

KfK 3343
Juli 1982

**Die physikalisch-chemischen
 ^{131}I -Komponenten in der
Fortluft eines
Siedewasserreaktors (SWR 3)**

H. Deuber
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

KfK 3343

Die physikalisch-chemischen ^{131}I -Komponenten in
der Fortluft eines Siedewasserreaktors (SWR 3)

H. Deuber

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Die physikalisch-chemischen ^{131}I -Komponenten in der Fortluft eines Siedewasserreaktors (SWR3)

Kurzfassung

In der Kaminfortluft eines deutschen Siedewasserreaktors wurden während drei Jahren die Anteile des elementaren, schwebstoffförmigen und organischen ^{131}I bestimmt. Der mittlere Anteil des für die Ingestionsdosis entscheidenden elementaren ^{131}I betrug in den ersten beiden Jahren ca. 20 % und im dritten Jahr ca. 50 %.

The physico-chemical ^{131}I species in the stack exhaust air of a boiling water reactor (BWR3)

Abstract

In the stack exhaust air of a German boiling water reactor, the fractions of elemental, particulate and organic ^{131}I were determined over a period of three years. The average fraction of elemental ^{131}I , which is decisive for the ingestion dose, was about 20 % during the first two years and about 50 % during the third year.

1. Einleitung

Bei der Berechnung der Strahlenexposition der Bevölkerung in der Umgebung von Kernkraftwerken durch luftgetragenes Radioiod werden nach dem heute üblichen Verfahren /1/ 3 physikalisch-chemische Radioiodkomponenten berücksichtigt: elementares (I_2), schwebstoffförmiges und organisches (CH_3I) Iod. Diese Iodkomponenten tragen über den Weide-Kuh-Milch-Pfad in sehr unterschiedlichem Maße zu der beim bestimmungsgemäßen Betrieb entscheidenden Ingestionsdosis bei, da sich ihre Ablagerungsgeschwindigkeiten bei Weidepflanzen etwa wie 100 : 10 : 1 verhalten (Fallout). Nur bei Kenntnis der Anteile der Radioiodkomponenten in der Fortluft läßt sich daher eine annähernd realistische Berechnung der Strahlenexposition der Bevölkerung durchführen.

Über Messungen der Radioiodkomponenten in der Kaminfortluft von 2 Druckwasserreaktoren während Zeiträumen bis ca. 2 Jahren wurde bereits berichtet /2, 3/. Nach diesen Messungen beträgt der Anteil des für die Ingestionsdosis entscheidenden elementaren ^{131}I im Mittel maximal ca. 50 %. Der Rest entfällt praktisch vollständig auf organisches ^{131}I .

Der vorliegende Bericht umfaßt entsprechende Messungen in der Kaminfortluft eines Siedewasserreaktors (SWR3) während eines Zeitraums von 3 Jahren.

2. Experimentelles

Die Messungen wurden mit diskriminierenden Iodsammlern durchgeführt, in denen die Iodkomponenten an Schwebstofffiltern bzw. selektiven Sorptionsmaterialien abgeschieden werden /3/. Aufbau und Betrieb der diskriminierenden Iodsammler waren weitgehend wie beschrieben /3/. (Die Sammelperioden betragen ebenfalls 1 Woche.) Die Nachweisgrenze lag bei ca. 10^{-14} Ci $^{131}I/m^3$. Die Messungen wurden vom Betreiber der Anlage durchgeführt.

3. Betrieb des Reaktors (SWR3)

Während der 3 Jahre, in denen die Messungen durchgeführt wurden, gab es mehrere größere und kleinere Stillstände. Die größeren Stillstände sind in Tab. 1 aufgeführt. Außerhalb dieser Zeiten wurde der Reaktor meistens mit Vollast gefahren. Das 1. Meßjahr entsprach dem 1. Jahr des kommerziellen Betriebs der Anlage.

4. Ergebnisse und Diskussion

Die während der einzelnen Sammelperioden in der Kaminfortluft des SWR3 festgestellten ^{131}I -Konzentrationen und Anteile der ^{131}I -Komponenten sind in den Tab. 2 bis 7 sowie in den Abb. 1 bis 12 wiedergegeben. Schwebstoffförmiges ^{131}I ist in diesen Darstellungen nicht berücksichtigt, da dessen Anteile meistens sehr klein waren (s.u.).

Aus den Tab. 2 bis 7 und den Abb. 1 bis 12 geht folgendes hervor:

- a) Die ^{131}I -Konzentration lag i. allg. unter 10^{-12} Ci/m^3 , so daß oft die Nachweisgrenze unterschritten wurde. Im 2. Jahr lag die ^{131}I -Konzentration in mehreren Sammelperioden jedoch über 10^{-12} Ci/m^3 . Das gilt insbesondere für die Sammelperioden 7, 14 und ≥ 16 , in denen die Anlage abgefahren war. Auch die anderen Peaks der ^{131}I -Konzentration fallen meistens mit Abfahren des Reaktors zusammen. (Es handelt sich um das bekannte "Iodspiking".)
- b) Der Anteil des elementaren ^{131}I war teils größer, teils kleiner als der des organischen ^{131}I . Insbesondere war i. allg. der Anteil des elementaren ^{131}I bei den genannten Peaks der ^{131}I -Konzentration gering.

