

ヨウ素フィルター試験（中間報告）

1993年10月

動力炉・核燃料開発事業団
大洗工学センター

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせください。

〒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

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002 Narita-cho, O-arai-machi, Higashi-Ibaraki, Ibaraki-ken, 311-13, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

ヨウ素フィルター試験 (中間報告)

加藤 一憲*, 宮原 信哉**

要 旨

高速増殖炉では、事故時に発生する放射性物質が格納施設内から環境中へ漏出するのを防ぐため、その雰囲気フィルターで浄化している。高速増殖原型炉「もんじゅ」では、鋼製の格納容器とその外側のコンクリート製格納施設の間にアニュラス部を設け、常時その雰囲気をフィルターで浄化しながら負圧に維持することによって、放射性物質の環境中への漏出を防止している。このアニュラス循環排気系に設けられたフィルターは粒子状物質を捕集するためのエアロゾルフィルター（多層式、中性能、HEPA）とガス状ヨウ素を捕集するためのチャコールフィルターから構成されている。これらの捕集効率等についてはエアロゾルフィルターについてはナトリウムエアロゾルを使用した試験によって、チャコールフィルターについては単体ヨウ素（ I_2 ）とヨウ化メチル（ CH_3I ）を使用した試験によって、各々の性能が既に確認されている。しかし、ガス状ヨウ素についてはエアロゾル用フィルターによっても捕集されることが報告されており、また、ナトリウムエアロゾル環境下ではそれがさらに加速される事も考えられる。そこで、将来炉に向けた国の安全研究年次計画の一環として、ナトリウムエアロゾル環境下におけるガス状ヨウ素のエアロゾルフィルターとチャコールフィルターによる捕集効率に関する試験を実施した。

その結果ナトリウムエアロゾルとガス状ヨウ素（ I_2 ）が混在する条件下において、エアロゾルフィルター、チャコールフィルターが実機で期待する性能を有していることが確認された。また、この条件下においてガス状ヨウ素（ I_2 ）はエアロゾルフィルターで良く捕集される（99%以上）ことがわかった。これにより、ガス状ヨウ素（ I_2 ）がエアロゾルフィルターで捕集される効果が、フィルター性能評価上十分期待できることが明らかとなった。

* 原子力技術(株)

** 大洗工学センター 安全工学部 プラント安全工学室

目 次

| | |
|--------------------------|----|
| はじめに | 1 |
| 1. 試験方法と試験条件 | 2 |
| 1.1 試験装置 | 2 |
| 1.2 試験方法 | 4 |
| 1.3 試験条件 | 5 |
| 2. 試験結果のまとめと検討 | 8 |
| 2.1 ヨウ素捕集効率 | 8 |
| 2.2 エアロゾル捕集効率 | 14 |
| 2.3 ガス状ヨウ素の発生 | 14 |
| 3. 結 論 | 16 |
| 3.1 ヨウ素捕集効率 | 16 |
| 3.2 Naエアロゾル捕集効率 | 17 |
| 3.3 ガス状ヨウ素の発生 | 17 |
| 4. 今後の課題 | 18 |
| 謝 辞 | 21 |
| 参考文献 | 22 |
| Appendix 試験実施状況・結果 | 23 |

表リスト

| | | |
|--------|----------------|----|
| 表 1. 1 | 試験マトリックス | 45 |
| 表 2. 1 | サンプル分析結果 | 46 |
| 表 A. 1 | ヨウ素フィルター試験実施状況 | 47 |
| 表 A. 2 | ヨウ素フィルター試験結果 | 48 |

図リスト

| | | |
|--------|---|----|
| 図 I | 「もんじゅ」非常用フィルターの構成 | 50 |
| 図 II | チャコールフィルター | 51 |
| 図 1. 1 | ヨウ素フィルター試験装置フローシート | 52 |
| 図 1. 2 | ヨウ素フィルター試験装置 | 53 |
| 図 1. 3 | ヨウ素蒸気発生器 | 54 |
| 図 1. 4 | ガス状ヨウ素サンプラー | 55 |
| 図 1. 5 | 一次冷却材漏洩事故時アニュラス部エアロゾル濃度とガス状ヨウ素濃度の 時間変化 — ヨウ素は放射性ヨウ素のみ — | 56 |
| 図 1. 6 | 一次冷却材漏洩事故時アニュラス部エアロゾル濃度とガス状ヨウ素濃度の 時間変化 — ヨウ素は放射性、非放射性ヨウ素全て — | 57 |
| 図 2. 1 | フィルター各部における捕集効率 F6-10 | 58 |
| 図 2. 2 | フィルター各部における捕集効率 F6-8(1) | 59 |
| 図 2. 3 | フィルター各部における捕集効率 F6-11 | 60 |
| 図 2. 4 | フィルター各部における捕集効率 F6-9(2) | 61 |
| 図 2. 5 | 各サンプラーに捕集されたヨウ素量とバックグラウンドデータの比較 | 62 |
| 図 2. 6 | F6-7(1)試験結果 | 63 |
| 図 2. 7 | サンプラー各部に捕獲されたヨウ素量とバックグラウンドデータの比較 | 64 |
| 図 A. 1 | F6-1試験サンプル分析結果(1) | 65 |
| 図 A. 2 | F6-1試験サンプル分析結果(2) | 66 |

| | | |
|--------|-------------------------------|----|
| 図A. 3 | F6-2試験サンプル分析結果(1) | 67 |
| 図A. 4 | F6-2試験サンプル分析結果(2) | 68 |
| 図A. 5 | F6-3試験サンプル分析結果 | 69 |
| 図A. 6 | F6-4試験サンプル分析結果 | 70 |
| 図A. 7 | F6-5試験サンプル分析結果(1) | 71 |
| 図A. 8 | F6-5試験サンプル分析結果(2) | 72 |
| 図A. 9 | F6-6試験サンプル分析結果(1) | 73 |
| 図A. 10 | F6-6試験サンプル分析結果(2) | 74 |
| 図A. 11 | F6-7試験サンプル分析結果(1) | 75 |
| 図A. 12 | F6-7試験サンプル分析結果(2) | 76 |
| 図A. 13 | F6-8試験サンプル分析結果(1) | 77 |
| 図A. 14 | F6-8試験サンプル分析結果(2) | 78 |
| 図A. 15 | F6-9試験サンプル分析結果(1) | 79 |
| 図A. 16 | F6-9試験サンプル分析結果(2) | 80 |
| 図A. 17 | F6-10 試験サンプル分析結果 | 81 |
| 図A. 18 | F6-11 試験サンプル分析結果 | 82 |
| 図A. 19 | F6-1試験後各フィルターに捕集されたNa, I量 | 83 |
| 図A. 20 | F6-2 試験後各フィルターに捕集されたNa, I量 | 83 |
| 図A. 21 | F6-3, 4 試験後各フィルターに捕集されたNa, I量 | 83 |
| 図A. 22 | F6-5試験後各フィルターに捕集されたNa量 | 84 |
| 図A. 23 | F6-6試験後各フィルターに捕集されたNa, I量 | 84 |
| 図A. 24 | F6-7試験前：装置内に付着したナトリウム, ヨウ素量 | 85 |
| 図A. 25 | F6-7試験後：装置内に付着したナトリウム, ヨウ素量 | 86 |
| 図A. 26 | F6-8試験前：装置内に付着したナトリウム, ヨウ素量 | 87 |
| 図A. 27 | F6-8試験後：装置内に付着したナトリウム, ヨウ素量 | 88 |
| 図A. 28 | F6-9試験前：装置内に付着したナトリウム, ヨウ素量 | 89 |
| 図A. 29 | F6-9試験後：装置内に付着したナトリウム, ヨウ素量 | 90 |
| 図A. 30 | F6-10試験後：装置内に付着したナトリウム, ヨウ素量 | 91 |
| 図A. 31 | F6-11試験後：装置内に付着したナトリウム, ヨウ素量 | 92 |

は じ め に

高速増殖炉では、事故時に発生する放射性物質が格納施設内から環境中へ漏出するのを防ぐため、その雰囲気フィルターで浄化している。

例えば、高速増殖原型炉「もんじゅ」では、鋼製の格納容器とその外側のコンクリート製格納施設の間にアニュラス部を設け、常時その雰囲気をフィルターで浄化しながら負圧に維持することによって、放射性物質の環境中への漏出を防止している。このアニュラス循環排気系に設けられたフィルターは図Ⅰに示すエアロゾルフィルター（多層式フィルター、中性能フィルター、HEPAフィルター）と図Ⅱに示すチャコールフィルターから構成されており、前者はナトリウムエアロゾルを始めとする粒子状物質の捕集を、後者は単体ヨウ素（ I_2 ）やヨウ化メチル（ CH_3I ）等のガス状ヨウ素の捕集を目的としたものである。これらの捕集効率等についてはエアロゾルフィルターについてはナトリウムエアロゾルを使用した試験^{1)・2)}によって、チャコールフィルターについては単体ヨウ素（ I_2 ）とヨウ化メチル（ CH_3I ）を使用した試験³⁾によって、各々の性能が既に確認されている。しかし、ガス状ヨウ素についてはエアロゾル用フィルターによっても捕集されることが報告^{4)・5)}されており、また、ナトリウムエアロゾル環境下ではそれがさらに加速される事も考えられる。

そこで、将来炉に向けた国の安全研究年次計画の一環として、ナトリウムエアロゾル環境下におけるガス状ヨウ素のエアロゾルフィルターとチャコールフィルターによる捕集効率に関する試験を実施した。

1. 試験方法と試験条件

1.1 試験装置

試験装置は、Naエアロゾル発生装置、フィルターユニットとそれらを継ぐ配管からなり、フィルターユニット前段にはヨウ素蒸気発生器を付設する。試験装置のフローシートを図1.1に全体図を図1.2に示す。

(1) Naエアロゾル発生装置

装置は、FRAT-1試験装置（ステンレス製、内容積3 m³）を使用し、内部に設置したNa燃焼ポット内でNaをプール燃焼することによりエアロゾルを発生させた。Na燃焼ポットは、直径約0.3m、高さ約0.3mのステンレス製円筒容器で、Na加熱用のヒータとエアロゾル発生量を調整するための容器蓋を付設した。

(2) フィルターユニット

ユニットはステンレス製で内部には、エアロゾルフィルターとして多層式、中性能、HBPAフィルターの3種及びチャコールフィルターを組み込み、これらのフィルターエレメントの脱着が容易な構造とし、繰り返し試験が可能なようにした。ユニットには、各フィルターエレメントの吸排気側それぞれにサンプリング管が取付け可能な構造とした。

(3) ヨウ素蒸気発生器（図1.3参照）

装置は、ガラス製フラスコ内でヨウ素の結晶を加熱しI₂蒸気を発生させて、キャリアガス(N₂)によりフィルターユニット前段の配管に送り込むものである。試験時のI₂蒸気濃度はフラスコの加熱温度及びキャリアガス流量により設定し、試験後フラスコ内残留したヨウ素量と試験前にヨウ素蒸気発生器内に充填したヨウ素の量からヨウ素蒸気として雰囲気ガス内に注入した量を測定する。

(4) 配管

FRAT-1試験装置からフィルターユニット、ガス排気系を配管で繋ぐ。

FRAT-1試験装置、フィルターユニット間の配管と空気吸入用の配管にはダンパを取りつけてそれぞれの風量を調整した。フィルターユニット前段にはレーザー式エアロゾル濃度計、I₂蒸気注入口、サンプリング管が取付けられる。

(5) サンプリング系

サンプリング系は、エアロゾル発生装置からフィルターユニットに至る配管内及び各フィルターエレメントの吸排気側でのエアロゾル及びガス状ヨウ素をサンプリングするためのものである。エアロゾル、ガス状ヨウ素のサンプリングは、それぞれのサンプラーにより、その後段に設置した真空ヘッダ、真空ポンプで一定のガス量を吸引し、捕集物の量と吸引ガスの量から雰囲気中の濃度に換算する。

エアロゾルサンプラーは、 $2\mu\text{m}$ 、 $0.5\mu\text{m}$ のステンレス製焼結金属フィルターを直列に1/2inch配管で継いだものを使用した。ガス状ヨウ素サンプラーは、ステンレス製の容器にNaOH溶液を充填しガスをバブリングする方法をとる。容器は3連もしくは2連直列に組み最後段にはNaOHミストをトラップするためにステンレスメッシュ（金網）を充填した容器を設置する。（図1.4参照）

(6) ガス排気系

排気ダクト、スクラバーユニット、フロアから成り、試験装置からスクラバーユニットを介してガスを吸引排気した。

(7) 計測系

以下の項目について計測を行い、試験時の運転条件を調整した。

① 試験部各点の温度

Na燃焼ポット、FRAT-1容器内雰囲気中、フィルターユニット内各フィルター前後の雰囲気中及び外壁、ヨウ素蒸発器の温度を監視・測定した。

② エアロゾル濃度

フィルターユニット吸気部配管内のエアロゾル濃度をレーザー式エアロゾル濃度計により監視・測定した。

③ ガス流量

エアロゾル発生装置からフィルターユニット、フロアにいたる系統及び、ヨウ素蒸気発生器へのガス供給流量を監視・測定した。

④ 圧力

フィルターユニット内各エレメント吸排気の差圧をマンメータにより測定した。

⑤ 湿分濃度

実験室雰囲気中の湿分濃度を測定した。

1.2 試験方法

試験では、先ず内容積 3 m³のステンレス容器内（FRAT-1試験装置）内に設置した燃焼ポット内のナトリウムを空気中でプール燃焼させてエアロゾルを発生させる。次に発生したエアロゾル中にヨウ素蒸気を混入したものを排気プロアによりフィルターユニット内に吸引し、その時フィルター各部で捕集されるナトリウム、ヨウ素成分を評価する。この時、エアロゾル濃度を試験条件に設定するためにフィルターユニット前段の配管から空気を混合する。

これら試験条件の設定は、エアロゾル濃度についてはレーザー式エアロゾル濃度計によりオンラインでモニターし、ヨウ素蒸気濃度についてはヨウ素蒸気発生器の温度、ガス流量を一定にすることにより制御する。

試験計測は、この発生ガスが各フィルター（エアロゾル、チャコールフィルター）を通過するときそれら各部でのナトリウム、ヨウ素の捕集効率を求めるために、雰囲気ガスを一定量サンプリングする。捕集効率は、フィルター前後のサンプリング試料中のナトリウム、ヨウ素量を分析することにより雰囲気濃度に換算し、その濃度変化から求める。

サンプリング方法は、試験雰囲気中のガスを一定量のヘッダー内を真空引きした中に吸引し、その時サンプラーに捕集された成分を定量し雰囲気中の濃度に換算する。

サンプリング試料の分析は、エアロゾルについては採取後純水により水溶液化しその中に含まれるナトリウム、ヨウ素の分析を行い、ガス状成分についてはバブリングしたNaOH溶液及び配管等をNaOH溶液で洗浄した液中のヨウ素成分について分析する。

また、試験後装置内及びエアロゾルフィルター（多層・中性能・HEPA）に付着したエアロゾルとNa燃焼ポット内に残留したNaは全て水溶液化しその中のナトリウム、ヨウ素の分析を行った。分析はナトリウムは原子吸光分析、ヨウ素はICP-MSにより分析した。

チャコールフィルターに捕獲されたヨウ素については、チャコールの一部をサンプリングしチャコール全量に捕獲されたヨウ素量に換算した。

また、試験装置、サンプリング装置の試験前のナトリウム、ヨウ素のバックグラウンドを押さえるため、試験前にこれらを十分洗浄し最後に純水にてサンプルを採取しその中に含まれるナトリウム、ヨウ素の量を分析して評価した。

1.3 試験条件

試験条件は、Naエアロゾルの燃焼条件は、Naのみを燃焼させたものと、Na中にNaIを混入したものの2条件、またヨウ素蒸気を注入するものとししないものの2条件を設定し、これらを組み合わせたマトリックスをくみ実施した。この試験マトリックスを表1.1に示す。

これらの濃度の設定は、「もんじゅ」の1次冷却材漏洩事故（コールドレグ破損ケース）におけるアニュラス部のエアロゾル濃度およびガス状ヨウ素濃度の解析結果を参考とした。また、その他の条件に関しては「もんじゅ」の設計・運転条件を参考にした。以下、それぞれの決定根拠について述べる。

(1) エアロゾル濃度

「もんじゅ」の一次冷却材漏洩事故時に想定されるアニュラス部でのエアロゾル濃度は、ABC-INTGコードでの解析の結果（図1.5参照）によれば $10^{-2} \sim 10^{-5} \text{g/m}^3$ の範囲にある。

しかし、試験技術上、エアロゾル濃度を制御するときにモニターするレーザー式エアロゾル濃度計の検出下限値は予備試験の結果より 10^{-2}g/m^3 程度であり、また試験で使用するエアロゾル用フィルターの捕集容量（Naエアロゾルとして約150g）から考えるとエアロゾル濃度の上限は 1g/m^3 （相当する運転時間 約30分）程度となり、エアロゾル濃度条件はこの範囲に限られる。本試験ではこれらを代表させてエアロゾル濃度は 10^{-1}g/m^3 とした。

(2) Na中ヨウ素濃度（エアロゾル中ヨウ素濃度決定条件）

(1)でのエアロゾル中のヨウ素の濃度は、 $10^{-11} \sim 10^{-15} \text{g/m}^3$ の範囲にある。但し、ここで言うヨウ素は放射性のもののみで、フィルターで捕集すべきヨウ素の量を考えるときは非放射性のものを考慮しなければならない。その量をORIGENコードによる炉心内の放射性、非放射性のヨウ素の割合⁶⁾より求めて足し合わせた結果（図1.6参照）

より、ヨウ素の濃度は $10^{-10} \sim 10^{-14} \text{ g/m}^3$ の範囲にある。

しかし、試験技術上、気相中のNaおよびヨウ素の混合エアロゾルをサンプリングした場合のヨウ素の分析下限濃度は、これまでの経験から 10^{-7} g/m^3 程度であり、これは上記ヨウ素の濃度よりは遙かに大きく、上記濃度を試験条件として設定することは不可能である。また、エアロゾル中のヨウ素濃度条件を設定するには、燃焼させるNa中のヨウ素濃度により調整するが、F4試験の結果ではヨウ素のKdは $10^{-2} \sim 10^0$ で約2桁の範囲ではらつきがあり正確な濃度条件の設定は難しい。

よって、燃焼させるNa中のヨウ素濃度はNaIの溶解度⁷⁾(Na温度 400°C において)から1000ppm (NaIとして)した。

(3) ガス状ヨウ素濃度

(2)と同様に図1.5から、ガス状ヨウ素の濃度については $10^{-11} \sim 10^{-12} \text{ g/m}^3$ の範囲にある。しかし、ヨウ素蒸気発生器で設定し得るガス状ヨウ素の濃度条件の下限は 10^{-5} g/m^3 であり今回は安定してヨウ素蒸気を発生させる濃度である 10^{-2} g/m^3 を条件とした。

(4) 供試体(フィルター)、試験風量

・エアロゾルフィルター

本試験で使用するフィルターは、「もんじゅ」アニュラス循環排気系のフィルターと同一の濾材、形状のものとした。

エアロゾルフィルターに関しては、多層式、中性能、HEPAフィルター間の距離及び各フィルターの濾材を実機と同一のものとし、その捕集面のみ約19%に縮小した。実機では1枚当たりの風量が $28 \text{ m}^3/\text{min}$ であるため、試験風量は $5 \text{ m}^3/\text{min}$ とした。

・チャコールフィルター

チャコールは、試験後吸着したヨウ素量を分析する必要性から、「もんじゅ」で使用する添着活性炭にヨウ化カリウムを添着する前のものを使用した。チャコールベット厚は実機と同一としたが、ベット面積は風量が $5 \text{ m}^3/\text{min}$ の条件において面風速が実機と同一になるようにした。

(5) Na燃焼条件

「もんじゅ」での一次冷却材漏洩事故時、Naは格納容器床下の窒素雰囲気(酸素3%)で燃焼もしくは蒸発してエアロゾル化すると考えられるが、最終的には空気雰囲気

格納容器床上及びアニュラス部を通過してからフィルターに捕集する設計となっているため、酸化物エアロゾルになっていると考えられる。よって、本試験では空気雰囲気中でNaを燃焼させて酸化物エアロゾルを発生させる方法を取り、サンプリング終了後直ちにエアロゾルの発生を停止した。

大気中の湿分濃度については特に調整はしていないが、相対湿度80%以上でチャコールフィルターの捕集効率が著しく低下することが知られている³⁾ため、大気中の湿度の測定は随時実施した。

2. 試験結果のまとめと検討

2.1 ヨウ素捕集効率

一連の試験では、試験雰囲気ガス（大気、エアロゾル、ガス状物質の混合されたもの）中のヨウ素成分を評価するためにエアロゾルサンプラー及びガス状ヨウ素サンプラーを使用した。しかし、今回の試験ではエアロゾルフィルターでヨウ素成分の殆どが捕集されるという結果(F6-8, 11)もあり、これからガス状のヨウ素がエアロゾルと共にフィルターに捕集される効果は十分期待され、サンプラーとして使用した焼結フィルターにも同様な効果が考えられる。そのため、エアロゾルサンプラーに捕集されたヨウ素成分は全てエアロゾル状の物質と断定するのは困難で、本試験結果においてヨウ素をエアロゾル状とガス状に明確に分けて評価するのは難しい。

また今までの試験結果から見て、ガス状ヨウ素がエアロゾル状物質と全く無関係に挙動するとは考えがたく、仮にガス状ヨウ素が単独で挙動するとしてもそれが単一の化学形で安定していることも期待できない。故にチャコールフィルターによるガス状ヨウ素の捕集効率を評価する際にエアロゾル状のヨウ素を除いて考えるのは現実的ではなく、限られた化学形のヨウ素を対象とするのは実験的にも難しい。

実機での事故を想定した際にも上記の様にヨウ素の形態は不安定であることが予想され、エアロゾル状ヨウ素、ガス状ヨウ素を分離した形でのフィルター捕集能力の評価は困難である上に現実的でないと思われる。

フィルターの機能はNaエアロゾル、ヨウ素を捕獲し、その後段に放出しないことにあると考えれば、ヨウ素成分全量を対象としてフィルターの捕集性能を評価することの妥当性も認められる。

当初本試験においては、エアロゾルフィルターによるエアロゾル状ヨウ素、ガス状ヨウ素の捕集効率、チャコールフィルターによるガス状ヨウ素の捕集効率を評価することを目的とした。しかし、上記のようにNaエアロゾル（Na+NaIエアロゾル、NaIエアロゾル、Iエアロゾルの各種形態有）とガス状ヨウ素が混在する状況を考えた際には、本試験で目的としたようにヨウ素をエアロゾル状とガス状に分離して評価するのは難しいことが判明した。

従って、本試験結果の検討においては、エアロゾルサンプラーに捕集された成分をエアロゾル状ヨウ素、ガス状ヨウ素サンプラーに捕集された成分をガス状ヨウ素として考えるが、フィルター捕集性能の評価に関しては、エアロゾルフィルター、チャコールフィルター全体による全ヨウ素の捕集効率を評価することでその保証とした。

今回実施した一連の試験では、当初サンプラーによるヨウ素成分の捕集が十分できないと言う問題があった。そのため、その原因追求のために試験条件を設定していき何箇所かの装置の変更をもってF6-6迄試験を実施した。それまでの試験結果からサンプラーにおける問題点は、

- ・当初使用したドライアイスコールドトラップによるヨウ素の捕集能力が不十分
- ・サンプル中のヨウ素のうちイオンクロマトグラフによる分析では測定できないヨウ素成分（イオン化していないヨウ素）

であることが判明し、F6-7以後はサンプラー及び分析手法の変更を行い十分な実験精度を得た。よってサンプル中のヨウ素量により評価するエアロゾル、チャコールフィルター捕集効率はF6-7以後の結果で評価するものとした。

また、実施した試験全ての状況及び結果は、まとめてAppendix 試験実施状況・結果の項に記した。

（試験結果の評価）

図2.1～4は各フィルター前後においてエアロゾルサンプラーに捕集されたNa、ヨウ素及びガス状ヨウ素サンプラーに捕集されたヨウ素の量を雰囲気中の濃度に換算したものと、その値により計算されるNaエアロゾル、ヨウ素の各フィルターによる捕集効率を纏めたものである。但し、F6-7～F6-9までの結果のうちフィルターに明らかに異常が発生したと思われるものがあるため、これらのデータを除いた試験結果を対象とした。以下に順次これらの結果について検討する。

(1) ヨウ素蒸気のみの試験結果の評価 F6-10

ヨウ素蒸気のみ試験結果をまとめたものを図2.1に示す。

この結果から、ヨウ素単体の場合はヨウ素はエアロゾル状、ガス状のもの共にエアロゾルフィルターでは2割程度しか捕集されず、チャコールフィルターでは残りの殆どが捕集されることが明らかとなった。ここで、エアロゾルフィルターでエアロゾル

状のヨウ素が捕集されないというのは変な話であるが、これはエアロゾルサンプラーに捕集された成分が全てエアロゾル状と考えたために起こる誤解で、エアロゾルサンプラーの焼結金属にガス状のヨウ素成分が吸着等により捕獲される効果を考慮すると、エアロゾルフィルターを通過したヨウ素成分は殆どガス状であったとも考えられ話の辻褄は合う。

これらのことより試験時のヨウ素の形態については断定的なことは言えないが、いずれにせよ発生させたヨウ素のうち99.9%以上がフィルター全体（エアロゾル、チャコール式）により捕集されることが明らかで、フィルターの十分な性能が確認された。

(2) Na燃焼エアロゾルとヨウ素蒸気の試験結果の評価 F6-8(1)

この試験の結果をまとめたものを図2.2に示す。

エアロゾル状のヨウ素はNaエアロゾルとともにエアロゾルフィルターに良く捕集されその内99%以上がそれらのフィルターに捕獲された。また、ガス状成分に関してはエアロゾルフィルターにおいては60%以下しか捕集されなかったが、残りの80%がチャコールフィルターで捕集され、これらフィルター全体では90%以上の捕集効率を示した。ガス状ヨウ素の捕集効率を評価する際に律速となっているのはチャコール後段のヨウ素濃度であるが、この濃度を求めるのに必要となったサンプル中のヨウ素量は、純水中のヨウ素量と同等となっておりこの意味からこれ以上チャコール後段のヨウ素濃度が下がることは考えられない。従って本試験ではこれ以上ガス状ヨウ素の捕集効率を評価するのは難しいと考えられるが、フィルター全体による全ヨウ素の捕集と言う点に着目するとその捕集効率は99.9%以上でありフィルター性能は十分満たしていることが分かる。

今後フィルターの捕集性能をより正しく評価するには、ガス状成分としてのヨウ素の量を増やすか、純水中のヨウ素の汚染をより少なくしなければならずいずれも現在の装置・方法では難しい。考え方として純水中のヨウ素を減らすのではなく、発生させたヨウ素と区別できれば良いとするのならば、トレーサーとしてRIのヨウ素を使用する方法もあり、今後の検討課題である。

(3) Na+NaI燃焼エアロゾルとヨウ素蒸気の試験結果の評価 F6-11

この試験の結果をまとめたものを図 2.3 に示す。

この場合も(2)と同様にエアロゾル状のヨウ素はNaエアロゾルとともにその殆ど(99.9%)がエアロゾルフィルターに捕集され、チャコールフィルターに捕集される分も含めるとフィルター全体では完全に捕集されると考えて良い。

ガス状のヨウ素成分に関しては、エアロゾル、チャコールフィルター両方を総合しても92%しか捕集されない結果となる。しかし、これは前述したようにチャコール後段のヨウ素濃度が純水中のヨウ素の汚染量により律速していることが大きく影響しており、ここで問題としているガス状ヨウ素の量ではこれ以上の精度を上げた評価が難しい。

従って、本試験の現状ではフィルター全体による全ヨウ素の捕集と言う観点から評価する方法をとるよりないが、その点からいえば捕集効率は99.9%以上でフィルターの性能は十分満たしていると考えられる。

(4) Na+NaI燃焼エアロゾルの試験結果の評価 F6-9(2)

この試験の結果をまとめたものを図 2.4 に示す。

この時、サンプラーに捕集されたエアロゾル、ガス状のヨウ素の量は共に試験前採取したバックグラウンドのヨウ素量より少なく(図 2.5)、Na+NaI燃焼によって発生したものであることを断定するには到らなかった。従って本試験の結果からフィルターによる捕集効率を評価するのは難しく、この条件下での評価結果は得られなかった。

特に、この試験条件は実機事象に最も近い条件であるため、今後この条件による試験結果については十分検討する必要がある。これを今回の試験装置で実施するためには発生させるヨウ素の量を最低一桁以上大きくしなけりばならず、発生ヨウ素量を一桁大きくするためには、Naプール中のヨウ素濃度を一桁大きくする必要があるが、現条件でのNaIの濃度はその溶解度⁷⁾ぎりぎり、その濃度を一桁上げるためにはNaプールの燃焼開始温度を現条件の400℃から550℃(Na中のヨウ素濃度を現条件の1000ppmから10000ppmにしても十分溶解可能な温度)にしなければならない。この場合燃焼後のプール温度は800℃近くなる可能性も考えられ、ステンレス燃焼容器、熱電対の耐熱性から試験実施には十分な注意が必要となる。また、Naプール燃焼によるヨウ素の

発生量に関しては正確なところはわかっていないため、この条件で実施したとしても精度の良いサンプリングが可能となる確証はない。試験を実施する際には、十分な予備試験によりヨウ素の発生量を確認しておくことも必要となる。

この方法以外に確実な精度の良い試験を考えれば、(2)の項で記した様にトレーサーとしてRIのヨウ素を使用し、試験系内に投入したヨウ素とそれ以外のヨウ素（大気中、純水中に存在するヨウ素）を分別する方策を講じるのが最も確かであると考えられる。

*全体にフィルター試験において捕集効率を精度良く評価するにはフィルター後段のヨウ素の濃度を正しく測定することが必須条件で、この場合当然のことながらこの点でのヨウ素濃度は極めて小さい値となる。現在までの試験結果から(a)大気中のヨウ素の存在(b)純水中のヨウ素の存在の2点が考えられ試験結果の評価上大きな障害となっている。

(a)については、採取サンプル中のヨウ素が大気中に発生したものか、試験時に発生したものかの区別を難しくするが、大気中に存在するヨウ素が本試験でバックグラウンドとなっているヨウ素であるのなら、当然このヨウ素はチャコールフィルターで捕集されると考えられるため、チャコールフィルター後段でのヨウ素濃度は低くなる筈で、この時測定された捕集能力は、実際に試験雰囲気中のヨウ素濃度の変化（各フィルター捕集による）を測定しているものであるから、そのまま評価すべきもので問題はない。

しかし、大気中に存在するヨウ素が試験時発生するヨウ素の形態（実機事故時に発生するヨウ素の模擬）と著しく異なるもので試験の対象とする必要がなく、またチャコールフィルターで捕集されにくいものであるなら、これらのヨウ素は完全に分離して評価しなければならない。この場合、大気中のヨウ素の化学形を十分調査する必要があり、もしそのヨウ素分離捕集が難しい場合は、試験に使用するヨウ素をRIとする方法も検討する必要がある。

(b)については採取サンプルの水溶液化の際に溶液をヨウ素に対して汚染し、サンプル採取箇所のヨウ素濃度の測定を完全に妨害するという意味で試験実施上取り除かなければならない事象である。純水中のヨウ素の存在については、

- ・十分洗浄した機器のバックグラウンドを測定するサンプル溶液（純水で洗浄・採取）中に絶対量としてでなく水中のヨウ素濃度として等量のヨウ素が存在すること。しかも、バックグラウンドを測定するサンプル溶液中のヨウ素濃度がその機器の使用状況 — 前回までの試験での機器のヨウ素付着量の多少 — に関わらず、サンプル採取時に使用した純水に影響されると思われること。（表 2.1 参照）
- ・前記状況の確認のためバックグラウンドサンプル採取用純水中のヨウ素濃度を測定した結果明らかにヨウ素の存在が確認されたこと。

— 純水中ヨウ素濃度測定値 0.5 ~ 2.0ppb —

により確証が得られた。また、純水中のヨウ素濃度も一定ではなくこの原因が純水製造用の樹脂の性能による場合と大気中の物質を吸着する（純水中へ）場合とが考えられたが、これらのどちらの原因が大きく作用しているのかについては確かなことは分からない。

但し、このうち純水が大気中の物質（この場合はヨウ素）を吸着することに関しては、半導体工業などで使用する水についてその大気への暴露時間について留意しているとの情報⁹⁾も有り、この点についての調査は本試験でのサンプル調整工程において純水中に吸着されるヨウ素量の時間変化について調べることも合わせて今後検討すべき事項と思われる。

この場合のファクターとして大気中に存在するヨウ素量が問題となるが、これについては過去のデータ⁹⁾や調査結果¹⁰⁾があり、そのバラツキはかなり大きい。また、以前の実験により実験室に放出されたヨウ素も考えられるが、これについても定量的な評価はできない。

純水中へのヨウ素の溶け込みを防ぐ方法としては、試料調整をヨウ素を含まない雰囲気中で行わなければならない、試験実施上は困難が多い。

以上の検討から純水中のヨウ素を減量し、サンプル溶液中のヨウ素のバックグラウンドを低下させるのは困難が多く、できたとしてもその濃度を一定とし定量化できる保証はない。

結論として、今後の試験においてもヨウ素のバックグラウンドは今までの試験と同様の量存在することは認めなければならず、これを減少もしくは除去することはコール

ドの試験においては難しい。

2.2 エアロゾル捕集効率

F6-5試験以後エアロゾルサンプラーのNaによる汚染を取り除いての試験では、表A. 2に示すようにエアロゾルフィルター式（多層・中性能・HEPA）によるNaエアロゾルの捕集効率は「もんじゅ」で期待する99%以上の能力を有していることが確認された。（F6-7, 8, 9試験において中性能、HEPAフィルターに明らかな異常が発生した試験結果は除外している。）

但し、F6-7, 8, 9試験において中性能、HEPAフィルターに異常が発生した。F6-9試験結果の項でも述べたように、この現象は試験前のD. O. P. エアロゾルによる検査結果から予想できないものであるため、エアロゾルフィルターを実機で使用する際の性能保証としてD. O. P. エアロゾルによる検査結果のみとするのは不十分であると思われる。

今後この点については十分な調査が必要と考える。

2.3 ガス状ヨウ素の発生

F6-7試験でNa燃焼ポット上部のサンプル点でガス状ヨウ素サンプラーに多くのヨウ素が捕集された。このヨウ素はエアロゾルサンプラー、ガス状ヨウ素サンプラーのうちのNaOHパプラーを通過して最後段のミストトラップ(SUS製金網)に捕集されたことから考えてガス状ヨウ素である可能性が高い。また、このガス状ヨウ素の量は評価サンプル溶液中のヨウ素濃度にして50ppb以上で、同一箇所の試験前バックグラウンドサンプル中ヨウ素濃度が2ppb程度であったことから考えても、明らかに燃焼Naから発生したヨウ素と断定できる。このとき、エアロゾルサンプラーに捕集されたヨウ素と上述したガス状ヨウ素を合計したものを雰囲気中存在した全ヨウ素として計算したときの、ガス状ヨウ素の割合は86%であった。（図2.6, 7参照）

