

再処理工場試験運転時における周辺環境 空気中の ^{85}Kr 濃度の測定

Measurement of ^{85}Kr Concentration in the Environmental Air
during the Hot - test Operation of Tokai Reprocessing Plant

August 1978

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

Tokai Works

Power Reactor & Nuclear Fuel Development Corporation

複製あるいは入手については、下記にお問い合わせください。

茨城県那珂郡東海村 〒 319-11

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所技術部研究管理課 ☎ 東海 (02928) 2-1111

Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

Enquiries about copyright and reproduction should be addressed to ;

Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development

Corporation,

Tokai, Ibaraki, Post No.319-11, Japan.

再処理工場試験運転時における周辺環境 空気中の⁸⁵Kr濃度の測定

Measurement of ⁸⁵Kr Concentration in the Environmental Air
during the Hot - test Operation of Tokai Reprocessing Plant

平山 昭生*	岸本 洋一郎*
黒須 五郎*	須藤 雅之*
藤岡 章*	成田 倭*
篠原 邦彦*	片桐 裕美*
郷田 正*	並木 篤*
大内 一正*	井上 義道*

要　旨

昭和53年5月におこなわれた再処理工場のPWR燃料処理試験時に⁸⁵Krの大気放出時における周辺地域の空気中⁸⁵Kr濃度を測定した。測定方法は、 $10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度の⁸⁵Krを、比較的簡易、迅速、かつ精度よく測定するために考案したチャコール吸着法である。空気試料の採取は日中、風向の変動が比較的少ないときに、あらかじめ定めた採取地点網のうちから風下方向の適切な地点を複数点選び、本実験用に製作したエアサンプラーを用いて、約 $1.5 \ell/\text{min}$ の流量で1時間吸引し採取した。実験は7回おこない、約30個の試料の採取および分析に成功した。この実験の結果、採取方法および⁸⁵Kr濃度測定法について、改良すべき点がいくつか明らかとなつたが、概して良好な方法であることが判明した。大気拡散調査用のエアトレーサーとしては、これまでSF₆ガスを用いており、 10^{-3} ppb 程度までの濃度分析技術が確立しているため、本実験においても⁸⁵Krの放出と同時にSF₆ガスを放出し、採取試料中のSF₆濃度を分析することにより、⁸⁵Krの分析結果と比較したが、両者の間には極めて良い相関がみられた。

* * 安全管理部環境安全課、課長

* 安全管理部環境安全課

Measurement of ^{85}Kr Concentration in the Environmental Air
during the Hot-test Operation of Tokai Reprocessing Plant

Akio HIRAYAMA, Yoichiro KISHIMOTO
Goro KUROSU, Masayuki SUDOU
Akira FUJIOKA, Osamu NARITA
Kunihiko SHINOHARA, Hiromi KATAGIRI
Tadashi GOUTA, Atsushi NAMIKI
Kazumasa OUCHI, Yoshimichi INOUE

Abstract

^{85}Kr concentration in air in the vicinity of the reprocessing plant was measured when it was released from the plant stack during the hot-test operation using PWR spent fuels. Charcoal absorption method was devised for this experiment as a rapid, simple and inexpensive technique for the measurement of ^{85}Kr concentration at about $10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$. Special air samplers were located at few kilometers distant from the stack and the air was collected for an hour at a flow-rate of 1.5 liters per minute. About thirty air samples were taken and analyzed for ^{85}Kr concentration successfully. The performance of sampling and analytical methods employed was good, although some improvements were found to be necessary. An example is that an air-collection bag should be made of "saran" so that the leakage be minimized. Usually in the atmospheric diffusion study sulfur hexafluoride gas is used as an air-tracer, and analytical procedure for the gas concentration down to 10^{-3} ppb is well established. In this experiment SF₆ gas was injected into the stack during the discharge of ^{85}Kr and the concentration in sampled air was also determined. The results show a good correlation between ^{85}Kr and SF₆ concentration in sampled air.

目 次

1. 序	1
2. 目的	1
3. 実験方法	2
3.1 ^{85}Kr および SF_6 の大気放出	2
3.1.1 ^{85}Kr の大気放出	2
3.1.2 SF_6 の大気放出	2
3.2 空気試料の採取	10
3.2.1 採取方法	10
3.2.2 試料採取地点網	11
3.3 ^{85}Kr および SF_6 の濃度測定	14
3.3.1 ^{85}Kr 濃度の測定(チャコール吸着法)	14
3.3.2 SF_6 濃度の測定(ECD ガスクロマトグラフィー)	22
3.4 気象観測	23
3.4.1 風向, 風速の測定	23
3.4.2 大気安定度の観測	23
3.4.3 その他の気象観測	23
4. 結果および考察	24
4.1 気象観測結果	24
4.1.1 実験時の天気概況	24
4.1.2 各実験毎の気象状況	24
4.2 ^{85}Kr 濃度測定結果と考察	29
4.3 地上濃度の実験結果と計算値との比較	33
5. 結論および今後の課題	41
6. 謝辞	42
7. 参考文献	42
付録	
A. チャコール吸着法による ^{85}Kr の分析方法	43
B. ECD 付ガスクロマトグラフによる SF_6 の分析方法	44
C. 使用器材一覧	48

図 目 次

図 1.	^{85}Kr および SF_6 ガス放出概念図	3
図 2.	SF_6 ガス放出データ（実験No.1～No.3）	5
図 3.	SF_6 ガス放出データ（実験No.4～No.7）	6
図 4.	^{85}Kr および SF_6 の初期放出濃度経時変化（実験No.1～No.3）	7
図 5.	^{85}Kr および SF_6 の初期放出濃度経時変化（実験No.4～No.7）	8
図 6.	試料採取方法概念図	11
図 7.	試料採取点網	13
図 8.	^{85}Kr 濃縮装置	15
図 9.	^{85}Kr 放射能測定装置	15
図 10.	正味の計数率対 ^{85}Kr 濃度（濃縮装置No.1）	16
図 11.	正味の計数率対 ^{85}Kr 濃度（濃縮装置No.2）	17
図 12.	校正定数対サンプル量	18
図 13.	^{85}Kr 分析値補正のブロックダイヤグラム	19
図 14.	各モニタによる ^{85}Kr 測定値の比対ビニール袋での放置日数	20
図 15.	拡散実験時の天気図	25
図 16.	実験時の風向、風速の変動状況（実験No.1～No.3）	27
図 17.	実験時の風向、風速の変動状況（実験No.4～No.7）	28
図 18.	^{85}Kr 稀釈率対 SF_6 稀釈率	32
図 19.(a)～(b)	SF_6 による実験と計算の比較	36
図 20.	実験値から推定した拡散軸と軸上濃度	38

表 目 次

表 1.	^{85}Kr と SF_6 の放出および試料採取の時間経過	4
表 2.	^{85}Kr および SF_6 の平均初期放出濃度	9
表 3.	試料採取点の位置と標高	12
表 4.	サンプル量と正味の計数率	14
表 5.	スタックモニタおよび β ガスモニタでの ^{85}Kr 測定値	20
表 6.	^{85}Kr の濃縮率および回収率	22
表 7.	SF_6 濃度区分と測定方法	22
表 8.	パスカル大気安定度分類表(日本式)	23
表 9.	実験時の各気象要素	26
表 10.	^{85}Kr および SF_6 分析結果	30
表 11.	^{85}Kr 稀釀率と SF_6 稀釀率	31
表 12.	軸上濃度の測定値と計算値との比較	39
表 13.	軸上稀釀率	40
表 14.	実験により求めたプルーム拡散幅(σ_y)	40

1 序

空気中の⁸⁵Kr濃度の測定については、測定の目的に応じ、これまでに様々な方法が考えられている。例えば排気モニタリングにおけるように $10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 以上の比較的高い濃度範囲については、GM計数管等を用いた連続測定がおこなわれている。また、東海事業所敷地周辺に設置しているモニタリング・ステーションでは、GM計数管を用い、1時間平均値で $10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 以上の濃度を連続的に測定している。

さらに、バックグラウンド・レベル、すなわち $10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度の極低レベルの測定としては、野村らの実測例⁽¹⁾等がある。

再処理工場の使用済み燃料溶解時には、⁸⁵Krは最大 $10^3 \text{ Ci}/\text{hr}$ 程度の放出率で主排気筒より大気中に放出され、風下に拡散するが、この拡散状況を調査するには少なくとも $10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 以上の濃度をできるだけ迅速かつ容易に測定することが必要になる。

このため数 10ℓ の空気を採取し、チャコール吸着法により試料空気中の⁸⁵Krを吸着濃縮してこのレベルの濃度を測定する方法を考案した。この方法を実地に試験するため、昭和53年5月におこなわれた再処理工場のPWR燃料処理試験の機会を捉え、⁸⁵Kr大気放出時に周辺地域における⁸⁵Kr空気中濃度を測定し、実際の拡散状況の把握に資するデータを収集した。再処理工場主排気筒に係る大気拡散調査は、これまでエアトレーサーとしてSF₆ガスを用いておこなっており、SF₆の濃度分析については 10^{-3} ppb までの分析技術が確立されている。このため、この実験では、⁸⁵Krの放出時に同時にSF₆ガスの放出もおこない、⁸⁵KrとSF₆の両者について濃度分析をおこなうことにより、相互の関係について調べた。また得られたデータから、風下水平方向のプルームの拡がり（濃度分布のy方向の標準偏差 σ_y ）について試算した。

2 目 的

この実験は下記の目的で実施したものである。

- ① チャコール吸着法による $10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度の濃度の⁸⁵Kr濃度測定技術の実用性について検討すること。
- ② 大気拡散実験は、大規模なものとなるのが、これまでの通例であるが、目的を限って、比較的少人数で実施できるかどうかを検討する。

3 実験方法

3.1 ^{85}Kr および SF_6 の大気放出

3.1.1 ^{85}Kr の大気放出

今回の調査は PWR キャンペーン中に行ない、 ^{85}Kr は再処理工場のスケジュールに従って放出されたので、この調査に合わせた特別な放出方法はとらなかった。したがって実験必要条件となる

- ① ^{85}Kr 放出濃度が高く、安定しているとき。
- ② 風が陸側に向って吹き、風向が比較的安定しているとき。
- ③ 昼間であるとき。

の 3 つの条件が満たされた時に SF_6 を下記方法で放出し、 ^{85}Kr と SF_6 の混合空気試料の採取を実施した。

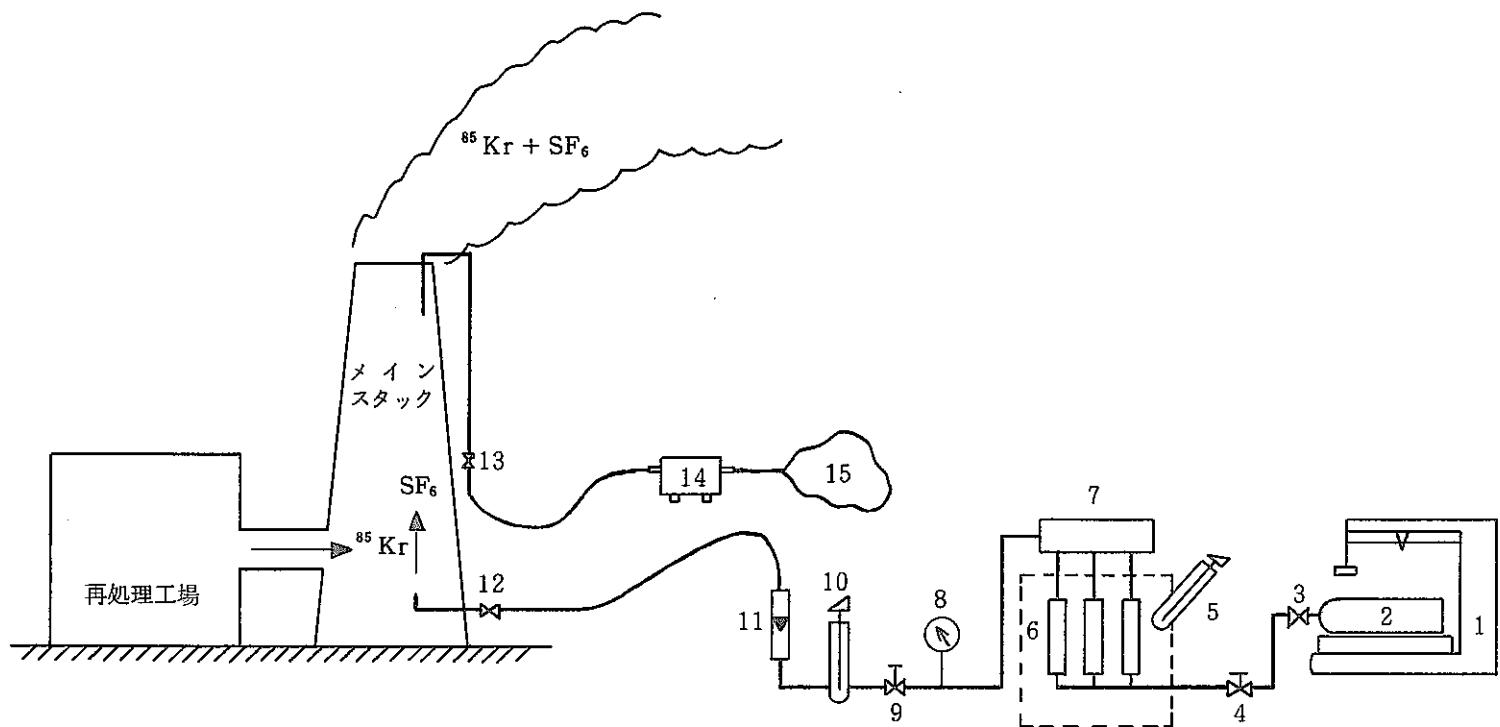
3.1.2 SF_6 の大気放出

この実験で ^{85}Kr との相関を調査するために用いたエアートレーサーは SF_6 (六フッ化イオウ) である。 SF_6 は天然には存在せず、発電所などの電気系統の絶縁体として用いられることがあるが、一般大気中で検出されることは少ない。また大気と混合し、大気と同一挙動をすると考えられている他、次のような性質がある。

- 動植物に無害である。
- 不活性物質であり、500°C 以下では化学変化を起さないので取扱いが安全である。
- 微量でも検出可能である。ECD (電子捕捉検出器) ガスクロマトグラフ法で体積比で 10^{-12} ($= 10^{-3}$ ppb) まで検出可能である。

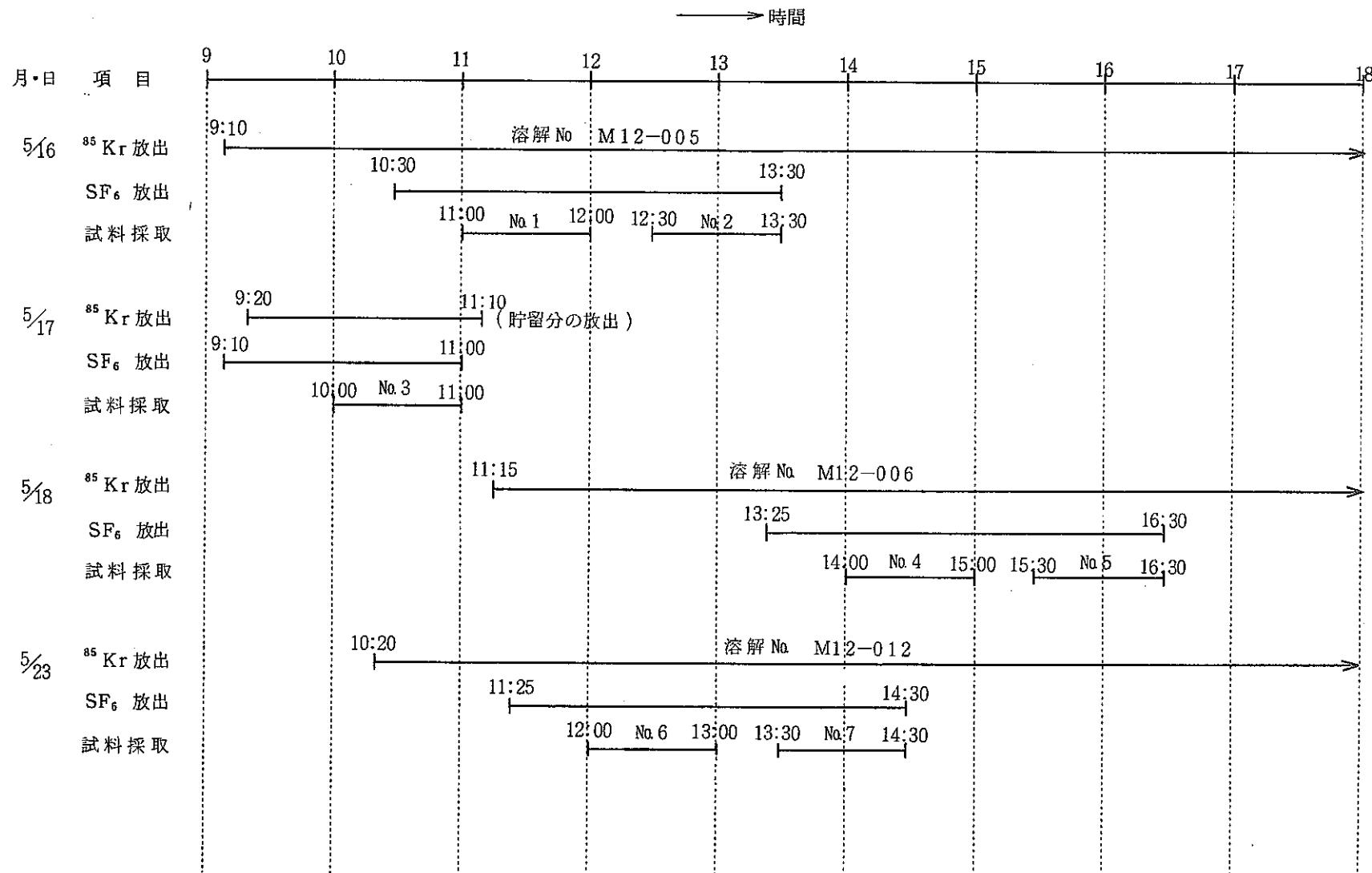
以上のような性質により SF_6 は大気拡散実験のエアートレーサーとして適している。また SF_6 の物理的特性は次の通りである。

