

KfK 3594  
September 1983

# Untersuchungen zur Abscheidung von $^{131}\text{I}$ durch ein Iodfilter eines Druckwasserreaktors

H. Deuber, K. Gerlach  
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

Kernforschungszentrum Karlsruhe



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

KfK 3594

Untersuchungen zur Abscheidung von  $^{131}\text{I}$  durch ein Iodfilter  
eines Druckwasserreaktors

*H. Deuber, K. Gerlach*

Kernforschungszentrum Karlsruhe, GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

Untersuchungen zur Abscheidung von  $^{131}\text{I}$  durch ein Iodfilter eines Druckwasserreaktors

Kurzfassung

Die Abscheidung von  $^{131}\text{I}$  durch ein Anlagenraumabluftfilter eines deutschen Druckwasserreaktors wurde mit mehreren Methoden bestimmt, um insbesondere zuverlässige Daten zu gewinnen. Außerdem wurden Untersuchungen zur Klärung der Ursache für die Alterung der im genannten Iodfilter enthaltenen Aktivkohle durchgeführt.

Die tatsächliche Rückhaltung des organischen  $^{131}\text{I}$  in Höhe eines Abscheidegrades von 99,9 % wurde durch  $^{131}\text{I}$  in Form von penetrierenden Iodverbindungen begrenzt. Sie war um mehr als eine Größenordnung geringer als die Rückhaltung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  unter Auslegungsbedingungen. Die Alterung beruhte vorwiegend auf Adsorption von schwerflüchtigen organischen Stoffen.

Investigations on the retention of  $^{131}\text{I}$  by an iodine filter of a pressurized water reactor

Abstract

The retention of  $^{131}\text{I}$  by an equipment room exhaust filter of a German pressurized water reactor was determined by various methods to particularly obtain reliable results. Moreover, investigations were performed to clarify the reason for aging of the carbon contained in the iodine filter mentioned.

The actual retention of the organic  $^{131}\text{I}$ , corresponding to a value of 99.9 %, was limited by  $^{131}\text{I}$  in the form of penetrating iodine compounds. It was lower than the retention of  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  under layout conditions by more than one order of magnitude. The aging was essentially caused by the adsorption of low-volatile organic compounds.

# Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Daten des Iodfilters	4
3. Experimentelles	7
3.1 Vor-Ort-Tests und Labortests	7
3.1.1 Vor-Ort-Tests mit anlagenfremdem $^{131}\text{I}$	8
3.1.2 Vor-Ort-Tests mit anlageneigenem $^{131}\text{I}$	9
3.1.3 Labortests unter Betriebsbedingungen	10
3.1.4 Labortests unter Auslegungsbedingungen	11
3.2 Weitere Untersuchungen	11
4. Präsentation der Ergebnisse	19
4.1 Vor-Ort-Tests und Labortests	19
4.1.1 Vor-Ort-Tests mit anlagenfremdem $^{131}\text{I}$	19
4.1.2 Vor-Ort-Tests mit anlageneigenem $^{131}\text{I}$	20
4.1.3 Labortests unter Betriebsbedingungen	21
4.1.4 Labortests unter Auslegungsbedingungen	22
4.2 Weitere Untersuchungen	23
5. Diskussion der Ergebnisse	40
6. Zusammenfassung	44
7. Literatur	45

<u>Verzeichnis der Tabellen</u>	Seite
Tab. 1 Praxis beim Testen von Abluft-Iodfiltern in der Bundesrepublik Deutschland	3
Tab. 2 Daten des Anlagenraumabluftfilters des DWR 4	6
Tab. 3 Durchgeführte Tests (Anlagenraumabluft des DWR 4)	13
Tab. 4 In den Iodsammlern eingesetzte Sorptionsmaterialien	15
Tab. 5 Parameter der Vor-Ort-Tests	16
Tab. 6 Parameter der Labortests	18
Tab. 7 $^{131}\text{I}$ -Konzentration in der Zuluft und Abluft des Anlagenraumabluftfilters (anlagenfremdes $^{131}\text{I}$ )	26
Tab. 8 Dekontaminationsfaktor des Anlagenraumabluftfilters für anlagenfremdes $^{131}\text{I}$ ( $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ )	27
Tab. 9 $^{131}\text{I}$ -Konzentration und Anteil der $^{131}\text{I}$ -Komponenten in der Zuluft und Abluft des Anlagenraumabluftfilters (anlageneigenes $^{131}\text{I}$ )	30
Tab. 10 Dekontaminationsfaktor des Anlagenraumabluftfilters für anlageneigenes $^{131}\text{I}$	31
Tab. 11 Abscheidegrad der Aktivkohle 207B (KI) für $^{131}\text{I}$ , beaufschlagt als $\text{CH}_3\text{I}$ , vor und nach Alterung in der Anlagenraumabluft (Betriebsbedingungen)	33

	Seite
Tab. 12 Abscheidegrad der Aktivkohle 207B (KI) für $^{131}\text{I}$ , beaufschlagt als $\text{I}_2$ , vor und nach Alterung in der Anlagenraumabluft (Betriebsbedingungen)	35
Tab. 13 Abscheidegrad der Aktivkohle 207B (KI) für $^{131}\text{I}$ , beaufschlagt als $\text{CH}_3\text{I}$ , vor und nach Alterung in der Anlagenraumabluft (Auslegungsbedingungen)	37
Tab. 14 Dekontaminationsfaktor des Anlagenraumabluft- filters für organisches $^{131}\text{I}$ nach verschiedenen Testmethoden	43

<u>Verzeichnis der Abbildungen</u>	Seite
Abb. 1 Anlagenraumabluftfilter des DWR 4 mit Testeinrichtungen	5
Abb. 2 Diskriminierender Iodsammler	14
Abb. 3 Apparatur zur Prüfung von Iodsorptionsmaterial	17
Abb. 4 Verteilung des $^{131}\text{I}$ im diskriminierenden Iodsammler (anlagenfremdes $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ )	24
Abb. 5 Verteilung des $^{131}\text{I}$ im diskriminierenden Iodsammler (anlagenfremdes $^{131}\text{I}_2$ )	25
Abb. 6 Verteilung des $^{131}\text{I}$ im diskriminierenden Iodsammler (anlageneigenes $^{131}\text{I}$ )	28
Abb. 7 Verteilung des $^{131}\text{I}$ im diskriminierenden Iodsammler (anlageneigenes $^{131}\text{I}$ )	29
Abb. 8 Zeitlicher Verlauf des Dekontaminationsfaktors für anlageneigenes $^{131}\text{I}$	32
Abb. 9 Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Alterungszeiten ( $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ , Betriebsbedingungen)	34
Abb. 10 Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Alterungszeiten ( $^{131}\text{I}_2$ , Betriebsbedingungen)	36
Abb. 11 Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Alterungszeiten ( $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ , Auslegungsbedingungen)	38
Abb. 12 Beladung von 207B (KI) mit organischen Substanzen bei einer Alterungszeit von 2 Monaten	39

## 1. Einleitung

Zur Minimierung der Strahlenexposition der Bevölkerung durch Radioiod wird die Abluft deutscher Kernkraftwerke in der Regel teilweise über Iodfilter abgegeben /1/. Bei neueren deutschen Kernkraftwerken ist eine vollständige Iodfilterung der Abluft möglich. Bei Abluft-Iodfiltern ist gemäß gültiger oder in Vorbereitung befindlicher Richtlinien in der Bundesrepublik Deutschland ein minimaler Abscheidegrad von 90 bis 99 % für organisches Iod (Methyliodid) unter den zu erwartenden ungünstigsten Bedingungen einzuhalten /2, 3, 4/.

