

JAERI-M
7 0 9 3

核分裂生成ヨウ素のキャリオーバー

1977年5月

戸根 弘人・岡川 誠吾

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

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.

核分裂生成ヨウ素のキャリオーバー

日本原子力研究所大洗研究所材料試験炉部

戸根 弘人・岡川 誠吾

(1 9 7 7 年 4 月 2 7 日受理)

BWRの一次冷却水と化学的条件の同じ試料水に含まれる核分裂生成ヨウ素のキャリオーバーの測定を大気圧下で小形実験装置を用いて行なった。F.P. のヨウ素は水中で数種の化学状態を有しているので、ヨウ素の化学種とキャリオーバーの関係についても考察した。一定の蒸発速度でヨウ素のキャリオーバー係数を測定すると、それは水の蒸発量の増加と共に増加する。すなわち、蒸発量が 1 %ではキャリオーバー係数は 2 であるが、蒸発量が 10 %に達するとキャリオーバー係数は 500 に増加する。また、最初に試料水に含まれる揮発性の分子状ヨウ素の含有率は 4.3 %であるが、10 %蒸発後の分子状ヨウ素の含有率はゼロとなる。これらの実験結果から、ヨウ素のキャリオーバー係数はヨウ素の化学状態と関係があることがわかった。

Fission Product Iodine Carry-over from
Experimental Apparatus

Hirohito TONE and Seigo OKAGAWA

Division of JMTR Project, Oarai, JAERI

(Received April 27, 1977)

Measurements of fission product iodine carry-over have been made on a small scale laboratory test unit at one atmosphere. Fission product iodine in the water having several chemical species such as I° , I^- , I^{+5} , and organic, the carry-over depends on its chemical state. In this connection, the carry-over coefficients of fission product iodine and the relationship between iodine chemical state and the carry-over have been measured by experiments. At constant evaporation velocity of the water, the measured iodine carry-over coefficient rises according to increase of evaporation volume of the water. In 1 % water evaporation, the iodine carry-over coefficient is 2, but at the 10 % level, it is 500. The abundance of volatile molecular iodine in the initial water sample is 4.3 % of the total chemical species present in it together, but it reduces almost to zero at 10 % evaporation. There is thus a relation between chemical states of iodine and carry-over coefficient. When the evaporation is less than 10 %, volatile iodine molecular species I_2 can be carried over more preferentially than other chemical species such as I^- and IO_3^- present in the water. The evaporation exceeding the level of 10 %, carry-over of non-volatile iodine ionic species chiefly takes place because of disappearance of the volatile iodine species in the water. Therefore, iodine transfer velocity from liquid to gas phase being reduced according to the rise of condensate volume, the iodine carry-over coefficient results in increase. The upper limit of carry-over coefficient of fission product iodine in water is in the range of 900 to 1000 on these experiments.

目 次

1. まえがき	1
2. 実験および実験装置	1
3. 実験結果	3
3.1 ヒーター入力と蒸発速度	3
3.2 蒸発率とキャリオーバー係数	3
3.3 ヨウ素化学形とキャリオーバー係数との関係	4
4. 結論	4
謝辞	5
文獻	5

Contents

- 1 . Introduction .
 - 2 . Experiments and equipment .
 - 3 . Experimental results .
 - 3-1 . Power input of heater and evaporation velocity .
 - 3-2 . Ratio of evaporation volume and carry-over coefficient .
 - 3-3 . Iodine chemical states and carry-over coefficient .
 - 4 . Conclusion .
- Acknowledgment .
- References .

1. まえがき

沸騰する水に含まれる放射性ヨウ素のキャリオーバー、すなわち沸騰時に生ずる水の小滴によるヨウ素の気相への移行、はBWRの炉心部から発電装置への放射性ヨウ素の移行量の推定、一次系破断時に放出された一次冷却水沸騰時のヨウ素の気相への移行量の推定、などを行なう上で必要となる。このように、放射性ヨウ素のキャリオーバーは原子炉施設の安全上重要な因子となりうるものであるが、このキャリオーバーに関する報告は多くはない。著者らは幸いにもBWRと同一条件下で照射されたUO₂ペレットから放出された核分裂生成ヨウ素を含む冷却水を実験に使用する機会にめぐまれた。そこで、この冷却水を用い実験室内で小規模なキャリオーバー測定装置を使用して核分裂生成ヨウ素のキャリオーバー係数の測定を行った。

放射性ヨウ素のキャリオーバーはそれを含む水の沸騰時に生ずる小水滴によるため、そのキャリオーバーは水の沸騰状態によって異なる。更に、ヨウ素の場合、ヨウ素自身の揮発による移行もキャリオーバーに加算されるため、そのキャリオーバーはヨウ素の化学形によても異なる。このように、ヨウ素のキャリオーバーに関与する因子が多い。この実験で用いた沸騰条件は核沸騰の領域であり、伝熱面より発生する多数の気泡は液体中を通って上昇し、液面から蒸気相に放出される。すなわち、このような沸騰条件は核沸騰領域の中の全沸騰とよばれる沸騰状態である。また、使用した放射性ヨウ素はBWRの一次冷却水と同一の温度、圧力、化学的純度及びpH値を有する一次冷却水中で照射されたUO₂ペレット内で生じた核分裂生成ヨウ素である。物理的、化学的に同一条件の一次冷却水中に存在する核分裂生成ヨウ素の化学種及びその存在比率は原子炉によってほとんど変らない。したがって、この実験で使用した核分裂生成ヨウ素は化学的には核燃料破損時に原子炉一次冷却水に存在するヨウ素の化学種と同一のものである。この意味で、その物理的条件を除けば、今回の実験によって得られた値は一次冷却水の化学的条件が同一の原子炉施設で生ずる核分裂生成ヨウ素のキャリオーバーを推定しうる重要なデータとなりうるものである。

