

ヨウ素の不活性ガス中 拡散係数測定試験（Ⅱ）

（動力炉・核燃料開発事業団 研究委託内容報告書）

1993年3月

茨城大学工学部

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。については、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

本資料についての問合せは下記に願います。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002
動力炉・核燃料開発事業団
大洗工学センター システム開発推進部・技術管理室

公開資料

PNC TJ9613 97-001

1993年3月

ヨウ素の不活性ガス中拡散係数測定試験(Ⅱ)

佐川憲彦*

要旨

ヨウ素蒸気を赤熱したフィラメント上で電離させ、これを正電位を与えたコレクターで捕集するイオン化センサーを試作し、これを用いて希ガス中のヨウ素をオンライン計測して、その特性を測定した。

気化器中でヨウ素結晶からヨウ素蒸気を発生させ、ヨウ素蒸気を希ガスで搬送してセンサーに導いた。センサーのイオン電流を連続測定し、センサーを通過したヨウ素蒸気を苛性ソーダ水溶液中に捕集して、化学分析によりヨウ素を定量した。

イオン化センサー出力の時間積分値とヨウ素捕集量とを比較した結果、ステンレス鋼コレクターを用いたセンサーでは、出力の時間積分値とヨウ素捕集量の間には相関が見出せないが、白金コレクターを用いたセンサーでは、両者の間に直線関係が認められた。

本報告書は、佐川憲彦が動力炉・核燃料開発事業団の委託（平成4年度）により実施した研究内容結果である。

契約番号：040D0129

事業団担当部課室および担当者：大洗工学センター 安全工学部
プラント安全工学室
原 広

*：茨城大学工学部機械工学科

March, 1993

A Study of Iodine Diffusion in Rare Gases (I) (aee (I))

Norihiko Sagawa *

Abstract

An ionization sensor, which ionizes iodine vapor on a heated filament and collects ionized iodine on a collector at positive potential, was made on an experimental basis. Iodine vapor in rare gas was determined with using the sensor on the line and the characteristic of the sensor was examined.

Iodine vapor was generated from iodine crystals in an iodine evaporator and transferred to the sensor with carrier-rare gas. The iodine vapor was continuously monitored by the sensor and trapped in solution of sodium hydroxide. The amount of iodine in the solution was determined by chemical analyses. The integrated value of ion current was compared with the collected amount of the iodine. A proportional relation is observed between the collected amount and the integrated value obtained from the sensor with a platinum collector, but not found between the amount and the value obtained from the sensor with a stainless steel collector.

Work performed by Norihiko Sagawa * in 1992 under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison : Plant Safety Section, Safety Engineering Division, O-arai Engineering Center, Hiroshi Hara

* : Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering, Ibaraki University

目 次

1. 緒 言 -----	(1)
2. 拡散係数の測定法 -----	(4)
2.1 凝縮法 -----	(4)
2.2 Stefan法 -----	(4)
2.3 改良した測定法 -----	(7)
2.3.1 改良した測定法の原理 -----	(7)
2.3.2 拡散方程式の解 -----	(8)
2.3.3 拡散係数の求法 -----	(11)
3. イオン化センサー -----	(13)
3.1 イオン化センサーの原理 -----	(13)
3.2 ヨウ素蒸気用イオン化センサーの試作 -----	(15)
4. 実験装置の説明 -----	(22)
4.1 ヨウ素発生装置 -----	(22)
4.2 搬送ガス精製装置 -----	(22)
4.3 イオン化センサー用電源 -----	(27)
4.4 直流微少電流測定装置 -----	(29)
4.5 測定値収録装置 -----	(29)
4.6 ヨウ素捕集装置 -----	(30)
5. 実験方法 -----	(36)
5.1 実験手順 -----	(36)
5.2 イオン化センサー出力電流の積分プログラム -----	(37)
6. 測定結果 -----	(38)
6.1 測定条件と結果 -----	(38)
6.2 イオン化センサーの出力結果 -----	(38)
6.3 ヨウ素捕集量 -----	(40)
7. 結果の検討 -----	(42)
7.1 ヨウ素を加えないときの出力電流 -----	(42)
7.2 ヨウ素を加えたときの出力電流 -----	(44)
7.3 出力電流の経時変化 -----	(49)
7.4 出力電流積分値とヨウ素捕集量の関係 -----	(53)
8. 結 言 -----	(56)
9. 参考文献 -----	(58)
謝 辞 -----	(59)
付録 1 データ収録用プログラム -----	(60)
付録 2 イオン化センサー出力電流データの 積分プログラム -----	(62)
付録 3 測定条件と結果 -----	(67)
付録 4 活性炭に吸着したヨウ素量 -----	(81)
付録 5 苛性ソーダ水溶液に溶解したヨウ素量 -----	(86)

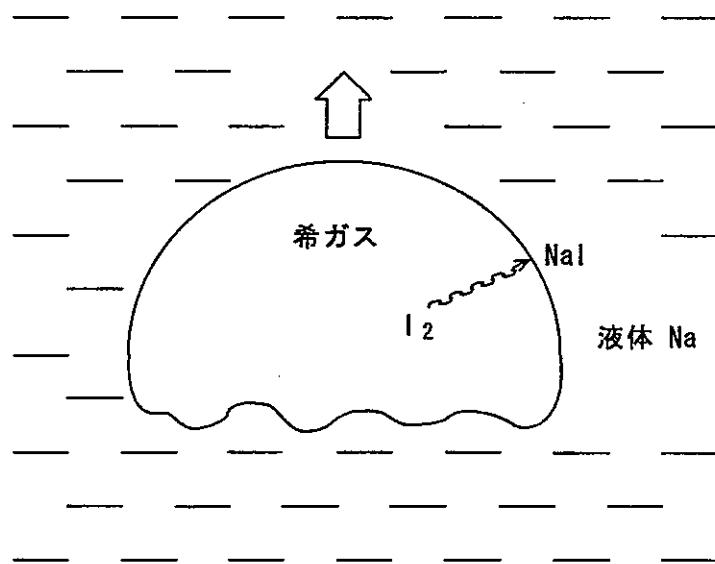
図 目 次

図 1	研究の背景	(2)
図 2	凝縮法の原理図	(5)
図 3	Stefan法の原理図	(6)
図 4	拡散モデル	(10)
図 5	拡散係数の求法	(12)
図 6	イオン化センサーの基本原理	(14)
図 7	単純構造のイオン化センサー	(17)
図 8	改良型イオン化センサーの構造	(18)
図 9	白金製コレクター	(20)
図 10	ヨウ素発生装置	(23)
図 11	ヨウ素の発生と捕集及びアルゴンの精製	(25)
図 12	イオン電流測定ブロック図	(28)
図 13	活性炭を充填したヨウ素捕集器	(31)
図 14	活性炭乾燥装置の構造	(32)
図 15	苛性ソーダ水溶液を用いたヨウ素捕集	(34)
図 16	センサー出力電流曲線と出力電流積分値	(39)
図 17	フィラメント電流を変化させたときのブランク 出力電流（高圧電源の正極をフィラメント に接続）	(43)
図 18	フィラメント電流を変化させたときのブランク 出力電流（高圧電源の負極をフィラメント に接続）	(45)
図 19	フィラメント電流による出力電流の変化	(46)
図 20	電極間電圧による出力電流の変化	(48)
図 21	出力電流の経時変化	(50)
図 22	白金製コレクターを使用したイオン化 センサーの出力電流	(52)
図 23	出力積分値とヨウ素の捕集量の関係 (活性炭によるヨウ素捕集)	(54)
図 24	出力積分値とヨウ素の捕集量の関係 (苛性ソーダ水溶液によるヨウ素捕集)	(55)

1. 緒 言

高速炉において燃料棒被覆管に割れなどが発生したと想定すると、図1に示すように、被覆管内に蓄積していた核分裂生成物のうち、核分裂収率（生成割合）が大きい希ガス、セシウム、ヨウ素等が、冷却体である液体ナトリウム中に放出される可能性がある。このような場合、希ガスは気泡となって液体ナトリウム中を上昇し、原子炉の自由液面に達してカバーガスであるアルゴンガスに混入する。セシウムは同じアルカリ金属のナトリウムに溶解し易く、液体ナトリウム中に一旦保持されるが、ナトリウムより揮発性が大であるので、その分だけカバーガス中に蒸発移行する割合が多い[1-3]。ヨウ素が単独で液体ナトリウム中に放出された場合は、ナトリウムと反応してヨウ化ナトリウムになるが、希ガスと共に放出された場合には、希ガス泡内へ蒸発しナトリウム蒸気と接触しヨウ化ナトリウムとなる。

ヨウ素がナトリウムに保持されれば、カバーガス中に移行する割合は僅少である[4]。ヨウ素がナトリウムに保持され難いと、ヨウ素がカバーガス中に移行する割合が高くなり、カバーガスの外の雰囲気中にヨウ素が漏洩する可能性が高くなる。したがって、ヨウ素を含んだ希ガスの泡がナトリウム中を上昇する間に、ヨウ素がナトリウムと結びつく割合を正確に評価することは、ヨウ素のその後の挙動を追跡する上で重要である。アルゴン中の気体の拡散係数については、いくつか測定例が報告されており[5-7]、これらからヨウ素の拡散係数を推算することは一応可能である。しかしながら、クリプトンやキセノン中の拡散係数については測定例を見い出す事は出来ず、信頼性のある実測データを求めることが必要である。



◎高速炉の燃料棒が破損したと想定

→ 核分裂生成物（希ガス、ヨウ素、セシウム）

→ ナトリウム中に放出

※希ガス : 気泡となり、ナトリウム中を上昇

※ヨウ素 : 希ガス中を乱流拡散、層流拡散

→ ナトリウムと接触し、化合

◎希ガス泡が上昇中に

ヨウ素がナトリウム中に保持される割合

→ ヨウ素の挙動を追跡する上で重要

図 1 研究の背景

ガスクロマトグラフィーでガス中のハロゲンを計測する時は、電子捕獲型の検出計が用いられるが、ガス流量が多くなると、オンライン計測するには構造上不便が生ずる。ガス中の窒素ガス中のナトリウム化合物を検出するのに、イオン化検出計を用いた例がある[8, 9]。イオン化検出計は構造が簡単であり、オンライン計測するのに適した構造である。これを用いて希ガス中のヨウ素をオンライン計測できれば、ヨウ素蒸気の拡散係数を測定するのに、新しい道が開かれることになる。

本研究では、希ガス中におけるヨウ素蒸気の拡散係数を測定する方法を明らかにし、これを適用したヨウ素用イオン化センサーを試作し、アルゴン中のヨウ素を実際に計測して、イオン化センサーを用いてヨウ素を検出することができることを示し、試作センサーの測定条件および特性を検討することを目的とする。

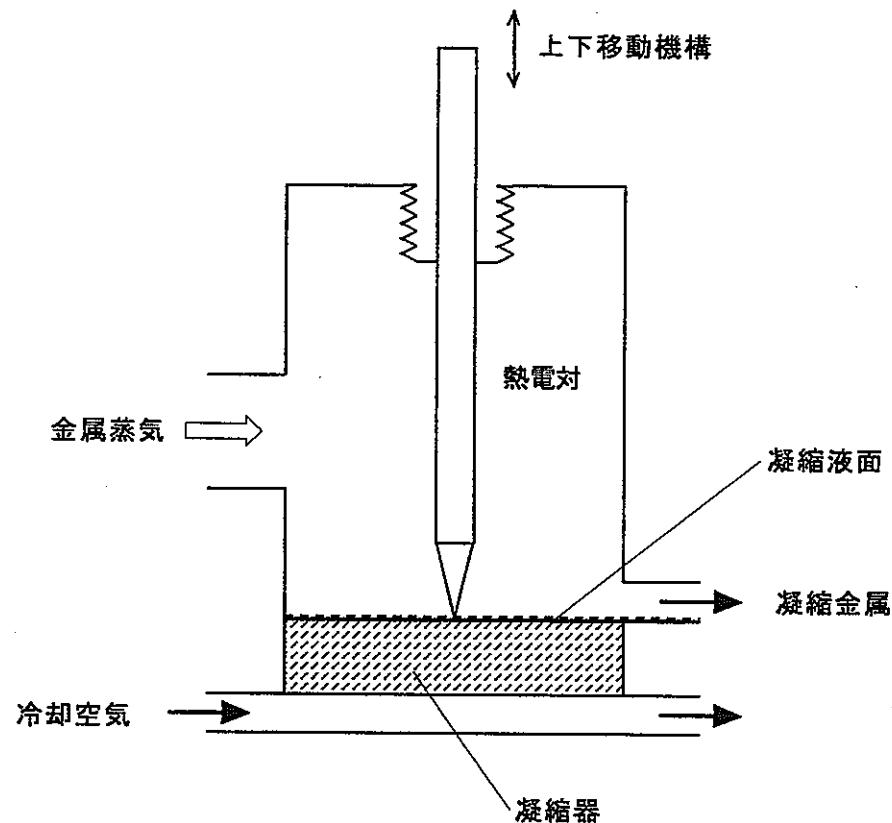
2. 拡散係数の測定法

2.1 凝縮法

Ivanovskii等[10]は凝縮過程を利用して、不活性ガス中におけるアルカリ金属の拡散係数を測定した。この凝縮法は、不活性ガス中においてアルカリ金属蒸気の凝縮面近傍の蒸気濃度分布と凝縮量を測定し、拡散係数を求めるもので、図2にその原理図を示す。蒸気濃度は直接測定することが出来ないので、凝縮面近傍の温度分布を測定し、これに対応する飽和蒸気濃度 C_s を採用している。この方法では、凝縮量の測定精度を高めることは出来るが、拡散係数の精度は温度分布の測定誤差と飽和蒸気圧式に含まれる不確かさに依存する。凝縮面近傍において、位置と温度を詳細に測定することは、装置が複雑になり測定量が増加することにつながる。

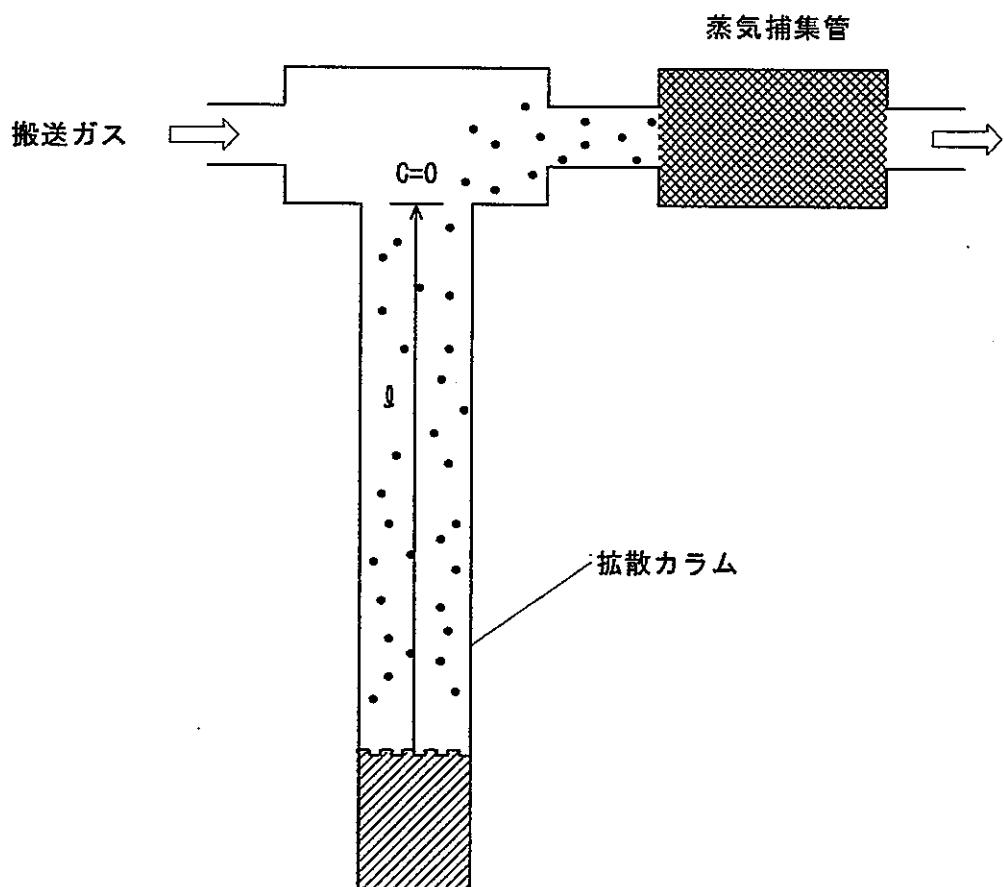
2.2 Stefan法

Khomchenkov等[11]はより簡便なStefan法を用いて、不活性ガス中におけるカリウムやセシウムの拡散係数を測定した。このStefan法は、拡散カラムの底部で拡散物質を溶融し、拡散カラムの頂部から搬送ガスによって拡散物質を捕集器に集めるもので、図3にその原理図を示す。Stefan法においても濃度を直接測定せず、溶融している物質の表面では飽和濃度 C_s になってしまっており、拡散カラムの頂部では濃度が零になることを前提にする。従って、測定時間 t の間の捕集量 Q 、拡散カラムの実効長 l 、断面積 A を測定することにより、拡散係数 D を求めることが出来る。この測定法では、定常状態のもとで拡散カラムの頂部から運ばれる物質を捕集器に集めるため、測定時間が長くなる。また、拡散物質の蒸気圧と温度の関数形が求まっているないと、飽和濃度 C_s の評価が困難になる。捕集器のフィルターが拡散物質を100%捕集しないと、捕集量 Q の評価に誤差が入る等の問題点がある。



- 問題点 ① $C_s(T)$ の関数形が不確か
 ② 温度分布の測定が困難

図 2 凝縮法の原理図



- 問題点 ① $C_s(T)$ の関数形が不確か
 ② フィルター効率が100%未満

図3 Stefan法の原理図

2.3 改良した測定法

2.3.1 改良した測定法の原理

凝縮法及びStefan法を検討すると、拡散係数の測定精度を上げるには、

①測定装置を単純にして測定条件を保持し易くすること、
②センサーを開発して拡散物質をオンライン計測すること、
がポイントであることがわかる。そこで、Stefan法を改良してこれらの問題の解決を計る。即ち、拡散カラム内を予め飽和濃度において、拡散カラムの頂部（出口）を開いて測定を開始し、過渡状態から定常状態に至るまでの経過時間中、拡散物質の濃度をオンライン計測する方法を採用する。この方法では、測定量として濃度の時間的変化を追えばよく、測定時間もStefan法より短くてよい。

- ①拡散カラムの底部に溶融ポットを接続し、拡散物質（ヨウ素）を加熱して、その一部を昇華させる。
- ②拡散カラムの頂部にはベローズバルブの弁座を接続し、バルブを閉じて拡散カラムの中にヨウ素蒸気と希ガスを閉じこめる。
- ③ベローズバルブを開いて、カラム中を拡散してくる物質をイオン化センサーに搬送し濃度の時間的変化を追う。
- ④拡散物質を搬送ガスによって捕集器に運び、その中の活性炭あるいは苛性ソーダ水溶液に捕集する。

2. 3. 2 拡散方程式の解

拡散カラムに一次元の拡散方程式を適用すると

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

ここで、 D = 拡散係数 [cm²/s]

C = 拡散物質の濃度 [mol/cm³]

(アルゴン中のヨウ素濃度)

である。

初期条件及び境界条件はそれぞれ

$t = 0$ (測定開始) で $C = C_s$ (飽和濃度)

$x = 0$ (液面) で $C = C_s$ (飽和濃度)

$$x = \varrho \quad (\text{頂部}) \quad \text{で} \qquad \qquad c = 0$$

のようになる。(1)式の解は

$$C = C_s \left[\left(1 - \frac{x}{\ell} \right) - \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n} \exp \left(- \frac{D n^2 \pi^2 t}{\ell^2} \right) \sin \left(\frac{n \pi x}{\ell} \right) \right]$$

(2)