Iodfilter müssen bekanntlich überwacht werden /1, 3/, da das Rückhaltevermögen der in den Iodfiltern enthaltenen Aktivkohle im Laufe der Zeit vor allem infolge von Schadstoffeinwirkung absinkt (Alterung). Außerdem können Undichtheiten (Leckagen) auftreten.

Tabelle 1 gibt einen Überblick über die derzeitige, allerdings nicht in allen Fällen zutreffende Praxis beim Testen von Abluft-Iodfiltern in der Bundesrepublik Deutschland /5, 6/. In Vor-Ort-Tests wird die Dichtheit der Iodfilter geprüft. In Labortests wird das Rückhaltevermögen der in den Iodfiltern enthaltenen Aktivkohle durch Prüfung von gleichartig gealterter Aktivkohle aus Kontrollfiltern ermittelt.

In neuester Zeit wird teilweise von den zuständigen Behörden bei Iodfiltern, die laufend in Betrieb sind, zusätzlich eine laufende Überwachung des Abscheidegrades durch Messung der Radioiodkonzentration vor und hinter den Iodfiltern gefordert. Dabei werden diskriminierende Iodsammler eingesetzt, die eine Unterscheidung der Iodkomponenten, insbesondere von elementarem und organisch gebundenem Iod, ermöglichen /7, 8/. (Eine Messung ohne Unterscheidung der Iodkomponenten ist nicht sinnvoll, da der Abscheidegrad in Abhängigkeit von den Anteilen der Iodkomponenten schwanken würde.) Diese Methode erscheint als eine einfache, vom Betreiber des Kernkraftwerks durchführbare Methode zur laufenden Überwachung von Iodfiltern, falls die Radioiodkonzentration ausreichend hoch ist. Die Kompatibilität dieser Methode mit herkömmlichen Methoden ist allerdings weitgehend unbekannt.

Im vorliegenden Bericht wird auf Untersuchungen zur Abscheidung von  $^{131}\text{I}$ , dem bei Kernkraftwerken normalerweise radioökologisch entscheidenden Iodisotop, durch ein Anlagenraumabluftfilter eines deutschen Druckwasserreaktors (DWR 4) eingegangen. Bei diesem Iodfilter war bei Messung mit diskriminierenden Iodsammlern durch den Betreiber der Anlage eine sehr schnelle Alterung festgestellt und ein schneller Wechsel der Aktivkohle (nach einer Betriebszeit von nur wenigen Wochen) erzwungen worden. Die Untersuchungen dienten vor allem der Bestimmung der Rückhaltung von  $^{131}\text{I}$  mit verschiedenen Methoden. Damit sollten zuverlässige Daten zur Abscheidung von  $^{131}\text{I}$  durch das genannte Iodfilter gewonnen und zusätzlich einzelne Testmethoden hinsichtlich Durchführbarkeit und Aussagekraft überprüft werden. Mit den Untersuchungen sollte außerdem die Ursache für die Alterung des genannten Iodfilters geklärt werden.

Tabelle 1: Praxis beim Testen von Abluft-Iodfiltern in der Bundesrepublik Deutschland <sup>a)</sup>

Typ	Agens	Bedingungen	Häufigkeit	Kriterium für Akzeptanz <sup>b)</sup>
Vor-Ort-Test	CH <sub>3</sub> <sup>131</sup> I	Betriebsbedingungen	direkt nach Füllung <sup>c)</sup>	DF > 10 <sup>4</sup>
Labor-Test <sup>d)</sup>	CH <sub>3</sub> <sup>131</sup> I	30 °C, 98 % r. F. <sup>e)</sup> 30 °C, 70 % r. F. <sup>e)</sup>	alle 6 - 12 Monate alle 6 Monate	DF ≥ 10 <sup>3</sup> DF ≥ 10 <sup>2</sup>

a) nicht in allen Fällen zutreffend (z. B. wegen verschiedener Festlegungen der jeweils zuständigen Behörden)

b) DF: Dekontaminationsfaktor

c) in Zukunft zusätzlich im Abstand von 3 Jahren

d) Test der Aktivkohle aus Kontrollfiltern (ebenfalls Test frischer Aktivkohle vor Füllung); obere Reihe: Störfallfilter; untere Reihe: Normalbetriebsfilter

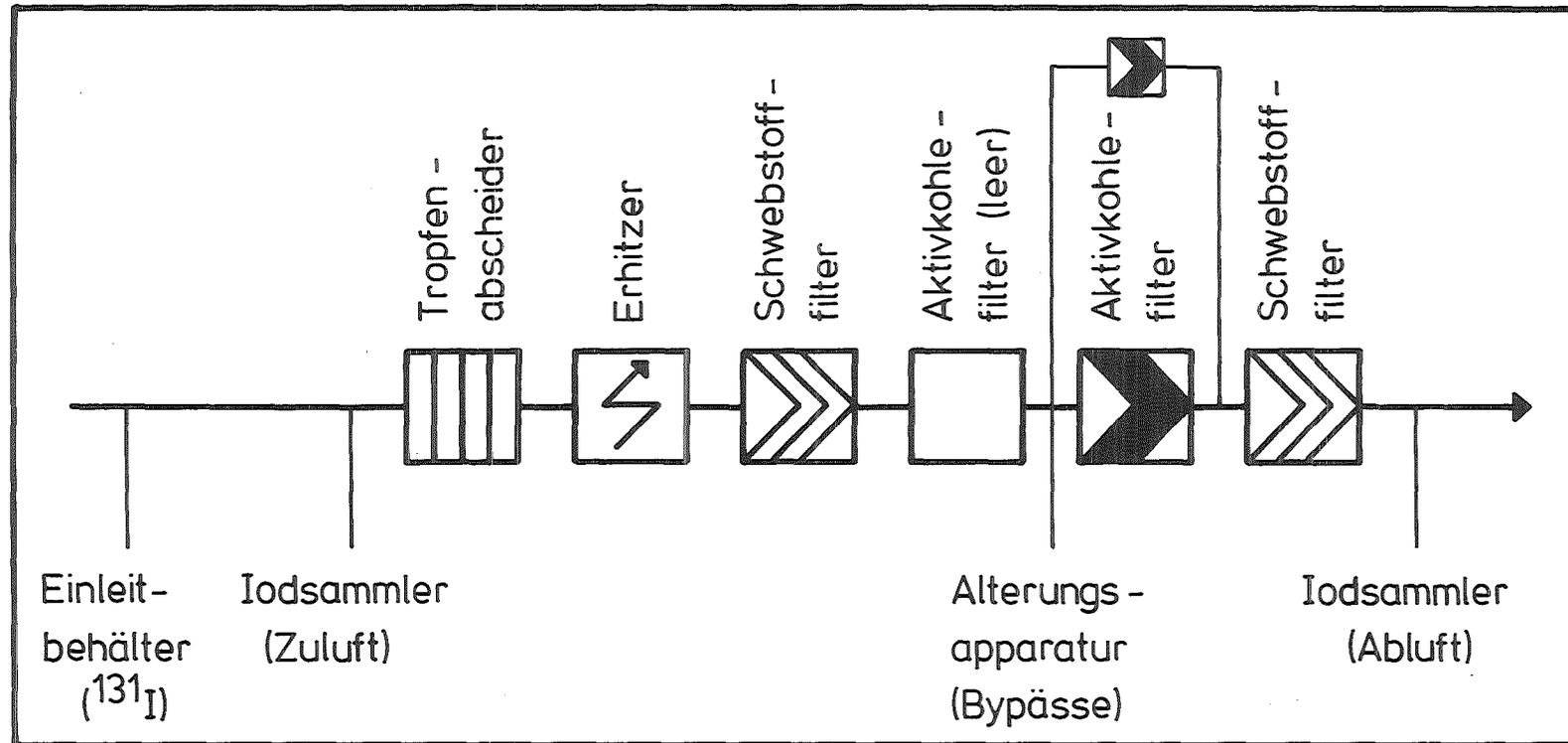
e) Auslegungsbedingungen

## 2. Daten des Iodfilters

Das Iodfilter, an dem die Untersuchungen durchgeführt wurden, dient, mit einem identischen, parallel geschalteten Iodfilter, der Filterung der Luft, die kontinuierlich zur Unterdruckhaltung aus den Anlagen- und Betriebsräumen des Reaktorgebäudes des DWR 4 abgesaugt wird. Während der Zeit der Untersuchungen war nur das untersuchte Anlagenraumabluftfilter in Betrieb. Es war laufend eingeschaltet.