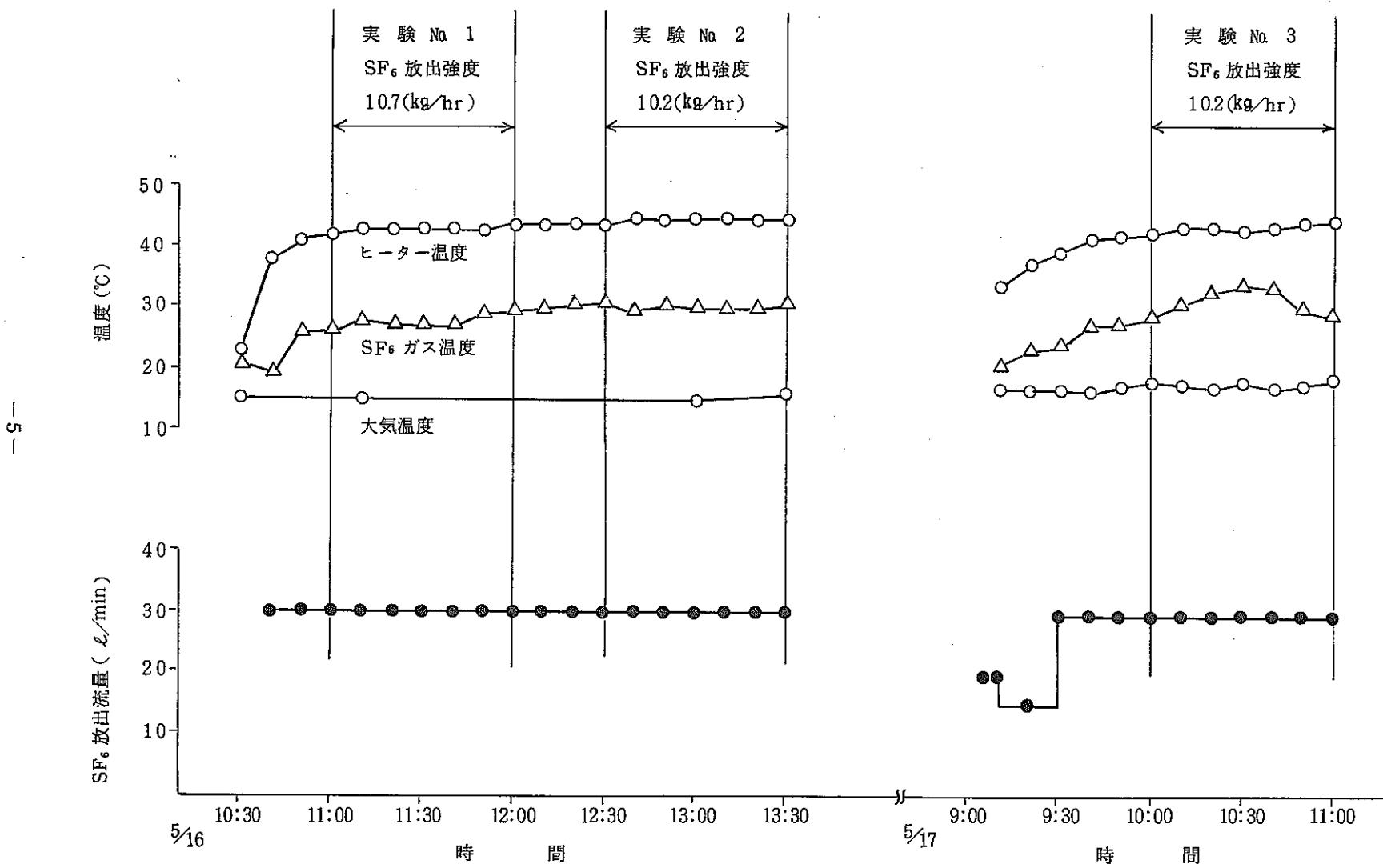
分子量	: 146.06
密度	: 6.139 (g / ℓ) (気体, 20°C)
臨界温度	: 45.6 (°C)
臨界圧力	: 37.2 (気圧)
気化熱	: 45.0 (cal/mol)
熱分解	: 500°C まで分解しない



- | | |
|--|-----------------------|
| 1. 台秤 (Max. 250 kg) | 9. 減圧弁(目盛付) |
| 2. SF_6 ボンベ (50kg入×2本) | 10. アルコール温度計 |
| 3. ボンベ元栓 | 11. フロート式流量計 |
| 4. メインバルブ(目盛付) | 12. メインスタック側送気バルブ |
| 5. 水銀温度計 | 13. メインスタック側サンプリングバルブ |
| 6. ヒーター(バイメタル温度S/W付リボンヒーター 300W / 1本×3本) | 14. エーサンプラー(エアーポンプ) |
| 7. 集気管 | 15. 捕集袋(100ℓビニール袋) |
| 8. 減圧弁一次圧力計 | |

図 1. ^{85}Kr および SF_6 ガス放出概念図

表1. ^{85}Kr と SF_6 の放出および試料採取の時間経過

図2. SF₆ ガス放出データ(実験No.1～No.3)

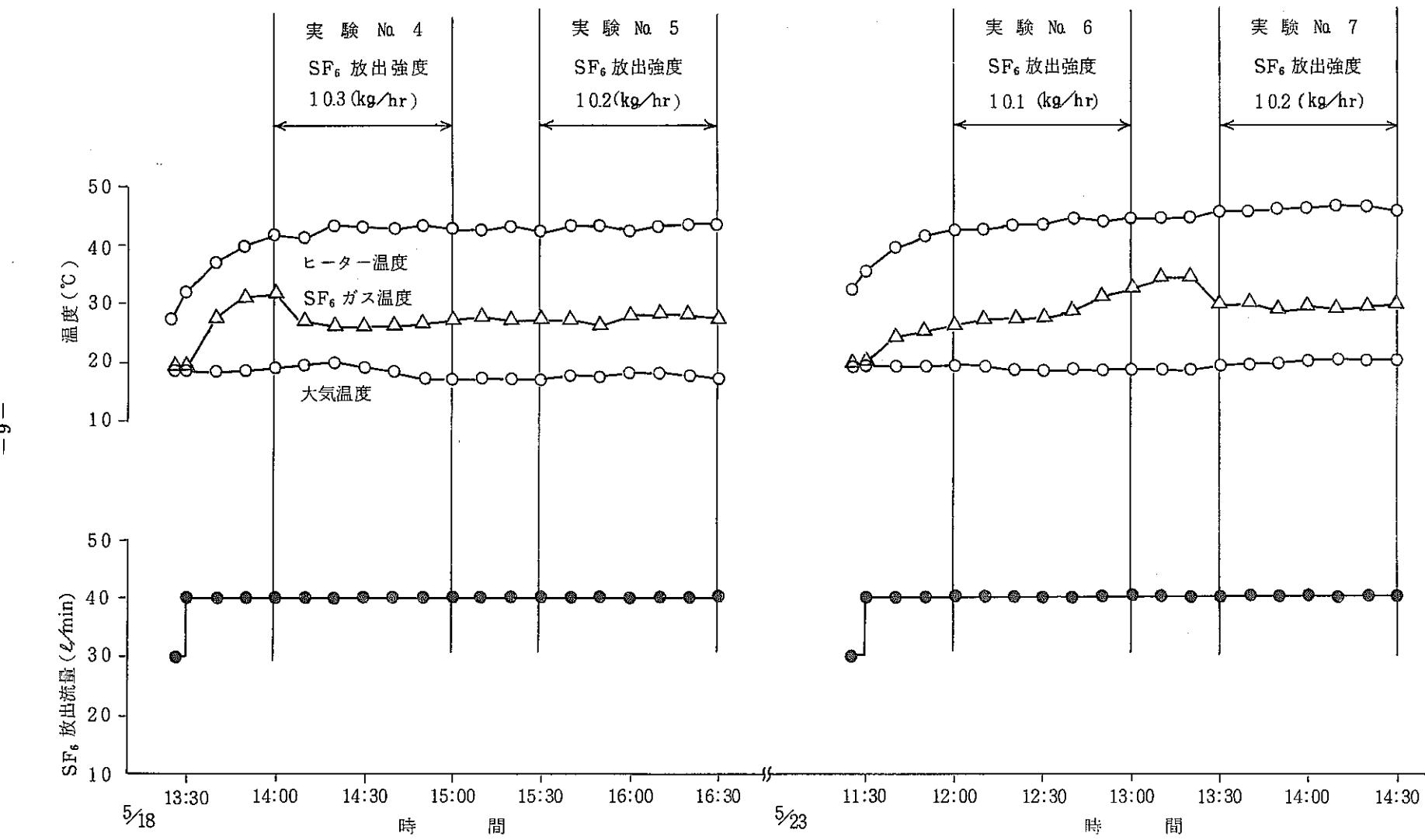


図3. SF₆ガス放出データ(実験No.4～No.7)

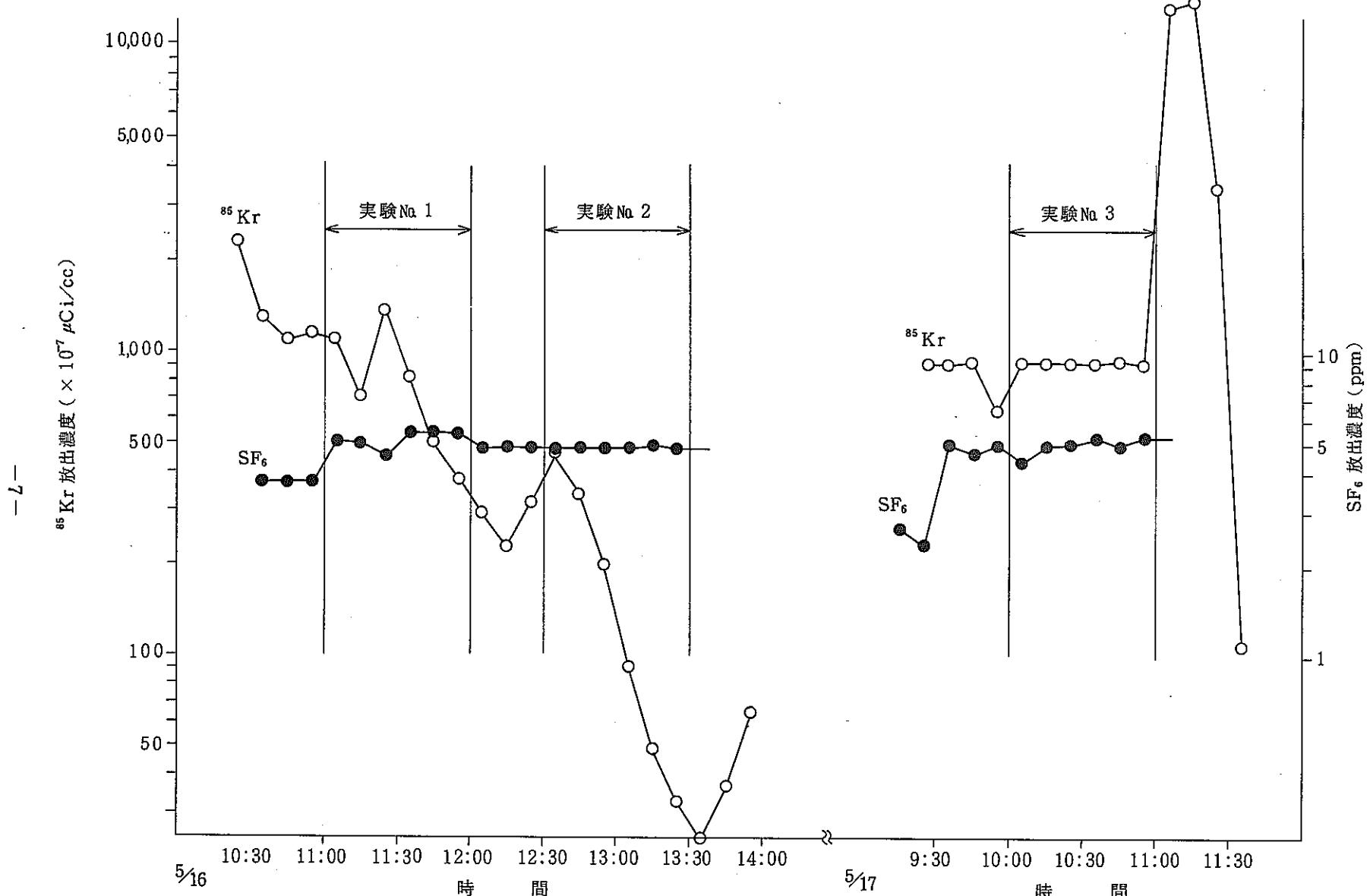


図 4. ^{85}Kr および SF_6 の初期放出濃度経時変化
(実験 No. 1 ~ No. 3)

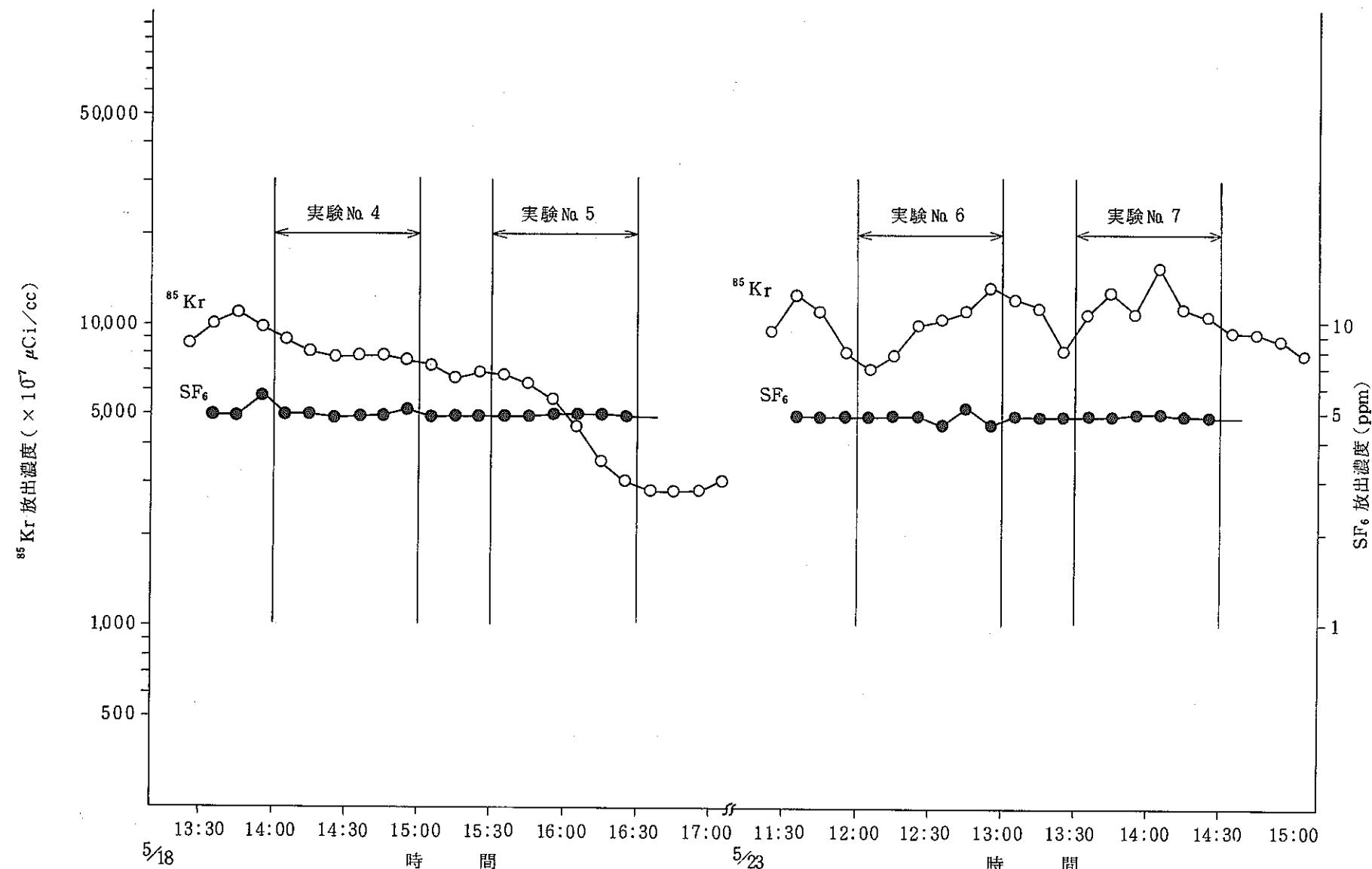


図 5. ^{85}Kr および SF_6 の初期放出濃度経時変化
(実験 No. 4 ~ No. 7)

SF_6 の放出は、 SF_6 発生装置を用いて、液体 SF_6 をヒーターで加熱してガス化し、流量調節弁で流量をコントロールしながら再処理工場主排気筒下部に既設されているパイプより排気筒内部に連続的に注入することによりおこなった。図1に ^{85}Kr および SF_6 ガス放出の概念図を示す。 SF_6 は実験開始30分前から設定流量であらかじめ放出した。放出量は SF_6 ボンベを載せた台秤でその重量減少を測定して求めた。

放出量のコントロールは図1中#9のバルブによっておこない、今回の調査では放出量を30ℓ/min(排気筒入口での初速1.1m/sec)に設定した。主排気筒における ^{85}Kr と SF_6 の混合空気の放出および試料採取の時間経過を表1に示し、各実験毎の SF_6 発生装置での放出データを図2および図3に示す。

また、各実験毎の ^{85}Kr と SF_6 の平均初期放出濃度を表2に示し ^{85}Kr および SF_6 の初期放出濃度の経時変化を図4および図5に示す。

表2 ^{85}Kr および SF_6 の平均初期放出濃度

実験No	日 時	^{85}Kr 濃度*1	SF_6 濃度*2
		($\mu Ci/cm^3$)	(ppm)
1	5/16 11:00~12:00	8.1×10^{-5}	5.0
2	5/16 12:30~13:30	2.0×10^{-5}	4.8
3	5/17 10:00~11:00	9.2×10^{-5}	4.9
4	5/18 14:00~15:00	7.9×10^{-4}	5.0
5	5/18 15:30~16:30	4.9×10^{-4}	5.0
6	5/23 12:00~13:00	9.8×10^{-4}	4.9
7	5/23 13:30~14:30	1.2×10^{-3}	4.9

*1 : スタックモニタ
測定値の平均
*2 : ボンベ重量減より求めた計算値
の平均

表2および図4、図5における ^{85}Kr 濃度と SF_6 の放出濃度は次式により計算したものである。

$$KR_2 = (KC - KCB) \times A \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

ここで KR_2 : ^{85}Kr 放出濃度 ($\mu Ci/cm^3$)

KC : スタックモニタによる ^{85}Kr 計数率 (cpm)

