分置

PNC TJ1609 91-002

本資料は　年　月　日付けで登録区分、社内資料
変更する。
01.10.-4 [技術情報室]

放射性廃棄物の環境中での物理・化学形態変化に与える因子に関する研究

（動力炉核燃料開発事業団　委託研究成果報告書）

1991年　3月

埼玉大学工学部環境化学工学科

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184　茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部　技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

1. 緒論

再処理施設から放出される放射性廃棄物の環境影響評価は、これまでソースターム、放射性物質の環境中での移行等を考慮したモデルによる評価がなされてきた。今後、より現実的な評価を行う観点から、施設から放射性廃棄物の物理・化学形態、また、環境中でのこれら物理・化学形態の変化が、その環境影響評価に与える影響について調査することが必要と考えられる。

使用済燃料の再処理において発生する放射性気体には、^{3}H、^{14}C、^{85}Kr、^{129}I、^{131}Iなどの気体状放射性物質が含まれるが、被爆線量当量は^{129}Iが最も大きく、ヨウ素の施設内および環境中での挙動が極めて重要と言える。ヨウ素は軽水炉燃料中ではペレット中にヨウ化物（主にCsI）として均一に分散されていると考えられている。燃料の溶解工程では酸化ウランの硝酸による溶解の際に生成される亜硝酸によって酸化され、I_2としてオフガス中に大部分が放出されるが、一部は溶解液中に残存する。残存ヨウ素は共除染工程以後の工程にとり込まれ、有機ヨウ素の形態で槽類オフガス中へ移行すると考えられている。また、高レベル廃液には^{242}Cm、^{244}Cmが含まれていることから、これらの核種は自発核分裂によって^{131}Iを発生する。従って、ヨウ素の除去のみならず、放出時のヨウ素の物理・化学形態を知る上でもヨウ素の再処理プロセス内の挙動を的確につかまえておくことが必要である。

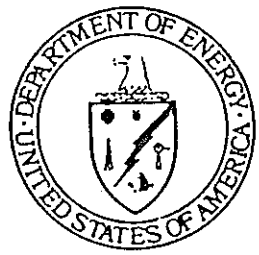
本調査研究では再処理施設の工程内を主対象としたヨウ素の挙動について、最近の文献を中心に調査し、その概要をまとめた。また、最近開発された疎水性ヨウ素吸着剤の特徴およびその利用についての考え方をまとめ、ヨウ素の再処理工程内および環境中での物理・化学形態を検討することにする。

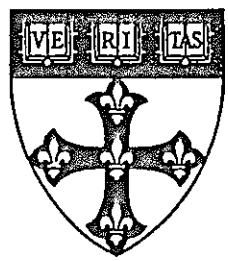
２．　21st DOE／NRC Nuclear Air Cleaning Conference (1990) におけるヨウ素関連報告の概要

１９９０年８月１３日～１６日に開催された第21回DOE／NRC Nuclear Air Cleaning Conferenceのプログラムならびに、そこで発表されたヨウ素関連の報告の概要およびまとめを以下に示す。

Program

21st DOE/NRC NUCLEAR AIR CLEANING CONFERENCE





sponsored by

US Department of Energy,

US Nuclear Regulatory Commission,

International Society of Nuclear Air Treatment Technologies

and

Harvard Air Cleaning Laboratory

August 13-16, 1990

Hyatt Islandia Hotel
San Diego, California

Program Committee:

W. L. Anderson

R. R. Bellamy

W. Bergman

A. G. Evans

H. Gilbert

C. R. Jones

R. T. Jubin

J. L. Kovach

W. H. Miller, Jr.

D. W. Moeller

D. F. Ross

R. L. Shepard

D. F. Torgerson

A. A. Weadock

R. R. Weidler

M. W. First, *Chairman*

TECHNICAL PROGRAM OF THE 21ST DOE/NRC NUCLEAR AIR CLEANING CONFERENCE

Monday, August 13, 1990

Plenary Session
0830 to 1200
Regency Ballroom

OPENING OF THE CONFERENCE

CO-CHAIRMEN: D. W. Moeller, Harvard School of Public Health
M. W. First, Harvard Air Cleaning Laboratory

0800- Registration

0830 1-1 Welcome and Objectives of the Conference
M. W. First, Conference Chairman
Harvard Air Cleaning Laboratory

0900 1-2 DOE Keynote Address
Department of Energy Directions in Environment, Safety and Health
P. N. Brush, Acting Assistant Secretary
Environment, Safety & Health
U.S. Department of Energy

0930 1-3 NRC Keynote Address
F. G. Congel, Director
Division Radiation Protection and Emergency Preparedness
U.S. Nuclear Regulatory Commission

1000 REFRESHMENT BREAK

1030 1-4 Air Cleaning Technologies for the Management and Disposal of Radioactive Wastes
D. W. Moeller, Chairman,
Advisory Committee on Nuclear Waste

1100 1-5 Canadian Waste Management Program
D. F. Torgerson
Atomic Energy of Canada Ltd.

1130 1-6 Radiological Health Effects Models for Nuclear Power Plant Accident Consequence Analysis – An Update (1990)
J. S. Evans
Harvard School of Public Health
J. L. Sprung
Sandia National Laboratories

Concurrent Session A
1330-1630
Regency A

FILTER TESTING

CO-CHAIRMEN: W. L. Anderson, Consultant
W. Bergman, Lawrence Livermore National Laboratory

1330 2-1 New Injection System for a Short Mixing of Test Aerosols and Gas Tracers Inside Ventilation Ducts

Ph. Cassette, N. DuPoux, J. C. Laborde
Commissariat á l'Energie Atomique, France

1350 2-2 Real-Time Detection of a Fluorescent Aerosol. Application to the Efficiency Measurements of HEPA Filters

Ph. Mulcey, P. Pybot, J. Vendel
Commissariat á l'Energie Atomique, France

1410 2-3 Aerosol Concentrations Produced by Laskin Nozzle Generators Using Substitute Materials for DOP

D. W. Crosby
ATI - Hamilton Associates

1430 2-4 Characteristics of Laskin Nozzle Generated Aerosols

Xiaowei Yan, M. W. First, S. N. Rudnick
Harvard Air Cleaning Laboratory

1450 2-5 Safe Replacement Materials for DOP in "Hot Smoke" Aerosol Penetrometer Machines

H. R. Carlon, M. A. Guelta
U.S. Army CRDEC

1510 REFRESHMENT BREAK

1530 2-6 Development of Filter Systems - Part 2, Injection Systems and Multi-Point Sampler Evaluation

D. Loughborough
Harwell Laboratory, United Kingdom

1550 2-9 The Dust Holding Capacity of HEPA Filters

D. Loughborough
Harwell Laboratory, United Kingdom

1610 2-10 Laser Spectrometry Technique for the Determination of Aerosol Characteristics: Simulation of the Performances of a New Real-Time System for Determining the Angular Distribution of the Scattered Light

E. Neri
ENEA-CASACCIA, Italy

Concurrent Session B
1330-1530
Regency C

PANEL SESSION: CODE ON NUCLEAR AIR AND GAS TREATMENT ASME/ANSI AG-1

CHAIRMAN: W. H. Miller, Jr., Sargent & Lundy

PANEL MEMBERS:

S. Banton, *Pacific Gas and Electric Company*
T. Vogan, *Sargent & Lundy*
S. Hobart, *Adams & Hobart*

OPEN SESSION ON EUROPEAN COMMUNITY NUCLEAR CODES AND STANDARDS

1630
Regency A

CO-CHAIRMEN: W. H. Miller, Jr. Sargent & Lundy
J. L. Kovach, Nuclear Consulting Services

The creation of a single European market in 1992 will challenge the international competitiveness of the US Nuclear Air Cleaning Industry and the US Codes and Standards Community. The European Community (EC) is already hard at work harmonizing its standards and certifications for products and services with little participation from the US.

It is anticipated that there will be a number of international attendees at this Conference who will be willing to share their perspective on the impact of the EC Programs. An official representative of the EC will be invited to address the Conference during this open discussion session.

INVITED SPEAKER: M. R. Green
ASME

Monday Evening, August 13, 1990
1800 to 1930
Islands Room

RECEPTION FOR ATTENDEES AND FAMILY MEMBERS

Tuesday, August 14, 1990

Concurrent Session A
0900-1130
Regency A

CHEMICAL PROCESSING OFFGAS CLEANING

CO-CHAIRMEN: R. T. Jubin, Oak Ridge National Laboratory
A. C. Vikis, Atomic Energy of Canada Ltd., Canada

0900 4-1 Measurements of Iodine 129 and Entrainment of Organic Iodine 129 with the Off Gas Flows of the Karlsruhe Reprocessing Plant WAK

F. J. Herrmann, V. Motoi, B. Herrmann, H. Fies, D. Fang
Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe, West Germany

4-2 Iodine Retention During Evaporation of MLW-Waste Solutions at the KFK Central Decontamination Department

J. Amend
Kernforschungszentrum Karlsruhe
V. Motoi, F. J. Herrmann
Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe
J. Furrer
Kernforschungszentrum Karlsruhe, West Germany

0940 4-3 Technical-Scale Iodine Expulsion from the Dissolver Solution and Balance Striking for Liquid and Gaseous Iodine Fractions

J. Furrer, H. Deuber, A. Linek, R. Kaempffer, K. Jannakos
Kernforschungszentrum Karlsruhe, West Germany

1000 4-4 Elimination of Iodine from Radioactive Gaseous Effluents in a Packed Column

M. B. Vignau, J. P. Goumondy
Commissariat á l'Energie Atomique
M. Roustan
LCGE, France

1020 REFRESHMENT BREAK

1050 4-5 Iodine Partitioning in a Dissolver Off-Gas System, and Evaluation of Iodine Removal by Scrubbing with Hyperazeotropic HNO_3

J. F. Birdwell, R. T. Jubin, B. E. Lewis
Oak Ridge National Laboratory

1110 4-6 Development of a Process for Adsorptive Separation of Kr-85 from the Off-Gas of Nuclear Facilities

H. D. Ringel
Forschungszentrum Julich
T. Burbach
Siemens AG
R. J. Printz
Wissenschaftlich-Technische

Tuesday, August 14, 1990

Concurrent Session B
0900-1130
Islands Room

PANEL SESSION: HOW TO USE N510 TESTING METHODS AND ACCEPTANCE CRITERIA FOR AIR TREATMENT SYSTEMS NOT CONSTRUCTED ACCORDING TO N509

CHAIRMAN: R. R. Weidler, Duke Power Company

PANEL MEMBERS:

J. W. Jacox, *Jacox Associates*
J. R. Edwards, *Charcoal Service Corporation*
R. D. Porco, *Consultant*
P. W. Roberson, *McGuire Nuclear Station*

Plenary Session

WORKING LUNCHEON
1200-1400
Regency B-C

CHAIRMAN: D. W. Moeller, Chairman, Advisory Committee on Nuclear Waste

INVITED SPEAKER:

FORREST J. REMICK, COMMISSIONER

U. S. Nuclear Regulatory Commission
Washington, DC

TOPIC: CHANGING WINDS IN NRC'S REGULATORY ENVIRONMENT

Plenary Session
1400-1600
Islands Room

OPEN END

CHAIRMAN: M. W. First, Harvard Air Cleaning Laboratory

7-1 Quality Assurance Requirements for NESHAPS Compliance
J. F. Bresson
Dames & Moore

7-2 Progress Report on the In-Place Acceptance Tests of Walk-in Plenum Filter Housings with Close Couple Redundant Series Filters
J. R. Edwards, A. E. Dunbar
Charcoal Service Corporation

7-3 Investigation of Salt Loaded HEPA Filters
P. R. Smith, E. C. Hensel, I. H. Leslie
New Mexico State University
T. M. Schultheis
Sandia National Laboratories
J. R. Walls
Westinghouse Electric Corporation

7-4 Photochemical Removal of Radioactive Iodines from Air
A. C. Vikis
Atomic Energy of Canada Ltd.

REFRESHMENT BREAK

7-5 Department of Energy HEPA Filter Qualification Testing - Review of Department of Energy Filter Test Facility and Filter Test Facility Technical Support Group Activities (FY 1986 - FY 1989)
J. A. McIntyre
Los Alamos National Laboratory

7-6 A Systematic Study of the Effectiveness of Mono Alkyl Iodides of Cyclic Diamines as an Impregnant of an Activated Carbon of the Nuclear Grade
Y. S. Kim
Korea Atomic Energy Research Institute, Korea

7-7 Type II HEPA Filter
J. L. Kovach
NUCON International, Inc.

7-8 Confirmation of Automatic Flow Control for a Gaseous Effluent Sampling System
S. A. Epperson
Savannah River Site

1600 ISLANDS ROOM

Business Meeting of the International Society of Nuclear Air Treatment Technologies (ISNATT)

Wednesday, August 15, 1990

Concurrent Session A-1
0900-1030
Regency A

INCINERATION AND VITRIFICATION

CO-CHAIRMEN: R. L. Shepard, U. S. Nuclear Regulatory Commission
J. R. Yow, Corporate Consulting & Development Company

0900 8-2 LFCM Processing Characteristics of Hg
R. W. Goles, G. J. Sevigny
Battelle Pacific Northwest Laboratory

0920 8-4 Behavior and Control of Ruthenium During Operation of the New Waste Calcining Facility at the Idaho Chemical Processing Plant
J. D. Christian
Westinghouse Idaho Nuclear Company

0940 8-5 The Incineration of Low Level Radioactive Wastes - Current Status
D. W. Moeller, S. W. Long
Advisory Committee on Nuclear Waste

1000 8-6 Steps Towards the Minimization of Particulate Emissions from a Low-Level Waste Incineration Facility
H. Leibold, R. Mai, J. G. Wilhelm
Kernforschungszentrum Karlsruhe,
West Germany

1030 REFRESHMENT BREAK

Concurrent Session A-2
1100-1200
Regency A

SYSTEM DESIGN

1100 15-2 Design Basis Documentation for the Control Room Ventilation/Chilled Water System at McGuire Nuclear Station
J. R. Hilley, Jr., R. R. Weidler
Duke Power Company

1120 15-3 Demonstration of Carbon-14 Removal at Candu Nuclear Generating Stations
S. D. Chang, C. H. Chech, P. J. Leinonen
Ontario Hydro, Canada

Concurrent Session B-1
0900-1030
Regency C

ADSORBENTS

CO-CHAIRMEN: A. G. Evans, Savannah River Plant
Li Qi-dong, Fudan University, People's Republic of China

0900 9-1 New Type Adsorbent Material of Impregnated Activated Carbon Fibers for Iodine Filter

Li Qi-dong, Ye Changzhou,
Yuan Shunqing, Pang Yafang, Ling Junyue
Fudan University
Gu Xiaochun, Yang Miaoxing,
Zhu Huijian, Liu Zexiang
Shanghai Textile Research Institute
Ma Ruqian, QianYinge, Fu Haozhong
Shanghai Nuclear Engineering Research & Design Institute, People's Republic of China

0920 9-2 A Study of the Effect of Coating Operations on Radioiodine Removing Adsorbents

W. P. Freeman, J. C. Enneking
Nuclear Consulting Services

0940 9-3 Factors Affecting the Retention of Methyl Iodide by Iodide-Impregnated Carbon

M. L. Hyder, R. A. Malstrom
Westinghouse Savannah River

1000 9-4 Removal Characteristics of Some Organic Iodine Forms by Silver Impregnated Adsorbents

Y. Kobayashi
Japan Nuclear Fuel Service Co., Ltd.
Y. Kondo, Y. Hirose
Hitachi Works
T. Fukasawa
Energy Research Laboratory, Japan

1030 REFRESHMENT BREAK

Wednesday, August 15, 1990

Concurrent Session B-2
1100-1200
Regency C

NUCLEAR CODES & STANDARDS

CO-CHAIRMEN: A. A. Weadock, U. S. Department of Energy
TBA

1100 10-1 Changes in Adsorber Testing as a Result of NRC Guidance
J. J. Hayes, Jr.
U.S. Nuclear Regulatory Commission

1120 10-2 US NRC Regulatory Guidance for Engineered Safety Feature Air Cleaning Systems
R. R. Bellamy, C. A. Willis
U.S. Nuclear Regulatory Commission

1140 10-3 IAEA Decadal Activities in the Field of Radioactive Gaseous Waste Management
G. R. Plumb
International Atomic Energy Agency, Austria

Concurrent Session A
1330-1630
Regency A

MODELING

CO-CHAIRMEN: R. R. Bellamy, U. S. Nuclear Regulatory Commission
J. Pearson, NCS, Inc.

1330 11-1 Generalized Modeling of Filtered Containment Venting Systems
R. Prior
Westinghouse Energy Systems International, Belgium
B. J. Schlenger-Faber, F. J. Demora, M. G. Plys
Fauske and Associates Inc., U.S.A.

