

多段HEPAフィルターの空气中微粒子(特にPu微粒子)
捕集効率に関する文献調査

Performance of Multiple HEPA Filters against Aerosols .

State of the Art Summary Pertaining to Plutonia Aerosols

1978年6月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

この資料は，社内における検討，周知を目的とする社内資料です。

多段HEPAフィルターの空気中の微粒子（特にPu微粒子に
関するもの）捕集効率に関する文献調査

報告者 加藤 仁三*

石田 順一郎*

期 間 1978年5月

要 旨 HEPAフィルターを数段直列につないだ排気ろ過システムの空気中の微粒子捕集
効率に関して文献を調査し報告する。

目 次

1. 序 論	1
2. フィルターシステムの性能評価法	2
3. 文献調査概要	2
4. 各レポートの要旨	5
5. ま と め	18
6. あとがき	19
7. 参考文献	20

1. 序 論

プルトニウム等の放射能毒性の高い放射性物質を取り扱う施設では、環境への放出を可能な限り少なくするように、種々の対策がとられている。

HEPA フィルターを数段直列に接続した排気ろ過システムを設備することもその一つである。しかし、このシステムの性能を評価する際に、個々のフィルターの防護係数 (Protection Factor) を乗じた値を用いてよいかどうかについては、現在、まだ議論の余地が残されている。たとえば、フィルターが粒子に対し、選択ろ過特性を有するならば、いったんフィルターを通過した粒子群に対する、次段フィルターの捕集効率は低下するはずである。したがって、個々の防護係数の積をもってシステム全体の性能とするならば、過大評価となるかも知れない。

これらの疑問に答えるため、多段フィルターの性能に関し、文献を調査したので、報告する。

2. フィルターシステムの性能評価法

実験者によっては、Filtration Efficiency, Retention Efficiency, Penetration, Decontamination Factor と云う種々の用語を用いてフィルターの性能を表わしているが、相互比較の際のわずらわしさを避けるため、ここでは、すべて下記定義の Protection Factor (以後 P. F.) で、表記を統一した。

$$[\text{Protection Factor}] \equiv \frac{[\text{フィルター通過前の空気汚染濃度}]}{[\text{フィルター通過後の空気汚染濃度}]}$$

3. 文献調査概要

多段 HEPA フィルターの性能に関して、実験から論じているレポートには、 $^{283}\text{PuO}_2$ の種々の粒子径にわたって一連の実験をおこなった Los Alamos Scientific Laboratory (LA) の Harry J. Ettinger や、DOP, NaCl を対象エアロゾルとして実験した同研究所の B. G. Schuster 等のレポートがある。

前者の実験は、LA の研究、燃料製造、回収各施設でのプルトニウム粒子の粒度分布の測定からはじまり、ここで得られた粒子径範囲に相当するプルトニウムエアロゾルを作成して、多段 HEPA フィルターの性能試験を実施している。実験粒子径範囲は、放射能中心空気動力学径 (Activity Median Aerodynamic Diameter, 以下 AMAD) で $0.22 \sim 1.6 \mu\text{m}$ である。HEPA フィルター3段で実験した結果では、1, 2段目の HEPA フィルターの効率はいずれも 99.99% 以上、3段目の効率は 99.8% 以上との結果を与えている。システム全体の P.F. は 10^{10} 以上となっている。

後者では、HEPA フィルター2段にておこなっている。NaCl を対象エアロゾルとした場合システム全体の P.F. は、あらかじめ $0.3 \mu\text{m}$ の DOP を用いて評価した HEPA フィルター個々の P.F. を乗じた値よりも若干高めに出ている。これに対し、DOP を用いておこなった実験でのシステム全体の P.F. は実験前の評価よりも低めに出ている。これらの差異は DOP がミストであること、NaCl が固体であることに由来するとしている。

その他には、C.F. Braun & Co. の Hetland が4段 HEPA フィルターについて、HEPA フィルターの負荷量 (gr./day) に基づいて求めた P.F. が 8×10^7 程度。Argonne National Laboratory で 5.7 g の PuF_6 が漏れ出た事故の例では2段の HEPA フィルターの P.F. が 1.5×10^6 、

1.5 ~ 20 mg の小規模漏洩実験では P.F. が $10^6 \sim 10^9$ の値を出している。

HEPA フィルターを用いての実験ではないが、HEPA フィルター用材と同等の用材を用いて実験した、Oak Ridge National Laboratory の McDowell らは、その実験結果をもとにして、多段 HEPA フィルターの性能について評価している。McDowell らは、Ettinger らの実験が、短期的な視点でみた場合あてはまるとしながらも、 α 放射性物質を添着させたフィルターを長期にわたって吸引し続けると、P.F. の劣化が認められるとしている。この原因として、彼らは、 α 線の反跳エネルギーにより、フィルター表面に捕集されている物質が、欠落することを挙げている。この様にしてフィルターを通過する割合は、フィルターに捕集されている放射性物質の総量、比放射能、吸引時間に依存し、物質の物理的性状、吸引流量率等には余り依存しない。P.F. は時間とともに減少し、1 年経過後には 4 段 HEPA フィルターについて 10^5 程度とのデータを出している。

以上の結果を、Table - 1 にまとめて記す。

Table 1 実験ならびに調査結果比較表

実験者または調査者	対象フィルター	フィルター段数	対象エアロゾル	システム全体の Protection Factor	備考
Los Alamos Scientific Laboratory H.J. Ettinger, J.C. Elder M. Gonzales (Jan. 1973~Nov. 1976)	HEPA フィルター	3	$^{238}\text{PuO}_2$	1×10^{10} 以上	
Los Alamos Scientific Laboratory B.G. Schuster, D.J. Osetec (Aug. 1976)	HEPA フィルター	2	DOP	$1.8 \times 10^7 \sim 3.0 \times 10^9$	
			NaCl	$1.4 \times 10^7 \sim 2.4 \times 10^8$	
C.F. Braun & Co. Nils Hetland, John L. Russell Jr. (Aug. 1972)	HEPA フィルター	4	$^{239}\text{PuO}_2$	8×10^7	
Argonne National Laboratory R.W. Kessie, D. Ramaswami (Dec. 1965)	HEPA フィルター	2	PuF_6	漏洩量 $5.7\text{g}:1.5 \times 10^6$ $1.5 \sim 25\text{mg}:10^6 \sim 10^9$	PuF_6 の事故的放出によるも。 PuF_6 は空気中では PuO_2F_2 の微粒子となる。発生初期ではそれらの微粒子は 0.1μ 以下が大部分である。
Oak Ridge National Laboratory W.J. McDowell, F.G. Seeley M.T. Ruan. (Mar. 1975 ~ Feb. 1977)	Gelman-type A	4~5	^{212}Pb , ^{253}Es , ^{238}Pu ^{239}Pu , ^{152}Eu , ^{154}Eu	時間とともに変化し、運転開始時に 10^{12} 程度のものが、1年経過後には 10^5 程度まで劣化する。	

()内は文献発行年月日

4. 各レポートの要旨

1) Los Alamos Scientific LaboratoryでのEttingerらの実験^{(1)~(9)}

(1) 各種施設から発生するプルトニウムの粒度分布の測定

Ettingerらは多段HEPAフィルターの性能試験を行う前に、稼動中の各種施設から発生するプルトニウム粒子の粒子径測定をおこなった。インパクト方式のアンダーセンサンプラーを用いて求めた測定結果をTable-2に示す。Location 00, 04はR&D施設, 08, 14は製造施設, 11は回収施設を表わす。同Tableより作業内容が類似の施設から発生するプルトニウムの粒子径は似かよっているといえる。発生濃度は $10^{-10} \sim 10^{-6}$ $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度である。

