

JAERI-M

9408

メイパックサンプルによるヨウ素種
の定量的評価法

1981年3月

野口 宏・村田幹生・土岡吉喜*

松井 浩・国分守信

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

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.

メイパックサンプラによるヨウ素種の定量的評価法

日本原子力研究所東海研究所保健物理部

野口 宏・村田 幹生・土岡 吉喜*

松井 浩・国分 守信

(1981年2月13日受理)

メイパックサンプラは、浮遊性の放射性ヨウ素の簡便な性状弁別装置として、広く用いられてきた。しかし、その定量的測定については多くの問題点が残されている。そこで、種々の放射性ヨウ素に対するメイパックサンプラの詳細な捕集特性を調べ、各ヨウ素種の存在割合を精度よく求めるための評価法を検討した。

A Method of Quantitative Measurement of Radioiodine
Species Using Maypack Sampler

Hiroshi NOGUCHI, Mikio MURATA, Yoshiki THUCHIOKA*
Hiroshi MATSUI and Morinobu KOKUBU

Division of Health Physics,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received February 13, 1981)

Maypack sampler has been used widely to differentiate airborne radioiodine species. However, there are many problems with respect to the quantitative measurement. Present work describes the performance of Maypack sampler for various airborne iodine species and discusses the methods to estimate quantitatively the fraction of each iodine species.

Keywords: Maypack sampler, Radioiodine, Methyl iodide
Elemental iodine, Hypoiodous acid, Aerosol,
Differentiation of iodine species,
Quantitative measurement.

* Koken Ltd.

目 次

1. 緒 言	1
2. 実験方法	2
2.1 メイパックサンプラの捕集要素	2
2.2 実験装置と放射性ヨウ素の発生	3
3. 実験結果	4
3.1 ヨウ化メチルの捕集特性	4
3.2 元素状ヨウ素の捕集特性	6
3.3 次亜ヨウ素酸の捕集特性	8
3.4 粒子フィルタのエアロゾル捕集特性	9
3.5 捕集特性のまとめ	9
4. 考 察	10
4.1 メイパックサンプラの構成と捕集条件	10
4.2 ヨウ素種の存在割合の評価法	11
4.2.1 計算式	11
4.2.2 適用例	14
5. 結 言	15
謝 辞	16
参 考 文 献	17
付録 I 銀網のエアロゾル捕集特性	34

Contents

1.	Introduction	1
2.	Experimental	2
2.1	Components of Maypack sampler	2
2.2	Test apparatus and preparation of radioiodine	3
3.	Results	4
3.1	Methyl iodide retention on Maypack components	4
3.2	Elemental iodine retention on Maypack components	6
3.3	Hypiodous acid retention on Maypack components	8
3.4	Aerosol retention on membrane filters	9
3.5	Summary of iodine retention in Maypack sampler	9
4.	Discussion	10
4.1	Optimum arrangement of Maypack components and sampling conditions	10
4.2	Methods to estimate the fraction of iodine species	11
4.2.1	Empirical equations for estimating the fraction of iodine species	11
4.2.2	Application of the equations	14
5.	Conclusions	15
	Acknowledgement	16
	References	17
	Appendix I Aerosol retention on silver plated copper screens	34

1. 緒 言

放射性ヨウ素は、内部被曝の観点から特に重要な核種と見なされている。原子炉格納容器内あるいは環境中における浮遊性ヨウ素の挙動を知ることは、施設の安全性の評価および環境での被曝線量評価の上できわめて重要である。そのため、いろいろな雰囲気中での放射性ヨウ素の物理的および化学的形態について、現在まで多くの研究がなされてきた。

格納容器中の浮遊性ヨウ素の物理的、化学的形態を簡便に調べるために、1962年に Megaw と May は、今日のメイパックサンプラの基礎となるヨウ素の形態別分離捕集装置を開発した⁽¹⁾。彼らはヨウ素の形態を測定するために、次のような2つの型のサンプラを用いた。ひとつは2枚の活性炭含浸フィルタの間に粒子用フィルタ（以下粒子フィルタと略す）を入れた型であり、ひとつはミリポアフィルタ、2枚の活性炭含浸フィルタおよび粒状活性炭ベッドから構成されたものであった。後者の型は、以後多数の研究者によって改良され、その方式は少しずつ異ってきているが、この種のサンプラは一般にメイパックサンプラと呼ばれている。Megaw らは、格納容器内に放射性的元素状ヨウ素（ I_2 ）を放出した後、これらのサンプラを用いて、ヨウ素の形態を調べた。その結果、 I_2 以外に大気中に残存していた放射性ヨウ素は、エアロゾル粒子に付着したものと2種類のガス状ヨウ素化合物から成ると推定した。その後、このヨウ素化合物のひとつはヨウ化メチルと同定された⁽²⁾。

Keller らは、改良型メイパックサンプラを開発し、種々の条件で元素状ヨウ素に対する捕集試験を行った⁽³⁾。サンプラは1枚あるいは数枚の粒子フィルタ、数枚の銀メンブランフィルタ、KI 添着活性炭および後段の粒子フィルタから構成されていた。また、ホルダーは I_2 の付着を最小にするためにガラスとテフロンで作られた。彼らはこのサンプラの特性を調べた結果、前段の粒子フィルタに I_2 の一部が吸着することおよび低濃度において銀メンブランフィルタの捕集効率が低下することなどの問題点を指摘した。ただし、後者の問題については不純物の存在のためと推論した。

Parsly は、Nuclear Safety Pilot Plant でのメイパックサンプラの使用経験について報告している⁽⁴⁾。その中で、特に相対湿度100%における銀網の I_2 捕集効率低下、入口バルブへの粒子状物質の沈着および活性炭フィルタの役割の不明確さ等の問題点を指摘した。最終的に、彼は5枚の銀網、粒子フィルタおよび活性炭ベッドで構成されたサンプラを提案した。

Bennett らは、粒子フィルタを前に置いた場合の I_2 吸着の問題および逆に銀網を前に置いた場合の粒子沈着の問題を解決するために、粒子と I_2 の拡散係数の差を利用した I_2 捕集用のハニカム構造を持つ銀めっきパックを開発した⁽⁵⁾。これを用いて、銀めっきハニカムパック、粒子フィルタ、ヨウ素添着活性炭ベッドおよび後段の粒子フィルタから構成されるサンプラを提案した。

McCormack は、粒子フィルタ、銀網、銀メンブランフィルタ、活性炭フィルタおよび活性炭ベッドから構成されたメイパックサンプラの捕集特性に対する温度、相対湿度、ヨウ素濃度の効果を詳細に調べた⁽⁶⁾。その結果、メイパックサンプラはヨウ素サンプリングにおいて非常に

有用な弁別装置となり得るが、弁別結果に対する補正の必要な場合もあることを報告した。しかし、実際に適用する際に必要な定量的な解析法および活性炭フィルタの特性と役割等については明確にされなかった。

Keller⁽⁷⁾やKabat⁽⁸⁾は、浮遊性ヨウ素種のひとつとして次亜ヨウ素酸の存在を示唆し、同時にKellerは、粒子フィルタ、元素状ヨウ素捕集用のヨウ化カドミウム添着クロモソープ、次亜ヨウ素酸捕集用の4ヨードフェノール添着アルミナ、ヨウ化メチル捕集用の銀ゼオライトから構成されたKeller型サンプラを開発した⁽⁹⁾。

成富らは、McCormackのメイパックサンプラと類似した形式で、次亜ヨウ素酸を捕集する手段として、石炭酸を添着した活性炭フィルタを開発し、メイパックサンプラの改良を行った⁽¹⁰⁾。この改良型メイパックサンプラは、ミリポアフィルタ、銀網または銀フィルタ、石炭酸添着活性炭フィルタ、TEDA添着活性炭ベッドから構成されている。彼らは、特に高温高湿度雰囲気⁽¹¹⁾にこのサンプラを適用した。

メイパックサンプラは、以上のように種々の改良が加えられて、ヨウ素種の弁別捕集に有用な装置として発展してきた。しかし、これらのメイパックサンプラの多くは、格納容器内のヨウ素挙動を調べる目的で使用されてきたものであり、環境あるいはそれに近い条件下でのヨウ素の分離捕集特性や微量のヨウ素種を精度よく求める場合の定量的解析法等については、まだ多くの問題点が残されている。

筆者らは、これまで、成富らの開発した改良型メイパックサンプラを用いて、放射性ヨウ素種の弁別を行ってきた⁽¹¹⁾。しかし、その捕集特性について、いくつかの問題が生じてきた。例えば、粒子フィルタへの元素状ヨウ素の吸着、次亜ヨウ素酸の粒子フィルタや銀網への吸着、ヨウ化メチルの活性炭フィルタへの吸着等に関する問題である。

定量性については、従来、メイパックサンプラは各ヨウ素種の存在割合を数%の精度で定量する装置として利用されてきた。しかし、その捕集特性を適切に利用することにより、さらに定量の精度を向上させ得ると考えられる。

そこで、筆者らは、放射性ヨウ素種として一般に原子力施設から放出されるといわれているヨウ化メチル、元素状ヨウ素、次亜ヨウ素酸等を用い、種々の条件のもとで、改良型メイパックサンプラの捕集特性を調べた。これを基礎に、各ヨウ素種の存在割合を、従来よりさらに正確に評価するためのメイパックサンプラの構成と捕集条件および計算法の検討を行った。

2. 実験方法

2.1 メイパックサンプラの捕集要素

実験に用いたメイパックサンプラは、成富らの改良型メイパックサンプラと同種のものである。概略図をFig. 1に示す。サンプラ内の各捕集要素とその配列順は入口から、粒子状ヨウ素捕集用の粒子フィルタ、元素状ヨウ素捕集用の銀網、無機ヨウ素（特に次亜ヨウ素酸）捕集

有用な弁別装置となり得るが、弁別結果に対する補正の必要な場合もあることを報告した。しかし、実際に適用する際に必要な定量的な解析法および活性炭フィルタの特性と役割等については明確にされなかった。

Keller⁽⁷⁾やKabat⁽⁸⁾は、浮遊性ヨウ素種のひとつとして次亜ヨウ素酸の存在を示唆し、同時にKellerは、粒子フィルタ、元素状ヨウ素捕集用のヨウ化カドミウム添着クロモソープ、次亜ヨウ素酸捕集用の4ヨードフェノール添着アルミナ、ヨウ化メチル捕集用の銀ゼオライトから構成されたKeller型サンプラを開発した⁽⁹⁾。

成富らは、McCormackのメイパックサンプラと類似した形式で、次亜ヨウ素酸を捕集する手段として、石炭酸を添着した活性炭フィルタを開発し、メイパックサンプラの改良を行った⁽¹⁰⁾。この改良型メイパックサンプラは、ミリポアフィルタ、銀網または銀フィルタ、石炭酸添着活性炭フィルタ、TEDA添着活性炭ベッドから構成されている。彼らは、特に高温高湿度雰囲気⁽¹¹⁾にこのサンプラを適用した。

メイパックサンプラは、以上のように種々の改良が加えられて、ヨウ素種の弁別捕集に有用な装置として発展してきた。しかし、これらのメイパックサンプラの多くは、格納容器内のヨウ素挙動を調べる目的で使用されてきたものであり、環境あるいはそれに近い条件下でのヨウ素の分離捕集特性や微量のヨウ素種を精度よく求める場合の定量的解析法等については、まだ多くの問題点が残されている。

筆者らは、これまで、成富らの開発した改良型メイパックサンプラを用いて、放射性ヨウ素種の弁別を行ってきた⁽¹¹⁾。しかし、その捕集特性について、いくつかの問題が生じてきた。例えば、粒子フィルタへの元素状ヨウ素の吸着、次亜ヨウ素酸の粒子フィルタや銀網への吸着、ヨウ化メチルの活性炭フィルタへの吸着等に関する問題である。

定量性については、従来、メイパックサンプラは各ヨウ素種の存在割合を数%の精度で定量する装置として利用されてきた。しかし、その捕集特性を適切に利用することにより、さらに定量の精度を向上させ得ると考えられる。

そこで、筆者らは、放射性ヨウ素種として一般に原子力施設から放出されるといわれているヨウ化メチル、元素状ヨウ素、次亜ヨウ素酸等を用い、種々の条件のもとで、改良型メイパックサンプラの捕集特性を調べた。これを基礎に、各ヨウ素種の存在割合を、従来よりさらに正確に評価するためのメイパックサンプラの構成と捕集条件および計算法の検討を行った。

2. 実験方法

2.1 メイパックサンプラの捕集要素

実験に用いたメイパックサンプラは、成富らの改良型メイパックサンプラと同種のものである。概略図をFig. 1に示す。サンプラ内の各捕集要素とその配列順は入口から、粒子状ヨウ素捕集用の粒子フィルタ、元素状ヨウ素捕集用の銀網、無機ヨウ素（特に次亜ヨウ素酸）捕集

用の石炭酸添着活性炭フィルタ（以下活性炭フィルタと略す）、有機ヨウ素（特にヨウ化メチル）捕集用のTEDA添着活性炭カートリッジ（以下活性炭カートリッジと略す）である。

元素状ヨウ素の捕集要素として、銀網以外に銅網も用いた。銅網は元素状ヨウ素に対する捕集性能を上げるために、ヨウ化水素酸でエッチング処理を行った⁽¹³⁾。各捕集要素の詳細をTable 1に示す。

本実験では、粒子フィルタを銀網あるいは銅網の前段に配置した場合について実験を行ったが、どちらを前段に置くべきかという配列順に関しては、それぞれ長所と短所があるので、付録においてこの問題を検討した。

ホルダーは金属製であるが、入口部はヨウ素の吸着を少なくするためにテフロン製とした。

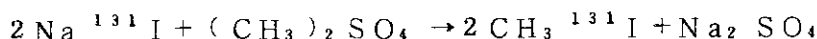
2.2 実験装置と放射性ヨウ素の発生

(1) 実験装置

実験装置の概略図をFig. 2に示す。装置は放射性ヨウ素発生部、相対湿度調整部、メイパックサンプルおよび活性炭トラップ等から構成されている。

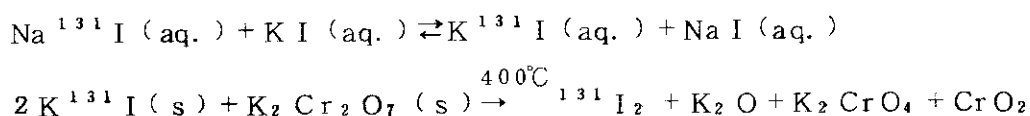
(2) 放射性ヨウ素の発生

放射性ヨウ化メチルの発生は、 ^{131}I で標識したヨウ化ナトリウムと硫酸ジメチルとの反応を利用した。反応式を次に示す。

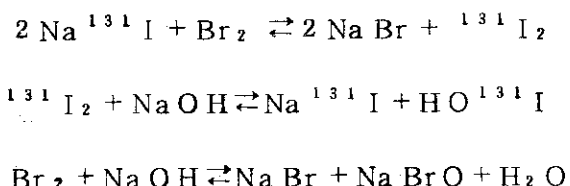


放射性ヨウ化メチルの比放射能は、非放射性のヨウ化カリウムを適当量加えることにより調節した。

放射性元素状ヨウ素の発生は、 ^{131}I で標識したヨウ化ナトリウムおよび非放射性ヨウ化カリウムと重クロム酸カリウムとの反応を利用した⁽¹⁴⁾。反応式を次に示す。



放射性次亜ヨウ素酸は、Kabat が提案した次の反応によって発生させた⁽⁸⁾。



この方法によると発生ガスの90%以上が次亜ヨウ素酸になっていると報告されている⁽⁸⁾。

(3) 相対湿度と面積

発生した放射性ヨウ素を希釈するための空気として、HEPAフィルタでろ過した室内空気をを用いた。その空気の相対湿度は、主に、20%以下、50%、90%以上の3種類に設定し

た。20%以下の乾燥条件はシリカゲルを、50と90%以上の相対湿度については水バブラと冷却塔を用いて調整した。温度は常温としたので、15~25℃の間であった。相対湿度と温度は、相対湿度調整部の後、トラップ部の前において測定し、連続記録した。

マイパックサンプラの捕集流量率は通常 6 l/min 、面速 10 cm/sec に設定し、必要に応じ、他の値に変更した。

(4) 捕集割合の測定

マイパックサンプラの各捕集要素に捕集された放射能は、捕集後、各要素毎にウェル型シンチレーションカウンタで定量した。各計数率は測定効率の補正を行った後、全捕集放射能に対する比を求め、各要素毎の捕集割合とした。

3. 実験結果

3.1 ヨウ化メチルの捕集特性

(1) ヨウ化メチルの捕集分布

ヨウ化メチルの捕集分布の1例をFig. 3に示す。ヨウ化メチルは、粒子フィルタと銀網にはほとんど捕集されず、大部分がTEDA添着活性炭カートリッジに捕集された。しかし、従来から問題となっていたように、一部は石炭酸添着活性炭フィルタに捕集された。

(2) 活性炭カートリッジのヨウ化メチル捕集特性

活性炭カートリッジは、厚さ1cmのものを2段用いたが、本実験条件の範囲では、大部分のヨウ化メチルは1段目に捕集された。2段目の捕集割合は、相対湿度が90%以上の場合、捕集時間が長くなるにつれて増加した。例えば、相対湿度90%、流量率 6 l/min の条件で、捕集時間が5分の場合には2段目の捕集割合は2%以下になったが、30分の場合には約8%になった。したがって、捕集時間が30分以下の場合には、2cm厚のTEDA添着活性炭でヨウ化メチルを充分捕集できる。しかし、捕集時間がより長くなった場合は、さらに厚くする必要があると考えられる。