1350 11-2 CAIRE A Real-Time Feedback System for Emergency Response
H. Braun
Federal Ministry for the Environment
H. de Witt, H. D. Brenk
Brenk Systems Planning, West Germany

1410 11-3 Kinetic Modeling of the Purging of Activated Carbon after Short Term Methyl Iodide Loading

V. Friedrich
Institute of Isotopes of the Hungarian Academy of Sciences
I. Lux
Central Research Institute for Physics of the Hungarian Academy of Sciences, Hungary

1430 11-4 Mathematical Models for Changes in HEPA Filter Pressure Drop Caused by High Air Humidity

C. I. Ricketts, M. Schneider, J. G. Wilhelm
Kernforschungszentrum Karlsruhe, West Germany

1450 11-5 Optimization of Air Ducts for Nuclear Reactor Power Generation Station

K. Hirao
Tokyo Electric Power Company
H. Yoshino
Toshiba Corporation
T. Sonoda
Hitachi Works, Japan

1510 REFRESHMENT BREAK

1540 11-6 Mathematical Model and Simulation for Cleanroom

Zhang YingZhong
Shanghai Light Industrial Engineering Design Institute
Chen ShenJun
Shanghai College of Architectural and Municipal Engineering
People's Republic of China

1600 11-7 Alternatives to Current Procedures Used to Estimate Concentrations in Building Wakes

J. V. Ramsdell, Jr.
Battelle Pacific Northwest Laboratories

Wednesday, August 15, 1990

Concurrent Session B-1
1330-1510
Regency C

FILTERS

CO-CHAIRMEN: H. Gilbert, Consultant
R. Dorman, Consultant

1330 12-1 High Efficiency Steel Filters for Nuclear Air Cleaning

W. Bergman, R. Cappabianca, J. Garr, G. Larsen
Lawrence Livermore National Laboratory

1350 12-2 A Permanently Magnetized High Gradient Magnetic Filter for Glove-Box Cleaning and Increasing HEPA Filter Life

J. H. P. Watson, C. Boorman
University of Southampton, England

1410 12-3 Behavior of the Polygonal HEPA Filter Exposed to Water Droplets Carried by the Offgas Flow

K. Jannakos, G. Potgeter, W. Legner
Kernforschungszentrum Karlsruhe, West Germany

1430 12-4 Efficiency and Mass Loading Characteristics of a Typical HEPA Filter Media Material

V. J. Novick, P. J. Higgins, B. Dierkschiede, C. Abrahamson, W. B. Richardson
Argonne National Laboratory
P. R. Monson, P. G. Ellison
Westinghouse Savannah River Company

1450 12-5 Aerosol Penetration Inside HEPA Filtration Media

P. Letourneau, Ph. Mulcey, J. Vendel
Commissariat á l'Energie Atomique, France

1510 REFRESHMENT BREAK

Concurrent Session B-2
1540-1720
Regency C

SAFETY

CO-CHAIRMEN: H. P. Wichmann, Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe, West Germamy
J. P. Mercier, Institut de Protection et de Surete Nucleaire, France

1540 13-1 Impacts of the Filter Clogging on the Behaviour of a Ventilation Network in the Event of a Fire

J. C. Laborde, M. C. Lopez, M. Pourprix, J. Savornin, J. Teissier
Commissariat á l'Energie Atomique, France

1600 13-2 Behavior of Ruthenium in the Case of Shutdown of the Cooling System of the HLLW Storage Tanks

M. Philippe
Commissariat á l'Energie Atomique
J. P. Mercier
Institut de Protection et Sûreté Nucléaire
J. P. Gué
Commissariat á l'Energie Atomique, France

1620 13-3 Pool Fire Effect on a Large Scale Ventilation System

P. R. Smith, I. H. Leslie
New Mexico State University
W. S. Gregory, B. White
Los Alamos National Laboratory

1640 13-4 Continuous Air Monitor for Alpha-Emitting Aerosol Particles

A. R. McFarland
Texas A&M University
J. C. Rodgers
Los Alamos National Laboratory
C. A. Ortiz
Texas A&M University
D. Nelson
Los Alamos National Laboratory

1700 13-5 Measurement System for Alpha & Beta Aerosols with Wide Dynamic Range & Krypton 85 Masking

H. P. Wichmann, H. Tiggemann, H.-J. Kreiner,
Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe, West Germany

Thursday, August 16, 1990

Plenary Session
0800-1000
Regency Ballroom

CONTAINMENT VENTING

CO-CHAIRMEN: J. L. Kovach, Nuclear Consulting Service
P. Mulcey, Commissariat à l'Energie Atomique, France

0800 14-1 Containment Venting-Sliding Pressure Venting Process for PWR and BWR Plants-Process Design and Test Results

B. Eckardt
Siemens AG - UB KWU, West Germany

0820 14-2 Investigations into the Design of a Filter System for PWR Containment Venting

H.-G. Dillmann, J. G. Wilhelm
Kernforschungszentrum Karlsruhe, West Germany

0840 14-3 Experimental Study on Aerosol Removal Efficiency for Pool Scrubbing Under High Temperature Steam Atmosphere

J. Hakii
Tokyo Electric Power Company
I. Kaneko, Y. Masahiro
Toshiba Corporation
M. Matsumoto
Hitachi Ltd., Japan

0900 14-4 Impact of Filtered Venting Design Upon the Total Radioactive Release in Case of a Severe Accident and a Comparison of European Requirements

G. Lövenhielm
Swedish State Power Board
H. Cederqvist, I. Jansson
ABB Atom, Sweden

0920 14-5 Absorption of CH_2I in Advanced Venturi Systems (FILTRA/MVSS)

L. Lindau, A. C. Larsson
Fläkt Industrial Processes Inc., Sweden

0940 14-6 Design and Full-Scale Test of a Sand Bed Filter

M. Kaercher
Electricité de France

1000 REFRESHMENT BREAK

Plenary Session
1030-1145
Regency Ballroom

1030 **PANEL SESSION: NUCLEAR AIR CLEANING PROGRAMS AROUND THE WORLD**

CO-CHAIRMEN: G. R. Plumb, International Atomic Energy Agency, Austria
V. Friedrich, Institute of Isotopes of the Hungarian Academy of Sciences

PANEL MEMBERS FROM:
Belgium
Canada
France
Germany
Hungary
Japan
Sweden
United Kingdom

Plenary Session
1145-1200
Regency Ballroom

CONFERENCE SUMMARY AND ADJOURNMENT

M.W. First
Conference Chairman

Maintenance of Certification Credit:
The American Board of Industrial Hygiene has approved 3.5 Maintenance Credits for this Conference.
American Board of Health Physics has approved 12 (new credits) Maintenance Credits for this Conference.

文　献　ま　と　め　表

4-1

文献名

RETENTION AND MEASUREMENT OF IODINE-129 AND OF ORGANOIODINE IN THE OFFGAS STREAMS OF THE KARLSRUHE REPROCESSING PLANT WAK

F. J. Herrmann, V. Motoi, B. Herrmann, A. Van Schoor, D. Fang and H. Fies (WAK)

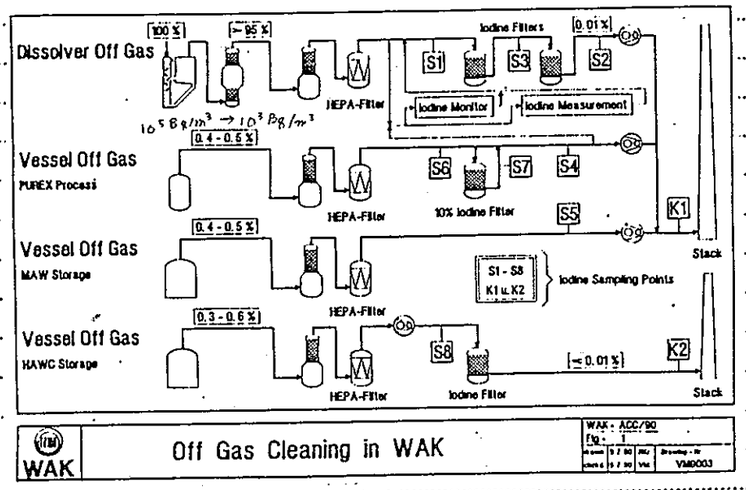
目的

(1) PUREX processにおけるヨウ素挙動の把握
(2) WAKオフガスストリームにおける ^{129}I 分布の決定
(3) WAKオフガスから遊離した有機ヨウ素化合物の性状の把握
(4) WAK運転条件下におけるヨウ素除去の熱力学及びヨウ素除去の反応メカニズムの解明

内容

(1) WAKオフガスストリームにおける ^{129}I の分布 (Fig.1参照)

95%：溶解オフガス
3%：廃液中
1%：ガス
- 0.01% DOG, 0.4～0.5% Purexプロセス中のVOG, 0.4～0.5% MLLW貯槽, 0.1% 燃料解体セルのベントエア, 0.01% HAWC貯槽からのVOG



(2) オフガス中の無機ヨウ素の除去
WAKオフガス中の15%のヨウ素が無機ヨウ素 (VOG系)

(3) 有機ヨウ素化合物の特徴
① n-dodecyl iodideが有機ヨウ素の中の主成分
② その他 --- 炭素数2～11のアルキルヨウ素, ブチルヨウ素, ニトロアルケン, 硝酸エステル.

内容

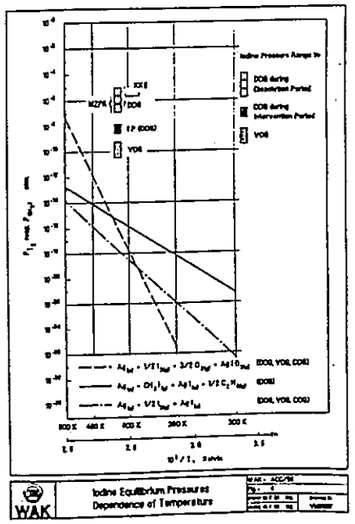
(4) WAK運転条件下のヨウ素除去の熱力学 (Fig.4, Fig.5参照)
① メタル銀によって I_2, CH_3I は除去される。WAKオフガス中の NO_2 は影響を与えず。
② $AgNO_3$ では熱力学的に I_2 は除去されない。300 vpm の NO_2 を含む系では I_2 は除去不可能である。
③ CH_3I はメタル銀, $AgNO_3$ で除去可能。

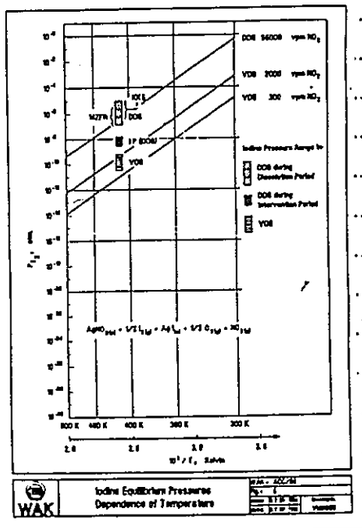
(5) WAK運転条件下におけるヨウ素除去反応
① 無機ヨウ素

$AgNO_3(s) \rightleftharpoons Ag(s) + NO_2(g) + 1/2\,O_2(g)$ (Dodecaneによる還元)
$Ag(s) + 1/2\,I_2(g) \rightleftharpoons AgI(s)$
$Ag(s) + 1/2\,I_2(g) + 3/2\,O_2(g) \rightleftharpoons AgIO_3(s)$
$AgIO_2(s) \rightleftharpoons AgI(s) + 3/2\,O_2(g)$

② 有機ヨウ素

$AgNO_3(s) + CH_3I(g) \rightleftharpoons AgI(s) + CH_3NO_2(g)$
$Ag(s) + CH_3I(g) \rightleftharpoons AgI(s) + 1/2\,C_2H_6(g)$





まとめ

(1) オフガス中のヨウ素除去のためにはヨウ素フィルタを全オフガス系統に備える必要あり。
(2) WAK VOG系では85%が有機ヨウ素化合物である。
(3) Ag及び $AgNO_3$ 添着吸着材に対しては有機ヨウ素化合物の除去には問題を生じない。

文　献　ま　と　め　表

4-2

文献名

Iodine-129 Distribution and Retention during Evaporation of MLW Solutions

J. Amend*, V. Motoi**, F.J. Herrmann* and J. Furrer*

(* KfK, ** WAK)

目的

WAK再処理工場(カールスルーエ研究所)で発生する中低レベル廃液について、蒸発処理時のヨウ素-129の分布及びホールドアップ量について詳細に検討し、ヨウ素-129の大気放出量の低減化及びバッカスドルフ再処理工場への適応を目的とした。

内容

1. 概要

(1) WAK再処理工場の中低レベル廃液処理フローをFig.1に示す。この施設では年間当り、中レベル廃液400 m^3、低レベル廃液5000 m^3受け入れ、固化体廃棄物1500 m^3発生する。(セメント固化)

(2) 中レベル廃液蒸発処理プロセスをFig.2に示す。キャンペーンは年間5へ10回(1キャンペーン当り4~8日運転)実施し、処理能力は1 m^3/hである。蒸発処理された蒸気は蒸発缶内のシーブトレイを通過後、冷却器で冷却(60°C)し、凝縮液は有機相を分離後低レベル蒸発缶に送液され、一方オフガスはオフガスクリーニングシステムに送られる。

(3) オフガスクリーニングシステムはスラビング塔、ベンチュリスクラバー、HEPAフィルター及び加熱器を付帯したヨウ素吸着フィルターから構成される。

(4) ヨウ素吸着フィルター(Fig.3参照)の吸着剤は最初KI含浸活性炭(SS 207B)を使用したが1988年以降硝酸銀含浸触媒キャリアで行った。吸着フィルターの運転条件：流量440 m^3/h(30°C)、線速度76 mm/S、ガス滞留時間0.7S

2. 結果

(1) 1983~1989年までのヨウ素-129の大気放出量をFig.4に示す。その結果、ヨウ素吸着フィルター設置(1987年)によって大気放出量が低減した。(1987年：放出規制値 0.4→0.2 MBq/wに変更)

(2) ヨウ素-129のマスバランスをFig.5に示す。(1989年中レベル廃液230 m^3を7回のキャンペーンで蒸発処理)

(3) KI含浸活性炭ヨウ素吸着フィルターは運転14日後で破過した。この原因はオフガス中の水分及びNO_2、更に低温度(40°C)での運転によるものであった。

(4) 硝酸銀含浸触媒キャリアに交換してヨウ素除去を行った結果、最初のDFは約70となり平均で30~40であった。その年(1989年)のヨウ素の大気放出量は0.53MBqとなり、年間規制量(4MBq)の13%であった。Table 1に示すように

(5) ヨウ素-129の大気放出量を更に低減させるには、蒸発処理のキャンペーン期間以外でも、オフガスをヨウ素吸着フィルターに通過させることである。

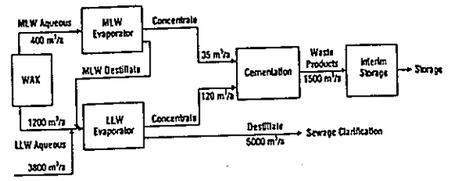


Fig. 1 Treatment of aqueous LLW/MLW at KfK

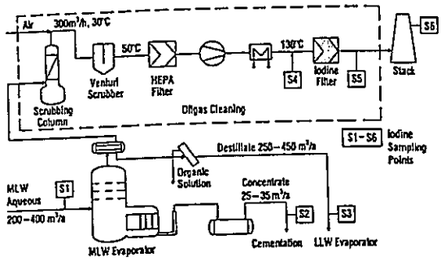


Fig. 2 MLW evaporation plant at KfK

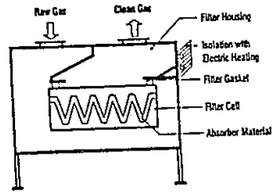


Fig. 3 Iodine filter in the MLW offgas

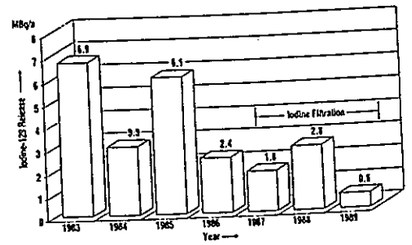


Fig. 4 Annual release of Iodine-129 at the MLW evaporator plant

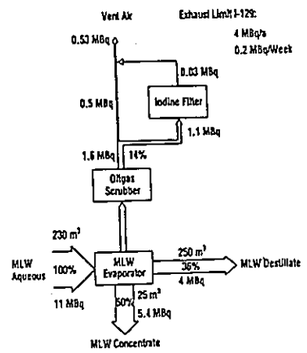


Fig. 5 Iodine-129 flowsheet of the MLW plant in 1989

Table 1 Operating and Outage Periods of the MLW Evaporator, Iodine Entrainment and DFs of the Iodine Filter

No.	Operation	Duration t[h]	I-129 Activity A [MBq] Raw Gas	I-129 Activity A [MBq] Vent Air	DF
1.	MLW Evaporation with Iodine Filtration	1500	0.8	0.02	33
2.	Outage of Facility with Iodine Filtration	2260	0.3	<0.01	37
3.	Outage of Facility without Filtration	5000	0.5	0.5	–
	Total	8760	1.6	0.53	3

まとめ

(1) 1989年の中レベル廃液230 m^3でそのうちヨウ素-129は11MBq(使用済燃料中のヨウ素量の0.5~1%相当)であり、物質収支は蒸発缶、蒸留液中のヨウ素は36%(4MBq)濃縮液は50%(5.4MBq)、オフガス14%(1.6MBq)である。

(2) 硝酸銀含浸吸着剤(AC6120)はヨウ素吸着に効果的であり年間当りのDFは平均30~40である。

文　献　ま　と　め　表

4-3

文献名

Technical—scale Iodine Expulsion from the Dissolver Solution and Balance Striking for Liquid and Gaseous Iodine Fractions

J. Furrer*, H. Deuter*, A. Linek*, R. Kaempfer*, K. Jannakos**
(*K.f.K., **Hauptabteilung Ingenieurtechnik)

目的

溶解槽液に残留しているヨウ素量の低減化とWAESCHE/PASSAT溶解槽オフガスシミュレーション・処理施設での気液相中のヨウ素分配について検討する。

内容

1. 概要
(1) WAESCHE/PASSAT溶解槽オフガスシミュレーション・処理施設のフローをFig.1に示す。(SL、SGはサンプリングポイントを示す。)
(2) 使用済核燃料の溶解条件をTable 1に示す。

2. 結果
(1) 溶解槽：撹拌ガスとしてN_2の代替に空気及びNO_2を使用したが相違なく、また NaI, KIO_3をキャリアで添加しても効果なく、これらのヨウ素濃度は0.1～0.35%であった。(Fig.2参照)
(2) NO_2スクラバー：TBPが含有している場合、スクラブ液中のヨウ素濃度は著しく増加し、平均値0.15%に対して0.55%であった。(Fig.3参照)
(3) 溶解シミュレーションにおけるヨウ素分配の挙動をFig.4に示す。ヨウ素追出し17時間後、添加ヨウ素の5～8%がオフガスと同伴した。
(4) ガス中の各点のヨウ素濃度をFig.5に示す。実験からヨウ素の物質収支は100±1%であった。

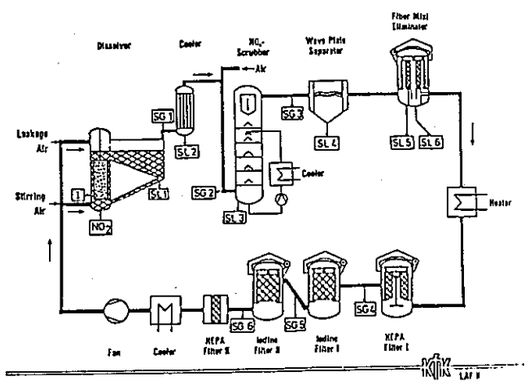


Fig. 1 Flowsheet of the Dissolver Offgas Simulation and Treatment Facility (WAESCHE-PASSAT)

Tabelle 1: Conditions for dissolution of spent elements

Amount of HM	1 t/dissolution
Duration	5 h dissolution 4 h iodine expulsion
Dissolver solution	nitric acid, up to 8 molar
Evaporation rate	10% of the content/h
Stirring gas	3 m^3/h
Leakage air	20 m^3/h
Amount of iodine	300 g/dissolution