In Tab. 8 sind die aus den Wochenwerten errechneten (mittleren) jährlichen ^{131}I -Abgaben und Anteile der ^{131}I -Komponenten in der Kaminfortluft des SWR3 zusammengestellt. Es ist folgendes ersichtlich:

- a) Die ^{131}I -Abgabe war im 2. Jahr etwa um 1 Größenordnung höher als im 1. und 3. Jahr.
- b) Der Anteil des elementaren ^{131}I war im 1. und 2. Jahr bedeutend niedriger als der des organischen ^{131}I (ca. 20 bzw. 80 %). Im 3. Jahr waren diese Anteile annähernd gleich. Der Anteil des schwebstoffförmigen ^{131}I (restlicher Anteil) war in allen Jahren sehr gering ($\leq 3\%$).

5. Schlußfolgerung

Nach den Messungen in der Kaminfortluft eines Siedewasserreaktors (SWR3) während eines Zeitraums von 3 Jahren ist der mittlere Anteil des für die Ingestionsdosis entscheidenden elementaren ^{131}I meistens gering (ca. 20%). Maximal beträgt dieser Anteil ca. 50 %. Im Vergleich zu Druckwasserreaktoren besteht also kein entscheidender Unterschied. Die Befunde sollten durch weitere Messungen erhärtet werden.

6. Literatur

- /1/ Der Bundesminister des Innern,
Allgemeine Berechnungsgrundlagen für die Bestimmung der Strahlenexposition durch Emission radioaktiver Stoffe (1977).
- /2/ Deuber, H.,
Die physikalisch-chemischen Radioiodkomponenten in der Abluft eines Druckwasserreaktors (DWR2),
KfK 3206 (1981).
- /3/ Deuber, H.,
Die physikalisch-chemischen Radioiodkomponenten in der Abluft eines Druckwasserreaktors (DWR3),
KfK 3207 (1981).

Tab. 1: Stillstände des SWR3 von mehr als einwöchiger Dauer

Jahr	Sammel- perioden a)	Bemerkungen b)
1	5 - 9 23 - 24 34 - 38	
2	15 - 29 39 - 41	Brennelementwechsel
3	ab 36	Brennelementwechsel, Nachrüstungsmaßnahmen

a) fortlaufend numerierte Meßzeiträume von einwöchiger Dauer
(Unterschied von 3 Tagen gegenüber Kalenderwochen)

b) kein Brennelementwechsel im 1. Jahr

Tab. 2: ^{131}I -Konzentrationen und Anteile der ^{131}I -Komponenten in der Kaminfortluft (1. Jahr) ^{a)}

Sammel- periode	^{131}I -Konzentration ^{b)} [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}I -Komponenten [%]	
		elem. ^{131}I	org. ^{131}I
1			
2			
3			
4			
5			
6	3,2 (-13)	12	88
7	1,1 (-13)	39	61
8	5,7 (-14)	69	31
9	-	-	-
10	1,5 (-14)	-	100
11	-	-	-
12	-	-	-
13	-	-	-
14	1,4 (-13)	-	100
15	1,4 (-14)	-	100
16	-	-	-
17	2,5 (-13)	13	87
18	-	-	-
19	-	-	-
20	2,5 (-14)	-	100
21	-	-	-
22	3,0 (-14)	-	100
23	-	-	-
24	3,0 (-14)	-	100
25	8,7 (-14)	-	100
26	-	-	-

a) keine Eintragungen: keine Messungen durchgeführt
 - : Nachweisgrenze (ca. 10^{-14}Ci/m^3) unterschritten

b) 3,2 (-13) : $3,2 \cdot 10^{-13}$ usw.

Tab. 3: ^{131}I -Konzentrationen und Anteile der ^{131}I -Komponenten in der Kaminfortluft (1. Jahr)

Sammel- periode	^{131}I -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}I -Komponenten [%]	
		elem. ^{131}I	org. ^{131}I
27	-	-	-
28	-	-	-
29	1,5 (-14)	-	100
30	1,4 (-14)	-	100
31	-	-	-
32	-	-	-
33	-	-	-
34	1,3 (-13)	11	89
35	2,7 (-13)	20	80
36	2,1 (-13)	26	74
37	4,6 (-14)	-	100
38	-	-	-
39	-	-	-
40	-	-	-
41	1,3 (-14)	100	-
42	1,6 (-14)	-	100
43	4,0 (-14)	-	100
44	1,8 (-13)	-	100
45	-	-	-
46	1,5 (-14)	-	100
47	2,8 (-14)	100	-
48	1,4 (-14)	100	-
49	-	-	-
50	-	-	-
51	-	-	-
52	1,1 (-14)	-	100

