7	日立製作所	137
3.7.1	実験装置	137
3.7.2	実験結果およびその検討	137
3.7.2.1	非定常実験	137
3.7.2.2	定常実験	138
3.7.2.3	格納容器壁などからの伝熱量の補正	138
3.7.2.4	格納容器内保有水の再蒸発	138
3.7.2.5	スプレー液で漏れた表面からの蒸発	138
3.7.2.6	スプレーの熱吸収率	139
3.7.3	結論	139
4	まとめ	147
	Literature cited	149

Contents

1. Introduction	1
2. Containment Spray System	2
2.1 Pressurized-Water Reactor	2
2.2 Boiling-Water Reactor	2
3. Researches on Containment Spray Effectiveness	7
3.1 Battelle Memorial Institute	7
3.1.1 Experimental Apparatus	7
3.1.2 Results	8
3.1.2.1 Natural Transport Tests	8
(i) Iodine	8
(ii) Uranium and Cesium	8
3.1.2.2 FP Removal by Spray	9
(i) Experimental Conditions	9
(ii) Temperature and Pressure Response to Spray	9
(iii) Mixing within a Containment Vessel	9
(iv) Washout Rate Constant	10
(v) Particle Size Measurement	11
(vi) Deposition Coupon Data	12
3.1.3 Description of Analysis Model and Comparison of Theoretical Prediction with Experiment	12
3.1.3.1 Iodine Removal	12
(i) Source Term	12
(ii) Dependency of Removal Rate Constant on Time and Concentration	13
(iii) Spray Drop Velocity	13
(iv) Absorption Models	13
(v) Effect of Drop Coalescence	15
(vi) Comparison of Theoretical Prediction with Experiment	15
3.1.3.2 Removal of Aerosol Particles	16
(i) Gravitational Settling	16
(ii) Brownian Diffusion	16
(iii) Inertial Impaction	17
(iv) Interception	17
(v) Diffusiophoresis	17
(vi) Thermophoresis	18
(vii) Electrical Attraction	18

(viii) Comparison of Theoretical Prediction with Experiment	13
3.1.4 Conclusions	18
Appendix 3.1-1 Listing of Publications Issued by the CSE Program ..	20
3.2 Oak Ridge National Laboratory	69
3.2.1 Experimental Apparatus	69
3.2.2 Results	69
3.2.2.1 Absorption of Elemental Iodine by Spray	69
3.2.2.2 Absorption of Organic Iodides by Spray	70
3.2.2.3 Removal of Airborne Particles by Spray	70
3.2.3 Analysis Model	71
3.2.3.1 Heat Removal by Spray	71
3.2.3.2 Elemental Iodine Removal by Spray	71
3.2.3.3 Organic Iodides Removal by Spray	73
3.2.4 Conclusions	73
Appendix 3.2-1 Listing of Publications Issued by the ORNL Program on Spray and Absorption Technology	74
3.3 Calolinas Virginia Tube Reactor (CVTR)	84
3.3.1 Facility Description	84
3.3.2 Results	84
3.3.2.1 Spray Nozzle Arrangement and Spray Solution Distribution ..	84
3.3.2.2 Pressure Reduction by Spray	85
3.3.3 Comparison of Analysis Models with Experiment	85
3.3.4 Conclusions	86
3.4 Università di Pisa	99
3.4.1 Experimental Apparatus	99
3.4.2 Results and Discussions	99
3.4.3 Conclusions	100
3.5 Aktiebolaget Atomenergy, Sweden	110
3.5.1 Experimental Apparatus	110
3.5.2 Results	110
3.5.3 Description of Analysis Model and Comparison of Theoretical Prediction with Experiment	110
(i) At High Iodine Concentration ($C_G \geq \frac{\beta}{k^2}$)	110
(ii) At Low Iodine Concentration	111
(iii) At Very Low Iodine Concentration	111
3.5.4 Conclusions	112
3.6 Mitsubishi Atomic Power Industries, Inc.	118
3.6.1 Experimental Apparatus	118

3.6.2	Results and Discussions	118
3.6.2.1	Plateout	118
3.6.2.2	Iodine Removal by Spray	119
(i)	Iodine Removal by Steady-State Spray	119
(ii)	Iodine Removal by Cooling Spray	120
(iii)	Iodine Removal by Reactive Spray	122
(iv)	Organic Iodides Removal by Spray	122
3.6.3	Conclusions	123
3.7	Hitachi Ltd.	137
3.7.1	Experimental Apparatus	137
3.7.2	Results and Discussions	137
3.7.2.1	Transient Method	137
3.7.2.2	Stationary Method	138
3.7.2.3	Heat Transfer from Containment Vessel Wall and Bottom Water	138
3.7.2.4	Evaporation of Water in Containment Vessel	138
3.7.2.5	Evaporation from Sprayed Walls	138
3.7.2.6	Spray Heat Transfer Efficiency	139
3.7.3	Conclusions	139
4.	Summary	147
	Literature cited	149

1. ま え が き

軽水型発電炉の冷却系破断事故を想定すると、冷却水が原子炉から格納容器内に噴出し、それともなって燃料中の核分裂生成物(FP)が、格納容器内に放出される。このFPが大気中に放出されるのを防止する安全設備として、気密構造の格納容器、さらに格納容器内に格納容器スプレイ設備等が設けられている。格納容器スプレイは、格納容器内の水蒸気を冷却凝縮させて内圧を減ずるとともに、気相中の放射性物質を水洗除去することによって、原子炉から大気中への放射性物質の放出を抑制するものである。

昭和50年度より格納容器スプレイ効果試験を実施するにあたり、まず国内外における格納容器スプレイに関する研究状況を調査した。国内においては三菱原子力工業、日立製作所、国外においてはバテルメモリアル研究所、オークリッジ国立研究所、CVTR、ピサ大学、スウェーデン原子力公社をとりあげた。

本報告書は、格納容器スプレイの効果について国内外の研究状況をまとめたもので、今後の研究の実施において手引書的作用として参考になるよう文献その他の資料にあらわれた図表をできるだけ豊富にそのまま使用した。

格納容器スプレイの冷却効果に関しては、格納容器内に不凝縮ガスである空気が存在し、必ず熱伝達の低下をもたらすので、空気の割合が大きい場合には、その影響を無視することはできない。また、スプレイの滴径分布、流量、分散状態、液滴の合体、格納容器内の対流などが、スプレイの熱吸収率にいかなる影響を与えるか等、詳細な検討が残されている。

放射性ヨウ素の水洗除去効果については、上述の諸パラメーターに加えて、瞬間気液分配係数、気相および液相のヨウ素濃度、気相の組成、反応性水溶液等が、いかなる影響を与えるか、多くの小規模の研究があるが実証されるまでには致っていない。

表題の範囲には、伝熱工学における強制対流凝縮熱伝達、物質移動におけるヨウ素の物性(気液分配係数等)、スプレイ液の性質(放射線分解、構造材および塗装との共存性)等に関する研究も入ると思われるが、本報告では省略した。

2. 格納容器スプレイ設備について¹⁾

2.1 加圧水型原子炉²⁾

加圧水型原子炉の工学的安全施設の概略図をFig. 2.1-1に示す。

原子炉冷却系配管などの破断に伴うLOCA（冷却材喪失事故）時に、炉心の過熱や溶融を防ぐため、非常用炉心冷却系（ECCS）が設けられている。この設備は蓄圧注入系、高圧注入系および低圧注入系からなっており、事故時にはまずこれらが作動して炉心を冷却する。ついで、格納容器スプレイ系が始動し、格納容器内の水蒸気を凝縮させて内圧を減少させるとともに、放射性物質を水洗除去し、原子炉から大気中への放射性物質の放出を極力防止している。

Fig. 2.1-2にWestinghouse社製の代表的な加圧水型炉のスプレイ系のフローシートを、Table 2.1-1には4ループプラントに対する設計値を示す。燃料取替用水タンクより吸入され格納容器スプレイポンプを通ったスプレイ水（ホウ酸水）の一部は、試薬添加用のエダクターを通り、そこで試薬貯蔵用タンク内の30wt. %苛性ソーダ水溶液を吸引して、格納容器スプレイノズルより噴霧される。この試薬は、燃料取替用水タンク内のホウ酸水が無くなるまでエダクターから連続的に吸引される。燃料取替用水タンクからの給水終了後は、格納容器サンプ内に溜った溶液が内部スプレークーラー冷却後スプレイ水として3ヶ月～1年間循環再使用される。

スプレイノズルとしてはhollow cone ramp bottom型のSPRACO 1713 Aノズルが使用されている。また、スプレイヘッダー及びノズルは、スプレイ水が格納容器気相部全体を被うように、かつ異なったノズルから噴霧されたスプレイ水の干渉が最小になるように配置されている。更に、格納容器内壁面へのスプレイ水の飛散は最小限に押さえられている。

スプレイ水としては、1.4 wt. %ホウ酸水に放射性ヨウ素除去薬品として30 wt. %苛性ソーダ水溶液をエダクターで吸引混合したpH 8.3～10.0の溶液が使用される。

2.2 沸騰水型原子炉

沸騰水型原子炉の工学的安全施設の概略図をFig. 2.2-1に示す。

原子炉冷却材圧力バウンダリの配管が破断して冷却材喪失事故が発生した場合に、燃料の過熱による燃料被覆材の破損を防ぎ、さらにジルコニウムと水との反応を防止するため、炉心スプレイ系、低圧注入系および高圧注入系からなる非常用炉心冷却系によって炉心が冷却される。また、格納容器にはサプレッションチェンバが設けられ、1次系配管破断により放出された蒸気を凝縮させることにより、格納容器の圧力上昇を抑制している。

さらに事故後初期の蒸気放出が終った後は、原子炉の崩壊熱による格納容器の圧力上昇を防止するため、また格納容器内に放出された放射性物質を水洗除去するため格納容器スプレイ系が設けられている。

Fig. 2.2-2にMARK-I（780MWe）型、Fig. 2.2-3にMARK-II（1100MWe）型の格納容器スプレイ系概略図を示す。格納容器スプレイ系は完全独立2系統からなり、非常用電源により、1系統のみでも圧力上昇を抑制することができる。スプレイ水としてはサプレッションチェンバのプール水が、残留熱除去系で冷却されて循環使用される。

ドライウエルとサプレッションチェンバのスプレイ水量比は、約95：5である。

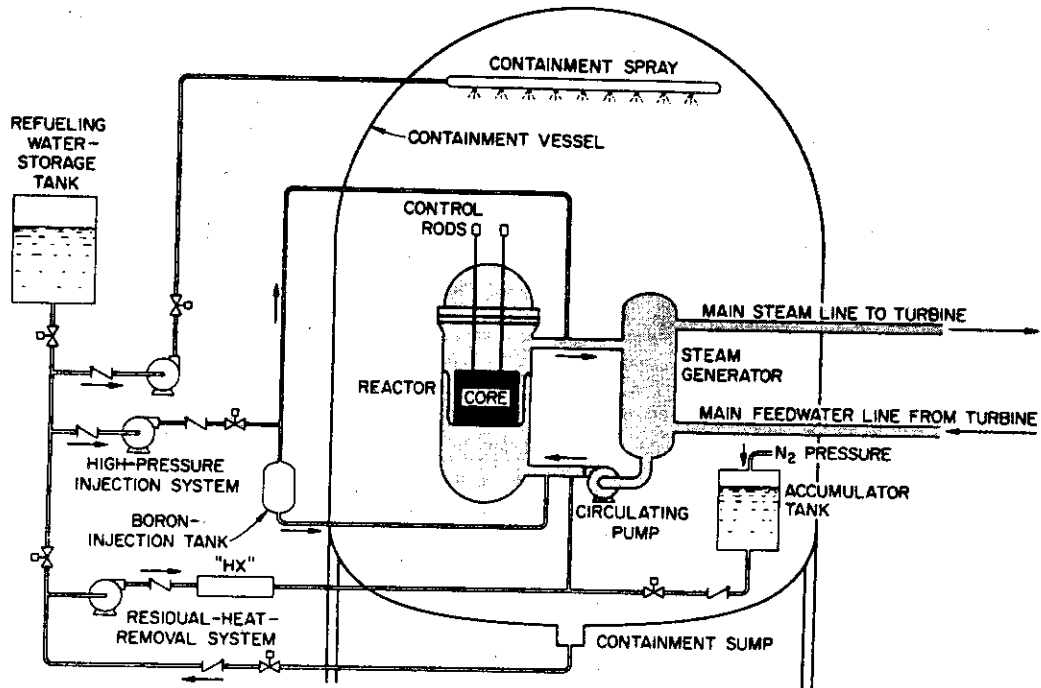


Fig. 2.1-1 PWR emergency core-cooling system

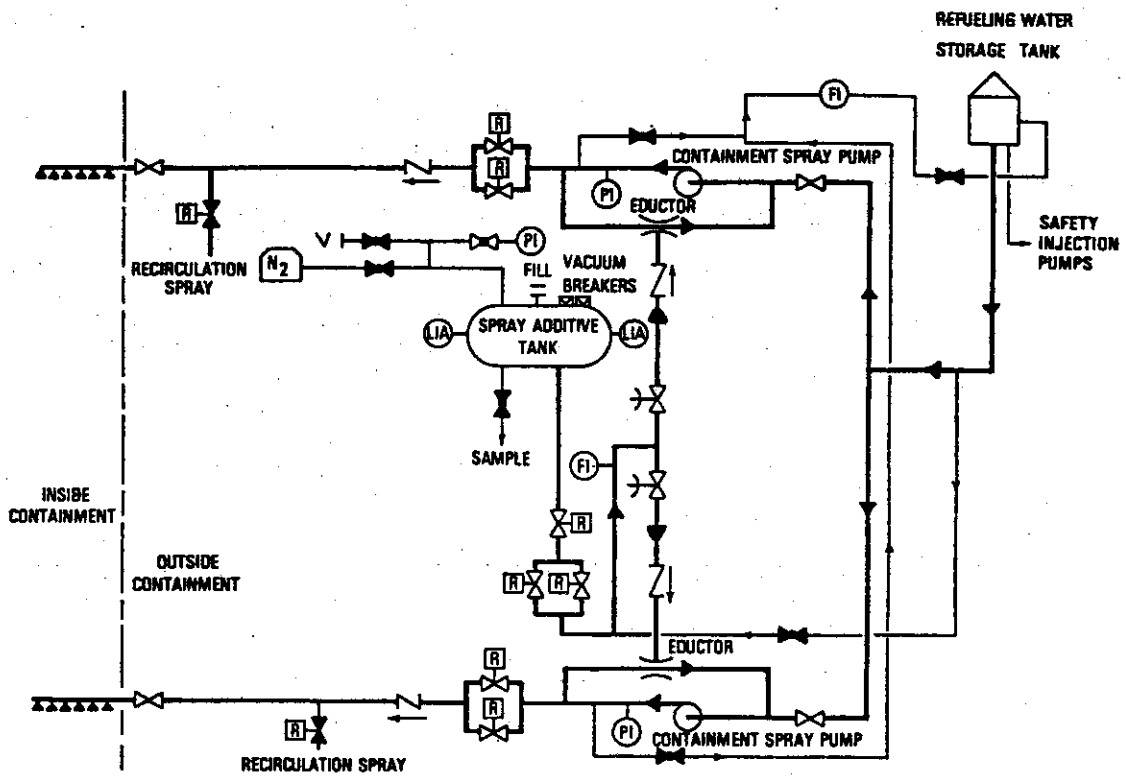


Fig. 2.1-2 Spray additive system flow diagram

Table 2.1-1 Spray additive system component design parameters

Spray Additive Tank	
Type	Horizontal
Fluid	30 wt% NaOH solution
Tank volume	4000 gal
Design pressure	Atmospheric--internal; 2 psi--external
Design temperature	200°F
Material of construction	Austenitic stainless steel
Spray Additive Eductor	
Design pressure	250 psig
Design temperature	150°F
Material of construction	Austenitic stainless steel
Suction Conditions	
Fluid	30 wt% NaOH solution
Flow rate	37.4 gal/min
Pressure	14 psia
Temperature	Ambient
Inlet Conditions	
Fluid	0.6 wt% NaOH and 0.2 wt% boron solution
Flow rate	112 gal/min
Pressure	225 psig
Temperature	Ambient
Discharge Conditions	
Fluid	9.5 wt% NaOH and 0.14 wt% boron solution
Flow rate	145 gal/min
Pressure	33 psig
Temperature	Ambient

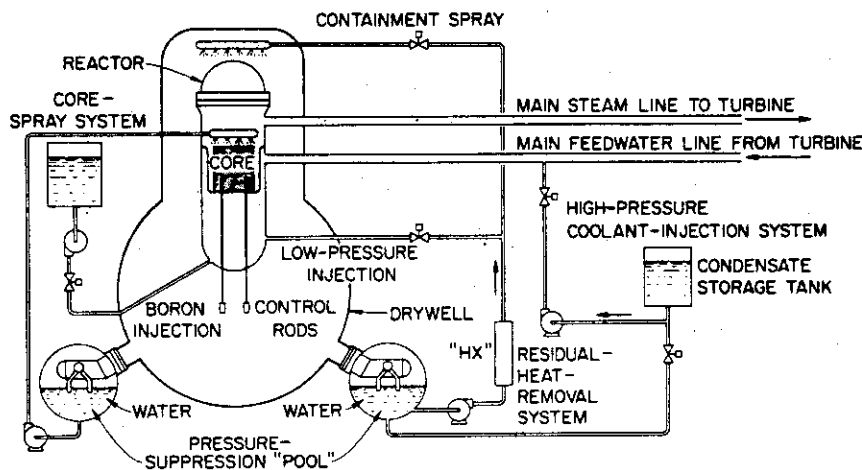


Fig. 2.2-1 BWR emergency core-cooling system

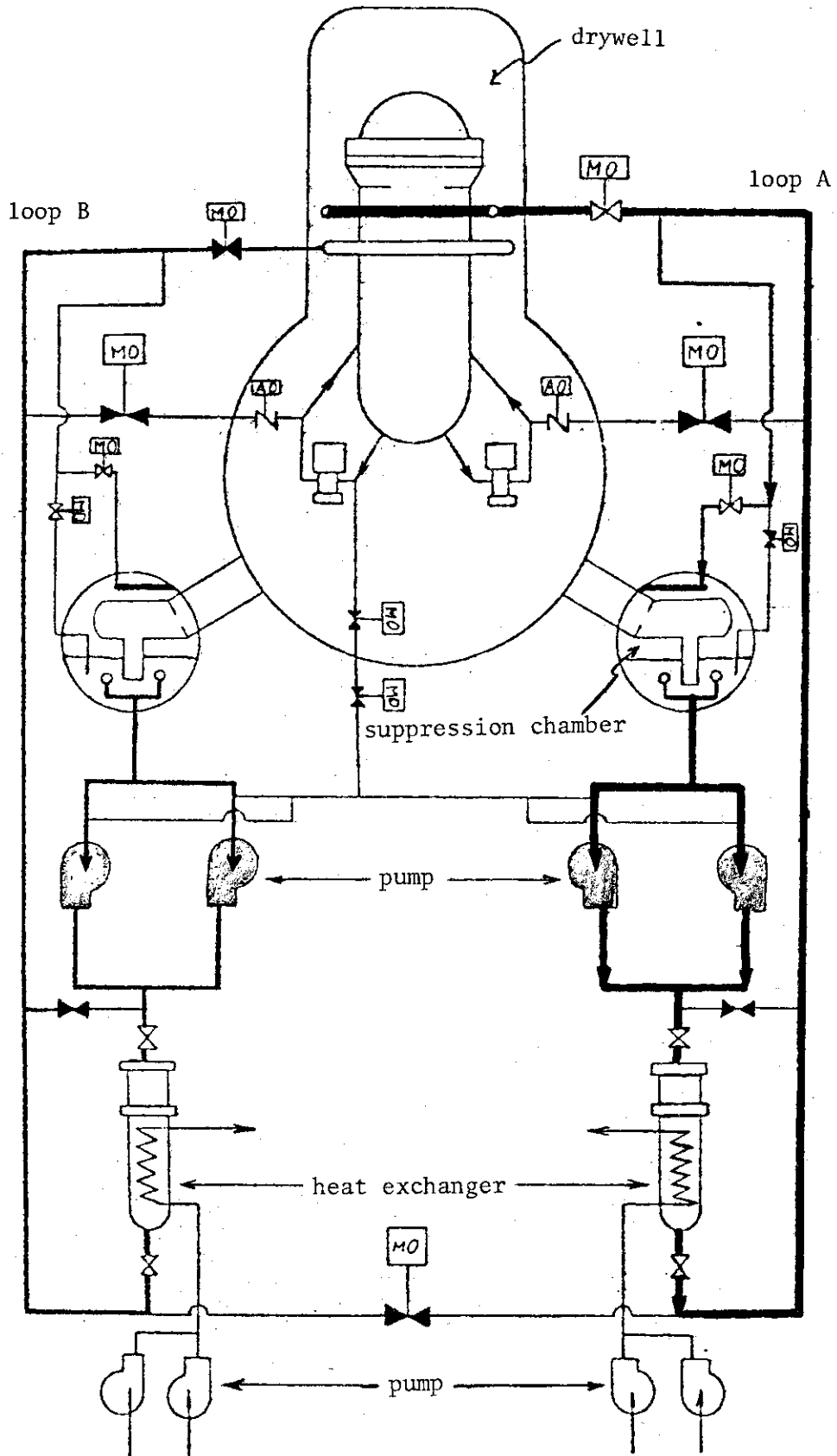


Fig. 2.2-2 Schematic diagram of containment spray system of MARK-I (780MWe)

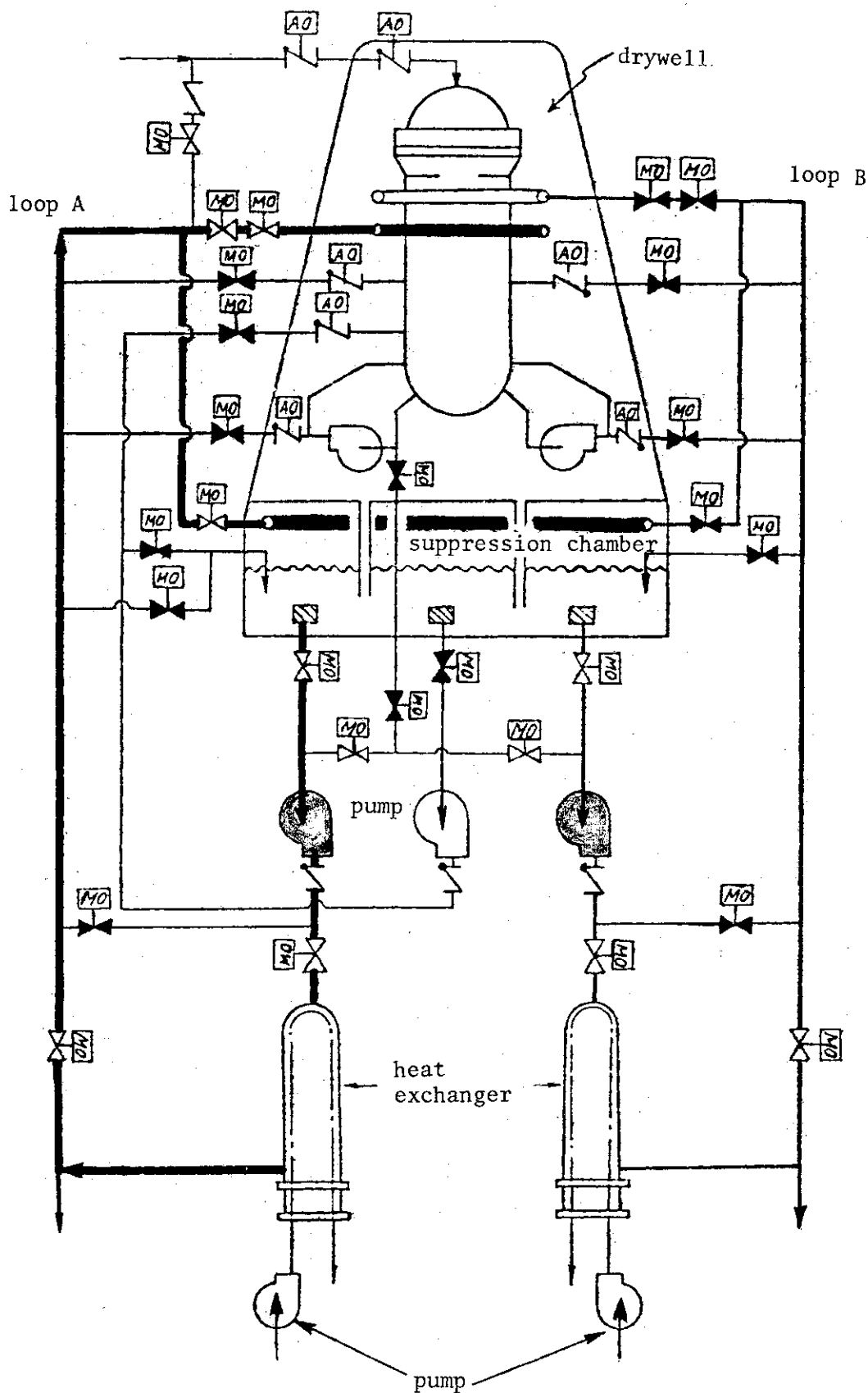


Fig. 2.2-3 Schematic diagram of containment spray system of MARK-II (1100MWe)

3. 格納容器スプレイに関する国内外の研究調査

気体と液体の直接接触による伝熱操作は、古くから空気調和および多孔板型混合式復水器で行われてきた。しかしながら、原子炉冷却系の破損によって原子炉格納器内に出来る水蒸気と空気の混合気体は、空気調和で対象となるものより蒸気濃度が大であり、復水器で対象となるものより空気濃度が大である。空気調和および復水器については多くの教科書で紹介されているので、ここでは格納容器スプレイに関する国内外の研究を紹介する。

なお、格納容器スプレイに関する研究を紹介したものとしては、Transactions of the American Nuclear Society, Vol. 13, 202 (1970), Nuclear Technology, Vol. 10, 399 (1971) およびORNL-4360が挙げられる。

3.1 バテルメモリアル研究所^{3,4)}

バテルメモリアル研究所では、AECのNuclear Safety Programの一部として、冷却材喪失事故(LOCA)時の実証データを得るため、1964年~1970年の6年半にわたり、Containment System Experiment (CSE) Programとして研究が行われた。

1000MWe級原子炉の約1/5の工学的規模の実験装置が用いられ、主に次の諸点に関する実験ならびに解析が行われた。

- (1) 格納容器からの漏洩に関する研究
- (2) 事故時の核分裂生成物の格納容器内における挙動に関する研究
- (3) ブローダウンに関する研究

格納容器スプレイの効果は、上記(2)項の一部として、主に核分裂生成物の水洗除去効果の研究が行われた。本報告では格納容器スプレイに関する研究についてのみ紹介する。

CSEに関する詳細な研究結果は、Appendix 3.1-1に紹介した文献を参照されたい。

3.1.1 実験装置^{5,6,7)}

本研究では、得られた実験データが実炉に十分適用されるように、1000MWe級原子炉の約1/5の工学的規模の格納容器が使用された。

Fig. 3.1-1に実炉と実験装置の比較を示す。また、圧力容器の比較をFig. 3.1-2に示す。これらより、CSE実験装置は軽水炉の安全性研究用としては、最も大きな装置であることがわかる。

Fig. 3.1-3に実験装置の概略図を、またTable 3.1-1に実験装置本体の諸元を示す。

さらにFigs. 3.1-4, 3.1-5, 3.1-6に各種のサンプリング系を、Fig. 3.1-7にはメイパックの構造を示す。メイパックではヨウ素形まで完全に分析できないが、十分なキャリブレーションを行うことによって、実験中の元素状ヨウ素およびメチルヨウ素の分析に対し、十分な信頼度が得られた。しかしながら、粒子状や他の無機および有機ヨウ素に対しては、正確な分析は不可能であった。

Fig. 3.1-8にエアロゾルの放出系を示す。本実験で使用されたヨウ素濃度は、1000MWe級PWRの仮想事故時(燃料100%溶融、希ガス100%、ハロゲン50%、固形分1%放出)の値より決定された。

スプレイ系は、次の諸点を配慮して設置された。

- (1) 格納容器横断面にスプレイ液が一様に分散されること。
- (2) 格納容器壁へのスプレイ液飛散は最小限にすること。
- (3) 流量およびノズル圧の制御が可能なこと。
- (4) ある一定期間の連続スプレイが可能なこと。
- (5) 格納容器内の一部に対するスプレイが可能なこと。

Table 3.1-2 に実験に使用されたスプレイノズルの型式および使用条件を、Fig. 3.1-9 にそれらのノズルの特性を示す。

3.1.2 実験結果^{8,9)}

まず、スプレイを行わない場合の模擬FP濃度の経時変化に関する実験が行われ、ついでスプレイによる模擬FPの水洗除去実験が行われた。それらにより正味のスプレイによる模擬FPの除去効果が評価された。

3.1.2.1 自然収着実験 (natural transport tests)

スプレイを行わない場合のFPの濃度変化は、主にガス状および粒子状FPの容器表面への沈着 (deposition) と粒子状FPの重力による沈降によって起こされる。燃料の過熱によって生じる微粒子そのものにとっては重力沈降の効果はほとんどないが、微粒子は凝集ならびに水分の吸収によって大きな粒子に成長するので、微粒子に対し重力沈降もかなりの有効性を示す。

本研究では、FPの除去速度に対するFP濃度、容器寸法、熱流束、蒸気供給等の影響が研究された。

(i) ヨウ素

Table 3.1-3 に自然収着実験 (natural transport tests) の実験条件を示す。

一例として、Fig. 3.1-10 にRun A-11における無機ヨウ素の濃度変化を示す。他の実験とは異なり、Run A-11ではヨウ素注入後2分で蒸気供給が止められたが、最初の3時間は他の実験と同じ濃度変化を示した。

Table 3.1-4 に実験結果を示す。

またTable 3.1-5には、初期半減時間の実測値と、ガス境膜物質移動律速モデルによる計算値の比較を示す。計算値は実測値の約95%であり、計算に使用されたモデルの妥当性を示している。

(ii) ウランおよびセシウム

ウランおよびセシウムは、凝縮水を含む浮遊粒子として格納容器内に存在し、物質移動によって格納容器垂直壁に、重力によって水平面に沈着する。

Run A-5におけるセシウムの濃度変化をFig. 3.1-11に示す。初期半減時間 $t_{1/2}$ は38分である。他の実験についても同様な結果が得られた。

ウランに対してもセシウムの場合と同様な濃度半減時間が得られた。

Table 3.1-6に、放出されたセシウムのうち垂直壁に沈着する量と、水平な床面に沈着する量の割合を示す。重力沈降による床面への沈着量が大部分であり、垂直面に比し床面の面積が小なることを考え合わせると、気相部のFP除去に対して重力沈降が大きな役割を占めていることがわかる。

以上の自然収着実験 (natural transport tests) より、次の諸点が明らかにされた。

- (1) 除去過程の初期には、除去速度の実測値と自然対流物質移動モデルによる計算値は良い一致を示した。

- (2) 初期の除去速度は、気相濃度が初期濃度の1%になるまで持続された。
- (3) 自然対流物質移動モデルによって、大型PWRにおける無機ヨウ素の2-hour DRF (dose reduction factor) を求めると、約2.6の値が得られた。
- (4) メチルヨウ素の濃度変化は緩慢であり、1日後の平均除染係数として1.7が得られた。
- (5) セシウムおよびウランは主に重力沈降によって除去された。
- (6) 実験結果に基づき、大型PWRにおけるエアロゾルの2-hour DRFは1.5と推算された。
- (7) 全てのFPの濃度は、一つのコンパートメント内では一様であった。しかし、気相部を強制的に流動させることはなかったため、コンパートメント間には大きな濃度差が存在した。

3.1.2.2 スプレイによるFPの除去

格納容器スプレイの最も重要な役割は、容器内の蒸気を凝縮させて圧力を低下させることにより、格納容器の健全性を保つことである。また、格納容器気相部からFPを除去し、原子炉から大気中へのFPの放出を低減することも重要な役目である。

(i) 実験条件

CSEのスプレイ実験では、スプレイ効果に影響を与えると思われる諸因子の効果を調べるため、6回の実験 (Runs A-3, 4, 6, 7, 8, 9) が行われた。実験条件をTable 3.1-7に、スプレイ流量および溶液の種類をTable 3.1-8に、スプレイ時期をTable 3.1-9に、また実験中の格納容器内の雰囲気量をTable 3.1-10に示す。さらにTable 3.1-11には、実験に際して注入された模擬FP量を示す。

CSEでは、上述のパラメータ実験のみならず、想定事故時と同じくスプレイを長時間連続的に作動させた場合の実証試験も2回 (Runs A-10, 12) 行われた。その実験条件をTable 3.1-12に、また実験に際して注入された模擬FP量をTable 3.1-13に示す。

Table 3.1-14には、各実験に対して測定されたスプレイ液の分散状態を示す。

(ii) 格納容器内の温度、圧力変化

CSE計画の主な目的は、スプレイによるFPの除去であるが、圧力低下に関する実験データも得られた。

スプレイ前後における温度、圧力についてはTable 3.1-10に述べたが、その変化の様子をFig. 3.1-12に示す。水蒸気分圧は空気の物質収支に基づいて計算されたが、測定誤差の範囲で気相の温度より求められた飽和蒸気圧と一致した。また、スプレイ滴による水蒸気-空気混合系の冷却乾燥によって蒸気が過熱されることはなかった。

詳細な熱収支は計算されなかったが、Table 3.1-15にRun A-7の第1回目のスプレイにおける熱収支を示す。スプレイの熱吸収率としては85%が得られた。

Fig. 3.1-13には、連続スプレイ実験における温度、圧力変化を示す。初期スプレイ (fresh spray) により格納容器内の温度、圧力は急激に減少するが、容器内に蒸気を連続的に供給しているため、スプレイ水の循環使用によって、格納容器内の温度はスプレイ開始時の温度に漸近していくことがわかる。

(iii) 格納容器内の混合状態

10'分間のヨウ素注入終了直後に、ドライウエルを含むメインルーム12個所で試料を採取し分析した結果、その標準偏差は約±10%であった。これはサンプリング誤差程度であるため、格納容器内の気相は急速に混合されると

考えられる。そこで、メインルームの濃度としては12個所の測定値の平均値のみを用いて実験結果はまとめられた。しかしながら、本実験ではルーム間での気相の移動は強制的に行われなかったため、メインルーム、ミドルルーム、ロワールーム間には、Fig. 3.1-14に示されるように大きな濃度差が存在した。

スプレイノズル上部の非スプレイ領域にもメイパックが取り付けられ、スプレイ領域のFP濃度との比較検討が行われた。

Run A-3ではメインルーム空間部の50%が、他の実験ではその80%がスプレイ水によって洗浄されたが、Table 3.1-16に第1回目の初期スプレイ (fresh spray) におけるスプレイ域と非スプレイ域の濃度変化を示す。同表より、単一空間部ではすべてのヨウ素化合物は均一に混合されていることがわかる。

(V) 水洗速度定数 (washout rate constant)

詳細な実験データは Appendix 3.1-1 に挙げた文献を参照されたい。ここでは概略のみを紹介する。

Run A-7における各種模擬FP濃度の時間変化、および格納容器内での分布をFigs. 3.1-15~3.1-26に示す。またTables 3.1-17~3.1-23に各実験における各種模擬FP濃度の半減時間を示す。

Figs. 3.1-15~3.1-26に示されるように、スプレイによるFPの減少速度はほぼ1次反応則に従うので、FPの減少速度は次式で表わされる。

$$\frac{C_g}{C_{g0}} = \exp(-\lambda_T t) \quad (3.1-1)$$

ここで

$$C_g = \text{時間 } t \text{ における気相濃度} \quad [\text{mol/m}^3]$$

$$C_{g0} = \text{スプレイ開始時の気相濃度} \quad [\text{mol/m}^3]$$

$$\lambda_T = \text{総括除去速度定数} \quad [\text{hr}^{-1}]$$

$$t = \text{スプレイ時間} \quad [\text{hr}]$$

しかし、スプレイ中にも格納容器内壁面へのFPの自然収着 (natural removal processes) が行われているので、 λ_T は次式で表わされる。

$$\lambda_T = \lambda_S + \lambda_N \quad (3.1-2)$$

ここで

$$\lambda_S = \text{スプレイによる水洗速度定数} \quad [\text{hr}^{-1}]$$

$$\lambda_N = \text{自然収着による除去速度定数} \quad [\text{hr}^{-1}]$$

自然収着によるFPの除去速度は、恐らくスプレイによって影響をうけるはずであるが、スプレイによる除去速度は自然収着による除去速度を大きく上まわるので、自然収着効果はスプレイ前後の測定値の平均値で評価された。

Table 3.1-24には、このようにして求めた第1回目のスプレイにおける水洗速度定数 λ_S を示す。メチルヨウ素の水洗速度が非常に遅いことがわかる。

また、チオ硫酸ナトリウム水溶液を用いた場合 (Table 3.1-8 参照) のメチルヨウ素の半減時間を、Table 3.1-25に示す。苛性のホウ酸水溶液ではメチルヨウ素の半減時間は約12時間であるが、チオ硫酸ナトリウムを加えることによって、水洗速度は約10倍に増加している。

また、メチルヨウ素のスプレイ液への吸収は、液相側の物質移動律速過程であるので、元素状ヨウ

素の場合よりも壁面への沈着が重要になる。

液相中での化学反応により、ヨウ素の平衡分配係数は時間とともに増加する。Table 3.1-26に、長時間の循環スプレイにおける元素状ヨウ素の平衡濃度比を示す。Runs A-4, 6, 8, 10は苛性のホウ酸水を、Run A-7ではホウ酸水(pH 7)を、Run A-12では1%チオ硫酸ナトリウム水溶液を添加した苛性のホウ酸水が使用された。

Table 3.1-27にスプレイによる水洗効果と自然収着効果の複合効果による除染係数を示す。元素状ヨウ素および粒子状ヨウ素は約1000、活性炭紙に吸着されるヨウ素は約10、メチルヨウ素は約2、セシウムは約1000、ウランは約500の除染係数を示している。全ヨウ素としては、空気中の実験では15、空気-水蒸気の混合系では約200の除染係数が得られた。水蒸気雰囲気下での除染係数の大幅な増加は、高温場ではメチルヨウ素の除去速度が非常に増加するためである。

Table 3.1-28に液中に捕集された模擬FP量と、気相より除去された模擬FP量との比較を示す。液中に捕集されたFP量が気相から除去されたFP量より大であるが、実験誤差の範囲内で両者は一致しており、気相濃度のメイバックによる分析結果から、ヨウ素およびセシウムのスプレイ液中への移動速度を計算してもよいことを示している。

Fig. 3.1-27にヨウ素の気液分配係数Hの時間変化を示す。ここで分配係数Hは次式で定義される。

$$H = \frac{C_l}{C_g} \quad (3.1-3)$$

C_l = 液中のヨウ素濃度 [mol/m³]

C_g = 気相中のヨウ素濃度 [mol/m³]

初期スプレイの非常に速い反応に続く緩慢な反応により、分配係数Hはt=0における5800より連続的に増加する。

Fig. 3.1-28に、液中のヨウ素濃度と瞬間気液分配係数の関係を示す。○印は、pH 9.5, 120°C, 48 psiaで行われたColeman¹⁰⁾の実測値を、破線は、pH 9.5, 125°Cに対してParsly¹¹⁾によって計算されたEggleton¹²⁾の理論値を示す。低濃度域でEggletonの理論値が大きいことを示している。これはEggletonの理論では、元素状ヨウ素のみが揮発性無機ヨウ素であると仮定したためである。また、Fig. 3.1-28より、苛性ホウ酸水を用いれば液中のヨウ素濃度全域に対してH₀ > 5500であることがわかる。

(M) 粒子寸法の測定

格納容器気相中の粒子の寸法分布が、Run A-3を除く他の実験で測定された。

空気系に対するRun A-4では、格納容器内の試料が短管で吸引され、Cassella^{注1)} type impactorを用いて粒子寸法が測定された。加圧下の空気-水蒸気系である他の実験では、Scientific Advances^{注2)} type inertial impactorを格納容器内に直接挿入して粒子径が測定されたが、インパクターに水蒸気が凝縮するのを防ぐため、挿入前に300°Fに予熱された。

Table 3.1-29に粒子寸法の測定結果を示す。一般的に空気力学的重量基準中央径(aerodynamic

注1) C. F. Cassella & Co., Ltd., London, England.

注2) Scientific Advances, Inc., Columbus, Ohio.

mass median diameter) は、セシウム、ウランともにスプレイによって減少する。粒子には凝縮水が付着していると考えられるが、サンプラーの予熱並びにインパクターのオリフィスによる減圧効果等によって水分が蒸発するので、Table 3.1-29中の値は恐らく実際の値より小であると考えられる。

(V) 試料片への沈着

非凝縮面へのFPの沈着速度を測定するため、気相部数個所に種々の材料の試料片が吊るされた。数個の試料は壁面に圧着され、伝熱の沈着速度におよぼす影響が測定された。

Table 3.1-30にヨウ素の沈着量を、Table 3.1-31にはセシウムの沈着量を示す。空気系における実験(Runs A-3, 4)においてヨウ素およびセシウムの沈着量が多いのは、銀、フェノライン302、アマコート66、炭素鋼、SS-304の順である。水蒸気-空気系においてヨウ素の沈着量が多いのは、炭素鋼、フェノライン302、アマコート66、銀、SS-304の順である。水蒸気-空気系においてセシウムの沈着量が多いのは、フェノライン302、アマコート66、炭素鋼、銀、SS-304の順である。各試料毎に順位に多少の変動があるが、これは実験時の雰囲気、温度、初期気相濃度、スプレイ液添加物の影響である。

沈着面の傾斜、長さ、位置、伝熱等が沈着速度に影響与えるので、小さな試料片による実験データから大きな面への沈着速度を正確に証価することはできない。しかしながら、物質収支をチェックするため、本研究では試料片に対する実験データがそのままCSEの格納容器全面の沈着量の評価に用いられた。

CSEの格納容器内面は99%以上がフェノライン302で塗装されているので、フェノライン302に対するデータが格納容器内面における沈着量の評価に使用された。その計算結果をTable 3.1-32に示す。

Table 3.1-33には、試料片による実験データを用いて計算した沈着量と、物質収支より求めた沈着量の比較(注入量に対する分率による)を示す。両者はかなり良く一致していると考えられ、物質収支の計算結果の妥当性を示している。

3.1.3 解析モデル^{13,14)}および理論値と実測値の比較検討

3.1.3.1 ヨウ素の除去

バテルメモリアル研究所では、スプレイによるヨウ素除去に関してDL-1モデルを考え解析を行っているが、以下にその概略を述べる。

(i) ヨウ素放出法の検討

DL-1モデルでは、ヨウ素は瞬間的に格納容器内に放出されると仮定された。しかしながら実際には、崩壊熱によって炉心が溶融する場合には、ヨウ素は30分あるいはそれ以上の時間にわたって放出される。

瞬時放出(Puff Release)の場合と30分間放出の場合に対する線量比の計算結果を、Fig. 3.1-29に示す。自然収着(Natural Transport)の際には除去速度定数として約 2 hr^{-1} が得られるが、その場合、瞬時放出に対する線量は30分間放出に対する線量の約1.7倍になっている。(除去速度定数 λ は、初期濃度を C_0 、時間を t として次式で定義される。 $C = C_0 \exp(-\lambda t)$) また、スプレイがある場合には λ として 10 hr^{-1} 以上が得られるが、その場合には1.25倍以下になっている。しかしながら、瞬時放出の仮定はすべての λ に対して保守的(conservative)な結果を与え、さら

にスプレイが無い場合の λ を用いれば、最も保守的な計算結果を与えることがわかる。

(ii) 除去速度定数 λ の時間および濃度依存性の検討

λ の濃度依存性がないということは、一次反応則に従うことを示しており、かつまた平衡状態が存在しないことを示している。このような状態は、瞬時放出 (Puff Release) 下でのスプレイ初期においては非常に良い近似であると考えられる。DL-1モデルでは λ を一定値にしてはいるが、その欠点を補うために打ち切り濃度を設定し、その濃度以下ではスプレイによるFPの除去は行われな
いとして、平衡状態への漸近を考慮している。

Fig. 3.1-30にそれらのようすを示す。 λ および打ち切り濃度を適当に選べば、 λ の値を一定にしても実際の状態をかなり良く表現できると考えられる。

(iii) スプレイ液滴の落下速度の検討

DL-1モデルでは、スプレイ液滴は全落下距離を終端速度で垂直に落下すると仮定している。この仮定によって物質移動表面積の評価が簡略化された。

格納容器内では、スプレイ液滴は鉛直方向に対してある角度で噴霧されるので、鉛直方向に噴霧されるよりは長い軌道をえがいている。また、液滴の速度は最初大きくしだいに終端速度に漸近していく。従って、最初から終端速度で落下する場合より滞留時間は短い、物質移動係数としては大きくなる。結局それらの全効果として、物質移動速度は小さくなる。従って終端速度を用いて計算することは物質移動速度を過大評価することになる。

Rantz & Marshallの式を用いてこれらと比較検討したのがFig. 3.1-31である。実際の格納容器では、落下距離は100 ft、液滴の平均径は1000 μ 程度であるので、噴霧直後から終端速度で落下するとした場合より吸収速度が約5%減少する程度である。しかしながら、小さな実験装置ではこの点が重要な問題となろう。

DL-1モデルでは水平方向の速度成分を無視してあるので、結局はDL-1モデルによっても保守的 (conservative) な値が予測されよう。

(iv) ヨウ素の吸収

格納容器気相部に対する物質収支は次式で与えられる。

$$\frac{dC_g}{dt} = -\frac{F}{V} (C_{\beta 2} - C_{\beta 1}) \quad (3.1-4)$$

ここで

C_g = 時間 t における気相ヨウ素濃度 [mol/m³]

t = スプレイ時間 [hr]

F = スプレイ流量 [m³/hr]

V = 気相の体積 [m³]

$C_{\beta 2}$ = 容器底部でのスプレイ液滴中のヨウ素濃度 [mol/m³]

$C_{\beta 1}$ = ノズル出口でのスプレイ液中のヨウ素濃度 [mol/m³]

Parsly¹⁵⁾によって用いられた吸収効率 E を用いて上式を整理し、さらに H_o および $C_{\beta 1}$ を一定とすれば、次式が得られる。

$$\frac{H_o C_g - C_{\beta 1}}{H_o C_{g0} - C_{\beta 1}} = \exp\left(-\frac{FH_o E}{V} t\right) \quad (3.1-5)$$

ここで

$$E = \frac{C_{\ell 2} - C_{\ell 1}}{H_o C_g - C_{\ell 1}} \quad (3.1-6)$$

であり、 H_o は瞬間気液分配係数である。

初期スプレイ (fresh spray) に対しては $C_{\ell 1} = 0$ であるので

$$\frac{C_g}{C_{g0}} = \exp\left(-\frac{FH_o E}{V} t\right) \quad (3.1-7)$$

E の値は H_o と液滴の落下時間によって大きく変化する。また、液滴内部の循環流によっても E は変化するが、内部循環流の強さを評価することは困難である。

種々の場合に対する E の値は次のとおりである。

剛体球モデル¹⁵⁾ (stagnant drop model, 液滴内部は拡散のみ)

$$E = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{6 \text{Sh} \exp(-\alpha_n^2 \theta)}{\alpha_n^2 [\alpha_n^2 + \text{Sh}(\text{Sh} - 1)]} \quad (3.1-8)$$

ここで

$$\text{Sh} = \text{シャ-ウッド数} = \frac{k_g a}{H_o D_{\ell}} \quad [-]$$

$$\theta = \text{無次元時間} = \frac{D_{\ell} t_e}{a^2} \quad [-]$$

$$\alpha_n = \alpha_n \cot \alpha_n + (\text{Sh} - 1) = 0 \text{ の } n \text{ 番目の根} \quad [-]$$

$$a = \text{液滴の半径} \quad [\text{m}]$$

$$k_g = \text{気相の物質移動係数} \quad [\text{m/hr}]$$

$$D_{\ell} = \text{液相の拡散係数} \quad [\text{m}^2/\text{hr}]$$

$$t_e = \text{スプレイ液滴の落下時間} \quad [\text{hr}]$$

完全混合液滴モデル (well-mixed drop model, 液滴内部は完全混合)

$$E = 1 - \exp\left(-\frac{6 k_g t_e}{2 a H_o}\right) \quad (3.1-9)$$

滞留境膜モデル (stagnant film model)

$$E = 1 - \exp\left(-\frac{6 k_g t_e}{2 a \left(H_o + \frac{k_g}{k_{\ell}}\right)}\right) \quad (3.1-10)$$

ここで

$$k_{\ell} = \text{液相の物質移動係数} \quad [\text{m/hr}]$$

$$\text{DL-1モデル} \quad \left(\frac{6 k_g t_e}{2 a \left(H_o + \frac{k_g}{k_{\ell}}\right)} < 0.1\right)$$

$$E = \frac{6 k_g t_e}{2a \left(H_0 + \frac{k_g}{k_l} \right)} \quad (3.1-11)$$

Table 3.1-34 と Fig. 3.1-32 に、250°F の水蒸気-空気系をスプレイ液滴が90 ft 落下した場合について、完全混合液滴モデルの吸収効率 E (E_q , (3.1-9)) を基準とした滞留境膜モデル (E_q , (3.1-10)) と剛体球モデル (E_q , (3.1-8)) の吸収効率 E の比較を示す。滞留境膜モデルの方が剛体球モデルより保守的 (conservative) な結果を与えることがわかる。

また、Fig. 3.1-33 には、液滴の落下距離による剛体球モデルと完全混合液滴モデルの吸収量比の変化を示す。 $H < 10^2$ では、落下距離が50 ft 以上になれば、液滴内の混合が吸収速度にほとんど影響をおよぼさないことがわかる。さらに $H > 10^4$ では、物質移動に対する液側の抵抗が無視小になるので、液滴内の混合は重要でなくなることがわかる。

250°F の水蒸気-空気系中を500 μ と1000 μ の液滴が落下する場合について、各モデルの吸収効率 E の比較を Figs. 3.1-34, 3.1-35 に示す。これらの図より、DL-1 モデルでは、吸収されたFPによって液滴が飽和されていく状態を考慮していないので、 E の値を大きめに評価していることがわかる。この E の値を大きめに評価する傾向は、DL-1 モデルでは実際よりも大きめの液滴径を入力として使用することによって補正された。

Fig. 3.1-36 に、吸収効率 E に対する液滴径の影響を示す。約1000 μ 以上では滞留境膜モデルとDL-1 モデルの吸収効率は一致するが、小さな液滴径ではDL-1 モデルは滞留境膜モデルより大きな吸収効率を示すことがわかる。さらに、DL-1 モデルでは吸収効率 E はほぼ $1/d^{2.2}$ に比例しているの、代表平均径は面積平均径に近い値であると考えられる。

次に吸収効率 E の温度依存性を Fig. 3.1-37 に示す。直径1000 μ の液滴では、150°F から285°F の温度範囲で吸収効率 E が平均値に対して $\pm 8.5\%$ 変化し、1500 μ では $\pm 19\%$ 変化することがわかる。

Fig. 3.1-38 に水洗速度定数 λ の気液分配係数 H による変化を示す。 $H < 10^3$ では、両モデルとも λ と H は直線関係になり、また $H > 10^5$ では、両モデルともほぼ同じ値になることがわかる。さらに、 $H > 10^4$ では、DL-1 モデルは λ の H 依存性がほとんど無くなり、また滞留境膜モデルの方がDL-1 モデルより λ の H 依存性が大きいことがわかる。

(M) スプレイ液滴の衝突合体効果

DL-1 モデルでは、液滴の衝突合体の吸収速度への影響を Fig. 3.1-39 に示す係数によって評価している。しかし、Fig. 3.1-39 の根拠は明らかでない。

(N) 理論値と実測値の比較検討

CSE 実験の初期スプレイ (fresh spray) における元素状ヨウ素の水洗速度定数 λ_s の計算結果を Table 3.1-35 に示す。ここで、完全吸収 (perfect sink) モデルとは前出のDL-1 モデルで液相側の抵抗を無視した ($E = \frac{6 k_g t_e}{d H}$) ものであり、体積平均径 (MMD) と面積平均径 (SMD) に対してその値が計算された。計算に使用されたパラメータを Table 3.1-36 に示す。流体の物性としては Knudsen¹⁶⁾ によって得られたものが使用された。

Fig. 3.1-40 に、完全吸収モデルによる水洗速度定数 ($\lambda_s = \frac{6 k_g F h}{V u d}$) と実測による水洗速

度定数の比較を示す。図中の破線は実測値と理論値が一致する場合を示し、実線は最小二乗近似による関係を示している。代表径として体積平均径 (MMD) を用いた場合には、計算値は実測値に比べ約 19% 低い値を示す。一方、面積平均径 (SMD) を用いれば 25% 大きな値を示す。理論的には面積平均径を用いた方が良いはずであるが、計算に用いたデータの精度および実測値の精度を考え併せると、結果はかなり良い一致を示していると言えよう。

剛体球モデル (stagnant drop model) と完全混合液滴モデル (well-mixed drop model) の理論値と実測値の比較を、Fig. 3.1-4.1 に示す。計算に際して、 H_0 の値として 5000 を、代表径として面積平均径 (SMD) を用いた。図中の実線は最小二乗近似によって得られた関係である。液滴内の循環流の効果は小さく、両モデルとも実測値とかなり良い一致を示している。

Fig. 3.1-4.2 に、落下距離による液滴の飽和度の変化を示す。小型の実験装置で得られた結果より大型動力炉の格納容器内における飽和度を正確に評価することは困難であると考えられる。

3.1.3.2 エアロゾル粒子の除去

原子炉炉心の過熱事故時には、格納容器内を固体状の FP がエアロゾル粒子として浮遊する。CS E 計画の目的の一つは、自然収着 (natural transport) によるエアロゾル粒子の除去、および格納容器スプレイ系とフィルター系によるエアロゾル粒子の除去に関するデータを得ることであった。また実験の最終目標は、LOCA 時を模擬した条件下で実験を行い、粒子の挙動に関する解析モデルの適用性を試すことであった。

スプレイによる格納容器内のエアロゾル粒子の捕集は、次の諸機構によって評価される。

(i) 重力沈降 (gravitational settling)

重力沈降によって粒子は水平面に沈積する。十分混合された室内での重力による沈降速度は、粒子の終端沈降速度と考えられる。

$$\text{ここで } V_G = mgB \quad (3.1-12)$$

$$V_G = \text{終端沈降速度} \quad [\text{m/hr}]$$

$$m = \text{粒子の質量} \quad [\text{kg}]$$

$$g = \text{重力の加速度} \quad [\text{m/hr}^2]$$

$$B = \text{粒子の移動度} \quad [\text{hr/kg}]$$

(ii) ブラウン運動 (Brownian diffusion)

非常に小さな粒子は、ブラウン運動によって拡散輸送される。従って、微粒子はガス同様の挙動を示すが、その拡散係数は非常に小である。

微粒子の拡散係数は Einstein の式¹⁷⁾から計算される。

$$D_p = kTB \quad (3.1-13)$$

ここで

$$D_p = \text{粒子の拡散係数} \quad [\text{m}^2/\text{hr}]$$

$$k = \text{ボルツマン定数} \quad [\text{kg}\cdot\text{m}^2/\text{hr}^2\cdot\text{K}]$$

$$T = \text{絶対温度} \quad [^\circ\text{K}]$$

$$B = \text{粒子の移動度} \quad [\text{hr/kg}]$$

Frössling¹⁸⁾により、終端速度で落下している液滴の付着効率 (target efficiency) は次式で与えられる。

$$E_{BD} = \frac{4 D_p (2 + 0.6 R_e^{0.5} S_c^{0.33})}{d V_t} \quad (3.1-14)$$

ここで

E_{BD}	= ブラウン運動の付着効率	[-]
S_c	= 粒子の拡散係数によるシュミット数	[-]
R_e	= 滴レイノルズ数	[-]
d	= 液滴直径	[m]
V_t	= 液滴の終端速度	[m/hr]

(iii) 慣性衝突 (inertial impaction)

慣性力によって粒子が流線を横切るために、慣性衝突が生じる。球あるいは滴前部への付着効率 (target efficiency) は、粒子の停止距離 (stopping distance) と球の直径比 (ストークス数) の関数である。¹⁹⁾

Rantz & Wong²⁰⁾によって測定された付着効率は、ポテンシャル流れによる計算結果と一致した。

しかし格納容器内で対象となる 2μ 以下の粒子に対して利用できるような付着効率のデータはほとんど与えられていない。ストークス数が 0.0834 以下では、計算により衝突効率 (impaction efficiency) は零になる。

(iv) インターセプション (interception)

インターセプションは粒子の慣性力とは無関係である。液滴の軌道が粒子の半径以内に入れば、粒子は液滴によって捕集される。液滴 (球) のまわりの流れをポテンシャル流れとすれば、インターセプションの付着効率は次式で与えられる。²⁰⁾

$$E_{INT} = 3 \frac{d_p}{d} \quad (3.1-15)$$

ここで

E_{INT}	= インターセプションの付着効率	[-]
d_p	= 球状粒子の直径	[m]
d	= 液滴の直径	[m]

(v) 拡散泳動 (diffusiophoresis)

スプレイ液滴温度は格納容器内温度より相当低いので、スプレイ液滴表面に水蒸気が凝縮される。その結果、スプレイ液滴に向かう水蒸気の流れが起こり、粒子が液滴へと移動される。

すべり流れ (slip flow) の領域における拡散泳動速度は、球形粒子に対して次式で与えられる。²¹⁾

$$\mathbf{V}_D = (1 + \sigma_{12} \gamma_2) \frac{D}{\gamma_2} \nabla \gamma_{1\infty} \quad (3.1-16)$$

ここで

\mathbf{V}_D	= 拡散泳動速度	[m/hr]
σ_{12}	= すべり係数 (slip factor)	[-]
γ_2	= 空気のモル分率	[-]
$\gamma_{1\infty}$	= 気相本体における水蒸気のモル分率	[-]
D	= 空気中の水蒸気の拡散係数	[m ² /hr]

液滴表面での濃度勾配 $\nabla r_{1\infty}$ は、凝縮速度より計算される。 V_D の時間による積分値に液滴表面積を乗じたものが、液滴表面へ運ばれる粒子を含んだガスの体積を与える。

有効付着効率は、近似的に次式で与えられる。

$$E_D = \frac{4(1 + \sigma_{12} r_2) \rho_L a C_{pL} \Delta T_L}{3 Ch \lambda_c} \quad (3.1-17)$$

ここで

E_D	= 拡散泳動による液滴の付着効率	[-]
ΔT_L	= 容器内でのスプレイ液滴の温度上昇	[°K]
ρ_L	= スプレイ液滴の密度	[kg/m ³]
λ_c	= 水 1 モルあたりの凝縮潜熱	[kcal/mol]
C_{pL}	= スプレイ液の比熱	[kcal/kg·°K]
C	= 容器内の全ガスモル濃度	[mol/m ³]
a	= 液滴の半径	[m]
h	= 液滴の落下距離	[m]

(vi) 熱泳動 (thermophoresis)

温度勾配により蒸気凝縮面への粒子の移動が生じ、これを熱泳動という。しかし、格納容器内のような水蒸気 - 空気系では、熱泳動は拡散泳動に比し無視小である。^{22, 23)} 拡散泳動に比し熱泳動が常に無視小というわけではなく、例えば不飽和空気中を落下する液滴では熱泳動が支配的である。

(vii) 荷電粒子の凝集 (electrical attraction)

落下液滴の粒子捕集においては、荷電現象が非常に有効に作用する。もし粒子および液滴の電荷が既知であれば、付着効率 (target efficiency) を計算することができる。²⁴⁾ Kraemer & Johnstone²⁴⁾ は実測値を得て計算値との比較検討を行い、理論の妥当性を示した。

CSEでは粒子の電荷は非常に小さく、電荷による凝集効果は粒子の捕集にほとんど影響を与えなかった。²⁵⁾

(viii) 理論値と実測値の比較検討

計算結果を Fig. 3.1-4.3 に示す。2 μ 以上では慣性衝突が支配的であることを示している。また、約 0.1 μ で最小捕集効率を示している。拡散泳動は本質的には粒子径に無関係であるが、0.01 ~ 1 μ の粒子に対しては支配的な捕集機構になっている。

CSEの実験結果と理論値の比較を Fig. 3.1-4.4 に示す。図中のデータの添字は、最初の数字が Run No を、2 番目の数字がスプレイ時期を表わしている。(例えば、71 は Run A-7 の第 1 スプレイを示している。) 実測値はすべて理論値より大きな値を示している。これは、カスケードインパクターによる粒子径測定に際し、粒子に含まれた水分が蒸発したため、粒子径を小さめに測定したためであると考えられる。

3.1.4 結論

バテルメモリアル研究所の CSE のスプレイ実験より次の結論が得られた。

(1) スプレイ初期における元素状ヨウ素の除去速度については、平均スプレイ液滴径を用いた気相物質移動律速モデルの解析結果と実測値は良い一致を示した。

(2) 250 °F でスプレイ液を 20 時間循環させた実験では、ヨウ素がスプレイ液から放散される

ことはなかった。これは液相中の化学反応により、不揮発性のヨウ素化合物が生じているためである。

(3) 大型PWRの2-hour DRF (dose reduction factor) は、元素状ヨウ素に対して約50と推算された。

(4) 苛性の(ホウ酸+チオ硫酸ナトリウム)水溶液によるメチルヨウ素の除去は、化学反応律速モデルによる解析結果と良い一致を示した。

その除去速度は大きな温度依存性を示し、またスプレイ液滴よりも容器壁面を落下する液膜が除去速度に有効であった。

メチルヨウ素に対する2-hour DRFは、大型のPWRに対して約1.5と推算された。

(5) エアロゾル粒子の除去に対し、スプレイは有効に作用した。

粒子の凝集や水の吸着等により、最大想定事故時に生じる粒子はCSE容器内で生じる粒子よりも大であると考えられる。

CSEの実験データより、大型PWR格納容器の2-hour DRFは、保守的 (conservative) に評価して、12.2と推算された。

APPENDIX 3.1-1 LISTING OF PUBLICATIONS ISSUED BY THE CSE PROGRAM

Topical Reports

1. G. J. Rogers. "Program For Containment Systems Experiment. A Summary of Hanford Laboratories Progress During 1964 Under General Electric and Program for Future Work", HW-83607, Hanford Atomic Products Operation, Richland, Washington, September 1964, 40 p.
2. C. E. Huck, "Instrumentation Development for the Containment Systems Experiment." BNWL-26, Battelle-Northwest, February 1965.
3. B. M. Johnson. "Containment Systems Experiment Part III. Mathematical Models of Pressure-Temperature Transients," BNWL-233, Battelle-Northwest, May 1966, 142 p.
4. N. P. Wilburn, and L. D. Coffin, "The Combination of On-Line Analysis with Collection of Multicomponent Spectra in a PDP-7," BNWL-CC-700, Battelle-Northwest, July 1966.
5. L. D. Coffin, "On-Line Computer Storage and Retrieval of Processed Gamma Spectra Data," BNWL-506, Battelle-Northwest, July 1967.
6. W. R. Weissenberger and E. L. Wells; "Computer Retrieval of CSE Multiplexer Data," BNWL-693, Battelle-Northwest, September 1967.
7. P. C. Owzarski, "Fortran IV Computer Program for Calculating Transient Heat Transfer Coefficients from Wall Temperatures," BNWL-552, Battelle-Northwest, October 1967.
8. E. L. Wells, "UNIVAC 1108/PDP-7 Magnetic Tape Compatibility Program I," BNWL-610, Battelle-Northwest, December 1967.
9. H. D. Collins, "Sonic Anemometer for Harsh Environments," BNWL-604, Battelle-Northwest, January 1968.
10. N. P. Wilburn, "Multiplexer Codes for the PDP-7," BNWL-597, Battelle-Northwest, February 1968.
11. R. K. Hilliard, L. F. Coleman, and J. D. McCormack. "Comparisons of the Containment Behavior of a Simulant With Fission Products Released From Irradiated UO₂", BNWL-581, Battelle-Northwest, Richland, Washington, March 1968, 140 p.