KCB : バックグラウンド (BG) 計数率 (cpm)

A : 校正定数 ($1.7 \times 10^{-8} \mu Ci/cm^3/cpm$)

$$C_{SF_6} = \left\{ \left(W \times \frac{0.0224}{MW} \times \frac{273+t}{273} \right) \times 6 \right\} / EXF \quad \dots \dots \dots (2)$$

ここで C_{SF_6} : $S F_6$ 初期放出濃度 (ppm)

W : 10 分間での $S F_6$ 放出重量 (g)

MW : $S F_6$ 分子量 (= 146.06) (-)

EXF : 主排気筒総排気量 (m^3/h)

3.2 空気試料の採取

3.2.1 採取方法

空気試料の採取は、バッテリーで稼動する低流量エアポンプに、サンプリング用ビニールチューブ、および容積約 100 ℥ の捕集袋を接続したサンプラーを用いておこなった。サンプラーは、あらかじめ定めた試料採取地点網（次節参照）のうち、実験時の気象条件に合った位置に設置し、空気を吸引するチューブの先端は、地上約 1.5 m に設定した。サンプリングは $S F_6$ 放出開始から 30 分経過した時点から 1 時間おこないサンプリング開始および終了の時刻設定はサンプラーに接続したタイマーによりおこなった。サンプリング流量は約 1.5 ℥/min とした。

図 6 に試料採取方法の概念図を示した。なお主排気筒放出濃度（初期放出濃度）測定のためのサンプリングは排気筒内上部中心にサンプリング口をもつ既設サンプリング配管を用いておこなった。この配管は内径約 10 mm、延長約 90 m であるので、管内空気の十分な置換をおこなうため、約 20 分以上の予備吸引をおこなったのち空気試料の採取と同じ方法で 1 時間のサンプリングをおこなった。

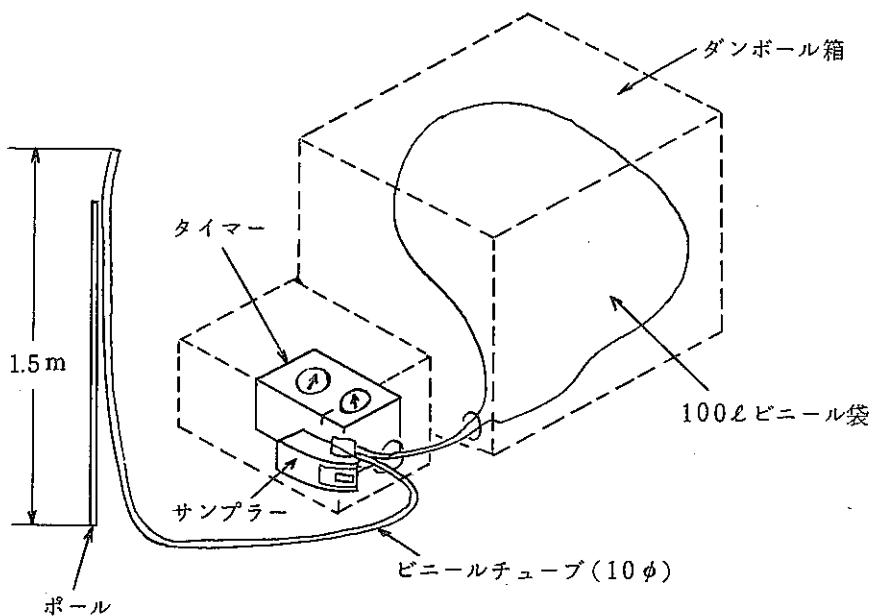


図 6. 試料採取方法概念図

3.2.2 試料採取地点網

本実験では主排気筒を中心に、陸地側半径 4 km までの地域を試料採取対象地域とした。すなわち主排気筒の西側の半径 1 km, 2 km, 3 km および 4 km の同心円弧上に、各 11 ~ 17 箇所の採取地点を設定した。

表 3 に試料採取点の位置と標高を示し、図 7 に地図上の採取地点を示す。

表 3. 試料採取点の位置と標高

 r : 主排気筒からの距離 (m) θ : 方位 (°)

h : 標高 (海拔, m)

-12-

位置番号	A (1 km)			B (2 km)			C (3 km)			D (4 km)		
	r (m)	θ (度)	h (m)	r (m)	θ (度)	h (m)	r (m)	θ (度)	h (m)	r (m)	θ (度)	h (m)
1	1000	212	25	1980	210	31	2900	208	31	4330	208	32
2	1000	221	18	1970	218	31	2900	216	32	4140	220	32
3	1000	235	28	2000	226	32	3130	227	33	4220	227	32
4	1000	247	25	2000	238	30	3000	236	33	4200	234	32
5	900	263	25	2000	245	31	3300	247	30	4250	240	31
6	1000	273	6	2000	266	5	3400	259	5	4160	246	31
7	990	285	6	2000	266	5	3300	267	7	4300	258	30
8	980	300	6	2000	281	6	3220	278	25	3900	266	10
9	1000	314	6	2000	289	28	3200	287	30	3800	278	31
10	1050	329	7	2150	304	5	3020	297	31	4100	287	28
11	1150	340	10	2060	316	5	2800	209	10	4050	298	25
12				2000	330	15	2820	320	28	4120	305	30
13				2020	344	20	3050	331	20	4030	317	30
14							3000	342	20	4300	325	23
15							3000	354	20	4230	334	21
16										4290	342	6
17										4000	354	3

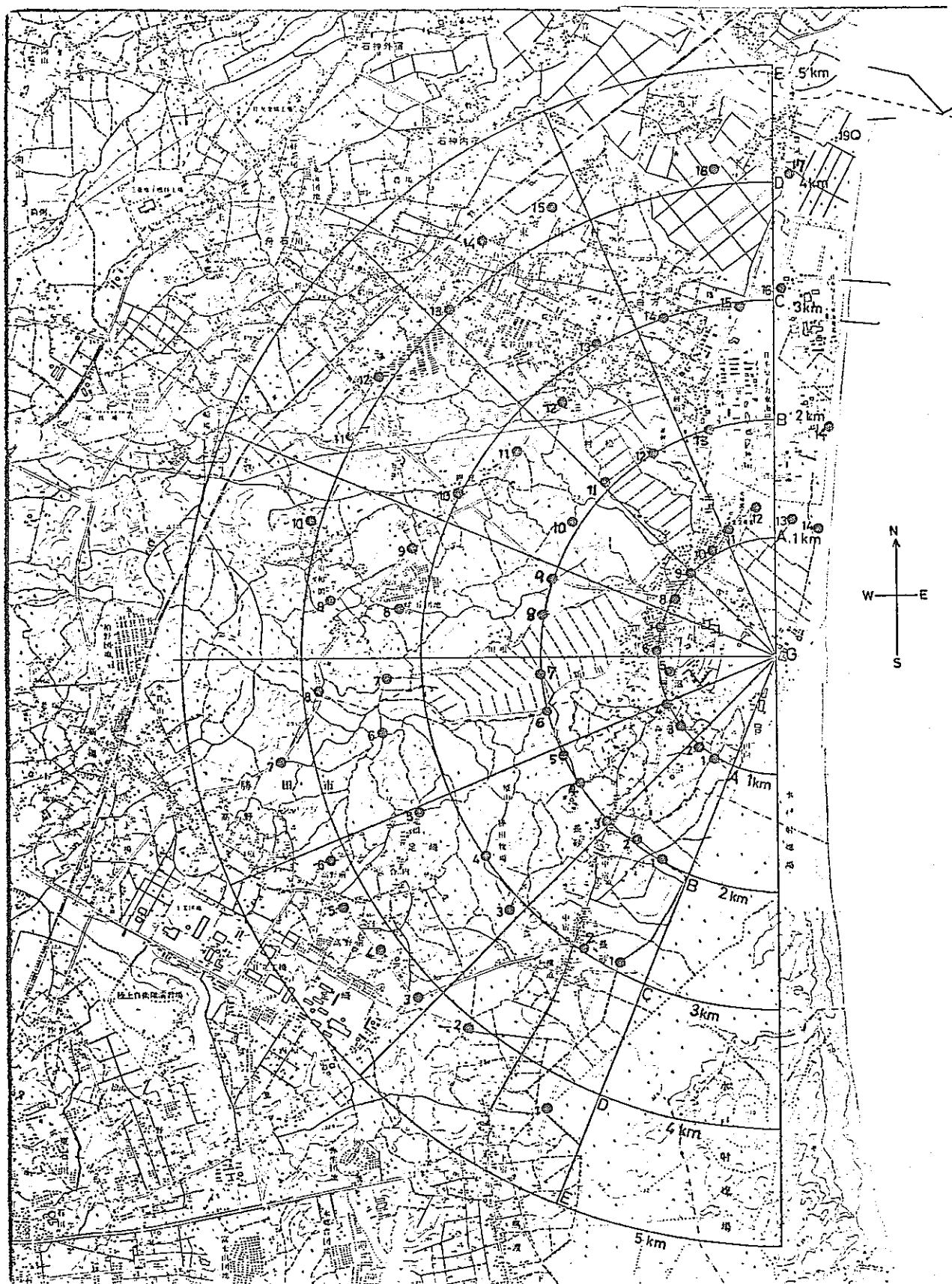


図7. 試料採取点網

3.3 ^{85}Kr および SF_6 の濃度測定

3.3.1 ^{85}Kr 濃度の測定(チャコール吸着法)

1) 測定方法

^{85}Kr の濃縮方法は、図8に示す様にサンプリングしてきた60ℓの空気を液体窒素で冷却したチャコールトラップに5ℓ/minの流量で通し、空気中に含まれる ^{85}Kr をチャコールに吸着させ空気と分離する。空気を通し終ったチャコールトラップは、冷却したまま真空に引くと、 ^{85}Kr は吸着したまま残り、トラップ内の空気は外に出る。

この様にして空気と分離し、チャコールに吸着した ^{85}Kr を加熱し、脱着させた後にチャコールトラップに不活性ガスを入れ、 ^{85}Kr をトラップから押し出し200ccのビニール袋に集め、図9に示す様に、濃縮した ^{85}Kr ガスをビニール袋に入れた状態で、ビニール袋ごとGM計数装置で計数率を測定する。チャコール吸着法による ^{85}Kr の分析方法の詳細を付録Aに示した。

2) 検量線

^{85}Kr 濃縮装置は2台(装置番号No.1およびNo.2)あり、検量線は電離箱式測定器(当事業所で ^{85}Kr の測定原器として用いている測定器)で測定した $5.2 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の基準ガスを種々の濃度に空気で稀釈して各装置毎に求めた。

検量線作成に用いた ^{85}Kr 濃度は $1.04 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ $3.61 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ $1.17 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の3種であり、実際の試料採取の際にビニール袋から試料ガスが漏れることを考慮して30ℓ～60ℓまで10ℓ毎にサンプル量を変化させ、各 ^{85}Kr 濃度に対する検量線を作成した。

各 ^{85}Kr 濃度に対しサンプル量をパラメータにした時の正味の ^{85}Kr の計数率を表4に示し、正味の計数率対 ^{85}Kr 濃度を図10および図11に示す。

表4. サンプル量と正味の計数率

^{85}Kr 濃度	$1.04 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$	$3.61 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$	$1.17 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$			
濃縮装置 サンプル量	No.1	No.2	No.1	No.2	No.1	No.2
30ℓ	16.6±2.2	36.4±2.2	82.4±2.4	121.8±2.5	235.5±2.5	427.0±3.9
40ℓ	24.1±2.2	55.7±2.3	140.0±2.6	219.4±2.8	360.5±3.2	629.7±3.9
50ℓ	53.9±2.3	75.2±2.4	183.6±3.7	294.0±3.0	571.3±3.7	1006.1±4.6
60ℓ	67.8±4.7	127.9±5.3	226.7±6.2	462.7±7.9	826.6±9.9	1470.0±12.8

単位は cpm

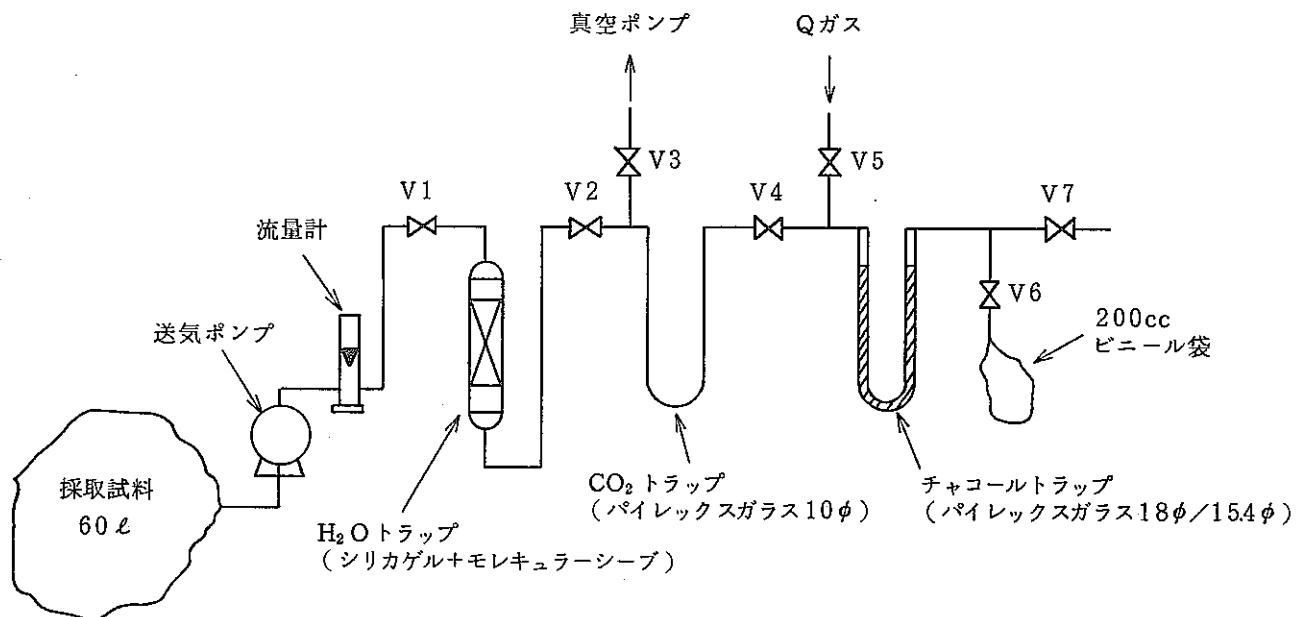


図 8. ^{85}Kr 濃縮装置

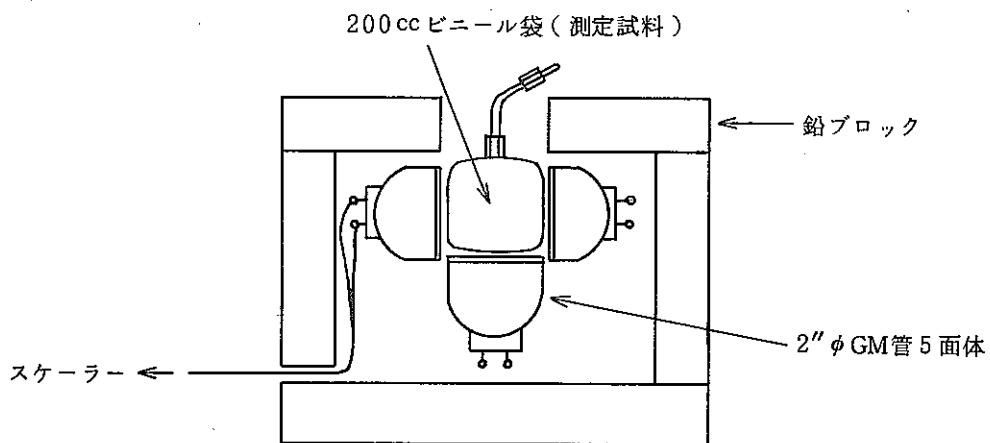
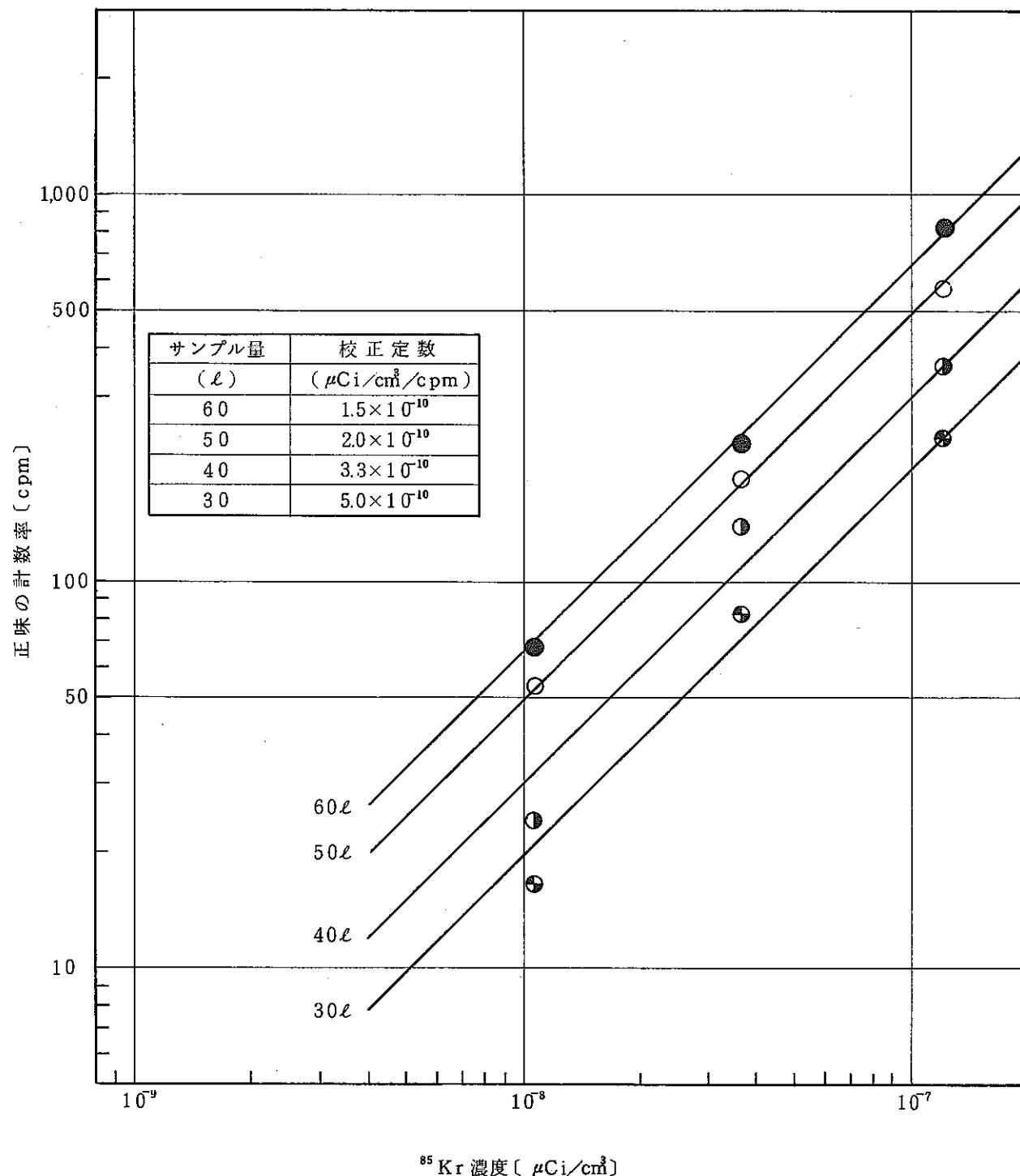