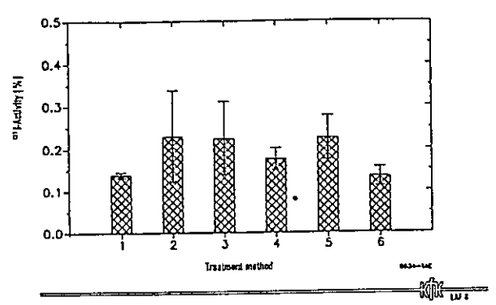


Fig. 2 Average ^{131}I activity and standard error in the dissolver (SL1) after 28 h with different treatment methods:
1: standard, 2: N_2 (as stirring gas), 3: NO_2, 4: NO_2 + NaI, 5: NO_2 + KIO_3, 6: NO_2 + KI O_3 + TBP (test 5-34)

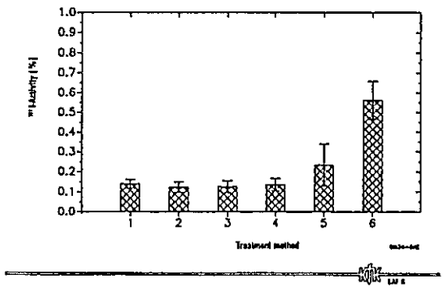


Fig. 3 Average ^{131}I activity and standard error of the ^{131}I activity in the NO_2-scrubber (SL3) after 28 h with different treatment methods:
1: standard, 2: N_2 (as stirring gas), 3: NO_2, 4: NO_2 + NaI, 5: NO_2 + KIO_3, 6: NO_2 + KI O_3 + TBP (test 5-34)

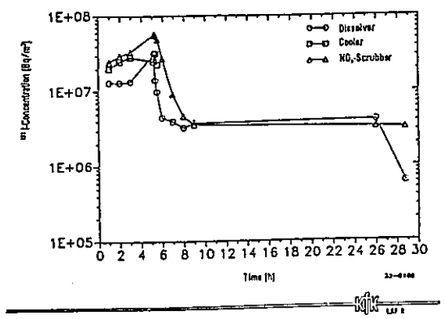


Fig. 4 ^{131}I-Concentration as a function of time in dissolver, cooler, and NO_2-scrubber: test 33

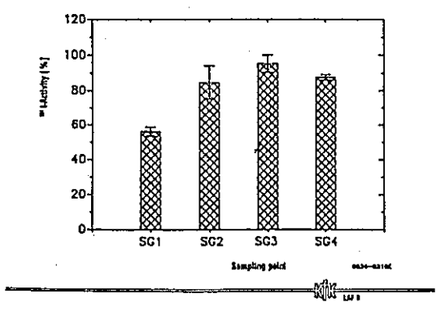


Fig. 5 Average ^{131}I activity and standard error after 28 h at different sampling points: tests 5-34

まとめ

(1) 溶解槽シミュレーション結果から、溶解槽液中の残留ヨウ素量を0.1%に低減することが可能であり、これはヨウ化物量、ヨウ素追出し時間及び溶液温度によって決定される。
(2) 新IATEMAプロトタイプ施設でこれらをパラメータとした最適試験が行なわれる予定である。

文 献 ま と め 表

4-4

文献名

ELIMINATION OF IODINE FROM RADIOACTIVE GASEOUS EFFLUENTS IN A PACKED COLOMN

B. Vignau*, J.P. Gaumandy** and M. Roustan***

* CEA - BAGNOLS SUR CEZE - France,

** CEA - FONTENAY-AUX-ROSES - France, *** INSA - France

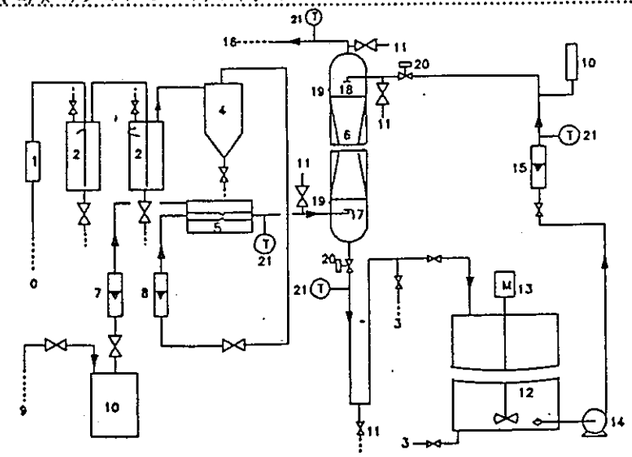
目的

(1) 0.5 N NaOH 溶液による充填塔によるヨウ素ガスシステムの水力学的データを取得し、充填塔の設計の最適化を図る。

(2) 充填材として Raschig rings, Berl saddles, Multiknits を用い、内径 0.1m, 充填高さ 2m のカラムにおける圧損、ホールドアップ、実効表面積、軸方向分散係数及び物質移動係数 K_G を決めた。

内容

(1) 試験方法及び解析法



0. Compressed air
1. Actived charcoal filter
2. Air saturated with water
3. Liquid outlet
4. Cyclone
5. Gas mixing
6. Column
7. CO_2 flow meter
8. Air flow meter
9. CO_2
10. Tank
11. Sampling
12. Liquid tank
13. Mixing system
14. Pump
15. Liquid flowmeter
16. Air extraction
17. Gas inlet
18. Liquid inlet
19. Pressure tap
20. Pneumatic valve
21 Température probe

Fig. 1 : Pilot flow-sheet

Packing	nominal dimension $m \cdot 10^3$	external diameter $m \cdot 10^3$	height $m \cdot 10^3$	thickness $m \cdot 10^3$	contact surface a_c $m^{-2} \cdot m^{-3}$	free space $m^{-3} \cdot m^{-3}$	rings number $m^{-1} \cdot 10^{-3}$	critical surface tension $N \cdot m^{-1}$
Glass Raschig rings	10	10	10	1	470	0,78	760	0,073
Ceramic Raschig rings	10	10	10	1,75	490	0,69	680	0,061
P.V.C. Raschig rings	10	10	10	1	492	0,78	780	0,040
Steil Raschig rings	13	13	12,8	1,7	342	0,75	330	0,071
Ceramic Berl Saddles (3)	10	--	--	--	670	0,66	690	0,061
Wire mesh packing "Multiknit"	100	--	--	--	1950	0,94	--	0,071

Table 1 : Geometrical characteristics of used packings

- 実効表面積 (a_E)

$$a_E = \frac{He\, G_M \ln(P_E/P_S)}{L P_T (D_{AL} K_Z C_{BL})^{0.5}}$$

- 軸方向分散係数 (E_L)

$$C_2(t) = \int_0 C_1(v) h(t-v)\, dv$$

$$h(t) = L \left(\frac{1}{E_L \pi t^3}\right)^{0.5} \exp\left(-\frac{(L-U_L t)^2}{E_L \cdot 4t}\right)$$

- 圧損

充填塔内の塔頂、塔低の差圧測定

- ホールドアップ

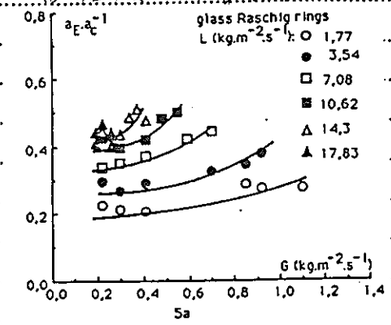
パッキング下の液を集めて行った。

内容

(2) 試験結果

1) マクロなガス水力学データ

① 圧損 (Fig. 3) ② ホールドアップ (Fig. 4) ③ 表面積 (Fig. 5a, 5b)



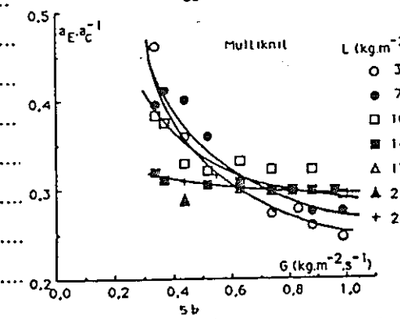
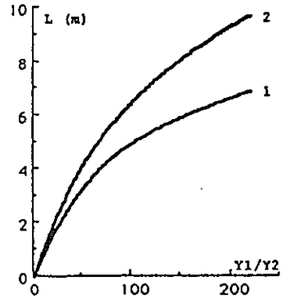


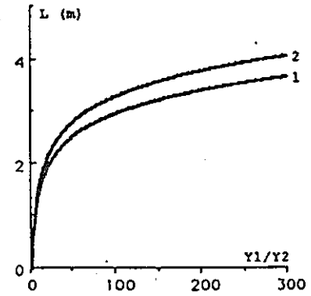
Fig. 5 : Ratio of measured interface area to geometrical interface area.

Multiknit の a_E は Berl saddles と Raschig rings に比べて 2~5倍大きい。



	E_G	E_L ($m.s^{-1}$)
curve 1	0	0
curve 2	$596 \cdot 10^{-4}$	$14 \cdot 10^{-4}$

Fig 6
Column height versus efficiency



	E_G ($m.s^{-1}$)
curve 1	0
curve 2	$596 \cdot 10^{-4}$

Fig. 7
Column height versus efficienc

2) ミクロスコーピック的挙動

E_L (Rashing) < E_L (Multiknit), Pe_L (Rashing) > Pe_L (Multiknit)

3) 軸方向分散 (Fig. 6, Fig. 7)

4) K_G (Fig. 8, Fig. 9)

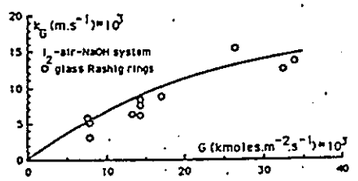


Fig 8
$K_G(I_2)$ versus gas flowrate

$K_G = 0.22\, G^{0.80}$ ($r^2 = 0.92$)

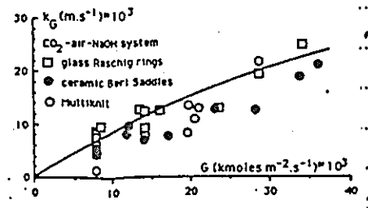


Fig. 9
$K_G(CO_2)$ versus gas flowrate

$K_G = 0.34\, G^{0.80}$ ($r^2 = 0.93$)

・液流量は K_G に無関係

→ 反応がガス-液境膜で起こりガスフィルムを通しての拡散で支配さ。

・ $K_G(I_2) / K_G(CO_2) = 0.7$

($D(I_2)/D(CO_2) = 0.5$

まとめ

(1) Raschig rings, Berl saddles および Multiknit を充填材に用いた充填塔の圧損、液ホールドアップ、表面積、軸方向分散係数を決めた。

(2) I_2-air-NaOH系の K_G の決定はできなかったので CO_2-air-NaOH系の K_G より決めた。 $K_G(I_2) = 0.22\, G^{0.80}$, $K_G(\frac{1}{2}O_2) = 0.34\, G^{0.80}$

文　献　ま　と　め　表

4-5

文献名

IODINE AND NO_x BEHAVIOR IN THE DISSOLVER OFF-GAS AND IODOX SYSTEMS IN THE OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY INTEGRATED EQUIPMENT TEST FACILITY

J. F. Birdwell, (ORNL)

目的

(1) UO_2溶解時のオフガス挙動の解明 (IET使用) ― DOG中のNO_x濃度の解明

(2) オフガスシステム中のNO_xとヨウ素挙動の解明

(3) IODOX及びDOG系におけるNO_xとヨウ素除去率の評価 ― NO, NO_2を模疑ガスとして供給

内容

(1) ダブルコンデーサーを用いたDOGシステム

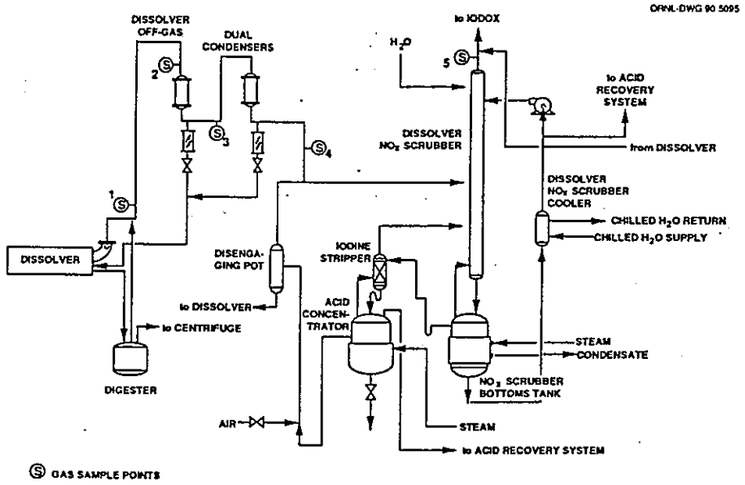


Fig. 3. Current configuration of IET dissolver and NO_x scrubbing system.

① ダブルコンデンサーシステムにおけるヨウ素の分配係数

$\ln D = [4793.4 - 150.9(M)](1/T) + 0.547(M) - 11.886$

D; I_2分配係数($=I_{2\,liq}/I_{2\,gas}$), T; 温度(°K), M; 硝酸濃度(M)

② ヨウ素除去効率

第1段: 0.03~5.78%, 第2段: 0.02~3.42% → 第1段, 第2段で 0.35~6.29%

(323~343K)

③ NO_x除去効率

ダブルコンデンサー; 5~58% (平均 20±7%)

ダブルコンデンサー+スクラバ; 40~60%, スクラバ出口濃度 0.4~1.0%

内容

(2) NO_x及びヨウ素挙動の解明

① NO_x

(i) 500 Kg U/d (500~1000 SLM DOG) 溶解時のNO_x挙動データ

(Sample Point 1~5 におけるNO_2, NO測定データが示されている)

(a) 溶解槽出口 … NO; 0~0.1%, NO_2; 0.5~1.25% (Sample Point 1)

(b) 第1コンデンサー入口 … NO ≫ NO_2 (Sample Point 2) (c) 第2コンデンサー入口 … NO~NO_2 (Sample Point 3)

(d) 第2コンデンサー出口 … NO ≫ NO_2 (Sample Point 4) (e) NO_xスクラバー出口 … NO … >1%, NO_2 … ~0% (Sample Point 5)

(ii) NO, NO_2注入試験

上記サンプルポイントで同様のデータを取得. Point Dataの取得のみ.

② ヨウ素

サンプルポイント1~6及びコンデンサー, ボトムタンク及び酸吸収タンクにおける

ヨウ素濃度を分析. 第1コンデンサーからは0.337%, 第2コンデンサーからは0.31~1.8%

のヨウ素が溶解槽へ戻る事が確認.

(3) IODOXシステム性能

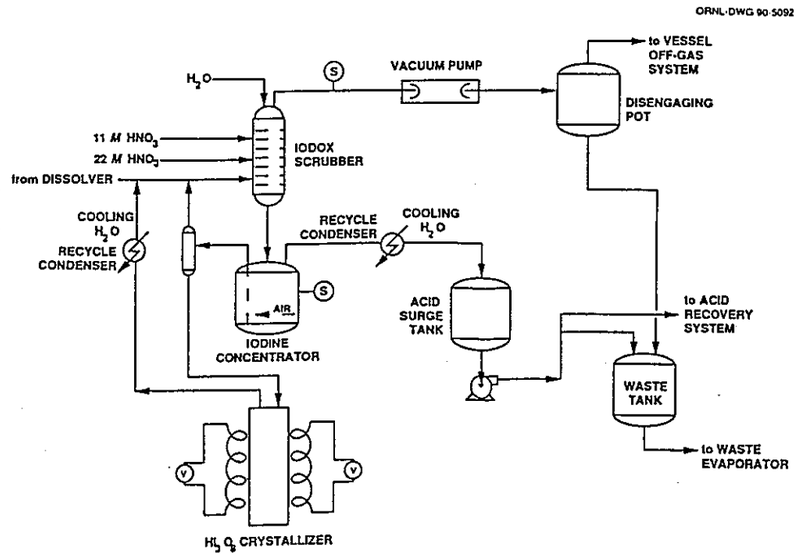


Fig. 2. IODOX system schematic with sample withdrawal points indicated.

IODOXシステム性能

・11~61%のヨウ素除去効率

・6 sampleの平均 34%

まとめ

(1) NO_x挙動の解明の結果, DOG系で存在するNO_x-HNO_x-H_2O系での比較的低濃度成分が反応メカニズムに寄与することが判った.

(2) ダブルコンデンサーシステムでは, 第2コンデンサーでの$NO+NO_2$濃度は1.5%以下であった.

(3) ダブルコンデンサー及びNO_x吸収システムにより, DOGから溶解槽へのヨウ素のリサイクル率は4~5%であった. また硝酸は99%であった.

(4) IODOXシステムにおけるヨウ素除去効率は11~61%と非常に低かった.