12. J. G. Knudsen and R. K. Hilliard. "Fission Product Transport by Natural Processes in Containment Vessels", BNWL-943, Battelle-Northwest, Richland, Washington, January 1969, 90 p.
13. L. F. Coleman. "Preparation, Generation, and Analysis of Gases and Aerosols For the Containment System Experiment", BNWL-1001, Battelle-Northwest, Richland, Washington, April 1969, 95 p.
14. J. D. McCormack. "Maypack Behavior in the Containment Systems Experiment--A Penetrating Analysis", BNWL-1145, Battelle-Northwest, Richland, Washington, August 1969, 44 p.
15. M. E. Witherspoon and G. J. Rogers. "Air Leakage Rate Studies on the CSE Containment Vessel", BNWL-1028, Battelle-Northwest, Richland, Washington, September 1969, 121 p.
16. R. K. Hilliard, L. F. Coleman, C. E. Linderoth, J. D. McCormack and A. K. Postma. "Removal of Iodine and Particles From Containment Atmospheres by Sprays--Containment Systems Experiment Interim Report", BNWL-1244, Battelle-Northwest, Richland, Washington, February 1970, 196 p.
17. C. E. Linderoth. "Containment Systems Experiment Part I. Description of Experimental Facilities", BNWL-456, Battelle-Northwest, Richland, Washington, March 1970, 100 p.
18. J. G. Knudsen. "Properties of Air-Steam Mixtures Containing Small Amounts of Iodine", BNWL-1326, Battelle-Northwest, Richland, Washington, April 1970, 75 p.
19. N. P. Wilburn, "Void Fraction Profile in a Nuclear Reactor Vessel During Coolant Blowdown", BNWL-1295, Battelle-Northwest, Richland, Washington, April 1970, 137 p.
20. R. K. Hilliard and L. F. Coleman. "Natural Transport Effects on Fission Product Behavior In the Containment Systems Experiment", BNWL-1457, Battelle-Northwest, Richland, Washington, December 1970, 181 p.
21. A. K. Postma and L. F. Coleman. "Effect of Continuous Spray Operation on the Removal of Aerosols and Gases in the Containment Systems Experiment", BNWL-1485, Battelle-Northwest, Richland, Washington, December 1970, 127 p.
22. R. T. Allemann, A. J. McElfresh, A. S. Neuls, W. C. Townsend, N. P. Wilburn, M. E. Witherspoon. "Experimental High Enthalpy Water Blowdown From a Simple Vessel Through a Bottom Outlet", BNWL-1411, Battelle-Northwest, Richland, Washington.

23. R. T. Allemann, A. J. McElfresh, A. S. Neuls, W. C. Townsend, N. P. Wilburn, M. E. Witherspoon, "High Enthalpy Blowdown of a Reactor Simulator Vessel Containing a Perforated Sieve Plate Separator", BNWL-1463, Battelle-Northwest, Richland, Washington, February 1971, 273 p.
24. R. T. Allemann, A. J. McElfresh, A. S. Neuls, W. C. Townsend, N. P. Wilburn, M. E. Witherspoon, "High Enthalpy Blowdowns From a Simple Vessel Through a Side Outlet", BNWL-1470, Battelle-Northwest, Richland, Washington, February 1971, 66 p.
25. R. T. Allemann, A. J. McElfresh, A. S. Neuls, W. C. Townsend, N. P. Wilburn, M. E. Witherspoon, "Coolant Blowdown Studies of a Reactor Simulator Vessel Containing a Simulated Reactor Core", BNWL-1524, Battelle-Northwest, Richland, Washington.
26. W. C. Townsend, "Defect Study - Pressure Vessel CSE Reactor Vessel Simulator", BNWL-1554, Battelle-Northwest, Richland, Washington.
27. M. E. Witherspoon. "Leakage Rate Tests on the CSE Containment Vessel With Heated Air and Steam-Air Atmospheres", BNWL-1475, Battelle-Northwest, Richland, Washington, 67 p.
28. R. K. Hilliard and A. K. Postma. "The Effect of Flow Rate on the Washout of Gases and Particulates in the Containment System Experiment", BNWL-1591, Battelle-Northwest, Richland, Washington.
29. M. E. Witherspoon. "Leakage of Fission Products From Artificial Leaks in the CSE Containment Vessel", BNWL-1582, Battelle-Northwest, Richland, Washington.
30. J. D. McCormack, R. K. Hilliard, A. K. Postma, "Removal of Airborne Fission Products by Recirculating Filter System in the Containment System Experiment", BNWL-1587, Battelle-Northwest, Richland, Washington, June 1971.
31. B. M. Johnson and A. K. Postma. "Containment Systems Experiment Final Program Summary", BNWL-1592, Battelle-Northwest, Richland, Washington.

Other Publications

1. J. D. McCormack and R. K. Hilliard. "Natural Removal of Fission Products Released from UO₂ Fuel in Condensing Steam Environments", CONF-65047, Vol. 1, pp 178-195. International Symposium on Fission Product Release and Transport Under Accident Conditions", Oak Ridge, Tennessee, April 5-7, 1965.
2. R. K. Hilliard and J. D. McCormack. "Fission Product Simulation in the Containment Systems Experiment", CONF-65047, Vol. 1, pp. 588-602. International Symposium on Fission Product Release and Transport Under Accident Conditions," Oak Ridge, Tennessee, April 5-7, 1965.
3. R. K. Hilliard, J. D. McCormack, and L. F. Coleman. "A Comparison of Iodine Containment Behavior-Simulated vs. Irradiated Sources", Am. Nuc. Soc. Trans. 10 (1) June, 1967, p 338.
4. J. M. Batch, G. J. Rogers, and R. K. Hilliard. "The Containment Systems Experiment", Paper presented at 2nd Joint Meeting American Institute of Chemical Engineers, Tampa, Florida, May 19-22, 1968.
5. R. T. Allemann and C. N. Jackson. "Neutron Densitometer for Measuring Void Fraction in Steam-Water Flow", Am. Nuc. Soc. Trans., June 1968.
6. C. E. Linderoth and J. D. McCormack. "Facilities and Procedures for Testing Large Scale Air Cleaning Systems --Containment Systems Experiment", Proceedings of Tenth AEC Air Cleaning Conference, CONF-680821, New York, August 28, 1968, p. 27-54.
7. R. K. Hilliard and J. G. Knudsen, "A Natural-Convection Model for Predicting Elemental Iodine Transport In Containment Vessels", Am. Nuc. Soc. Trans., 11 (2) November, 1968, p. 668.
8. R. T. Allemann. "Dissolved Gas Influence on a PWR Design-Basis Decompression", BNWL-SA-2746, January, 1970, 15 p.
9. R. K. Hilliard and L. F. Coleman. "Removal of Iodine Forms by Sprays in the CSE Containment Vessels", Am. Nuc. Trans., 13, p. 210, June-July, 1970.
10. R. T. Allemann, A. S. Neuls and M. E. Witherspoon. "Measured and Predicted Liquid Levels During Blowdown of a Pressure Vessel", Am. Nuc. Soc. Trans., 12, p. 883, November, 1969.

11. A. K. Postma and J. D. McCormack. "Removal of Aerosol Particles by Sprays in the CSE Containment Vessel", Am. Nuc. Soc. Trans., 13, p. 211, June-July, 1970.
12. A. K. Postma and R. K. Hilliard. "Absorption of Methyl Iodide by Sodium Thiosulfate Sprays", Am. Nuc. Soc. Trans., 12, p. 484, November, 1969.
13. L. F. Coleman and A. K. Postma. "Washout of Gaseous Iodine Species by Falling Drops in a Large Spray Chamber", Paper presented before 1970 Precipitation Scavenging Meeting, June 2-4, 1970, Richland, Washington.
14. J. D. McCormack and R. K. Hilliard. "Scavenging of Aerosol Particles by Sprays in the CSE Containment Vessel", Paper presented before 1970 Precipitation Scavenging Meeting, June 2-4, 1970, Richland, Washington.
15. J. D. McCormack and R. K. Hilliard. "Large Scale Air Cleaning Tests in the Containment Systems Experiment", Proceedings of the Eleventh AEC Air Cleaning Conference, CONF-700816, August 31-September 3, 1970, Richland, Washington, p. 102-125.

Quarterly Progress Reports

BNWL-433	Jan., Feb., March, 1967	July 1967
BNWL-537	April, May, June, 1967	December 1967
BNWL-754	July, Aug., Sept., Oct., 1967	June 1968
BNWL-816	Nov., Dec., 1967, Jan., 1968	September 1968
BNWL-885	Feb., March, April, 1968 -	October 1968
BNWL-894	May, June, July, 1968	October 1968
BNWL-926	Aug., Sept., Oct., 1968	December 1968
BNWL-1009	Nov., Dec., 1968, Jan., 1969	March 1969
BNWL-1084	Feb., March, April, 1969	June 1969
BNWL-1187	May, June, July, 1969	September 1969
BNWL-1266	Aug., Sept., Oct., 1969	December 1969
BNWL-1315-1	Nov., Dec., 1969, Jan., 1970	March 1970
BNWL-1315-2	Feb., March, April, 1970	May, 1970

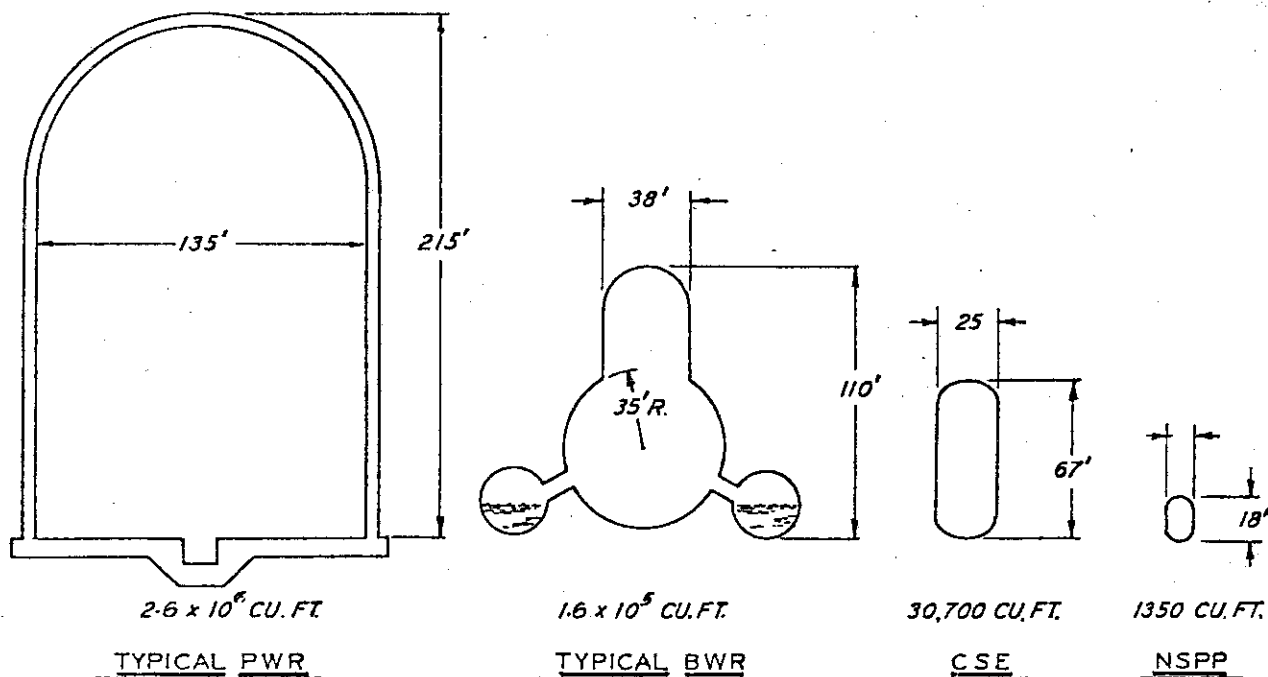


Fig. 3.1-1 Size comparison of experimental containment vessels with typical power reactors

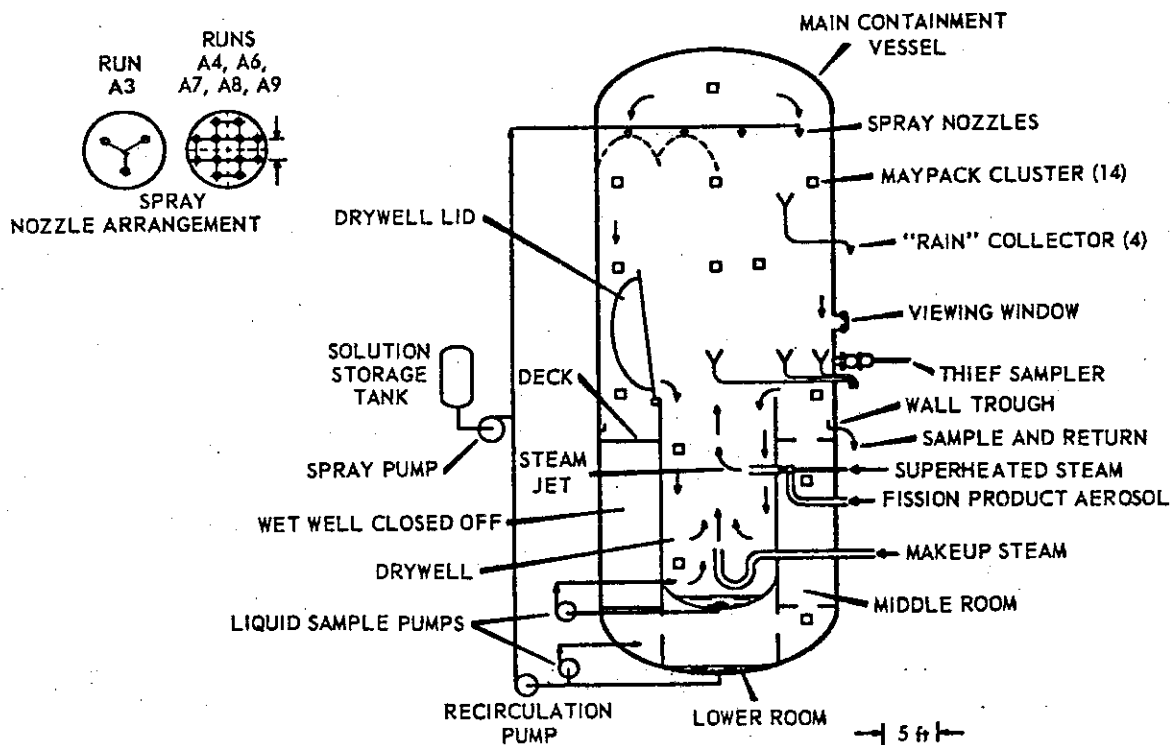


Fig. 3.1-3 Schematic diagram of containment arrangement for CSE spray tests

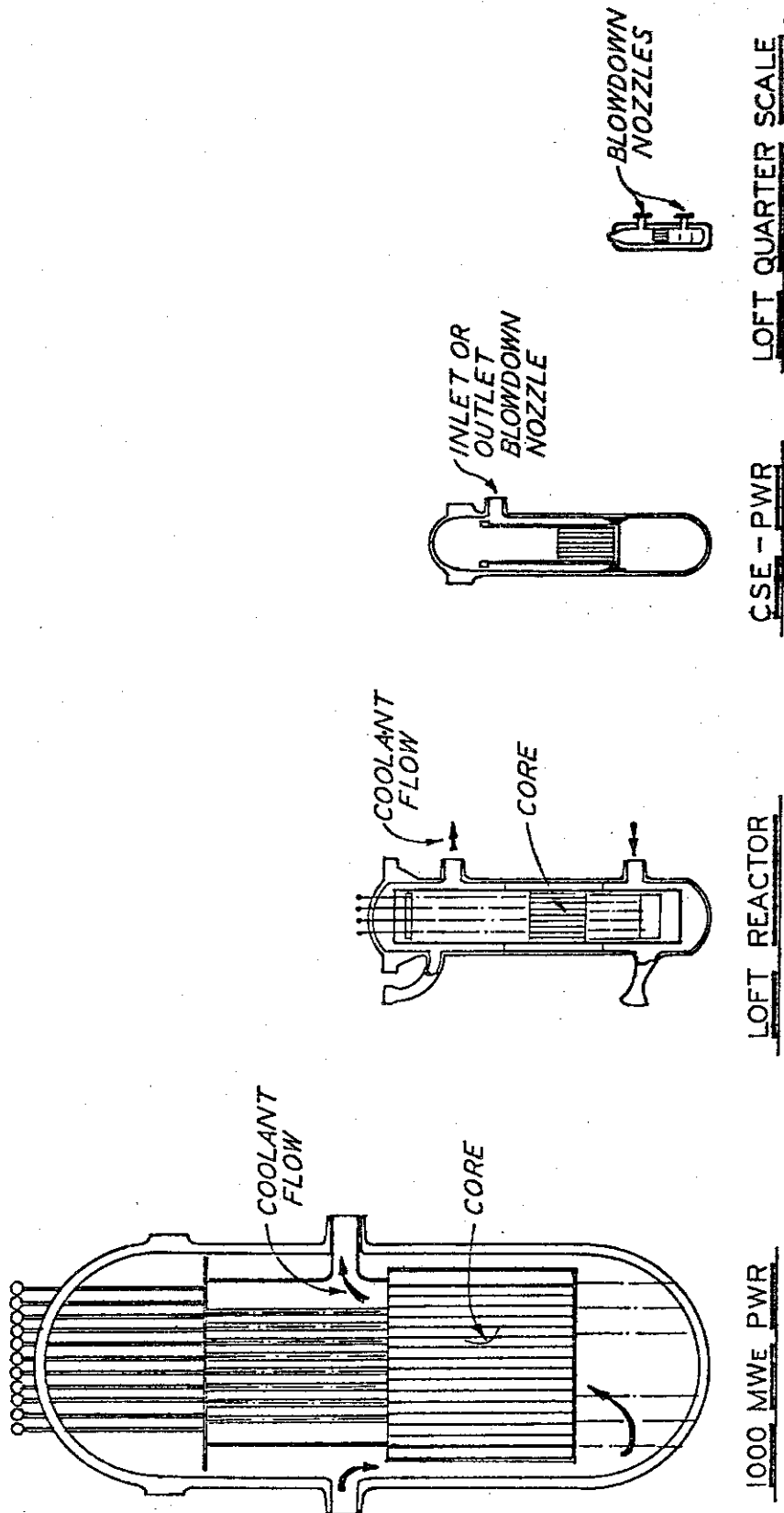


Fig. 3.1-2 Comparison of primary vessel size in experimental facilities with that for a PWR

Table 3.1-1 Physical conditions common to all spray experiments

Volume above deck including drywell	21,005 ft ³	595 m ³
Surface area above deck including drywell	6,140 ft ²	569 m ²
Surface area/volume	0.293 ft ⁻¹	0.958 m ⁻¹
Cross section area, main vessel	490 ft ²	45.5 m ²
Cross section area, drywell	95 ft ²	8.8 m ²
Volume, middle room	2,089 ft ³	59 m ³
Surface area, middle room	1,363 ft ²	127 m ²
Volume, lower room	3,384 ft ³	96 m ³
Surface area, lower room	2,057 ft ²	191 m ²
Total volume of all rooms	26,477 ft ³	751 m ³
Total surface area, all rooms	9,560 ft ²	888 m ²
Drop fall height to deck	33.8 ft	10.3 m
Drop fall height to drywell bottom	50.5 ft	15.4 m
Surface coating	All interior surfaces coated with phenolic paint ^(a)	
Thermal insulation	All exterior surfaces covered with 1-in. fiberglass insulation ^(b)	

a. Two coats Phenoline 302 over one coat Phenoline 300 primer
The Carboline Co., St. Louis, Missouri.

b. $k = 0.027 \text{ Btu}/(\text{hr})(\text{ft}^2)(^\circ\text{F}/\text{ft})$ at 200 °F, Type PF-615,
Owens-Corning Fiberglas Corp.

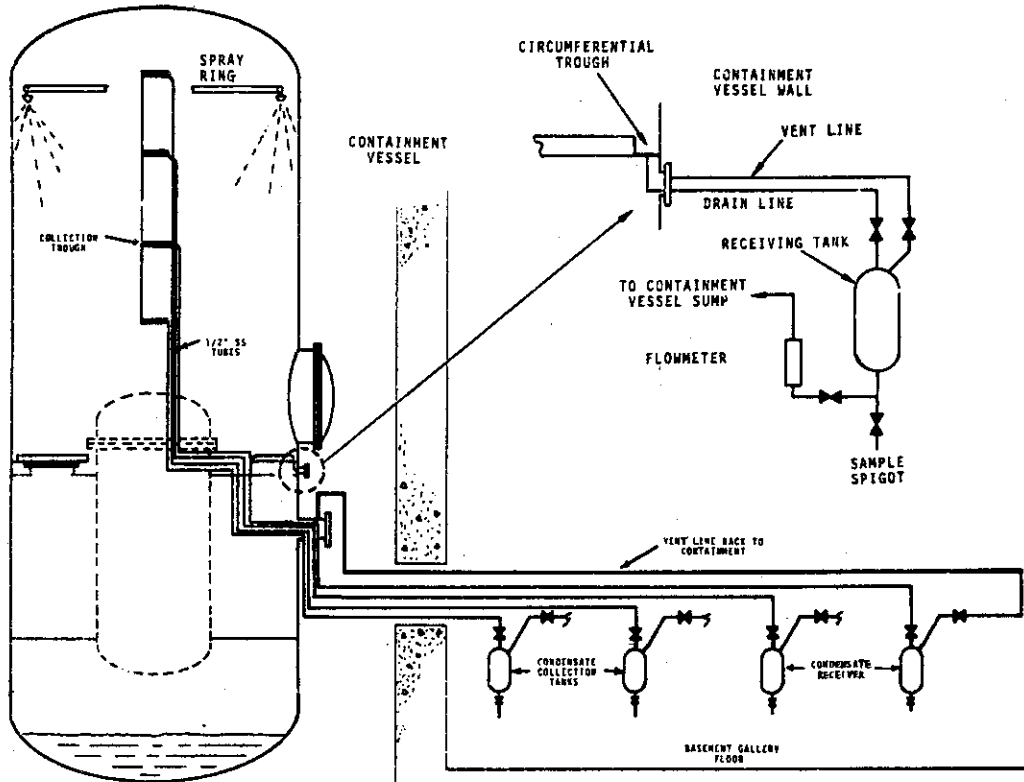


Fig. 3.1-4 Schematic diagram of sampling system to monitor liquid flow on a vessel wall

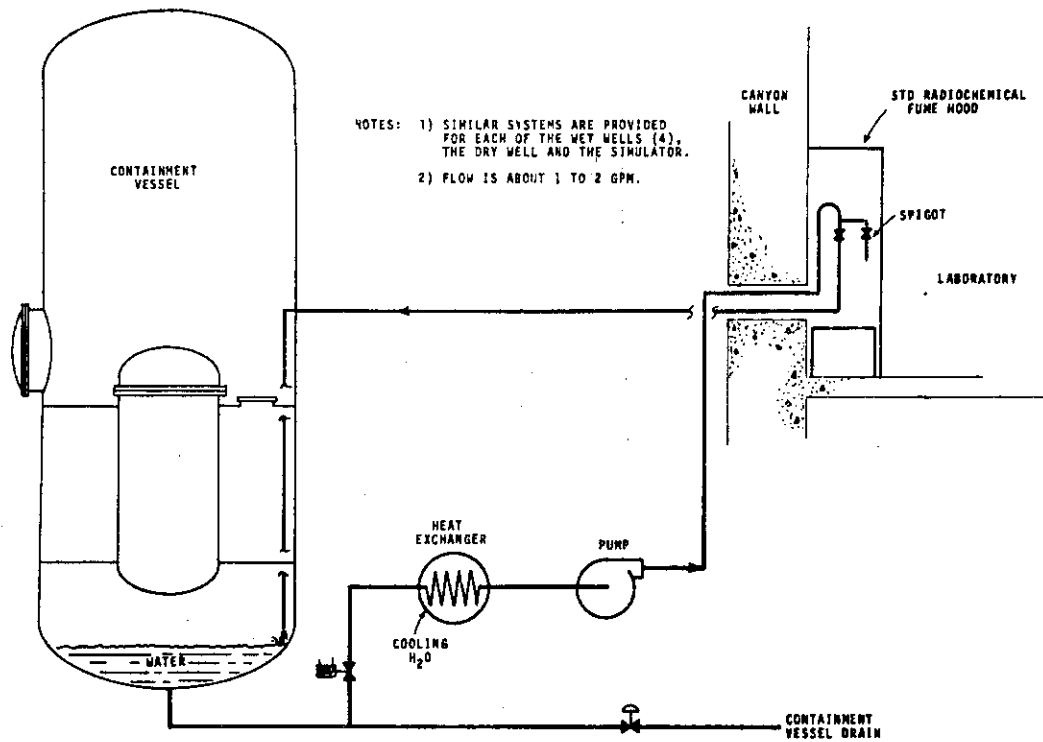
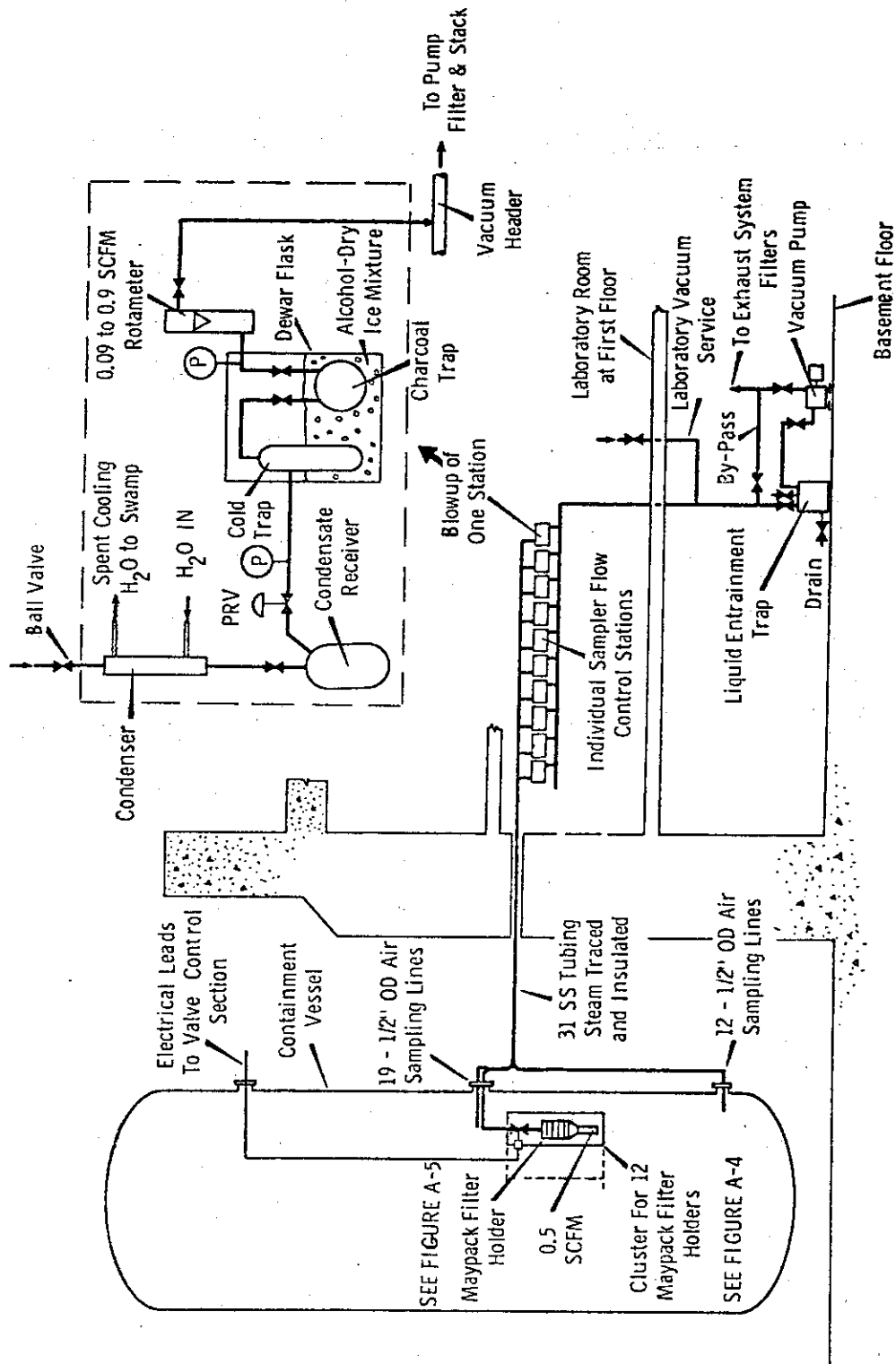


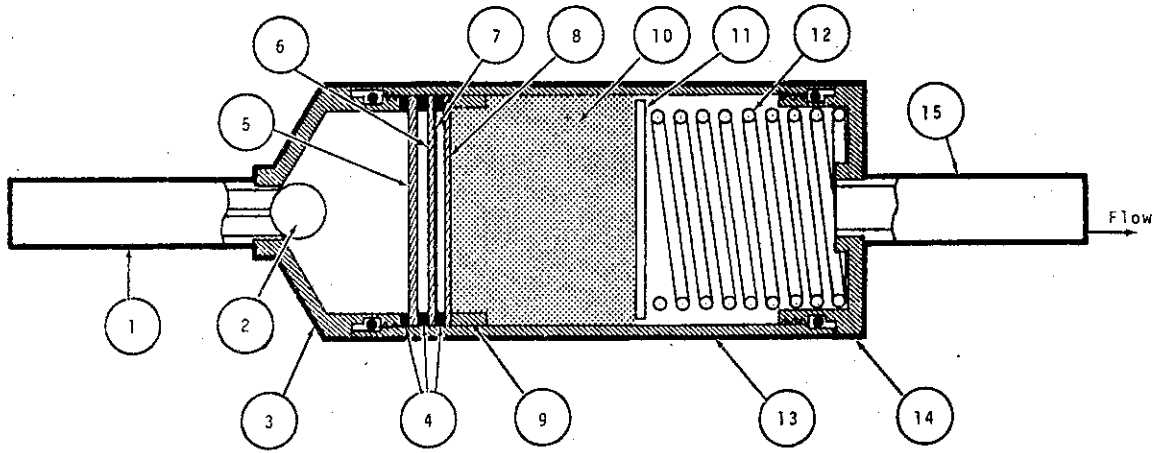
Fig. 3.1-5 Schematic diagram of recirculating liquid sampling system



GENERAL NOTE

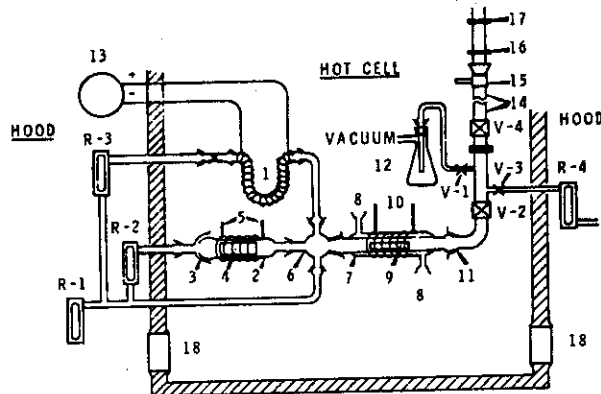
All Air Sampling Lines to the Sampler Stations Shall Be Steam Traced and Insulated to Maintain Air Samples at 250 - 300°F.

Fig. 3.1-6 Schematic diagram of CSE aerosol sampling system



- | | | |
|------------------------|-----------------------------|------------|
| 1 Inlet | 6 Six Silver Plated Screens | 11 Screen |
| 2 Teflon Ball | 7 Silver Membrane Filter | 12 Spring |
| 3 Nose Cone | 8 Charcoal Loaded Filter | 13 Body |
| 4 Teflon Gasket | 9 Stop Ring | 14 End Cap |
| 5 Two Particle Filters | 10 Charcoal Bed | 15 Outlet |

Fig. 3.1-7 Schematic diagram of a CSE maypack showing filter and adsorber arrangement



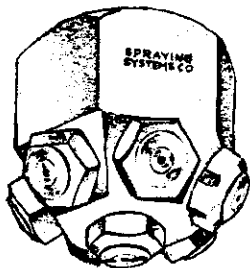
- | | |
|---|---|
| 1. IODINE U-TUBE PLUS CONNECTOR TUBE | 11. STAINLESS STEEL DELIVERY LINE CONNECTOR |
| 2. QUARTZ FURNACE TUBE | 12. 2 LITER VACUUM FLASK |
| 3. QUARTZ TUBE CAP | 13. 120 VOLT-20 AMP. VARIAC |
| 4. NICKEL BOAT CONTAINING CESIUM | 14. DELIVERY LINE |
| 5. TO 20 KW ALLIS-CHALMERS INDUCTION HEATER | 15. STEAM JET |
| 6. UO_2 QUARTZ FURNACE TUBE CAP | 16. CONTAINMENT VESSEL PENETRATION |
| 7. UO_2 QUARTZ FURNACE | 17. DRY WELL PENETRATION |
| 8. WATER JACKET INLET AND OUTLET | 18. ACCESS DOORS TO CAVE |
| 9. UO_2 RESIDUE | |
| 10. TO 50 KW LEPEL INDUCTION HEATER | |
| R-1 2 CFM ROTOMETER | V-1 3/8" BALL VALVE |
| R-2 1 CFM ROTOMETER | V-2 1-1/4" BALL VALVE (1" BORE IN BALL) |
| R-3 1 CFM ROTOMETER | V-3 3/8" BALL VALVE |
| R-4 2 CFM ROTOMETER | V-4 2" BALL VALVE |

Fig. 3.1-8 CSE aerosol release system

Table 3.1-2 Nozzles used in CSE spray experiments

Runs A3, 4, 6, 7

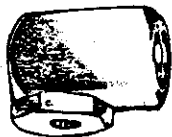
Nozzle Type: Spraying Systems Co. 3/4 - 7G3
 Nozzle Characteristics: Fog Type, full cone



	A3	A4, 6, 7
Number	3	12
Layout	Triangular	Square Grid
Spacing	10 ft 5 in. apart	6 ft apart
Pressure	40 psid	40 psid
Rated Flow	4 gpm	4 gpm
MMD	1210 μ	1210 μ
σ_g	1.5	1.5

Run A8

Nozzle Type: Spraying Systems Co. 3/8 A 20
 Nozzle Characteristics: Fine atomization, hollow cone



Number used	12
Layout	Square Grid
Spacing	6 ft apart
Pressure	40 psid
Rated Flow	4 gpm
MMD	770 μ
σ_g	1.5

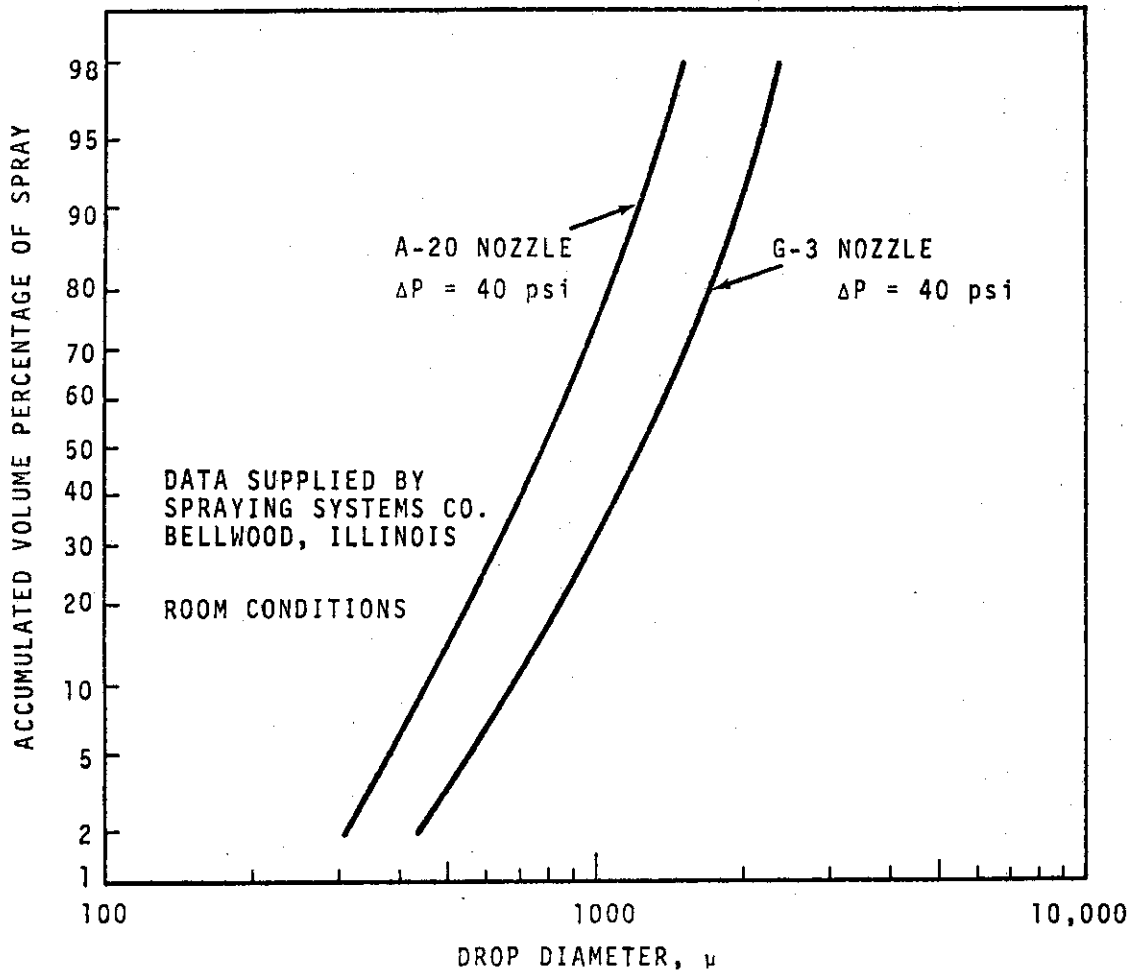


Fig. 3.1-9 Drop size distribution for sprays used in CSE

Table 3.1-3 Conditions for natural transport experiments

Test	Vessel	Temperature, °F	Wall Heat Transfer Coefficient, Btu/hr ft °F	Grams I ₂ Injected
D-1	Drywell	252	23	0.43
D-2	Drywell	250	23	0.60
A-1	Containment	181	37	0.70
A-2	Containment	185	37	56
A-5	Containment	253	0.31	84
A-11	Containment	252*	0.31	98

* Initial condition. Steam flow was terminated and vessel allowed to cool.

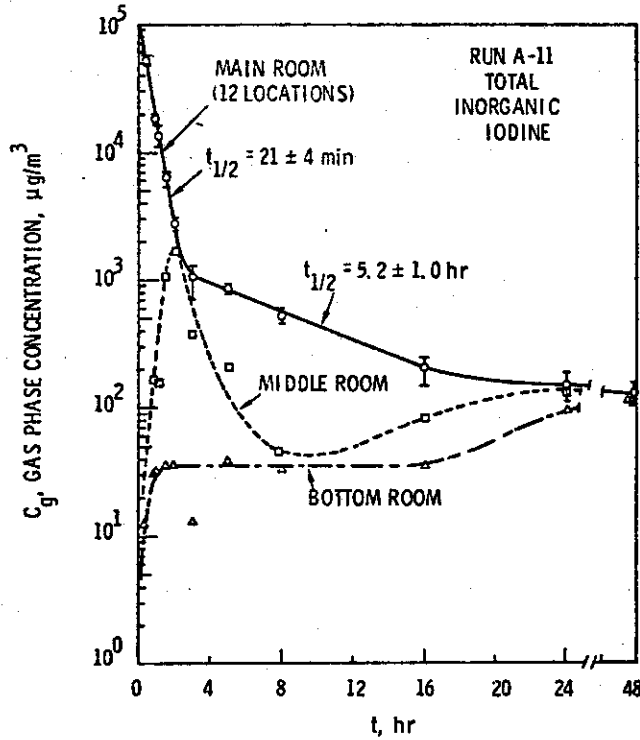


Fig. 3.1-10 Concentration of total inorganic iodine in gas space, Run A-11.

Table 3.1-4 Iodine removal by natural deposition

Test	Temperature, °F	Initial Half - Life Inorganic Iodine	Liquid/Gas Concentration Ratio
D-1	252	8.0 ± 1.0	6.1 × 10 ⁴
D-2	250	9.5 ± 0.5	6.3 × 10 ⁴
A-1	181	9.0 ± 4.0	2.6 × 10 ³
A-2	185	10.8 ± 2.0	2.0 × 10 ³
A-5	253	15.2 ± 1.5	5.8 × 10 ³
A-11	252	21 ± 4	7.9 × 10 ³

Table 3.1-5 Comparison of predicted initial removal of inorganic iodine with CSE experiments

Run Number	Measured Initial t 1/2	Predicted t 1/2	Predicted Measured
D-1	8.0 ± 1.0	7.7	0.96
D-2	9.5 ± 0.5	7.8	0.82
A-1	9.0 ± 4.0	10.0	1.11
A-2	10.8 ± 2.0	9.9	0.92
A-5	15.2 ± 1.5	16.1	1.06
A-11	21 ± 4	16.8	0.80
		Average	0.95

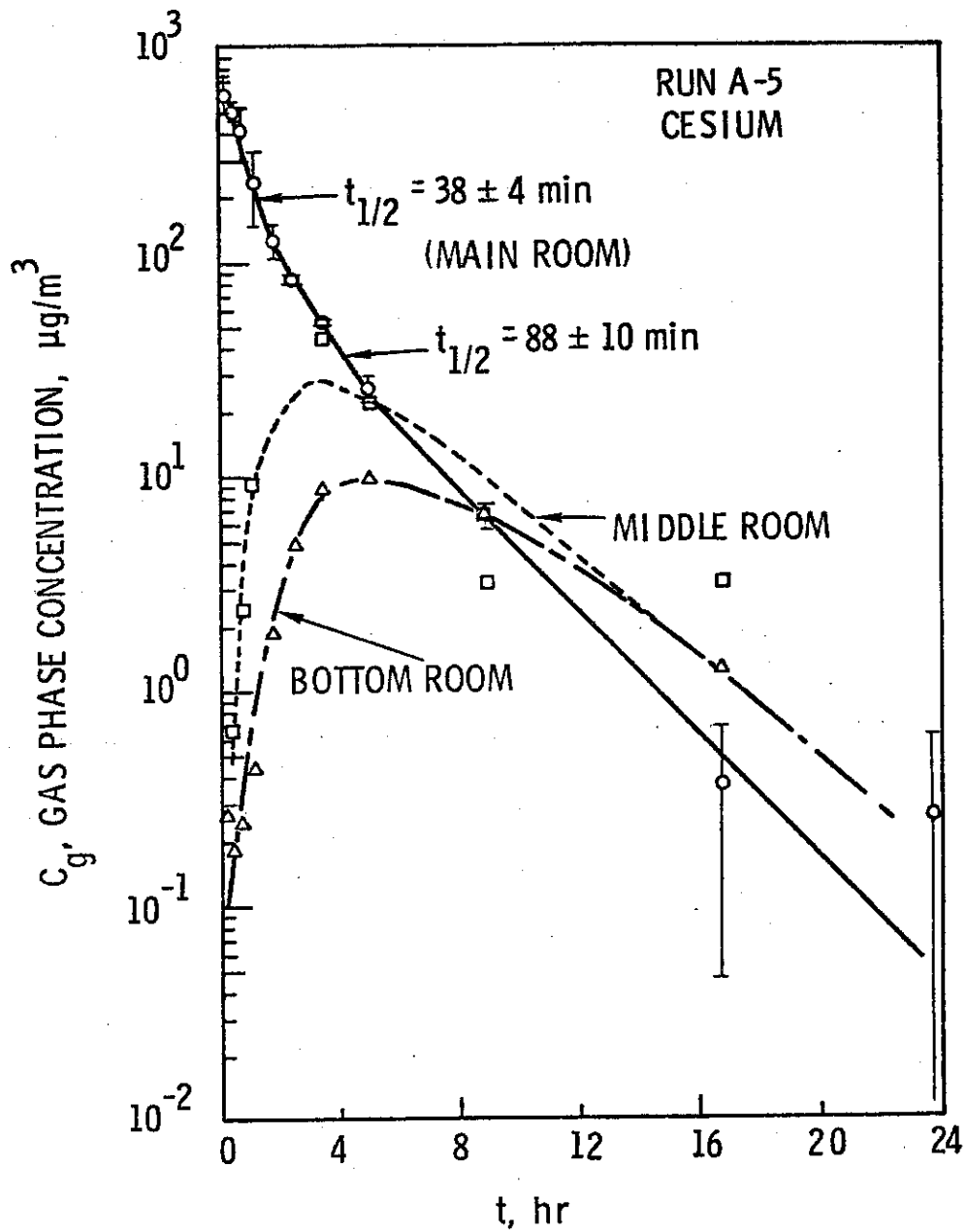


Fig. 3.1-11 Airborne cesium concentration in typical natural transport test

Table 3.1-6. Cesium distribution between walls and floor

CSE Test	Fraction to Walls	Fraction to Floor
A-1	0.13	0.87
A-2	0.15	0.85
A-5	0.08	0.92
A-11	0.26	0.74

Table 3.1-7 Experimental conditions - CSE spray tests

	Run A-3	Run A-4	Run A-6	Run A-7	Run A-8	Run A-9
Atmosphere	Air	Air	Steam-air	Steam-air	Steam-air	Steam-air
Temperature, °F	77	77	250	250	250	250
Pressure, psia	14.6	14.6	44	50	48	44
Nozzle type	a	a	a	a	b	c
Drop MMD, μ ^d	1210	1210	1210	1210	770	1220
Geometric standard deviation, σ	1.53	1.53	1.53	1.53	1.50	1.50
Number of nozzles	3	12	12	12	12	12
Spray rate, gal/min	12.8	48.8	49	49	50.5	145
Total spray volume, gal	510	1950	1960	1960	2020	2300
Spray solution	e	e	f	g	f	f

^aSpraying Systems Co. 3/4 7G3, full cone.

^bSpraying Systems Co. 3/8 A20, hollow cone.

^cSpraying Systems Co. 3/4 A50, hollow cone.

^dMass median diameter.

^e525 ppm boron as H₃BO₃ in NaOH, pH 9.5.

^f3000 ppm boron as H₃BO₃ in NaOH, pH 9.5.

^g3000 ppm boron as H₃BO₃ in demineralized water pH 5.

Table 3.1-8 Spray flow rates and solutions used in CSE experiments

	Run A-3	Run A-4	Run A-6	Run A-7	Run A-8	Run A-9	
First Spray	Total flow rate, gal/min	12.8	49	49	49	50	148
	Volume sprayed, gal	128	490	490	490	150	444
	Spraying pressure, psid	40	40	40	40	40	51
	Solution	a	a	b	c	b	b
Second Spray	Total flow rate, gal/min	12.8	49	50	48.5	50	151
	Volume sprayed, gal	385	1480	1500	1455	1850	453
	Spraying pressure, psid	40	40	40	40	40	52
	Solution	e	a	b	c	b	b
Third Spray	Total flow rate, gal/min	12.5	42	16	45.5	47	149
	Volume sprayed, gal	735	1890	960	2730	2820	1490
	Spraying pressure, psid	40	29	4	36.5	36.5	51
	Solution	d	e	e	e	e	b
Fourth Spray	Total flow rate, gal/min	f	f	f	48.6	50.4	138
	Volume sprayed, gal	f	f	f	2428	2520	8280
	Spraying pressure, psid	f	f	f	40	40	49
	Solution	f	f	f	g	g	e

^aFresh, room temperature. 525 ppm boron as H₃BO₃ in demineralized water. NaOH added to pH of 9.5.

^bFresh, room temperature. 3000 ppm boron as H₃BO₃ in demineralized water. NaOH added to pH of 9.5.

^cFresh, room temperature. 3000 ppm boron as H₃BO₃ in demineralized water. No NaOH added. pH5.

^dFresh, room temperature demineralized water.

^eSolution in main vessel sump recirculated. No heat exchanger used.

^fNo fourth spray.

^gFresh, room temperature. 1 wt% Na₂S₂O₃, 3000 ppm boron as H₃BO₃ in demineralized water. NaOH added to pH 9.4.

Table 3.1-9 Timing of spray periods

		Time After Start of Iodine Release, min					
		Run A-3	Run A-4	Run A-6	Run A-7	Run A-8	Run A-9
First Spray	Start	40	40.5	30	30	30	30
	Stop	50	50.5	40	40	33	33
	Duration	10	10	10	10	3	3
Second Spray	Start	140	140	80	80	80	55
	Stop	170	170	110	110	117	58
	Duration	30	30	30	30	37	3
Third Spray	Start	1473	1205	1565	1323	200	90
	Stop	1533	1250	1625	1383	260	100
	Duration	60	45	60	60	60	10
Fourth Spray	Start	a	a	a	1443	1350	210
	Stop	a	a	a	1493	1400	270
	Duration	a	a	a	50	50	60

^aNo fourth spray.

Table 3.1-10 Atmospheric conditions in CSE spray experiments

	Run A-3	Run A-4	Run A-6	Run A-7	Run A-8	Run A-9	
Containment vessel insulated	No	No	Yes	Yes	Yes	Yes	
Forced air circulation ^a	Yes	Yes	No	No	No	No	
Start of First Spray	Vapor temp, °F ^b	77	77	255	248.7	250	249
	Pressure, psia	14.6	14.6	44.2	50.0	50.7	44.0
	Relative humidity, %	70	88	100	100	100	100
End of First Spray	Vapor temp, °F ^b	77	77	229	234.5	243	230
	Pressure, psia	14.6	14.6	38.8	44.4	48.2	38.5
	Vapor temp, °F ^b	77	77	237	240	243	235
Start of Second Spray	Pressure, psia	14.6	14.6	40.8	46.0	49.3	39.5
	Vapor temp, °F ^b	77	77	202	203	188	218
	Pressure, psia	14.6	14.6	29.5	38	34.1	34.5
Start of Third Spray	Vapor temp, °F ^b	77	77	246	248	217	223
	Pressure, psia	14.6	14.6	43.9	46.8	41.5	36.0
	Vapor temp, °F ^b	77	77	233	230	218	181
End of Third Spray	Pressure, psia	14.6	14.6	40.7	41.8	32.2	27.1
	Vapor temp, °F ^b	c	c	c	232	247	208
	Pressure, psia	c	c	c	42.4	52.4	29.8
Start of Fourth Spray	Vapor temp, °F ^b	c	c	c	192	175	197
	Pressure, psia	c	c	c	32.7	32.4	28.0
	Vapor temp, °F ^b	c	c	c			
End of Fourth Spray	Pressure, psia	c	c	c			
	Vapor temp, °F ^b	c	c	c			
	Pressure, psia	c	c	c			

^aFan without duct located in bottom of drywell. 2400 ft³/min discharge.

^bAverage of five thermocouples located at various elevations and radii.

^cNo fourth spray.

Table 3.1-11 Typical initial fission product simulant concentrations in the gas space

	C_{t_0} (mg/m ³)
Elemental iodine	100
Particulate-associated iodine	5
Methyl iodide	2
Cesium	5
Uranium	5

Table 3.1-12 Test conditions for continuous spray experiments

	Run A-10	Run A-12
Solution Composition	2750 ppm B, NaOH	2750 ppm B, NaOH and 1 wt% Na ₂ S ₂ O ₃
pH	9.4	9.2
Nozzle type	Spraying Systems, No. 7G3	Spraying Systems, No. 7G3
Number of nozzles	12	12
Spraying pressure, psid	40	40
Drop mass median diam, μ	1210	1210
Drop geometric standard deviation	1.53	1.53
Total spray rate, gal/min	49	50
Wall flow rate, gal/min	2.3	2.3
Total spray volume, gal	2060	2200
Initial vapor temperature, °F	249	253
Initial pressure, psia	49	47
Vapor temp at end of fresh spray period, °F	190	217
Pressure at end of fresh spray period, psia	31.4	34.4
Average temp during recirculation, °F	250	245
Average pressure during recirculation, psia	56	47
Fission product release period, min	10	10
Mass of iodine released, g	99	100
Mass of cesium released, g	7.1	4.7
Mass of uranium released, g	~2	~2

Table 3.1-13 Fission product simulants in CSE recirculating spray tests

<u>Simulant Release Parameter</u>	<u>Units</u>	<u>Run A-10</u>	<u>Run A-12</u>
I ₂ release duration	min	10	10
Cs release duration	min	10	10
UO ₂ release duration	min	20	20
CH ₃ I release duration	min	10	10
I ₂ release mass conc*	mg/M ³	160	160
CH ₃ release mass conc*	mg/M ³	1.6	5
Cs release conc*	mg/M ³	12	7.9
UO ₂ - ZrO ₂ release conc*	mg/M ³	~3	~3

* release mass conc = total mass injected/596 M³

Table 3.1-14 Measured spray liquid distribution in CSE tests

	<u>Total Spray Volume Recovered, %</u>			<u>Deck Distr. ± 1σ, %</u>
	<u>Wall Trough</u>	<u>Main Sump</u>	<u>Dry Well Sump</u>	
Cross Section Area, %	2.0	78.5	19.5	---
Run A3 (a)	0.7	62.8	37.5	64.8
Run A4 (a)	10.9	68.9	20.2	46.7
Run A6 and A7 (b)	2.1	68.4	28.5	---
Run A8 (a)	~6.0	73.0	21.0	46.2

a. Measured during shakedown test.

b. Measured from liquid level change during run. Normal condensation deducted.