2. 実験及び実験装置

5×10^{-3} から $1 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ の ¹³¹I(核分裂生成ヨウ素)を含むOWL-1^(注1)一次冷却水の沸騰時における ¹³¹Iのキャリオーバー係数を測定した。実験装置をFig. 1に示す。試料水の沸騰に用いた容器は 90φ×230H のガラス製でその中央部にコイル状にまいたステンレス被覆のシーズヒーターを設置したものである。ヒーターの外側には試料水の自然対流を助成するため、30φ×100H の仕切用のガラス管がとりつけられている。約 24 φのコイル状にまいたシーズヒーターの加熱部の高さは約 80mm であり、シーズヒーター線の外径は 1.5 mm で

(注1) OWL-1……Oarai Water Loop-1, JMTRに設置されている水ループで最高 150 kg/cm^2 , 320 °Cの冷却水で核燃料の照射実験を行うことができる。

1. まえがき

沸騰する水に含まれる放射性ヨウ素のキャリオーバー、すなわち沸騰時に生ずる水の小滴によるヨウ素の気相への移行、はBWRの炉心部から発電装置への放射性ヨウ素の移行量の推定、一次系破断時に放出された一次冷却水沸騰時のヨウ素の気相への移行量の推定、などを行なう上で必要となる。このように、放射性ヨウ素のキャリオーバーは原子炉施設の安全上重要な因子となりうるものであるが、このキャリオーバーに関する報告は多くはない。著者らは幸いにもBWRと同一条件下で照射されたUO₂ペレットから放出された核分裂生成ヨウ素を含む冷却水を実験に使用する機会にめぐまれた。そこで、この冷却水を用い実験室内で小規模なキャリオーバー測定装置を使用して核分裂生成ヨウ素のキャリオーバー係数の測定を行った。

放射性ヨウ素のキャリオーバーはそれを含む水の沸騰時に生ずる小水滴によるため、そのキャリオーバーは水の沸騰状態によって異なる。更に、ヨウ素の場合、ヨウ素自身の揮発による移行もキャリオーバーに加算されるため、そのキャリオーバーはヨウ素の化学形によても異なる。このように、ヨウ素のキャリオーバーに関与する因子が多い。この実験で用いた沸騰条件は核沸騰の領域であり、伝熱面より発生する多数の気泡は液体中を通って上昇し、液面から蒸気相に放出される。すなわち、このような沸騰条件は核沸騰領域の中の全沸騰とよばれる沸騰状態である。また、使用した放射性ヨウ素はBWRの一次冷却水と同一の温度、圧力、化学的純度及びpH値を有する一次冷却水中で照射されたUO₂ペレット内で生じた核分裂生成ヨウ素である。物理的、化学的に同一条件の一次冷却水中に存在する核分裂生成ヨウ素の化学種及びその存在比率は原子炉によってほとんど変らない。したがって、この実験で使用した核分裂生成ヨウ素は化学的には核燃料破損時に原子炉一次冷却水に存在するヨウ素の化学種と同一のものである。この意味で、その物理的条件を除けば、今回の実験によって得られた値は一次冷却水の化学的条件が同一の原子炉施設で生ずる核分裂生成ヨウ素のキャリオーバーを推定しうる重要なデータとなりうるものである。

2. 実験及び実験装置

5×10^{-3} から $1 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ の ¹³¹I(核分裂生成ヨウ素)を含むOWL-1^(注1)一次冷却水の沸騰時における ¹³¹Iのキャリオーバー係数を測定した。実験装置をFig. 1に示す。試料水の沸騰に用いた容器は 90φ×230H のガラス製でその中央部にコイル状にまいたステンレス被覆のシーズヒーターを設置したものである。ヒーターの外側には試料水の自然対流を助成するため、30φ×100H の仕切用のガラス管がとりつけられている。約 24 φのコイル状にまいたシーズヒーターの加熱部の高さは約 80mm であり、シーズヒーター線の外径は 1.5 mm で

(注1) OWL-1……Oarai Water Loop-1, JMTRに設置されている水ループで最高 150 kg/cm^2 , 320 °Cの冷却水で核燃料の照射実験を行うことができる。

ある。蒸気はこの仕切り用ガラス管内で発生し、ガラス管内の自然対流による上昇流と共に上昇して水面に達する。そこで蒸気は容器の上部に取付けられたコンデンサーによって凝縮される。ヒーター入力の制御はスライダックによって行った。シースヒーターによる加熱では、ヒーター表面積が大きいので小さな気泡が多数発生する核沸騰が生ずる。このため、試料水表面の変動は少なく、突沸なども生じなかった。 ^{131}I のキャリオーバー係数の測定は Fig. 1 に示した装置により次のように行った。まず、1リッターの試料水を容器に入れ、一定のヒーター入力で試料水を蒸発させる。このとき発生する蒸気をコンデンサーで凝縮し、この凝縮水と試料水に含まれる ^{131}I の濃度比からキャリオーバー係数をもとめる。 ^{131}I の測定にはGe(Li)検出器およびCANBERRA製1024チャンネル波高分析器を使用した。

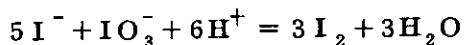
ヨウ素化学種の分析は A.W. Castleman らの方法⁽¹⁾によって行った。この分析法を要約すると次のとおりである。