Table 2 Summary of Size Characteristics of Lognormally Distributed Plutonium Aerosols

Activity median aerodynamic diameter (amad)

At Location _____,	_____ %	of Observations	fall in the range _____ μm to _____ μm	All sample mean (μm)
00	86	77	1.0 to 3.0	1.9
04	62	26	1.0 to 4.0	2.9
08	92	48	3.0 to 5.0	4.1
11	89	18	0.1 to 1.0	0.5
14	84	49	2.0 to 4.0	2.6

Geometric standard deviation (σ_g)

At Location _____,	_____ %	of Observations	fall in the range _____ μm to _____ μm	All sample mean (μm)
00	86	77	1.5 to 3.0	2.1
04	81	26	1.5 to 3.5	3.0
08	92	48	1.5 to 2.5	1.7
11	67	18	1.5 to 4.0	3.9
14	71	49	1.5 to 3.0	2.9

(2) 多段 HEPA フィルターシステムの性能試験

試験対象エアロゾルは、上記測定結果と合致する様に、乾式ボールミル、湿式ボールミルの2つの方法で発生させている。乾式法により発生するプルトニウムエアロゾルの粒度分布は $0.70 \sim 1.6 \mu\text{m}$ (AMAD), 湿式法では $0.22 \sim 0.66 \mu\text{m}$ (AMAD) である。これらエアロゾルに対する3段 HEPA フィルターシステムの捕集効率測定結果を Table-3, 4 に示す。1 段目, 2 段目のフィルターとも, それぞれ 99.99% 以上の捕集効率を示すが, 3 段目のみ若干低下している。これは, 3 段目を通り過ぎてくるプルトニウムの量が非常に少ないための測定上の問題であるとしており, 3 段目フィルターへ流入する量をふやした実験結果では, 3 段目フィルターについても 99.99% 以上とのデータを与えている。同 Table の P. F. は 10^{10} 以上である。

Table 3 Overall HEPA Filter Efficiency against Dry Ball Milling Provided Plutonium Aerosol

HEPA Filter Stage	Range of Size		#Runs	Efficiency Range (%)		
	AMAD (μm)	σ g		Min.	Mean	Max.
1	0.70 ~ 1.6	2.07 ~ 2.9	14	99.99+	99.99+	99.99+
2	0.45 ~ 0.82	1.5 ~ 2.04	14	99.99+	99.99+	99.99+
3	0.36 ~ 0.70	1.31 ~ 2.54	11	99.49	99.86	99.99+

Table 4 Overall HEPA Filter Efficiency against Wet Ball Milling Provided Plutonium Aerosol

HEPA Filter Stage	Range of Size		#Runs	Efficiency Range (%)		
	AMAD (μm)	σ g		Min.	Mean	Max.
1	0.22 ~ 0.66	-	17	99.99+	99.99+	99.99+
2	0.29 ~ 0.53	-	17	99.98	99.99+	99.99+
3	0.15 ~ 0.42	-	17	99.50	99.86	99.99+

(3) 粒度分布と Protection Factor

Table - 3, 4 に示す様に, HEPA フィルターを通過するに従い, 粒度分布, 標準偏差とも減少する傾向を示す。各粒子径に対する 2 段 HEPA フィルターの P. F. を Fig. - 1 に示す。AMAD が $0.96 \mu\text{m}$ で, P. F. が最小となっている。しかし, HEPA フィルター 1 段については, $0.4 \sim 0.7 \mu\text{m}$ AMAD で最小の P. F. を与えるとの結果を出している。プルトニウム粒子の密度を 12 g/cm^3 と仮定すれば, $0.96 \mu\text{m}$ AMAD は幾何学的径で $0.28 \mu\text{m}$ に相当する。

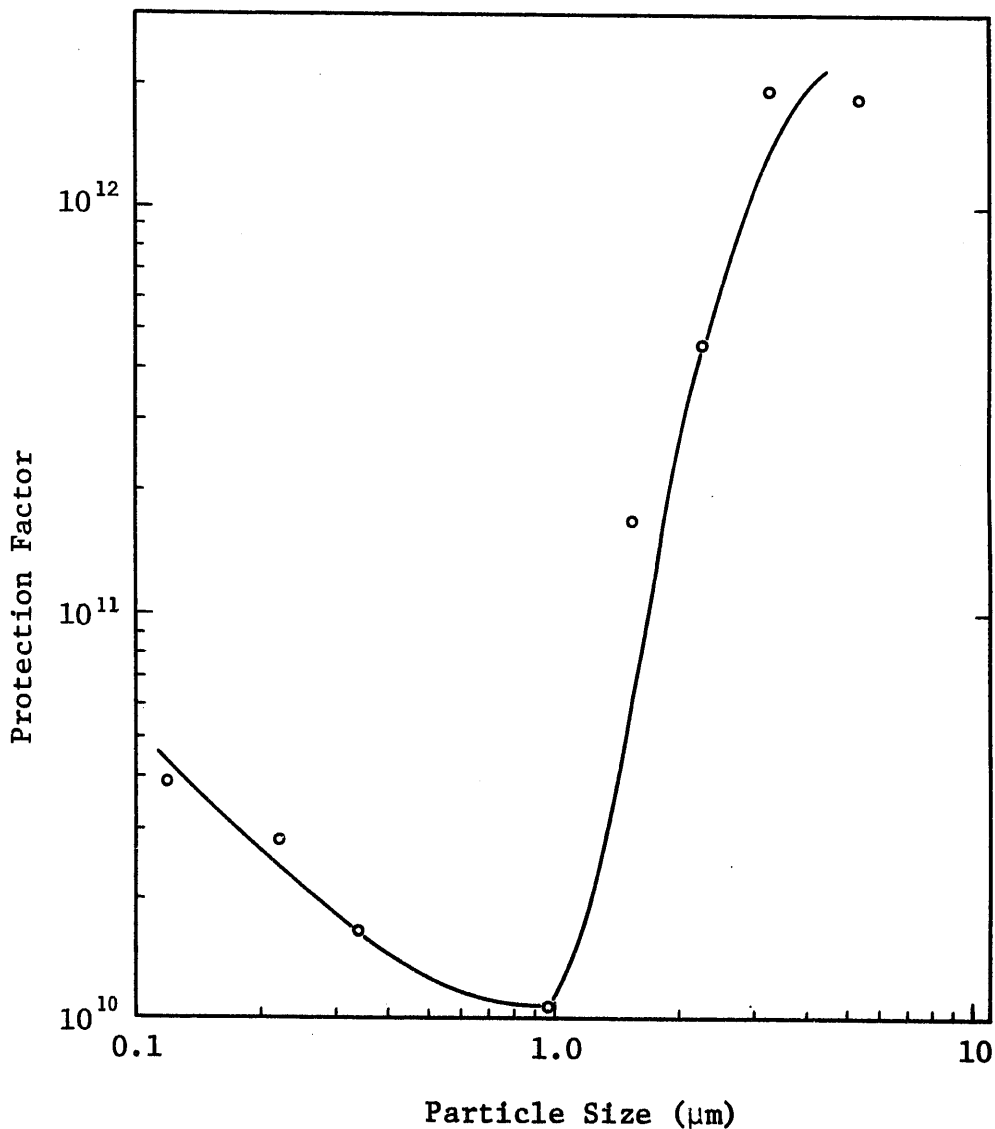


Fig. 1 Protection Factor of 2 Stages HEPA Filter System as a Function of Particle Size