試験では、燃焼容器(FRAT-1)に空気の吸入口を設けNa燃焼によって発生させたエアロゾルの濃度を調整しているため、発生したエアロゾルは発生直後に空気と混合される。ガス状ヨウ素の発生に関しては、①NaIを混入したNaのプール燃焼によるもの、②①で発生したエアロゾルをその後新鮮な空気と混合することによるものの二通りについて確

認された報告¹¹⁾が以前に何例もあり、本試験の条件はそのいずれにも該当する。そのうち①に関しては雰囲気中に放出されたヨウ素のうちガス状ヨウ素の発生割合が多くても30%であるのに比べ②ではその割合は70%を越えたものもある。しかし、今回の試験結果は、これらに比べてもガス状ヨウ素の発生割合が大きく、それが①②のどちらかの条件によるかは明らかではないにせよ両条件ともに実機で十分考えられる事象であるため、今回の試験結果が実機設計条件に与える影響は大きいと思われる。そのため、ガス状ヨウ素が発生する条件とその量については今後詳細を調査する必要がある。

また、今回試験で発生したガス状ヨウ素が配管を通りフィルターケーシングに入る前に大きく減衰したことや、ステンレス製のサンプラーに捕集されたことからこのヨウ素が配管等のステンレスに吸着する可能性も考えられ、この点も含めて、ガス状ヨウ素の発生したあとの振舞いについても十分調査する必要がある。

3. 結 論

Naエアロゾルとヨウ素が混在する条件下におけるエアロゾルフィルター、チャコールフィルターのナトリウム、ヨウ素捕集効率を測定する試験を実施し以下の結果を得た。

3.1 ヨウ素捕集効率

発生させたヨウ素のうちガス状成分は、ヨウ素蒸気のみ条件下ではエアロゾルサンプラーのステンレス成分への吸着、Naエアロゾルとヨウ素蒸気が混在する条件下ではエアロゾルサンプラーのフィルターによる捕集があり、いずれの条件下でもヨウ素をエアロゾル状、ガス状成分に正確に分離して評価するのは難しい。従って、ヨウ素の捕集効率に関しては雰囲気中存在した全ヨウ素として評価して以下の結果を得た。

(1) 雰囲気にヨウ素蒸気のみを注入した条件

発生させたヨウ素のうち、20%がエアロゾルフィルターに捕集され、残りがチャコールフィルターにより捕集された。

フィルター全体による全ヨウ素の捕集効率は99.9%以上を示し、フィルターの十分な捕集性能が確認された。

(2) 雰囲気中にNa燃焼エアロゾルとヨウ素蒸気が混在する条件

発生させたヨウ素の殆ど(99%以上)がエアロゾルフィルターによって捕集された。フィルター全体による全ヨウ素の捕集効率は99.9%以上を示し、フィルターの十分な捕集性能が確認された。

(3) 雰囲気中にNa+NaI燃焼エアロゾルとヨウ素蒸気が混在する条件

発生させたヨウ素の殆ど(99%以上)がエアロゾルフィルターによって捕集された。フィルター全体による全ヨウ素の捕集効率は99.9%以上を示し、フィルターの十分な捕集性能が確認された。

(4) Na+NaI燃焼エアロゾルのみの雰囲気条件

この条件下で発生したヨウ素量は、それを評価するために採取したサンプルを分析する際に使用した純水中のヨウ素量と同等で、捕集効率を評価するのに十分な量ではなかった。発生ヨウ素量を増加させての再試験が必要となった。

3.2 Naエアロゾル捕集効率

実施した全ての条件下において、エアロゾルフィルター式（多層・中性能・HEPA）によるNaエアロゾルの捕集効率は99%以上であることが確認された。

但し、試験前D.O.P.エアロゾルによる検査で異常が発見されなかったフィルターに試験時異常が発生し、この検査方法によりNaエアロゾルに対する性能を評価することに問題がある可能性が示唆された。

3.3 ガス状ヨウ素の発生

Na+NaI燃焼によりガス状ヨウ素が発生することが明らかとなった。このガス状ヨウ素が①NaIを混入したNaのプール燃焼によるものか、②①で発生したエアロゾルをその後新鮮な空気と混合したものによるかは不明。

発生したガス状ヨウ素の、その雰囲気中に存在した全てのヨウ素に対する割合は86%であった。

4. 今後の課題

(1) ガス状ヨウ素発生条件

ガス状ヨウ素に関しては、今回の試験でその発生の可能性が確認されたことから、その発生条件と発生量の詳細を調べる必要がある。

しかし、これは以前から幾度となく実験が行われているテーマで、今のところ発生条件は、

①ヨウ素を含んだNaの燃焼による

②ヨウ素を含んだNaの燃焼エアロゾルが新鮮な空気と混合される

の2条件について確認されている¹¹⁾が、その試験結果によればガス状ヨウ素の発生量や全発生ヨウ素に対する割合はまちまちではっきりしたことはわからない。

これに関する実験を実施する際には、その条件の多様さから余程小型の試験装置で数多くの実験を繰り返す必要があると思われ、パラメータを単純化するためにもガス状ヨウ素の発生にのみ焦点をあてた試験として実施するのが最良であろう。

この時、実験技術上問題となる点が種々ありそれを解決することが先決となる。問題点は以下のごとくであるが、

- (a) 大気中のNa燃焼及びNaエアロゾルと大気との混合にポイントがあるとして、
大気中のヨウ素の存在とその濃度、またその化学形の調査
- (b) 燃焼Na中のヨウ素の形態とその分布についての調査
- (c) サンプルング方法 —特にガス状、エアロゾル状の確実な分別収集— の開発
- (d) 発生したヨウ素（特にガス状）の化学形の同定方法の検討
- (e) ヨウ素分析に関して、

◎純水中ヨウ素の除去

◎サンプル採取、調整、分析実施時における大気からのヨウ素の吸収の停止

—これらが不可能であれば、その量の定量評価、それによる分析誤差の算定

これらのうち実験実施上特に問題となるのは、(a)(e)でこれに関しては本試験においてもその値による妨害が大きく実試験結果を定量できなかった。試験方法について検討した結果からも、試験技術的に見てこれらの値の妨害を除けるような試験方法をとるのは

難しい。(a)(e)で起こる様なヨウ素のコンタミを除くにはR Iのヨウ素をトレーサーとして使用することを検討する必要があると思われる。

(b)(c)(d)に関してはNa燃焼によるガス状ヨウ素の発生という事象に関する重要なポイントでこれらの点を丁寧に調べればガス状ヨウ素発生の機構とその形態は明らかになると考えられる。

(2) 大気中のヨウ素のバックグラウンド

大気中のヨウ素濃度に関しては正確にはわからず、今後データを採取する必要がある。但し地域・場所によって値が異なる事は知られており、実験室等の限られた広さで、ある程度の気密性のある部屋（常時換気をしていない）では、室内雰囲気中にヨウ素が残留していることや、室内のどこかに付着したようなヨウ素がある時雰囲気中に出てくることもあり、またこれらの時ヨウ素の化学形は安定ではなく、付着時、放出時、浮遊時もランダムに変化している可能性があることが、経験的に知られている。

上記のことから、大気中のヨウ素濃度を測定してもその広い地域における一般性を評価するのは容易ではないかもしれず、特に今後測定する大気中のヨウ素濃度を以て以前の試験におけるヨウ素のバックグラウンドとして適用することの妥当性は見出せない。

大気中のヨウ素濃度測定に関しては、実験進行と同時に実験室内で数カ所モニタリングするような方法を取らなければその精度は保証できず、その時測定されたヨウ素の発生源を確かめるために実験室外のヨウ素濃度もモニターする必要がある。

以上まとめると、現状では大気中のヨウ素濃度に関しては定量的には詳しいことはわかっておらず、その挙動についても調査されていない。今後試験を実施するに当たっては、その量が実験精度に影響を与える程度のものかを確認するために定量的な把握が必要で、実験誤差としてのヨウ素のバックグラウンドを評価するのは次の段階になる。

今後の試験の実施方法としては、サンプル中のヨウ素量を評価する際に大気中のヨウ素を常に意識することが肝要で、実験雰囲気中のヨウ素濃度条件を設定する場合も大気中のヨウ素濃度を十分考慮しておく必要がある。

(3) D.O.P.エアロゾルを使用してフィルター性能を保証することの妥当性

D.O.P.エアロゾルの検査で異常が確認されなかったフィルターで試験時異常が発生した。エアロゾルフィルターを実機で使用する際、その試験検査はD.O.P.エアロゾルによるものしか行っていない。エアロゾルフィルターにおいて、D.O.P.エアロゾルの検査のみをもってNaエアロゾルの捕集能力をギャランティーすることの正当性をどの様に証明するかについては以前から問題になっており、今回のこの結果によりその点に一層の疑問を持たせることとなった。今後実機で使用するエアロゾルフィルターの性能検査をどのように行うかについては十分な検討が必要と言える。

謝 辞

本試験を行うにあたって、試験装置の設計、製作、運転及びデータの採取に関しては、東興機械工業㈱の深作和男氏、鈴木和右氏、大森正寿氏、郡司仁氏に多大な協力を戴いた。

ここに感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) 「Naエアロゾル用多層式エアフィルタ試験(2)」
日本無機(株) 大竹他 PNC SJ299 78-03 1978, 2
- 2) 「Naエアロゾル用多層式エアフィルタ試験(3)」
日本無機(株) 大竹他 PNC SJ299 79-01 1979, 2
- 3) 「もんじゅ安審助勢 アニュラス循環排気装置設備ヨウ素用フィルタヨウ素除去効率
について」 三菱重工業(株) MP-S1202 1981, 4
- 4) 日本原子力学会誌 12, 436(1970) 村田他
- 5) 「放射性ナトリウムおよび核分裂生成物による空気汚染測定に関する研究」
日本原子力研究所 吉田他 JAERI-memo 4804 1972, 3
- 6) 「ソースタームに於ける重要元素と重要核種の検討」
宮原他 PNC 19410 88-023-ORIGENコードによる”もんじゅ”炉内存在量の解析-
- 7) 「ヨウ素のナトリウム中溶解度測定試験Ⅱ」 茨城大学工業短期大学部
PNC SJ2613 90-001
- 8) 第4版実験化学講座Ⅰ 基本操作Ⅰ 日本化学会編 丸善
- 9) 微量元素 -環境化学特論- 山根 登 産業図書
- 10) 「環境中のヨウ素の分布と挙動について」 村松康行, 大桃洋一郎
原子力学会誌 放射線科学 Vol131 NO.8 1988
- 11) P安技術メモ RMB-167 「ヨウ素に関する文献調査」

Appendix 試験実施状況・結果

Appendix 試験実施状況・結果

以下に各試験の実施状況及び結果の詳細を記す。実施した試験の条件及び計測項目についての概要は表A. 1にまとめた。

(1) F 6 - 1 試験結果

①概況

試験は、所定の試験条件で6点×2回の合計12点のサンプリングをする予定であった。しかし、サンプリングラインの内コールドトラップが閉塞し（12体の内6体）実際にサンプリングできたのは6点のみであった。原因は、試験後調査した結果、コールドトラップ洗浄後に管内に残留していた水分が氷結したためとわかった。以後は、コールドトラップ管を完全に乾燥させることでこの問題は解決した。

また、今回はサンプリングヘッダーを2体使用して（計画時は1体）サンプリングを実施したが、1回のサンプリングに要する時間がかかり長くなり、所定の数のサンプルを採取出来ない場合やサンプリング期間中に種々の試験条件が変化してしまう可能性もあるため、次回からはサンプリングヘッダーを6体取りつけて実施することとした。

その他、試験条件の設定は予定通りで、一連のデータを採取して試験を終了した。

②サンプリング結果

各点のサンプリング結果を表A. 2に、それをグラフにしたものを図A. 1, 2に示す。

・エアロゾルフィルター捕集効率

エアロゾルフィルター一式（多層・中性能・HEPA）によるNaエアロゾルの捕集効率はF6-1①で99.0%、F6-1②で98.3%となる。これは、「もんじゅ」で期待する捕集効率99.0%をほぼ満足した。但し、3種フィルター各々の捕集効率は測定できなかった。

ヨウ素は、エアロゾルフィルターで捕集される傾向を示したが、後述するようにサンプラーでヨウ素が完全に捕集できていないためこれをそのまま評価するのは問題がある。

・チャコールフィルター捕集効率

今回の結果からは、チャコールフィルターによるガス状ヨウ素の捕集は確認できなかった。

・ガス状ヨウ素の発生

ヨウ素蒸気を注入する前段のサンプル中(F6-1①のサンプル)からガス状ヨウ素(I_2)が見つかった。これにより、Na+NaIの混合燃焼によりガス状ヨウ素が発生することが確認できた。しかし、その量は微量で、また、後述するようにサンプラーでヨウ素が完全に捕集できていないため、詳細は今後の試験結果を見て検討する。

・問題点 → ヨウ素のマスバランス

注入したヨウ素蒸気の濃度と後段のサンプル中のヨウ素量から算定したヨウ素の濃度が一致しなかった。発生させたヨウ素が、サンプラーで十分捕集されていない結果となった。

(2) F 6 - 2 試験結果

①概況

サンプリングヘッダーを6体取りつけて、サンプリング6点で同時にサンプルを採取できるようにした。サンプルは予定通り6点×2回の合計12点採取した。

試験準備時には、前回試験のヨウ素の分析が完了していなかったため、ガス状ヨウ素サンプラーは前回同様のものを使用した。

試験中の湿分濃度を監視するため露点計を使用した。取付位置は、空気の混入口とHEPAフィルターの後段の2点とした。

試験条件は、F6-1と同様として1回目のサンプリングを実施した(F6-2①)。2回目は、Na+NaIの燃焼によるガス状ヨウ素の発生の詳細を確認するために、ヨウ素蒸発器からのヨウ素の注入を停止して、サンプリングを実施した(F6-2②)。

②サンプリング結果

各点のサンプリング結果を表A. 2に、それをグラフにしたものを図A. 3, 4に示す。

・エアロゾルフィルター捕集効率

エアロゾルフィルター一式(多層・中性能・HEPA)によるNaエアロゾルの捕集効率はF6-2①で97.3%, F6-2②で98.2%となる。

3種フィルター各々の捕集効率は、多層式で81.2%, 66.4%, 中性能で77.4%, 58.7%, HEPAで37.1%, 87.2%となり、多層式、中性能はまずまずの結果（各々の捕集性能の仕様は60%, 50%）であるが、1回目のHEPAの捕集効率が極めて悪くそれがフィルター式の捕集効率を下げている原因になっている。

ヨウ素の捕集に関してはF6-2①ではエアロゾルフィルターで捕集される傾向を示したが、F6-2②では何とも言えない。前記したようにサンプラーでの捕集能力に疑問があるため詳細は今後の試験結果を見て検討する。

・チャコールフィルター捕集効率

F6-2②ではチャコールフィルターでヨウ素が捕集された結果が得られた。しかし、F6-2①のサンプリング結果からはチャコールフィルター後段のヨウ素濃度が大きくなっており何らかの問題があることが示されたが、現状ではサンプラーのヨウ素捕集能力に疑問があるため詳細は今後の試験結果により検討する。

・ガス状ヨウ素の発生

F6-1と同様ヨウ素蒸気を注入する前段でガス状ヨウ素(I_2)が見つかった。特にF6-2②では、ヨウ素蒸気を注入していないためNa+NaIの混合燃焼によりガス状ヨウ素が発生することが明らかとなった。また、その量はF6-1と同様に微量で、サンプラーのヨウ素捕集能力に疑問があるため、詳細は今後の試験結果により検討する。

・問題点 → ヨウ素のマスバランス

注入したヨウ素蒸気の濃度と後段のサンプル中のヨウ素量から算定したヨウ素の濃度が一致しなかった。発生させたヨウ素が、サンプラーで十分捕集されていない結果となった。

(3) F 6 - 3 試験結果

①概況

F6-1, 6-2試験の結果から、ガス状ヨウ素がサンプラーで十分捕集されない、チャコールフィルターに捕集されたことが確認できない等の問題があることがわかった。前回までの試験条件では、燃焼Na中にヨウ素を混入しているため、実験系内に存在するヨウ素の量を確定するのが難しい。また、チャコールフィルターはNaエアロゾルが共存していない状態であれば正常に機能することを確認する必要がある。

そこで今回の試験では、ヨウ素蒸気のみを発生させ、そのエアロゾル・チャコールフィルターでの捕集性能を確認するものとした。

② サンプリング結果

各点のサンプリング結果を表A.2に、それをグラフにしたものを図A.5に示す。

・エアロゾルフィルター捕集効率

フィルター前後のサンプルから計算したヨウ素濃度の変化で見るとおきりにおいてはエアロゾルフィルター各々によるヨウ素の捕集は確認されなかった。

また、この試験により各フィルターに捕集されたヨウ素の量は、続けてF6-4試験を実施したためF6-3試験のみのデータは取得していない。

・チャコールフィルター捕集効率

チャコールフィルターによるヨウ素の捕集効率は、前後のサンプルから計算したヨウ素の濃度の変化から95.0%となり、ヨウ素蒸気の場合にはほぼその性能を満たしていることが確認された。

・問題点

ヨウ素のマスバランスの確認

注入したヨウ素の濃度とその後段のサンプルから計算したヨウ素の濃度はほぼ一致した(70%)。

しかし、ヨウ素蒸発器のヨウ素発生量は一定ではなく、サンプラー以外にモニターがない現状では、サンプラーが正常に機能しているかの確認はできない。

そこで、以後は系内に付着した全ヨウ素を回収しその付着位置を確かめることによりサンプラーの機能を保証することにした。(F6-6以後)

その内チャコールについては、今回まで使用していたヨウ化カリウム添着炭*を無添着なものに換え、チャコールに吸着したヨウ素の量を直接定量するようにした。

* 今回迄の試験では、実機で使用する添着炭を使用して試験を実施してきたが、これはヨウ化カリウムをチャコール中に4%含むもので、試験により吸着したヨウ素(0.01%程度)を定量することが不可能であった。

実機のチャコールにヨウ化カリウムを添着するのは、高湿度(80%以上)の使用条件でヨウ化メチルの捕集効率が低下するため、ヨウ化メチルの放射性ヨウ素をヨ

ウ化カリウムの非放射性ヨウ素との同位体交換反応で取り除こうとする意図のためである。

従って、本試験においては上記のような高湿度の条件下になく、コールドでの試験であるのでヨウ化カリウムを添着する必要はなく、またチャコールの捕集性能上も問題がないため無添着炭を使用することとした。

無添着炭は、今回まで使用したチャコールと同仕様のもので、ヨウ化カリウムを添着する前のものとした。

(4) F 6 - 4 試験結果

①概況

この試験では、前回のF6-3と共にエアロゾル共存時のチャコールフィルターの捕集性能を確認することを目的として試験を実施した。試験は、Naのみを燃焼させたエアロゾル中にヨウ素蒸気を注入して実施し、Naエアロゾル中に存在するヨウ素量が確定できるようにした。

②サンプリング結果

各点のサンプリング結果を表A.2に、それをグラフにしたものを図A.6に示す。

・エアロゾルフィルター捕集効率

エアロゾルフィルター一式（多層・中性能・HEPA）によるNaエアロゾルの捕集効率は95.2%となる。

3種フィルター各々の捕集効率は、多層式で59.6%，中性能で81.1%，HEPAで36.7%となり、多層式、中性能は十分な性能が確認されたがHEPAの捕集効率が極めて悪くそれがフィルター一式の捕集効率を下げF6-2と同様な結果となった。

この原因として考えられるのはエアロゾルサンプラーに存在するNa成分の影響で、HEPA後段のようにNa濃度が低い点を評価する際には誤差成分のほうが大きくなってしまうことがある。そのため今後の試験では、エアロゾルサンプラーを十分洗浄しそのNa量のバックグラウンドを調べ評価するものとした。

ヨウ素の捕集に関してはエアロゾルフィルターで捕集される傾向を示した。但し、ガス状ヨウ素サンプラーに捕集されるヨウ素成分はフィルター前後で変化せず、捕集されにくい傾向であったが、このサンプラーは捕集能力が十分でないためはっき

りしたことはわからない。

・チャコールフィルター捕集効率

チャコールフィルターでのヨウ素の捕集効率は前後のサンプラーの分析値の比較から89.3%となり捕集性能としては十分とは言えない。

しかし、後述するようにサンプラーではヨウ素は完全に捕集されていないことからこの値をそのまま評価するのは問題がある。

・問題点

ヨウ素のマスバランスの確認

注入したヨウ素の濃度（ヨウ素の注入量の時間平均）とその後段のサンプルから計算したヨウ素の濃度の比較では後者は前者の25%程度であり、このサンプラーではヨウ素は十分捕集できているとは言いがたい。

ここで、F6-3試験では同一のサンプラーで70%が捕集されたにも関わらず、F6-4試験でサンプラーに捕集されたヨウ素量が注入量の25%程度であった点について、試験時ヨウ素蒸気の発生量が何らかの原因で変動した疑いもある。しかし、試験時ヨウ素蒸発器の設定温度は±5℃以下、流量はほぼ一定で制御しているため（ヨウ素蒸気の濃度が1/4になるためにはヨウ素蒸発器の温度変化で30℃以上もしくは注入ガス流量が1/4に低下するなどの設定条件の変動が必要）このような状態は起こりえない。

従って、ヨウ素のマスバランスが合わないのはサンプラーの問題でありF6-3の結果と合わせて考えると、Naエアロゾル中にヨウ素蒸気を混合すると現状のサンプラーでは捕集しきれない高揮発性のガス状ヨウ素が生成されている可能性が認められる。

（F6-3, F6-4 試験結果の検討）

・フィルター付着ヨウ素量の計算

チャコール前後のヨウ素濃度の変化からのチャコール中ヨウ素付着予想量計算

F6-3では、チャコール前後のヨウ素濃度の変化からのチャコール中ヨウ素付着量は2.695g。F6-3では、同様にして0.110g。合計すると2.805gとなる。

また、エアロゾルフィルターに付着していたヨウ素の量は0.9925g有り、これも

加算するとフィルターケシング内で発見されたヨウ素の量は3.798gとなる。

・ヨウ素注入量との比較

一方、ヨウ素蒸発器から注入したヨウ素の量は5.325g有り、配管・ケーシングに付着したヨウ素の量は無視できると考えれば1.5g程度のヨウ素がチャコール後段に抜けている計算になる。しかもこの量は注入ヨウ素の約30%にあたり、前記したサンプラーで捕集しきれない成分の量に一致する。

単純にこのことだけから見ると、サンプラーで捕集できないヨウ素の成分は、チャコールでも捕集されずに後段に飛び去ったと考えられる。

(5) F 6 - 5 試験結果

①概況

前回までは、ヨウ素を含むNaエアロゾルによりエアロゾルフィルターの捕集効率を評価してきた。この場合、Naエアロゾル中にヨウ素が混入することによりフィルター捕集効率に与える影響を評価するには、Naエアロゾルのみによる捕集効率の確認が必要である。

今回の試験では、Naエアロゾルのみによる試験を実施しエアロゾルフィルター捕集効率の基礎データを取得することを目的とした。

また、サンプラーの機器に存在（再使用するものは前回の残留分もある）するNa成分を減少させるため、エアロゾルサンプラー（焼結フィルター、ホルダー、継配管）及びCT（U字管、継配管）の洗浄を、その洗浄液中のNa量が分析下限値となるまで実施した。

②サンプリング結果

各点のサンプリング結果を表A. 2に、それをグラフにしたものを図A. 7, 8に示す。

・エアロゾルフィルター捕集効率

エアロゾルフィルター一式（多層・中性能・HEPA）によるNaエアロゾルの捕集効率はF6-5①で99.92%、F6-5②で99.99%となり、「もんじゅ」で期待する捕集効率99.0%を十分満足する結果となった。

3種フィルター各々の捕集効率は、多層式で60.8%、45.4%、中性能で98.0%、77.6%、HEPAで87.4%、99.3%となり、多層式、中性能は十分な性能が確認され、ま

たHEPAの捕集効率は一回目は若干悪いが二回目は期待する十分な捕集性能を示した。

HEPAの捕集性能について検討すると、これはその前段と後段のサンプラーで取れたNaの量から計算しているなのでその点について考える。

今までの試験でHEPAの捕集効率が低いのは、HEPAの後段の濃度が律速となり捕集効率を下げているということに起因する。HEPA後段のようにNa濃度が低いサンプルの場合には、分析上の誤差成分の他にサンプル採取・水溶液化等の試料調整時にNaが混入することによる影響も考えられその評価が非常に難しい。これらを考慮した上で十分信頼できるデータを採取するには、HEPA後段のサンプル中のNa量が $10\mu\text{g}^*$ は必要となる。

* Na分析上の下限値が溶液中濃度で10ppb、即ち100cc溶液中に $1\mu\text{g}$ 。

純水中（P安室使用の純水装置）のNa量が濃度で10ppb前後。

サンプラーを十分洗浄した時のNa残量が100cc溶液につき $1\sim 3\mu\text{g}$ 。

このとき、HEPAフィルターが99%以上の捕集効率であることを示すには、HEPA前段のサンプラー中のNa量は $1000\mu\text{g}$ 必要でエアロゾル濃度に換算すると $4\times 10^{-2}\text{g}/\text{m}^3$ 程度（通常サンプリングは雰囲気ガスを容量 5l のヘッダーで5回吸引する）となる。

これらの検討結果をF6-5①②の結果に当てはめて見ると各々のHEPA前段のエアロゾル濃度は、F6-5②では十分であるがF6-5①では一桁小さく捕集効率を評価するに十分な条件下にないことがわかる。このような条件で捕集効率を精度良く測定するには、Naの分析精度を上げたうえ、装置洗浄をより以上徹底させる必要があり現在の装置では実施するのが難しい。本試験では、エアロゾルフィルター式の捕集能力を確認することを主目的としており、その結果は十分得られていることからこれ以上の改造は行わないものとした。

・チャコールフィルター捕集効率

今回の試験では、Naのみの燃焼でありヨウ素は使用していないためチャコールフィルターの捕集効率は評価していない。

注目すべき点は、チャコール後段で前段よりNaエアロゾルの濃度が増加している（F6-5①、②）ことで、これはF6-2でも認められた。理由の一つとして考えられる

のはチョコレートからのNa成分の脱着でこれについては後に調べた（F6-9試験結果の項参照）が可能性としては薄い。また一つには前記した様にNaのサンプリング誤差の範囲が大きくその影響によるものとも考えられなくはないが、もし一様にチョコレート後段でNaエアロゾル濃度が増加するという現象が現れた場合はこれでは説明がつかない。今後十分検討する必要がある。

(6) F 6 - 6 試験結果

①概況

前回までの結果から、Naエアロゾルとヨウ素蒸気が混合された状態では、現状のガス状ヨウ素サンプラーでは捕集できない成分が存在することがわかった。今後の試験ではガス状ヨウ素サンプラーとして、CT（ドライアイス中コールドトラップ）の後段にNaOH溶液中でサンプルガスをバブリングするポットを取り付けガス中のヨウ素成分を全て捕集するものとした。この場合NaOHポットに捕獲されたヨウ素成分の形態は同定できないが、現状では注入したヨウ素と回収したヨウ素のマスバランスを取ることに重点を置いてこの方法を採用した。また、CTで捕集できないヨウ素成分としてHIが考えられるため試験時の装置の各所での水素の存在を確認するためサンプルガスをガスクロで分析した。

ガス状ヨウ素サンプラーとしては、CTをドライアイス中でなく液体窒素中で使用する方法も検討したが、ドライアイスの場合でも大気中の湿分の凍結により閉塞ぎみとなる現象から考えて液体窒素の使用は困難と判断した。

②サンプリング結果

各点のサンプリング結果を表A. 2に、それをグラフにしたものを図A. 9, 10に示す。

・エアロゾルフィルター捕集効率

エアロゾルフィルター一式（多層・中性能・HEPA）によるNaエアロゾルの捕集効率はF6-6①で99.99%、F6-6②で99.99%となり、「もんじゅ」で期待する捕集効率99.0%を十分満足する結果となった。

3種フィルター各々の捕集効率は、多層式で76.7%、85.6%、中性能で98.2%、58.9%、HEPAで97.7%、99.8%となり、多層式、中性能、HEPAともにほぼ十分な捕集性能を示した。HEPAの1回目の捕集効率が若干低いのは、F6-5で説明したように

HEPA前段のエアロゾル濃度が実験精度に対して十分大きくないためと考えられる。

ヨウ素の捕集に関しては、F6-6①ではエアロゾルは捕集される傾向があったが、ガス状ヨウ素サンプラーに捕集される成分は変化がなかった。F6-6②では、ガス状ヨウ素サンプラーの内CTが閉塞したため取り外しNaOHポットのみを使用した。NaOHポットのみとなったサンプル点4,5,6のヨウ素捕集量はその前段のサンプル点3の捕集量と同程度であるため、このサンプラーによる捕集能力は十分と考えデータを評価した。これから見ると、エアロゾルは捕集される傾向にあったが、ガス状ヨウ素サンプラーに捕集される成分については何とも言えない。また、サンプル点4,5の捕集量がサンプル点1,2,3の捕集量より大きくなっていることから、CTがガス状ヨウ素の捕集を妨害している可能性も考えられた。

・チャコールフィルター捕集効率

今回変更したサンプラーでもヨウ素は十分捕集できず、従って捕集効率は評価できない。——ヨウ素のマスバランスの確認の項参照

・水素分析（ガスクロ）結果

ガス中水素量の測定は、①FRAT容器内②レーザ用管台前段③チャコールフィルター前段の3点について試験中随時実施した。このとき念のため酸素濃度についても測定した。

試験中雰囲気ガス中から水素は発見されなかった。ガス状ヨウ素としてCT後段に抜けたヨウ素がHIである可能性は否定された。

また、同時に測定した酸素濃度には特に変化は見られなかった。

・問題点

ヨウ素のマスバランスの確認

注入したヨウ素の濃度（ヨウ素の注入量の時間平均）とその後段のサンプルから計算したヨウ素の濃度の比較では後者は前者より一桁小さく、このサンプラーではヨウ素は十分捕集できているとは言いがたい。

(7) F6-7 試験結果

①概況

ヨウ素フィルターの性能に関して今までの結果からはっきり言えることは、(a)チャコールフィルターの性能はヨウ素蒸気のみ条件下では十分仕様を満たしているが、

これにNaエアロゾルが混合された条件では十分性能を発揮しないこと(b)エアロゾルフィルターの捕集性能はNaエアロゾルのみでもNaとヨウ素の混合エアロゾル条件下でも変わらず十分仕様を満たしていることである。

今回試験を実施する前に、ヨウ素の挙動に関しては不明点が多いためその点を説明するための幾つかの方策を講じた。

○サンプラーで十分ヨウ素が捕集されない問題について(a)分析上定量できない分のヨウ素が存在する(b)サンプラーをヨウ素が抜けている可能性の2点について以下の方法を実施して調べた。

(a)ヨウ素分析方法の変更 (イオンクロマト) → ICP-MS ; これにより分析サンプル中でイオン化していないヨウ素も分析できる。

(b)サンプリングヘッダー内の分析 ; ガス中の CH_3I の分析
ヘッダー管内面に付着したヨウ素の分析

○サンプラーによるヨウ素の捕集が十分でないことから系内のヨウ素の挙動がハッキリとらえられない。そのためそれ以外の方法でもヨウ素の所在を確認するため以下を実施した。

(a)試験前装置全体を十分洗浄したのちNa, Iに関してB. G. データを採取する。

(b)試験後系内に付着したNa, Iを全て回収し、使用したヨウ素量及び(a)のB. G. データと比較してヨウ素の行方を確認する。--- 系内に付着したヨウ素の量が少なければその分はフィルター後段に抜けていると考える。

以上の方法により今後試験を実施していき、その結果を現在までの結果と比較し不足データ及び不明量データを補填する。

これらの作業のうち、ヨウ素に関するB. G. データの採取・評価作業を実施したときCT中のヨウ素の洗浄が難しいことが判明した。また、F6-6試験でCTが閉塞した際にガス状ヨウ素サンプラーとしてNaOHポットのみを使用した場合でも同様な量のヨウ素の捕集が可能であったため、今後の試験ではCTを使用せずNaOHポットのみとした。

②サンプリング結果

各点のサンプリング結果を表A. 2に、それをグラフにしたものを図A-11, 12に示す。

- ・エアロゾルフィルター捕集効率

エアロゾルフィルター一式（多層・中性能・HEPA）によるNaエアロゾルの捕集効率はF6-7①で99.94%で十分な捕集性能を示したが、F6-7②では50.8%となり今までにない低い値を示した。データを見ると、F6-7①②共に中性能フィルターの後段のエアロゾル濃度が前段より高いという現象を起こしており、今までの結果から考えて中性能フィルターに何らかの異常があったとするのが一番可能性が高い。

また、F6-7②ではHEPAフィルターでもエアロゾルが十分捕集されない事象が発生した。

これらの事象から見ると今回試験で使用した中性能・HEPAフィルターには何らかの異常があったのは明らかではあるが、これらは納入時のD. O. P. エアロゾルによる検査では異常が発見されなかったフィルターで、原因として考えられるのは(a)フィルターの経年劣化(b)D. O. P. エアロゾルによる検査方法の問題等でありいずれの原因にせよ実機に使用する場合はより正確なフィルター性能の保証が必要となり、これらの点については今後の試験結果を見ながら検討を加える。

ヨウ素の捕集に関しては、エアロゾルは捕集される傾向を示したが、ガス状ヨウ素サンプラーに捕集される成分にはその傾向は見られなかった。

- ・チャコールフィルター捕集効率

チャコールフィルターによるヨウ素の捕集は確認できなかった。

F6-7②のデータでは前段より後段側がヨウ素濃度が高くなっているが、これはHEPAでのエアロゾルの捕集が十分でないため(Na+NaI)エアロゾルがチャコールフィルターを通過した（チャコールフィルターではエアロゾルは捕集できない）ためであると考えられる。

- ・ガス状ヨウ素

今回より追加したNa燃焼ポット上部のサンプル点でガス状ヨウ素が発見された。このヨウ素はガス状ヨウ素サンプラーのうち最後段のミストトラップ(SUS製金網)中にのみ捕集されたことから明らかにガス状ヨウ素で、その量はそのサンプル点で発見されたヨウ素の内の86%であった。これらのことはNa+NaIの燃焼時に何らかの条件が揃えばガス状ヨウ素が生成されることが明らかで、燃焼後エアロゾルを含む