ステップ-1

キャリヤーなしで試料水中のヨウ素を CCl_4 で抽出する。このとき、 CCl_4 に抽出される化学種は I_2 である。しかし、 CCl_4 には有機ヨウ素も抽出されるので、あとで有機ヨウ素の量を補正して化学種 I_2 の量をもとめる。

ステップ-2

既知量の I^- および IO_3^- キャリヤーをステップ-1の水相に加える。次にその溶液を酸性とし、次式の反応で生じた I_2 を CCl_4 で抽出する。



このとき、大過剰の IO_3^- キャリヤーを使用するので (IO_3^-/I^- の比率を 10 程度にする) 核分裂生成ヨウ素から生じた IO_3^- のほんの一部分が I_2 となって除かれるだけである。したがって、放射性 IO_3^- の測定には影響しない。この CCl_4 に抽出された放射性ヨウ素の化学種が I^- である。

ステップ-3

過剰の I^- キャリヤーをステップ-2の水相に加えて、残っている IO_3^- および IO_4^- を I_2 に変える。生じた I_2 を CCl_4 で抽出する。水相に残っている I^- を NaNO_2 で I_2 に酸化し再び CCl_4 で抽出する。このステップ-3で CCl_4 に抽出された全放射性ヨウ素が I^{+5} および I^{+7} である。なお、最後に抽出されないで水相に残っている放射性ヨウ素をファクター A とよぶ。

ステップ-4

他の試料水(ステップ-1の試料水と同時にサンプリングしたもの)に I_2 キャリヤーを含んだ CCl_4 を加え十分に振とうする。この CCl_4 を水相より分離したのち、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 液を加えて振とうし CCl_4 相のヨウ素を水相に逆抽出する。このとき、 CCl_4 相に残っている放射能をファクター B と呼ぶ。このファクター B の値はステップ-1の有機ヨウ素量の補正に使用する。このファクター B は有機ヨウ素である。

3. 実験結果

3.1 ヒーター入力と蒸発速度

Fig. 1に示した実験装置のヒーター入力と水の蒸発速度との関係を測定した。この測定結果をFig. 2に示す。ヨウ素キャリオーバーの実験では、種々の水の蒸発速度に対するキャリオーバー係数を測定したが、この蒸発速度はヒーター入力とFig. 2のグラフからもとめた。

3.2 蒸発率とキャリオーバー係数

大気圧下で、蒸発速度が 2 ml/min , 2.7 ml/min および 7 ml/min であるときのキャリオーバー係数を測定した。実験に使用した試料水の ^{131}I の濃度は $6 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ であった。測定結果を Table 1, 2, 3 に示す。

なお、この報文ではキャリオーバー係数を次のように定義する。

$$\text{Carry over coefficient} = \frac{\text{ ^{131}I found in water sample}}{\text{ ^{131}I found in condensate}}$$

また、蒸発率は実験開始前の試料水量と蒸発量との比として定義する。Table 1 は蒸発速度 2 ml/min (ヒーター入力 180W)、蒸発率 0.75% から 1.295% の範囲におけるキャリオーバー係数の測定値である。また、表の経過時間は各蒸発率に達するまでの時間である。Table 2 は蒸発速度 2.7 ml/min (ヒーター入力 207W) で蒸発率 1.254% までの測定値である。Table 3 は蒸発速度 7 ml/min (ヒーター入力 372W) で蒸発率 1.99% までの測定値である。Table 3 の蒸発速度は Table 1, 2 の蒸発速度にくらべて非常に早く、したがって経過時間は短かくなっている。Table 1, 2, 3 のキャリオーバー係数を蒸発率に対してプロットすると Fig. 3 が得られる。Fig. 3 のグラフは各蒸発速度で得られたキャリオーバー係数が一つの曲線上に分布していることを示している。この結果、蒸発速度が 2 ml/min から 7 ml/min の範囲では、 ^{131}I のキャリオーバー係数は蒸発率のみに関係するといえる。実験開始直後の蒸発率が小さい時には、 ^{131}I のキャリオーバー係数は小さく、蒸発率が増加するにしたがって増加する。しかし、蒸発率が 1.5% から 1.8% に達するとキャリオーバー係数の増加率は非常に減少し、上限値に近づいて行く。この実験におけるキャリオーバー係数の上限値は約 1×10^3 である。これらの実験結果はキャリオーバー係数が蒸発率によって変化し、蒸発率が小さい時に一次冷却水から凝縮水にキャリオーバーするヨウ素量が非常に多く、蒸発率が増加するにしたがってキャリオーバーするヨウ素量が減少することを示している。Fig. 3 に蒸発率とキャリオーバー係数の関係を示したが、蒸発速度が変わるとある蒸発率に達する経過時間が変化する。キャリオーバー係数と経過時間の関係をプロットすると Fig. 4 が得られる。蒸発速度が早くなるほど、あるキャリオーバー係数に達する経過時間が短くなるのは当然であるが、キャリオーバー係数が 200 以上では蒸発速度と

経過時間の関係は直線となり、キャリオーバー係数が150以下では指數函数的な関係となる。この様子を示したのがFig. 5である。キャリオーバー係数が小さいときは、蒸発速度が減少するにしたがって、その経過時間は指數函数的に増加している。