2) Los Alamos Scientific Laboratory での Schuster らの実験⁽¹⁰⁾

(1) 単一 HEPA フィルター の捕集効率

粒子の測定は、 $0.06 \sim 2.9 \mu\text{m}$ の粒子範囲にわたって粒子濃度 10^7 コ/ℓ 程度まで測定可能な Intracavity Laser Particle Spectrometer を用いておこなっている。この測定装置を用いた試験対象エアロゾルの粒度分布を、Fig-2, Fig-3 に示す。測定前の予想ではある粒子径で、最大計数値を有する釣鐘状の分布を示すとのことだが、同図の様に粒子径が小さくなるに従い、計数値が増大する原因として、測定器の分解能のよさをあげている。従来よく使われていた光散乱型の粒子計数装置では、 $0.3 \mu\text{m}$ 以下の粒子までは測定できなかった。

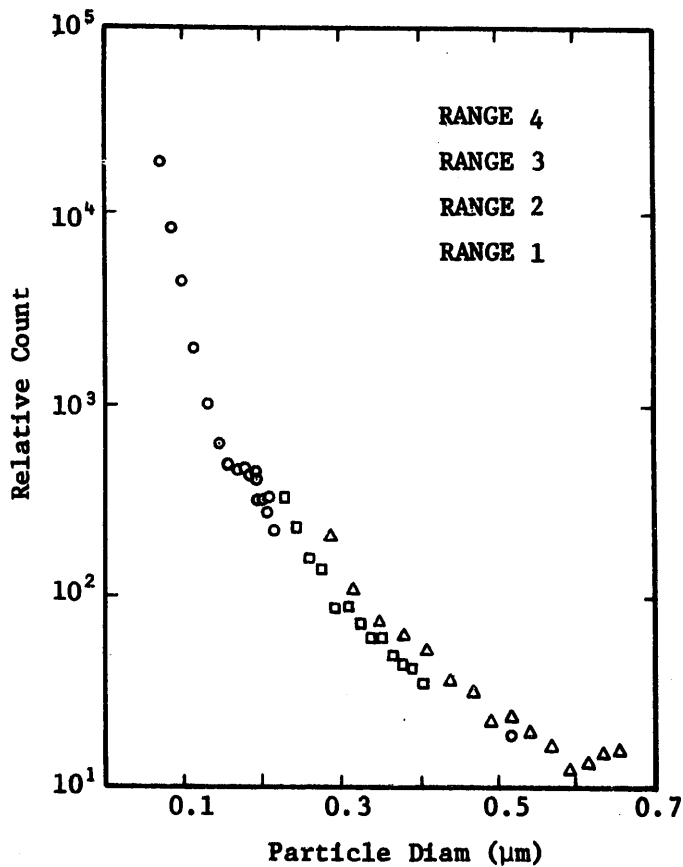


Fig. 2 Size Spectrum of 5% NaCl in H₂O

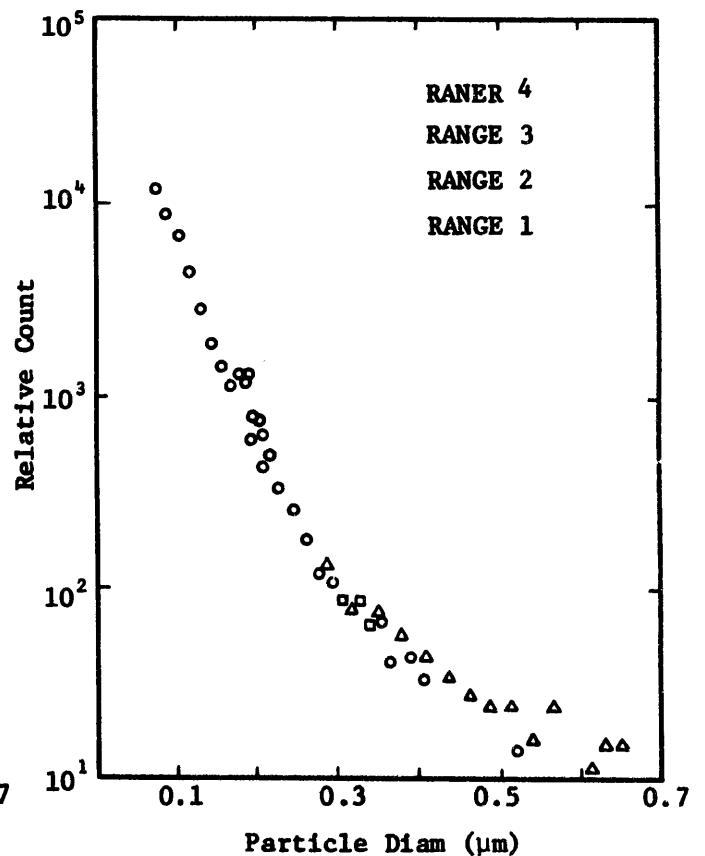


Fig. 3 Size Spectrum of 5% DOP in alcohol

これらエアロゾルを試験対象として実施した結果を Fig-4, 5, 6, 7 に示す。

NaCl を対象エアロゾルとした場合、Fig-4 に見る様に粒子通過率は時間とともに減少していく。この減少傾向は粒子径に依存せず、各粒子径についてはほぼ同一割合で減少する。Fig-5 の様にある時間まで粒子の計数値が一定なのはピンホール等のためであるとしており、このピンホールがふさがった段階から同図に示される様に粒子通過率が減少していく。

通過粒子計数値の半減時間は 1.6 ~ 13.5 分で，平均では 4 分程度である。このときの P.F. は $10^4 \sim 10^5$ であり，あらかじめ DOP にて評価した P.F. よりも高めである。

DOP を対象エアロゾルとした場合，Fig-6, 7 に示す様に，試験開始初期に HEPA フィルター通過粒子数は若干減少し，ある時間経過するとまた初期の値程度まで復帰する。その原因については明確に示されていない。

