

JAERI-M

8 1 5 8

空気中の低濃度ヨウ化メチルに対する
T E D A 添着活性炭の捕集効率

1979年3月

大畠 勉・松井 浩・成富満夫・吉田芳和

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

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

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

空気中の低濃度ヨウ化メチルに対するT E D A添着活性炭の捕集効率

日本原子力研究所東海研究所保健物理部

大畠 勉・松井 浩・成富満夫⁺・吉田芳和

(1979年2月6日受理)

ALAPの数量化に伴い、環境中の低濃度ヨウ素のモニタリング法を確立する必要がある。低濃度ヨウ素のモニタリング法を確立する一環として、今回、環境中の安定ヨウ素濃度領域のヨウ化メチルを用いて、T E D A添着活性炭の捕集効率を調べた。

試験は、ジメチル硫酸を用いてCH₃Iを発生し、発生されたヨウ素を、5% T E D Aを添着した活性炭を20 cm/secの流速で10~60 min間捕集することによって行った。

その結果、粒度の異なる3種類の添着活性炭(厚さ1 cm)のCH₃Iに対する効率は、50メッシュで99%以上、30メッシュで約99%そして8メッシュでは90%前後の一定値となり、試験した濃度範囲ではいずれの活性炭の捕集効率も濃度依存性のないことが認められた。

JAERI-M 8158

Collection efficiency of TEDA-impregnated activated charcoal
for low concentration of methyl iodide in air

Tsutomu OHATA, Hiroshi MATSUI, Mitsuo NARITOMI[†]
and Yoshikazu YOSHIDA

Division of Health Physics, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received February 6, 1979)

In order to collect effectively airborne radioiodine of low concentration released to the atmosphere from nuclear facilities, the collection efficiency of active charcoals with three different grain sizes, impregnated with 5 % TEDA was studied as a function of airborne methyl iodide concentration (bed depth 1 cm and face velocity 20 cm/sec).

Following are the results: Collection efficiencies are nearly constant in the concentration range of 10^{-8} to 10^{-19} $\text{CH}_3\text{I} \cdot \text{g/cm}^3$. Collection efficiency values are over 99 % in 28 ~ 60 mesh, 99 % in 12 ~ 30 mesh and 90 % in 4 ~ 10 mesh in the experimental conditions.

Keywords: Methyl Iodide, Activated Charcoal, Collection Efficiency, Low Concentration, Triethylenediamine, Airborne Iodine

[†]) Division of Reactor Safety

目 次

1. まえがき	1
2. 低濃度領域における活性炭の捕集効率に関する調査	1
3. 実験方法	2
4. 試験結果および考察	3
4.1 発生ヨウ素の性状	3
4.2 ヨウ素濃度と捕集効率の関係	3
5. 結 言	4
参考文献	5

Contents

1. Introduction	1
2. Review on the collection efficiency of activated charcoal at low iodine concentration	1
3. Experimental methods	2
4. Experimental results and discussion	3
4.1 Iodine species in the experimental chamber	3
4.2 Relation between the collection efficiency and concentration of methyl iodide	3
5. Conclusions	4
References	5

1. まえがき

原子力委員会は、「実用可能な限り低く」の原則に基づき、発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値として、年間1人当たりの全身被曝線量を5ミリレム、放射性ヨウ素に対する甲状腺線量を⁽¹⁾15ミリレムと定めている。このような実情を踏えて、各原子力事業者は施設周辺環境の低線量に対する放射線モニタリングの基本的な考え方を明確にし、その具体的方法を確立しなければならない。

原子力施設から放出される放射性ヨウ素の空気中濃度は発電炉において $10^{-16} \sim 10^{-22} \text{ g/cm}^3$ 、¹³¹I 製造で $10^{-19} \sim 10^{-23} \text{ g/cm}^3$ 、燃料再処理で $10^{-11} \sim 10^{-15} \text{ g/cm}^3$ 程度であると言われて⁽²⁾いる。⁽³⁾一般に大気中の安定ヨウ素の大部分は、ガス状ヨウ素として測定されており、主に有機ヨウ素であろうと推定されている。⁽⁴⁾そして、その濃度はほぼ $10^{-13} \sim 10^{-15} \text{ g/cm}^3$ の範囲にある。⁽⁵⁾したがって、再処理施設を除く他の主な原子力施設から放出されるヨウ素濃度は突発事故を除くと自然界の安定ヨウ素濃度に比べて極めて低いことがわかる。

浮遊性ヨウ素捕集材としては、主にヤシガラ活性炭が広く使用されている。^{(6)～(13)}しかし、低濃度領域の浮遊性ヨウ素に対する活性炭の捕集効率は著しく低下するという報告もあり、必ずしも明確になっていない。

本報は、低濃度放射性ヨウ素のモニタリング法を確立するための基礎的な資料を得ることを目的に、空気中の低濃度領域における活性炭の捕集効率に関する調査結果を記述するとともに、自然界の安定ヨウ素の空気中濃度領域に注目して、 $10^{-8} \sim 10^{-19} \text{ CH}_3\text{I} \cdot \text{g/cm}^3$ の低濃度範囲における厚さ1cmのT E D A添着活性炭の捕集効率について試験した結果を述べる。

2. 低濃度領域における活性炭の捕集効率に関する調査

空気中のヨウ素濃度が低い場合の活性炭の捕集効率は多くの研究者によって検討されている。^{(6)～(13)}その主な結果を対数確率紙上に図示したものがFig.1である。

ヨウ化メチル(CH_3I)を用いたPenceら、WilhelmらおよびIdaho Chemicalの結果によれば、濃度が低下すると活性炭の捕集効率も低下している。しかし、Barneby-cheney⁽⁷⁾⁽⁸⁾⁽⁹⁾727活性炭を用いたBellamyらは、試験を行った $10^{-10} \sim 10^{-14} \mu\text{Ci/ml}$ ($9 \times 10^{-22} \sim 1 \times 10^{-15} \text{ CH}_3\text{I} \cdot \text{g/cm}^3$) の範囲で、 $10^{-18} \text{ CH}_3\text{I} \cdot \text{g/cm}^3$ より濃度が高くなると捕集効率が低

*1 : 次式より換算した値

$$x(\text{g}) = \frac{3.7 \times 10^4 \times T_s \cdot A \cdot C}{6 \times 10^{23} \times 0.693} = 8.9 \times 10^{-20} T_s \cdot A \cdot C$$

ここで、 T_s : 半減期(sec), A : 原子量(g), C : 放射能(μCi)

1. まえがき

原子力委員会は、「実用可能な限り低く」の原則に基づき、発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値として、年間1人当たりの全身被曝線量を5ミリレム、放射性ヨウ素に対する甲状腺線量を⁽¹⁾15ミリレムと定めている。このような実情を踏えて、各原子力事業者は施設周辺環境の低線量に対する放射線モニタリングの基本的な考え方を明確にし、その具体的方法を確立しなければならない。