Tab. 4: ^{131}I -Konzentrationen und Anteile der ^{131}I -Komponenten
in der Kaminfortluft (2. Jahr)

Sammel- periode	^{131}I -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}I -Komponenten [%]	
		elem. ^{131}I	org. ^{131}I
1	-	-	-
2	-	-	-
3	1,0 (-13)	53	19
4	1,1 (-12)	63	31
5	1,1 (-12)	54	28
6	2,7 (-12)	42	48
7	1,6 (-11)	8	85
8	2,5 (-12)	20	78
9	5,0 (-13)	29	66
10	1,2 (-12)	6	92
11	1,7 (-13)	42	48
12	2,5 (-13)	45	55
13	3,7 (-13)	53	38
14	7,7 (-12)	5	94
15	1,5 (-12)	14	80
16	5,2 (-12)	26	74
17	3,4 (-12)	29	70
18	1,5 (-12)	43	55
19	6,6 (-13)	61	39
20	3,0 (-13)	52	48
21	1,1 (-13)	58	42
22	1,2 (-13)	66	34
23	2,2 (-13)	74	26
24	-	-	-
25	-	-	-
26	-	-	-

Tab. 5: ^{131}I -Konzentrationen und Anteile der ^{131}I -Komponenten
in der Kaminfortluft (2. Jahr)

Sammel- periode	^{131}I -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}I -Komponenten [%]	
		elem. ^{131}I	org. ^{131}I
27	-	-	-
28	-	-	-
29	-	-	-
30	1,6 (-14)	-	100
31	3,8 (-14)	100	-
32	-	-	-
33	1,3 (-13)	-	100
34	-	-	-
35	-	-	-
36	-	-	-
37	-	-	-
38	2,4 (-14)	100	-
39	1,7 (-14)	-	100
40	-	-	-
41	-	-	-
42	1,5 (-13)	100	-
43	3,6 (-13)	10	90
44	7,8 (-13)	7	93
45	2,0 (-13)	21	79
46	3,9 (-14)	-	100
47	7,3 (-14)	-	60
48	-	-	-
49	4,4 (-14)	-	54
50	-	-	-
51	-	-	-
52	-	-	-

Tab. 6: ^{131}I -Konzentrationen und Anteile der ^{131}I -Komponenten
in der Kaminfortluft (3. Jahr)

Sammel- periode	^{131}I -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}I -Komponenten [%]	
		elem. ^{131}I	org. ^{131}I
1	-	-	-
2	-	-	-
3	-	-	-
4	-	-	-
5	-	-	-
6	-	-	-
7	-	-	-
8	2,2 (-14)	100	-
9	4,5 (-14)	100	-
10	2,6 (-14)	100	-
11	5,5 (-14)	32	68
12	2,9 (-14)	100	-
13	-	-	-
14	9,5 (-14)	66	34
15	5,6 (-14)	100	-
16	5,3 (-14)	60	40
17	2,9 (-14)	-	100
18	5,5 (-14)	61	-
19	-	-	-
20	2,0 (-14)	-	100
21	3,4 (-14)	100	-
22	-	-	-
23	7,9 (-14)	72	28
24	5,5 (-14)	79	-
25	1,5 (-14)	100	-
26	4,4 (-14)	100	-

Tab. 7: ^{131}I -Konzentrationen und Anteile der ^{131}I -Komponenten
in der Kaminfortluft (3. Jahr)