Der prinzipielle Aufbau des Anlagenraumabluftfilters geht aus Abbildung 1 hervor. Dem eigentlichen Aktivkohlefilter (Hauptfilter) sind folgende Komponenten vorgeschaltet: Tropfenabscheider, Erhitzer, Schwebstofffilter und Aktivkohlefilter (Vorfilter). Letzteres besteht aus einer Filterzelle. Während der Zeit der Untersuchungen war es ausgebaut. Das Hauptfilter ist als Schüttbettfilter ausgelegt. Im vorliegenden Zusammenhang wichtige Daten des Hauptfilters sind in Tabelle 2 aufgeführt. Während der Untersuchungen war das Hauptfilter mit der Aktivkohle 207B gefüllt (Imprägnierung: KI; Korngröße: 8 - 12 mesh).

Zur Überwachung des Zustandes der Aktivkohle im Hauptfilter werden drei Kontrollfilter parallel zum Hauptfilter betrieben. (In Abbildung 1 ist nur ein Kontrollfilter eingetragen.) Auslegung und Betrieb der Kontrollfilter sind derart, daß die Verweilzeit bzw. der Luftwechsel wie im Hauptfilter ist. Die Aktivkohle, identisch mit der im Hauptfilter, ist in zwei hintereinandergeschaltete Betten unterteilt /3/.



KfK LAF II D8396

## Anlagenraumabluftfilter des DWR 4 mit Testeinrichtungen

Abb. 1<sup>+</sup>

- <sup>+</sup> 1. Aktivkohlefilter (Vorfilter) während der Untersuchungen ausgebaut;  
insgesamt 3 Kontrollfilter installiert

Tabelle 2: Daten des Anlagenraumabluftfilters <sup>a)</sup> des DWR 4

Daten	Einheit	Betriebswert <sup>b)</sup>	Auslegungswert
Temperatur	°C	ca. 30	30
rel. Luftfeuchte	%	ca. 30	70
Luftdurchsatz	m <sup>3</sup> /h	1100	1000
lin. Luftgeschwindigkeit	cm/s	57	50
Verweilzeit	s	0,53	0,60

a) Aktivkohlefilter (Aktivkohle: 207 B (KI), 8 - 12 mesh; Bettiefe: 30 cm)

b) Näherungswert während der Zeit der Untersuchungen

### 3. Experimentelles

Zunächst werden Vor-Ort-Tests und Labortests zur Bestimmung der Rückhaltung von  $^{131}\text{I}$  mit verschiedenen Methoden beschrieben. Dann wird auf weitere Untersuchungen zur Alterung eingegangen.

#### 3.1 Vor-Ort-Tests und Labortests

Tabelle 3 gibt einen Überblick über die während eines Zeitraums von insgesamt 8 Wochen durchgeführten Tests. Die Vor-Ort-Tests wurden sowohl mit anlagenfremdem (eingeleitetem)  $^{131}\text{I}$  als auch mit anlageneigenem (in der Abluft vorhandenem)  $^{131}\text{I}$  durchgeführt. Die Labortests erfolgten bei Betriebsbedingungen (30 °C, 30 % r.F.) und bei Auslegungsbedingungen (30 °C, 70 % r.F.). Die Durchführung des Tests wird in den folgenden Kapiteln im einzelnen beschrieben. Zunächst sei aber auf einiges Allgemeines eingegangen.

Die  $^{131}\text{I}$ -Rückhaltung wurde durch Dekontaminationsfaktor, Abscheidegrad und Durchlaßgrad charakterisiert. Diese Größen lassen sich folgendermaßen durch Aktivitäten ausdrücken:

$$\text{DF} = \frac{A_e}{A_d}$$

$$\text{AG} = \frac{100 \cdot A_a}{A_e} \quad ( \% )$$

$$\text{DG} = \frac{100 \cdot A_d}{A_e} \quad ( \% )$$

DF: Dekontaminationsfaktor

AG: Abscheidegrad

DG: Durchlaßgrad

$A_e$ : eingeleitete Aktivität

$A_a$ : abgeschiedene Aktivität

$A_d$ : durchgelassene Aktivität

Die genannten Größen können in identischer Weise ebenfalls durch Aktivitätskonzentrationen dargestellt werden. Der Dekontaminationsfaktor zum Beispiel kann als das Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen vor und hinter einem Filter definiert werden.

Zwischen Dekontaminationsfaktor, Abscheidegrad und Durchlaßgrad besteht folgender Zusammenhang:

$$\frac{100}{DF} = 100 - AG = DG.$$

Die Messung der Proben erfolgte bei den Vor-Ort-Tests mit Ge(Li)-Detektoren, bei den Labortests mit NaI (Tl)-Detektoren. In den Vor-Ort-Tests lag die Nachweisgrenze bei  $10^{-12}$  Ci  $^{131}\text{I}$  (Fehler von 100 % auf der 1  $\sigma$ -Vertrauensebene), in den Labor-Tests bei  $10^{-11}$  Ci  $^{131}\text{I}$  (Fehler von 100 % auf der 3  $\sigma$ -Vertrauensebene).

### 3.1.1 Vor-Ort-Tests mit anlagenfremdem $^{131}\text{I}$

Die Vor-Ort-Tests mit anlagenfremdem  $^{131}\text{I}$  (vgl. Tabelle 3) wurden weitgehend wie üblich durchgeführt /1/. In die Zuluft des Anlagenraumabluftfilters wurde  $^{131}\text{I}$  eingeleitet. Gleichzeitig wurde  $^{131}\text{I}$  aus der Zu- und Abluft mit Iodsammlern entnommen (vgl. Abb. 1). Es wurden Tests mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  und  $^{131}\text{I}_2$  durchgeführt.  $^{131}\text{I}_2$  wird in der Bundesrepublik Deutschland in Vor-Ort-Tests bisher nicht verwendet. Der Einsatz von  $^{131}\text{I}_2$  in Vor-Ort-Tests von Iodfiltern mit gealterter Aktivkohle (Wiederholungsprüfungen) ist zu erwägen.

Die Einleitung von  $^{131}\text{I}$  erfolgte in einem Abstand von 2,5 m vor der Zuluftentnahme. Dieser Abstand entspricht dem Siebenfachen der Kanalabmessungen (0,35 x 0,35 m). Die Probenahme in der Zu- und Abluft erfolgte jeweils mit zwei senkrecht zueinander angeordneten, mit Bohrungen versehenen Entnahmerohren über den gesamten Kanalquerschnitt. An jedes Entnahmerohr waren Iodsammler (und weitere benötigte Geräte) angeschlossen.

Es wurden diskriminierende Iodsammler verwendet, die, wie erwähnt, eine Unterscheidung der Iodkomponenten ermöglichen. In den üblicherweise mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  durchgeführten Vor-Ort-Tests werden diese Iodsammler nicht eingesetzt.