ガスと新鮮な空気が混合されることもその条件の一つとして考えられる。

・問題点

ヨウ素のマスバランス

(サンプリング系)

注入したヨウ素蒸気の濃度に比べて、十分多くのヨウ素が後段のサンプラーに捕獲された。これにより、サンプラーの捕集能力は十分であることが確認された。

また、サンプリングヘッダー内にはヨウ素が存在しなかったこと（ヘッダー内のヨウ素分析の結果有為な量のヨウ素は発見されず）もこのことを裏付けた。

今回からサンプリング系で変更になった点は、分析方法の変更とガス状ヨウ素サンプラーがNaOHポットのみとなった点のみで、このどちらかもしくは一方の原因によりサンプラーによりヨウ素が十分捕集されるようになったと言える。

(試験装置内)

試験後装置内に付着したヨウ素量は9.157g、使用したヨウ素（ヨウ素蒸気及びNa中NaI）は11.19gでその差2.033gはチャコールフィルター後段に抜けたことになる。また、多層・中性能・HEPAフィルターに捕獲されたヨウ素は4.269gで、使用したヨウ素の38%がエアロゾルフィルターにより捕獲された事になる。

(前回までの結果との比較)

前回までは、装置全体のヨウ素付着量は測定していないが、多層・中性能・HEPAフィルターに捕獲されたヨウ素量は分析してある。そこで、その結果と今回の結果を比べる。前回までは多層・中性能・HEPAフィルターに捕獲されたヨウ素量は使用したNa量より大分少なく、今回のようにエアロゾルフィルターに大部分のヨウ素が捕獲された結果はない。この原因としては、ある条件下でエアロゾルフィルターにヨウ素が捕集されにくくなるということも可能性があるが、分析方法の違いによる差とも考えられ、それをはっきりさせるには同一試験のサンプルをイオンクロマトグラフとICP-MSの両方の分析結果により評価する必要がある。

*今後の試験条件検討

前回のF6-7試験で、改造したサンプラー（エアロゾル、ガス状ヨウ素）によるヨウ素の捕集が十分であるという結果を得た。

従って、今回以後は現在迄の試験条件の試験で再度結果を確認することとし、以下のマトリックスに従い実施した。

| | | | | |
|---------------------|-------------------|--------|---------|----------|
| | | Na燃焼条件 | | |
| | | Na燃焼なし | Naのみ燃焼 | Na+NaI燃焼 |
| I ₂ 発生条件 | I ₂ なし | | F6-5実施済 | F6-9 |
| | I ₂ 注入 | F6-10 | F6-8 | F6-11 |

(8) F 6 - 8 試験結果

①概 況

前記した条件により試験を実施した。

②サンプリング結果

各点のサンプリング結果を表A. 2に、それをグラフにしたものを図A-13, 14に示す。

・エアロゾルフィルター捕集効率

エアロゾルフィルター一式（多層・中性能・HEPA）によるNaエアロゾルの捕集効率はF6-8①で99.87%で十分な捕集性能を示したが、F6-8②では前段より後段の濃度が高くなるという結果を示した。F6-8①では全てのフィルターが正常に機能したが、F6-8②ではF6-7と同様に中性能フィルターで後段のエアロゾル濃度が前段より高いという現象を示した。

ヨウ素の捕集に関しては、エアロゾルは捕集される傾向が確認されたが、ガス状ヨウ素サンプラーに捕集される成分はエアロゾルフィルターの前後ではあまり変化しなかった。

・チャコールフィルター捕集効率

チャコールフィルターによるヨウ素の捕集効率はF6-8①で83.2%、F6-8②で80.4%を示した。

試験前後の活性炭のヨウ素分析結果から求めたヨウ素捕集量は2.066gであった。

・問題点

ヨウ素のマスバランス

(サンプリング系)

注入したヨウ素蒸気の濃度に比べて、十分多くのヨウ素が後段のサンプラーに捕獲された。これにより、サンプラーの捕集能力は十分であることが確認された。

(試験装置内)

・ヨウ素の使用量と装置内付着量のマスバランス

ヨウ素の使用量(ヨウ素蒸気量)は23.79g、装置内の量(ヨウ素蒸発器より後段側)は20.54gでその差3.25gはチャコールフィルター後段に抜けたと考えられる。

・装置内に付着したヨウ素の試験前後の差

今回試験では、燃焼ポットNa中にNaIは混合していない。そのためヨウ素蒸発器前段の装置内にはヨウ素は混入せず、FRAT容器内、配管等に付着したエアロゾル中のヨウ素量は試験前と同程度になる筈である。しかし、試験後回収したエアロゾル中のヨウ素量を試験前に測定したものと比べると、試験前は 6.11×10^{-5} gのものが試験後には0.125gに増加していた。また、燃焼させたNa中のヨウ素量は試験前は0.002gであったのが試験後は0.07gに増加しており、これらを合わせて考えるとNa燃焼によって大気中のヨウ素がNaエアロゾル中に取り込まれエアロゾルとして各部に捕獲されたと考えられる。

大気中のヨウ素の濃度は0.1ppb程度という文献値⁹⁾があるが、今回の結果から推定されるヨウ素濃度は数百ppbという値になる。本試験の実施条件から考えると、これは 10^{-4} g/m³のヨウ素のバックグラウンドとなり、ガス状ヨウ素の生成について検討するような低濃度のヨウ素量を評価する際に大きな障害となる。今後大気中のヨウ素量については詳細を調べる必要があると思われる。

(9) F 6 - 9 試験結果

①概況

試験条件は、前記したマトリックスに従い実施した。

前回までの試験結果では殆ど全ての場合に、チャコールフィルター後段でエアロゾル濃度が増大する傾向が見られる。この原因の一つとしてチャコール粉の後段側への飛散が考えられるため、チャコールフィルター前後のエアロゾルサンプル中の炭素量を分析し粉末として飛散したチャコールの量を評価した。

また、チャコールフィルター用の活性炭を未使用の新しいものと交換した。

② サンプリング結果

各点のサンプリング結果を表A. 2に、それをグラフにしたものを図A. 15, 16に示す。

・エアロゾルフィルター捕集効率

エアロゾルフィルター一式（多層・中性能・HBPA）によるNaエアロゾルの捕集効率はF6-9①では90.82%と低い値であったが、F6-9②では99.93%で十分な捕集性能を示した。

F6-9 ①では捕集効率が低くなったのはHBPAフィルターでNaエアロゾルが捕集されないという異常が発生したため、続けて実施したF6-9②ではHBPAフィルターは正常に機能したことからフィルターに初期の欠陥（ピンホール等のリークパス、経年変化による濾材の劣化）があった疑いが持たれた。そこでF6-9終了後、未使用のHBPAフィルターをD.O.P.エアロゾルで再検査した結果、捕集性能は納入前検査の結果と同様に仕様を満たした。この結果からみると、HBPAフィルターに移送時の損傷等による欠陥があった可能性は薄く、試験時に何らかの異常が発生したとするのが妥当である。F6-7, 8で発生した中性能・HBPAフィルターの異常についても同様であると思われる。

ヨウ素の捕集に関しては、エアロゾルフィルターで捕集される傾向を示した。ガス状ヨウ素サンプラーに捕集される成分についてはエアロゾルフィルターでは捕集されなかった。

・チャコールフィルター捕集効率

チャコールフィルターによるヨウ素の捕集はF6-9①では確認されず、F6-9②では僅か15.1%が捕集されたに過ぎなかった。特に、ガス状ヨウ素サンプラーに捕集された成分に関してはチャコールにより捕集された形跡はない。

また、試験前後の活性炭中のヨウ素分析の結果からもヨウ素がチャコールフィル

ターに捕集された形跡は認められなかった。

これらの結果からだけ見ると、今回試験ではチャコールフィルターではヨウ素が捕集されない結論となる。しかし、この時評価に使用したサンプル中のヨウ素量は、試験前採取したサンプラーのバックグラウンドのヨウ素量と同程度であるため、試験後にサンプラー中に発見されたヨウ素は、サンプラー内に残留していたものや、サンプル採取に使用した純水中に存在したヨウ素である可能性が高い。

以上の検討から、この試験結果をもってチャコールフィルターの捕集効率を議論するのは、その精度からみて難しい。

○チャコールフィルター後段のNaエアロゾル濃度の増大

；フィルター前後の炭素成分の分析

試験後、チャコールフィルター前後のエアロゾルサンプラーに捕集されたエアロゾル中の炭素量を分析し、その差からチャコール粉の飛散量を評価した。

その結果、フィルター前後の炭素量には、フィルター後段でNaエアロゾル濃度が増大したことを説明しうるだけの有為な差は認められず、チャコールフィルター後段でNa濃度が増大する原因をチャコール粉の飛散により説明することが難しいことがわかった。

・ガス状ヨウ素の発生

Na燃焼ポット上部のサンプル点のガス状ヨウ素サンプラーでヨウ素が捕集されたがこれは試験前にサンプラーのバックグラウンドとして存在したヨウ素量と大差なく、これからガス状ヨウ素の発生を断定するのは難しい。

また、その量から換算したガス中濃度は 10^{-4} g/m³程度で、これは前回(F6-8)Naのみを燃焼させたときのガス中に存在したヨウ素の濃度と同等で、大気中に既に存在していたヨウ素である可能性もある。

以上の点から考えて、今回試験結果からガス状ヨウ素の発生は確認できなかった。

・問題点

ヨウ素のマスバランス

(試験装置内) 図A.29参照

・ヨウ素の使用量 (Na燃焼ポット内NaI)3.813gのうち燃焼ポット内に残ったヨウ

素は3.0g, 装置内の付着ヨウ素量は0.030gで, その差0.783gは後段に抜けたと考えられる。しかし, ここで使用しているデータのうち試験後のNa燃焼ポット内のヨウ素量に関しては, ステンレス容器内で燃焼しているNa中のヨウ素を分析しているため, ヨウ素と金属が反応して分析で見つかりにくい形態となっている可能性が高い。この場合分析でも20%以上の誤差を含むものと考えられ, このデータからヨウ素がフィルターに捕集されずに通過したことを断定することは難しい。

(10) F 6 - 1 0 試験結果

①概況

試験条件は, 前記したマトリックスに従い実施した。

これは, ヨウ素蒸気のみ雰囲気においてチャコールフィルターのヨウ素の捕集を確認することを目的としている。F6-3ではガス状ヨウ素サンプラーによる捕集が十分でなかったことがあるため再度同条件での試験を実施した。

②サンプリング結果

各点のサンプリング結果を表A. 2に, それをグラフにしたものを図A. 17に示す。

・エアロゾルフィルター捕集効率

(ヨウ素捕集効率)

エアロゾルフィルター一式(多層・中性能・HEPA)として見ると, ヨウ素は捕集される傾向を示し, その効率は24.4%であった。

但し, 多層式フィルターを通過するときヨウ素のエアロゾル成分が減少し, ガス状ヨウ素サンプラーに捕集される成分が増加する現象が見られた。その後中性能フィルターを通過してからこれらの量は逆転し多層式の前段の状態に戻っている。

この現象からは, -①エアロゾル状のヨウ素がガス状のものに変わった②エアロゾルサンプラーで捕られやすいガス状ヨウ素の化学形が変化して, エアロゾルサンプラーを通過した- の二通りの可能性が考えられる。

しかし, サンプル点3で見つかったヨウ素の量はその前のサンプル中のヨウ素量の1/2程度に減少しているにも関わらず, 前後のサンプル2, 4のヨウ素量は

変化しておらずこの間のフィルターではヨウ素は捕集されていないことになる。これから、サンプル点3ではヨウ素は完全に捕集されていないことになり、サンプラーに不良があったとするのが順当である。

サンプラーに異常、例えば焼結フィルターのピンホールがあった場合を想定すると、エアロゾルサンプラーを通過したエアロゾル状のヨウ素が後段のNaOHバブラーに捕集され、結果としてエアロゾル状のヨウ素が減少し、ガス状ヨウ素サンプラーに捕集される成分が増加することになる。また、このときガス状ヨウ素サンプラーに流れたエアロゾル状のヨウ素は完全に捕集されないことも考えられ、全体としてサンプラーに捕集されるヨウ素量は減少する。

以上の点から考えて、サンプル点3ではサンプラーに不良があったとし、試験データの評価には使用しないものとした。

・チャコールフィルター捕集効率

チャコールフィルターによるヨウ素の捕集効率は99.95%となり十分な捕集性能を示した。

試験前後の活性炭のヨウ素分析結果から求めたヨウ素捕集量は4.137gであった。

・ヨウ素のマスバランス

(サンプリング系)

注入したヨウ素蒸気の濃度と、その直後のサンプラーに捕集されたヨウ素量から換算したヨウ素濃度は一致し、サンプラーの性能が十分であることが確認できた。

(試験装置内)

装置内に付着していたヨウ素量は注入したヨウ素量の1/2程度で、これだけ見るとその他は後段に抜けたと考えられる。しかし、装置内、フィルター(多層・中性能・HEPA)に付着したヨウ素が I_2 であるとする、それはサンプル採取時に大気開放になるため殆どは昇華してしまうこともあり得る。装置内に付着していたヨウ素のうち I_2 の形態であったものがどれくらいの量になるかは判別できず、これによって生ずる誤差の量も見積り難い。

また、チャコール中ヨウ素分析はチャコール全量をサンプルとするのではなく、

代表点を採取（45kg中10g）しているに過ぎないためこれによる誤差も大きい。

以上の点から考えて、装置内ヨウ素のマスバランスの不一致からチャコールフィルター捕集能力は評価しないものとした。

(1) F6-11 試験結果

①概況

試験条件は、前記したマトリックスに従い実施した。

②サンプリング結果

各点のサンプリング結果を表A.2に、それをグラフにしたものを図A.18に示す。

・エアロゾルフィルター捕集効率

エアロゾルフィルター一式（多層式・中性能・HEPA）によるNaエアロゾルの捕集効率は99.94%で十分な捕集性能を示した。3種フィルター各々の捕集効率は多層式で81.1%、中性能で84.9%、HEPAで97.7%という結果であった。この内HEPAの捕集効率が若干低いのはF6-5で検討したようにHEPA前段のエアロゾル濃度が実験精度に対して十分大きくないためである。

ヨウ素の捕集に関してはエアロゾル状、ガス状ヨウ素共に良く捕集されることが明らかとなった。

・チャコールフィルター捕集効率

チャコールフィルターでのヨウ素の捕集効率は73.17%を示した。

チャコールによるヨウ素の捕集はチャコール中のヨウ素分析の結果からは確認できなかった*。

*チャコールフィルター前後のヨウ素濃度から算出したヨウ素捕集予想量は

0.017gで、これをサンプルとしたとき（チャコール45kgの内0.5g採取、100cc溶液に抽出）のサンプル中濃度は18ppb。一方分析の下限値は500ppbで、この点から考えるとチャコール中ヨウ素分析によりヨウ素の捕集は確認できない。

・ヨウ素のマスバランス

（サンプリング系）

注入したヨウ素蒸気の濃度と、その直後のサンプラーに捕集されたヨウ素量から換算したヨウ素濃度は一致し、サンプラーの性能が十分であることが確認でき

た。

(試験装置内)

装置内に付着していたヨウ素量は注入したヨウ素量の91.3%に相当する。チャコールフィルターではヨウ素は殆ど捕集されなかったにもかかわらず、これだけヨウ素が捕獲できたのはエアロゾルフィルターでのヨウ素の捕集量が大きいためで、この結果によりその点が裏付けられた。

表1.1 試験マトリックス

| | | Na燃焼条件 | | |
|---------------|---|--------|--------|----------|
| | | 無 | Naのみ燃焼 | Na+NaI燃焼 |
| ヨウ素蒸気 発生条件 | 無 | | F6-5 | F6-9 |
| | 有 | F6-10 | F6-8 | F6-11 |

表 2.1 サンプル分析結果 (F6-9前 ヨウ素の定量分析)

| 試料名 | 測定値 ($\mu\text{g}/\ell$) | 洗浄液量 (ℓ) | 絶対量 (μg) |
|----------------|----------------------------|-----------------|-----------------------|
| NaOH ボット 1-1-1 | 2.0 | 0.1 | 0.20 |
| NaOH ボット 1-1-2 | 2.1 | 0.1 | 0.21 |
| NaOH ボット 1-1-3 | 3.0 | 0.1 | 0.30 |
| NaOH ボット 1-2-1 | 3.0 | 0.1 | 0.30 |
| NaOH ボット 1-2-2 | 2.7 | 0.1 | 0.27 |
| NaOH ボット 1-2-3 | 2.6 | 0.1 | 0.26 |
| NaOH ボット 2-1-1 | 2.8 | 0.1 | 0.28 |
| NaOH ボット 2-1-2 | 3.1 | 0.1 | 0.31 |
| NaOH ボット 2-1-3 | 3.0 | 0.1 | 0.30 |
| NaOH ボット 2-2-1 | 3.3 | 0.1 | 0.33 |
| NaOH ボット 2-2-2 | 2.9 | 0.1 | 0.29 |
| NaOH ボット 2-2-3 | 3.5 | 0.1 | 0.35 |
| NaOH ボット 3-1-1 | 3.7 | 0.1 | 0.37 |
| NaOH ボット 3-1-2 | 3.4 | 0.1 | 0.34 |
| NaOH ボット 3-1-3 | 3.3 | 0.1 | 0.33 |
| NaOH ボット 3-2-1 | 3.4 | 0.1 | 0.34 |
| NaOH ボット 3-2-2 | 3.2 | 0.1 | 0.32 |
| NaOH ボット 4-1-1 | 2.6 | 0.1 | 0.26 |
| NaOH ボット 4-1-2 | 2.8 | 0.1 | 0.28 |
| NaOH ボット 4-2-1 | 2.6 | 0.1 | 0.26 |
| NaOH ボット 4-2-2 | 2.4 | 0.1 | 0.24 |
| NaOH ボット 5-1-1 | 2.7 | 0.1 | 0.27 |
| NaOH ボット 5-1-2 | 2.8 | 0.1 | 0.28 |
| NaOH ボット 5-2-1 | 2.8 | 0.1 | 0.28 |
| NaOH ボット 5-2-2 | 3.0 | 0.1 | 0.30 |
| NaOH ボット 6-1-1 | 2.3 | 0.1 | 0.23 |
| NaOH ボット 6-1-2 | 2.6 | 0.1 | 0.26 |
| NaOH ボット 6-2-1 | 2.8 | 0.1 | 0.28 |
| NaOH ボット 6-2-2 | 3.0 | 0.1 | 0.30 |
| NaOH ボット 7-1-1 | 3.2 | 0.1 | 0.32 |
| NaOH ボット 7-1-2 | 3.0 | 0.1 | 0.30 |
| NaOH ボット 7-1-3 | 2.8 | 0.1 | 0.28 |
| NaOH ボット 7-2-1 | 3.2 | 0.1 | 0.32 |
| NaOH ボット 7-2-2 | 2.8 | 0.1 | 0.28 |
| NaOH ボット 7-2-3 | 3.2 | 0.1 | 0.32 |
| NaOH ライン 1-1 | 2.4 | 0.05 | 0.12 |
| NaOH ライン 1-2 | 2.9 | 0.05 | 0.14 |

| 試験条件 | | | | | 供試体(フィルター) | | エアロゾル サンダー | ガス状ヨウ素サンダー コールド NaOH トラップ バグラー (CT) | 備考 | | | | | |
|------------------------------------|-------------------|---------------------------------------|----------------|-------------|----------------|-------------------|---------------------|--|---|--|-----|--|--|---|
| 濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | Na中ヨウ素 濃度(ppm) | ガス状ヨウ素濃度 (g/m^3) | 相対湿度 (%) | 絶対湿度 (%) | エアロゾル フィルター | チャコール フィルター | | | 試験実施 | 装置改造箇所 | | | | |
| ~0.36 | 1038 | 2.3×10^{-3} | 77%, 22°C | 1.28% | 新品 使用 | 添着 活性炭 | 焼結フ ィルターのみ 新品 | 製作後 使用 | ・サンプリングヘッド 2体により 6点×2回のサンプリング。 →コールドトラップの閉塞により予定サンプル採取不可。 同時期のサンプリング実施のため 次回よりヘッドを6体に増設 | ・サンプリングヘッド 2体 | | | | |
| 30 | | | ↓ 69%, 24°C | ↓ 1.29% | | | | | | | | | | |
| ~0.29 | 991 | 6.4×10^{-3} | 77%, 22°C | 1.28% | ↑ 再使用 | 再使用 | | | | | 再使用 | ・サンプリングヘッド 6体により 6点のサンプリング実施(F6-1と同条件) | ・サンプリングヘッド 6体に増設 | |
| ~0.22 | | | ↓ | ↓ | | | | | | | | | | ・Na+NaI燃焼による ガス状ヨウ素の発生確認のため ヨウ素蒸発器停止 |
| — | — | 1.4×10^{-2} | 77%, 20°C | 1.13% | ↑ 再使用 | 再使用 | | | | | 再使用 | ・ヨウ素蒸気のみによるチャコールフィルター性能の確認 | | |
| ~0.23 | — | 1.3×10^{-2} | 73%, 23°C | 1.29% | | | | | | | | ・Naエアロゾルと ヨウ素蒸気によるチャコールフィルター性能の確認 | | |
| ~0.30 | — | — | 62%, 27°C | 1.39% | ↑ 再使用 | 再使用 | | | | | 再使用 | ・Naエアロゾル のみによるエアロゾルフィルター性能の確認 ; 装置・サンプリング系におけるNa成分の除去 | ・試験前サンプリング系をNaエアロゾルについて徹底洗浄 | |
| 20 | — | — | ↓ | ↓ | | | | | | | | | | |
| ~0.46 | — | 1.2×10^{-2} | 73%, 25°C | 1.45% | ↑ | 無添着 活性炭 | | | | | 再使用 | 製作後 使用 | ・サンプリング系の改造によるガス状ヨウ素の完全捕集 ・チャコール に捕集されたヨウ素の絶対量を評価 | ・チャコールフィルターにヨウ素無添着活性炭を使用 ・NaOHバグラー新規取付 ・試験ガス中H ₂ , O ₂ 分析 |
| ~0.32 | | | ↓ | ↓ | | | | | | | | | | |
| ~0.42 | 1108 | — | 80%, 15°C | 0.848% | ↑ | 再使用 | 再使用 | 再使用 | ・ガス状ヨウ素サンダーによる非捕集ヨウ素成分の解明 | ・CT不使用、カスケードインテイク取付、サンプリング ・点2 ヘッド内ガス分析 ・ヨウ素分析方法変更 イオンクロマトグラフィー → ・試験前装置洗浄、B. G. テイク採取(Na, I) | | | | |
| ~0.32 | | | ↓ | ↓ | | | | | 2.4×10 ⁻² | | | | | |
| ~0.34 | — | 5.2×10^{-2} | 68%, 21°C | 1.04% | ↑ | 再使用 | 再使用 | 再使用 | ・ガス状ヨウ素サンダー によるヨウ素の捕集が十分となったため 現在までに実施した試験の条件における結果を再度確 認する。以後新規マトリックスに従い順次実施。 | | | | | |
| 18 | | | ↓ | ↓ | | | | | | | | | | |
| 13 | 991 | — | 68%, 23°C | 1.30% | ↑ | 無添着 活性炭 -新品 | 再使用 | 再使用 | ・マトリックスに従い実施。 ・チャコールフィルター後段でNaエアロゾル 濃度が増大する現象につい て調べる。→チャコールフィルター前後のサンプル中の炭素分析 | ・チャコールフィルター前後のサンプル中の炭素分析 | | | | |
| ~0.22 | | | ↓ 70%, 24°C | ↓ 1.45% | | | | | | | | | | |
| — | — | 3.7×10^{-2} | 62%, 19°C | 0.838% | ↑ | 再使用 | 再使用 | 再使用 | ・マトリックスに従い実施。 F6-3の再試験。 | ・試験前装置洗浄、B. G. テイク採取(Na) | | | | |
| — | — | — | ↓ 62%, 19°C | ↓ 0.851% | | | | | | | | | | |
| 15 | 1015 | 4.8×10^{-2} | 59%, 16°C | 0.677% | ↑ | 再使用 | 再使用 | 再使用 | ・マトリックスに従い実施。 | | | | | |
| — | — | — | ↓ 60%, 16°C | ↓ 0.681% | | | | | | | | | | |

サンプリング結果から換算した各点での濃度 (g/m³)

| | FRAT容器内 | ヨウ素供給 バル前 | 多層式 フィルタ-前 | 多層式、中性 能フィルタ-間 | 中性能、HEPA フィルタ-間 | HEPA、フタコ-ル フィルタ-間 | フタコ-ル フィルタ-後 | エアロゾルフィルタ-捕集効率 (%) | | | | フタコ-ル フィルタ- 捕集効 率(%) | ヨウ素のマスバランス | |
|-----------------------------------|---------|--|--|--|--|--|--|-----------------------|-------|-------|-------|-------------------------------|---|------------|
| | | | | | | | | 全 体 | 多層式 | 中性能 | HEPA | | 各部のヨウ素の付着量と ヨウ素投入量の比較 (g) | |
| ナトリウムイソシアン イソシアン状ヨウ素 ガス状ヨウ素 | ———— | 3.6×10 ⁻¹ 5.8×10 ⁻⁵ 4.7×10 ⁻⁶ | 3.1×10 ⁻¹ 8.3×10 ⁻⁵ 2.7×10 ⁻⁶ | ———— | ———— | 3.0×10 ⁻³ 2.4×10 ⁻⁵ 1.3×10 ⁻⁶ | 1.8×10 ⁻³ 2.0×10 ⁻⁵ 1.1×10 ⁻⁶ | 99.0% | ———— | ———— | ———— | ———— | 多層式 0.0165 g 中性能 0.0395 g HEPA 0.0231 g フタコ-ル ケージング 0.0023 g | ヨウ素投入量 |
| ナトリウムイソシアン イソシアン状ヨウ素 ガス状ヨウ素 | ———— | ———— | 3.0×10 ⁻¹ 2.3×10 ⁻⁴ 2.2×10 ⁻⁶ | ———— | ———— | 5.0×10 ⁻³ 6.1×10 ⁻⁶ 1.9×10 ⁻⁶ | ———— | 98.3% | ———— | ———— | ———— | ———— | 計) 0.0815 g | 2.19 g + α |
| ナトリウムイソシアン イソシアン状ヨウ素 ガス状ヨウ素 | ———— | 3.0×10 ⁻¹ 1.5×10 ⁻⁴ 9.4×10 ⁻⁶ | 2.5×10 ⁻¹ 5.0×10 ⁻⁴ 1.4×10 ⁻⁵ | 4.8×10 ⁻² 1.7×10 ⁻⁴ 1.2×10 ⁻⁵ | 1.1×10 ⁻² 6.3×10 ⁻⁵ 1.2×10 ⁻⁵ | 6.8×10 ⁻³ 2.3×10 ⁻⁵ 3.6×10 ⁻⁶ | 1.7×10 ⁻³ 7.2×10 ⁻⁵ 2.5×10 ⁻⁶ | 97.3% | 81.2% | 77.4% | 37.1% | ———— | 多層式 0.2415 g 中性能 0.1811 g HEPA 0.1128 g フタコ-ル ケージング 0.0020 g | ヨウ素投入量 |
| ナトリウムイソシアン イソシアン状ヨウ素 ガス状ヨウ素 | ———— | 2.2×10 ⁻¹ 3.6×10 ⁻⁵ 1.0×10 ⁻⁵ | 1.3×10 ⁻¹ 4.3×10 ⁻⁵ 8.0×10 ⁻⁶ | 4.3×10 ⁻² 2.5×10 ⁻⁵ 6.0×10 ⁻⁶ | 1.8×10 ⁻² 1.2×10 ⁻⁴ 2.5×10 ⁻⁶ | 2.3×10 ⁻³ 3.5×10 ⁻⁵ 2.9×10 ⁻⁶ | 2.8×10 ⁻³ 7.1×10 ⁻⁶ 3.5×10 ⁻⁶ | 98.2% | 66.4% | 58.7% | 87.2% | ———— | 計) 0.5374 g | 4.61 g + α |
| ナトリウムイソシアン イソシアン状ヨウ素 ガス状ヨウ素 | ———— | ———— 9.3×10 ⁻⁶ | ———— 5.8×10 ⁻³ 3.4×10 ⁻³ | ———— 6.3×10 ⁻³ 3.6×10 ⁻³ | ———— 5.1×10 ⁻³ 2.4×10 ⁻³ | ———— 4.3×10 ⁻³ 2.5×10 ⁻³ | ———— 3.4×10 ⁻⁴ 5.6×10 ⁻⁶ | ———— | ———— | ———— | ———— | 95.0% | 多層式 0.2121 g 中性能 0.4991 g HEPA 0.2813 g フタコ-ル ケージング 0.0161 g | ヨウ素投入量 |
| ナトリウムイソシアン イソシアン状ヨウ素 ガス状ヨウ素 | ———— | 1.9×10 ⁻¹ 5.6×10 ⁻⁵ 3.4×10 ⁻⁶ | 2.3×10 ⁻¹ 3.4×10 ⁻³ 7.9×10 ⁻⁶ | 9.3×10 ⁻² 5.5×10 ⁻⁴ 4.7×10 ⁻⁶ | 1.8×10 ⁻² 4.6×10 ⁻⁴ 9.1×10 ⁻⁶ | 1.1×10 ⁻² 3.1×10 ⁻⁴ 3.7×10 ⁻⁶ | 9.5×10 ⁻³ 3.2×10 ⁻⁵ 1.3×10 ⁻⁶ | 95.2% | 59.6% | 81.8% | 36.7% | ———— | 計) 1.0086 g | 5.325 g |
| ナトリウムイソシアン イソシアン状ヨウ素 ガス状ヨウ素 | ———— | 2.6×10 ⁻¹ ———— | 3.0×10 ⁻¹ ———— | 1.2×10 ⁻¹ ———— | 2.4×10 ⁻³ ———— | 3.0×10 ⁻⁴ ———— | 5.0×10 ⁻⁴ ———— | 99.9% | 60.8% | 98.0% | 87.4% | ———— | ———— | ———— |
| ナトリウムイソシアン イソシアン状ヨウ素 ガス状ヨウ素 | ———— | 2.0×10 ⁻¹ ———— | 2.0×10 ⁻¹ ———— | 1.1×10 ⁻¹ ———— | 2.5×10 ⁻² ———— | 1.7×10 ⁻⁴ ———— | 9.4×10 ⁻⁵ ———— | 99.9% | 45.4% | 77.6% | 99.3% | ———— | ———— | ———— |
| ナトリウムイソシアン イソシアン状ヨウ素 ガス状ヨウ素 | ———— | 3.2×10 ⁻¹ 2.1×10 ⁻⁵ 4.2×10 ⁻⁵ | 4.6×10 ⁻¹ 1.3×10 ⁻³ 3.6×10 ⁻⁵ | 1.1×10 ⁻¹ 3.5×10 ⁻⁴ 2.2×10 ⁻⁵ | 1.8×10 ⁻³ 2.3×10 ⁻⁴ 3.8×10 ⁻⁵ | 4.3×10 ⁻⁵ 1.3×10 ⁻⁴ 3.3×10 ⁻⁵ | 3.3×10 ⁻⁴ 5.0×10 ⁻⁶ 7.3×10 ⁻⁶ | 99.99% | 76.7% | 98.2% | 97.7% | ———— | 多層式 0.0243 g 中性能 0.8040 g HEPA 0.3472 g フタコ-ル ケージング 0.00087 g | ヨウ素投入量 |
| ナトリウムイソシアン イソシアン状ヨウ素 ガス状ヨウ素 | ———— | 1.0×10 ⁻¹ 1.3×10 ⁻⁵ 1.6×10 ⁻⁵ | 3.2×10 ⁻¹ 3.9×10 ⁻³ 2.8×10 ⁻⁴ | 4.6×10 ⁻² 1.3×10 ⁻³ 2.4×10 ⁻⁵ | 1.2×10 ⁻² 5.4×10 ⁻⁴ 7.9×10 ⁻⁴ | 2.5×10 ⁻⁵ 3.7×10 ⁻⁴ 7.9×10 ⁻⁴ | 1.0×10 ⁻⁴ < 1.5×10 ⁻⁵ | 99.99% | 85.6% | 58.9% | 99.8% | ———— | 計) 1.1764 g | 12.232 g |