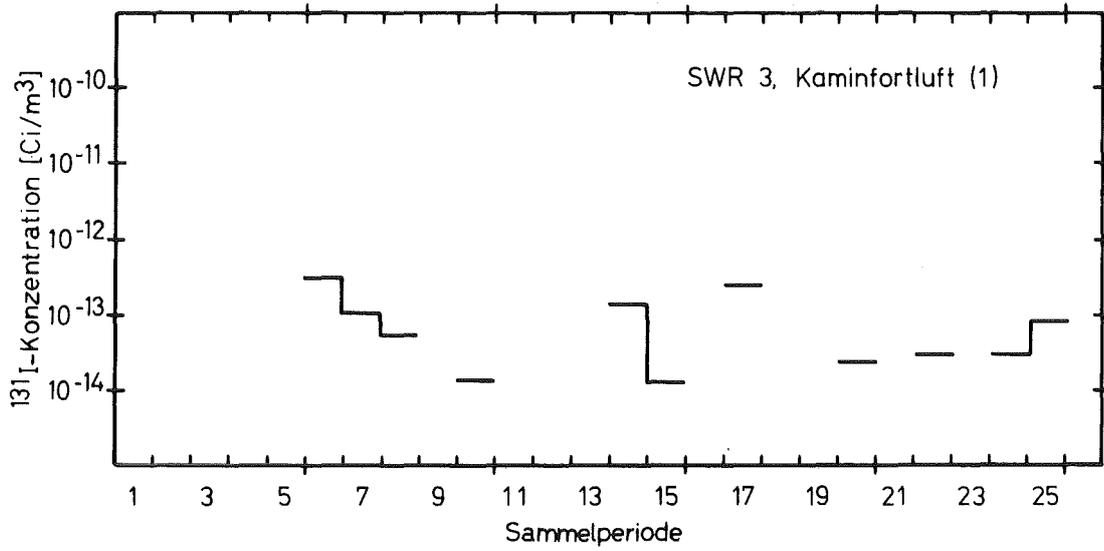
Sammel- periode	^{131}I -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}I -Komponenten [%]	
		elem. ^{131}I	org. ^{131}I
27	5,3 (-14)	100	-
28	4,8 (-14)	100	-
29	-	-	-
30	4,5 (-13)	16	84
31	1,2 (-13)	77	23
32	6,6 (-14)	100	-
33	4,1 (-14)	100	-
34	5,6 (-14)	78	-
35	6,5 (-14)	60	40
36	3,2 (-13)	15	85
37	2,9 (-13)	15	85
38	1,3 (-13)	28	72
39	3,8 (-14)	-	100
40	3,3 (-14)	100	-
41	-	-	-
42	-	-	-
43	-	-	-
44	-	-	-
45	-	-	-
46	-	-	-
47	-	-	-
48	-	-	-
49	-	-	-
50	-	-	-
51	-	-	-
52	-	-	-

Tab. 8: ^{131}I -Abgaben und Anteile der ^{131}I -Komponenten in der Kaminfortluft

Jahr	^{131}I -Abgabe a) [Ci]	Anteile der ^{131}I -Komponenten b) [%]	
		elem. ^{131}I	org. ^{131}I
1	$1 \cdot 10^{-4}$	16	84
2	$2 \cdot 10^{-3}$	20	77
3	$1 \cdot 10^{-4}$	47	51

a) gerundete Werte (berechnet mit einem mittleren Durchsatz von $250\,000\text{ m}^3/\text{h}$)

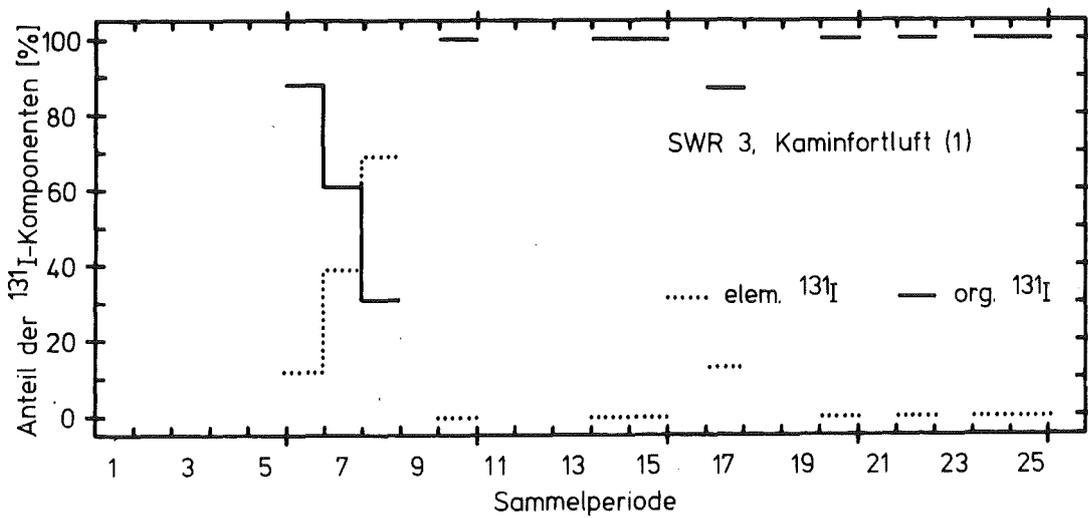
b) berechnet aus den Abgaben der ^{131}I -Komponenten