In Tests mit  $^{131}\text{I}_2$  ist ihr Einsatz zur Kontrolle einer eventuellen Umwandlung von  $^{131}\text{I}_2$  in organische Iodverbindungen aber sinnvoll.

Die diskriminierenden Iodsammler entsprachen dem in der Bundesrepublik Deutschland üblichen Aufbau /7, 8/. (Im Ausland werden weitgehend analog aufgebaute diskriminierende Iodsammler verwendet /9, 10, 11/). Das Prinzip der eingesetzten diskriminierenden Iodsammler geht aus Abb. 2 hervor. Die Sammlerkomponenten sind jeweils zweifach vorhanden, so daß über die  $^{131}\text{I}$ -Verteilung Schlüsse zur Trennung bzw. Abscheidung der Iodkomponenten gezogen werden können. In Abweichung von dem in Abb. 2 gezeigten Aufbau wurden (in Anströmrichtung) folgende Sammlerkomponenten verwendet :

- 1 Schwebstofffilter GF/A;
- 2 Betten Sorptionsmaterial DSM11;
- 4 Betten imprägnierte Aktivkohle CG 0,8.

Der Einsatz von 4 Aktivkohlebetten erfolgte zur besseren Erfassung von möglicherweise penetrierenden Iodverbindungen in den Messungen mit anlageneigenem  $^{131}\text{I}$  (s.u.). Daten der Sorptionsmaterialien DSM11 und CG 0,8 sind in Tabelle 4 enthalten. Wesentliche Parameter der Vor-Ort-Tests sind in Tabelle 5 aufgeführt.

Die Vor-Ort-Tests mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  wurden sowohl direkt nach Neufüllung und Inbetriebnahme des Anlagenraumabluftfilters als auch nach achtwöchigem kontinuierlichem Betrieb durchgeführt. Mit  $^{131}\text{I}_2$  wurde nur zum ersten Zeitpunkt getestet, da keine belastbaren Werte erzielt werden konnten.  $^{131}\text{I}_2$  schied sich nämlich weitgehend am Tropfenabscheider ab und desorbierte nur langsam. Selbst in der auf 20 h erhöhten Sammelzeit erfolgte keine vollständige Desorption.

### 3.1.2 Vor-Ort-Tests mit anlageneigenem $^{131}\text{I}$

Die Vor-Ort-Tests mit anlageneigenem  $^{131}\text{I}$  (vgl. Tabelle 3) erfolgten durch einwöchige Beaufschlagung von diskriminierenden Iodsammlern mit der Zu- und Abluft des Anlagenraumabluftfilters. Ort und Art der Probenahme waren

wie in den Tests mit anlagenfremdem  $^{131}\text{I}$ . Allerdings erfolgte jeweils nur eine einzige Probenahme (mit einem einzigen Entnahmerohr). Während der Sammlerperioden \* 2 bis 7 war der Aufbau der diskriminierenden Iodsammler wie in den Tests mit anlagenfremdem  $^{131}\text{I}$ . In den Sammlerperioden 1 und 8 wurden jedoch folgende Sammlerkomponenten eingesetzt:

- 2 Schwebstofffilter GF/A;
- 2 Betten Sorptionsmaterial DSM11;
- 2 Betten Sorptionsmaterial IPH;
- 2 Betten Sorptionsmaterial AC 6120;
- 2 Betten imprägnierte Aktivkohle CG 0,8.

Dieser Aufbau der diskriminierenden Iodsammler wurde gewählt, um zusätzliche Informationen über die Art der auftretenden Iodkomponenten zu erhalten. An IPH sollte die hypothetische Iodverbindung  $\text{H}^{131}\text{IO}$  abgeschieden werden, an AC 6120  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  und ähnliche leicht abscheidbare Iodverbindungen. Daten dieser Sorptionsmaterialien enthält Tabelle 4. Wesentliche Parameter der Vor-Ort-Tests sind in Tabelle 5 angegeben.

Die Vor-Ort-Tests mit anlageneigenem  $^{131}\text{I}$  wurden wöchentlich ohne Unterbrechung während achtwöchigen kontinuierlichen Betriebs des Anlagenraumabluftfilters durchgeführt. Direkt vor Aufnahme und nach Beendigung dieser Tests wurden die beschriebenen Tests mit anlagenfremdem  $^{131}\text{I}$  vorgenommen.

### 3.1.3 Labortests unter Betriebsbedingungen

Die Labortests unter Betriebsbedingungen (30 °C, 30 % r.F.; vgl. Tabelle 3) wurden mit frischer und gealterter Aktivkohle durchgeführt. Die Aktivkohle war identisch mit der im Aktivkohlefilter verwendeten (207B (KI), 8 - 12 mesh). Die Alterung erfolgte in Bypässen des Aktivkohlefilters (vgl. Abbildung 1). Aufbau und Betrieb der Bypässe entsprachen dem Aufbau und Betrieb des Aktivkohlefilters. Es wurden drei parallele Bypässe betrieben, um die Rückhaltung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  und  $^{131}\text{I}_2$  bestimmen und weitere Untersuchungen zur Alterung

---

\* Sammlerperioden sind aneinandergrenzende, fortlaufend nummerierte Meßzeiträume von einwöchiger Dauer.

durchführen zu können (s.u.). Die Bypässe wurden kontinuierlich während der achtwöchigen Untersuchungszeit (Zeit der Vor-Ort-Messungen) betrieben.

In den Labortests wurden die Bypassstrecken unverändert eingesetzt, d.h. die Schichtung der Aktivkohle wurde nicht verändert. Damit entsprach der geometrische Verlauf der Alterung dem im Aktivkohlefilter. Die Labortests wurden mit der in Abbildung 3 schematisch wiedergegebenen Apparatur durchgeführt. Wesentliche Parameter der Labortests zeigt Tabelle 6. Weitere Angaben zur Durchführung der Labortests finden sich in der Literatur /1/.

#### 3.1.4 Labortests unter Auslegungsbedingungen

Die Labortests unter Auslegungsbedingungen (30 °C, 70 % r.F.; vgl. Tabelle 3) erfolgten ebenfalls mit frischer und gealterter Aktivkohle. Sie entsprach wieder der im Aktivkohlefilter eingesetzten Aktivkohle. Die gealterte Aktivkohle stammte aus Kontrollfiltern des Aktivkohlefilters (vgl. Abbildung 1). Das erste Kontrollfilter wurde nach fünf Wochen ausgebaut, das zweite Kontrollfilter nach acht Wochen.

Als Testmedium diente  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ . Die Schichtung der Aktivkohle wurde in der üblichen Weise verändert: Aus der gemischten Aktivkohle des vorderen Bettes des Kontrollfilters wurden die vorderen Testbetten hergestellt (Bettiefe 0 bis 15 cm), aus der gemischten Aktivkohle des hinteren Bettes des Kontrollfilters die hinteren Testbetten (Bettiefe 15 bis 30 cm). Abgesehen von einigen aus Tabelle 6 hervorgehenden Unterschieden wurden die Tests unter Auslegungsbedingungen ansonsten wie die Tests unter Betriebsbedingungen durchgeführt.

#### 3.2 Weitere Untersuchungen

Wie erwähnt, sollte im Rahmen der Untersuchungen auch die Ursache für die Alterung der im Anlagenraumabluftfilter enthaltenen Aktivkohle geklärt werden. Die Alterung von Aktivkohle beruht bei Betrieb eines Iodfilters

bekanntlich weitgehend auf Adsorption von organischen Substanzen, insbesondere von Lösungsmitteln. Weiterhin kann die Adsorption von anorganischen Substanzen, wie Schwefeldioxid und Stickoxiden, von Bedeutung sein. Letztere machte sich durch ein Sinken der Alkalinität der Aktivkohle bemerkbar /12, 5, 13, 14, 15/. (Die Alterung von Aktivkohle bei sachgerechter Lagerung ist relativ gering /16, 17, 18/).