(3) 石炭酸添着活性炭フィルタへのヨウ化メチル吸着

活性炭フィルタへのヨウ化メチルの吸着は、無機および有機ヨウ素成分の評価において誤差となるため、この吸着量をできるだけ少なくするとともに、正確に評価し補正することが必要である。

活性炭フィルタのヨウ化メチル捕集割合と捕集時間の関係を、相対湿度および流量率をパラメタとして、Fig. 4に示す。ここで、ヨウ化メチル捕集割合の値は2枚の活性炭フィルタの合計である。また、ヨウ化メチルの質量濃度は $10^{-8} \sim 10^{-9} \text{ g/cm}^3$ であった。結果として、捕集時間、相対湿度および流量率が増加するにつれて、捕集割合は減少した。特に相対湿度による影響は大きく、捕集時間30分、流量率 2 l/min の場合、相対湿度が20%以下では、捕集割合が10%以上であるのに対し、95%では約1%であり、1桁の違いを生じた。

ヨウ化メチルの質量濃度を $10^{-14} \sim 10^{-13} \text{ g/cm}^3$ に低くし、他の条件は同じにした場合

た。20%以下の乾燥条件はシリカゲルを、50と90%以上の相対湿度については水バブラと冷却塔を用いて調整した。温度は常温としたので、15~25℃の間であった。相対湿度と温度は、相対湿度調整部の後、トラップ部の前において測定し、連続記録した。

マイパックサンプラの捕集流量率は通常 6 l/min 、面速 10 cm/sec に設定し、必要に応じ、他の値に変更した。

(4) 捕集割合の測定

マイパックサンプラの各捕集要素に捕集された放射能は、捕集後、各要素毎にウェル型シンチレーションカウンタで定量した。各計数率は測定効率の補正を行った後、全捕集放射能に対する比を求め、各要素毎の捕集割合とした。

3. 実験結果

3.1 ヨウ化メチルの捕集特性

(1) ヨウ化メチルの捕集分布

ヨウ化メチルの捕集分布の1例をFig. 3に示す。ヨウ化メチルは、粒子フィルタと銀網にはほとんど捕集されず、大部分がTEDA添着活性炭カートリッジに捕集された。しかし、従来から問題となっていたように、一部は石炭酸添着活性炭フィルタに捕集された。

(2) 活性炭カートリッジのヨウ化メチル捕集特性

活性炭カートリッジは、厚さ1cmのものを2段用いたが、本実験条件の範囲では、大部分のヨウ化メチルは1段目に捕集された。2段目の捕集割合は、相対湿度が90%以上の場合、捕集時間が長くなるにつれて増加した。例えば、相対湿度90%、流量率 6 l/min の条件で、捕集時間が5分の場合には2段目の捕集割合は2%以下になったが、30分の場合には約8%になった。したがって、捕集時間が30分以下の場合には、2cm厚のTEDA添着活性炭でヨウ化メチルを充分捕集できる。しかし、捕集時間がより長くなった場合は、さらに厚くする必要があると考えられる。

(3) 石炭酸添着活性炭フィルタへのヨウ化メチル吸着

活性炭フィルタへのヨウ化メチルの吸着は、無機および有機ヨウ素成分の評価において誤差となるため、この吸着量をできるだけ少なくするとともに、正確に評価し補正することが必要である。

活性炭フィルタのヨウ化メチル捕集割合と捕集時間の関係を、相対湿度および流量率をパラメタとして、Fig. 4に示す。ここで、ヨウ化メチル捕集割合の値は2枚の活性炭フィルタの合計である。また、ヨウ化メチルの質量濃度は $10^{-8} \sim 10^{-9} \text{ g/cm}^3$ であった。結果として、捕集時間、相対湿度および流量率が増加するにつれて、捕集割合は減少した。特に相対湿度による影響は大きく、捕集時間30分、流量率 2 l/min の場合、相対湿度が20%以下では、捕集割合が10%以上であるのに対し、95%では約1%であり、1桁の違いを生じた。

ヨウ化メチルの質量濃度を $10^{-14} \sim 10^{-13} \text{ g/cm}^3$ に低くし、他の条件は同じにした場合

の結果をFig. 5に示す。Fig. 5はFig. 4とほぼ同じ結果を示し、濃度による違いは見られなかった。

Fig. 4と5の各データについて、横軸を捕集時間と流量率の積、すなわち捕集流量に換算してプロットしなおすと、それぞれFig. 6と7のようになる。その結果、各点は、流量率が 2 l/min から 6 l/min の範囲では、相対湿度のみをパラメタとした曲線を形成し、流量率すなわち面速による違いがなくなった。このことから、活性炭フィルタへのヨウ化メチルの吸着は、活性炭フィルタを通過した全流量と相対湿度に依存すると考えられる。また、Fig. 6と7の比較からも、濃度による差はほとんどないことがわかった。

(4) ヨウ化メチルの脱着

ヨウ化メチルを捕集した後の活性炭フィルタに清浄空気を流し(以下捕集後通気と略す)、活性炭フィルタからの脱着特性を調べた。捕集後通気だけの効果を調べるためには、捕集時間はできるだけ短い方がよいと考えられる。そこで、メイパックサンプラの入口において、清浄な空気の流れに、マイクロシリンジでヨウ化メチル蒸気をパルス状に 0.5 ml 注入し、約1秒間で捕集を終え、その後、通気を行った。この結果をFig. 8に示す。捕集後の通気時間が0のとき、相対湿度が20%以下では捕集割合は80%以上に、また相対湿度が50%以上では捕集割合は30%以上になった。しかし、通気時間が増加するにつれて捕集割合は急速に減少し、相対湿度50%以上、通気時間30分のとき、0.3~0.4%になった。したがって、捕集後通気はヨウ化メチルの捕集割合を減少させるのに非常に有効であるといえる。

次に、捕集時間がより長い場合について捕集後通気の効果調べた。Fig. 9は捕集流量率と時間が、それぞれ 6 l/min 、 5 min と 1 l/min 、 0.5 min で捕集した後、各流量率で捕集後通気を行った場合の結果を示している。ヨウ化メチルの捕集割合は、 6 l/min の場合はFig. 8と同様、通気時間とともに急速に減少し、相対湿度が92%、30分の捕集後通気で約0.3%となった。しかし、捕集流量率が 1 l/min の場合は、相対湿度が92%、30分の捕集後通気でも5%以上の捕集割合になった。また、相対湿度が高い方が脱着しやすいこともFig. 8と同様であった。

Fig. 8と9のデータについて、横軸を捕集後の通気流量に換算してプロットすると、それぞれFig. 10と11のようになる。ただし、Fig. 11の流量は捕集流量と通気通量を加えた値である。Fig. 11において、相対湿度が20%以下の場合、捕集流量率 1 l/min の方が 6 l/min よりも捕集割合が低くなる傾向を示しているが、相対湿度が92%の場合は、流量率にあまり依存しないことがわかった。Fig. 10と11を比較すると曲線はほぼ一致し、相対湿度が50%以上、流量が 180 l の場合、2枚の活性炭フィルタの捕集割合は約0.3%になった。

以上のことから、捕集後、相対湿度の高い清浄空気で通気を行うことは、ヨウ化メチルの活性炭フィルタへの捕集割合を小さくするために非常に有効であることがわかった。また、捕集割合は質量濃度にあまり依存しないことから、ある所定の条件で捕集および捕集後通気を行うことにより、活性炭フィルタへのヨウ化メチルの捕集割合を推定することができると考えられる。

(5) 複数枚の活性炭フィルタによる捕集特性

活性炭フィルタを複数枚使用した場合の1枚目と2枚目のヨウ化メチル捕集量について調べた。その結果、捕集流量がきわめて少ない場合を除き、それらの捕集量はほぼ等しく、その1枚目と2枚目の比は 1.0 ± 0.2 となった。この比は濃度や捕集後通気の流量にはほとんど関係しなかった。このことから、ヨウ化メチルと無機ヨウ素が混在していても、活性炭フィルタを複数枚使用することにより、活性炭フィルタ上のヨウ化メチルの捕集割合を次のように推定することができる。すなわち、無機ヨウ素が前段の活性炭フィルタですべて捕集された場合には、後段に捕集された成分はヨウ化メチルであり、それと等しい捕集割合で前段にも捕集されていると考えられる。したがって、後段の捕集割合から全活性炭フィルタのヨウ化メチルの捕集割合を推定することができる。この推定法は、(4)で述べた所定の捕集条件から捕集割合を推定する方法に比べ、メイパックサンプラの構成が複雑になる欠点があるが、捕集条件の影響をあまり受けないため、より精度がよくなるという利点がある。

3.2 元素状ヨウ素の捕集特性

(1) 元素状ヨウ素の捕集分布

元素状ヨウ素 (I_2) の捕集分布の1例をFig. 12に示す。 I_2 は大部分が I_2 捕集用の銀網あるいは銅網に捕集されたが、一部は粒子フィルタ、活性炭フィルタおよび活性炭カートリッジに捕集された。

(2) 銀網と銅網の I_2 捕集特性

銀網および銅網の I_2 捕集割合は、1枚目が70%以上であり、以後指数関数的に減少した。片対数グラフ上で、銀網および銅網の1枚目と2枚目の値を結ぶ直線の傾き、すなわち $A_2 = A_1 e^{-\mu}$ (A_1, A_2 はそれぞれ1, 2枚目の捕集割合、 μ は傾き) における μ を求めた。その結果、銀網は 2.4 ± 0.8 、銅網は 1.4 ± 0.4 であった。この差は、メッシュサイズが銀網が80メッシュであるのに対し、銅網は60メッシュであるために生じたと考えられる。

この傾き (μ) が濃度に関係なく一定であるとして、銀網あるいは銅網に入ってきた I_2 に対する捕集効率を計算すると、5枚の銀網に対しては $100 \pm 0.03\%$ 、銅網に対しては $99.9 \pm 0.6\%$ となる。すなわち、6枚目以後の I_2 の透過率は、銀網では $0 \pm 0.03\%$ 、銅網では $0.1 \pm 0.6\%$ となる。しかし、実際には6~10枚目あるいは11~15枚目の銀網や銅網にもわずかな放射能が検出された。実験値より、銀網1~10枚に捕集された放射能に対する6~10枚の放射能の割合を求めると、 $0.35 \pm 0.59\%$ になった。また、銅網に対しては $0.21 \pm 0.05\%$ になった。いずれの場合も、 μ を用いて計算した透過率よりも大きくなっている。特に、銀網の場合は顕著である。この成分が I_2 であると仮定すると、メイパックサンプラに銀網あるいは銅網を5枚用いた場合、これらの漏洩した I_2 の分を補正する必要が生ずる。

Keller や MaCormack は、元素状ヨウ素の濃度が低くなると、 I_2 捕集要素 (銀メンブランフィルタや銀網) の捕集効率が低下すると述べているが、⁽³⁾⁽⁶⁾ この原因は、 I_2 以外の無機あるいは有機ヨウ素種が生成されたためであると推論している。本実験の I_2 の生成法は、Keller らと同様の重クロム酸カリウムによる酸化反応を利用しているため、発生容器中で I_2 以外の

無機ヨウ素種が生成される可能性がある。このように生成された無機ヨウ素種は、主に活性炭フィルタに捕集されると考えられるが、銀網や銅網にも捕集される性質を持つとすれば、6枚目以後の放射能に寄与すると考えられる。ただし、 I_2 の負荷量が大きいとき、6枚目以後にも明らかに I_2 が検出される場合がある。このような場合には、6枚目以後をすべて I_2 以外の無機ヨウ素種であると考えすることはできない。

本報では、4.2.1で述べるように I_2 の存在割合を求める場合、銀網あるいは銅網の6枚目以後にも I_2 は若干漏洩するが、10枚目までに完全に捕集され、11～15枚目の成分は I_2 以外の無機ヨウ素種であるとして計算を行っている。

(3) 活性炭カートリッジと活性炭フィルタに捕集された成分

活性炭カートリッジに捕集された成分は、 I_2 の発生直後に多く検出され、その後減少した。したがって、この成分は、 I_2 発生時に発生器内に副産物として生成され、残存していた有機ヨウ素種と考えられる。

活性炭フィルタに捕集された成分は、その1枚目と2枚目の捕集割合の比が捕集後に通気した場合においても大きな値を示していたことおよび15枚の銀網によって I_2 がほとんど捕集されたと考えられる場合にも吸着していたことなどから判断して、ヨウ化メチルや元素状ヨウ素以外の無機ヨウ素種と考えられる。

(4) 粒子フィルタの I_2 捕集特性

粒子フィルタ上の成分は、主に I_2 と考えられるが、粒子フィルタの1枚目には粒子状ヨウ素も一部捕集されていると考えられる。粒子フィルタに吸着した元素状ヨウ素は評価上誤差の原因となるので、できるだけ吸着量を少なくするとともに、この量を正確に知る必要がある。

粒子フィルタからの元素状ヨウ素の捕集後通気による脱着特性をFig. 13に示す。流量率が 6 l/min で30分以上の通気により約50%が脱着し、捕集後の通気が有効であることがわかった。また、 6 l/min で30分通気したときに残存した I_2 の捕集割合は1枚で 0.66 ± 0.31 (%)であった。

複数枚の粒子フィルタを使用した場合、活性炭フィルタに対するヨウ化メチルの場合と同様、 I_2 の捕集割合は各粒子フィルタにおいて等しくなると考えられる。このことは、次のような比によって確認できる。粒子フィルタの1枚目は粒子状ヨウ素捕集の可能性もあるため、1枚目は使用せず、2枚目と3枚目の比を求めた。その結果、その比は 1.1 ± 0.2 になり、2枚目と3枚目はほぼ同量の I_2 を捕集することがわかった。すなわち、粒子フィルタを2枚以上使用すれば、2枚目以降のヨウ素種を I_2 と見なし、1枚目と2枚目の差が粒子状ヨウ素によるものであると推定することができる。

(5) 粒子フィルタへの I_2 吸着の濃度の影響

粒子フィルタへの I_2 吸着割合は I_2 の質量濃度に依存するとの報告がある⁽⁶⁾。そこで、粒子フィルタの I_2 捕集に関する濃度依存性を調べた。その結果をFig. 14に示す。横軸は I_2 の質量濃度、縦軸は銀網5枚に捕集された放射能に対する粒子フィルタ1枚に捕集された放射能の割合を表わしている。相対湿度や捕集時間等の違いによって、実験値は0.6～3%の間でばらついているが、顕著な濃度依存性は見られなかった。実線はMaCormarck による

Gelman Type A ガラス繊維フィルタに対する同様な実験結果である⁽⁶⁾。図よりミリポアフィルタはガラスフィルタよりも I_2 捕集割合が低く、また濃度依存性も少ないといえる。

3.3 次亜ヨウ素酸の捕集特性

(1) 次亜ヨウ素酸の捕集分布

I_2 の捕集要素として銀網を用いた場合の次亜ヨウ素酸 (HOI) の捕集分布の 1 例を Fig. 15 に示す。放射能は活性炭フィルタ以外の捕集要素にも多く検出された。特に銀網にはかなりの割合が捕集された。HOI の存在割合を評価する場合、このことは大きな誤差になると考えられる。

(2) 銀網・銅網の次亜ヨウ素酸捕集特性

HOI に対する最初の 5 枚の銀網の捕集割合は $22 \pm 5\%$ であった。この銀網に捕集された成分は、捕集後通気によってほとんど脱着しないことから、化学的に結合していると考えられる。銀網のかわりに銅網を用いた場合の例を Fig. 16 に示す。銅網の捕集割合は銀網に比べ大きく減少し、最初の 5 枚の銅網に対して $3.3 \pm 0.8\%$ であった。このため HOI の存在が予想されるヨウ素種の雰囲気においては、銅網を用いた方が分離性能が向上すると考えられる。銅網に吸着したヨウ素も銀網と同様、捕集後通気によって脱着しなかった。

銀網の HOI 捕集割合は、後段になるにつれて徐々に減少する傾向を示したが、銅網の場合は各段の捕集割合はほぼ等しい値を示した。このことから、銅網を使用すれば、後段に捕集されたヨウ素種を HOI と見なし、前段との差から I_2 の捕集割合を推定することができる。

(3) 活性炭フィルタの次亜ヨウ素酸捕集特性

1 枚目の活性炭フィルタの全捕集放射能に対する捕集割合は、前段に銅網を用いた場合 80% 以上であった。また、4 枚の活性炭フィルタに捕集された放射能に対する 1 枚目の捕集割合は平均で約 90% であり、ほとんど 1 枚目で捕集された。HOI を捕集した活性炭フィルタの捕集後通気による脱着特性を Fig. 17 に示す。1 枚目の捕集割合は値がばらついているため脱着ははっきりと認められないが、2 枚目からは後段に行くほど通気時間とともに捕集割合が増加した。これは、前段（とくに 1 枚目）から脱着した次亜ヨウ素酸が後段で捕集されたためと考えられる。この脱着は非常にゆっくりと起るので、次亜ヨウ素酸の活性炭フィルタによる捕集の面からは、ほとんど問題はないと考えられる。しかし、次亜ヨウ素酸とヨウ化メチルが共存する雰囲気からの捕集において活性炭フィルタの後段まで次亜ヨウ素酸が捕集された場合、これは活性炭フィルタのヨウ化メチル捕集割合を推定する上で大きな誤差になると考えられる。このような場合は、捕集後の通気時間が長くなりすぎないように適切な時間を選択するとともに、さらに活性炭フィルタの枚数を増加させる必要が生ずる。