KIK LAF II D826

Zeitlicher Verlauf der ^{131}I -Konzentration

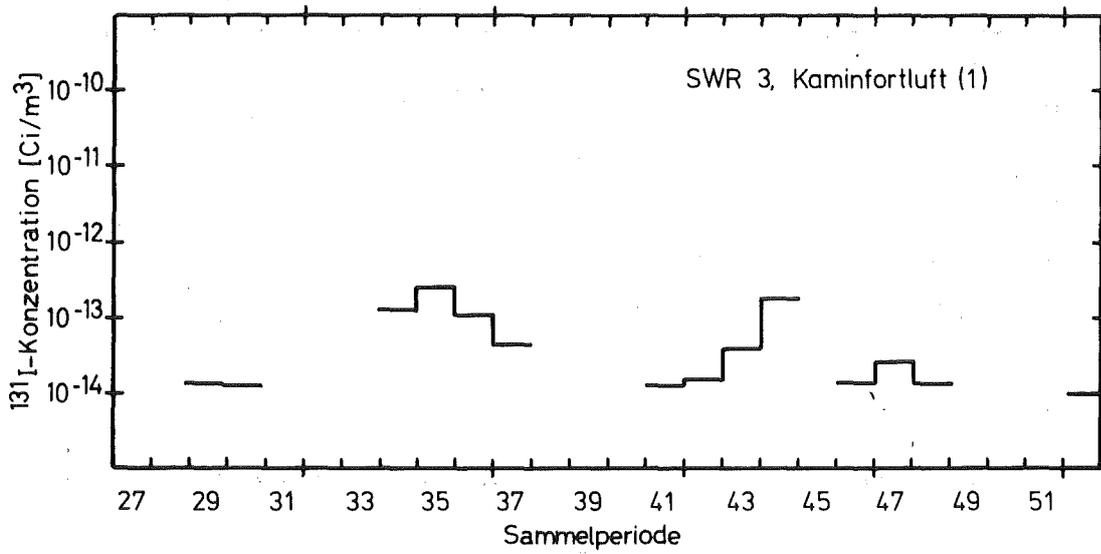
Abb. 1



KIK LAF II D827

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ^{131}I -Komponenten

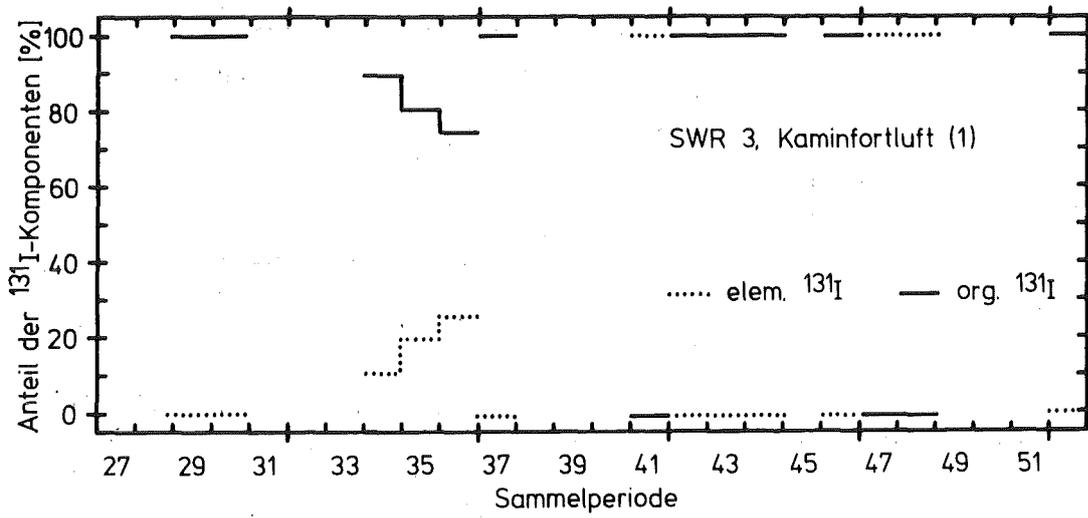
Abb. 2



KfK LAF II 0828

Zeitlicher Verlauf der ¹³¹I-Konzentration

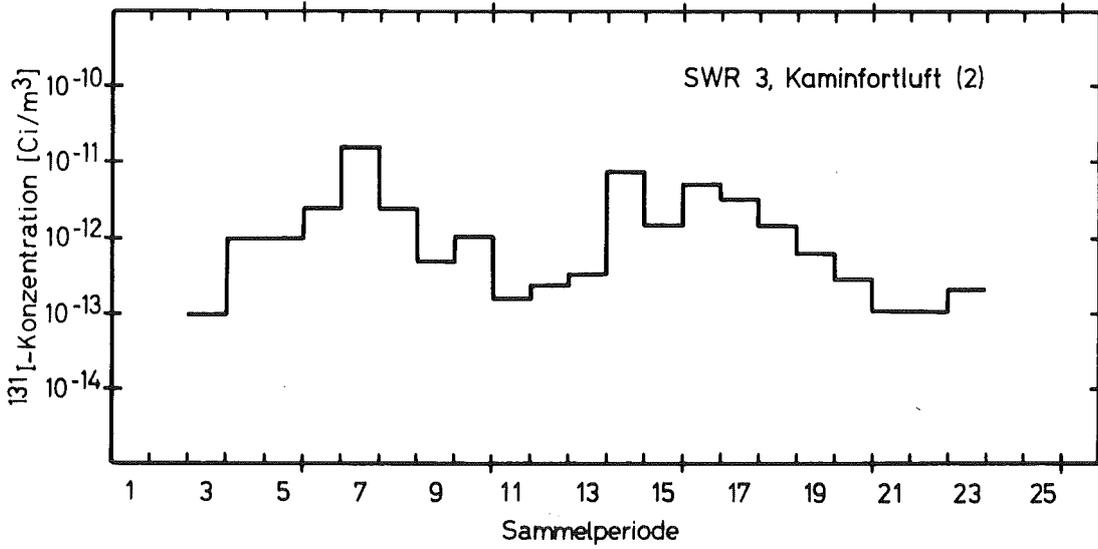
Abb. 3