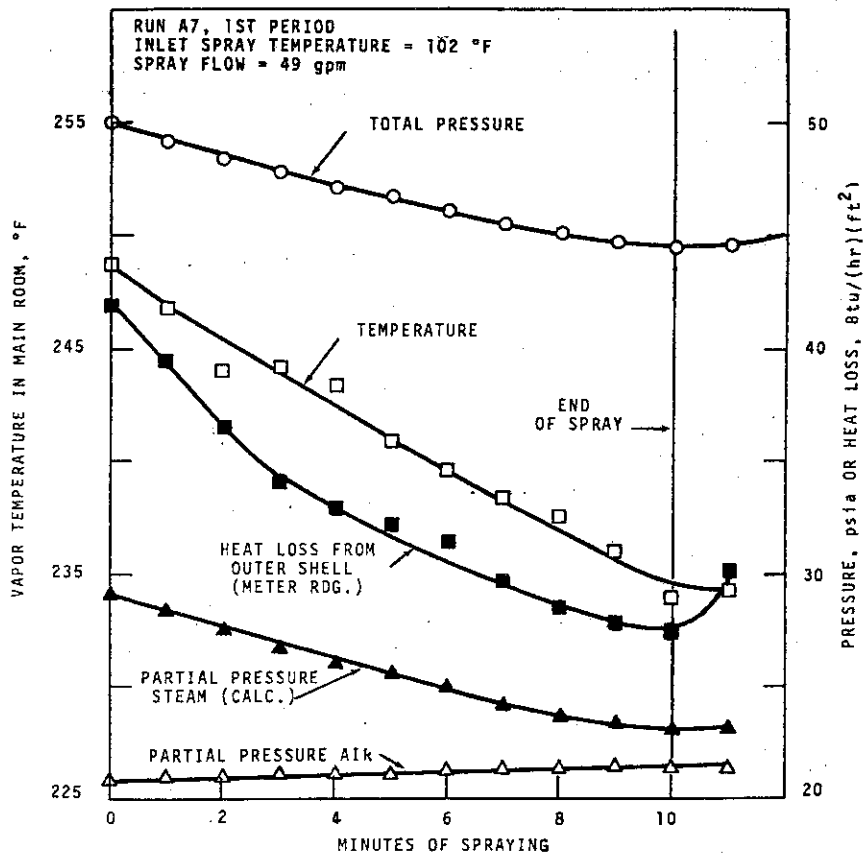


Fig. 3.1-12 Containment vapor temperature and pressure response to spray in Run A7

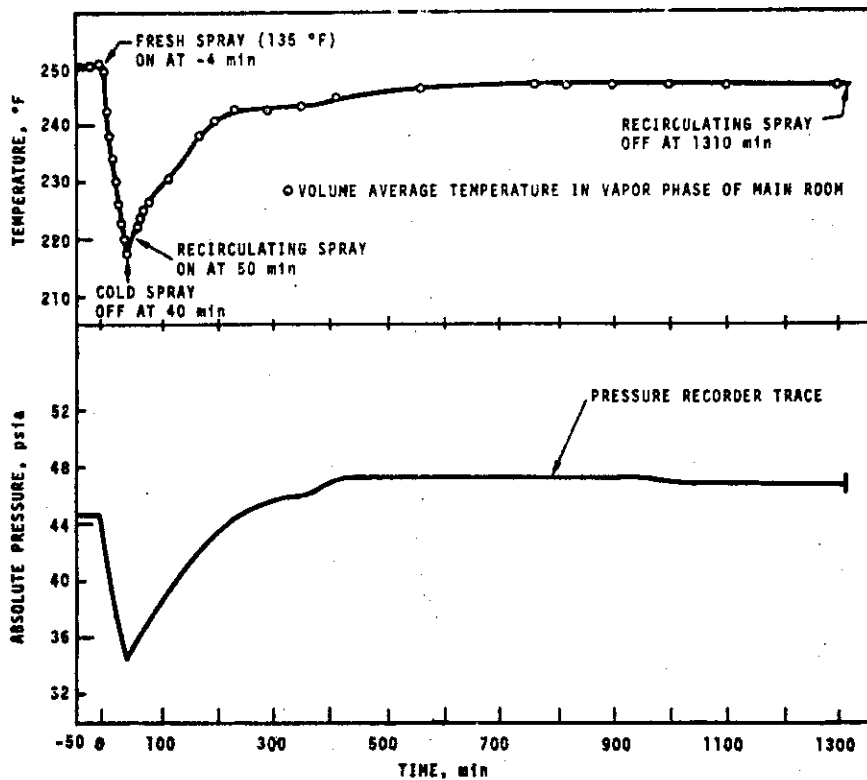


Fig. 3.1-13 Temperature and pressure for Run A-12

Table 3.1-15 Heat removal from upper vapor space by a spray

Steam condensed from atmosphere	4.8×10^5 BTU
Heat removed from air	0.08×10^5 BTU
Excess steam feed over heat loss	0.07×10^5 BTU
Total Heat Removed from Atmosphere	4.95×10^5 BTU

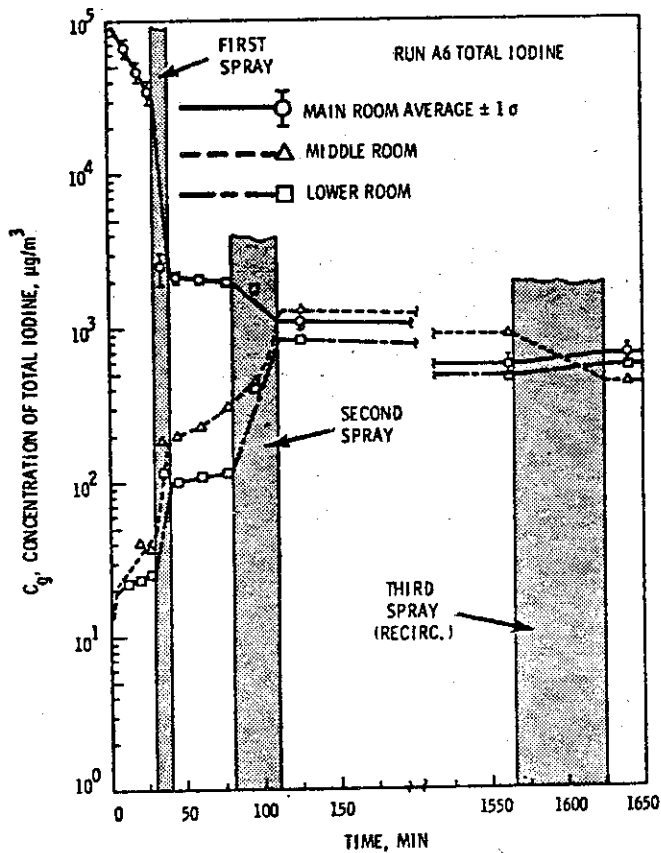


Fig. 3.1-14 Typical buildup of iodine concentration in lower rooms

Table 3.1-16 Comparison of concentrations in sprayed and Nonsprayed regions of the same room*

Run No.	Ratio of Concentration in Top Dome (Above nozzles) to Average in Main Room			
	Particulate Iodine	Elemental Iodine	Methyl Iodide	Cesium
A-3	1.25	1.13	0.87	1.13
A-4	0.49	0.98	0.96	0.92
A-6	1.24	0.97	1.02	0.87
A-7	1.58	1.67	1.80	1.60
Average	1.14	1.19	1.16	1.13

*During first spray period.

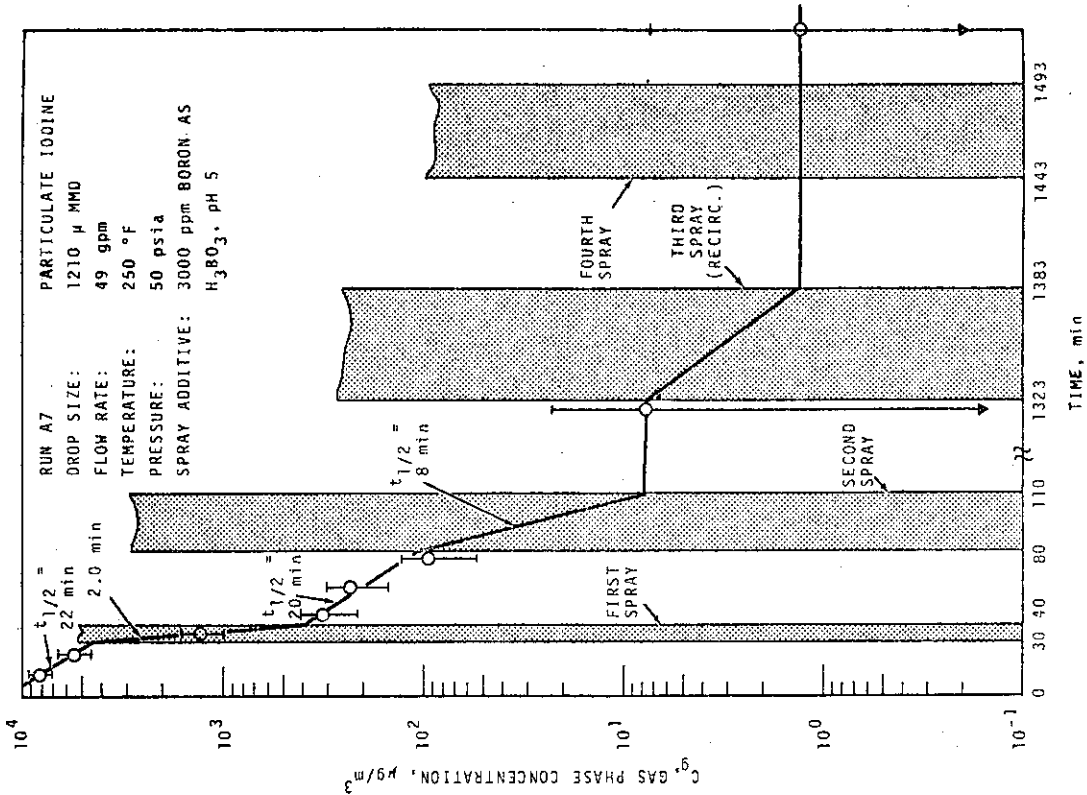


Fig. 3.1-16 Concentration of particulate iodine in the main room, Run A7

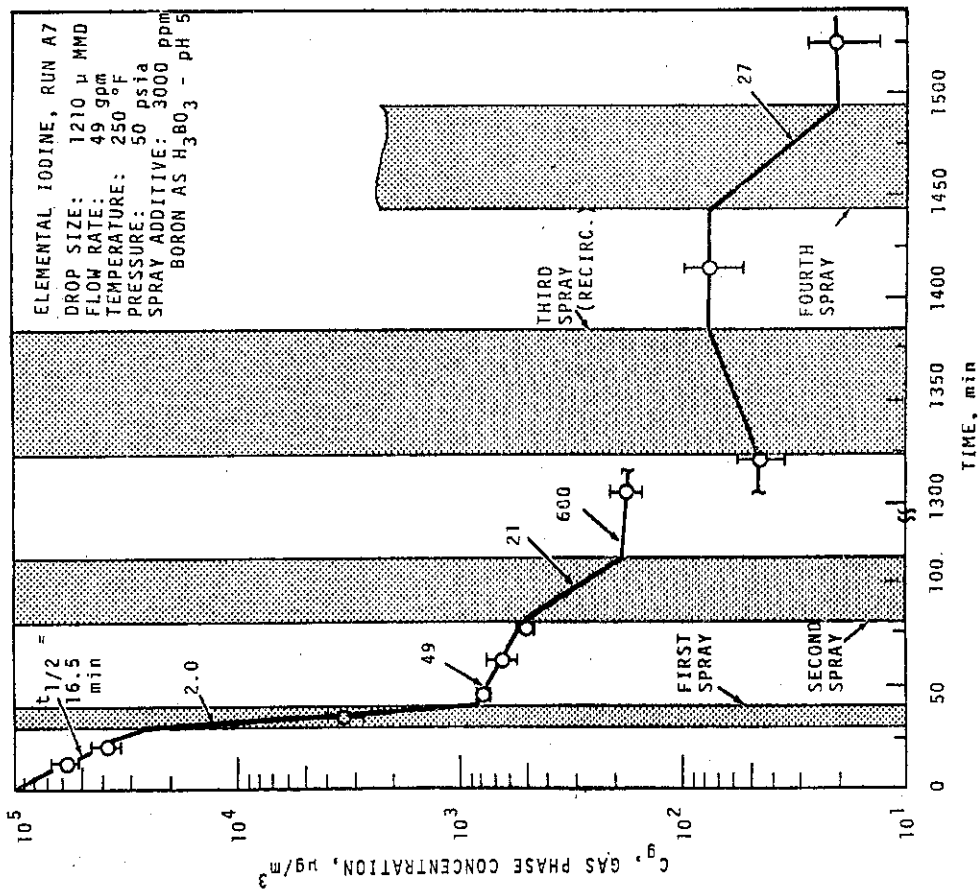


Fig. 3.1-15 Concentration of elemental iodine in the main room, Run A7

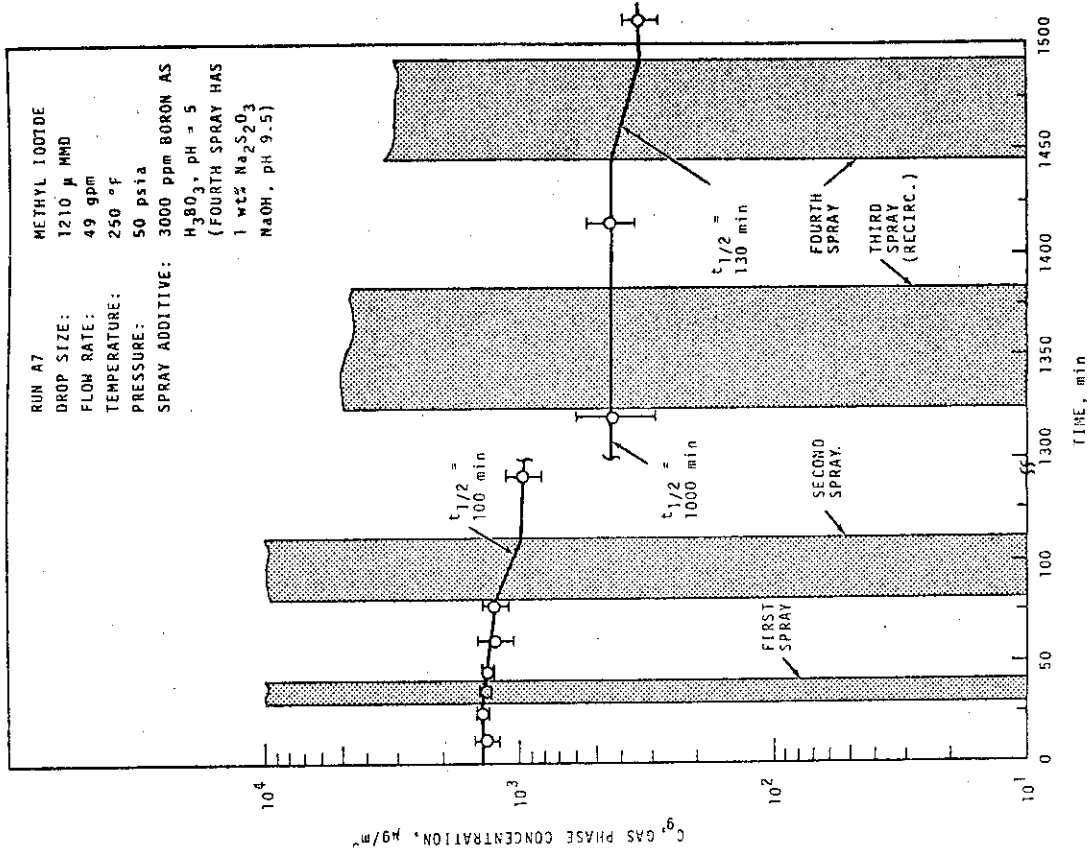


Fig. 3.1-18 Concentration of methyl iodide in the main room, Run A7

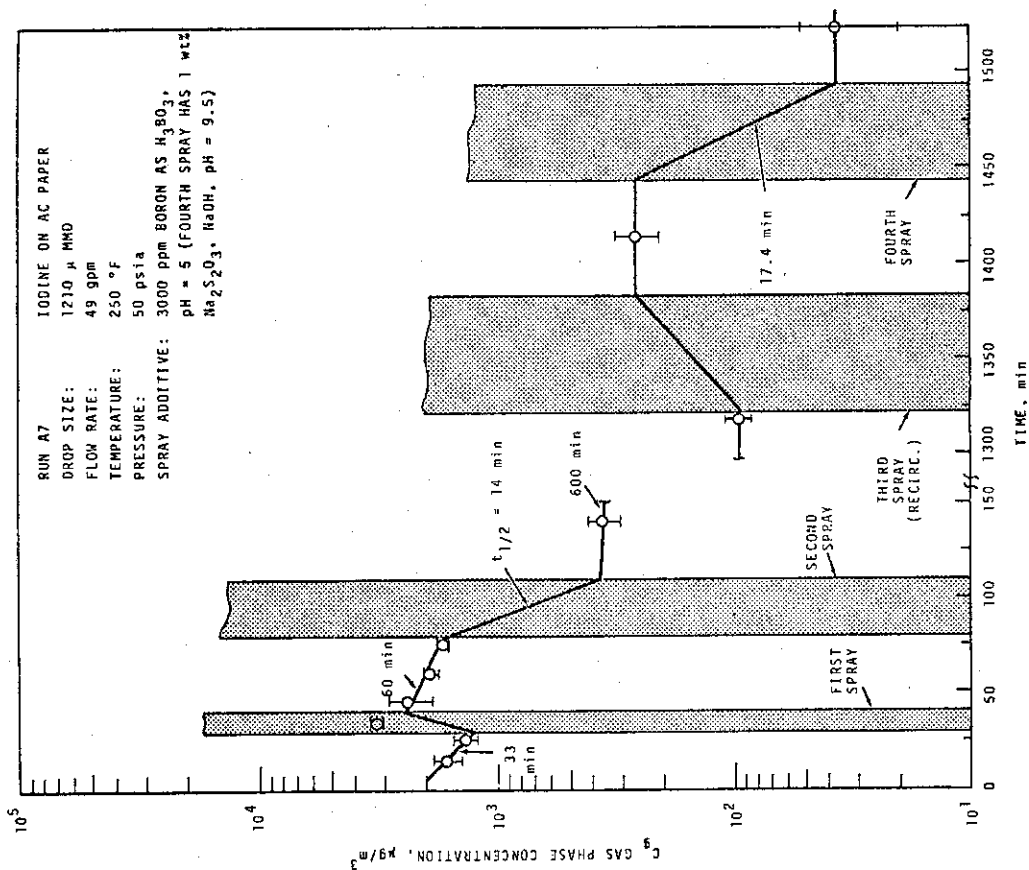


Fig. 3.1-17 Concentration in the main room of iodine associated with charcoal paper, Run A7

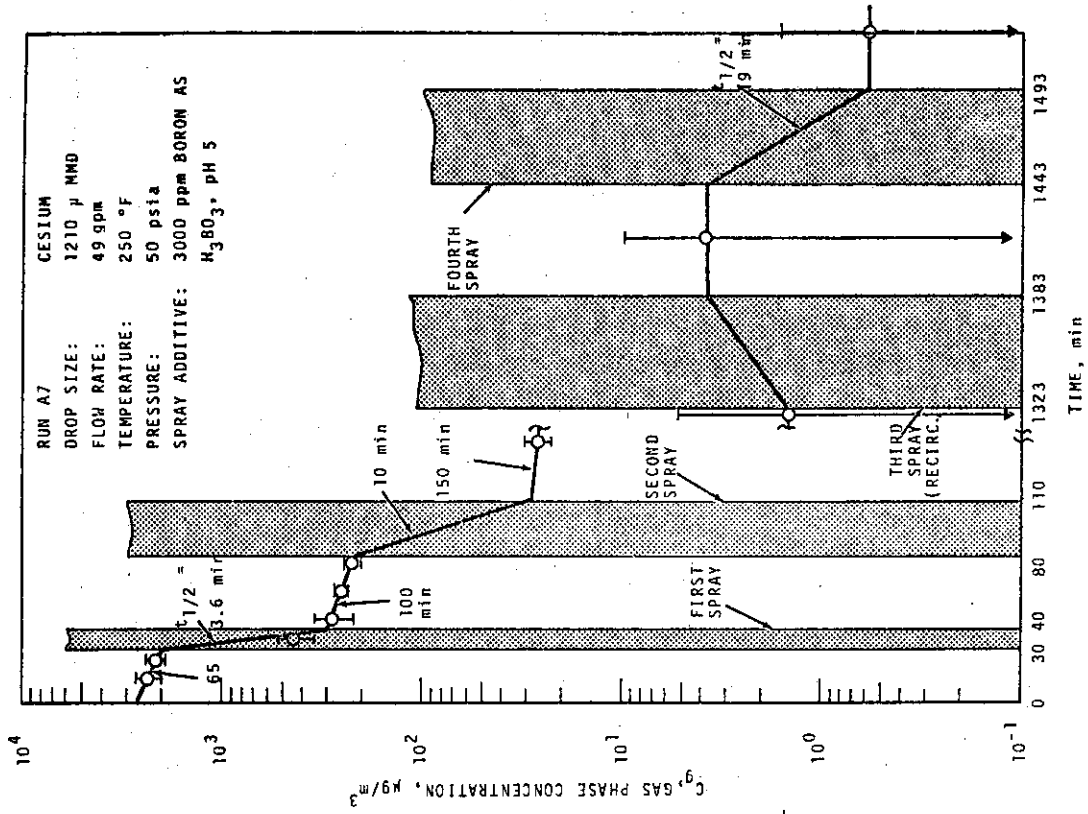


Fig. 3.1-20 Cesium concentration in the main room, Run A7

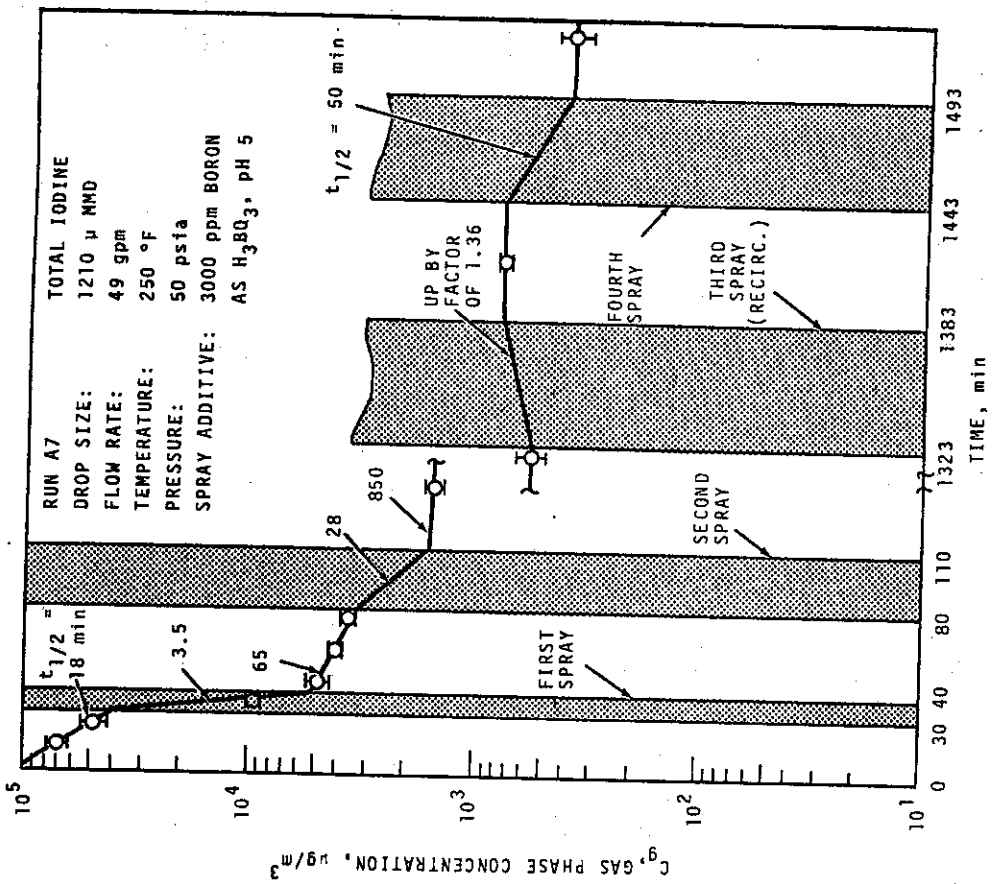


Fig. 3.1-19 Total iodine concentration in the main room, Run A7

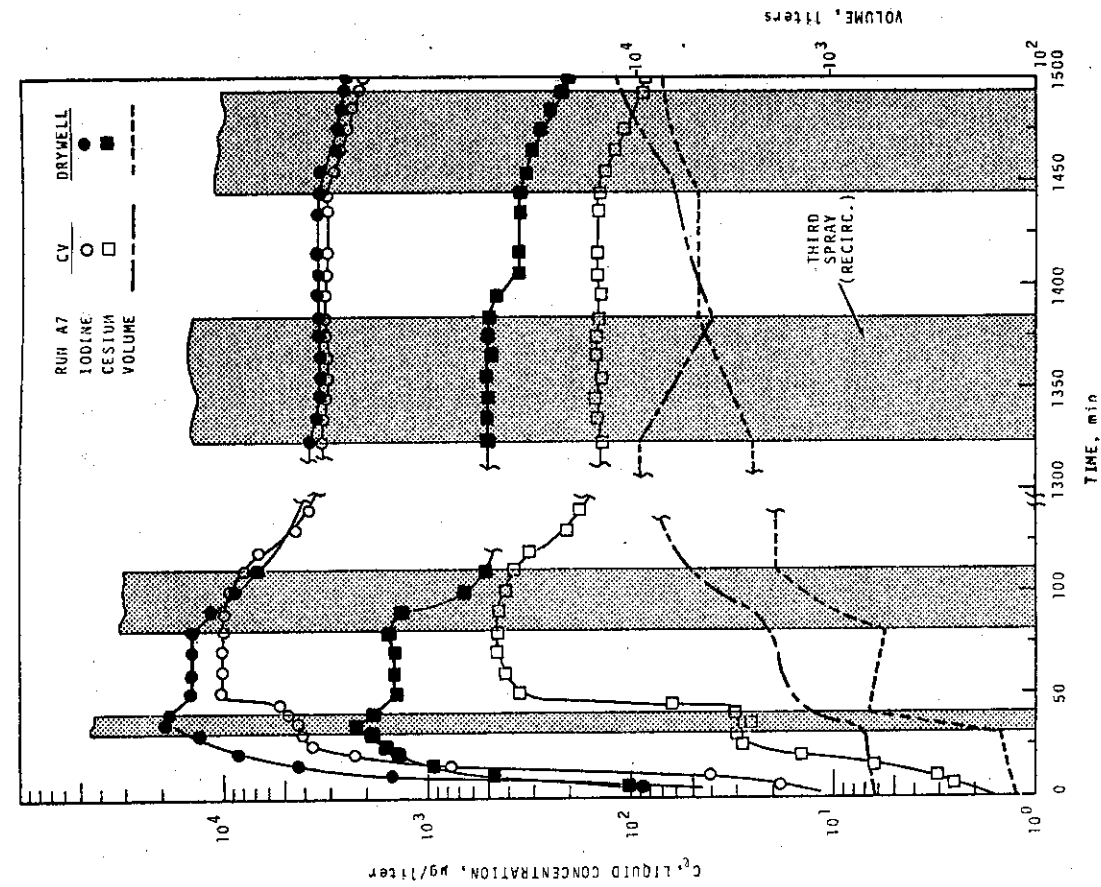


Fig. 3.1-22 Liquid volumes and concentrations in vessel sumps, Run A7

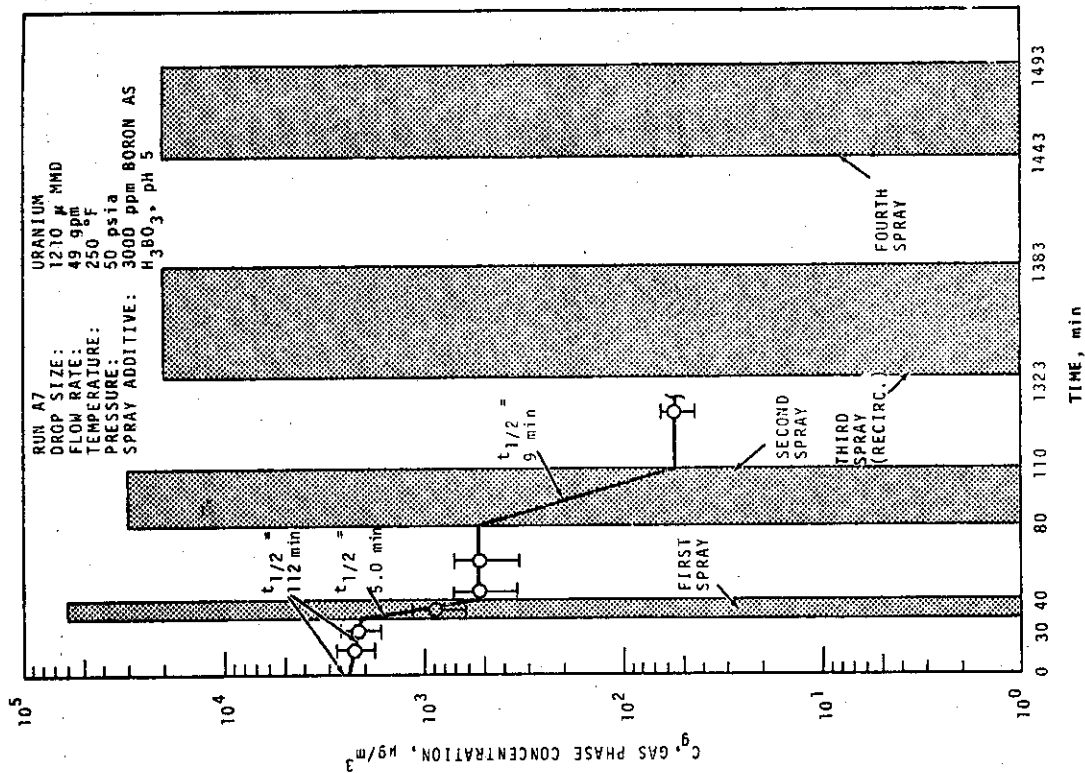


Fig. 3.1-21 Uranium concentration in the main room, Run A7

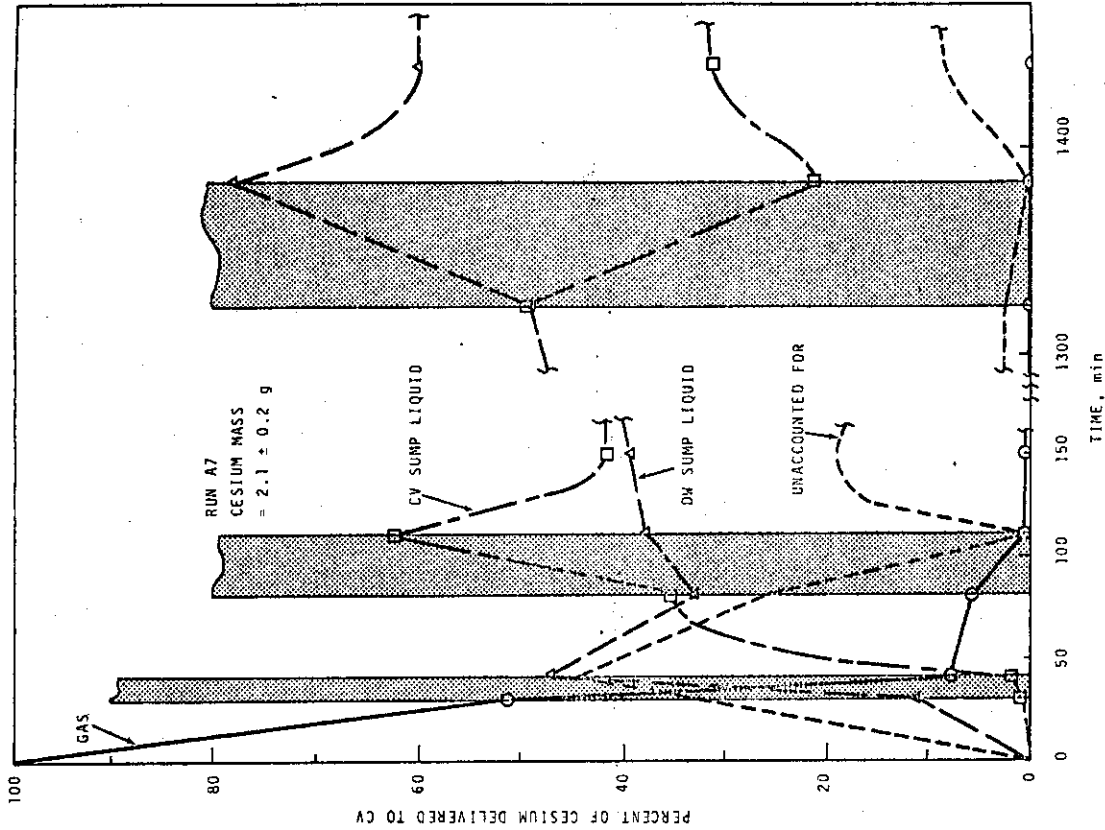


Fig. 3.1-24 Cesium distribution versus time--Run A7

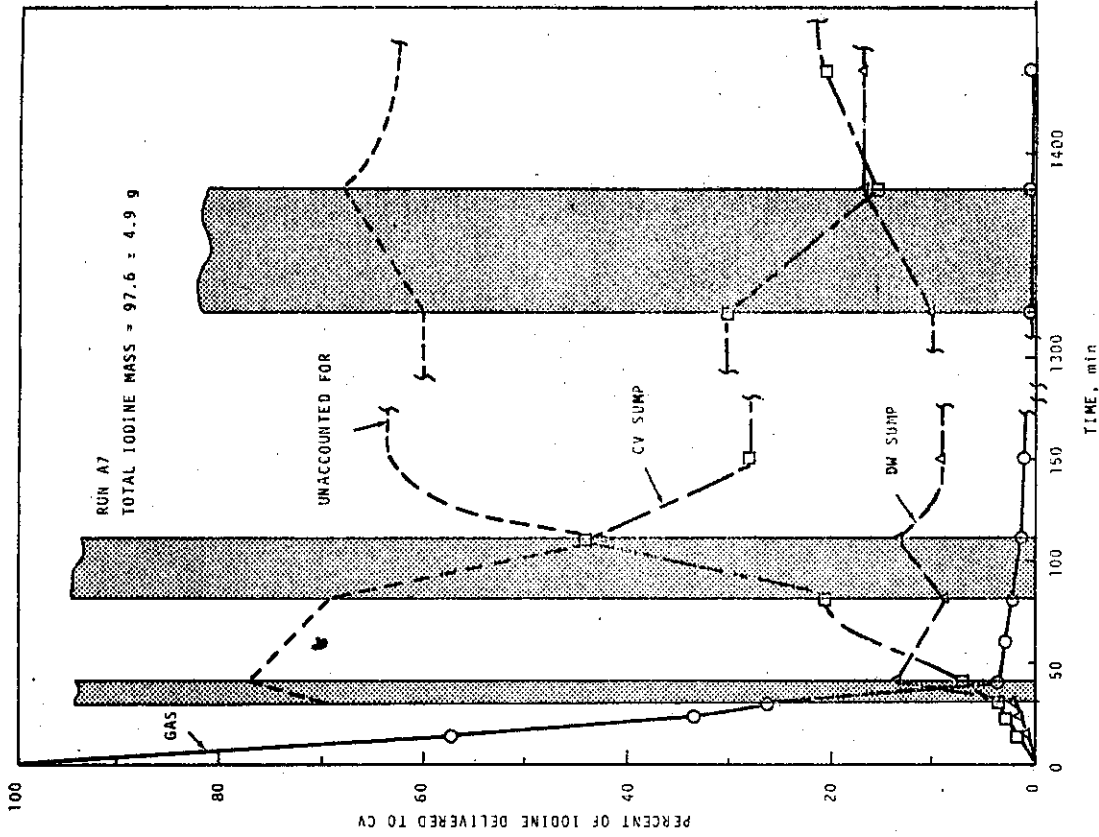


Fig. 3.1-23 Iodine distribution versus time--Run A7

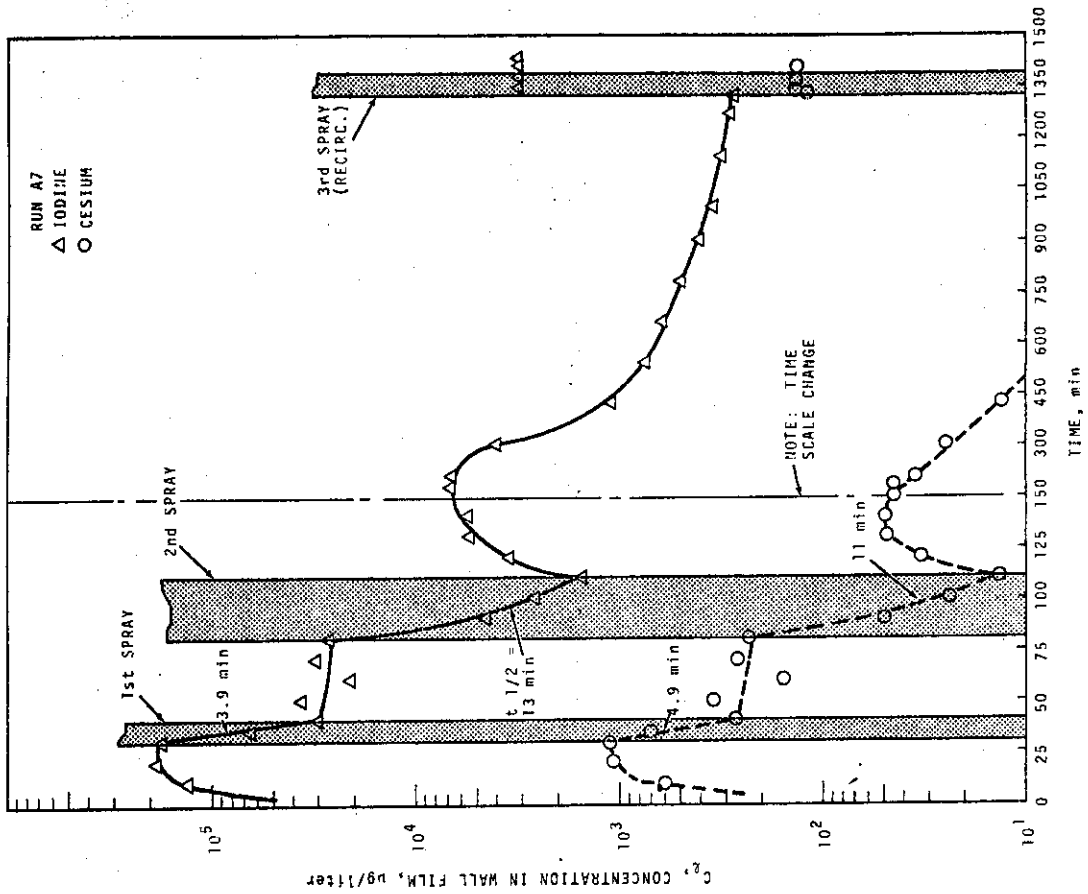


Fig. 3.1-26 Iodine and cesium concentration in wall film, Run A7

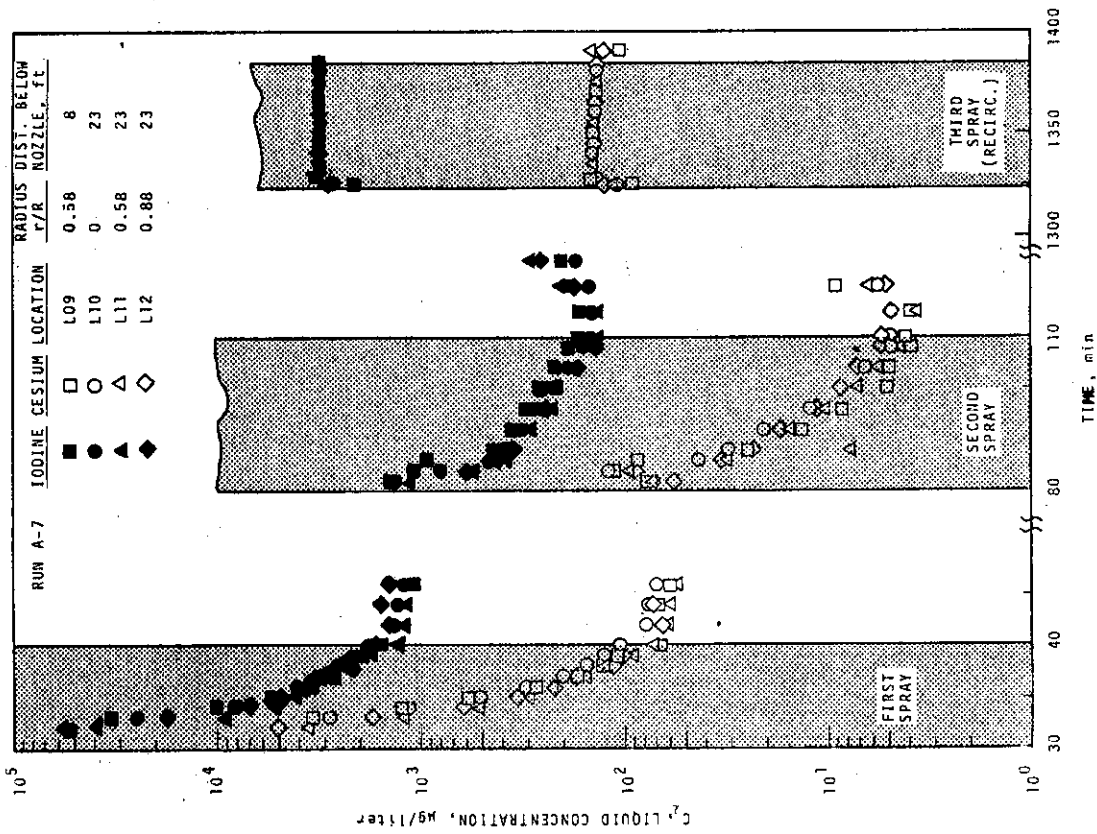


Fig. 3.1-25 Iodine and cesium concentration in spray drops Run A7

Table 3.1-17 Removal of elemental iodine in CSE spray tests

	Gas Concentration Half-Life, min'														
	A3			A4			A6			A7			A8		
	Mea- sured	(a) Spray Only	(b)	Mea- sured	Spray Only		Mea- sured	Spray Only		Mea- sured	Spray Only		Mea- sured	Spray Only	
Before 1st Spray	60	---	---	65	---	---	12	---	---	16.5	---	---	17	---	---
During 1st Spray	5.0	5.5	1.4	1.4	1.4	1.9	2.1	2.1	2.0	2.2	2.2	0.64	0.64	0.64	0.64
After 1st Spray	46	---	(c)	(c)	---	260	---	---	49	---	---	200	---	---	---
During 2nd Spray	5.5	5.5	9	9	9	32	35	35	21	22	22	40	40	40	40
After 2nd Spray	1700	---	>500	>500	---	540	---	---	600	---	---	>500	---	---	---
During 3rd Spray	20	20	(d)	(d)	---	∞	---	---	(d)	---	---	125	125	125	125
During 4th Spray	---	---	---	---	---	---	---	---	27	---	---	50	50	50	50

a. Observed half-life, obtained from Figures 7 through 11.

b. Corrected for natural processes.

c. Indeterminate.

d. Concentration increased.

Table 3.1-18 Removal of particulate iodine in CSE spray tests

	Aerosol Concentration Half-Life, min											
	A3		A4		A6		A7		A8			
	Mea- sured	(a) Spray Only (b)	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only
Before 1st Spray	63	---	65	---	40	---	22	---	30	---	---	---
During 1st Spray	11	12.5	2.4	2.5	2.0	2.1	2	2.2	0.68	0.70	---	---
After 1st Spray	115	---	130	---	19	---	20	---	85	---	---	---
During 2nd Spray	12	12.5	8.4	8.4	6.0	6.0	8	8	(c)	(c)	---	---
After 2nd Spray	350	---	>500	---	(c)	---	(c)	---	(c)	---	---	---
During 3rd Spray	(c)	---	18	18	(c)	---	(c)	---	(c)	---	---	---
During 4th Spray	---	---	---	---	---	---	(c)	---	(c)	---	---	---

- a. *Observed half-life.*
- b. *Corrected for natural processes*
- c. *Indeterminate.*

Table 3.1-19 Removal of iodine form associated with charcoal paper in CSE spray tests

	Concentration Half-Life, min											
	A3		A4		A6		A7		A8			
	Mea- sured	Spray Only	(a) Mea- sured	(b) Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only
Before 1st Spray	(c)	---	(c)	---	65	---	33	---	>1000	---		
During 1st Spray	12	12	11	11	4.5	4.5	(c)	---	1.9	1.9		
After 1st Spray	400	---	(c)	---	(c)	---	60	---	90	---		
During 2nd Spray	60	60	160	160	18	18	14	14	15	15		
After 2nd Spray	>500	---	>1000	---	>1000	---	600	---	>1000	---		
During 3rd Spray	60	60	>1000	---	(c)	---	(c)	---	(c)	---		
During 4th Spray	---	---	---	---	---	---	17.4	---	64	64		

- a. Observed half-life.
- b. Corrected for natural processes.
- c. Concentration increased.

Table 3.1.1-20 Removal of methyl iodide in CSE spray tests

	Gas Concentration Half-Life, min														
	A3			A4			A6			A7			A8		
	Mea- sured	(a) Spray Only	(b)	Mea- sured	Spray Only	(c)	Mea- sured	Spray Only	(c)	Mea- sured	Spray Only	(c)	Mea- sured	Spray Only	(c)
Before 1st Spray	(d)	---	---	(d)	---	---	(c)	---	---	(c)	---	---	>1000	---	---
During 1st Spray	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)
After 1st Spray	>1000	---	---	>500	---	---	(c)	---	---	(c)	---	---	(c)	---	---
During 2nd Spray	100	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	84	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	100	(c)	(c)
After 2nd Spray	>1000	---	---	>500	---	---	>1000	---	---	(c)	---	---	(c)	---	---
During 3rd Spray	150	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	(c)	270	(c)	(c)
During 4th Spray	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	130	130	130

- a. Observed half-life.
- b. Corrected for natural processes.
- c. Indeterminate.
- d. Concentration increased.

Table 3.1-21 Removal of total iodine in CSE spray tests

	Concentration Half-Life, min											
	A3		A4		A6		A7		A8			
	Mea- sured	(a) Spray Only (b)	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only
Before 1st Spray	70	---	75	---	15	---	18	---	17	---	---	---
During 1st Spray	6.0	6.6	2.1	2.2	2.6	2.6	3.5	3.8	0.80	0.82	---	---
After 1st Spray	60	---	330	---	41	---	65	---	300	---	---	---
During 2nd Spray	15	15	65	65	36	36	28	28	37	37	37	37
After 2nd Spray	>500	---	>500	---	>1000	---	>500	---	(c)	---	---	---
During 3rd Spray	140	(c)	>500	>500	(d)	---	(d)	---	170	170	170	170
During 4th Spray	---	---	---	---	---	---	50	50	100	100	100	100

a. Observed half-life.

b. Corrected for natural processes

c. Indeterminate.

d. Concentration increased.

Table 3.1-22 Removal of cesium in CSE spray tests

	Aerosol Concentration Half-Life, min														
	A3			A4			A6			A7			A8		
	Mea- sured	(a) Spray Only	(b)	Mea- sured	Spray Only		Mea- sured	Spray Only		Mea- sured	Spray Only		Mea- sured	Spray Only	
Before 1st Spray	57	---		80	---		34	---		65	---		24	---	
During 1st Spray	13	15		3.4	3.5		5.6	5.6		3.6	3.8		2.5	2.6	
After 1st Spray	115	---		240	---		>1000	---		100	---		280	---	
During 2nd Spray	16	16		9.3	9.3		13	13		10	10.2		14	14	
After 2nd Spray	>500	---		>500	---		460	---		150	---		350	---	
During 3rd Spray	25	25		50	50		(c)	---		(d)	---		67	67	
During 4th Spray	---	---		---	---		---	---		19	19		30	30	

- a. Observed half-life.
- b. Corrected for natural processes.
- c. Indeterminate.
- d. Concentration increased.

Table 3.1-23 Removal of uranium in CSE spray tests

	Aerosol Concentration Half-Life, min											
	A3		A4		A6		A7		A8			
	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only	Mea- sured	Spray Only
Before 1st Spray	60	---	96	---	27	---	112	---	30	---	---	---
During 1st Spray	24	34	5.3	5.5	7.8	7.8	5.0	5.0	6.0	6.6	---	---
After 1st Spray	100	---	160	---	(c)	---	>500	---	110	---	---	---
During 2nd Spray	24	24	13	13.5	12.5	12.5	9	9	13	14	---	---
After 2nd Spray	>500	---	300	---	300	---	>1000	---	200	---	---	---
During 3rd Spray	45	---	45	---	(d)	---	(d)	---	350	---	---	---
During 4th Spray	---	---	---	---	---	---	(d)	---	(d)	---	---	---

- a. *Observed half-life.*
- b. *Corrected for natural processes.*
- c. *Concentration increased.*
- d. *Indeterminate.*

Table 3.1-24 Summary of initial spray washout coefficients

Run No.	λ_s Observed, min^{-1} ^a			
	Elemental Iodine	Particulate Iodine	Iodine on Charcoal Paper	Total Inorganic ^b Iodine
A-3	0.126	0.055	0.058	0.125
A-4	0.495	0.277	0.063	0.43
A-6	0.330	0.32	0.154	0.31
A-7	0.315	0.31	0	0.20
A-8	1.08	0.99	0.365	0.96
A-9	1.20	1.15	0.548	1.14

^aFor first spray period, corrected for natural removal on vessel surfaces.

^bIncludes iodine deposited on Maypack inlet.

Table 3.1-25 Methyl iodide removal by thiosulfate sprays

CSE Run	Spray Duration, min	Observed Removal Half Time	Predicted Removal Half Time
A-7*	50	130 min	185
A-8*	50	130	150
A-10(2)*	240	85	80
A-12(1)	1270	80	80
A-12(2)*	120	100	382

* Test was an addendum to the listed run.

Table 3.1-26 Long term equilibrium of elemental iodine in spray solution

Test	Time of Sampling, min	C _l /C _g
A-4	1300	2×10^5
A-6	1630	8×10^4
A-7	1500	4×10^4
A-8	260	1×10^4
A-10	1100	1×10^5
A-12	500	$>3 \times 10^6$

Table 3.1-27 Equilibrium after recirculation

Material	Overall Decontamination Factor (a)									
	A3 (b)	A4	A6	A7	A8	A3 (b)	A4	A6	A7	A8
Elemental Iodine	7×10^{-5}	5×10^{-4}	5×10^{-4}	8×10^{-4}	3×10^{-3}	7×10^{-5}	5×10^{-4}	5×10^{-4}	8×10^{-4}	3×10^{-3}
Particulate Iodine	$<2 \times 10^{-3}$	$<10^{-4}$	$<10^{-4}$	$<5 \times 10^{-4}$	$<6 \times 10^{-4}$	$<2 \times 10^{-3}$	$<10^{-4}$	$<10^{-4}$	$<5 \times 10^{-4}$	$<6 \times 10^{-4}$
Charcoal Paper Associated Iodine	2×10^{-1}	6×10^{-1}	7×10^{-2}	1×10^{-1}	3×10^{-2}	2×10^{-1}	6×10^{-1}	7×10^{-2}	1×10^{-1}	3×10^{-2}
Methyl Iodide	6×10^{-1}	8×10^{-1}	4×10^{-1}	3×10^{-1}	4×10^{-1}	6×10^{-1}	8×10^{-1}	4×10^{-1}	3×10^{-1}	4×10^{-1}
Total Iodine	9×10^{-2}	6×10^{-2}	5×10^{-3}	6×10^{-3}	5×10^{-3}	9×10^{-2}	6×10^{-2}	5×10^{-3}	6×10^{-3}	5×10^{-3}
Cesium	4×10^{-3}	1×10^{-3}	4×10^{-4}	1×10^{-3}	9×10^{-3}	4×10^{-3}	1×10^{-3}	4×10^{-4}	1×10^{-3}	9×10^{-3}
Uranium	2×10^{-2}	$<2 \times 10^{-3}$	2×10^{-3}	$<2 \times 10^{-2}$	2×10^{-2}	2×10^{-2}	$<2 \times 10^{-3}$	2×10^{-3}	$<2 \times 10^{-2}$	2×10^{-2}
Final V/L (c)	77	100	60	70	80	77	100	60	70	80

- a. Gas phase concentration at end of recirculation spray recirculation divided by concentration at time zero.
- b. No recirculation in Run A3.
- c. Total gas volume divided by total liquid volume at end of recirculation period.

Table 3.1-28 Comparison of iodine and cesium mass gained by liquids with loss by Gas--Run A4

	1st Spray		2nd Spray	
	Iodine	Cesium	Iodine	Cesium
Gain by spray drops, g	29	3.0	0.21	0.70
Gain by wall film, g	<u>3.8</u>	<u>0.39</u>	<u>0.15</u>	<u>0.051</u>
Total gain by liquids, g	32.8	3.4	0.36	0.75
Loss by gas, g	24	2.7	0.34	0.35
Ratio, $\frac{\text{gain by liquids}}{\text{loss by gas}}$	1.37	1.25	1.06	2.14
Ratio, $\frac{\text{spray drops}}{\text{wall film}}$	7.6	7.7	1.4	13.7

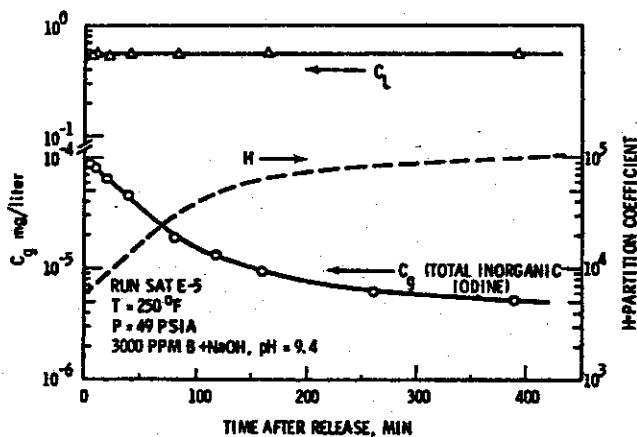


Fig. 3.1-27 Time dependence of H

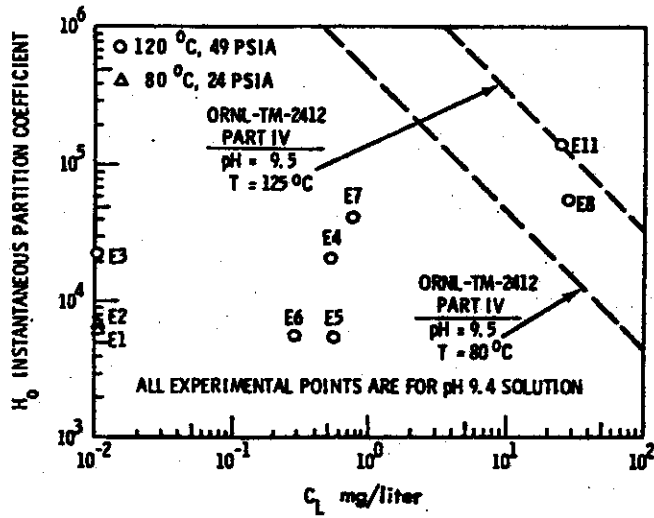


Fig. 3.1-28 Instantaneous inorganic iodine partition coefficients for NaOH-borate solutions

Table 3.1-29 Particle size analyses - CSE spray tests

	Aerodynamic Particle Diameter, ^(a) MMD, μ							
	Run A4 ^(b)		Run A6 ^(c)		Run A7 ^(c)		Run A8 ^(c)	
	Cs	U	Cs	U	Cs	U	Cs	U
Before 1st Spray	0.9	1.6	0.5	1.0	2.0	1.8	0.5	0.8
After 1st Spray	0.5	0.7	0.4	0.9	0.3	0.6	0.6	0.9

- a. Diameter relative to settling velocity of a unit density spherical particle.
- b. Cassella Impactor; sampled outside the containment vessel.
- c. Scientific Advances Inertial Impactor; sampled within containment vessel.

Table 3.1-30 Iodine deposition on various noncondensing surfaces

Surface Material (a)	Deposition at End of Experiment, $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ and 1σ (%)				
	Run A3	Run A4	Run A6	Run A7	Run A8
Silver (b)	109 $\pm 26\%$	66.2 $\pm 20\%$	8.58 $\pm 56\%$	0.085 $\pm 54\%$	0.135 $\pm 63\%$
Carbon Steel (b)	5.58 $\pm 148\%$	0.284 $\pm 30\%$	19.8 $\pm 17\%$	17.0 $\pm 35\%$	17.3 $\pm 48\%$
Stainless Steel 304 (b) (ASTM A240-63)	0.052 $\pm 110\%$	0.041 $\pm 170\%$	0.52 $\pm 275\%$	0.088 $\pm 35\%$	0.050 $\pm 66\%$
Phenoline 302 (c)	8.14 $\pm 45\%$	2.55 $\pm 30\%$	15.3 $\pm 25\%$	22.3 $\pm 28\%$	13.4 $\pm 40\%$
Amercoat 66 (b,d)	1.05 $\pm 18\%$	0.49 $\pm 16\%$	0.25 $\pm 20\%$	16.9 $\pm 18\%$	9.88 $\pm 38\%$

a. 2 1/2 in. diam, 1/16 in. thick, 17/32 in. center hole.
Total surface = 64 cm².

b. Average of 11 locations in main room.

c. Coating manufactured by Carboline Co., St. Louis, Mo.
Average of 22 locations.

d. Coating manufactured by Amercoat Corp., South Gate, Calif.

Table 3.1-31 Cesium deposition on various noncondensing surfaces

Surface Material (a)	Deposition at End of Experiment, $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ and 1σ (%)				
	Run A3	Run A4	Run A6	Run A7	Run A8
Silver (b)	0.0118 $\pm 69\%$	0.0095 $\pm 65\%$	0.0039 $\pm 57\%$	0.00134 $\pm 35\%$	0.00062 $\pm 62\%$
Carbon Steel (b)	0.0042 $\pm 41\%$	0.0020 $\pm 32\%$	0.0034 $\pm 96\%$	0.00637 $\pm 80\%$	0.0049 $\pm 34\%$
Stainless Steel 304 (b) (ASTM A240-63)	0.0016 $\pm 76\%$	0.0026 $\pm 57\%$	0.00003 $\pm 68\%$	0.00056 $\pm 84\%$	0.00002 $\pm 61\%$
Phenoline 302 (c)	0.0025 $\pm 52\%$	0.0035 $\pm 36\%$	0.0042 $\pm 40\%$	0.0079 $\pm 13\%$	0.0066 $\pm 55\%$
Amercoat 66 (b,d)	0.0039 $\pm 33\%$	0.0054 $\pm 43\%$	0.063 $\pm 45\%$	0.0100 $\pm 37\%$	0.0018 $\pm 45\%$

a. 2 1/2 in. diam, 1/16 in. thick, 17/32 in. center hole.
Total surface = 64 cm².

b. Average of 11 locations in main room.

c. Coating manufactured by Carboline Co., St. Louis, Mo.
Average of 22 locations.

d. Coating manufactured by Amercoat Corp., South Gate, Calif.

Table 3.1-32 Deposition on vessel surfaces inferred from coupon data (a)

Run	Fraction of Injected Mass on Vessel Surfaces							
	Injected Mass, g ^(b)		Heat Transfer Surface ^(c)		Nonheat Transfer Surface ^(d)		Total Vessel Surface	
	I	Cs	I	Cs	I	Cs	I	Cs
A3	75.75	3.078	0.266	0.00211	0.260	0.00197	0.526	0.00408
A4	70.91	6.378	0.0653	0.00145	0.0869	0.00135	0.152	0.00280
A6	98.34	2.589	0.162	0.00495	0.375	0.00388	0.537	0.00883
A7	97.57	2.125	0.320	0.00555	0.553	0.00851	0.873	0.0141
A8	95.61	4.351	0.263	0.00169	0.339	0.00268	0.602	0.00437

- a. Phenoline 302 coupons.
 b. From Tables 6 and 7.
 c. 327 m² in CSE main room.
 d. 242 m² in Cse main room.

Table 3.1-33 Comparison of deposition by coupon data with material balance calculations

Run	Fraction of Injected Mass on Vessel Surfaces			
	Iodine		Cesium	
	Coupon Data (a)	Material Balance (b)	Coupon Data (a)	Material Balance (c)
A3	0.53	0.31	0.0041	0.043
A4	0.15	0.26	0.0028	0.11
A6	0.54	0.44	0.0088	0.008
A7	0.87	0.58	0.0141	(-)0.21
A8	0.60	0.42	0.0044	0.16
Avg	0.54	0.40	0.0068	0.022

- a. From Table 33.
 b. From Table 6.
 c. From Table 7.