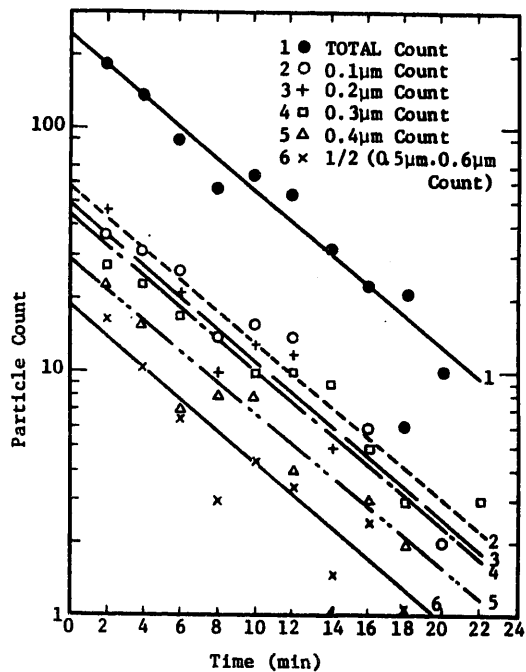


Fig. 4 Size Dependence of Penetration Decay, NaCl Challenge

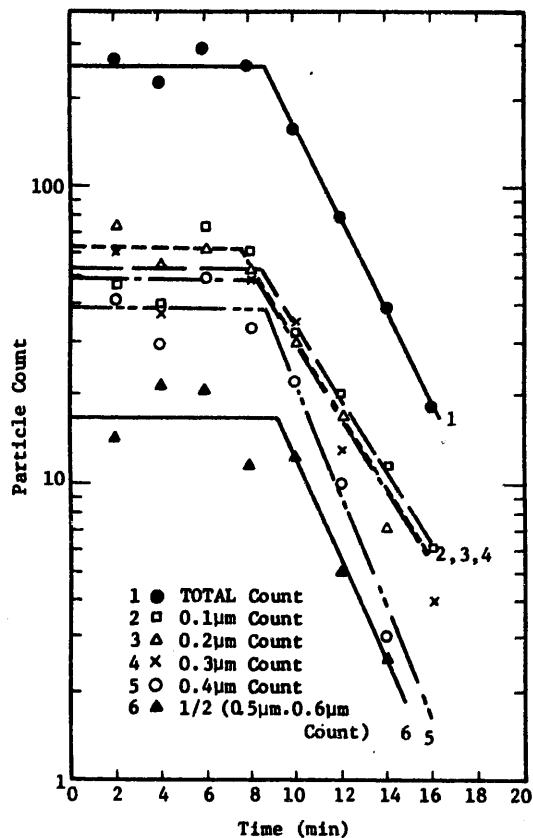


Fig. 5 Size Dependence of Penetration decay, NaCl Challenge

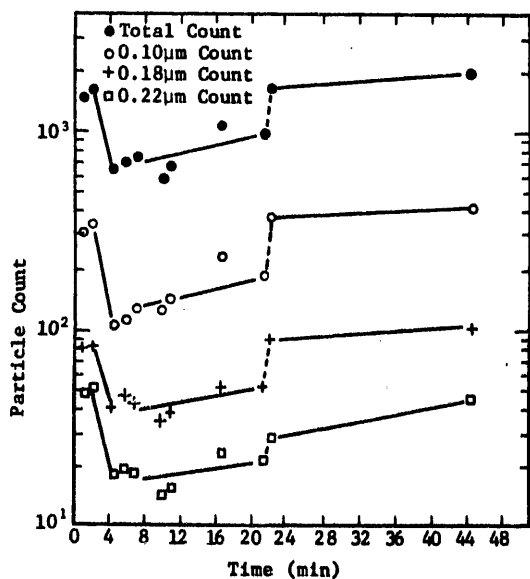


Fig. 6 Size Dependence of Penetration Decay, DOP Challenge

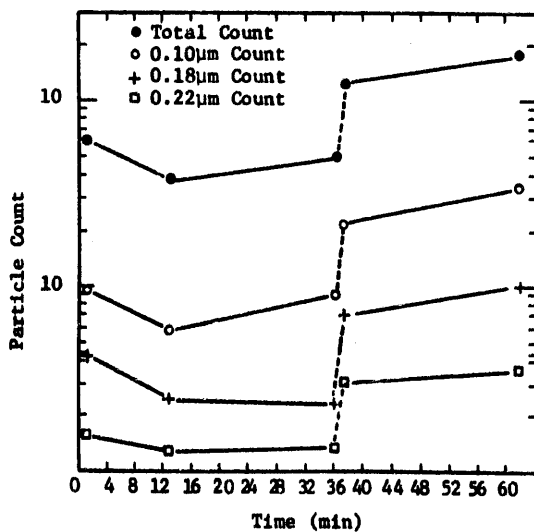


Fig. 7 Size Dependence of Penetration Decay, DOP Challenge

(2) 2段HEPAフィルターシステムの性能試験

Table - 5, 6 に NaCl, DOP を試験エアロゾルとした P.F. 測定結果を示す。これらの表で、P は Protection Factor を、添字の数字はフィルターのステージ番号を、S は実験前に 0.3 μm の DOP にて測定した P.F. を、m は対象エアロゾルにより実際に測定された結果を示す。P_{21s} は P₁ と P₂ の積で、2 段フィルターシステム全体の P.F. を表わす。

Table - 5 は NaCl に対する実験結果であるが 1 段目のフィルターの P.F. は DOP で評価した値よりも大きく、2 段目のフィルターについては、若干 P.F. が悪くなっている。しかしシステム全体では NaCl を対象として得た値の方が、個々のフィルターについて、DOP を用いて求めた P.F. 同士の積よりもやや高めである。

対象エアロゾルが DOP の場合の結果を Table - 6 に示す。この場合には、1 段目、2 段目及びシステム全体の各 P.F. がほとんどといってよい程度、試験前に個々のフィルターについて求めた P.F. よりも小さい。同 Table には、時間に対する P.F. の変化もあわせて記されているが、その変化は不規則であり、時間に対して単一傾向を示していない。※(11 p 脚注)

同一エアロゾルで試験を行なった場合同 Table の様に P.F. が悪化するのには、システムに組み込んだ場合の状況の善し悪しを示唆するものであり、現場での状況を判断するうえでは興味深い。

(3) 粒度分布と Protection Factor

粒度分布に対する P.F. は Fig - 8, 9 に示す様に NaCl, DOP による差異はほとんどなく、いずれも 0.1 ~ 0.23 μm 程度の粒子に対し、最小値を示す。

これは、Ettinger らが P.F. が最小となるとして示した粒子径よりも若干小さめである。

Table 5 Tandem Protection Factors (NaCl)

	Quality Control (0.3 μm DOP)	Measured (NaCl)
I	P _{1s} 7.2 × 10 ³ P _{2s} 1.3 × 10 ⁴ P _{21s} 9.4 × 10 ⁷	P _{1m} 1.1 × 10 ⁵ P _{2m} 1.5 × 10 ³ P _{21m} 1.6 × 10 ⁸
II	P _{1s} 1.3 × 10 ⁴ P _{2s} 1.0 × 10 ⁴ P _{21s} 1.3 × 10 ⁸	P _{1m} 1.7 × 10 ⁴ P _{2m} 8.2 × 10 ² P _{21m} 1.4 × 10 ⁷
III	P _{1s} 1.0 × 10 ⁴ P _{2s} 4.2 × 10 ³ P _{21s} 4.2 × 10 ⁷	P _{1m} 3.1 × 10 ⁴ P _{2m} 6.6 × 10 ³ P _{21m} 2.1 × 10 ⁸
IV	P _{1s} 1.3 × 10 ⁴ P _{2s} 4.2 × 10 ³ P _{21s} 5.5 × 10 ⁷	P _{1m} 2.8 × 10 ⁵ P _{2m} 1.5 × 10 ² P _{21m} 4.1 × 10 ⁷
V	P _{1s} 8.3 × 10 ³ P _{2s} 4.2 × 10 ³ P _{21s} 3.5 × 10 ⁷	P _{1m} 4.7 × 10 ⁴ P _{2m} 1.5 × 10 ³ P _{21m} 2.4 × 10 ⁸
VI	P _{1s} 1.3 × 10 ⁴ P _{2s} 4.2 × 10 ³ P _{21s} 5.5 × 10 ⁷	P ₂₁ 1.3 × 10 ⁵ P _{2m} 1.8 × 10 ³ P _{21m} 2.4 × 10 ⁸

Table 6 Tandem Protection Factors (DOP)