KfK LAF II 0829

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ¹³¹I-Komponenten

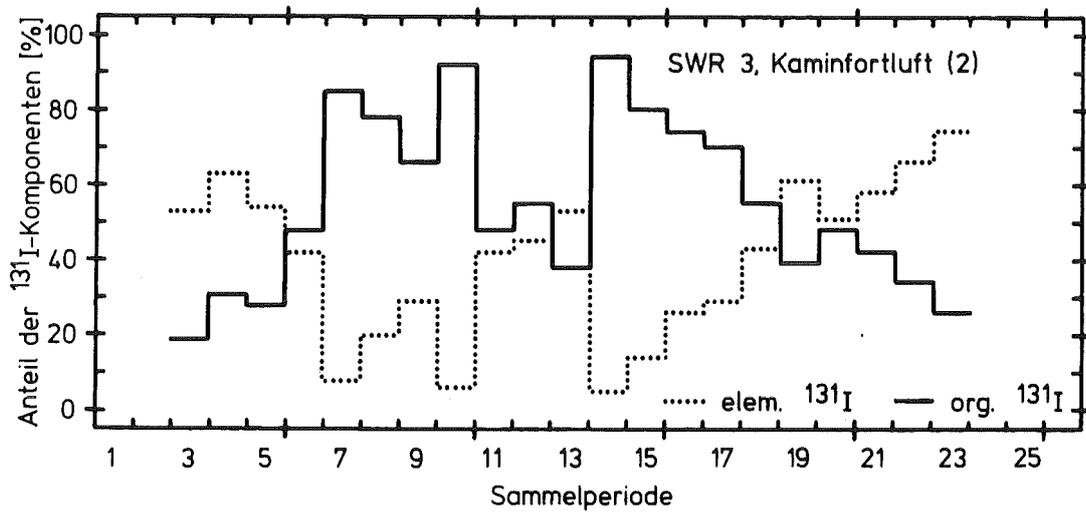
Abb. 4



KIK LAF II D8029B

Zeitlicher Verlauf der ^{131}I -Konzentration

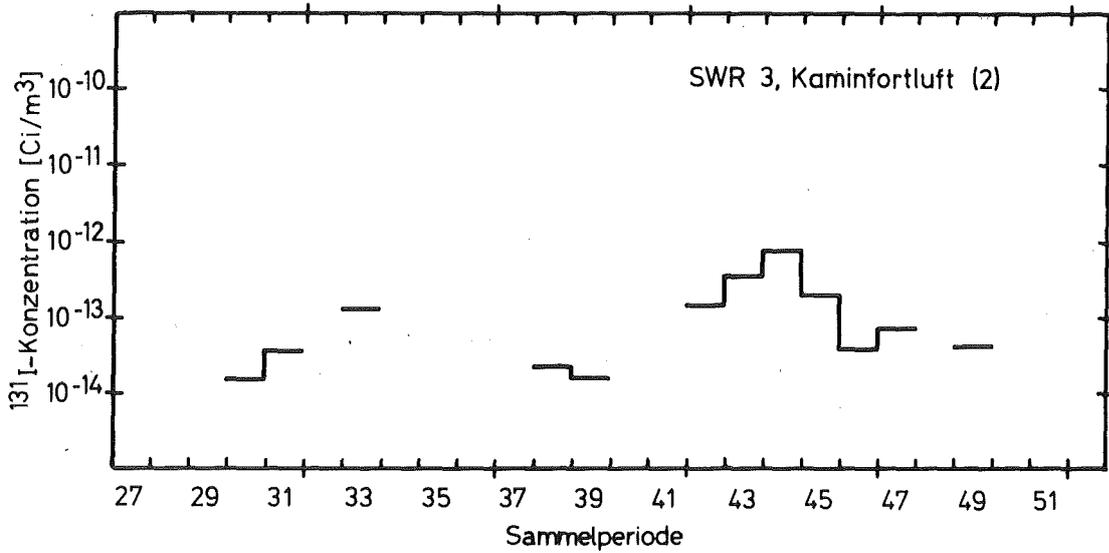
Abb. 5



KIK LAF II D8037B

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ^{131}I -Komponenten