サンプリング結果から換算した各点での濃度 (g/m³)

| | FRAT容器内 | ヨウ素供給 バル前 | 多層式 フィルタ前 | 多層式、中性 能フィルタ間 | 中性能、HEPA フィルタ間 | HEPA、活性炭 フィルタ間 | 活性炭 フィルタ後 | エアロゾルフィルタ捕集効率 (%) | | | | 活性炭フィルタ 捕集効率(%) | | 活性炭、活性炭 フィルタ一式による 捕集効率(%) ; ヨウ素 | | ヨウ素のマスマランス 各部のヨウ素の付着量と ヨウ素投入量の比較 (g) | |
|---------------|---|--|--|--|--|--|--|----------------------------|---------------|-------|-------|--------------------|------------------|--|------------------|--|--|
| | | | | | | | | 全 体 | 多層式 | 中性能 | HEPA | | | | | | |
| 活性炭活性炭 活性炭 | 1.151 2.3×10 ⁻⁴ 7.5×10 ⁻³ | 4.2×10 ⁻¹ 4.9×10 ⁻⁴ 1.2×10 ⁻⁴ | 3.0×10 ⁻¹ 1.0×10 ⁻⁴ 2.2×10 ⁻⁴ | 5.3×10 ⁻² 3.7×10 ⁻⁵ 6.4×10 ⁻⁴ | 5.3×10 ⁻¹ 6.2×10 ⁻⁴ 6.8×10 ⁻⁴ | 1.8×10 ⁻⁴ 2.7×10 ⁻⁵ 1.6×10 ⁻⁴ | 2.5×10 ⁻⁴ 2.9×10 ⁻⁵ 4.1×10 ⁻⁴ | 99.94% | | 81.9% | — | 99.97% | | | | | 多層式 2.360 g 中性能 1.884 g HEPA 0.0249 g 活性炭 0.0031 g ケージ 0.1011 g 計) 4.373 g |
| 活性炭活性炭 活性炭 | 1.707 1.4×10 ⁻³ 8.6×10 ⁻⁴ | 3.2×10 ⁻¹ 2.4×10 ⁻⁴ 9.2×10 ⁻⁴ | 2.0×10 ⁻¹ 4.8×10 ⁻² 3.3×10 ⁻⁴ | 2.6×10 ⁻² 3.8×10 ⁻³ 8.5×10 ⁻⁴ | 2.4×10 ⁻¹ 9.3×10 ⁻⁴ 1.3×10 ⁻³ | 9.9×10 ⁻² 2.4×10 ⁻⁴ 1.7×10 ⁻³ | 5.1×10 ⁻¹ 1.2×10 ⁻³ 1.3×10 ⁻² | — | | — | — | — | | | | | 計) 4.373 g |
| 活性炭活性炭 活性炭 | 0.645 1.3×10 ⁻⁴ 6.0×10 ⁻⁵ | 1.9×10 ⁻¹ 1.2×10 ⁻⁵ 1.1×10 ⁻⁴ | 3.4×10 ⁻¹ 1.6×10 ⁻¹ 5.9×10 ⁻⁴ | 5.9×10 ⁻² 1.1×10 ⁻² 6.7×10 ⁻⁴ | 4.7×10 ⁻³ 9.1×10 ⁻⁴ 4.6×10 ⁻⁴ | 4.4×10 ⁻⁴ 2.5×10 ⁻⁴ 2.5×10 ⁻⁴ | 1.4×10 ⁻³ 3.2×10 ⁻⁵ 5.2×10 ⁻⁵ | 99.87% 99.84% 57.62% | 全ヨウ素 99.7% | 82.6% | 92.0% | 90.6% | 87.20% 79.20% | 全ヨウ素 83.2% | 99.98% 91.19% | 全ヨウ素 99.95% | 多層式 8.800 g 中性能 7.979 g HEPA 1.167 g 活性炭 2.066 g ケージ 0.532 g 計) 20.544 g |
| 活性炭活性炭 活性炭 | 0.972 2.0×10 ⁻⁵ 2.2×10 ⁻⁴ | 1.8×10 ⁻¹ 6.0×10 ⁻³ 1.1×10 ⁻⁴ | 1.8×10 ⁻¹ 6.5×10 ⁻² 1.6×10 ⁻³ | 3.8×10 ⁻² 6.0×10 ⁻³ 4.5×10 ⁻⁴ | 4.7×10 ⁻¹ 4.2×10 ⁻³ 6.3×10 ⁻⁴ | 1.9×10 ⁻¹ 1.3×10 ⁻³ 3.9×10 ⁻⁴ | 2.3×10 ⁻¹ 2.7×10 ⁻⁵ 3.1×10 ⁻⁴ | — 98.00% 75.63% | 全ヨウ素 97.5% | — | — | — | 97.92% 20.51% | 全ヨウ素 80.4% | 99.96% 80.63% | 全ヨウ素 99.49% | 計) 20.544 g |
| 活性炭活性炭 活性炭 | 0.495 4.9×10 ⁻⁵ 1.2×10 ⁻⁴ | 1.4×10 ⁻¹ 7.9×10 ⁻⁶ 1.0×10 ⁻⁴ | 1.3×10 ⁻¹ 3.4×10 ⁻⁵ 1.0×10 ⁻⁴ | 5.0×10 ⁻² 4.4×10 ⁻⁶ 1.0×10 ⁻⁴ | 7.4×10 ⁻³ 3.7×10 ⁻⁶ 4.0×10 ⁻⁵ | 1.2×10 ⁻² 3.1×10 ⁻⁶ 4.9×10 ⁻⁵ | 7.0×10 ⁻² 7.5×10 ⁻⁶ 7.4×10 ⁻⁵ | 90.8% 90.88% 51.00% | 全ヨウ素 62.2% | 62.8% | 85.1% | — | — | — | 77.94% 26.00% | 全ヨウ素 39.18% | 多層式 0.0105 g 中性能 0.00925 g HEPA < 活性炭 0.00894 g ケージ 0.00246 g 計) 0.03115 g |
| 活性炭活性炭 活性炭 | 0.739 6.3×10 ⁻⁵ 1.6×10 ⁻⁴ | 2.2×10 ⁻¹ 2.4×10 ⁻⁵ 7.2×10 ⁻⁵ | 1.3×10 ⁻¹ 3.7×10 ⁻⁵ 7.5×10 ⁻⁵ | 4.7×10 ⁻² 1.4×10 ⁻⁵ 6.9×10 ⁻⁵ | 7.8×10 ⁻⁴ 1.7×10 ⁻⁶ 3.9×10 ⁻⁵ | 9.2×10 ⁻⁵ 2.8×10 ⁻⁶ 4.0×10 ⁻⁵ | 3.5×10 ⁻⁴ 6.4×10 ⁻⁷ 3.6×10 ⁻⁵ | 99.93% 92.43% 46.67% | 全ヨウ素 61.7% | 64.3% | 98.3% | 88.3% | 77.14% 10.00% | 全ヨウ素 15.1% | 98.27% 52.00% | 全ヨウ素 67.29% | 計) 0.03115 g |
| 活性炭活性炭 活性炭 | — 2.3×10 ⁻⁶ 4.6×10 ⁻⁶ | — 9.0×10 ⁻⁶ 3.6×10 ⁻⁵ | — 4.1×10 ⁻² 3.4×10 ⁻⁴ | — 3.2×10 ⁻³ 1.2×10 ⁻² | — 4.8×10 ⁻² 3.3×10 ⁻² | — 3.3×10 ⁻² 2.5×10 ⁻⁴ | — 2.4×10 ⁻⁶ 1.4×10 ⁻⁵ | — 19.34% 26.47% | 全ヨウ素 24.4% | — | — | — | 99.99% 94.40% | 全ヨウ素 99.95% | 99.99% 95.88% | 全ヨウ素 99.96% | 多層式 0.119 g 中性能 5.68×10 ⁻² g HEPA 0.176 活性炭 4.137 ケージ 2.46×10 ⁻³ g 計) 4.491 g |
| 活性炭活性炭 活性炭 | 0.334 4.5×10 ⁻⁵ 1.2×10 ⁻⁴ | 0.161 3.9×10 ⁻⁵ 8.0×10 ⁻⁵ | 0.154 5.4×10 ⁻² 2.6×10 ⁻⁴ | 2.9×10 ⁻² 5.3×10 ⁻³ 4.6×10 ⁻⁴ | 4.4×10 ⁻³ 8.0×10 ⁻⁴ 1.5×10 ⁻⁴ | 1.0×10 ⁻⁴ 6.7×10 ⁻⁵ 6.5×10 ⁻⁵ | 8.6×10 ⁻⁵ 1.4×10 ⁻⁵ 2.1×10 ⁻⁵ | 99.94% 99.88% 75.00% | 全ヨウ素 99.8% | 81.1% | 84.9% | 97.7% | 79.10% 67.69% | 全ヨウ素 73.5% | 99.97% 91.92% | 全ヨウ素 99.94% | 多層式 5.607 g 中性能 1.689 g HEPA 0.4487 活性炭 < ケージ 0.1859 g 計) 7.931 g |

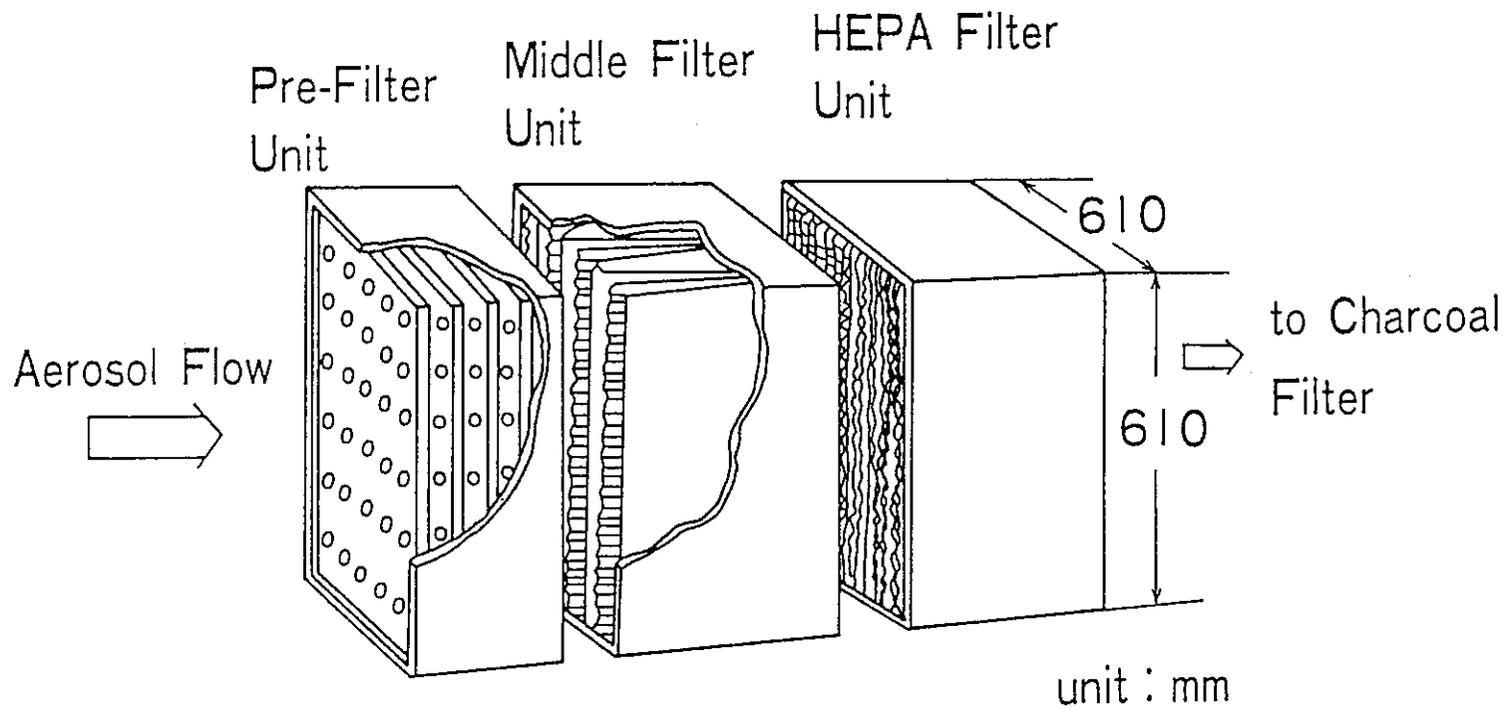
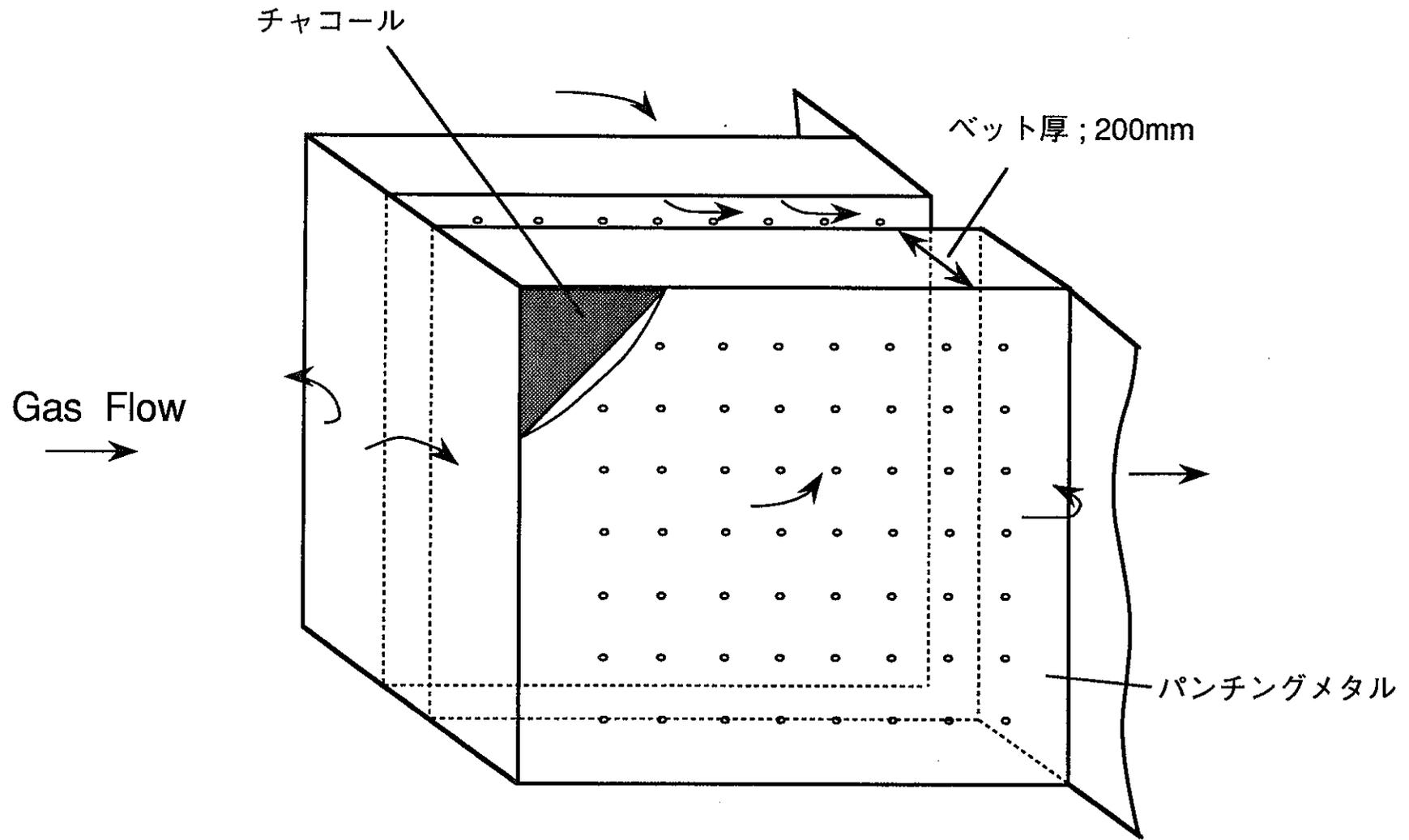


図 I. 「もんじゅ」非常用フィルターの構成



図Ⅱ. チャコールフィルター

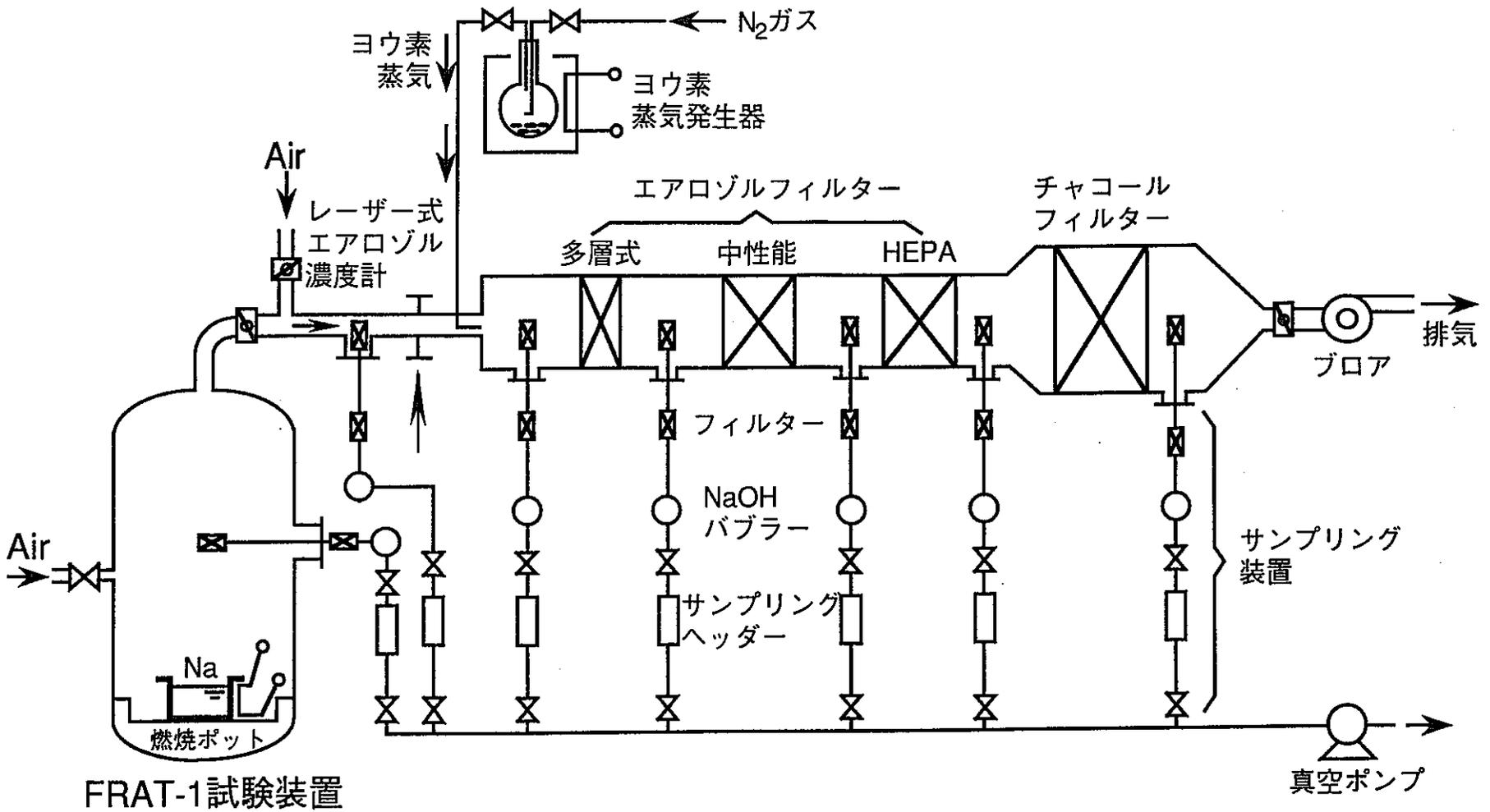
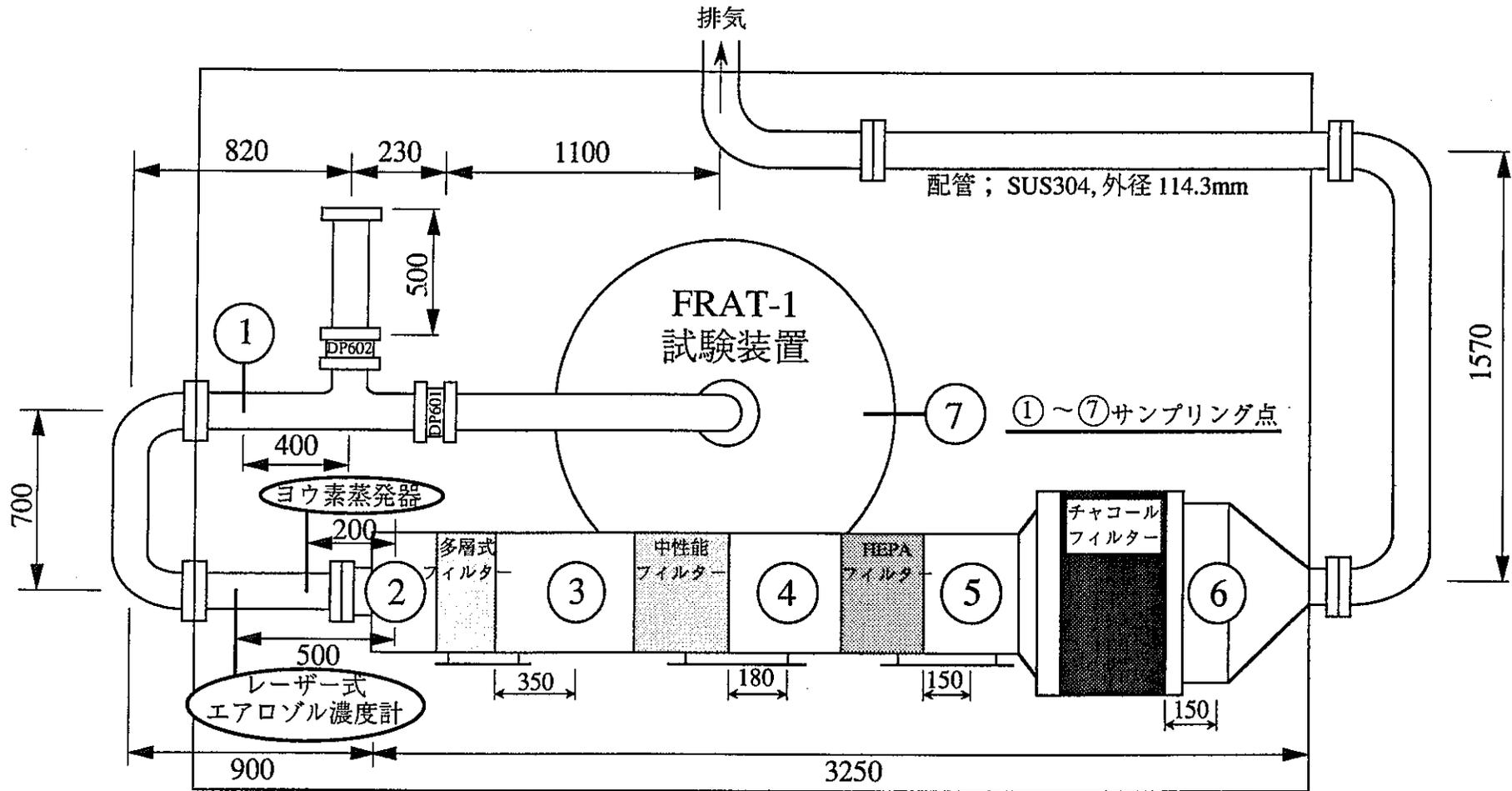


図1.1 ヨウ素フィルター試験装置フローシート



単位；mm

図1.2 ヨウ素フィルター試験装置

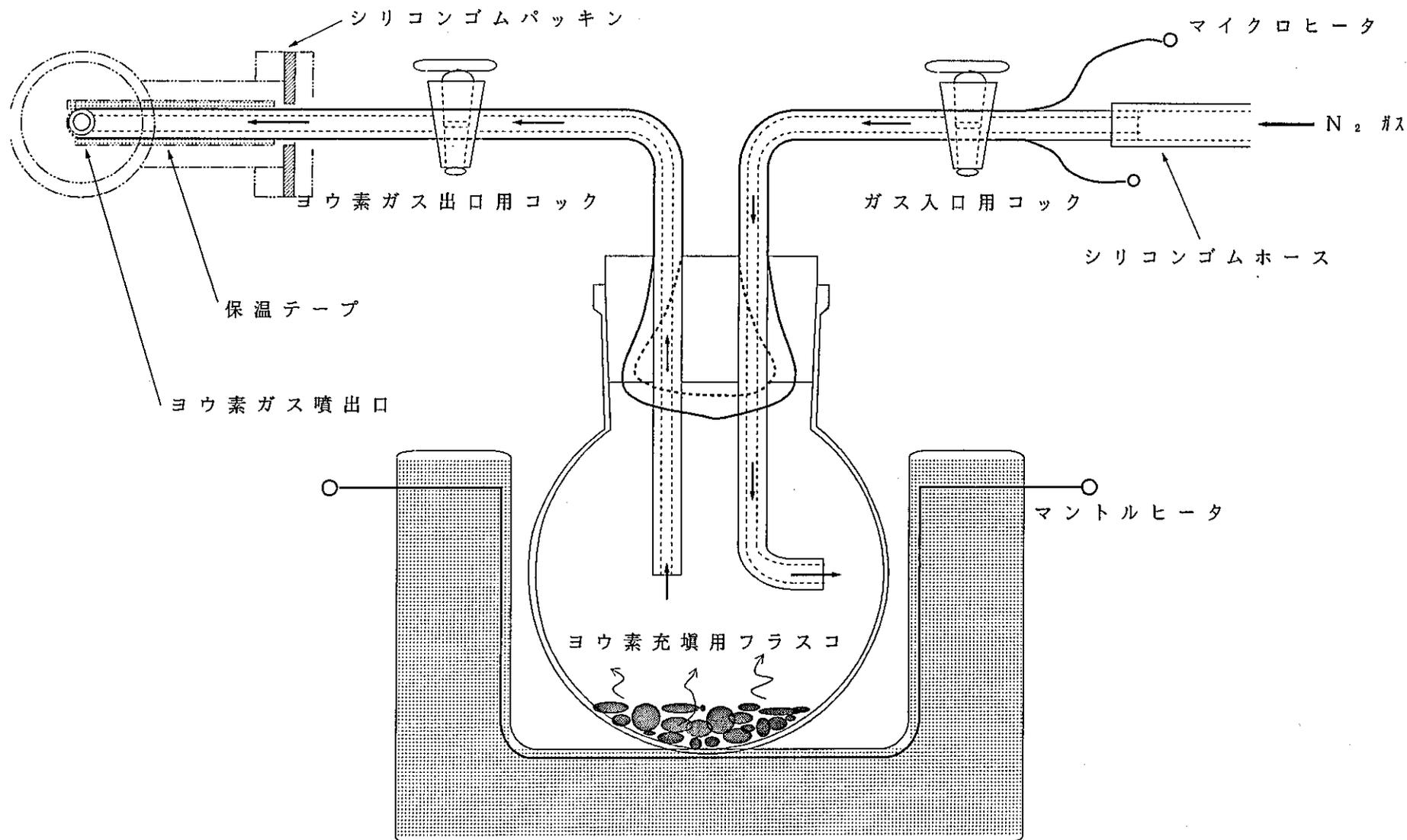
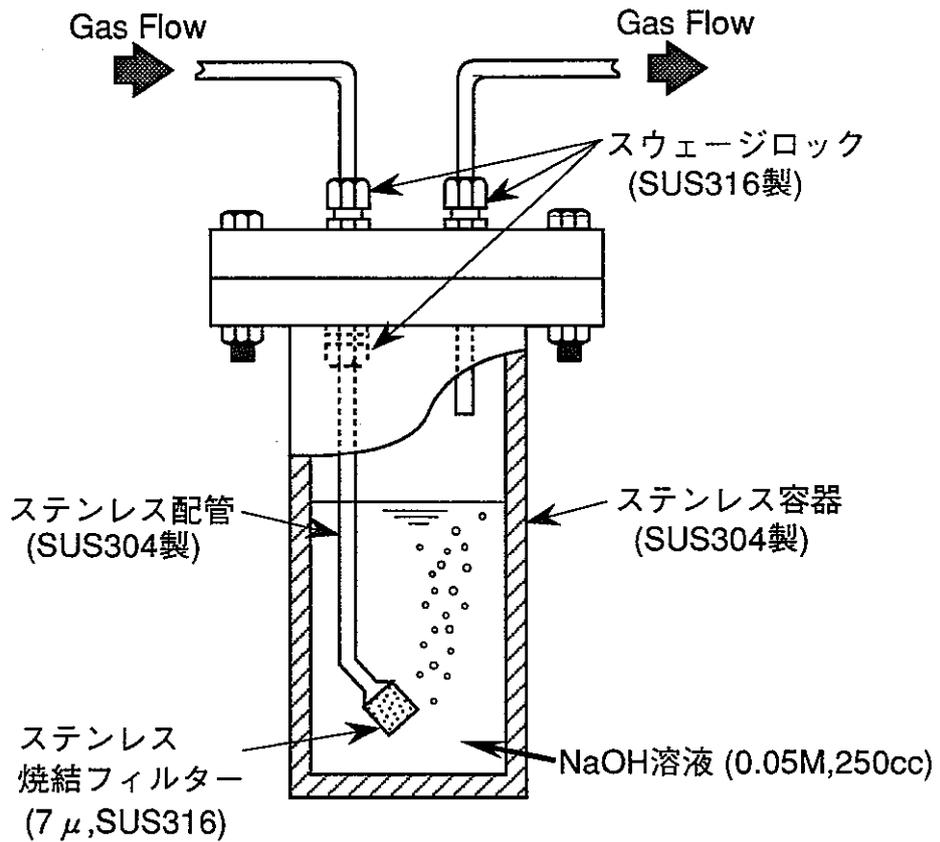
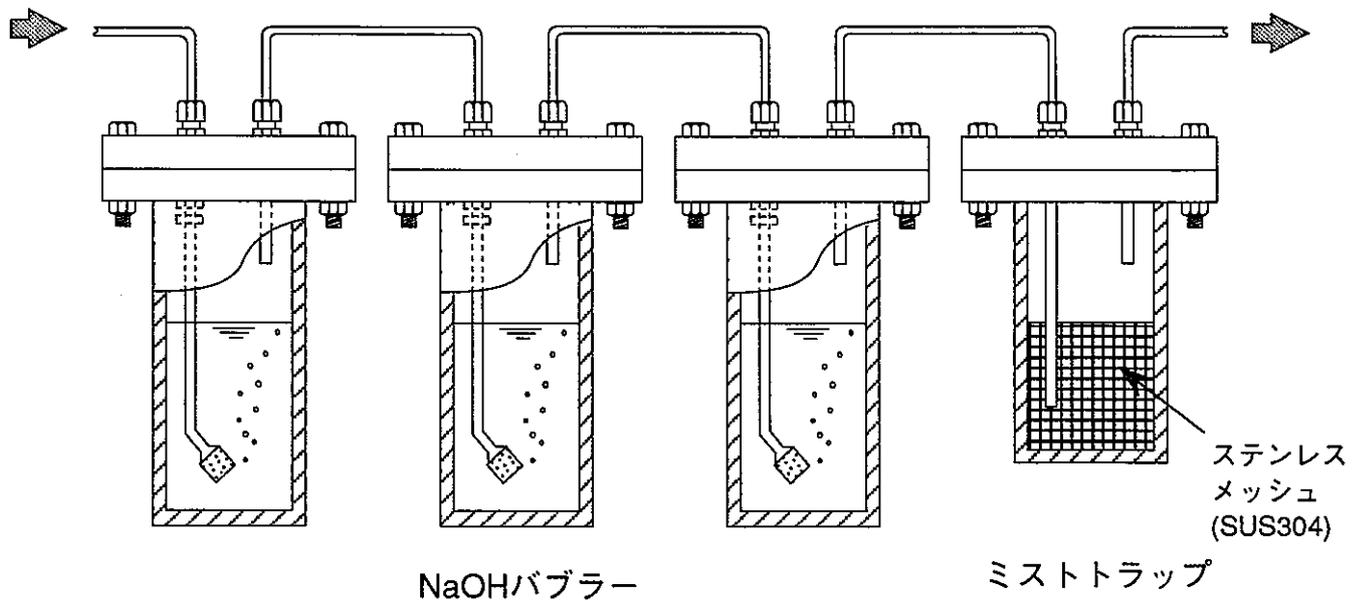


図 1.3 ヨウ素蒸気発生器



NaOHバブラー単体図



ガス状ヨウ素サンプラー組図

図1.4 ガス状ヨウ素サンプラー

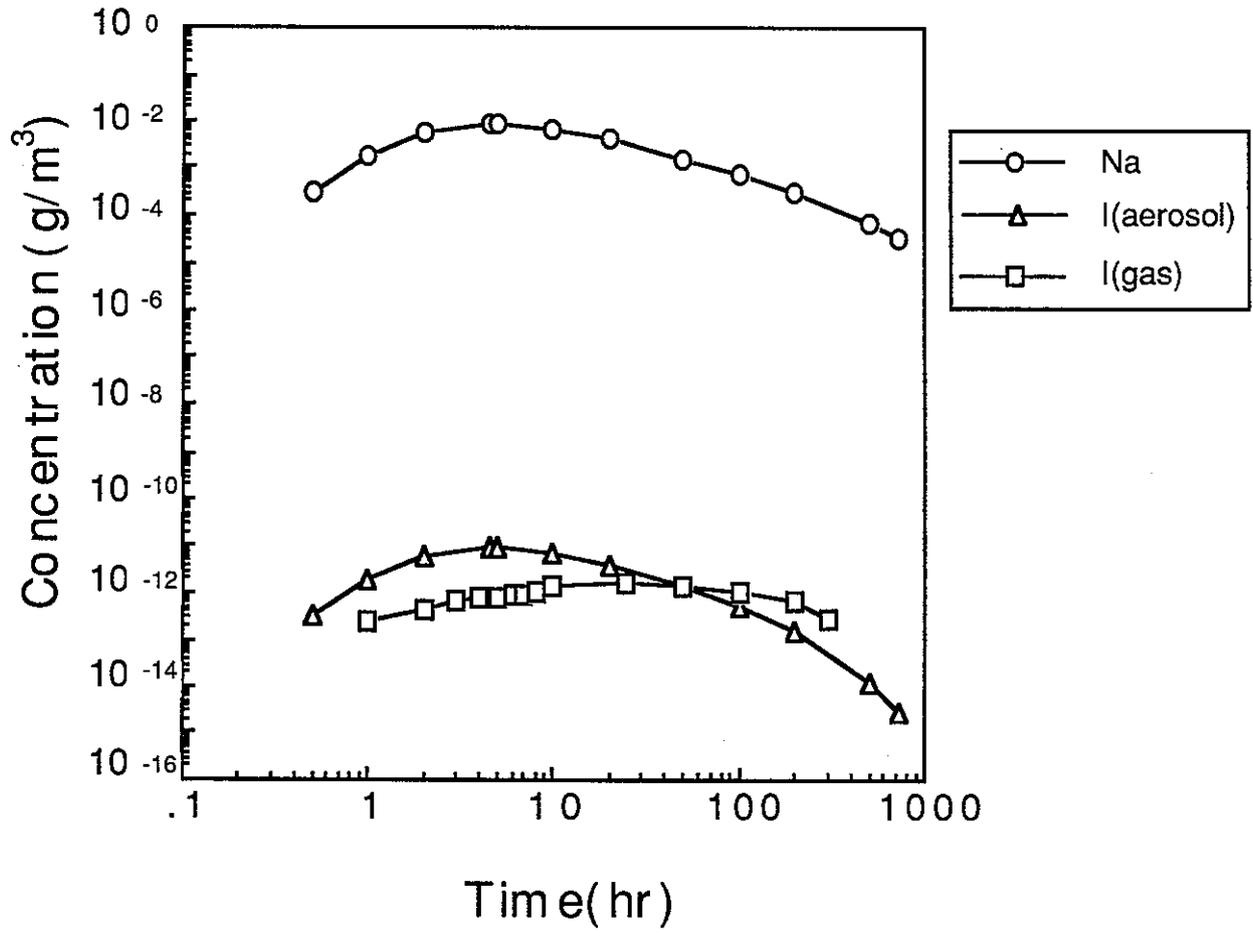


図1.5 一次冷却材漏洩事故時（コールドレグ破損）
 アニュラス部エアロゾル濃度(Na,I)とガス状
 ヨウ素濃度の時間変化
 -ヨウ素は放射性ヨウ素のみ-

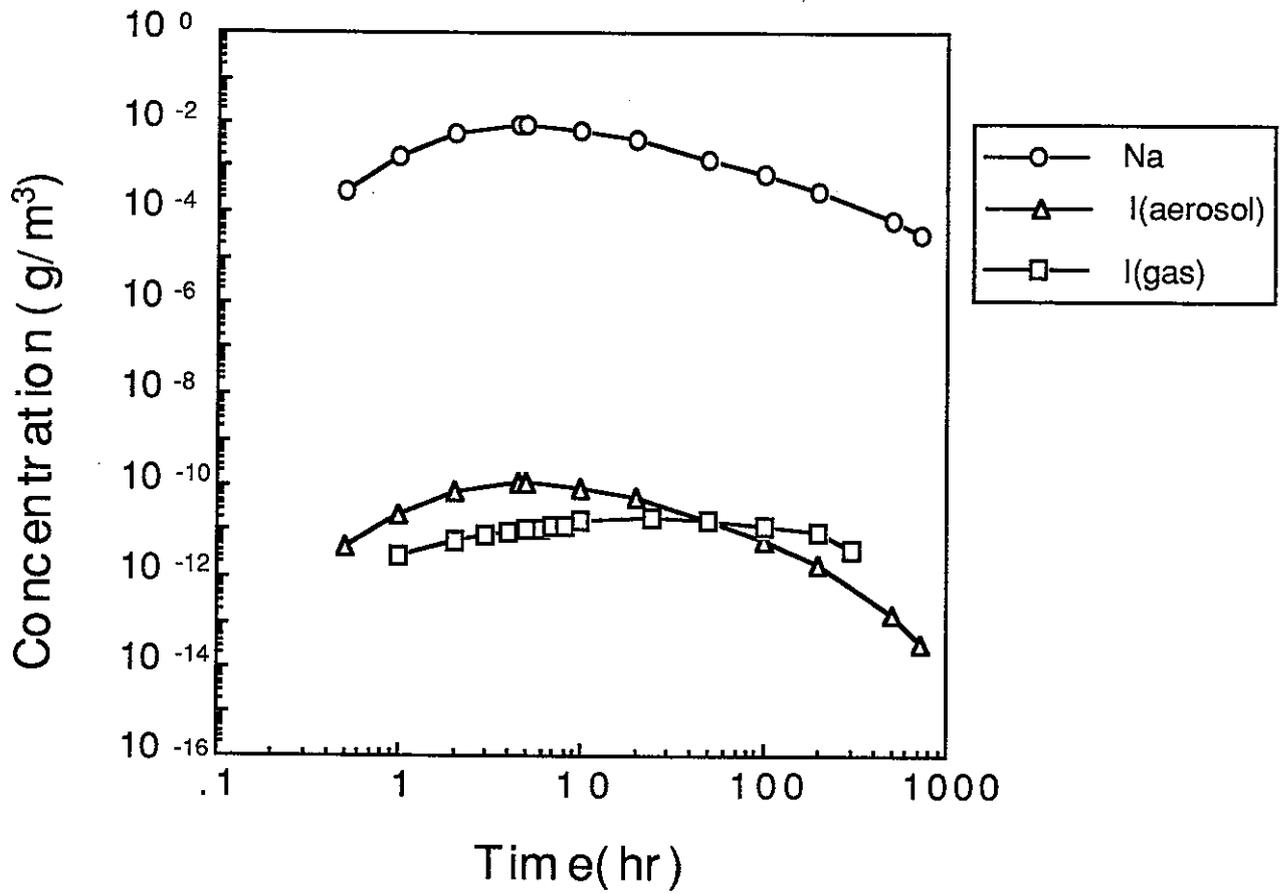


図1.6 一次冷却材漏洩事故時（コールドレグ破損）
 アニュラス部エアロゾル濃度(Na,I)とガス状
 ヨウ素濃度の時間変化
 -ヨウ素は放射性、非放射性ヨウ素全て-