文 献 ま と め 表

4-6

文献名

DEVELOPMENT OF A PROCESS FOR ADSORPTIVE SEPARATION OF Kr-85 FROM THE OFF-GAS OF NUCLEAR FACILITIES

H. D. Ringel, B. G. Brodda (Forshungszentrum Jülich)

T. Burbash (Siemens AG)

R. J. Printz (Wissenschaftlich-Technische Ingenieurberatung GmbH)

目的

(1) Kr 分離の目的で低温活性炭を用いた吸着クロマトグラフ法 (ACHAT* プロセス) を開発した。 (*Adsorptive Chromatographic Separation of Activated Charcoal at Low Temperature)

(2) 13 m³/h STP ガス流量のパイロットプラントでの確証をなした。

Kr の純度は 99 vol % 以上で DF > 1,000 の性能が得られた。

内容

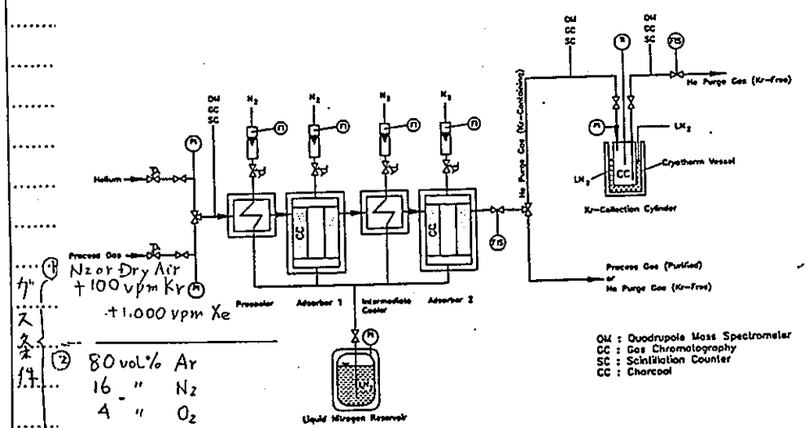
(1) 活性炭を用いた Kr 分離プロセス

Variation	Operating Conditions: Loading [pressure, temp.]	Separation [purge gas, pressure, temp.] 1st Stage	Separation 2nd Stage	Plant Data for a Facility with 100 m³/h Throughput: Adsorber Volume [m³]	He Purge Gas [m³/h]	Decont. Factor	Kr Purity [vol %]
1	1 bar RT	N_2 50 mbar + 180°C	He 1 bar RT	10.8	62	440	87
2	10 bar RT	N_2 50 mbar + 180°C	He 1 bar RT	5	11	400	90
3	10 bar -150°C	He 1 bar + 120°C		2	30	800	90
4	10 bar -150°C	He 1 bar + 120°C		0.32	8	≥ 1000	≥ 90

Table 1: Survey of Different Process Variations and Plant Data

- 4つの Variation Process の検討 (Table 1) から No. 4 を採択
- プロセス
  ① 2つの活性炭充填カラムを最低 -160°C まで冷却し Kr を吸着
  ② He をキャリアーガスとして最高 150°C まで加熱して Kr を追い出し再び活性炭で吸着。

(2) 実験室での試験



ガス条件 ② 80 vol% Ar, 16 " N_2, 4 " O_2, 300 vpm CO_2, 10 " H_2, 0.28 " Kr with approx. 5% Kr-85

Figure 1: Flow Diagram of the Laboratory Facility for Kr-Separation with Integrated Kr-Collection Cylinder

- 結果
  ① 吸着条件
  ガス流量: 6.7 m³/h STP
  吸着時間: 3h
  カラム温度: カラム1 -130°C, 〃 2 -160°C
  ② 再生条件
  He 流量: 6 l/min STP
  再生時間: 3.5 時間
  最高温度: 150°C
  Kr 生成純度: 85 vol%
  DF: 1000

(3) パイロットプラント試験

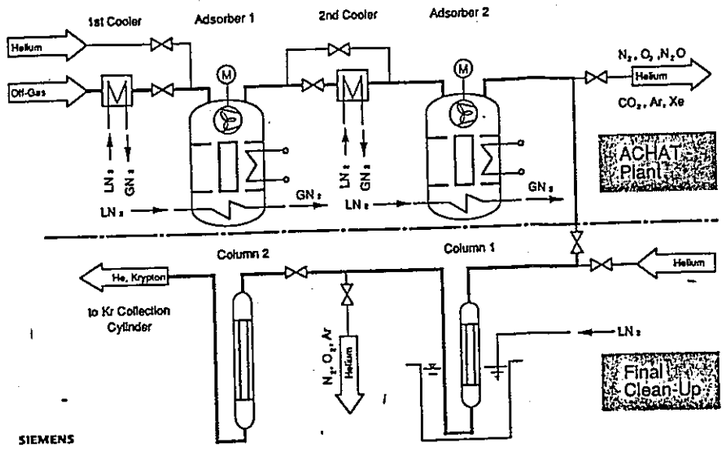


Figure 6: Schematic of the ACHAT Plant Connected to Final Clean-Up System

- ① システム構成: (Fig. 6)
  • 100 m³/h STP に Scale-up することを前提
  • 3.45 m (H) × 2.0 m (W) × 1.6 m (D)
- ② 吸着カラム (Fig. 5)
- ③ 試験結果
  • 吸着条件
  ガス流量: 13.4 m³/h STP
  ガス組成: 1 vol% Ar, 100 vpm Kr, 1000 vpm Xe, 300 vpm CO_2, 200 vpm N_2O
  吸着時間: 6h, 圧損: 200 mb
  カラム温度: カラム1 -130°C, 〃 2 -160°C
  • 再生条件
  He 流量: 1.2 m³/h STP
  再生時間, 温度: 6.5 h, 120°C

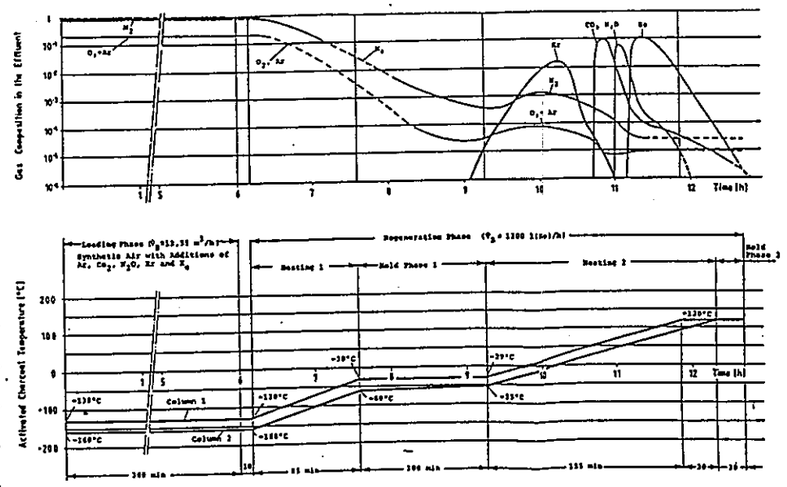


Figure 7: Typical Operation Diagram of Kr-Separation with the ACHAT Pilot Plant

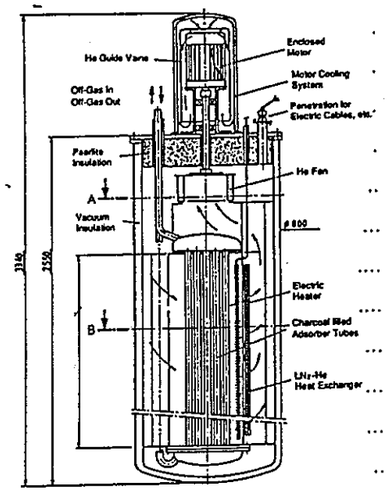


Figure 5: Adsorber Unit of the ACHAT Plant

まとめ

(1) ACHAT プロセスは、熱交換器とバルブを備えた4つの吸着カラムから構成される。

(2) オフガス流量とオフガス組成の変動に影響されない。

(3) Kr-85 のインベントリーをプラントの小さなエリアに閉じ込められる。Kr の漏洩が起こるのは貯蔵シリンダーのみである。

(4) 設備費および操業費はほかのプロセスに比べて低い。

(5) 300 m³/h STP の処理プラントへ適用可能 (2.2 m (ID) × 3.5 m (H))

文　献　ま　と　め　表

7 - 4

文献名

Photochemical Removal of Radioactive Iodine from Air

A. C. Vikis, G. J. Evans, and R. MacFarlane

(AECL)

目的

放射性ヨウ素はトリエチレンジアミンあるいはKI含浸活性炭によって吸着除去できるが事故により多量に発生した場合、活性炭の吸着性能は有機物等の吸着によって突然低下する。このようなことを生じない信頼性の高いシステムとするため、放射性ヨウ素(有機物及び無機物)に紫外線を照射してヨウ素分子(I_2)に転換させた後活性炭で吸着除去する方法について検討した。

内容

1. 概要

光化学を利用したヨウ素の化学反応は以下に示す。

$RI + h\nu \longrightarrow R + I$

$R + O_2 \longrightarrow$ 酸化物

$I + I + M \longrightarrow I_2 + M$　　R:有機物, M:第3物質(例えば空気)

さらにオゾンとの反応によって

$I_2 + O_3 \xrightarrow{<370^\circ C} I_4O_2 \xrightarrow{H_2O} HI_xO_y$

$I_2 + O_3 \xrightarrow{>370^\circ C} I_2O_5 \xrightarrow{H_2O} HI_xO_y$

2. 結果

(1) ヨウ素のDF1000を得るために必要オゾン濃度を調べた結果をTable 1に示す。

(2) 光化学的システムとしてSPARGEシステム(System for Photochemical Abatement of Radioiodine in Gaseous Effluent)及びSPARCシステム(System for Photochemical Abatement of Radioiodine in Containment)が研究開発されている。

① SPARGEシステム

a. SPARGEシステム(Fig. 1 参照)は、12kWの中圧水銀ランプを装着した15m³の容器(Φ3000×2200)をもち、ランプの冷却のための冷却水、N_2ガスを供給するサポートシステムも装備する。また、容器の内面は紫外線を高反射するようにアルミニウムでコーティングされている。

b. 運転条件によるCH_3Iの転換率をTable 2に示す。

c. SPARGEシステムはトラックへの搭載が可能で重量は約15tであり、総コストは約1Mカナダドルと推定している。

② SPARCシステム

SPARCシステムはFig. 3に示すように7kWの中圧水銀ランプを装着した1～1.5m³容器をもつ。総コストは約250Kカナダドルと推定している。

内容

Table 1 Ozone Requirement for I_2 Removal (DF = 1000) as a Function of Flowrate and Temperature

Flowrate (m³/s)	Temperature (°C)	Required O_3 (%)
1	50	0.21
1	100	0.075
1	150	0.035
0.6	50	0.12
0.6	100	0.045
0.6	150	0.021

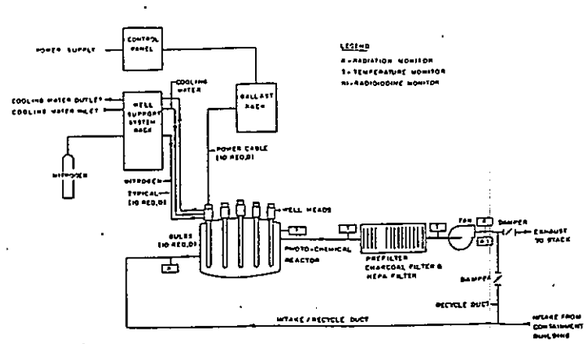


FIGURE 1. Conceptual Flow Sheet of SPARGE.

Table 2 Photochemical Conversion of CH_3I to I_2 in SPARGE as a Function of Key Variables

Flowrate (m³/s)	Number of lamps	Reflectivity (%)	Conversion factor
0.6	15	90	3150
0.6	15	80	60
0.6	10	90	215
0.6	10	80	15
1	15	90	125
1	15	80	10
1	10	90	25
1	10	80	5

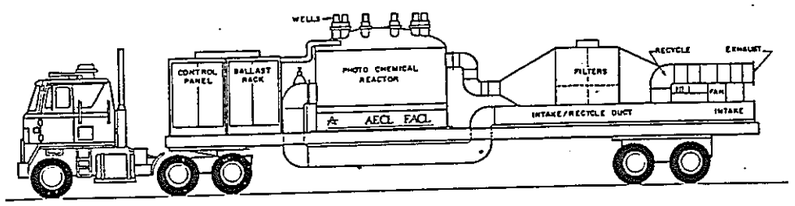


FIGURE 2. Conceptual Design of Transportable Photochemical Scrubber (SPARGE).

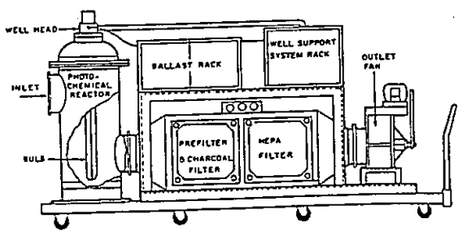


FIGURE 3. Conceptual Design of Mobile Photochemical Scrubber (SPARC).

まとめ

光化学による放射性ヨウ素の除去方法について検討を行い、原子炉事故に適応できるシステムとしてSPARGEシステム及びSPARCシステムの概念設計を行った。

文 献 まと め 表

9-3

文献名

FACTORS AFFECTING THE RETENTION OF METHYL IODIDE BY IODIDE-IMPREGNATED CARBON

M. L. Hyder and R. A. Malstrom
(Westinghouse Savannah River Company,)
Savannah River Laboratory

目的

SRのサイト号炉建屋の空気は大気放出前に放射性ヨウ素の除去のために活性炭ベッドを経由して放出される。使用されている活性炭は North American Carbon 社製の GX-176 ヤシ殻活性炭で1%のTEDAと2%のKIを添着したものである。その交換期間は30ヶ月とされているが、ここでの研究は長期間の運転中での活性炭の特性変化を簡便な方法で検討を試みたものである。

内容

(1) 実験方法

① 活性炭の性能評価は ASTM Method D 3803(B) を変形したもの。即ち 51-mm ベッドを使用するかわりに 25mm ベッドを2つシリーズにつないだものを用いて、25-mm の透過率を用いた。

② 活性炭に吸着したヨウ化物の蒸気浸漬法によりヨウ化物選択電極を用いて定量した。

③ 活性炭の表面積は、Micrometrics Digisorb 2600 表面積分析法によって測定した。

④ 活性炭を通過するメチルヨウ素は Pyrolysis Chamber で加熱分解して ヨウ化ラジカルを生成し、元素状のヨウ素と生成時のレーザー光発光(5 watt Ar イオンレーザー)によって分析した。発光は 550nm 長フィルターを通過後モノクロメーター及びフォトオードシステムで検知し、バックグラウンド補正を行なって データロギングコンピュータで処理した。

(2) 結果と考察

① 活性炭へとメチルヨウ素の相互作用

(i) 湿度の影響 (Fig. 4)

(ii) 有機物の影響 (Fig. 6)

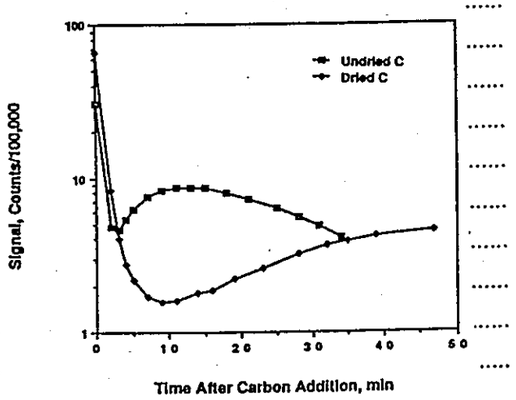


Figure 4. Dried and undried carbon compared.

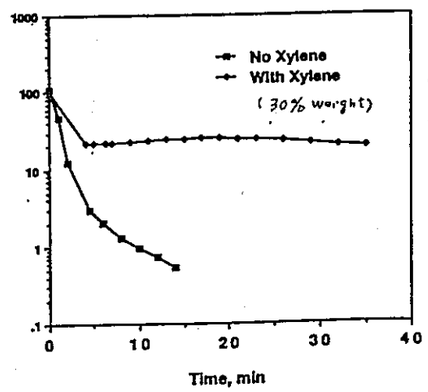


Figure 6. Effect of xylene on MI elution.

(iii) 湿度の影響のまとめ (Fig. 7)

24ヶ月使用後、湿度のコントロールがないもの(Unddried C)、実験室の空気で乾燥させたもの(Dried C)及び乾燥した活性炭で乾燥空気でのもの(Dry C, Dry Air)

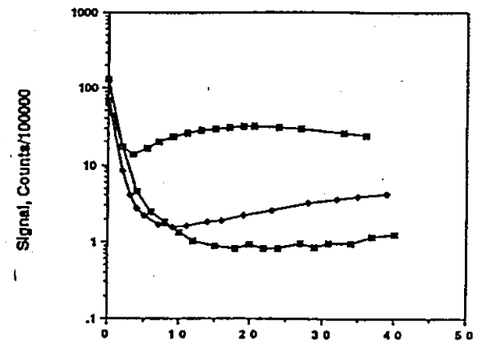


Figure 7. MI elution in dry air.

② ヨウ素含有率と表面積に対するヨウ化メチルの除去

(i) 活性炭サンプルの浸出、表面積、除去特性データ Tab. 1

Table 1. Leach, area, and methyl iodide retention data for the carbon samples studied. (10~30ヶ月使用したもの)

Sample	Area (M2/g)	Iodide Leach (ppm by weight)	AxIL	Methyl Iodide Retention	-Ln I/Io
P3046	391	90	35,200	19	0.163
P5116	836	270	225,700	72	1.27
15732	849	110	93,390	51	0.713
K4047	380	190	72,200	32	0.386
(New)	1176	665	750,800	96	3.0
K6057	758	134	101,500	44	0.58
K2016	312	341	106,200	36	0.446
L3126	774	286	221,200	62	0.968
P2126	736	265	194,900	70	1.20
L3095	865	203	175,500	73	1.31
1850	292	115	33,600	12	0.127

(ii) 除去特性の数式化

- $Ln(I/I_o) = -KAD$

(D: 活性サイトの密度)

- Fig 11 に上式にフィッティングした結果を示す。

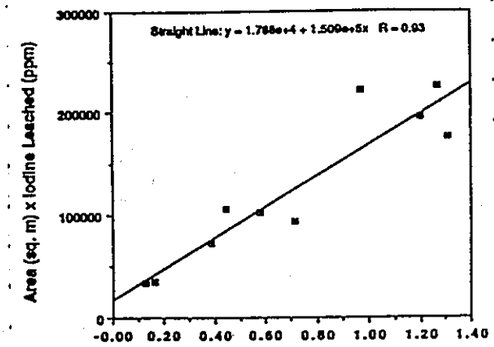


Figure 11. Fit of data to mathematical model.