3.3 ヨウ素化学形とキャリオーバー係数との関係

ヨウ素のキャリオーバー係数の測定に使用した試料水に含まれるヨウ素は UO_2 燃料の核分裂生成物である。したがって、試料水に含まれるヨウ素の化学種は単一ではなく、分子状ヨウ素、イオン状ヨウ素、有機ヨウ素などを含んでいる。Table 4に試料水に含まれているヨウ素化学種の分析値を示す。この結果、キャリオーバーの実験開始前の試料水に含まれるヨウ素化学種のうち、イオン状ヨウ素は 9.22% (I^- と I^{+5} の合計)、揮発性の分子状ヨウ素及び有機ヨウ素の合計は 5.3% であった。上記の各ヨウ素化学種を含む試料水を Fig. 1 の実験装置内でその試料水の 10% を蒸発させたとき、試料水中のヨウ素化学種の組成は I^- 93.0%, I^0 0%, I^{+5} 7.1%, 有機ヨウ素 0.2% に変化した。この実験結果は蒸発率 10% で揮発性の分子状ヨウ素 (I^0) のすべて、および有機ヨウ素の 80% が試料水から放出されることを示している。また、Table 4 の第 4 棚に示すように、実験装置のコンデンサーで凝縮した水に含まれるヨウ素化学種のうち、分子状ヨウ素の占める比率は 52.4%，イオン状ヨウ素 (I^- , I^{+5}) の占める比率は合計 19.5% である。したがって、蒸発率が 10% に達するまでにイオン状ヨウ素は約 20% キャリオーバーすることがわかる。Fig. 3 および Table 4 の実験結果を比較検討すると、試料水の蒸発率が 10% に達するまでに分子状ヨウ素の 100%，有機ヨウ素の 80% がキャリオーバーする。また、この蒸発率 10% はキャリオーバー係数 500 に相当する。云いかえれば、蒸発率が 10% 以下のとき、試料水中の揮発性のヨウ素化学種が優先的にキャリオーバーし、しかも試料水から気相へ移行する速度も早いため、キャリオーバー係数は 500 以下の小さな値となる。Table 4 の第 3 棚に示すように、蒸発率が 10% をこえると試料水に含まれるヨウ素はほとんどが不揮発性のイオン状化学種のみとなるのでヨウ素のキャリオーバー速度は減少し、この結果キャリオーバー係数が増加する。蒸発率が 10% に達した試料水では、元素状ヨウ素濃度はゼロとなり、このとき揮発性ヨウ素化学種としては有機ヨウ素が 0.2% 存在するにすぎない。したがって、Fig. 3 の蒸発率 10% 以上の領域でのキャリオーバー係数はヨウ素のイオン状化学種のキャリオーバー係数と見なすことができる。このキャリオーバー係数は蒸発率の増加とともにあって上限値に近づき、900 から 1000 の値となつた。

4. 結論

核燃料の破損によって一次冷却水に放出された核分裂生成ヨウ素は数種のイオン状及び分子状化学種として存在する。一次冷却水の沸騰による放射性ヨウ素のキャリオーバーはその化学種によって異なり、更に一次冷却水中のヨウ素化学種の存在比は時間の経過にしたがって変化

経過時間の関係は直線となり、キャリオーバー係数が150以下では指數函数的な関係となる。この様子を示したのがFig. 5である。キャリオーバー係数が小さいときは、蒸発速度が減少するにしたがって、その経過時間は指數函数的に増加している。

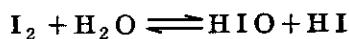
3.3 ヨウ素化学形とキャリオーバー係数との関係

ヨウ素のキャリオーバー係数の測定に使用した試料水に含まれるヨウ素は UO_2 燃料の核分裂生成物である。したがって、試料水に含まれるヨウ素の化学種は単一ではなく、分子状ヨウ素、イオン状ヨウ素、有機ヨウ素などを含んでいる。Table 4に試料水に含まれているヨウ素化学種の分析値を示す。この結果、キャリオーバーの実験開始前の試料水に含まれるヨウ素化学種のうち、イオン状ヨウ素は 9.22% (I^- と I^{+5} の合計)、揮発性の分子状ヨウ素及び有機ヨウ素の合計は 5.3% であった。上記の各ヨウ素化学種を含む試料水を Fig. 1 の実験装置内でその試料水の 10% を蒸発させたとき、試料水中のヨウ素化学種の組成は I^- 93.0%, I^0 0%, I^{+5} 7.1%, 有機ヨウ素 0.2% に変化した。この実験結果は蒸発率 10% で揮発性の分子状ヨウ素 (I^0) のすべて、および有機ヨウ素の 80% が試料水から放出されることを示している。また、Table 4 の第 4 棚に示すように、実験装置のコンデンサーで凝縮した水に含まれるヨウ素化学種のうち、分子状ヨウ素の占める比率は 52.4%，イオン状ヨウ素 (I^- , I^{+5}) の占める比率は合計 19.5% である。したがって、蒸発率が 10% に達するまでにイオン状ヨウ素は約 20% キャリオーバーすることがわかる。Fig. 3 および Table 4 の実験結果を比較検討すると、試料水の蒸発率が 10% に達するまでに分子状ヨウ素の 100%，有機ヨウ素の 80% がキャリオーバーする。また、この蒸発率 10% はキャリオーバー係数 500 に相当する。云いかえれば、蒸発率が 10% 以下のとき、試料水中の揮発性のヨウ素化学種が優先的にキャリオーバーし、しかも試料水から気相へ移行する速度も早いため、キャリオーバー係数は 500 以下の小さな値となる。Table 4 の第 3 棚に示すように、蒸発率が 10% をこえると試料水に含まれるヨウ素はほとんどが不揮発性のイオン状化学種のみとなるのでヨウ素のキャリオーバー速度は減少し、この結果キャリオーバー係数が増加する。蒸発率が 10% に達した試料水では、元素状ヨウ素濃度はゼロとなり、このとき揮発性ヨウ素化学種としては有機ヨウ素が 0.2% 存在するにすぎない。したがって、Fig. 3 の蒸発率 10% 以上の領域でのキャリオーバー係数はヨウ素のイオン状化学種のキャリオーバー係数と見なすことができる。このキャリオーバー係数は蒸発率の増加とともにあって上限値に近づき、900 から 1000 の値となつた。