試験条件；ヨウ素蒸気注入

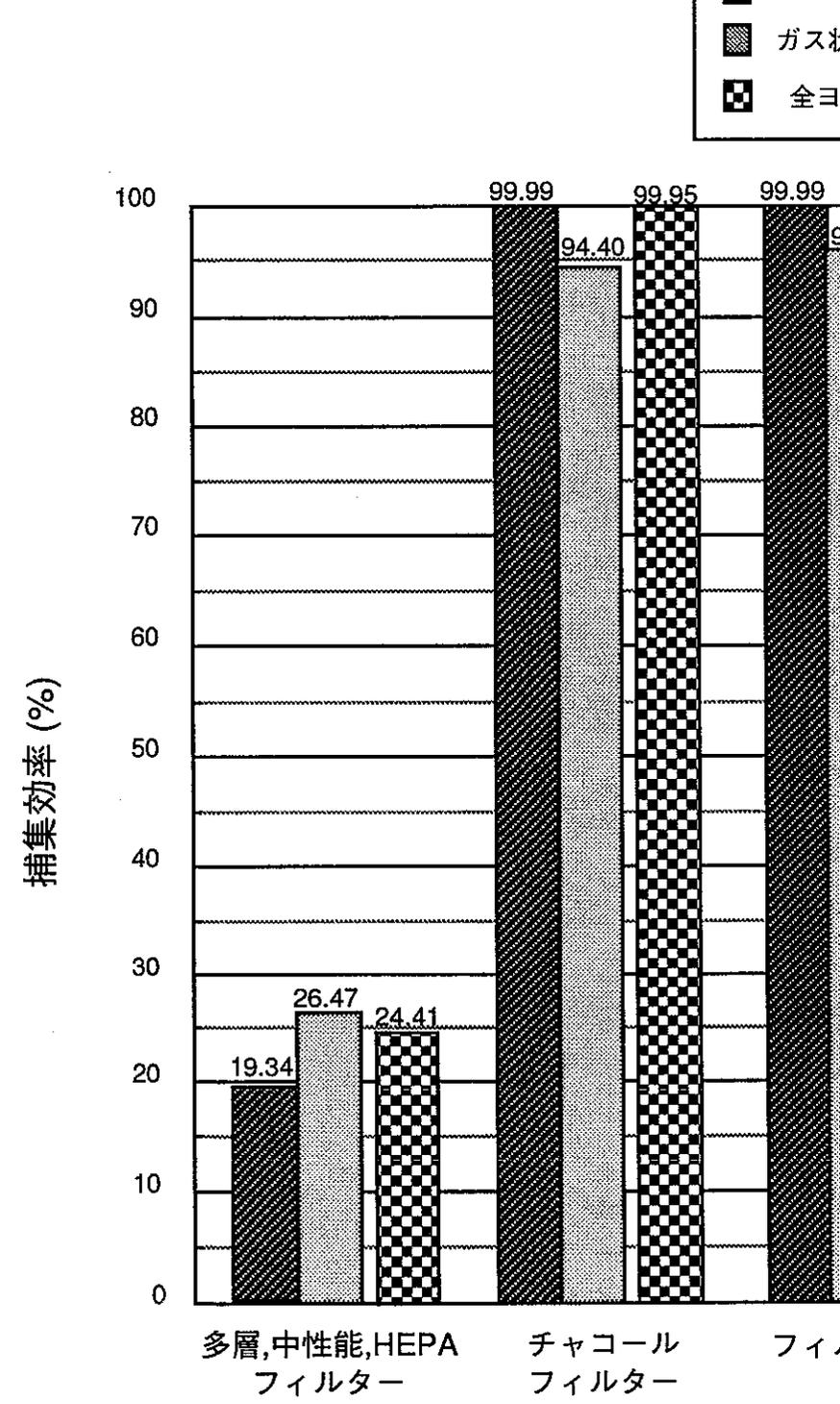
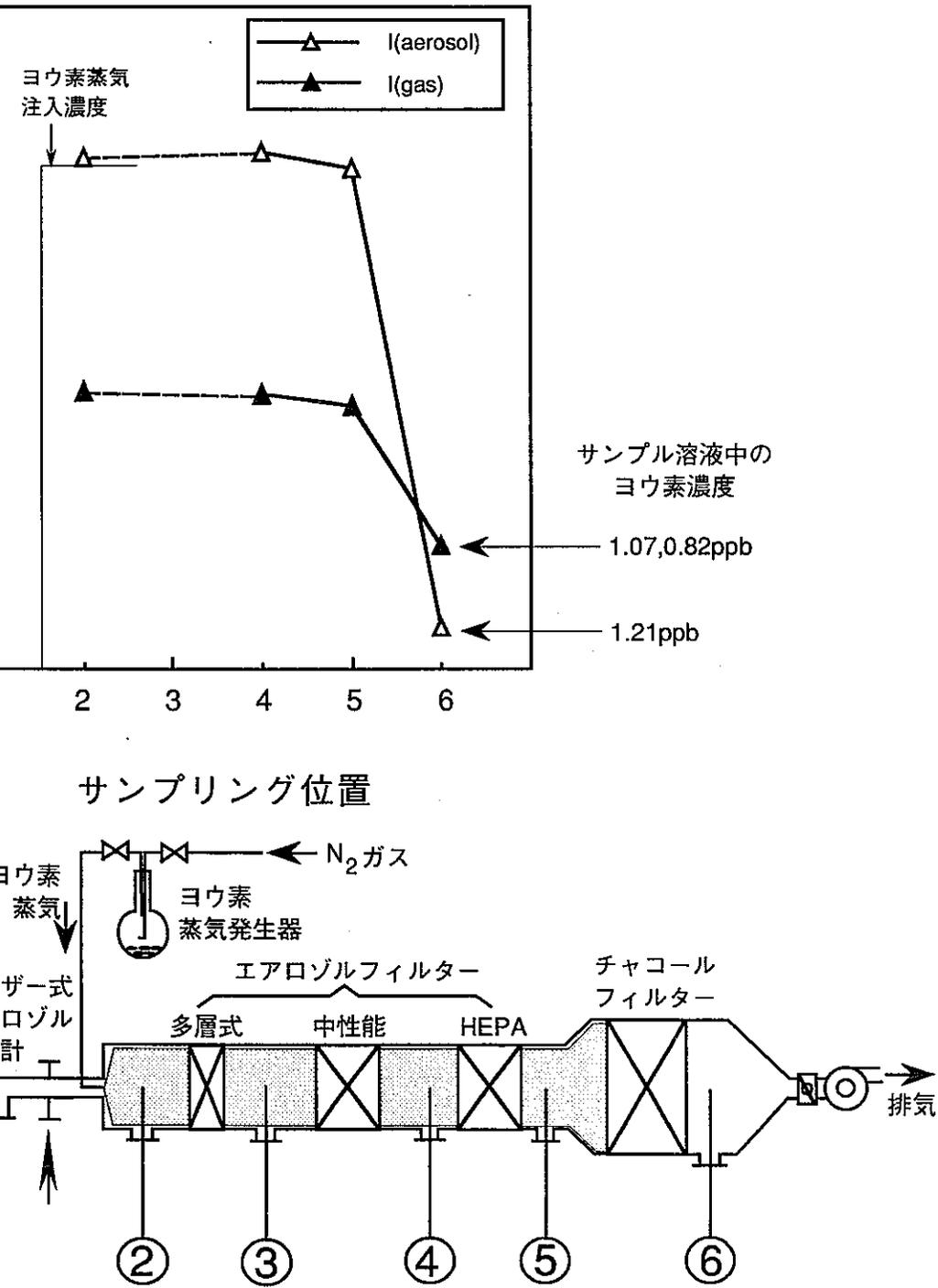


図2.1 フィルター各部における捕集効率

試験条件 ; Na 燃焼, ヨウ素蒸気注入

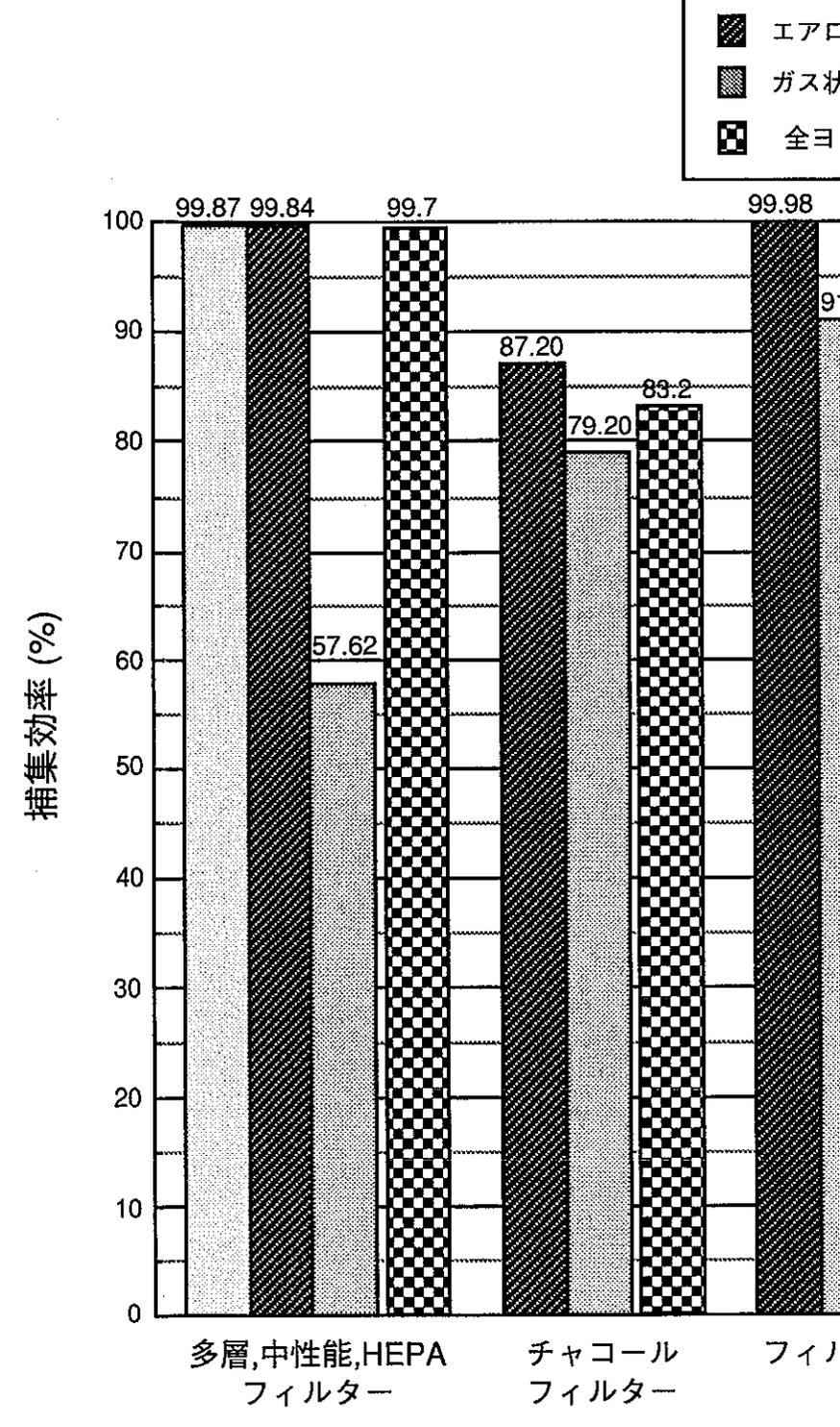
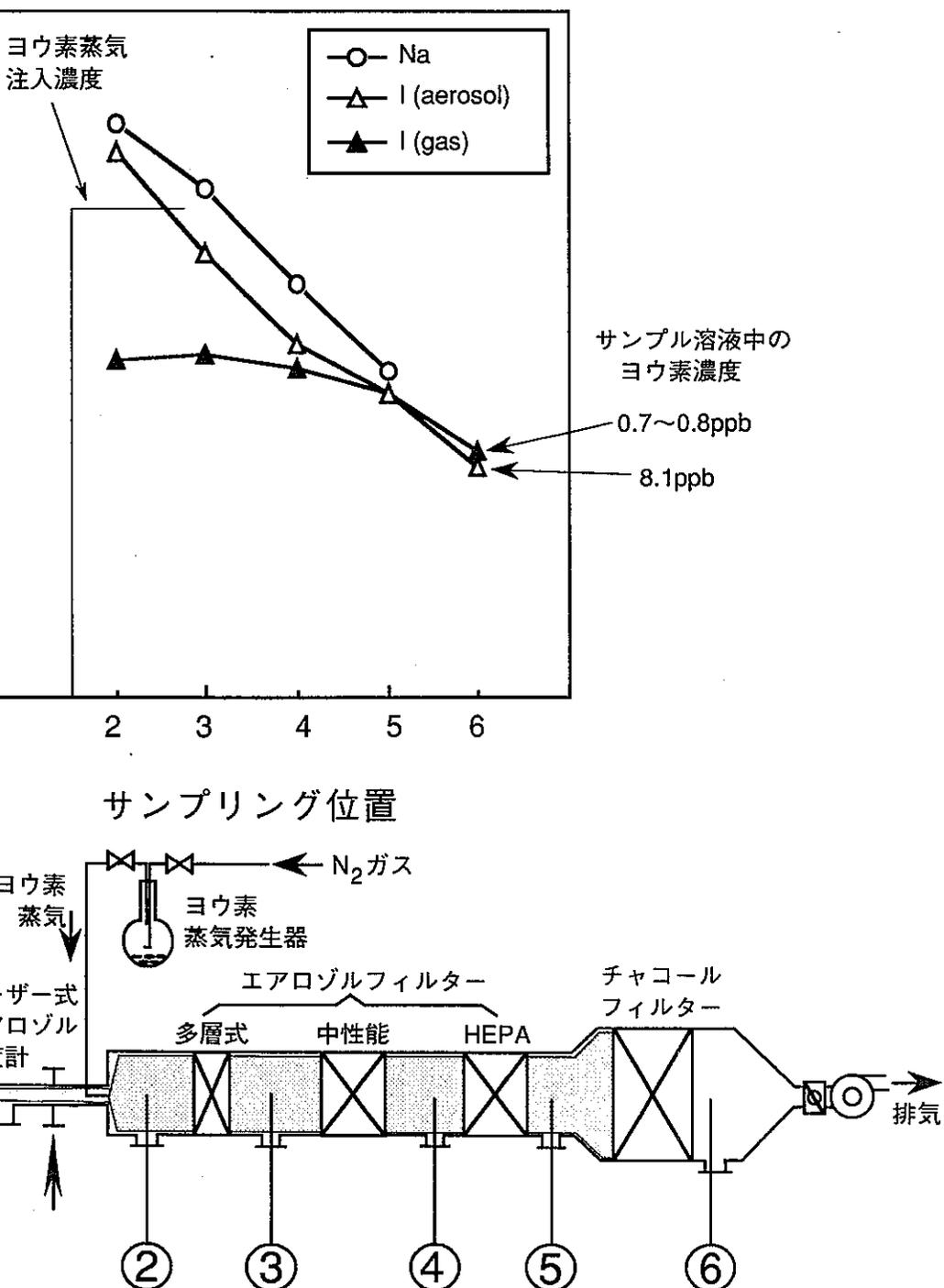
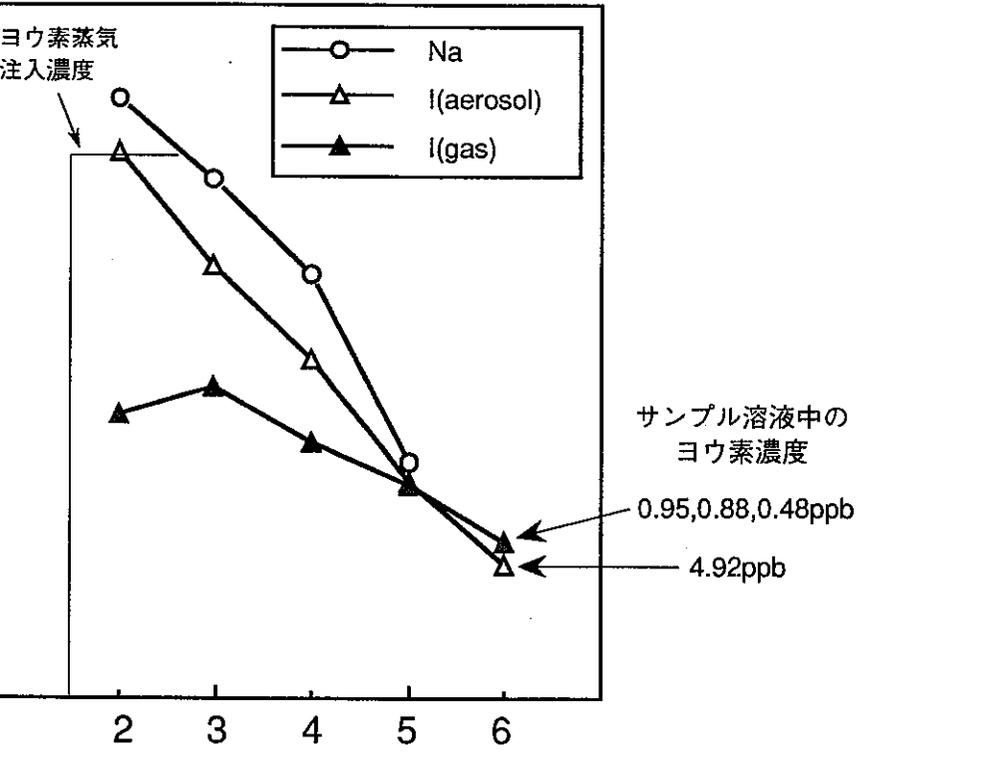


図2.2 フィルター各部における捕集効率



サンプリング位置

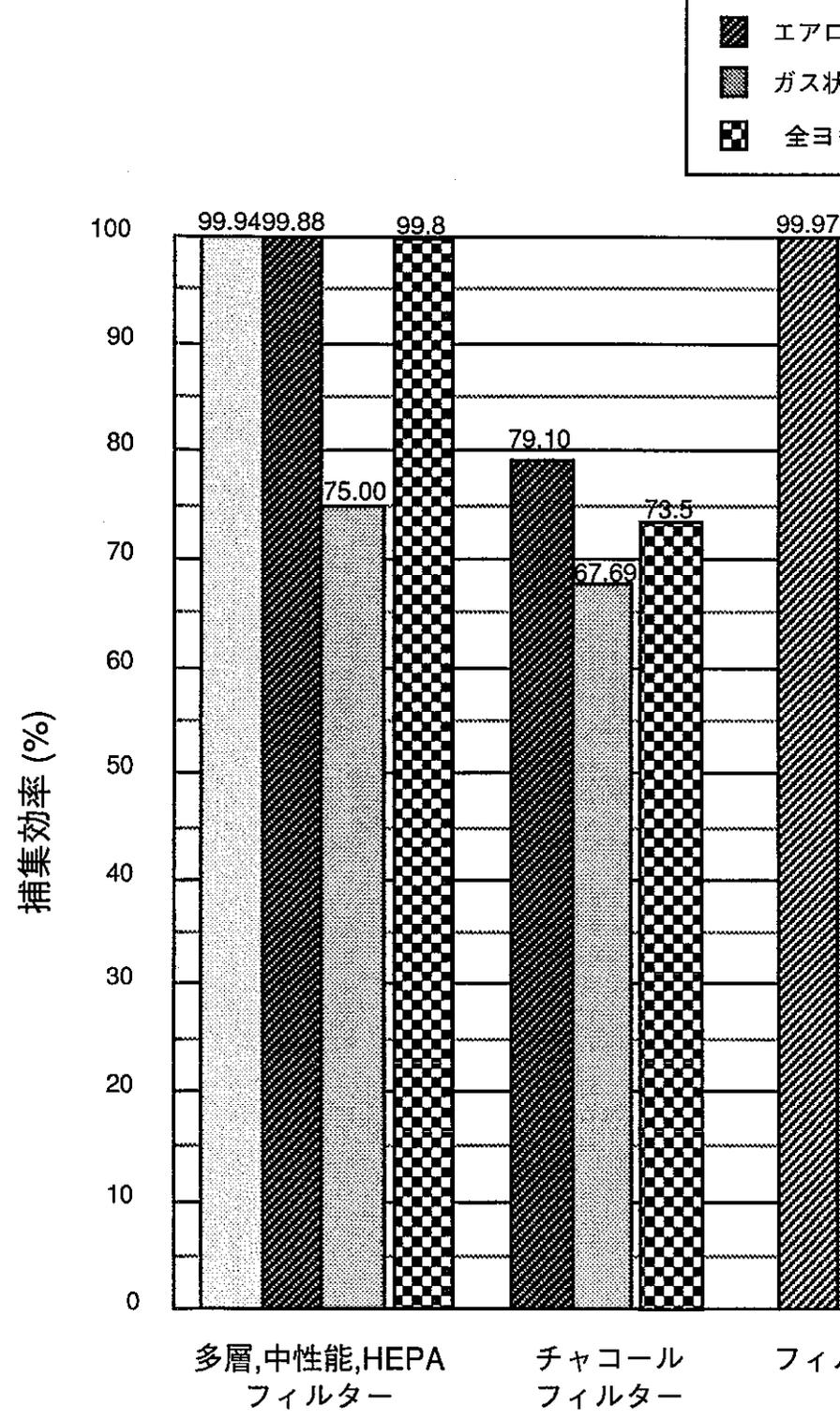
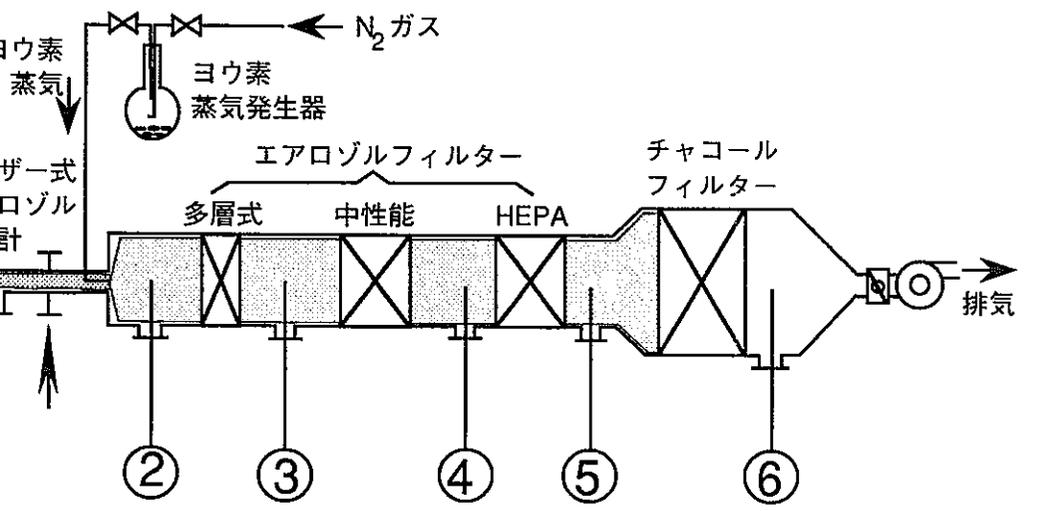
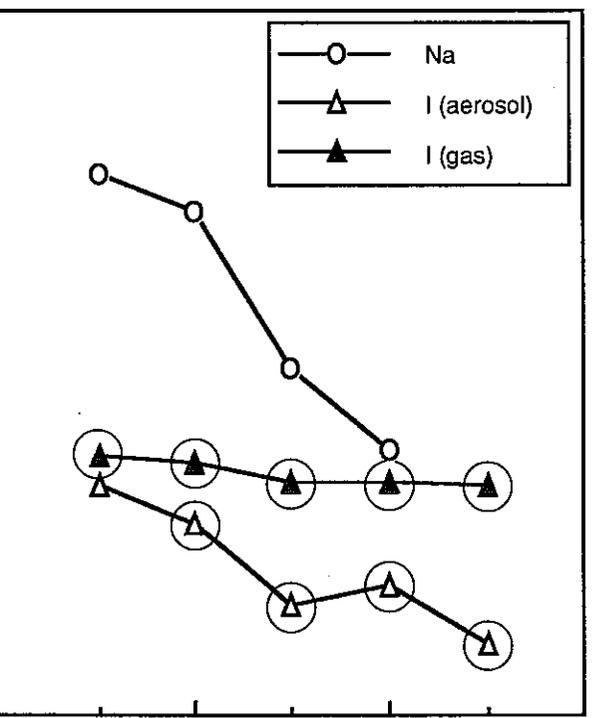