(Io; 吸着ベッドへ入る放射性ヨウ素量
I; 深さxの所における ヨウ素量)

まとめ

(1) 活性炭によるヨウ化メチルの除去にあたり湿度、有機物が除去特性を低下させる。

(2) 活性炭の上表面積の変化及び表面からのヨウ化物のロスが活性炭の効率を決める上で重要である。

文 献 ま と め 表

13-2

文献名

BEHAVIOR OF RUTHENIUM IN THE CASE OF SHUTDOWN OF THE COOLING SYSTEM OF HLLW STORAGE TANKS

M. Philippe, J.P. Mercier and J.P. Gue (CEA)

目的

La Hague 再処理工場の安全評価の一環として、HLLW貯蔵タンクでの冷却系損失時のRuの挙動を実験室規模の蒸発装置を用い、燃焼度30,000 MWD/TのMOX燃料を数Kg再処理した時の実廃液を使用して調べる。以下の試験を実施した。

(1) FP溶液の気液平衡データの取得

(2) 蒸発、乾燥過程のデータの取得

内容

(1) FP溶液蒸発時における酸性度と温度の関係（気液平衡曲線；Fig. 3）

① 硝酸水溶液に比べ含有硝酸塩溶液の沸点が高い。

② 温度116°C 硝酸5M含む溶液中では結晶が生成する。

③ 温度130°C以上ではNO_xの生成がみられ硝酸の分解を示唆する。

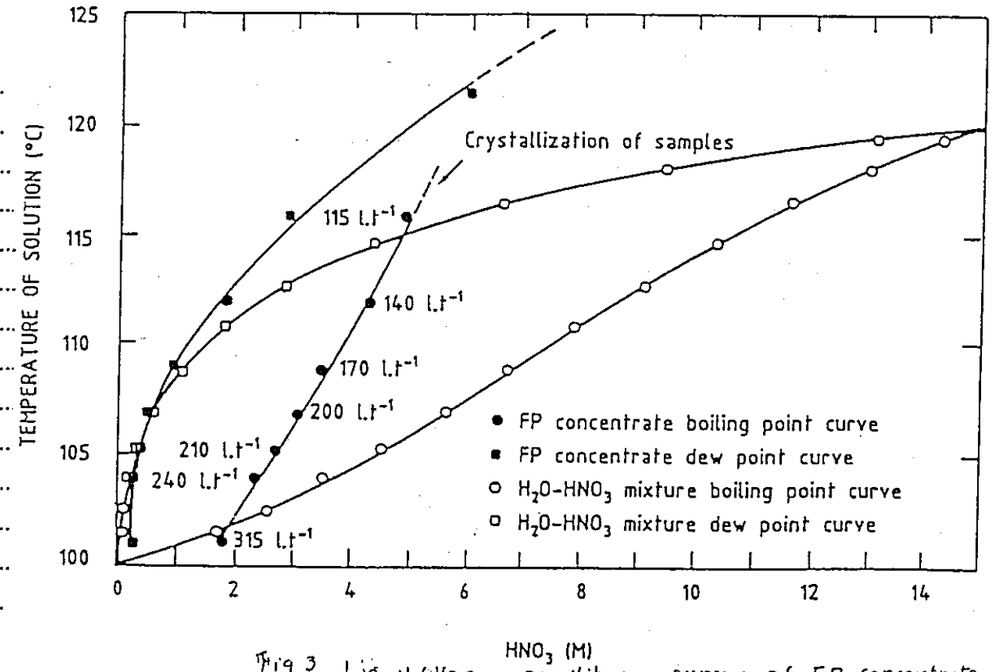


Fig. 3 Liquid/vapor equilibrium curves of FP concentrate

(2) FP溶液蒸発中のRuの挙動

① 濃度 85 l·t⁻¹
液温 119°C
酸濃度 6M
} この条件下でRuは蒸発する

② 蒸発中タンクから移行したRuと主な放射性同位元素のバランス（Tab. 2）

Tab 2 Balance of main radioisotopes transferred from the tank

radioisotope	initial activity GBq (Ci)	activity recovered (% of initial activity) in solution in the condensate	in the caustic trap	in the apparatus rinse solution	in precipitate form	total distilled
^{106}Ru	921 (24·9)	7·09	$2·4·10^{-4}$	3·33	1·68	12·1
^{137}Cs	4503 (121·7)	$1·12·10^{-3}$	$7·10^{-5}$	$2·6·10^{-4}$	-	$1·45·10^{-3}$
α emitters	1520 (41·08)	$9·1·10^{-4}$	-	$2·2·10^{-4}$	-	$1·13·10^{-3}$

③ 濃縮液中に ニトラトニトロシルルテニウムの存在を確認（UVスペクトル）
ニトラトニトロシルルテニウムは RuO_4, $RuNO$ が H_2O, HNO_3, NO_x あるいは O_2 と瞬時に反応し生成したものと推定

④ タンクの壁面等に黒色物質の付着が観察され、この物質は揮発Ruの約15%を含む。

$$RuO_4 \rightarrow RuO_2 \downarrow + O_2$$

あるいは

$$RuO_4 + 2NO \rightleftarrows RuO_2 \downarrow + 2NO_2$$

$$RuO_4 + 4NO_2 \rightleftarrows RuO_2 \downarrow + 2N_2H_5$$

（ただし、RuO_2の確認はされていない。）

⑤ 蒸発、乾燥試験のまとめ

(i) 沸騰域では、蒸気に同伴するエアロゾルにより少量のRuとその他FPがタンク中から移行する。

(ii) 乾燥域付近では、Ruは一部酸化分解し、この分解生成物の揮発による移行が主たる領域で、他のFPとともにエアロゾルの形態によるRu移行が起る。

(iii) 乾燥域では、蒸発したRuO_4はNO_xと反応しRuO_2（固体）と推定される物質を生成する。

(3) 実機へのスケールアップ

本ビーカ試験で得られた結果に基づき、HLLWの出力密度を10W/lとし、かつ完全断熱と仮定すると、HLLWが完全に蒸発し乾燥域までの到達時間は約90hと推定した。（B.Pまでの5hrの昇温時間を含む）この条件下でRuの揮発は75hr後になる。（冷却系での回復時間の余裕をみて）実際はオフガス系のダクト等からの放熱で部分的な凝縮が起こり、タンクへの環流が起こってRuの放出時間は更に長くなると考えられる。

まとめ

(1) Ruは乾燥直前になって濃縮物中から揮発する。

(2) 160°C近くの温度ではRu全体の12%が揮発する。

(3) H_2O, HNO_3, NO_x及びO_2の存在下では揮発Ruは再結合して主にニトラトニトロシルルテニウムを生成するか、あるいは分解してRu酸化物（おそらくRuO_2と推測されるが）となり装置の壁面に付着する。

(4) 実機では、運転員が冷却系の回復を行なう余裕をみて、RuがHLLWから放出されるまで約3日間の余裕がある。

３．疎水性吸着剤の基礎物性

スチレンージビニルベンゼン共重合体を担体とする疎水性ヨウ素吸着剤の製造法およびその基礎物性の概要を以下に示す。

スチレンージビニルベンゼン（以後ＳＤＢと略す）のようなポリマー粒子の製造法は一般的には懸濁重合法で製造されるが、ここでは当研究室で開発されたカプセル重合法によるＳＤＢ重合法を示す。この方法は単分散性のよいポリマー粒子を作ることができる。

図３-１にカプセル製造装置の概念図を示す、この装置によりモノマーを内包したカプセルを作り、それを定温浴中で重合を行い、ＳＤＢ担体を作る。その手順は次の通りである。

（１）二重円筒ノズル(7)の内管に液溜(3)からモノマー溶液｛スチレン、ジビニルベンゼン（以後ＤＶＢと呼ぶ）のモノマーに多孔質化剤のヘプタン、重合開始剤（過酸化ベンゾイル）を適当な割合で混合したもの｝を流し、外環部に液溜(4)からカプセル化剤｛アルギン酸ナトリウム｝を流して液ジェットを形成させる。

（２）ノズルの振動数、振幅を調節して、液柱を振動数に同期させ、分散する。そのときモノマー溶液の内包カプセルが形成される。モノマーの粒径はノズルの振動数、振幅、モノマー供給流量によって調節される。

（３）このカプセルを塩化カルシウム水溶液中(8)に滴下すれば、カプセル化剤はアルギン酸カルシウムにゲル化されるために、モノマー溶液はカプセル内に安定に保持される。

（４）カプセルを適当な重合条件（例えば、７０℃、８時間）におけば、内包されているモノマーを重合することができる。モノマーはカプセル化剤で覆われているために、懸濁重合法のように重合中のモノマー粒子の融合や重合器壁面への付着の問題は起きない。

（５）重合後、カプセル化剤（アルギン酸カルシウム）を１０wt%のポリリン酸ナトリウム水溶液で脱被覆し、ヘプタンや重合開始剤を洗浄によって除去すれば、単分散の多孔質ＳＤＢ粒子を得ることができる。

ＳＤＢ粒子の製造過程において、粒子を多孔質化するためにモノマー溶液にはヘプタンが加えられる。ヘプタンはモノマー（スチレンやジビニルベンゼン）には溶解するが、ポリマー（スチレンージビニルベンゼン共重合体）とは相分離する性質がある。従ってモノマー中にヘプタンを加えておけば、重合中にポリマーとヘプタンが相分離するために、重合後ヘプタンを除去したところに、細孔が形成される。細孔分布、細孔容積はモノマーに混合するヘプタンの割合等によって制御することができる。

表３-１にはＳＤＢ担体の製造条件と細孔容積、表面積の関係を示す。細孔容積、表面積はそれぞれ水銀圧入法およびＢＥＴ法によって測定した。細孔容積は細孔径３００Ａの前後で分けて示した。ＤＶＢ濃度を増加させると３００Ａ以下の小細孔が増えるこ

とがわかる。一方ヘプタンを増やすと細孔容積は増加し、とくに３００Ａ以上の大細孔の割合が増える。それに反して表面積は減少する。

疎水性担体への銀担持

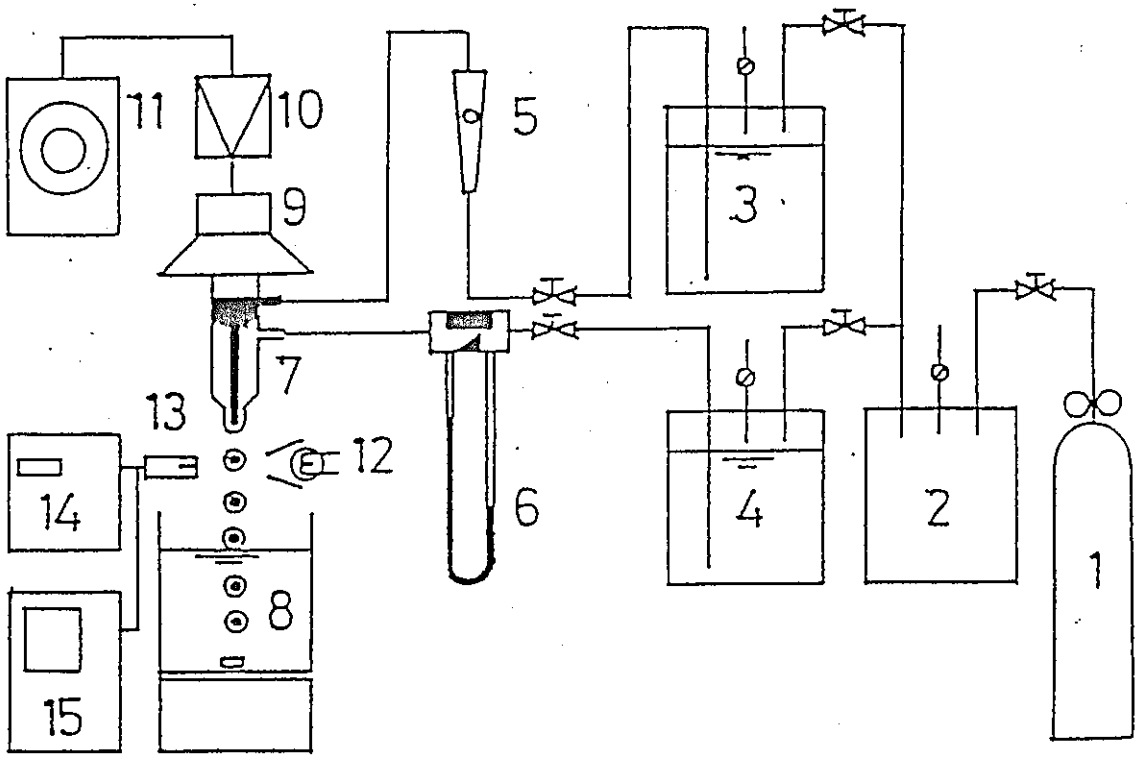
ＳＤＢ担体は疎水性であるために、硝酸銀水溶液に担体を含浸するという通常の銀担持法を利用することができない。疎水性担体に金属化合物を担持するには、従来ＳＤＢと親和性のあるエタノールを溶媒として用いる方法が検討されてきた。例えば、重水濃縮に用いられる疎水性白金触媒は多孔質のＳＤＢ担体に１－２％の白金を担持したものである。白金は塩化白金酸水溶液とエチルアルコールの混合液にＳＤＢ担体を含浸することにより担持された。そこで、硝酸銀の水溶液にエチルアルコールを加えた含浸液を用いて、ＳＤＢへの銀担持を試みた。しかし、この方法では銀の添着量が１０wt%以下と小さいことや銀が粒子の表面近くに集まってしまうなどの欠点があるために、新しい銀の担持法として溶媒にジオキサンや有機アミンを用いる方法を検討した。

ＳＤＢのような高分子架橋ポリマーの特有の性質（高分子効果）として膨潤性がある。膨潤とは溶媒が架橋構造に入り込んで高分子鎖を押し広げる効果であり、高分子への溶媒の親和力と、架橋構造によって生じる高分子鎖の弾性力とのバランスによってその程度が決定される。この膨潤効果を利用すれば、多量の銀を担持することができる。すなわち、ＳＤＢに対して膨潤性をもつ溶媒と銀塩（主として硝酸銀）をふくむ水溶液とを混合して含浸液とすれば、ＳＤＢ担体は膨潤するために、銀塩は担体の内部まで浸透される。ここでは膨潤溶媒としてジオキサンと有機アミンを用いた。

（１）ジオキサン法……５０wt%硝酸銀水溶液にジオキサンを２：８（体積比）で混合した溶液を含浸液とし、その溶液にＳＤＢ担体を入れ、常温で６時間撹拌した。その後、担体は溶液からろ過され、７０℃で真空乾燥した。十分な乾燥によってジオキサンと水分を蒸発すれば、硝酸銀を担持した吸着剤ができる。しかしこの方法は、硝酸銀のような水との溶解度の大きい銀塩の担持には適しているが、水との溶解性の小さい大多数の銀塩（例えば、酢酸銀や炭酸銀）の担持には適用できない。

（２）アミン錯体法……硝酸銀をアミンに溶解させて銀アミン錯体 $[Ag(NO_3)_2]^+$ を形成させて含浸液とし、ＳＤＢ担体をその溶液中で常温で６時間含浸した。アミンにはジエチルアミン、ブチルアミンを用いた。ジエチルアミンのような低沸点化合物を用いる場合には５０℃程度の低い温度で真空乾燥させることにより硝酸銀吸着剤を作ることができる。一方、ブチルアミンのような高沸点のアミンを用いる場合には、１３０℃以上で銀アミン錯体が熱分解されるために金属銀を担持した吸着剤となる。この手法は硝酸銀だけでなく、アミンと溶解する銀塩（大多数の銀塩が使用できる）、例えば酢酸銀や硫酸銀などの担持に適用できる。

表3-2には各銀担持法によって得られた銀の添着量を示す。銀の担持量は何れの方法においても１６％以上の実用的な値が得られている。この値は担持条件（例えば、膨潤剤に溶解させた硝酸銀の割合を大きくすること）により更に増加することも可能である。また銀の分布は、ジオキサン法、アミン錯体法のいずれの担持法であっても担体の全面にわたってほぼ均一であった。



1. N_2 cylinder
2. buffer tank
3. monomer reservoir
4. encapsulating medium reservoir
5. rotermeter
6. orifice flow meter
7. deal axial nozzle
8. hardening agent
9. speaker
10. amplifier
11. osuillator
12. lamp
13. photo sensor
14. digital counter
15. osilloscope

図3-1 カプセル製造装置

表３-１　担体の製造条件と細孔容積、表面積の関係

製造条件		細孔容積			表面積
DVB含有量 (wt%)	Heptane含有量 (vol%)	全容積 (ml／g-dry resin)	300A以下	300A以上	(m^2／g-resin)
２０	４０	０.８８	０.５４	０.４３	１４０
２０	５０	１.５９	０.５７	１.０２	１２８
１０	４０	０.７３	０.４３	０.３０	９２
３０	４０	０.８３	０.５４	０.２９	２１１

表３-２　銀担持量と担体内部の銀の分布

吸着剤	担持法	担持率（%）*
硝酸銀吸着剤	ジオキサン法	２０．５
金属銀吸着剤	アミン錯体法	２８．０
酢酸銀吸着剤	アミン錯体法	１５．６

＊）担持率は乾燥樹脂１ｇに対する銀担持量

4．銀添疎水性吸着剤のヨウ素吸着特性

Removal of iodine from simulated DOG

We have tested these three adsorbents to compare the adsorption of iodine from simulated dissolver off-gas using an adsorption column of 20mm x50mmH, as shown in Figure 2. The simulated DOG consists of 200-250ppm of I_2, 2000ppm of NO_x and 5000ppm of water vapor with the balance of dry air. The bed temperature and gas flow rate were kept constant at 130°C and 4.8cm/s, respectively. The concentrations of iodine, NO_x and water vapor in the effluent gas from the test column were measured.

The iodine in the effluent gas was absorbed into $KMnO_4$-H_2SO_4 solution and reduced to iodide ion by ascorbic acid, and the concentration of I^- was measured by an ionmeter. The concentrations of NO_x and water vapor were measured by a chemiluminescence type NO_x analyzer and a gas chromatography packed with porapak-Q, respectively.

Figure 3 shows the breakthrough curves of iodine, NO_x and water vapor for the adsorbent prepared by the amine-complex method. The results show that the iodine was selectively trapped into the bed while no water was adsorbed and NO_x was adsorbed very little.

Figure 4 shows the comparison of breakthrough curves of iodine for the above mentioned three adsorbents and the commercial one (AC6120: amorphous silicic based material impregnated with silver nitrate). Note that the breakthrough of the adsorbent prepared by the amine-complex method occurred after that of AC6120. This adsorbent has the highest iodine adsorption capacity. The silver utilization of this adsorbent calculated from the breakthrough curve was more than 90%.

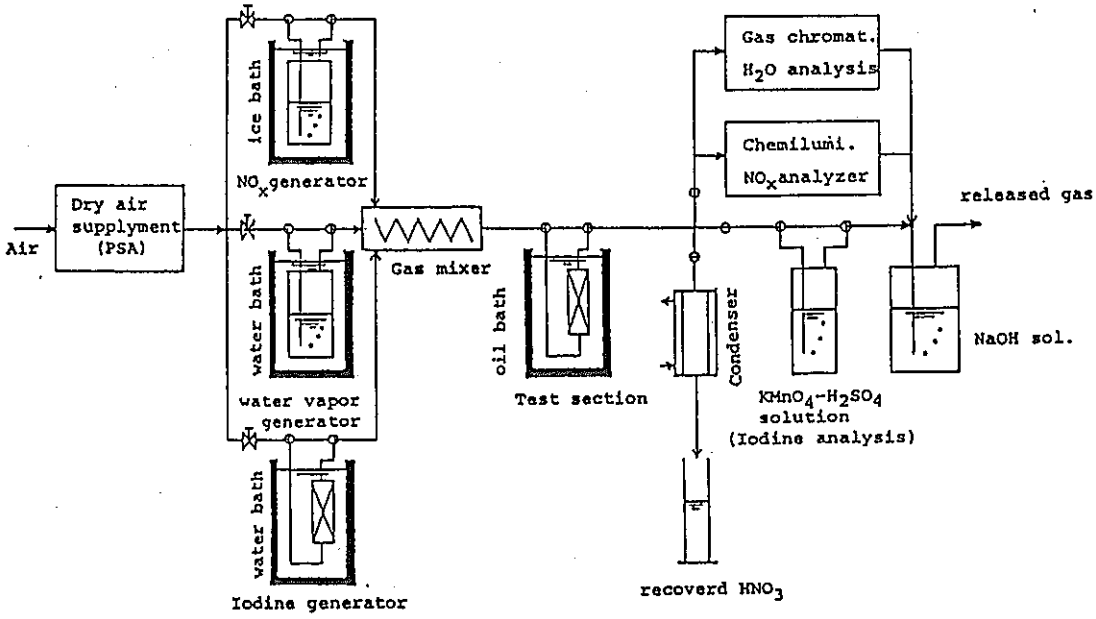


Fig.2 Schematic diagram of experimental set-up.