となる。拡散カラムの断面積を A [cm²] として、頂部端面 ($x = l$) を測定開始から時刻 t までの間に通過する拡散物質の量 Q を求めると、

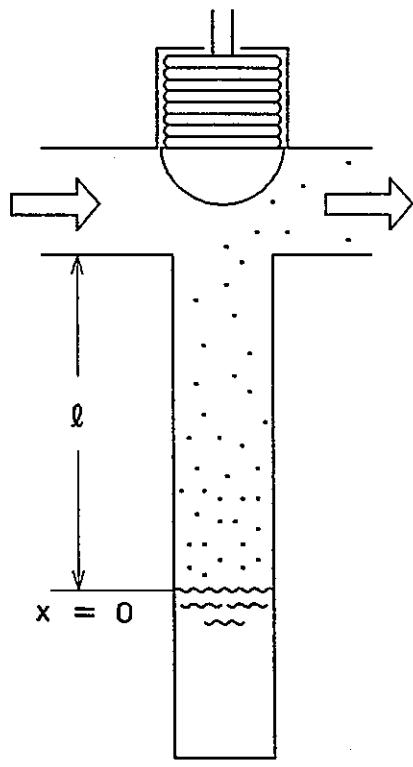
$$\begin{aligned}
 Q &= A C_s D \int_0^t \left[\frac{\partial C}{\partial x} \right]_{x=1} dt \\
 &= \frac{A C_s D}{\ell} \left[t + \frac{\ell^2}{3D} - \frac{2\ell^2}{D\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left(-\frac{D n^2 \pi^2 t}{\ell}\right) \right]
 \end{aligned}
 \quad \cdots \cdots \cdots \quad (3)$$

を得る。(3)式よりQは零から出発するが第3項以降は時間と共に減衰するので、定常状態に近づくと

$$\frac{Q}{A C_s} = \frac{D}{\ell} \left(t + \frac{\ell^2}{3D} \right)
 \quad \cdots \cdots \cdots \quad (4)$$

なる直線に漸近することがわかる。

拡散方程式



$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}$$

$$\begin{aligned} \text{I.C. } t = 0 \quad & C = C_s \\ \text{B.C. } x = 0 \quad & C = C_s \\ x = l \quad & C = 0 \end{aligned}$$

方程式の解

$$\begin{aligned} \frac{C}{C_s} = & \left(1 - \frac{x}{l} \right) - \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n^2} \exp \left(-\frac{D n^2 \pi^2 t}{l^2} \right) \\ & \times \sin \left(\frac{n \pi x}{l} \right) \end{aligned}$$

カラム頂部からの移動量

$$Q = A C_s D \int_0^t \left[-\frac{\partial C}{\partial x} \right]_{x=l} dt$$

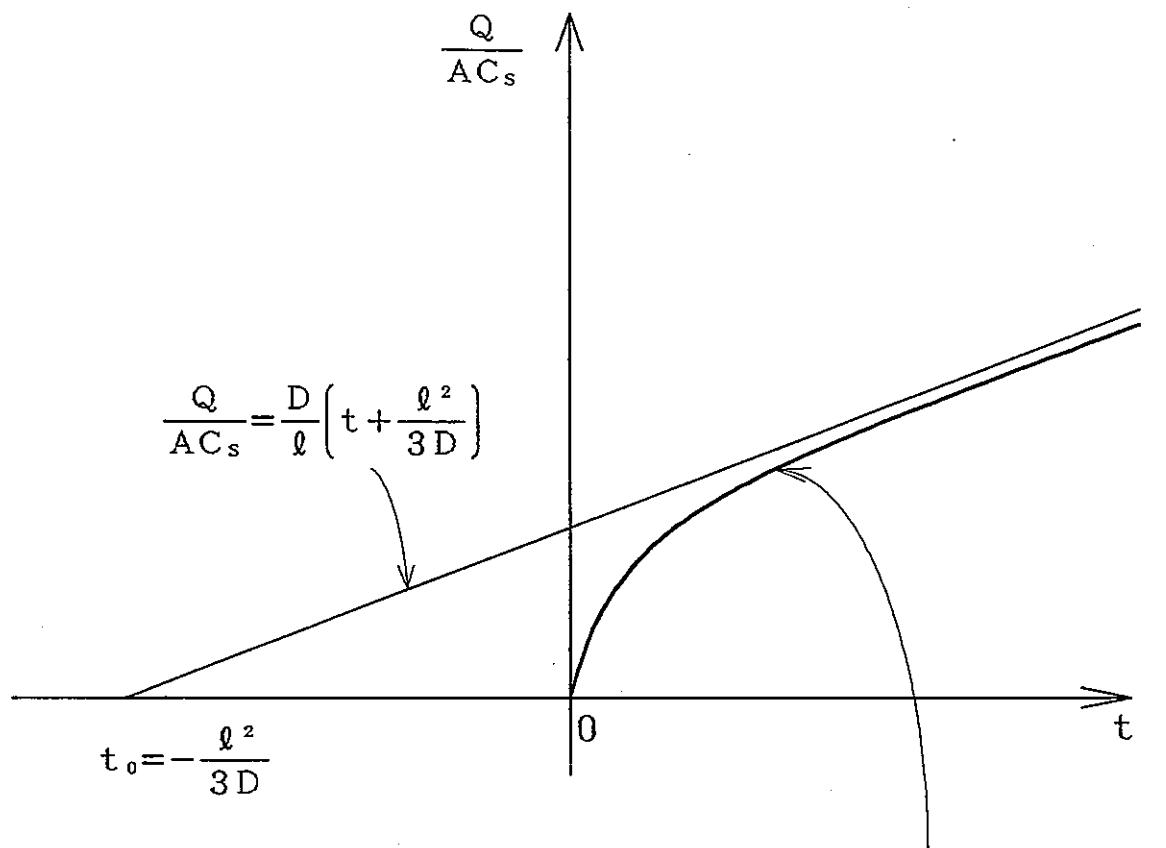
$$= \frac{A C_s D}{l} \left[t + \frac{l^2}{3D} - \frac{2l^2}{D\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \left(-\frac{D n^2 \pi^2 t}{l^2} \right) \right]$$

図 4 拡散モデル

2. 3. 3 拡散係数の求法

拡散カラムの頂部端面を通過する拡散物質の量を、拡散カラムの断面積と飽和濃度とで規格化し、時間の関数で表わすと図5の曲線のようになる。この規格化した($Q/A C_s$)の漸近線が(4)式の直線である。したがって、測定結果から拡散係数を求める場合には、時間を追って($Q/A C_s$)をプロットして行き、($Q/A C_s$)が直線的変化を示すようになったらこれの接線を引き、時間軸を切る点 t_0 から

の関係を用いて拡散係数を計算すればよい。この t_0 の位置は $(Q/A C_s)$ に依らず独立に決まる。



$$\frac{Q}{AC_s} = \frac{D}{l} \left[t + \frac{l^2}{3D} - \frac{2l^2}{D\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \left(-\frac{D n^2 \pi^2 t}{l^2} \right) \right]$$

図 5 拡散係数の求法

3. イオン化センサー

3.1 イオン化センサーの原理

イオン化センサーの基本原理は、図6に示すように、フィラメントとコレクターから成る二極管において、搬送ガス中の金属発生（例えばナトリウム）を、高温に加熱したフィラメントの表面でイオン化して、発生するイオン電流の大きさから、その蒸気濃度を測定するものである。フィラメントは2~5A程度の直流によって加熱し、フィラメントとコレクターとの間には、400V程度の直流電圧を印加する。この両者の間を流れるイオン電流は、直流微少電流計などを用いて測定する。フィラメントに衝突した金属蒸気のうち、一部はフィラメントに物理吸着してイオン化エネルギーを得る。フィラメントの表面でイオンとなった金属蒸気は、高温度のフィラメントから脱離し外側のコレクターに捕集される。このイオン電流はフィラメント近傍の金属蒸気濃度に比例する。

高温に加熱したフィラメントの近傍では、中性の金属原子の一部が電離してプラズマ化し、前述のイオン電流値が変化する可能性が考えられる。しかし、フィラメント温度が1000°C、原子密度が常圧程度では、このプラズマの影響は無視できる[9]。

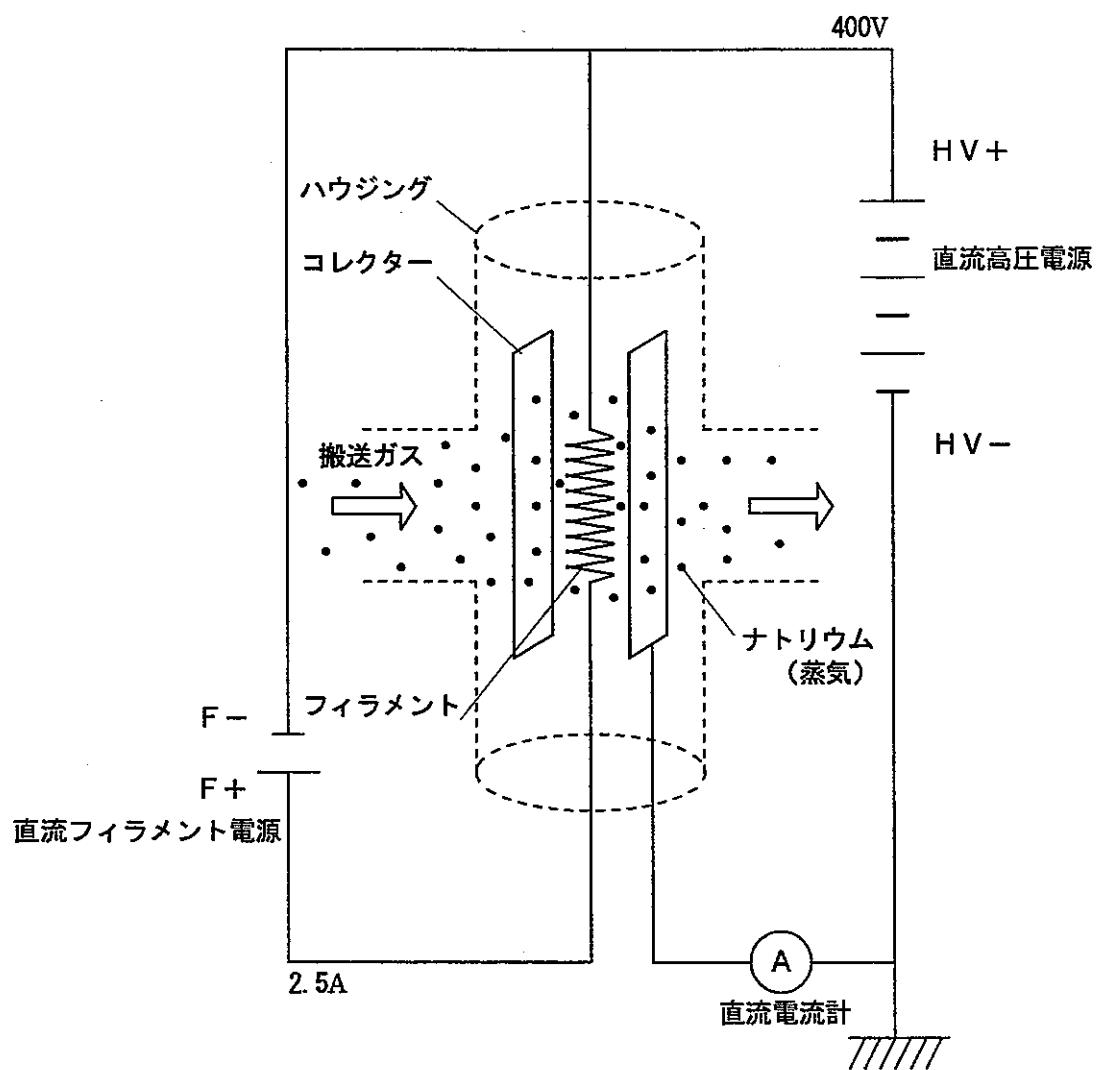


図 6 イオン化センサーの基本原理

3.2 ヨウ素蒸気用イオン化センサーの試作

(a) 電極極性の変更

ヨウ素蒸気は I_2 の分子である。 I_2 は熱で解離し、さらにイオン化すると I^- となる。従って、電極の極性をナトリウム蒸気用イオン化センサーの場合と逆にすれば、イオン化したヨウ素 I^- が正極のコレクターに捕集され、イオン電流からヨウ素の濃度を知ることができるのでないかと着想した。

(b) 構造の簡便化

ヨウ素蒸気も、ナトリウム蒸気と同様に飽和温度より低温の部分に直ちに凝着する。さらにヨウ素は金属表面に化学吸着する性質がある。そこで、図 7 に構造図を示すように、センサーの主導管をパイレックスガラス製にし、直径 0.8 mm のコバルト線電極にフィラメントおよびコレクターを取り付け、中間ガラスを介してガラス管外へ引き出す構造にした。

フィラメントには酸化し難い白金を用い、直径 0.3 mm の素線を内径 0.8 mm のコイル状に巻いたもの（発熱長 15 mm）を用いた。コレクターにはステンレス鋼 (13Cr) の薄板を用い、フィラメントとの接触を避けるため下に開口の鞍型にした。パイレックスガラス管は中間ガラスを介してコバルト管と継ぎ、拡散カラム出口導管と接続（スウェージロック）した。パイレックスガラス管の出口端はテープをつけ、ヨウ素捕集器の入口とスリリ合わせる構造とした。

(c) フィラメントの改良

白金フィラメント付イオン化センサーを用いた拡散係数測定実験において、実験の回を重ねるごとにセンサー出力が低下した。経時的にセンサー出力が低下することから、センサーのフィラメントに使用した白金とヨウ素が反応したために、電流が流れにくくなつたものと考察した。そこで図8に示すように、フィラメントに炭化ケイ素(SiC)が主成分のセラミックヒーター(Norton K.K. Model 301)を用い、このヒーターをセンサー主導管の中央下部から上向きに挿入する形とし、ヒーター絶縁体とシリコーンで接着した。最初のコレクターは、0.3mm厚のステンレス鋼(13Cr)板とし、リード線はセンサー主導管の上方に引き出す構造とした。また、形状は同様に下に開口の鞍型とした。

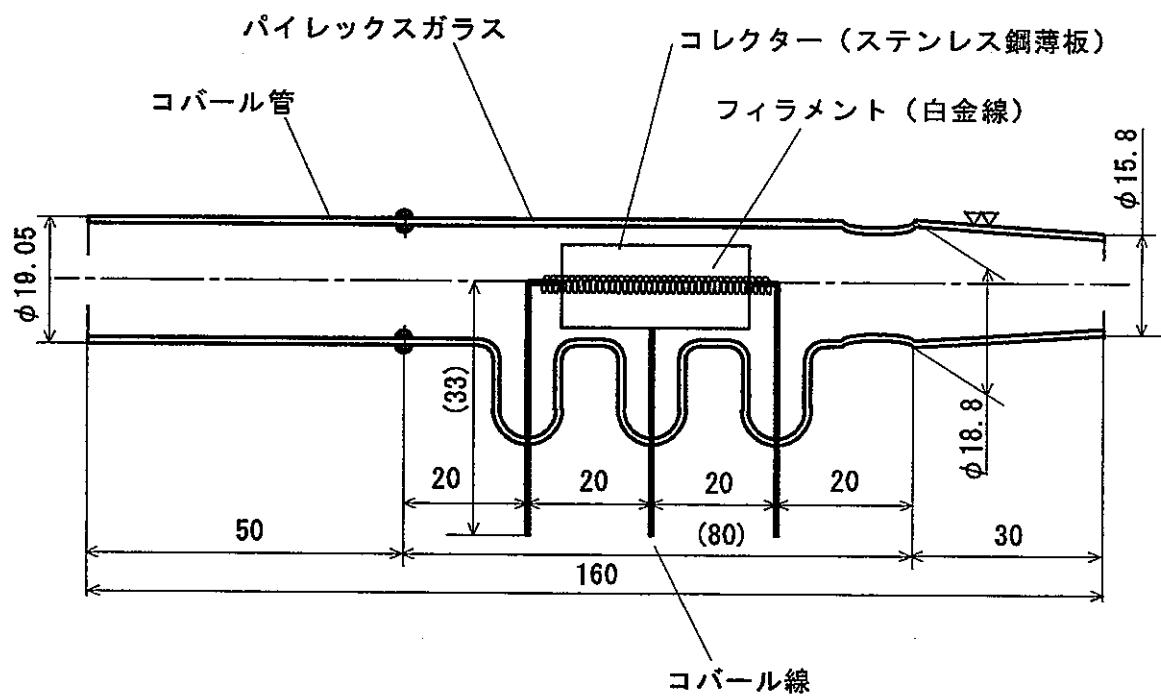


図 7 単純構造のイオン化センサー

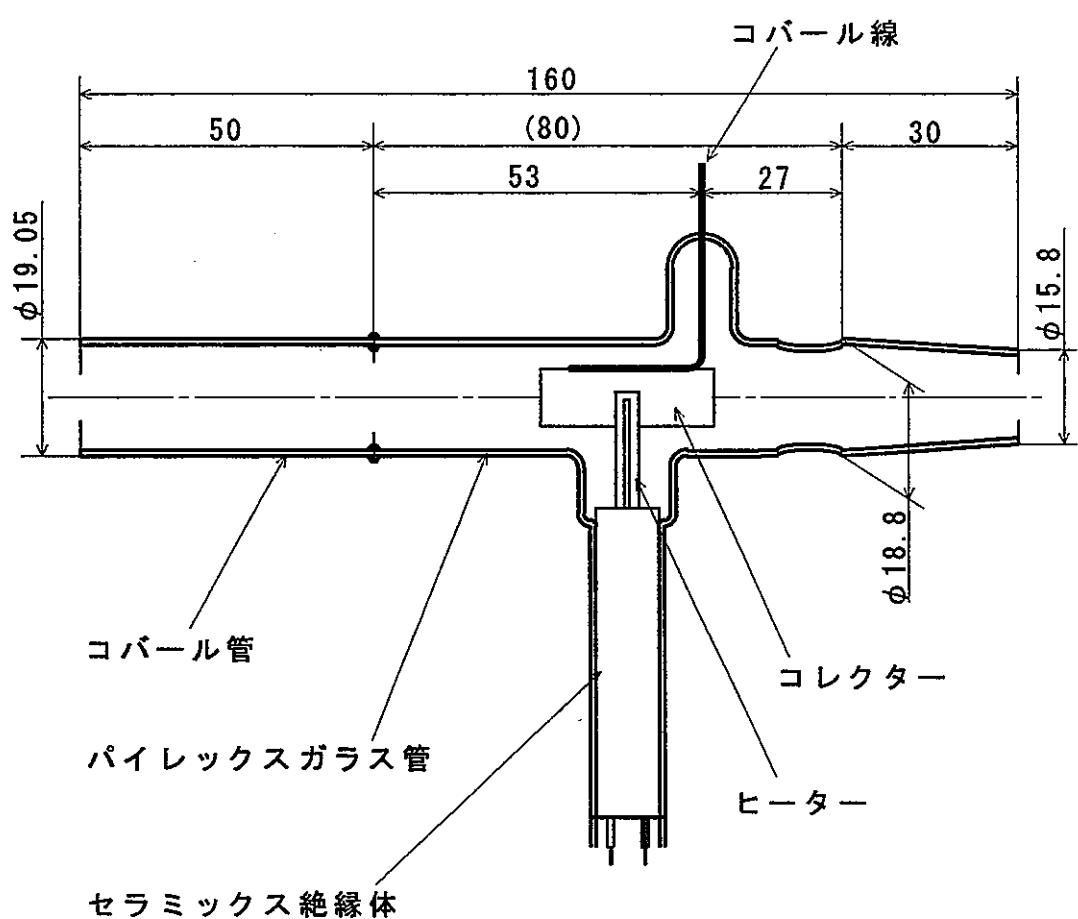


図 8 改良型イオン化センサーの構造

(e) コレクターの改良

ヨウ素と白金が反応して生成するヨウ化白金は、分解温度が約30°Cと比較的低いので、コレクター表面上のヨウ化白金は、フィラメントの熱により分解する可能性がある。ヨウ化白金が分解すれば、自己洗浄作用によってコレクター表面の導電性を保持できると考えられる。改良したコレクターは、図9に示すように、寸法 $30 \times 26 \times 0.3t$ の白金板を鞍型に成形し、0.8mmの白金線をコレクターの稜線に沿って点溶接してリード線とした。L字型に曲げたりード線の根本を $10 \times 4 \times 0.3t$ の白金板により補強した。放電が起こりにくくないように、鞍型のコレクターをより半円形に近づけ、下端を外側に折り返して突起部の少ない形状とした。白金線は0.8mmのコバール線とかじめて接続しパイレックスガラス製の主導管から引き出す構造とした。