(4) 粒子フィルタの次亜ヨウ素酸捕集特性

次亜ヨウ素酸は粒子フィルタにも吸着した。この成分も誤差の原因となるため、捕集量をできるだけ少なくするとともに正確に評価しなければならない。粒子フィルタからの次亜ヨウ素酸の脱着特性を Fig. 18 に示す。縦軸の捕集割合は粒子フィルタ 3 枚の合計値である。捕集後通気を行わない場合は、粒子フィルタの捕集割合は相対湿度の違いにより 3~7% にばらつ

いているが、通気時間が増加するにつれて、次亜ヨウ素酸は脱着し、30分で約1.3%になった。この値は粒子フィルタ1枚当りでは約0.43%になる。また、複数枚のフィルタを用いた場合1枚目と2枚目の捕集割合はほぼ等しく、その比は 1.1 ± 0.3 であった。これらの結果を用いて、元素状ヨウ素の場合と同様に、次亜ヨウ素酸の粒子フィルタへの吸着に対しても補正を行うことができると考えられる。

3.4 粒子フィルタのエアロゾル捕集特性

粒子フィルタのエアロゾル粒子に対する捕集効率を調べた。エアロゾルには、アーク放電によって発生させた銅粒子を用いた。エアロゾルの個数中央径は $0.018 \mu\text{m}$ 、標準偏差は1.5であった。個数濃度が 1.5×10^4 個/cm³ のエアロゾルを、粒子フィルタに流量率 $10 \ell/\text{min}$ で流し、その上流側と下流側の個数濃度を凝縮核測定器で測定した。その結果、粒子フィルタ1枚でも下流側にはほとんど粒子は検出されず、その捕集効率は約100%であった。

3.5 捕集特性のまとめ

以上得られた捕集特性を、各捕集要素毎にまとめて示す。

粒子フィルタ

- ① 粒子フィルタ1枚で、エアロゾル粒子は約100%捕集された。
- ② CH_3I は捕集されなかった。
- ③ I_2 と HOI はわずかに捕集された。しかし、捕集後の通気により、50%以上が脱着した。
- ④ 複数枚の粒子フィルタの I_2 捕集割合は、各段において等しくなった。
- ⑤ 複数枚の粒子フィルタの HOI 捕集割合は、各段において等しくなった。

銀網と銅網

- ① 銀網、銅網ともに I_2 に対する捕集割合は、1枚で70%以上であり、以後、指数関数的に減少した。
- ② CH_3I は捕集されなかった。
- ③ 銀網の HOI に対する捕集割合は、5枚で約22%であったが、銅網5枚では約3%であった。
- ④ 銅網の HOI 捕集割合は、各段においてほぼ等しい値であった。
- ⑤ 銀網や銅網に捕集された I_2 あるいは HOI は、捕集後の通気によって脱着しなかった。

石炭酸添着活性炭フィルタ

- ① 活性炭フィルタの HOI に対する捕集効率は1枚で約90%であった。
- ② 活性炭フィルタに捕集された HOI は、捕集後の通気により、徐々に脱着した。
- ③ CH_3I は活性炭フィルタに捕集されたが、捕集後の通気により、大部分が脱着した。脱着する速度は、通気流量と相対湿度に大きく依存した。
- ④ 複数枚の活性炭フィルタの CH_3I 捕集割合は、各段において等しくなった。

TEDA添着活性炭カートリッジ

① CH_3I の捕集割合は、本実験条件内では、2 cm厚の活性炭ではほぼ100%になった。

4. 考 察

4.1 メイパックサンプラの構成と捕集条件

メイパックサンプラを構成する捕集要素の種類、数および配列順やこれを用いるときの捕集条件を決定する上で考慮すべきことは、各ヨウ素種の割合を精度よく求められるように、できるだけヨウ素種を分離して捕集できることおよび補正が正確に行い得ることである。また、捕集の手順や放射能の測定等が簡便であることも重要である。しかし、これらの要求には相反していることがある。例えば、捕集要素の数をある程度まで多くすると、精度は向上すると考えられるが、その反面、準備、組み立て、測定等に要する時間が長くなることなどである。

そこで、メイパックサンプラの捕集要素の配列について次のような2種類の形式を検討し、実際に使用する時の状況によって、これらを使い分けることにした。これらの2種類のサンプラの構成をTable 2 に示す。ただし、メイパックサンプラの各捕集要素の仕様は、Table 1と同じである。

サンプラタイプ1

これは、ヨウ素種の存在割合を比較的精度よく求めることを重視したサンプラで、捕集要素の数が多き形式である。このサンプラによる推定法は、相対湿度や捕集後通気量等の捕集条件の影響を受けにくいと、精度がよくなると考えられる。このサンプラは、粒子フィルタ(3枚)、銅網(15枚)、活性炭フィルタ(数枚)^{*}および活性炭カートリッジ(2 cm厚)から構成される。銅網を使用したのは、次亜ヨウ素酸が存在した場合の精度を上げるためである。

捕集条件として、捕集流量率を6 l/minとした場合の捕集後通気の面速(流量率)、時間および相対湿度を、Table 2 に示す。相対湿度は、活性炭フィルタのヨウ化メチル吸着に最も大きな影響を及ぼす。この吸着を少なくするためには、相対湿度は高い方が望ましい。したがって、捕集後通気の相対湿度は50%以上がよいと考えられる。捕集後通気時間は、多くの場合長い方が望ましいが、次亜ヨウ素酸だけは活性炭フィルタから徐々に脱着するため短い方が望ましい。そのため、両方の条件を合せて考えると、捕集後通気の流量率が6 l/minの場合は、通気時間を30分程度とすることがよいと考えられる。このサンプラを用いた場合の解析法については、4.2で述べる。

サンプラタイプ2

これは、サンプラの準備や組み立ておよび放射能測定等を簡便に行うために、捕集要素の数を少なくして評価するための形式である。この方法はタイプ1に比べ精度は低下すると考えられる。このサンプラは、粒子フィルタ(1枚)、銀網あるいは銅網(5枚)、石炭酸添着活性

* 活性炭フィルタの枚数を数枚としたのは、次亜ヨウ素酸が少量しか存在しない場合は、4枚程度で充分であるが、大量に存在する場合は、捕集後通気による脱着のため4枚以上が必要と考えられるからである。

TEDA添着活性炭カートリッジ

①. CH_3I の捕集割合は、本実験条件内では、2 cm厚の活性炭ではほぼ100%になった。

4. 考 察

4.1 メイパックサンプラの構成と捕集条件

メイパックサンプラを構成する捕集要素の種類、数および配列順やこれを用いるときの捕集条件を決定する上で考慮すべきことは、各ヨウ素種の割合を精度よく求められるように、できるだけヨウ素種を分離して捕集できることおよび補正が正確に行い得ることである。また、捕集の手順や放射能の測定等が簡便であることも重要である。しかし、これらの要求には相反していることがある。例えば、捕集要素の数をある程度まで多くすると、精度は向上すると考えられるが、その反面、準備、組み立て、測定等に要する時間が長くなることなどである。

そこで、メイパックサンプラの捕集要素の配列について次のような2種類の形式を検討し、実際に使用する時の状況によって、これらを使い分けることにした。これらの2種類のサンプラの構成をTable 2 に示す。ただし、メイパックサンプラの各捕集要素の仕様は、Table 1と同じである。

サンプラタイプ1

これは、ヨウ素種の存在割合を比較的精度よく求めることを重視したサンプラで、捕集要素の数が多き形式である。このサンプラによる推定法は、相対湿度や捕集後通気量等の捕集条件の影響を受けにくいと、精度がよくなると考えられる。このサンプラは、粒子フィルタ(3枚)、銅網(15枚)、活性炭フィルタ(数枚)^{*}および活性炭カートリッジ(2 cm厚)から構成される。銅網を使用したのは、次亜ヨウ素酸が存在した場合の精度を上げるためである。

捕集条件として、捕集流量率を6 l/minとした場合の捕集後通気の面速(流量率)、時間および相対湿度を、Table 2 に示す。相対湿度は、活性炭フィルタのヨウ化メチル吸着に最も大きな影響を及ぼす。この吸着を少なくするためには、相対湿度は高い方が望ましい。したがって、捕集後通気の相対湿度は50%以上がよいと考えられる。捕集後通気時間は、多くの場合長い方が望ましいが、次亜ヨウ素酸だけは活性炭フィルタから徐々に脱着するため短い方が望ましい。そのため、両方の条件を合せて考えると、捕集後通気の流量率が6 l/minの場合は、通気時間を30分程度とすることがよいと考えられる。このサンプラを用いた場合の解析法については、4.2で述べる。

サンプラタイプ2

これは、サンプラの準備や組み立ておよび放射能測定等を簡便に行うために、捕集要素の数を少なくして評価するための形式である。この方法はタイプ1に比べ精度は低下すると考えられる。このサンプラは、粒子フィルタ(1枚)、銀網あるいは銅網(5枚)、石炭酸添着活性

* 活性炭フィルタの枚数を数枚としたのは、次亜ヨウ素酸が少量しか存在しない場合は、4枚程度で充分であるが、大量に存在する場合は、捕集後通気による脱着のため4枚以上が必要と考えられるからである。

炭フィルタ（2枚）およびTEDA添着活性炭カートリッジ（2cm厚）から構成される。捕集流量率と捕集後通気の相対湿度，流量率，時間等は，サンプラタイプ1の場合と同様である。

4.2 ヨウ素種の存在割合の評価法

4.2.1 計算式

サンプラタイプ1の場合の計算式

サンプラタイプ1，すなわち捕集要素が，粒子フィルタ3枚，銅網15枚，活性炭フィルタ数枚，活性炭カートリッジ2cm厚で構成されるサンプラにより，Table 2 に示した条件のもとで捕集する場合，各捕集要素上の放射能から，粒子状ヨウ素，元素状ヨウ素，次亜ヨウ素酸等の無機ヨウ素，ヨウ化メチル等の有機ヨウ素の存在割合を推定するには次のようにすればよい。各放射性ヨウ素種の分布図のモデル例をFig. 19に示す。図中の A_P ， A_{I_2} ， A_{HOI} および A_{CH_3I} はそれぞれ，粒子状ヨウ素， I_2 ， HOI および CH_3I の放射能を表わす。また， $A_1 \sim A_3$ は粒子フィルタ1枚毎に， $B_1 \sim B_3$ は銅網5枚（1組）毎に， $C_1 \sim C_4$ は活性炭フィルタ1枚毎に， D_1 ， D_2 は活性炭カートリッジ厚1cm毎に捕集された放射能を表わす。

(1) 粒子状ヨウ素の放射能（ A_P ）は，Fig. 19の粒子フィルタ3枚の捕集特性から，次のように推定できる。粒子状ヨウ素は粒子フィルタ1枚で100%が捕集されるため，2，3枚目の成分（ $A_2 + A_3$ ）は I_2 あるいは HOI ということになる。これらの成分は同じ割合で1枚目にも捕集されるので，この分（ $\frac{1}{2} (A_2 + A_3)$ ）を1枚目の放射能（ A_1 ）から差し引いた値が，粒子状ヨウ素の放射能（ A_P ）となる。これを式で表わすと次式のようなになる。

$$A_P = A_1 - \frac{1}{2} (A_2 + A_3) \quad (1)$$

(2) 元素状ヨウ素の放射能は次のように推定できる。 I_2 は銅網の10枚目までに100%が捕集され，11～15枚の分は無機ヨウ素成分のみであると仮定すると，Fig. 19の銅網1～10枚の斜線部分（これをEとおく）は，銅網上に捕集された正味の I_2 の放射能を表わす。つまり，Eは銅網10枚の全放射能（ $B_1 + B_2$ ）から無機ヨウ素分（ $B_3 \times 2$ ）を差し引いた値となり，次式のように表わせる。

$$E = B_1 + B_2 - 2B_3 \quad (2)$$

次に，粒子フィルタ上の I_2 の放射能（Fig. 19の粒子フィルタ1，2，3の斜線部分）を次のように推定し，Eに加えた。粒子フィルタ2，3枚目には， I_2 と HOI が捕集されているので，銅網と活性炭フィルタに捕集された I_2 と HOI の各放射能の比から比例配分によって，粒子フィルタ上の I_2 放射能を求める。このような比例配分は， I_2 と HOI に対する粒子フィルタの各捕集効率がほぼ等しいことにもとづいている。比例配分に用いる銅網上の I_2 の放射能として，(2)式のEを用いた。また， HOI の放射能として，Fig. 19の銅網1～15枚と活性炭フィルタ1，2枚目の白い部分（これをFとおく）を用いた。このFは，活性炭フ

フィルタの全放射能（無機ヨウ素+ヨウ化メチル）から、活性炭フィルタ上のヨウ化メチルの放射能（これをGとおく）を引き、かつ、前段の銅網に捕集された無機ヨウ素分（ $B_3 \times 3$ ）を加えた値である。つまり、Fは活性炭フィルタと銅網に捕集された正味の無機ヨウ素（HOI）量を表わす。

Gは全活性炭フィルタに捕集されたヨウ化メチルの放射能（Fig. 19の活性炭フィルタ1～4枚の網目部分）である。これは活性炭フィルタの最後の2枚（ $C_3 + C_4$ ）に捕集されたヨウ素がヨウ化メチルであるとして推定した値で、4枚の活性炭フィルタに対しては、 $4 \times \frac{1}{2}$ （ $C_3 + C_4$ ）となる。活性炭フィルタの枚数は、4.1で述べたように、脱着の影響のため4枚以上が必要である。そこで、計算式においては、活性炭フィルタの枚数を一般化してn枚とし、その最後の2枚の放射能から、Gを次のように定める。

$$G = \frac{n}{2} (C_{n-1} + C_n) \quad (n \text{ は } 4 \text{ 以上の整数}) \quad (3)$$

このGを用いると、活性炭フィルタと銅網に捕集された正味の無機ヨウ素量（F）は、次式のように表わせる。

$$F = C_1 + C_2 + \dots + C_n - G + 3B_3 \quad (4)$$

以上のように得られる、銅網上の I_2 放射能（E）と活性炭フィルタと銅網上のHOI放射能（F）を用いて、粒子フィルタ2、3枚目の I_2 とHOIの放射能（ $A_2 + A_3$ ）を比例配分し、粒子フィルタ3枚に捕集された I_2 の放射能（これをHとおく）を求める。これを式で表わすと、次のようになる。

$$H = \frac{3}{2} (A_2 + A_3) \frac{E}{E + F} \quad (5)$$

したがって、元素状ヨウ素の放射能（ A_{I_2} ）は、次式で与えられる。

$$A_{I_2} = E + H \quad (6)$$

(3) 次亜ヨウ素酸の放射能は、次のように推定できる。粒子フィルタ上のHOIの放射能（これをIとおく）は、(5)式と同様の比例配分によって求められる。

$$I = \frac{3}{2} (A_2 + A_3) \frac{F}{E + F} \quad (7)$$

したがって、次式のように、これを活性炭フィルタと銅網上のHOIの放射能（F）に加えることによって、HOIの全放射能（ A_{HOI} ）が求められる。

$$A_{HOI} = F + I \quad (8)$$

(4) ヨウ化メチルの放射能（ A_{CH_3I} ）は、活性炭カートリッジ上の放射能（ $D_1 + D_2$ ）に、全活性炭フィルタ上のヨウ化メチルの放射能（G）を加えたもので、次式のようになる。

$$A_{CH_3I} = D_1 + D_2 + G \quad (9)$$

以上の式から得られた各ヨウ素種の放射能を、次式に代入し、各ヨウ素種の存在割合を求めることができる。

$$C_P = 100 \cdot A_P / \Sigma \quad (10)$$

$$C_{I_2} = 100 \cdot A_{I_2} / \Sigma \quad (11)$$

$$C_{HOI} = 100 \cdot A_{HOI} / \Sigma \quad (12)$$

$$C_{CH_3I} = 100 \cdot A_{CH_3I} / \Sigma \quad (13)$$

ここで、 C_P 、 C_{I_2} 、 C_{HOI} および C_{CH_3I} は、それぞれ、粒子状ヨウ素、 I_2 、 HOI および CH_3I の存在割合(%)である。また、 $\Sigma = A_P + A_{I_2} + A_{HOI} + A_{CH_3I}$ である。

サンプラタイプ2の場合の計算式

サンプラの捕集要素が少なく、放射能測定等が簡便なサンプラタイプ2を用いる場合、各ヨウ素種の存在割合は、次の計算法によって求めることができる。

各捕集要素上の放射能に関し、次のような連立方程式が成立する。

$$AMF = a_1 A_P + b_1 A_{I_2} + c_1 A_{HOI} \quad (14)$$

$$A_{Ag \cdot Cu} = b_2 A_{I_2} + c_2 A_{HOI} \quad (15)$$

$$ACF = b_3 A_{I_2} + c_3 A_{HOI} + d_3 A_{CH_3I} \quad (16)$$

$$ACC = d_4 A_{CH_3I} \quad (17)$$

ここで、 AMF 、 $A_{Ag \cdot Cu}$ 、 ACF および ACC は、それぞれ、粒子フィルタ(1枚)、銀網あるいは銅網(5枚)、活性炭フィルタ(2枚)および活性炭カートリッジ(2cm厚)に捕集された放射能である。 A_P 、 A_{I_2} 、 A_{HOI} および A_{CH_3I} は、それぞれ、粒子状ヨウ素、 I_2 、 HOI および CH_3I の放射能である。また、 a_1 から d_4 の係数は、各ヨウ素種に対する各捕集要素の捕集割合の平均値である。これらの係数値を Table 3 に示す。表の第2欄は I_2 の捕集要素として銀網を、また、第3欄は銅網を用いた場合の係数である。これらの係数値は、捕集後通気の場合が面速 10 cm/sec 、流量率 6 l/min 、時間 30 min 、相対湿度 50% 以上の場合について得られた値である。

a_1 は粒子フィルタのエアロゾル捕集割合であるので1とする。 b_1 は粒子フィルタの I_2 捕集割合である。 b_2 は銀網あるいは銅網5枚の I_2 捕集割合である。 b_3 は、銀網あるいは銅網5枚から微量の I_2 が漏洩し、活性炭フィルタに捕集されると仮定したことによる活性炭フィルタの I_2 捕集割合である。 c_1 、 c_2 および c_3 は、それぞれ、粒子フィルタ、銀網あるいは銅網、および活性炭フィルタの HOI 捕集割合である。 d_3 と d_4 は、それぞれ、活性炭フィルタと活性炭カートリッジの CH_3I 捕集割合である。