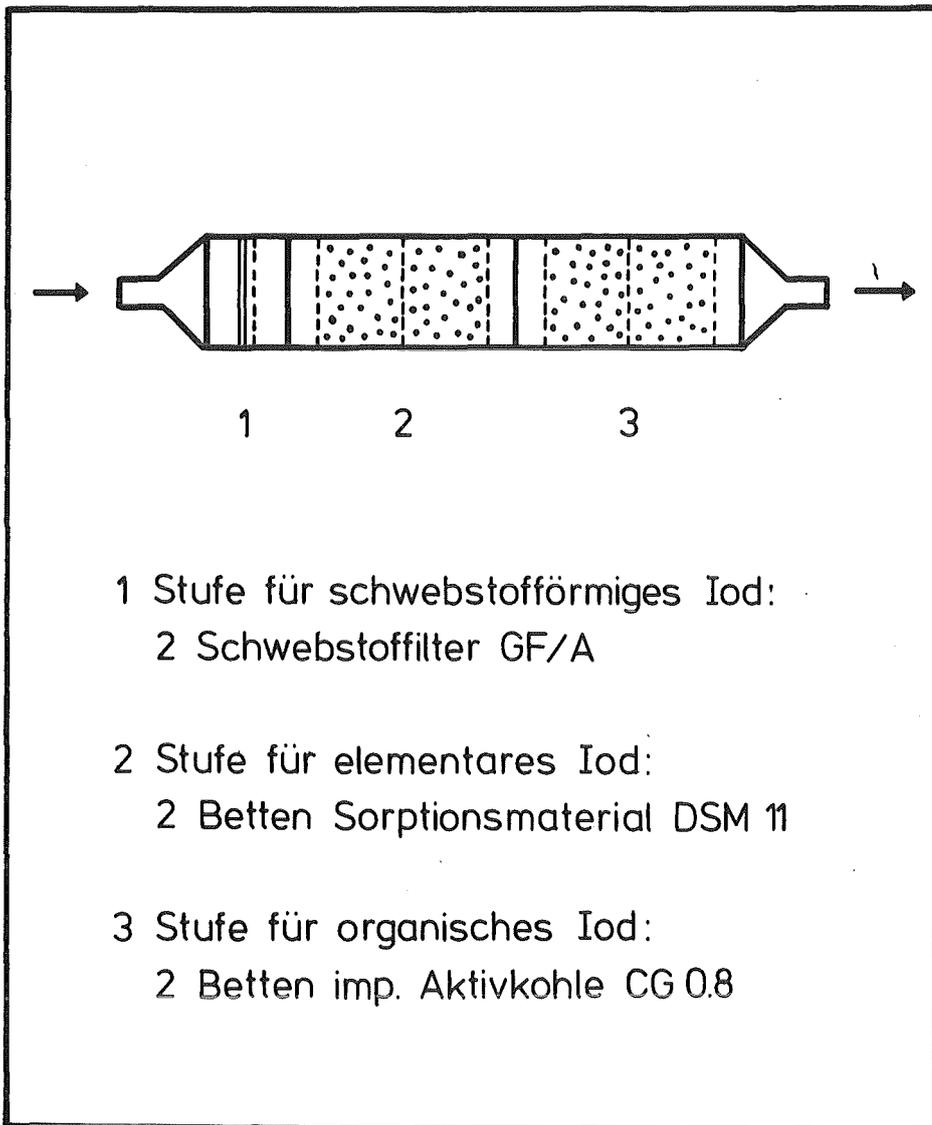
Die Untersuchungen zur Klärung der Alterung wurden an Aktivkohlen aus einem der Bypässe des Aktivkohlefilters durchgeführt (vgl. Kap. 3.1.3). Es wurde die Beladung der Aktivkohle mit organischen Substanzen und - über die Alkalinität - mit anorganischen Substanzen in Abhängigkeit von der Bettiefe bestimmt. Im ersten Fall wurden die  $\text{CCl}_4$ -Extrakte der Aktivkohle aus den Bypassbetten gaschromatographisch analysiert /19/. Im zweiten Fall wurde der pH-Wert der entsprechenden  $\text{H}_2\text{O}$ -Extrakte ermittelt /20/.

Tabelle 3: Durchgeführte Tests (Anlagenraumabluft des DWR 4)

Typ	Agens	Bedingungen	Zeit der Durchführung <sup>a)</sup>
Vor-Ort-Test	CH <sub>3</sub> <sup>131</sup> I; <sup>131</sup> I <sub>2</sub> (anlagenfremd)	ca. 30 °C, 30 % r. F.	nach Inbetriebnahme und nach kontinuierlichem Betrieb <sup>b)</sup> des Filters
	CH <sub>3</sub> <sup>131</sup> I; <sup>131</sup> I <sub>2</sub> u.a. (anlageneigen)	ca. 30 °C, 30 % r. F.	wöchentlich während kontinuierlichem Betrieb des Filters
Labor-Test	CH <sub>3</sub> <sup>131</sup> I; <sup>131</sup> I <sub>2</sub>	30 °C, 30 % r. F.	vor und nach Alterung in Bypass
	CH <sub>3</sub> <sup>131</sup> I	30 °C, 70 % r. F.	vor und nach Alterung in Kontrollfilter

a) Zeitraum insgesamt 2 Monate (8 Wochen)

b) Test mit <sup>131</sup>I<sub>2</sub> nur nach Inbetriebnahme des Filters



## Diskriminierender Iodsammler

Abb. 2 <sup>+</sup>

<sup>+</sup> Aufbau für durchgeführte Untersuchungen  
abgeändert; vgl. Text und Abb. 4 - 7

Tabelle 4: In den Iodfiltern eingesetzte Sorptionsmaterialien

Name	Grundmaterial	Größe	Imprägnans	Lieferant	Hauptverwendung	Literatur
DSM 11	Kieselsäure	1 - 2 mm (Kugeln)	KI	Süd-Chemie (München)	spezifische Abscheidung von I <sub>2</sub>	7, 8, 21
IPH	aktiviertes Aluminium- oxid	20 - 40 mesh	4-Iodo- phenol	Science Applications (Rockville, Md., USA)	spezifische Abscheidung von "HI0" <sup>a)</sup>	22, 9, 21
AC 6120	Kieselsäure	1 - 2 mm (Kugeln)	Ag NO <sub>3</sub>	Süd-Chemie (München)	unspezifische Abscheidung <sup>b)</sup> von I	23, 24, 25, 21
CG 0,8	Aktivkohle	0,8 mm (Stäbchen)	KI	Norit Adsorption (Düsseldorf)	unspezifische Abscheidung von I	1, 7, 8, 21