図 9. ^{85}Kr 放射能測定装置

図 10. 正味の計数率対 ^{85}Kr 濃度 (濃縮装置 No. 1)

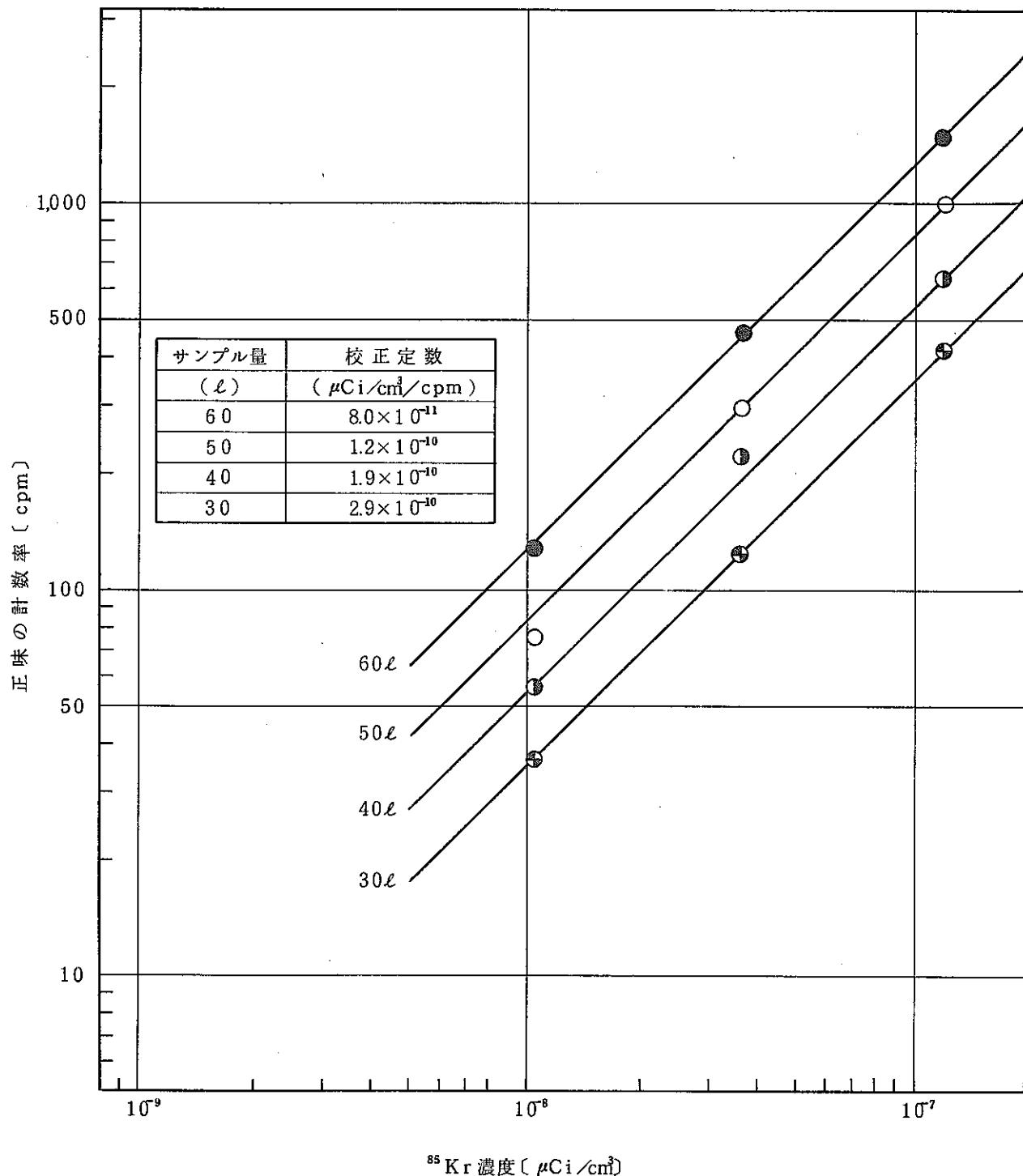
図 11. 正味の計数率対 ^{85}Kr 濃度（濃縮装置 No. 2）

図10および図11から求めた各サンプル量における校正定数を図12に示す。装置特性および試料の量によって⁸⁵Krの検出限界は異なるが、今回の実験に用いた2台の濃縮装置を使用すれば、試料の量が30ℓ～60ℓの間で変動しても10⁻⁹ μCi/cm³程度の⁸⁵Kr濃度は十分に測定可能である。

図1-2より各濃縮装置を用いて分析した場合の校正定数は次式で表わすことができる。

$$\text{濃縮装置 No. 1 : 校正定数 } (\mu\text{C i}/\text{cm}^3/\text{cpm}) = 1.7 \times 10^{-9} \text{ e} \times p (-4.1 \times 10^{-2} \times \text{サンプル量}(\ell)) \dots \dots \dots (3)$$

$$\text{濃縮装置No.2 : 校正定数 } (\mu\text{Ci}/\text{cm}^3/\text{cpm}) = 1.0 \times 10^{-9} \text{ e.p.} (-4.2 \times 10^{-2} \times \text{サンプル量}(\ell)) \dots\dots\dots (4)$$

従って、採取試料中の ^{85}Kr 濃度の分析値は正味の計数率に式(3)または式(4)の校正定数を乗じたものである。

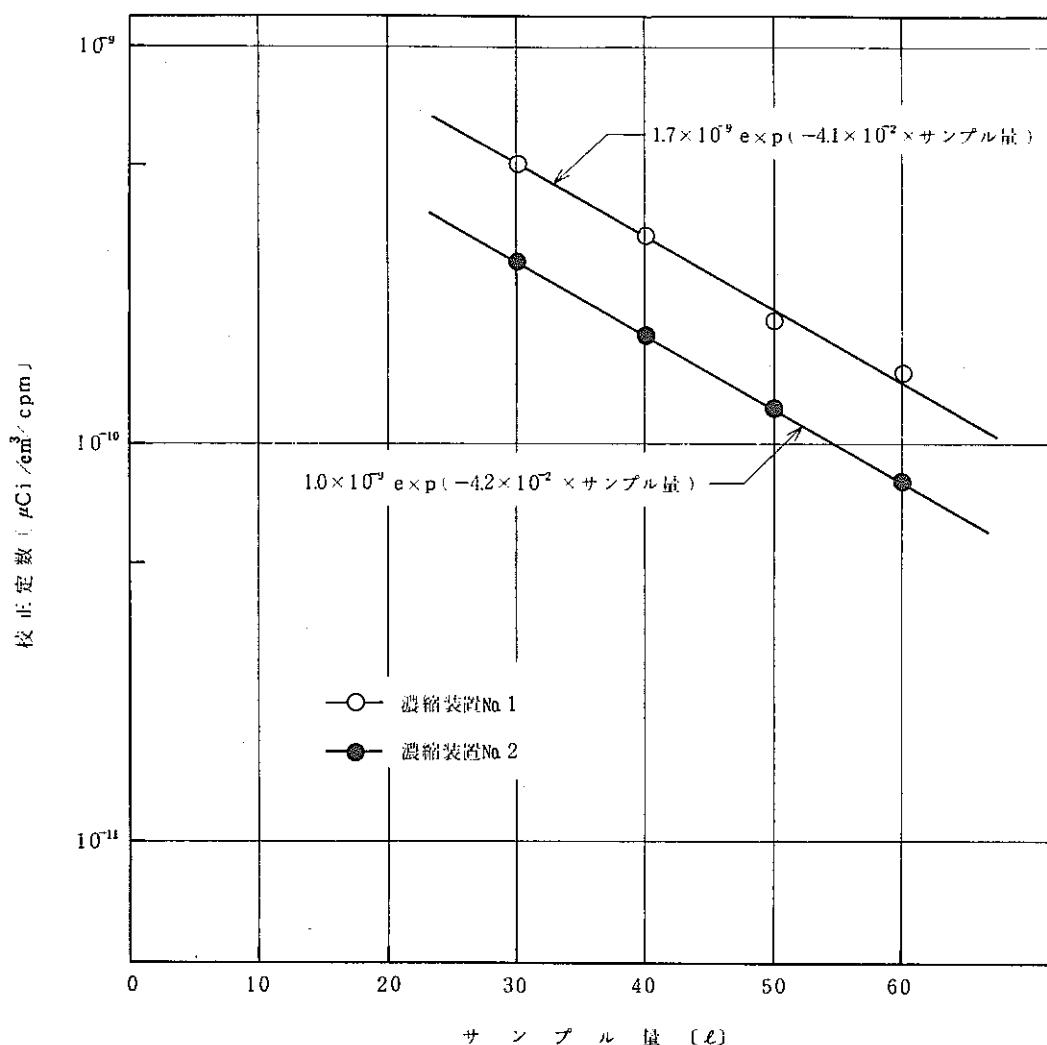
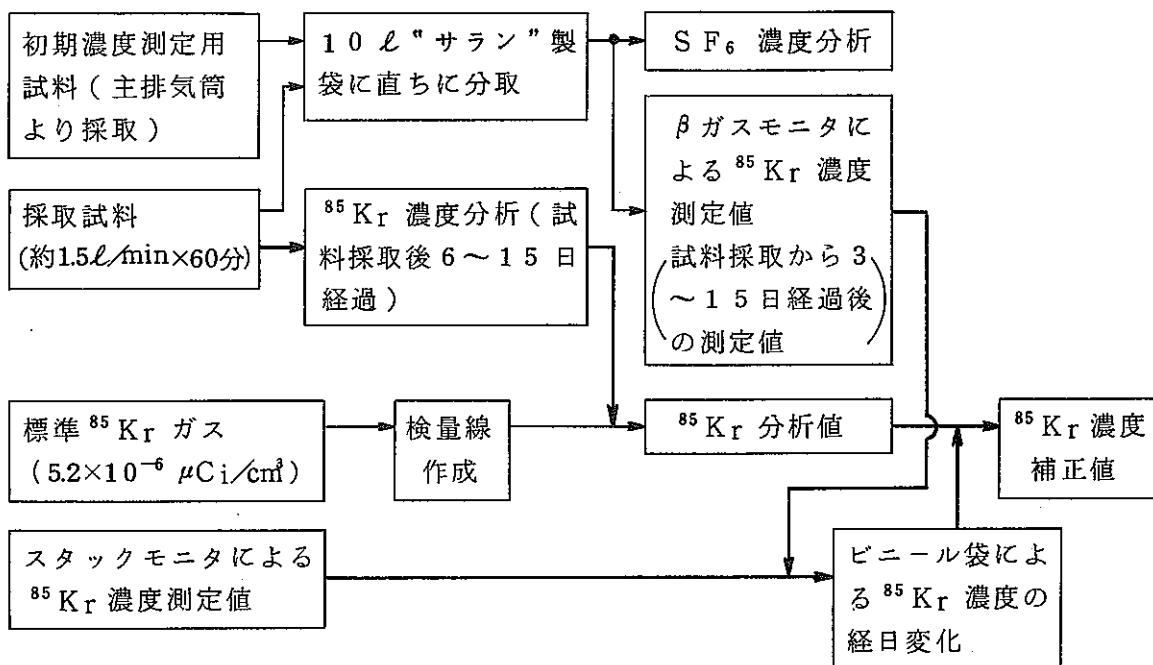


図 1.2 校正定数対サンプル量

3) ^{85}Kr 分析値の補正

試料採取に用いた 100 ℥ ビニール袋からの空気の漏洩に伴ない、捕集袋中の ^{85}Kr の濃度がある一定の割合で減少することが実験により判明したので、濃縮装置で分析した ^{85}Kr 濃度の測定値を補正する必要が生じた。また SF_6 初期濃度測定用に、試料採取後直ちに 10 ℥ “サラン” 製袋に分取したが、“サラン” 製の袋からは ^{85}Kr の漏洩はほとんどないことが実験により判明した。

^{85}Kr 濃度分析値を補正するまでに採用した手順をブロックダイヤグラムにして図 13 に示す。

図 13 ^{85}Kr 分析値補正のブロックダイヤグラム

試料袋からの漏洩についての補正是、主排気筒より ^{85}Kr を放出している際に採取した比較的高濃度の試料について、その濃度の時間減衰に着目し、おこなった。図中の、スタックモニタによる ^{85}Kr 濃度は実験時間におけるテレメータによる 10 分間 6 個の算術平均値であり、この濃度を実験時間における ^{85}Kr 初期放出濃度とした。

β ガスモニタによる ^{85}Kr 濃度はモニタリング・ステーション No.1 (安管棟屋上) の β ガスモニタを用いて実測した値である。

表 5 にスタックモニタと β ガスモニタでの ^{85}Kr 濃度および試料採取に用いたビニール袋からサラン製の袋に分取するまでの日数を示し、図 14 に各モニタでの ^{85}Kr 濃度

測定値の比対ビニール袋での採取試料放置日数の関係を示す。

表 5. スタックモニタおよび β ガスモニタでの ^{85}Kr 測定値

実験 No.	試 料 採取日	スタックモニタ測定値 ($\mu\text{Ci}/\text{cc}$)	β ガスモニタ測定値 ($\mu\text{Ci}/\text{cc}$)	ビニール袋からサラン製袋に分取した日 (月/日)	ビニール袋中で採取試料を放置した日数 (日)	β ガスモニタ測定値 /スタックモニタ測定値
						(—)
1	5/16	8.1×10^{-5}	4.6×10^{-5}	5/26	10	0.57
1	5/16	8.1×10^{-5}	3.9×10^{-5}	5/31	15	0.48
2	5/16	2.0×10^{-5}	—	5/26	10	—
3	5/17	9.2×10^{-5}	6.0×10^{-7}	5/26	9	6.5×10^{-3}
4	5/18	7.9×10^{-4}	4.1×10^{-4}	5/26	8	0.52
5	5/18	4.9×10^{-4}	1.8×10^{-4}	5/26	8	0.37
6	5/23	9.8×10^{-4}	6.4×10^{-4}	5/26	3	0.65
7	5/23	1.2×10^{-3}	7.3×10^{-4}	5/26	3	0.61

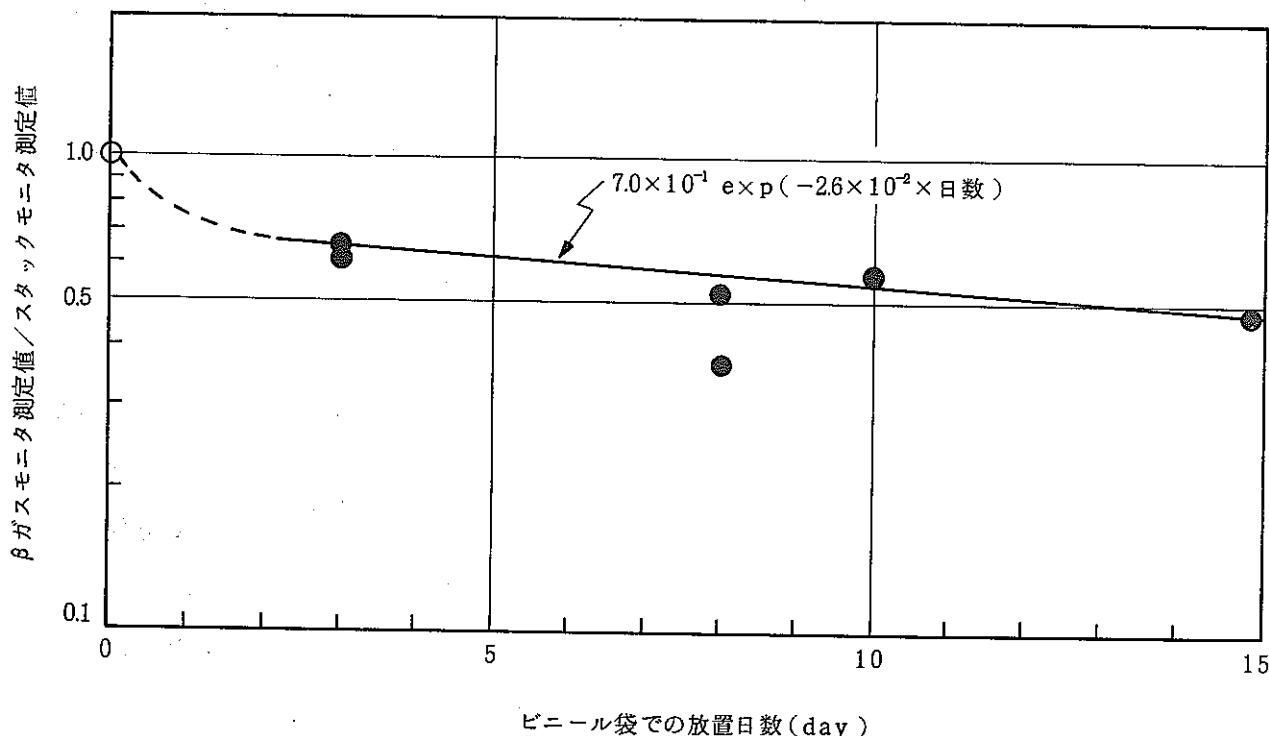


図 14. 各モニタによる ^{85}Kr 測定値の比対ビニール袋での放置日数

図14では放置日数がゼロでは⁸⁵Krガスは漏洩しないものとした。(すなわち、放置日数ゼロでは β ガスモニタ測定値／スタッカモニタ測定値 = 1.0) ビニール袋の放置状態により⁸⁵Krの漏洩の仕方は異なるものと推定できるが図14の実験結果では放置日数に対し、2日間程度経過したのちは、ほぼある一定の割合で⁸⁵Krが漏洩していくようみえる。