原子力施設から放出される放射性ヨウ素の空气中濃度は発電炉において $10^{-16} \sim 10^{-22} \text{ g/cm}^3$ 、¹³¹I 製造で $10^{-19} \sim 10^{-23} \text{ g/cm}^3$ 、燃料再処理で $10^{-11} \sim 10^{-15} \text{ g/cm}^3$ 程度であると言わ⁽²⁾れている。⁽³⁾一般に大気中の安定ヨウ素の大部分は、ガス状ヨウ素として測定されており、主に有機ヨウ素であろうと推定されている。⁽⁴⁾そして、その濃度はほぼ $10^{-13} \sim 10^{-15} \text{ g/cm}^3$ の範囲にある。⁽⁵⁾したがって、再処理施設を除く他の主な原子力施設から放出されるヨウ素濃度は突発事故を除くと自然界の安定ヨウ素濃度に比べて極めて低いことがわかる。

浮遊性ヨウ素捕集材としては、主にヤシガラ活性炭が広く使用されている。^{(6)～(13)}しかし、低濃度領域の浮遊性ヨウ素に対する活性炭の捕集効率は著しく低下するという報告もあり、必ずしも明確になっていない。

本報は、低濃度放射性ヨウ素のモニタリング法を確立するための基礎的な資料を得ることを目的に、空気中の低濃度領域における活性炭の捕集効率に関する調査結果を記述するとともに、自然界の安定ヨウ素の空气中濃度領域に注目して、 $10^{-8} \sim 10^{-19} \text{ CH}_3\text{I} \cdot \text{g/cm}^3$ の低濃度範囲における厚さ1cmのT E D A添着活性炭の捕集効率について試験した結果を述べる。

2. 低濃度領域における活性炭の捕集効率に関する調査

空気中のヨウ素濃度が低い場合の活性炭の捕集効率は多くの研究者によって検討されている。^{(6)～(13)}その主な結果を対数確率紙上に図示したものがFig.1である。

ヨウ化メチル(CH_3I)を用いたPenceら、WilhelmらおよびIdaho Chemicalの結果によれば、濃度が低下すると活性炭の捕集効率も低下している。しかし、Barneby-cheney⁽⁷⁾727活性炭を用いたBellamyらは、試験を行った $10^{-10} \sim 10^{-14} \mu\text{Ci/ml}$ ($9 \times 10^{-22} \sim 1 \times 10^{-15} \text{ CH}_3\text{I} \cdot \text{g/cm}^3$) の範囲で、 $10^{-18} \text{ CH}_3\text{I} \cdot \text{g/cm}^3$ より濃度が高くなると捕集効率が低

*1 : 次式より換算した値

$$x(\text{g}) = \frac{3.7 \times 10^4 \times T_s \cdot A \cdot C}{6 \times 10^{23} \times 0.693} = 8.9 \times 10^{-20} T_s \cdot A \cdot C$$

ここで、 T_s : 半減期(sec), A : 原子量(g), C : 放射能(μCi)

下するとしている。このように、 CH_3I を用いた結果では、濃度に対する活性炭の捕集効率について研究者間で必ずしも一致していない。

元素状ヨウ素(I_2)を用いて行ったBillard, CraigらおよびAdamsらの結果によれば、濃度が低下すると活性炭の捕集効率は減少しているが、その減少程度は研究者によって異っている。

一方、Craigらが、KI添着炭と無添着炭を用いて行った追試験の結果では、上述したような効率の濃度依存性が認められなかったとしている。BellamyらおよびWilhelmらは、有機ヨウ素に対する活性炭の捕集効率が濃度に影響されるとしながらも、元素状ヨウ素に対しては試験濃度範囲での濃度依存性は認められなかつたと報告している。また、Ritzmanらの理論的解析でも、吸着材の捕集効率が濃度に依存しないことを指摘している。

次亜ヨウ素酸(HOI)を用いたKabatの結果によれば、厚さ1cmの活性炭層で濃度 $10^{-1}\mu\text{Ci}/\text{m}^3$ ($9.2 \times 10^{-19} \text{ HOI} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$)^{*1}のとき透過率が1%であるのに対し、濃度 $10^{-2}\mu\text{Ci}/\text{m}^3$ ($9.2 \times 10^{-20} \text{ HOI} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$)^{*1}で約25%に増加し、濃度依存性のあることを報告している。

ヨウ素濃度が低い場合、活性炭の捕集効率が低下する理由として、Penceらはヨウ素の化学形の変化や空気中の不純物などの影響によるのではないかとしているが、明確ではない。

以上のごとく、空気中ヨウ素の低濃度領域における活性炭の捕集効率は、ヨウ素の性状によるとともに研究者によって異った見方がなされているのが現状である。そこで、筆者らは日常の放射線管理に用いられているTEDA添着活性炭のヨウ化メチルに対する捕集効率の濃度依存性を実験的に調べてみた。

3. 実験方法

試験はFig.2に示す実験装置を用いて、 $10^{-10} \sim 10^{-8} \text{ CH}_3\text{I} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$ の濃度範囲についておこなった。装置はヨウ化メチル発生器、温・湿度が制御されたチャンバおよび捕集系とから構成されている。ヨウ化メチルの発生には二つの方法を用いた。一つは、市販の CH_3I を ^{131}I でラベルした後、それを蒸留・精製して、Fig.3に示す発生器を用いて発生する方法(同位体交換法と呼ぶ)であり、他の一つはFig.4に示す装置により、ジメチル硫酸と Na^{131}I を除々に反応させて発生する方法(ジメチル硫酸法と呼ぶ)である。同位体交換法は $10^{-10} \sim 10^{-8} \text{ CH}_3\text{I} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$ の範囲の発生に用いた。発生濃度の調節は発生器のキャピラリの長さと温度を調節することによって単位時間当たりの発生量を制御することによっておこなった。ジメチル硫酸法は $10^{-10} \sim 10^{-10} \text{ CH}_3\text{I} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$ の範囲を発生させるのに用い、濃度調節は Na^{131}I の溶液濃度とジメチル硫酸液表面をスイープするArガス流量とを制御することによって行った。空気中濃度は、前者の場合、発生するヨウ化メチルの比放射能を前もって測定しておくことにより、また後者は NaI 水溶液中の $\text{Na}^{131}\text{I}/\text{NaI}$ 比と空気中の $\text{CH}_3^{131}\text{I}/\text{CH}_3\text{I}$ 比とが等しいとして、それぞれ評価した。

試験した活性炭は、Table 1に示すごとく、粒度の異なる3種類のヤシガラ炭(ツルミコ一

下するとしている。このように、 CH_3I を用いた結果では、濃度に対する活性炭の捕集効率について研究者間で必ずしも一致していない。

元素状ヨウ素(I_2)を用いて行ったBillard, CraigらおよびAdamsらの結果によれば、濃度が低下すると活性炭の捕集効率は減少しているが、その減少程度は研究者によって異っている。