上記の連立方程式を解き、各ヨウ素種の放射能を求めると、次のようになる。

$$A_P = \frac{1}{a_1} \cdot AMF - \frac{b_1}{a_1 \cdot b_2} \cdot A_{Ag \cdot Cu} - \frac{(c_1 \cdot b_2 - b_1 \cdot c_2)}{a_1 \cdot b_2 \cdot d_4 (b_2 \cdot c_3 - b_3 \cdot c_2)} \cdot (b_2 \cdot d_4 \cdot ACF - b_3 \cdot d_4 \cdot A_{Ag \cdot Cu} - b_2 \cdot d_3 \cdot ACC) \quad (18)$$

$$A_{I_2} = \frac{1}{b_2} \cdot A_{Ag} \cdot C_u - \frac{c_2}{b_2 \cdot d_4 (b_2 \cdot c_3 - b_3 \cdot c_2)} (b_2 \cdot d_4 \cdot A_{CF} - b_3 \cdot d_4 \cdot A_{Ag} \cdot C_u - b_2 \cdot d_3 \cdot A_{CC}) \quad (19)$$

$$A_{HOI} = \frac{1}{d_4 (b_2 \cdot c_3 - b_3 \cdot c_2)} (b_2 \cdot d_4 \cdot A_{CF} - b_3 \cdot d_4 \cdot A_{Ag} \cdot C_u - b_2 \cdot d_3 \cdot A_{CC}) \quad (20)$$

$$A_{CH_3I} = \frac{1}{d_4} \cdot A_{CC} \quad (21)$$

これらの放射能を、タイプ1の場合と同様に、(10)~(13)式に代入することにより、各ヨウ素種の存在割合を算出することができる。

4.2.2 適用例

放射性ヨウ化メチルガスにキセノンランプからの紫外線を照射した場合に生成されたヨウ素種を、マイパックサンプラで捕集し、前節の2種類の計算式を用いて解析した例をTable 4に示す。Table 4-aとbは、それぞれ、照射した紫外線エネルギー量が 0.92 と 8.2 J/cm^2 のときの結果を示している。いずれの場合も、サンプラに活性炭フィルタを4枚使用したので、式(3)、(4)において $n=4$ とした。4-a-1と4-a-2の解析結果は、同一の実験データを2種類の計算法で計算した結果である。4-a-1がサンプラタイプ1、4-a-2がサンプラタイプ2の場合の計算法によるものである。4-b-1と4-b-2についても同様である。

タイプ1で得られた各捕集放射能($A_1, A_2, \dots, D_1, D_2$)を、タイプ2の各捕集放射能($A_{MF}, A_{Cu}, A_{CF}, A_{CC}$)に適用するため、タイプ1の各捕集放射能を次式のように配分した。

$$A_{MF} = A_1 \quad (22)$$

$$A_{Cu} = A_2 + A_3 + B_1 \quad (23)$$

$$A_{CF} = B_2 + B_3 + C_1 + C_2 \quad (24)$$

$$A_{CC} = C_3 + C_4 + D_1 + D_2 \quad (25)$$

表の結果における誤差は、タイプ1の計算法については計数値の統計誤差を、また、タイプ2については統計誤差とTable 3に示した係数($a_1 \sim d_4$)の誤差をそれぞれ考慮して、誤差の伝播式から求めた値である。

* 紫外線エネルギー量とは、紫外線強度計により測定した単位面積当りの紫外線強度(W/cm^2)を照射時間で積算した値である。

その結果、4-a (照射紫外線エネルギー量; 0.92 J/cm^2) の場合、サンプラタイプ1の結果(4-a-1)の誤差は0.009から0.4%、タイプ2の結果(4-a-2)の誤差は0.07から3%の範囲であり、タイプ1の方が精度がよいことがわかる。また、タイプ2の結果も、従来の方法、すなわち、捕集要素上の放射能を直接各ヨウ素種の放射能であると見なす方法(Table 4-a-1~4-b-2のRetention(%))に相当)よりは、かなり精度がよくなっている。

タイプ2から得られた各ヨウ素種の存在割合(4-a-2)をタイプ1の結果(4-a-1)と比較すると、元素状ヨウ素とヨウ化メチルに関してはよく一致した。粒子状ヨウ素と次亜ヨウ素酸に関しては、タイプ2はタイプ1よりも約2倍大きな値を示したが、誤差内では一致した。

4-b (照射紫外線エネルギー量; 8.2 J/cm^2)の場合も、タイプ1の結果(4-b-1)はタイプ2(4-b-2)よりも、誤差が小さく、精度がよいことがわかる。また、タイプ2の結果をタイプ1と比較すると、元素状ヨウ素とヨウ化メチルに関してはよく一致した。粒子状ヨウ素に関しては、タイプ2はタイプ1よりも10倍以上大きい値を示し、誤差を考慮しても一致しなかった。次亜ヨウ素酸に関しては、タイプ1は0.05%であったが、タイプ2は0%になった。

以上のことから、光照射したヨウ化メチル試料を分析した場合、粒子状ヨウ素と次亜ヨウ素酸の存在割合の推定においては、サンプラタイプ2はタイプ1と若干異なる結果を示す場合もあるが、元素状ヨウ素とヨウ化メチルにおいては、よく一致することがわかった。

5. 結 言

浮遊性放射性ヨウ素種の簡便な弁別装置であるメイパックサンプラの捕集特性を調べ、ヨウ素種の存在割合を従来より精度よく推定するための評価法を検討した。

メイパックサンプラは、粒子フィルタ、銀網あるいは銅網、石炭酸添着活性炭フィルタおよびTEDA添着活性炭カートリッジから構成されたものを用いた。放射性ヨウ素種は、ヨウ化メチル、元素状ヨウ素および次亜ヨウ素酸を用いた。

これらの各ヨウ素種に対するメイパックサンプラの捕集特性をもとに、次の2種類のメイパックサンプラに適用できる評価法をそれぞれ検討した。

サンプラタイプ1は、粒子フィルタ(3枚)、銅網(15枚)、石炭酸添着活性炭フィルタ(数枚)およびTEDA添着活性炭カートリッジ(2cm厚)から構成されたものである。このサンプラは精度はよいが、捕集要素の数が多いため、準備や測定等に時間を要する欠点がある。

サンプラタイプ2は、精度は低下するが、測定等が簡便なタイプで、粒子フィルタ(1枚)、銀網あるいは銅網(5枚)、石炭酸添着活性炭フィルタ(2枚)、TEDA添着活性炭カートリッジ(2cm厚)から構成されたものである。

これらの2種類のメイパックサンプラの捕集要素に捕集された放射能から、精度よい存在割合を評価するための計算法を提案し、その適用例を示した。その結果、サンプラタイプ1の場

その結果、4-a (照射紫外線エネルギー量; 0.92 J/cm^2) の場合、サンプラタイプ1の結果(4-a-1)の誤差は0.009から0.4%、タイプ2の結果(4-a-2)の誤差は0.07から3%の範囲であり、タイプ1の方が精度がよいことがわかる。また、タイプ2の結果も、従来の方法、すなわち、捕集要素上の放射能を直接各ヨウ素種の放射能であると見なす方法(Table 4-a-1~4-b-2のRetention(%))に相当)よりは、かなり精度がよくなっている。

タイプ2から得られた各ヨウ素種の存在割合(4-a-2)をタイプ1の結果(4-a-1)と比較すると、元素状ヨウ素とヨウ化メチルに関してはよく一致した。粒子状ヨウ素と次亜ヨウ素酸に関しては、タイプ2はタイプ1よりも約2倍大きな値を示したが、誤差内では一致した。

4-b (照射紫外線エネルギー量; 8.2 J/cm^2)の場合も、タイプ1の結果(4-b-1)はタイプ2(4-b-2)よりも、誤差が小さく、精度がよいことがわかる。また、タイプ2の結果をタイプ1と比較すると、元素状ヨウ素とヨウ化メチルに関してはよく一致した。粒子状ヨウ素に関しては、タイプ2はタイプ1よりも10倍以上大きい値を示し、誤差を考慮しても一致しなかった。次亜ヨウ素酸に関しては、タイプ1は0.05%であったが、タイプ2は0%になった。

以上のことから、光照射したヨウ化メチル試料を分析した場合、粒子状ヨウ素と次亜ヨウ素酸の存在割合の推定においては、サンプラタイプ2はタイプ1と若干異なる結果を示す場合もあるが、元素状ヨウ素とヨウ化メチルにおいては、よく一致することがわかった。

5. 結 言

浮遊性放射性ヨウ素種の簡便な弁別装置であるメイパックサンプラの捕集特性を調べ、ヨウ素種の存在割合を従来より精度よく推定するための評価法を検討した。

メイパックサンプラは、粒子フィルタ、銀網あるいは銅網、石炭酸添着活性炭フィルタおよびTEDA添着活性炭カートリッジから構成されたものを用いた。放射性ヨウ素種は、ヨウ化メチル、元素状ヨウ素および次亜ヨウ素酸を用いた。

これらの各ヨウ素種に対するメイパックサンプラの捕集特性をもとに、次の2種類のメイパックサンプラに適用できる評価法をそれぞれ検討した。

サンプラタイプ1は、粒子フィルタ(3枚)、銅網(15枚)、石炭酸添着活性炭フィルタ(数枚)およびTEDA添着活性炭カートリッジ(2cm厚)から構成されたものである。このサンプラは精度はよいが、捕集要素の数が多いため、準備や測定等に時間を要する欠点がある。

サンプラタイプ2は、精度は低下するが、測定等が簡便なタイプで、粒子フィルタ(1枚)、銀網あるいは銅網(5枚)、石炭酸添着活性炭フィルタ(2枚)、TEDA添着活性炭カートリッジ(2cm厚)から構成されたものである。

これらの2種類のメイパックサンプラの捕集要素に捕集された放射能から、精度よい存在割合を評価するための計算法を提案し、その適用例を示した。その結果、サンプラタイプ1の場

合は、タイプ2よりも精度がよく、また、後者の場合も従来の方法よりも精度がよいことがわかった。また、簡便なタイプ2の場合の結果を、タイプ1の場合と比較すると、粒子状ヨウ素と次亜ヨウ素酸の評価に関しては若干異なる場合もあったが、元素状ヨウ素とヨウ化メチルの評価に関してはよい一致を示した。

謝 辞

本報をまとめるにあたって、保健物理部放射線管理第1課の加藤正平氏および安全工学部安全工学第3研究室の成富満夫氏には貴重な御助言をいただきました。謹んで謝意を表します。

合は、タイプ2よりも精度がよく、また、後者の場合も従来の方法よりも精度がよいことがわかった。また、簡便なタイプ2の場合の結果を、タイプ1の場合と比較すると、粒子状ヨウ素と次亜ヨウ素酸の評価に関しては若干異なる場合もあったが、元素状ヨウ素とヨウ化メチルの評価に関してはよい一致を示した。

謝 辞

本報をまとめるにあたって、保健物理部放射線管理第1課の加藤正平氏および安全工学部安全工学第3研究室の成富満夫氏には貴重な御助言をいただきました。謹んで謝意を表します。

参 考 文 献

- (1) Megaw, W.J., May, F.G. : React. Sci. Tech. (J. Nucl. Energy Parts A/B), 16, 427 (1962).
- (2) Eggleton, A.E.J., Atkins, D.H.F. : Radiochim. Acta, 3, 151 (1964).
- (3) Keller, J.H., et al. : TID-4500, (1967).
- (4) Parsly, L.F., Jr. : ORNL-TM-2044, (1968).
- (5) Bennett, R.L., et al. : ORNL-TM-2071, (1968).
- (6) McCormack, J.D. : BNWL-1145, (1969).
- (7) Keller, J.H., et al. : Proc. 11th AEC Air Cleaning Conf. , p.467 (1970).
- (8) Kabat, M.J. : Proc. 13th AEC Air Cleaning Conf., p.765 (1974).
- (9) Keller, J.H., et al. : Proc. 12th AEC Air Cleaning Conf. , p.322 (1972).
- (10) 成富満夫, 高田準一, 木谷 進 : 日本原子力学会 昭和52年秋の分科会要旨集Ⅱ, P. 169 (1977).
- (11) 松井 浩, 野口 宏, 大内富男, 村田幹生, 吉田芳和 : 日本原子力学会 昭和53年年会要旨集Ⅱ, P. 15 (1978).
- (12) Pelletier, C., et al. : PB-251 443, (1976).
- (13) Barry, P.J. : Health Phys., 15, 243 (1968).
- (14) Coleman, L.F. : BNWL-1001, (1969).

Table 1 Components of Maypack Sampler

Membrane filter	Millipore membrane filter, Type AA, pore size 0.80 μ m.
Silver screens	Silver plated 80mesh copper screens.
Copper screens	60mesh copper screens. They were pretreated in hydrogen iodide solution before use.
Charcoal filters	15 w/o phenol impregnated charcoal filters (cp-7), thickness 0.7mm.
Charcoal cartridges	5 w/o TEDA impregnated activated charcoal, 30mesh.

Table 2 Arrangement of components and sampling conditions

(1) Arrangement of components

Components	Number of component	
	Type 1	Type 2
Membrane filters	3	1
Copper screens	15	5*
Charcoal filters	several	2
Charcoal cartridges	2 cm depth	2 cm depth

* Copper or silver screens

(2) Sampling conditions

Face velocity (flow rate) : 10 cm/sec (6 l/min)
 Post-test elution time : 30 min.
 Post-test elution relative humidity : ≥ 50 %

Table 3 Coefficients of Eq. (14) ~ (17)

Valeus obtained from experiments		
Coefficients	Using silver screens	Using copper screens
	a_1	1
b_1	$(6.6 \pm 3.1) \times 10^{-3}$	$(6.6 \pm 3.1) \times 10^{-3}$
b_2	0.9899 ± 0.0067	0.9913 ± 0.0031
b_3	$(3.5 \pm 5.9) \times 10^{-3}$	$(2.1 \pm 0.5) \times 10^{-3}$
c_1	$(4.2 \pm 1.3) \times 10^{-3}$	$(4.2 \pm 1.3) \times 10^{-3}$
c_2	0.22 ± 0.05	$(3.3 \pm 0.8) \times 10^{-2}$
c_3	0.776 ± 0.05	0.963 ± 0.008
d_3	$(3 \pm 1) \times 10^{-3}$	$(3 \pm 1) \times 10^{-3}$
d_4	0.997 ± 0.001	0.997 ± 0.001

Table 4 Results on the estimation of iodine species produced through the photolysis of methyl iodide

4-a Experimental conditions : CH_3I initial conc. is 6.0×10^{-7} g/cm³; Amount of energy of UV-rays 0.92 J/cm²; R.H. 50 %; Sampling 6 l/min, 3 sec ; Post-test elution 6 l/min, 30 min.

4-a-1 Methods 1		Input data		Results	
Components	dpm	Retention (%)	Iodine	Fraction (%)	
Membrane filters	1 (A ₁)*	0.229			
	2 (A ₂)	553	0.183	Particulate	0.037 ± 0.009
	3 (A ₃)	608	0.202		
Copper screens	1~5 (B ₁)	69040	22.9		
	6~10 (B ₂)	33.8	0.0112	I ₂	23.5 ± 0.2
	11~15 (B ₃)	20.3	6.74x10 ⁻³		
Charcoal filters	1 (C ₁)	572	0.190		
	2 (C ₂)	574	0.190		
	3 (C ₃)	481	0.160	HOI	0.08 ± 0.02
	4 (C ₄)	499'	0.166		
Charcoal cartridges	1 (D ₁)	228277	75.7		
	2 (D ₂)	0	0	CH ₃ I	76.4 ± 0.4

* (A₁) ~ (A₂), Activity on each membrane filter; (B₁) ~ (B₂), Activity on each five copper screens; (C₁) ~ (C₄), Activity on each charcoal filter; (D₁), (D₂), Activity on 1 cm charcoal cartridge.

Table 4 (continued)

4-a-2 Methods 2

Components	Input data		Results		
	(A _{MF}) [*]	dpm	Retention (%)	Iodine	Fraction (%)
Membrane filters	1	691	0.229	Particulate	0.07 ± 0.07
Copper screens	1~5 (A _{Cu})	70201	23.3	I ₂	23.5 ± 0.9
Charcoal filters	2 (A _{CF})	1200	0.208	HOI	0.13 ± 0.08
Charcoal cartridges	2 (A _{CC})	229257	76.3	CH ₃ I	76 ± 3

* (A_{MF}), Activity on one membrane filter; (A_{Cu}), Activity on five copper screens; (A_{CF}), Activity on two charcoal filters; (A_{CC}), Activity on 2 cm charcoal cartridges.

Table 4 (continued)

4-b Experimental conditions : CH_3I initial conc. is 7.2×10^{-7} g/cm³; Amount of energy of UV-rays 8.2 J/cm²; R.H. 50 %; Sampling 6 l/min, 3 sec ; Post-test elution 6 l/min, 30 min.