写真1にイオン化センサーを測定装置に組み込んだところを示す。

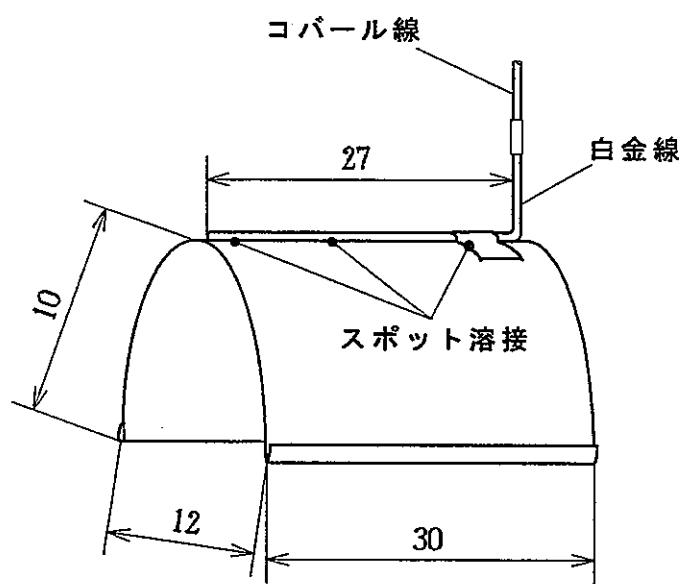


図 9 白金製コレクター

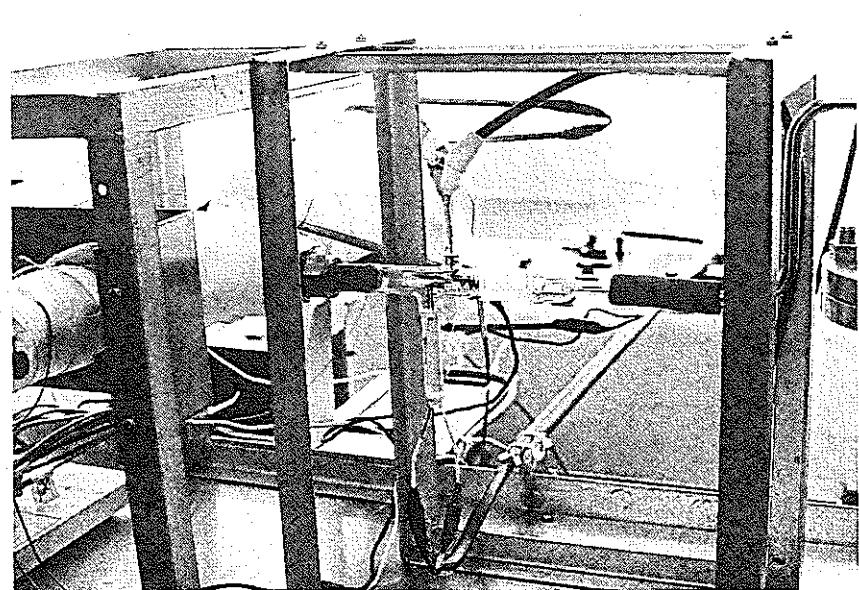


写真1 イオン化センサーの組み込み

4. 実験装置の説明

4.1 ヨウ素発生装置

ヨウ素は金属表面に化学吸着する性質があるので、ヨウ素を気化する容器はパイレックスガラス製とし、図10に示すような形状を作る。ヨウ素は有害物質であるので、ガラス容器が割れてもヨウ素が直ちに外部に漏洩しないように、ガラス容器をアルミニウムのホルダーで包み、ステンレス鋼製の保護容器に収納する。保護容器の外周にはステンレス鋼被覆のヒータを巻く。アルミニウムホルダーは熱をよく伝導するので、ガラス容器の温度は均一化する。ガラス容器の出口はコバルト管と溶着し、保護容器との熱膨張差を吸収するためのベローズを介して、ヨウ素発生装置の出口導管と接続する。

写真2にヨウ素発生装置を実験装置に組み込んだところを示す。

4.2 搬送ガス精製装置

ヨウ素以外の不純物がイオン化されるのを防止するため、搬送ガスの純度は十分高く保つ必要がある。搬送ガスにはアルゴンは超高純度のもの(99.999%)を用いるが、さらに脱水分と脱酸素を図る。図11にアルゴンの精製装置を示す。ボンベよりアルゴン(東洋高圧ガス(株)製 圧力 $150\text{Kg}/\text{cm}^2$)を供給し、U字形管の水分捕集器と酸素捕集器の中を通して、ヨウ素発生装置の出口導管を開閉するベローズバルブの流入側ノズルに導く。

水分捕集器には、小粒状シリカゲル(和光純薬工業製 青色)を約100g充填し、水分捕集を室温で行なった。酸素捕集器には、有機元素分析用還元銅線(キシダ化学製 $0.6\phi \times 2\sim 5\text{mm}$)を各々約360g充填し、酸素捕集を 400°C で行なった。

写真3に実験装置の全景を示す。

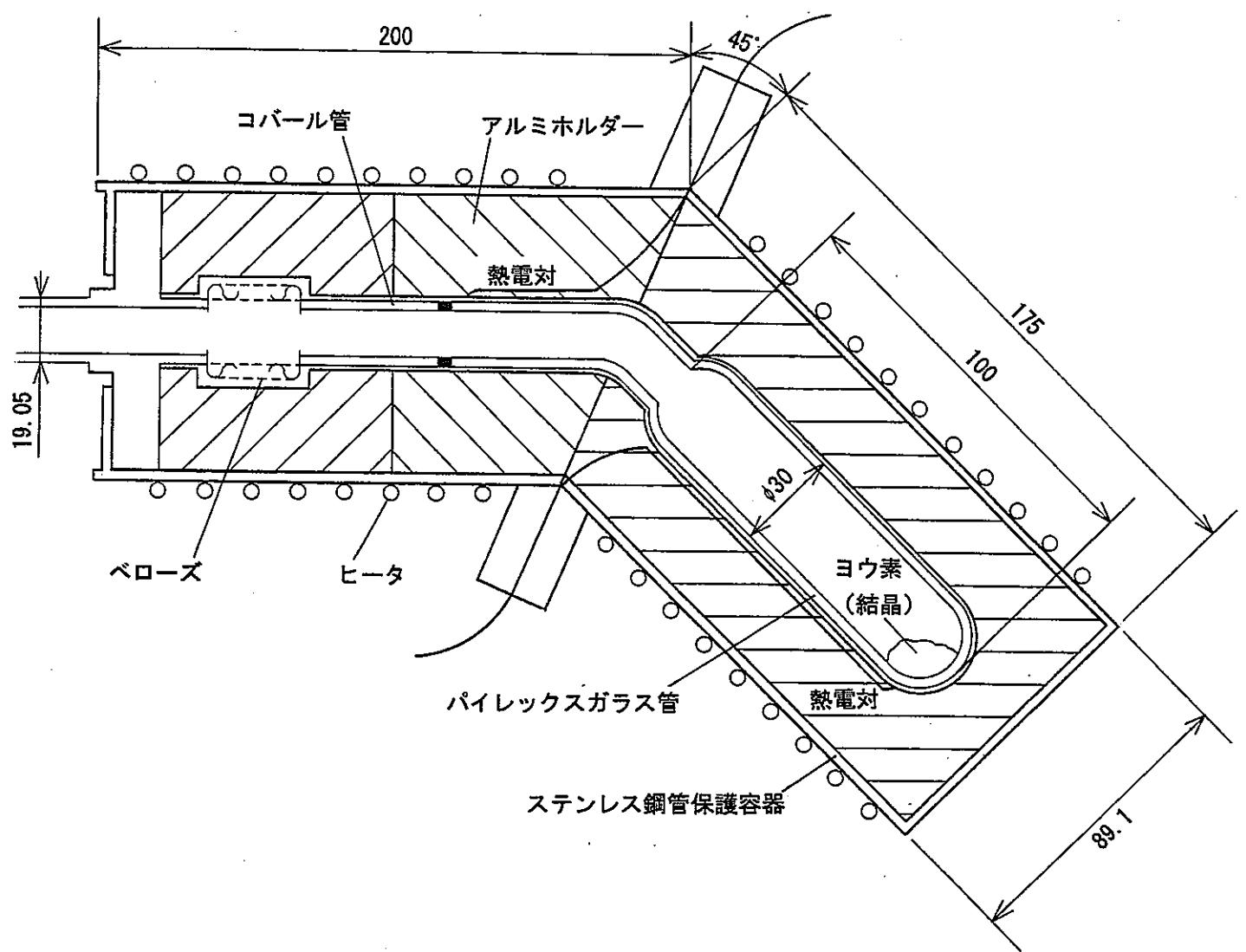


図 10 ヨウ素発生装置

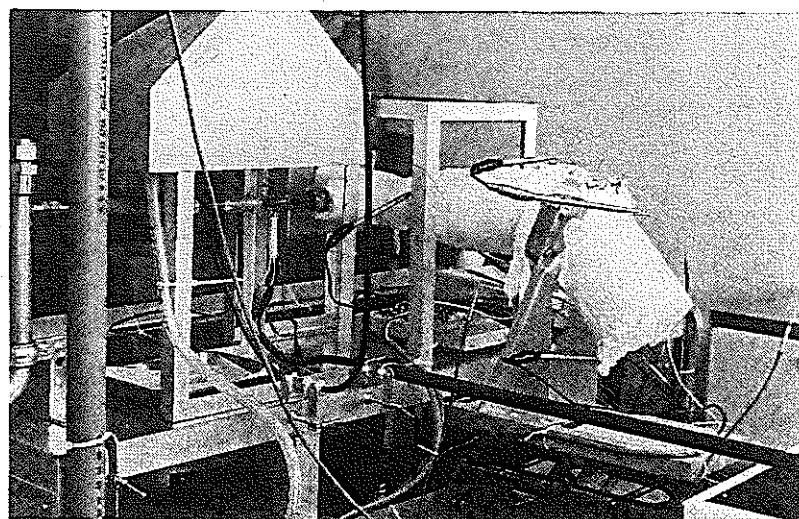


写真2 ヨウ素発生装置の組み込み

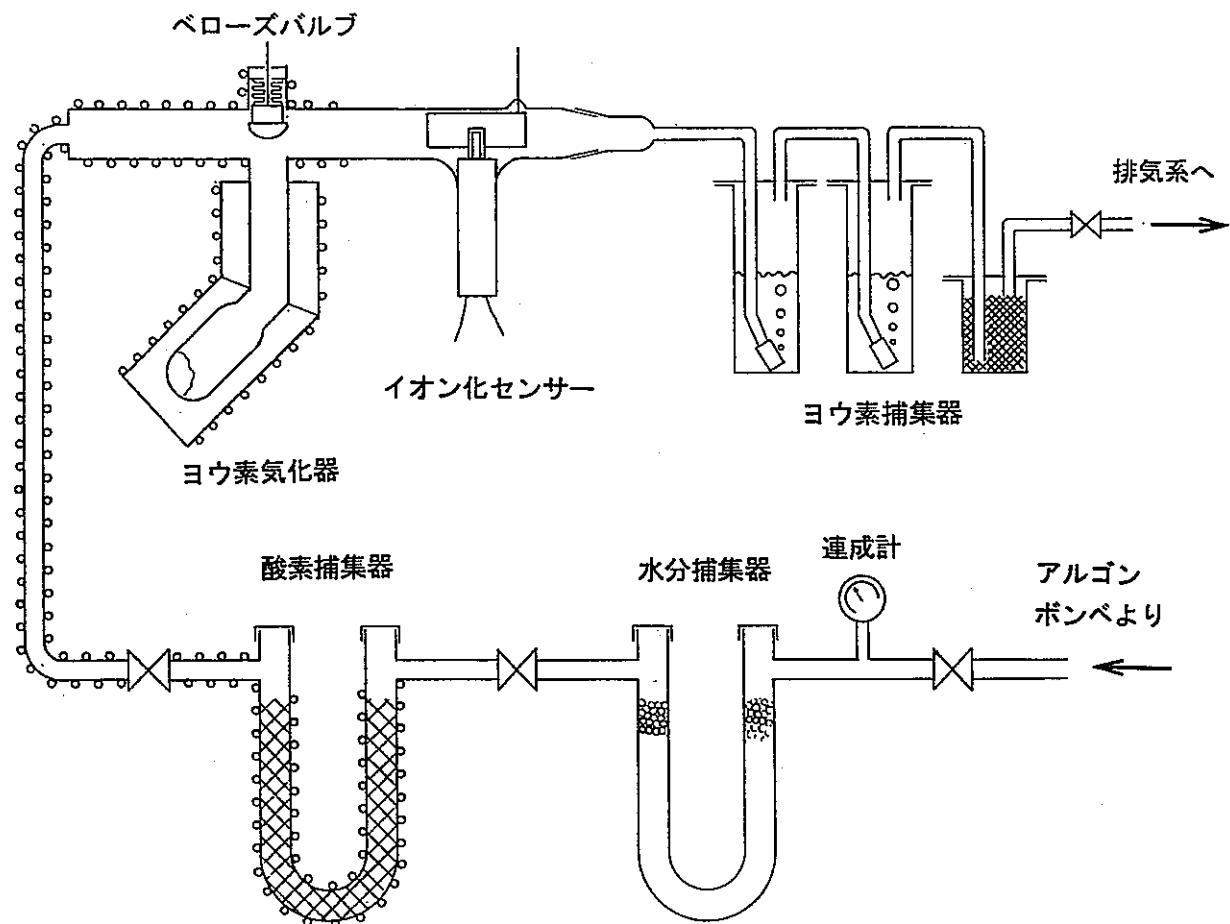


図 11 ヨウ素の発生と捕集及びアルゴンの精製

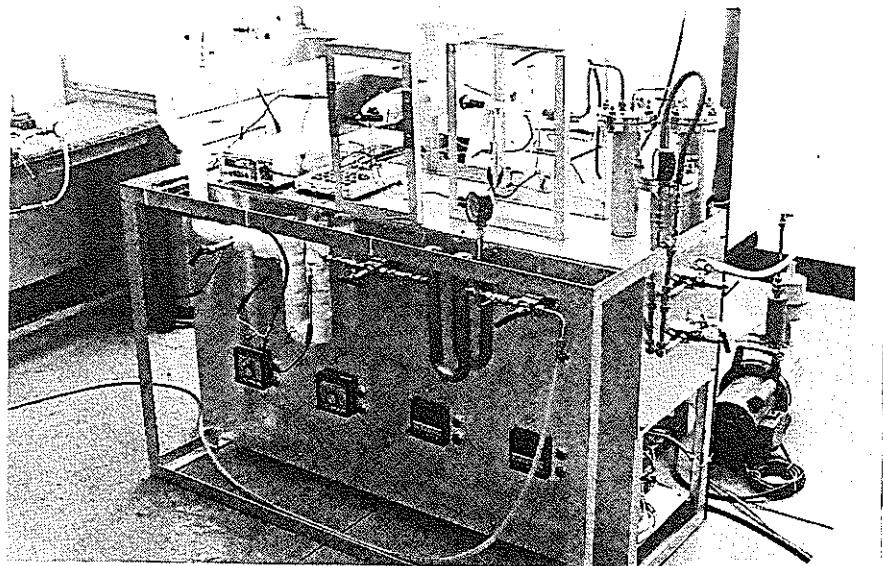


写真3 実験装置の全景

4.3 イオン化センサー用電源

(a) 低圧電源装置

図12に示したイオン電流測定ブロック図から明らかなように、低圧直流電源の対接地絶縁抵抗が十分高くないと、電流計にはフィラメントとコレクター間を流れるイオン電流の他、低圧直流電源からのリーク電流も流れることになる。従ってこの分がイオン電流に上乗せされ、正味のイオン電流を正確に測定することが不可能となる。測定するイオン電流は $pA(10^{-12}A)$ のオーダーであるので、対接地絶縁抵抗は $10^{13} \sim 10^{14} \Omega$ は必要となる。市販の直流低電圧電源装置は対接地絶縁抵抗が $100M\Omega(10^8\Omega)$ 程度であるので、極微少のイオン電流を測定するには不向きである。そこでフィラメント加熱には、 $15V \times 3A$ 程度の電力があれば十分であることに着目し、自動車用バッテリー（松下電器産業製 XEX 38B 19L）2個を電源として、装置全体を絶縁抵抗の高いデルリン樹脂の箱に収納する構成とした。バッテリーが放電したならば、夜間に充電器（大自工業製 AS-960）で充電することにし、電圧の調節にはDC/DCインバータを用いる。

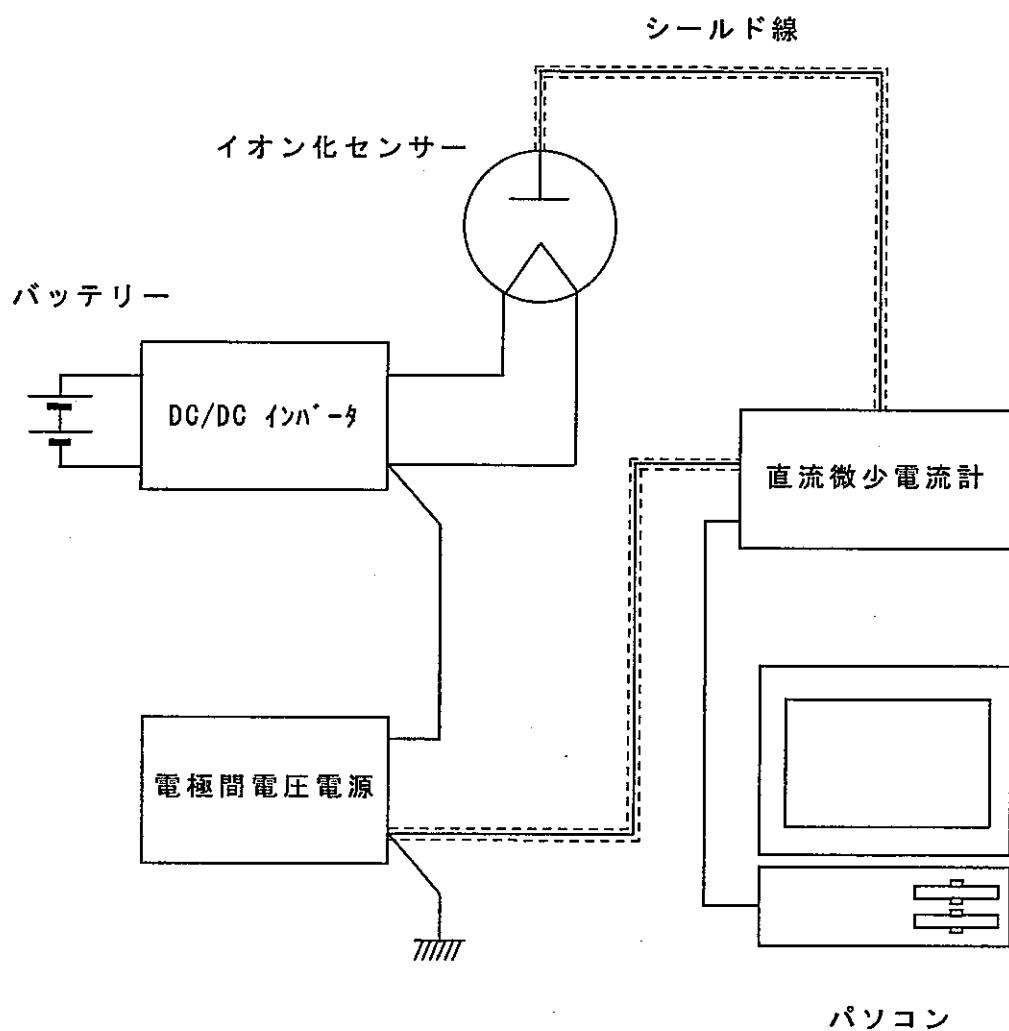


図 1 2 イオン電流測定ブロック図

(b) 高圧電源装置

フィラメントとコレクター間に付加する高圧の直流電圧は、0~24Vの直流電源とパッケージ形の直流高圧電源(マクセレックス社 UHV-0.5K)を組み合わせて作る。イオン電流はmAのオーダになることも起こり得るので、比較的容量が大きい6mAのものを用いる。測定対象がヨウ素の場合は、フィラメント側を負極にするが、金属の場合は正極にする。測定中に簡単に極性を変換できるように、正極用と負極用の高圧電源をスイッチで切り換える。