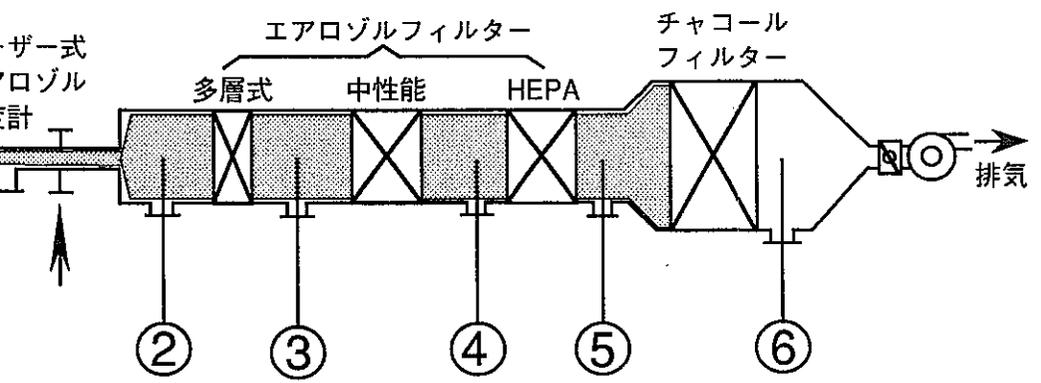
図2.2 ヲールフィルタ各部における

試験条件; Na+NaI燃焼

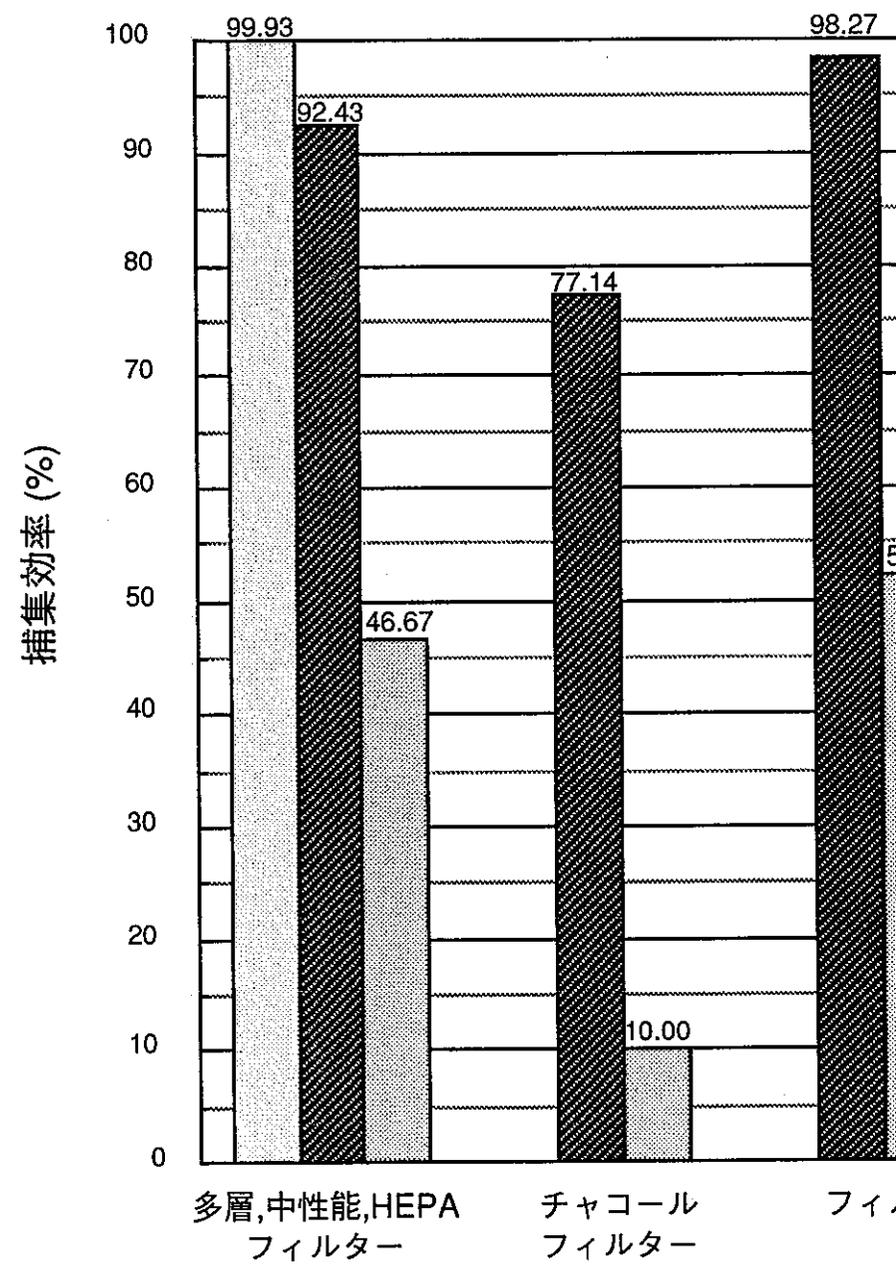


○で囲んだものは
バックグラウンド
データ程度

サンプリング位置



エアロ
 ガス
 全ヨ



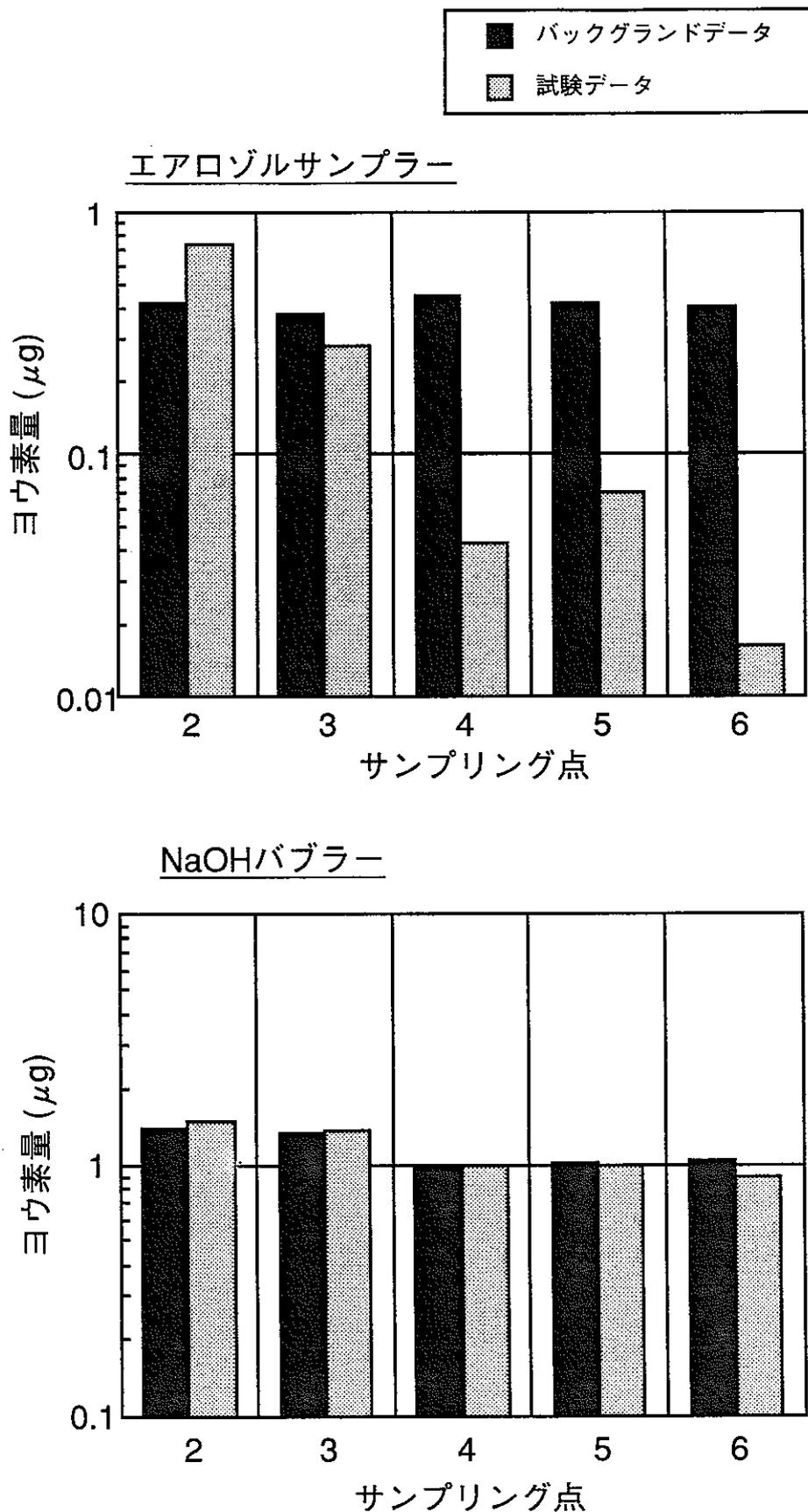


図2.5 各サンプラーに捕集されたヨウ素量とバックグラウンドデータの比較 ; F6-9(2)試験

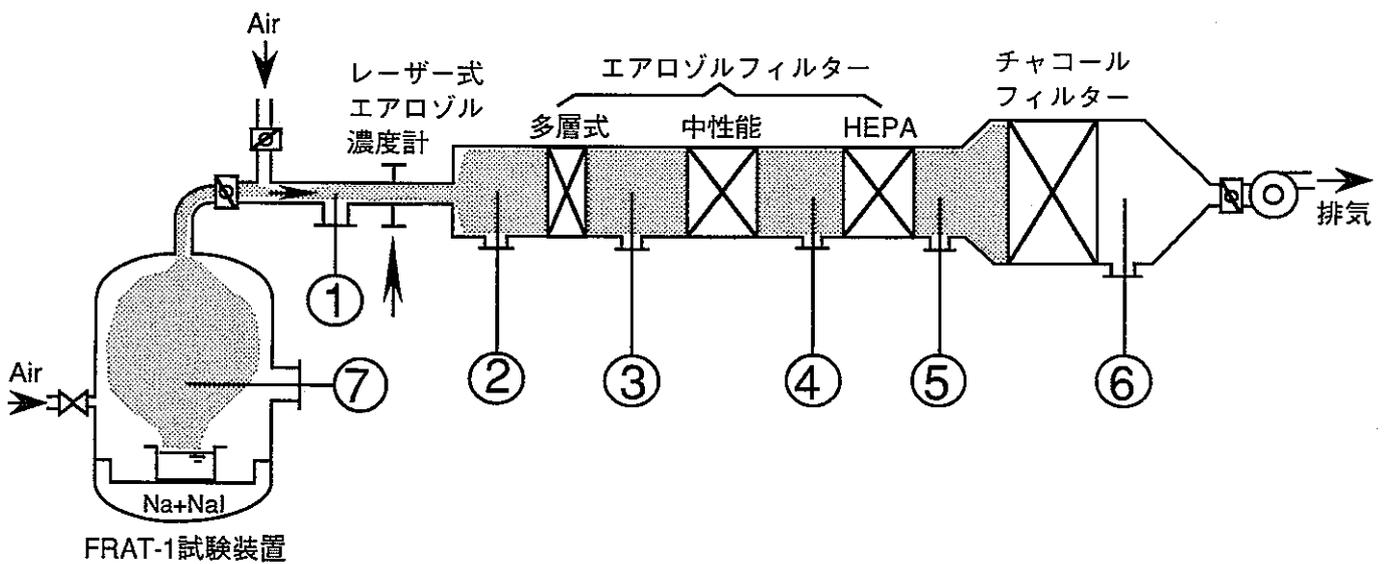
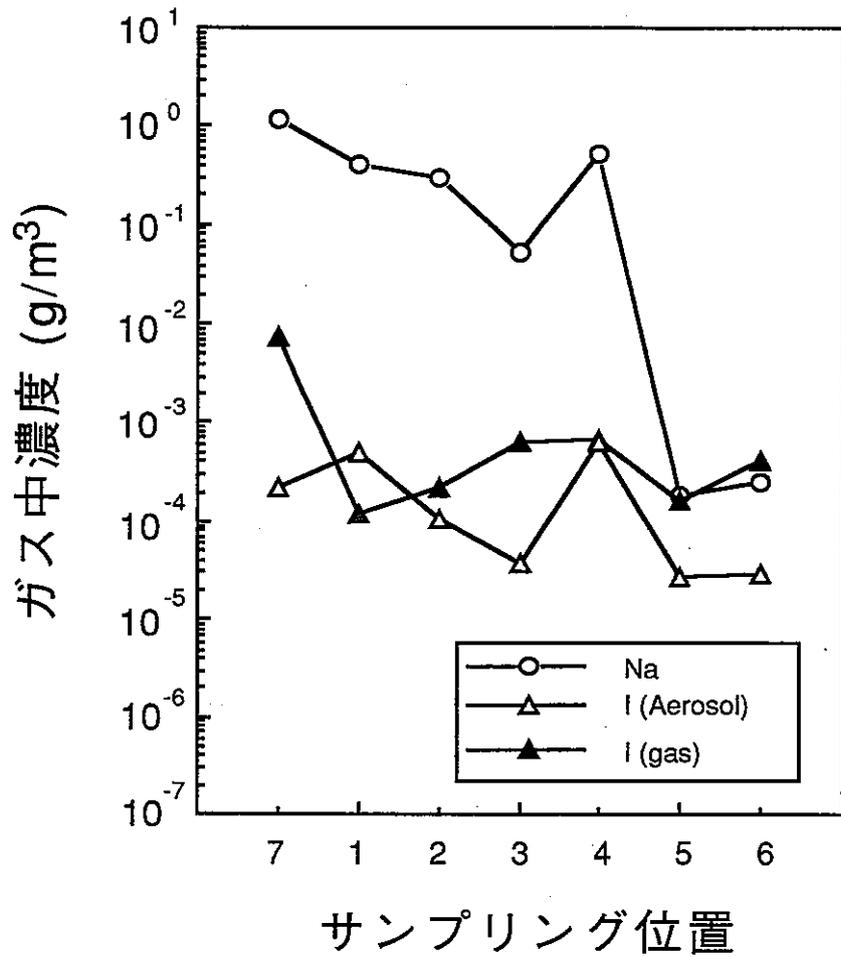


図2.6 F6-7(1)試験結果

試験条件 ; Na+NaI 燃焼

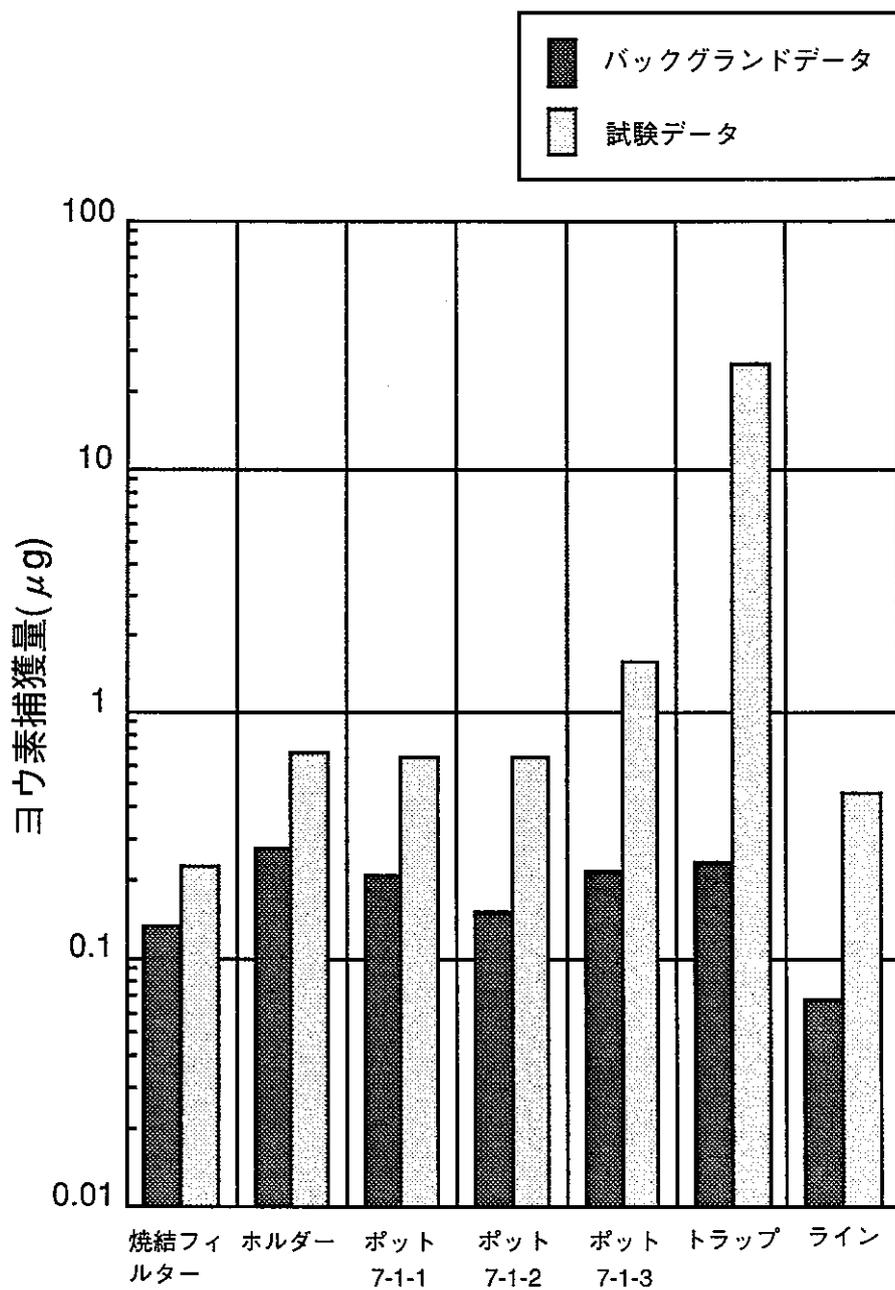
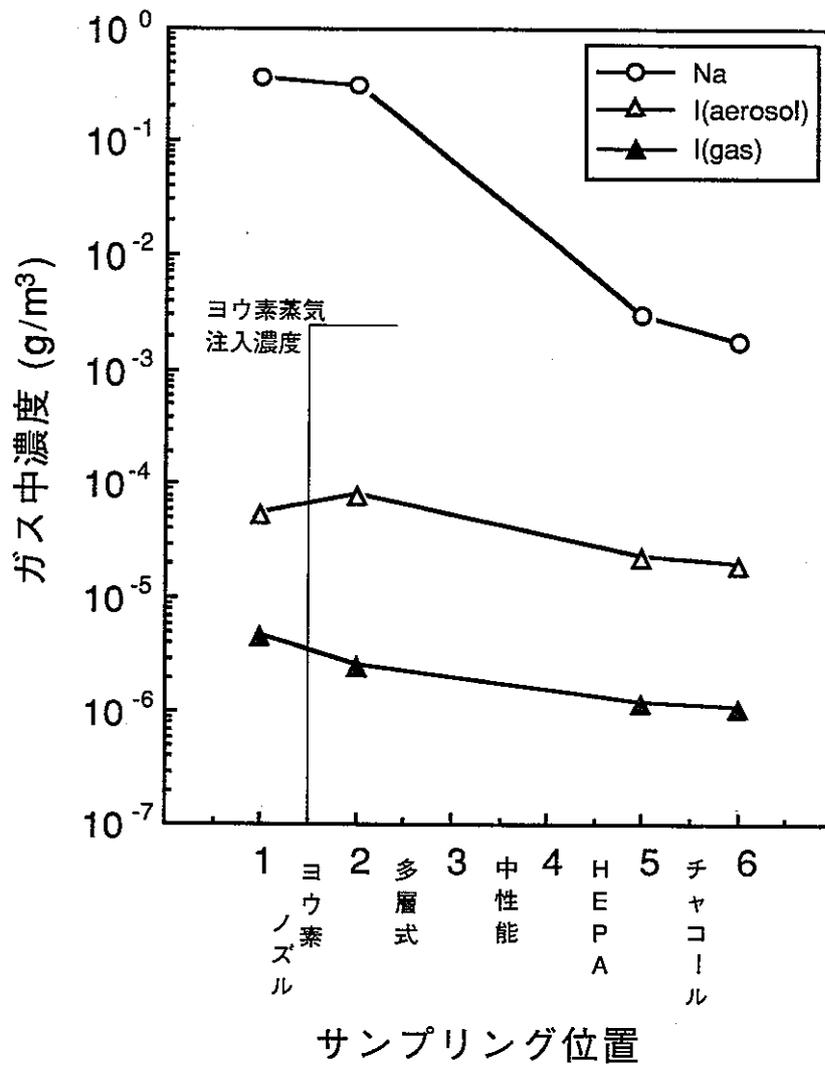
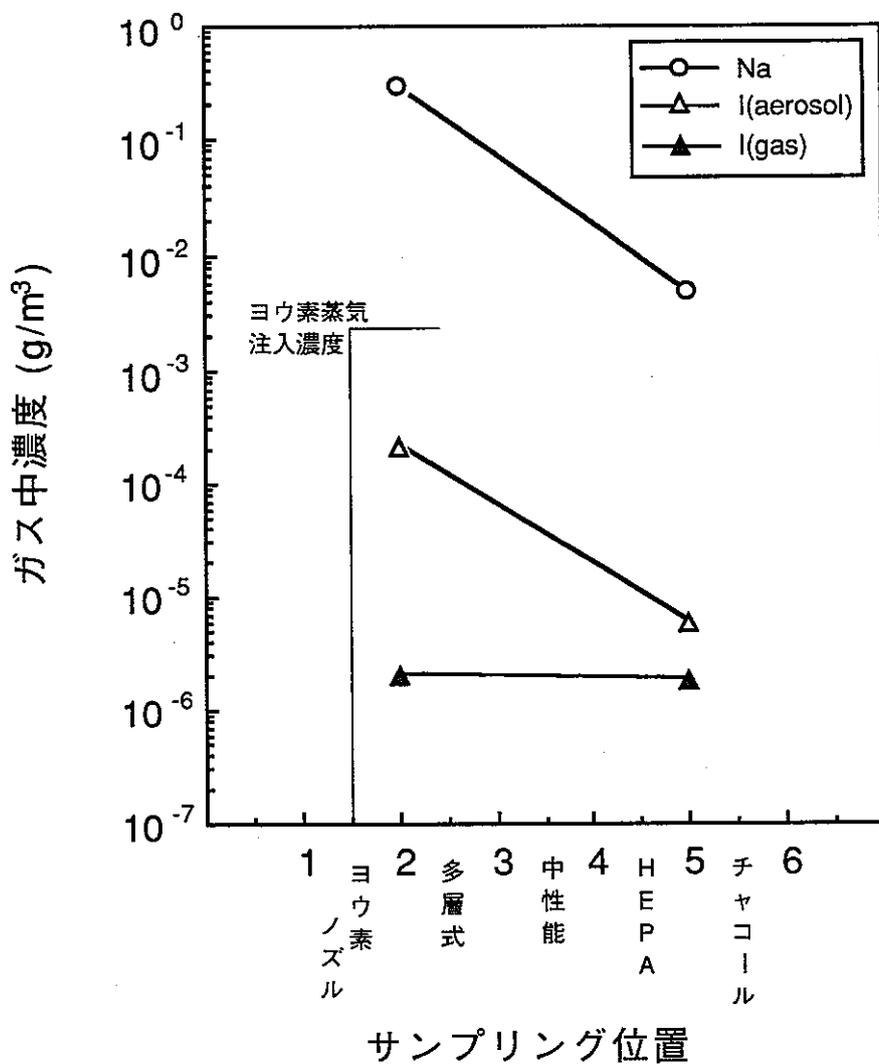


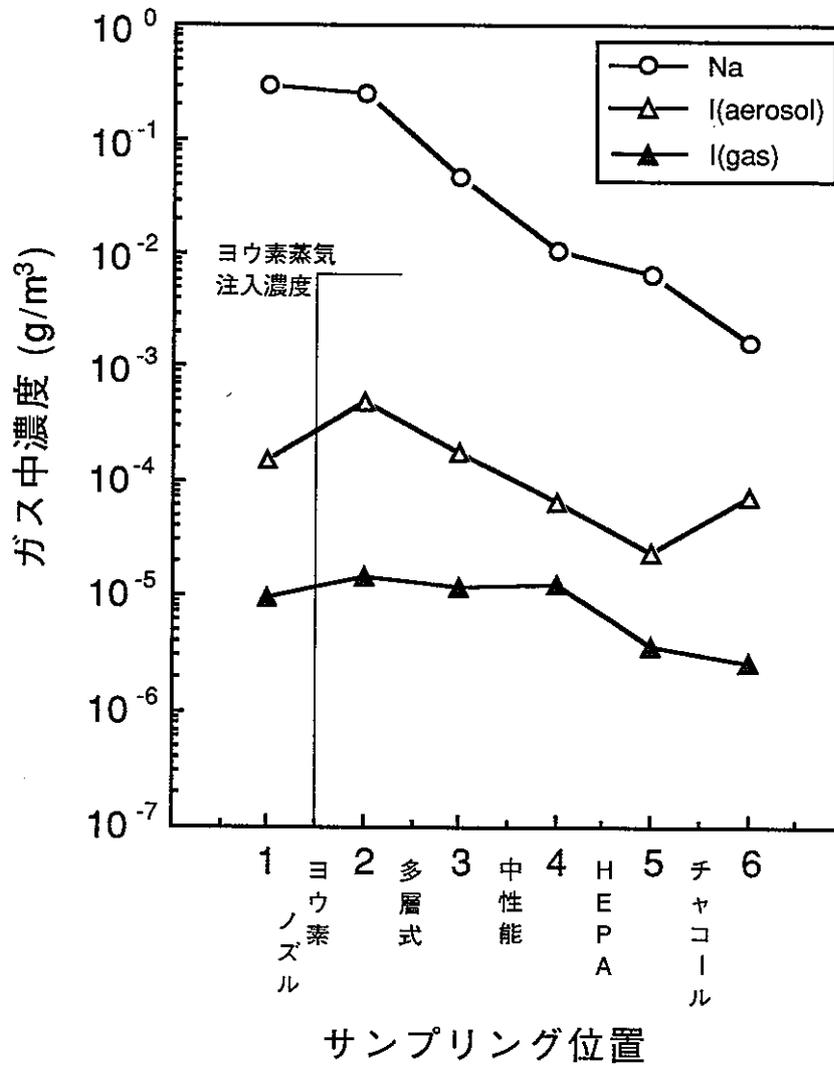
図2.7 サンプラー各部に捕獲されたヨウ素量とバックグラウンドデータの比較



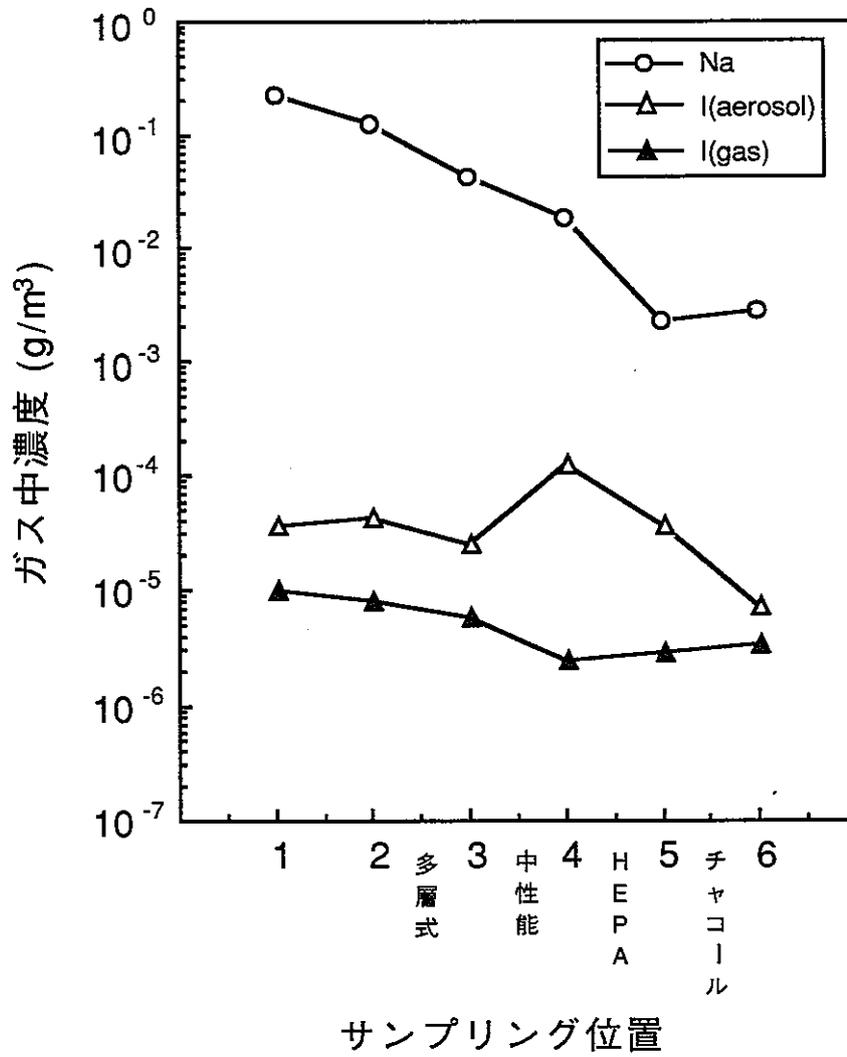
図A.1 F6-1試験サンプル分析結果(1)
(Na+NaI燃焼,ヨウ素蒸気注入)



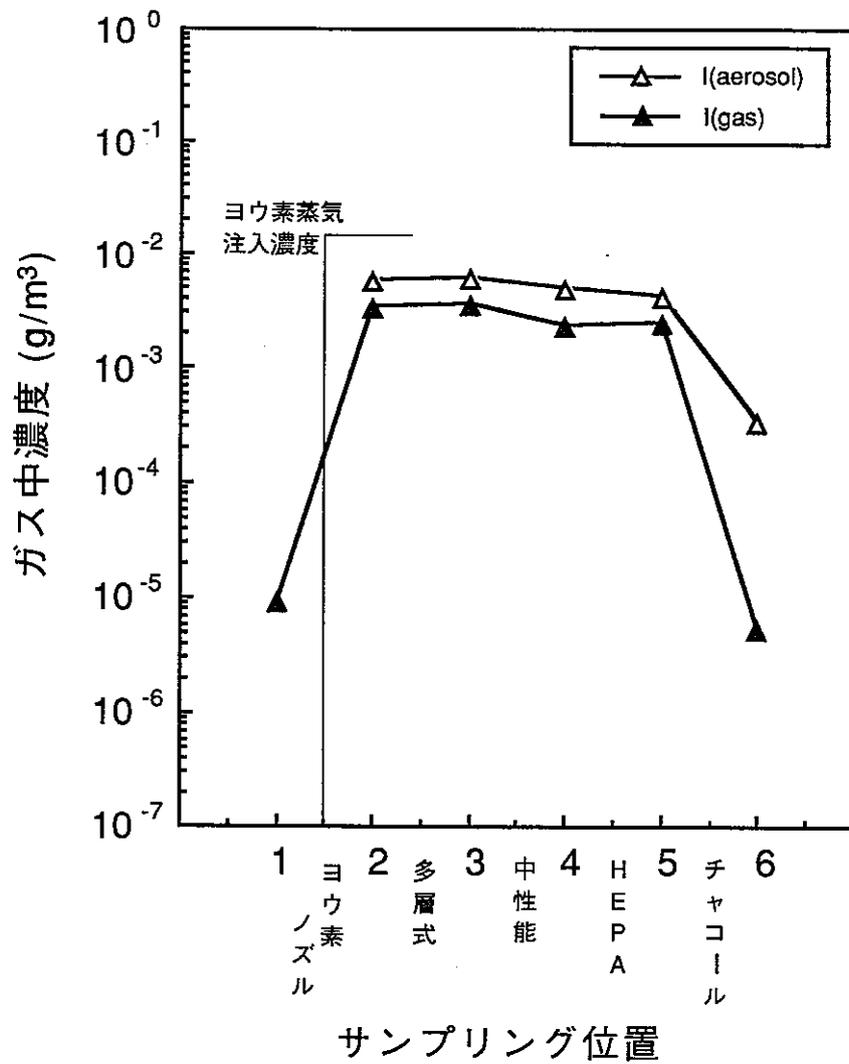
図A.2 F6-1試験サンプル分析結果(2)
(Na+NaI燃焼,ヨウ素蒸気注入)



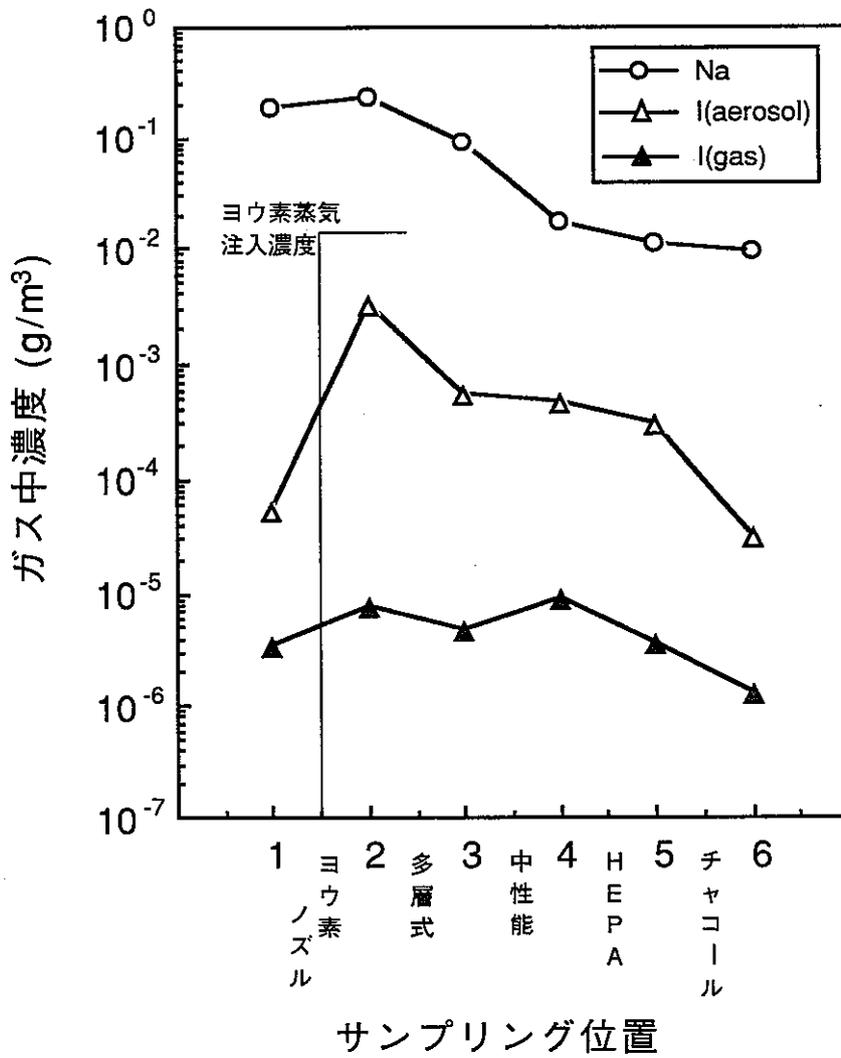
図A.3 F6-2試験サンプル分析結果(1)
(Na+NaI燃焼,ヨウ素蒸気注入)



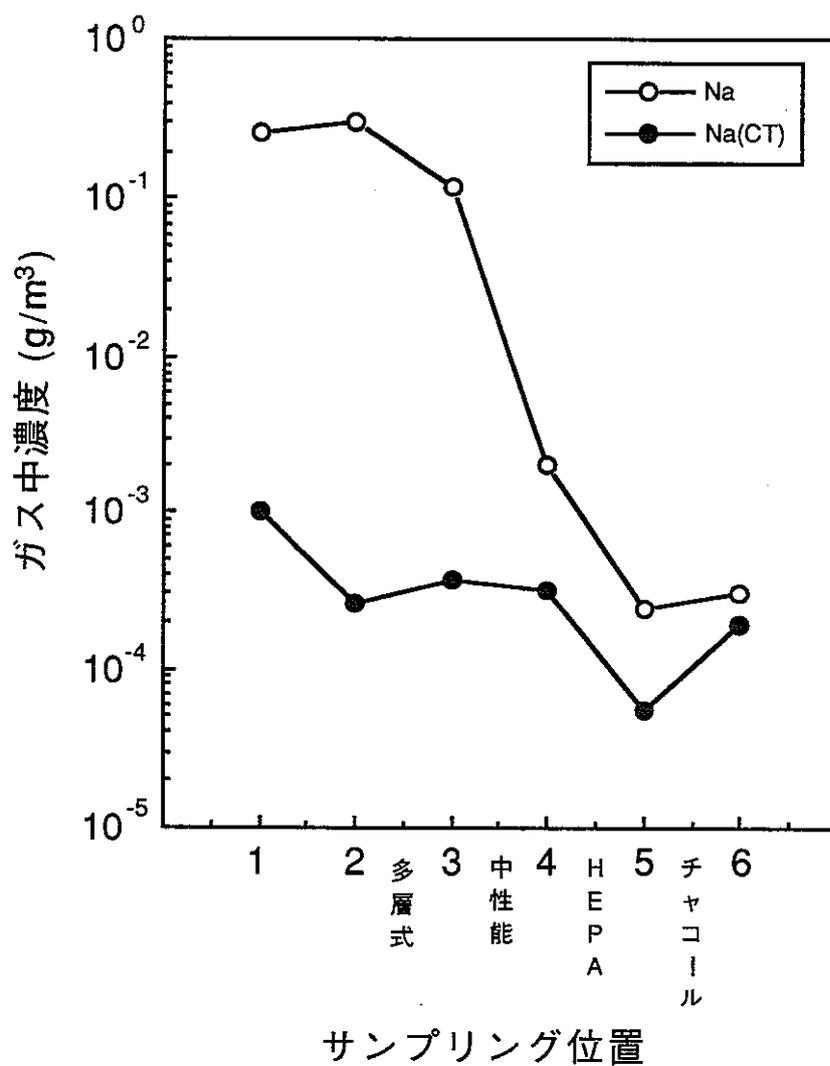
図A.4 F6-2試験サンプル分析結果(2)
(Na+NaI燃焼のみ)



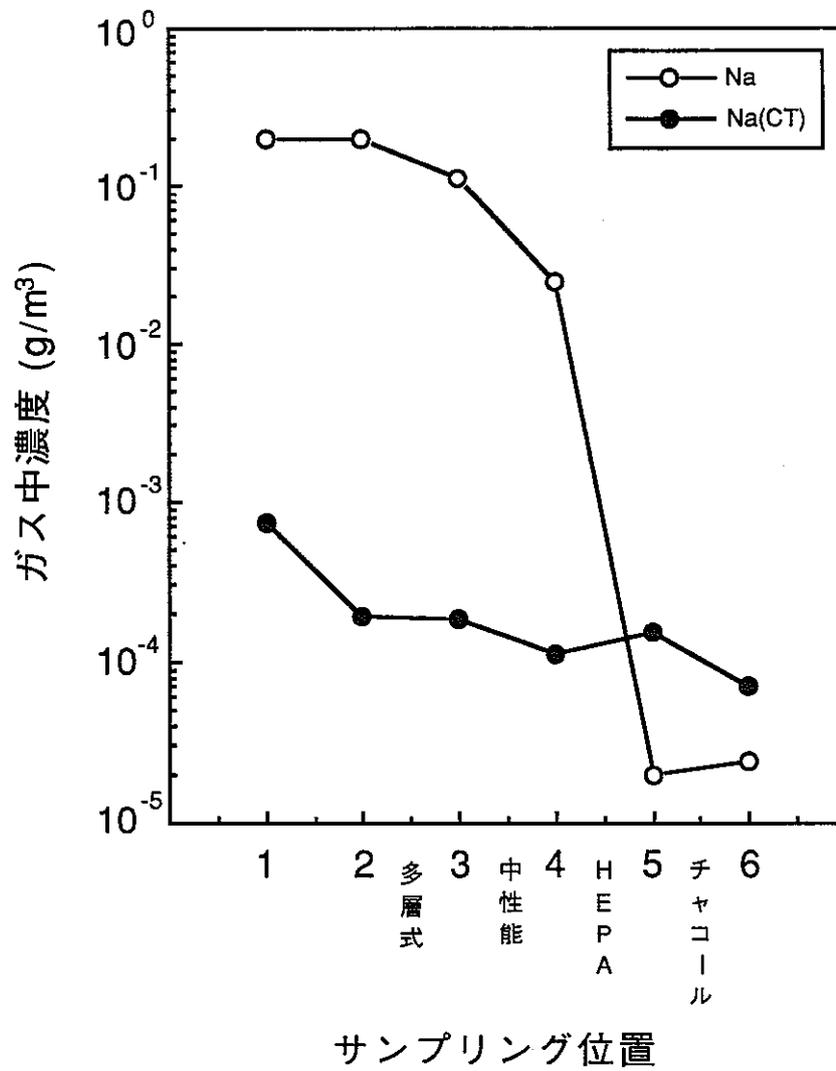
図A.5 F6-3試験サンプル分析結果
(ヨウ素蒸気注入のみ)