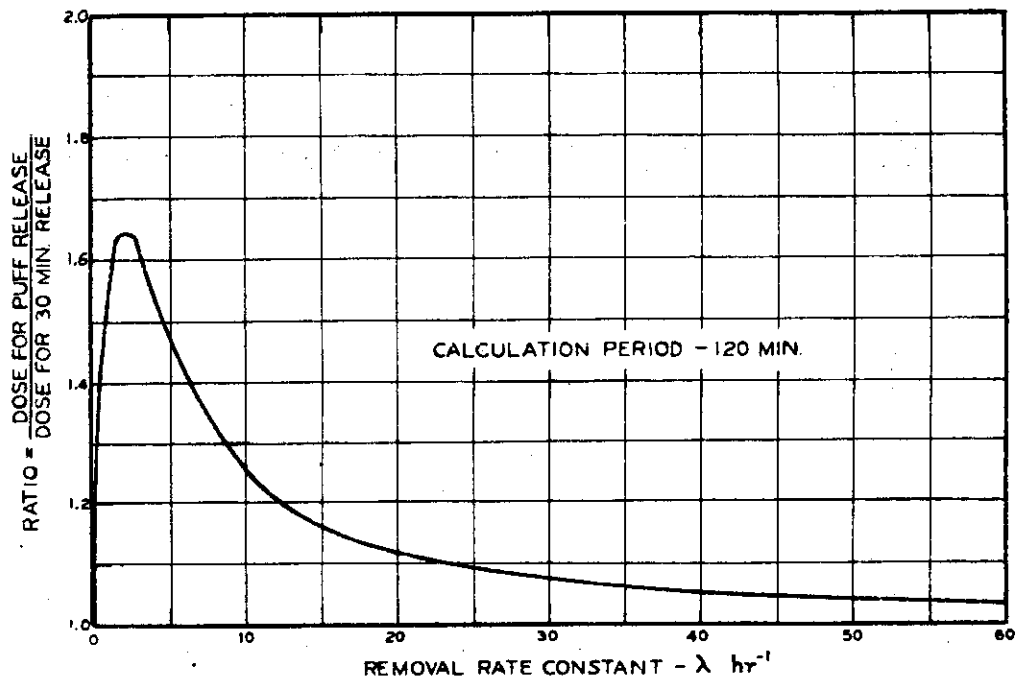


Fig. 3.1-29 Comparison of dose for puff release with dose for 30 minute release

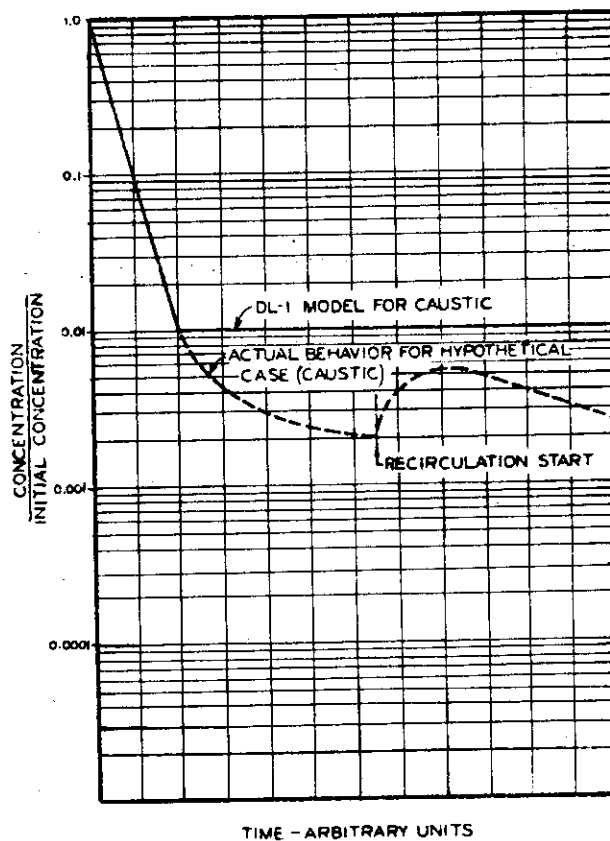


Fig. 3.1-30 Cut-off approximation used in DL-1 model to simplify approach to equilibrium

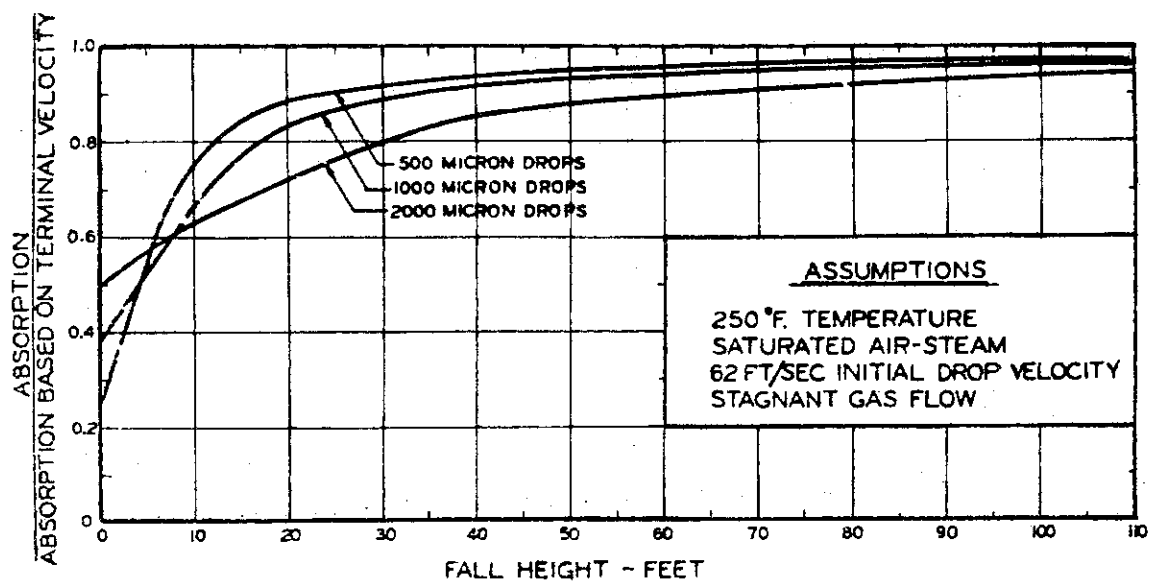


Fig. 3.1-31 Effect of initial downward velocity on drop absorption efficiency

Table 3.1-34 Comparison of stagnant and well mixed drop absorption models

H	E_{Stagnant} For Stagnant			E_{Stagnant} For Rigid Drop		
	$E_{\text{Well Mixed}}$ Film Model			$E_{\text{Well Mixed}}$ Model		
	Drop Diameter			Drop Diameter		
	500 μ	1000 μ	1500 μ	500 μ	1000 μ	1500 μ
100	1.00	0.89	0.52	1.00	0.93	0.75
500	1.00	0.84	0.48	1.00	0.89	0.64
1,000	1.00	0.79	0.50	1.00	0.86	0.65
5,000	0.97	0.82	0.72	0.98	0.87	0.86
10,000	0.96	0.88	0.83	0.98	0.92	0.92
10^5	0.99	0.98	0.98			
10^6	1.00	1.00	0.99			

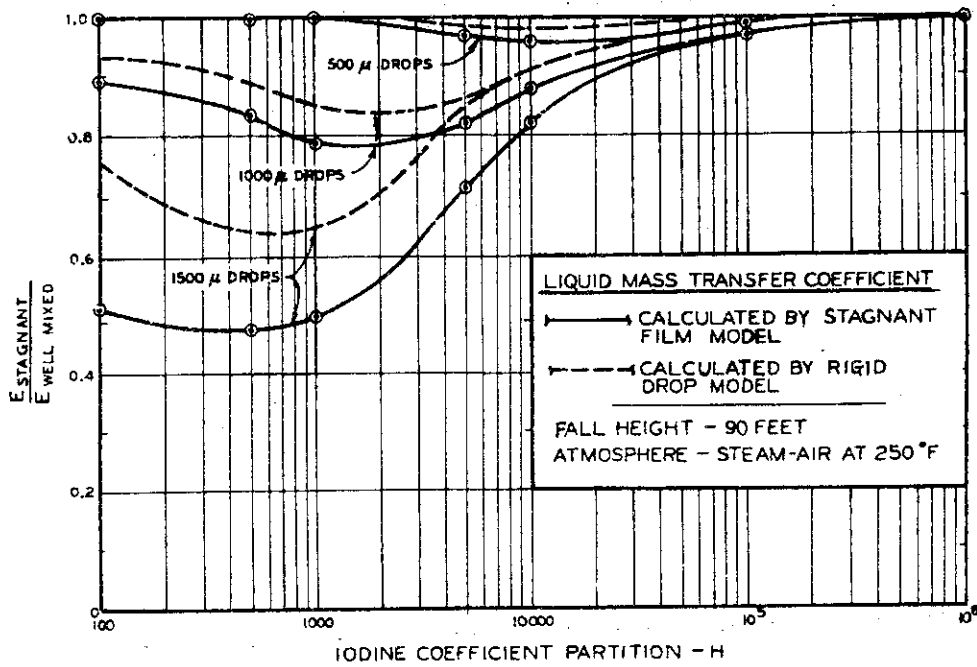


Fig. 3.1-32 Comparison of absorption efficiency for two stagnant drop models

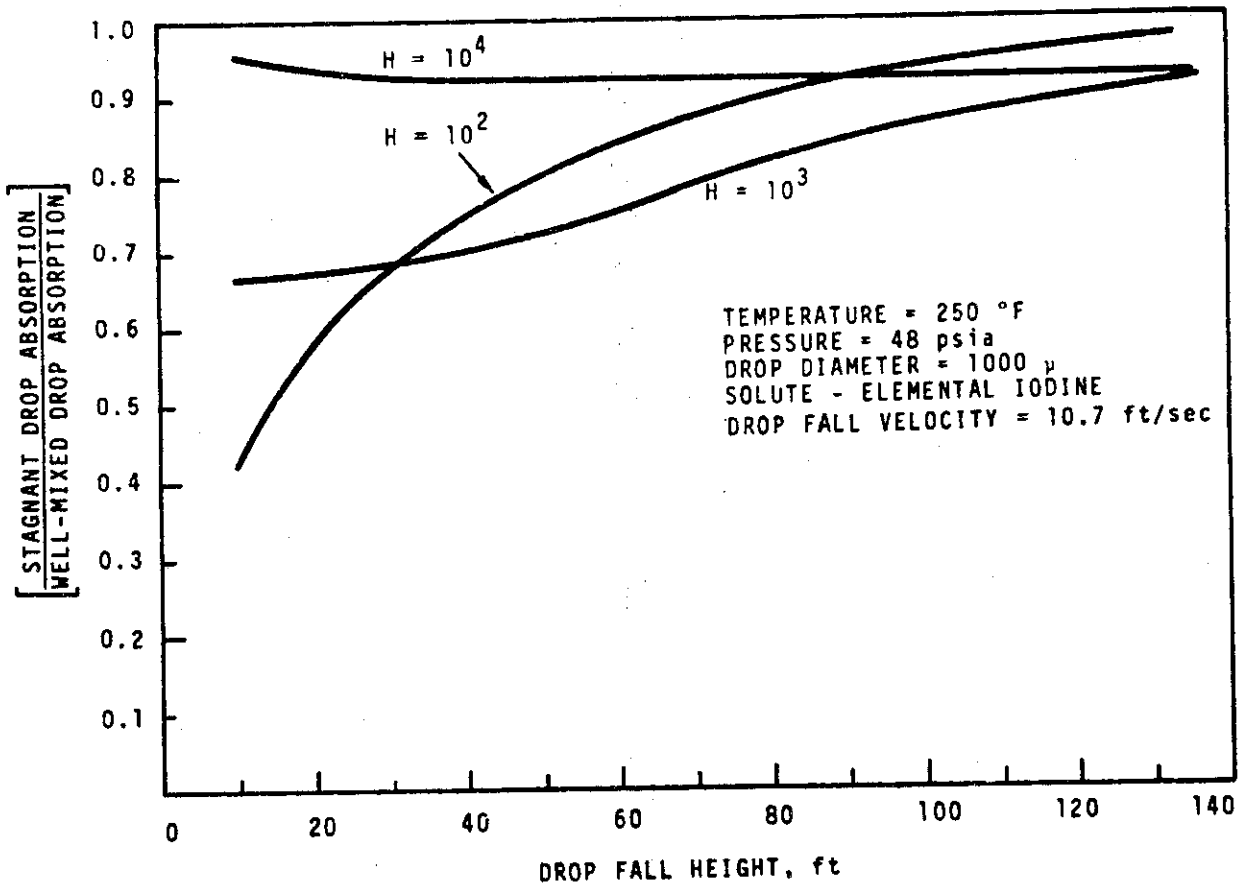


Fig. 3.1-33 Comparison of drop absorption for stagnant and well mixed drops

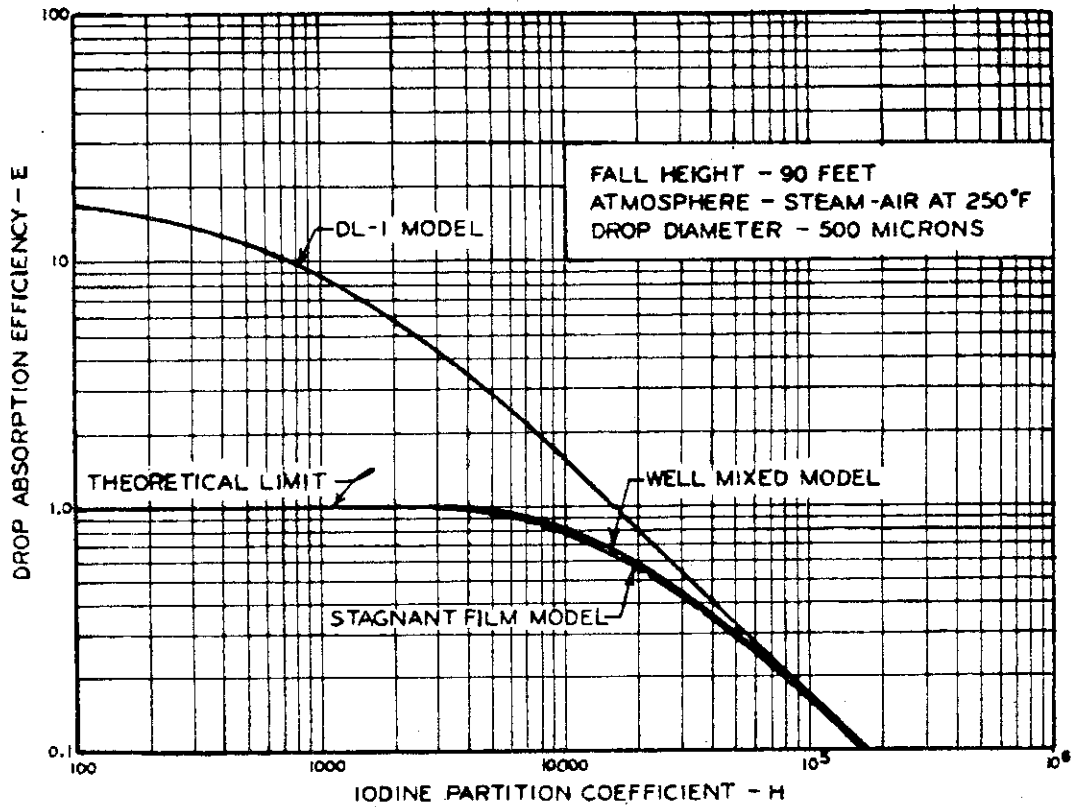


Fig. 3.1-34 Absorption efficiencies for 500 μ drops predicted from several models

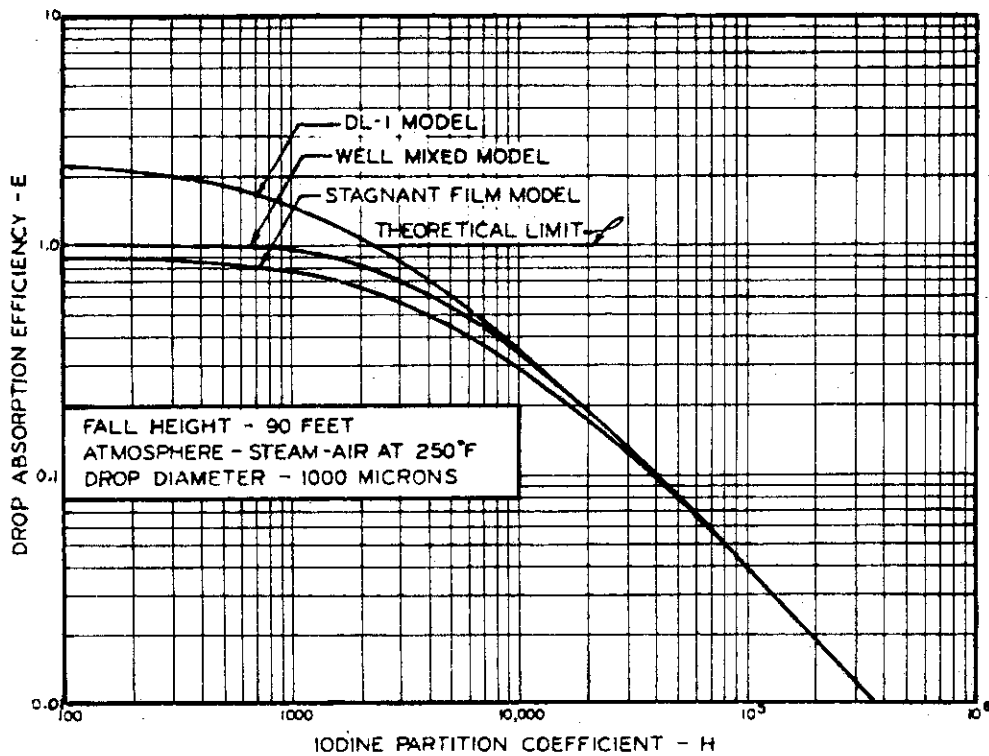


Fig. 3.1-35 Absorption efficiencies for 1000 μ drops predicted from several models

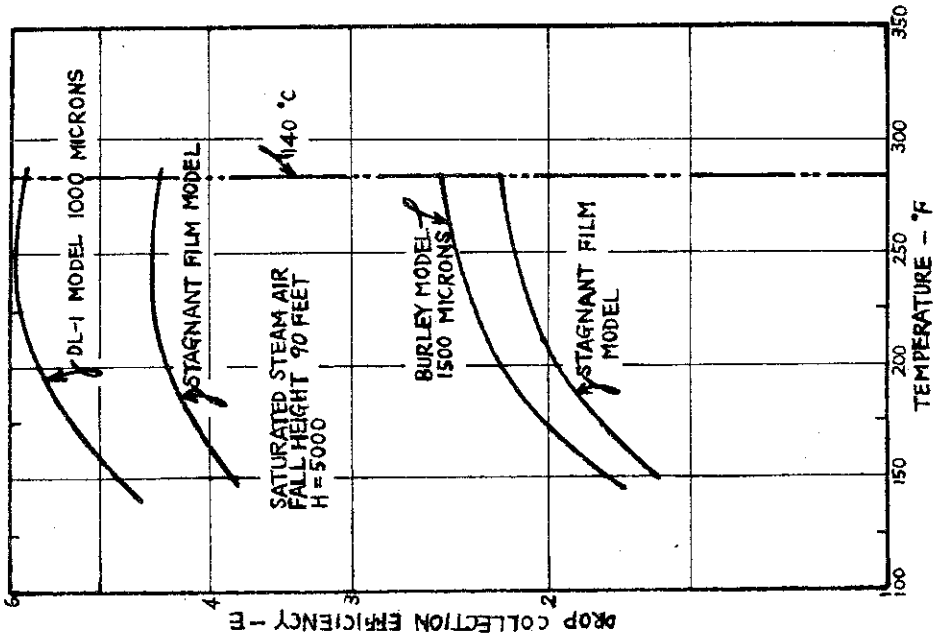


Fig. 3.1-37 Variation of drop absorption efficiency with temperature

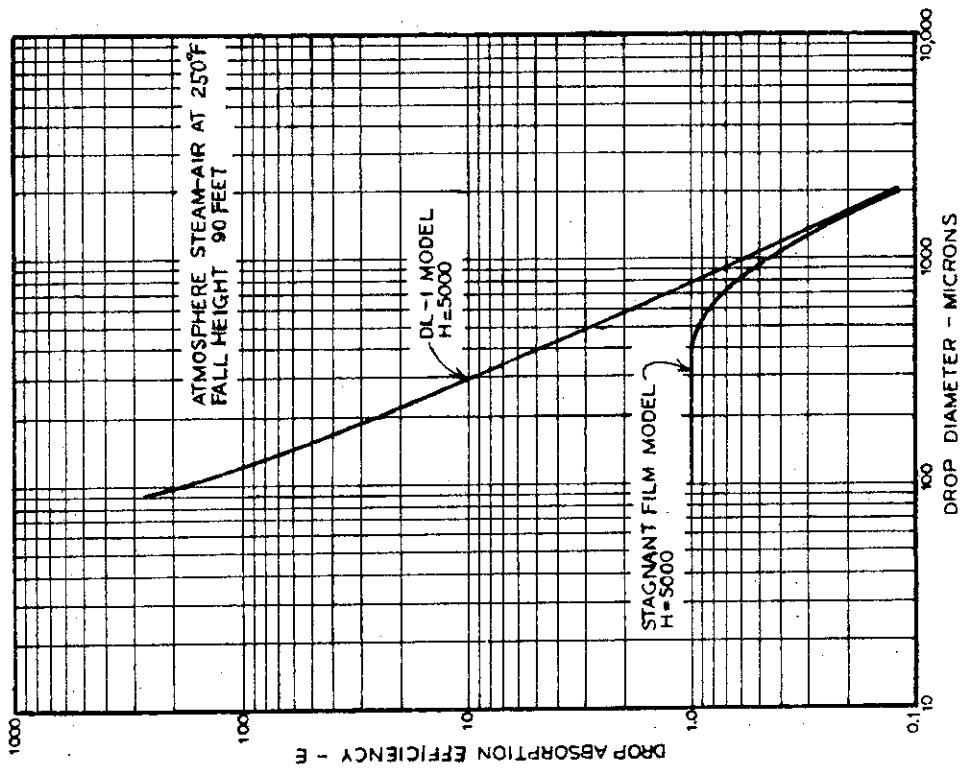


Fig. 3.1-36 Effect of drop size on spray removal rate

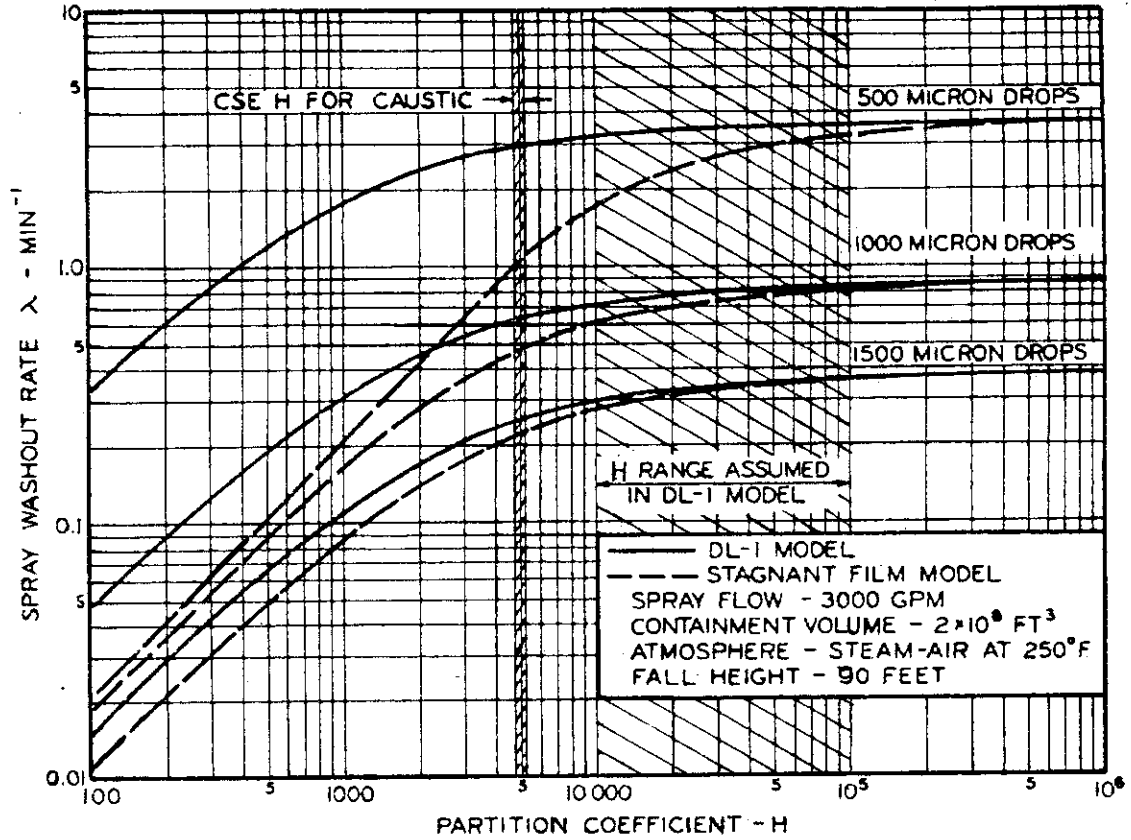


Fig. 3.1-38 Effect of partition coefficient on spray removal rate

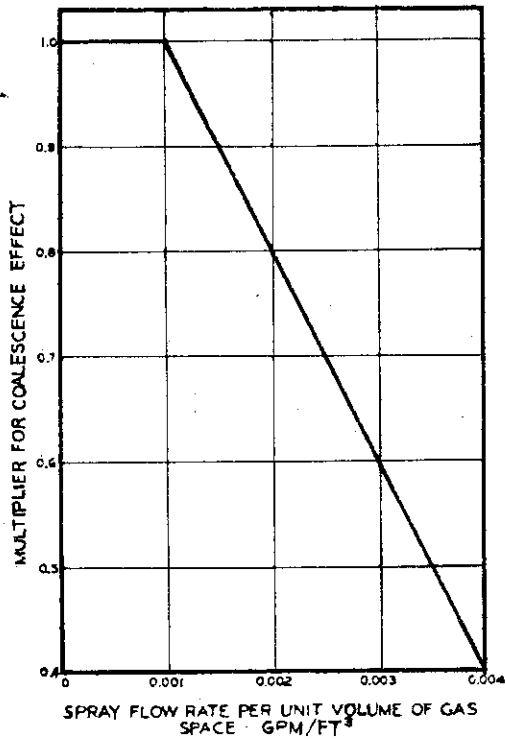


Fig. 3.1-39 Drop coalescence correction factor for spray washout rate used in the DL-1 model

Table 3.1-35 Comparison of predicted and experimental washout coefficients for elemental iodine

Run No.	λ_f , Washout Coefficient, min^{-1}				
	Experi- mental ^a	Perfect Sink Model		Well-Mixed Drop Model ^b	Stagnant Drop Model ^b
		(MMD)	(SMD)		
A-3	0.126	0.127	0.209	0.163	0.121
A-4	0.494	0.405	0.669	0.581	0.392
A-6	0.330	0.361	0.600	0.496	0.382
A-7	0.315	0.353	0.584	0.485	0.366
A-8	1.08	0.842	1.25	0.846	0.763
A-9	1.20	1.00	1.60	1.34	1.16

^a From first spray periods.^b Using surface mean diameters (SMD) and $H_0 = 5000$.

Table 3.1-36 Values of parameters used for model predictions

Parameter	A-3	A-4	A-6	A-7	A-8	A-9
ρ_f , lb/ft ³	0.0726	0.0726	0.1230	0.1453	0.1512	0.1242
μ_f , lb/(h ft)	0.0436	0.0436	0.0395	0.0422	0.0423	0.0409
D_V for l_2 , ft ² /h	0.348	0.348	0.189	0.167	0.161	0.188
d , MMD, μ	1210	1210	1210	1210	770	1220
d , SMD, μ	980	980	980	980	650	990
Rc^a	350	350	520	550	240	525
Rc^b	238	238	350	375	175	365
u_i , ft/min ^a	882	882	720	670	443	723
u_i , ft/min ^b	740	740	600	560	385	615
k_g , ft/min ^a	22.6	22.6	14.54	13.26	14.00	14.56
k_g , ft/min ^b	27.9	27.9	17.95	16.38	16.55	17.75
h_{av} , ft	40.4	37.6	38.7	38.7	37.5	37.2
F , ft ³ /min	1.70	5.84	6.41	6.41	6.28	18.74
V , ft ³	21 000	21 000	21 000	21 000	21 000	21 000

^a Based on MMD.^b Based on SMD.

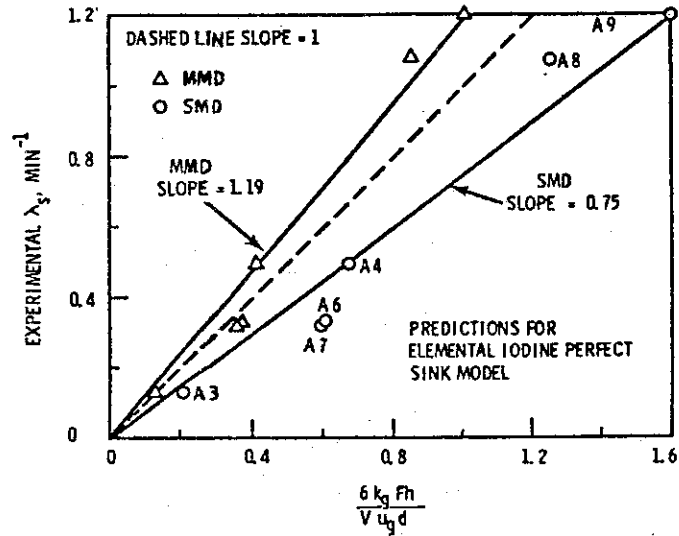


Fig. 3.1-40 Effect of drop diameter on perfect sink model predictions

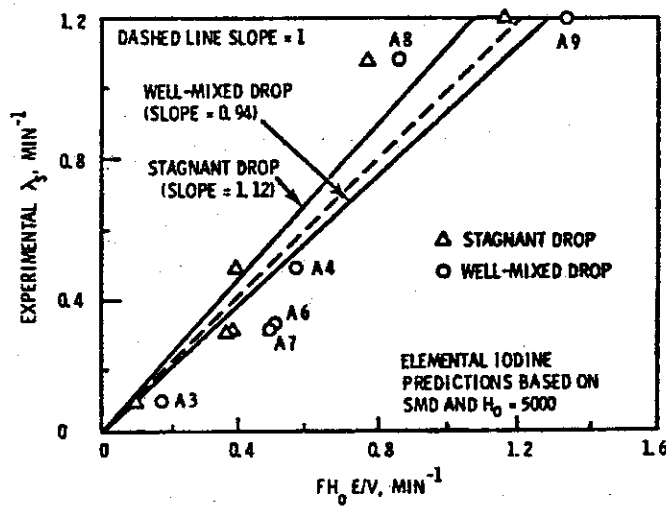


Fig. 3.1-41 Comparison of stagnant and well-mixed drop model predictions with experiment

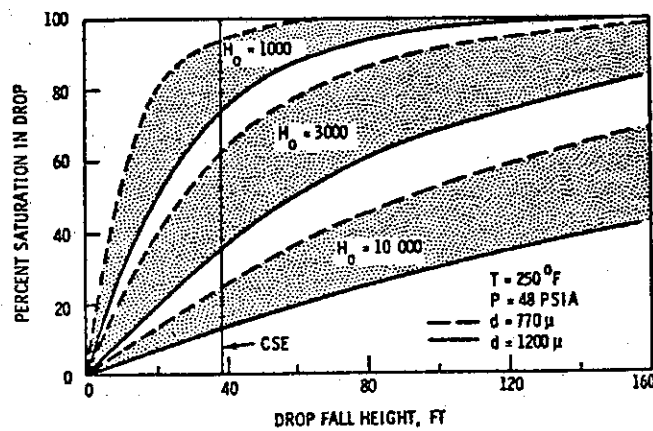


Fig. 3.1-42 Iodine saturation in drop at end of fall

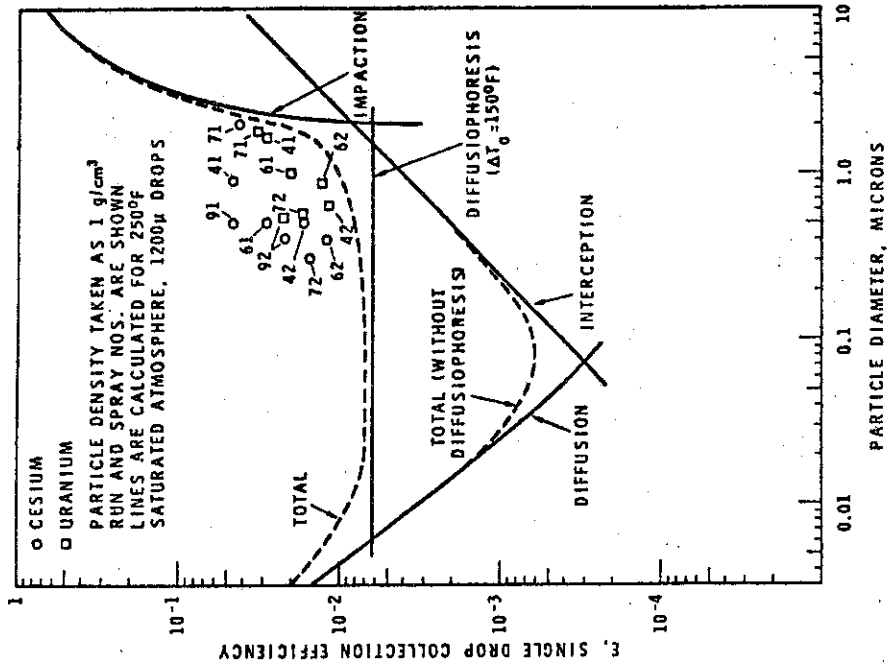


Fig. 3.1-44 Single drop collection efficiency measured in CSE sprays

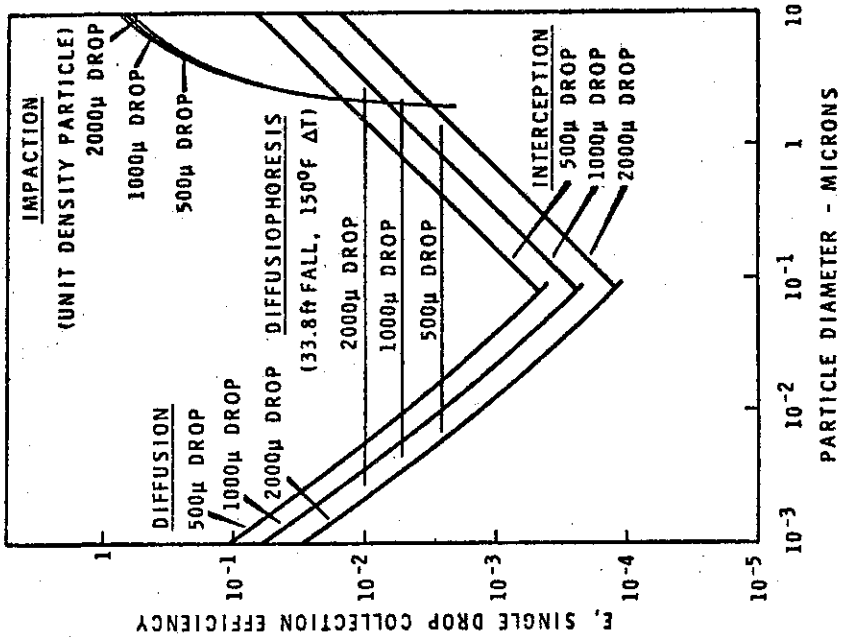


Fig. 3.1-43 Aerosol washout calculated for cold water sprays entering a containment atmosphere saturated at 250°F.

3.2 オークリッジ国立研究所²⁶⁾

オークリッジ国立研究所では、種々のスプレイ液に対するヨウ素の気液分配係数の測定から研究が開始され、ついで単一液滴の風洞実験、さらにNSPP (Nuclear Safety Pilot Plant) による格納容器スプレイの研究へと展開された。

NSPPでは、元素状ヨウ素、有機ヨウ素、粒子状FPの除去について、苛性のホウ酸水溶液 (borax solution)、苛性の(ホウ酸+チオ硫酸ナトリウム)水溶液、ホウ酸水溶液 (boric acid solution) を用いてスプレイ実験が行われた。

また、スプレイ効果試験のみならずスプレイ液による材料の腐食試験、塗料の耐薬品性および耐熱性試験、スプレイ液の放射性分解実験、スプレイ液によるステンレス鋼の応力腐食割れ実験等も行われているが、本報告では主にNSPPにおけるスプレイの熱除去とFP除去に関する実験結果と解析結果を紹介する。

なお、オークリッジ国立研究所における研究結果の詳細については、Appendix 3.2-1 に紹介した文献を参照されたい。

3.2.1 実験装置

Fig. 3.2-1にNSPPのフローシートを示す。実験容器は直径10ft、高さ15ft、容積1350ft³で、耐圧50psigのステンレス鋼製である。実験装置には100galのスプレイ液貯槽、50gpmのキャンド型循環ポンプ、重量測定槽、サンプリング系およびFP発生装置が設けられている。さらに除染用2個、スプレイ用1個のスプレイヘッダーが設けられ、ノズルの種類および個数は可変である。スプレイノズルとしては、Spray Engineering Co. 製のmisting型J140Dとramp bottom型1713が、またSpraying Systems Co. 製のfull cone型7G3が使用された。スプレイ実験では、気相サンプリング系として、5~9個のメイパックを備えた2チャンネルのメイパック装置が使用された。また、サンプル水のサンプリング装置4個、スプレイ液サンプリング装置6個、容器壁落下液サンプリング装置6個が用いられた。さらに粒子状FPに関する実験では、2個の低圧用カスケードインパクターが使用された。

なお、ヨウ素実験ではトレーサーとして¹³¹Iが使用され、FP粒子実験ではUO₂およびCs₂CO₃が使用された。

3.2.2 実験結果

3.2.2.1 元素状ヨウ素の水洗除去

NSPPでは、次の3項目に関するヨウ素除去実験が行われた。

- (1) 苛性のホウ酸水溶液 (borax solution) による短時間スプレイ実験
- (2) チオ硫酸ナトリウム水溶液による短時間スプレイ実験
- (3) 長時間スプレイ実験 (再循環実験)

これらの実験結果をTables 3.2-1~3.2-3に示す。長時間スプレイ実験よりも短時間スプレイ実験によって大きな総括除染係数が得られており、これは意外な結果である。これは、再循環時にはスプレイ液からのヨウ素の放散ならびに微小なスプレイ液滴 (~直径1 μ) の浮遊などが起こるために、気相中のヨウ素濃度が大きくなるためであると考えられる。

長時間 (再循環) スプレイ実験では、チオ硫酸ナトリウム水溶液に対して除染係数として2000、苛性ホウ酸水溶液 (PH9.2) に対して約150が得られた。またホウ酸水溶液およびPH8.0程度の苛

性ホウ酸水溶液に対する除染係数は、約50であった。

一例として、Fig. 3.2-2にRuns 74, 76, 77に対する気相ヨウ素の濃度変化を示す。気相中のヨウ素濃度はスプレー開始後2分で急激に減少すること、またNSPPではスプレー開始後1時間でほぼ平衡濃度に達することがわかる。

これらの結果より、保守的 (conservative) に評価して、平衡時の元素状ヨウ素の水洗速度定数は、苛性の (ホウ酸 + チオ硫酸ナトリウム) 水溶液に対して1000, 苛性のホウ酸水溶液に対して100, ホウ酸水溶液に対して25であると考えられた。

3.2.2.2 有機ヨウ素の水洗除去

有機ヨウ素の水洗除去に関して15回の実験が行われた。実験結果をTable 3.2-4に示す。

Run 54とRuns 44~47の比較より、添加剤の濃度が5倍になれば半減時間は $\frac{1}{\sqrt{5}}$ 倍になっている。

また、Run 69とRuns 65, 66の比較より、スプレー流量 (スプレーノズル個数) が2倍になれば半減時間は約 $\frac{1}{2}$ 倍になっている。

これらより、チオ硫酸ナトリウム水溶液のような反応性水溶液を用いれば、メチルヨウ素に対してもかなりのDRF (dose reduction factor) が得られること、またスプレー流量を増加させたり、小さな液滴径を与えるスプレーノズルを用いても水洗速度が増加することがわかる。

Table 3.2-5には、2-hour DRF (dose reduction factor) によって、上述の諸パラメータのメチルヨウ素の水洗速度定数に対する影響を示す。

3.2.2.3 粒子状FPの水洗除去

模擬燃料としては、ジルカロイ-2とステンレス鋼の二重筒中に封入された $\text{UO}_2 - \text{Cs}_2\text{CO}_3$ のペレットをレーザーで溶融し、溶解性の Cs_2CO_3 と不溶性の UO_2 もしくは U_3O_8 を発生させて実験に使用した。

なお、ペレット中のCs対Uの比は、燃焼率20000Mwd/tonの燃料が模擬された。

実験条件および実験結果をTable 3.2-6に示す。

水蒸気が格納容器内に存在する場合には、スプレー開始時に格納容器内の γ 線量がステップ状に減少するのが観察された。これは局所的にサブクーリングが生じたり、気相中の粒子が凝縮の核になったりするためであると考えられる。 γ 線は、スプレー開始時に急激に減少した後はゆるやかに減少しつづける。

一例として、Fig. 3.2-3にRun 55におけるCs濃度の時間変化を示す。Cs濃度はスプレー開始時に $\frac{1}{5}$ に減じ、その後のスプレーで $\frac{1}{4}$ に減じている。また、スプレー終了から容器洗浄までの待ち時間中に $\frac{1}{3}$ に減じている。

Table 3.2-7にスプレーによるセシウムの総括除染係数を示す。凝縮に影響をおよぼす熱的条件と除染係数に相関性があることがわかる。すなわち凝縮が大なる程、除染係数は大であり、凝縮が小なる程、除染係数は小である。

ウランに対しては、実験中のウラン濃度が測定装置の感度限界に近い為、満足すべき実験結果は得られなかった。

以上の実験より、粒子状FPが除去される主な機構は、粒子が凝縮の核となる現象とスプレー滴上への凝縮に伴う種々の効果であることがわかった。

3.2.3 解析モデル

3.2.3.1 スprayによる熱除去²⁷⁾

解析に際して次の仮定がなされた。

- (1) Spray液滴は終端速度で落下する。
- (2) 液滴上の境界層は十分発達している。
- (3) 液滴は剛体球である。即ち、液滴内部に循環流は存在せず、熱伝導のみによって液滴内部に熱が伝えられる。
- (4) 物性値は一定である。
- (5) 凝縮による液滴の寸法変化はない。
- (6) 液滴落下中、容器内は一定温度である。

従って、無次元化したエネルギー方程式は

$$\frac{1}{\rho^2} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho^2 \frac{\partial \tau}{\partial \rho} \right) = \frac{\partial \tau}{\partial \theta_T} \quad (3.2-1)$$

ここで

τ = 無次元温度 = $(T_\infty - T) / (T_\infty - T_0)$	[-]
θ_T = 無次元時間 = $\alpha t / r_0^2$	[-]
ρ = 無次元半径 = r / r_0	[-]
T = 温度	[°K]
T_∞ = 気相温度	[°K]
T_0 = ノズル出口でのSpray液滴温度	[°K]
α = 温度伝導率	[m ² /hr]
t = 時間	[hr]
r = 半径方向座標	[m]
r_0 = 液滴の半径	[m]

境界条件として液滴表面での熱収支を用い、差分近似法 (Crank-Nicholson法) によって Eq. (3.2-1) の数値解が求められた。

計算結果を Table 3.2-8 および Fig. 3.2-4 に示す。Table 3.2-8 には気相側の低抗を無視した Brown²⁸⁾ の計算結果もあわせて示す。ORNL の計算結果は Brown の計算結果より液滴の温度上昇に多少長い時間を要している。また、小さな液滴よりも大きな液滴の方が温度上昇に長い時間を要している。

Table 3.2-9 に NSPP および大型格納容器における液滴の滞留時間の計算値を示す。

Table 3.2-9 および Table 3.2-8, Fig. 3.2-4 より、1000 μ 以下の液滴では NSPP でもほとんど気相温度になって落下すること、またそれ以上の大きな液滴でも大型格納容器ではほとんど気相温度になって落下することが予測される。この計算結果は、NSPP の実験では Spray 液滴が気相温度に到達しなかったことと一致している。

3.2.3.2 Sprayによる元素状ヨウ素の除去¹⁵⁾

Spray 液滴へのヨウ素の吸収は、気相本体から液滴表面へのヨウ素の移動、気液界面での平衡関

係、液滴内部へのヨウ素の移動の三つの現象から構成されている。

ORNLではこの問題を保守的 (conservative) に評価するため、液滴を剛体球でモデル化し、ヨウ素は分子拡散のみで液滴内部へ輸送されるとした。

故に無次元化した物質方程式および境界条件は

$$\frac{\partial^2 X}{\partial \rho^2} + \frac{2}{\rho} \frac{\partial X}{\partial \rho} = \frac{\partial X}{\partial \theta} \quad (3.2-2)$$

$$X=1 \quad 0 \leq \rho \leq 1 \quad \theta = 0$$

$$\frac{\partial X}{\partial \theta} = \text{Sh} X \quad \rho=1 \quad \theta > 0$$

ここで

$$X = \text{無次元濃度} = (C - C_0) / (C_g - C_0) \quad [-]$$

$$\theta = \text{無次元時間} = D_\ell t / r_0^2 \quad [-]$$

$$\text{Sh} = \text{シャーウッド数} = k_c r_0 / \text{HD}_\ell \quad [-]$$

$$H = \text{気液分配係数} \quad [-]$$

$$C = \text{液相濃度} \quad [\text{mol}/\text{m}^3]$$

$$C_g = \text{気相濃度} \quad [\text{mol}/\text{m}^3]$$

$$C_0 = \text{ノズル出口でのスプレー液中の濃度} \quad [\text{mol}/\text{m}^3]$$

$$D_\ell = \text{液相の拡散係数} \quad [\text{m}^2/\text{hr}]$$

$$k_c = \text{物質移動係数} \quad [\text{m}^2/\text{hr}]$$

液滴の平均濃度で表わせば、Eq. (3.2-2) の解は次式で与えられる。

$$1 - E = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{6 \text{Sh}^2 \exp(-\alpha_n^2 \theta_f)}{\alpha_n^2 [\alpha_n^2 + \text{Sh}(\text{Sh}-1)]} \quad (3.2-3)$$

ここで

$$E = \text{吸収効率} = (C_{\ell 2} - C_0) / (C_g - C_0) \quad [-]$$

$$\alpha_n = \alpha_n \cot \alpha_n + (\text{Sh}-1) = 0 \text{ の } n \text{ 番目の根} \quad [-]$$

$$\theta_f = \text{無次元落下時間} = D_\ell t_f / r_0^2 \quad [-]$$

$$C_{\ell 2} = \text{容器底部でのスプレー液滴中のヨウ素濃度} \quad [\text{mol}/\text{m}^3]$$

$$t_f = \text{スプレー液滴の落下時間} \quad [\text{hr}]$$

Fig. 3.2-5 に計算結果を示す。Sh 数が大になれば Sh 数依存性が小になるとともに液側物質移動律速の計算結果に漸近していく。一方、Sh 数が小の場合は気相側物質移動律速になる。なお Sh 数が 30 では抵抗の 90% が液相側に、Sh 数が 0.4 では抵抗の 90% が気相側に存在するので、 $0.4 \leq \text{Sh} \leq 30$ では両相の抵抗を考慮して計算を進めなければならない。

以上の計算法が PWR の格納容器スプレーの計算に適用された。計算に際してスプレー液滴径分布を 11 群に別け、さらに次の諸点を考慮して計算が行われた。

- (1) 液滴の衝突、合体
- (2) 気相濃度の時間変化

(3) スプレイによる除熱

(4) 燃料中のFPによる加熱

またスプレイ液量は有限として、スプレイ液は循環再使用される前に混合されると仮定された。

その計算結果を Fig. 3.2-6 に示す。元素状ヨウ素は気相中から急激に除去され、スプレイ液の循環再使用が始まるまでヨウ素濃度は減少しつづける。循環開始時には気相中のヨウ素濃度は平衡値よりも数オーダー低くなっているため、スプレイ液の循環再使用に伴ないスプレイ液からのヨウ素の放散が行われ、ヨウ素の気相濃度が極大値を示すことになる。スプレイ液の循環毎にこのような極大値が示されるが、このような変動はしだいに小さくなり、容器内のヨウ素濃度は初期濃度の1/200位の値に漸近していく。

3.2.3.3 スプレイによる有機ヨウ素の除去

格納容器気相中のヨウ素のうち幾分かは有機ヨウ素、主としてメチルヨウ素の形で存在していると考えられる。

メチルヨウ素は元素状ヨウ素と比べると反応性に乏しいが、一般的には反応性物質である。

メチルヨウ素の液滴への吸収は液側物質移動律速であり、吸収されたメチルヨウ素は液中で擬1次の化学反応を起こす。従って反応速度は液中のメチルヨウ素の濃度のみによって決定される。

無次元化した物質方程式および境界条件は

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial \rho^2} + \frac{2}{\rho} \frac{\partial \phi}{\partial \rho} = \frac{\partial \phi}{\partial \theta} + \kappa \phi \quad (3.2-4)$$

$$\phi = 0 \quad 0 \leq \rho \leq 1 \quad \theta = 0$$

$$\phi = 1 \quad \rho = 1 \quad \theta > 0$$

ここで

$$\phi = \text{無次元濃度} = C/HC_g \quad [-]$$

$$\kappa = \text{無次元反応速度} = k r_0^2 / D_l \quad [-]$$

$$k = \text{擬一次反応速度定数} \quad [h_r^{-1}]$$

Eq. (3.2-4) の解は次式で与えられる²⁹⁾。

$$E(k, \theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{6}{k+n^2\pi^2} \left\{ k\theta + \frac{n^2\pi^2 [1 - \exp(-k\theta) \exp(-n^2\pi^2\theta)]}{k+n^2\pi^2} \right\} \quad (3.2-5)$$

計算結果によれば、メチルヨウ素の除去速度は近似的に反応速度定数の平方根に比例することが示された。従って、メチルヨウ素の除去速度を増加させるためには反応速度を増加させる必要があることになる。

3.2.4 結論

NSPPによるスプレイ実験により次の諸点が明らかにされた。

- (1) 元素状ヨウ素はスプレイにより急速かつ有効に気相より除去される。
- (2) 元素状ヨウ素の水洗除去に対してかなり良い解析モデルが提案された。但し、この解析モデルは中性あるいは弱酸性スプレイ液に対し元素状ヨウ素の除去速度をかなり小さめに評価する傾向

がある。

- (3) スprayによるメチルヨウ素の水洗除去は可能であるが、さらに dose reduction factor を増すためにはスpray流量の増加、液滴径の小さなスprayノズルの使用などの改良が必要である。
- (4) (3)項の改良は相当高価であるので、格納容器構造材との共存性を満足し、かつ0.063規定のチオ硫酸ナトリウム水溶液の10~100倍の反応速度を有する安定な添加剤の開発が望まれる。
- (5) スprayによる飽和空気中の粒子状FPの除去速度は元素状ヨウ素とメチルヨウ素の除去速度の中間値程度である。
- (6) 以上により、格納容器スprayはLOCA時のFPの環境への放出低減下に対する適当な方法であることが示された。

APPENDIX 3.2-1 LISTING OF PUBLICATIONS ISSUED BY THE ORNL PROGRAM ON SPRAY AND ABSORPTION TECHNOLOGY

1. T. H. Row, L. F. Parsly, and H. E. Zittel, Design Considerations of Reactor Containment Spray Systems - Part I, USAEC Report ORNL-TM-2412, April 1969.
2. C. Stuart Patterson and William T. Humphries, Design Considerations of Reactor Containment Spray Systems - Part II. Removal of Iodine and Methyl Iodide from Air by Liquid Solutions, USAEC Report ORNL-TM-2412, Part II, August 1969.
3. J. C. Griess and A. L. Bacarella, Design Considerations of Reactor Containment Spray Systems - Part III. The Corrosion of Materials in Spray Solutions, USAEC Report ORNL-TM-2414, Part III, December 1969.
4. L. F. Parsly, Design Considerations of Reactor Containment Systems - Part IV. Calculation of Iodine-Water Partition Coefficients, USAEC Report ORNL-TM-2412, Part IV, January 1970.
5. J. C. Griess, T. H. Row, and C. D. Watson, Design Considerations of Reactor Containment Spray Systems - Part V. Protective Coatings Tests, USAEC Report ORNL-TM-2412, Part V, October 1970.
6. L. F. Parsly, Design Considerations of Reactor Containment Spray Systems - Part VI. The Heating of Spray Drops in Air-Stream Atmospheres, USAEC Report ORNL-TM-2412, Part VI, January 1970.
7. L. F. Parsly, Design Considerations of Reactor Containment Spray Systems - Part VII. A Method for Calculating Iodine Removal by Sprays, USAEC Report ORNL-TM-2412, Part VII, February 1970.
8. H. E. Zittel, Design Considerations of Reactor Containment Spray Systems, Part VIII. Boiling Water Reactor Accident Radiolysis Studies, USAEC Report ORNL-TM-2412, Part VIII, October 1970.
9. B. A. Soldano and W. T. Ward, Design Considerations of Reactor Containment Spray Systems, Part IX. The Utility of Ice Cubes as an Absorbent for Gaseous Fission Products, USAEC Report ORNL-TM-2412, Part IX.
10. J. C. Griess and G. E. Greek, Design Considerations of Reactor Containment Spray Systems - Part X. The Stress Corrosion Cracking of Types 304 and 316 Stainless Steel in Boric Acid Solutions, USAEC Report ORNL-TM-2412, Part X, May 1971.
11. T. L. Hebble, Design Considerations of Reactor Containment Spray Systems - Part XII. Variability of the Dose Reduction Factor for the Removal of Elemental Iodine, USAEC Report ORNL-TM-2412, Part XII, May 1971.

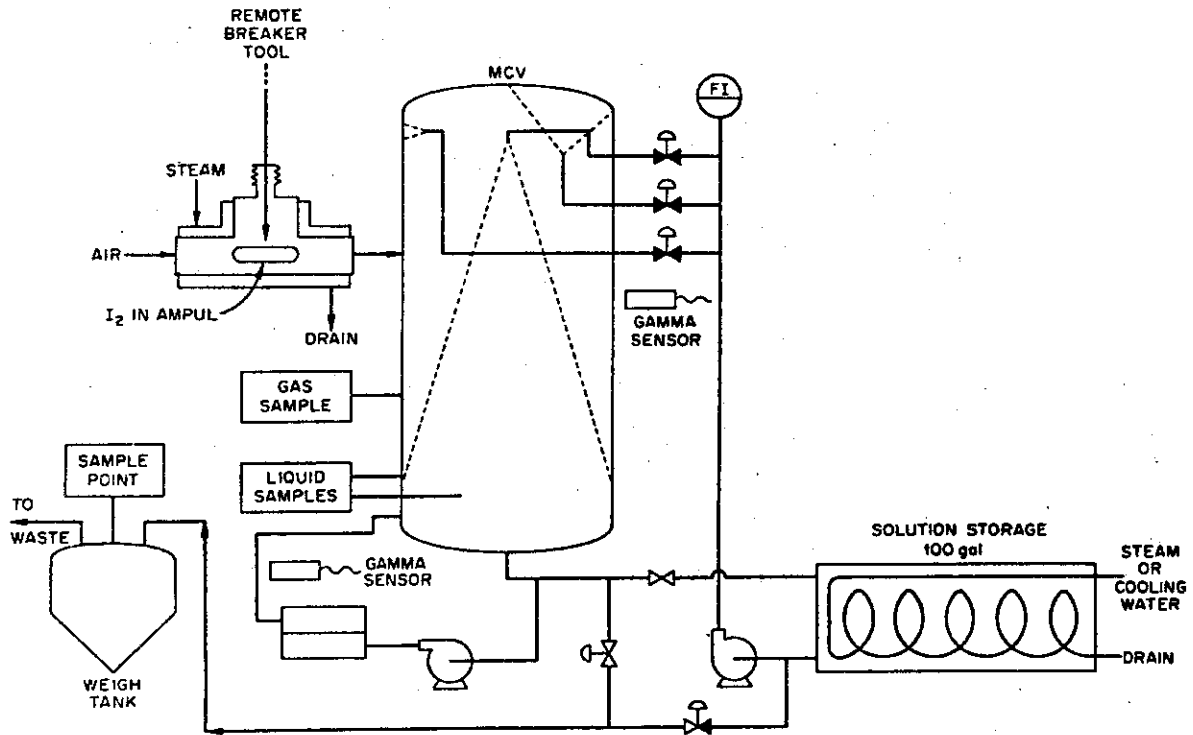


Fig. 3.2-1 Nuclear Safety Pilot Plant flowsheets

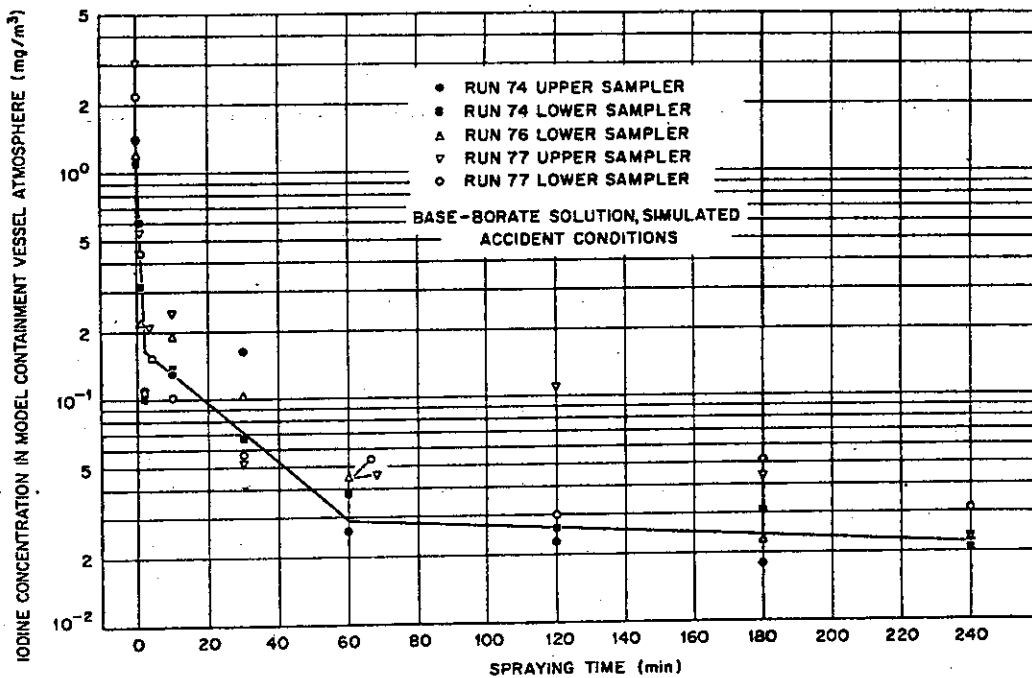


Fig. 3.2-2 MCV iodine concentration vs. time in Runs 74, 76, and 77

Table 3.2-1 Summary Results of Nuclear Safety Pilot Plant Iodine Removal Experiments
Group 1-Borax Solutions - Short Spraying Time

Run Number	27	28	30	31	32
Spray Solution Conditions					
pH	7 ^a	9.4	9.1	9.1	9.0
Solution temperature	30	120	30	30	30
Spray nozzle identification	1713 ^b	1713	1713	1713	1713
Mass median diameter, μ	1800	1750	1080	1100	1630
Flow, gpm	9.9	10.1	15.5	15.3	10.3
Containment Conditions					
Initial temperature, °C	130	130	130	30	130
Initial pressure, psig	45	45	45	3	45
Experimental Results					
Initial half-life from gamma intensity data, sec	48	48	24	38	41
Overall decontamination factor	1620	1240	2470	3950	3320
Half-life calculated from overall DF, sec	34	35	32	30	31

^aSolution for this experiment was process water without additives.

^bOne Spray Engineering Co. Type-317 nozzle.

Table 3.2-2 Summary Results of Nuclear Safety Pilot Plant Iodine Removal Experiments
Group 2 - Sodium Thiosulfate Solutions - Short Spraying Period

Run Number	21	22	26	33	38	42	45	50	51
Spray Solution Conditions									
pH	7	9.3	9.1	9.1	9.3	9.3	9.3	9.3	9.2
Solution temperature	30	30	30	30	100	30	30	120	120
Spray nozzle identification	J-140D ^a	J-140D	1713 ^b	1713	7G3 ^c	7G3	7G3	7G3 ^d	N5-303 ^e
Mass median diameter, μ	200	200	1660	1550	1290	1290	1290	1290	--
Flow, gpm	0.57	0.52	10.3	10.6	11	11	11	14.7	15.9
Containment Conditions									
Initial temperature, °C	30	30	130	130	70	130	30	130	130
Initial pressure, psig	3	3	45	45	10	45	5	45	45
Experimental Results									
Initial half-life from gamma intensity data, sec	37	38	31	21	11	12	14	14	35
Overall decontamination factor	--	6500	2730	2040	416	10 000	3600	28 000	39 000
Half-life calculated from overall DF, sec	--	38	32	33	60	27	30	26	22

^aTwelve Spray Engineering Co. J-140D misting nozzles.