4.4 直流微少電流測定装置

直流微少電流は、デジタルエレクトロメータ(アドバンテスト社R8240)を用いて測定する。このデジタルエレクトロメータは直流電圧と直流電流の測定機能を持ち、4.5桁の数値を表示する。この測定装置は $10^{18}\Omega$ の高入力インピーダンスをもち、 $10\mu V\sim 20V$ 範囲の電圧測定ができ、 $10fA\sim 20mA$ にわたる広範囲な電流測定が可能である。積分時間を選択設定することによって、入力信号に含まれているノイズに対して安定な測定が出来る。また、このデジタルエレクトロメータはGP-IBインターフェイスシステムを装備し、パソコンなどと組み合わせてパラメータの設定、読みだし、データの出力など自動計測システム用としても使用可能である。

4.5 測定値収録装置

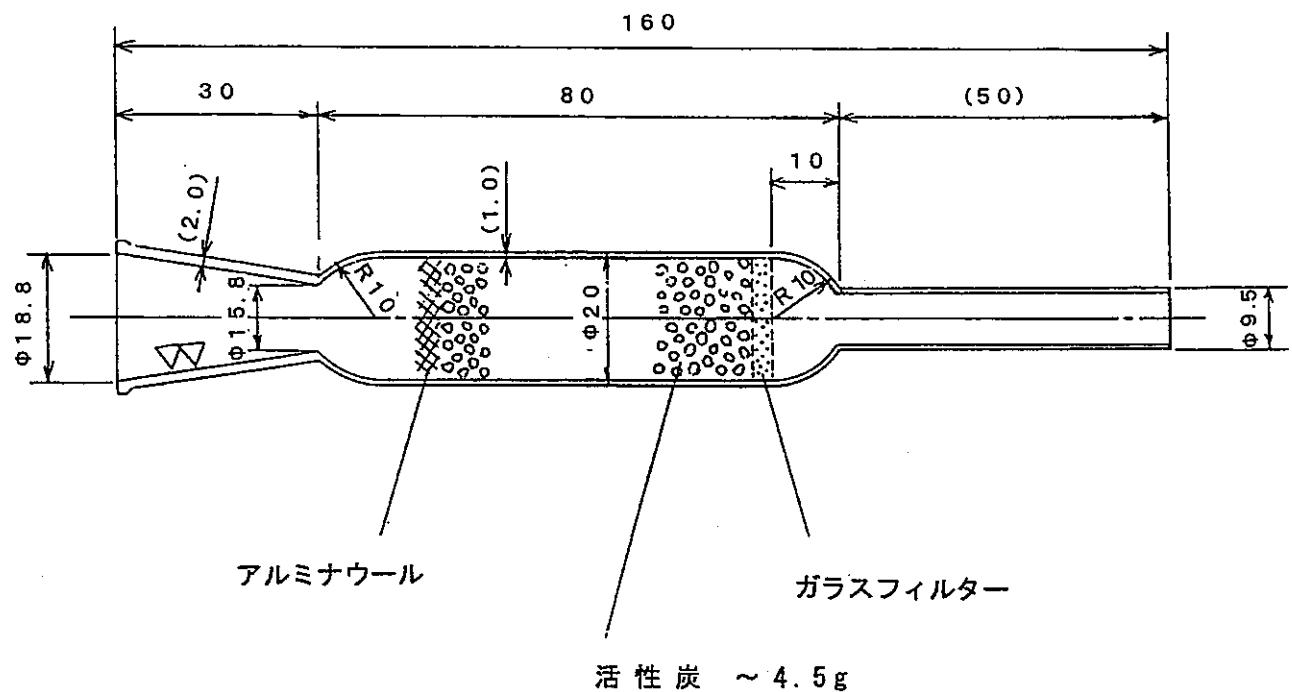
測定する電流は刻々変化する量なので、パソコンにもGP-IBインターフェイスボードを装着して、デジタルエレクトロメータからの測定電流を磁気ディスクに収録する。GP-IBインターフェイスボードはNEC製(PC9801-29n)を用いる。

4.6 ヨウ素捕集装置

(a) 活性炭を用いた捕集

ヨウ素(蒸気)は、搬送アルゴンに運ばれてイオン化センサーを通過した後、ヨウ素捕集器に充填された活性炭に吸着する。ヨウ素の捕集器は、図13に示すように、パイレックスガラス製の容器で活性炭を約4.5g収容する。容器の入口はメスのスリ合わせになっていてイオン化センサーに接続し、出口はシリコンゴムの真空ゴムホースに接続する。活性炭は東洋カルゴン(株)製の銘柄BPL粒状炭(ヨウ素吸着量 1,050 mg以上/g活性炭)を採用する。このBPL粒状炭は歴青炭から製造された活性炭で、ハロゲン用ガスマスクの標準品として使用されている。

測定装置に装着する前に、図14に示すような活性炭乾燥装置を用いて、捕集器を約100°Cに暖めながら約1時間アルゴンを通気して捕集器の重量を測定する。重量変化が殆ど無くなる(1mg以下)まで、この操作を数回繰り返す。ヨウ素の吸着量は、測定前後における捕集器の重量を測定して、その重量増加分から求める。



品名	:	BPL粒状炭
(東洋カルゴン(株))		
メッシュタイプ	:	4×10
ヨウ素吸着量	:	1,050 mg/g
充填密度	:	0.480 g/cm ³

図 1 3 活性炭を充填したヨウ素捕集器

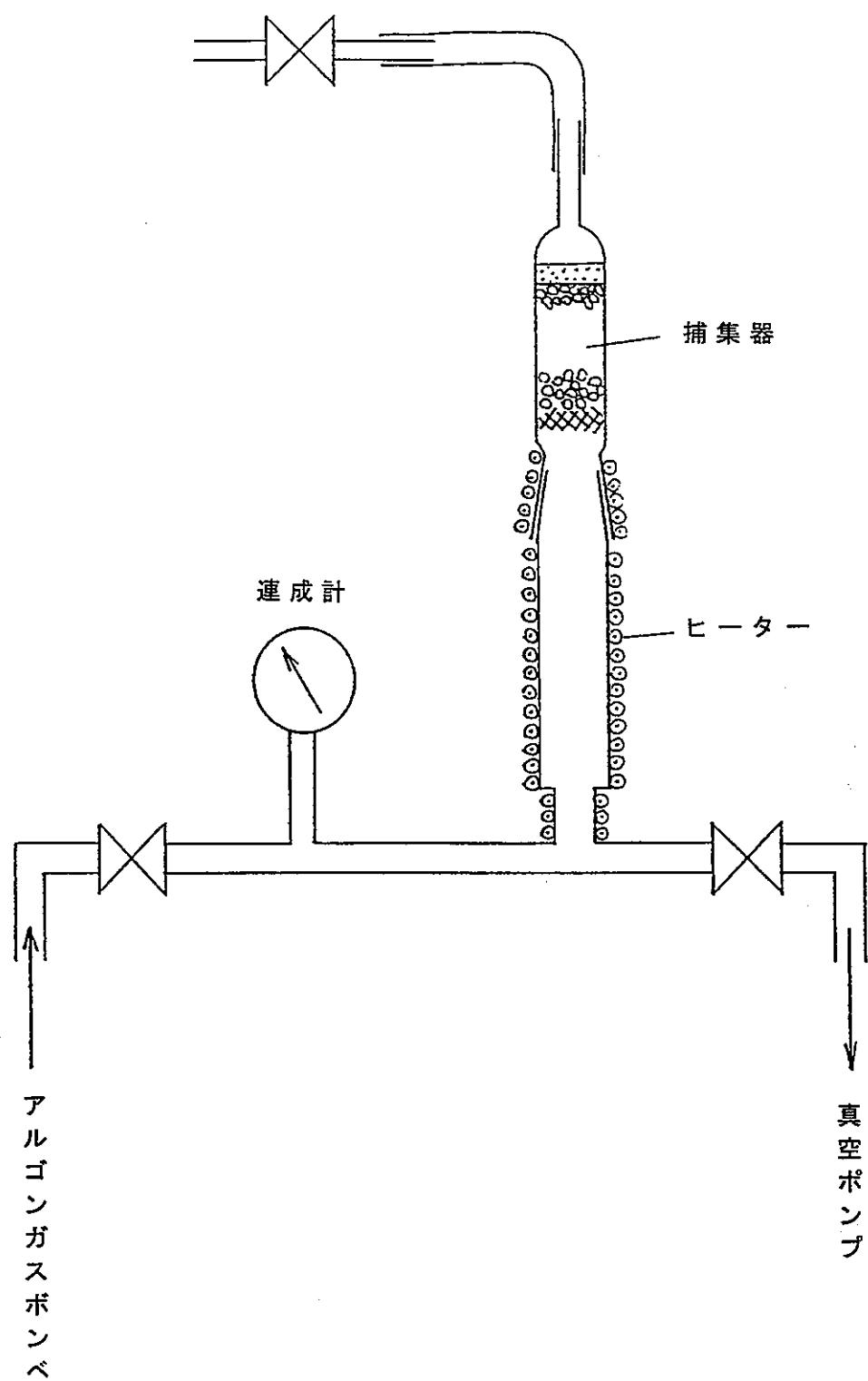


図 1 4 活性炭乾燥装置の構造

(b) 苛性ソーダ水溶液を用いた捕集

活性炭を用いるヨウ素捕集では、測定終了後に捕集器を実験装置から外す際、捕集器内の活性炭に空気、水分などが吸着することがあり、正味のヨウ素吸着量を正確に測定することが困難であった。アルゴンを循環させずにone-through方式で流すときは、図15に示す捕集容器を用いて、ヨウ素を苛性ソーダ水溶液中に捕獲することができる。搬送アルゴンガスはイオン化センサーを通過した後、導管先端のステンレス鋼焼結フィルターで泡となり、水溶液中に吹き出る。飛沫の防止にステンレス鋼製の網を巻いたものを用いる。ヨウ素はpH10以上のアルカリ性水溶液に容易に溶解するので、0.5規定（約pH11）に調製した苛性ソーダ水溶液を、1本の容器に250ml収容する。ヨウ素は1段目の容器にほぼ全量捕集されるので、2段目及び3段目をバックアップ捕集用として使用する。捕集容器から採取した試料中のヨウ素は、希釈処理し、高周波誘導結合プラズマ発光分析装置（パーキンエルマー社製 OPTIMA 3000 ICP-AES）を用いて分析する。

写真4にヨウ素捕集容器を分解したところを示す。

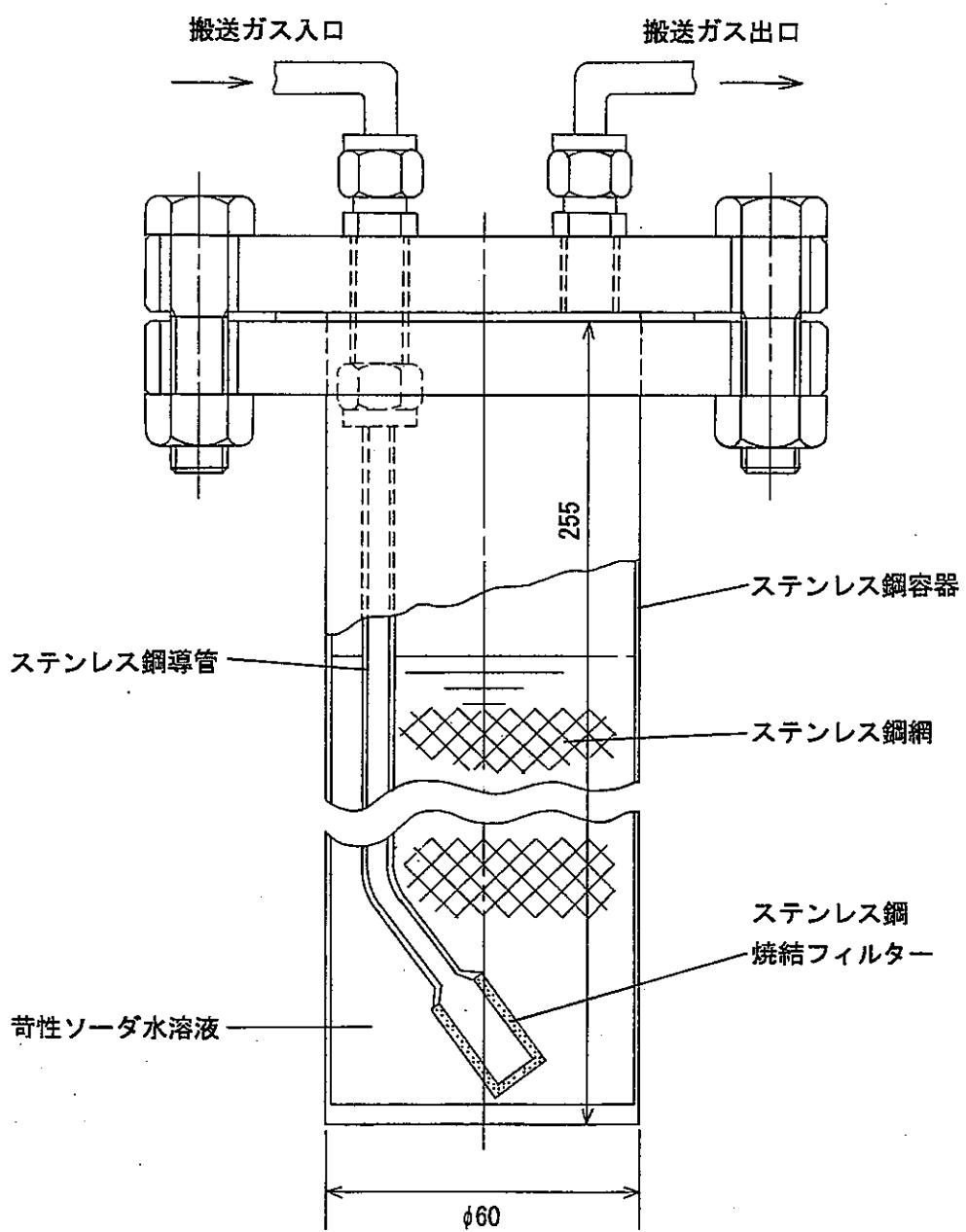


図 1 5 苛性ソーダ水溶液を用いたヨウ素捕集

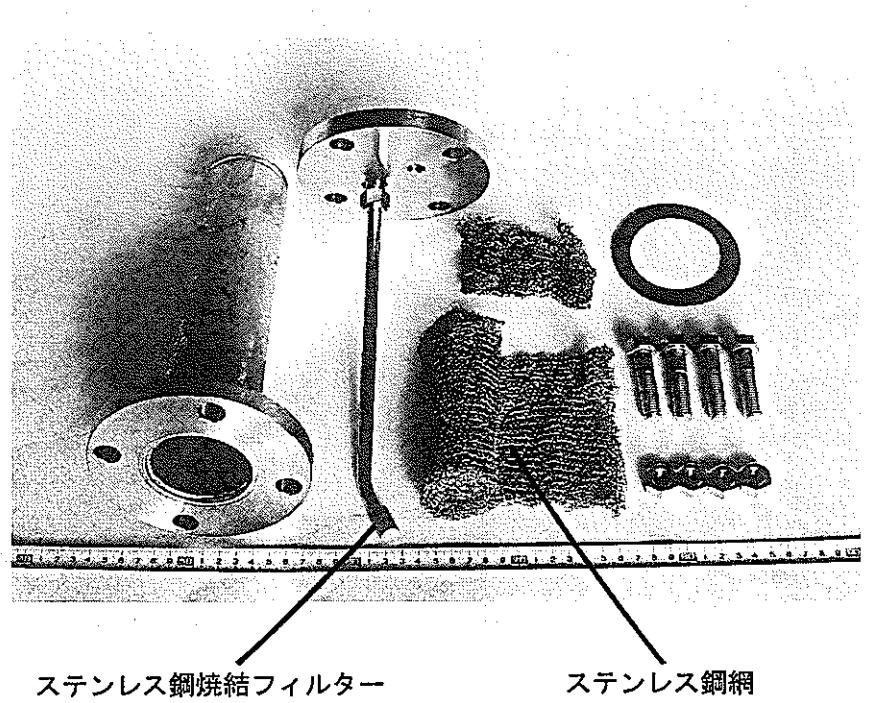


写真4 分解したヨウ素捕集器

5. 実験方法

5.1 実験手順

次に示す実験手順に従って実験を進めた。

(a) 気化器の温度を設定

- 1) 気化器の温度が上がりすぎないように、設定温度を 5°C 刻みで上げる。

(b) 捕集器の用意

- 1) NaOH粒を必要量量り取り 250mL 水溶液を精製水を用いて調製する。
- 2) 捕集容器に水溶液を入れ、ステンレス鋼網を吊下げたバブラーの蓋をする

(c) 捕集系を測定装置に装着

- 1) 給気弁の締めを確認し、捕集容器、バックアップ容器、飛沫トラップ容器を測定装置に装着する。
- 2) 排気弁の開きを確認し、給気弁を開けてアルゴン流量を $2\text{l}/\text{min}$ に調節する。

(d) 測定の準備

- 1) センサーの電極間電圧電源、フィラメント電源をONにして所定の電流を流す。
- 2) 電流計、パソコンを作動させ、バックグラウンド信号を約1分間固定ディスクに収録する。

(e) センサー出力電流の測定

- 1) 気化器出口弁を開け、測定信号を固定ディスクに収録する。
(測定開始時のデータ番号を記録する)
- 2) 所定の時間が経過したら、気化器出口弁を閉める。
(測定終了時のデータ番号を記録する)
- 3) センサーの各電源を切り、センサー出力電流の収録を停止する。
- 4) 排気弁→給気弁の順に閉じ、搬送アルゴンの供給を止める。

5) 捕集容器をはずして苛性ソーダ水溶液を採取し、容器入口導管を採取した溶液で洗い、試料とする。

(f) 試料、データの採取

- 1) ダミー捕集系を装着する。
- 2) 給気弁が閉じていること確認し、真空ポンプにより測定系内を排気する。
- 3) 排気を止めアルゴンを供給する。
- 4) 2)～3)の操作を3回繰り返す。
- 5) 捕集容器及び導管は多量の水で洗浄後、精製水ですすぎ100°Cで乾燥する。試料採取使用したビーカー類は精製水ですすぎ自然乾燥する。
- 6) 測定信号の記録を固定ディスクからフロッピーディスクにコピーする。

5.2 イオン化センサー出力電流の積分プログラム

直流微少電流計により計測されたイオン電流値は、フィラメントに衝突しイオン化されたヨウ素原子の数に対応する。従って、イオン電流の値は、単位時間にイオン化センサーを通過したヨウ素蒸気量に比例する。イオン電流をヨウ素捕集時間の間積算した値は、捕集時間内にイオン化センサーを通過したヨウ素量、すなわち実測ヨウ素捕集量に対応する。従って、イオン電流積分値とヨウ素捕集量の間に直線関係があれば、このイオン化センサーによりヨウ素蒸気の時間的変化を追跡できることになる。イオン化センサーを評価するには、実測ヨウ素捕集量に対してイオン電流の積分値をプロットし、直線関係が存在するかどうかを確認すればよい。イオン化センサーの出力値を収録するのに用いたプログラムを巻末の付録1に、出力値を積分するのに用いたプログラムを付録2に示す。