一方、Craigらが、KI添着炭と無添着炭を用いて行った追試験の結果では、上述したような効率の濃度依存性が認められなかったとしている。BellamyらおよびWilhelmらは、有機ヨウ素に対する活性炭の捕集効率が濃度に影響されるとしながらも、元素状ヨウ素に対しては試験濃度範囲での濃度依存性は認められなかつたと報告している。また、Ritzmanらの理論的解析でも、吸着材の捕集効率が濃度に依存しないことを指摘している。

次亜ヨウ素酸(HOI)を用いたKabatの結果によれば、厚さ1cmの活性炭層で濃度 $10^{-1} \mu\text{Ci}/\text{m}^3$ ($9.2 \times 10^{-19} \text{HOI} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$)^{*1}のとき透過率が1%であるのに対し、濃度 $10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{m}^3$ ($9.2 \times 10^{-20} \text{HOI} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$)^{*1}で約25%に増加し、濃度依存性のあることを報告している。

ヨウ素濃度が低い場合、活性炭の捕集効率が低下する理由として、Penceらはヨウ素の化学形の変化や空気中の不純物などの影響によるのではないかとしているが、明確ではない。

以上のごとく、空气中ヨウ素の低濃度領域における活性炭の捕集効率は、ヨウ素の性状によるとともに研究者によって異った見方がなされているのが現状である。そこで、筆者らは日常の放射線管理に用いられているTEDA添着活性炭のヨウ化メチルに対する捕集効率の濃度依存性を実験的に調べてみた。

3. 実験方法

試験はFig.2に示す実験装置を用いて、 $10^{-10} \sim 10^{-8} \text{CH}_3\text{I} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$ の濃度範囲についておこなった。装置はヨウ化メチル発生器、温・湿度が制御されたチャンバおよび捕集系とから構成されている。ヨウ化メチルの発生には二つの方法を用いた。一つは、市販の CH_3I を ^{131}I でラベルした後、それを蒸留・精製して、Fig.3に示す発生器を用いて発生する方法(同位体交換法と呼ぶ)であり、他の一つはFig.4に示す装置により、ジメチル硫酸と Na^{131}I を除々に反応させて発生する方法(ジメチル硫酸法と呼ぶ)である。同位体交換法は $10^{-10} \sim 10^{-8} \text{CH}_3\text{I} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$ の範囲の発生に用いた。発生濃度の調節は発生器のキャピラリの長さと温度を調節することによって単位時間当たりの発生量を制御することによっておこなった。ジメチル硫酸法は $10^{-10} \sim 10^{-10} \text{CH}_3\text{I} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$ の範囲を発生させるのに用い、濃度調節は Na^{131}I の溶液濃度とジメチル硫酸液表面をスイープするArガス流量とを制御することによって行った。空气中濃度は、前者の場合、発生するヨウ化メチルの比放射能を前もって測定しておくことにより、また後者は NaI 水溶液中の $\text{Na}^{131}\text{I}/\text{NaI}$ 比と空气中の $\text{CH}_3^{131}\text{I}/\text{CH}_3\text{I}$ 比とが等しいとして、それぞれ評価した。

試験した活性炭は、Table 1に示すごとく、粒度の異なる3種類のヤシガラ炭(ツルミコ一

ルKK製），HC-50（28～60メッシュ），HC-30（12～30メッシュ）そして
HC-8（4～10メッシュ）をいずれも5w/oのTEDAを添着して用いた。
*2

発生されたヨウ化メチルは、温度20°C，湿度60%に調節された約1m³のチエンバ内で熟成した。捕集系は上述した活性炭をつめたカートリッジ（厚さ1cm，直列に8個使用），流量計そして吸引ポンプとから構成されている。捕集は活性炭カートリッジの線速度が20cm/secになるように毎分8.5ℓの吸引量で10～60min間捕集した。また、粒子状ヨウ素や空気中の粒子状不純物を捕集するため、アスペスト汎紙HE-40（東洋汎紙KK製）を、活性炭カートリッジの前に装着した。

捕集効率は、全カートリッジの放射能の和に対する初段のカートリッジの放射能の比から求めた。放射能は井戸型1 1/4"φ×2"NaI(Tℓ)の検出器を用いて測定した。

4. 試験結果および考察

4.1 発生ヨウ素の性状

ジメチル硫酸法で発生したヨウ化メチルのチエンバ内での性状は改良型マイ・パック・サンプラを用いて調べた。⁽¹⁵⁾ Table 2に、その結果を示す。ここで、サンプラはI₂を捕集するための5枚の銀綱とHOIやHIなどの無機ヨウ素を捕集するためのフェノールを10w/o添着⁽¹²⁾した2枚の活性炭含浸汎紙および有機ヨウ素を捕集するための5w/oのTEDA添着活性炭⁽¹⁶⁾（厚さ2cm）とから構成されている。

Table 2に示されるように、銀綱と活性炭含浸汎紙に捕集された放射能の割合は、各成分の放射能の和に対して、両者合わせて5%以内である。それに対し、TEDA添着活性炭には発生ヨウ素の95%以上が捕集されている。後者に捕集されたものは有機成分であり、そのほぼ100%がヨウ化メチルであることが放射性ガスクロマトグラフィで確認された（Fig.5）。図中の破線は、それぞれの物質を用いておこなった校正值である。以上の結果から、チエンバ内でヨウ化メチルから無機ヨウ素に変化する割合は全ヨウ素の最大5%以内であり、残りの95%以上がヨウ化メチルであることがわかった。

4.2 ヨウ素濃度と捕集効率の関係

Fig. 6, 7, 8に活性炭HC-50, HC-30およびHC-8に対するヨウ化メチル濃度

*2 : 5% TEDA添着炭は、ヨウ化メチルの吸着量が活性炭1g当り1mg以上こえ、かつポイゾニングや湿度に
*3 : 活性炭含浸汎紙には、ヨウ化メチルも捕集されるが、捕集割合は温湿度等の条件によって大きく左右されるこ
とが見出されている。
*4 : 16)

も比較的影響されずに高い捕集効率を保持するといわれている。

ルKK製），HC-50（28～60メッシュ），HC-30（12～30メッシュ）そして
HC-8（4～10メッシュ）をいずれも5w/oのTEDAを添着して用いた。
*2

発生されたヨウ化メチルは、温度20°C，湿度60%に調節された約1m³のチエンバ内で熟成した。捕集系は上述した活性炭をつめたカートリッジ（厚さ1cm，直列に8個使用），流量計そして吸引ポンプとから構成されている。捕集は活性炭カートリッジの線速度が20cm/secになるように毎分8.5ℓの吸引量で10～60min間捕集した。また，粒子状ヨウ素や空気中の粒子状不純物を捕集するため，アスペスト汎紙HE-40（東洋汎紙KK製）を，活性炭カートリッジの前に装着した。