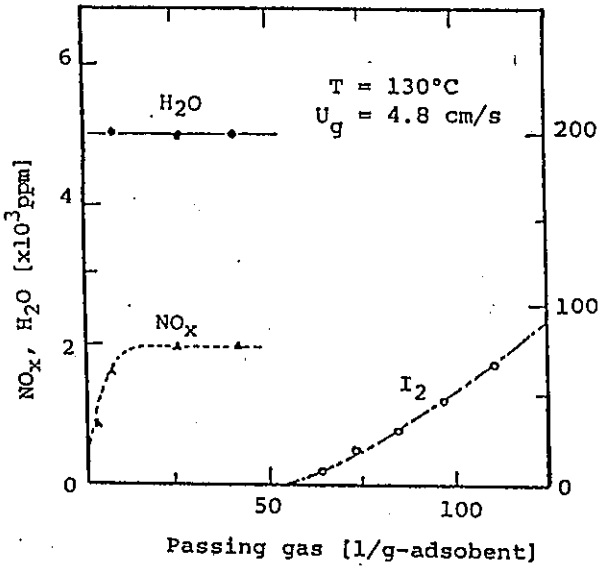


Fig.3 Breakthrough curves of the simulated DOG for the adsorbent prepared by amine-complex method.

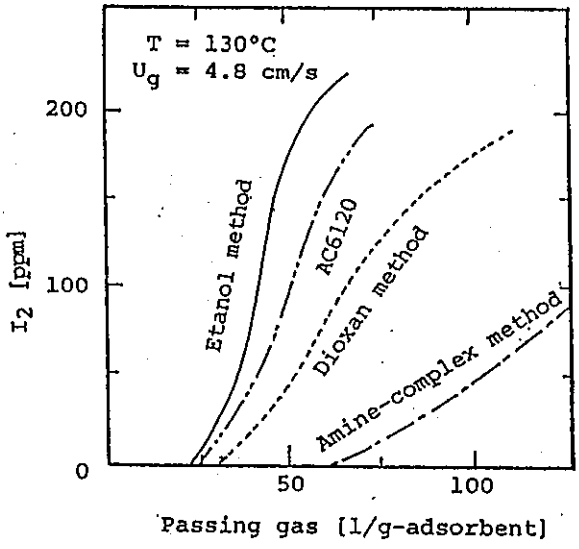


Fig.4 Breakthrough curves of iodine for three developed adsorbents and commercial one (AC6120).

Effect of water vapor and NO_x on adsorption of iodine

The iodine concentrations in effluent for two cases where water vapor is contained in the simulated gas or not, are plotted against the volume of the passing gas in Figure 5. Apparently all points lie on the same breakthrough curve. This result suggests that due to the use of hydrophobic support, the breakthrough of iodine was not influenced by the presence of water vapor.

Figure 6 shows a similar plot to Fig.5 to examine the effect of the presence of 1 vol%-NO_x in the simulated gas. Again, all points are on the same breakthrough curve. Thus the breakthrough of iodine was not influenced by the presence of NO_x.

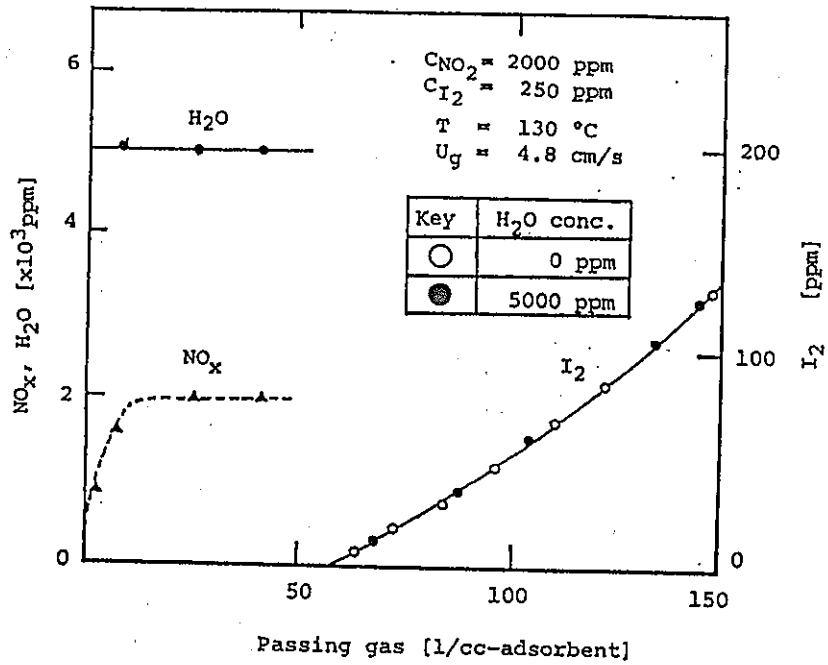


Fig.5 Effect of the presence of water vapor on the breakthrough curve of iodine.

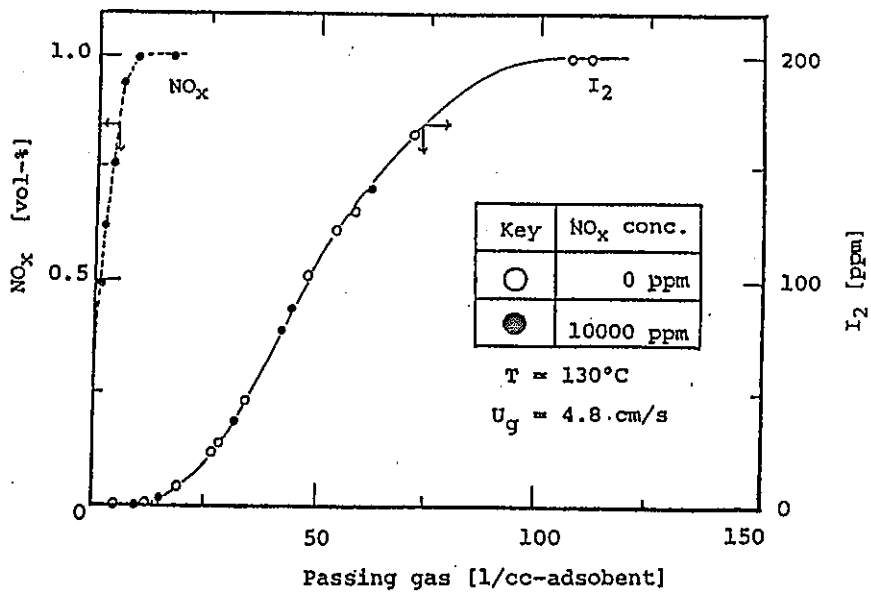


Fig.6 Effect of the presence of NO_x on the breakthrough curve of iodine.

５．銀添疎水性吸着剤の有機ヨウ素吸着特性

ヨウ化メチルの物理吸着

吸着剤へのヨウ素の吸着には、銀との反応による化学吸着とファンデアワールス力による細孔表面への物理吸着がある。物理吸着されたヨウ素は温度や気体中の有機ヨウ素分圧の変化によって容易に吸脱着をする。

そこで本吸着剤の物理吸着特性を評価するために、ＳＤＢ担体へのヨウ化メチルの物理吸着量を調べた。（ヨウ化メチルとＳＤＢの間には化学的相互作用はなく、吸着量は全て物理吸着によるものである。）図５-１は２０℃、８０℃、１３０℃におけるＳＤＢ担体に対するヨウ化メチルの破過特性を示す。物理吸着量は低温ほど大きかった。しかし、８０℃以上では物理吸着量はほとんど無視することができる。この温度以上でのヨウ化メチルの吸着では物理吸着の寄与は考慮しなくてもよいと考えられる。

銀添吸着剤へのヨウ化メチルの吸着

図５-２には窒素気流中での銀添吸着剤に対するヨウ化メチルの破過特性を示す。銀添吸着剤としては硝酸銀、酢酸銀、金属銀を用いた（表３-２参照）。ヨウ化メチルは、硝酸銀吸着剤には吸着されるが、酢酸銀吸着剤や金属銀吸着剤にはほとんど吸着されなかった。硝酸銀吸着剤では、通ガス量２０ｌ／ｇ－dry resinにおいて除染係数は２,０００以上（分析限界）４０ｌ／ｇ－dry resinでは２００以上の高い値が得られた。破過曲線から求めた銀利用率は約８０％であった。

図５-３には破過後の硝酸銀吸着剤のＸＲＤ分析の結果を示す。硝酸銀はヨウ化メチルと反応してヨウ化銀を生成しており、ヨウ素酸銀などの他のヨウ素銀化合物は測定されなかった。これらの結果から、ヨウ化メチルと硝酸銀の反応は

$$AgNO_3+CH_3I \leftrightarrow [AgNO_3-CH_3I] \leftrightarrow AgI+CH_3ONO_2 \quad (1)$$

であると考えられる。

図５-４には硝酸銀吸着剤カラムにおいて、通ガス量１５、７０、１００、２３０ｌ／ｇ－dry resinで得られた流出ガスのガスクロ分析の結果を示す。これらの結果は図５-２の測定値ａ－ｂで得られたガスサンプルを分析したものである。ａ－ｃの保持時間３．７min付近に測定されるピークは硝酸メチルによるものと考えられ、時間の経過（破過の進行）とともに小さくなる。一方、保持時間４．３min付近のピークはヨウ化メチルのものであり、時間経過とともに大きくなる、即ち、ヨウ化メチルの流出量が増加していることがわかる。これらの結果はヨウ化メチルと銀塩の反応は反応式(1)に従って進行していることをうらずけている。

一方、酢酸銀吸着剤や金属銀吸着剤は、ヨウ化メチルをほとんど吸着しないことから、これらの吸着剤では式(1)と類似な反応

$$CH_3COOAg+CH_3I \leftrightarrow CH_3COOCH_3+AgI \quad (2)$$

$$2Ag^0+2CH_3I\leftrightarrow 2AgI+CH_3CH_3 \qquad (3)$$

は少なくとも１３０℃では起きない。

図５-５には吸着温度を変化したときのヨウ化メチルの破過特性を示す。吸着温度は１３０℃および１５０℃とした。破過曲線は温度によってほとんど変化しなかった。このことから、ヨウ化メチルの吸着速度が、硝酸銀との反応速度により支配されているとは考えにくく、外部境膜や細孔内の拡散速度によってコントロールされている可能性が高いが、律速過程の決定にはさらに詳細な実験が必要であると思われる。律速過程の追及は吸着剤の性能向上をはかる上で重要であるので、今後この点を明確にしていこうと考えている。

NO_Xのヨウ化メチル吸着への影響

図５-６～図５-８にはNO_Xを１０,０００ppm模擬ガス中に混入したときのヨウ化メチル吸着への影響を示す。ヨウ化メチルの濃度は２００ppmとし、キャリアガスには窒素を用いた。吸着剤には硝酸銀、酢酸銀、金属銀を担持した吸着剤を用いた。硝酸銀吸着剤ではNO_Xの混入によってやや吸着速度が低下した（図５-６）。金属銀、酢酸銀を担持した吸着剤では逆にヨウ化メチルの吸着容量が増加した（図５-７、図５-８）。

NO_Xの混入によって金属銀添着剤のヨウ化メチルの吸着量が増加したのは、(i)NO_Xに含まれるNO_2と金属銀が反応して

$$Ag^0+2NO_2\leftrightarrow AgNO_3+NO \qquad (4)$$

硝酸銀が生成され、それとヨウ化メチルが反応したか、あるいは(ii)ＡｇＸの研究において提案されたヨウ化メチルとNO_Xの反応

$$7NO+2CH_3I\leftrightarrow I_2+2CO_2+3H_2O+7/2N_2 \qquad (5)$$
$$7NO_2+2CH_3I\leftrightarrow I_2+4CO_2+6H_2O+7/2N \qquad (6)$$

によって無機ヨウ素I_2が生成され、それがAg^0と反応したためと考えられる。

しかしながら、後者のメカニズムでは、NO_Xが存在するときの硝酸銀吸着剤における吸着速度の低下を説明することができない。むしろこの現象は、NO_Xに含まれるＮＯによる硝酸銀の還元反応（式(4)の逆反応）

$$AgNO_3+NO\leftrightarrow Ag^0+NO_2 \qquad (7)$$

によって硝酸銀の一部が金属銀に還元されたために吸着速度が低下したと考えれば、図５-６、図５-８の結果は合理的に説明される。

以上の結果からヨウ化メチル（有機ヨウ素）の吸着に用いる銀塩には硝酸銀が敵しているが、ＮＯによる硝酸銀の還元反応（反応(7)）は有機ヨウ素の吸着速度を低下させる

重要な要因であると考えられる。

そうしたＮＯの効果をより明確にするために、１．９vol%のＮＯを模擬ガス中（窒素をバランスガスとした）に混入して硝酸銀添着剤によるヨウ化メチルの破過特性を調べた。（窒素雰囲気にＮＯを混入すれば、ＮＯの酸化反応によるNO_2の生成は起こらず、全量ＮＯとしてオフガス中に存在する。）図５-９に実験結果を示す。ＮＯが存在すると吸着性能が著しく低下した。銀の利用率もＮＯの混入していない場合８０％であったものが、１．９vol%のＮＯの混入によって３５％まで低下した。

また破過後の吸着剤のＸＲＤ分析の結果を図５-１０に示す。回析像は金属銀とヨウ化銀の存在を示唆しており、残存しているはずの硝酸銀はほとんど検出されなかった。このことからＮＯによる硝酸銀の還元反応(7)が有機ヨウ素の吸着を妨害する大きな要因の一つであることが明らかになった。

水蒸気の有機ヨウ素吸着への影響

図５-１１には水蒸気のヨウ化メチル吸着への影響を示す。模擬オフガスには、ヨウ化メチル２００ppmを含む窒素中に水蒸気、NO_xをそれぞれ１０,０００ppm混入したものを用いた。図には水蒸気を含まない場合と比較したが、この条件では水蒸気の影響はほとんど見られなかった。この程度の水蒸気濃度では疎水性吸着剤への水蒸気の凝縮による吸着性能の低下はほとんど起こらないものと考えられる。しかしながら、この程度の実験では、水蒸気とヨウ化メチルの間の相互作用などを検討することができないので、結論は早計である。今後さらに吸着過程への水蒸気の影響を検討していく必要があろう。