6. 測定結果

6.1 測定条件と結果

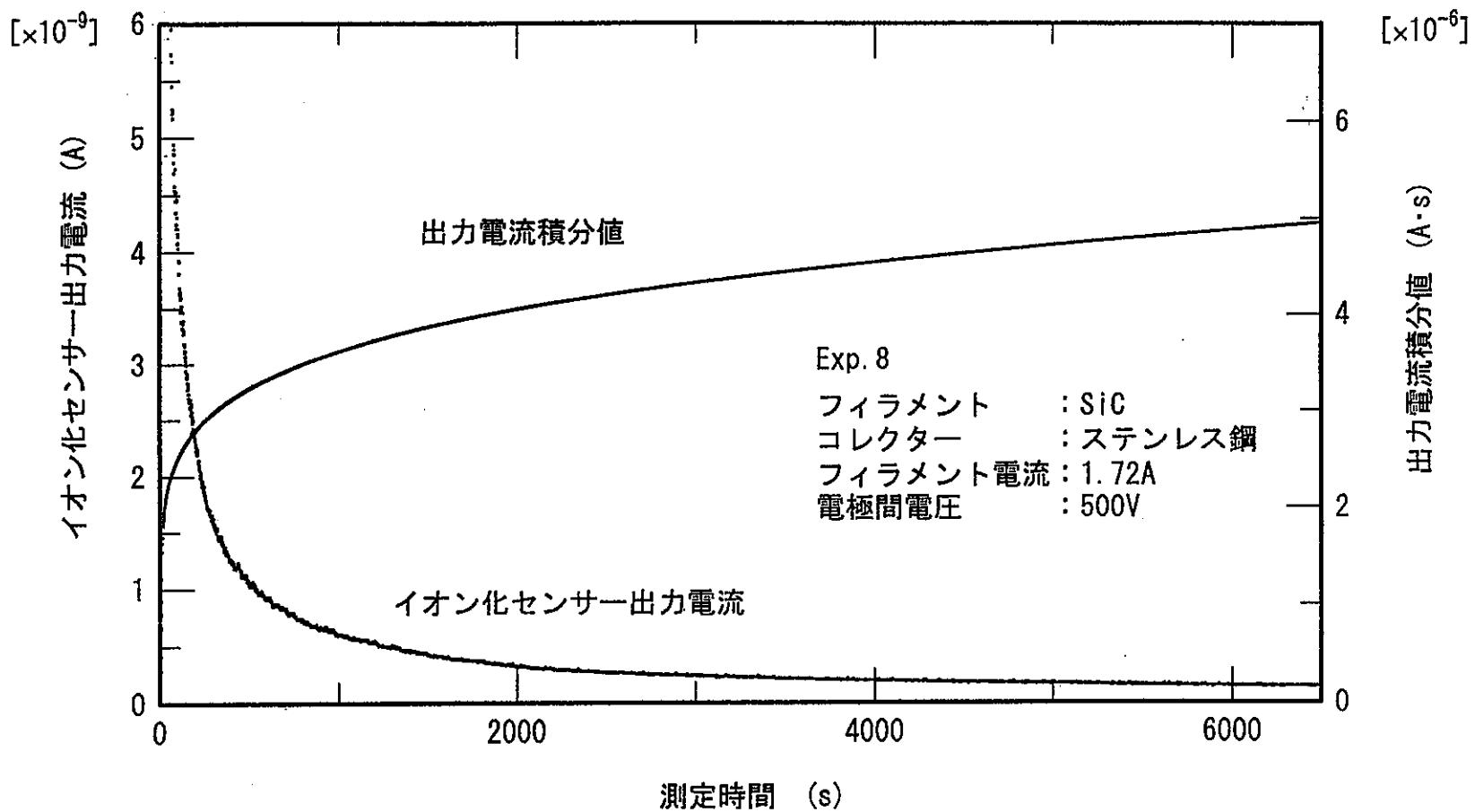
改良型イオン化センサーを用いて行ったヨウ素測定実験における、気化器温度、弁部温度、導管温度、搬送ガス流量、通気時間、電源電圧・電流、センサー出力積分値、ヨウ素捕集量等を巻末の付録3に示す。

6.2 イオン化センサーの出力結果

実験No.8について、イオン化センサー出力イオン電流値とこれを時間積分した値を図16に示す。図16は、イオン電流値は最初急激に立ち上がり、ピーク値から時間経過と共に指數関数的に減少すること、積分値は最初急上昇するが、以後滑らかに増加してある傾きをもった直線に漸近することを示している。

- 69 -

図 1-6 センサー出力電流曲線と出力電流積分値



6.3 ヨウ素捕集量

(a) 活性炭に吸着したヨウ素量

活性炭を充填した捕集器の重量を乾燥途中、及びヨウ素吸着後に測定した値を巻末の付録4に示す。表の上段の欄に示すガラス管重量は、活性炭を充填する前に、捕集器のメス型のすり合わせにガラス栓をし、他端の口にビニールキャップをかぶせた状態で測定した重量である。活性炭の重量は、保存容器から取り出した状態の素重量である。捕集管全体の重量は、捕集管ガラス容器に活性炭とアルミナウールを詰め、ガラス栓とビニールキャップを取り付けた状態の重量である。表の下段の欄に示す捕集器全体の重量は、捕集器を活性炭乾燥装置に装着し、100°Cに加熱して1時間アルゴン通気後に測定した重量で、ガラス容器、活性炭、アルミナウール、ガラス栓、ビニールキャップの素重量を含む。この一連の乾燥操作を繰り返すうちに、捕集器重量が安定するのがわかる。捕集器の重量変化が小さくなったら、捕集器を測定装置に装着し、イオン化センサー出力電流測定実験を行ない、活性炭にヨウ素を吸着させる。気化器出口弁を2時間開けてヨウ素捕集を行ない、実験終了後捕集器の重量を測定すると、捕集前に比べ重量の増加が認められる。

(b) 苛性ソーダ水溶液に溶解したヨウ素量

採取した試料中のヨウ素分析は、(株)化研に依頼した。表1は、捕集容器の必要数を確認するために行った予備実験の結果である。イオン化センサーと1段目捕集容器間の導管部分と、3段連続の捕集容器のそれぞれから試料を採取し、その分析を行った。表1から、ヨウ素は1段目の捕集容器までにはほぼ全量捕集され、2段目及び3段目の捕集容器では、バックグラウンドのレベルであることがわかる。また、導管部から僅かなヨウ素が検出されたので、1段目の捕集容器の苛性ソーダ水溶液を用い、導管部を洗浄することにした。巻末の付録5に測定時の気化器温度、イオン化センサー出力の積分値、苛性ソーダ水溶液に溶解したヨウ素量を示す。

表1 ヨウ素捕集容器におけるヨウ素捕集量

Exp. No.	気化器温度 (°C)	導管部分	ヨウ素捕集量 (mg)		
			1段目	2段目	3段目
17	80.2	< 0.5	38	< 0.5	< 0.5
20	80.1	3	46	< 0.5	< 0.5
21	80.2	1	29	< 0.5	< 0.5

7. 結果の検討

7.1 ヨウ素を加えないときの出力電流

フィラメントにSiCヒータを用いると、ヨウ素を加えずアルゴン搬送ガスのみ流しているにも拘わらず、フィラメント電流を増加させるにしたがって、イオン化センサーの出力電流が増加するのが観測された。そこで搬送アルゴン流量を2 l/minに設定して、フィラメントに流す電流を変化させ、出力電流を測定した。

(a) フィラメントを正極としたとき

図17は、高圧電源の正極をフィラメントに接続した場合の、フィラメント電流とセンサー出力電流の関係を示す。図17から、ヨウ素蒸気を流さなくても、フィラメント電流を増すにしたがって、イオン電流が急激に増加することがわかる。横軸はフィラメントに供給される電力、つまりフィラメントの加熱温度とみなすことができる。縦軸のイオン電流は濃度に比例するから、この増加曲線は温度と共に急激に濃度が上昇する曲線、つまり何らかの物質の蒸気圧曲線とみなすことができる。測定を重ねるに従って、フィラメントの電気抵抗が僅かずつ増加する傾向が認められるので、この出力電流が急激に増加する現象は、フィラメントの炭化ケイ素材にドープされた金属成分が蒸発して、これが検出されたものとすると説明がつく。この結果から、SiCヒータを用いたイオン化センサーはヨウ素のような負イオンに電離する物質には有効であるが、金属成分は検出が不適であることがわかる。

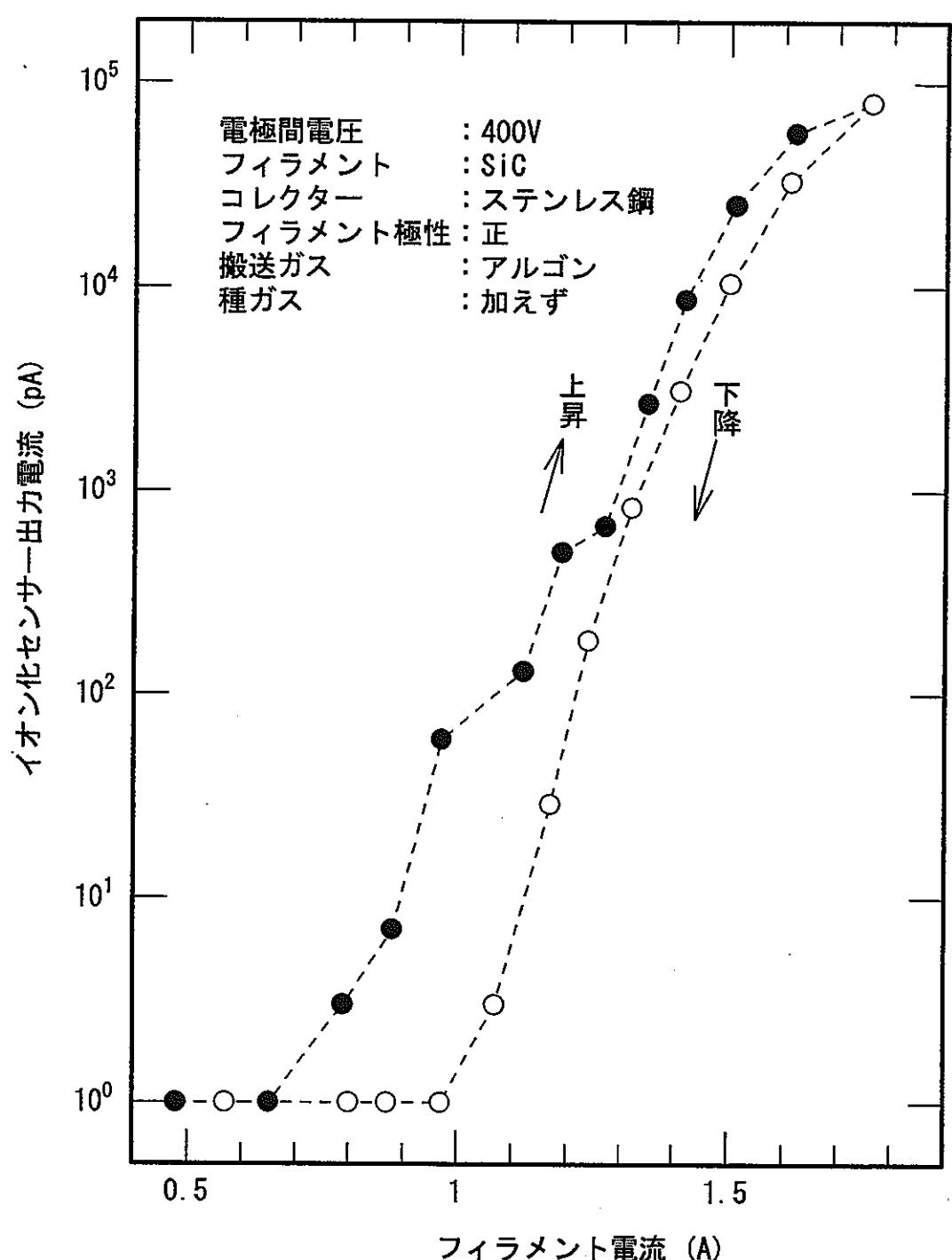


図 17 フィラメント電流を変化させたときのプランク出力電流
 (高圧電源の正極をフィラメントに接続)

(b) フィラメントを負極としたとき

図18は、高圧電源の負極をフィラメントに接続した場合の、フィラメント電流とセンサー出力の関係を示す。この場合もヨウ素を流していないので、フィラメント電流を増しても出力電流は低いレベルにある。しかしフィラメント電流を約1.7A以上にすると出力電流が急上昇するのが認められる。これはアルゴンの電離によるものと考えられるが、このイオン化センサーはフィラメント電流を1.7A以下で使用しなければならないことになる。

7.2 ヨウ素を加えたときの出力電流

(a) フィラメント電流による出力電流の変化

図19に、気化器からヨウ素を発生させた場合に、ステンレス鋼製コレクターのイオン化センサーによる出力電流を、2つの異なるフィラメント電流で測定したときの結果を示す。縦軸はイオン化センサー出力電流、横軸は測定時間である。電極間は共に500Vで、フィラメント電流が1.71AのExp.9の出力の方が、1.56AのExp.13より大きな出力が出ていて、フィラメント電流とともにセンサー出力電流が大きくなるのがわかる。イオン化センサー出力電流は大きい方が望ましいので、7.1節(b)で述べた範囲でできる限り大きくするのが良い。

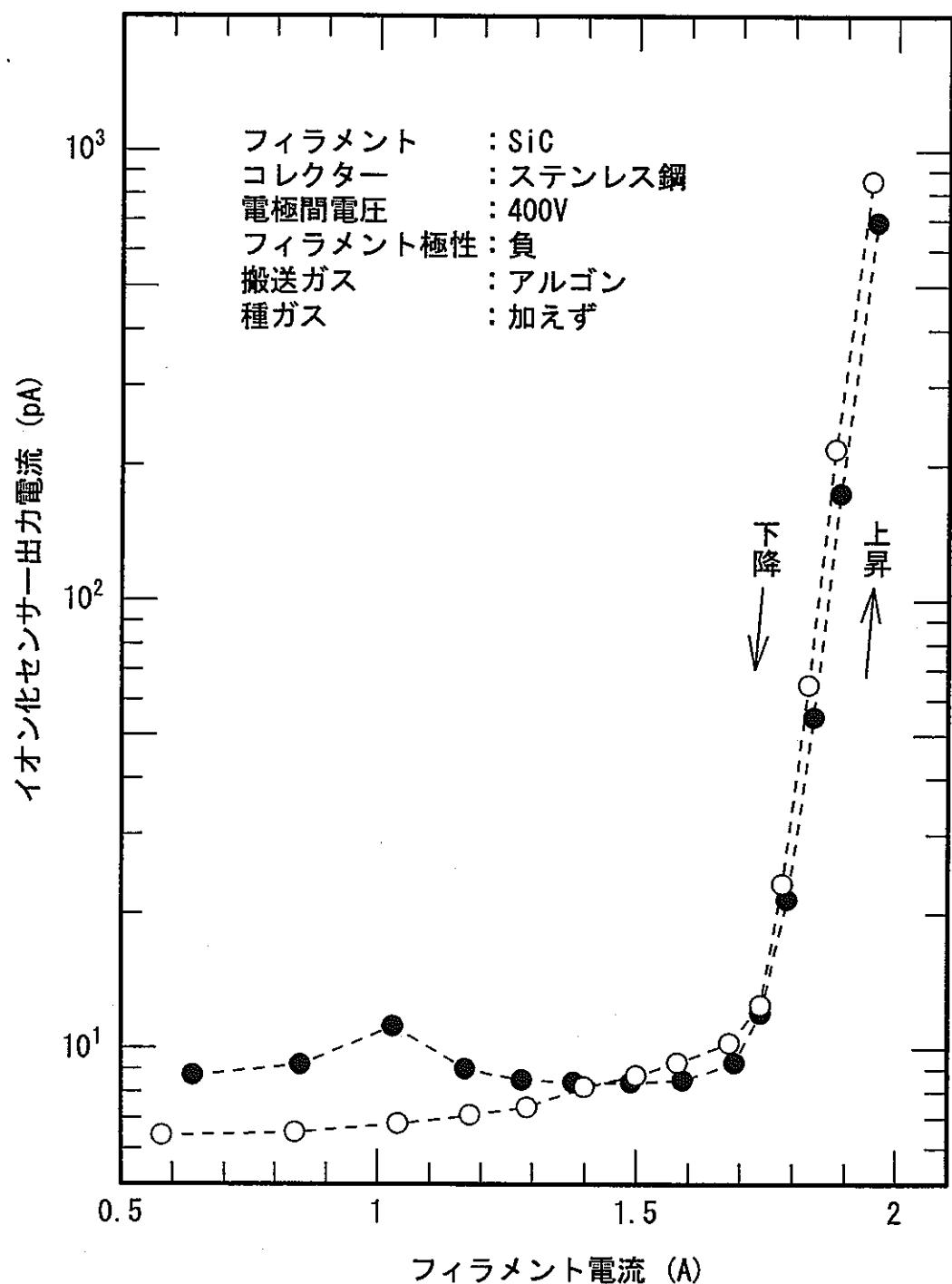
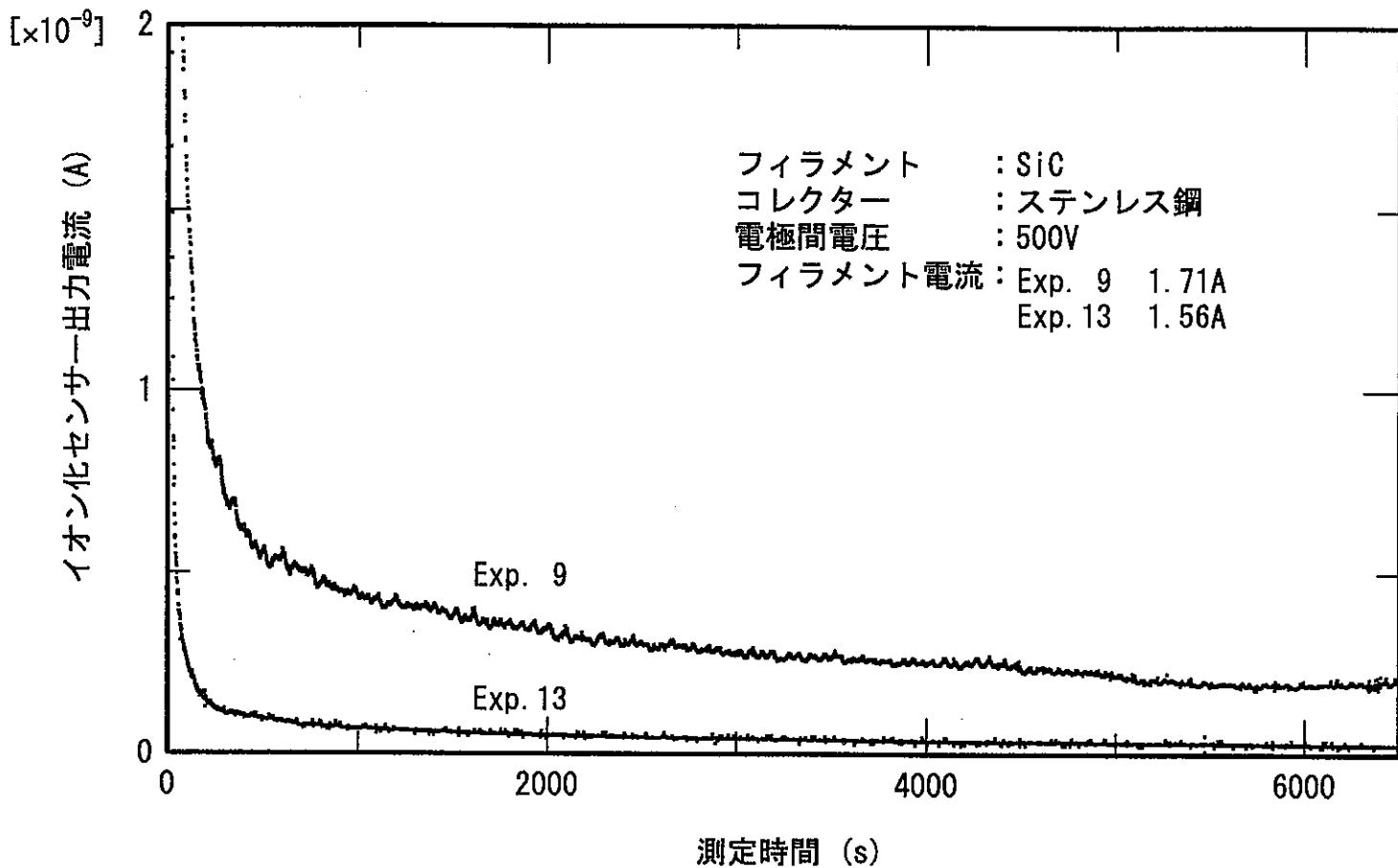


図 1 8 フィラメント電流を変化させたときのプランク出力電流
(高圧電源の負極をフィラメントに接続)