捕集効率は，全カートリッジの放射能の和に対する初段のカートリッジの放射能の比から求めた。放射能は井戸型1 1/4"φ×2"NaI(Tℓ)の検出器を用いて測定した。

4. 試験結果および考察

4.1 発生ヨウ素の性状

ジメチル硫酸法で発生したヨウ化メチルのチエンバ内での性状は改良型マイ・パック・サンプラを用いて調べた。⁽¹⁵⁾ Table 2に，その結果を示す。ここで，サンプラはI₂を捕集するための5枚の銀綱とHOIやHIなどの無機ヨウ素を捕集するためのフェノールを10w/o添着⁽¹²⁾した2枚の活性炭含浸汎紙および有機ヨウ素を捕集するための5w/oのTEDA添着活性炭⁽¹⁶⁾（厚さ2cm）とから構成されている。

Table 2に示されるように，銀綱と活性炭含浸汎紙に捕集された放射能の割合は，各成分の放射能の和に対して，両者合わせて5%以内である。それに対し，TEDA添着活性炭には発生ヨウ素の95%以上が捕集されている。後者に捕集されたものは有機成分であり，そのほぼ100%がヨウ化メチルであることが放射性ガスクロマトグラフィで確認された（Fig.5）。図中の破線は，それぞれの物質を用いておこなった校正值である。以上の結果から，チエンバ内でヨウ化メチルから無機ヨウ素に変化する割合は全ヨウ素の最大5%以内であり，残りの95%以上がヨウ化メチルであることがわかった。

4.2 ヨウ素濃度と捕集効率の関係

Fig. 6, 7, 8に活性炭HC-50, HC-30およびHC-8に対するヨウ化メチル濃度

*2 : 5% TEDA添着炭は，ヨウ化メチルの吸着量が活性炭1g当り1mg以上こえ，かつポイゾニングや湿度に
も比較的影響されずに高い捕集効率を保持するといわれている。
*3 : 活性炭含浸汎紙には，ヨウ化メチルも捕集されるが，捕集割合は温湿度等の条件によって大きく左右されるこ
とが見出されている。

と捕集効率との関係を示す。図中(□)印は同位体交換法により、(●)印はジメチル硫酸法により発生したヨウ化メチルに対する捕集効率を表わしている。活性炭HC-50, HC-30およびHC-8に対して試験したヨウ化メチルの濃度範囲は、それぞれ $10^{-19} \sim 10^{-7}$, $10^{-18} \sim 10^{-9}$, $10^{-17} \sim 10^{-9}$ $\text{CH}_3\text{I} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$ であるが、図からわかるように、これらの濃度範囲ではいずれの場合も、活性炭粒子の大きさにしたがって、捕集効率が異なるものの、濃度による捕集効率の変化は生じていない。特に、環境中の低濃度ヨウ素モニタリングにおいて重要な、大気中の安定ヨウ素濃度である $10^{-15} \sim 10^{-13}$ g/cm^3 においては、濃度による捕集効率の変化は認められなかった。

捕集効率は、HC-50活性炭の場合99%以上、HC-30では99%前後であるが、HC-8の場合は90%程度に低くなっている。この理由としては、HC-8活性炭はHC-50および30活性炭に比べて、1個のカートリッジ当たりの活性炭粒子の表面積が最も小さいために、捕集効率が低下したものと考えられる。

それぞれの活性炭について、各段のカートリッジに捕集された割合の1例をTable 3に示す。これによれば、HC-50活性炭は厚さが1cmあれば99%以上の捕集効率である。HC-30は試験結果が最も悪い場合にあいて層厚1cmで約97%と高い効率となっている。さらに、HC-8活性炭でも層厚3cm以上に増加させれば99%以上の捕集効率となる。

⁽¹⁷⁾一方、成富らは、¹³¹I製造から排出される浮遊ヨウ素を用いて、TEDA添着活性炭の捕集効率に対する捕集時間の影響を調査し、1~16時間サンプリング時の捕集効率(相対湿度80%以下、吸引速度20cm/sec)は、捕集時間に影響されることなく、98%以上の高い値を維持すると報告している。

以上のことから、ヨウ素のサンプリングに用いられているHC-50のTEDA添着活性炭は少なくとも16時間程度の捕集には95%以上の捕集効率が維持されるものと考えられる。ただし、ヨウ素の性状等が異なる場合の長時間捕集時の捕集効率についてはさらに検討する必要がある。

5. 結 言

大気中の安定ヨウ素濃度領域に注目して、低濃度領域のヨウ化メチルに対する5w/o TEDA添着活性炭の捕集効率を、相対湿度60%，温度20°Cの雰囲気条件で試験した結果、次の点が明らかになった。

- (a) 粒度が異なる3つの活性炭(28~60, 12~30, 4~10 メッシュ)の捕集効率(層厚1cm)は、捕集時間10~60min、吸引速度20cm/secの捕集条件で試験した濃度範囲($10^{-19} \sim 10^{-6}$ $\text{CH}_3\text{I} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$)では、濃度依存性が認められなかった。
- (b) その時の捕集効率は、HC-50(28~60 メッシュ)およびHC-30(12~30 メッシュ)活性炭で約99%である。HC-8(4~10 メッシュ)活性炭は層厚1cmで約90%であるが、約3cmにすると99%程度となる。

と捕集効率との関係を示す。図中(□)印は同位体交換法により、(●)印はジメチル硫酸法により発生したヨウ化メチルに対する捕集効率を表わしている。活性炭HC-50, HC-30およびHC-8に対して試験したヨウ化メチルの濃度範囲は、それぞれ $10^{-19} \sim 10^{-7}$, $10^{-18} \sim 10^{-9}$, $10^{-17} \sim 10^{-9}$ $\text{CH}_3\text{I} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$ であるが、図からわかるように、これらの濃度範囲ではいずれの場合も、活性炭粒子の大きさにしたがって、捕集効率が異なるものの、濃度による捕集効率の変化は生じていない。特に、環境中の低濃度ヨウ素モニタリングにおいて重要な、大気中の安定ヨウ素濃度である $10^{-15} \sim 10^{-13}$ g/cm^3 においては、濃度による捕集効率の変化は認められなかった。

捕集効率は、HC-50活性炭の場合99%以上、HC-30では99%前後であるが、HC-8の場合は90%程度に低くなっている。この理由としては、HC-8活性炭はHC-50および30活性炭に比べて、1個のカートリッジ当りの活性炭粒子の表面積が最も小さいために、捕集効率が低下したものと考えられる。

それぞれの活性炭について、各段のカートリッジに捕集された割合の1例をTable 3に示す。これによれば、HC-50活性炭は厚さが1cmあれば99%以上の捕集効率である。HC-30は試験結果が最も悪い場合において層厚1cmで約97%と高い効率となっている。さらに、HC-8活性炭でも層厚3cm以上に増加させれば99%以上の捕集効率となる。⁽¹⁷⁾