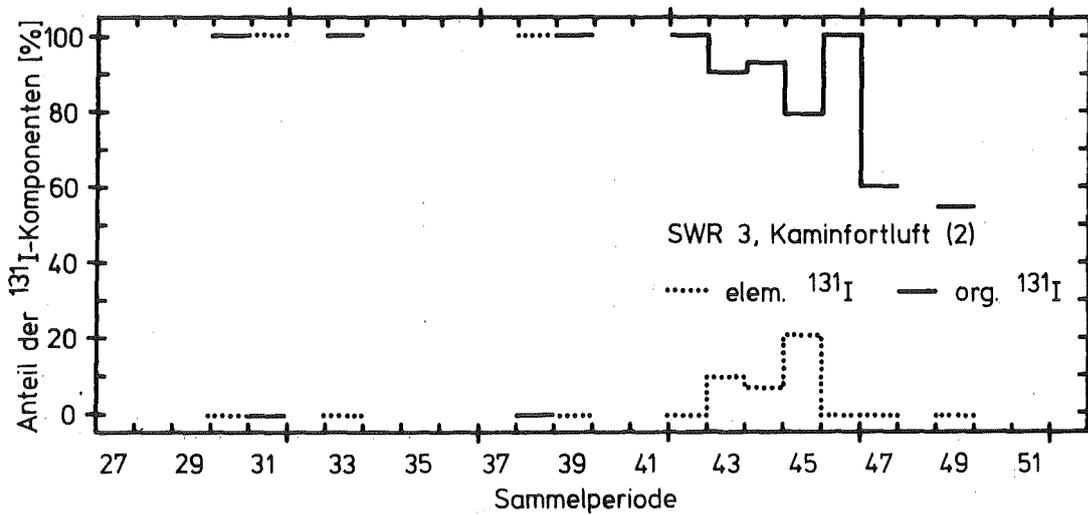
Abb. 6



KfK LAF II D8042B

Zeitlicher Verlauf der ^{131}I -Konzentration

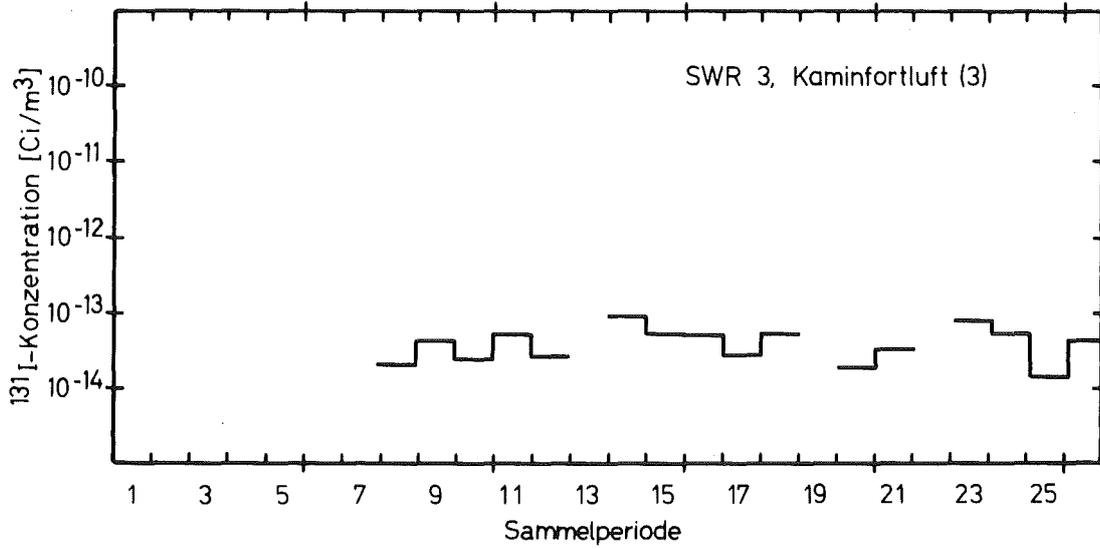
Abb. 7



KfK LAF II D8043B

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ^{131}I -Komponenten

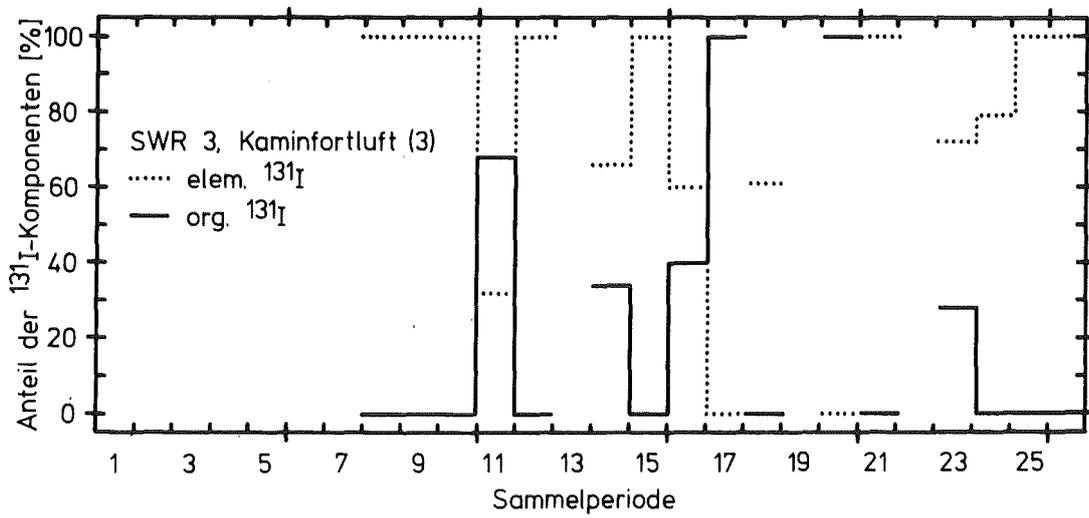
Abb. 8



KJK LAF II 08210

Zeitlicher Verlauf der ^{131}I -Konzentration