^bOne Spray Engineering Co. Type-1713 hollow cone nozzle.

^cThree Spraying Systems Co. 7G3 (clusters of seven G-3 full cone nozzles).

^dFour 7G3 clusters.

^eOne Bete Fog Nozzle Co. Type N-5-303 nozzle.

Table 3.2-3 Summary Results of Nuclear Safety Pilot Plant Iodine Removal Experiments
Group 3 - Long Spraying Time

Run Number	37	56	57	72	73	74	75	76
Spray Solution Conditions								
Solution	Thio	Borax-I ^a	Borax-I ^a	Borax	Thio ^b	Borax	Borax	Borax
pH	9.2	9.4	9.4	9.2	8.7	9.2	9.3	9.3
Solution temperature	120	120	120	Cold	Cold	Cold	Cold	Cold
Spraying nozzle identification	1713	7G3	7G3	1713	1713	1713	1713	1713
Mass mean diam, μ								
Flow, gpm	12	11	11	15	15	15	15	15
Containment Conditions								
Initial temp., °C	130	130	130	130	130	130	130	130
Initial pressure, psig	45	45	45	45	45	45	45	45
Spraying time, min	184.5	480	480	240	240	240	240	240
Iodine Distribution, %								
Spray solution	85.75	87.44	76.89	85.13	70.82	74.42	71.21	77.01
MCV surfaces	3.78	7.25	4.32	9.64	21.36	17.90	8.22	15.72
I ₂ vaporizer	10.38	4.94	18.22	4.60	7.53	6.63	19.91	6.42
Purge -- on Ag	0.014	0.05	0.012	0.31	0.038	0.87	0.31	0.61
Purge -- on charcoal	0.076	0.33	0.56	0.32	0.25	0.18	0.35	0.24
I₂ Removal Performance								
Initial half-life, gamma, sec	20	30	20					
Overall decon. factor	6000	1877	6450	215	2440	107	257	153
Initial half-life, gas sampling data, sec	59				30	40		25
Overall DF predicted by hydrolysis model				283		240	292	326
Run Number	77	78	79	80	81	82		
Spray Solution Conditions								
Solution	Borax	Borax ^c	Boric acid ^d	Boric acid ^d	Borax	Boric acid ^e		
pH	9.2	9.2	7.5	7.3	8.0	7.2		
Solution temperature	Cold	Cold	Cold	Cold	Cold	Cold		
Spraying nozzle identification	1713	Special ^f	1713	1713	1713	1713		
Mass mean diam, μ								
Flow, gpm	15	15	15	15	15	15		
Containment Conditions								
Initial temp., °C	130	130	130	25	130	25		
Initial pressure, psig	45	45	45	5	45	5		
Spraying time, min	240	345	240	240	240	240		
Iodine Distribution, %								
Spray solution	83.14	64.15	72.87	68.15	70.25	83.93		
MCV surfaces	10.13	17.67	12.17	7.37	21.55	6.45		
I ₂ vaporizer	5.88	16.53	6.41	22.46	6.12	8.04		
Purge -- on Ag	0.58	1.35	2.05	1.69	1.95	1.55		
Purge -- on charcoal	0.26	0.08	0.50	0.32	0.13	0.02		
I₂ Removal Performance								
Initial half-life, gamma, sec								
Overall decon. factor	161	62	45		48	59		
Initial half-life, gas sampling data, sec	33	65	36	141	24	378		
Overall DF predicted by hydrolysis model	222	299	2.2	2.2		2.2		

^a0.28M H₂BO₃; 0.17M NaOH; 4.4 × 10⁻⁴M I₂.^bContained 0.013M Na₂S₂O₃; 0.06M NaOH and 0.2M H₂BO₃.^cSolution on walls.^dProcess water used for solution makeup.^eDistilled water used for solution makeup.^fSpecial header to deliver all solution onto the wall.

Table 3.2-4 Results of methyl iodide removal experiments in the NSPP

	Run 34	Run 35	Run 36	Run 43	Run 44	Run 46	Run 47	Run 48	Run 49	Run 53	Run 54	Run 58	Run 65	Run 66	Run 69	
Experimental Conditions																
Number of nozzles	1	1	1	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	6	12	
Nozzle type	1713 ^a	1713	1713	7G3 ^b	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	A-8 ^c	A-8	
Capacity per nozzle, gpm at 40 psi differential	15.2	15.2	15.2	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	1.6	1.6	
Spray solution composition																
0.28M H ₂ BO ₃	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x ^d	x	x ^e	x	x	x	x
0.17M NaOH	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x ^f	x	x	x	x	x
0.063M Na ₂ SiO ₃	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
Initial vessel pressure, psig	3	45	45	3	45	45	45	45	5	45	45	45	45	45	45	45
Initial vessel temperature, °C	30	130	130	30	130	130	130	130	30	130	130	130	130	130	130	130
Solution flow, gpm	15	12	12	11	11	11	11	11	11	11	11	11	11	7.1	14.2	
Spraying time, min	158	120	180	180	180	180	180	180	180	180	180	180	180	180	171	
Solution temperature, °C	30	120	120	30	120	120	120	120	30	120	120	120	120	120	120	
CTAB ^g molarity	0	0	0	0	0	0	10 ⁻⁴	10 ⁻⁴	10 ⁻⁴	0	0	0	0	0	0	
Results																
Initial half-life from gamma data, min	78	17	25	Long	35	45	42	180	h	h	h	h	44	54	34	
Iodine collected by spray solution, mc	12.331	15.534	13.129	0.768	25.916	34.672	23.7	2.443	13.189	8.339	27.625	18.984	29.115	21.85	17.360	
Iodine in purge, mc	0.005	0.002	0.001	0.001	<0.001	<0.001	<0.001	0.001	<0.001	<0.001	<0.001	0	0.001	0	0	
Methyl iodide in purge, mc	6.937	5.617	4.036	23.334	2.760	4.360	3.514	39.576	13.199	13.491	0.235	1.586	2.396	1.586	0.180	
Overall decontamination factor for methyl iodide	2.76	3.77	4.25	1.033	10.37	8.95	7.61	1.13	2.00	1.62	110	13.0	13.13	14.77	97.4	
Mean half-life, min	107	63	106	Long	53	57	61	1004	180	260	27	49	48	46	26	
Iodine residue in U-tube, mc	3.072	6.667	6.423	0.003	0.045	0.003	0.004	0.05	0.091	<0.001	0.034	0.013	0.017	0.002	0.004	
Iodine deposited in MCV, mc	1.738	1.488	0.726	0.128	0.838	1.782	1.966	0.23	3.518	2.674	1.319	1.364	1.183	1.046	0.547	

^aSpray Engineering Co. Cat No. 1713 ramp bottom nozzle (hollow cone) 0.375-in. orifice.
^bSpraying Systems Co. Cat. No. 7G3 cluster of 7 full cone nozzles 0.063-in. orifice.
^cSpraying Systems Co. Cat. No. A-8 Whirljet (hollow cone) nozzle $\frac{1}{8}$ -in. orifice.
^dAlso contained 0.2% HCHO and 0.14% Dow PEI 1000.
^eContained 1% PEI 1000.
^f0.315M Na₂SiO₃.
^gCTAB - cetyltrimethylammonium bromide.
^hNo measurement available due to instrument drift.

Table 3.2-5 Calculated effect of faster reaction and smaller drops on methyl iodide removal

Reaction Rate Constant (sec ⁻¹)	2-h Dose Reduction Factor	
	Drop Diameter	
	1210	550
4.3	1.089	1.322
43	1.306	2.38

Building volume: 2 000 000 ft³ (56 600 m³)
 Solution flow: 2600 gpm (9.84 m³/min).

Table 3.2-6 Results of particle removal experiments in NSPP

	Run 55	Run 59	Run 60	Run 61	Run 62	Run 63	Run 64	Run 67	Run 68	Run 70	Run 71
Experimental Conditions											
Number of nozzles	3	3	3	3	3	3	3	6	12	12	1
Type of nozzle	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	A-8	A-8	A-8	17L3
Solution flow	11	11	11	11	11	11	11	7.1	14.2	14.2	14
Initial vessel pressure, psig	45	3	45	22	45	45	7	45	42	45	47
Initial vessel temperature, °C	130	27	130	100	130	130	70	130	130	13	132
Initial solution temperature, °C	30	22	17	15	100	15	18	21	22	2	24
Spraying time, min	50	50	60	60	60	5	60	60	60	60	60
Results											
Cesium release from sample, mc	188.8	126.8	96.0	212.6	172.5	132.7	194.7	95.0	107.9	165.8	52.5
Transfer to MCV, mc	18.728	11.010	11.27	35.31	24.71	12.99	30.32	7.13	15.22	13.581	10.361
Found in spray water	15.001	5.622	10.042	30.75	18.74	11.11	24.75	6.22	10.17	12.867	4.012
Found in MCV decontamination solution	1.572	1.207	1.117	3.83	2.87	1.663	5.03	0.872	3.14	0.652	6.317
Found in purge	0.128	4.18	0.109	0.73	3.099	0.216	0.54	0.041	0.011*	0.09*	0.032
Uranium release from sample, mg	5166	6252	875.2	6855	3353	4559	6629	1799	851.7	3025	544.0
Transfer to MCV, mg	350	124.09	107.14	452.0	322.7	393.2	1178	92.15	125.84	271.46	60.71
Found in spray water	16.25	29.11	43.13	228.0	18.9	75.36	445.7	5.59	25.51	13.72	12.530
Found in MCV decontamination solution	329.76	88.58	62.79	201.0	282.8	309.3	716.5	86.45	100.33	255.63	48.18
Found in purge	19.2	6.40	0.218	23.0	21.0	8.54	15.8	0.109	0.115*	2.11	1.99*

*Values calculated from containment atmosphere gas samples.

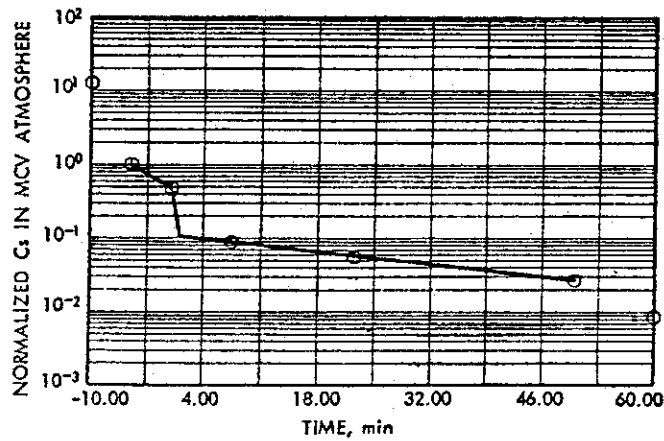


Fig. 3.2-3 Cs concentration in MCV vs. time in NSPP Run 55

Table 3.2-7 Cesium decontamination factors in particle experiments

Run	Initial MCV Temperature (°C)	Overall Decontamination Factor
55	130	118
60	130	93
64	130	52 ^a
62	130	7 ^b
61	100	43
64	70	47
59	30	2.3

^a5-min spraying time.

^bSolution heated to 100 deg.

Table 3.2-9 Approximate residence times for drops of various sizes in an air-steam atmosphere at 120°C

Diameter (μ)	Residence Time(sec)	
	NSPP, H = 15 ft	Large PWR, H = 120 ft
500	3.0	23
1000	1.4	10.5
1500	0.9	8.2
2000	0.4	7.4
3000	0.3	6.0
4000	0.2	4.19

Table 3.2-8 Summary of results - atmosphere temperature 130°C, initial drop temperature 30°C

Drop Diameter (μ)	Time(sec) to Attain θ for Dimensionless Temperature of -		
	$\theta = 0.5$	$\theta = 0.1$	$\theta = 0.01$
Heat Transfer to Drop by Condensation and Convection (Present Calculations)			
500	0.055	0.146	0.265
1000	0.155	0.45	0.86
1500	0.31	0.95	1.83
2000	0.52	1.64	3.3
3000	1.04	3.5	7.0
4000	1.75	6.2	12.2
Drop Surface at T_w (Calculations of Brown^a)			
500	0.013	0.09	
1000	0.03	0.3	
1500	0.13	0.7	
2000	0.20	1.15	
3000	0.45	2.5	
4000	0.74	4.2	

^aG. Brown, "Heat Transmission by Condensation of Steam on a Spray of Water Drops," *ASME, Proc. Gen. Disc. Heat Transfer*, pp. 49-52 (1951).

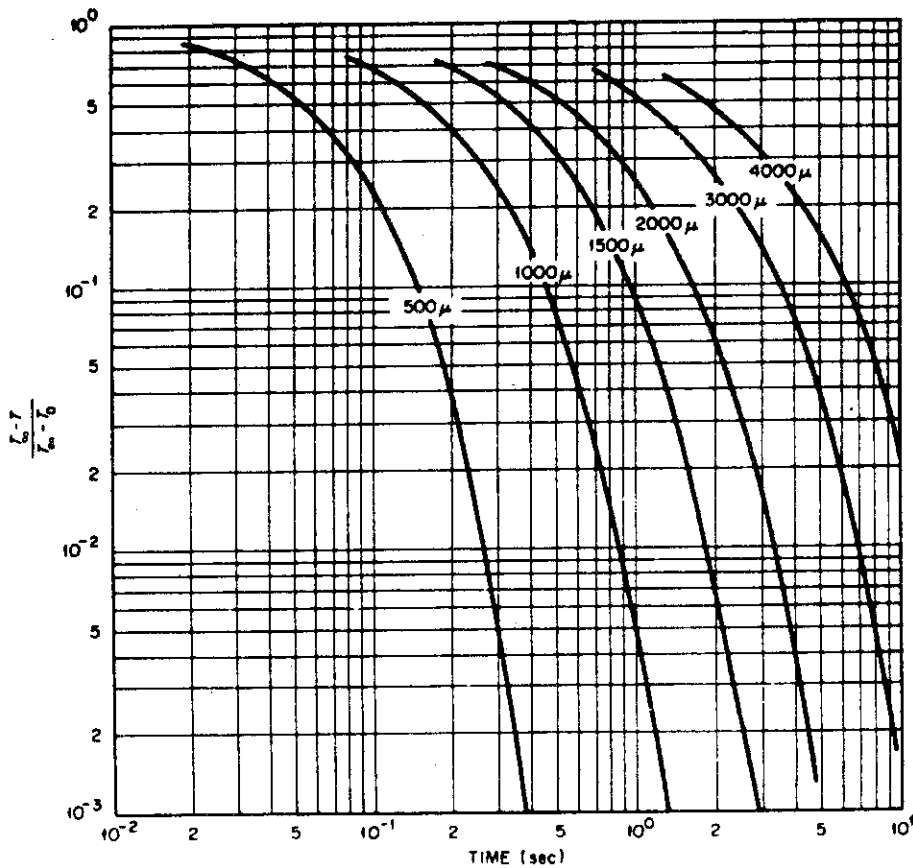


Fig. 3.2-4 Calculated time to heat falling drops including condensation and convection

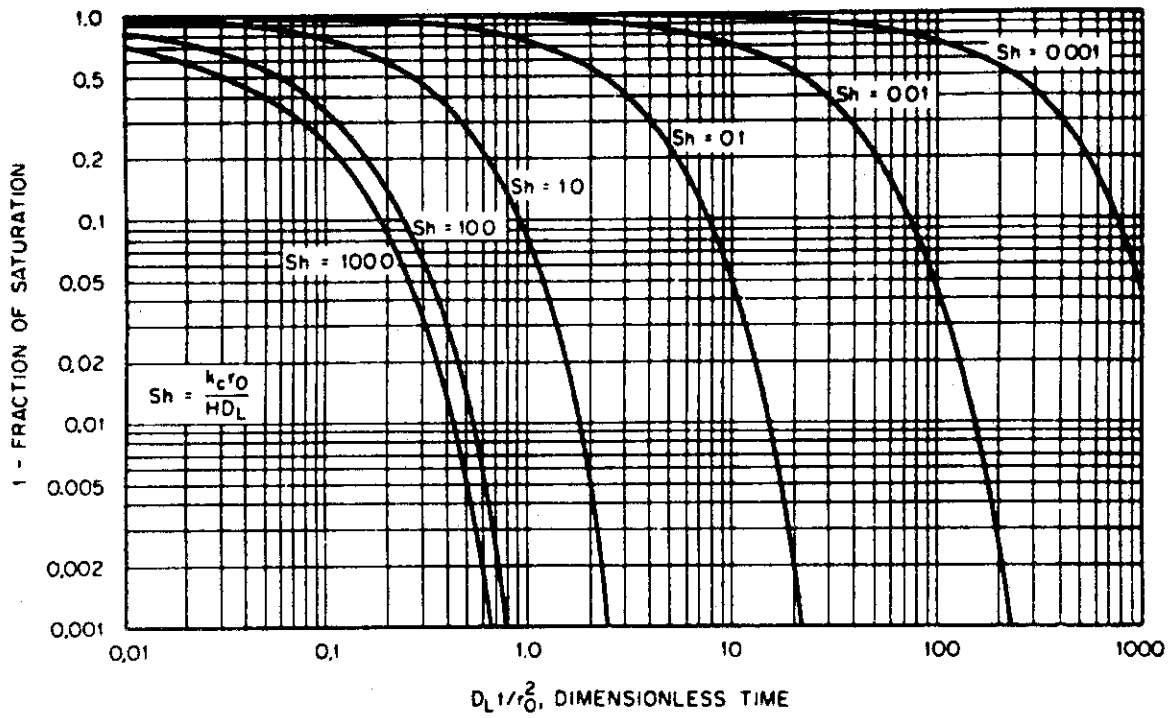


Fig. 3.2-5 Fraction unsaturation of drops as a function of θ and Sh .

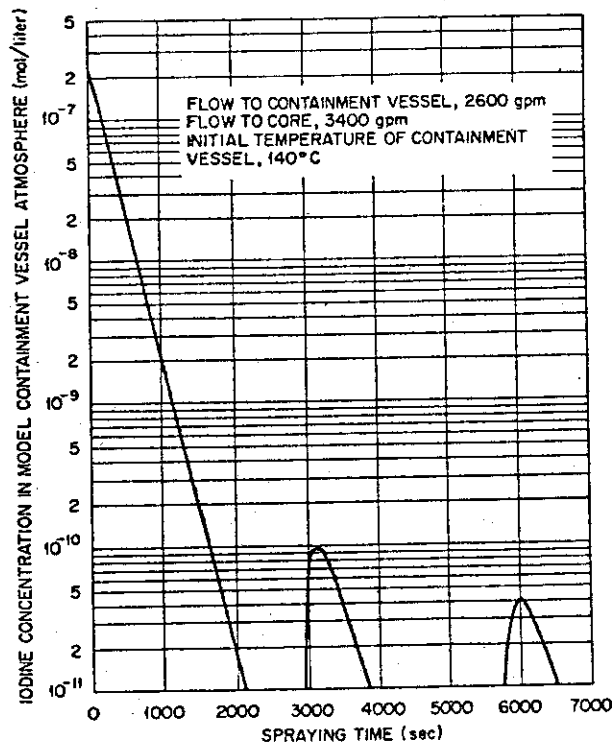


Fig. 3.2-6 Elemental iodine in atmosphere of prototype containment building vs. time

3.3 Carolinas Virginia Tube Reactor (CVTR)による実験^{30,31)}

1969年初期に Carolinas Virginia Tube Reactor (CVTR) の格納容器系を用いて、数回の DBA (design basis accident) 模擬実験が行われ、その一部として格納容器スプレイの効果測定された。なお実験結果は、格納容器温度圧力挙動計算コード CONTEMPT および CONDRU II と比較検討された。

3.3.1 実験装置

Fig. 3.3-1 に、CVTR 格納容器の構造ならびに主要寸法を示す。

格納容器は鋼板内張りの鉄筋コンクリート製で、DBA (設計評価用事故) 時の条件 35 psia, 215 °F に耐え得るように設計されており、その内部に炉心、一次冷却系、蒸気発生器およびその他の機器が収められている。また、227000 ft³ の自由空間は operating region, intermediate region, basement region と呼ばれるほぼ独立した三つの領域からなっている。

Fig. 3.3-2 に蒸気供給系を示す。蒸気は CVTR から 500 ft 離れた火力発電所 Parr Station から供給され、1 in 直径の 126 個の穴をもつ分散器 (Diffuser) より格納容器内に放出された。

Fig. 3.3-3 にスプレイ系を示す。スプレイヘッダーはベンドライン (Fig. 3.3-1 参照) 上約 6 in に設置され、さらにスプレイノズルは散水面積をできるだけ大きくするように配置された。スプレイノズルとしては、 $\frac{3}{4}$ in の 7 G 3 型と 1 in の 11- $\frac{1}{2}$ F 18 型と 1 $\frac{1}{2}$ in の F 35 型の 3 種類のものが使用された。

3.3.2 実験結果

次の 3 回の DBA 実験が行われた。

- (1) Test 3 : 格納容器は水蒸気によって 18 psig に加圧された後、自然放冷によって減圧される。
- (2) Test 4 : 格納容器が水蒸気によって 18 psig に加圧された後、290 gpm でスプレイ系が 12 $\frac{1}{2}$ 分間作動される。
- (3) Test 5 : 格納容器が水蒸気によって 18 psig に加圧された後、500 gpm でスプレイ系が 11 $\frac{3}{4}$ 分間作動される。

従って、スプレイ系による減圧効果は Tests 4, 5 で測定された。さらに、スプレイ水量はスプレイヘッダーにとりつけられるノズル個数によって調整された。水蒸気供給終了約 30 秒後にスプレイが開始され、約 12 分間続けられた。スプレイ水の循環再使用実験は行われなかった。

3.3.2.1 スプレイノズルの配置とスプレイ水量分布

実験に使用されたスプレイノズルの種類と個数を Table 3.3-1 に示す。

スプレイヘッダーにはノズル取付位置が等間隔に設けられており、2 個のスプレイノズルがそれぞれ取付けられた。すなわち Table 2.3-1 に示すように、各取付位置に $\frac{3}{4}$ in の 7 G 3 型ノズル 1 個と、もう 1 個として他の 2 種類のノズルが交互に取り付けられた。更にスプレイ水の噴霧方向は、 $\frac{3}{4}$ in ノズル (最も小さい粒径を生ずる) は水平面より 45° 下向き、1 in ノズルは格納容器中心に向けて水平方向、1 $\frac{1}{2}$ in ノズル (最も大きい粒径を生ずる) は水平面より 45 度上向きであった。

格納容器内のスプレイ水の水量分布は、直径 $13\frac{1}{2}$ in の受水用容器 3 2 個を用いて測定された。その容器の配置を Fig. 3.3-4 に示す。実験終了後、各容器内の水量が測定された。Figs. 3.3-5, 3.3-6 に Tests 4, 5 におけるスプレイ水量分布を示す。両者とも格納容器全面にわたってスプレイ水がよく分散されていることがわかる。格納容器壁近傍のスプレイ水量は平均値より小であるが、最小水量でも約 $0.22 \text{ gal/ft}^2 \cdot \text{min}$ であった。

3.3.2.2 スプレイによる減圧効果

Fig. 3.3-7 に、Heise gauge によって測定された格納容器内圧力の時間変化を示す。Figs. 3.3-8, 3.3-9, 3.3-10 には、4 個の圧力変換器と Heise gauge によって測定された圧力の時間変化を示す。圧力計の種類により測定値に差が無いこと、また格納容器内に圧力分布が無いことを示している。

格納容器内の高さ方向の温度分布を Figs. 3.3-11, 3.3-12, 3.3-13 に示す。各実験共に、水蒸気が供給されている間の温度変化は同じ傾向を示している。即ち operating region では最高温度を、basement region では最も低い温度を示しながら急激な温度上昇を示す。しかしながら、水蒸気供給終了後はスプレイの効果によって温度分布が非常に異なっている。即ちスプレイが無い場合には、長時間にわたって格納容器内に大きな温度分布が存在する。しかしながらスプレイは格納容器全体を一樣温度にする傾向があるので、Figs. 3.3-11, 3.3-12, 3.3-13 に示されるように、実験開始 1 時間後の格納容器内の温度差は、Tests 3, 4, 5 に対してそれぞれ最大 90°F , 47°F , 24°F となる。

Fig. 3.3-14 には、格納容器ドーム部の温度を示す。蒸気供給終了 1 時間後、Tests 3, 4, 5 に対してそれぞれ 177°F , 155°F , 137°F である。従って、スプレイが無い場合 (Test 3) に比べて Test 5 では、スプレイによってさらに温度が 40°F 降下したことになる。

Fig. 3.3-15 に格納容器内温度に対するスプレイの効果を示す。これより、スプレイはその流量にほぼ比例して格納容器内の温度を減ずる効果があることがわかる。

Fig. 3.3-16 には格納容器内圧力に対するスプレイの効果を示す。これより、スプレイは格納容器内の圧力低減下に有効であり、かつスプレイを続けている間はその有効性が持続されることがわかる。また、スプレイ流量が多い程、圧力の低下が著しいことを示している。

さらに格納容器内高さ方向のスプレイ水温度が測定され、スプレイ効率が求められた。のど部に熱電対が挿入された 4 in の“じょうご”にスプレイ水が連続的に捕集され、スプレイ水温度が測定された。(周囲温度の影響を小さくするために“じょうご”はポリウレタンで断熱された。) “じょうご”は operating region の高さ方向 5 個所に設けられた。

測定の結果、スプレイヘッダーにもっとも近い“じょうご”(スプレイヘッダーの 3.1 ft 下方)で、スプレイ水温度はすでに格納容器気相温度になっていることがわかった。

スプレイ効率の計算に使用されたスプレイ水温度と気相温度の時間変化を Figs. 3.3-17, 3.3-18 に示す。スプレイ開始と共に気相とスプレイ水温度測定用熱電対は異なった温度を示し、かつスプレイ期間中は一定温度差を示している。また、 250 gpm で 7.5°F 、 500 gpm で 4°F と、スプレイ流量が多い程、気相とスプレイ水の温度差は小さな値を示している。

3.3.3 解析コードと実測値の比較検討

Tests 4, 5 の実測値と CONTEMPT を用いた計算結果との比較を Figs. 3.3-19, 3.3-20

に示す。

実測値と解析コードは同じ傾向を示しほぼ良く一致している。

3.3.4 結 論

DBA時の格納容器内の圧力、温度がスプレイにより効果的に低減下されることが示された。

また、スプレイは格納容器内気相の混合および温度の均一化を促進することが示された。実測値と格納容器温度圧力挙動計算コードCONTEMPTによる計算結果との比較検討、ならびにスプレイの熱吸収率の実測より、スプレイの熱吸収率はスプレイ開始時に非常に大きい(約100%)ことがわかった。もちろん格納容器内気相温度の低下に伴ってスプレイの熱吸収率が減少するはずであるが、CVTRのスプレイ実験ではそのような減少は測定されなかった。

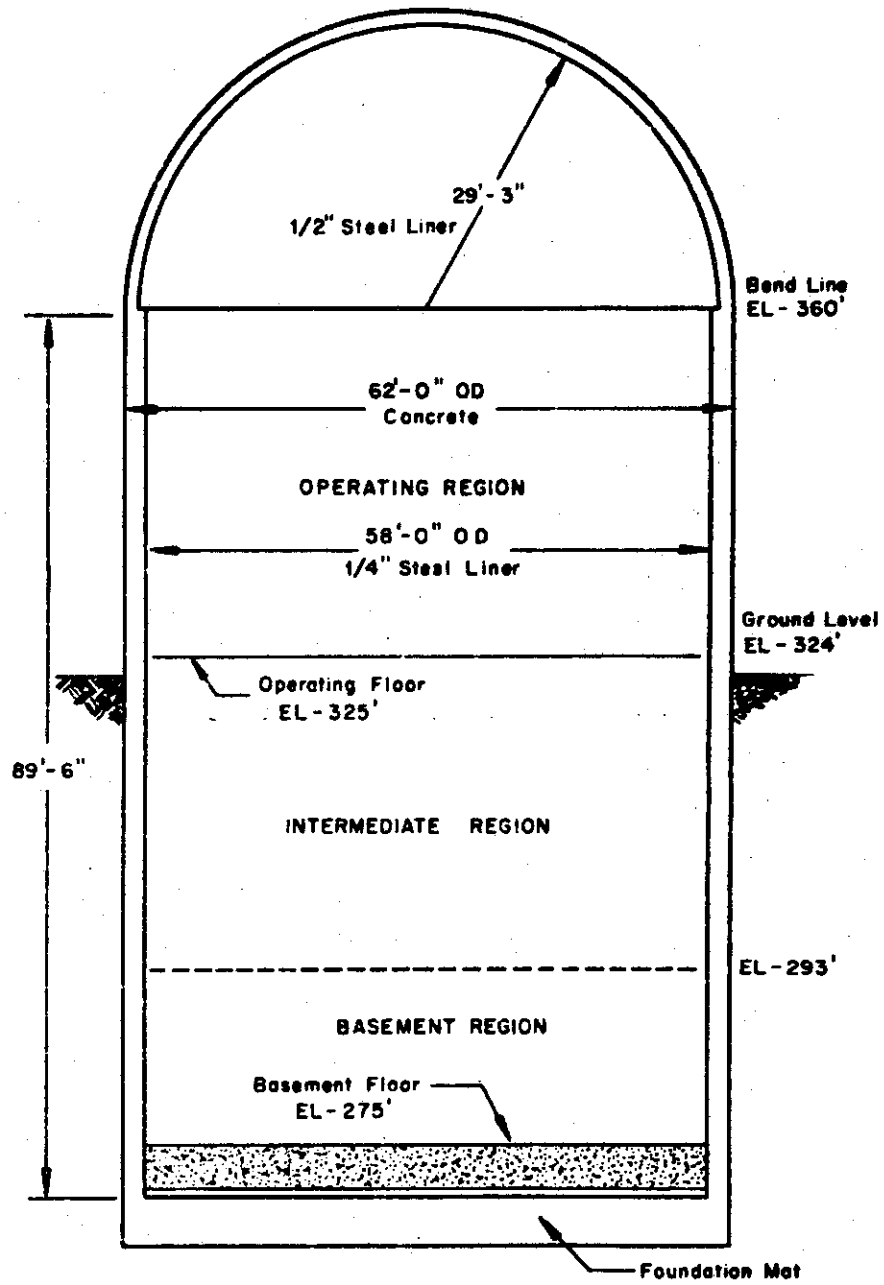


Fig. 3.3-1 CVTR containment structure

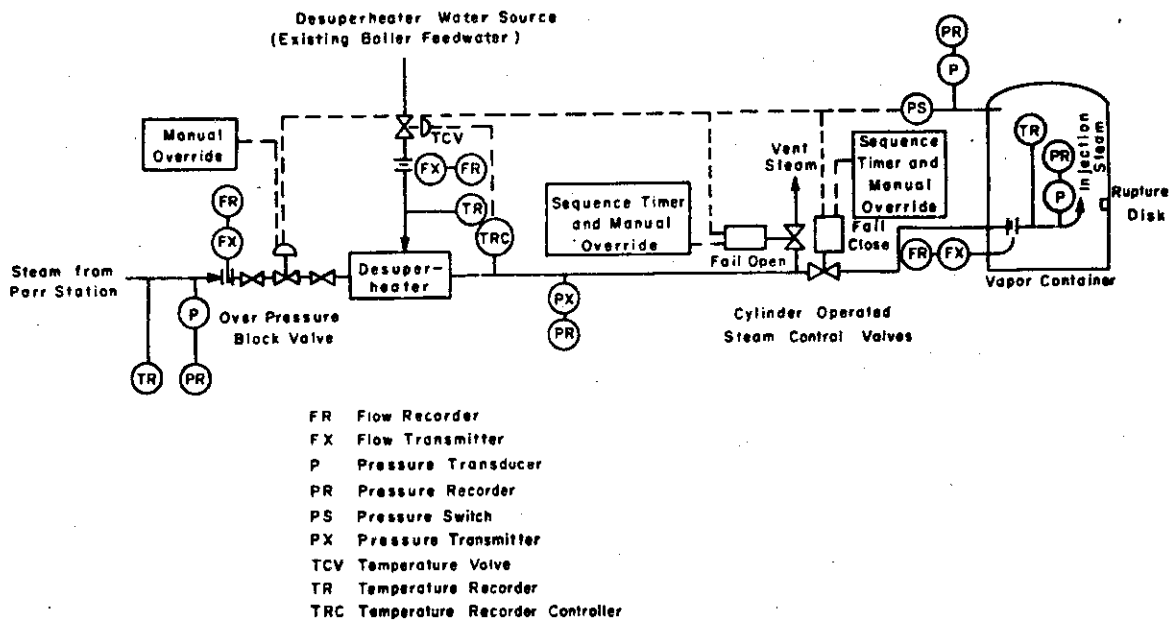


Fig. 3.3-2 CVTR steam addition system

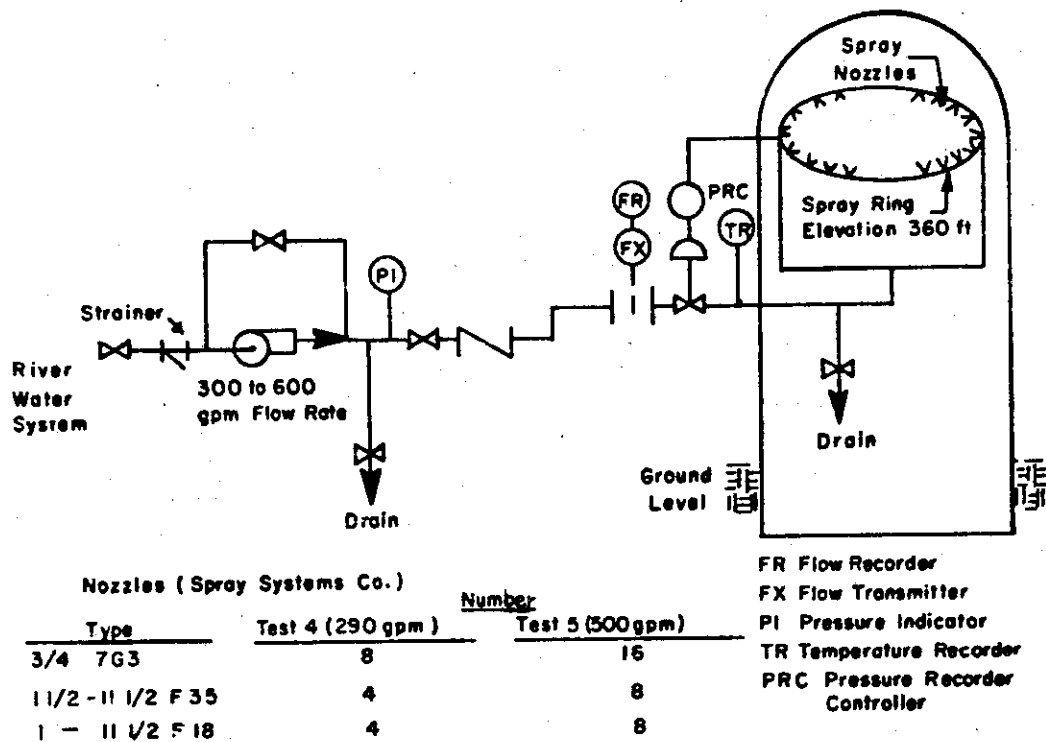


Fig. 3.3-3 CVTR pressure reduction spray system

Table 3.3-1 CVTR spray nozzles

Nozzle (Spray Systems Company)	Number of Nozzles	
	Test 4 (290 gpa)	Test 5 (500 gpa)
3/4-inch Type 7G3	8	16
1-inch Type 11-1/2 F18	4	8
1-1/2-inch Type F35	4	8

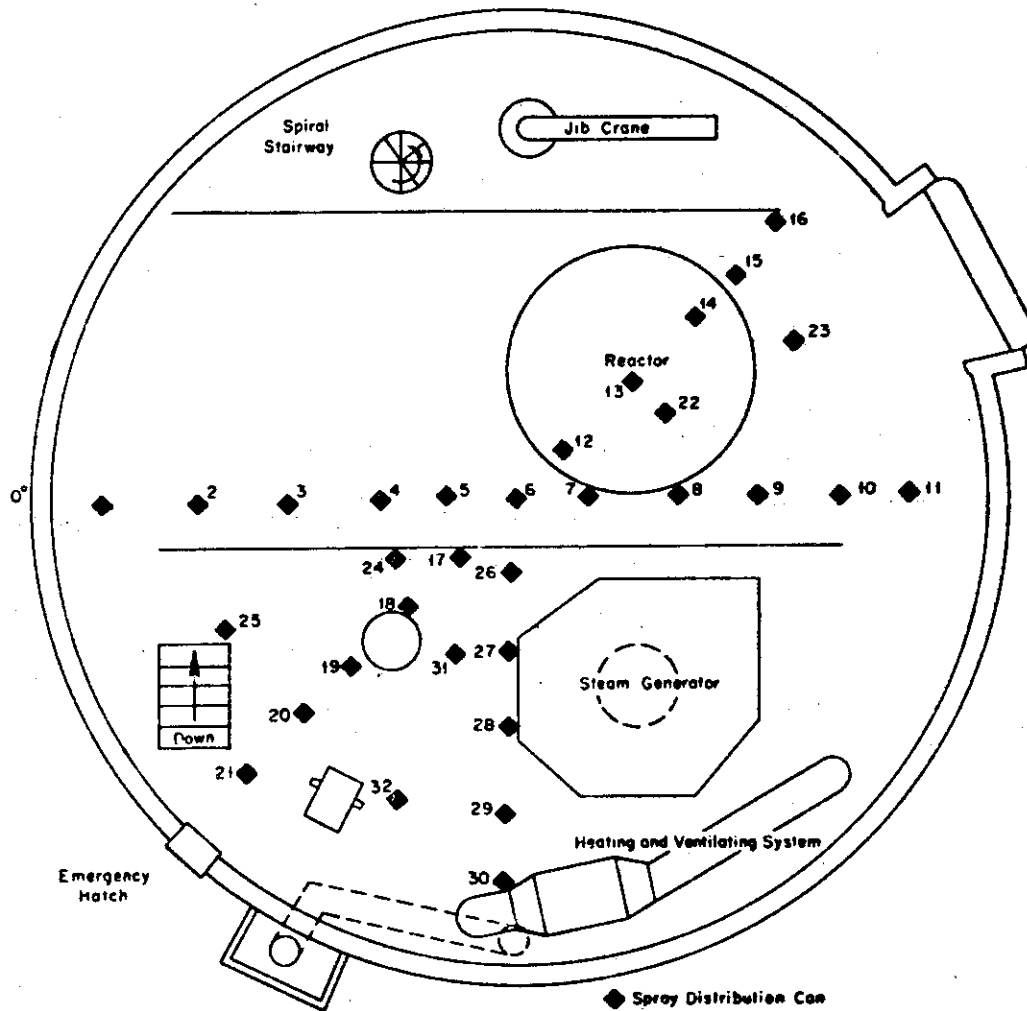
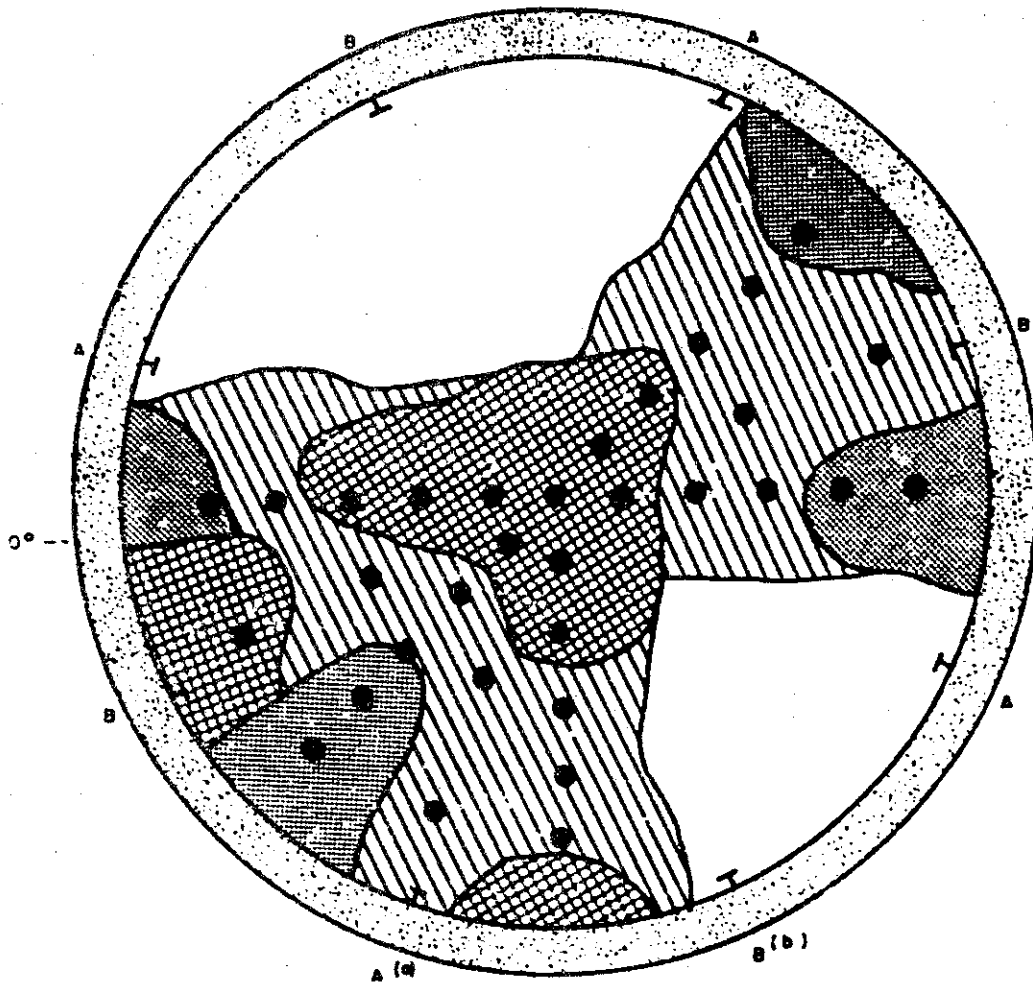


Fig. 3.3-4 Spray distribution can locations



● Sprey Catch Can

(a) A 3/4-inch Nozzle and a 1-1/2-inch Nozzle were Located at each A Nozzle Position

(b) A 3/4-inch Nozzle and a 1-inch Nozzle were Located at each B Nozzle Position

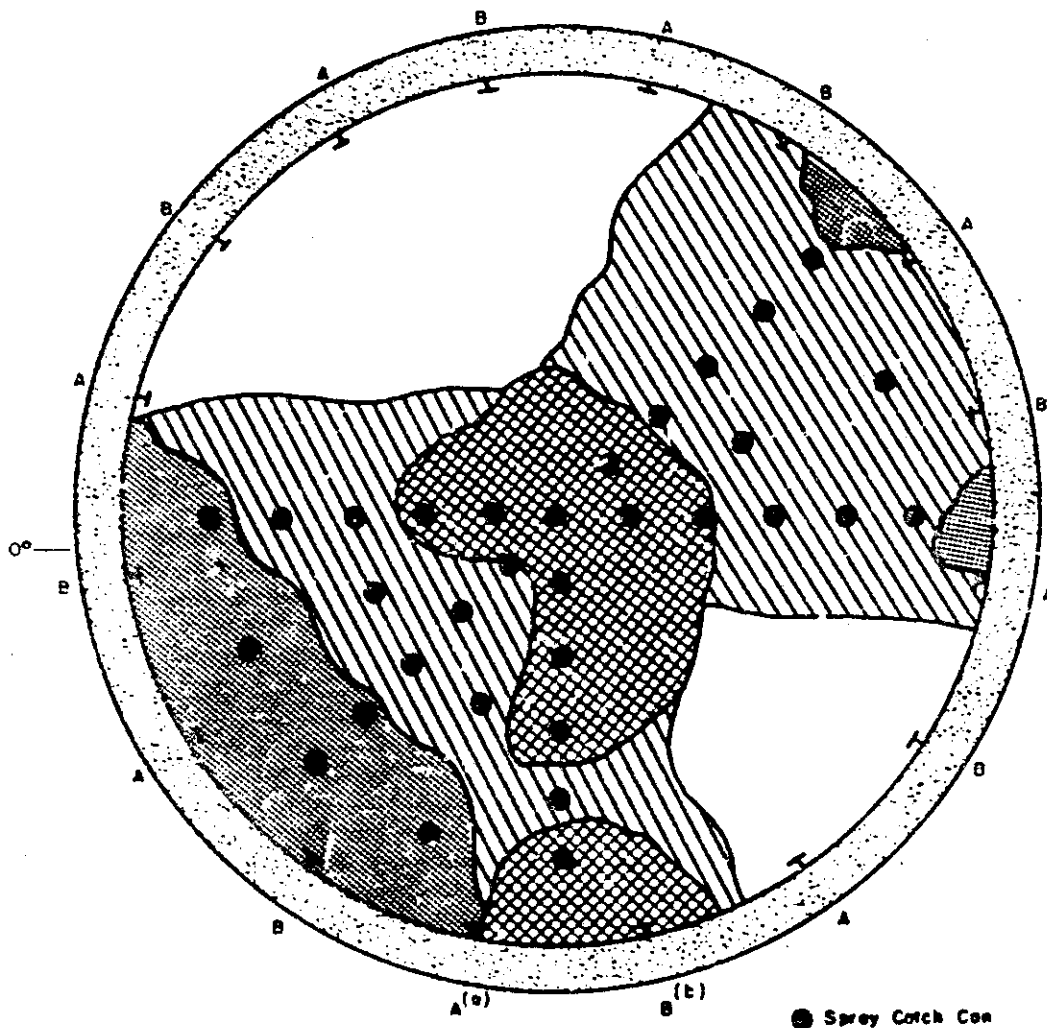
▨ Light Spray-0.021 to 0.077 gal/ft²-min

▧ Medium Spray-0.077 to 0.23 gal/ft²-min

▩ Heavy Spray - >0.23 gal / ft² - min

□ Area not Monitored

Fig. 3.3-5 Spray pattern, Test 4



(a) A 1/4-inch Nozzle and a 1-1/2-inch Nozzle were Located at each A Nozzle Position
 (b) A 3/4-inch Nozzle and a 1-inch Nozzle were Located at each B Nozzle Position





-  Light Spray - 0.053 to 0.13 gal/ft²-min
-  Medium Spray - 0.13 to 0.35 gal/ft²-min
-  Heavy Spray - >0.35 gal/ft²-min
-  Area not Monitored