一方、成富らは、¹³¹I製造から排出される浮遊ヨウ素を用いて、TEDA添着活性炭の捕集効率に対する捕集時間の影響を調査し、1~16時間サンプリング時の捕集効率(相対湿度80%以下、吸引速度20cm/sec)は、捕集時間に影響されることなく、98%以上の高い値を維持すると報告している。

以上のことから、ヨウ素のサンプリングに用いられているHC-50のTEDA添着活性炭は少なくとも16時間程度の捕集には95%以上の捕集効率が維持されるものと考えられる。ただし、ヨウ素の性状等が異なる場合の長時間捕集時の捕集効率についてはさらに検討する必要がある。

5. 結 言

大気中の安定ヨウ素濃度領域に注目して、低濃度領域のヨウ化メチルに対する5w/o TEDA添着活性炭の捕集効率を、相対湿度60%，温度20°Cの雰囲気条件で試験した結果、次の点が明らかになった。

- (a) 粒度が異なる3つの活性炭(28~60, 12~30, 4~10 メッシュ)の捕集効率(層厚1cm)は、捕集時間10~60min、吸引速度20cm/secの捕集条件で試験した濃度範囲($10^{-19} \sim 10^{-6}$ $\text{CH}_3\text{I} \cdot \text{g}/\text{cm}^3$)では、濃度依存性が認められなかった。
- (b) その時の捕集効率は、HC-50(28~60 メッシュ)およびHC-30(12~30 メッシュ)活性炭で約99%である。HC-8(4~10 メッシュ)活性炭は層厚1cmで約90%であるが、約3cmにすると99%程度となる。

最後に、本報告をまとめるにあたり、性状解析のために御援助いただいた安全工学部第3研究室の高田準一氏に感謝致します。また、有益な助言を頂いた放射線管理第2課、矢部明課長に感謝致します。

参 考 文 献

- (1) 原子力委員会；「発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に関する指針について」昭和50年5月
- (2) 吉田芳和、成富満夫；保健物理，9，233(1974)
- (3) F.P. Braver, H.J. Pieck, Jr and R.L. Hopper ; IAEA-SM-181/16
(1973)
- (4) B. Bolin ; J. Air Pollution, 2, 127(1959)
- (5) J.D. McCormack ; BNWL-1145(1969)
- (6) R.R. Bellamy ; Nuclear Safety features, 15, 711(1974)
- (7) D.T. Pence, F.A. Duce and W.J. Maeck ; CONF 720823, P417(1972)
- (8) J.G. Wilhelm and H. Schuettelkopf ; STI/DOC-101148, 47(1973)
- (9) R.L. Ritzman and J.M. Genco ; WASH-1231(1972)
- (10) F. Billard, J. Caron, G. Chevalier and J. Van Der Meersch ; CONF-650407, Vol 2, 814(1965)
- (11) D.K. Craig, H.W.W. Adrian and D.J.J.C. Bovwer ; Health Physics, 19, PP223-233(1970)
- (12) R.E. Adams and R.D. Ackley ; ORNL-TM-2040(1967)
- (13) M.J. Kabat ; A paper presented at the 13th USAEC air cleaning conference, P765(1973)
- (14) 木谷進、池沢芳夫；保健物理，9，223(1974)
- (15) W.J. Megaw and F.G. May, Jr ; J. Nucl. Energy Part A/B, 16(1962)
- (16) 成富満夫、高田準一、木谷進；「昭和52年秋の分科会予稿集」(第Ⅱ分冊)P169
(1977)
- (17) 成富満夫、福田整司；空気清浄, 79, 10(1972)

最後に、本報告をまとめるにあたり、性状解析のために御援助いただいた安全工学部第3研究室の高田準一氏に感謝致します。また、有益な助言を頂いた放射線管理第2課、矢部明課長に感謝致します。

参考文献

- (1) 原子力委員会；「発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に関する指針について」昭和50年5月
- (2) 吉田芳和、成富満夫；保健物理，9，233（1974）
- (3) F.P. Braver, H.J. Pieck, Jr and R.L. Hopper ; IAEA-SM-181/16
(1973)
- (4) B. Bolin ; J. Air Pollution, 2, 127 (1959)
- (5) J.D. McCormick ; BNWL-1145 (1969)
- (6) R.R. Bellamy ; Nuclear Safety features, 15, 711 (1974)
- (7) D.T. Pence, F.A. Duce and W.J. Maeck ; CONF 720823, P417 (1972)
- (8) J.G. Wilhelm and H. Schuettelkopf ; STI/DOC-101148, 47 (1973)
- (9) R.L. Ritzman and J.M. Genco ; WASH-1231 (1972)
- (10) F. Billard, J. Caron, G. Chevalier and J. Van Der Meersch ; CONF-650407, Vol 2, 814 (1965)
- (11) D.K. Craig, H.W.W. Adrian and D.J.J.C. Bovwer ; Health Physics, 19, PP223-233 (1970)
- (12) R.E. Adams and R.D. Ackley ; ORNL-TM-2040 (1967)
- (13) M.J. Kabat ; A paper presented at the 13th USAEC air cleaning conference, P765 (1973)
- (14) 木谷進、池沢芳夫；保健物理，9，223（1974）
- (15) W.J. Megaw and F.G. May, Jr ; J. Nucl. Energy Part A/B, 16 (1962)
- (16) 成富満夫、高田準一、木谷進；「昭和52年秋の分科会予稿集」（第Ⅱ分冊）P169
(1977)
- (17) 成富満夫、福田整司；空気清浄，79，10（1972）

Table 1 Specification of activated charcoal tested.

TYPE OF ACTIVATED CHARCOAL	BULK DENSITY (g / cm ³)	DIAMETER OF CHARCOAL GRANULE (MESH)	IMPREGNANT
HC - 50	0.35 - 0.45	28 - 60	5 WT % TEDA
HC - 30	0.36 - 0.47	12 - 30	"
HC - 8	0.38 - 0.48	4 - 10	"

Table 2 Iodine species produced in the experimental chamber.