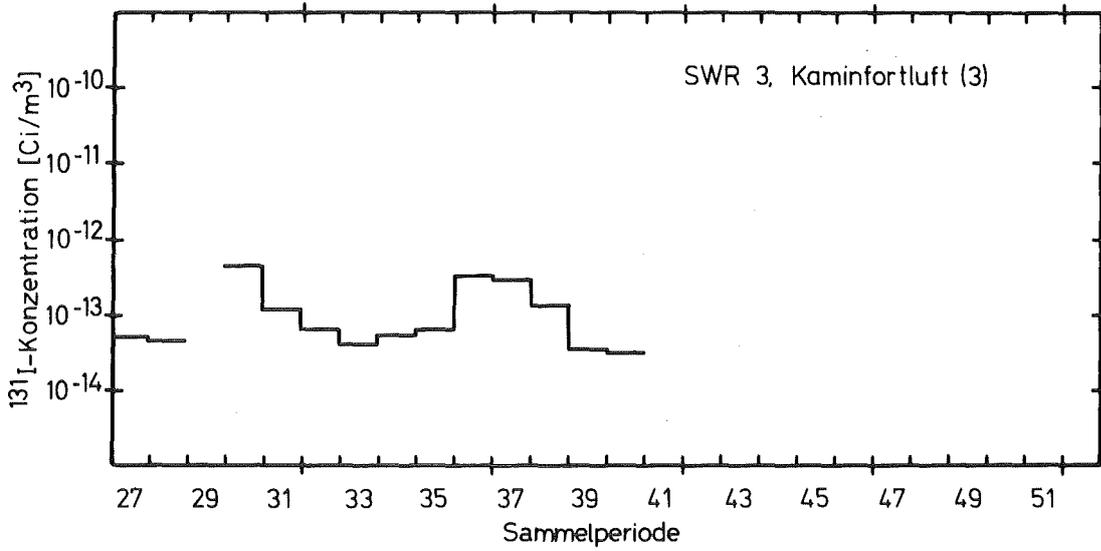
Abb. 9



KJK LAF II 08211

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ^{131}I -Komponenten

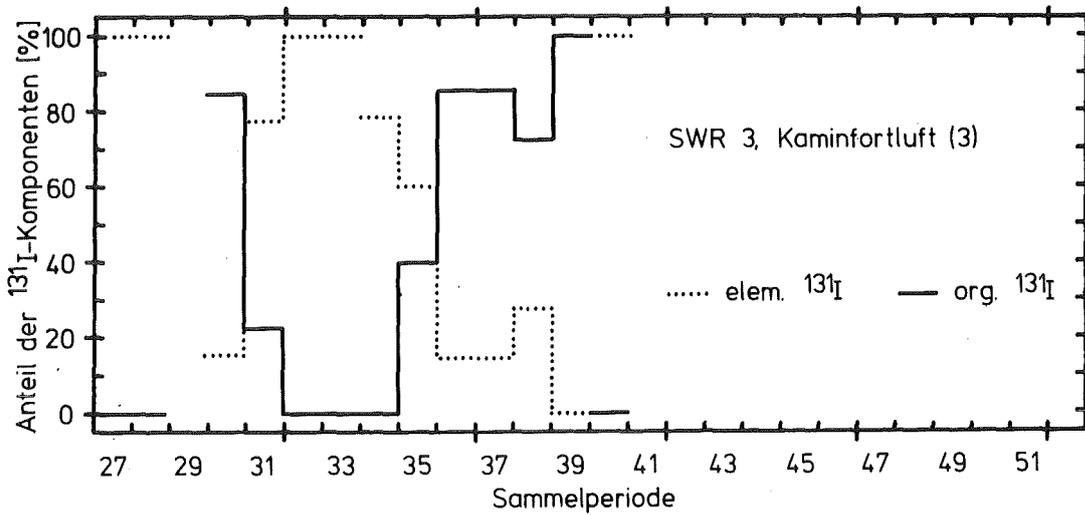
Abb. 10



KfK LAF II D8212

Zeitlicher Verlauf der ^{131}I -Konzentration

Abb. 11



KfK LAF II D8213

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ^{131}I -Komponenten

Abb. 12