従って、採取試料中の⁸⁵Kr濃度分析値の補正式としては、図14から得た式の逆数に濃縮装置を用いて分析した⁸⁵Kr濃度を乗じて、採取試料中の⁸⁵Kr濃度とすることにした。すなわち式(5)である。

$$\text{採取試験中の} \ ^{85}\text{Kr} \ \text{濃度} = \frac{1}{7.0 \times 10^{-1} \exp(-2.6 \times 10^{-2} \times \text{放置日数})} \times \text{分析値} \quad \cdots \cdots \cdots (5)$$

図14での直線を外挿すると放置日数ゼロでその切片は0.70となり、上記仮定(放置日数ゼロでは⁸⁵Krガスは抜けない)と合わないが、これは採取試料中の⁸⁵Krがビニール袋内壁に吸着する等の影響のため、0~2日間程度の間に⁸⁵Krの急激な濃度低下が生じたものと推定される。

実際には⁸⁵Kr濃度の濃縮装置による分析は試料採取後6~15日間の間で実施したので図14から導かれる式の逆数を⁸⁵Kr濃度分析結果の補正值とした。

厳密には式(5)で補正した⁸⁵Kr濃度は試料採取時の真の⁸⁵Kr濃度よりも低い値を示すものと考えられるが、本報告の目的である「⁸⁵KrとSF₆の相関」に関しては必ずしも厳密な⁸⁵Kr濃度を必要としないので式(5)による濃度を採用することにした。

4) ⁸⁵Kr濃度測定方法の信頼性について

⁸⁵Kr測定方法(チャコール吸着法)の再現性について検討をおこなった。検討は主に検量線を求めるための濃縮操作時のデータにもとづきおこなった。

各濃度測定ごとに得られた濃縮された試料の濃度から求めた試料の濃縮率、および⁸⁵Kr回収率を表6に示す。

表 6 ^{85}Kr の濃縮率および回収率

	初期濃度(A)	濃縮濃度(B)*	濃縮率	回 収 率
	($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)	($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)	(B/A)	($\frac{B \times 0.2\ell}{A \times 60\ell} \times 100\%$)
濃縮装置 No. 1	1.0×10^{-8}	5.8×10^{-7}	5.8	19
濃縮装置 No. 1	3.6×10^{-8}	1.9×10^{-6}	5.3	18
濃縮装置 No. 1	1.2×10^{-7}	7.1×10^{-6}	5.9	20
濃縮装置 No. 2	1.0×10^{-8}	1.1×10^{-7}	11.0	37
濃縮装置 No. 2	3.6×10^{-8}	4.0×10^{-6}	11.1	37
濃縮装置 No. 2	1.2×10^{-7}	1.3×10^{-5}	10.8	36

* 濃縮 ^{85}Kr ガス測定器の校正定数を $8.6 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3/\text{cpm}$ とした。

表 6 に示した各濃縮率の平均および偏差 (1σ) は次の通りである。

濃縮装置 No. 1 : 5.7 ± 5

濃縮装置 No. 2 : 11.0 ± 2

以上のことにより本測定方法における再現性は高いことが判明した。

濃縮装置 No. 1 と No. 2 の相違について考察をおこなうと次の通りになる。

^{85}Kr 吸着後、真空排気をおこなって ^{85}Kr と共にチャコールに吸着した空気を除去するが、この時同時に進行する ^{85}Kr の脱着が真空度により変化するものと思われ、真空度が高くなるほど脱着しやすくなると考えられる。

両装置の真空排気時間は同じにしたが終了時の真空到達度が No. 1 装置では約 0.5 Torr, No. 2 装置では約 0.35 Torr であり No. 1 装置の方が真空度が高い、したがって No. 1 装置の方が真空排気中の ^{85}Kr の脱着速度が大きいと思われ、このために回収率が悪いと考えられる。

3.3.2 S F₆ 濃度の測定 (E C D ガスクロマトグラフィー)

採取した試料空気中の S F₆ 濃度は E C D ガスクロマトグラフを用いて測定した。測定方法については、濃度により試料空気を直接、あるいは濃縮して測定した。濃度区分と測定方法を表 7 に示す。

表 7 S F₆ 濃度区分と測定方法

濃 度	試 料 量	測 定 方 法	対 象
>1 ppm	$5.0 \mu\ell$	直 接	初期濃度
1 ppm~1 ppb	2ml	直 接	軸上濃度
1 ppb~0.1 ppb	1.00ml	濃 縮	軸近接地点濃度
0.1 ppb~0.001 ppb	1ℓ	濃 縮	その他の濃度

濃度は記録計に書かれたクロマトグラムの面積を求め、あらかじめ既知濃度の SF₆ ガス（標準 SF₆ ガス）を用いて作成した検量線により定量した。
測定方法の詳細を付録 B に示す。

3.4 気象観測

3.4.1 風向、風速の測定

風向、風速は、主排気筒放出口高度（海拔 96 m）にほぼ等しい気象観測塔・塔頂（海拔 100 m）に設置してあるクリーン・ベーン・タイプの微風計を用いて測定した。このデータは拡散軸の決定と拡散計算の風速項（吹上式の風速項含）に用いた。さらに、塔中間（海拔 60 m）、安管棟屋上（地上約 10 m）およびモニタリング・ステーション（長砂公民館、地上 15 m）においても同型の微風計により風向・風速を観測し、内陸側での風の変化の指標とした。

3.4.2 大気安定度の観測

大気安定度は、日射量、放射収支量および地上 10 m の風速を観測することにより、パスカル安定度（日本式）を求めた。パスカル安定度分類表を表 8 に示す。

表 8 パスカル安定度分類表（日本式）

風速 (U) m/s	日射量(T) cal/cm ² · hr				放射収支量(Q) cal/cm ² · hr		
	T ≥ 50	50 > T ≥ 25	25 > T ≥ 12.5	12.5 > T	Q > -1.8	-1.8 ≥ Q > -3.6	-3.6 ≥ Q
U < 2	A	A-B	B	D	D	-	-
2 ≤ U < 3	A-B	B	C	D	D	E	F
3 ≤ U < 4	B	B-C	C	D	D	D	E
4 ≤ U < 6	C	C-D	D	D	D	D	D
6 ≤ U	C	D	D	D	D	D	D

さらに、安定度の指標となる気温減率を気象観測塔側面に設置してある気温差計（白金抵抗式）により観測し、また風向変動幅を前述の塔頂の微風計を用いて観測した。

3.4.3 その他の気象観測

以上その他、実験時の気象概況資料として、天気、気温および一部海表面水温と海上気温の観測をおこなった。

4 結果および考察

4.1 気象観測結果

4.1.1 実験時の天気概況

実験1, 2, 3回目は、高圧帯の内に入り晴れて、海風が吹き出し時間とともに時計まわりに風向の変化が見られたが、風速は $4.0 \sim 4.2 \text{ m/s}$ （搭頂）でやや弱い風が吹き、大気安定度は中立～不安定条件であった。

4.5回目は低気圧の影響を受け、傾度風による強い風（風速 $10 \sim 12 \text{ m/s}$ 、搭頂）が吹き、曇天で大気安定度は中立であった。この時の表面水温、海上気温は、地上気温とほぼ等しかった。6, 7回目は移動性の高気圧に覆われ快晴となったが比較的高風速であり（ $6.2 \sim 6.8 \text{ m/s}$ 、搭頂）、日本式パスカル安定度では大気安定度は中立であったが、気温傾度、風向変動幅等から見ると、不安定条件下にあった。

実験期間中の気象観測結果については表9にまとめた。

4.1.2 各実験ごとの気象状況

1) 1回目

ほぼ一定してENE～Eの風が吹き、風向、風速とも高さ方向、水平方向の差は少なく、風向軸の変動はなく日本式パスカル安定度では不安定であったが、気温傾度、風向変動幅のいずれもやや不安定から中立であった。

2) 2回目

ENEからEに風向軸が徐々に変化し、風向変動幅、気温減率のいずれも不安定となり、大気の乱れが大きくなってきた。他の条件は1回目と同じ。

3) 3回目

風向軸が、試料採取点設定時のNEから徐々に変化し、実験中、ENCからEに変化し主軸は、試料採取点の外側に移ったと見られる。

4) 4回目

本曇りで 12 m/s の強風が吹き典型式な中立条件となった。風速の鉛直分布が見られた。風向軸は、SSEに一定していた。

5) 5回目

前回とほぼ同様の経過であった。

6) 6回目

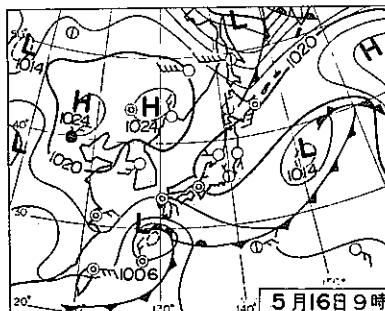
快晴にもかかわらず風あり、風向の変動が大きく、気温傾度も不安定条件であった。

7) 7回目

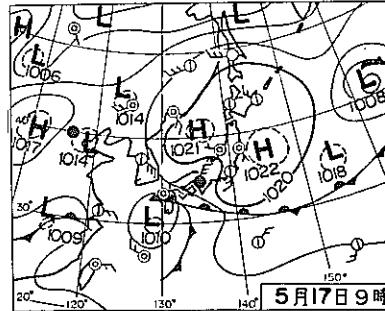
前回より更に風向の変動は大きくなつたが、気温傾度は小さくなつた。風向軸は、実験中半方位程度移動した。

8) 実験期間中は、試料採取中に風向軸の多少の変動も見られたが、比較的一定の風向が持続した。又実験期間中、風向は鉛直、水平いづれの方向ともシャーがほとんど見られなかつた。3回目を除き、試料採取点網内に、主軸を捕えらることが出来、気象条件も、拡散実験には良い条件であった。

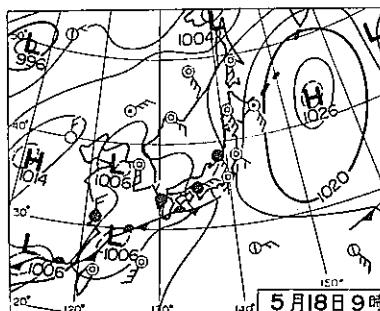
拡散実験時の天気図（気象庁監修「気象」78年255号）を、図15に示し、風向、風速の変動状況を図16、図17に示す。



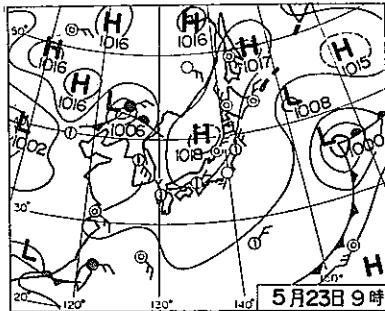
16日(火)東京にギンヤンマ
昨日から三陸・道東・千島一帯に霧。
徐行し接近で九州は●だが沖縄①。
東京けさモヤ、①25.7° 初の夏日。
神田橋交叉点でギンヤンマを初見！
東京湾に赤潮発生。むつ市に震度4。



17日(水)土佐に湿舌の大雨
—昨日来九州南西にある停留し東側
の厚い雨雲が東進し前線が活発化、
近畿も●、高知は200ミリこす大雨。
東京①26.0°(+3.5)三社祭り始まる。
稚内の桜(チスマザクラ)開花。



18日(木)妙高に大地すべり
けさ赤倉山に地すべり。白田切川が
泥流であふれ高原町に土石流。16棟
被災。生埋め11人、2次災害で犠牲2。
信越線路床えぐられ復旧に要1ヶ月。
東京は昼前から●21時すぎ土砂降り。



23日(火)宮崎などに震度4
1650ころ南九州を中心、「頤著地震」
震源は種子島の東方 20km 深さ40km。
列島が気圧の峰に入り札幌も○だが
max 13.5°(-4.6)東京も日中○24.0°
東御苑のヒルガオ開花。夜おぼろ月。

図15 拡散実験時の天気図

表 9. 実験時の各気象要素

実験回数	月日	時間	安管棟屋上		気象観測塔								気温と 気温差 ℃/m	日射量 輻射量 cal/min·cm ²	パスキル 安定度	天気	長砂公民館		備考								
			10m微風計		地上30m超音波		地上70m微風計			各種の大気安定度		地上15m 微風計															
			風向	風速	風向	風速	風向	風速	風向	風向 変動による	気温傾度 による	風向															
			16方位	m/sec	16方位	m/sec	16方位	m/sec	変動	による	による	16方位															
1	5/16	11:00 ~ 12:00	E 85°	3.7	E	4.0	E	4.0	15°	c	c	14 -1.5/100	1.2	A-B	① ~●	E	4.3	5/17 阿字ヶ浦沖 10:15 (st30) 気温~16.6°C 表面水温~16.6°C 動燃放出口 (st9) 11:02 現在 気温~16.2°C 表面水温~17.0°C									
2	5/16	12:30 ~ 13:30	ENE 75°	3.6	E ~ ENE	3.7	E	4.2	20°	b	b	14 -1.8/100	1.1	A-B	①	E	3.5										
3	5/17	10:00 ~ 11:00	ENE 76°	3.0	NE	4.0	ENE	4.0	13°	c	d	17 -0.5/100	1.1	A-B	①	ENE	3.0										
4	5/18	14:00 ~ 15:00	SSE 168°	6.0	SSE	5.5	SSE	12.0	10°	d	d	19 -0.7/100	0.58	D	◎	SSE	6.7										
5	5/18	15:30 ~ 16:30	S 170°	6.1	SSE	5.6	SSE ~ S	10.0	10°	d	e	17.5 0/100	0.50	D	◎●	SSE	4.8										
6	5/23	12:00 ~ 13:00	SE 134°	4.5	SE	6.1	SE	6.8	22°	b	a	19 -2.2/100	1.2	C	○	ESE	4.8										
7	5/23	13:30 ~ 14:30	ESE 122°	4.4	ESE	6.4	SE	6.2	25°	a	d	19 -1.3/100	1.2	C	○	ESE	4.4										

大気安定度	不安定		中立		安定			(g) -
	強い不安定	不安定	やや不安定	中立	やや安定	安定	強い安定	
	a	b	c	d	e	f	(g) -	
A	B	C	D	E	F	(G) -		
風向変動	25°	20°	15°	10°	5°	25°		°C
気温減率	-2.0	-1.9	-1.6	-1.4	-0.4	1.6	4.1	°C/100m