Fig. 3.3-6 Spray pattern, Test 5

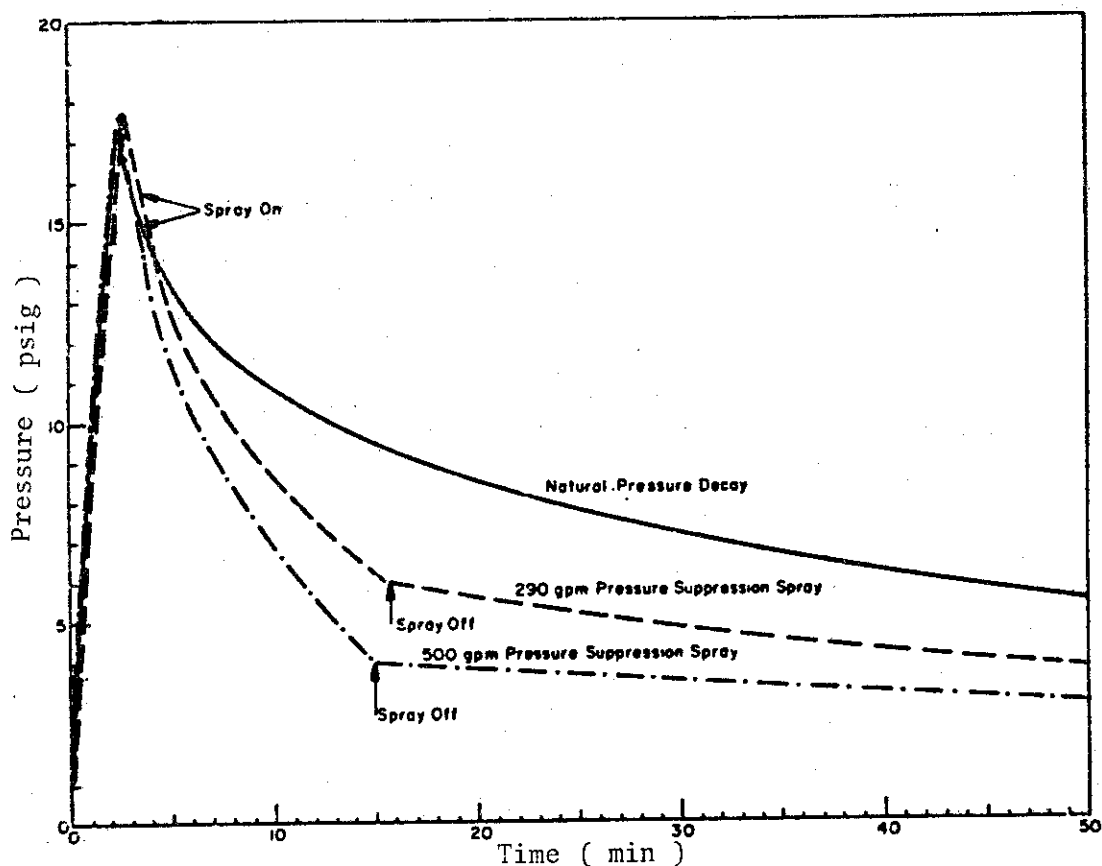


Fig. 3.3-7 CVTR containment pressure response - Heise gauge

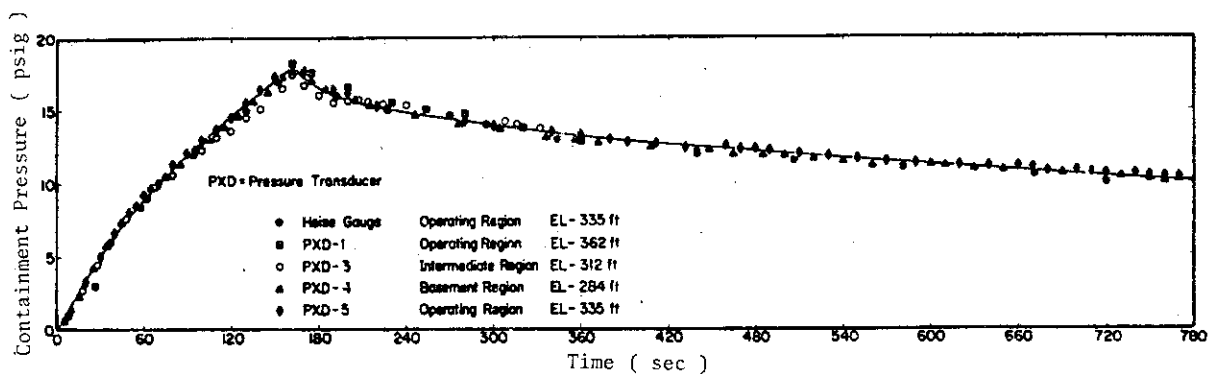


Fig. 3.3-8 CVTR containment pressure response - pressure transducers, Test 3

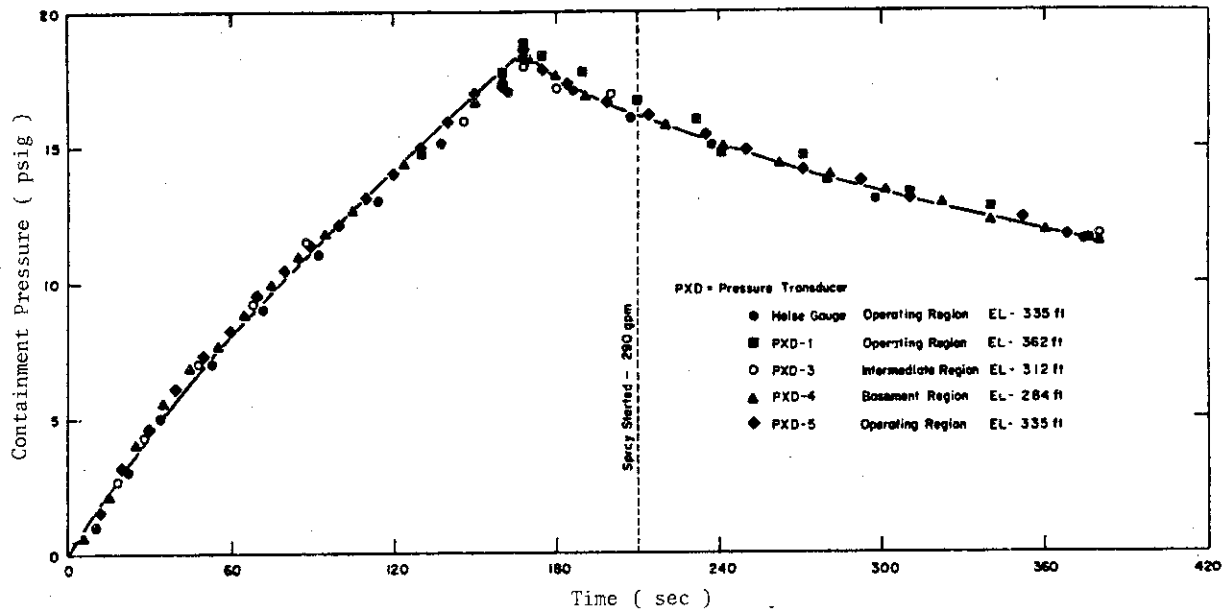


Fig. 3.3-9 CVTR containment pressure response - pressure transducers, Test 4

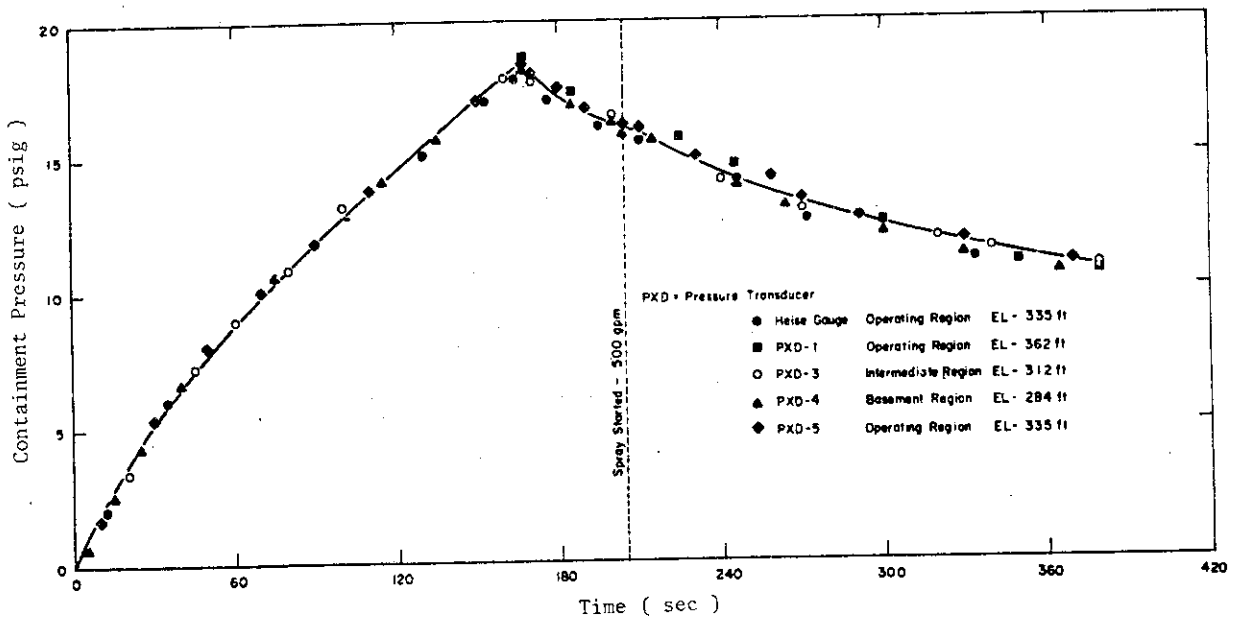


Fig. 3.3-10 CVTR containment pressure response - pressure transducers, Test 5

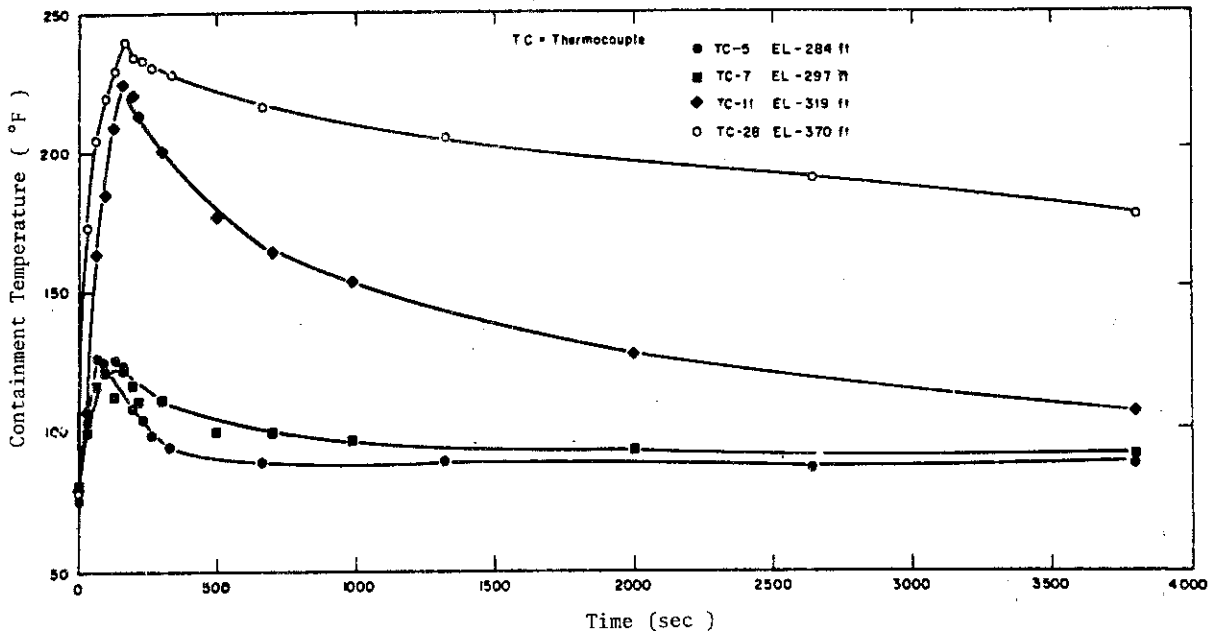


Fig. 3.3-11 Atmospheric vertical temperature profile, Test 3

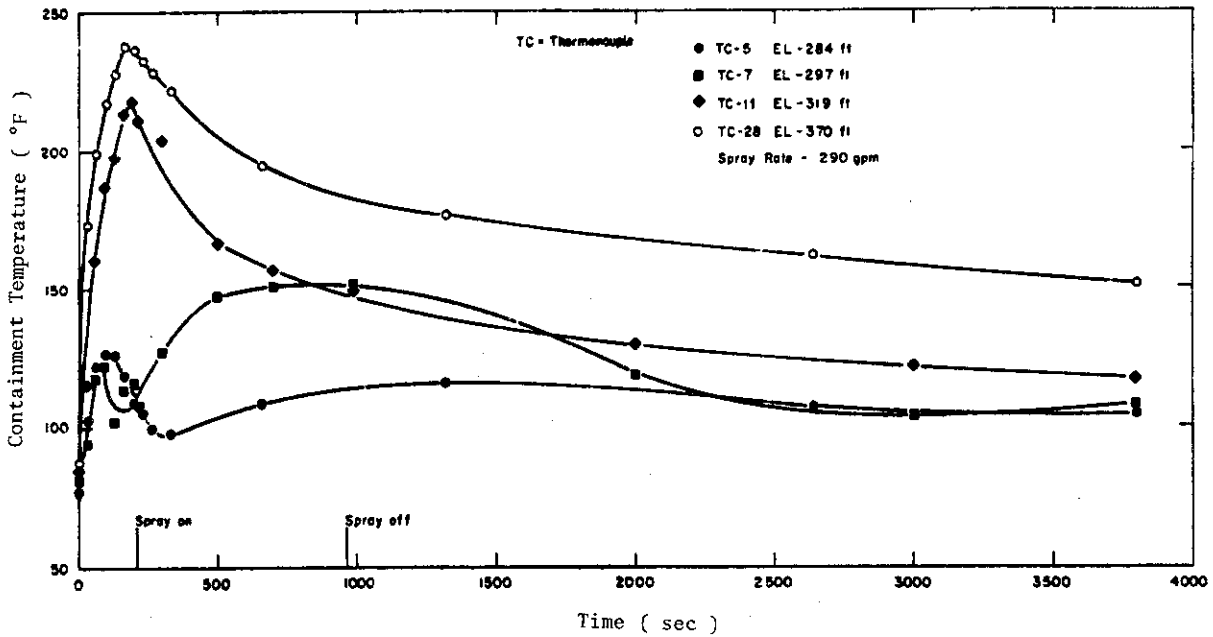


Fig. 3.3-12 Atmospheric vertical temperature profile, Test 4

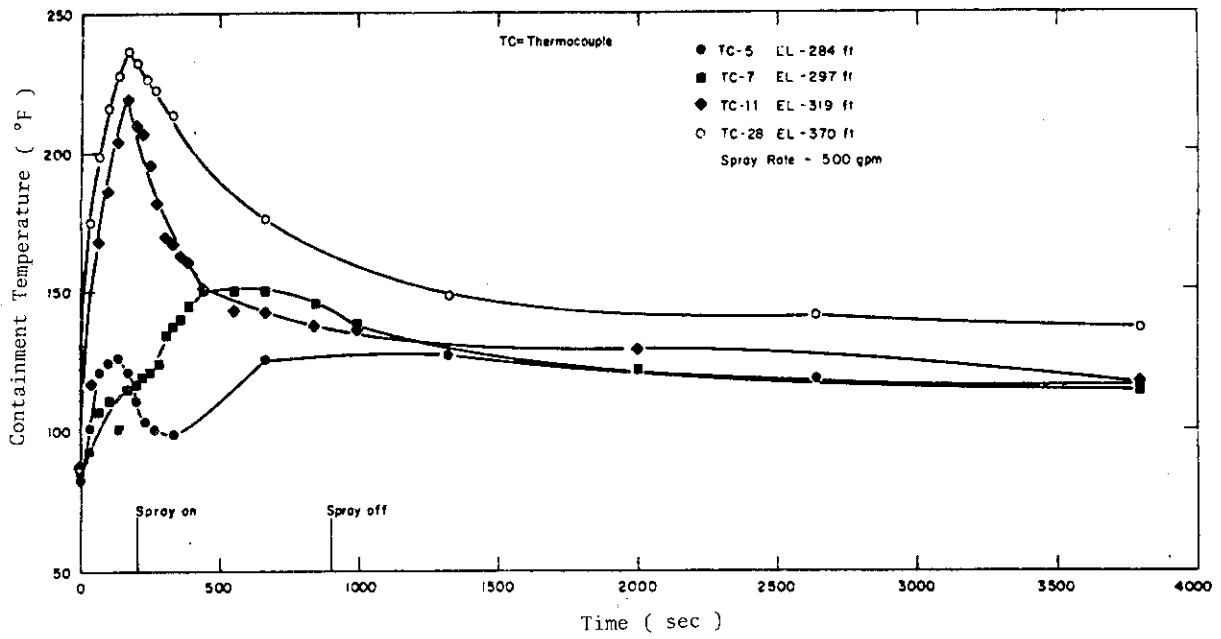


Fig. 3.3-13 Atmospheric vertical temperature profile, Test 5

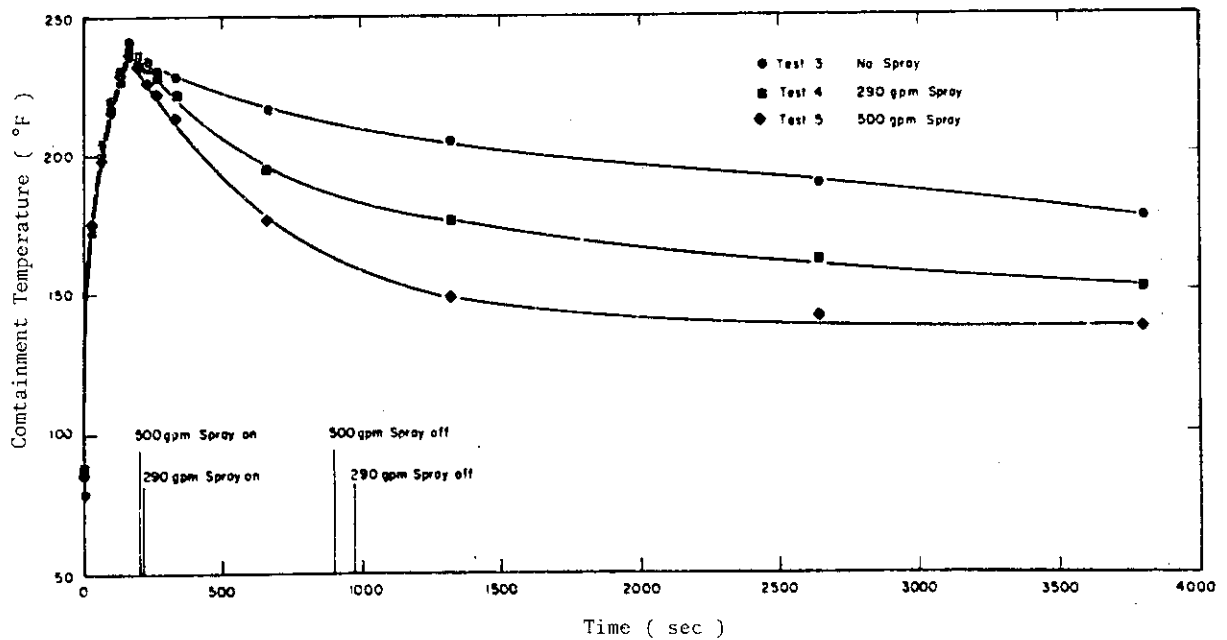


Fig. 3.3-14 Containment dome temperature

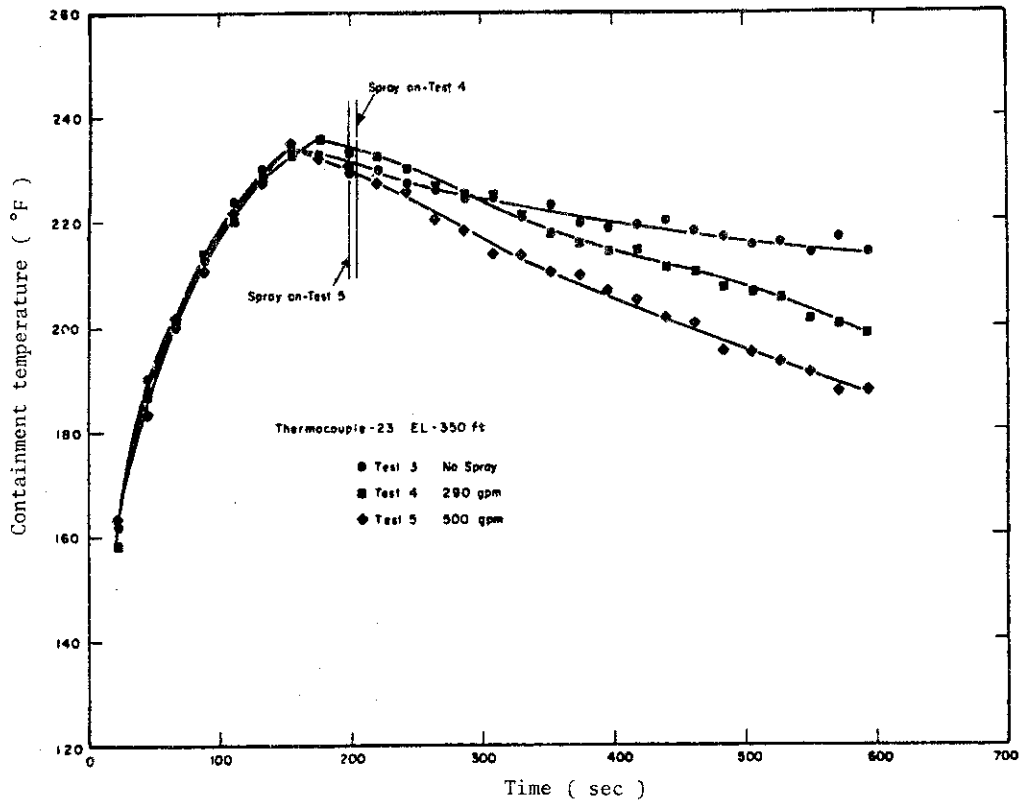


Fig. 3.3-15 CVTR spray effectiveness, temperature

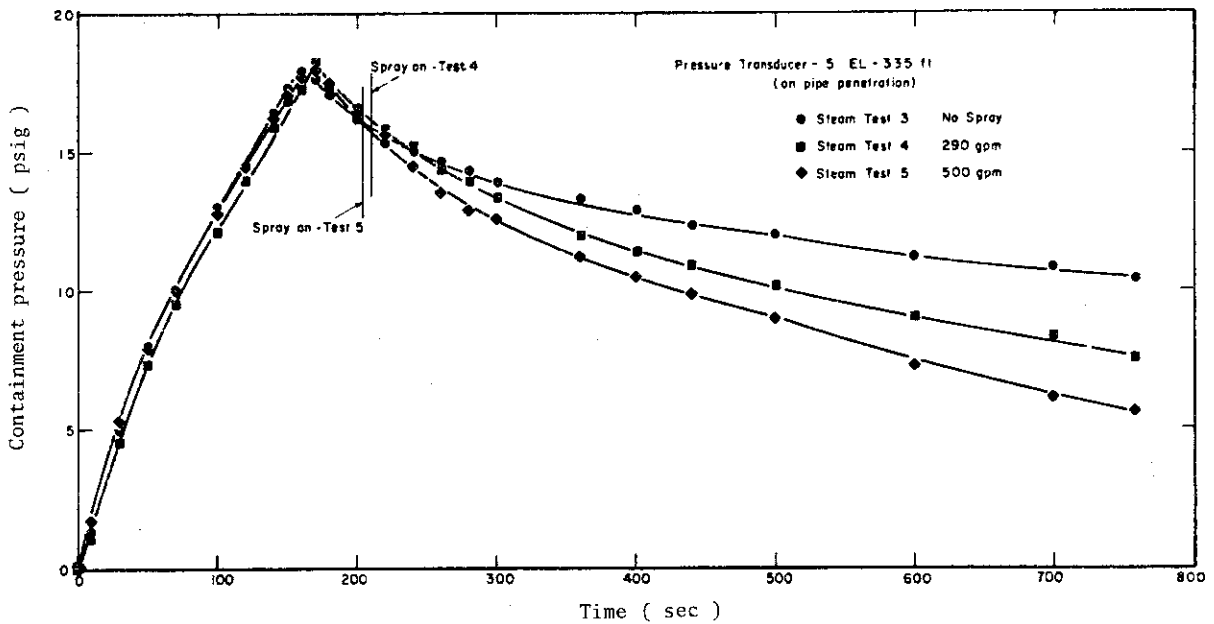


Fig. 3.3-16 CVTR spray effectiveness, pressure

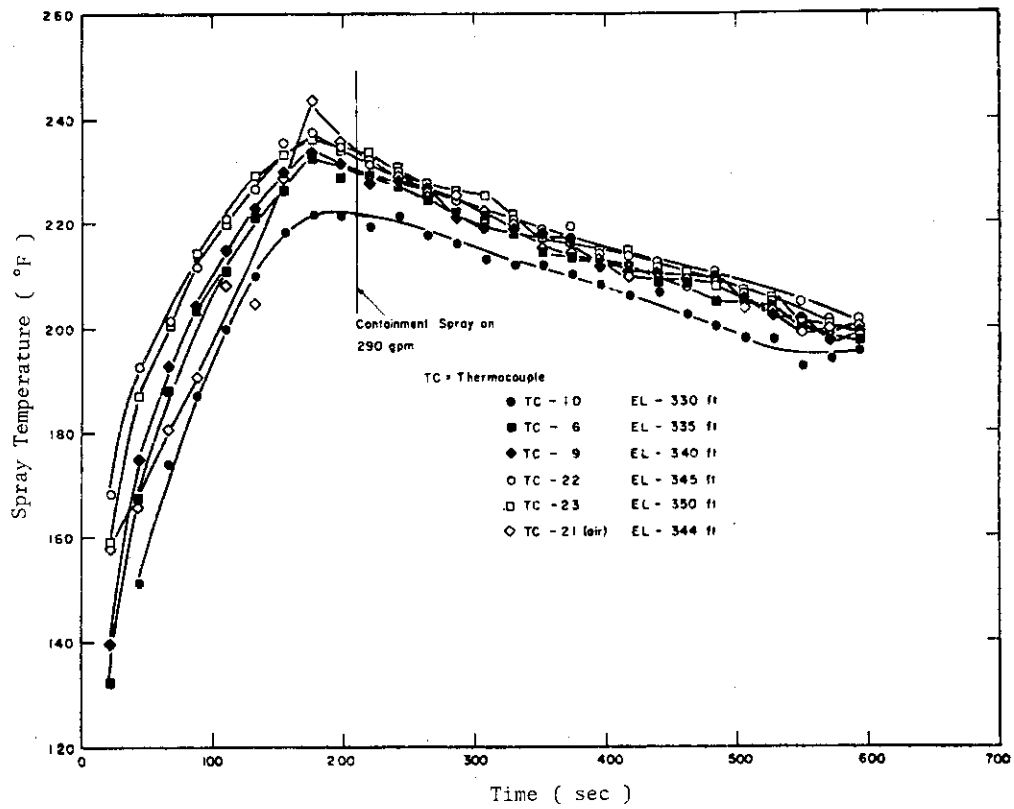


Fig. 3.3-17 Spray temperatures, Test 4

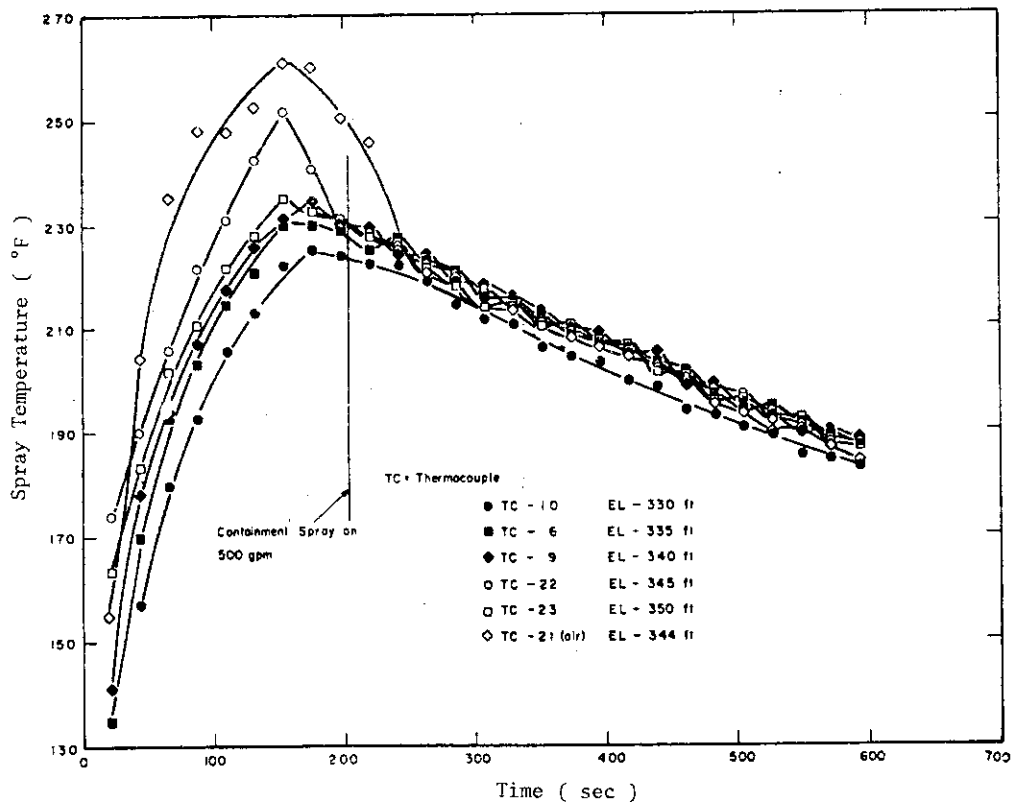


Fig. 3.3-18 Spray temperatures, Test 5

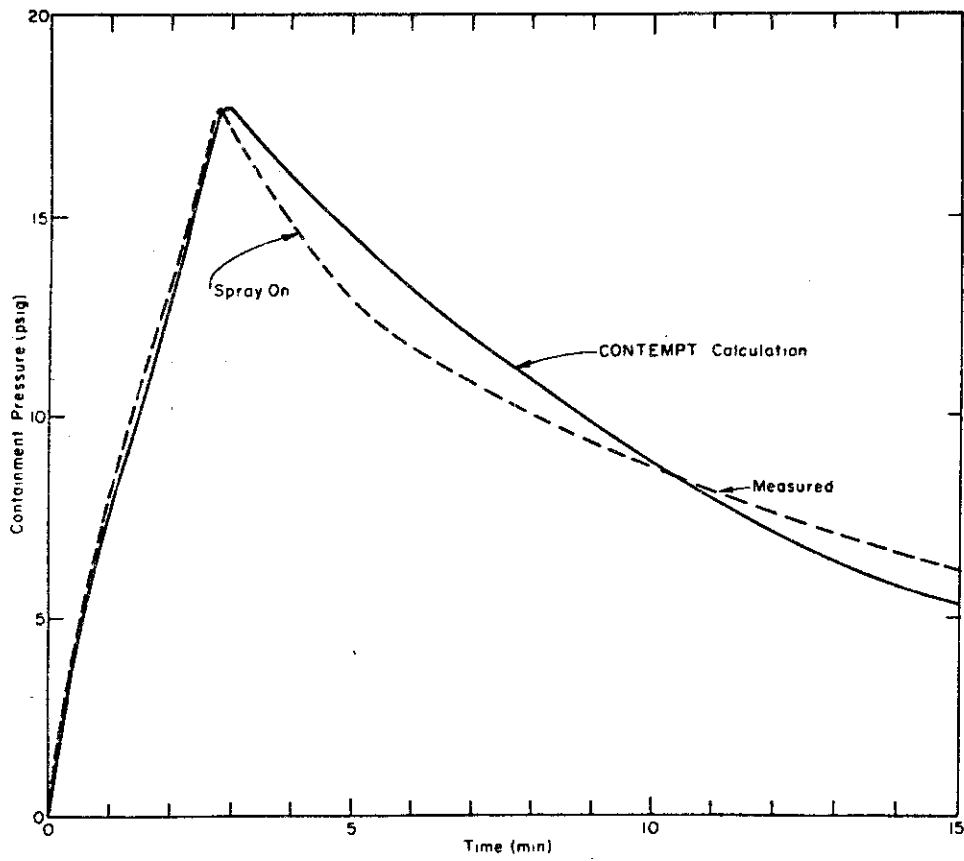


Fig. 3.3-19 Pressure results of 290gpm spray test

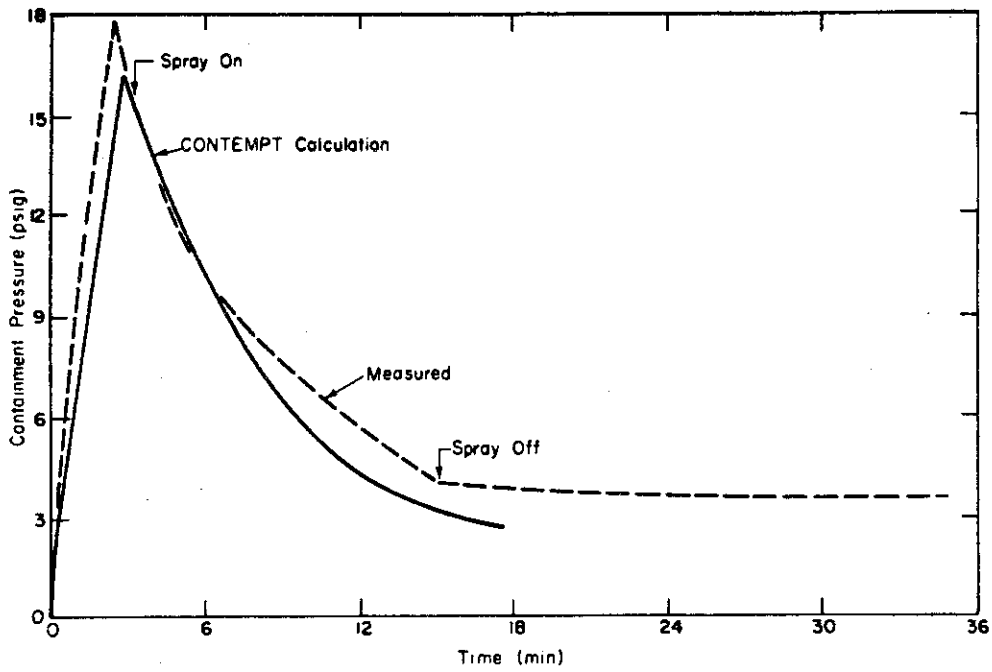


Fig. 3.3-20 Pressure results of 500gpm spray test

3.4 ピサ大学³²⁻³⁵⁾

ピサ大学の Istituto di Impianti Nucleari で1967年より格納容器スプレイの研究が開始されている。

研究対象としては次のものが計画されている。

- (1) LOCA時の格納容器の温度、圧力、応力変化
- (2) 格納容器系からの漏洩
- (3) スプレイによるヨウ素除去

3.4.1 実験装置

実験装置のフローシートをFig. 3.4-1に示す。

実験装置は次のものから構成されている。

- (i) PSICO10モデル格納容器(MCV)
- (ii) 加熱系
- (iii) スプレイ系
- (iv) 減圧ならびに空気清浄系
- (v) ヨウ素注入系
- (vi) 気相サンプリング系
- (vii) ヨウ素濃度測定系
- viii 排水ならびに除染系

実験容器(18)はPSICO10モデル格納容器(MCV)と呼ばれ、直径4m、高さ9m、容積95m³である。

Fig. 3.4-2にMCVの概略図を示す。MCVはステンレス鋼内張りの炭素鋼製で、設計温度、圧力は150℃、6atm、設計最大漏洩率は0.1%/dayである。実際の漏洩率は、その後の漏洩率試験(基準容基法と絶対圧力法の両者による)により、設計値以下であること、また圧力の平方根に比例することがわかった。

実験に使用されたスプレイノズルとそのスプレイ液滴の平均径をTable 3.4-1に示す³⁶⁾。Pine-Cone型のノズルの方が格納容器横断面にわたって様な粒径分布を与えることがわかる。なおRun 101からRun 108ではPine Cone(PC)型のノズルが、Run 109からRun 112ではSpraying Systems Co.製の7G3ノズルが使用された。

Fig. 3.4-3に気相ヨウ素のサンプリング系を示す。サンプラー内には銀鋼、Drierite層、粒子フィルター、活性炭層が設けられている。ヨウ素濃度測定系は、PSICO10の実験装置で使用前に、あらかじめ容積100ℓの容器(PSICO0)で調整された。

気相および液相内のヨウ素濃度は次の方法で測定された。各スプレイ期間終了毎に、気相サンプルおよび"じょうご"内のスプレイ液サンプルが採取され、採取されたサンプルはGM計数管によりγ線が測定されて、ヨウ素濃度が求められた。

3.4.2 実験結果およびその検討

Table 3.4-2に実験結果の詳細を示す。

水洗速度定数を濃度半減時間としてTable 3.4-3に示す。濃度半減時間の計算に際しては、スプレイによりヨウ素濃度が指数関数的に減少すると仮定された。

Run 107で自然収着によるヨウ素濃度の減少が測定されたが、濃度半減時間はスプレイによる半減時間に比して十分大であるので、スプレイ時の計算では自然収着の影響は無視された。

1%チオ硫酸ナトリウム水溶液のスプレイ実験では、半減時間が2分以下であった。この結果は米国のORNL²⁶⁾およびBMI⁴⁾の実験結果と一致している。

1%チオ硫酸ナトリウム水溶液に代えて市水を使用してもヨウ素の水洗速度に目立った増加は認められなかった。

スプレイに使用される市水は、スプレイ給水系を循環させた後スプレイ水として使用されたが、その主な性質は次の通りであった。

pH	7.1~7.6
電気伝導度	2×10^{-8} mho
Fe	0.01 g/l
Ca	0.2 g/l

また、1%チオ硫酸ナトリウム水溶液の調製にも上述の水が使用された。

Runs 110および111では、スプレイ域と非スプレイ域のヨウ素濃度変化が比較された。一般的に、元素状ヨウ素では、スプレイ域と非スプレイ域の水洗速度に大きな差がないことがわかる。

Runs 109, 110, 112では、スプレイ水の循環実験が行われ、スプレイ液からのヨウ素の放散ならびにヨウ素の平衡時の気液分配係数が測定された。Fig. 3.4-4にRun 109における気相ヨウ素の濃度変化を示す。約80℃で11時間循環したところでは、スプレイ液からのヨウ素の放散は認められなかった。Run 109およびRun 112における気液分配係数は約 2×10^4 であった。この結果は理論値^{11, 12)}および実験値^{37, 38)}と良い一致を示している。(但し、Run 110では、分配係数として 10^5 が得られたが、これは理論値よりも大きな値であった。)

Runs 110および112では、スプレイ後に気相中の元素状ヨウ素濃度が増加する傾向が認められたが、これはヨウ素注入時に壁に収着されていたヨウ素が壁から脱着されるためと考えられる。

3.4.3 結 論

動力炉のLOCA時の条件下でPSICO10の装置を用いて行われたスプレイ実験より、スプレイ水として市水を用いても、チオ硫酸ナトリウム水溶液を用いても元素状ヨウ素の除去において大きな差がないことが示された。従って、両液の有効性の差は、2-hour dose reduction factorの算出にはほとんど影響をおよぼさないことがわかった。

格納容器中の非スプレイ領域が大なる場合の結論を得るためには、Runs 110, 111と同様な実験をさらに行う必要がある。

高温、低濃度ヨウ素領域($0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$)でのスプレイ実験と、非スプレイ領域の影響に関する実験が、今後行われる予定である。

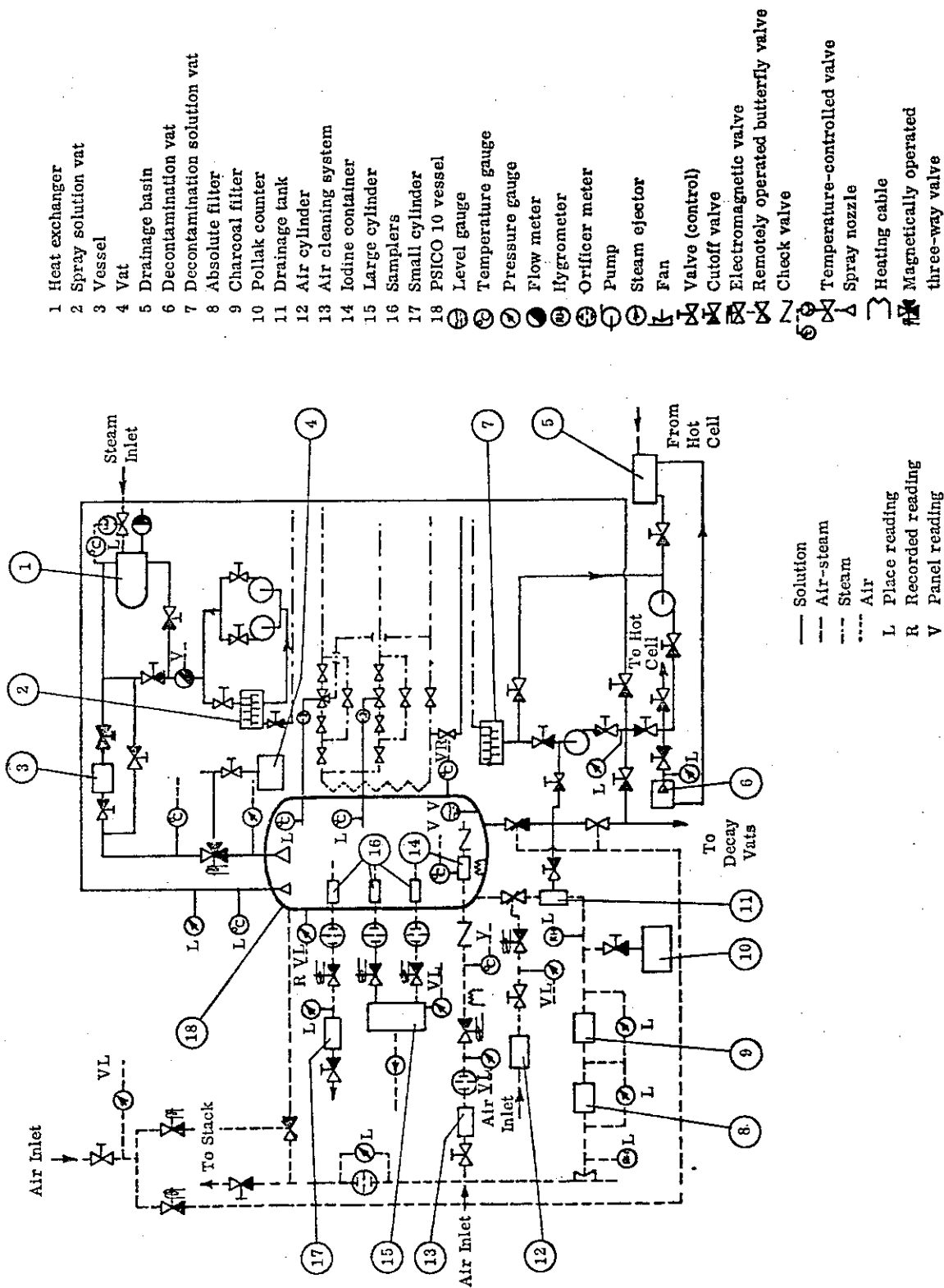


Fig. 3.4-1 PSICO 10 system flow sheet

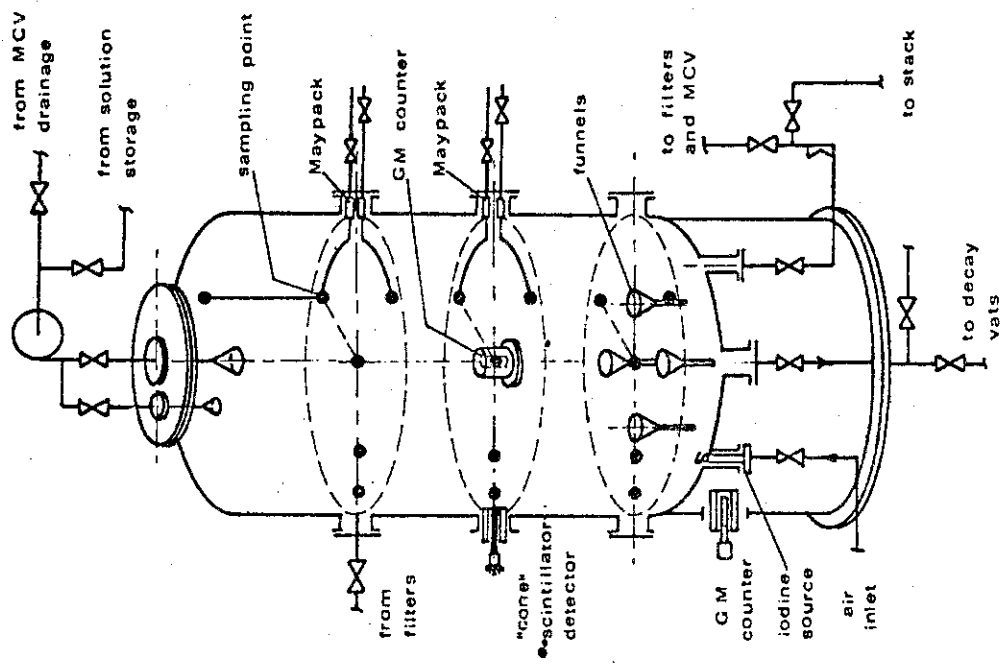


Fig. 3.4-2 Schematic drawing of MCV for PSICO 10 spray tests

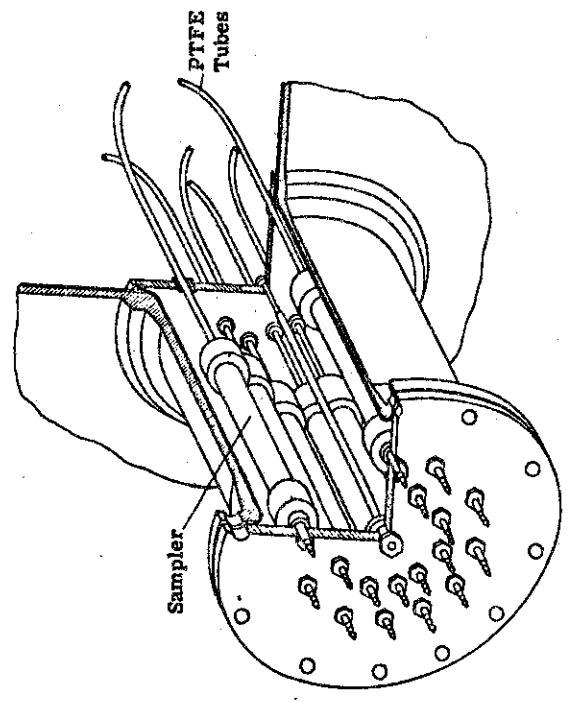
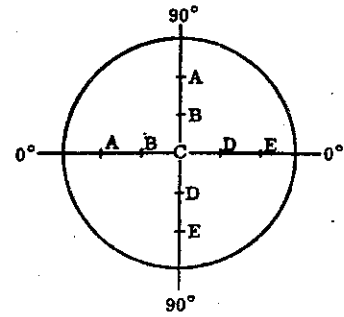


Fig. 3.4-3 Section of vessel nozzle with mounted samplers

Table 3.4-1 Average drop diameter for two spray nozzles in a cross section of PSICO 10 container

Location	Average Surface Diameter (μm)		Average Volumetric Diameter (μm)	
	"Pine-Cone" Nozzle	3/4 HH 6W Spraying Co.	"Pine-Cone" Nozzle	3/4 HH 6W Spraying Co.
0° A	450	700	510	780
0° B	800	830	1000	980
0° C	610	2400	730	3240
0° D	630	900	750	1060
0° E	660	780	740	870
90° A	530	-	570	-
90° B	600	-	720	-
90° D	580	-	690	-
90° E	510	-	550	-



*Schematic mapping of sample positions for flow-rate measurement on PSICO 10 cross section 300 cm from the nozzle.

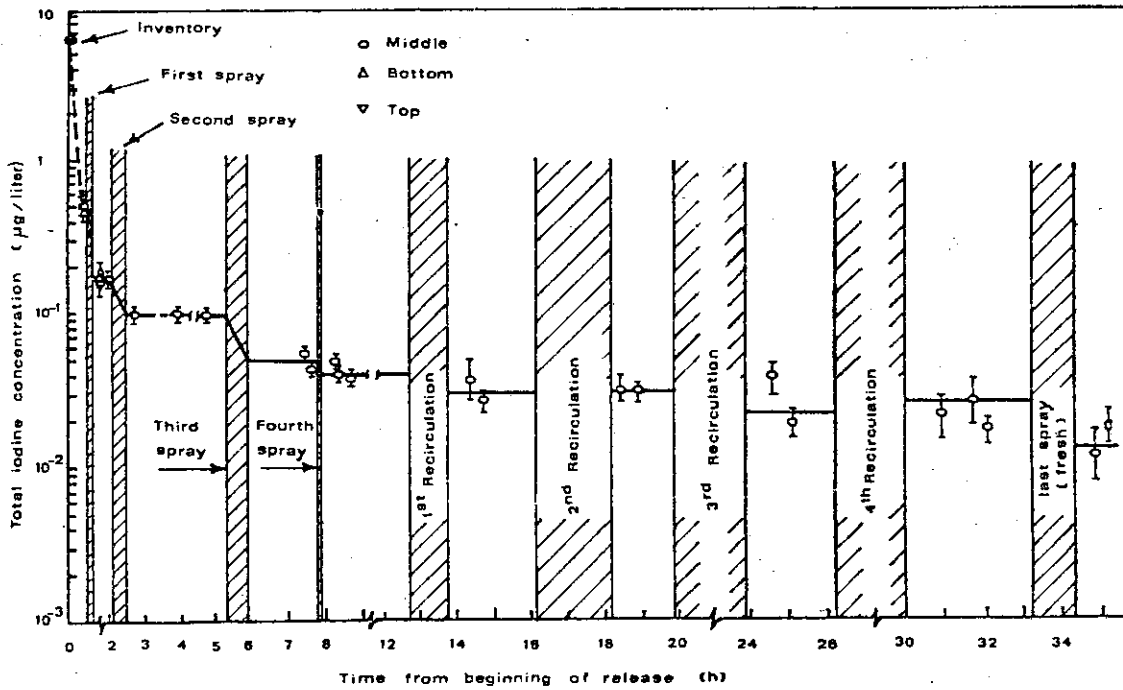


Fig. 3.4-4 Iodine concentration changes during long recirculation with water (Run 109)

Table 3.4-2 Results of Runs 101 through 112

Run Number	101	102	103	104
Operation	1st spray	1st spray 2nd spray 3rd spray	1st spray 2nd spray 3rd spray	1st spray 2nd spray 3rd spray
Experimental Conditions				
Vessel atmosphere	filtered	filtered	filtered	filtered
Vessel temperature (°C)	64	79	74	72
Initial vessel pressure (atm)	1.34	1.63	1.70	1.56
Pressure at end of spraying (atm)	1.46	1.66	1.78	1.25
Spray solution type	thiosulphate	water	water	water
Nozzle type	pc	pc	pc	pc
Fraction of vessel volume washed by spray (%)	100	100	100	100
Volumetric drop diameter (μm)	700	700	700	700
Total flow rate (liter/min)	80	100	80	80
Flow rate per unit of vessel cross section (liter/min m ²)	4	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5
Spray solution temperature (°C)	62	80	86	16
Spraying time (sec)	208	300	900	300
Time elapsed from end of precedent operation (h)	1.0 ^a	1.5 ^a	1.4 ^a	1.3 ^a
		1.1	2.2	1.4
		0.4	1.0	4.2
Results				
Overall iodine concentration (μg/liter)	1.05 0.20	1.02 0.25	0.3 3 × 10 ⁻²	0.53 5 × 10 ⁻²
I ₂ concentration (μg/liter)	0.1 ± 0.4 0.04	0.1 ÷ 0.2 1 × 10 ⁻²	0.2 5 × 10 ⁻³	9 × 10 ⁻² 2 × 10 ⁻²
Iodine on prefilter concentration (μg/liter)	---	---	---	---
Iodine on charcoal concentration (μg/liter)	---	---	---	---
Iodine concentration in liquid (mg/liter)	2.07	1.33	0.44	1.50
Iodine concentration in drops (mg/liter)	0.52	---	0.05	0.21
Injected iodine (mg)	698	784	1040	995

^aTime from the beginning of iodine injection. (continued)

Table 3.4-2 (Continued)

Run Number	105			106			107			108		
	1st spray	2nd spray	3rd spray	1st spray	2nd spray	3rd spray	Natural Deposition	1st spray	2nd spray	1st spray	2nd spray	3rd spray
Experimental Conditions												
Vessel atmosphere	filtered											
Vessel temperature (°C)	79	---	---	84	74	67	84 ÷ 76	78	69	76	56	48
Initial vessel pressure (atm)	1.44	1.54	1.38	1.73	1.56	1.43	1.61	1.49	1.47	1.54	1.37	1.26
Pressure at end of spraying (atm)	1.56	1.38	1.26	1.39	1.33	1.24	1.48	1.44	1.14	1.26	1.16	1.06
Spray solution type	thio-sulphate pc	thio-sulphate pc	thio-sulphate pc	thio-sulphate pc	thio-sulphate pc	thio-sulphate pc	thio-sulphate pc	thio-sulphate pc	thio-sulphate pc	thio-sulphate pc	thio-sulphate pc	thio-sulphate pc
Nozzle type	pc	pc	pc	pc	pc	pc	pc	pc	pc	pc	pc	pc
Fraction of vessel volume washed by spray (%)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
Volumetric drop diameter (µm)	700	700	700	700	700	700	700	700	700	700	700	700
Total flow rate (liter/min)	80	80	80	90	90	90	80	80	82	80	80	80
Flow rate per unit of vessel cross section (liter/min m ²)	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5
Spray solution temperature (°C)	81	70	38	30	30	39	18	18	18	14	14	14
Spraying time (sec)	300	861	300	300	300	300	90	90	600	300	300	858
Time elapsed from end of precedent operation (h)	1.3 ^a	1.7	3.5	1.3 ^a	2.8	2.8	---	0.4 ^b	1.3	1.1 ^a	1.1	1.7
Results												
Overall iodine concentration (µg/liter) at start	2.1	1.5	0.4	5 × 10 ⁻²	1 × 10 ⁻²	5 × 10 ⁻²	0.35	1.2 × 10 ⁻¹	7 × 10 ⁻³	7.5 × 10 ⁻²	2.8 × 10 ⁻²	2.3 × 10 ⁻²
at end	1.5	0.4	7 × 10 ⁻³	1 × 10 ⁻²	5 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	1.4 × 10 ⁻¹	7 × 10 ⁻³	4 × 10 ⁻³	2.8 × 10 ⁻²	2.3 × 10 ⁻²	2.0 × 10 ⁻²
I ₂ concentration (µg/liter) at start	---	0.1 ÷ 0.2	2 × 10 ⁻³	1.5 × 10 ⁻²	5 × 10 ⁻⁴	1 × 10 ⁻⁴	0.31	1 × 10 ⁻²	4 × 10 ⁻⁴	4 × 10 ⁻²	5 × 10 ⁻³	< 10 ⁻³
at end	0.1 ÷ 0.2	2 × 10 ⁻²	---	5 × 10 ⁻⁴	1 × 10 ⁻⁴	---	5 × 10 ⁻³	4 × 10 ⁻⁴	1 × 10 ⁻⁴	5 × 10 ⁻²	< 10 ⁻³	---
Iodine on prefilter concentration (µg/liter) at start	2.0	1.2	0.3 ÷ 0.4	1 × 10 ⁻²	< 10 ⁻⁴	< 10 ⁻⁴	2 × 10 ⁻¹	1 × 10 ⁻²	< 10 ⁻¹	1 × 10 ⁻²	10 ⁻¹ ÷ 10 ⁻²	1 × 10 ⁻⁴
at end	1.2	0.3 ÷ 0.4	< 10 ⁻³	< 10 ⁻⁴	< 10 ⁻⁴	< 10 ⁻⁴	2 × 10 ⁻¹	< 10 ⁻¹	---	10 ⁻¹ ÷ 10 ⁻²	1 × 10 ⁻⁴	1 × 10 ⁻⁴
Iodine on charcoal concentration (µg/liter) at start	2 × 10 ⁻³	1 × 10 ⁻³	< 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	4 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	1 × 10 ⁻³	1 × 10 ⁻³	1 × 10 ⁻³
at end	1 × 10 ⁻³	< 10 ⁻³	---	2 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	1 × 10 ⁻³	1 × 10 ⁻³	1 × 10 ⁻³
Iodine concentration in liquid (mg/liter)	0.50	0.09	0.09	0.29	0.04	0.009	---	0.18	0.04	1.33	0.14	0.002
Iodine concentration in drops (mg/liter)	0.25	0.10	0.14	0.13	0.01	0.003	---	0.087	0.008	0.19	0.014	0.008
Injected iodine (mg)	831			218			452			1320		

^a Time from the beginning of iodine injection.
^b Time from the beginning of a second iodine injection. (continued)

Table 3.4-2 (Continued)

Run Number		109							
Operation		1st spray	2nd spray	3rd spray	4th spray	1st recirculation	2nd recirculation	3rd recirculation	4th recirculation
Experimental Conditions									
Vessel atmosphere		unfiltered							
Vessel temperature (°C)		85	80	75	70	70 ÷ 75	70 ÷ 75	70 ÷ 75	70 ÷ 75
Initial vessel pressure (atm)		1.58	1.55	1.48	1.43	1.55	1.55	1.55	1.55
Pressure at end of spraying (atm)		1.53	1.40	1.43	1.24	1.55	1.55	1.55	1.55
Spray solution type		water	water	water	water	water	water	water	water
Nozzle type		7G3	7G3	7G3	pc	7G3	7G3	7G3	7G3
Fraction of vessel volume washed by spray (%)		100	100	100	100	100	100	100	100
Volumetric drop diameter (µm)		1200	1200	1200	700	1200	1200	1200	1200
Total flow rate (liter/min)		14	15	15	190	13	14	14	14
Flow rate per unit of vessel cross section (liter/min m ²)		1	1	1	---	1	1	1	1
Spray solution temperature (°C)		26	29	32	33	79	79	80	78
Spraying time (sec)		300	1190	1785	198	3600	7200	14 400	14 400
Time elapsed from end of precedent operation (h)		0.6 ^a	1.1	3.1	1.8	4.9	2.4	1.7	2.3
Results									
Overall iodine concentration (µg/liter)	at start	0.50	0.16	0.10	5 × 10 ⁻²	4 × 10 ⁻²	3 × 10 ⁻²	3 × 10 ⁻²	3 × 10 ⁻²
	at end	0.16	0.10	5 × 10 ⁻²	4 × 10 ⁻²	3 × 10 ⁻²	3 × 10 ⁻²	3 × 10 ⁻²	2 × 10 ⁻²
I ₂ concentration (µg/liter)	at start	0.47	0.13	---	---	---	---	---	---
	at end	0.13	---	---	---	---	---	---	---
Iodine on prefilter concentration (µg/liter)	at start	1 × 10 ⁻³	1 × 10 ⁻³	10 ⁻⁴ ÷ 10 ⁻³	1 × 10 ⁻⁴	2 × 10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴	1 × 10 ⁻⁴
	at end	1 × 10 ⁻³ + 2 × 10 ⁻³	10 ⁻⁴ ÷ 10 ⁻³	1 × 10 ⁻⁴	2 × 10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴	1 × 10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴
Iodine on charcoal concentration (µg/liter)	at start	4 × 10 ⁻³	4 × 10 ⁻³	8 × 10 ⁻³	6 × 10 ⁻³	7 × 10 ⁻³	6 × 10 ⁻³	1.2 × 10 ⁻²	8 × 10 ⁻³
	at end	4 × 10 ⁻³	8 × 10 ⁻³	6 × 10 ⁻³	7 × 10 ⁻³	6 × 10 ⁻³	1.2 × 10 ⁻²	8 × 10 ⁻³	8 × 10 ⁻³
Iodine concentration in liquid (mg/liter)		---	---	---	0.33	0.37	0.37	0.37	---
Iodine concentration in drops (mg/liter)		0.63	0.06	0.03	---	---	---	---	---
Injected iodine (mg)		600							

(continued)

^aTime from the beginning of iodine injection.

Table 3.4-2 (Continued)

Run Number	110°						
Operation	1st spray	2nd spray	3rd spray	4th spray	1st recirculation	2nd recirculation	3rd recirculation
Experimental Conditions							
Vessel atmosphere	74	74	73	75	62	63	53
Vessel temperature (°C)	1.55	1.55	1.53	1.54	1.41	1.41	1.26
Initial vessel pressure (atm)	1.53	1.51	1.47	1.53	1.41	1.41	1.26
Pressure at end of spraying (atm)	water	water	water	water	water	water	water
Spray solution type	7G3	7G3	7G3	pc	pc	pc	pc
Nozzle type	62	62	62	100	100	100	100
Fraction of vessel volume washed by spray (%)	1200	1200	1200	700	700	700	700
Volumetric drop diameter (μm)	16	16	20	175	77	75	79
Total flow rate (liter/min)	1	1	1	---	4 ÷ 5	4 ÷ 5	4 ÷ 5
Flow rate per unit of vessel cross section (liter/min m ²)	34	35	35	31	71	75	61
Spray solution temperature (°C)	296	296	300	300	300	3600	1200
Spraying time (sec)	0.2 ^a	1.5	0.6	2.2	1.7	1.0	15.5
Time elapsed from end of precedent operation (h)	Results						
Overall iodine concentration (μg/liter) at start	1.3	0.7/0.21	0.12/0.10	0.26/0.10	5 × 10 ⁻³	4 × 10 ⁻³	8 × 10 ⁻³
at end	0.2/0.1	6 × 10 ⁻² /4 × 10 ⁻²	4 × 10 ⁻² /6 × 10 ⁻²	5 × 10 ⁻³	4 × 10 ⁻³	6 × 10 ⁻³	4 × 10 ⁻³
I ₂ concentration (μg/liter) at start	1.25	0.6/0.19	0.11/9 × 10 ⁻²	2.4 × 10 ⁻² /9 × 10 ⁻²	---	---	---
at end	0.19/9.7 × 10 ⁻²	5.2 × 10 ⁻² /3.4 × 10 ⁻²	3.7 × 10 ⁻² /5.2 × 10 ⁻²	-/-	---	---	---
Iodine on prefilter concentration (μg/liter) at start	<10 ⁻³	-/<10 ⁻⁴	1 × 10 ⁻⁴ /1 × 10 ⁻⁴	5 × 10 ⁻⁴ /1 × 10 ⁻⁴	---	---	---
at end	3 × 10 ⁻⁴ /2 × 10 ⁻⁴	2 × 10 ⁻⁴ /2 × 10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴ / <lt;10<sup>-4</lt;10<sup>	---	<10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴
Iodine on charcoal concentration (μg/liter) at start	3 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	5 × 10 ⁻³
at end	2 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³
Iodine concentrations in liquid (mg/liter)	---	---	---	0.49	0.47	0.45	0.43
Iodine concentrations in drops (mg/liter)	2.40	0.56	0.20	---	---	---	---
Injected iodine (mg)	650						

(continued)

^aTime from the beginning of iodine injection.
^cThe iodine concentrations, when double, are for not sprayed/sprayed volume.

Table 3.4-2 (Continued)

Run Number	111 ^c				112				
Operation	1st spray	2nd spray	3rd spray	4th spray	1st spray	2nd spray	3rd spray	4th spray	1st recirculation
Vessel atmosphere		filtered			filtered				
Vessel temperature (°C)	81	78	75	60	115	120	110	105	75
Initial vessel pressure (atm)	1.52	1.55	1.50	---	2.84	2.68	2.55	2.34	---
Pressure at end of spraying (atm)	1.54	1.49	1.29	---	2.59	2.44	2.23	1.80	---
Spray solution type	water	water	water	thio-sulphate	water	water	water	water	water
Nozzle type	7G3	7G3	pc	pc	7G3	7G3	7G3	pc	7G3
Fraction of vessel volume washed by spray (%)	62	62	100	100	100	100	100	100	100
Volumetric drop diameter (μm)	1200	1200	700	700	1200	1200	1200	700	1200
Total flow rate (liter/min)	14	15	90	150	15	15	17	150	15
Flow rate per unit of vessel cross section (liter/min m ²)	1	1	---	---	1	1	1	---	1
Spray solution temperature (°C)	35	31	30	30	33	37	37	32	92
Spraying time (sec)	300	300	395	300	300	900	900	180	1800
Time elapsed from end of precedent operation (h)	0.6 ^a	4.1	1.4	1.0	0.5 ^a	0.6	0.6	0.7	4.1
Results									
Overall iodine concentration (μg/liter) at start	0.37	4.4 × 10 ⁻²	2.1 × 10 ⁻²	4 × 10 ⁻³	1.2	0.20	7.1 × 10 ⁻²	---	4.0 × 10 ⁻²
at end	0.14/9 × 10 ⁻²	3 × 10 ⁻² /1.5 × 10 ⁻²	3 × 10 ⁻³	<2 × 10 ⁻³	9 × 10 ⁻²	3.6 × 10 ⁻²	3.5 × 10 ⁻²	3.8 × 10 ⁻²	1.2 × 10 ⁻²
I ₂ concentration (μg/liter) at start	0.33	4 × 10 ⁻² /2 × 10 ⁻²	2 × 10 ⁻² /2 × 10 ⁻²	2 × 10 ⁻³	1.2	0.17	5.3 × 10 ⁻²	---	2.8 × 10 ⁻²
at end	0.13/9 × 10 ⁻²	2.5 × 10 ⁻² /1 × 10 ⁻²	<10 ⁻³	---	6.6 × 10 ⁻²	1.8 × 10 ⁻²	1.9 × 10 ⁻²	2.2 × 10 ⁻²	2 × 10 ⁻²
Iodine on prefilter concentration (μg/liter) at start	1 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻⁴ /2 × 10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴	2 × 10 ⁻³	1 × 10 ⁻³	<1 × 10 ⁻³	<1 × 10 ⁻³	<1 × 10 ⁻³
at end	2 × 10 ⁻³	<10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴	<10 ⁻⁴	<1 × 10 ⁻³	<1 × 10 ⁻³	<1 × 10 ⁻³	<1 × 10 ⁻³	<1 × 10 ⁻³
Iodine on charcoal concentration (μg/liter) at start	2 × 10 ⁻³	3.3 × 10 ⁻³ /1.5 × 10 ⁻³	4.0 × 10 ⁻² /1.2 × 10 ⁻²	1.7 × 10 ⁻³	5 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	4 × 10 ⁻³	---	2 × 10 ⁻³
at end	1.2 × 10 ⁻³ /1.5 × 10 ⁻³	1.6 × 10 ⁻³ /1.2 × 10 ⁻³	1.7 × 10 ⁻³	1.5 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	3 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻³
Iodine concentration in liquid (mg/liter)	---	---	---	---	---	---	---	---	0.31
Iodine concentration in drops (mg/liter)	0.56	0.12	0.04	0.12	1.47	0.41	0.12	0.06	---
Injected iodine (mg)	200								

^aTime from the beginning of iodine injection.

^cThe iodine concentrations, when double, are for not sprayed/sprayed volume.

Table 3.4-3 Summary of results

Spray Solutions and Runs	I ₂		Prefilter		Overall	
	Concentration ($\mu\text{g/liter}$)	$T_{\frac{1}{2}}$ (min)	Concentration ($\mu\text{g/liter}$)	$T_{\frac{1}{2}}$ (min)	Concentration ($\mu\text{g/liter}$)	$T_{\frac{1}{2}}$ (min)
Sodium thiosulphate, hot						
Run 101: 1st spray (208 sec)	0.1 \div 0.4	1.3	---	---	1.05	1.5
Run 105: 1st spray (300 sec)	---	---	2.0	7	2.1	10
2nd spray (861 sec)	0.1 \div 0.2	2	1.2	8	1.5	8
Sodium thiosulphate, cold						
Run 102: 3rd spray (180 sec)	1×10^{-2}	0.9	---	---	5×10^{-2}	1.7
Run 105: 3rd spray (300 sec)	2×10^{-3}	---	0.3 \div 0.4	0.6	0.4	0.8
Run 106: 1st spray (300 sec)	1.5×10^{-2}	1	1×10^{-2}	<0.8	5×10^{-2}	2
2nd spray (300 sec)	5×10^{-4}	2	---	---	10	5
Run 107: 1st spray (90 sec)	1×10^{-2}	0.3	$1 \times 10^{-3} \div 2 \times 10^{-3}$	0.3	1.2×10^{-2}	0.6
Run 108: 1st spray (300 sec)	4×10^{-2}	1.5	1×10^{-2}	1.5	7.5×10^{-2}	3.5
2nd spray (300 sec)	5×10^{-3}	2	---	---	2.8×10^{-2}	>10
3rd spray (858 sec)	---	---	---	---	2.3×10^{-2}	---
Natural deposition						
Run 107: (3.47 h)	0.31	33 ^a	---	---	0.35	43 ^a
Water, hot						
Run 103: 1st spray (900 sec)	0.2	3	---	---	0.3	4.5
2nd spray (300 sec)	5×10^{-3}	4	---	---	3×10^{-2}	9
Water, cold						
Run 102: 2nd spray (60 sec)	0.1 \div 0.2	0.3	---	---	0.25	0.5
Run 104: 1st spray (300 sec)	9×10^{-2}	2	0.3	<1	0.53	1.5
2nd spray (900 sec)	2×10^{-2}	---	$< 5 \times 10^{-3}$	---	5×10^{-2}	10
Run 109: 1st spray (300 sec)	0.47	3	---	---	0.50	3
2nd spray (1190 sec)	0.13	---	---	---	0.16	30
3rd spray (1785 sec)	---	---	---	---	0.10	30
Run 110: 1st spray (296 sec)						
unwashed volume		2	---	---		2
washed volume	1.25	1.3	---	---	1.3	1.5
2nd spray (296 sec)						
unwashed volume	0.6	1.4	---	---	0.7	1.5
washed volume	0.19	2	---	---	0.21	2
Run 111: 1st spray (300 sec)						
unwashed volume	0.35	3.5	---	---	0.37	3.5
washed volume	0.27	2.5	---	---		2.5
2nd spray (300 sec)						
unwashed volume	4×10^{-2}	7	---	---	4.4×10^{-2}	9
washed volume	2×10^{-2}	5	---	---	2.4×10^{-2}	5.5
3rd spray (395 sec)						
unwashed volume	2×10^{-2}	<1.5	---	---	2.1×10^{-2}	2.5
washed volume	2×10^{-2}	<1.5	---	---	2.7×10^{-2}	1.5
Run 112: 1st spray (300 sec)	1.2	1.2	---	---	1.2	1.3
2nd spray (900 sec)	0.17	4.7	---	---	0.20	6.1
3rd spray (900 sec)	5.3×10^{-2}	7.7	---	---	7.1×10^{-2}	16

^aCalculated from seven values by the least-squares method.