4-b-1 Methods 1

Components	Input data			Results	
	dpm	Retention (%)	Iodine	Fraction (%)	
Membrane filters	1 (A ₁)*	5374	1.62	Particulate	0.10 ± 0.05
	2 (A ₂)	4872	1.47		
	3 (A ₃)	5236	1.58		
Copper screens	1~5 (B ₁)	287884	87.0	I ₂	91.6 ± 0.4
	6~10 (B ₂)	65.3	0.0197		
	11~15 (B ₃)	52.7	0.0159		
Charcoal filters	1 (C ₁)	154	0.0466	HOI	0.05 ± 0.01
	2 (C ₂)	82	0.0248		
	3 (C ₃)	127	0.0384		
	4 (C ₄)	137	0.0414		
Charcoal cartridges	1 (D ₁)	26827	8.11	CH ₃ I	8.3 ± 0.1
	2 (D ₂)	0	0		

* These symbols are the same as 4-a-1.

Table 4 (continued)

4-b-2 Methods 2

Components	Input data			Results		
	$(A_{MF})^*$	dpm	Retention (%)	Iodine	Fraction (%)	Fraction (%)
Membrane filters	1	5374	1.62	Particulate	1.0 ± 0.07	
Copper screens	1-5 (A_{Cu})	297992	90.1	I_2	91 ± 3	
Charcoal filters	2 (A_{CF})	354	0.107	HOI	0	
Charcoal cartridges	2 (A_{CC})	27091	8.19	CH_3I	8.2 ± 0.4	

* These symbols are the same as 4-a-2.

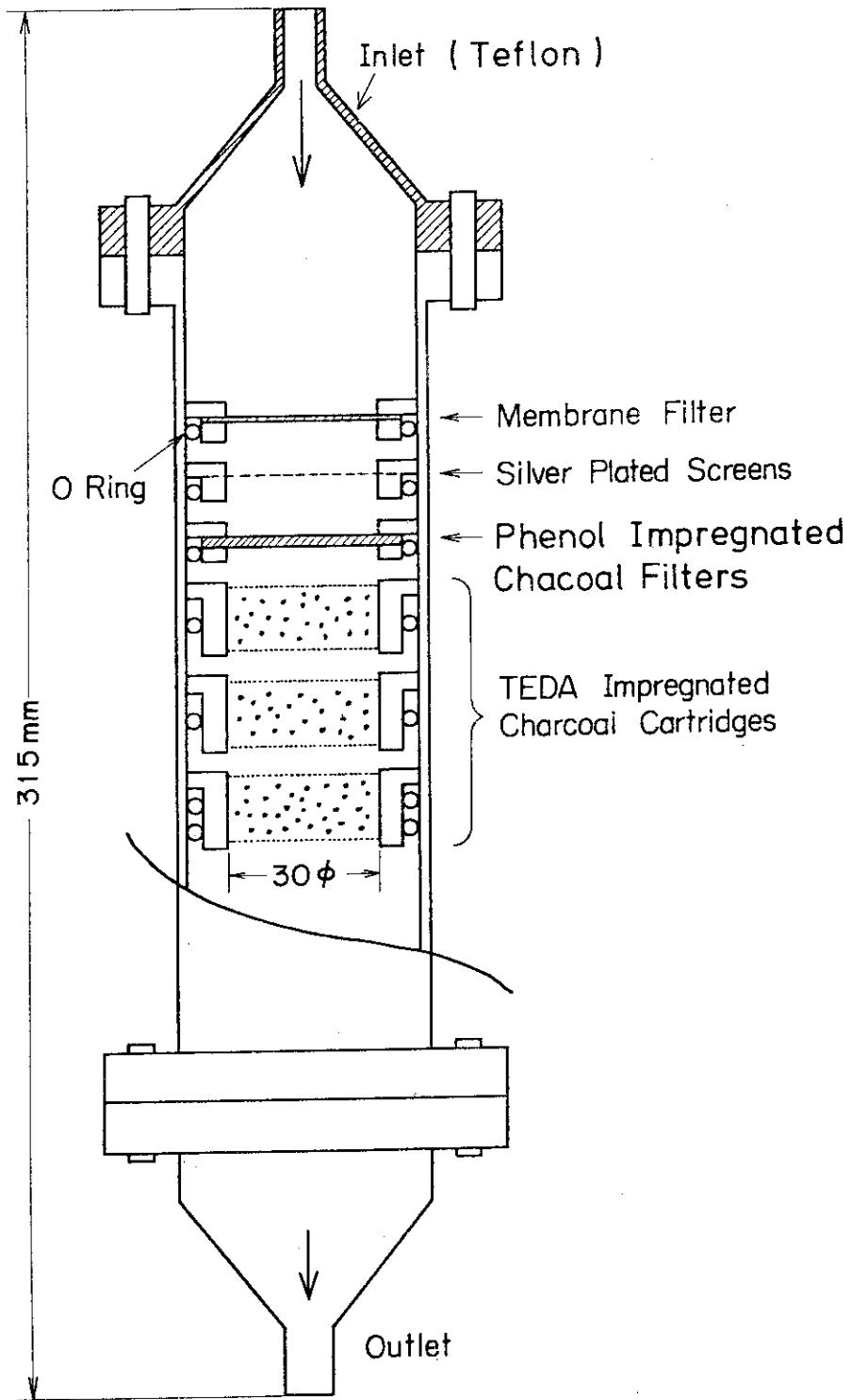


Fig.1 Diagram of modified Maypack sampler

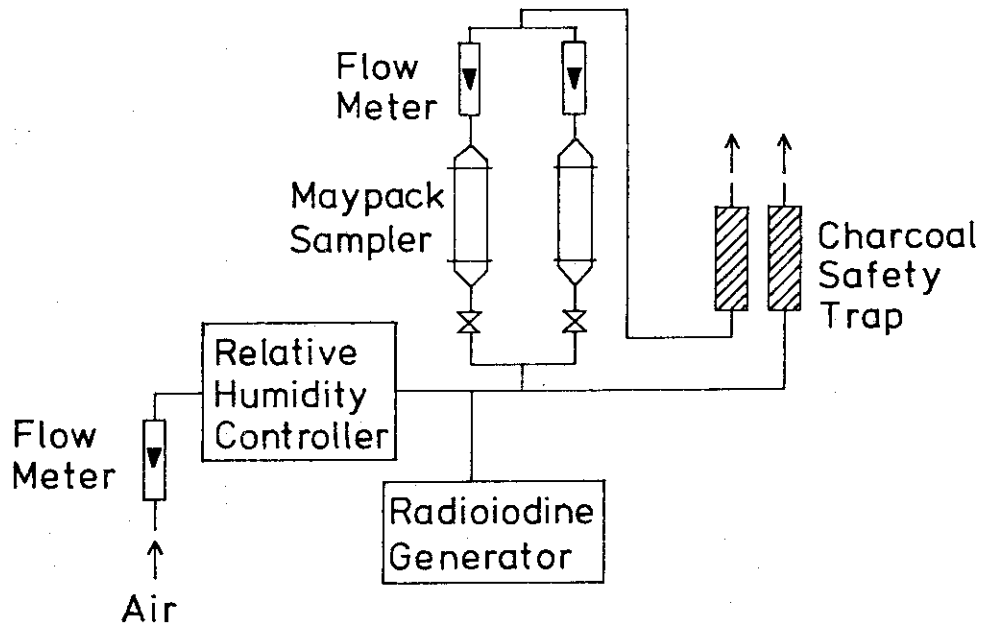


Fig.2 Schematic diagram of test apparatus

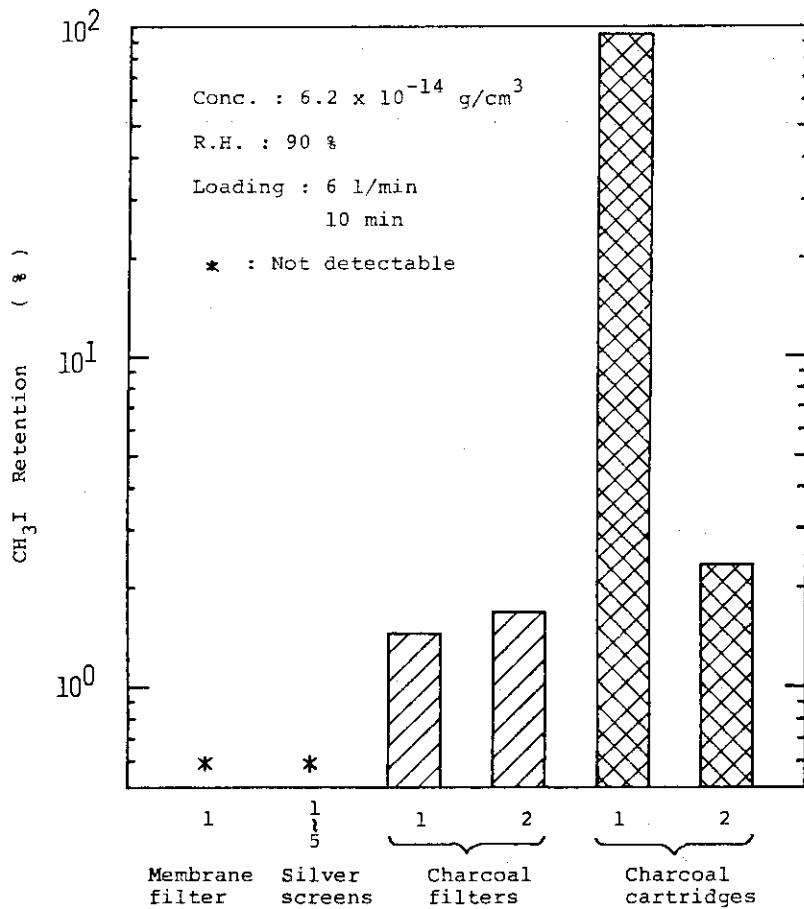


Fig.3 Distribution of methyl iodide on Maypack components

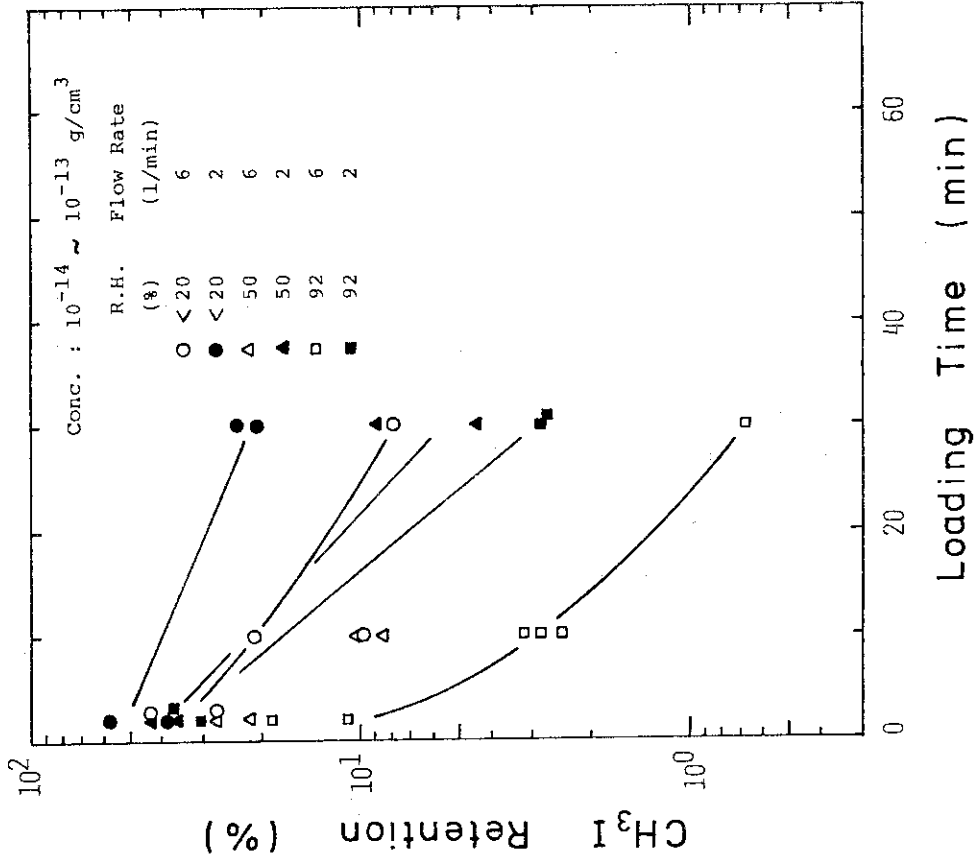


Fig.5 Methyl iodide retention on two charcoal filters versus loading time at low concentration

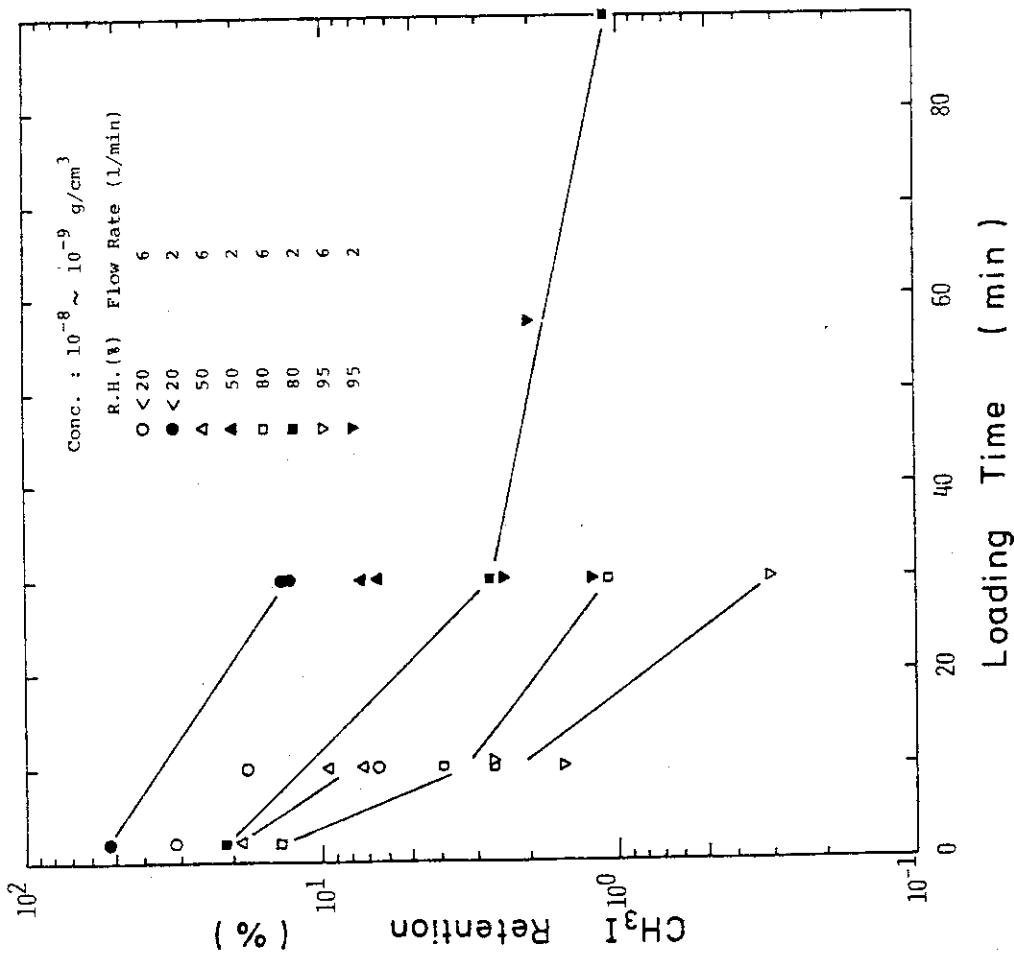


Fig.4 Methyl iodide retention on two charcoal filters versus loading time at high concentration