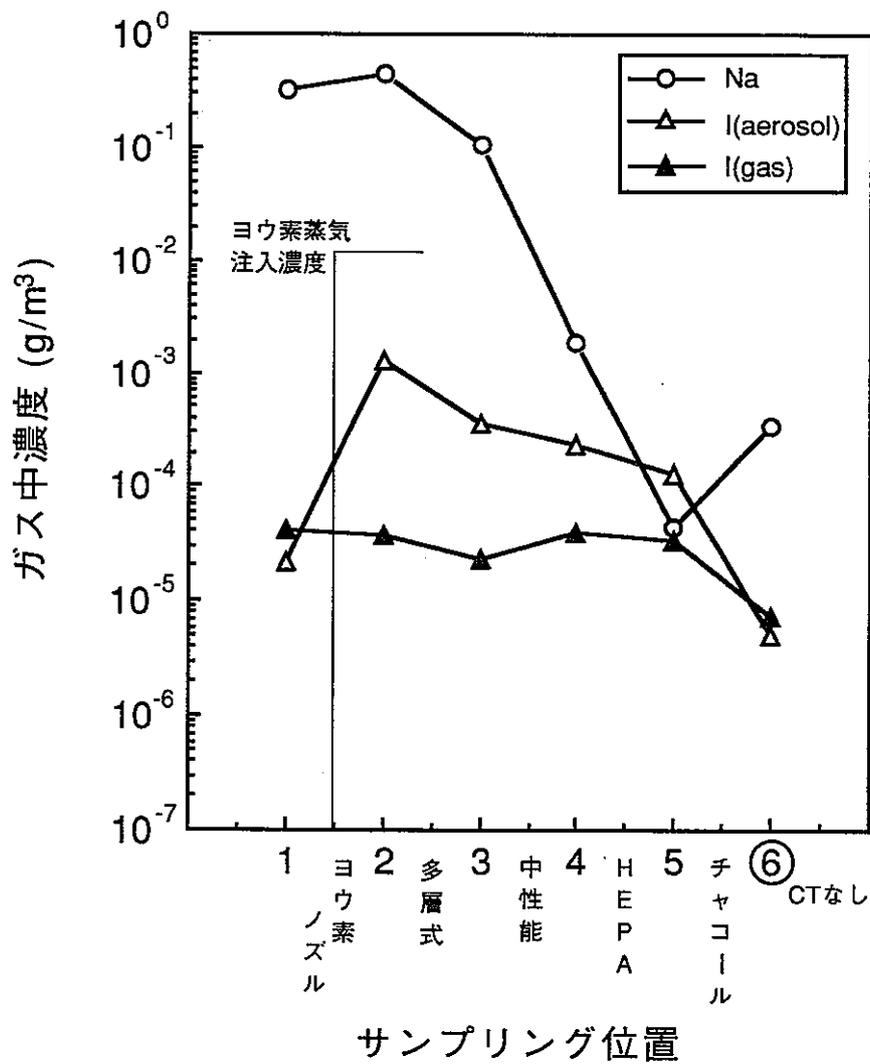
図A.6 F6-4試験サンプル分析結果 (Na燃焼,ヨウ素蒸気注入)



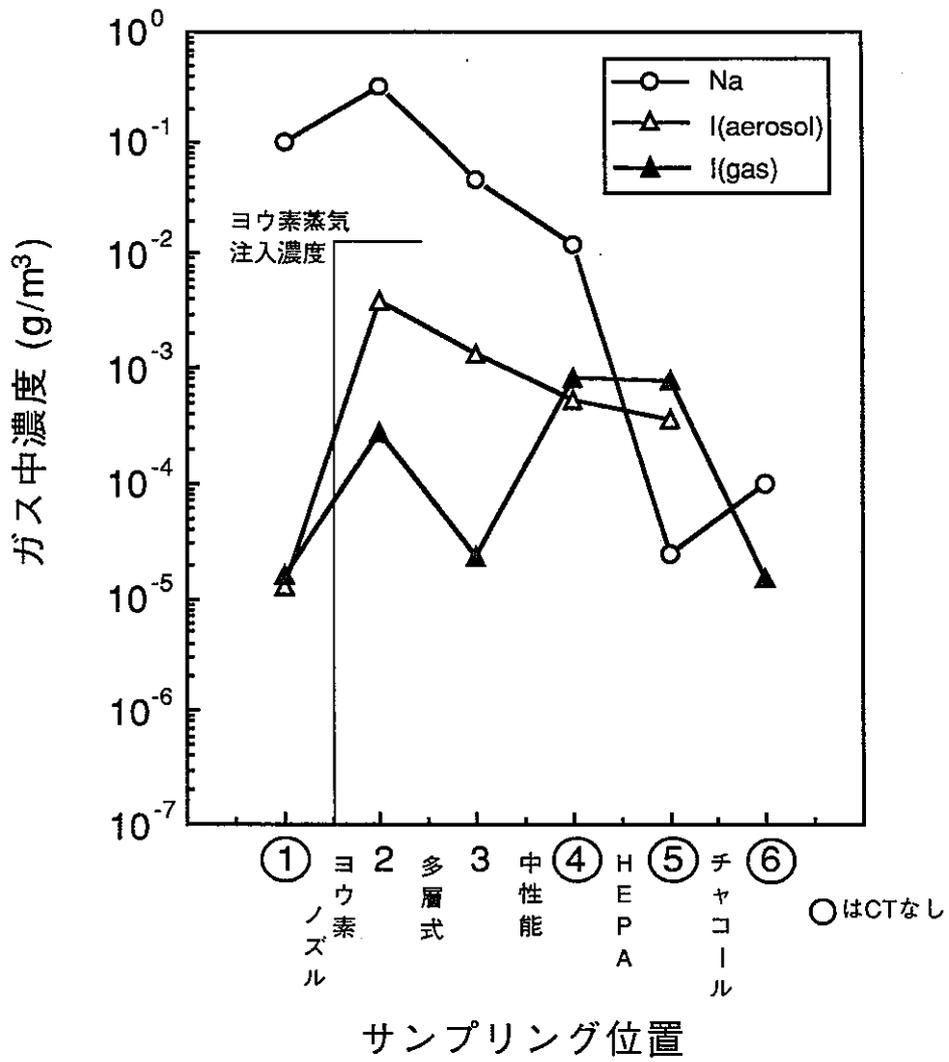
図A.7 F6-5試験サンプル分析結果(1)
(Na燃焼のみ)



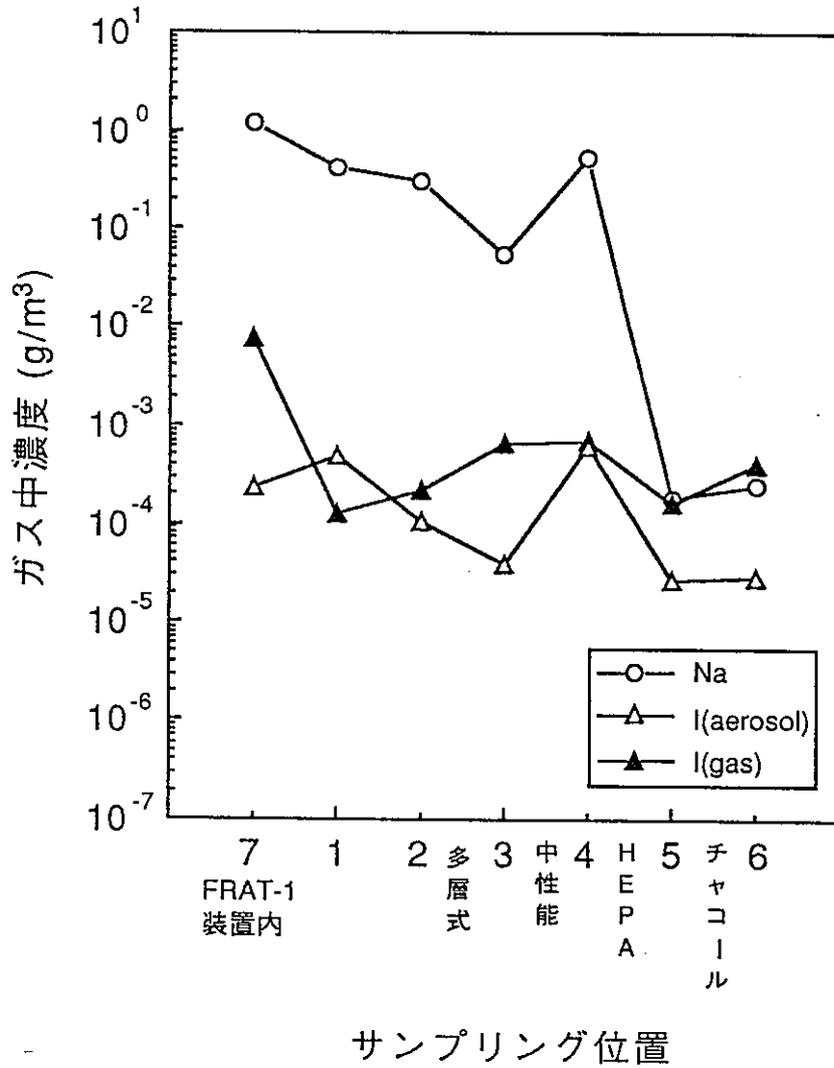
図A.8 F6-5試験サンプル分析結果(2)
(Na燃焼のみ)



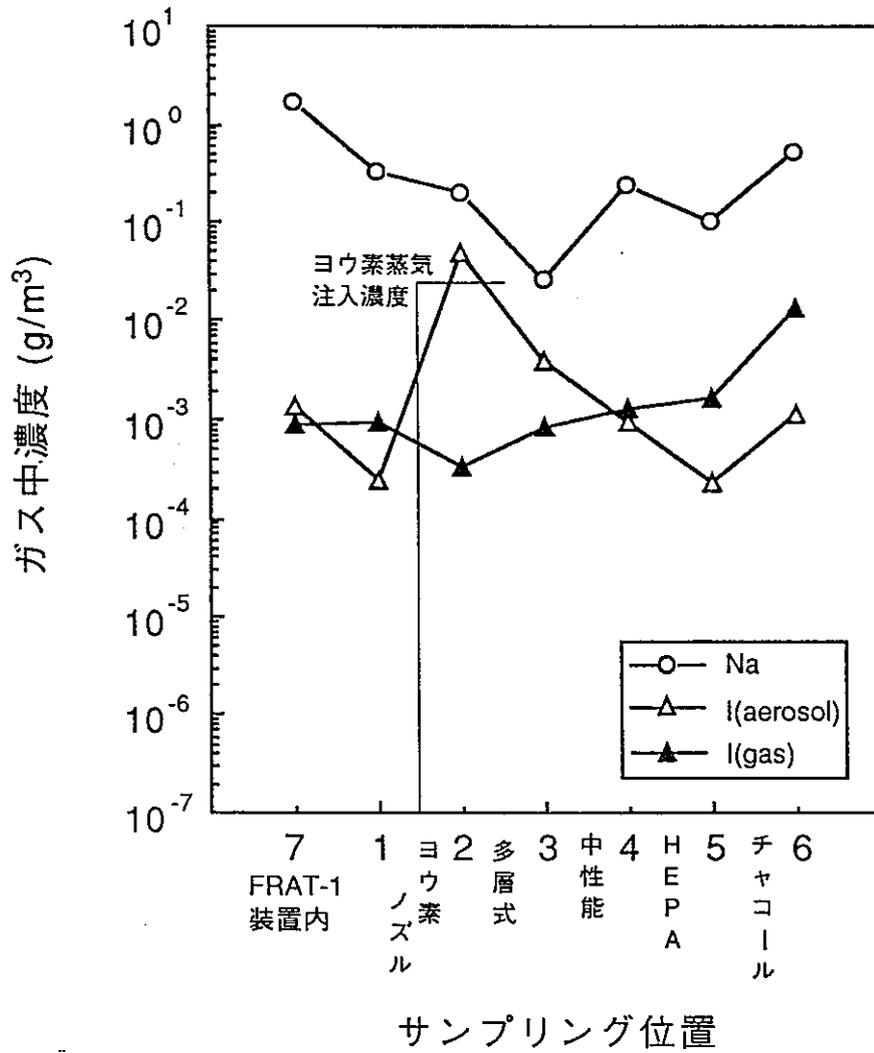
図A.9 F6-6試験サンプル分析結果(1)
(Na燃焼,ヨウ素蒸気注入)



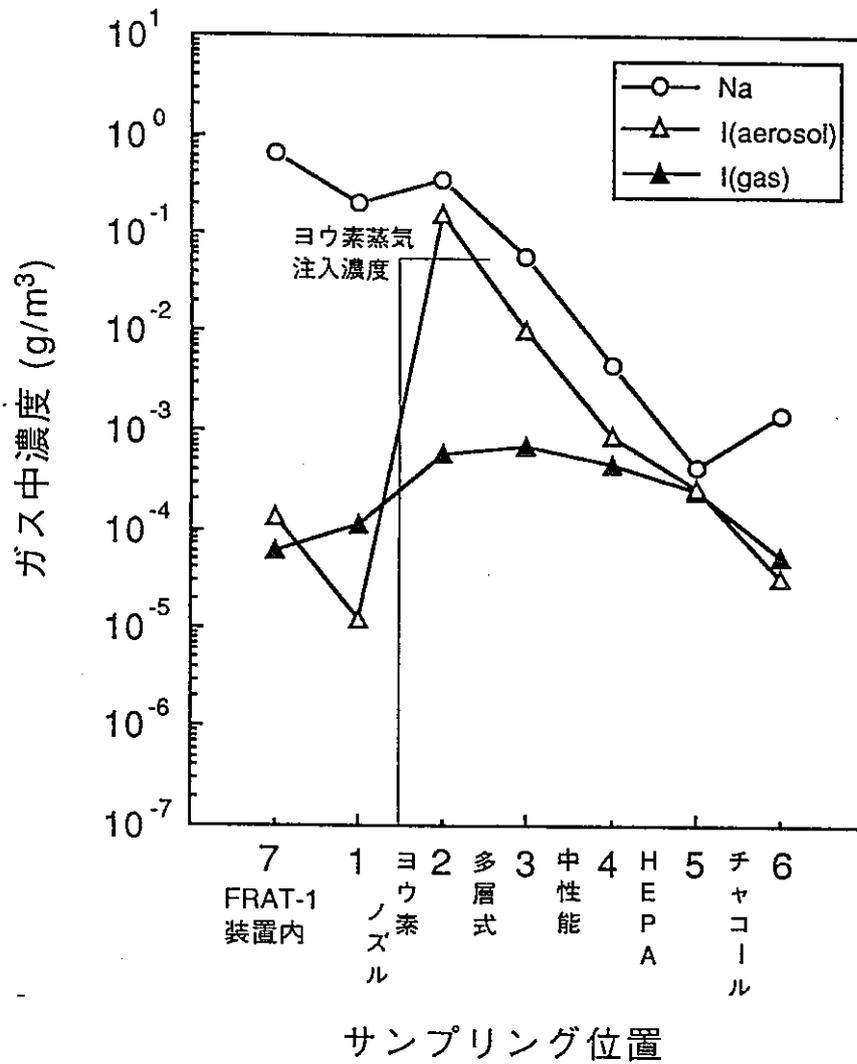
図A.10 F6-6試験サンプル分析結果(2)
(Na燃焼,ヨウ素蒸気注入)



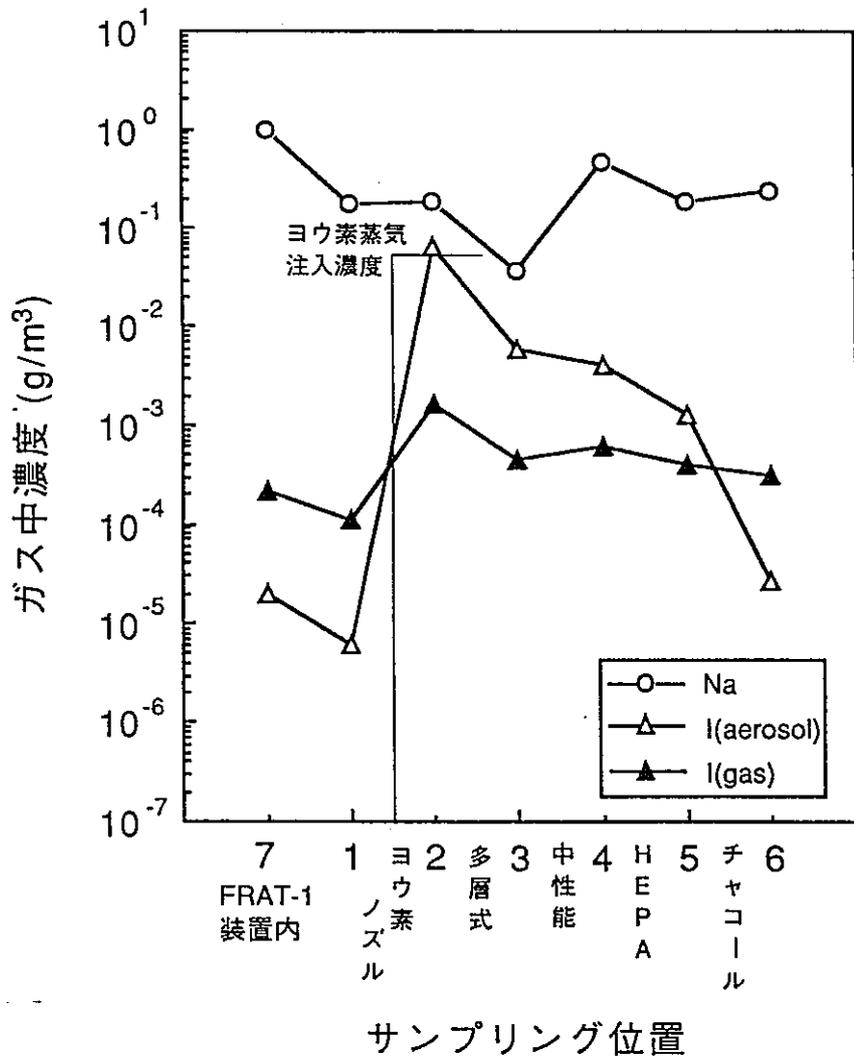
図A.11 F6-7試験サンプル分析結果(1)
(Na+NaI燃焼のみ)



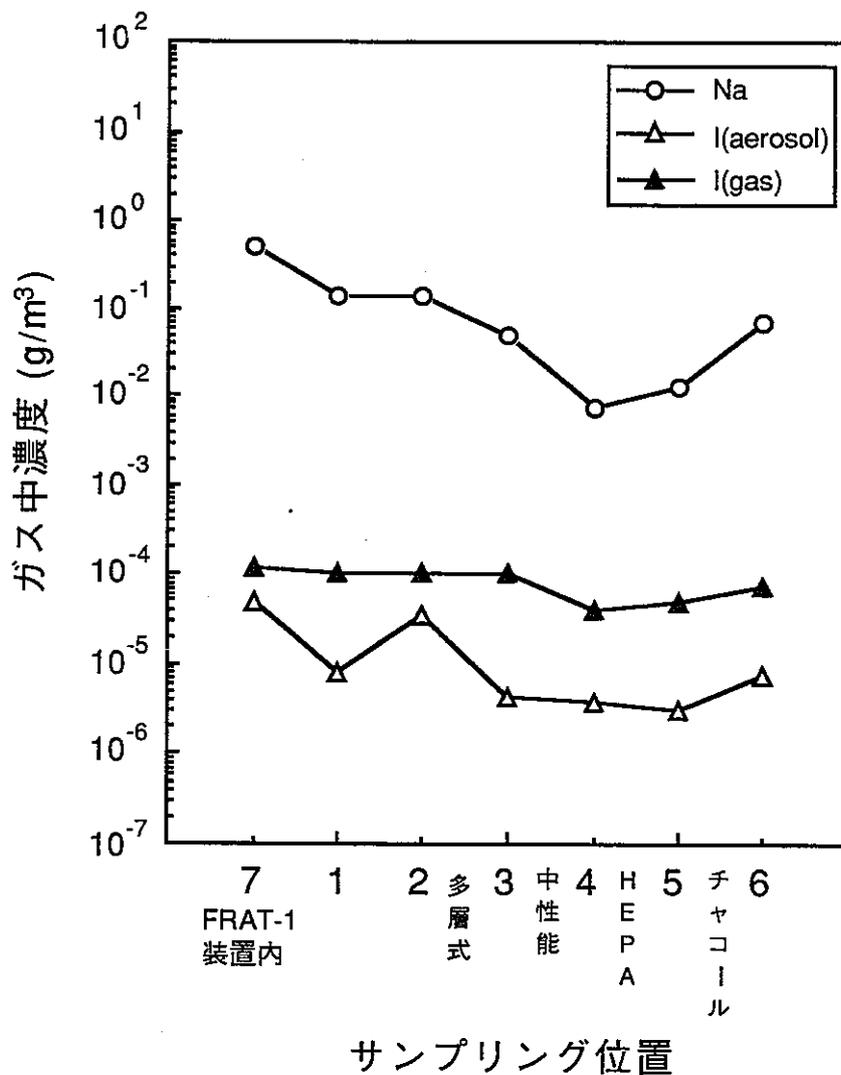
図A.12 F6-7試験サンプル分析結果(2)
(Na+NaI燃焼,ヨウ素蒸気注入)



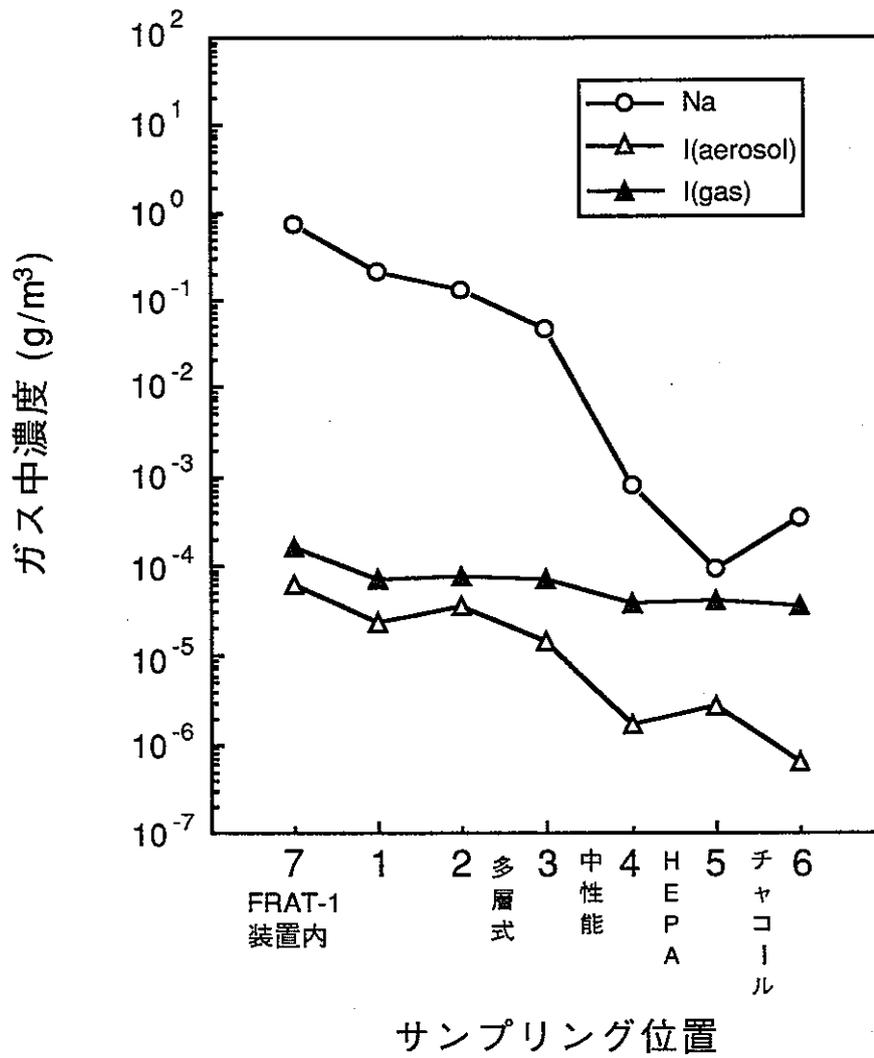
図A.13 F6-8試験サンプル分析結果(1)
(Na燃焼,ヨウ素蒸気注入)



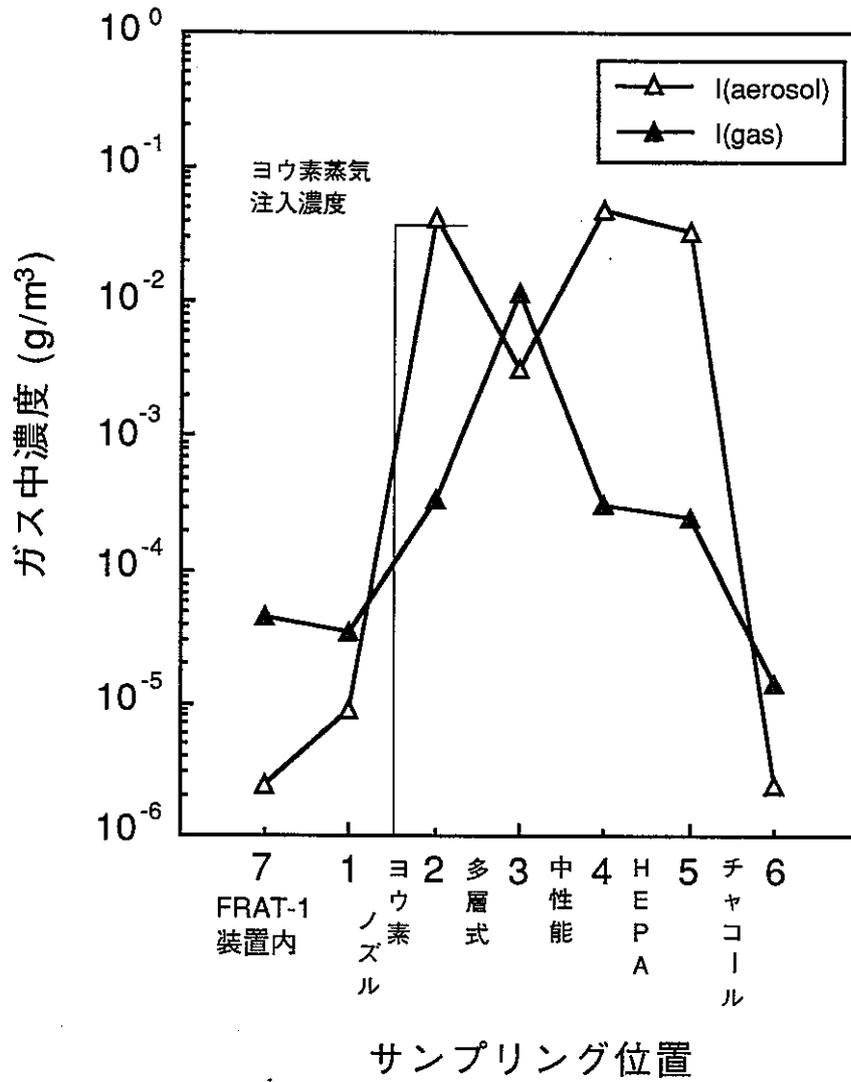
図A.14 F6-8試験サンプル分析結果(2)
(Na燃焼,ヨウ素蒸気注入)



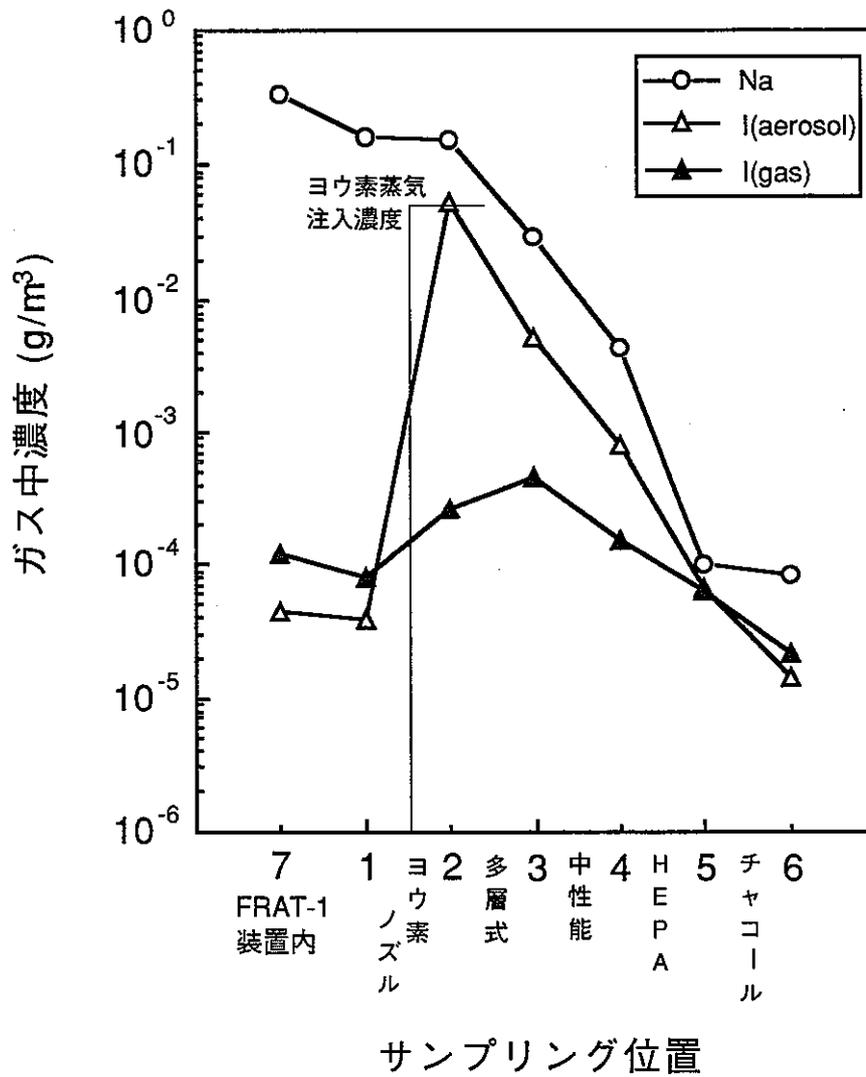
図A.15 F6-9試験サンプル分析結果(1)
(Na+NaI燃焼のみ)



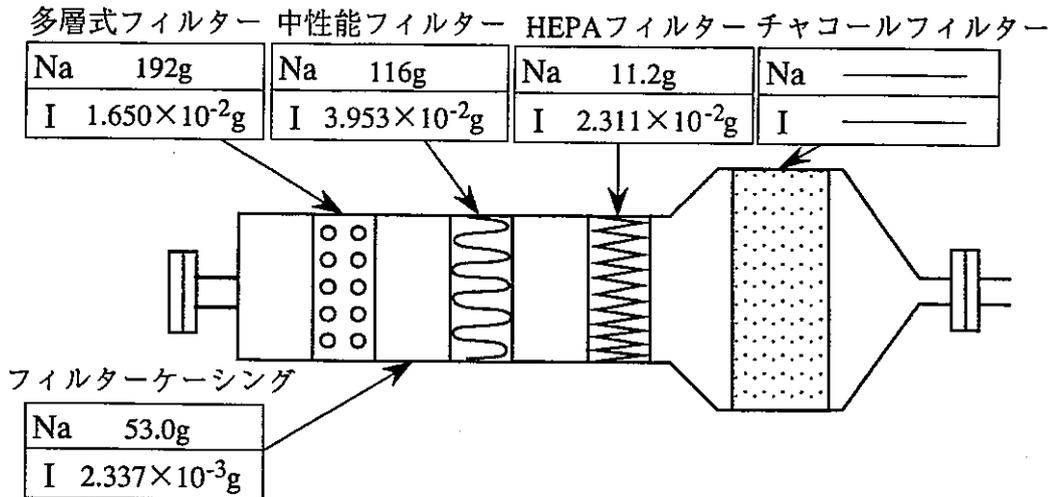
図A.16 F6-9試験サンプル分析結果(2)
(Na+NaI燃焼のみ)



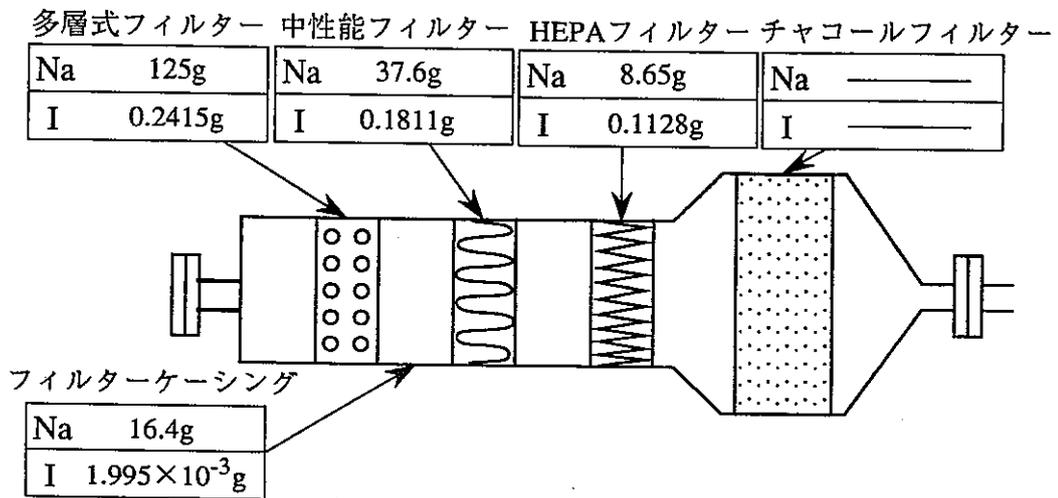
図A.17 F6-10試験サンプル分析結果
(ヨウ素蒸気注入のみ)



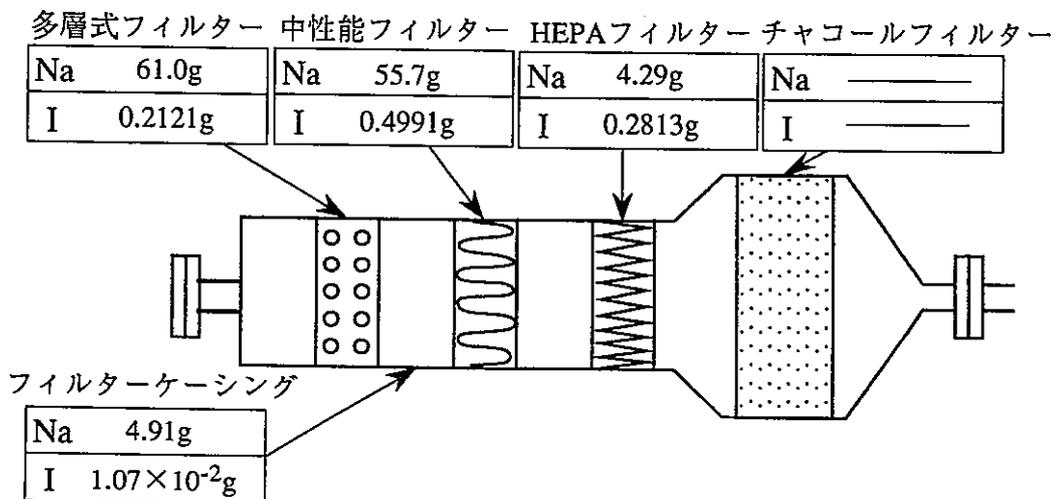
図A.18 F6-11試験サンプル分析結果 (Na+NaI燃焼,ヨウ素蒸気注入)