Quality Control	Measured (DOP)			
	Period #1	Period #2	Period #3	Period #4
$P_{1s} \quad 2.50 \times 10^4$ $P_{2s} \quad 2.50 \times 10^4$ $P_{21s} \quad 6.25 \times 10^8$	1 - 13 minutes $P_{1m} \quad 8.21 \times 10^3$ $P_{2m} \quad 2.24 \times 10^3$ $P_{21m} \quad 1.84 \times 10^7$	13 - 36 minutes 1.27×10^4 3.73×10^3 4.74×10^7	37 - 62 minutes 1.01×10^4 9.71×10^4 9.81×10^7	63 - 96 minutes 2.84×10^3 1.10×10^4 3.12×10^7
$P_{1s} \quad 2.50 \times 10^4$ $P_{2s} \quad 2.50 \times 10^4$ $P_{21s} \quad 6.25 \times 10^8$	1 - 11 minutes $P_{1m} \quad 5.80 \times 10^3$ $P_{2m} \quad 4.35 \times 10^3$ $P_{21m} \quad 2.53 \times 10^7$	12 - 17 minutes 6.80×10^3 7.42×10^3 5.05×10^7	18 - 23 minutes 5.05×10^3 5.56×10^3 2.81×10^7	24 - 27 minutes 4.24×10^3 4.76×10^3 2.02×10^7
$P_{1s} \quad 2.50 \times 10^4$ $P_{2s} \quad 2.50 \times 10^4$ $P_{21s} \quad 6.25 \times 10^8$	0 - 1 minute $P_{1m} \quad 2.87 \times 10^3$ $P_{2m} \quad 7.58 \times 10^3$ $P_{21m} \quad 2.18 \times 10^7$	2 - 11 minutes 2.87×10^3 3.52×10^4 1.01×10^8	12 - 23 minutes 2.87×10^3 7.58×10^3 2.18×10^7	24 - 60 minutes 2.87×10^3 8.44×10^3 2.42×10^7
$P_{1s} \quad 5.00 \times 10^4$ $P_{2s} \quad 5.00 \times 10^4$ $P_{21s} \quad 2.50 \times 10^9$	4 - 9 minutes $P_{1m} \quad 2.44 \times 10^4$ $P_{2m} \quad 2.07 \times 10^4$ $P_{21m} \quad 5.05 \times 10^8$	10 - 40 minutes 6.29×10^4 4.82×10^4 3.03×10^8	41 - 45 minutes 3.14×10^3 1.79×10^4 5.02×10^7	46 - 50 minutes 5.22×10^3 2.42×10^4 1.26×10^8
$P_{1s} \quad 1.67 \times 10^4$ $P_{2s} \quad 5.00 \times 10^4$ $P_{21s} \quad 8.33 \times 10^8$	0 - 5 minutes $P_{1m} \quad 3.22 \times 10^3$ $P_{2m} \quad 1.57 \times 10^4$ $P_{21m} \quad 5.05 \times 10^7$	6 - 10 minutes 7.86×10^3 6.42×10^3 5.05×10^7	11 - 15 minutes 5.09×10^3 2.48×10^4 1.26×10^8	16 - 20 minutes 5.59×10^3 9.03×10^4 5.05×10^8

※ 固体状粒子，液体状粒子に対する捕集効率について：

フィルターの捕集性能に影響を与える条件としては，流速，フィルターの電荷量，フィルターファイバーの径，圧損，負荷特性等が考えられるが，フィルター過理論では同一粒径の固体状粒子と液体状粒子で捕集効率に差異が生じる原因を説明できない。一般には次の様に説明されている。(a)固体状の粒子は液体状の粒子と比較して凝集しやすい。(b)液体状の粒子はほとんど電荷の影響を受けないが固体状の粒子は影響を受ける。(c)固体状の粒子を捕集する場合には負荷が急速に増大する。(d)液体状の粒子はフィルターに吸収，捕集されると同時に，破碎し後方へ移行する。(c)同一粒径と称しても，粒子径，密度に若干の差異が存在する⁽¹⁷⁾

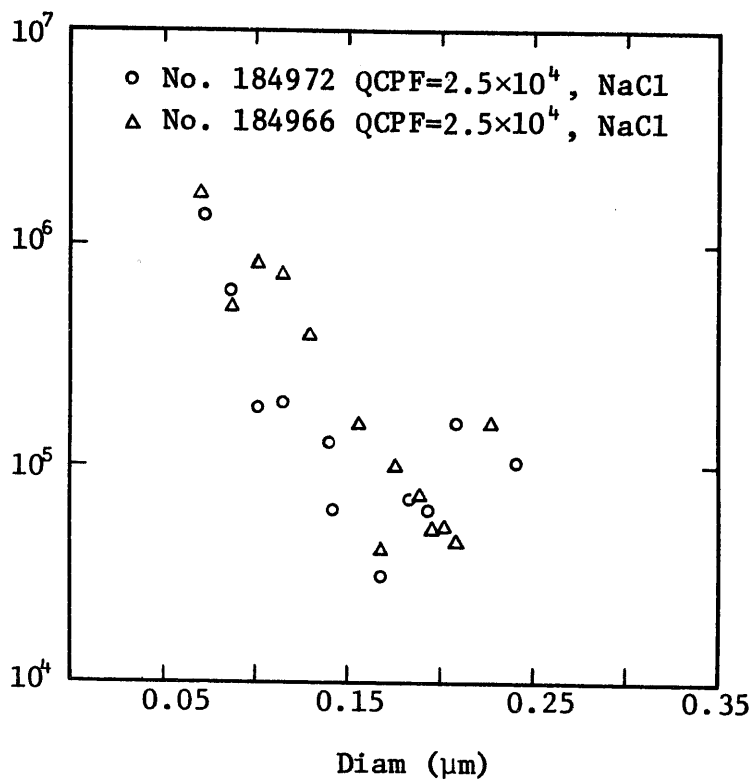


Fig. 8 Protection Factor as a Function of Particle Size

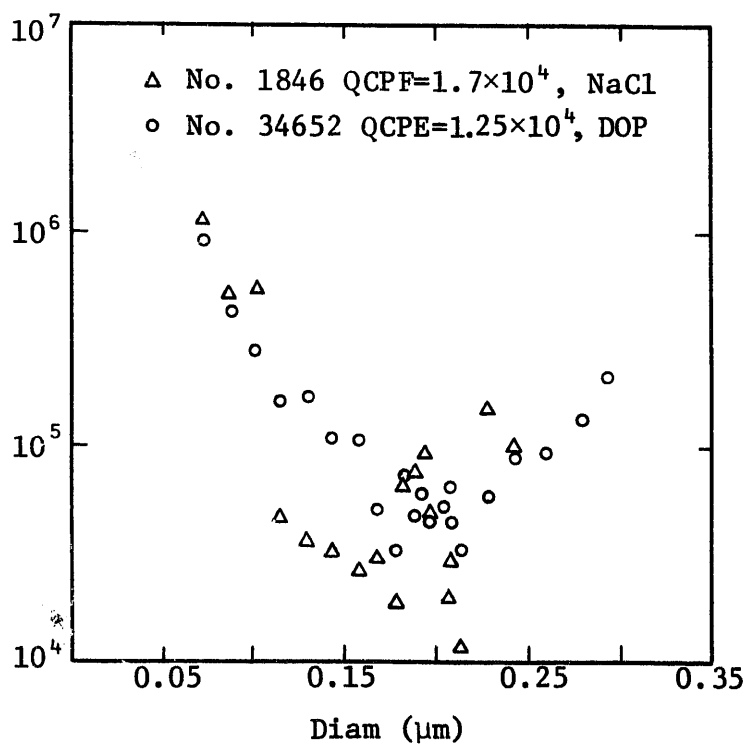


Fig. 9 Protection Factor as a Function of Particle Size

3) C.F. Braun & Coでの Hetland らの調査ならびに解析⁽¹⁾

彼らは新しい Plutonium Recovery Facility の換排気装置の仕様を作成するため、既存の施設の換排気系について調査した。その結果、P.F. が 10^7 以上で運転されているシステムがいくつか見い出された。その一例を Table - 7 に示す。