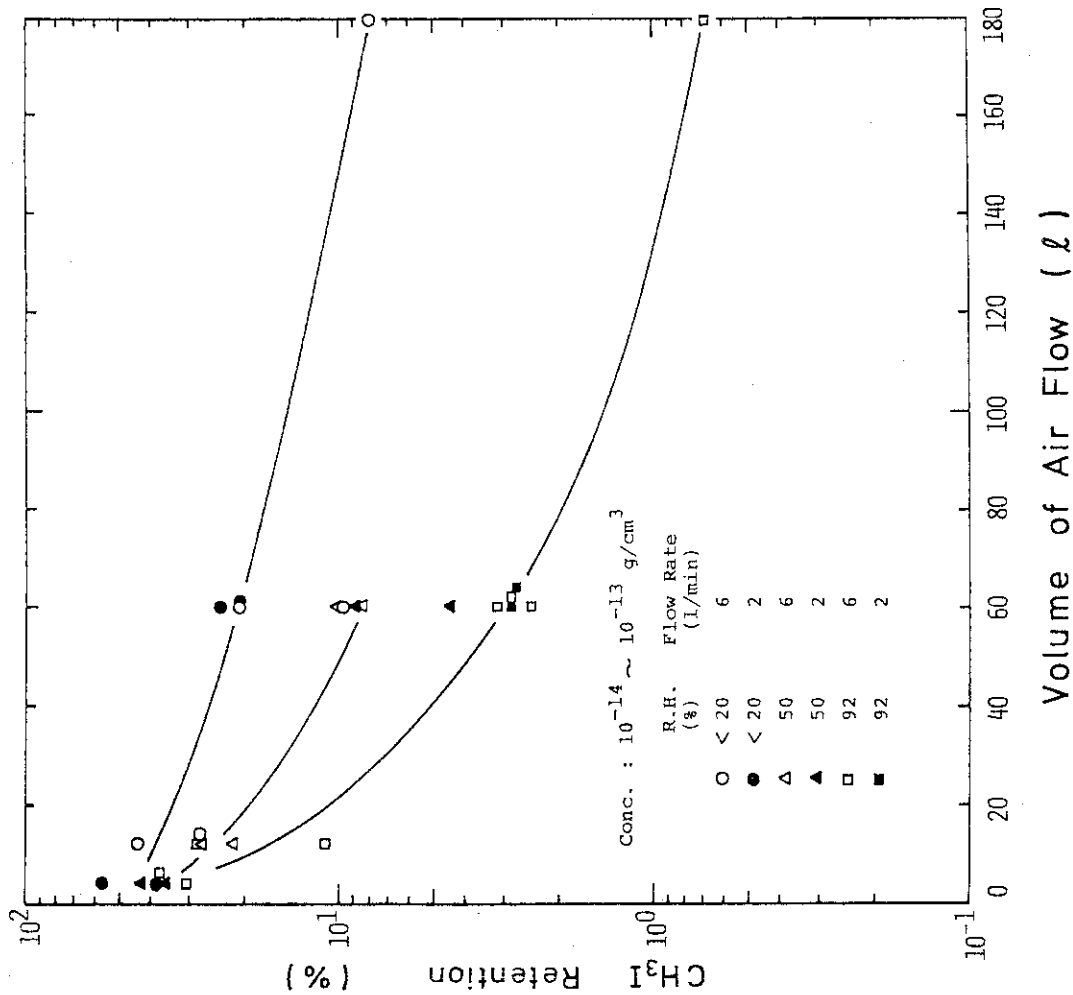


Fig.7 Methyl iodide retention on two charcoal filters versus volume of air flow at low concentration

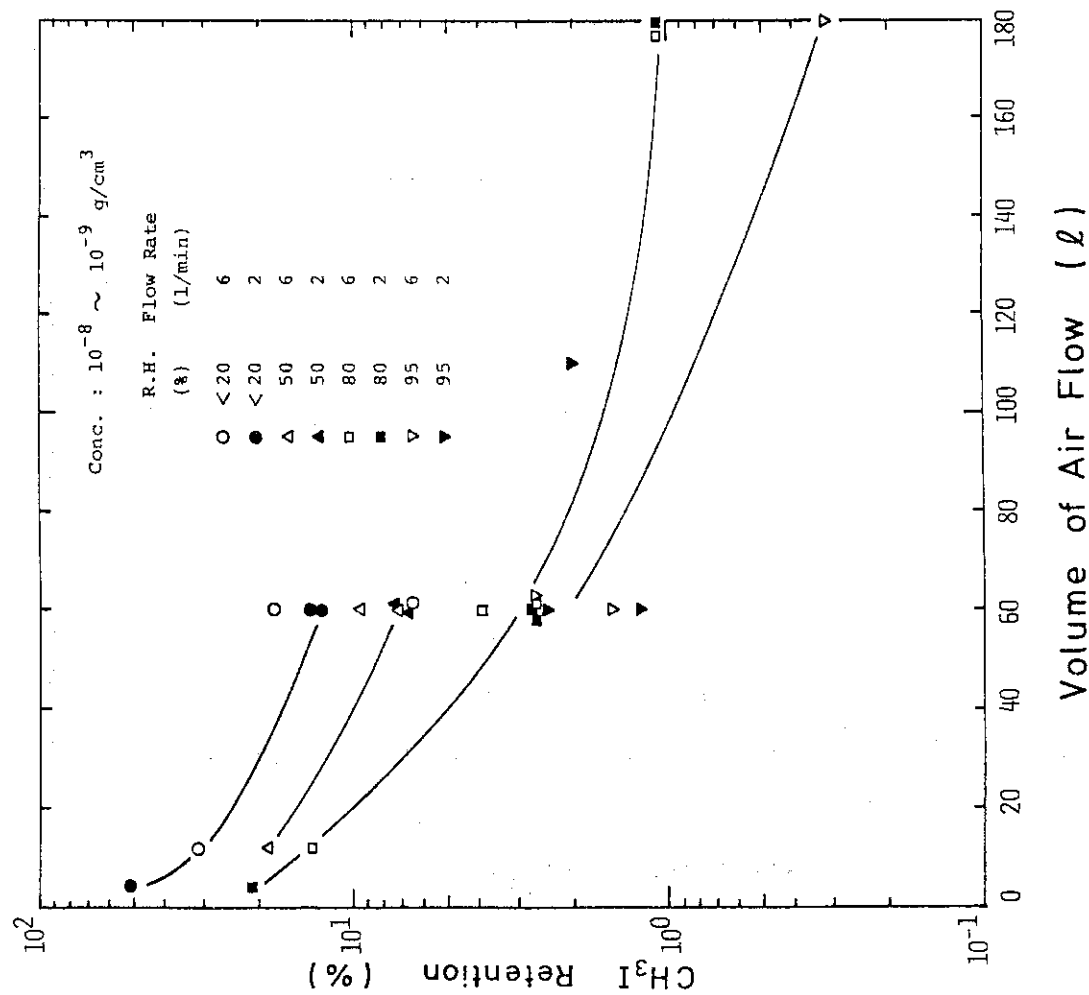


Fig.6 Methyl iodide retention on two charcoal filters versus volume of air flow at high concentration

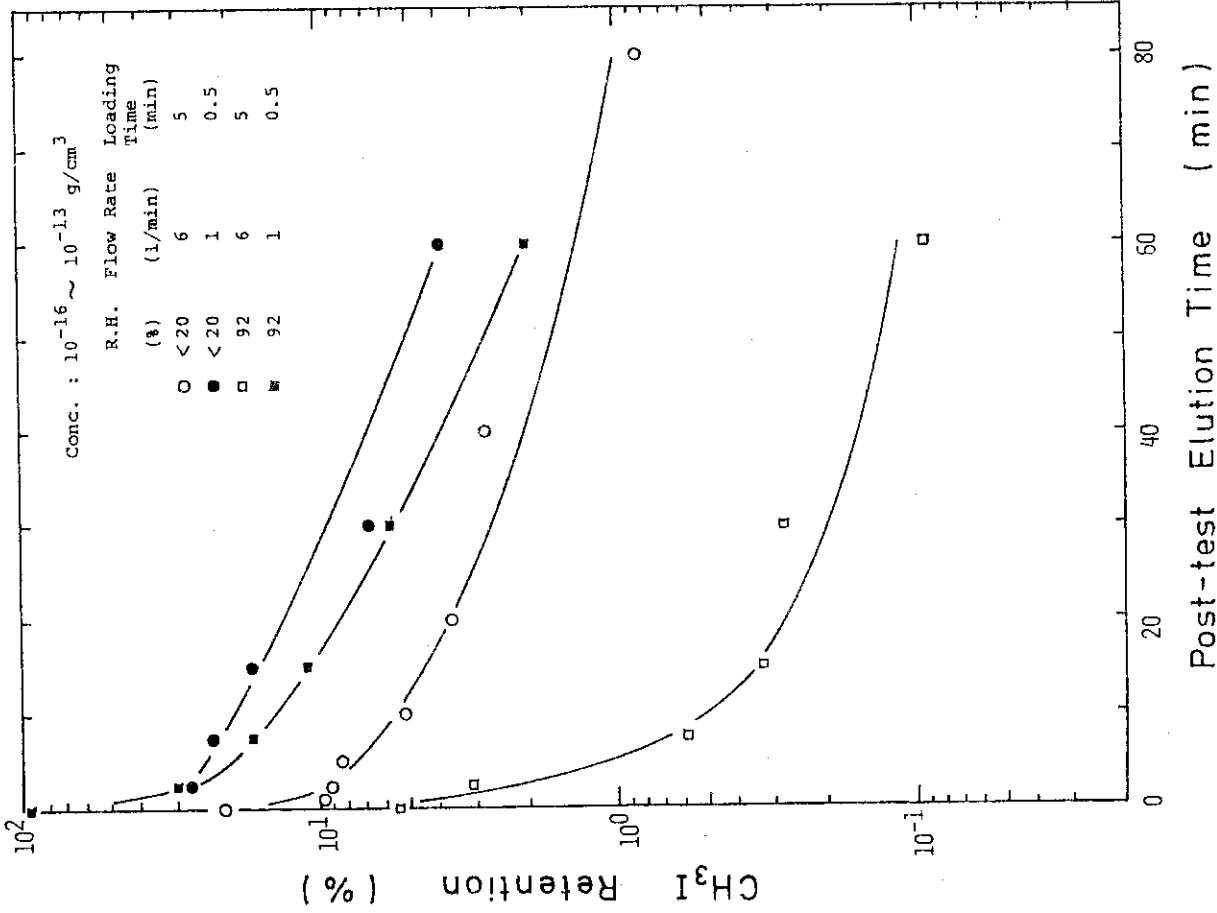


Fig.9 Methyl iodide retention on two charcoal filters versus post-test elution time after five minutes or a half minute loading

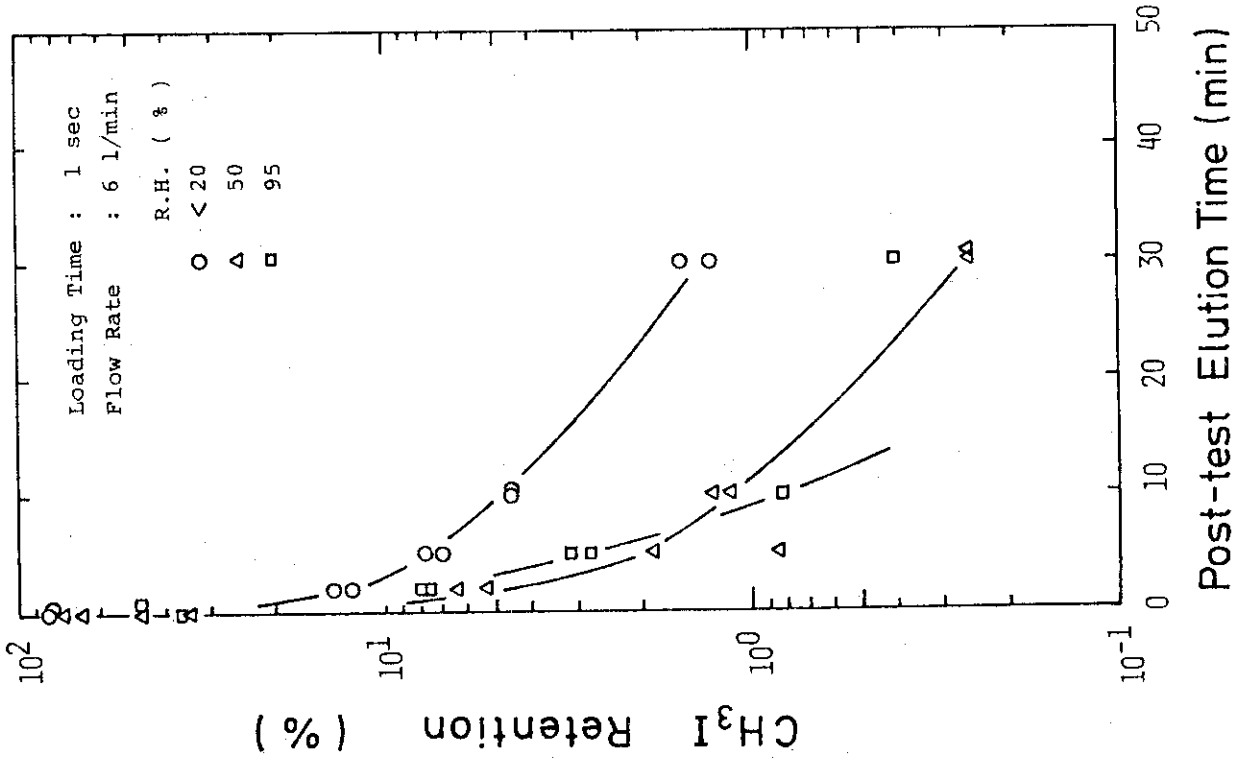


Fig.8 Methyl iodide retention on two charcoal filters versus post-test elution time after one second loading

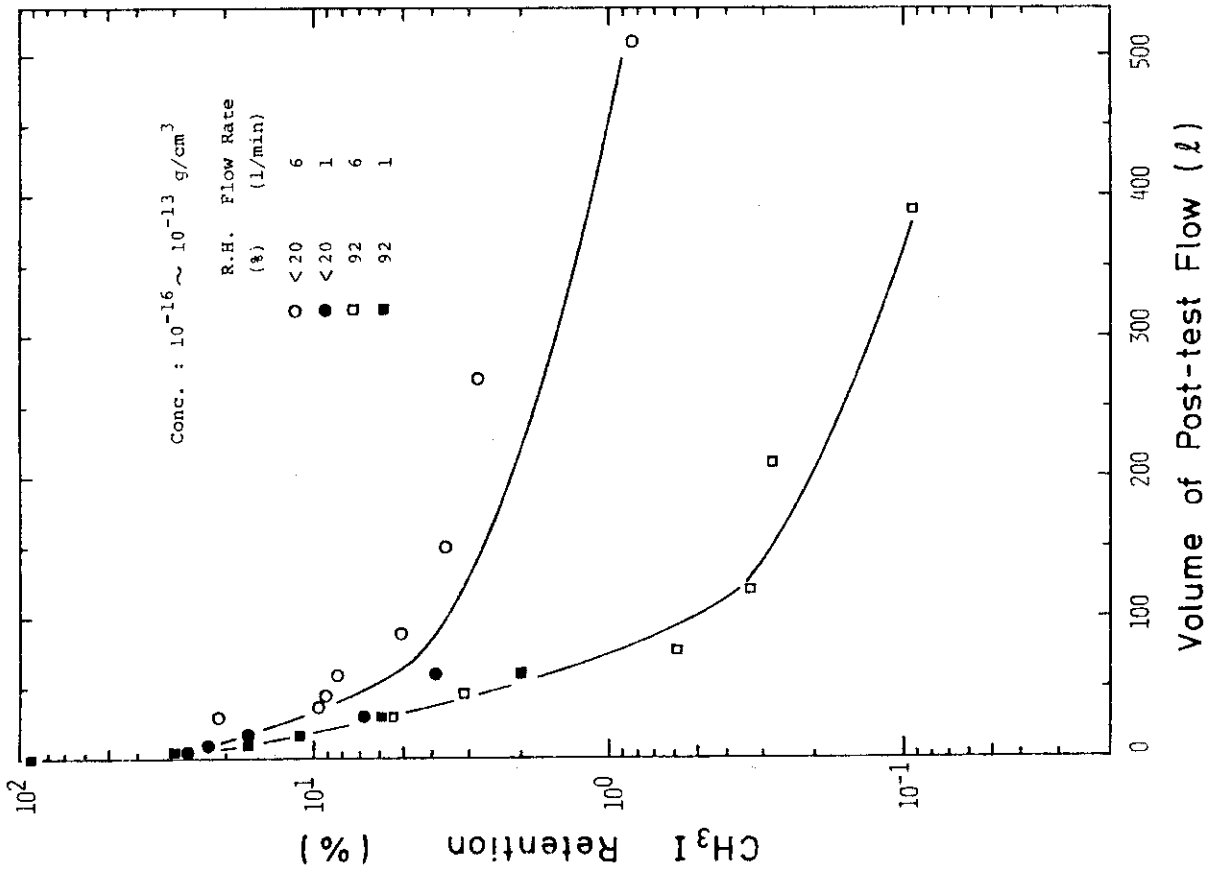


Fig.11 Methyl iodide retention on two charcoal filters versus volume of post-test flow after five minutes or a half minute loading

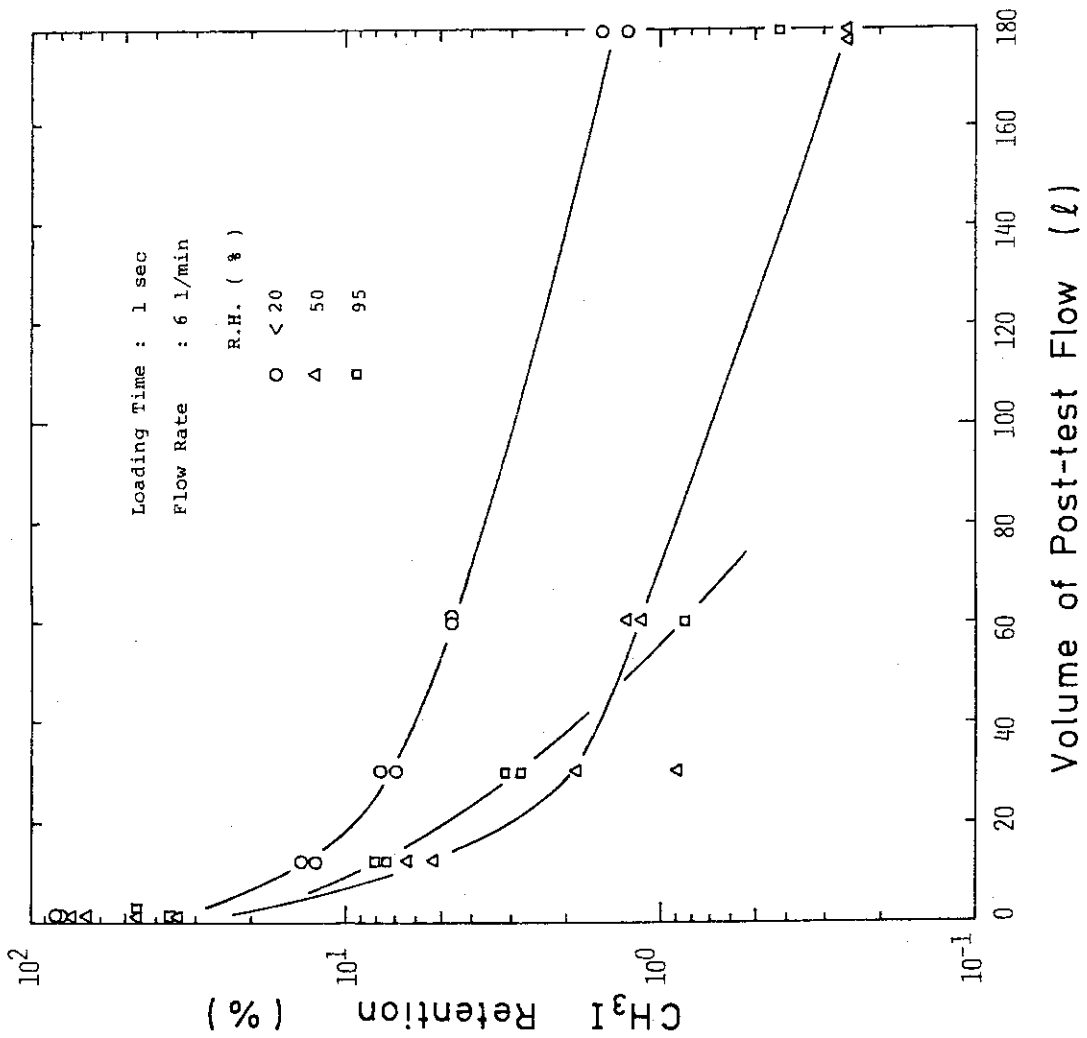


Fig.10 Methyl iodide retention on two charcoal filters versus volume of post-test flow after one second loading