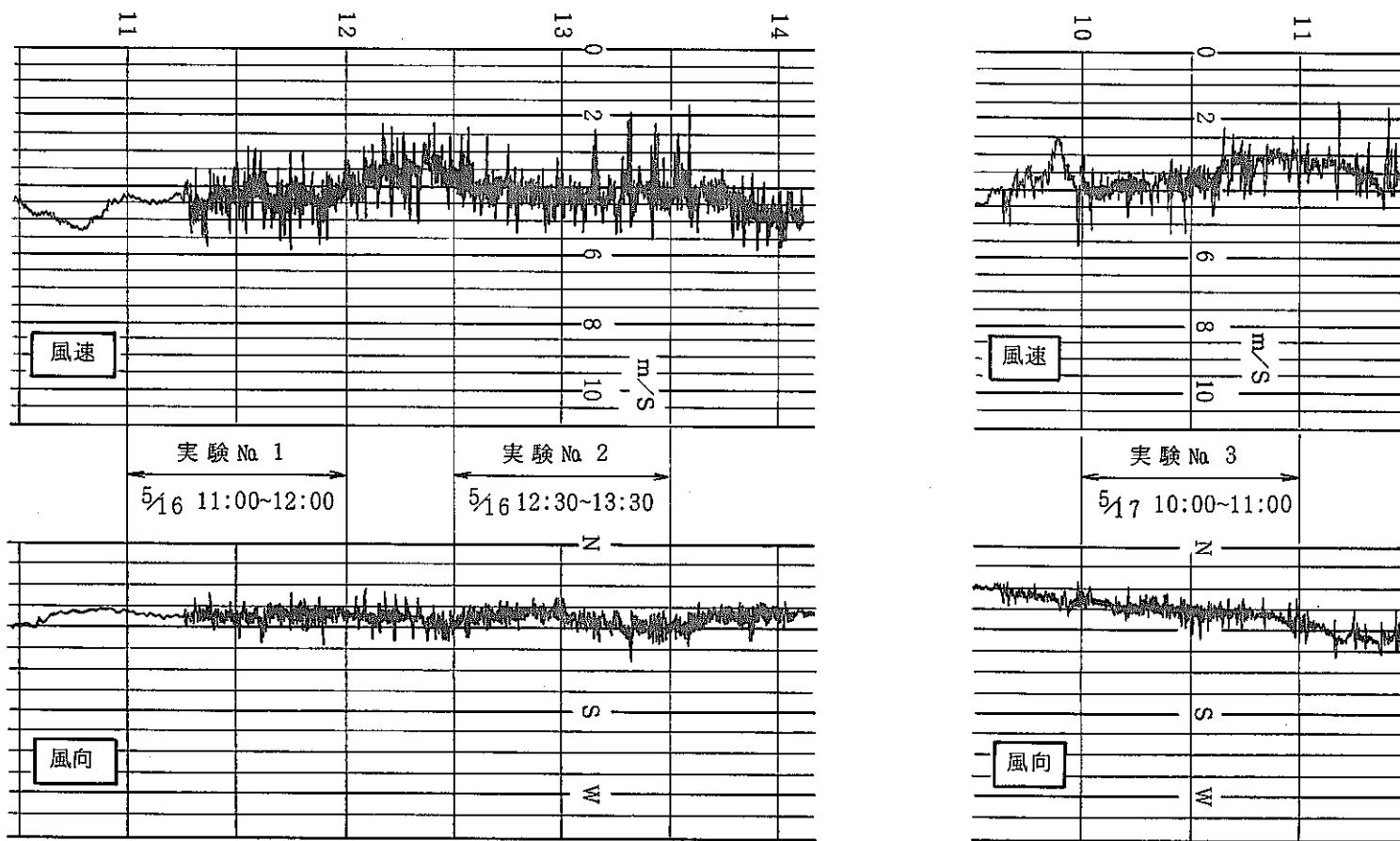


図 16. 実験時の風向、風速の変動状況(気象観測塔塔頂)
実験No.1～No.3

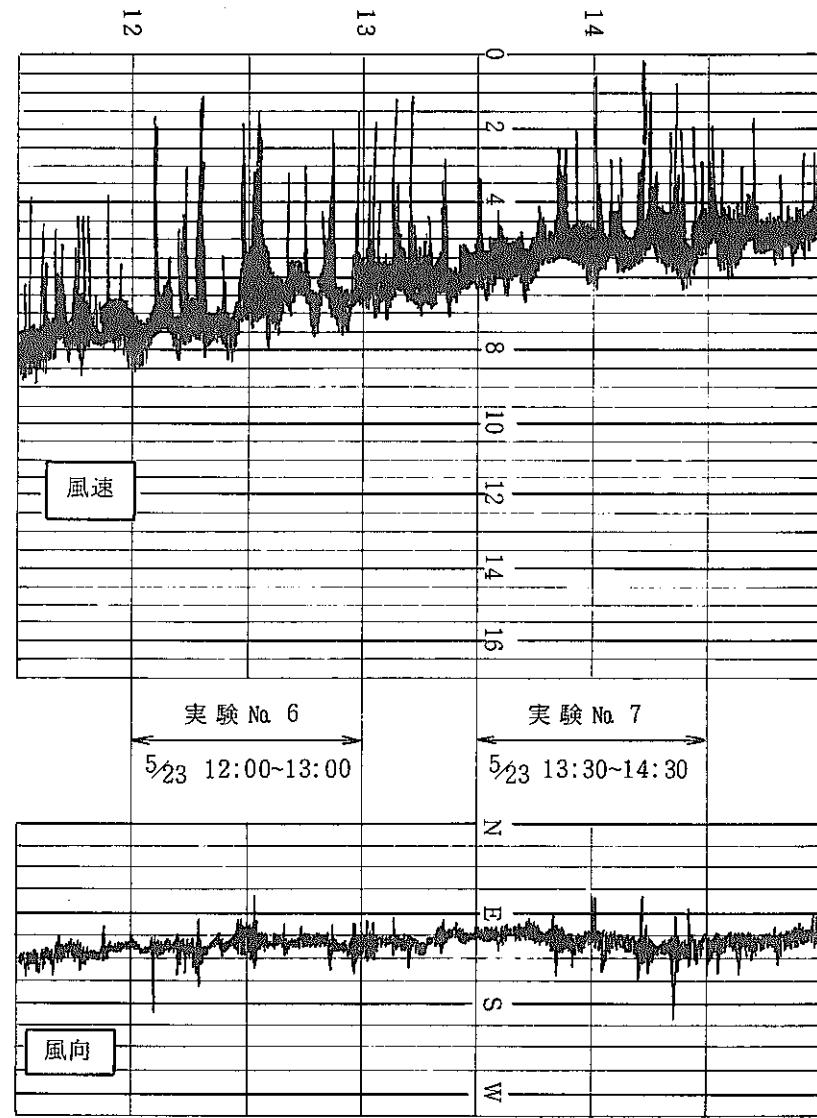


図 17 実験時の風向、風速の変動状況（気象観測塔塔頂）
実験No. 4～No. 7

4. 2 ^{85}Kr 濃度測定結果と考察

3.3.1.3) 項の式(5)で補正した採取試料中の ^{85}Kr 濃度、および ECD ガスクロマトグラフ法で分析した SF_6 濃度を実験回数、試料採取点毎に分けて表 10 に示す。

^{85}Kr と SF_6 の相関を知るために各試料採取点での ^{85}Kr 濃度および SF_6 濃度を初期濃度で割った値－稀釀率－を表 1-1 に示し ^{85}Kr 稀釀率対 SF_6 稀釀率の関係を図 1-8 に示す。

稀釈率の算出には次に示す式(6)、式(7)を用いた。

SF_6 初期濃度は、各実験毎の SF_6 放出強度を一定としたので 7 回の実験の平均濃度を用いた。

$$^{85}\text{Kr} \text{ 稀釀率} = \frac{\text{採取試料中の } ^{85}\text{Kr} \text{ 濃度}}{\text{各実験毎の } ^{85}\text{Kr} \text{ 平均初期濃度}} \dots \quad (6)$$

全採取試料数 78 個のうち、サンプラー等の故障が原因で採取できなかったもの 3 個、試料不足のため ^{85}Kr の分析ができないものが 25 個あった。

また分析値が BG レベルあるいは検出限界以下で ^{85}Kr と SF₆ の相関がとれなかったものが 14 個あり、さらに BG レベル（あるいは検出限界以下）のものと試料不足のものが重複したものもあったので ^{85}Kr と SF₆ の両方の分析ができたものは 40 個であった。

この40個のデータのうち、何らかの原因（分析あるいは解析上の誤差等）でデータとして明らかに使えないと判断できるものが10個あり、結局⁸⁵KrとSF₆の相関性のデータとして使えるものは40個の75%である、30個にとどまった。ここでデータとして使えるかどうかの判断は稀釀率比（＝⁸⁵Kr稀釀率/SF₆稀釀率）が約±1.0を越えるものについてはデータとして信頼できないものと判断した。

図18より⁸⁵KrとSF₆は勾配1.0の直線のまわりにほぼ1対1の相関があり、グラフにプロットした30個のデータについての相関係数(r)は、0.94(信頼度99%以上)で強い相関がある。特に稀釀率が大きい場合(すなわち、採取試料中の⁸⁵KrとSF₆の濃度が比較的高い場合)に強い相関があり、稀釀率が小さい場合には⁸⁵KrとSF₆の分析精度が原因でかなりバラツキのある分布となった。

データが1対1の相関から大きく外れる部分は⁸⁵Kr濃度で約 $1 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$, SF₆では約 $1 \times 10^{-3} \text{ ppb}$ に相当しほば各分析方法での検出限界と一致する。

表 10. ^{85}Kr および SF_6 分析結果

単位 : $^{85}\text{Kr} \cdots \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$
 $\text{SF}_6 \cdots \text{ppm} (\text{初期濃度}), \text{ppb} (\text{分析値})$

実験No	1			2			3			4			5			6			7		
日 時	5/16 11:00~12:00			5/16 12:30~13:30			5/17 10:00~11:00			5/18 14:00~15:00			5/18 15:30~16:30			5/23 12:00~13:00			5/23 13:30~14:30		
—	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6
初期濃度	—	81×10^{-5}	5.6	—	20×10^{-5}	—	—	92×10^{-5}	6.1	—	7.9×10^{-4}	5.9	—	4.9×10^{-4}	5.9	—	9.8×10^{-4}	5.6	—	1.2×10^{-3}	6.2
B-7	X	0.84	B-7	9.7×10^{-9}	1.5	A-3	X	11×10^{-2}	B-11	3.4×10^{-8}	2.6×10^{-3}	B-11	2.6×10^{-9}	4.0×10^{-3}	A-8	X	X	A-7	3.2×10^{-8}	0.11	
B-8	ND	10×10^{-3}	B-8	7.3×10^{-9}	0.7	B-2	X	11×10^{-2}	B-12	7.4×10^{-9}	2.1×10^{-2}	B-12	X	1.0×10^{-3}	A-9	2.5×10^{-8}	0.15	A-8	8.0×10^{-8}	0.42	
B-9	X	ND	B-9	X	X	B-3	2.1×10^{-9}	1.9×10^{-2}	B-13	2.5×10^{-7}	1.1	B-13	X	1.0	A-11	2.2×10^{-9}	1.0×10^{-3}	A-9	1.7×10^{-9}	6.0×10^{-3}	
C-7	X	0.65	B-10	4.3×10^{-9}	ND	B-4	X	8.8×10^{-3}	C-11	1.3×10^{-9}	ND	C-11	X	X	B-9	1.5×10^{-8}	3.8×10^{-2}	A-11	X	ND	
			C-8	X	0.37	B-5	2.7×10^{-9}	7.3×10^{-2}	C-12	3.1×10^{-7}	7.1×10^{-3}	C-12	1.9×10^{-9}	ND	B-10	3.0×10^{-7}	1.1	B-8	1.5×10^{-8}	2.4×10^{-2}	
			C-9	4.3×10^{-9}	5.5×10^{-2}	C-2	X	8.0×10^{-3}	C-13	X	0.17	C-13	3.2×10^{-8}	2.0×10^{-2}	B-11	X	0.26	B-9	3.9×10^{-7}	0.85	
			C-10	ND	3.6×10^{-2}	C-3	X	X	C-14	9.4×10^{-8}	0.42	C-14	2.4×10^{-7}	0.89	B-12	2.8×10^{-9}	3.0×10^{-3}	B-10	X	0.24	
			C-11	X	1.0×10^{-3}	C-4	X	4.0×10^{-3}	C-15	X	4.0×10^{-2}	C-15	1.3×10^{-9}	1.9×10^{-2}	B-13	3.2×10^{-9}	ND	B-11	2.2×10^{-9}	1.0×10^{-3}	
						C-5	4.5×10^{-9}	5.4×10^{-3}	D-13	4.2×10^{-10}	ND	D-13	2.6×10^{-9}	1.0×10^{-3}	C-10	1.5×10^{-7}	0.51	B-12	3.4×10^{-9}	5.0×10^{-3}	
						D-2	2.5×10^{-9}	3.6×10^{-3}	D-14	2.5×10^{-9}	ND	D-14	1.3×10^{-7}	1.9×10^{-2}	C-11	1.7×10^{-7}	0.91	C-9	X	0.41	
						D-3	3.4×10^{-9}	7.0×10^{-3}	D-15	6.1×10^{-8}	0.34	D-15	2.9×10^{-9}	2.9×10^{-2}	C-12	5.7×10^{-9}	6.0×10^{-3}	C-10	X	4.1×10^{-2}	
						D-5	X	4.0×10^{-3}	D-16	X	4.0×10^{-3}	D-16	3.8×10^{-7}	1.5×10^{-2}	C-13	2.4×10^{-9}	1.0×10^{-3}	C-11	4.8×10^{-8}	0.15	
						D-6	X	8.8×10^{-3}	D-17	6.6×10^{-9}	ND	D-17	X	7.5×10^{-3}	C-14	2.4×10^{-9}	ND	C-12	1.3×10^{-9}	1.5×10^{-2}	
																	C-13	X	ND		

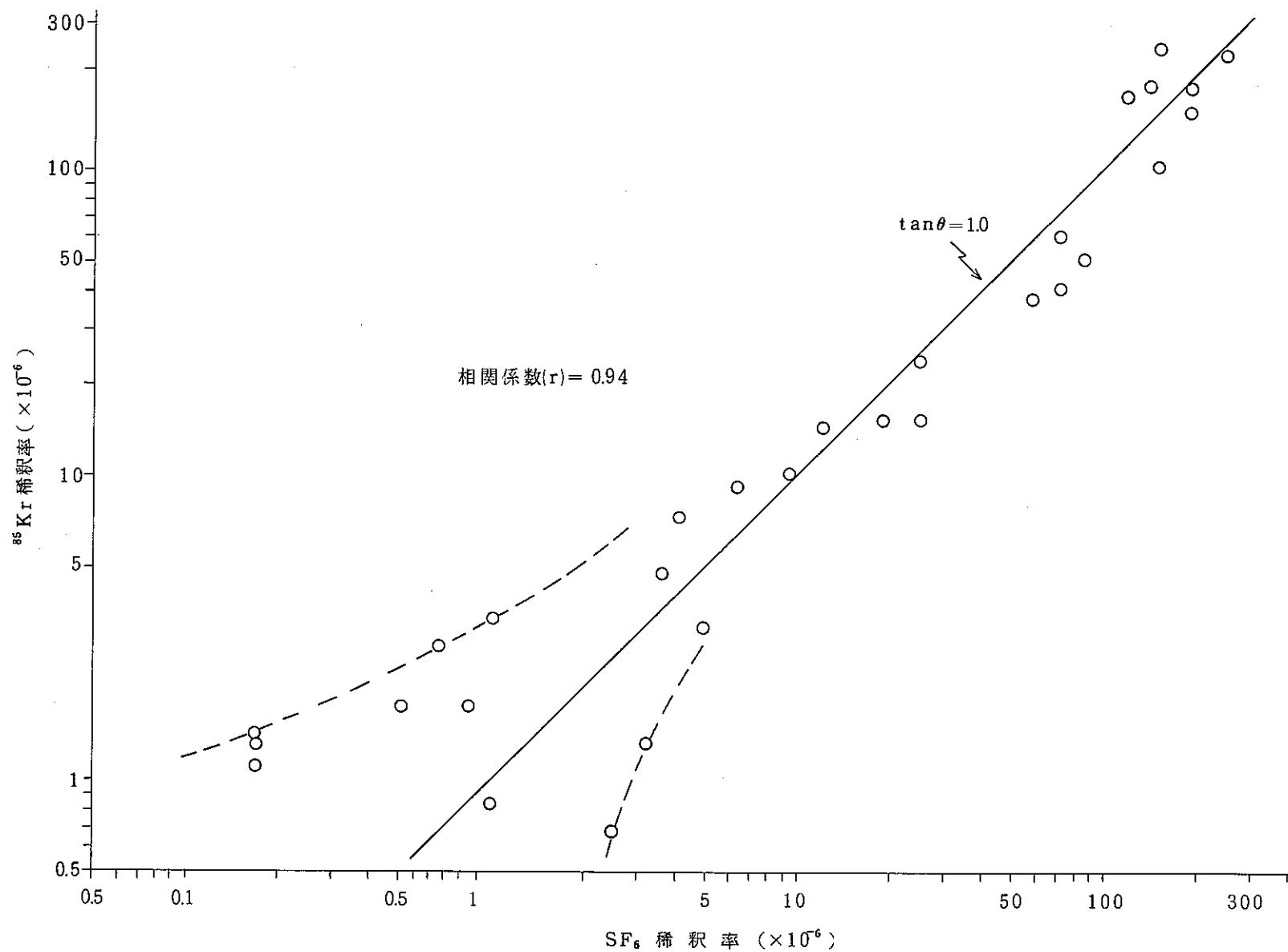
表中 大きい×印はサンプラー故障等のため試料採取ができなかったものであり、小さい×印は試料不足 ($< 30\text{ ml}$) のため分析できなかったものである。NDは分析値がBGレベルあるいは検出限界以下であることを示す。

表11. ^{85}Kr 稀釀率と SF_6 稀釀率

- 31 -

実験No.	1			2			3			4			5			6			7		
日 時	5/16 11:00~12:00			5/16 12:30~13:30			5/17 10:00~11:00			5/18 14:00~15:00			5/18 15:30~16:30			5/23 12:00~13:00			5/23 13:30~14:30		
—	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6	point	^{85}Kr	SF_6
初期濃度	—	81×10^{-5}	5.6	—	20×10^{-5}	—	—	9.2×10^{-5}	6.1	—	79×10^{-4}	5.9	—	49×10^{-4}	5.9	—	98×10^{-3}	5.6	—	12×10^{-3}	6.2
B-7	X	X	140	B-7	230	250	A-3	X	1.9	B-11	20	0.44	B-11	2.7	0.68	A-8	X	X	A-7	15	19
	ND	0.17	B-8	170	120	B-2	X	1.9	B-12	4.7	3.6	B-12	X	0.17	A-9	15	25	A-8	40	71	
	X	ND	B-9	X	X	B-3	11	32	B-13	150	190	B-13	X	170	A-11	1.3	0.17	A-9	0.83	1.0	
	X	X	110	B-10	100	ND	B-4	X	1.5	C-11	0.82	ND	C-11	X	B-9	9.0	6.4	A-11	X	ND	
				C-8	X	63	B-5	14	12	C-12	190	1.2	C-12	1.9	ND	B-10	180	190	B-8	7.1	4.1
				C-9	10	9.3	C-2	X	1.4	C-13	X	29	C-13	31	3.4	B-11	X	44	B-9	180	140
				C-10	ND	6.1	C-3	X	ND	C-14	59	71	C-14	240	150	B-12	1.7	0.51	B-10	X	41
				C-11	X	0.17	C-4	X	0.68	C-15	X	6.8	C-15	1.3	3.2	B-13	1.9	ND	B-11	1.1	0.17
							C-5	23	0.92	D-13	0.25	ND	D-13	2.7	0.17	C-10	89	86	B-12	1.7	0.85
							D-2	13	0.61	D-14	1.5	ND	D-14	140	3.2	C-11	100	150	C-9	X	69
							D-3	17	1.2	D-15	37	58	D-15	3.1	4.9	C-12	3.4	1.0	C-10	X	6.9
							D-5	X	0.68	D-16	X	0.68	D-16	390	2.5	C-13	1.4	0.17	C-11	23	25
							D-6	X	1.5	D-17	4.2	ND	D-17	X	1.3	C-14	1.4	ND	C-12	0.67	2.5
																		C-13	X	ND	

稀釀率は ^{85}Kr , SF_6 ともに $\times 10^{-6}$ で表示した。

図 1.8. ⁸⁵Kr 稀釀率対 SF₆ 稀釀率

以上のことより ^{85}Kr 濃度と SF_6 濃度の相関性はデータの一部にバラツキはあるが勾配 1.0 で 1 対 1 の直線上にデータが分布しており相関係数(r) = 0.94 で、強い相関のあることが判明した。ただし主排気筒からの SF_6 の放出は一定の速度でおこなったのに対し、 ^{85}Kr の放出率は必ずしも常に一定ではないので ^{85}Kr の放出率が実験中に変動し、かつ風向および風速も同時に変動する場合には、同一採取試料中の ^{85}Kr と SF_6 の濃度測定結果から得られる各稀釈率の間には必ずしも 1 対 1 の関係があると期待することはできないと思われる。

4.3 地上濃度の実験結果と計算値との比較

実測濃度と拡散計算濃度との比較をおこない、両者の関係をみた。大気中に連続的に放出される気体状放射性物質の拡散を評価するため、通常用いられる計算式は式(8)で表わすことができる。(2)

$$\chi(x, y, z) = \frac{Q \exp(-y^2/2\sigma_y^2)}{2\pi\sigma_y\sigma_z\bar{u}} \left[\exp\left\{-\frac{(Z-H)^2}{2\sigma_z^2}\right\} + \exp\left\{-\frac{(Z+H)^2}{2\sigma_z^2}\right\} \right] \quad \dots \dots \dots (8)$$

ここで Q : 放出率 (または放出総量) [unit/T] (または[unit])

$\chi(x, y, z)$: 点 (x, y, z) における濃度 [unit/L³]

(または時間積分濃度) (または[unit · T/L³])

\bar{u} : 放出点の高さの平均風速 [L/T]

H : 放出点の地上高 [L]