図 19 フィラメント電流による出力電流の変化

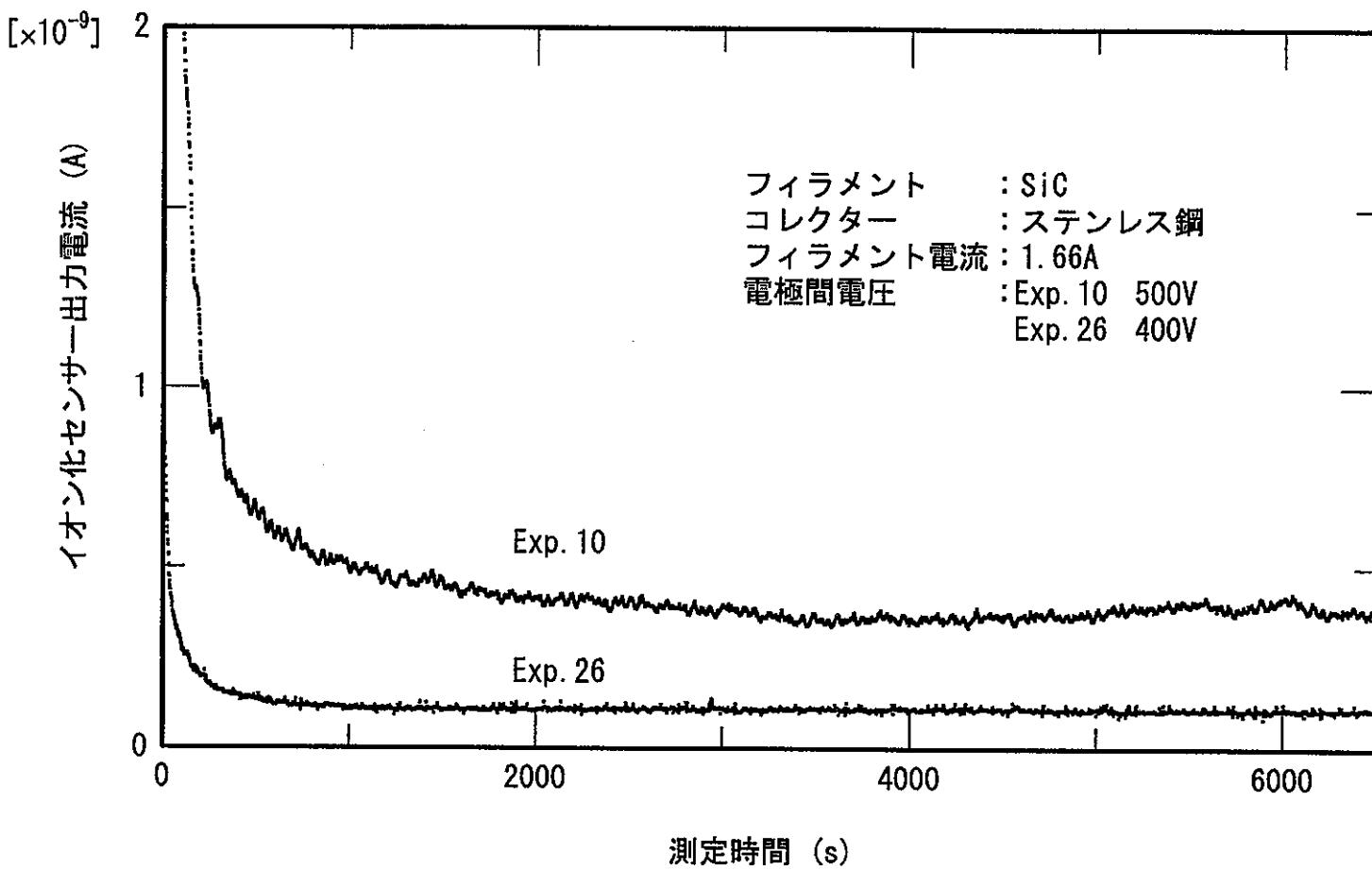
- 46 -



(b)電極間電圧による出力電流の変化

図20に、気化器からヨウ素を発生させた場合に、ステンレス鋼製コレクターのイオン化センサーによる出力電流を、2つの異なる電極間電圧で測定したときの結果を示す。印可電圧を500VとしたExp. 10のときの方が、400VにしたExp. 26のときよりも大きな出力が得られている。

図 20 電極間電圧による出力電流の変化



7.3 出力電流の経時変化

図21に、イオン化センサーにステンレス鋼製コレクターを使用したときの実験、Exp.23、Exp.25、Exp.27におけるイオン電流の時間変化を示す。フィラメント電流は1.66～1.71Aの範囲、電極間電圧はいずれも400Vである。測定の回を重ねるに従ってセンサー出力の低下する傾向が認められる。この出力電流の積分はそれぞれ

$$\text{Exp. 23} \quad 3.16 \times 10^{-7} \text{ (A・s)}$$

$$\text{Exp. 25} \quad 1.98 \times 10^{-7}$$

$$\text{Exp. 27} \quad 1.34 \times 10^{-7}$$

となり、出力電流の低下が積分値の減少につながっている。

出力電流の低下が認められるようになったとき、ベローズバルブを開いてヨウ素を流すと、フィラメントとコレクターの間で放電が起きた。バルブを閉めると放電は収まるが、数分後バルブを開くと再び放電が始まるので、放電の原因はヨウ素蒸気の通気と関係が深いことがわかる。イオン化センサーのコレクターを調べたところ、フィラメントに最も近い部分に、放電による損傷が認められた。

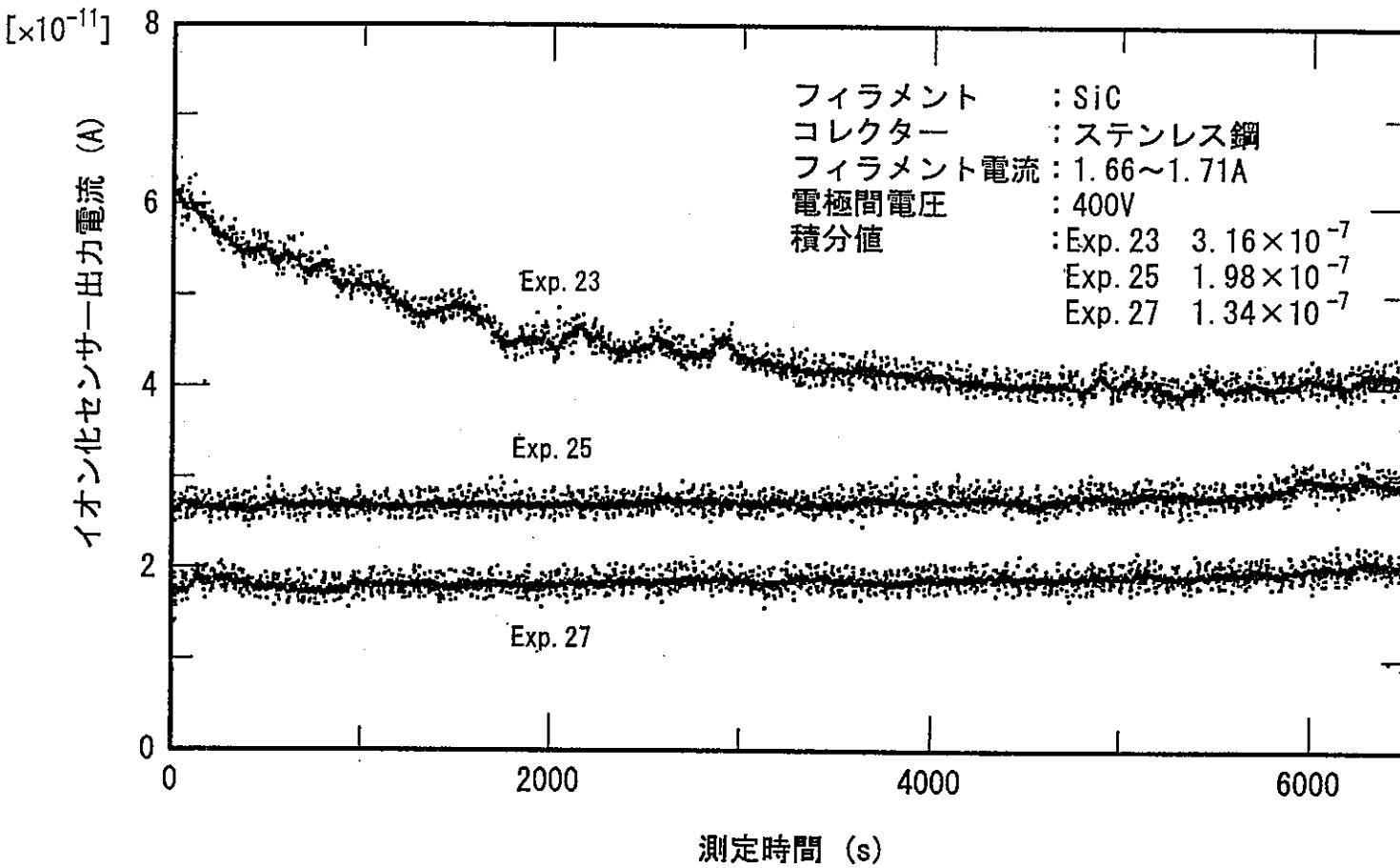


図 2.1 出力電流の経時変化

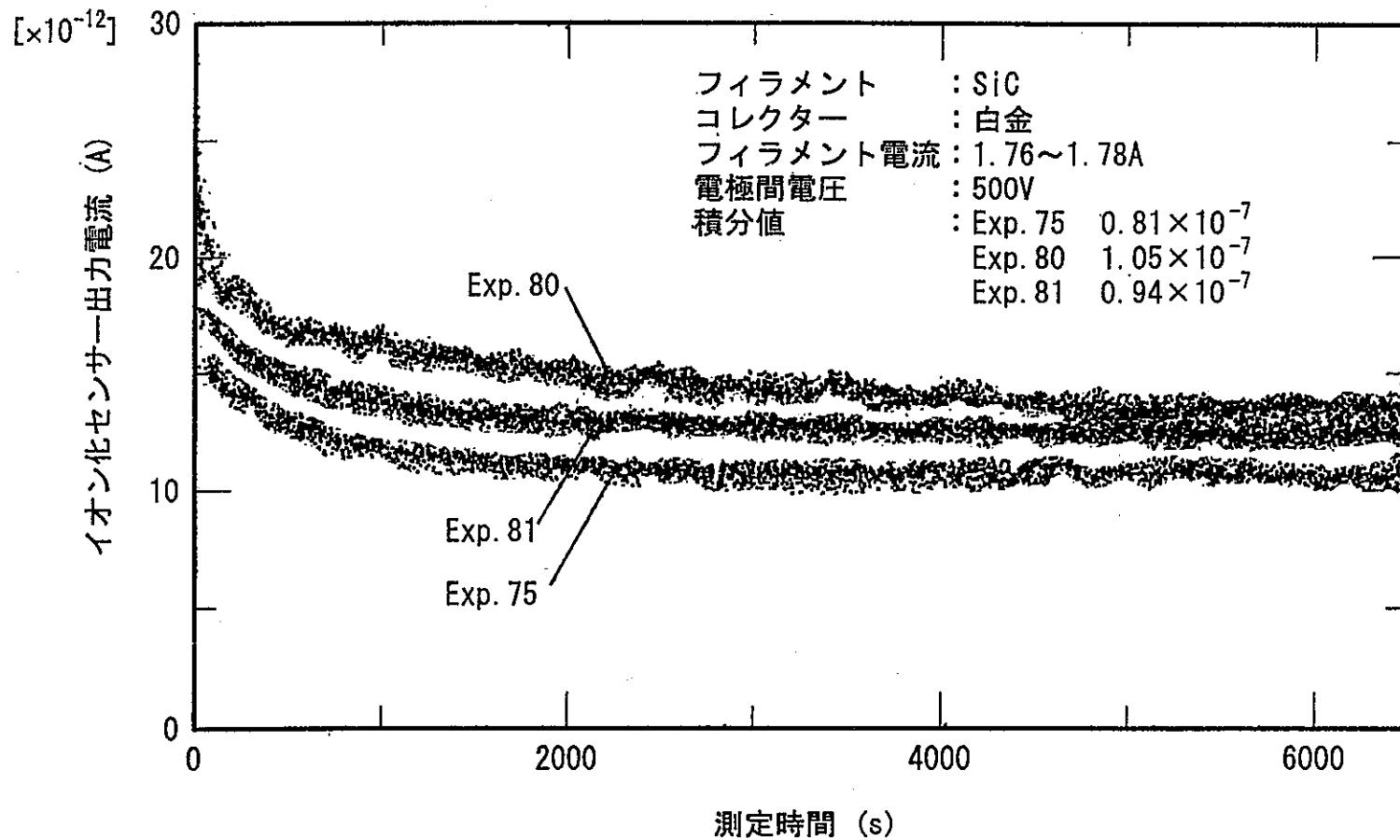
図 2 2 に、イオン化センサーに白金製コレクターを使用したときの実験、Exp. 75、Exp. 80、Exp. 81における、出力電流の時間変化を示す。フィラメント電流は1.76～1.78Aの範囲、電極間電圧は500Vである。白金製コレクターを使用したセンサーのイオン電流は、図 2 3 のような大きな出力低下は認められず、イオン電流の積分値はそれぞれ

Exp. 75	0.81×10^{-7}	(A・s)
Exp. 80	1.05×10^{-7}	
Exp. 81	0.94×10^{-7}	

となりほぼ一定の値を示している。

図 2 1 と図 2 2 の結果から、ステンレス鋼製コレクターの表面に付着したヨウ化物が電子の伝導を妨げ、電離したI⁻がコレクターに電子を渡さないまま蓄積し、フィラメントと最も距離の近い部分において、集中的にI⁻が移動し放電が起きたものと推測できる。白金製コレクターを使用した場合には表面の損傷が認められないことから、ヨウ化物の付着が起こらず、伝導の良い状態が保持できるものと考えることができる。

図 2.2 白金製コレクターを使用したイオン化センサーの出力電流



7.4 イオン電流積分値とヨウ素捕集量の関係

(a)活性炭に吸着捕集したヨウ素量との関係

図23にイオン化センサーの出力イオン電流積分値と、活性炭に吸着捕集したヨウ素量の関係を示す。縦軸はイオン電流積分値の対数、横軸はヨウ素捕集量の対数である。点近傍の数値は実験番号である。図23において、イオン電流積分値がほぼ定値であっても、ヨウ素捕集量がばらつく(電極間電圧400V)ケースと、逆にヨウ素捕集量がほぼ定値であっても、出力電流積分値がばらつくケース(電極間電圧500V)に分かれ、出力電流積分値とヨウ素捕集量の間に相関関係は認めがたい。

(b)苛性ソーダに溶解捕集したヨウ素量との関係

図24にイオン化センサー出力積分値と、苛性ソーダ水溶液に溶解捕集したヨウ素量との関係を示す。図23と同様、縦軸はセンサー出力電流積分値の対数、横軸はヨウ素捕集量の対数である。図24においては、センサーに白金コレクターを用いているため、出力電流がより安定しており、出力電流積分値とヨウ素捕集量の間に直線関係が認められる。

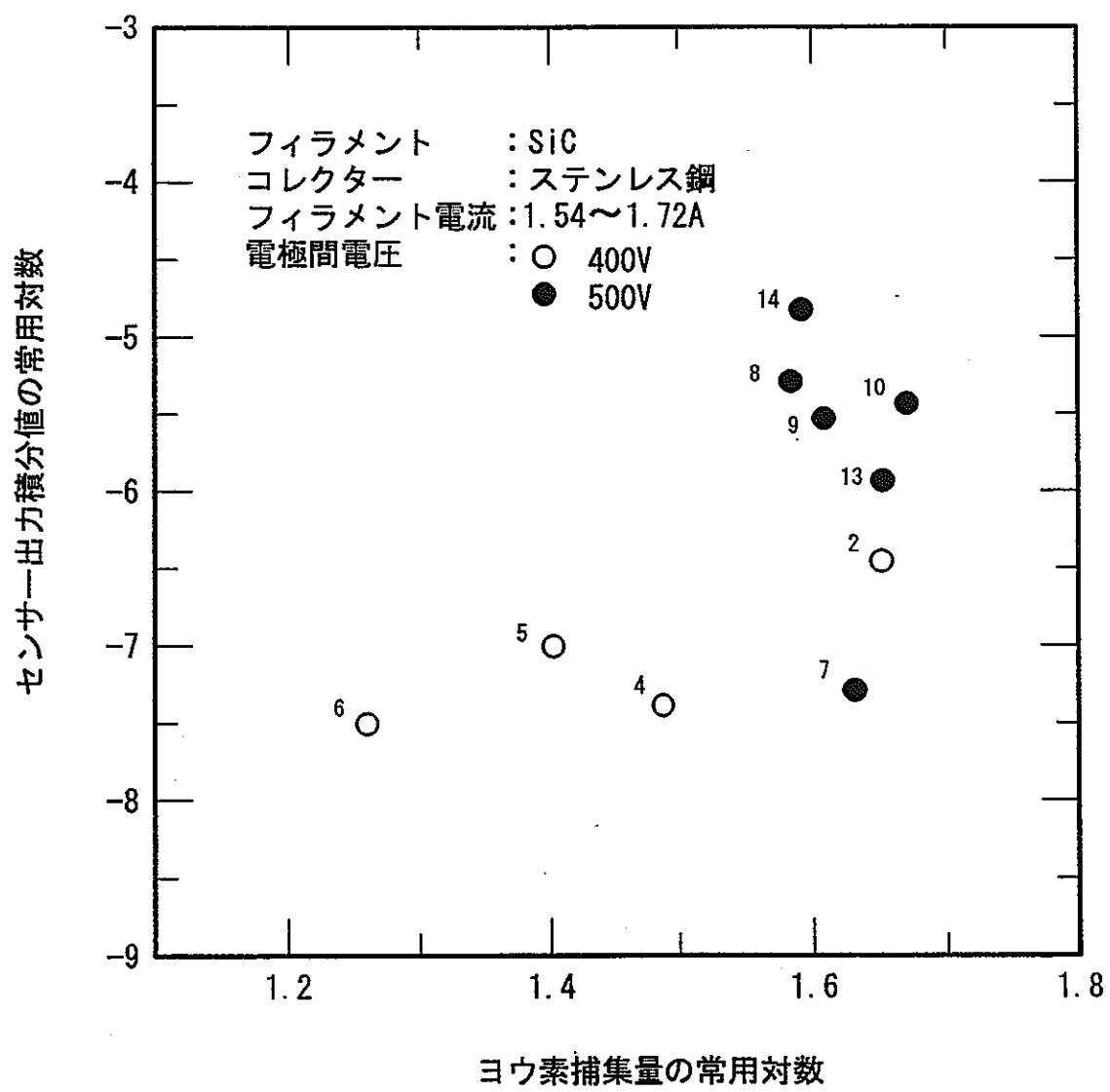


図 2 3 出力積分値とヨウ素捕集量の関係
(活性炭によるヨウ素捕集)