3.5 スウェーデン原子力公社³⁹⁾

スウェーデン原子力公社では、格納容器スプレイによるヨウ素除去に関する研究が、実験ならびに理論解析の両面から行われた。

3.5.1 実験装置

Fig. 3.5-1に実験装置の概略図を示す。

実験容器は2.5 m³のステンレス鋼製である。実験容器は容器外周に昇温用の加熱コイルが巻かれており、最高温度150℃、最高圧力90 psiaまでの実験が可能である。

実験中容器底部にたまったスプレイ液は、気相中にヨウ素が放散されないようにドレインタンクへ連続的に排出された。

スプレイ液供給タンクの圧力および流量は二系統の高圧ガスによって調節された。

また、スプレイ流量、圧力、温度は連続的に記録された。

元素状ヨウ素は、¹³²Iをラベルしたヨウ化カリウムを高温で酸化することによって作られ、キャリアガスで容器気相部に注入された。

ヨウ素のサンプリングは、容器内部に設けられた0.1規定苛性ソーダ水溶液を満たしたスクラバーによって行われた。

3.5.2 実験結果

100℃で行われた9回の実験の概略をTable 3.5-1に示す。

各実験条件に対して少なくとも2回以上の実験が行われたので、表中には4組の実験条件下での結果が示されている。

濡れた容器壁面への自然収着実験(Runs 4, 5)では濃度半減時間として26分と30分が得られた。

他の3組の実験は、ヨウ素濃度レベルの異なったスプレイ実験である。ここで、中間濃度の実験は他の実験に比しpH値が少々高めであるが、これは単に水供給系のpH変動によるものであり、添加物によるものではない。

実験結果の再現性は良いようである。

気相ヨウ素濃度の時間変化をFig. 3.5-2に示す。いずれの場合もヨウ素濃度は時間に対して指数関数的に減少している。

また、容器内ではヨウ素濃度がかなり均一であることがわかる。

3.5.3 解析モデル⁴⁰⁾および理論値と実測値の比較検討

異なったpHおよび濃度における加水分解を考慮した計算モデルがたてられ、その計算が行われた。ここではその結果を紹介する。

Fig. 3.5-3に格納容器内ヨウ素濃度の時間変化を示す。図中に示されるように、ヨウ素濃度によって、その水洗効果は大きく次の3つの領域にわけられる。

(i) 気相ヨウ素が高濃度 ($C_G \geq \frac{\beta}{K^2}$) の場合

この場合には、現象は液滴内部でのヨウ素拡散律速となり、気相ヨウ素は時間に対して指数関数的に減少し、半減時間は次式で与えられる。

$$T_{1/2} = \frac{0.693W}{K\alpha} \quad (3.5-1)$$

ここで

W = 容器の体積	[m ³]
K = 元素状ヨウ素の平衡定数	[-]
F = スプレイ流量	[m ³ /hr]
α = スプレイ液滴中の元素状ヨウ素の吸収効率	[-]

(ii) 気相ヨウ素が低濃度の場合

この場合にはスプレイ液滴中でのヨウ素の反応速度（加水分解）が重要になり、反応速度が増せば水洗速度も増加する。水洗速度は低濃度および高 pH 値で大である。

気相中のヨウ素濃度は次式で与えられる。

$$C_G = \beta \left[\frac{1}{K^2} - \frac{F\theta}{KW} \sqrt{\alpha} + \left(\frac{F}{W} \right)^2 \frac{\theta^2}{4} \alpha \right] \quad (3.5-2)$$

ここで

β = 加水分解の程度を表わすパラメーター	[kg/m ³]
θ = スプレイ時間	[hr]

(iii) 気相ヨウ素が非常に低濃度の場合

この場合には、気相側の拡散律速となるので、水洗速度は反応性スプレイ液を使用した場合と同じになる。

半減時間は次式で与えられる。

$$T_{1/2} = \frac{0.693W}{BF} \quad (3.5-3)$$

ここで

B = 水滴パラメーター	[-]
--------------	-----

水滴パラメーター B は、ノズルによってその値が異なり、物質移動係数 kg 、スプレイ液滴落下時間 t 、スプレイ液滴半径 R によって、近似的に次式で与えられる。

$$B = \frac{3 kg t}{R} \quad (3.5-4)$$

Fig. 3.5-4 に、水洗速度に対する pH の影響を示す。pH が 6 から 8 にかけて水洗速度は相当増加するが、pH がさらに増加しても水洗速度の増加は小である。

Fig. 3.5-5 にスプレイ流量の影響を示す。スプレイ流量の増加に伴ない水洗速度が増加することがわかる。

Fig. 3.5-6 に、水滴パラメーター B の影響を示す。B の値が大なる程、即ち液滴直径が小なる程、水洗速度が大なることがわかる。

Fig. 3.5-7 に、Runs 7, 8 の実験値と理論値の比較を示す。実測値と理論値とはかなり良い一致を示している。

3.5.4 結 論

1. 純水スプレイによる元素状ヨウ素の除去は、ヨウ素濃度依存性が大である。
2. 中間ヨウ素濃度領域では、中性水溶液によっても、ヨウ素除去が有効に行われる。しかし、高濃度領域では反応性水溶液が必要である。
3. 解析モデルが展開され、BWR格納容器中の元素状ヨウ素水洗除去の計算が行われた。
4. 解析モデルの検証実験が、濃度、pH、添加物、スプレイ流量、温度等の異った条件に対して行われた。実験結果は理論値と良い一致を示したが、さらに実験が必要である。

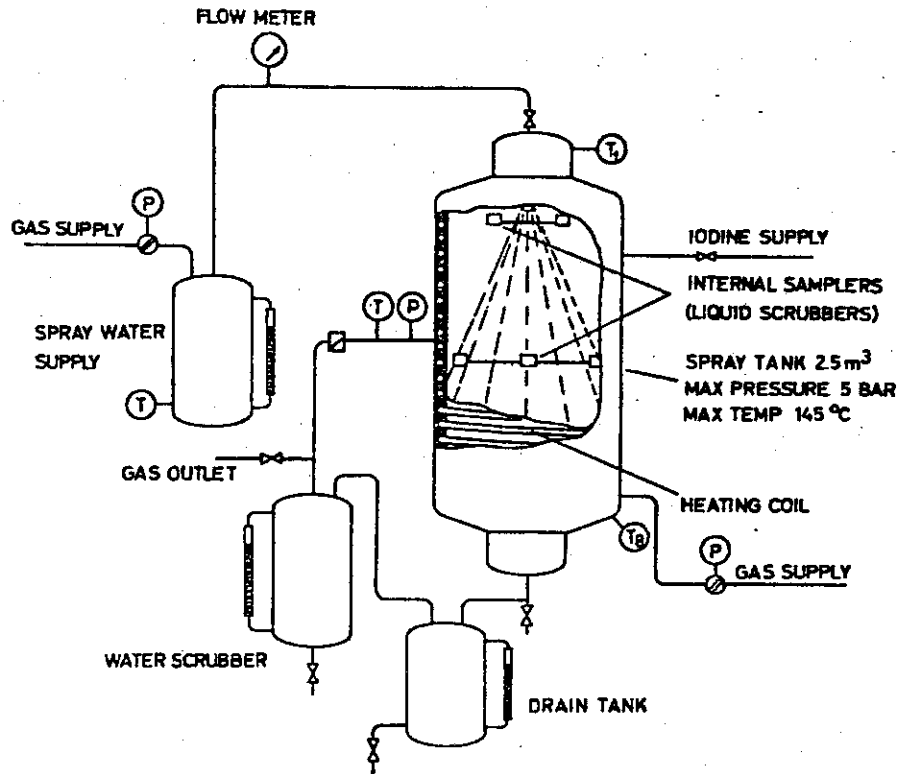


Fig. 3.5-1 Scheme of spray facility

Table 3.5-1 Initial runs in spray facility at 100°C

Run No.	Type of Run		Initial Iodine Concentration (kg/m ³)	Spray Water Flow Rate (kg/sec)	Half-Time ^a (min)	Duration of Experiment (min)
4	Deposition		3.6×10^{-4}	-	26	25
5	Only		2.3×10^{-4}	-	30	90
6 ^b	Spraying with Pure Water	pH = 6-7	3.2×10^{-4}	0.033	15	35
7 ^b			5.3×10^{-4}	0.045	17	35
8 ^b			1.1×10^{-6}	0.045	2.5	15
9 ^c		2.0×10^{-6}	0.045	1.5	10	
10 ^c		pH = 7-7.5	2.3×10^{-5}	0.045	2-3	10
11 ^c	5.5×10^{-5}		0.045	6	0-10	
12 ^c	8.5×10^{-5}		0.045	2	10-15	
					4	25

^aHalf-time for spray runs not corrected for deposition rate.

^bSpray nozzle Lechler SZ 0.19.

^cSpray nozzle Lechler SZ 12.4.

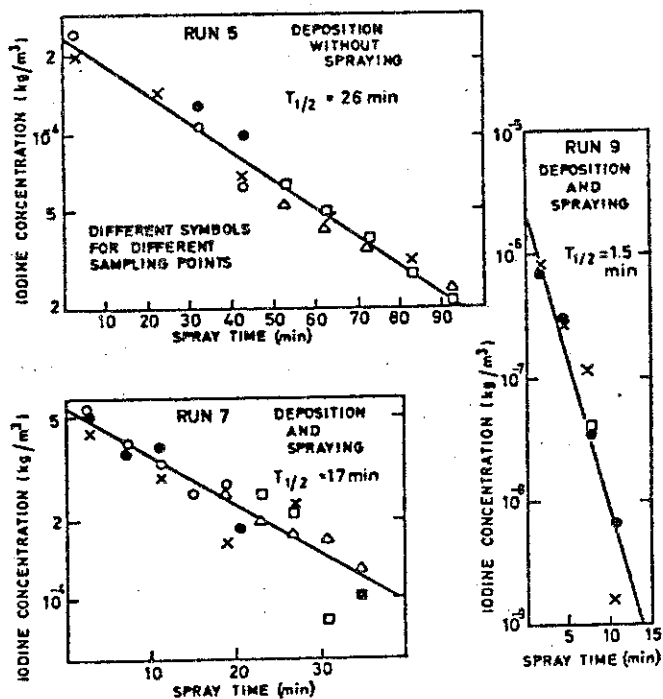


Fig. 3.5-2 Washout rate from initial runs vs. spray time

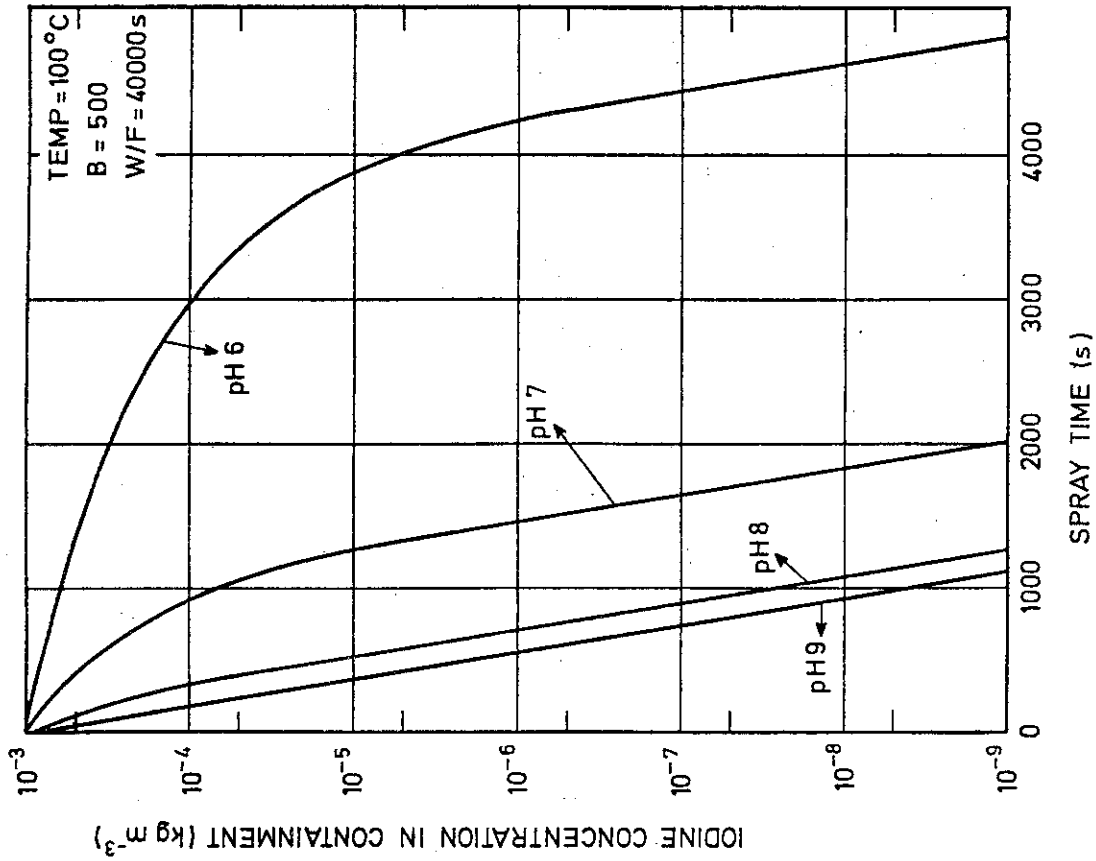


Fig. 3.5-4
Iodine concentration in a containment versus spray time for different pH-values

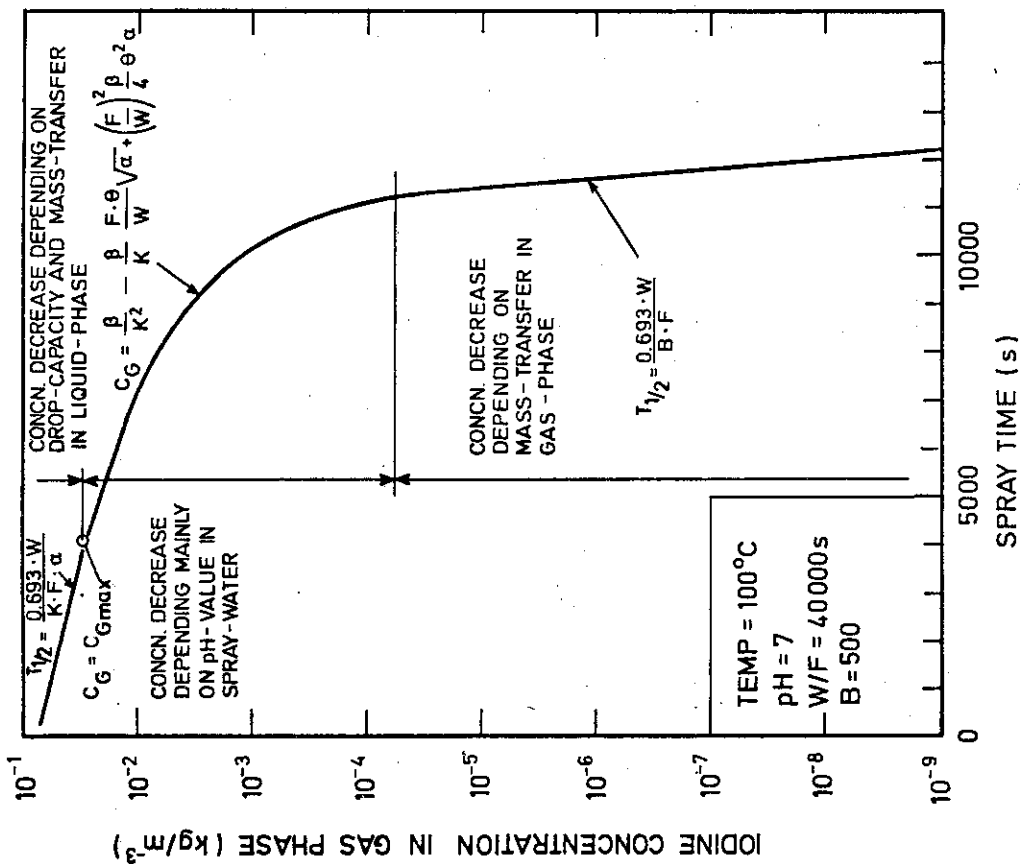


Fig. 3.5-3
Iodine concentration in a gas phase versus spray time showing the typical concentration decrease when passing through an extended concentration range

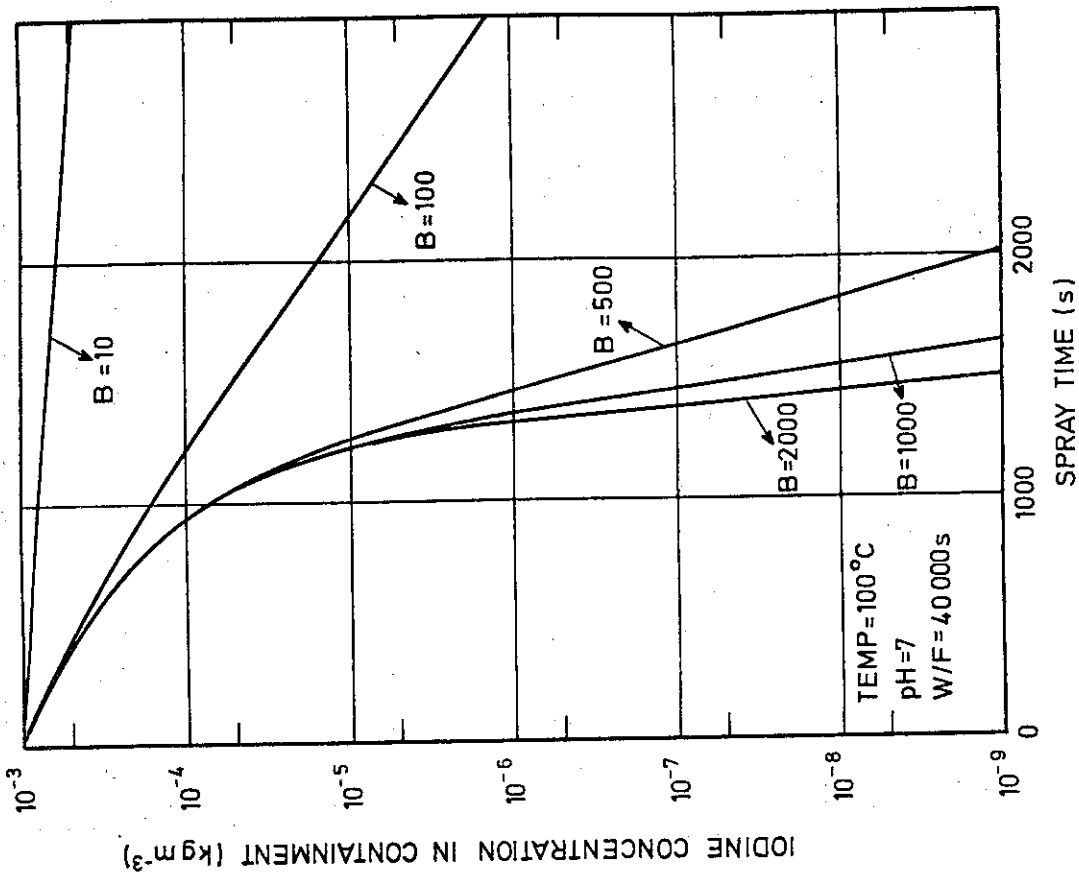


Fig. 3.5-6

Iodine concentration in a containment versus spray time for different B-values. $B = \frac{3 \cdot k_G \cdot t}{R}$

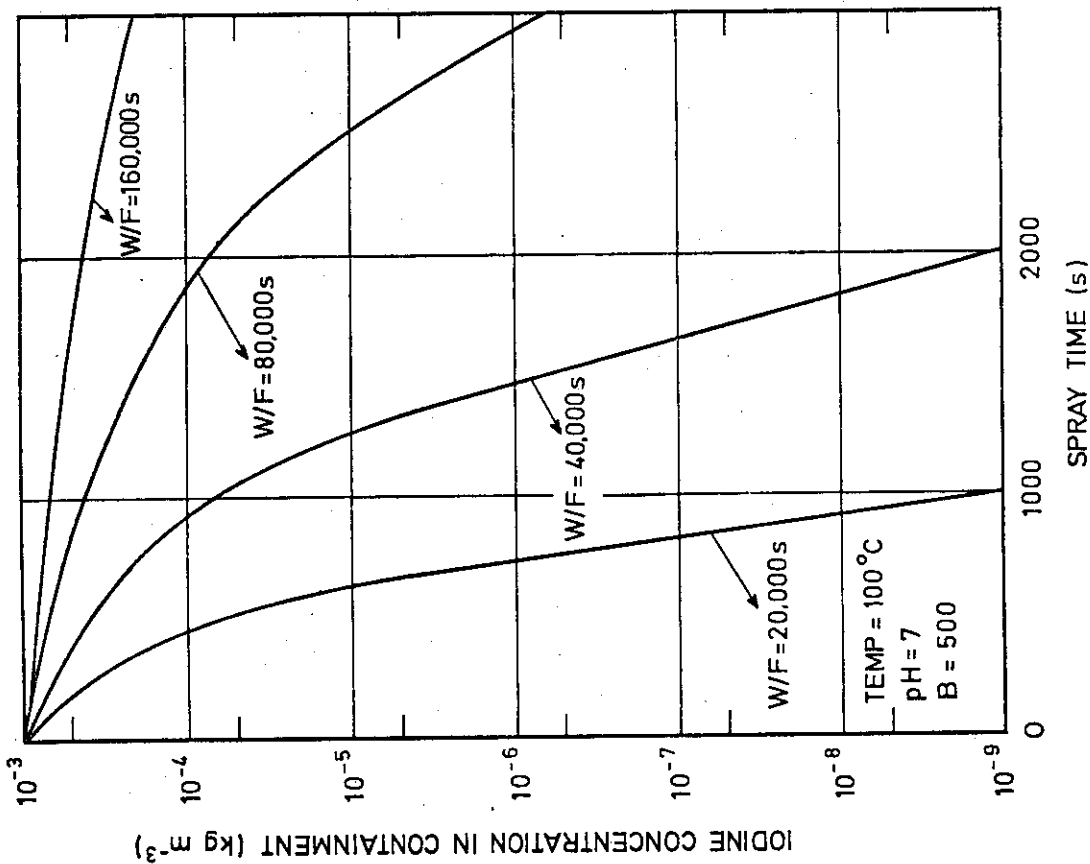


Fig. 3.5-5

Iodine concentration in a containment versus spray time for different W/F-values

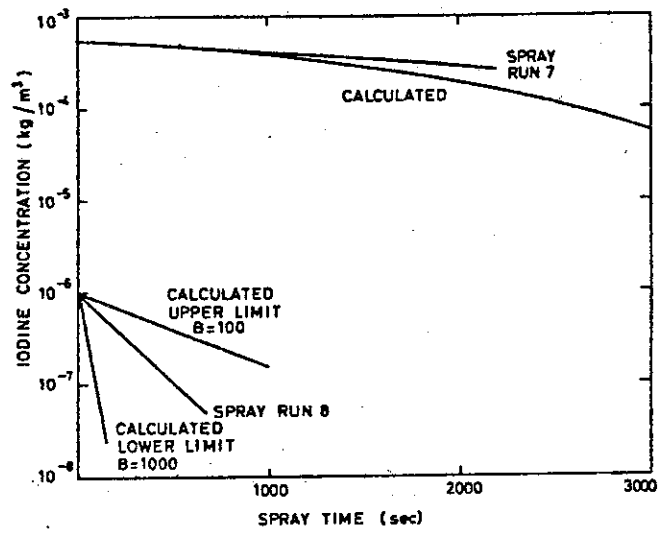


Fig. 3.5-7 Comparison of model and results from initial runs corrected for deposition

3.6 三菱原子力工業^{41~45)}

昭和38年から40年にかけて日本原子力産業会議安全特別研究会SAFE (Safety Assessments and Facilities Establishment) projectの一部として、三菱原子力工業と次に述べる日立製作所で格納容器スプレー効果の実験が行われた。

三菱原子力工業では、主に格納容器スプレーによるヨウ素水洗除去効果に関する実験が行われた。

3.6.1 実験装置

Fig. 3.6-1に実験装置のフローシートを示す。実験装置は大別すれば、スプレー液供給系、試験容器および計測系から構成されている。

試験容器としては、内径1.5m、高さ3mの軟鋼製円筒容器と、同一寸法のステンレス鋼製容器の二種類が用いられた。容器上部にはスプレーノズルが、中央部には蒸気供給ノズル、ヨウ素発生管およびサンプリング管が設けられている。

スプレー液は、スプレー液供給系に設けられたヒーターと温度調節装置により任意の温度に調節され、スプレーノズルから噴出される。スプレーノズルとしては、Spraying Systems Co.製のFull Jet型およびFog Jet型のものが使用された。これらのノズルの特性をTable 3.6-1に示す。

Fig. 3.6-2にヨウ素発生管を示す。ヨウ素発生管にヨウ素粉末を充填し、試験容器のヨウ素導入孔に挿入後、ヒーターで加熱し、試験容器内にヨウ素蒸気を発生させる。導入されるヨウ素量は20gで、容器内の平均ヨウ素濃度約 $5\text{g}/\text{m}^3$ に相当する。この濃度はLOCA時のヨウ素濃度の50~100倍に相当し、事故時の濃度を模擬していないが、ヨウ素は高濃度になれば吸収速度が減少するので、実験結果は保守的 (conservative) な結果を与えらる。

3.6.2 実験結果およびその検討

実験は、ヨウ素の容器壁への収着実験、常圧下定常スプレーによるヨウ素水洗実験、冷却過程におけるヨウ素水洗実験、反応性水溶液によるヨウ素水洗実験、有機ヨウ素の水洗実験の5種類の実験から構成されている。

3.6.2.1 ヨウ素の容器壁への収着実験

スプレーを行わなくても器壁への収着等により、容器内のヨウ素濃度は経過時間とともに減少する。Fig. 3.6-3に、サルフォタイト-8000を塗装した軟鋼製容器内で80℃で行われたヨウ素収着実験を示す。ヨウ素濃度は時間に対して指数関数的に減少すること、また相対湿度が増加するにつれて収着速度は増加することがわかる。

Fig. 3.6-4に、フェノライン-305を塗装した軟鋼製容器を90℃より自然放冷した場合のヨウ素収着実験を示す。図中には相対湿度5%より実験を開始し、165分後に水蒸気を供給した実験も示されている。同図より、同じ実験条件下でも、実験順位の遅いものの方が早いものに比して収着速度が遅いことがわかる。これは前回の実験で容器壁にヨウ素化合物が生成しているためと考えられる。

Fig. 3.6-5にステンレス鋼製容器を150℃および80℃から自然放冷した場合の収着速度を示す。軟鋼製容器にペイントを塗装した場合に比して、ステンレス鋼の場合には収着速度が遅いことがわかる。また、150℃でも80℃でも収着速度はほぼ同じであり、ステンレス鋼への収着速度は温度、圧力によらないことを示している。

一般的に収着速度は次式で定義されている。

$$V_g = - \frac{dm}{dt} \frac{1}{AC} = - \frac{dC}{dt} \frac{V}{AC} = k_p \frac{V}{A} \quad (3.6-1)$$

ここで

V_g = 収着速度	[m/hr]
m = 気相中のヨウ素量	[kg]
A = 有効表面積	[m ²]
V = 容器体積	[m ³]
C = ヨウ素濃度	[kg/m ³]
k_p = 収着速度定数	[hr ⁻¹]

本実験ならびに英国^{46, 47)}で行われた実験^{注1)}の収着速度定数 k_p 、半減時間 $t_{1/2}$ および収着速度 V_g をTable 3.6-2に示す。PLUTO⁴⁶⁾の実験データによれば、ヨウ素濃度が減少するにつれて、収着速度 V_g が増加することがわかる。また塗装材料のちがいにもかかわらず、MAPI 1とウインフリス原子力研究所の実験結果は一致している。ウインフリス原子力研究所の実験結果と同じく室温でのサルフォタイト-8000に対する V_g は、表面が乾燥しているか濡れているかによらずほとんど同じ値になった。なお表面が乾燥している場合の実験データは表中には示されていない。

3.6.2.2 スプレイによるヨウ素除去

(1) 常圧下定常スプレイによるヨウ素除去効果

市水を用いて容器内のヨウ素水洗除去実験が行われた。ヨウ素の減少は容器壁等への収着効果と水洗効果の両者によると考えられる。Figs. 3.6-6, 3.6-7, 3.6-8には、常温、50℃、80℃（一定温度、一定圧力）においてFull Jet型ノズルを用いて市水をスプレイした場合の容器内気相中のヨウ素濃度変化を示す。すべての温度、流量において、容器内ヨウ素濃度は指数関数的に減少しており、ヨウ素濃度減少速度が一次反応則に従うことを示している。この速度は温度が高い程、スプレイ速度が大きい程大である。Fig. 3.6-9にはFog Jet型ノズルを使用した場合の容器内ヨウ素の濃度変化を示す。Fog Jet型ノズルの場合にはFull Jet型ノズルの場合と異なりヨウ素濃度は指数関数的に減少していない。

Figs. 3.6-3, 3.6-4, 3.6-5に示したように、スプレイを行わなくても容器内のヨウ素は主として容器壁への収着によって、時間とともに指数関数的に減少する。従って、スプレイによる真のヨウ素水洗効果を評価するには、この収着等による効果を除外して考えなければならない。

Figs. 3.6-3, 3.6-4, 3.6-5より、スプレイを行わない場合のヨウ素濃度変化は一次反応則に従うので次式で与えられる。

注1) ハーウェル原子力研究所では、Dido, Pluto, Zenithの3原子炉を用いて格納容器へのヨウ素の収着実験が行われた。

ウインフリス原子力研究所では27.4m³のほぼ立方体の実験容器を用いて種々の材料へのヨウ素の収着実験が行われた。

$$-\frac{dC}{dt} = k_p C \quad (3.6-2)$$

ここで

$$C = \text{気相のヨウ素濃度} \quad [\text{kg/m}^3]$$

$$t = \text{スプレー時間} \quad [\text{hr}]$$

$$k_p = \text{収着速度定数} \quad [\text{hr}^{-1}]$$

また、Figs. 3.6-6, 3.6-7, 3.6-8に示すようにFull Jet型ノズルを用いてスプレーした場合にも、ヨウ素減少速度はほぼ一次反応則に従うので、スプレー実験によるヨウ素減少速度も次式で表わされる。

$$-\frac{dC}{dt} = kC \quad (3.6-3)$$

ここで

$$k = \text{総括除去速度定数} \quad [\text{hr}^{-1}]$$

このスプレー実験で求められたヨウ素濃度の減少速度は、器壁への収着によるヨウ素濃度減少速度とスプレーによる真のヨウ素水洗速度の和であると考えられる。Eq. (3.6-2), Eq. (3.6-3)とも一次反応式であるので、Eq. (3.6-3)は次式で表わされる。

$$-\frac{dC}{dt} = (k_p + k_w) C \quad (3.6-4)$$

ここで

$$k = k_p + k_w \quad [\text{hr}^{-1}]$$

$$k_w = \text{水洗速度定数} \quad [\text{hr}^{-1}]$$

上式より求めたヨウ素水洗速度定数をTable 3.6-3に示す。

Fig. 3.6-10は k_w とスプレー速度との関係を図示したものである。 k_w とスプレー速度の間にはほぼ直線関係が成立している。また温度による系統的な差異は認められず、 k_w とスプレー速度との関係は次式で表わされる。

$$k_w = \alpha F \quad (3.6-5)$$

$$\alpha = \text{ヨウ素水洗効果定数} \quad [\text{m}^{-3}]$$

$$F = \text{スプレー流量} \quad [\text{m}^3/\text{hr}]$$

ここで、 α は単位スプレー流量あたりのヨウ素水洗効果を示す定数であり、温度に依存せず、スプレーノズル、容器とノズルとの相互関係等によって決定される定数と考えることができる。しかし実験に使用されたFull Jet型ノズルの口径範囲ではTable 3.6-3に示されるようにノズルによる差異は顕著ではなく、Fig. 3.6-10に示されるようにほぼ一つの α の値 60m^{-3} で表わされた。

(ii) 冷却過程におけるヨウ素水洗効果

常圧下の定常スプレー過程におけるヨウ素水洗効果に続いて、事故時に予想される高温高压状態からのスプレー冷却過程におけるヨウ素水洗効果が研究された。

試験容器としては、収着効果の小さいステンレス鋼製容器が、ノズルとしてはFull Jet型のものが使用された。初期温度100℃, 125℃, 150℃の容器内に室温の市水が0.025m³/hr, 0.050m³/hr, 0.10m³/hr, 0.20m³/hrでスプレーされた。

また、いずれの場合にも事故時を模擬するために、予め50℃, 0.20m³の水が容器内に入れられた。

一例としてFig. 3.6-11に初期温度125℃からのスプレー冷却過程における気相ヨウ素濃度の変化を示す。ヨウ素濃度は時間に対してほぼ指数関数的に減少している。Fig. 3.6-11の125℃の場合と同様に、100℃, 150℃の場合もヨウ素濃度は時間に対して指数関数的に減少した。

Fig. 3.6-12には、Fig. 3.6-11の実験における温度変化を示す。

Fig. 3.6-13に初期ヨウ素濃度を1としてスプレー流量が0.1m³/hrの場合の実験結果を示す。スプレー開始より1/10濃度になるまでの半減時間の平均値は、室温, 100℃, 125℃, 150℃に対してそれぞれ20分, 19分, 16分, 13分であった。

低温度液のスプレーでは、ヨウ素濃度は飽和する傾向を示し、高温度液のスプレーではヨウ素濃度は1次反応則に従って減少している。

容器内の液相と気相のヨウ素濃度が平衡状態にある場合には、物質収支より、気相ヨウ素濃度は次式で与えられる。

$$C_1 = \frac{C_0}{\frac{(H-1)(V_{w0}+Ft)}{V} + 1} \quad (3.6-6)$$

ここで

C_1 = 気相中のヨウ素濃度	[kg/m ³]
C_0 = スプレー開始時の気相中のヨウ素濃度	[kg/m ³]
H = ヨウ素の気液分配係数	[-]
F = スプレー流量	[m ³ /hr]
V = 容器の体積	[m ³]
V_{w0} = スプレー開始時の容器内液相体積	[m ³]
t = スプレー時間	[hr]

Fig. 3.6-13には、スプレー流量0.1m³/hr, 分配係数100, 格納容器体積4.9m³におけるEq. (3.6-6)の計算値も併せて示している。

また、スプレー液が落下している間スプレー液と気相は常に平衡状態にあって、液滴中のヨウ素が気相中に放散されないとすれば、容器内の気相ヨウ素濃度は次式で与えられる。

$$-\frac{dC_2}{dt} = \frac{FH}{V} C_2 \quad (3.6-7)$$

積分して

$$C_2 = C_0 \exp\left(-\frac{HF}{V} t\right) \quad (3.6-8)$$

Fig. 3.6-13にはEq. (3.6-8)もあわせて示している。

Eqs. (3.6-6), (3.6-8)と実測値の比較より室温での実測値はその傾向がEq. (3.6-6)で

近似されており、100℃の場合はEq. (3.6-6)からEq. (3.6-8)への遷移状態を示していることがわかる。

Fig. 3.6-14にヨウ素初濃度のヨウ素水洗効果への影響を示す。ヨウ素初濃度が低い程ヨウ素の減少速度は大きくなる傾向が認められる。Fig. 3.6-14は初期温度100℃の場合の結果であるが125℃、150℃の場合にも同様の傾向が認められた。

(iii) 反応性水溶液によるヨウ素水洗実験

市水によってもかなりのヨウ素水洗効果が得られたが、反応性水溶液によってさらに大きな水洗効果を得ることができる。

本実験では、反応性スプレイ溶液として苛性ソーダ、チオ硫酸ソーダおよび亜硫酸ソーダの各水溶液が用いられ、常温～150℃におけるヨウ素水洗効果が0.025m³/hrのスプレイ流量で測定された。

Figs. 3.6-15, 3.6-16に苛性ソーダ水溶液によるヨウ素水洗効果を示す。

Fig. 3.6-15の0.1規定苛性ソーダ水溶液の場合には、ヨウ素水洗速度が市水の場合の70倍に増加している。Fig. 3.6-15, 3.6-16より水洗速度は温度によらず、スプレイ初期を除けば一本の直線で表わされることがわかる。

従って、苛性ソーダ水溶液に対して水洗速度は次式で表わされる。

$$-\frac{dC_3}{dt} = k_w C_3 \quad (3.6-9)$$

ここで

$$\begin{aligned} C_3 &= \text{気相中のヨウ素濃度} && [\text{kg}/\text{m}^3] \\ t &= \text{スプレイ時間} && [\text{hr}] \\ k_w &= \text{水洗速度定数} && [\text{hr}^{-1}] \end{aligned}$$

Fig. 3.6-17に0.1規定チオ硫酸ソーダ水溶液に対する実験結果を示す。

水洗速度は苛性ソーダ水溶液の場合と同じ傾向を示している。

Fig. 3.6-18には0.1規定亜硫酸ソーダ水溶液に対する実験結果を示す。

Figs. 3.6-17, 3.6-18より、気相ヨウ素濃度は急激に減少し、3分以内に100mg/m³になることがわかる。この急激な減少は、ヨウ素とチオ硫酸ソーダとの反応によって生じたヨウ化水素が核となって生じた煙霧が、ヨウ素ガスを吸収したためと推察された。

各種反応性水溶液に対してEq. (3.6-9)より求められた水洗速度定数 k_w をTable 3.6-4に示す。

(iv) 有機ヨウ素の水洗実験

有機ヨウ素化合物としてメチルヨウ素、エチルヨウ素およびヨードベンゼンを用い、常温から150℃における水洗効果が測定された。このうち常温～80℃の実験は、常圧下でスプレイ水と容器内温度とを一定に保った定常スプレイ過程について行われ、100℃～150℃の実験は、実際の事故時なるべく近い条件を模擬するため、飽和水蒸気圧下からの冷水スプレイによる冷却過程について行われた。

スプレイによる水洗実験に先立って、スプレイを行わない場合のヨウ素化合物の挙動を確認するため、メチルヨウ素を室温、飽和湿度下の容器内に導入し、長時間放置した場合の経時濃度変化が測定された。その結果、20数時間後でもその濃度にほとんど変化が認められなかったため、本実験に用

いられた有機ヨウ素化合物は試験容器内面への収着が起らないものと判断され、水洗実験の結果が水洗のみによる効果とみなされた。

Figs. 3.6-19, 3.6-20, 3.6-21 にスプレーによるメチルヨウ素, エチルヨウ素およびヨードベンゼンの濃度変化を示す。いずれの温度, 流量でも, 濃度は指数関数的に減少しており, 水洗速度が一次則に従っていることを示している。

水洗速度定数 k_w と Eq. (3.6-5) の水洗効果定数 α を Table 3.6-5 に示す。Fig. 3.6-22 には水洗効果定数 α の温度依存性を示す。どの化合物でもよい直線性を示しているが, このことは水洗速度が温度の影響を規則的に受けること, またヨードベンゼンがその影響を最も大きく受け, メチルヨウ素が最も小さく受けることを示している。

Figs. 3.6-23, 3.6-24 に冷水スプレーによる冷却過程におけるメチルヨウ素とヨードベンゼンの濃度変化を, Fig. 3.6-25 にはそれらの実験における容器内の温度変化を示す。Figs. 3.6-23, 3.6-24 中の点線は Fig. 3.6-22 と Fig. 3.6-25 の値を用いた計算結果である。全体的に見れば水洗速度の実測値は破線で示した計算値とほぼ一致しているので, 容器内温度を一定に保った定常スプレーの水洗速度定数を用いる計算法は, 実際の事故時における水洗効果の評価に, ある程度適用できるものと推察される。

3.6.3 結論

ヨウ素の壁への収着実験, 常圧下の定常スプレーによるヨウ素水洗実験, 冷却過程におけるヨウ素水洗実験, 反応性水溶液によるヨウ素水洗実験, 有機ヨウ素の水洗実験等の一連の実験より次の結論が得られた。

- (1) 塗装した軟鋼への自然収着はステンレス鋼への自然収着より大である。また自然収着の速度は気相の湿度の増加とともに著しく増加する。大型格納容器での自然収着効果は小型実験の結果から推算することが可能である。
- (2) スプレーによるヨウ素水洗速度はヨウ素濃度が低くなるほど増加する。市水によるヨウ素水洗速度は, 水中の不純物により分配則から予測される値より大である。
- (3) 反応性水溶液によるヨウ素水洗速度は, 市水による水洗速度より非常に大である。その水洗速度は気相温度によらず, 一次反応則に従う。
- (4) 有機ヨウ素の水洗実験より, スプレー液滴がかなり小さい場合には, 液滴は数m落下する間に化合物で飽和することが示された。

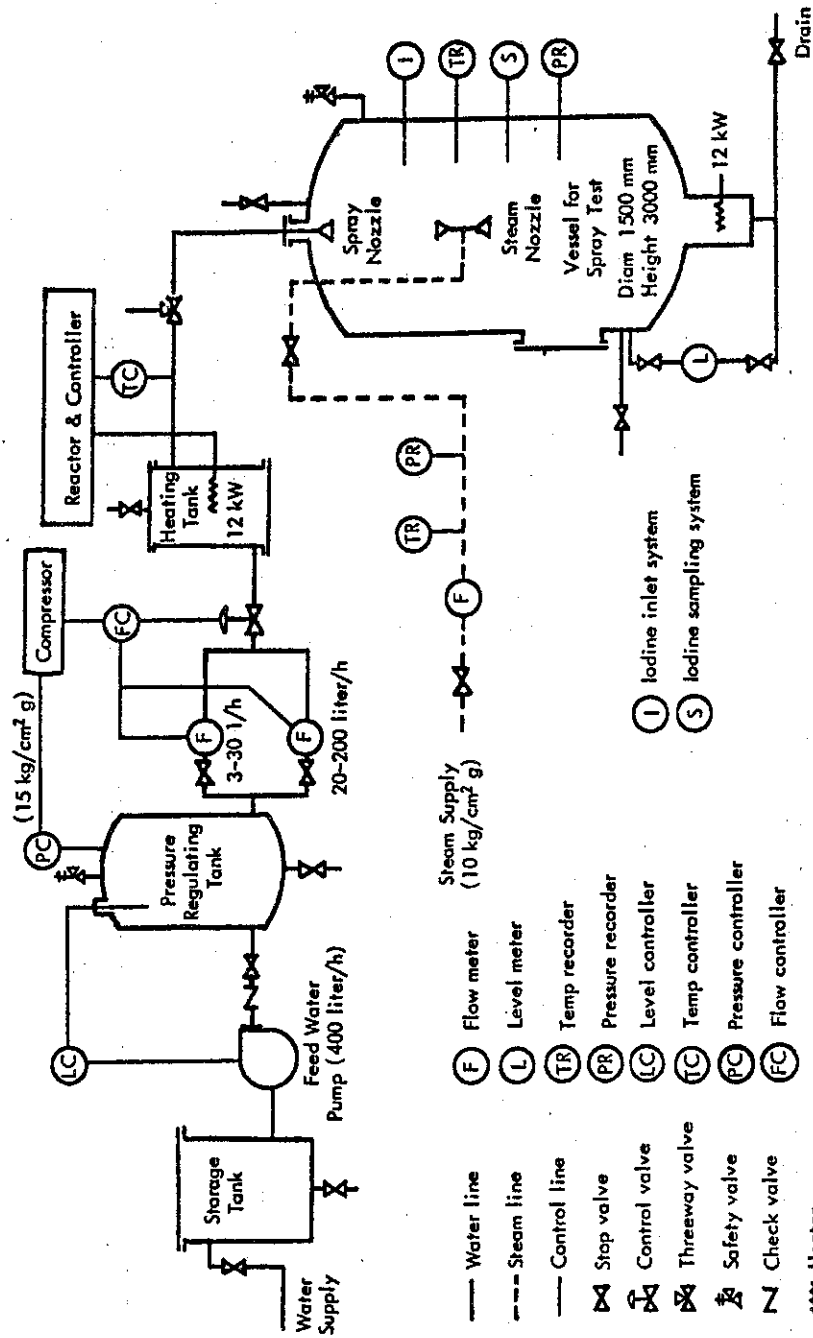


Fig. 3.6-1 Block diagram of experimental system for iodine washout tests

Table 3.6-1 Spray characteristics of nozzles used

Nozzle type	Nozzle No.	Orifice diam. (mm)	Capacity (l/hr at kg/cm ²)								Spray angle (deg. at kg/cm ²)			Spray pattern† (m)		
			0.3	0.5	1.0	2.0	4.0	6.0	8.0	10.0	0.5	1.4	5.6	A	B	C
Full Jet type	1/8G1	0.94	—	19	27	37	52	62	72	80	—	58°	53°	—	—	—
	1/8G1.5	1.17	26	30	41	56	77	94	110	120	52°	65°	59°	—	—	—
	1/8G3	1.60	46	58	80	112	153	183	215	238	52°	65°	59°	—	—	—
Fog Jet type	1-7N4	1.05	—	—	64	90	128	155	180	200	—	—	—	>0.9	1.68φ	1.07φ
	1-7N6	1.10	—	—	95	135	190	232	270	300	—	—	—	>0.9	1.83φ	1.22φ

† The "B" zone represents the complete pattern coverage at distance "A". Coverage in the "C" zone represents about 65% of the total distribution density.

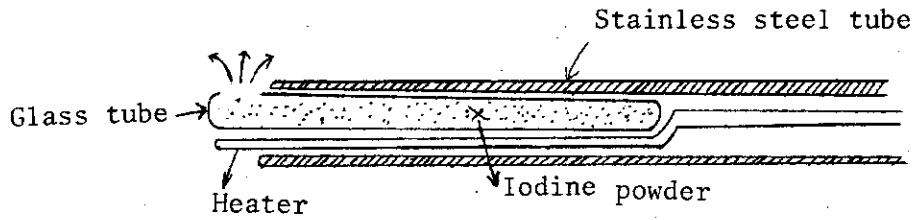


Fig. 3.6-2 Iodine supply tube

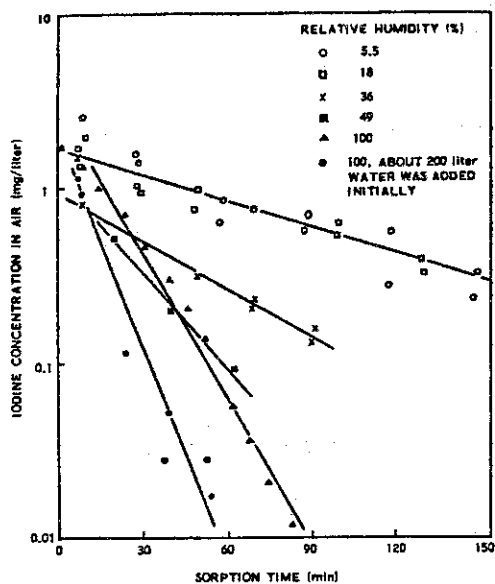


Fig. 3.6-3
Variation of iodine concentration with time by sorption on Sulphotite-8000 at 80°C

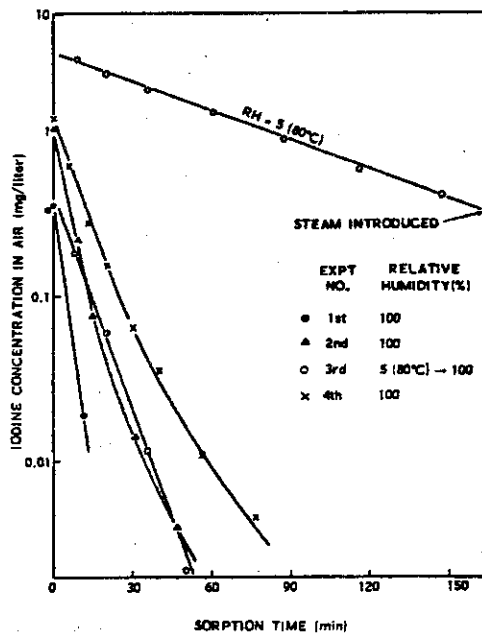


Fig. 3.6-4
Variation of iodine concentration with time by sorption on Phenoline-305 in natural cooling process from 90°C

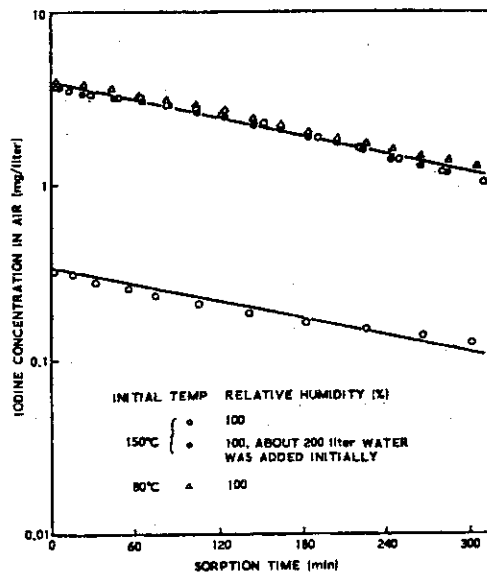


Fig. 3.6-5 Variation of iodine concentration with time by sorption on stainless steel in natural cooling process from 150 and 80°C

Table 3.6-2 Iodine plateout rate constants (k_p) and deposition velocities (V_g)

Experiment No.	Conditions						Effective Surface Area A (m^2)	Half-Lives $t_{1/2}$ (min)	k_p (min^{-1})	V_g (cm/sec)
	Materials of Inner Surface	Dry or Wet	Temp ($^{\circ}C$)	I_2 Conc (mg/liter)	Vessel Volume V (m^3)					
MAPI 1	Sulphotite-8000	Wet	Room	4	4.9	21	30	0.023	8.9×10^{-3}	
MAPI 2	Sulphotite-8000	Dry	80	4	4.9	21	63	0.011	4.3×10^{-3}	
MAPI 3	Sulphotite-8000	Wet	80	4	4.9	21	7.4	0.094	3.7×10^{-3}	
MAPI 4	Phenoline-305	Dry	80*	4	4.9	21	58	0.012	4.7×10^{-3}	
MAPI 5	Phenoline-305	Wet	90*	4	4.9	21	2.8	0.25	9.7×10^{-3}	
MAPI 6	Phenoline-305	Wet	90*	4	4.9	21	7.0	0.10	3.9×10^{-3}	
MAPI 7	Stainless steel	Wet	150*	4	4.9	21	174	0.0040	1.6×10^{-3}	
MAPI 8	Stainless steel	Wet	150*	0.3	4.9	21	176	0.0039	1.5×10^{-3}	
PLUTO	b	Dry	Room	$1 \sim 140 \times 10^{-7}$	7000	3000	19	0.036	1.4×10^{-1}	
Winfrith	c	Dry	Room	0.1	27	60	130	0.0053	4.0×10^{-3}	
Winfrith	c	Wet	Room	0.2	27	60	140	0.0050	3.7×10^{-3}	

*Initial temperature.

b Polyvinyl chloride: $\frac{1}{2}$, concrete: $\frac{1}{2}$, painted steel: $\frac{1}{2}$.

c Painted (gum chloride paint) concrete.

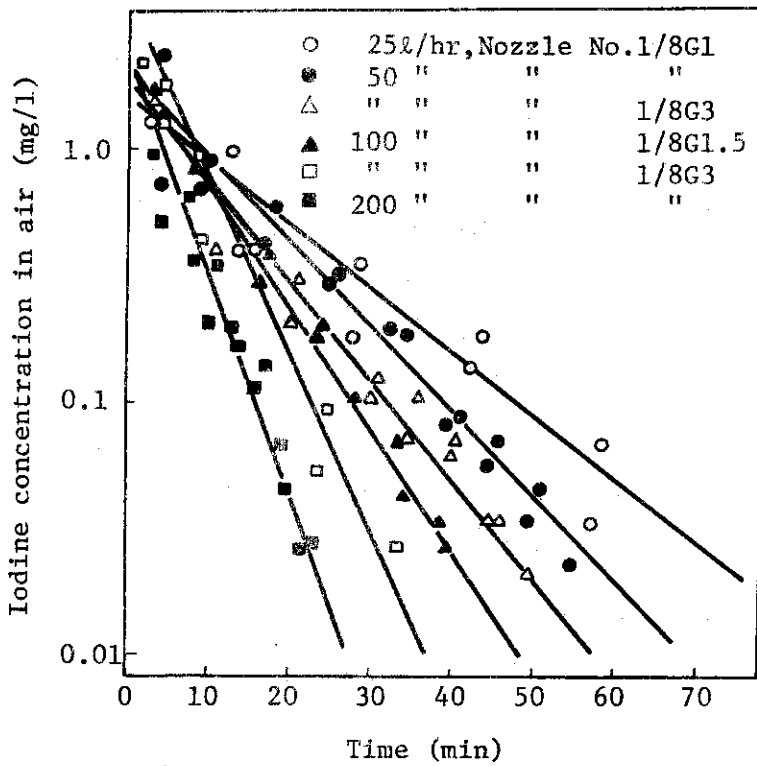


Fig. 3.6-6 Variation of I Concentration by Spray
 Temperature: 25°C
 Nozzle: Full Jet type

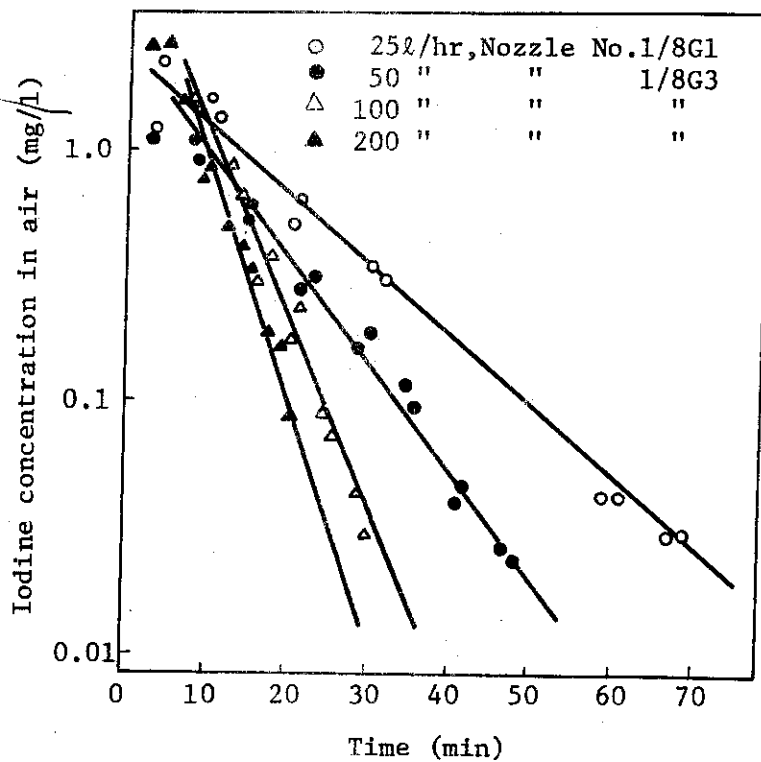


Fig. 3.6-7 Variation of I Concentration by Spray
 Temperature: 50°C
 Nozzle: Full Jet type

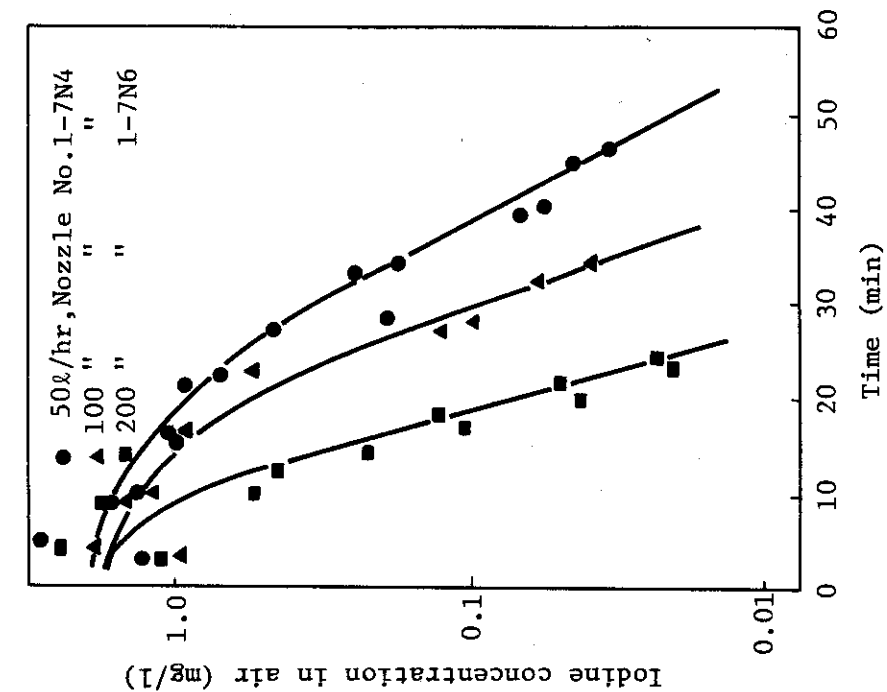


Fig. 3.6-9 Variation of I Concentration by Spray
 Temperature: 25°C
 Nozzle: Fog Jet type

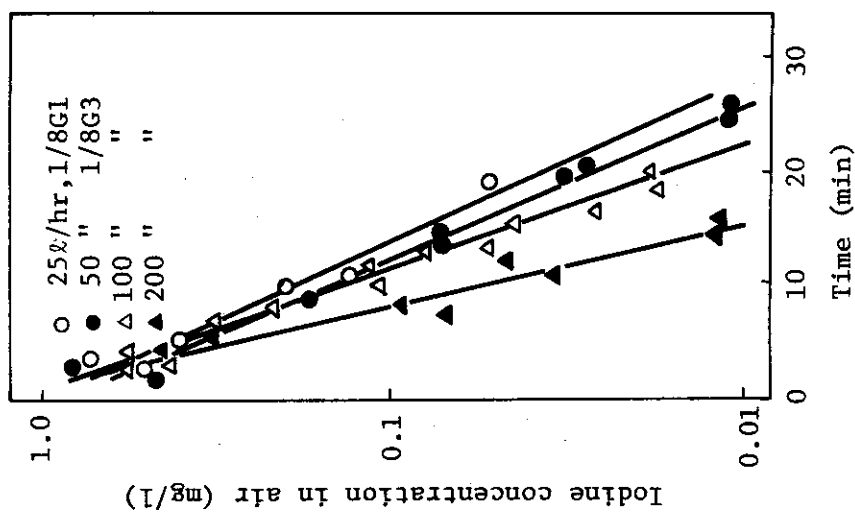


Fig. 3.6-8 Variation of I Concentration by Spray
 Temperature: 80°C
 Nozzle: Full Jet type

Table 3.6-3 Removal rate constants of I in air

	Spray rate (l/hr)	Nozzle No.	Rate constant(hr ⁻¹)		
			25°C	50°C	80°C
k_p	0	—	1.6	2.0	7.2
k	25	1/8 G1	3.5	3.8	9.7
	50	"	4.5	—	—
	"	1/8 G3	5.4	5.9	10.3
	100	1/8 G1.5	8.5	—	—
	"	1/8 G3	10.0	10.1	12.8
	200	"	12.4	13.0	19.5
k_w	25	1/8 G1	1.9	1.8	2.5
	50	"	2.9	—	—
	"	1/8 G3	3.8	3.9	3.1
	100	1/8 G1.5	6.9	—	—
	"	1/8 G3	8.4	8.1	5.6
	200	"	10.8	11.0	12.3

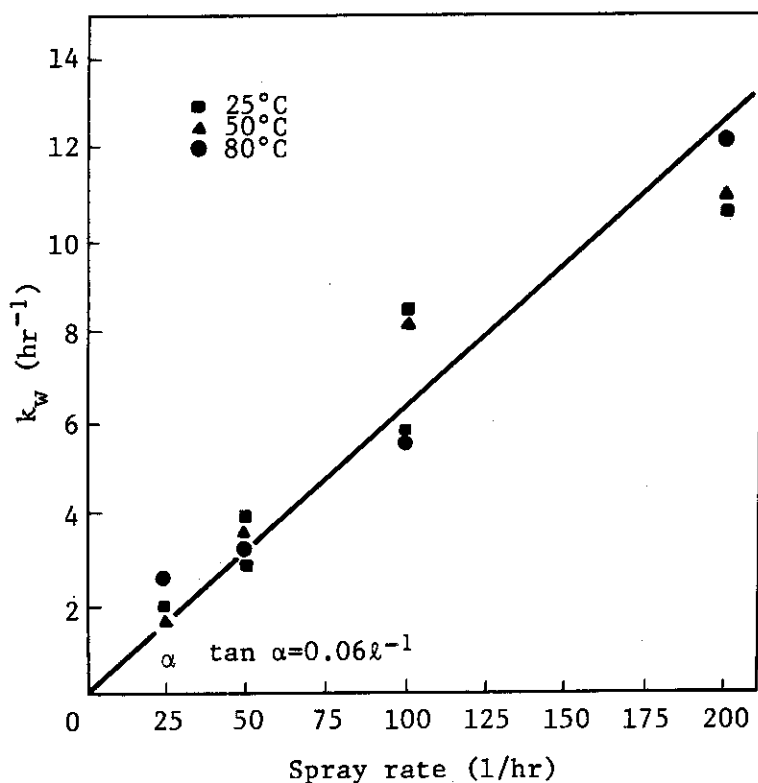


Fig. 3.6-10 Relation between k_w and spray rate

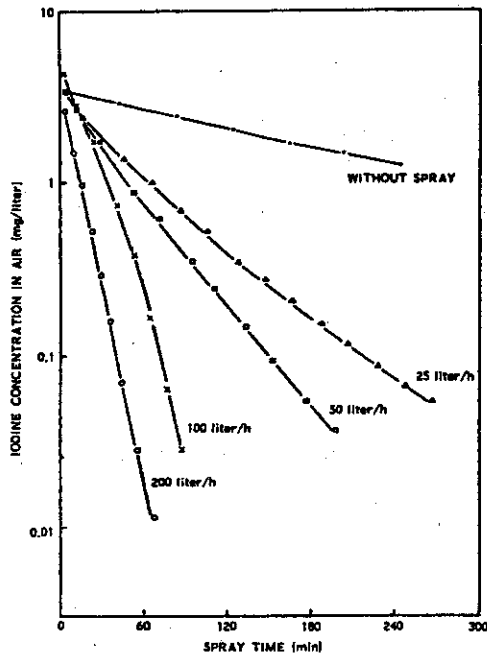


Fig. 3.6-11
 Variation of iodine concentration by spray
 Initial temperature in drum: 125°C
 Spraying water temperature: 25°C

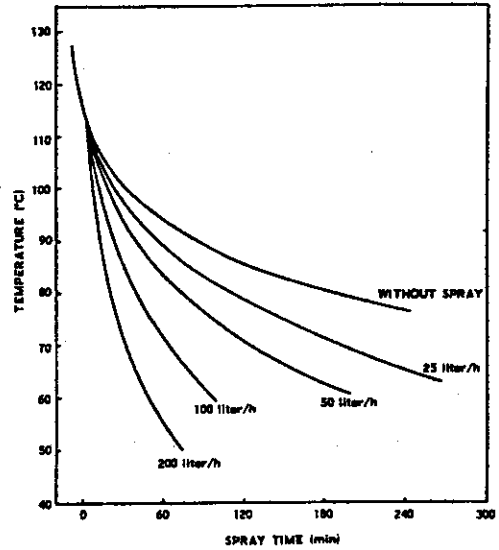


Fig. 3.6-12
 Variation of temperature in Fig. 2.6-11

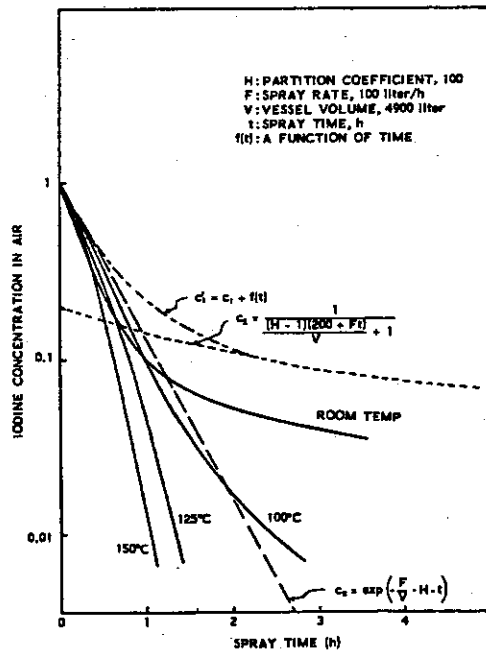


Fig. 3.6-13 Washout effect in comparison with theory

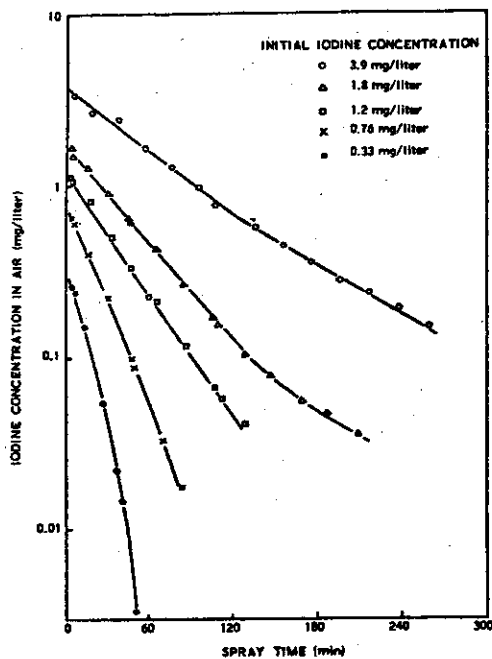


Fig. 3.6-14
Effect of initial iodine concentration
Initial temperature in vessel: 100°C
Spray rate: 50 liter/h

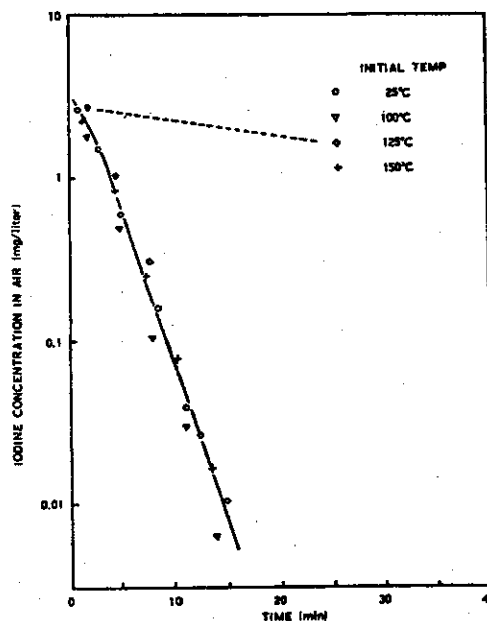


Fig. 3.6-15
Variation of iodine concentration by
reactive spray
Reactive solution: 0.1 mole/liter
NaOH
Spray rate: 25 liter/h
Spray process: Cooling by spray
Dotted line: City water at 125°C
of initial temp.,
100 liter/h

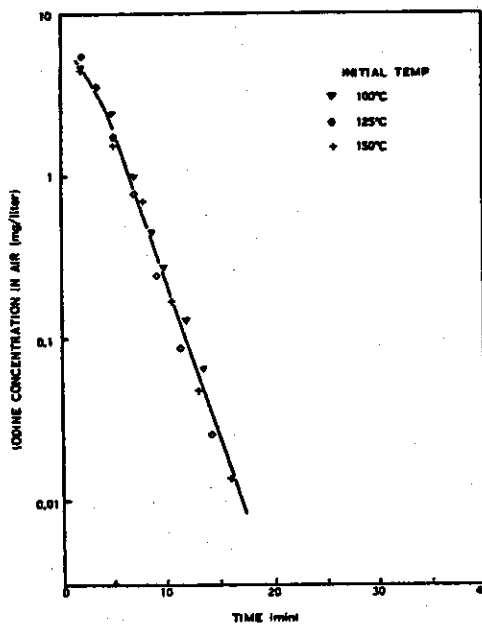


Fig. 3.6-16 Variation of iodine concentration by reactive
spray
Reactive solution: 1 mole/liter NaOH
Spray rate: 25 liter/h
Spray process: Cooling by spray

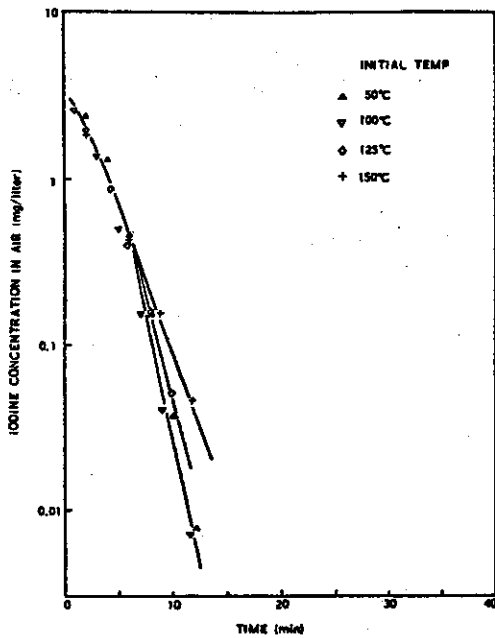


Fig. 3.6-17
 Variation of iodine concentration
 by reactive spray
 Reactive solution: 0.1 mole/liter
 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$
 Spray rate: 25 liter/h
 Spray process: Cooling by spray

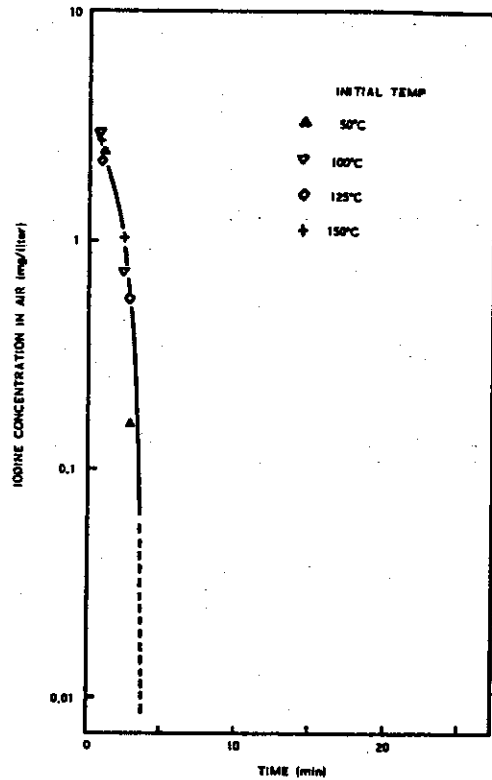


Fig. 3.6-18
 Variation of iodine concentration
 by reactive spray
 Reactive solution: 0.1 mole/liter
 Na_2SO_3
 Spray rate: 25 liter/h
 Spray process: Cooling by spray

Table 3.6-4 Washout rate constant of iodine by reactive sprays
 (spray rate $F = 25$ liter/h)

Spray Water	Rate Constant k_w (min^{-1})				
	25°C	50°C ^a	100°C ^a	125°C ^a	150°C ^a
0.1 M NaOH	0.45	-	0.45	0.45	0.45
1 M NaOH	0.57	-	0.45	0.45	0.45
0.1 M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$	0.49	0.71	0.71	0.59	0.42
0.1 M Na_2SO_3	1.4	>3	>3	>3	>3

^aInitial temperature in cooling process by spray.