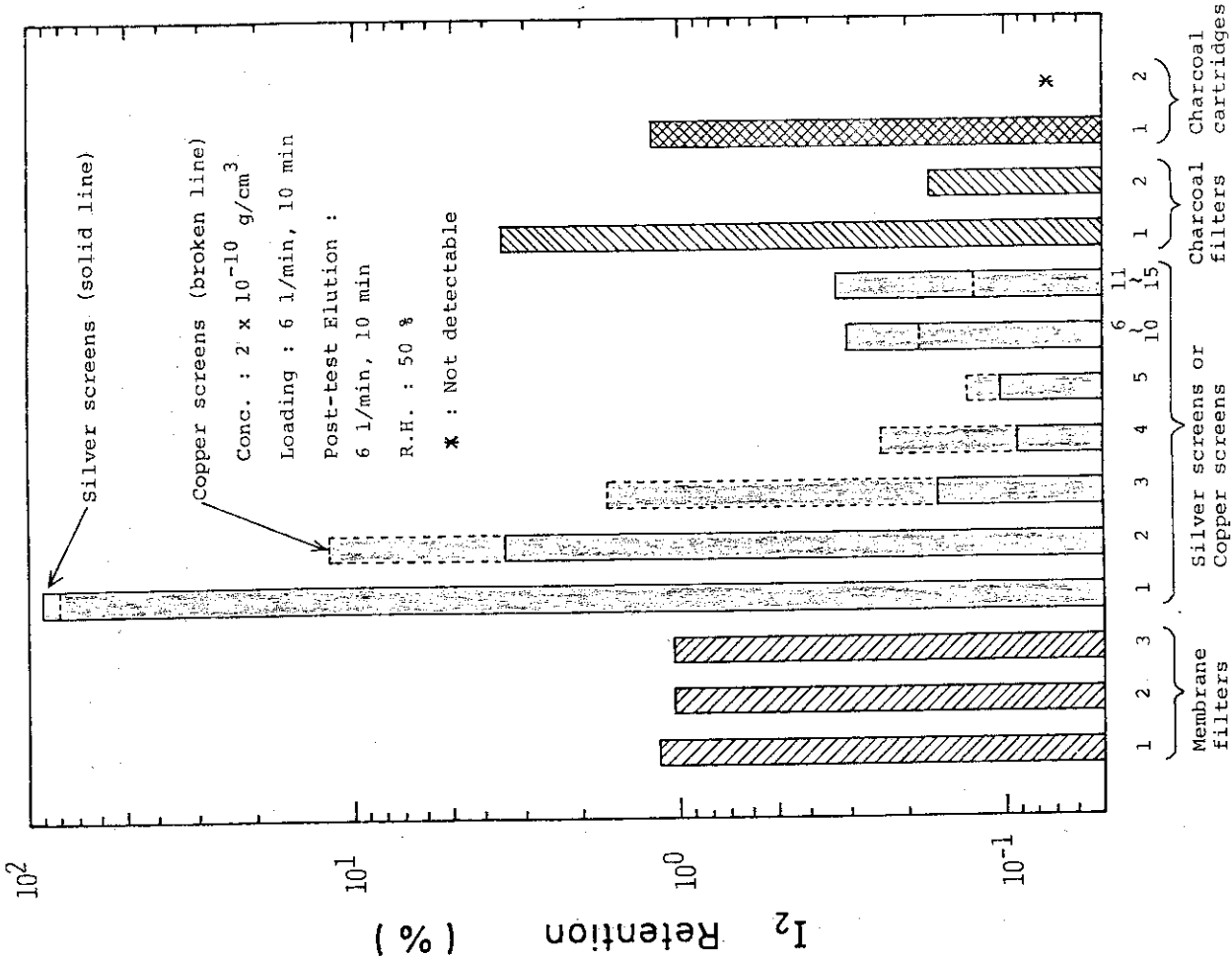


Fig. 12 Distribution of elemental iodine on Maypack components

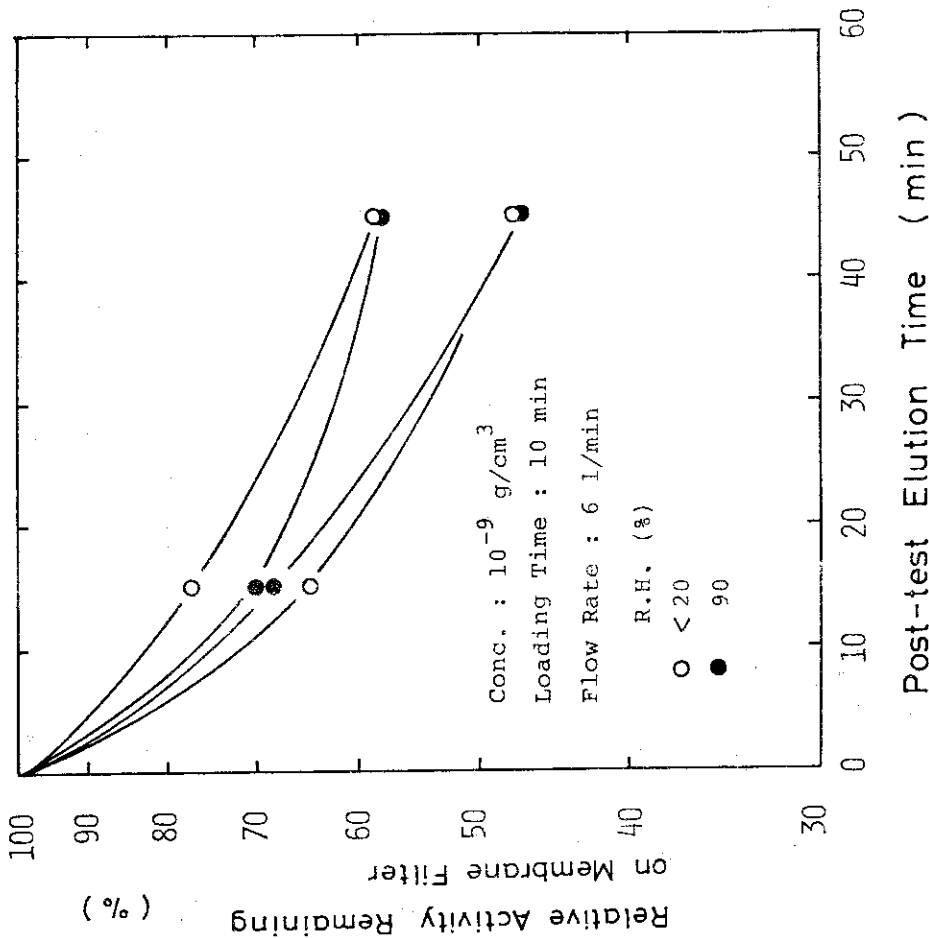


Fig. 13 Desorption of elemental iodine by post-test elution from membrane filter

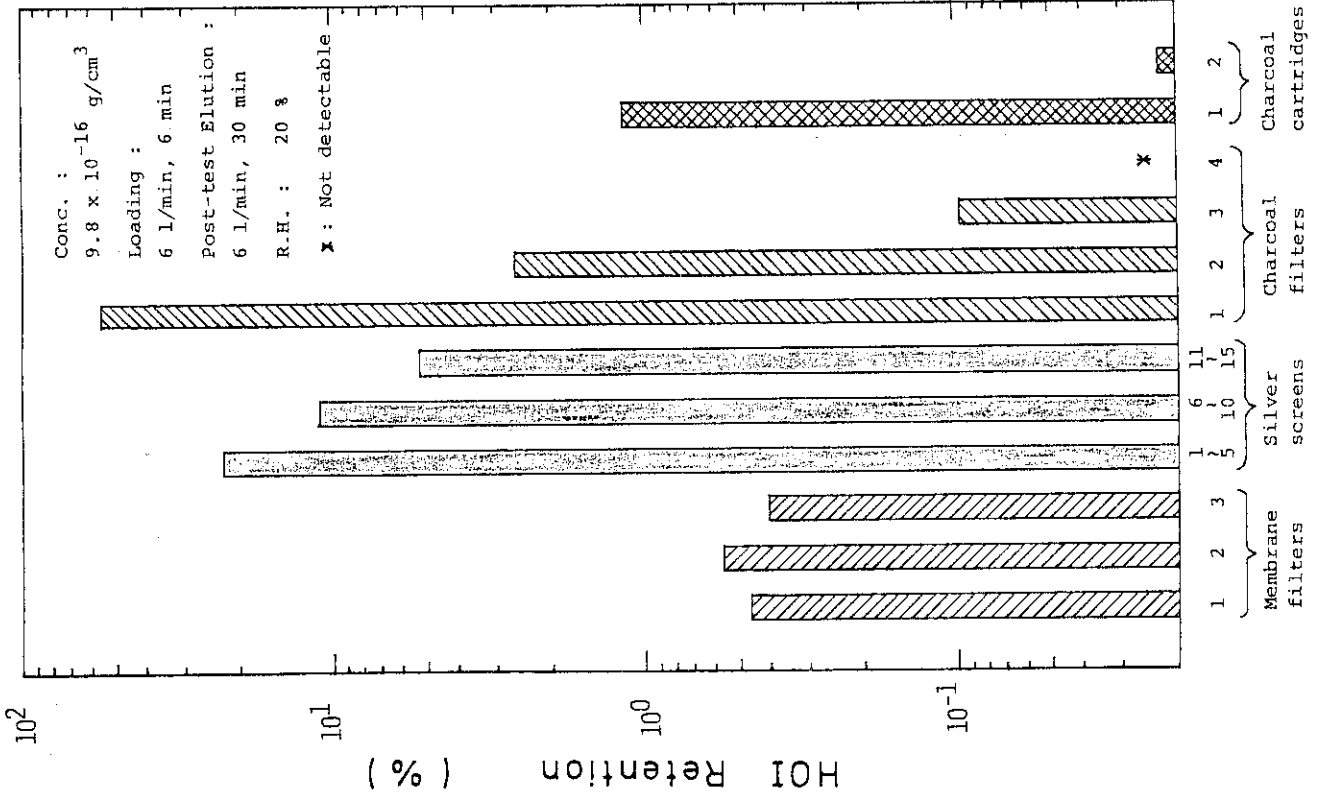


Fig.15 Distribution of hypoiodous acid in Maypack sampler containing silver screens

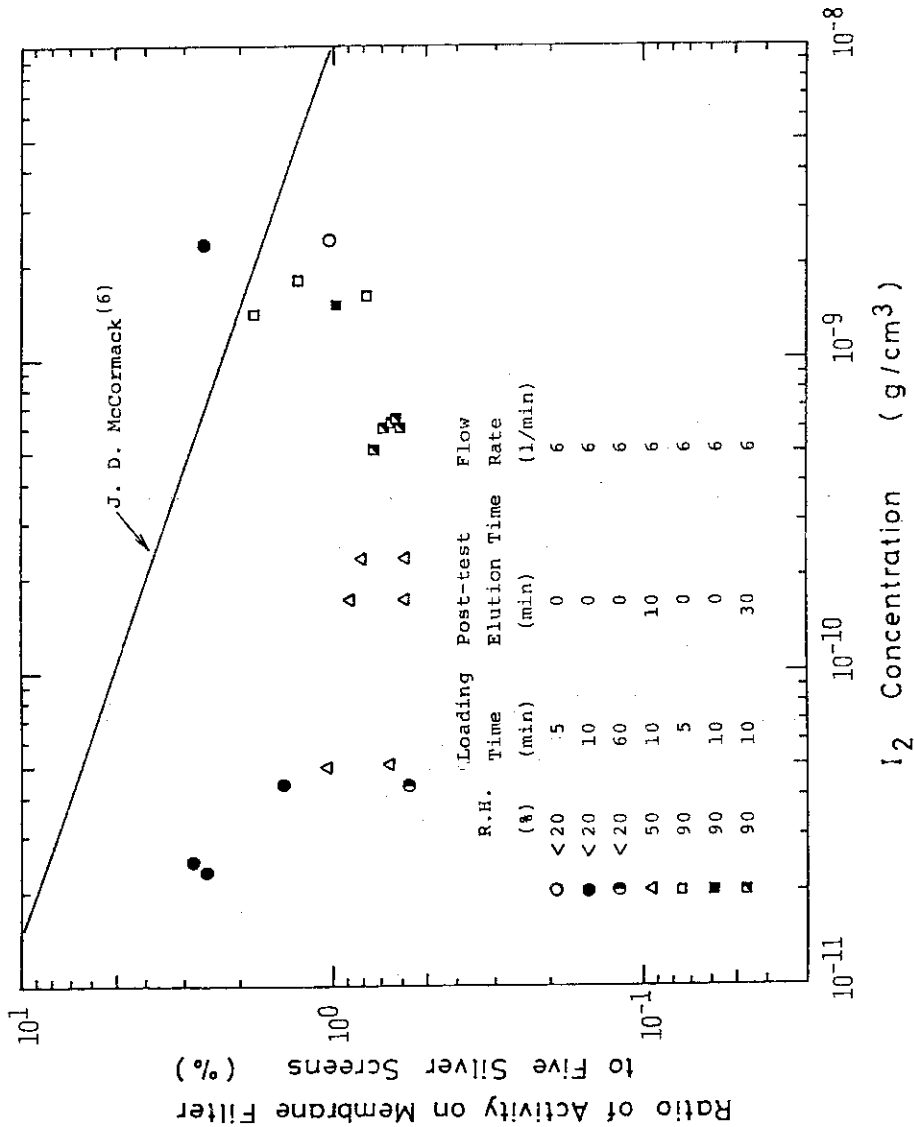


Fig.14 Retention of elemental iodine on membrane filter versus iodine concentration

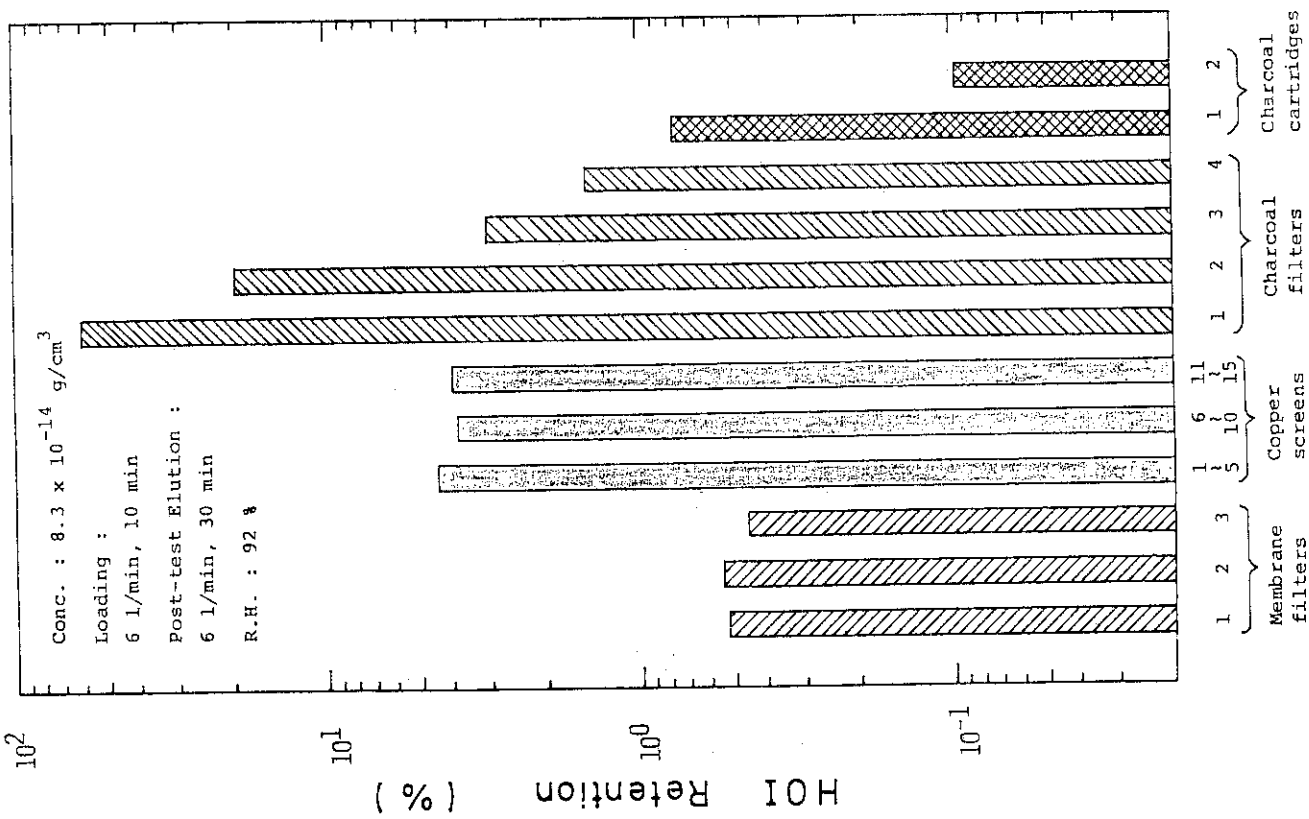


Fig.16 Distribution of hypoiodous acid in Maypack sampler containing copper screens