4. 結論

核燃料の破損によって一次冷却水に放出された核分裂生成ヨウ素は数種のイオン状及び分子状化学種として存在する。一次冷却水の沸騰による放射性ヨウ素のキャリオーバーはその化学種によって異なり、更に一次冷却水中のヨウ素化学種の存在比は時間の経過にしたがって変化

するので、そのキャリオーバー係数は時間または蒸発率によって変化する。沸騰の初期には揮発性の化学種が優先してキャリオーバーするが、蒸発率が10%をすぎると不揮発性化学種がキャリオーバーするため、キャリオーバー係数は増加し、その上限値は900から1000となつた。したがって、PWR及びBWRの核燃料破損によって一次冷却水に放出された核分裂生成ヨウ素のキャリオーバーを検討する際には、その一次冷却水が沸騰している時のヨウ素のキャリオーバー係数は時間の経過にしたがって変化し、沸騰の初期には小さく、蒸発が進むにつれて大きくなることを考慮しなければならない。次に、近年ヨウ素の加水分解によって生じるHIO(Hypoiodous Acid)が非常に揮発性で、気液分配またはキャリオーバーにとって無視しえないことが報告されている。^{②)}



しかし、HIOの分析は困難で、現在のところ認められた分析法はない。したがって、本実験で用いたヨウ素化学種の分析法でもHIOを定量することができないので、HIOはイオン状化学種に含まれることになる。将来、トレーサーレベルのHIOの有用は分析法が開発されれば、キャリオーバー係数に与えるHIOの効果はより数量的に説明されるようになるであろう。

謝　　辞

核燃料照射装置のOWL-1水ループの運転を担当し、本実験を側面より援助して下さった材料試験炉部照射二課の方々、及びヨウ素化学種の分析などについて援助して下さった照射三課分析係の方々に深く感謝の意を表する。

文　　献

- (1) Castleman A.W., Tang I.N., J. Inorg. Nucl. chem. 30, 5 (1968).
- (2) Lin C.C., Rodgers D.N., NEDE-12558 (1975).

するので、そのキャリオーバー係数は時間または蒸発率によって変化する。沸騰の初期には揮発性の化学種が優先してキャリオーバーするが、蒸発率が10%をすぎると不揮発性化学種がキャリオーバーするため、キャリオーバー係数は増加し、その上限値は900から1000となつた。したがって、PWR及びBWRの核燃料破損によって一次冷却水に放出された核分裂生成ヨウ素のキャリオーバーを検討する際には、その一次冷却水が沸騰している時のヨウ素のキャリオーバー係数は時間の経過にしたがって変化し、沸騰の初期には小さく、蒸発が進むにつれて大きくなることを考慮しなければならない。次に、近年ヨウ素の加水分解によって生じるHIO(Hypoiodous Acid)が非常に揮発性で、気液分配またはキャリオーバーにとって無視しえないことが報告されている^{②)}。



しかし、HIOの分析は困難で、現在のところ認められた分析法はない。したがって、本実験で用いたヨウ素化学種の分析法でもHIOを定量することができないので、HIOはイオン状化学種に含まれることになる。将来、トレーサーレベルのHIOの有用は分析法が開発されれば、キャリオーバー係数に与えるHIOの効果はより数量的に説明されるようになるであろう。

謝　　辞

核燃料照射装置のOWL-1水ループの運転を担当し、本実験を側面より援助して下さった材料試験炉部照射二課の方々、及びヨウ素化学種の分析などについて援助して下さった照射三課分析係の方々に深く感謝の意を表する。

文　　献

- (1) Castleman A.W., Tang I.N., J. Inorg. Nucl. Chem. 30, 5 (1968).
- (2) Lin C.C., Rodgers D.N., NEDE-12558 (1975).

するので、そのキャリオーバー係数は時間または蒸発率によって変化する。沸騰の初期には揮発性の化学種が優先してキャリオーバーするが、蒸発率が10%をすぎると不揮発性化学種がキャリオーバーするため、キャリオーバー係数は増加し、その上限値は900から1000となった。したがって、PWR及びBWRの核燃料破損によって一次冷却水に放出された核分裂生成ヨウ素のキャリオーバーを検討する際には、その一次冷却水が沸騰している時のヨウ素のキャリオーバー係数は時間の経過にしたがって変化し、沸騰の初期には小さく、蒸発が進むにつれて大きくなることを考慮しなければならない。次に、近年ヨウ素の加水分解によって生じるHIO(Hypoiodous Acid)が非常に揮発性で、気液分配またはキャリオーバーにとって無視しえないことが報告されている。⁽¹⁾



しかし、HIOの分析は困難で、現在のところ認められた分析法はない。したがって、本実験で用いたヨウ素化学種の分析法でもHIOを定量することができないので、HIOはイオン状化学種に含まれることになる。将来、トレーサーレベルのHIOの有用は分析法が開発されれば、キャリオーバー係数に与えるHIOの効果はより数量的に説明されるようになるであろう。

謝　　辞

核燃料照射装置のOWL-1水ループの運転を担当し、本実験を側面より援助して下さった材料試験炉部照射二課の方々、及びヨウ素化学種の分析などについて援助して下さった照射三課分析係の方々に深く感謝の意を表する。

文　　献

- (1) Castleman A.W., Tang I.N., J. Inorg. Nucl. Chem. 30, 5 (1968).
- (2) Lin C.C., Rodgers D.N., NEDE-12558 (1975).