ADSORBER	SPECIES	PERCENTAGE COLLECTED ON ADSORBERS
FIVE SILVER-PLATED COPPER SCREENS (100 MESH)	ELEMENTAL	3.2
TWO ACTIVATED CHARCOAL FILTER PAPERS IMPREGNATED WITH 10 % PHENOL (CP-20)	INORGANIC	1.2
TWO 5 % IMPREGNATED ACTIVATED CHARCOAL BEDS (50 MESH, 1 CM THICK)	ORGANIC	95.6

EXPERIMENTAL CONDITION

TEMPERATURE: 20°C FACE VELOCITY: 20 CM/SEC
 RELATIVE HUMIDITY: 60 % CONC. OF CH₃I: 9.7 × 10⁻¹² G/CM³

Table 3 Effect of bed depth on collection efficiency of sampling cartridge.

		unit ; Percentage							
Cartrige	Number	1	2	3	4	5	6	7	8
Bed depth (mm)		0-10	10-20	20-30	30-40	40-50	50-60	60-70	70-80
Type of activated charcoal	HC - 50	99.7	0.1	0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1
	HC - 30	96.7	2.9	0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1
	HC - 8	91.3	7.3	1.0	0.2	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1

Relative humidity : 60 %, Face velocity of cartridge : 20 cm/sec

Temperature : 20°C

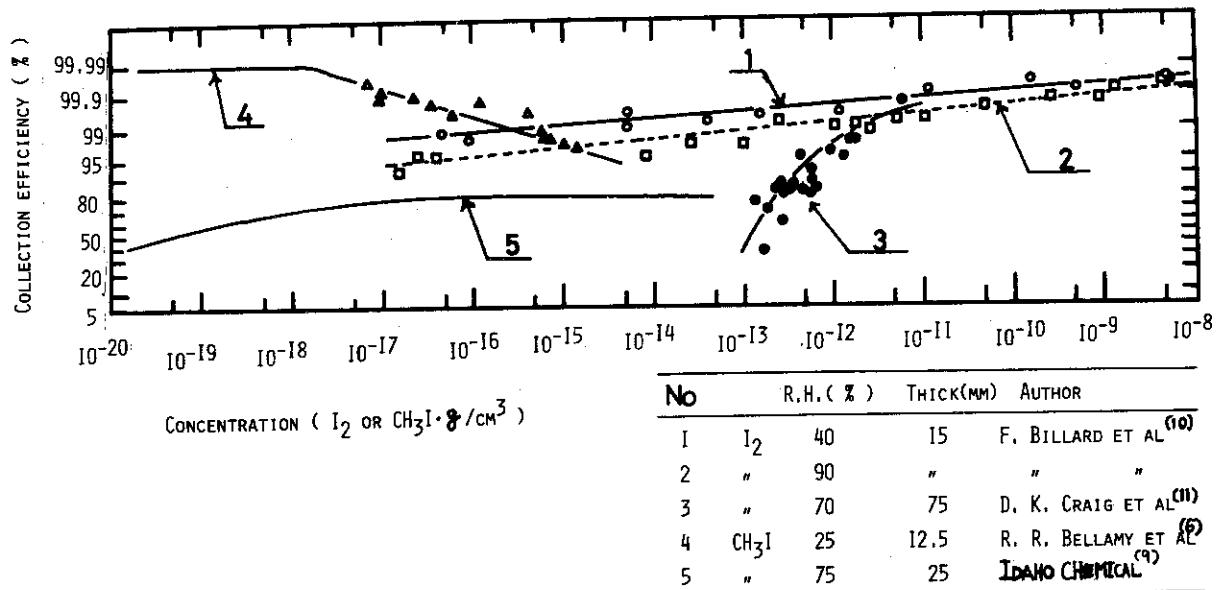


Fig. 1 Comparison of collection efficiency reported

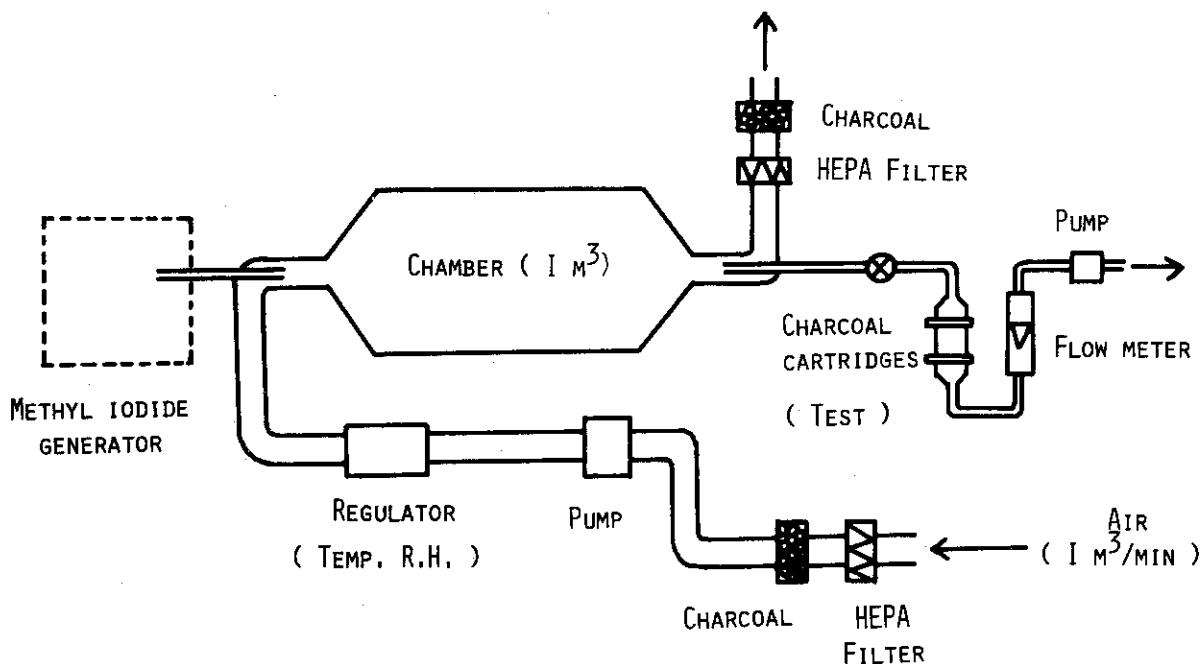


Fig. 2 Schematic diagram of test apparatus

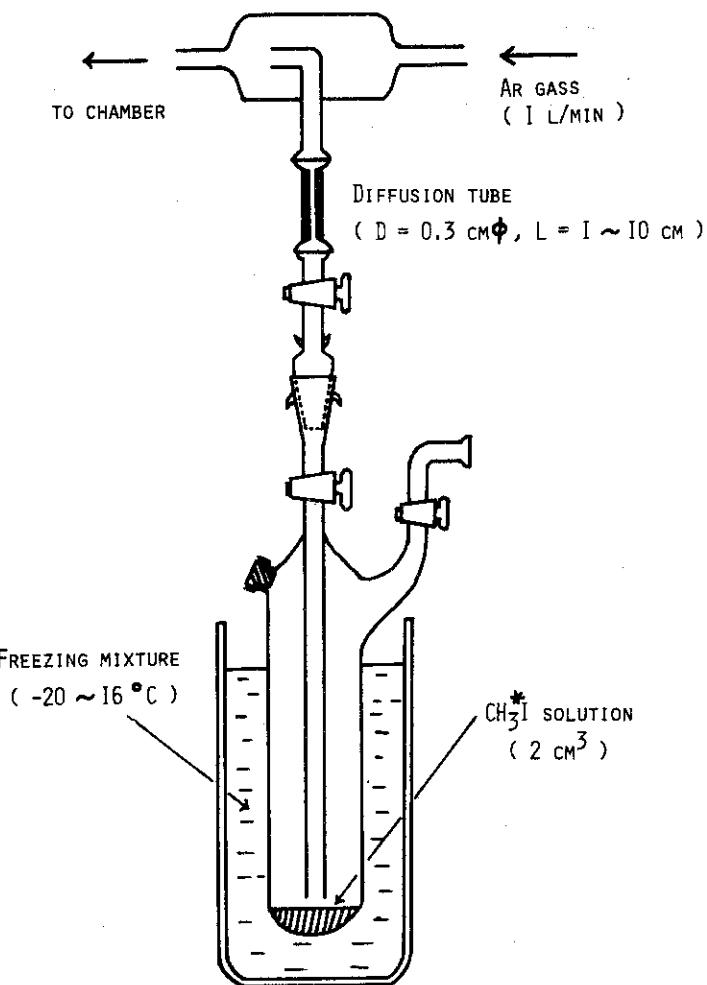


Fig. 3 Methyl iodide generator (Isotopic exchange method)

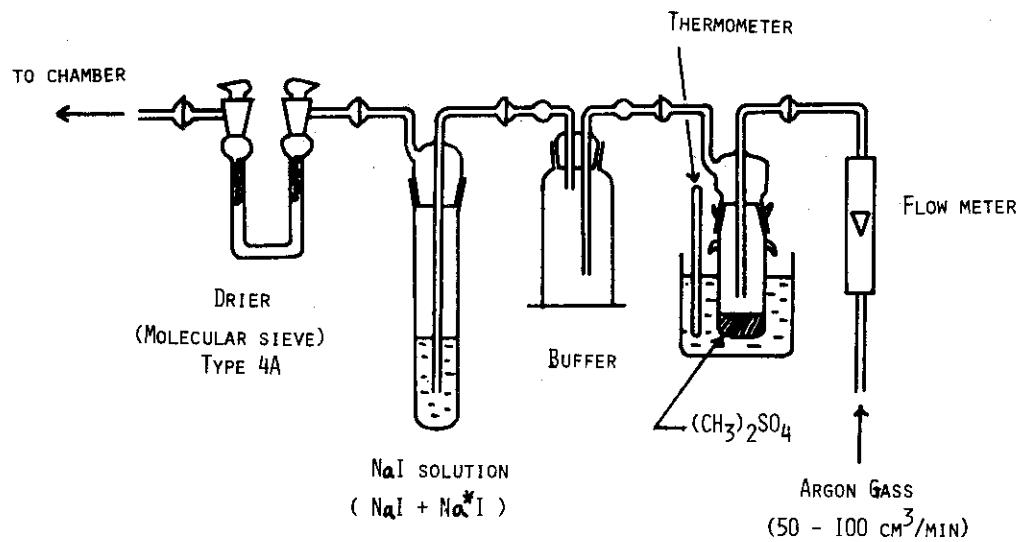


Fig. 4 Methyl iodide generator (Dimethyl sulfate method)

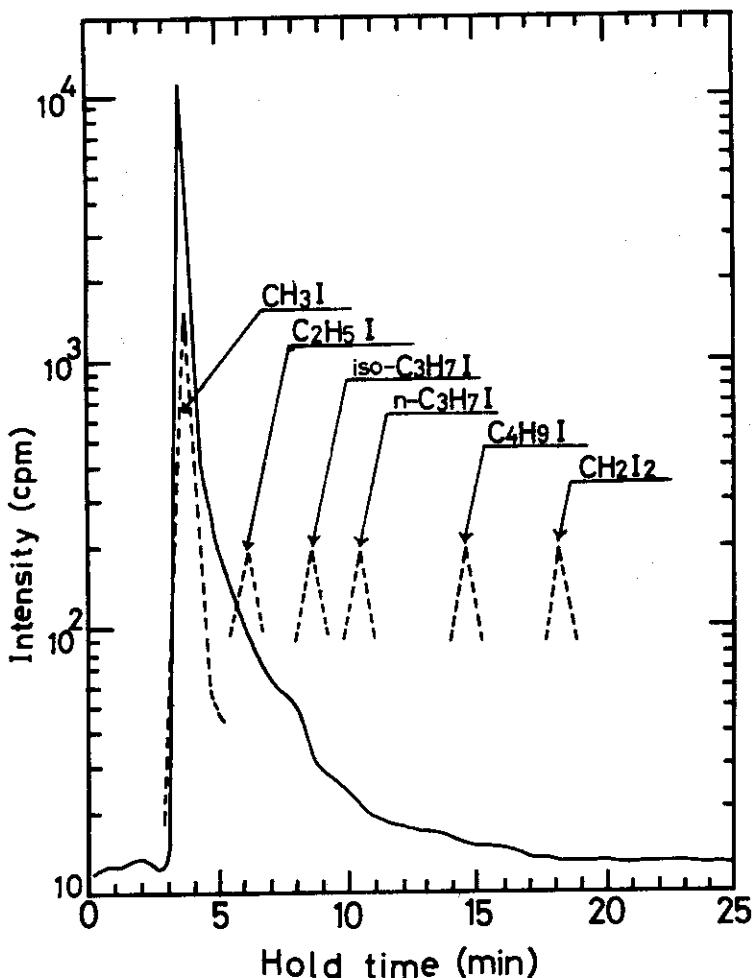


Fig. 5 Species of organic iodine in experimental chamber identified with radiogaschromatography.