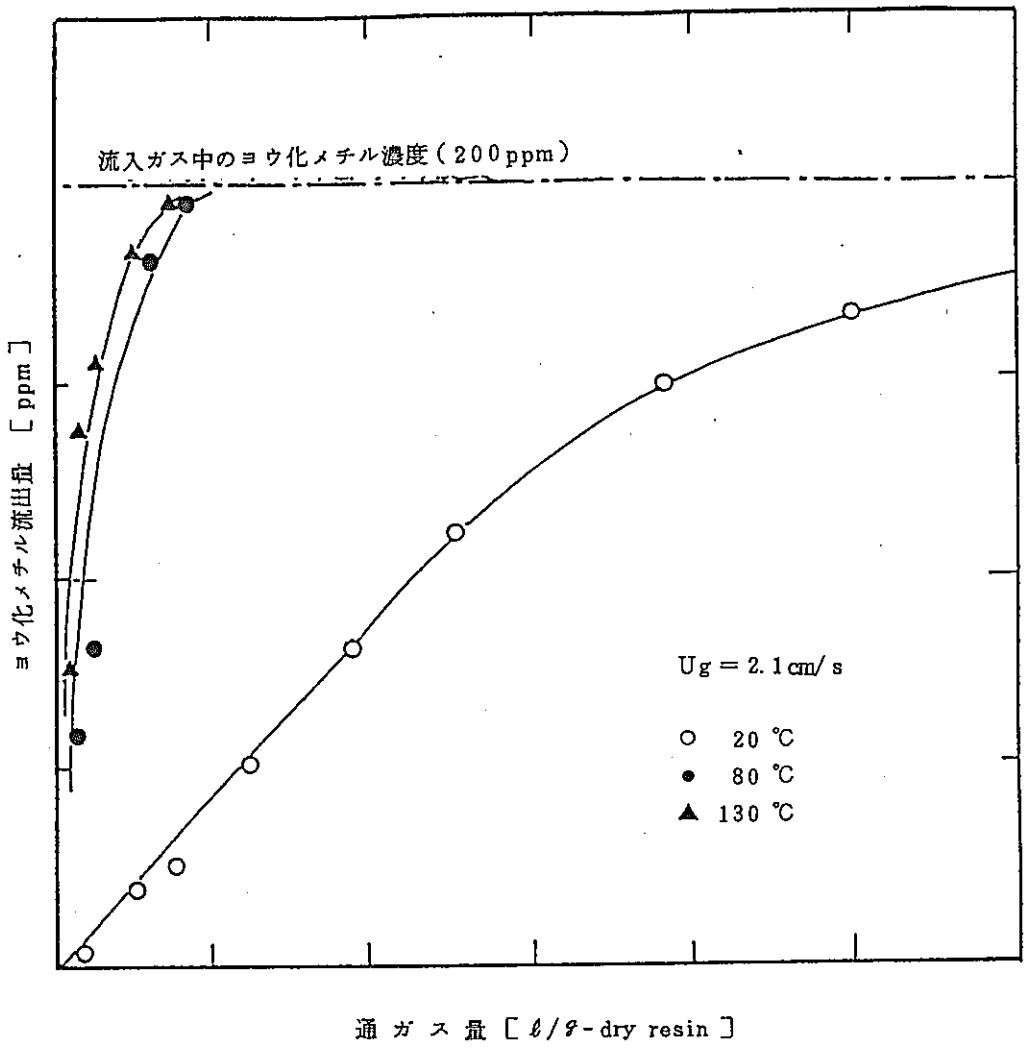


図５－１　ＳＤＢ担体へのヨウ化メチルの物理吸着

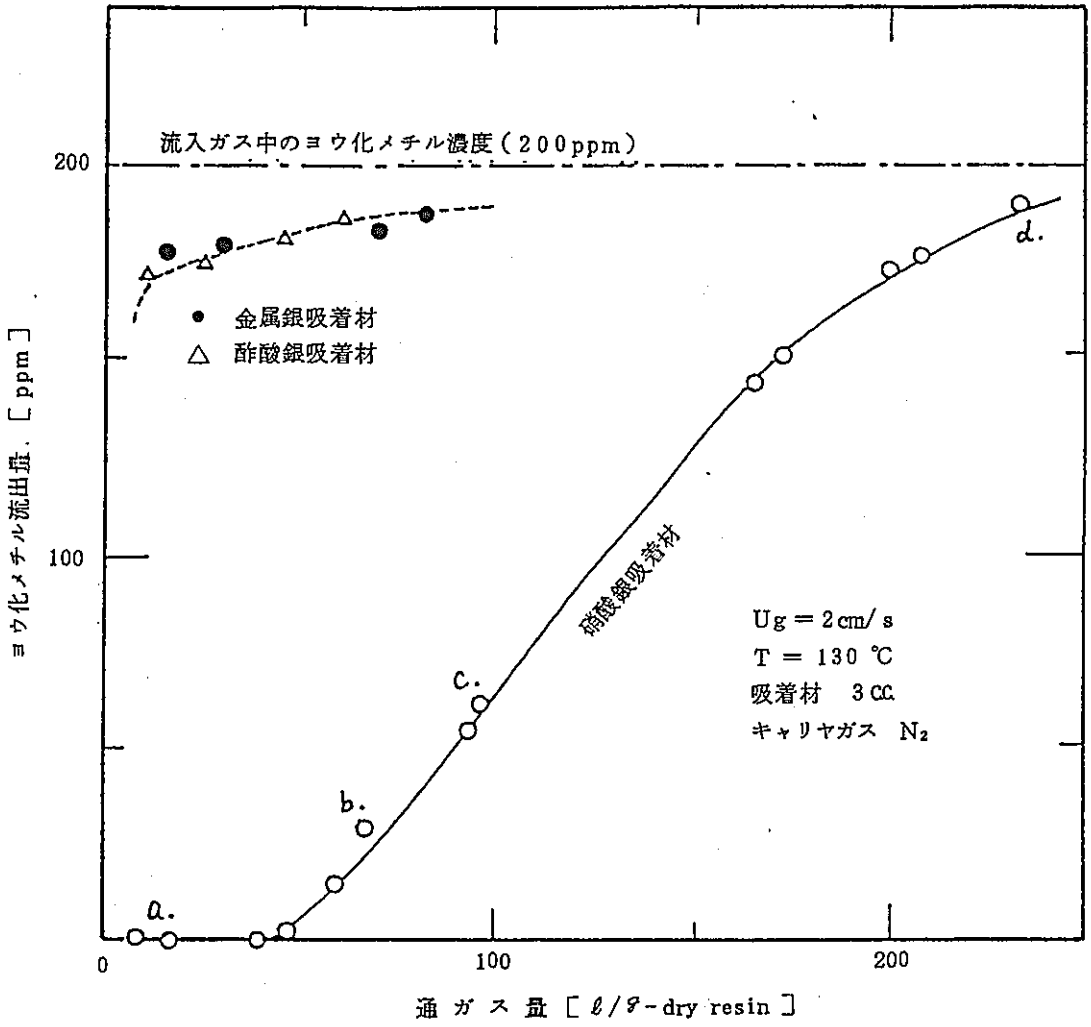


図５－２　硝酸銀、酢酸銀、金属銀を担持した吸着材のヨウ化メチル破過特性

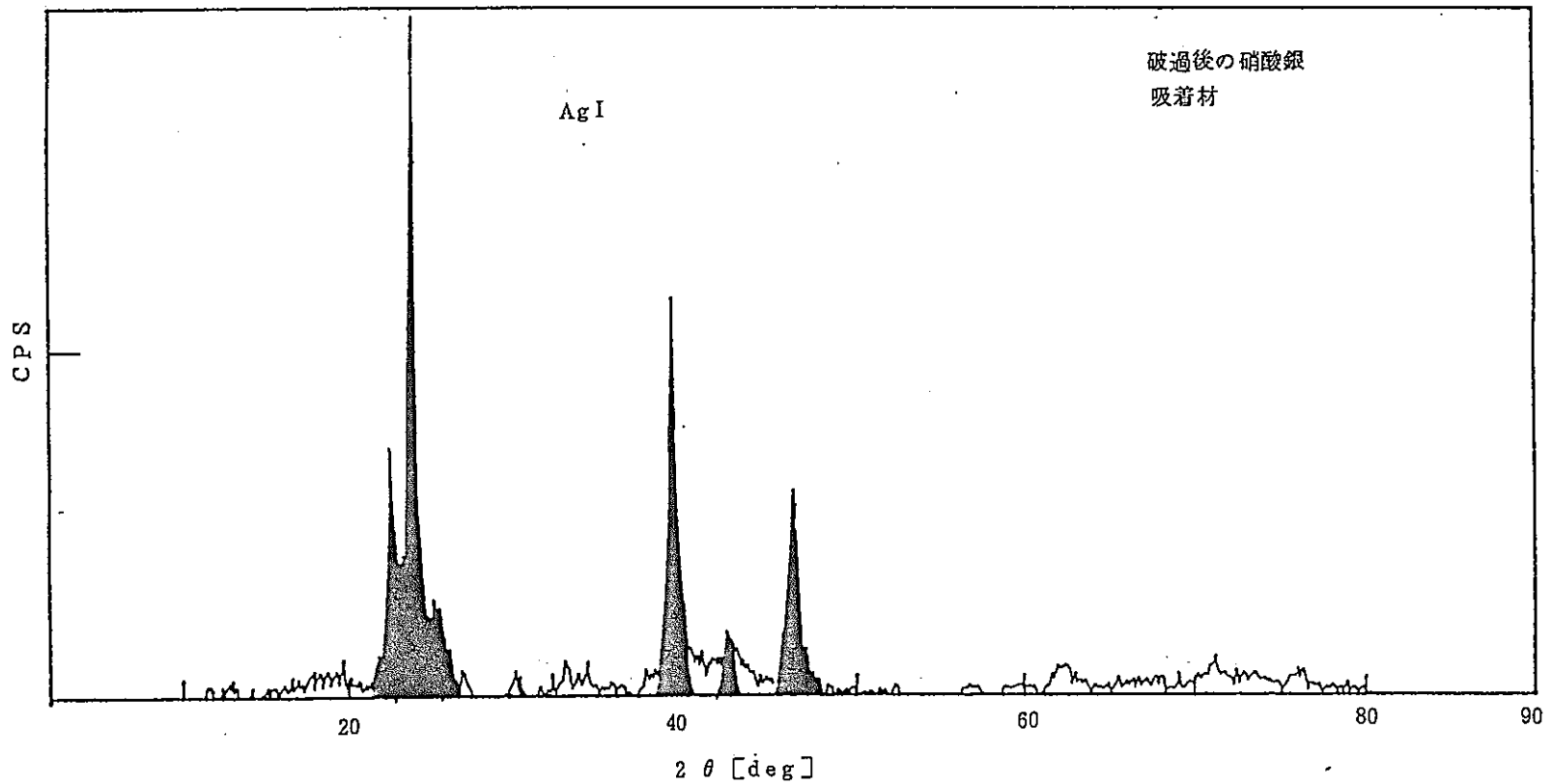


図５－３　破過後の硝酸銀吸着材のＸＲＤ分析

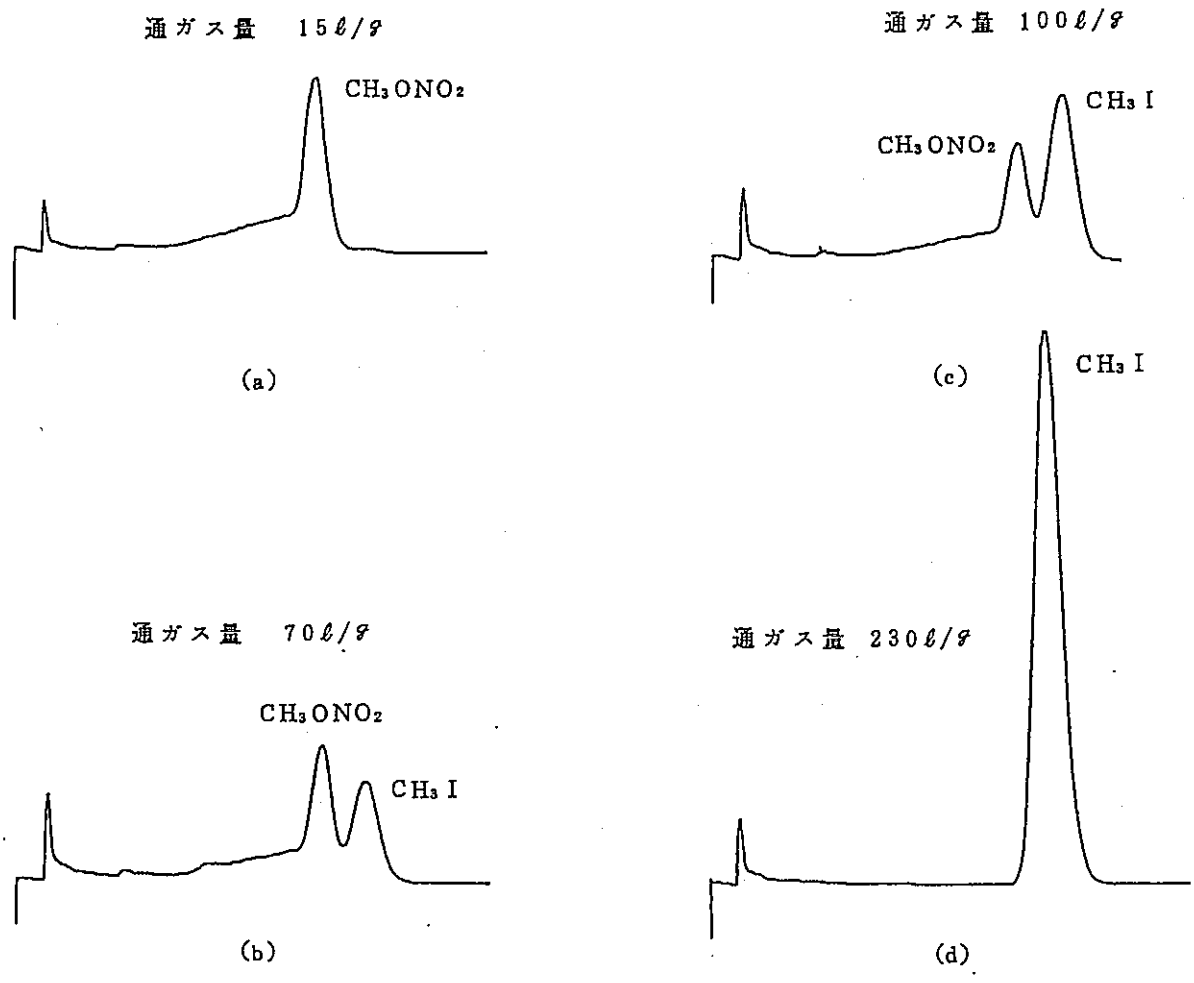


図５－４　ガスクロ分析結果（硝酸銀吸着材）

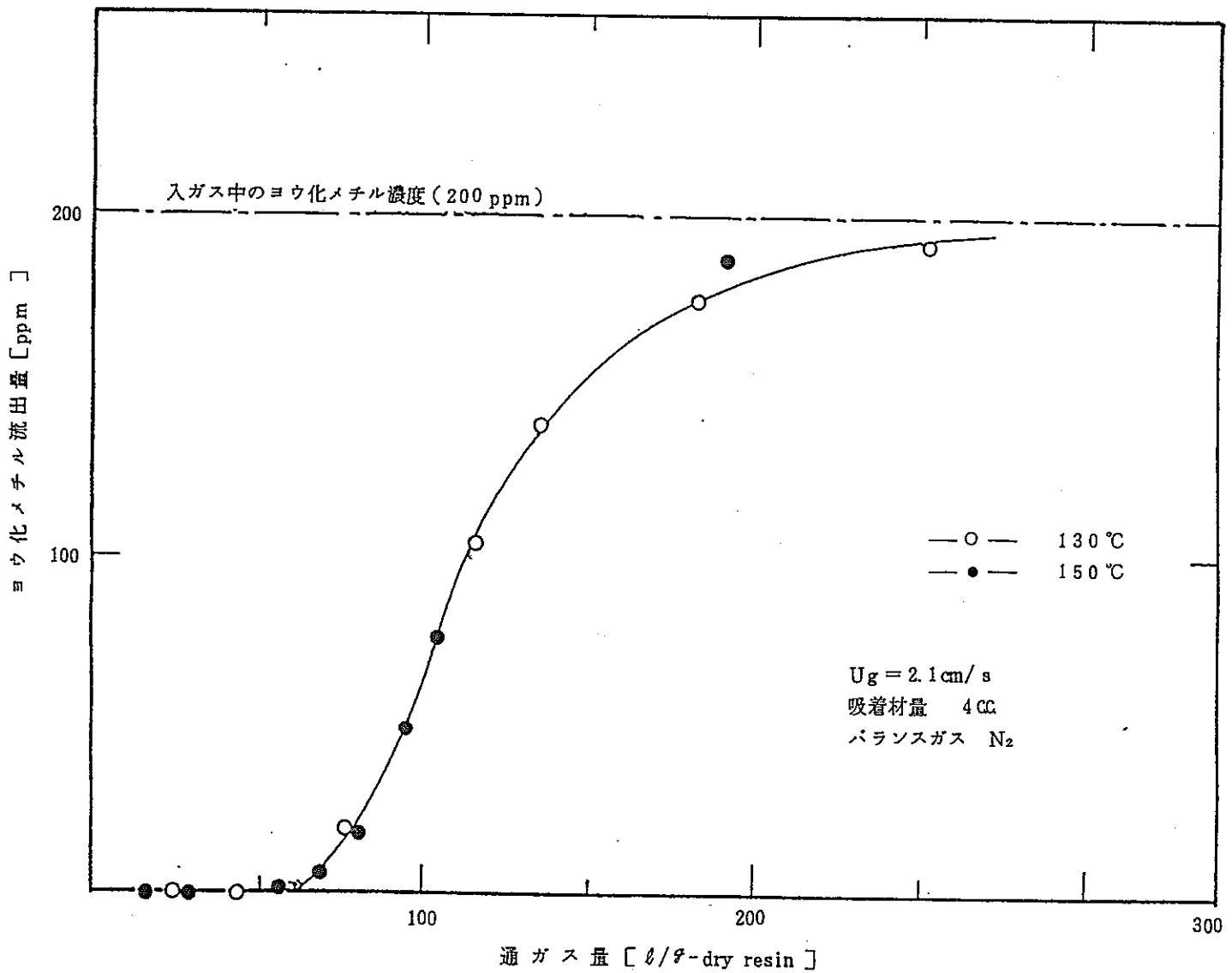


図５-５　硝酸銀吸着材のヨウ化メチル破過特性吸着温度の影響

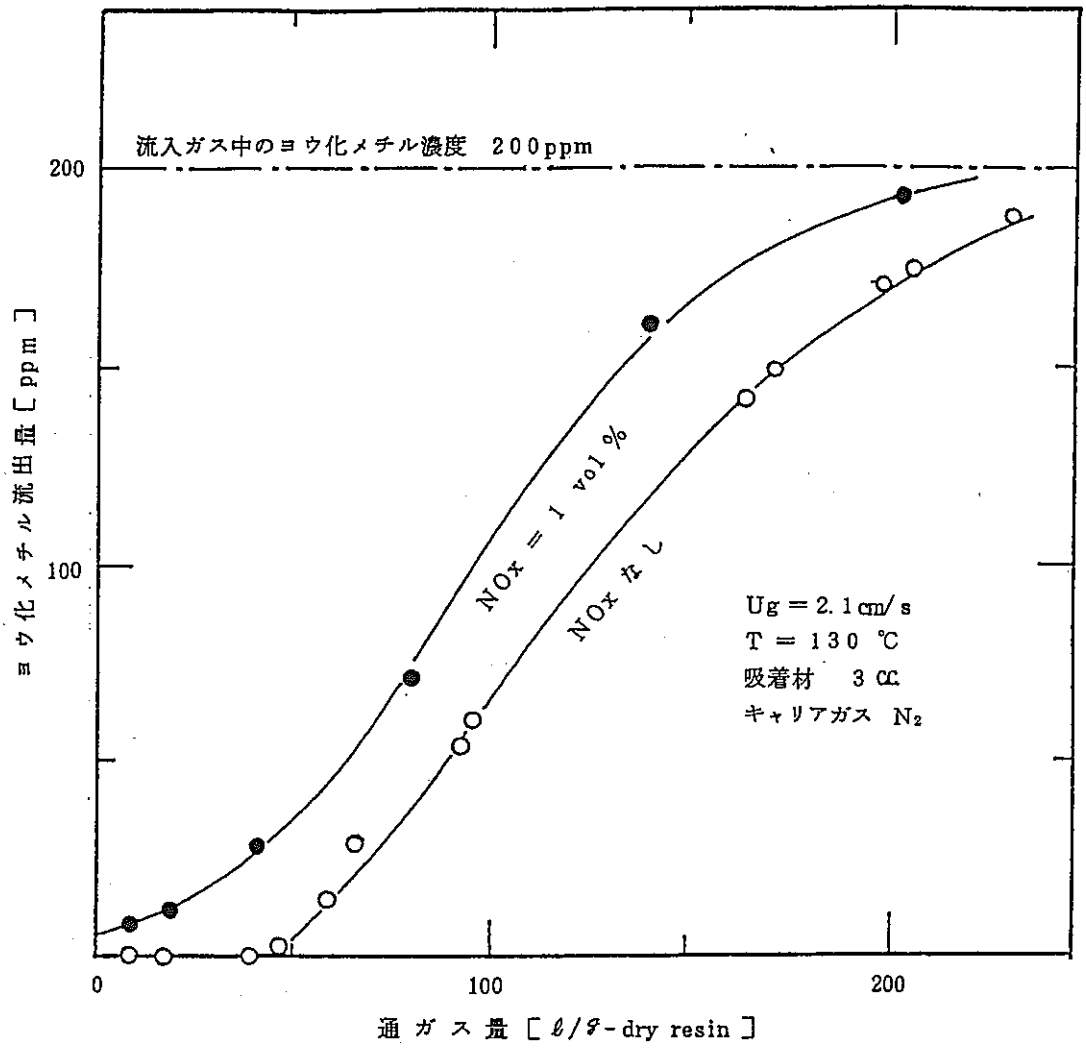


図５－６　硝酸銀吸着材のヨウ化メチル破過特性窒素酸化物の影響

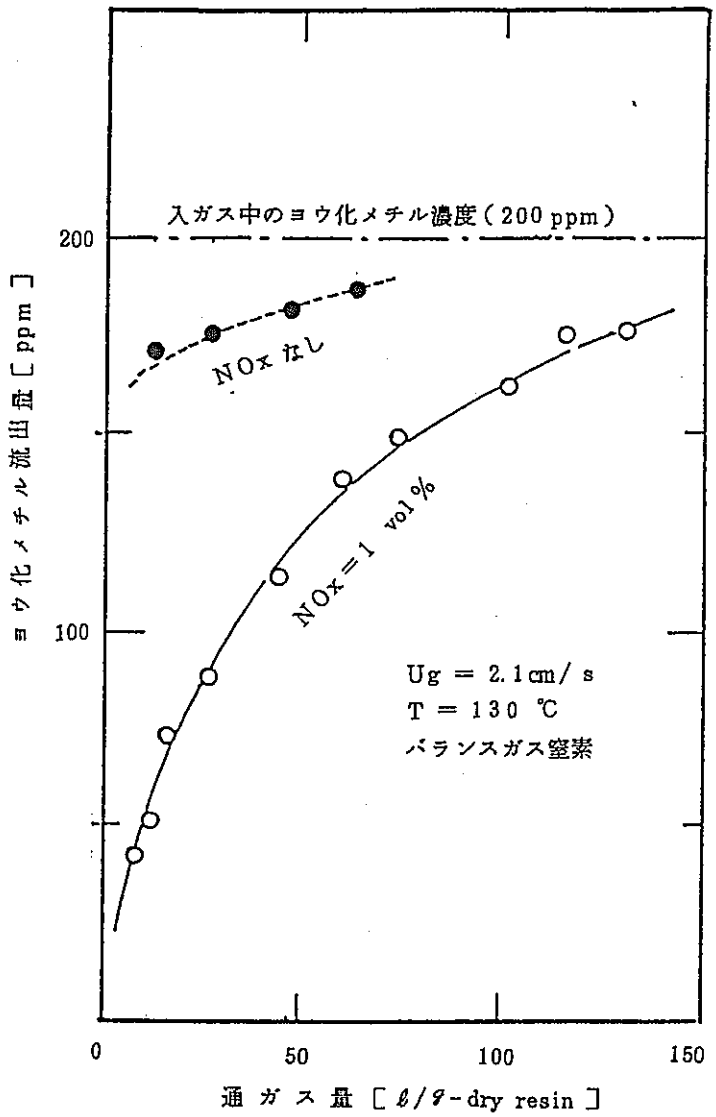


図５－７　酢酸銀吸着材のヨウ化メチル破過特性。
窒素酸化物の影響。

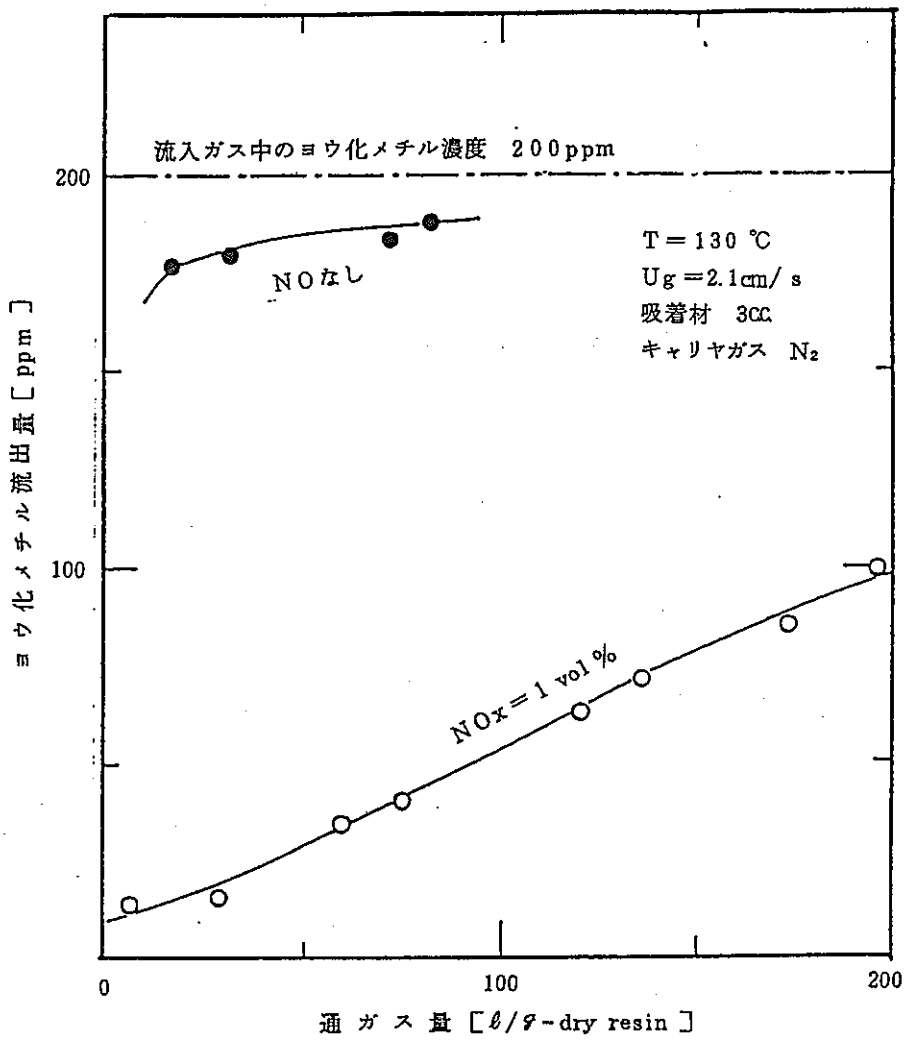


図５－８　金属銀吸着材のヨウ化メチル破過特性、窒素酸化物の影響。

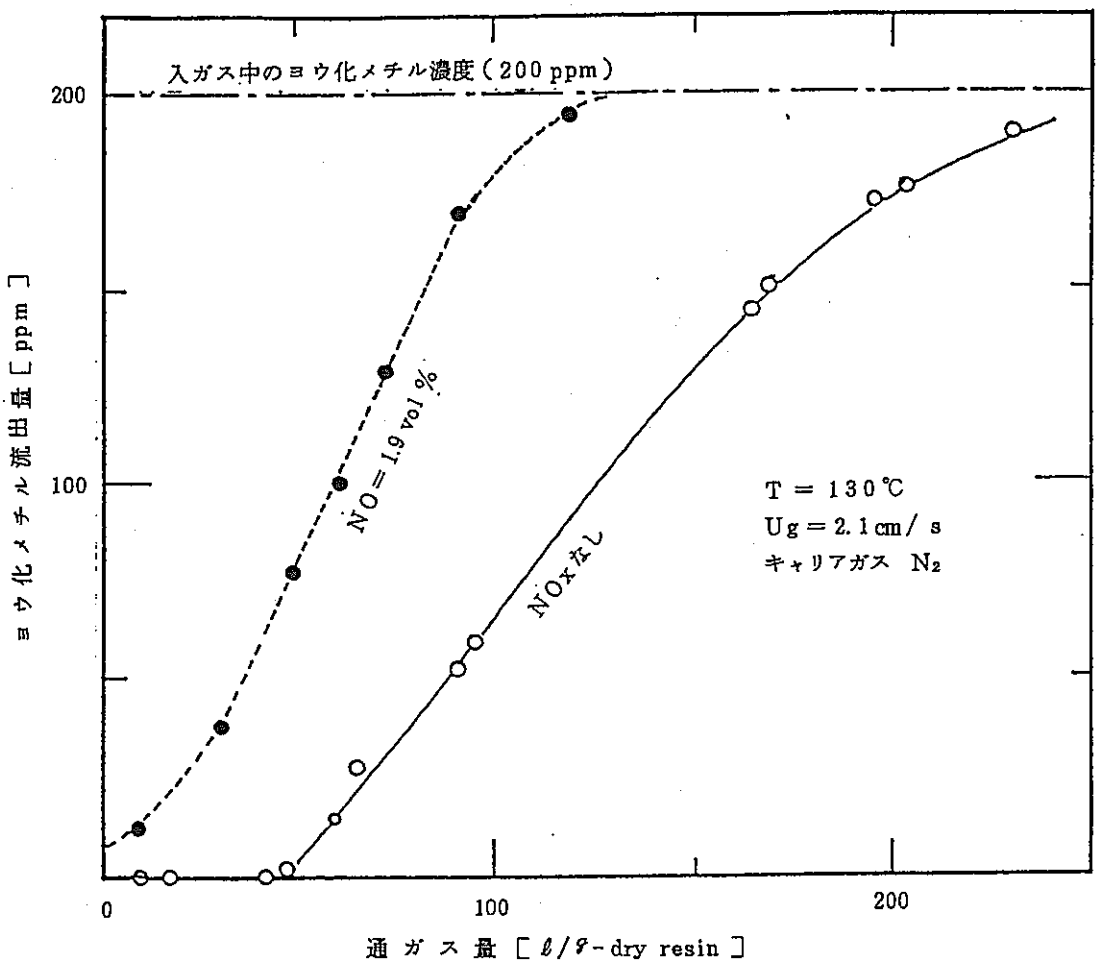