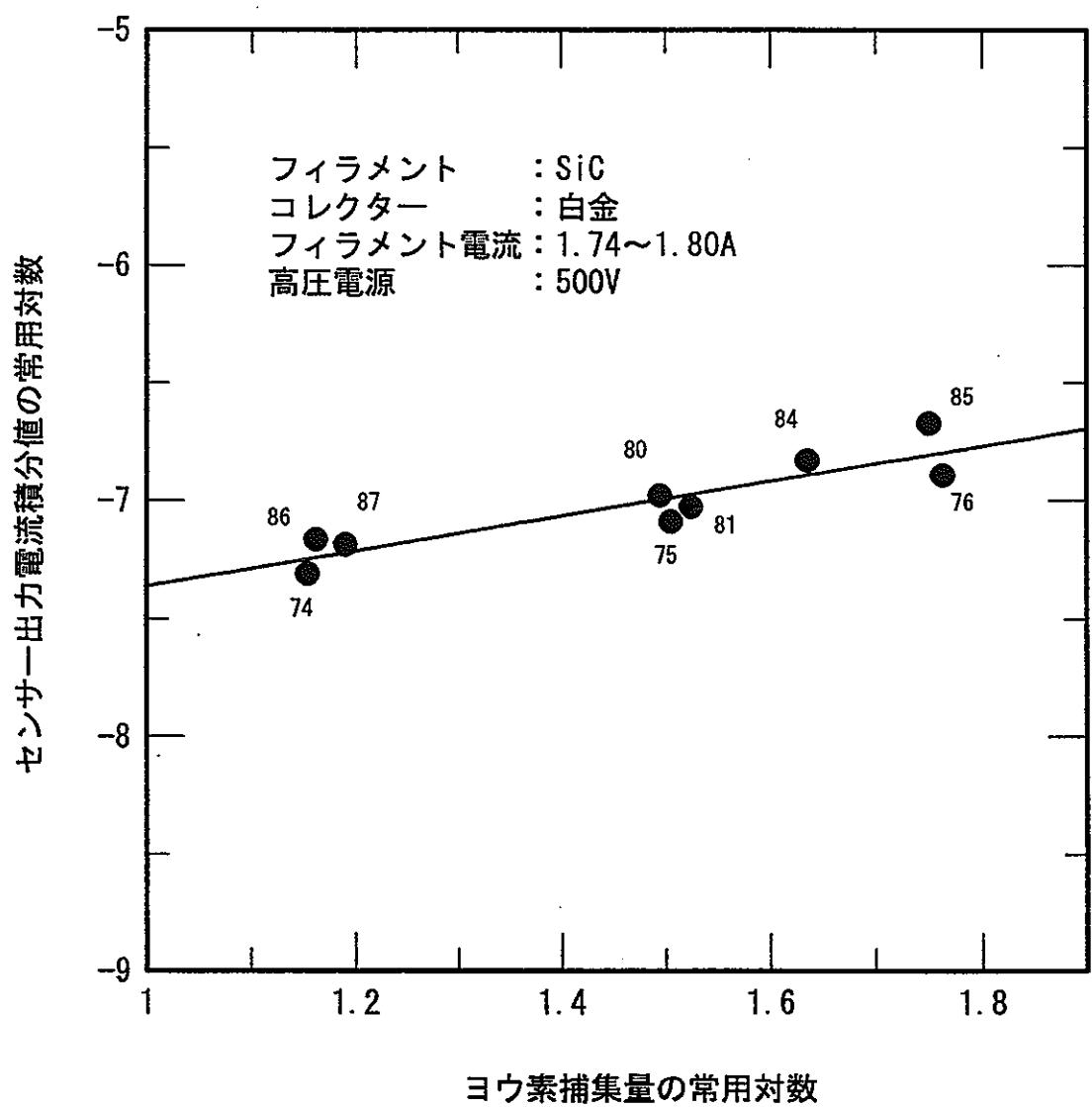


図 24 出力積分値とヨウ素捕集量の関係

(苛性ソーダ水溶液によるヨウ素捕集)

8. 結 言

本研究では、改良型イオン化センサーを試作し、センサー出力特性を計測して、アルゴン中におけるヨウ素蒸気濃度をオンライン計測するセンサーの開発を進めた。この研究の経過を要約すると次のようになる。

- (a) 常圧アルゴン中のヨウ素(蒸気) I_2 を約1000°Cに加熱したフィラメント表面で I^- に解離させ、コレクターを電極間電源の正極に接続すると、イオン電流からヨウ素を検出できるのではないかと着想した。
- (b) ヨウ素蒸気用イオン化センサーの改良を重ねて、耐久性の向上を計ったイオン化センサーを試作した。炭化ケイ素を逆U字形に成形したフィラメントを、ステンレス鋼製鞍形コレクターの間に置く構造にし、これを固定する絶縁体をパイレックスガラス管から外へ引き出す構造にした。
- (c) ヨウ化物の分解温度が比較的低い白金をコレクターに用い、コレクター表面にヨウ化物が生成しても、フィラメントからの熱によりヨウ化物が分解される、自己清浄型のイオン化センサーも試作した。
- (d) ヨウ素気化器の中でヨウ素の結晶を加熱してヨウ素蒸気を発生させ、搬送ガス(超高純度アルゴン)導管と連通している開閉バルブを介し、ヨウ素蒸気をイオン化センサーに導いた。
- (e) バッテリーとDC/DCインバータから成るフィラメント加熱用直流低圧電源装置と、極性を簡単に変えられる高電圧印加用直流電圧電源装置を試作した。フィラメントに11V/1.7A程度の直流を流して加熱し、フィラメントとコレクター間には400V~500Vの直流電圧を印加した。フィラメントとコレクターの間を流れるイオン電流は、微少直流電流計(デジタルエレクトロメータ)を用いて計測した。

(f) デジタルエレクトロメータによって計測したイオン電流は、さらにパソコンとGP-IBインターフェースを用いて、磁気ディスクに自動収録した。

(g) イオン化センサーから流出した搬送ガスを、活性炭を充填した捕集器、または苛性ソーダ水溶液を満たした捕集容器に導いてヨウ素蒸気を捕集した。

この研究から明らかになった結果を述べると次のようになる。

(1) SiCフィラメントを用いるイオン化センサーは、コレクターが正極のとき、フィラメント電流が小さい範囲ではプランク出力値が安定しているが、電流が大きくなるとアルゴンが電離する。

(2) ヨウ素蒸気をアルゴンガスで搬送し、このイオン化センサーに通して出力特性を測定すると、ヨウ素を検出できることを確認した。フィラメント電流およびコレクター印可電圧を大にすると、ヨウ素検出の感度が上昇する。

(3) イオン化センサーにステンレス鋼コレクターを用いると、センサー出力が経時低減し、放電が起こりやすくなる。白金コレクターを用いると、センサー出力が経時低減せず、放電も起こり難くなる。

(4) ヨウ素を活性炭に吸着させる方法では、ヨウ素捕集量に再現性が認められないが、ヨウ素を苛性ソーダ溶液に溶解させる方法では再現性がよくなる。

(5) SiCフィラメントと白金コレクターを用いたイオン化センサーの出力値(時間積分値)と、苛性ソーダ溶液に捕集したヨウ素量との間には、直線関係が存在する。

(6) 以上の結果から、SiCフィラメントと白金コレクターを用いたイオン化センサーは、アルゴンガス中のヨウ素を検出するセンサーとして有望であり、ヨウ素の拡散係数測定に使用可能である。

9. 参考文献

- [1] Kunkel, W. P. : Fission-product retention in sodium, NAA-SR-11766 (1966)
- [2] Castleman, A. W. and Tang, I. N. : Vaporization of fission products from irradiated fuels, Nuclear Science and engineering Vol. 29, P159 (1967)
- [3] Kieholtz, C. W. and Battle, C. C. : Fission product release and transport in liquid metal fast breeder reactors, ORNL-NSIC-37 (1969)
- [4] Castleman, A. W. and Tang, I. N. : Fission product vaporization from sodium systems, BNL-13099 (1968)
- [5] Holson, J. N., and M. R. Strunk : Ind. Eng. Chem. Fundam., 3: 163 (1964)
- [6] Seager, S. L., L. R. Geertson, and J. C. Giddings: J. Chem. Eng. Data, 8:168(1963)
- [7] Srivastava, B. N., and I. B. Srivastava : J. Chem. Phys., 36: 2616 (1962)
- [8] Yamamoto, H., et al : Development of fluctuation monitor type sodium ionization Detector, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 23, P573 (1986)
- [9] 山本 元 : 高速炉カバーガス流路内におけるナトリウムミストの挙動に関する研究, 学位論文 (1991)
- [10] Ivanovskii, M. N. , et al : Interdiffusion during the condensation of potassium vapor from a gas mixture, Teplofizik vysokikh temperatur, Vol. 7, p479 (1969)
- [11] Khomchenkov, B. Ml. , et al : Diffusion coefficients of cesium and potassium vapors in helium and argon, Teplofizik vysokikh Temperatur, Vol. 6, p999 (1968)

謝　辞

本研究は動力炉・核燃料開発事業団、大洗工学センター、安全工学部プラント安全工学室から、茨城大学工学部機械工学科 佐川憲彦教授が研究受託して行ったものである。

測定装置を製作するに当たり、同プラント安全工学室 原 広室長をはじめ研究員、実験補助員の方々に種々援助して頂いた。

イオン化センサーの設計に当たっては、(株)日立製作所(計測器事業部産業システム設計部)葛西省三氏から多々助言を頂いた。炭化ケイ素製のフィラメントの採用に当たり、(株)化研、蓼沼克嘉氏、長谷川良雄氏の協力を頂いた。また、ヨウ素分析に当たっては同社、吉田 茂氏、黒澤きよ子氏の協力を頂いた。対接地絶縁抵抗が高い直流電源を製作するにあたっては、(株)タナックス、田中安則氏の協力を頂いた。

終わりに臨み指導と協力頂いた方々に厚く感謝いたします。

付録1 データ収録用プログラム

```
100  ' ****
110  ' *          *
120  ' *      R8240 CONTROL PROGRAM      *
130  ' *          *
140  ' ****
150  '
160 INPUT "INPUT FILE NAME FROM KEY BOARD"; NAM$           ' データファイル名を読み込み
170 INPUT "INPUT MEASURING TIME IN HOURS"; TT             ' 測定時間限度を読み込み
180 OPEN "A:¥BASIC¥"+NAM$+".OUT" FOR OUTPUT AS #1        ' 読み込んだ名のファイルを開く
190 '
200 PRINT #1, DATE$; ", " ;TIME$                         ' 日付と時刻をファイルに書き込み
210 T0$=TIME$                                              ' 時刻を秒単位に換算
220 TOH=VAL(LEFT$(T0$, 2))
230 TOM=VAL(MID$(T0$, 4, 2))
240 TOS=VAL(RIGHT$(T0$, 2))
250 TOSS=TOH*3600+TOM*60+TOS
260 '
270 ISET IFC                                              ' インターフェース・クリア
280 ISET REN                                              ' リモート・イネーブル
290 CMD DELIM=0                                           ' デリミタを CR+LF に設定
300 J=0                                                    ' 測定回数を初期化
310 '
320 PRINT @1; "C"                                         ' R8240 デバイスを初期化
330 PRINT @1; "F2, R0, M01, DG0, IT2"
```

```

331          ' R8240 パラメータを設定
332          ' F2 …直流電流測定
333          ' R0 …AUTO RANGE
334          ' M01 …SAMPLING HOLD
335          ' DGO …DRIVING GUARD OFF
336          ' IT2 …積分時間を5 PLCに
340      '
350 FOR I=1 TO 32000          ' 測定回数の限度を 32000回
360 J=J+1
370 INPUT WAIT 10, " "; NUL$ 
371          ' 1秒間待ち
380 PRINT @1; "E"           ' R8240 にスタートを指令
390 INPUT @1; A$             ' R8240 に測定データ受信を指令
400 T$=TIME$                ' 現時刻を秒単位に換算
410 TH=VAL(LEFT$(T$, 2))
420 TM=VAL(MID$(T$, 4, 2))
430 TS=VAL(RIGHT$(T$, 2))
440 TSS=TH*3600+TM*60+TS
450 DT=TSS-T0SS            ' 測定開始からの時間（秒）
460 LIMIT=3600*TT           ' 測定時間限度を秒単位
470 IF DT<LIMIT THEN 480 ELSE 530
480 DAT$=RIGHT$(A$, 11)      ' 測定時間限度内なら継続
481                         ' 測定データから ID を除去
490 PRINT J, TIME$, DT, A$ 
491                         ' CRTに測定回数、現時刻、開始か
492                         ' らの時間、測定データを表示
500 PRINT #1, J, DT, DAT$ 
501                         ' ファイルに測定回数、開始からの
502                         ' 時間、測定データを書き込み
510 NEXT I
520 '
530 PRINT #1, "FINISHED"     ' 測定時間限度を越えたら終了
540 END

```

付録2 収録イオン化センサー出力電流データの積分プログラム

```
10   ' ****
20   ' *
30   ' *      Ion Current      *
40   ' *      *
50   ' *      Integral Program *
60   ' *      *
70   ' ****
80   DIM DAT(10000), QLT(10000), TT(10000),
90   DIM CXN(5200), CYN(5200)
100  CONSOLE 0,25,0,1: SCREEN 3,0,0,1
110  COLOR 3
120  ' ****
130  LOCATE 10,10
140  INPUT"disk driver (A: B: C: D: E:) ... ";D$
150  GOSUB *IP
160  BFNAM$=NAM$: BFWNAM$=WNAM$
170  DD$=D$+":"
180  IF OPFLAG = 0 THEN OPEN DD$+NAM$+".OUT" FOR INPUT AS #1
190  IF OPFLAG = 0 THEN OPEN DD$+WNAM$+".DFF" FOR OUTPUT AS #2
200  IF FFLAG = 1 AND OPFLAG = 1 THEN OPEN DD$+NAM$+".OUT" FOR
     INPUT AS #1
210  IF WFFLAG = 1 AND OPFLAG = 1 THEN OPEN DD$+WNAM$+".DFF" FOR
     OUTPUT AS #2
220  OPFLAG=1
230  IF FFLAG = 1 THEN 850
240  INPUT"input start data NO.";S
250  INPUT"input end   data NO.";E
260  INPUT" tangent data pitch ";PITCH
270  ' ****
280  DTA=0
290  SUM=0
```

```
300 INPUT #1, DAY$, TIM$  
310 PRINT #2, DAY$; ","; TIM$  
320 FOR I=0 TO E  
330 INPUT #1, J, DT, DATC  
340 TT(J)=DT  
350 DAT(J)=DATC  
360 LM=J  
370 NEXT I  
380 SUM=0  
390 FOR K=S TO E  
400 IF (K-1)>0 THEN DTA=TT(K-1) ELSE DTA=0  
410 DTT=TT(K)-DTA  
420 '  
430 FOR H=K-10 TO K-2  
440 BDAT=BDAT+DAT(H)  
450 COUH=H  
460 NEXT H  
470 BDAT=BDAT/COUH  
480 SUM=SUM+DTT*(DAT(K)-BDAT)  
490 QLT(K)=SUM  
500 PRINT #2, K, TT(K), DAT(K), QLT(K)  
510 LM=K  
520 NEXT K  
530 '  
540 FOR L=S TO E  
550 LOCATE 48, 10  
560 PRINT "DATA NUMBER=";L  
570 LOCATE 48, 11  
580 PRINT "TT (";L;")=";TT(L)  
590 LOCATE 48, 12  
600 PRINT "DAT(";L;")=";DAT(L)  
610 LOCATE 48, 13  
620 PRINT "QLT(";L;")=";QLT(L)  
630 NEXT L  
640 GOSUB *CALPSET
```

```

650 CLOSE
660 END
670 ' ===== E N D =====
680 '
690 ' =====
700 ' ===== SUB-ROUTINE =====
710 ' =====
720 *IP
730 LOCATE 8, 1
740 INPUT "input data file name....."; NAM$
750 IF NAM$ <> "" AND OPFLAG =1 THEN FFLAG=1:CLOSE #1
760 IF NAM$ = "" AND OPFLAG =1 THEN FFLAG=1:CLOSE #1:NAM$=BFNAME$
770 IF NAM$ = "" AND OPFLAG =0 THEN 740
780 LOCATE 8, 2
790 INPUT "output file name....."; WNAM$
800 IF WNAM$="" THEN WNAM$=NAM$ '///////////////DEF
810 IF WNAM$ <> "" AND OPFLAG=1 THEN WFFLAG=1: CLOSE #2
820 IF WNAM$ = "" AND OPFLAG=1 THEN WFFLAG=1: CLOSE #2:WNAM$=BFWNAM$
830 IF WNAM$ = "" AND OPFLAG=0 THEN 790
840 RETURN
850 '
860 '
870 *PT
880 K=10
890 PSET(X, 399-Y*GBB-K), C
900 LINE(1, 399)-(1, 60), 3
910 LINE(1, 399-K)-(639, 399-K), 3
920 RETURN
930 '
940 *CALPSET
950 COUN=0: X=0: Y=0: MFLAG=0: STRFLAG=0
960 SCC=0
970 FOR R=S TO LM
980 MIY=S MOD 639
990 IF R<639 THEN RMOD=R

```

```
1000 IF R>=639 THEN RMOD=(R MOD 639)
1010 IF R<639 THEN 1050
1020 COUN=COUN+1
1030 LOCATE 48,16
1040 PRINT"COUN=";COUN
1050 IF Y<0 THEN Y=Y*(-1)
1060 X=RMOD
1070 Y=DAT(R)*1E+08
1080 IF Y<0 THEN Y=Y*(-1)
1090 IF STRFLAG<>1 THEN X=RMOD-MIY
1100 IF Y>.001 THEN 1140
1110 LOCATE 0,0
1120 PRINT TIME$
1130 GOTO 1390
1140 IF MFLAG=1 THEN 1200
1150 YMIN=Y
1160 NMIN=R
1170 LOCATE 48,19
1180 PRINT"YMIN_NO. =";NMIN;" YMIN(DAT)=";YMIN
1190 MFLAG=1
1200 IF YMAX>=Y THEN 1260
1210 YMAX=Y
1220 NMAX=R
1230 LOCATE 48,20
1240 COLOR 6
1250 PRINT"YMAX_NO. =";NMAX;" YMAX(DAT)=";YMAX
1260 GOSUB *PT
1270 X=RMOD
1280 Y=QLT(R)*1E+06:Y=.4*Y
1290 IF Y <0 THEN Y=Y*(-1)
1300 IF STRFLAG=1 THEN 1330
1310 X=RMOD-MIY
1320 STRFLAG=1
1330 IF R <= LM-200 THEN 3260
1340 SCC=SCC+1
1350 CXN(SCC)=X
```

```
1360 CYN(SCC)=Y
1370 CCN=SCC
1380 GOSUB *PT
1390 NEXT R
1400 '
1410 C=1
1420 K=10
1430 FOR CT=PITCH+1 TO CCN
1440 ZA1XY=CT-PITCH
1450 ZA2XY=CT
1460 IF X<0 THEN XXX=X
1470 X1=CXN(ZA1XY)
1480 Y1=CYN(ZA1XY)
1490 X2=CXN(ZA2XY)
1500 Y2=CYN(ZA2XY)
1510 X=(X1*Y2-X2*Y1)/(Y2-Y1)
1520 IF X>0 THEN X=XXX
1530 C=C+1
1540 IF C=7 THEN C=1
1550 LOCATE 8,10
1560 PRINT"(X,0)=",X
1570 SX2=CXN(CT)
1580 SY2=CYN(CT)
1590 SX=X
1600 CLOSE #1, #2
1610 IF FFLAG=1 THEN GOTO 1650
1620 OPEN DD$+NAM$+".TAN" FOR OUTPUT AS #3
1630 FFLAG=1
1640 SXDAT=LM-200+ZA2XY
1650 PRINT #3, SXDAT;,";SX
1660 NEXT CT
1670 RETURN
```

付録 3 測定条件と結果（その1）

Exp. No.	2	4	5	6	7
気化器下部	59.6	58.2	58.2	58.2	78.2
気化器上部	60.0	58.1	58.1	58.1	78.3
気化器出口	76.8	75.1	74.7	75.1	90.5
搬送ガス入口	117.4	115.5	115.3	115.1	126.9
搬送ガス出口	119.2	118.7	119.0	118.9	128.9
弁首部	124.2	125.5	124.2	124.3	128.7
カラム	121.3	120.2	119.7	120.7	131.7
予熱導管	108.0	107.0	107.0	107.0	132.1
接続導管	114.1	117.6	115.5	118.9	110.6
脱酸素管	407.1	398.8	400.5	396.8	397.8
搬送ガス流量 (l/min)	2.9	3.0	3.0	3.0	3.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-400	-400	-401	-400	-400
フィラメント電源 電流(A)	1.57	1.61	1.57	1.58	1.55
電圧(V)	9.97	9.99	9.98	10.00	10.00
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC ステンレス鋼 活性炭	SiC ステンレス鋼 活性炭	SiC ステンレス鋼 活性炭	SiC ステンレス鋼 活性炭	SiC ステンレス鋼 活性炭
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	3.48	0.41	0.98	0.31	0.50
ヨウ素捕集量	44.8 mg	30.7	25.3	18.2	42.8