Table 7 The Performance of HEPA Filter System

POINT	CONCENTRATION $\mu\text{Ci/ml}$	efficiency* $\eta\%$
Entering 1st Bank of Filters	0.8×10^{-6}	
Leaving 2nd Bank of Filters	8.0×10^{-12}	$\eta_{1-2} = 99.999$
Leaving 3rd Bank of Filters	0.06×10^{-12}	$\eta_{3-4} = 94$
Leaving 4th Bank of filters	0.01×10^{-12}	$\eta_{4-5} = 83$

* An air dilution factor of 8.1 applies between the 2nd bank of filters.

同 Table の効率、1日あたりのフィルターの負荷量に基づいて計算されたものである。この結果と、粒度分布と捕集効率の関係から求めた値とを合せて、記載したものが、Fig-10 である。同図中で、A, B, C はそれぞれ Table-7 中の 2 段フィルター、3 段フィルター、4 段フィルターに対応するものであり、Case-1 は Fuch の捕集効率に関する理論と Dymet の粒度分布測定結果を組み合わせた計算結果を、Case-1B は Case-1 と同一データを用い、 $0.1 \mu\text{m}$ の粒子の捕集効率に関して控えめの値を用いた場合の計算結果を、Case-2 は Fuch の捕集効率に関する理論と Kirchner の粒度分布測定結果を組み合わせた計算結果を、それぞれ表わす。フィルター段数が 2 段、3 段の場合には、実測値と計算値がほぼよい一致を示すが、4 段フィルターについては、4 段目のフィルター捕集効率が低下しているため、計算値とのずれは大きい。この最終段のフィルターの捕集効率が悪いことについて、Hetland はフィルター自身の捕集効率が悪いのではなく、フィルターまわりのリーク等のためではないかとしているが、確証はしていない。あくまで 15 年以上にわたる現場でのデータに基づいた結果であるとしている。

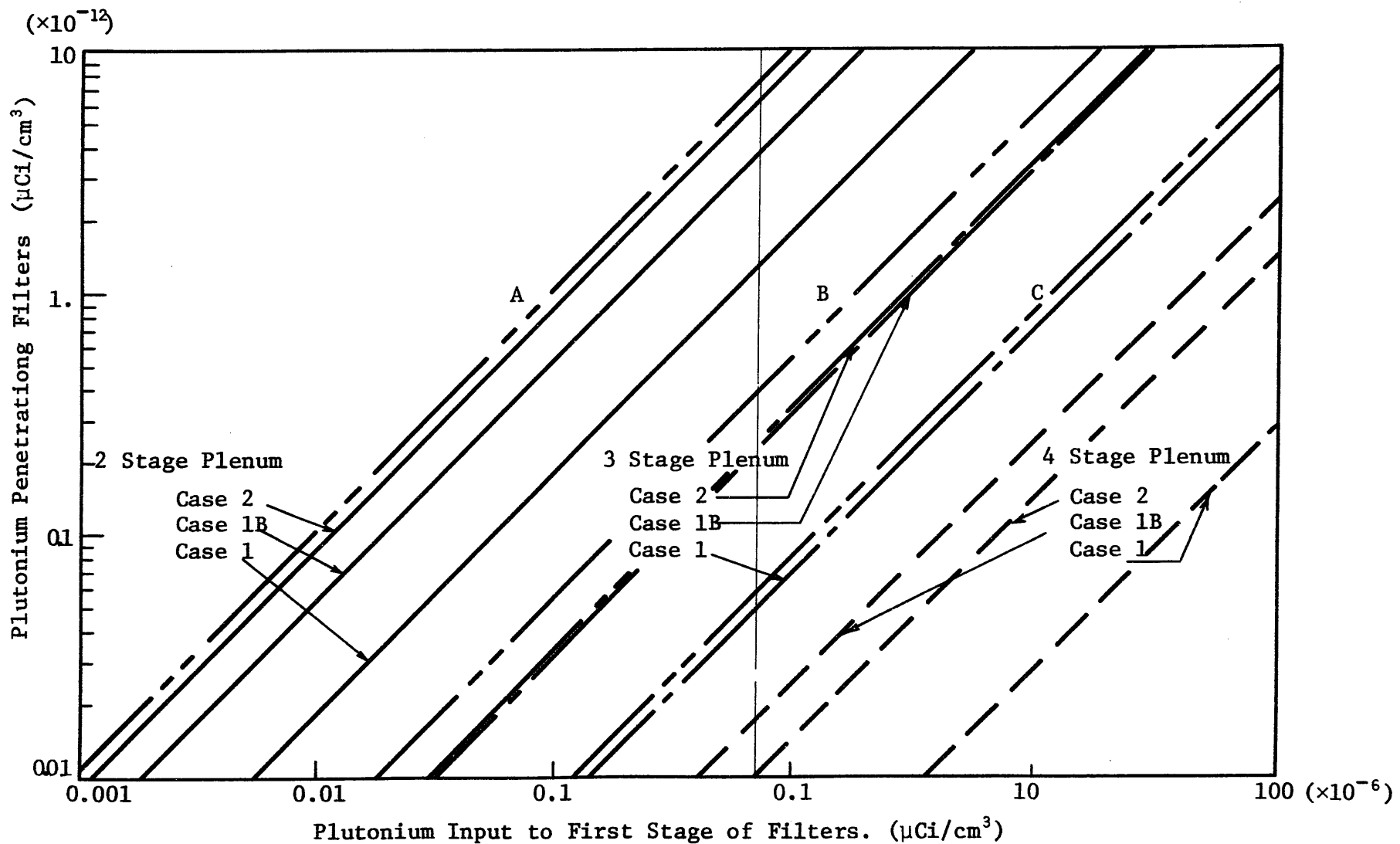


Fig. 10 Plutonium Aerosol Attenuation for Series Stages of HEPA Filters

4) Argonne National Laboratoryでの Kessie らの実験⁽¹²⁾

事故時ならびに小規模実験時の PuF_6 の HEPA フィルターに対する捕集効率を Table-8 に示す。

Table 8 Comparison of PuF_6 Release Accident with Small-scale Experiments

	Full-scale Accident	Small-scale Experiments
PuF_6 released, mg	5700	1.5 to 25
$\text{PuF}_6/\text{H}_2\text{O}^{\text{a}}$	0.006	0.0022 to 3.32
Fraction of released Pu discharged from last filter	6.7×10^{-7}	10^{-6} to $10^{-9\text{b}}$
Penetration of first filter, %	0.0031 (west)	0.0005 to 0.0016^{b}
Penetration of second filter, %	2 to 20	2 to 45^{b}

^a Average mole ratio in release enclosure volume due to moisture content of the contained air.

^b Only for experiments where $\text{PuF}_6/\text{H}_2\text{O} < 0.1$.