Table 1. Experimental results of fission product iodine carry-over coefficient at 2 ml/min of evaporation velocity.

RUN*	Evaporated Volume (ml)	Percent of Evaporation (%)	Carry-over coefficient	Time used to evaporate (min)
1	7.5	0.75	2.15	3.75
2	13.9	1.39	6.36	6.95
3	23.4	2.34	15.65	11.7
4	30.2	3.02	43.86	15.1
5	37.7	3.77	96.34	19.0
6	52.9	5.29	2.19×10^2	26.5
7	59.9	5.95	3.4×10^2	29.7
8	69.0	6.9	3.4×10^2	34.5
9	79.0	7.9	5.0×10^2	39.5
10	90.1	9.01	5.59×10^2	45.0
11	100.7	10.07	6.26×10^2	50.35
12	129.5	12.95	6.55×10^2	64.7

* Power input of heater = 180W
 Pressure = one atmosphere
 ^{131}I concentration = $6 \times 10^{-3} \mu\text{ci}/\text{ml}$

Table 2. Fission product iodine carry-over coefficient obtained on the experiments at the constant evaporation velocity, 2.7 ml/min.

RUN*	Evaporated Volume (ml)	Percent of Evaporation (%)	Carry-over coefficient	Time used to evaporate (min)
1	9.5	0.95	2.77	3.52
2	19.0	1.9	22.17	7.03
3	29.3	2.93	61.73	10.9
4	42.9	4.29	1.09×10^2	15.9
5	54.8	5.48	1.94×10^2	20.3
6	66.9	6.69	2.11×10^2	24.8
7	79.1	7.91	3.08×10^2	29.3
8	91.4	9.14	4.3×10^2	33.9
9	105.2	10.52	6.45×10^2	39.0
10	125.4	12.54	7.09×10^2	46.4

* Power input of heater = 207W
 Pressure = one atmosphere
 ^{131}I concentration = $6 \times 10^{-3} \mu\text{ci}/\text{ml}$

Table 3. Fission product iodine carry-over coefficient obtained on the experiments at 7ml/min of evaporation velocity

RUN*	Evaporated volume (ml)	Percent of evaporation (%)	Carry-over coefficient	Time used to evaporate (min)
1	12.8	1.28	13.42	1.83
2	26.0	2.6	44.44	3.7
3	39.0	3.92	87.72	5.6
4	54.1	5.41	1.62×10^2	7.73
5	67.6	6.76	2.69×10^2	9.66
6	83.2	8.32	3.36×10^2	11.89
7	100.7	10.07	3.95×10^2	14.39
8	114.8	11.48	5.03×10^2	16.4
9	131.4	13.14	6.28×10^2	18.8
10	145.2	14.52	6.99×10^2	20.74
11	156.7	15.67	7.46×10^2	22.39
12	169.0	19.9	8.4×10^2	24.14

* Power input of heater = 372W
 Pressure = one atmosphere
 ^{131}I concentration = $6 \times 10^{-3} \mu\text{ci}/\text{ml}$

Table 4. Chemical states and abundance ratio of fission product iodine in the water sample and condensate.

Chemical state	Fraction in the water sample* (%)	Fraction in the water sample after 10% of evaporation (%)	Fraction in the condensate (%)
I^-	81.3	93.0	15.9
I°	4.3	0	52.4
I^{+5}	10.9	7.1	3.6
Organic	1.0	0.2	23.8