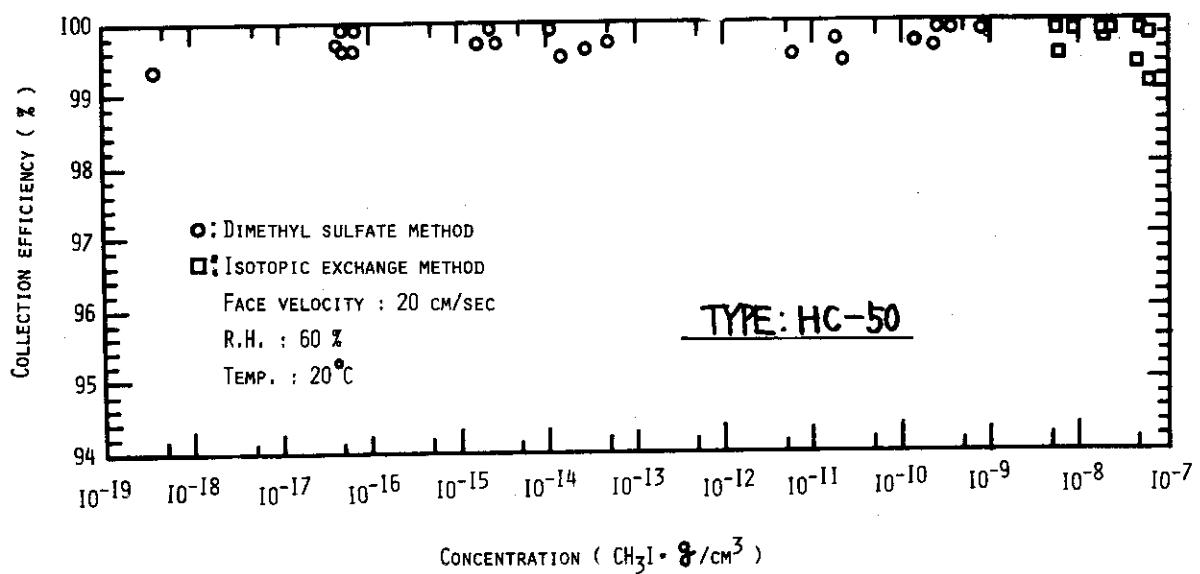


Fig. 6 Collection efficiency of impregnated charcoal for CH₃I (5% TEDA, 50 mesh, 1 cm thick)

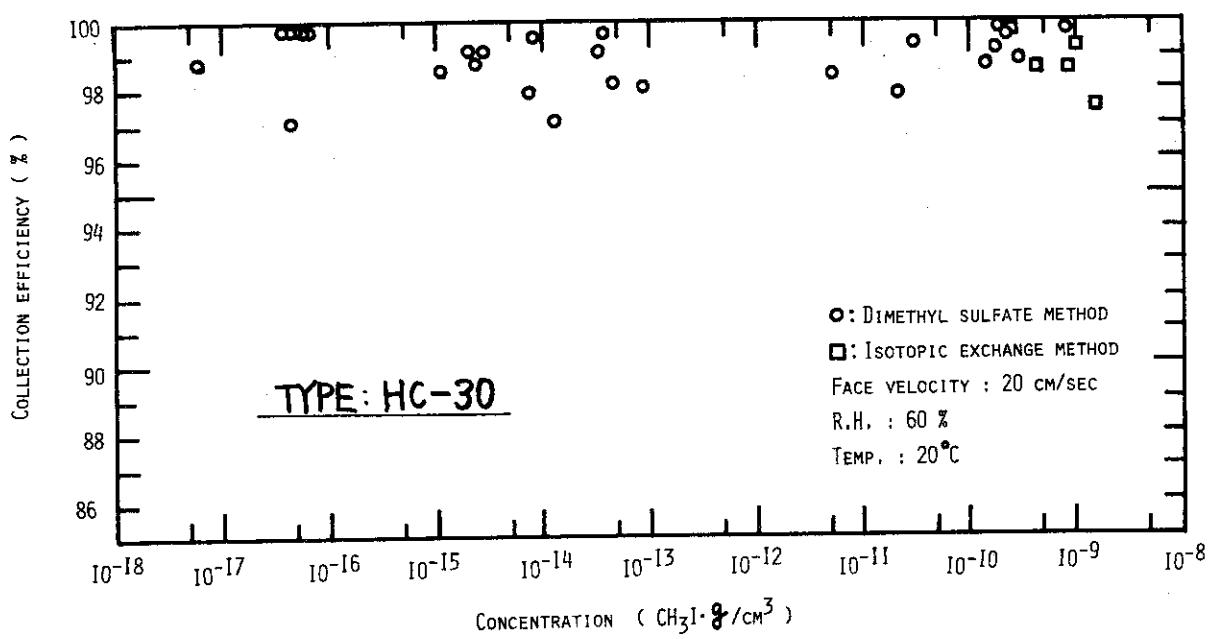


Fig. 7 Collection efficiency of impregnated charcoal for CH_3I
(5% TEDA, 30 mesh, 1 cm thick)

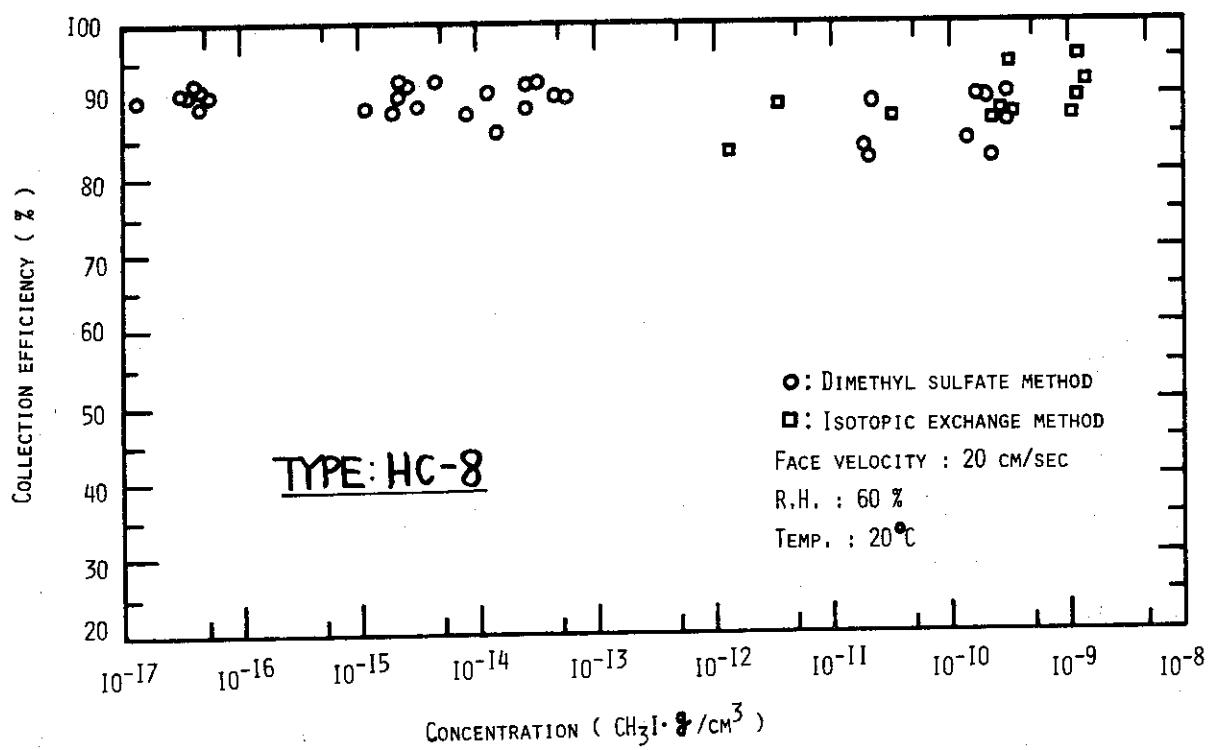


Fig. 8 Collection efficiency of impregnated charcoal for CH_3I
(5% TEDA, 8 mesh, 1 cm thick)