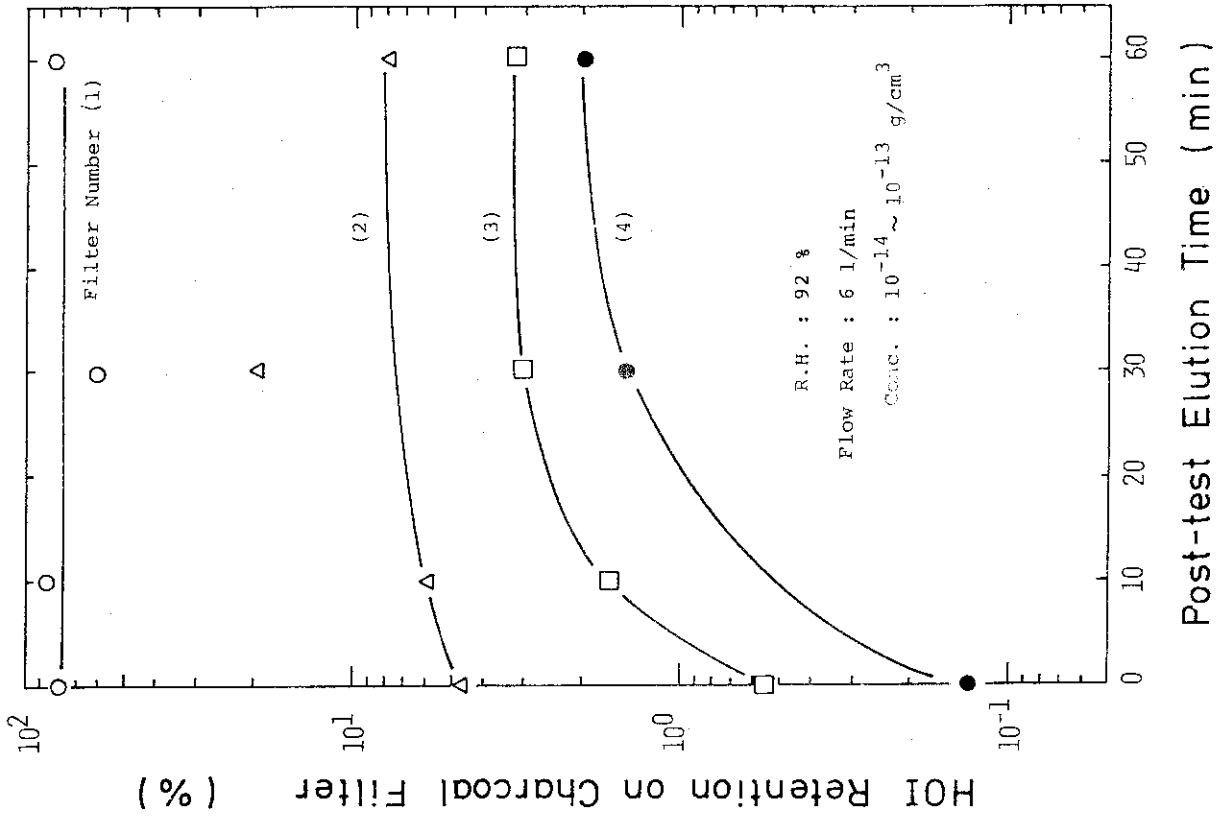


Fig.17 Desorption of hypoiodous acid by post-test elution from charcoal filters

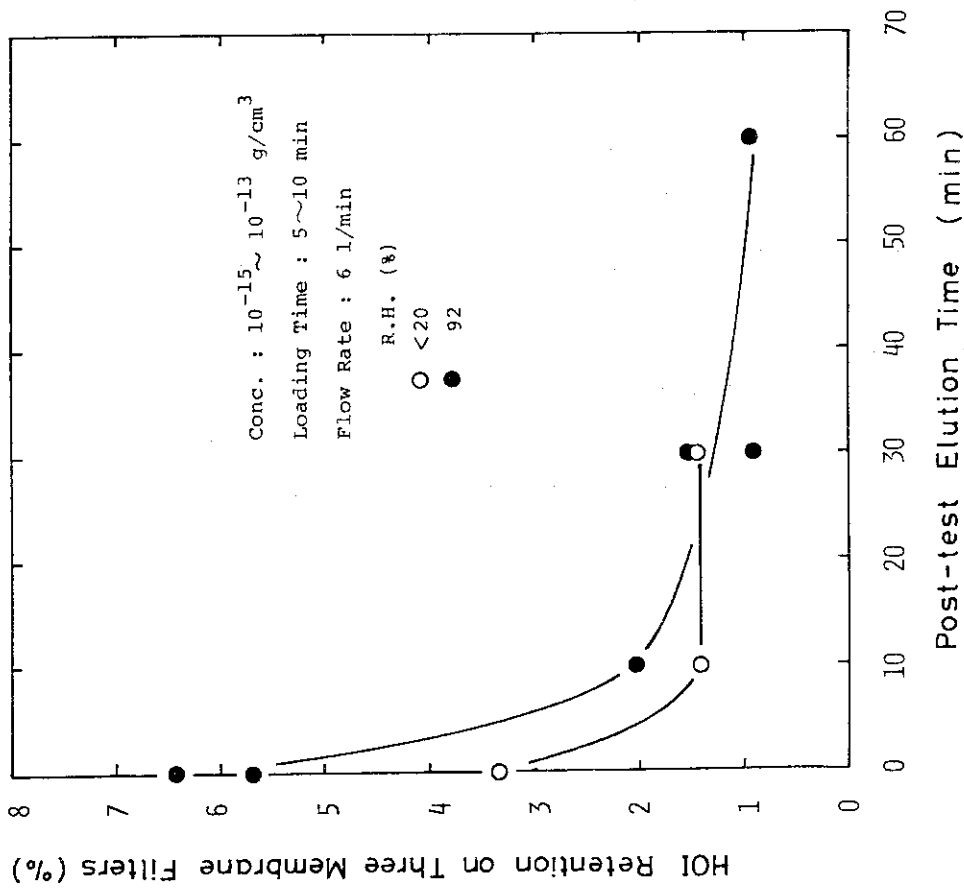


Fig.18 Desorption of hypoiodous acid by post-test elution from membrane filters

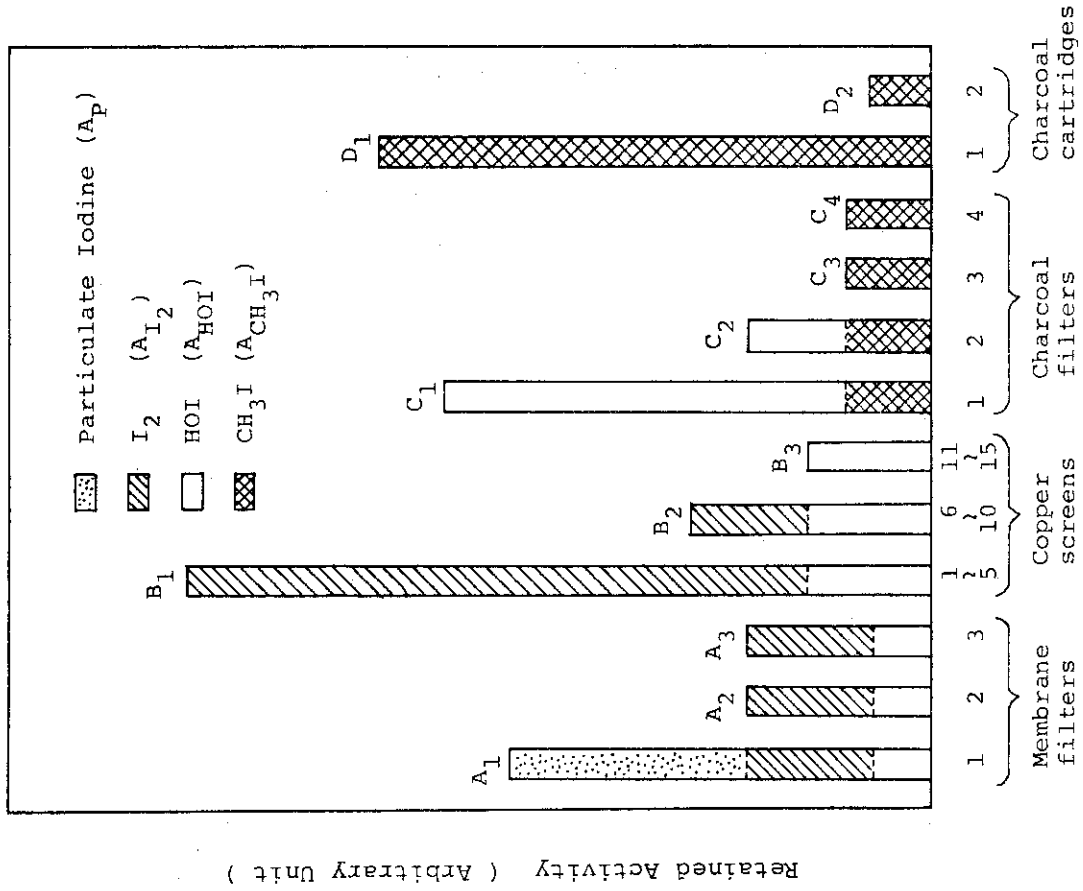


Fig.19 Distribution model of iodine species

付録 I

銀網のエアロゾル捕集特性

粒子状ヨウ素に比べて元素状ヨウ素の方が多く存在する雰囲気において、粒子状ヨウ素を正確に測定する場合には、まず銀網や銅網で元素状ヨウ素を完全に除去した後に、粒子フィルタで粒子状ヨウ素を捕集した方が精度がよくなる可能性がある。そこで、銀網へのエアロゾル粒子の沈着を調べ、銀網を粒子フィルタの前に置いた形式のサンプラについて検討を行った。

3.4で述べた粒子フィルタのエアロゾル粒子捕集特性の実験の場合と同様に、凝縮核測定装置を用いて、銀網の上流側と下流側の個数濃度を測定し、エアロゾルの透過率を求めた。エアロゾルには、アーク放電による銅粒子（個数中央径 $0.018 \mu\text{m}$ 、標準偏差 1.5、上流側個数濃度約 3×10^4 個/ cm^3 ）と線香の煙（個数中央径 $0.14 \mu\text{m}$ 、標準偏差 1.75、上流側個数濃度約 2×10^5 個/ cm^3 ）を使用した。銀網のメッシュサイズは80メッシュである。

アーク放電銅粒子を用いた場合の、銀網枚数に対するエアロゾルの透過率を、流量率をパラメタとして、Fig. 2.0に示す。銀網の枚数が増加するにつれて、透過率は減少し、 $10 \ell/\text{min}$ 、15枚の場合、透過率は約75%になった。また、15枚の銀網を使用した場合の流量率と透過率の関係をFig. 2.1に示す。流量率が増加するほど、透過率は増加した。

次に、エアロゾルとして線香の煙を用い、銀網（80メッシュ）の枚数および流量率と透過率の関係を調べた。その結果、枚数を5、10、15および20枚、また、流量率を2、4、 $8 \ell/\text{min}$ に変化させたが、いずれの場合も透過率はほぼ100%であった。また、メッシュサイズが100メッシュの銀網に対しても調べたが、同様に透過率はほぼ100%であった。

以上のことから、80メッシュの銀網に対して、アーク放電で発生させた銅粒子はかなり沈着するが、線香の煙はほとんど沈着しないことがわかった。

粒径の小さい銅粒子の沈着は、主として拡散によるためと考えられる。また、線香の粒子の場合は、その粒径（ $0.14 \mu\text{m}$ ）が拡散沈着と慣性沈着の領域の谷間にあり、最も沈着しにくい粒径を有していたため、透過率は変化しなかったと考えられる。したがって、銀網へのエアロゾル粒子の沈着は、その粒径に大きく依存するため、未知の粒径を持つ粒子状ヨウ素が銀網に沈着した場合、その補正はかなり困難になると考えられる。しかし、粒径が既知で、かつ、 $0.1 \mu\text{m}$ 程度の大きさの粒子を捕集する場合には、銀網にはほとんど沈着しないと考えられるため、銀網を粒子フィルタの前に配置するのも一方法であると考えられる。

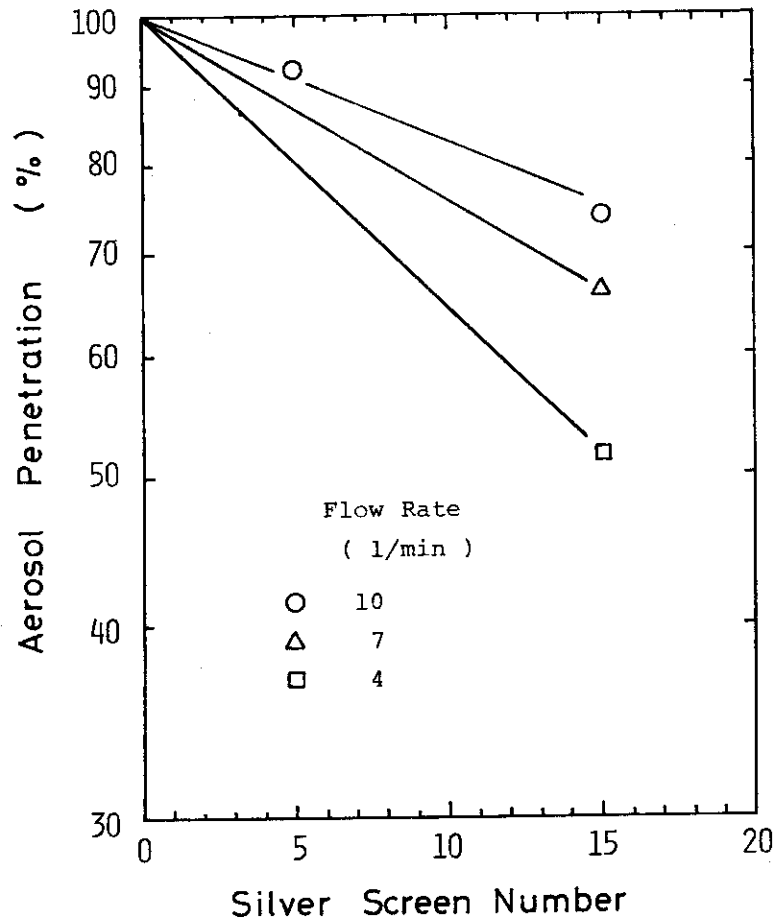


Fig.20 Penetration of silver screens by aerosol versus the number of screen

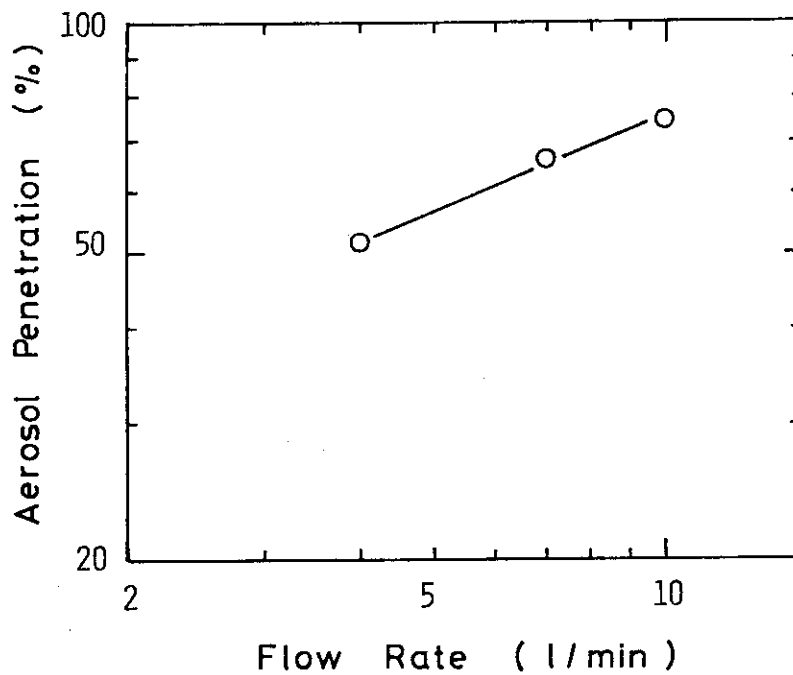


Fig.21 Penetration of silver screens by aerosol versus flow rate