* ^{131}I concentration = $6 \times 10^{-3} \mu\text{ci}/\text{ml}$

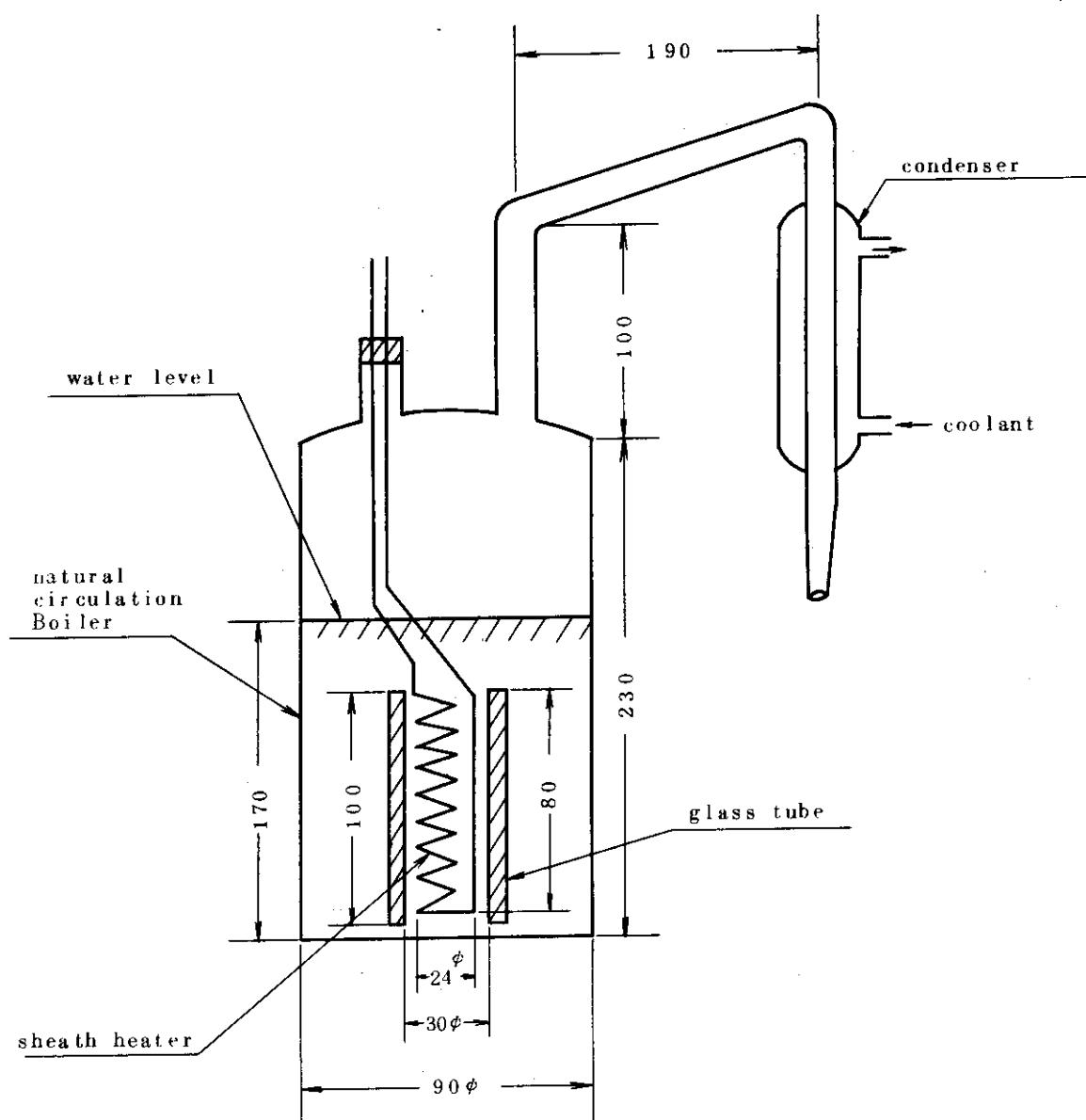


Fig. 1. Experimental apparatus for the study of fission product iodine carry-over.

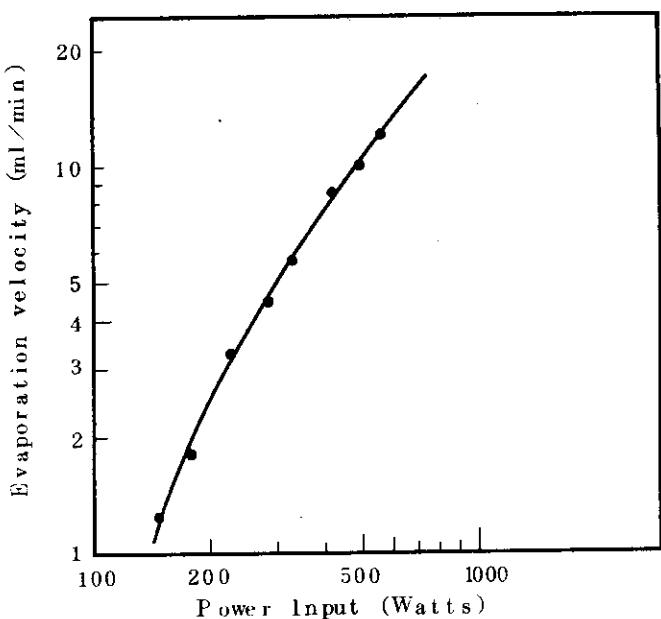


Fig. 2. Relationships between power input and evaporation velocity in the experimental apparatus.

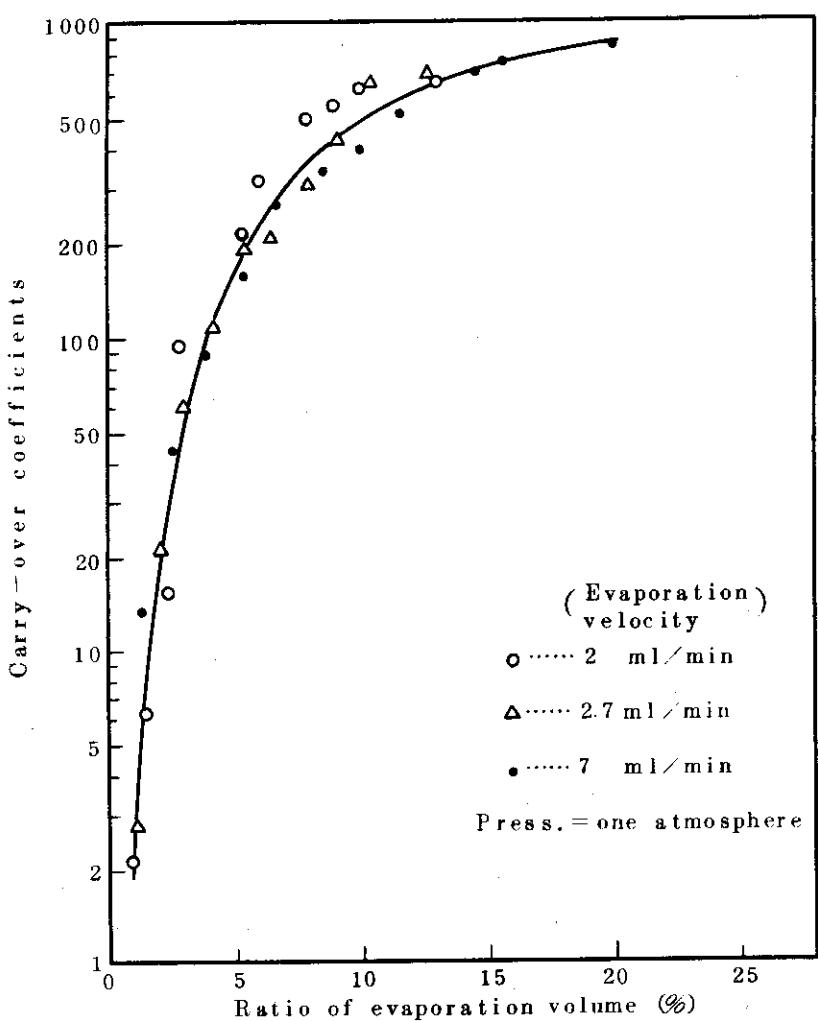


Fig. 3. Variation of fission product iodine carry-over coefficient with ratio of evaporation volume to the initial water sample volume.