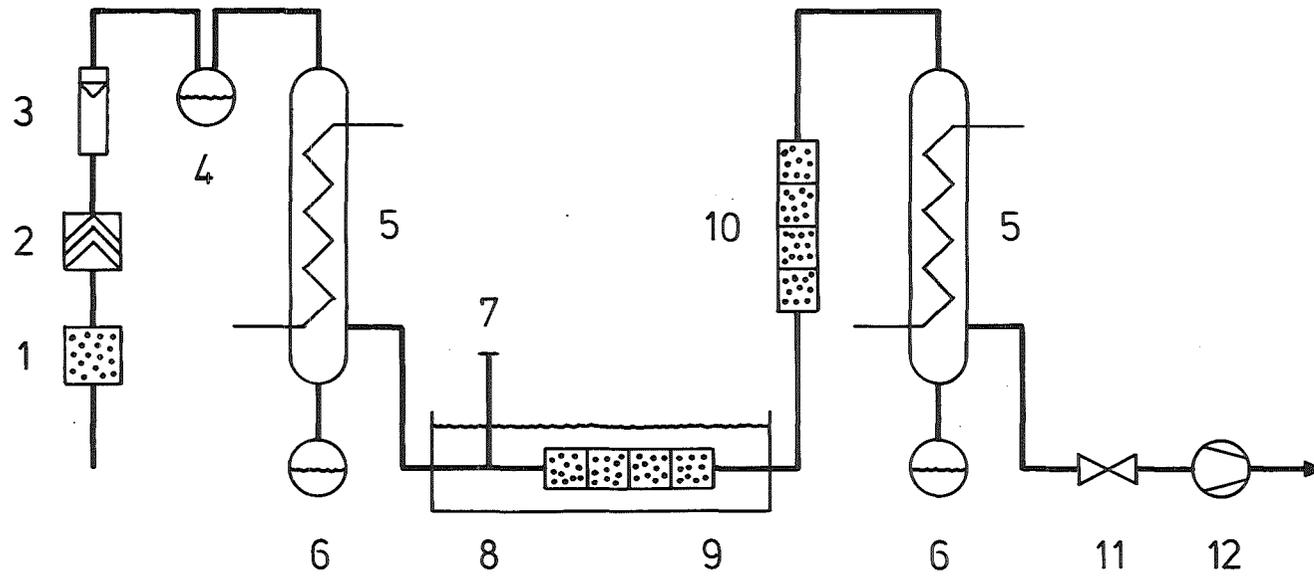
a) Vorabscheidung von I<sub>2</sub> erforderlich

b) Abscheidung gering bei gewissen organischen Iodverbindungen  
(z. B. ringsubstituierte Iodverbindungen wie Iodbenzol)

Tabelle 5: Parameter der Vor-Ort-Tests

Parameter	Einheit	Wert
Temperatur	°C	ca. 30
rel. Luftfeuchte	%	ca. 30
Luftdurchsatz	m <sup>3</sup> /h	3,6
lin. Luftgeschwindigkeit	cm/s	50
Bettiefe pro Sammlerstufe a), b)	cm	7,5 bzw. 15
Verweilzeit pro Sammlerstufe b)	s	0,15 bzw. 0,30
Sammelzeit c)	h	ca. 2 bzw. 20 bzw. 168
eingeleitetes <sup>131</sup> I d)	mCi	ca. 1
eingeleitetes <sup>127</sup> I d)	mg	ca. 1

- a) unterteilt in Abschnitte von 3,75 cm
- b) 15 cm bzw. 0,3 s in der letzten Sammlerstufe  
(Sammelperioden 2 - 7)
- c) 2 h in Tests mit anlagenfremdem CH<sub>3</sub><sup>131</sup>I,  
20 h in Test mit anlagenfremdem <sup>131</sup>I<sub>2</sub>,  
168 h in Tests mit anlageneigenem <sup>131</sup>I
- d) in Tests mit anlagenfremdem <sup>131</sup>I  
(Einleitzeit: ca. 1 h)



### Apparatur zur Prüfung von IodSORPTIONSMATERIAL

Abb. 3

- |                     |                     |                      |
|---------------------|---------------------|----------------------|
| 1 Aktivkohlefilter  | 5 Kühler            | 9 Testbetten         |
| 2 Schwebstofffilter | 6 Kondensatbehälter | 10 Sicherheitsbetten |
| 3 Durchflußmesser   | 7 Einleitrohr       | 11 Ventil            |
| 4 Verdampfer        | 8 Wasserbad         | 12 Pumpe             |

Tabelle 6: Parameter der Labortests

Parameter	Einheit	Wert a)
Temperatur	°C	30
rel. Luftfeuchte	%	30 bzw. 70
Luftdurchsatz	m <sup>3</sup> /h	1 bzw. 0,88
lin. Luftgeschwindigkeit	cm/s	57 bzw. 50
Vorströmzeit (Vorbefeuchtungszeit)	h	1 bzw. $\geq 16$
Einleitzeit	h	1
Nachströmzeit (Spülzeit)	h	2
Bettiefe b)	cm	30
Verweilzeit	s	0,53 bzw. 0,6
eingeleitetes <sup>131</sup> I	mCi	ca. 0,1
eingeleitetes <sup>127</sup> I	mg	ca. 1

- a) erster Wert: Test bei Betriebsbedingungen;  
 zweiter Wert: Test bei Auslegungsbedingungen des Anlagenraum-  
 abluftfilters (vgl. Tabelle 2)
- b) unterteilt in Abschnitte von 1,25 oder 2,5 cm

## 4. Präsentation der Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Untersuchungen im wesentlichen nur vorgestellt. Die eigentliche Diskussion der wichtigsten Ergebnisse erfolgt in Kap. 5.

### 4.1 Vor-Ort-Tests und Labortests

#### 4.1.1 Vor-Ort-Tests mit anlagenfremdem $^{131}\text{I}$

Zunächst sei auf die in den Tests mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  und  $^{131}\text{I}_2$  festgestellte Verteilung des  $^{131}\text{I}$  in den diskriminierenden Iodsammlern eingegangen. Abb. 4 gibt eine typische Verteilung für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  in der Zu- und Abluft wieder. Erwartungsgemäß wurde fast das gesamte  $^{131}\text{I}$  im ersten CG 0,8-Bett abgeschieden. Eine typische Verteilung für  $^{131}\text{I}_2$  in der Zuluft zeigt Abb. 5. Fast das gesamte  $^{131}\text{I}$  wurde im ersten DSM11-Bett zurückgehalten. Dieser Befund entspricht ebenfalls der Erwartung. Er zeigt, daß keine nennenswerte Umwandlung von  $^{131}\text{I}_2$  in organische Iodverbindungen stattfand. (Die geringe Abscheidung von  $^{131}\text{I}$  am Schwebstofffilter GF/A dürfte auf Adsorption von  $^{131}\text{I}_2$  an diesem beruhen.)

Die in den Tests mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  und  $^{131}\text{I}_2$  festgestellten  $^{131}\text{I}$ -Konzentrationen in der Zu- und Abluft, nach Inbetriebnahme und nach achtwöchigem kontinuierlichem Betrieb des Anlagenraumabluftfilters, sind in Tabelle 7 angegeben. Die Zuluftwerte entsprachen bei  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  den theoretischen Werten, bei  $^{131}\text{I}_2$  lagen sie um ca. 50 % niedriger. Im letzten Fall fand also eine deutliche Adsorption, z. B. an Kanalwänden, statt. Die Abluftwerte waren entsprechend der  $^{131}\text{I}$ -Rückhaltung im Iodfilter sehr gering. Bei  $^{131}\text{I}_2$  wurde wegen der Adsorption am Tropfenabscheider die Nachweisgrenze nicht überschritten.

Aus Tabelle 7 geht hervor, daß die bei verschiedener Position des Entnahmerohrs gemessenen  $^{131}\text{I}$ -Konzentrationen relativ gut übereinstimmten. Bei  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  betrug die Abweichungen, abgesehen von einem Fall, ca. 10 %, bei  $^{131}\text{I}_2$  ca. 30 %.

Die aus den  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ -Konzentrationen errechneten Dekontaminationsfaktoren des Anlagenraumabluftfilters sind in Tabelle 8 verzeichnet. Nach Inbetriebnahme betrug der Dekontaminationsfaktor für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  ca.  $10^5$ , nach achtwöchigem Betrieb ca.  $10^4$ . Für  $^{131}\text{I}_2$  können keine Werte angegeben werden.