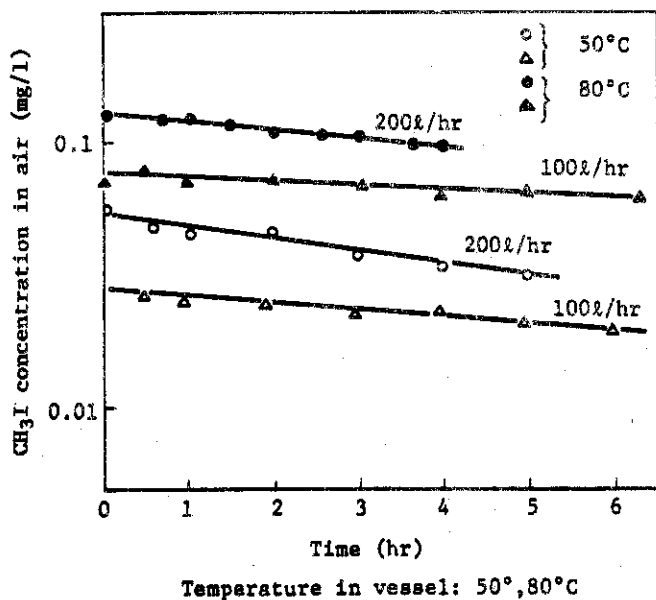


Fig. 3.6-19
Variation of CH_3I concentration by spray

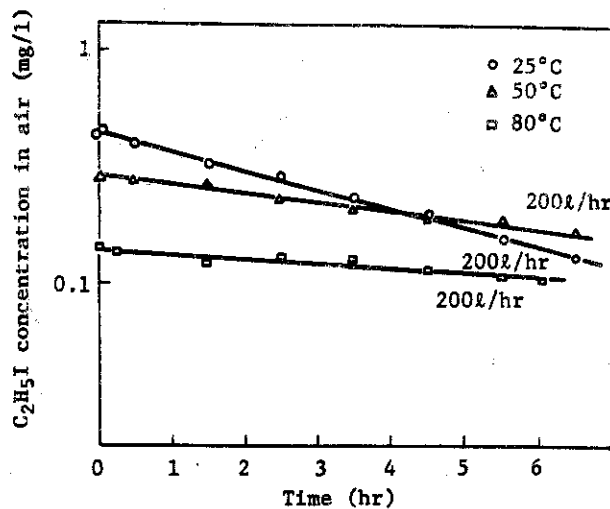


Fig. 3.6-20
Variation of $\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$ concentration by spray

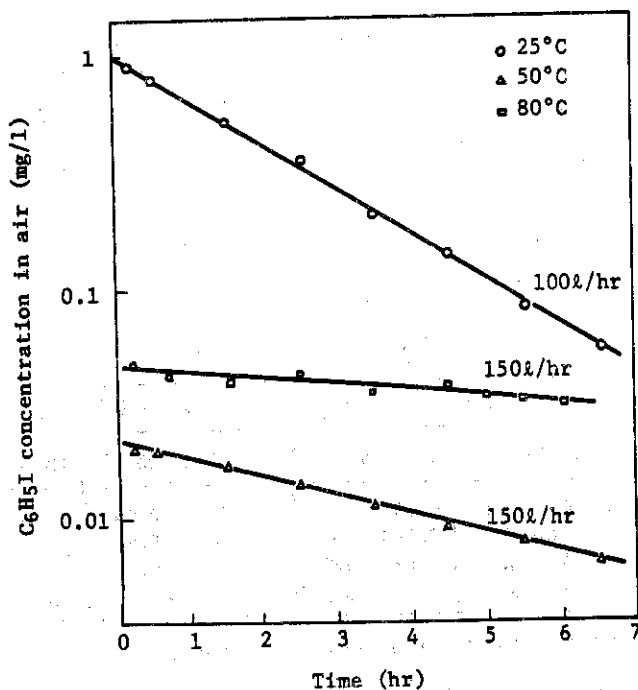


Fig. 3.6-21 Variation of $\text{C}_6\text{H}_5\text{I}$ concentration by spray

Table 3.6-5 Washout rate constant k_w and washout effect constant α (k_w/F)

Temp (°C)	Spray Rate F (liter/h)	CH ₃ I		C ₂ H ₅ I		C ₆ H ₅ I	
		k_w (h ⁻¹)	α (liter ⁻¹)	k_w (h ⁻¹)	α (liter ⁻¹) ^a	k_w (h ⁻¹)	α (liter ⁻¹) ^a
25	50	0.043		-		-	
	100	0.10	1.1×10^{-3}	-	9.5×10^{-4}	0.45	4.5×10^{-3}
	180	0.21	$(9.8 \times 10^{-4})^b$	-	$(9.0 \times 10^{-4})^c$	-	$(4.2 \times 10^{-3})^b$
	200	-		0.19		-	
50	100	0.062		-		-	
	150	-	5.8×10^{-4}	-	4.3×10^{-4}	0.19	1.3×10^{-3}
	200	0.11	$(4.9 \times 10^{-4})^b$	0.087		-	$(1.3 \times 10^{-3})^b$
80	100	0.037		-		-	
	150	-	3.7×10^{-4}	-	2.1×10^{-4}	0.067	4.5×10^{-4}
	200	0.073	$(2.7 \times 10^{-4})^b$	0.042		-	$(4.3 \times 10^{-4})^b$

^aPresumed values from k_w assuming that washout rates are proportional to spray rates.

^bCalculated values from gas-liquid partition coefficients.³

^cCalculated values from vapor pressure¹⁰ and solubility¹⁰ at 20°C.

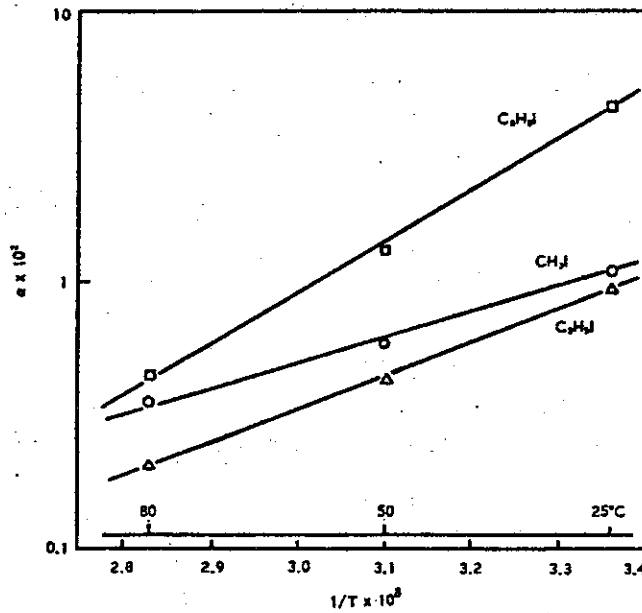


Fig. 3.6-22 Effect of temperature on washout rate

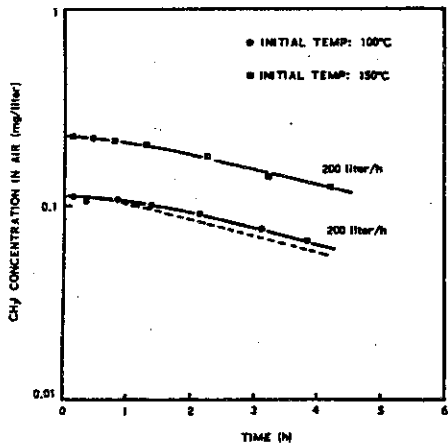


Fig. 3.6-23
 Variation of CH_3I concentration by spray. Initial temperature in vessel: About 100°C, 150°C
 Temperature of spray water: 25°C
 Dotted line was presumed from α in Fig. 3.6-22.

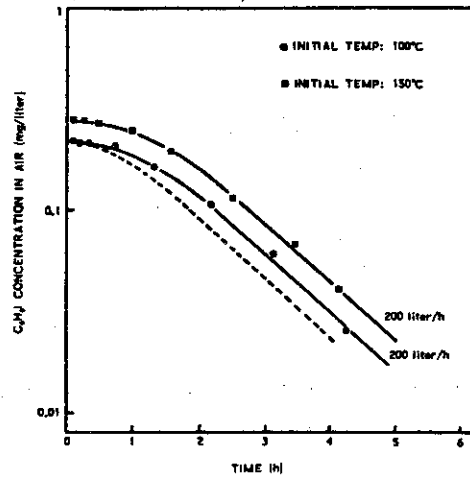


Fig. 3.6-24
 Variation of $\text{C}_6\text{H}_5\text{I}$ concentration by spray. Initial temperature in vessel: About 100°C, 150°C
 Dotted line was presumed from α in Fig. 3.6-22.

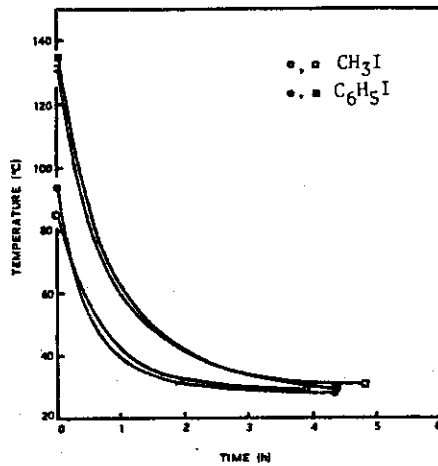


Fig. 3.6-25 Variation of temperature in vessel by spray (in Figs. 3.6-23 and 3.6-24).
 Spray rate: 200 liter/h

3.7 日立製作所^{48, 49)}

日立製作所では、格納容器スプレイによる熱除去減圧効果に関する研究が行われた。

3.7.1 実験装置

実験装置の概略図を Fig. 3.7-1 に示す。

実験容器は内径 3.3m, 高さ 6 m, 容積 42m³, 内表面積 62m² である。

圧力容器は内径 0.6m, 高さ 3 m, 容積 0.82m³ で、100KWのヒーターにより内部の水を 75 kg/cm² g まで加圧することができる。圧力容器は本来、格納容器の過渡状態における凝縮熱伝達の測定に使用されたが、本実験では高温水供給用の予熱器として使用された。

補助ボイラーは 50KWの能力を有し、圧力容器に噴出された温水を加熱し、混合気体を加圧するためのものである。

給水系は給水タンク、給水ポンプ等から構成されている。

格納容器スプレイ系はクーラー、循環ポンプ、流量計および No. 1, No. 2, No. 3 のスプレイ配管で構成されている。流量計はベンチュリー管型のものが使用された。

スプレイノズルとして 2 種類のスプレイノズルが使用されるとともに、穴をあけたリング状配管によるスプレイ実験も行われた。

スプレイ流量の調節法としては、定格流量でノズル個数を変えることによってスプレイ液滴径が変わらないようにする方法と、ノズル個数を変えず流量を定格値以下にする方法の両方が行われた。

実験方法としては次の二つの方法が採用された。

- (1) 格納容器の内圧降下からスプレイの吸収熱量を測定する方法 (非定常実験)
- (2) 内圧を一定にしておくための必要供給熱量からスプレイの吸収熱量を測定する方法 (定常実験)

なお、格納容器内底部のグレーチング上には直径 150mm, 高さ 335mm の銅製円筒が置かれ、容器壁面からのスプレイ水の再蒸発による伝熱速度の推算のために使用された。Fig. 3.7-2 に円筒の詳細図を、Table 3.7-1 にその仕様を示す。

3.7.2 実験結果およびその検討

3.7.2.1 非定常実験

No. 2 のスプレイノズルを用いた非定常スプレイによる格納容器内の圧力変化を、スプレイ水量をパラメーターとして Fig. 3.7-3 に示す。格納容器の容積が実際の原子炉の約 1/1000 なので、スプレイ水量も実際の 1/1000 程度が選ばれた。スプレイ水量が多い程容器内の減圧は速いが、実炉に比し単位容積の混合気体に対する格納容器壁の面積および熱容量の割合が大きいため、実験結果は容器壁および保有水等の影響を強くうけていると考えられる。従って、実験結果に対しそれらの補正が必要である。

また、スプレイ水を循環使用しない場合は、スプレイ水を他から供給しているので、これによる気体の圧縮効果も補正する必要があるが、これによる補正は大きくてもせいぜい 5% 以下であるので無視された。

3.7.2.2 定常実験

蒸気の供給を行いながら一定流量のスプレイを行い、定常状態になった後、測定が行われた。

Fig. 3.7-4に、格納容器内の圧力が時間的に変動しなくなった後の格納容器内の圧力と、その時の補助ボイラーからの供給熱量との関係を示す。なお、同図にはスプレイしない場合の関係も示すが、これは格納容器壁などから逃げる熱量を補正するために必要である。

3.7.2.3 格納容器壁などからの伝熱量の補正

格納容器壁あるいは格納容器底部にたまっている水からの伝熱量は、ある時間スプレイを行った後のスプレイ休止期間中の圧力変化から求められた。

すなわち、スプレイ時に混合気体から取去られる熱量 $Q\downarrow$ は次式で与えられる。

$$Q\downarrow = Q_{sp} + Q_{loss} - Q_{in} \quad (3.7-1)$$

ここで Q_{sp} はスプレイによる除熱量、 Q_{loss} は格納容器壁面等を通して出て行く熱量、 Q_{in} は混合気体に入ってくる熱量である。

一方スプレイをとめた直後に混合気体に入ってくる熱量を $Q\uparrow$ とすれば

$$Q\uparrow = Q_{in} - Q_{loss} \quad (3.7-2)$$

故にEqs. (3.7-1), (3.7-2)より

$$Q_{sp} = Q\downarrow + Q\uparrow \quad (3.7-3)$$

となる。

上述の $Q\uparrow$ の値は、スプレイ流量、格納容器壁熱容量等に関係することが考えられる。

Fig. 3.7-5にスプレイを断続させて求めた混合気体温度 T_{vap} と $Q\uparrow$ との関係をスプレイ流量をパラメーターとして示す。スプレイ流量を大きくして混合気体の温度を急速に下げたような場合、あるいは格納容器壁の熱容量が大きい場合には、この熱移動量が大きく影響するようになる。

3.7.2.4 格納容器内保有水の再蒸発

スプレイ休止期間中の Q_{in} は、保有水の蒸発による伝熱量であると考えられる。そこで Q_{loss} として自然放冷(スプレイ無し)の場合の値を用い、さらにFig. 3.7-5の $Q\uparrow$ の値を使用すれば、保有水表面からの蒸発による伝熱量 Q_{in} が計算される。その結果をFig. 3.7-6に伝熱係数の形、すなわち $Q_{in}/A_{ws}(T_{ws} - T_{vp})$ で示す。

3.7.2.5 スプレイ液で濡れた表面からの蒸発

スプレイ液で濡れた表面からの蒸発による伝熱量は、Fig. 3.7-2に示した円筒の温度変化より計算される。すなわち、

$$Q_{cd} = \frac{1}{A} C_{pc} G_c \frac{\Delta T_s}{\Delta t} \quad (3.7-4)$$

Q_{cd} のうちスプレイ液が受熱して円筒壁面を落下していく分は次式から計算される。

$$Q_{sn} = C_{pw} r_w G_{sp} (T_s - T_{sp}) \quad (3.7-5)$$

ここで Fig. 3.7-7 に示す装置により円筒面にかかる水量が測定された。すなわち、図中の中央に穴をもった円板と底部の水受けの距離は、Fig. 3.7-2 の銅製円筒測定器の上部断熱材上面と下部断熱材上面の距離に対応しており、銅製伝熱面にかかる水量が測定できるようになっている。

Eqs. (3.7-4), (3.7-5) より計算された結果を Q_{sn}/Q_{cd} の形で Fig. 3.7-8 に示す。ここで 1 より Q_{sn}/Q_{cd} を引いたものが蒸発による伝熱量に対応している。

また、Fig. 3.7-9 には Q_{cd} を示す。Figs. 3.7-8, 3.7-9 ともに、壁面からの伝熱量がスプレイ流量によらず格納容器内の圧力（水蒸気の分圧）のみで決まることを示している。

3.7.2.6 スプレイの熱吸収率

容器内は飽和蒸気で満たされており、スプレイ液の蒸発が起こらないものとするれば、スプレイにより除去される最大熱量は $G_{sp} C_{pw} (T_{vp} - T_{sp})$ であるから、実際にスプレイが吸収した熱量 Q_{sp} とこれとの比

$$\eta = \frac{Q_{sp}}{G_{sp} C_{pw} (T_{vp} - T_{sp})} \quad (3.7-6)$$

をスプレイの熱吸収率と定義する。

スプレイ液滴径が流量に関係なくほぼ一定となるようにノズルあるいはその個数を変えた実験における η を、Fig. 3.7-10 に示す。 η は p が小さい場合には 1 より小さくなり、スプレイ液滴は十分に熱交換しないうちに落下してしまうことがわかる。これは圧力が低くなると水蒸気の濃度も下がり、不凝縮ガスの影響が大きくなるためである。

Fig. 3.7-11 はスプレイ流量を定格値 ($1300 \text{ cm}^3/\text{min}$) 以下で行った実験結果である。流量が小さくなるに従い熱吸収率 η は小さくなる傾向を示しており、 η の定義式から言えば逆の傾向を示しているようである。これは、スプレイノズルを定格流量以下で使用すれば、液滴径が大きくなるために、短時間のうちに液滴内部まで熱が伝わらず、液滴の熱吸収率が小さくなるためと考えられる。

3.7.3 結論

格納容器スプレイによる冷却効果は、従来スプレイ液が格納容器底部に達するまでにその温度は格納容器内気相温度に等しい温度まで上昇するとして求められているが、実験結果よりこの仮定は必ずしも正しくないことがあきらかとなった。すなわち Fig. 3.7-10 に示すように、スプレイ液の熱吸収率 η (Eq. (3.7-6) 参照) は格納容器内圧力が小さくなるとともに減少する。また、スプレイ流量をスプレイノズルの定格値以下で用いると、スプレイの降水量分布がかたより水滴径も大きくなるため熱吸収率 η は小さくなる。但し、上記の結論は高さ 6 m の容器を用いた実験より得られたもので、スプレイ液滴の落下距離の大きい実際の格納容器では、熱吸収率が上記のものより大きくなることが期待される。

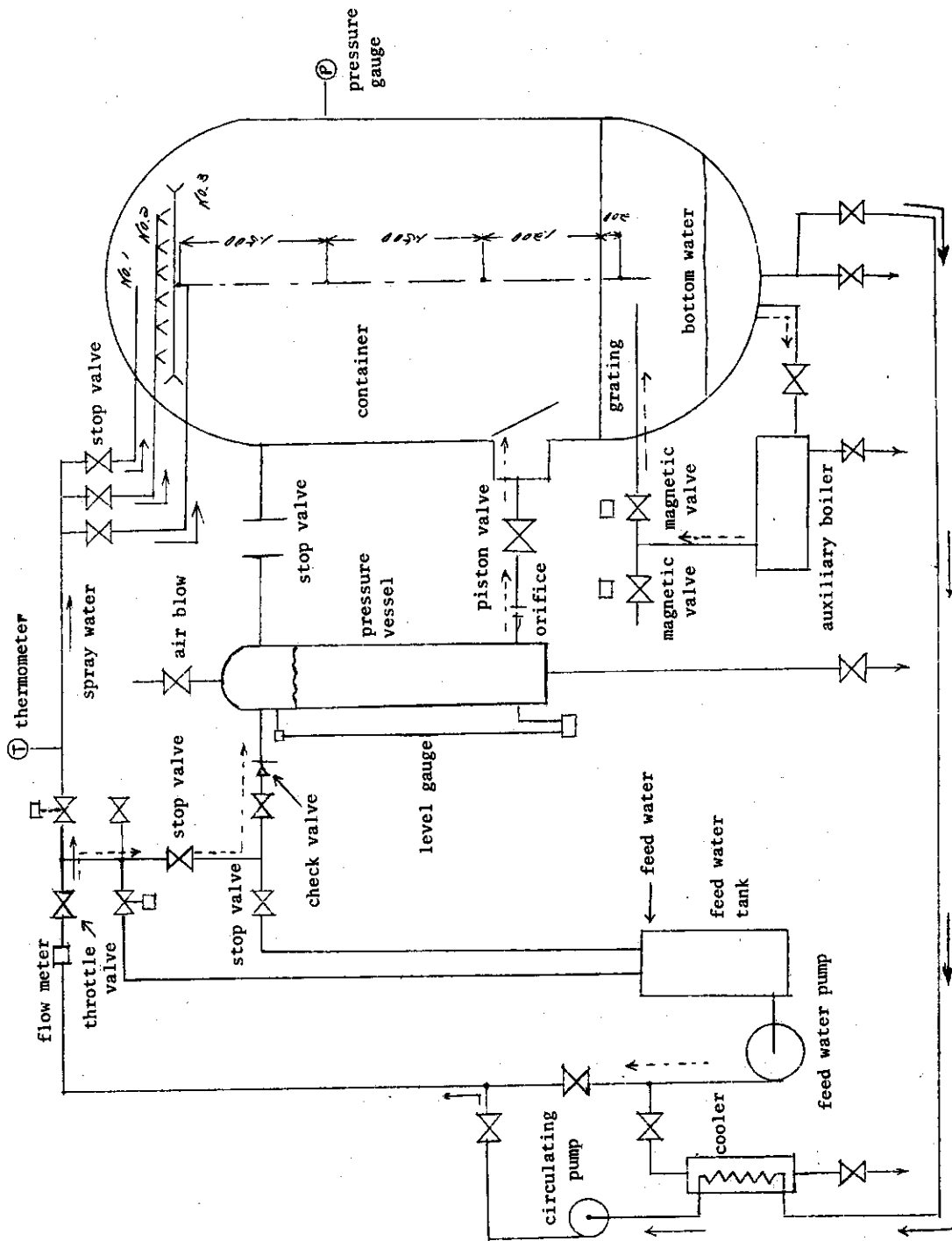


Fig. 3.7-1 Schematic diagram of the apparatus

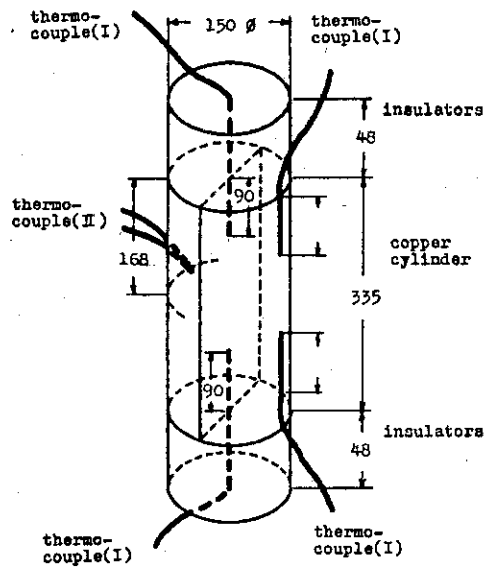


Fig. 3.7-2 Details of copper measuring cylinder

Table 3.7-1 Explanation of Fig. 3.7-2

Insulators	Outer	Bakelite plate 20 mm×2 mm
	Inner	Silicone rubber 8 mm
Thermo-couples	(I)	0.2 mmφ chromel-alumel wires sheathed with stainless steel
	(II)	0.6 mmφ chromel-alumel wires sheathed with teflon
γ_c	8900	(kg/m)
C_c	0.100	(kcal/kg·°C)

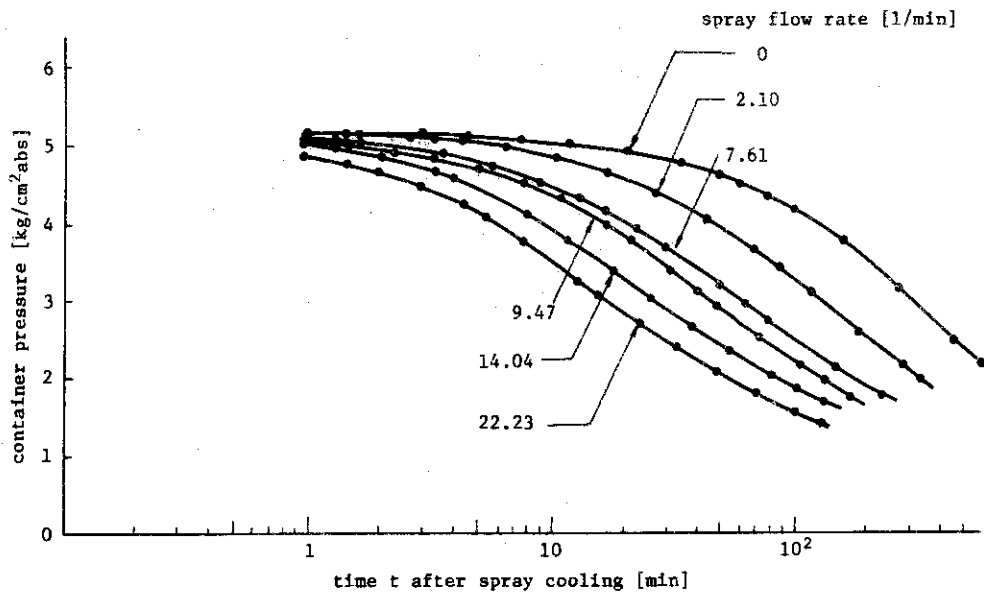


Fig. 3.7-3 Depressurization by spray cooling

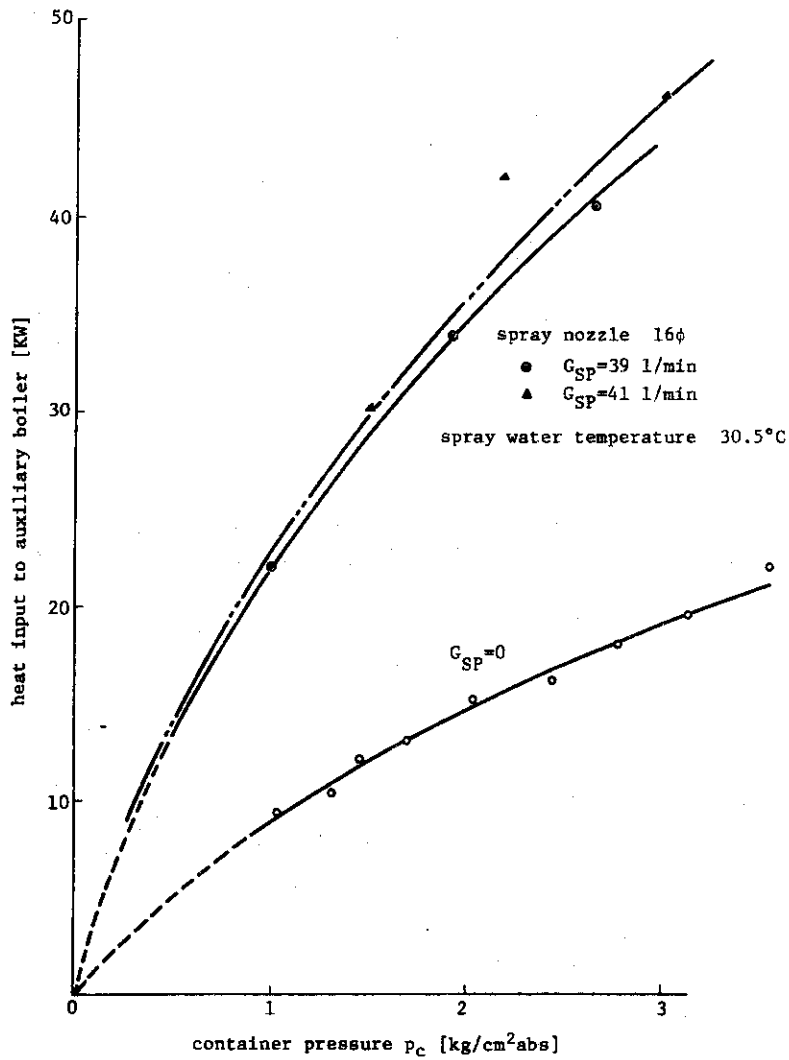


Fig. 3.7-4 Measurement of Q_{sp} by stationary method

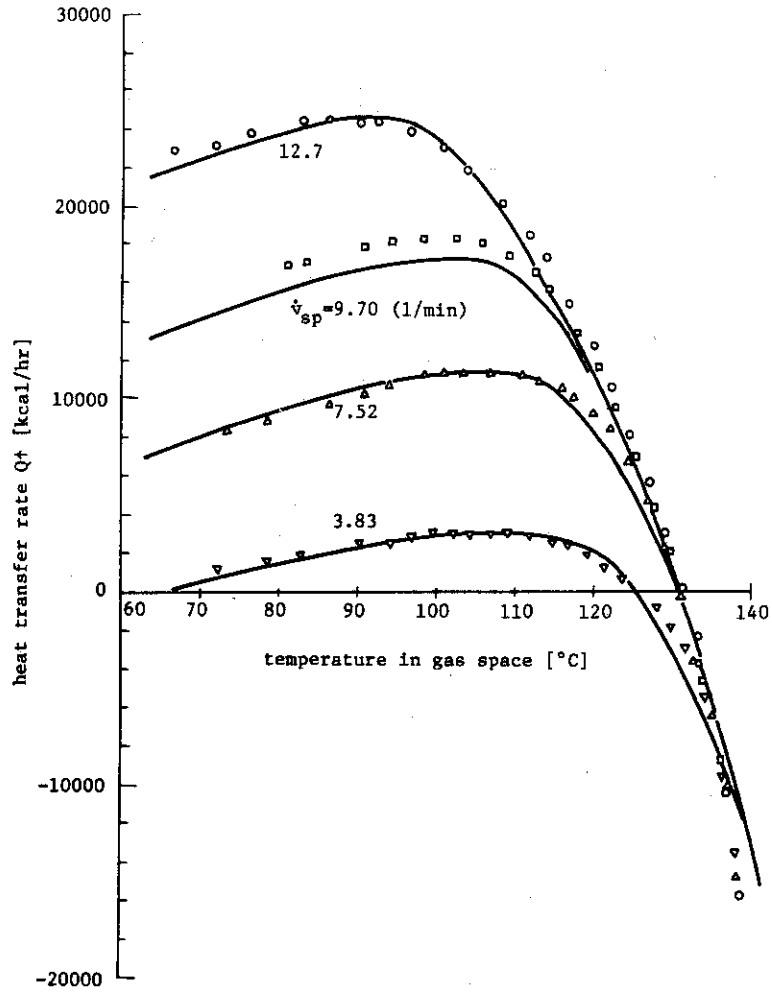


Fig. 3.7-5 Curve approximation of Q_t

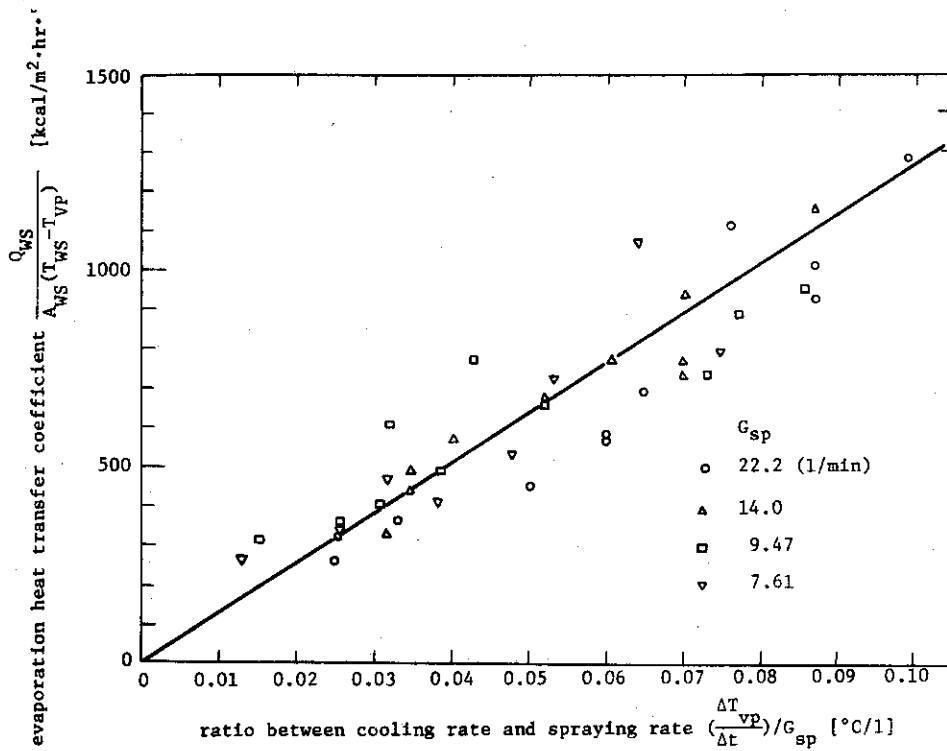


Fig. 3.7-6 Rate of evaporation vs. cooling rate

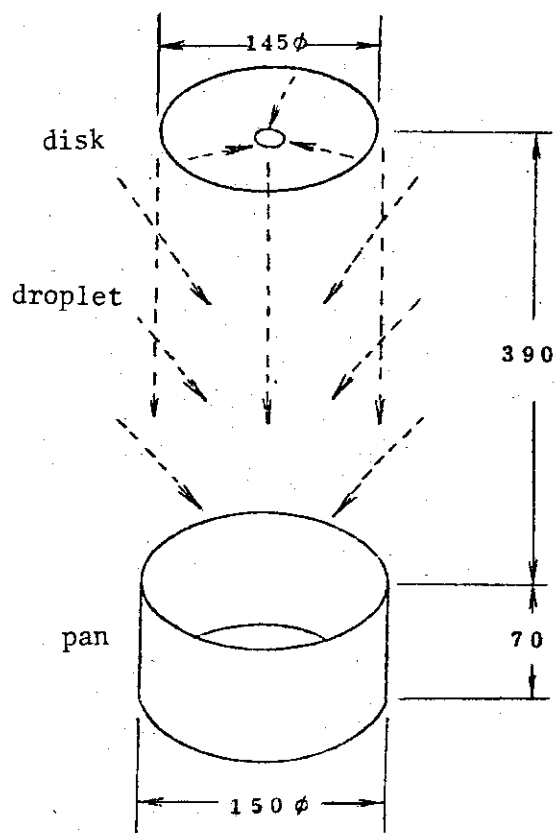


Fig. 3.7-7 Apparatus for measuring spraying rate G_{sp}

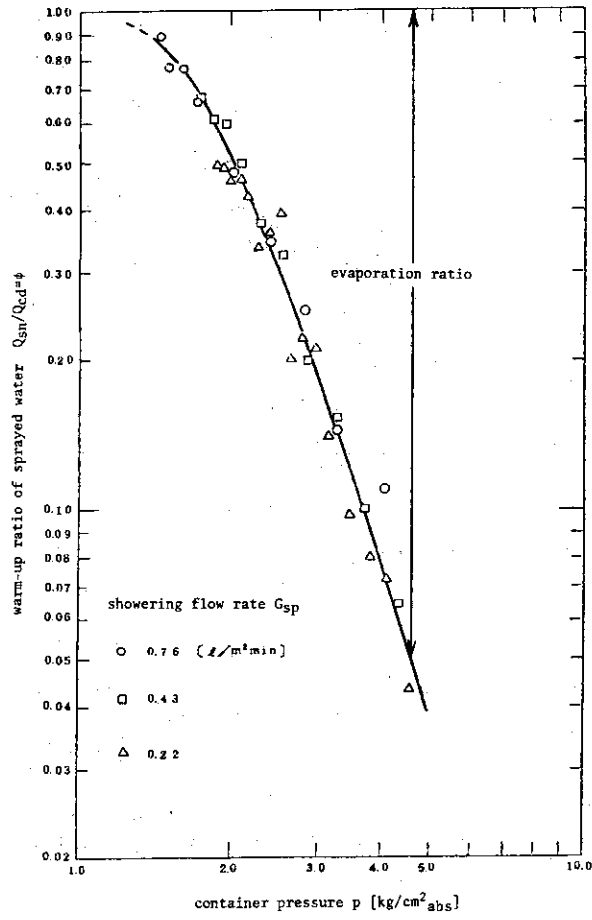


Fig. 3.7-8 Evaporation on sprayed wall

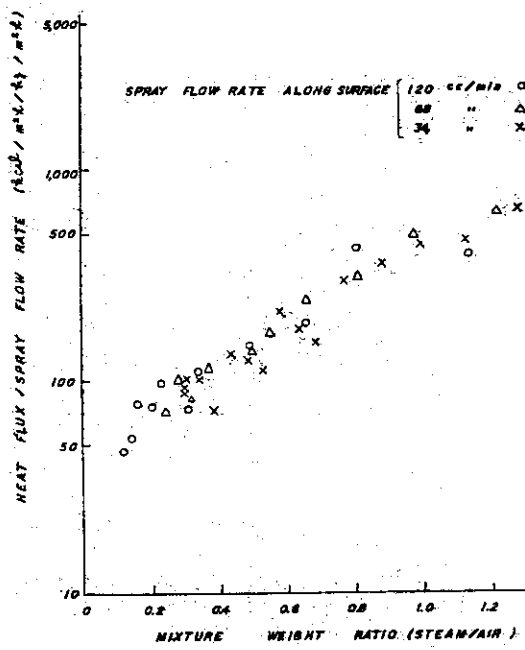


Fig. 3.7-9 Heat flux from wet surface during containment spray operation

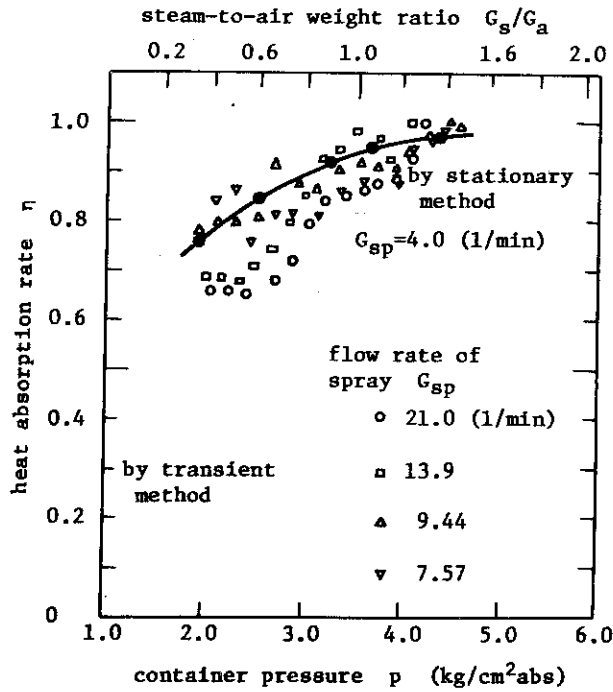


Fig. 3.7-10 Heat absorption rate of spray

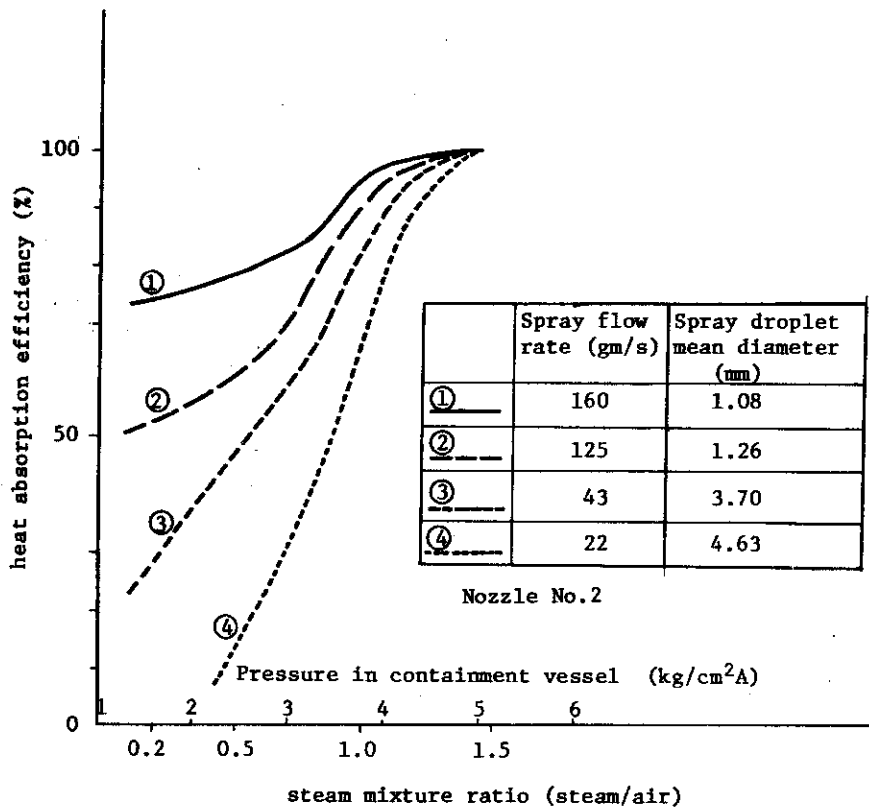


Fig. 3.7-11 Heat absorption efficiency of containment spray (spray water droplet diameter variable)

4. まとめ

今後の格納容器スプレイ効果に関する試験研究に役立つことを念頭に、既発表の文献にあらわれた図表をできるだけ豊富に使用し、研究状況を概説した。その結果、広範囲にわたるスプレイ効果に関する研究現状が明らかにされたと思われる。

各研究の主な実験条件と、実炉の格納容器スプレイ作動時の条件を、Table 4-1に示す。これまで行われた研究により、格納容器内の熱除去、ヨウ素を中心とするFP除去におけるスプレイの有効性が報告されている。しかしながら、その定量的な説明は十分ではなく、スプレイ液の落下距離など、実験に使用された容器寸法を考慮した上で、それらの結果を再評価しなければならないが、本報告では第3章に各研究機関ごとの結論としてまとめる程度にとどまっている。

各研究機関の結果を総合的にまとめるに際し問題点と考えられる点を、今後の参考として以下に述べる。

これまで行われた多くの実験は、基礎データを得ることにとどまっていると思われる。実炉の模擬を考慮すると、スプレイの降水量を示すスプレイフラックス ($F/(V/h)$ で定義)の模擬の点で完壁とは言い難い^{注1)}。また、ヨウ素除去効果に関しては、ヨウ素分析法とも関連して、高範囲にわたるヨウ素濃度で実験が行われているが、前述のスプレイフラックスとの関係もあり、信頼できるヨウ素除去効果に関する結論を得るには、解析コードともあわせてなお詳細な検討が望まれる。

さらに、スプレイフラックスやスプレイ液の種類とともに、スプレイの分散状態(スプレイの合体効果、内部構造物の影響等を含む)がスプレイ効果に大きな影響を与えられられるが、その効果に関しては、3.6節の三菱原子力工業の研究におけるヨウ素水洗効果定数の整理法が一つの目安を与えるものである。但し、単位スプレイ流量あたりのヨウ素水洗効果(Eq. (3.6-5)参照)で定義されているものを、単位スプレイフラックスあたりのヨウ素水洗効果で定義しなおして、整理してみることも考えられる。

謝 辞

本報告をまとめるに際し、種々の御教示をいただいた三菱原子力工業ならびに日立製作所の関係各位に、厚く感謝の意を表します。

注1) 完全吸収モデルによれば、スプレイによる容器内の濃度変化は次式で与えられる。

$$\frac{C}{C_0} = \exp\left\{-\left(\frac{6 \text{ kg}}{dU}\right)\left(\frac{F}{V/h}\right)t\right\}$$

従って、実炉と同じスプレイノズル、スプレイ液を使用し、同じ気相 雰囲気下で実験を行う(kg/dU を同じにする)場合には、 $F/(V/h)$ を実炉と同じにすれば、容器内の濃度はスプレイ時間とともに実炉と同じ変化を示すと考えられる。

Table 4-1 Comparison of experimental conditions

	max. pressure at spray initiation	max. temp. at spray initiation	spray flux [m/hr]	initial iodine concentration [mg/m ³]	working solutions
PWR	4.4 [ata]	133 [°C]	0.71 a)	2, 100	caustic H ₃ BO ₃
BWR	1.8	77	7.9 ~ 9.4 c)	12, 600	pure water, pure water + chromate
BMI	4.5	123	0.045 ~ 0.51 a)	100	pure water, H ₃ BO ₃ , caustic H ₃ BO ₃ , caustic (Na ₂ S ₂ O ₃ + H ₃ BO ₃) solution
ORNL	4.2	130	0.016 ~ 0.49 b)	1.1 ~ 3.0	caustic H ₃ BO ₃ , H ₃ BO ₃ , caustic (Na ₂ S ₂ O ₃ + H ₃ BO ₃) solution
CVTR	2.1	112	0.11, 0.19 a)	—	water
PISA	3.7	120	0.06 ~ 0.3 b)	2.1 ~ 0.05	city water, Na ₂ S ₂ O ₃ solution
AB Atomenergi	?	100	?	1.1 ~ 530	pure water
Mitsubishi	5.3	150	0.014 ~ 0.11 b)	330 ~ 4500	city water, NaOH solution, Na ₂ S ₂ O ₃ solution, Na ₂ SO ₃ solution
Hitachi	5.2	140	0.016 ~ 0.15 b)	—	water

$$\begin{aligned} \text{a) spray flux} &= \frac{F}{V/h} \\ \text{b) spray flux} &= \frac{F}{S} \\ \text{c) spray flux} &= \left(\frac{F_1}{V_1/h_1} + \frac{F_2}{V_2/h_2} \right) \end{aligned}$$

Literature cited

- 1) Suguri, S. : " Gensiro Anzen Kogaku ", Nikkan Kogyo Shinbun Sha (1975)
- 2) Gallagher, J. L., L. D. Green and R. T. Marchese : Nuclear Technology, 10, 406 (1971)
- 3) Postma, A. K. and B. M. Johnson : BNWL-1592, Battelle-Northwest (1971)
- 4) Hilliard, R. K., A. K. Postma, J. D. McCormack and L. F. Coleman : Nuclear Technology, 10, 499 (1971)
- 5) Linderoth, C. E. : BNWL-456, Battelle-Northwest (1970)
- 6) Coleman, L. F. : BNEL-1001, Battelle-Northwest (1969)
- 7) McCormack, J. D. : BNWL-1145, Battelle-Northwest (1969)
- 8) Hilliard, R. K., L. F. Coleman, C. E. Linderoth, J. D. McCormack and A. K. Postma : BNWL-1244, Battelle-Northwest (1970)
- 9) Postma, A. K. and L. F. Coleman : BNWL-1485, Battelle-Northwest (1970)
- 10) Staff of Battelle-Northwest : BNWL-1315-2, Battelle-Northwest
- 11) Parsly, L. F. : ORNL-TM-2412, Part IV, Oak Ridge National Laboratory (1970)
- 12) Eggelton, A. E. J. : AERE-R-4887, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, England (1967)
- 13) Postma, A. K. : WASH-1329, Battelle-Northwest (1973)
- 14) Postma, A. K., R. I. Ritzman, J. A. Gieseke and E. W. Schmidt : BNWL-B-417, Battelle-Northwest (1975)
- 15) Parsly, L. F. : ORNL-TM-2412, Part VII, Oak Ridge National Laboratory (1970)
- 16) Knudsen, J. G. : BNWL-1326, Battelle-Northwest (1970)
- 17) Fuchs, N. A. : " The Mechanics of Aerosols ", The Macmillan Co., New York, 181 (1964)
- 18) Frössling, N. : Gerlands Beitr Geophys, 52, 170 (1938), as referenced by R. B. Bird, W. E. Stewart and E. N. Lightfoot, " Transport Phenomena ", John Wiley and Sons, Inc., New York, 409 (1960)
- 19) Fuchs, N. A. : " The Mechanics of Aerosols ", The Macmillan Co., New York, pp.159-170 (1964)
- 20) Ranz, W. E. and J. B. Wong : Ind. Eng. Chem., 44, 1371 (1952)

- 21) Waldmann, L. and K. H. Schmitt : " Aerosol Science ", Academic Press, London, pp.137-162 (1966)
- 22) Horst, T. W. : BNWL-848, Battelle-Northwest (1968)
- 23) Cottrell, W. B. et al. : ORNL-TM-2283, Oak Ridge National Laboratory (1968)
- 24) Kraemer, H. F. and H. F. Johnstone : Ind. Eng. Chem., 47, 2426 (1955)
- 25) Staff of Battelle-Northwest : BNWL-816, Battelle-Northwest (1968)
- 26) Parsly, L. F. : Nuclear Technology, 10, 472 (1971)
- 27) Parsly, L. F. : ORNL-TM-2412, Part VI, Oak Ridge National Laboratory (1970)
- 28) Brown, G. : ASME, Proc. Gen. Disc. Heat Transfer, 49 (1951)
- 29) Danckwerts, P. V. : Trans. Faraday Soc., 47, 1014 (1951)
- 30) Schmitt, R. C., G. E. Bingham and J. A. Norberg : IN-1403, (1970)
- 31) Norberg, J. A., G. E. Bingham, R. C. Schmitt and D. A. Waddoups : IN-1325 (1969)
- 32) Guerrini, B., S. Lanza and M. Mazzini : Nuclear Technology, 10, 520 (1971)
- 33) Barsali, S., R. Bobalini, F. Fineschi, B. Guerrini, S. Lanza, M. Mazzini and R. Mirandora : Nuclear Technology, 23, 146 (1974)
- 34) Guerrini, B., S. Lanza, M. Mazzini and R. Mirandola : RL 112 (72), University of Pisa (1972)
- 35) Barasali, S., R. Bovalini, S. Fineschi, B. Guerrini, S. Lanza, M. Mazzini and R. Mirandola : RL 150 (73), University of Pisa (1973)
- 36) Barsali, S., B. Guerrini, S. Lanza, M. Mazzini and R. Mirandola : RP 103 (72), University of Pisa (1972)
- 37) Watson, L.C., A. R. Bancroft and C. W. Hoelke : CRCE-979, National Research Council of Canada (1960)
- 38) Diffey, H. R. et al. : CONF-650407, U. S. Atomic Energy Commission, 776 (776)
- 39) Devell, L., R. Hesböl and E. Bachofner : Nuclear Technology, 10, 466 (1971)
- 40) Bachofner, E. and R. Hesböl : AE-408, AB Atomenergy, Sweden (1970)
- 41) Nishizawa, Y., S. Oshima and T. Maekawa : Nuclear Technology, 10, 486 (1971)
- 42) Maekawa, T., Y. Nishizawa, T. Shibayama and O. Kawaguchi : J. At. Energy Soc. Japan, 7, 563 (1965)
- 43) Nishizawa, Y., T. Maekawa, O. Kawaguchi and S. Oshima : J. At. Energy Soc. Japan, 8, 598 (1966)

- 44) Nishizawa, Y., S. Oshima and T. Maekawa : J. At. Energy Soc. Japan, 11, 262 (1969)
- 45) Nishizawa, Y., S. Oshima and T. Maekawa : J. At. Energy Soc. Japan, 11, 340 (1969)
- 46) Megaw, W. J. and F. G. May : AERE-R-3781, Atomic Energy Research Establishment (1961)
- 47) Croft, J. F., R. S. Iles and R. E. Davis : AEEW-R-265, United Kingdom Atomic Energy Authority (1963)
- 48) Sagawa, N. : J. Nucl. Sci. Technol., 5, 419 (1968)
- 49) Tagami, T. : " Interim Report on Safety Assessments and Facilities Establishment (SAFE) Project in Japan for Period Ending June 1965 (No. 1) ", Unpublished Work (1965)