PuF_6 の場合、漏洩した空間での水分量によって、加水分解のされ方、加水分解により生成された粒子の凝集の仕方等が大きく異なる。 $\text{PuF}_6/\text{H}_2\text{O}$ のモル比が 1 以上になると右図に示す様に P.F. は急激に減少する。

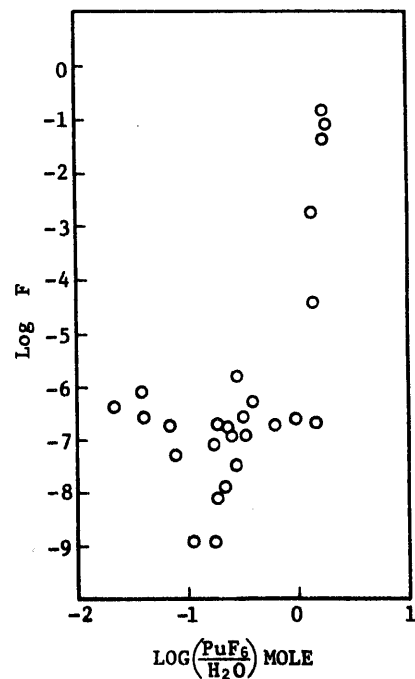


Fig. 11 Fraction of Released Plutonium Hexafluoride (F) Passing through Two AEC Filter Discs

5) Oak Ridgeでの McDowellらの実験^{(13)~(15)}

McDowellらは、HEPAフィルターと同等の材質である、Gelman Type-A (47mmφ)を4~5段直列につないで、捕集効率に関する実験をおこなった。対象エアロゾルは、α放射性物質として²¹²Pb, ²⁵³Es, ²³⁸Pu, ²³⁹Puがあり、β-γ放射性物質として、¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Euを用いた。これら放射性物質を1段目のフィルターに添付し、4時間から20日間にわたる各吸引試験から、α放射性物質については、次段フィルター以後への移行が顕著にみられたとしており、この原因として、aggregate recoil processをあげている。一連の実験から移行率を求め、HEPAフィルターについて以下の様な評価をおこなっている。4段HEPAフィルターシステムについて、1段目のフィルターに1Ciの²³⁸Puを添着した場合、この移行率を用いてシステムからの放出量を計算すると、Fig-12に示される様に時間の経過とともに放出量が増大する。据付時

のP.F.が 10^{12} 程あったものが、1年経過後には、 10^5 程度まで劣化してしまっている。

Fig-13は、4段直列に接続したHEPAフィルターシステムを1,000CFMで連続吸引した場合の計算である。破線は実験前に0.25Ciを1段目のフィルターに添着した場合で、実線は0.042Ci/月の割合で1年にわたってPuが蓄積されていく場合の放出濃度を示す。後者は半年で第1段フィルターでの蓄積が0.25Ciに達する。いずれの場合にも、1年後には $3.5 \times 10^{-13} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の放出濃度に達し、従来評価されていたP.F.を非常に下まわるものである。

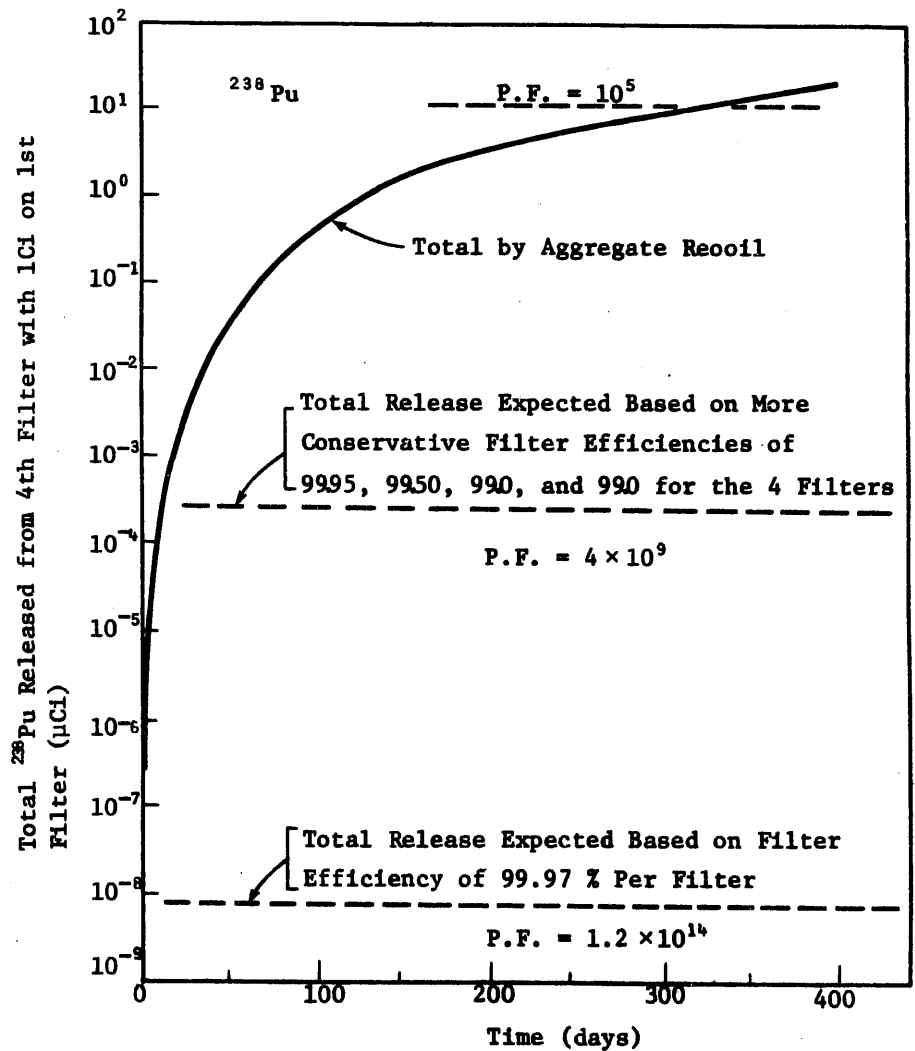


Fig. 12 Calculated release of ²³⁸Pu from a set of four HEPA filters, with 1 Ci initially collected on the first filter, as a function of elapsed time.

この P. F. の低下を防ぐための方策として McDowell らは、フィルターを頻ぱんに交換すること、洗浄できるフィルターの使用、フィルターに流入する空気中の粒子を事前に何らかの手段で除去すること、反跳粒子が動かない様に粘着性の物質を間欠的にスプレーすること等を、挙げている。そして、この反跳粒子を防ぐための、有効かつ経済的な方法を開発するため実験室規模ならびに工学的規模で更に実験を進めていくことを強調している。

Ettinger らも、プルトニウムを添着した HEPA フィルターを静的状態で10カ月から1年間保管しておき、添着前の捕集効率と比較する実験をおこなっているが、彼らのデータでは、添着前後の捕集効率の差異は認められない。