Es sei erwähnt, daß ein Dekontaminationsfaktor für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  von  $\geq 10^5$  als typisch für ein frisch gefülltes Tiefbettfilter angesehen werden kann /5, 6/.

#### 4.1.2 Vor-Ort-Tests mit anlageneigenem $^{131}\text{I}$

Zuerst sei wieder auf die Verteilung des  $^{131}\text{I}$  in den diskriminierenden Iodsammlern eingegangen. Abbildung 6 gibt eine typische Verteilung für die Zu- und Abluft in den diskriminierenden Iodsammlern wieder, die in den Sammelperioden 2 bis 7 eingesetzt wurden. In der Zuluft wurde das meiste  $^{131}\text{I}$  auf dem ersten DSM11-Bett und auf dem ersten CG 0,8-Bett festgestellt. Die  $^{131}\text{I}$ -Verteilung entspricht größenordnungsmäßig gleichen Anteilen von  $^{131}\text{I}_2$  und  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ . In der Abluft fand sich das  $^{131}\text{I}$  weitgehend auf den CG 0,8-Betten wieder. Der Anteil des  $^{131}\text{I}_2$  war also sehr klein. Aus der Art der  $^{131}\text{I}$ -Verteilung auf die CG 0,8-Betten folgt, daß das organische  $^{131}\text{I}$  relativ penetrierend war, d. h. nur zum Teil aus  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  bestand.

Abbildung 7 zeigt eine typische  $^{131}\text{I}$ -Verteilung für die Zu- und Abluft in den diskriminierenden Iodsammlern, die in den Sammelperioden 1 und 8 verwendet wurden. In der Zuluft wurde das meiste  $^{131}\text{I}$  auf dem ersten DSM 11-Bett und auf dem ersten AC 6120-Bett gefunden. Auf IPH und CG 0,8 wurde sehr wenig  $^{131}\text{I}$  festgestellt. Daraus folgt, daß  $^{131}\text{I}_2$  und  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  in großen Anteilen auftreten, " $\text{H}^{131}\text{IO}$ " und penetrierende organische Iodverbindungen dagegen höchstens in minimalen Anteilen. In der Abluft wurde wenig oder kein  $^{131}\text{I}$  auf DSM 11 und IPH festgestellt, viel  $^{131}\text{I}$  dagegen auf AC 6120 und insbesondere auf CG 0,8. Daraus folgen minimale Anteile an  $^{131}\text{I}_2$  und " $\text{H}^{131}\text{IO}$ " sowie große Anteile von organischem  $^{131}\text{I}$ , insbesondere von penetrierendem organischem  $^{131}\text{I}$ .

Die geschilderten, die  $^{131}\text{I}$ -Verteilung betreffenden Befunde sind in Übereinstimmung mit früheren, in der Anlagenraumabluft eines anderen Druckwasserreaktors erzielten Ergebnissen /8, 21/.

Die in den Tests mit anlageneigenem  $^{131}\text{I}$  während der einzelnen Sammelperioden gemessenen  $^{131}\text{I}$ -Konzentrationen und Anteile der  $^{131}\text{I}$ -Komponenten in der Zu- und Abluft sind in Tabelle 9 aufgeführt. Die Konzentrationen und Anteile waren sowohl in der Zuluft als auch in der Abluft relativ konstant. (Die in der Abluft während der Sammelperiode 1 erzielten Ergebnisse sind nicht belastbar.) Der Anteil des organischen  $^{131}\text{I}$  überwog in der Zuluft etwas, in der Abluft bei weitem. Der Anteil des schwebstoffförmigen  $^{131}\text{I}$  war unbedeutend.

Die aus den Konzentrationen des organischen und elementaren  $^{131}\text{I}$  errechneten Dekontaminationsfaktoren sind in Tabelle 10 und Abb. 8 wiedergegeben. Der Dekontaminationsfaktor für organisches  $^{131}\text{I}$  wies relativ geringe Schwankungen auf. Er lag größenordnungsmäßig bei  $10^3$ . Dagegen schwankte der Dekontaminationsfaktor für elementares  $^{131}\text{I}$  relativ stark zwischen  $10^4$  und ca.  $10^5$ . Die Schwankungen beim elementaren  $^{131}\text{I}$  dürften weitgehend auf Meßungenauigkeiten infolge der geringen Konzentrationen hinter dem Iodfilter beruhen.

Die Konzentrationen, Anteile und Dekontaminationsfaktoren für die  $^{131}\text{I}$ -Komponenten stimmen weitgehend mit denen überein, die in Anlagenraumabluftströmen bzw. für Anlagenraumabluftfilter anderer Druckwasserreaktoren ermittelt wurden /26, 27/.

#### 4.1.3 Labortests unter Betriebsbedingungen

Die Abscheidegrade der im Aktivkohlefilter verwendeten Aktivkohle 207B (KI) für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  unter Betriebsbedingungen, bei verschiedenen Bettiefen und Alterungszeiten, sind in Tabelle 11 verzeichnet. Abb. 9 zeigt die entsprechenden Durchlaßgrade. Die Alterung ist deutlich zu erkennen. Bei der frischen Aktivkohle ergab sich in der gewählten Darstellung der übliche lineare Abfall des Durchlaßgrades mit steigender Bettiefe /28, 29/. Bei der gealterten Aktivkohle dagegen ergab sich ein nichtlinearer, bei geringer Bettiefe flacher Verlauf der Durchlaßkurve. Die Durchlaßgrade der frischen und gealterten Aktivkohle unterschieden sich bei gleicher Bettiefe um etwa eine bis zwei Größenordnungen.

Der bis zu einer Bettiefe von 5 cm besonders flache Verlauf der Durchlaßkurve bei der gealterten Aktivkohle entspricht einer besonders starken Alterung bis zu dieser Bettiefe. Das geht auch deutlich aus den differentiellen Abscheidegraden, d. h. aus den Abscheidegraden der Teilbetten, hervor (Tab. 11). Die Abscheidegrade der ersten Teilbetten lagen bei der gealterten Aktivkohle weit unter dem bei der frischen Aktivkohle festgestellten Wert von ca. 90 %. Dagegen näherten sich die Abscheidegrade der hinteren Teilbetten sukzessive diesem Wert. Bei den hinteren Teilbetten war die Alterung also minimal. Ähnliche Befunde finden sich in der Literatur /5, 13, 14, 15/.

Extrapoliert man die Ergebnisse auf eine Bettiefe von 30 cm, d. h. auf die Tiefe der Aktivkohle im Anlagenraumabluftfilter, so ergibt sich für frische und gealterte Aktivkohle ein Dekontaminationsfaktor für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  von größer als  $10^6$ .

Die entsprechenden Abscheidegrade und Durchlaßgrade für  $^{131}\text{I}_2$  finden sich in Tabelle 12 bzw. Abb. 10. Die Alterung ist ebenfalls deutlich sichtbar. Die Durchlaßgrade der frischen und gealterten Aktivkohle unterschieden sich bei gleicher Bettiefe ebenfalls um etwa eine bis zwei Größenordnungen. Der Beginn der Abflachung in den Durchlaßkurven bei einer Bettiefe von 2,5 bis 5 cm kann auf  $^{131}\text{I}$  in nichtelementarer Form zurückgeführt werden. Unter den vorliegenden Bedingungen wurde  $^{131}\text{I}_2$  bei einer Bettiefe von 5 cm auch nach Alterung also praktisch vollständig abgeschieden. Die Ergebnisse sind in Übereinstimmung mit Befunden analoger Untersuchungen /5, 6, 26, 30/.