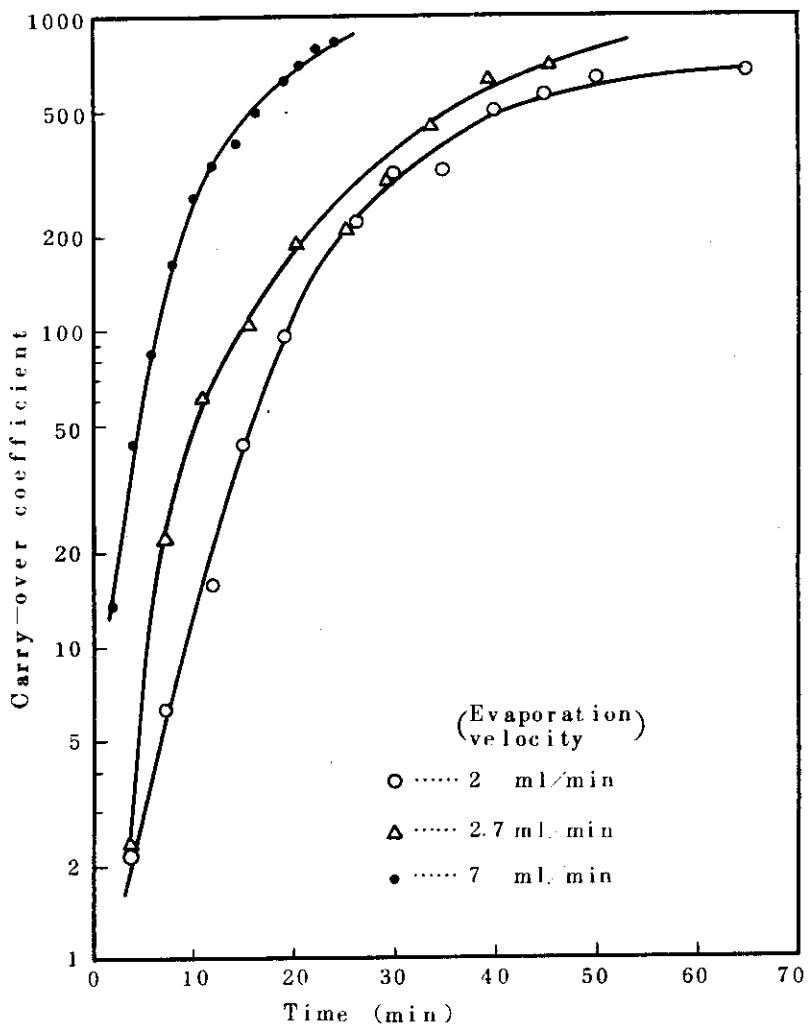


Fig. 4. Variation of fission product iodine carry-over coefficient with time at constant evaporation velocity.

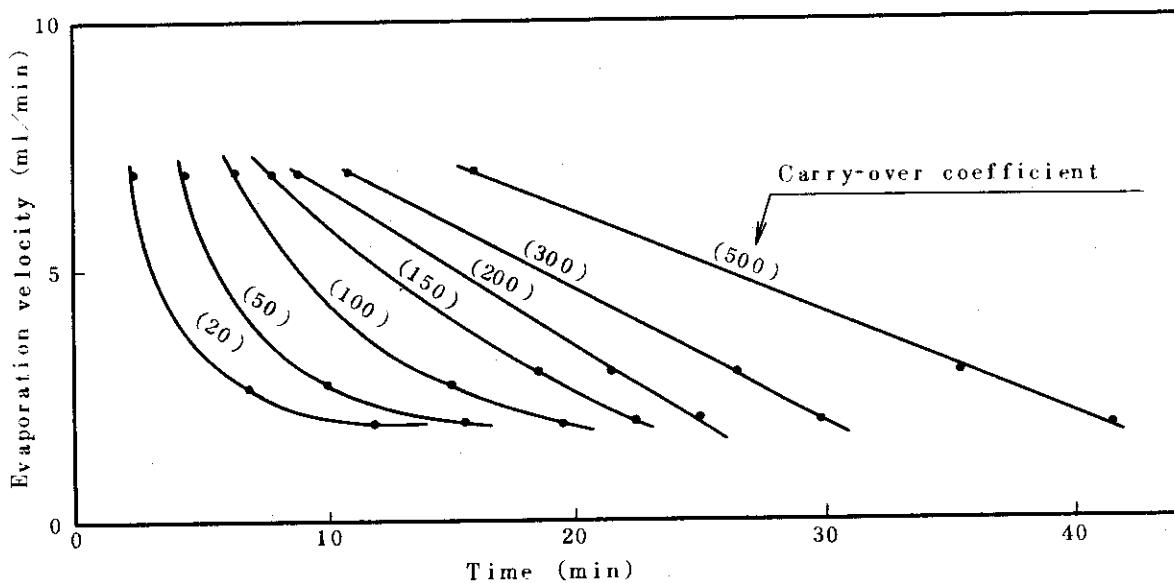


Fig. 5. Relationships between evaporation time and its velocity at various carry-over coefficients.