図５－９　硝酸銀吸着材のヨウ化メチル破過特性ＮＯの影響

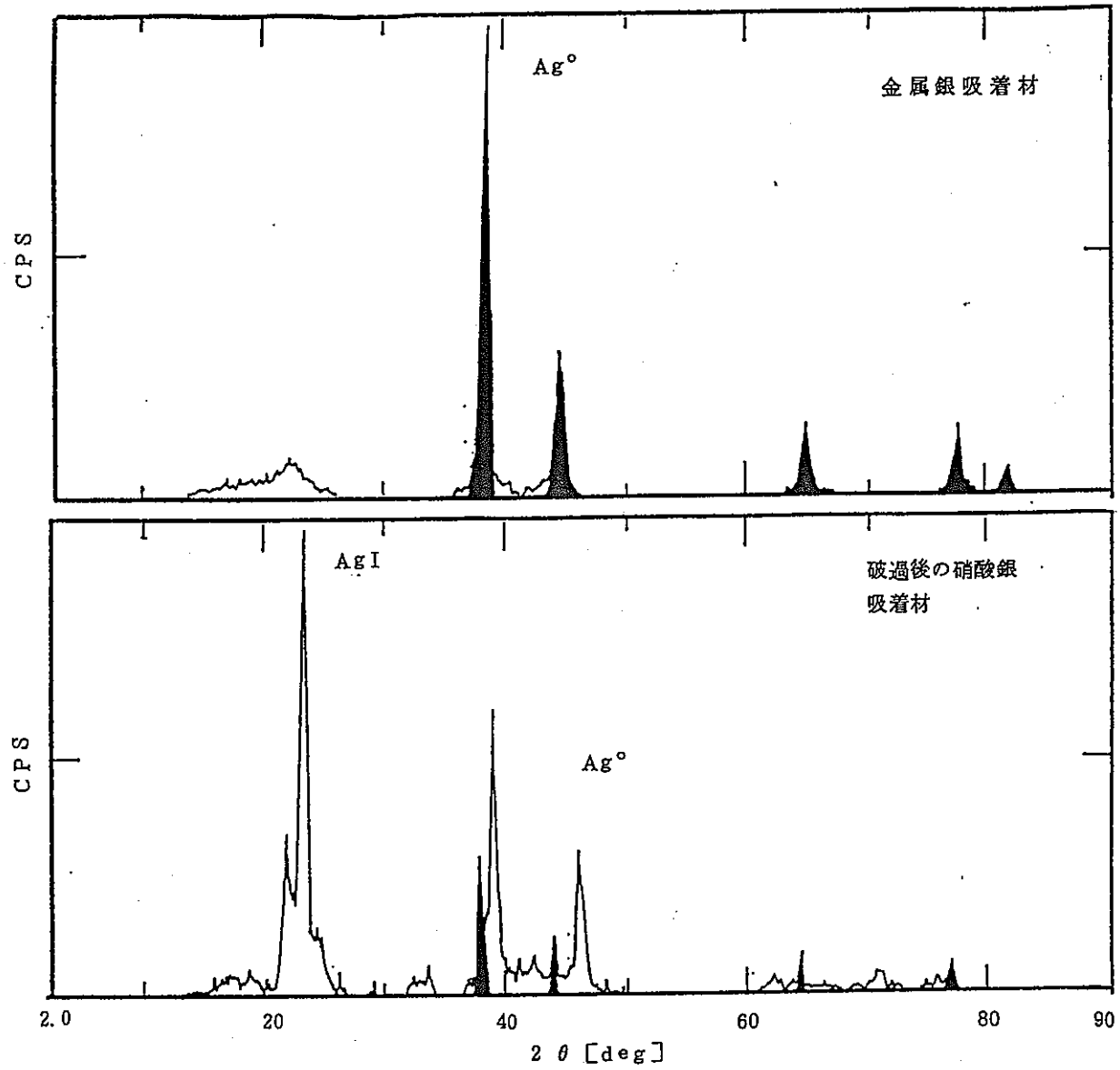


図５－１０　ＸＲＤ分析

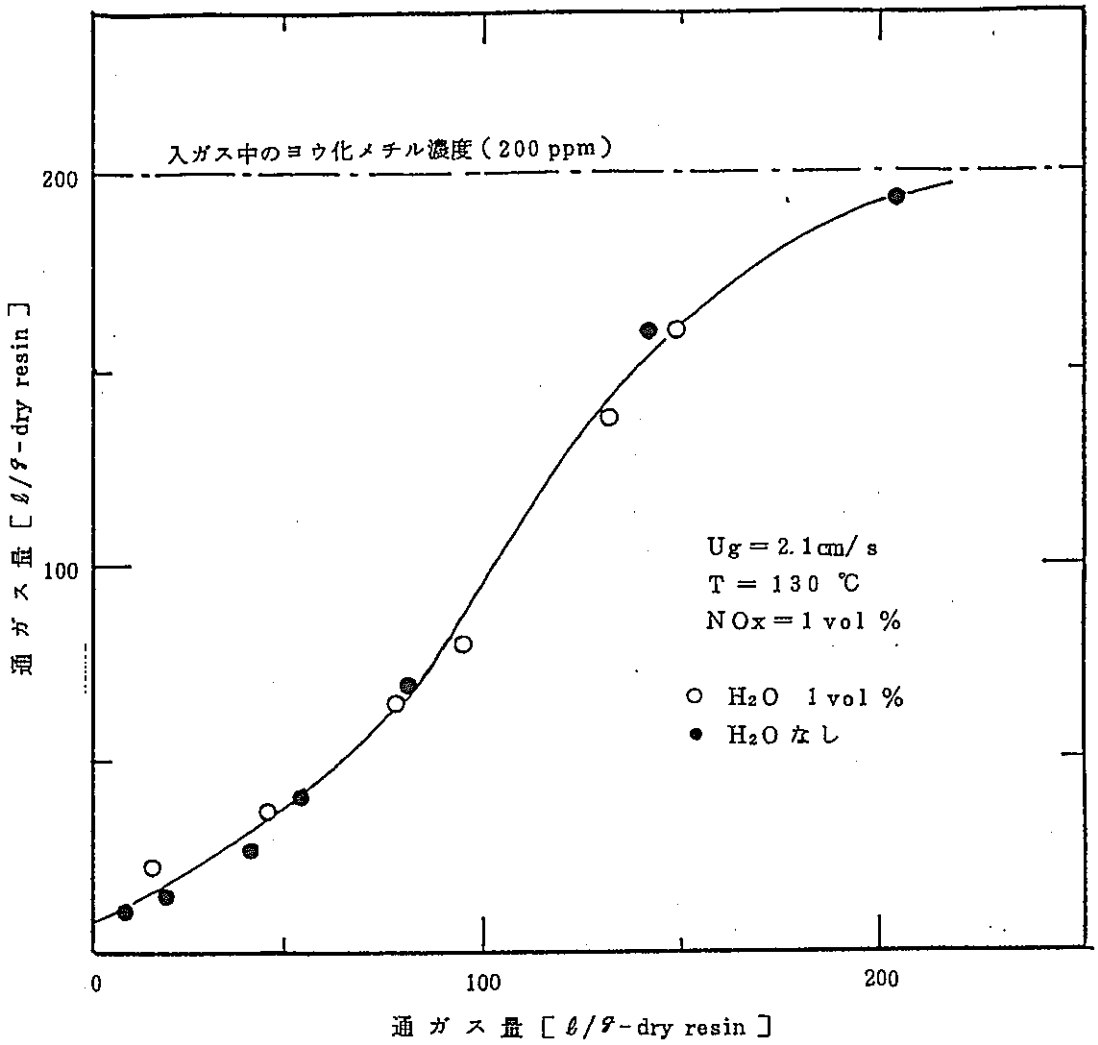


図５－１１　硝酸銀吸着材によるヨウ化メチルの破過特性。水蒸気の影響。

6．まとめ

銀添疎水性吸着剤のヨウ素および有機ヨウ素（ヨウ化メチル）に対する吸着試験結果より、疎水性吸着剤は水蒸気による吸着性能の低下はほとんどなく、長期間にわたってその吸着性能の維持が期待できることが明らかにされている。

一方、ヨウ素および有機ヨウ素の吸着特性は添着された銀の化学形態およびNO_xの共存によって、変化が生ずることが明らかにされつつある。即ち、ヨウ素の吸着に対しては銀が金属銀であろうと銀塩であろうとNO_xの共存によるヨウ素の吸着特性は影響されないが、有機ヨウ素の吸着に対してはNO_xが共存しないと硝酸銀以外は有機ヨウ素はほとんど吸着されない。ところが、NO_xが共存する場合は硝酸銀添着の吸着剤は性能が劣化し、金属銀、酢酸銀を担持した吸着剤は逆に有機ヨウ素の吸着性能が出てくることが明らかになってきている。

以上の結果より、疎水性銀添吸着剤を使い分け、吸着後の吸着剤中の銀の化学形態の変化を測定する方法は、核燃料施設等から放出されるヨウ素の化学形態の推定方法の一つとして、今後検討する価値があるものと思われる。