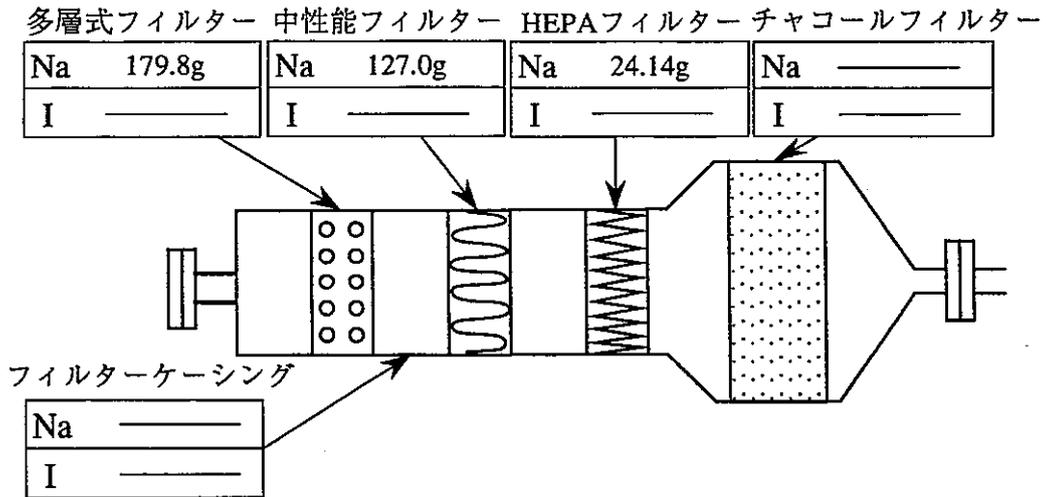
図A.19 F6-1試験後 各フィルターに捕集されたNa,I量



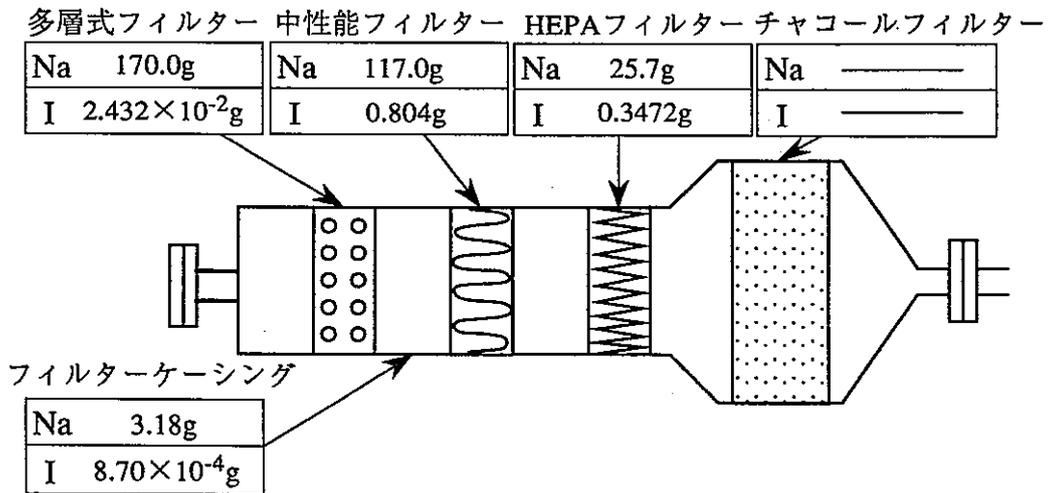
図A.20 F6-2試験後 各フィルターに捕集されたNa,I量



図A.21 F6-3,4試験後 各フィルターに捕集されたNa,I量



図A.22 F6-5試験後 各フィルターに捕集されたNa量



図A.23 F6-6試験後 各フィルターに捕集されたNa,I量

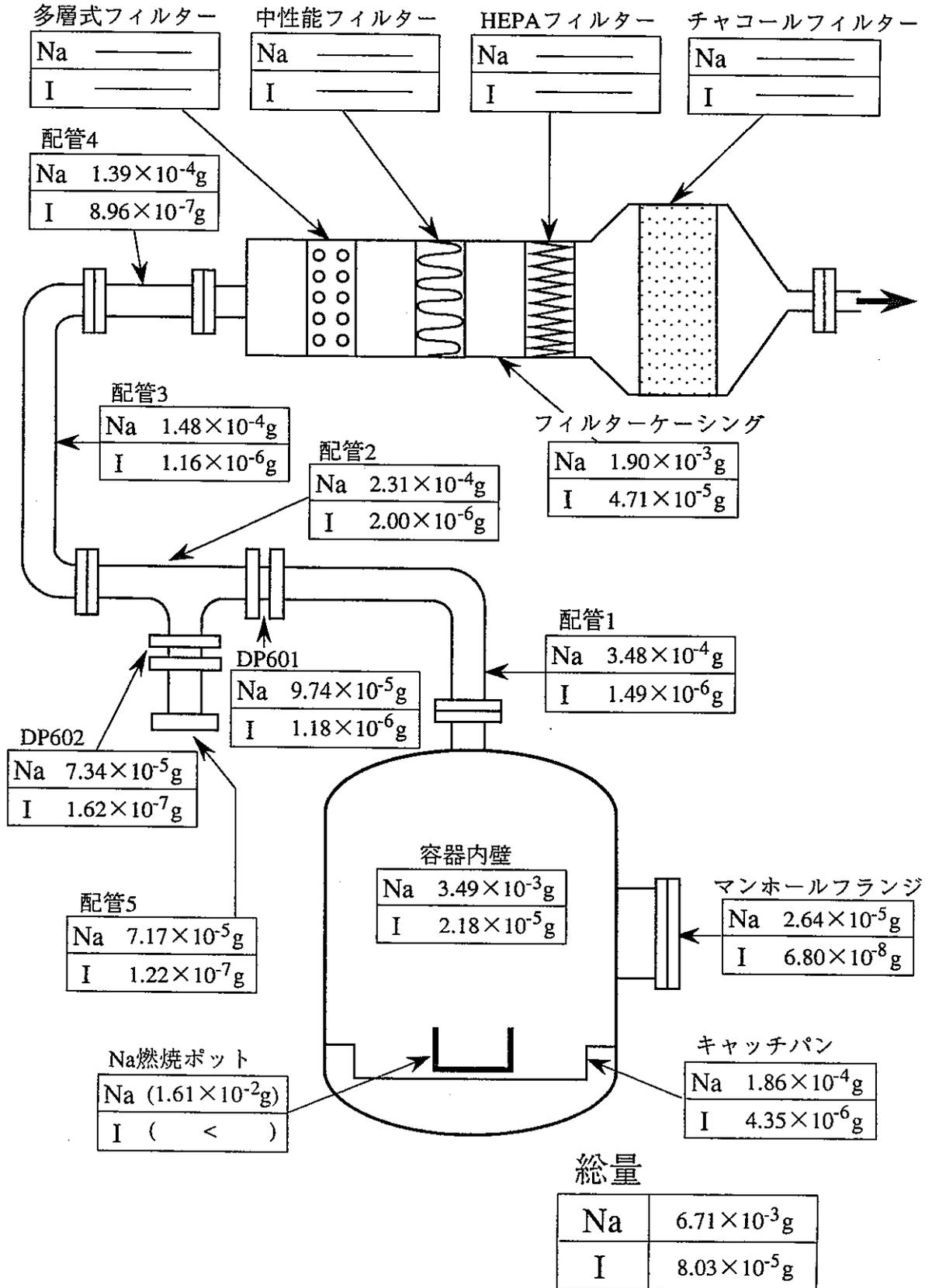


図-A-24 F6-7試験前：装置内に付着したナトリウム,ヨウ素量

F6-6試験後 → サンプル採取 → B.G.データ1回目採取 → 硝酸洗浄,純水洗浄後

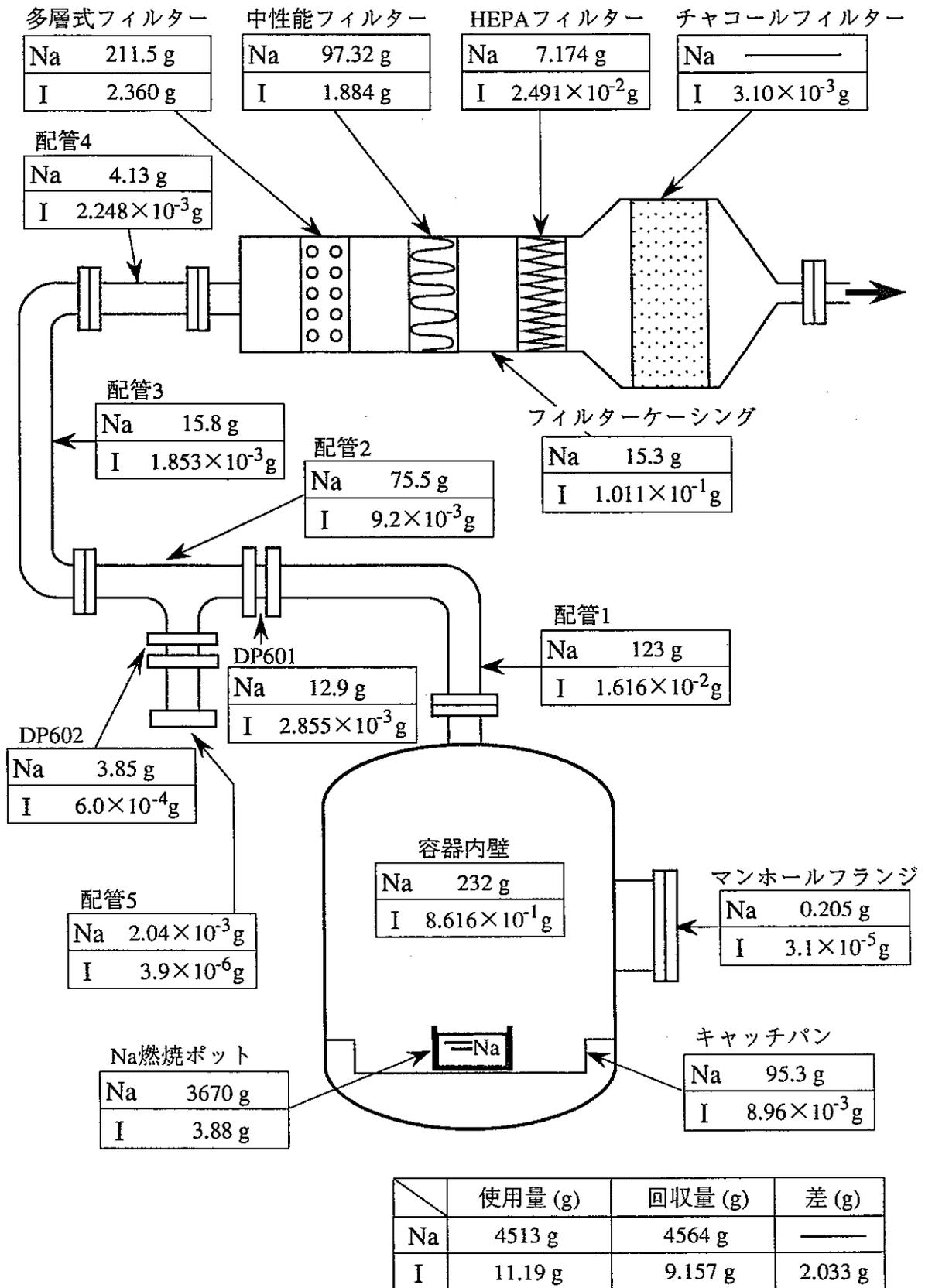


図-A-25 F6-7試験後：装置内に付着したナトリウム,ヨウ素量

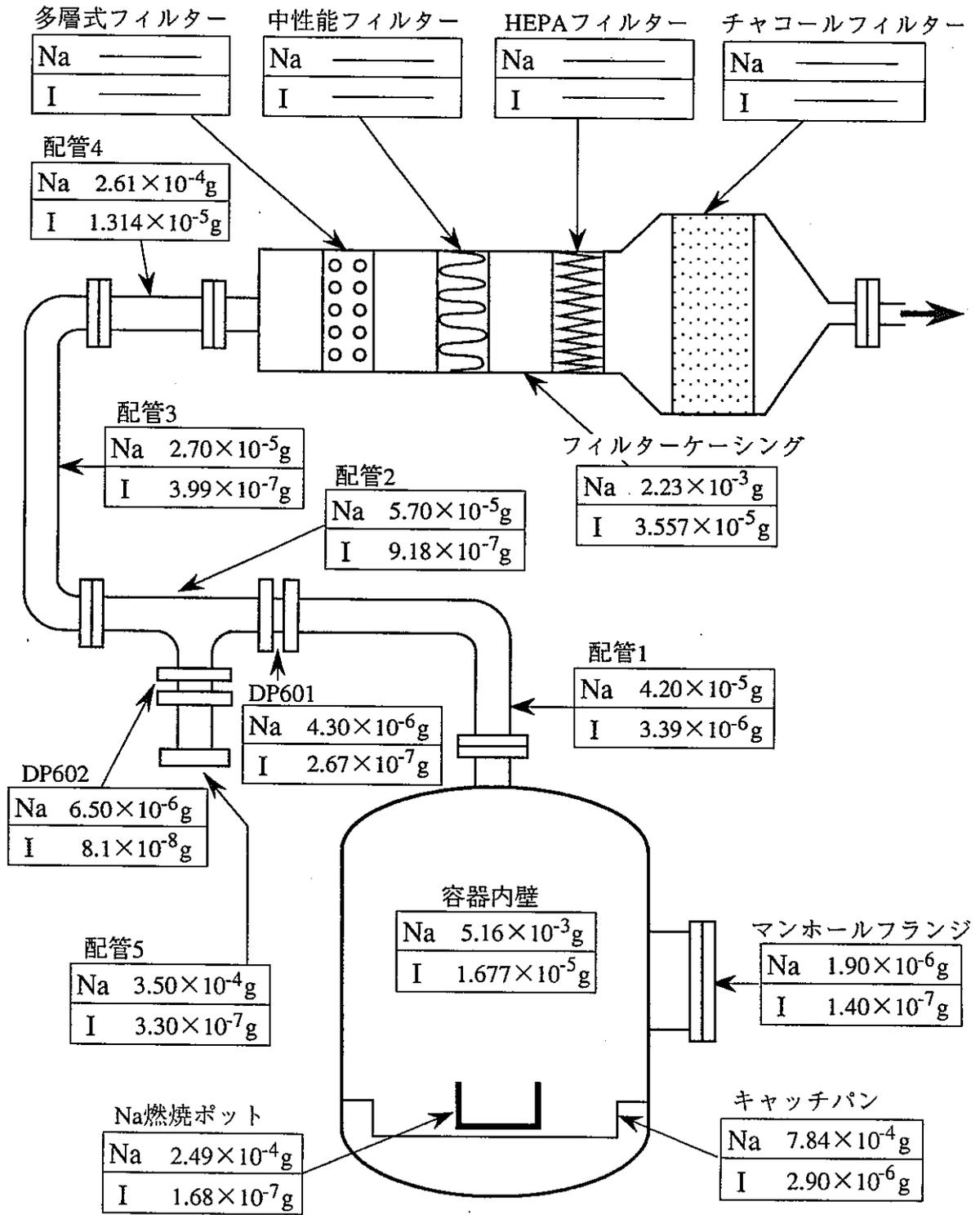


図-A-26 F6-8試験前：装置内に付着したナトリウム,ヨウ素量
純水洗浄後,B.G.データ採取

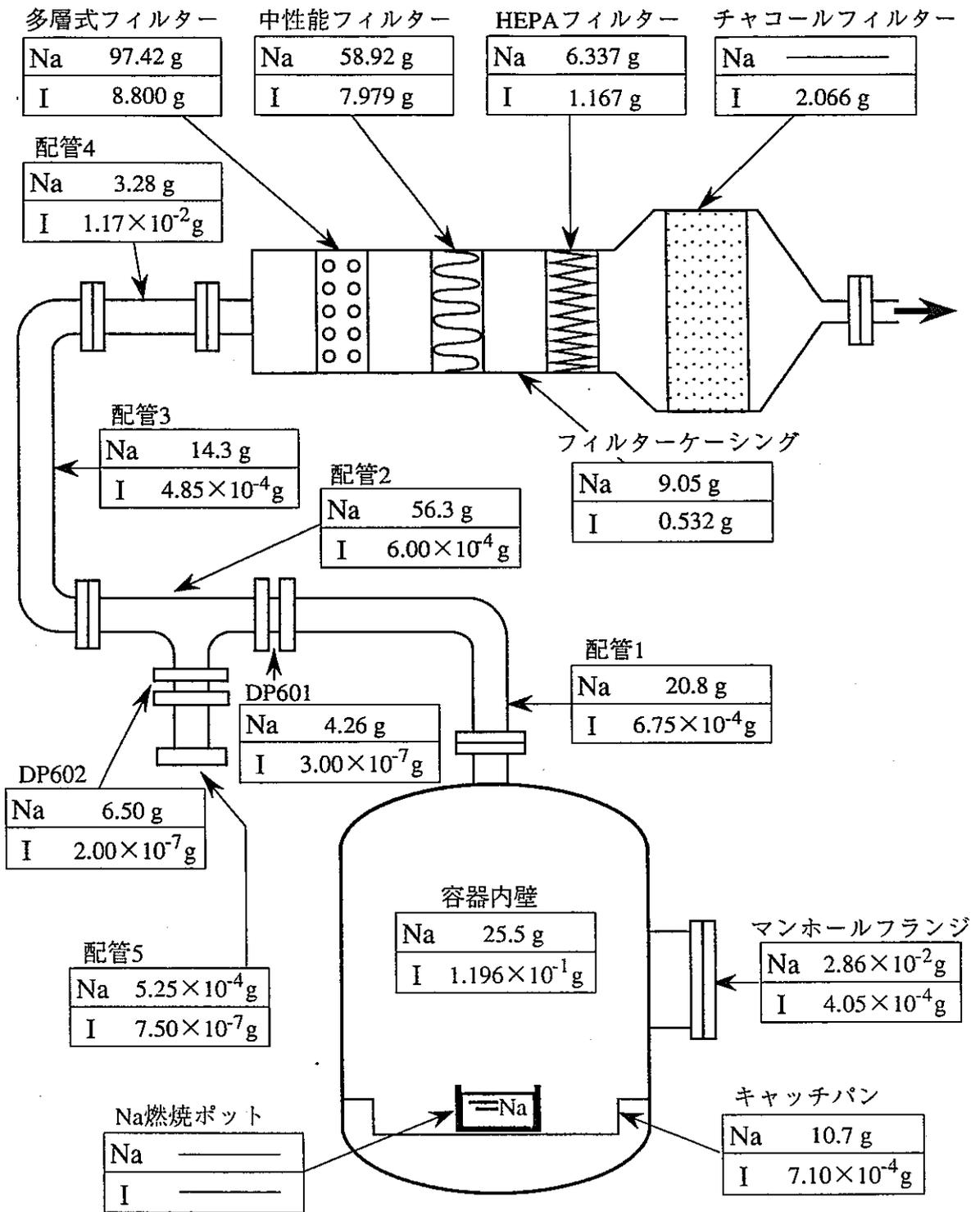


図-A-27 F6-8試験後：装置内に付着したナトリウム,ヨウ素量

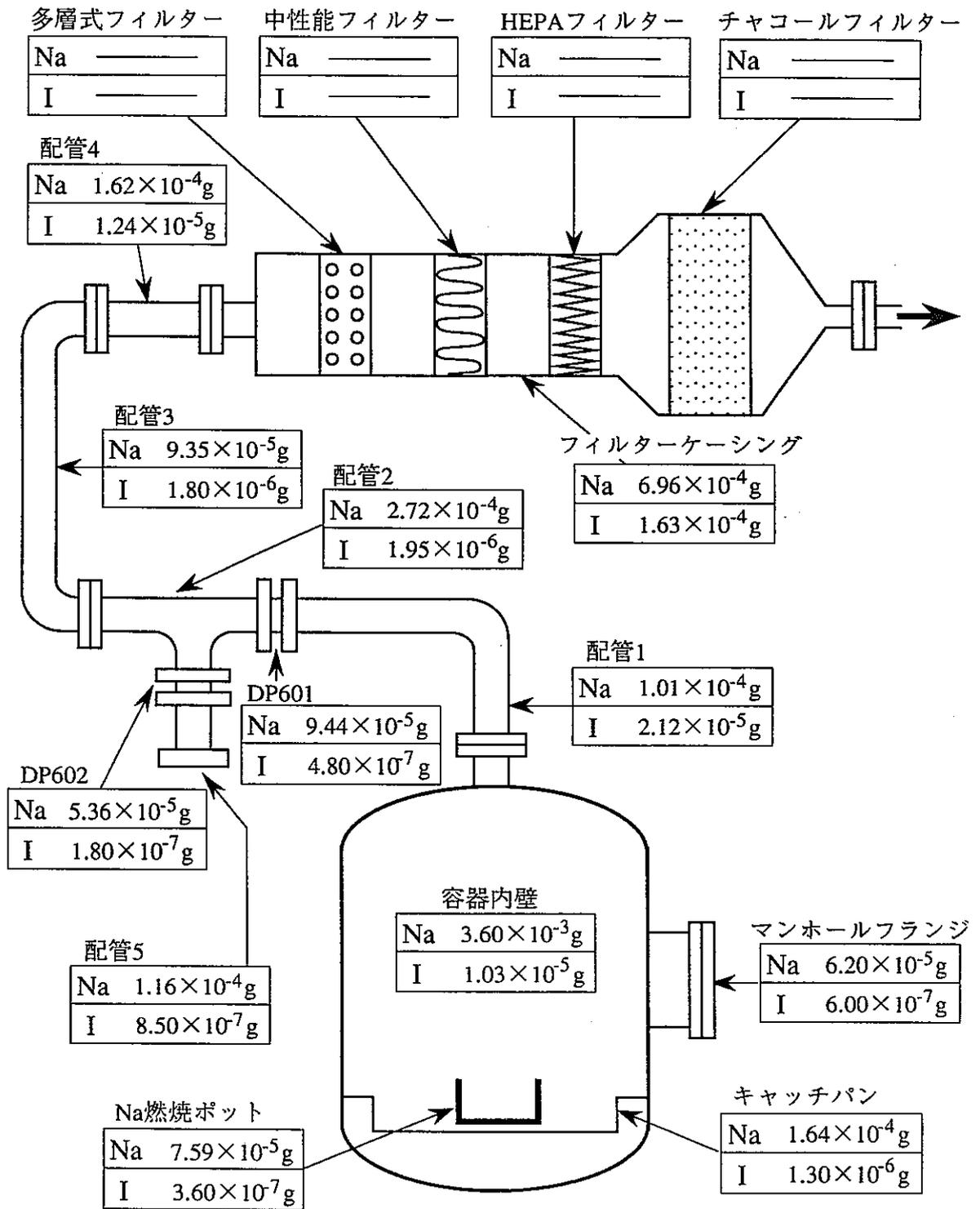


図-A-28 F6-9試験前：装置内に付着したナトリウム,ヨウ素量
純水洗浄後,B.G.データ採取

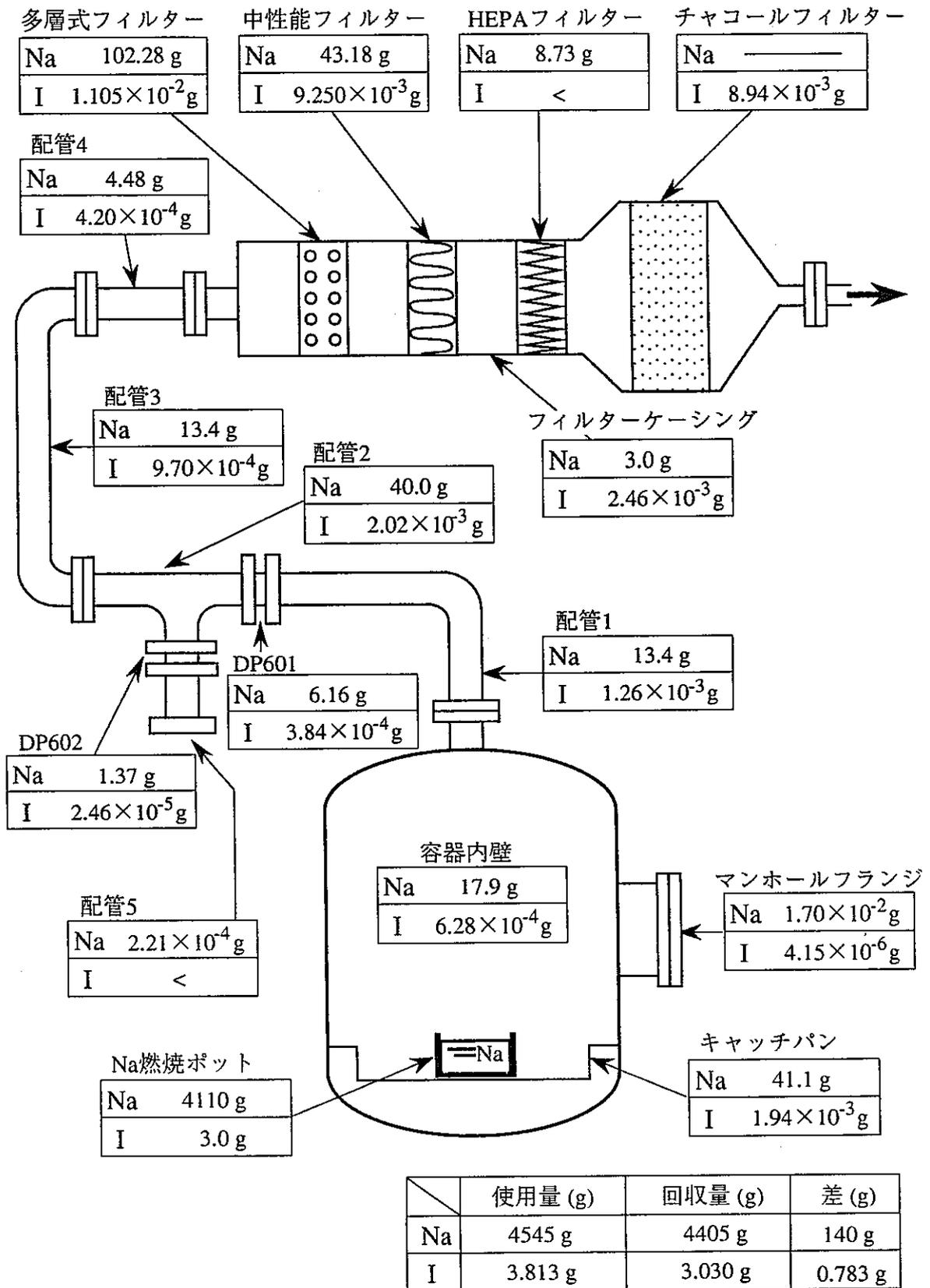


図-A-29 F6-9試験後：装置内に付着したナトリウム,ヨウ素量

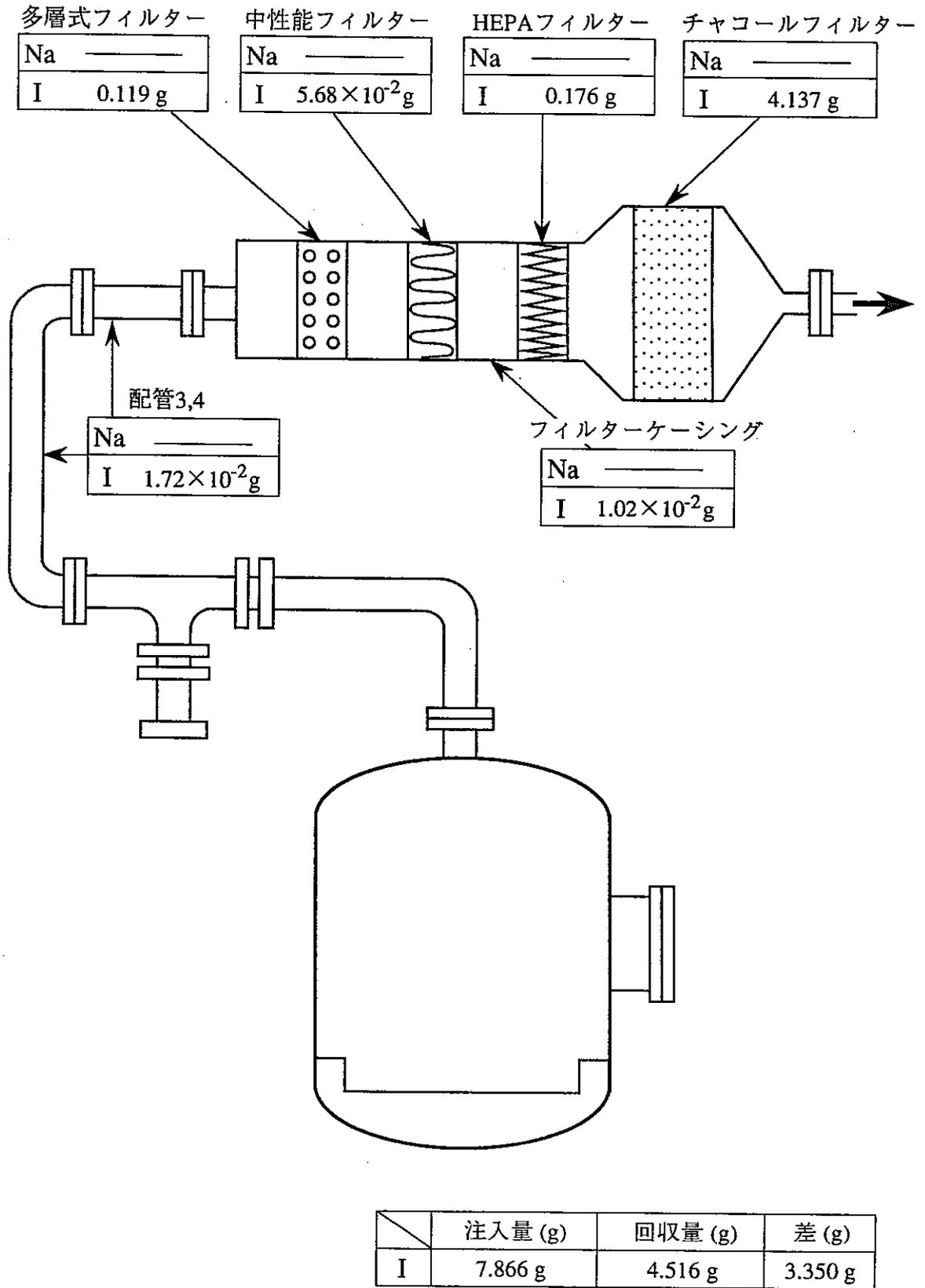


図-A-30 F6-10試験後：装置内に付着したナトリウム,ヨウ素量

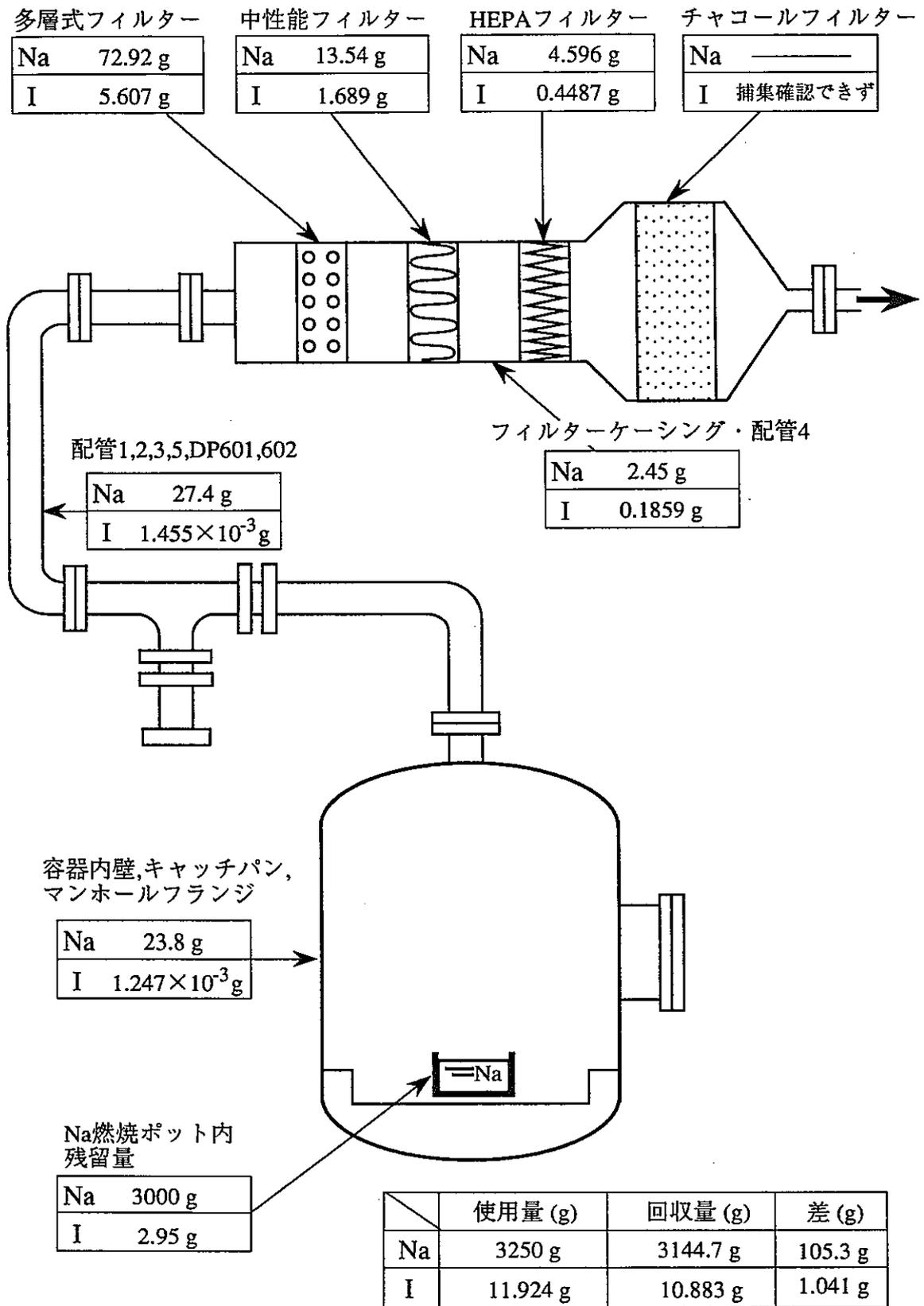


図-A-31 F6-11試験後：装置内に付着したナトリウム,ヨウ素量