測定条件と結果（その2）

Exp. No.	8	9	10	13	14
気化器下部	78.3	78.3	78.5	78.4	78.6
気化器上部	78.3	78.5	78.6	78.3	78.8
気化器出口	90.0	89.7	90.0	92.7	92.7
搬送ガス入口	127.8	128.1	128.0	139.2	139.1
搬送ガス出口	129.0	128.9	128.8	138.9	138.8
弁首部	129.8	135.9	135.4	147.8	147.7
カラム	131.7	131.1	131.4	141.4	141.4
予熱導管	132.7	134.6	133.8	152.6	151.8
接続導管	123.3	117.2	116.2	115.8	115.9
脱酸素管	397.5	400.9	400.7	400.1	400.3
搬送ガス流量 (l/min)	3.0	2.0	2.0	2.0	2.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-500	-500	-500	-500	-500
フィラメント電源 電流(A)	1.72	1.71	1.67	1.56	1.49
電圧(V)	11.98	11.99	11.99	10.98	11.00
フィラメント コレクター	SiC ステンレス鋼	SiC ステンレス鋼	SiC ステンレス鋼	SiC ステンレス鋼	SiC ステンレス鋼
捕集方法	活性炭	活性炭	活性炭	活性炭	活性炭
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	50.5	29.1	36.6	11.5	149
ヨウ素捕集量	38.4	40.6	46.8	44.9	39.1

測定条件と結果（その3）

Exp. No.	17	21	22 *	23 *	24 *
気化器下部	80.2	80.2	80.1	80.0	79.9
気化器上部	80.3	80.2	80.2	80.1	80.0
気化器出口	87.7	88.5	87.7	87.6	87.6
搬送ガス入口	116.8	117.0	116.8	116.8	116.8
搬送ガス出口	188.8	119.0	118.9	118.8	118.9
弁首部	123.0	122.6	129.8	129.7	129.5
カラム	120.7	122.6	120.8	120.6	120.6
予熱導管	118.3	118.0	120.1	120.3	120.5
接続導管	119.6	119.3	122.6	123.2	121.3
脱酸素管	401.8	401.9	401.7	402.2	402.0
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-500	-400	-400	-400	-400
フィラメント電源 電流(A)	1.78	1.78	1.73	1.71	1.68
電圧(V)	10.99	11.00	10.98	11.00	11.00
フィラメント コレクター	SiC	SiC	SiC	SiC	SiC
捕集方法	ステンレス鋼 NaOH水溶液	ステンレス鋼 NaOH水溶液	ステンレス鋼 NaOH水溶液	ステンレス鋼 NaOH水溶液	ステンレス鋼 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	26.6	73.6	9.96	3.16	1.92
ヨウ素捕集量	37.5	29.5	4.75	3.25	2.00

※：ブランクテスト

測定条件と結果（その4）

Exp. No.	25 *	26	27 *	28	32
気化器下部	80.1	80.1	80.2	80.0	80.7
気化器上部	80.2	80.1	80.3	80.1	80.9
気化器出口	87.8	87.7	87.9	87.8	88.4
搬送ガス入口	116.8	116.9	117.1	117.0	117.3
搬送ガス出口	118.8	118.9	118.9	118.8	118.4
弁首部	129.8	129.2	129.6	131.3	126.1
カラム	120.3	120.5	120.7	120.6	120.4
予熱導管	120.3	120.2	120.4	120.5	123.8
接続導管	123.0	121.0	122.3	124.6	124.9
脱酸素管	402.1	401.8	402.1	401.9	403.0
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
測定時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-400	-400	-400	-400	-400
フィラメント電源 電流(A)	1.68	1.66	1.65	1.68	1.65
電圧(V)	10.99	10.98	10.99	10.99	10.99
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC ステンレス鋼 NaOH水溶液	SiC ステンレス鋼 NaOH水溶液	SiC ステンレス鋼 NaOH水溶液	SiC ステンレス鋼 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	1.98	8.37	1.34	5.83	3.23
ヨウ素捕集量	1.00	68.3	1.25	54.5	72.0

※：ブランクテスト

測定条件と結果（その5）

Exp. No.	33	34	36	38	39
気化器下部	80.7	81.0	93.0	92.8	58.9
気化器上部	80.9	81.1	93.1	92.9	58.7
気化器出口	88.6	88.6	105.7	105.6	85.5
搬送ガス入口	117.4	117.6	148.4	148.1	148.3
搬送ガス出口	118.5	118.7	148.4	148.3	148.4
弁首部	124.7	125.8	150.5	150.9	149.3
カラム	121.0	120.7	151.5	151.3	149.9
予熱導管	123.9	123.9	162.4	162.5	162.7
接続導管	122.7	124.6	151.6	152.0	148.9
脱酸素管	402.9	403.2	403.2	403.3	402.9
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
測定時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-400	-400	-400	-401	-400
フィラメント電源 電流(A)	1.67	1.65	1.65	1.64	1.63
電圧(V)	10.98	11.00	11.00	11.02	11.03
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	1.93	1.70	2.59	2.08	0.80
ヨウ素捕集量	69.3	67.5	122.3	88.0	15.3

測定条件と結果（その6）

Exp. No.	40	41	42 *	43	44
気化器下部	69.9	69.9	58.9	58.9	59.1
気化器上部	69.8	69.8	58.3	58.6	58.9
気化器出口	91.9	92.0	85.7	85.5	85.7
搬送ガス入口	148.1	148.4	147.9	148.0	148.2
搬送ガス出口	148.5	148.6	148.2	148.3	148.7
弁首部	149.8	151.3	149.9	150.7	149.0
カラム	150.2	150.5	149.6	149.8	150.4
予熱導管	162.5	162.4	162.3	162.7	161.9
接続導管	149.9	152.2	151.4	151.8	148.2
脱酸素管	403.0	403.4	402.7	403.5	403.2
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-400	-400	-400	-400	-500
フィラメント電源 電流(A)	1.63	1.62	1.62	1.58	1.69
電圧(V)	11.02	11.01	11.03	11.39	11.98
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	0.83	0.81	0.29	0.51	2.50
ヨウ素捕集量	26.3	20.8	1.5	12.5	15.5

* : ブランクテスト

測定条件と結果（その7）

Exp. No.	45	46	47	48	49
気化器下部	59.2	59.0	69.8	69.9	70.0
気化器上部	59.0	58.8	69.7	70.0	69.9
気化器出口	85.8	85.4	92.1	92.1	92.1
搬送ガス入口	148.2	147.9	148.1	148.3	148.1
搬送ガス出口	148.7	148.3	148.5	148.6	148.6
弁首部	148.0	148.0	148.9	150.4	149.3
カラム	150.3	149.6	150.5	150.3	150.7
予熱導管	161.9	162.0	162.1	162.3	162.2
接続導管	146.9	147.0	149.0	151.2	149.7
脱酸素管	402.8	402.5	402.5	403.5	403.1
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-500	-500	-500	-500	-500
フィラメント電源 電流(A)	1.67	1.67	1.67	1.65	1.57
電圧(V)	11.98	11.99	11.98	12.00	12.00
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	2.46	2.23	3.32	2.45	2.05
ヨウ素捕集量	14.8	13.3	27.3	23.3	22.3

測定条件と結果（その8）

Exp. No.	50	51	52	53	54
気化器下部	81.0	81.0	81.0	92.7	92.7
気化器上部	81.1	81.1	80.9	92.9	92.8
気化器出口	98.6	98.7	98.8	105.7	105.5
搬送ガス入口	148.2	148.1	148.4	147.9	148.1
搬送ガス出口	148.6	148.7	148.7	148.3	148.3
弁首部	148.5	149.6	148.5	148.1	150.3
カラム	151.0	151.1	150.9	151.7	150.9
予熱導管	162.0	162.1	162.0	162.4	162.5
接続導管	148.6	149.6	147.8	148.3	151.1
脱酸素管	402.7	402.9	402.9	402.5	403.1
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.2	2.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-500	-500	-500	-500	-500
フィラメント電源 電流(A)	1.66	1.64	1.65	1.64	1.61
電圧(V)	12.17	12.09	12.25	12.26	12.38
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	5.46	2.86	4.25	30.2	7.36
ヨウ素捕集量	48.3	37.5	43.5	87.0	81.8

測定条件と結果（その9）

Exp. No.	55 *	56	57	58	59
気化器下部	92.7	92.9	93.0	99.8	99.9
気化器上部	92.8	93.0	93.1	100.0	100.1
気化器出口	105.7	105.9	105.7	110.1	110.0
搬送ガス入口	148.3	148.0	148.1	148.3	148.0
搬送ガス出口	148.6	148.3	148.5	148.6	148.3
弁首部	149.4	150.7	151.5	148.4	149.7
カラム	151.5	151.2	151.1	151.6	151.6
予熱導管	162.5	162.6	162.2	162.3	162.0
接続導管	150.0	152.1	153.1	147.6	150.2
脱酸素管	403.0	403.1	403.5	402.8	402.8
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-500	-500	-500	-500	-500
フィラメント電源 電流(A)	1.63	1.61	1.61	1.61	1.60
電圧(V)	12.35	12.46	12.51	12.59	12.50
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	1.57	13.5	15.7	60.0	36.2
ヨウ素捕集量	4.00	93.5	84.3	145	131

* : ブランクテスト

測定条件と結果（その 10）

Exp. No.	60	61	62	63	64
気化器下部	99.9	99.8	99.8	99.7	106.0
気化器上部	100.1	99.8	100.0	99.8	106.2
気化器出口	110.1	110.2	110.1	110.0	113.9
搬送ガス入口	148.0	148.3	147.8	147.9	148.3
搬送ガス出口	148.4	148.4	148.3	148.3	148.6
弁首部	148.6	150.8	150.8	147.8	149.6
カラム	151.8	151.0	151.4	151.7	152.2
予熱導管	162.1	163.4	162.3	162.1	162.7
接続導管	148.5	152.3	152.1	147.3	149.2
脱酸素管	402.6	403.0	403.1	402.6	403.0
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-500	-500	-500	-500	-500
フィラメント電源 電流(A)	1.60	1.59	1.58	1.58	1.57
電圧(V)	12.56	12.60	12.59	12.71	12.69
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	53.1	41.0	15.3	109	697
ヨウ素捕集量	122	136	118	113	195

測定条件と結果（その 11）

Exp. No.	65	66	67	68	69
気化器下部	59.1	58.9	70.0	70.1	80.8
気化器上部	58.8	58.7	69.7	69.9	80.9
気化器出口	85.4	85.2	92.1	91.9	98.6
搬送ガス入口	148.2	147.8	148.1	147.9	148.2
搬送ガス出口	148.6	148.3	148.5	148.4	148.5
弁首部	150.3	150.0	149.9	151.2	151.2
カラム	150.0	149.8	150.6	150.4	150.7
予熱導管	162.4	162.1	162.4	161.6	162.5
接続導管	149.7	149.3	149.9	152.0	151.8
脱酸素管	402.9	402.3	403.1	403.1	403.6
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-500	-500	-500	-500	-500
フィラメント電源 電流(A)	1.57	1.57	1.55	1.56	1.48
電圧(V)	12.75	12.79	12.83	12.95	13.39
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	5.70	7.11	8.90	11.3	30.5
ヨウ素捕集量	12.0	10.3	18.0	15.3	35.5

測定条件と結果（その12）

Exp. No.	70	71	72	73	74 *
気化器下部	81.2	105.9	105.8	81.0	59.0
気化器上部	81.1	106.1	106.0	81.1	58.8
気化器出口	98.6	113.6	113.6	98.8	85.9
搬送ガス入口	148.1	148.2	147.8	149.4	147.8
搬送ガス出口	148.4	148.5	148.4	148.6	148.3
弁首部	150.8	149.6	150.0	141.1	142.8
カラム	150.7	152.0	152.2	151.4	149.7
予熱導管	162.1	161.9	161.6	171.7	161.6
接続導管	150.9	149.3	150.1	151.4	154.4
脱酸素管	403.0	403.0	402.9	401.9	402.3
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-500	-500	-500	-500	-500
フィラメント電源 電流(A)	1.52	1.50	1.46	1.48	1.80
電圧(V)	13.27	13.32	16.63	13.50	11.21
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	21.3	913	2860	43.3	0.49
ヨウ素捕集量	29.3	199	186	46.8	14.3

注：フィラメント交換

測定条件と結果（その13）

Exp. No.	75	76	77	79 *	80
気化器下部	70.2	81.0	93.1	99.9	70.2
気化器上部	70.2	81.0	93.2	100.1	70.1
気化器出口	92.7	98.9	106.3	110.4	92.3
搬送ガス入口	148.0	148.2	148.1	148.1	148.0
搬送ガス出口	148.7	148.5	148.7	148.6	148.5
弁首部	141.6	142.3	142.3	140.7	142.0
カラム	150.8	151.0	151.9	151.9	151.1
予熱導管	161.2	162.2	161.8	161.4	161.8
接続導管	151.9	153.0	152.9	151.4	153.5
脱酸素管	402.1	402.4	402.2	402.0	402.2
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-500	-500	-500	-500	-500
フィラメント電源 電流(A)	1.78	1.77	1.78	1.78	1.77
電圧(V)	11.30	11.29	11.30	11.28	11.38
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	0.81	1.28	1.50	0.50	1.05
ヨウ素捕集量	32.0	58.0	56.9	1.50	31.3

* : ブランクテスト

測定条件と結果（その14）

Exp. No.	81	84	85	86	87
気化器下部	70.2	81.1	81.2	59.2	59.2
気化器上部	70.1	81.2	81.2	59.0	59.0
気化器出口	91.9	98.5	99.0	85.6	85.6
搬送ガス入口	147.9	148.0	147.9	147.6	147.7
搬送ガス出口	148.7	148.8	148.8	148.6	148.4
弁首部	152.9	153.9	145.3	145.0	145.3
カラム	150.8	151.2	151.3	150.0	150.1
予熱導管	160.8	160.9	160.4	160.7	161.1
接続導管	150.1	152.7	154.2	154.7	155.1
脱酸素管	401.6	402.1	402.0	401.8	401.9
搬送ガス流量 (l/min)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
通気時間(h)	2	2	2	2	2
高圧電源(V)	-500	-500	-500	-500	-500
フィラメント電源 電流(A)	1.76	1.74	1.74	1.74	1.74
電圧(V)	11.41	11.49	11.54	11.55	11.56
フィラメント コレクター 捕集方法	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液	SiC 白金 NaOH水溶液
センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	0.94	1.48	2.12	0.68	0.65
ヨウ素捕集量	33.5	43.3	56.3	14.5	15.5

付録 4 活性炭に吸着捕集したヨウ素量（その1）

Exp. No.	2	4
ガラス管重量	34.7264g	34.3835
活性炭重量	4.5867	4.8710
捕集器全体重量	39.4499	39.3852
① 1時間Ar通気	39.3284	39.2416
② - ①	+0.0015	+0.0023
② " ③ - ②	39.3299	39.2439
③ " ④ - ③	-0.0014	-0.0027
④ " ⑤ - ④	39.3285	39.2412
⑤ " ⑥ - ⑤	-0.0047	+0.0024
⑥ " ⑦ - ⑥	39.3238	39.2436
⑦ " ⑧ - ⑦	-0.0008	+0.0002
⑧ " ⑨ - ⑧	39.3230	39.2438
⑨ " ⑩ - ⑨	-0.0046	
⑩ " ⑪ - ⑩	39.3814	
⑪ " ⑫ - ⑪	-0.0020	
⑫ " ⑬ - ⑫	39.3164	
⑬	-0.0004	
ヨウ素捕集実験	39.3574	39.2745
ヨウ素吸着量	44.8mg	30.7mg

活性炭に吸着捕集したヨウ素量（その2）

Exp. No.	5	6
ガラス管重量	34.1747	34.1805
活性炭重量	4.5556	4.4309
捕集器全体重量	38.9483	38.7577
① 1時間Ar通気	38.7982	38.6191
② - ①	+0.0018	-0.0019
② " ③ - ②	38.8000	38.6172
③ " ④ - ③	-0.0006	+0.0006
④ " ④ - ③	38.7994	31.6178
-0.0011	38.7983	
ヨウ素捕集実験	38.8236	38.6360
ヨウ素吸着量	25.3mg	18.2mg

活性炭に吸着捕集したヨウ素量（その3）

Exp. No.	7	8
ガラス管重量	35.1355	34.1482
活性炭重量	4.5431	4.4938
捕集器全体重量	39.8714	38.8334
① 1時間Ar通気	39.7295	38.6825
② - ①	-0.0036	-0.0032
② " "	39.7259	38.6793
③ - ②	+0.0017	+0.0002
③ " "	39.7276	38.6795
④ - ③	-0.0012	
④ " "	39.7264	
ヨウ素捕集実験	39.7692	38.7179
ヨウ素吸着量	42.8	38.4mg

活性炭に吸着捕集したヨウ素量（その4）

Exp. No.	9	10
ガラス管重量	33.8887	33.6719
活性炭重量	4.5216	4.5437
捕集器全体重量	38.5482	38.4275
① 1時間Ar通気	38.4060	38.2735
② - ①	-0.0032	-0.0021
② " ③ - ②	38.4028	38.2714
③ " ④ - ③	-0.0014	-0.0007
④ " ④ - ③	38.4014	38.2707
	+0.0006	-0.0002
	38.4020	38.2705
ヨウ素捕集実験後	38.4426	38.3173
ヨウ素吸着量	40.6mg	46.8mg

活性炭に吸着捕集したヨウ素量（その5）

Exp. No.	13	14
ガラス管重量	34.4357	34.5276
活性炭重量	4.5222	4.4503
捕集器全体重量	39.1446	39.1554
① 1時間Ar通気	39.0030	39.0158
② - ①	-0.0051	-0.0017
② " "	38.9979	39.0141
③ - ②	+0.0049	+0.0067
③ " "	39.0028	39.0208
④ - ③		-0.0107
④ " "		39.0101
⑤ - ④		+0.0052
⑤ " "		39.0153
ヨウ素捕集実験後	39.0477	39.0544
ヨウ素吸着量	44.9mg	39.1mg

付録 5 奇性ソーダ水溶液に溶解捕集したヨウ素量（その 1）

Exp. No.	気化器 温度 (°C)	センサー出力 積分値 ($\times 10^{-7}$)	ヨウ素 溶解量 (mg)
17	80.2	37.5	38
22	80.1	9.96	5
23	80.0	3.16	3
24	79.9	1.92	2
25	80.1	1.98	1
26	80.1	8.37	68
27	80.2	1.34	1
28	80.0	5.83	55
32	80.7	3.23	72
33	80.7	1.93	69
34	81.0	1.70	68
35	110.8	29.3	850

苛性ソーダ水溶液に溶解捕集したヨウ素量（その2）

Exp. No.	気化器 温度 (°C)	センサー出力 積分値 ($\times 10^{-7}$)	ヨウ素 吸着量 (mg)
36	93.0	2.59	122
37	92.8	2.45	108
38	92.8	2.08	88
39	58.9	0.80	15
40	69.9	0.83	26
41	69.9	0.81	21
42	58.9	0.29	2
43	58.9	0.51	13
44	59.2	2.50	16
45	58.8	2.46	15
46	59.0	2.23	13
47	70.0	3.32	27

苛性ソーダ水溶液に溶解捕集したヨウ素量（その3）

Exp. No.	気化器 温度 (°C)	センサー出力 積分値 ($\times 10^{-7}$)	ヨウ素 吸着量 (mg)
48	69.7	2.45	24
49	70.1	2.05	23
50	80.8	5.46	48
51	80.9	2.86	38
52	80.8	4.25	44
53	92.6	30.2	87
54	92.7	7.36	82
55	92.7	1.57	4
56	92.9	13.5	94
57	92.9	15.7	84
58	99.6	60.0	145
59	100.0	36.2	131

苛性ソーダ水溶液に溶解捕集したヨウ素量 (その4)

Exp. No.	気化器 温度 (°C)	センサー出力 積分値($\times 10^{-7}$)	ヨウ素 吸着量(mg)
60	100.0	53.1	122
61	99.7	40.9	136
62	99.7	15.2	118
63	99.9	109.2	113
64	105.5	697.0	195
65	58.9	5.70	12
66	58.8	7.11	10
67	70.1	8.90	18
68	70.0	11.3	15
69	81.0	30.5	36
70	80.8	21.3	29
71	105.7	913.5	200

苛性ソーダ水溶液に溶解捕集したヨウ素量（その5）

Exp. No.	気化器 温度 (°C)	センサー出力 積分値 ($\times 10^{-7}$)	ヨウ素 吸着量 (mg)
72	105.7	2864.5	186
73	81.0	43.3	47
74	59.0	0.49	14
75	70.2	0.81	32
76	81.0	1.28	58
79	99.9	0.50	2
80	70.2	1.05	31
81	70.2	0.94	34
84	81.1	1.48	43
85	81.2	2.12	56
86	59.2	0.68	15
87	59.2	0.65	16