σ_y : 濃度分布の y 方向の標準偏差,

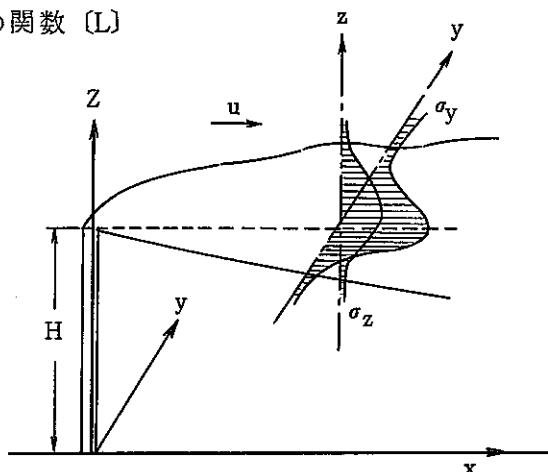
風下距離および安定度の関数 [L]

σ_z : 濃度分布の z 方向の標準偏差,

風下距離および安定度の関数 [L]

式(8)では、拡散による濃度分布が、風向に垂直な面上、水平方向および垂直方向ともにガウス分布であると仮定する(右図)。

放出点の高さは、濃度計算点の海拔(H_h)および吹上げ高さ(ΔH)により見掛け上変化するので次の式(9)で表わされるものとした。



$$H = H_s - H_h + \Delta H \quad \dots \dots \dots \quad (9)$$

ここで、 H_s ：スタックの海拔高さ（96m）。

H_h ：濃度計算地点の海拔高さ（m）。

ΔH ：吹上げ高さ（m）。

計算は、実験時に観測された大気安定度だけでなく、安定、中立、不安定条件下で、吹上項の影響も考慮し、吹上式、排気量も変化させた条件を用いておこなった。実験と計算が良い相関をなすかどうかを見るため $S F_6$ による拡散実験結果と計算値を図19(a)～(b)のようにプロットした。

ここで図上で A, B, …, F とあるのは計算で仮定した大気安定度である。 H , B とあるのは、吹上げ高さとして H : Holland の式、B : Briggs の式を使ったことを意味する。排気流量は変動が少ないので、 $340,000 \text{ m}^3/\text{hr}$ であるとして計算した。

これらから、実験4回目、6回目、および7回目で安定度CおよびDの場合に比較的良い相関を示しているが、全体的に見ると、各試料採取点における実測濃度と計算濃度には相違がみられる部分があった。これは各地点の計算濃度が、拡散軸の位置関係で大きく変化し、特に軸から外れた部分での濃度は風向軸の変動に影響され、拡散軸のわずかなずれが、計算濃度に大きな変動を与えるためである。このため、風向軸と測定点の位置関係を考慮しないですむ実測濃度から、各距離毎に得られる最高濃度を求め、拡散式の ($y = 0, z = 0$) の条件下での計算濃度との比較を試みた。軸上濃度はチェビシェフ多項近似による最小二乗法により図20のように、グラフ上にプロットすることで求めた。図中 B-10, C-10 とあるのは試料採取地点を意味する。

表12は $S F_6$ および ^{85}Kr について計算値と、グラフより求めた軸上濃度を比較したものである。実験値と計算値との比較では、 ^{85}Kr , $S F_6$ とも実験6回目、7回目での良い一致がみられ、全体としては $S F_6$ の方についてこれが言える。また吹上げ高さ算出に用了 Holland の式と Briggs の式との比較ではどちらが良いとはこのデータだけからは言えない。

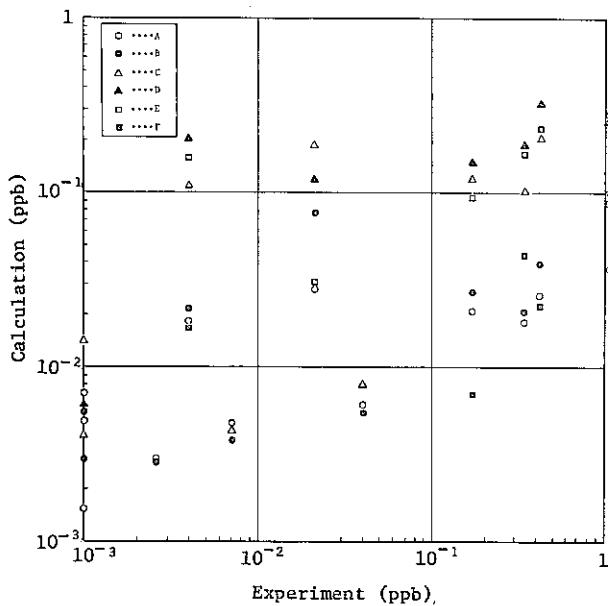
表13は稀釀率について比較したものであり、ここでの稀釀率は次のように定義した。

$$\text{稀釀率} = \frac{\text{ある地点での濃度}}{\text{初期濃度}}$$

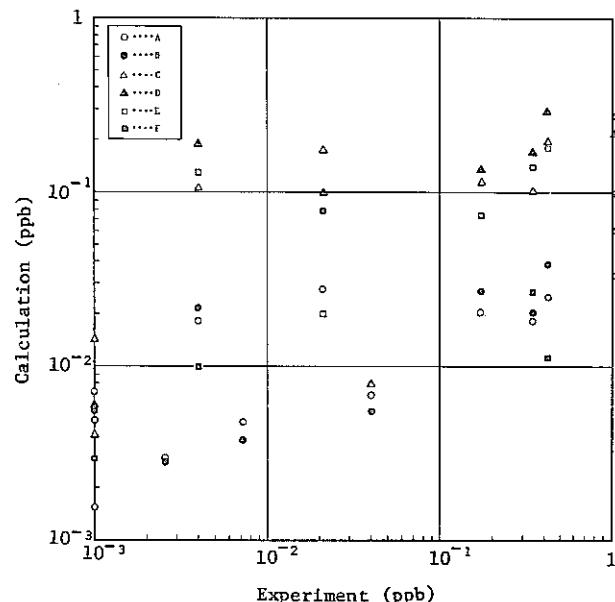
軸上稀釀率については、計算値と実験値との間で大きな差はなく、6回目と7回目の実験について比較的良い一致がみられた。

表14は図20よりプルーム拡散幅(σ_y)を求めたものと、JAERI 1101⁽²⁾に記載された値(英国方式)とを比較したものであるが、大気安定度がCであった実験6回目と7回目に良い一致がみられる。図19(a)～(b)でも明らかであったように計算上仮定した大気安定度がCあるいはDの時に実験値と計算値が良い相関を示すようである。

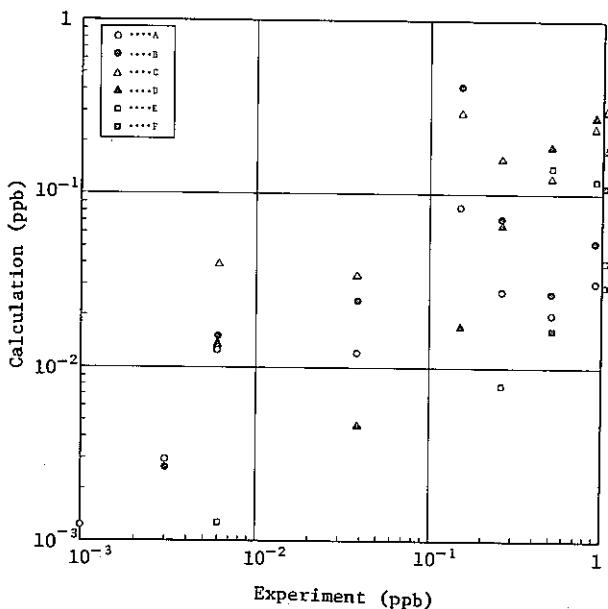
- ① Comparison between experiment and calculation, Experiment No. 4 (H), B



- ② Comparison between experiment and calculation, Experiment No. 4 H, (B)



- ③ Comparison between experiment and calculation, Experiment No. 6 (H), B



- ④ Comparison between experiment and calculation, Experiment No. 6 H, (B)

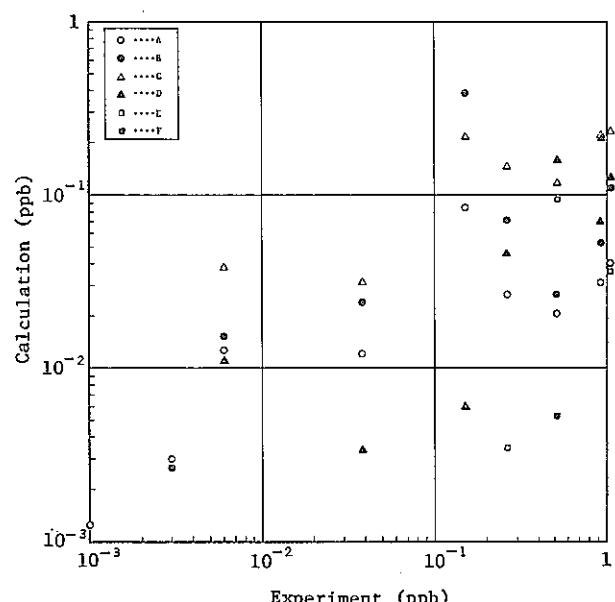
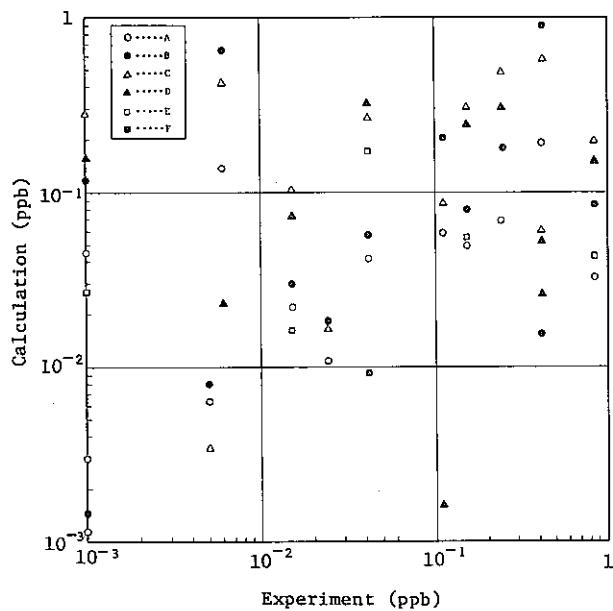


図 19(a) SF_6 による実験と計算の比較

⑤ Comparison between experiment and calculation, Experiment No. 7 (H), B



⑥ Comparison between experiment and calculation, Experiment No. 7 H, (B)

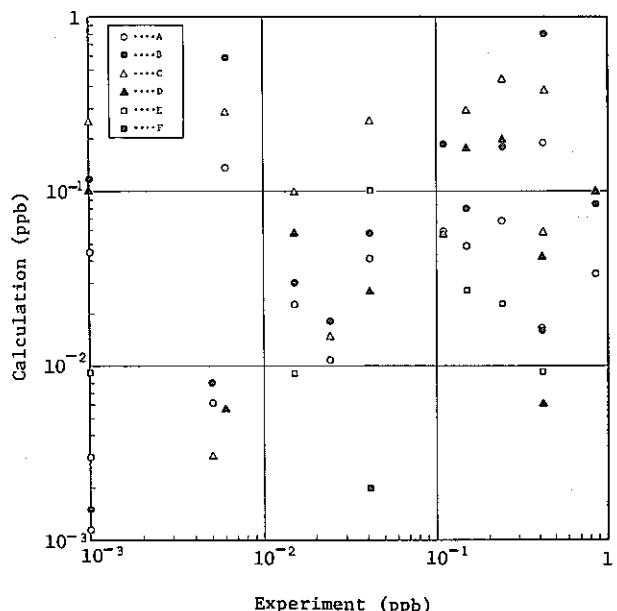


図 19.(b) SF_6 による実験と計算の比較

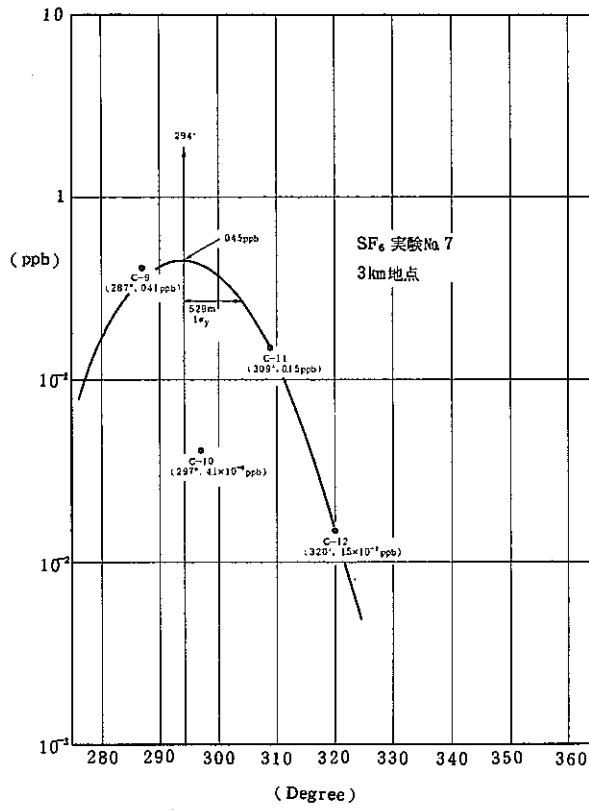
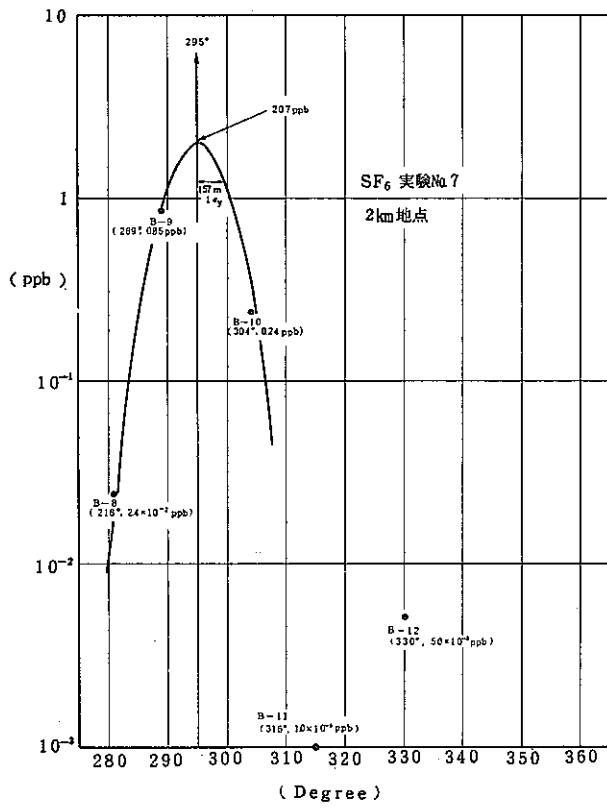
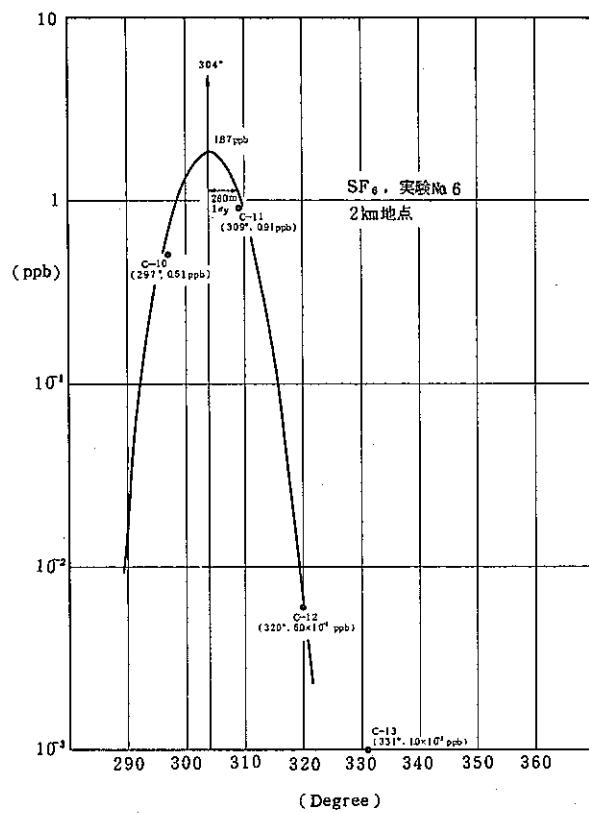
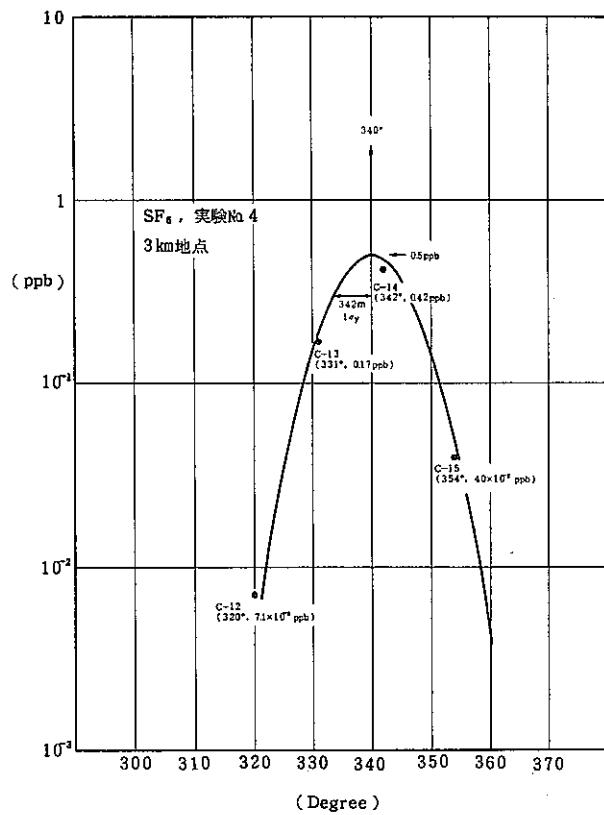