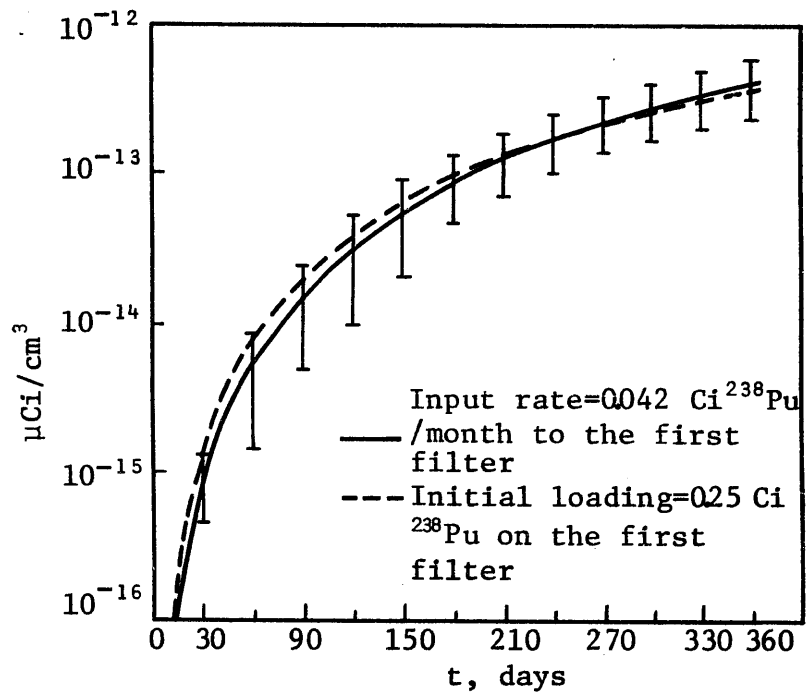


Fig. 13 Calculated concentration ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) of ^{238}Pu in air released from four 1000-cfm HEPA filters in series.

5. ま と め

文献調査の結果、次のことがいえる。

1) HEPA フィルターの性能は、対象となるエアロゾルの特性（種類、粒度分布等）及び運転状況（流量率、負荷等）により評価が異なる。

(1) よく使用される DOP と NaCl とでは前者が後者より控えめの P.F. を与える。

(2) 非放射性あるいは β - γ 放射性のエアロゾルに対する P.F. よりも、 α 放射性のエアロゾルに対する P.F. の方が小さい。

(3) P.F. が最小となる粒子径は存在するが、その値は実験者により若干異なる。必ずしも $0.3 \mu\text{m}$ の粒子に対して、P.F. が最小とはなっていない。

2) HEPA フィルターを数段直列に接続した場合の性能は各エアロゾルについて以下の通りである。

(1) DOP : Quality Control の際に DOP にて評価した値よりも、1, 2 段目の各性能はほとんど低めの値を与える。

(2) NaCl : Quality Control の際に DOP にて評価した値よりも、1 段目の性能は高めであるが、2 段目の性能は低めの値を与える。

(3) プルトニウム: Ettinger らの実験では 1, 2, 3 段目とも所定の性能 (99.97%) をうわまわるが、Hetland, Kessie らの調査ならびに実験では下流のフィルターほど P.F. が減少している。前者が非常に厳密なプレテストをおこなった後での試験結果であるのに対し、後者は現場そのものからのデータであるためであろう。また下流にいくほど、測定精度上の問題が生じてくることも指摘され得る。

長期間の運転に対しては、McDowell らが指摘する様に P. F. は漸減する。

6. あとがき

結局、多段 HEPA フィルターの性能については、まだ定まった評価法が確立していない。

ERDA の Nuclear Air Cleaning Handbook⁽¹⁶⁾に見られる様に、状況に応じて P.F. を使いわけているのが現状の様である。ERDA のレポートでは次の様に分類している。

- (1) よく管理された排気システム（ステージ毎に、フィルター性能が検査し得る場合、以下同じ）では、Ettingerらのデータに基づき、個々の P.F. (3×10^3) の積を用いてもよい。
- (2) よく管理されたプルトニウム取り扱い施設の排気システムでは、安全側で考え、個々のフィルターについて 2×10^3 の P.F. をとり、それらの積を用いる。
- (3) 事故の際には不確定要素が多いため、よく管理されたシステムについても、更に安全側で考え、1 段目のフィルターの P.F. として 5×10^2 、2 段目以降のフィルターの P.F. として、 $1 \sim 2 \times 10^3$ をとり、それらの積を用いる。
- (4) ステージ毎にフィルター性能が検査できない場合は、2 段目以降のフィルターの P.F. として、 5×10^2 程度を用いる。

しかし、この ERDA のレポートでは、McDowell⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾らの実験結果には言及していない。McDowell らの実験レポートを吟味するとともに、国内においても、この種の実験を遂行する必要性を感じる。

7. 参 考 文 献

- (1) Ronald G. Stafford, Harry J. Ettinger : "Filter Efficiency vs Particle Size and Velocity" LA-4650 (April. 1971)
- (2) Harry J. Ettinger, John C. Elder and Manuel Gonzales : "Size Characteristics of Plutonium Aerosols" 12th AEC Air Cleaning Conference, Conf. 720823 PP.~740 785, (Aug. 1972)
- (3) Harry J. Ettinger, John C. Elder and Manuel Gonzales : "Performance of Multiple HEPA Filters Against Plutonium Aerosols" LA-5170-PR (Jan. 1973)
- (4) Harry J. Ettinger, John C. Elder and Manuel Gonzales : "Performance of Multiple HEPA Filters Against Plutonium Aerosols" LA-5349-PR (July, 1973)
- (5) Harry J. Ettinger, John C. Elder and Manuel Gonzales : "Performance of Multiple HEPA Filters Against Plutonium Aerosols" LA-5544-RP (March, 1974)
- (6) J.C. Elder, M. Gonzales and H.J. Ettinger : Health Physics, 27, 45, 1974
- (7) M. Gonzales, J. Elder and H.J. Ettinger : "Performance of Multiple HEPA Filters Against Plutonium Aerosols" 13th. AEC Air Cleaning Conference, Conf. 740807 pp. 501~525, (Aug. 1974)
- (8) John C. Elder, Harry J. Ettinger, Manuel Gonzales and Marrison Tillery : "Performance of Multiple HEPA Filters Against Plutonium Aerosols" LA-5784-PR, (Nov. 1974)
- (9) Manuel Gonzales, John C. Elder, Marvin I. Tillery and Harry J. Ettinger : "Performance of Multiple HEPA Filters Against Plutonium Aerosols" LA-6546 (Nov. 1976)
- (10) B.G. Schuster and D.J. Osetec : "The Use of a Single Particle Intra Cavity Laser Particle Spectrometer for Measurements of HEPA Filter and Filter Systems" 14th ERDA Air Cleaning Conference, Conf. 760822 (Aug. 1976)

- (11) Nils Hetland, John L. Russell Jr. : "Adquency of Ventilation Exhaust Fittering System for New Plutonium Facilities" 12th AEC Air Cleaning Conference, Conf. 720823, PP. 619~637, (Aug. 1972)
- (12) R.W. Kessie and D. Ramaswami : "Removal of Plutonium Hexafluoride from Cell Exhaust Air by Hydrolysis and Filtration" ANL-7066 (Dec. 1965)
- (13) Michael T. Ryan, Kenneth W. Skrable and George Chabot : Heath Physics 29, 798, 1975
- (14) W.J. McDowell, F.G. Seeley and M.T. Ryan : "Penetration of HEPA Filters by Alpha Recoil Aerosols" 14th. ERDA Air Cleaning Conference (Aug. 1976)
- (15) W.J. McDowell, F.G. Seely and M.T. Ryan : Health Physics, 32, 447, 1977
- (16) C.A. Burchsted, A.B. Fuller and J.E. Kahn : "Nuclear Air Cleaning Hand-book. (Mar. 1976)
- (17) Ronald G. Stafford and Harry J. Ettinger : " Comparison of Filter Media Against Liquid and Solid Aerosols" LA-4345 (May, 1970)