図 20. 実験値から推定した拡散軸と軸上濃度

表12 軸上濃度の測定値と計算値との比較

実験No.	軸上距離 (km)	^{85}Kr				SF_6			
		主軸度	測定値 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)	計算値 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)	測定値／計算値	主軸度	測定値 (ppb)	計算値 (ppb)	測定値／計算値
2	3	-	-	5.38×10^{-10} (5.37×10^{-10})	-	265	1.3	0.13 (0.13)	1.0 (1.0)
4	2	335.7	3.2×10^{-7}	9.84×10^{-8} (8.26×10^{-8})	3.25 (3.87)	340	0.12	0.61 (0.52)	0.2 (0.23)
	3	335	1.8×10^{-7}	8.62×10^{-8} (7.8×10^{-8})	2.09 (2.31)	340	0.5	0.54 (0.49)	0.93 (1.02)
	4	340	6.2×10^{-8}	6.84×10^{-8} (6.38×10^{-8})	0.91 (0.97)	-	-	0.43 (0.40)	-
5	3	337	2.8×10^{-7}	6.33×10^{-8} (5.60×10^{-8})	4.47 (5.05)	342.4	0.89	0.63 (0.56)	1.41 (1.59)
	4	335	7.5×10^{-7}	5.05×10^{-8} (4.64×10^{-8})	14.85 (16.16)	332	2.45×10^{-2}	0.50 (0.46)	0.049 (0.053)
6	2	307.3	2.9×10^{-7}	1.74×10^{-7} (1.62×10^{-7})	1.66 (1.78)	305.6	0.97	0.86 (0.80)	1.13 (1.21)
	3	303.6	2.9×10^{-7}	9.87×10^{-8} (9.23×10^{-8})	2.94 (3.14)	304	1.87	0.49 (0.47)	3.82 (3.98)
7	1	295.4	3.4×10^{-7}	2.55×10^{-7} (1.67×10^{-7})	1.35 (2.05)	295.7	0.57	1.05 (0.68)	0.54 (0.84)
	2	297	1.0×10^{-6}	2.67×10^{-7} (2.42×10^{-7})	3.74 (4.13)	295	2.07	1.10 (0.99)	1.88 (2.09)
	3	-	-	1.52×10^{-7} (1.45×10^{-7})	-	294	0.45	0.62 (0.59)	0.73 (0.76)

(注1) 主軸はNを0度とした。

(注2) 計算値で、総排気流量は $340,000 \text{ m}^3/\text{hr}$ とし、吹上げ高さとしては、Hollandの式とBriggsの式を使用した。

()で囲った数値は Briggs の式によるものである。

(注3) 実験時、風下軸は、海拔100m地点でのクリーン・ベーン風向・風速計による測定では、次のとおりであった。

実験2: 268° , 実験4: 345° , 実験5: 347° , 実験6: 311° , 実験7: 302°

表 1.3. 軸上稀釣率

実験 No	軸上距離 (km)	稀釣率		
		実験値		計算値*
		^{85}Kr	SF_6	
2	3	—	2.71×10^{-4}	2.76×10^{-5} (2.75×10^{-5})
4	2	4.05×10^{-4}	2.43×10^{-5}	1.25×10^{-4} (1.05×10^{-4})
	3	2.28×10^{-4}	1.01×10^{-4}	1.09×10^{-4} (9.87×10^{-5})
	4	7.85×10^{-5}	—	8.65×10^{-5} (8.08×10^{-5})
5	3	5.74×10^{-4}	1.82×10^{-4}	1.28×10^{-4} (1.14×10^{-4})
	4	1.52×10^{-3}	5.01×10^{-6}	1.02×10^{-4} (9.42×10^{-5})
6	2	2.95×10^{-4}	2.00×10^{-4}	1.78×10^{-4} (1.65×10^{-4})
	3	2.96×10^{-4}	3.86×10^{-4}	1.01×10^{-4} (9.74×10^{-5})
7	1	2.88×10^{-4}	1.17×10^{-4}	2.14×10^{-4} (1.40×10^{-4})
	2	8.40×10^{-4}	4.24×10^{-4}	2.25×10^{-4} (2.03×10^{-4})
	3	—	9.20×10^{-5}	1.28×10^{-4} (1.22×10^{-4})

* () 内は、吹き上げ高さを Briggs の式で計算、その上の数値は Holland の式による。

表 1.4. 実験により求めたプルーム拡散幅 (σ_y)

実験 No	距離 (km)	拡散幅 (m)		測定大気安定度と拡散幅*	
		SF_6	^{85}Kr	安定度	英国方式(m)
2	3.0	475	—	B	420
4	2.0	—	299	D	127
	3.0	342	—	D	184
	4.0	—	491	D	238
5	3.0	210	289	D	184
	4.0	562	420	D	238
6	2.0	228	263	C	191
	3.0	260	302	C	276
7	1.0	105	105	C	101
	2.0	157	193	C	191
	3.0	529	—	C	276

* 大気安定度は、敷地内設置の日射輻射量計および風向、風速計、測定値により、気象指針準拠日本式 Pasquill 分類による。

英国方式による計算結果は、JAERI 1101 による。

5 結論および今後の課題

今回の実験は、調査に適した気象条件に恵まれ、比較的順調におこなうことができた。実験の結果得られた結論は次の通りである。

- 1) 本実験に用いたチャコール吸脱着による⁸⁵Kr濃度測定法は、⁸⁵Krの濃縮について再現性が高く、精度のよい方法である。また、野村ら⁽¹⁾の $10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度の極低レベルの分析法と比べると、検出下限を $10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度でよいとしたことにより、1試料当たりの分析所要時間を大幅に短縮でき、1週間当たり50試料以上の処理が可能になった。従ってこの方法は再処理工場からの⁸⁵Krの大気放出に伴なう局地的短時間スケールの大気拡散調査に用いる測定方法として簡便であり、十分実用性のあるものと考えられる。
- 2) ⁸⁵Krの濃度測定と同時に同一空気試料中のSF₆濃度の測定をおこなった結果、稀釈率にして $1 \times 10^{-6} \sim 3 \times 10^{-4}$ の範囲で両者の間には強い相関がみられた。
- 3) 本実験の経験から、再処理工場・主排気筒の大気拡散調査については、目的を限った小規模のものであれば、⁸⁵Krに着目することにより、比較的小人数で実施できる見通しが得られた。

また本実験の結果明らかになった問題点および今後の課題は次の通りである。

- 1) 空気試料の採取については、採取袋の材質について若干の問題が生じたが、容易に改善できる。すなわち、袋の材質がビニールであると、保管中の漏洩が比較的顕著となり、測定精度悪化の要因となるので、これを漏洩の少ない“サラン”にする必要がある。
- 2) 今回の実験で用いたチャコール吸脱着プロセスでは、⁸⁵Krの回収率（最終的に濃縮された試料中の⁸⁵Krの量の最初に採取した空気試料中の⁸⁵Krの量に対する割合）は約30%であったが、この回収率を増加させ、検出下限をさらに下げるよう改善する余地がある。

6 謝 辞

本実験に際し安全管理部放射線管理第一課放射線機器管理グループおよび、(株)常陽産業の阿尾英俊、根本正史、(株)非破壊検査の木村勲等の方々より協力の得られたことに対し感謝しここに付記する。

7 参 考 文 献

- (1)野村 保他：環境試料中の⁸⁵Kr の分析、原子力学会（春季年会），1975
- (2)角田道生他：英國法による濃度分布計算図、JAERI 1101, 1966

付録 A チャコール吸着法による ^{85}Kr の分析方法

この分析方法は図 8 に示した ^{85}Kr 濃縮装置を用いて採取試料中の ^{85}Kr をチャコールに吸着し空気と分離したのち、加熱脱着し濃縮した ^{85}Kr の濃度を測定するものである。

- ① 採取した試料を送気ポンプの吸引部にセットする。
- ② 図 8 中の V_2 , V_5 , V_6 , V_7 を閉とし V_3 開にして炭酸ガストラップ、チャコールトラップ内および配管内の不純ガスを除去する。
- ③ 炭酸ガストラップをデュワービンに入れた寒剤（ドライアイス-エタノールスラリー）に浸したのち V_4 を閉とし、チャコールトラップをデュワービンに入れた液体窒素に浸しチャコールを低温に保持する。
- ④ V_4 閉のまま V_2 をわずか開として送気ポンプ、流量計および H_2O トラップと配管を採取試料で洗浄する。（ $2\ell \times 1$ 分）
- ⑤ V_2 を開とした後送気ポンプを ON にし V_4 , V_7 の順に開として $5\ell/\text{min}$ の流量で 12 分間（ 60ℓ ）送気する。（チャコールトラップを V_7 から逆流する空気で汚染させないために送気ポンプ ON にしてから 30 秒後に V_7 を開とする。）
- ⑥ 規定量試料送気が終了したら V_7 閉と同時に送気ポンプを OFF とし V_2 を閉とする。
- ⑦ V_3 を開とし、チャコールトラップを液体窒素に浸したまま 10 分間真空排気し配管内の空気を除去する。
- ⑧ 次にチャコールトラップを浸した液体窒素をすばやく寒剤（ドライアイス-エタノールスラリー）に代えて、チャコールに ^{85}Kr と同時に吸着した空気を除去するために 20 分間真空排気する。
- ⑨ V_4 を閉としてチャコールトラップを浸した寒剤をはずし、チャコールトラップを約 100 °C で 10 分間加熱して ^{85}Kr をチャコールから脱着させる。
- ⑩ V_6 の先に濃縮 ^{85}Kr ガス捕集用の 200 cc ビニール袋をとりつけ、 V_5 を開として不活性ガス（Qガス：主成分 Ar）を $200\text{cc}/\text{min}$ で送入し V_6 を開として脱着した ^{85}Kr を捕集する。
- ⑪ 捕集した濃縮 ^{85}Kr ガスはビニール袋ごと GM 計数装置で計数率を測定し（60 分測定）、前もって作成した検量線から ^{85}Kr 濃度を計算によって求める。

付録 B E C D 付ガスクロマトグラフによる S F₆ の分析方法

1. 直接法

この方法は S F₆ 濃度が高い場合に適用する。（主として主排気筒からの採取試料）

1-1 操作方法

ガスクロの操作条件：カラム 2 m, 60°C
キャリアーガス：N₂, 2.0 kg/cm²
試料室、検出器温度：170°C
Attenuator : 8

- ① サンプルバックの口に 50 μl のマイクロシリジを差し込み、3～4回吸排気を繰り返した後、サンプルバックを軽く押しながら試料を採取する。
- ② 試料注入口のセプタムにシリジの針を差し入れ、素早く試料を注入する。直ちに記録計を作動しクロマトグラムをとる。

1-2 検量線の作成

- ① S F₆ 標準ガス（0.971%）を希釈して 1～10 ppm 程度の標準ガスを調製する。希釈は 1 l の試料採取ビンにより行なう。
- ② 1-1 操作方法①、②と同様に操作し、3～4 点異なる濃度におけるクロマトグラムをとり、S F₆ 濃度 (ppm) vs. ピーク面積との関係線を作成する。

2. 濃縮法 (100 ml の濃縮の場合)

この方法は S F₆ 濃度が比較的低い場合に適用する。（0.1～1.0 ppb 程度と予測される試料）

2-1 操作方法

ガスクロの操作条件は 1-1 と同じ。

- ① 試料濃縮装置とガスクロマトグラフを接続する。
- ② 不純物除去管を液体酸素で冷却し、切換バルブレバーを CONCENTRATE 側に倒し、液体酸素で試料濃縮管を冷却する。
- ③ 試料注入ユニットを SAMPLE Inlet connector に接続する。
- ④ 100 ml シリジでサンプルバッグから試料を採取し、試料注入ユニットに針を

差し入れ、真空ポンプを作動させ $S F_6$ を濃縮管に捕集する。

- ⑤ 切換バルブレバーを INJECTION 側に倒し、ELEVATORスイッチをDOWNにすると同時に記録計を作動させる。

2-2 検量線の作成

$S F_6$ 標準ガスを希釈し 0.1 ~ 1.0 ppb の範囲で 3 ~ 4 点とり、2-1 操作方法と同様の手順で検量線を作成する。

3. 濃縮法（1 ℥の濃縮の場合）

この方法は $S F_6$ 濃度が低い（0.1 ppb 以下）場合に適用する。

3-1 操作方法

ガスクロの操作条件、Attenuator : 8 または 4、他の条件は 1-1 と同一。

- ① 試料採取ビンを真空にする。
- ② サンプルバックの口と試料採取ビンのノズルを接続し、サンプルバッグを押しながら採取ビンのバルブを開き、試料を採取する。次に、試料採取ビンのバルブを閉じ、ノズルを SAMPLE Inlet connector に接続する。
- ③ 切換バルブレバーを CONCENTRATE 側に倒し、Vacuum pump スイッチを ON にし吸引を始めるとともに、試料採取ビンのバルブを開け、 $S F_6$ を捕集する。ブザー（3 分後）が鳴ったらバルブを閉じ Vacuum pump スイッチを OFF にする。
- ④ 2-1 操作方法⑤と同様に操作する。

3-2 検量線の作成

2-2 の方法と同様に操作する。

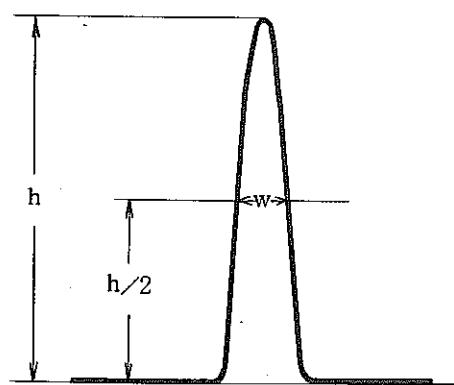
4. ピーク面積の計算方法および定量法

1. $50 \mu\ell$ 注入試料の場合(図a)

この場合は $S F_6$ のピークのみ現われ、ピークの形状も二等辺三角形に近いので、半値幅法によって、面積を測定した。

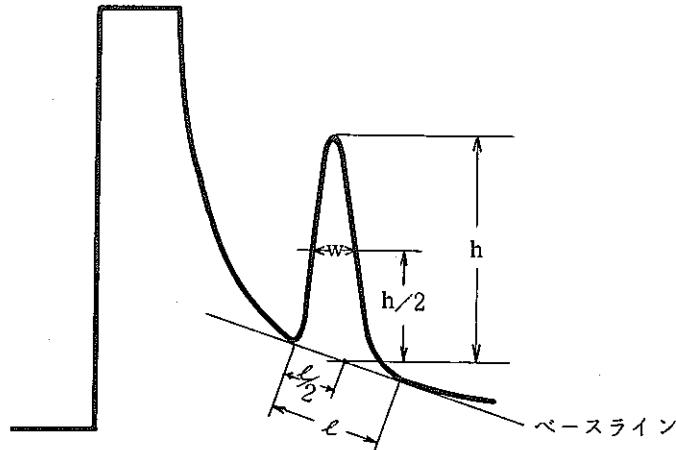
2. $100 n\ell$, 1ℓ 濃縮試料の場合(図b)

$S F_6$ ピークの前の位置に切換バルブ操作に伴うキャリアーガス圧変動によると考えられる大きなピークが現われる。従ってベースラインは図bの様に引き、面積は半値幅法または直接プロニメータで測定した。



$$A = w \times h$$

図 a



$$A = w \times h$$

図 b

3. 定量法

被検成分 ($S F_6$) の定量は絶対検量線法による。数点測定した $S F_6$ 濃度を縦軸に、ピーグ面積を横軸にとりプロットした。(図C)

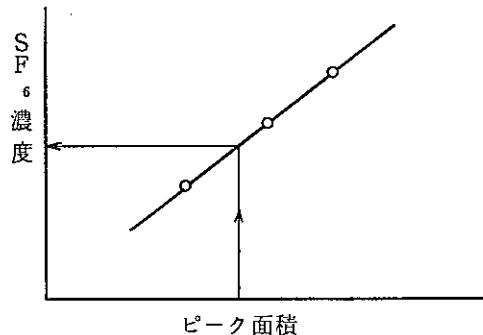


図 C

同一条件のもとで試料を導入し、クロマトグラムを記録し、検量線によって $S F_6$ 濃度を求める。

付録 C 使用器材一覧

S F₆ 放出関係

- ・ S F₆ 放出装置（日本気象協会製） 1式
- ・ サンプラー（初期濃度用，柴田化学機械工業株製，MP-2型） 1台
- ・ S F₆ ガス（50kgボンベ入り） 3本
- ・ 放出用ビニールホース（10mmφ） 10m

試料採取関係

- ・ タイマー付サンプラー（タイマー：LEAD株製
サンプラー：柴田化学機械工業株製，MP-2型） 15台
- ・ 試料採取袋（100ℓビニール製，協和化学株製） 100枚
- ・ サンプリング用ビニールホース（10mmφ×2m） 15本
- ・ サンプリング用ポール（鉄製20mmφ×1.5m） 15本
- ・ 無線機 3台
- ・ 採取地点網地図 3枚
- ・ 採取点写真集 3冊
- ・ 採取袋入れダンボール箱 15個
- ・ 単3乾電池（8本／サンプラー×15台） 120本
- ・ ガムテープ，マジックインキ類 若干

S F₆ 分析関係

- ・ ECDガスクロマトグラフ（2ペンレコーダ付，日本電子株製） 1式
- ・ 試料濃縮装置 2式
- ・ 試料濃縮ビン（1ℓ） 3本
- ・ 試料注入用シリジン（50μℓ～100mℓ，ガスタイル型）
(テルモ株，ハミルトン株，不二注射筒製作所製) 9本
- ・ 試料分取用袋（10ℓ“サラソ”製） 100枚
- ・ S F₆ 標準ガス 1本
- ・ キャリヤーガス用高純度N₂ガス，洗浄用N₂ガス（ボンベ入） 各1本
- ・ 液体酸素

⁸⁵Kr 分析関係

- ⁸⁵Kr 標準ガス(ボンベ入) 1本
- ガラス製⁸⁵Kr 濃縮装置(チャコール吸着法) 2台
- ⁸⁵Kr 計数装置(2"φ GM管 5面体 Aloka 製) 2台
- 真空ポンプ(中村製作所、真空機工株製) 各1台
- ピラニーゲージ(島津製作所製 PM-12型) 2台
- 試料送気ポンプ(IWAKI AIR PUMP, AP-115A型) 2台
- 試料送気用流量計(0~10ℓ/min, OMEGA 製) 2台
- Qガス送気用流量計(0~300mℓ/min, OMEGA 製) 2台
- デュワービン(0.5ℓ, 1ℓ) 各3本
- ラボジャッキ(9.5cm×9.5cm, 小林理化器械株製) 8台
- 加熱用ホットブロスタ 1台
- 濃縮⁸⁵Kr 捕集袋(200mℓビニール袋) 50枚
- 鉛ブロック(10cm×20cm×5cm) 28個
- ストップウォッチ(SEIKO株製) 2個
- Qガス(110kg/cm²ボンベ入) 1本
- 液体窒素
- ドライアイス
- エチルアルコール