#### 4.1.4 Labortests unter Auslegungsbedingungen

Die Abscheidegrade der Aktivkohle 207B (KI) für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  unter Auslegungsbedingungen, bei verschiedenen Bettiefen und Alterungszeiten, sind in Tabelle 13 enthalten. Abb. 11 gibt die entsprechenden Durchlaßgrade wieder. Auch hier ist die Alterung deutlich zu erkennen. Allerdings ergab sich auch bei der gealterten Aktivkohle eine lineare Durchlaßkurve. Die Alterung erscheint damit als unabhängig von der Bettiefe. Das dürfte damit zusammenhängen, daß die Schichtung der Aktivkohle nicht der Originalschichtung entsprach. Außerdem kann nicht ausgeschlossen werden, daß während der relativ langen Vorbefeuchtungszeit ( $\geq 16$  h) die Aktivkohle teilweise regeneriert wurde. Ein linearer Verlauf der Durchlaßkurve für Aktivkohle aus Kontrollfiltern wird bei der vorliegenden Testmethode meistens beobachtet.

Bei einer Bettiefe von 30 cm entsprechen die erzielten Ergebnisse bei frischer Aktivkohle einem Dekontaminationsfaktor von größer als  $10^6$  und bei gealterter Aktivkohle einem Dekontaminationsfaktor von  $10^4$  bis  $10^5$ .

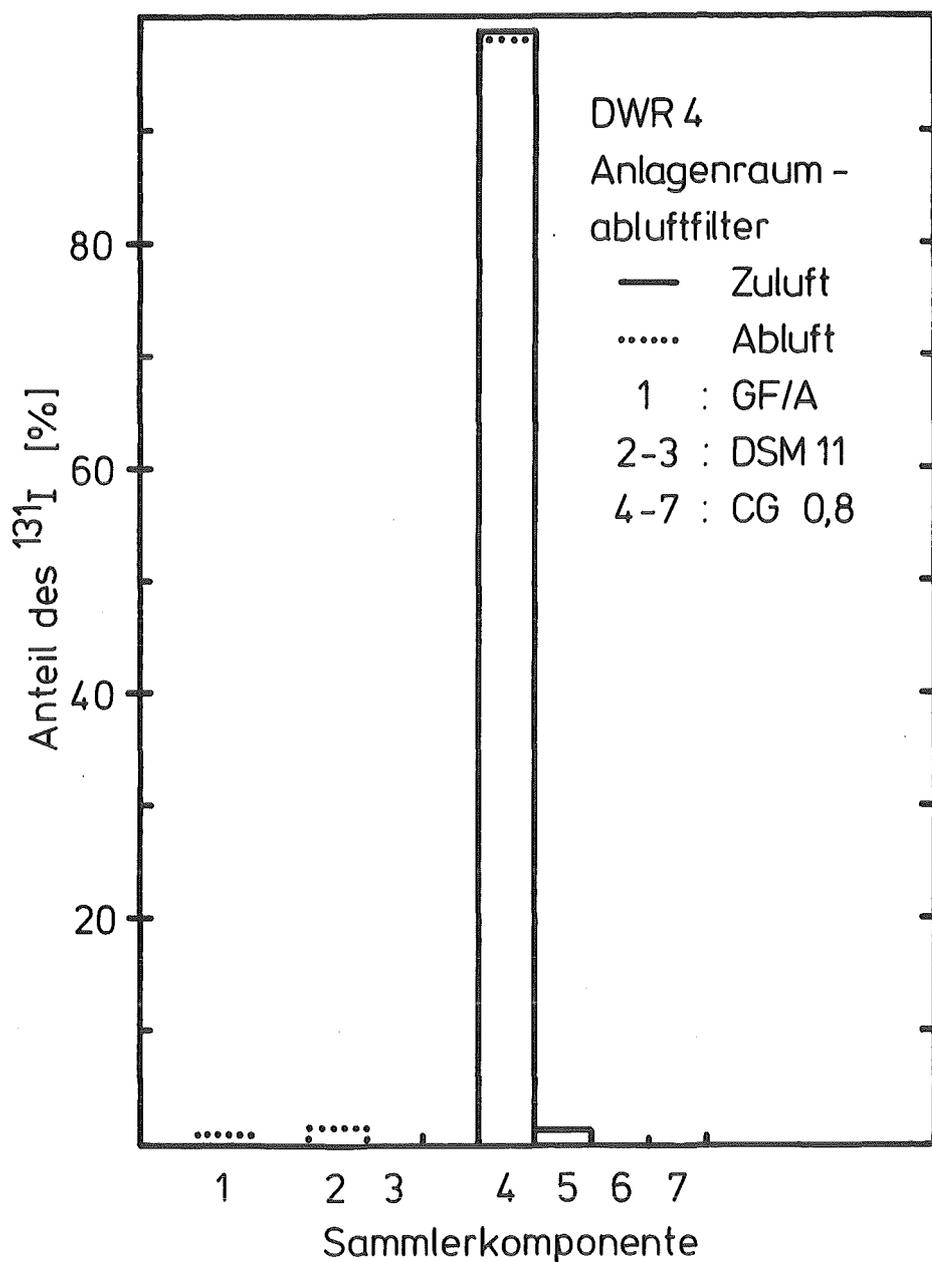
Die genannten, die gealterte Aktivkohle betreffenden Ergebnisse gelten für die Aktivkohle aus dem Kontrollfilter, das nach acht Wochen ausgebaut wurde (zweites Kontrollfilter). Es ist zu erwähnen, daß bei der Aktivkohle aus dem Kontrollfilter, das nach fünf Wochen ausgebaut wurde (erstes Kontrollfilter), unter gleichen Bedingungen im Rahmen der Meßgenauigkeit die gleichen Ergebnisse erzielt wurden (s. Kap. 5).

#### 4.2 Weitere Untersuchungen

Die weiteren Untersuchungen bezogen sich, wie geschildert, auf die Beladung der Aktivkohle aus einem der Bypässe mit organischen Substanzen und auf die Alkalinität. Abb. 12 zeigt die Beladung der Aktivkohle mit organischen Substanzen in Abhängigkeit von der Bettiefe. (Die Beladung wurde auf die beladene Aktivkohle berechnet.) Es wird zwischen Substanzen hoher und niedriger Flüchtigkeit unterschieden. Erstere bestanden insbesondere aus Xylol und Nonan, letztere aus Decan und Dodecan. Die leichtflüchtigen Stoffe wurden vor allem in einer Bettiefe zwischen 5 und 15 cm beobachtet. Bei einer Bettiefe von größer als 20 cm wurde keine Beladung mit leichtflüchtigen Stoffen nachgewiesen. Die schwerflüchtigen Stoffe dagegen wurden ausschließlich in einer Bettiefe zwischen 0 und 10 cm festgestellt.

Es ist darauf zu verweisen, daß in der Anlagenraumabluft eines anderen Druckwasserreaktors bei gleicher Beaufschlagungszeit eine weitgehend gleiche Beladung der Aktivkohle mit organischen Substanzen festgestellt wurde, und zwar hinsichtlich Art, Menge und Verteilung der Substanzen /5, 13, 14/.

Zu den pH-Wert Messungen im  $H_2O$ -Extrakt der Aktivkohle ist folgendes zu sagen: Bei der gealterten Aktivkohle wurde praktisch über die gesamte Bettiefe wie bei der frischen Aktivkohle ein pH-Wert von 8,0 festgestellt. Nur bei einer Bettiefe zwischen 0 und 5 cm wurde ein geringfügig kleinerer Wert, nämlich 7,7, ermittelt. Die Adsorption von anorganischen, den pH-Wert senkenden Substanzen war also sehr gering. In der Literatur wird über ein Absinken des pH-Wertes der vorderen Aktivkohleschicht bis weit in den sauren Bereich berichtet /15/.

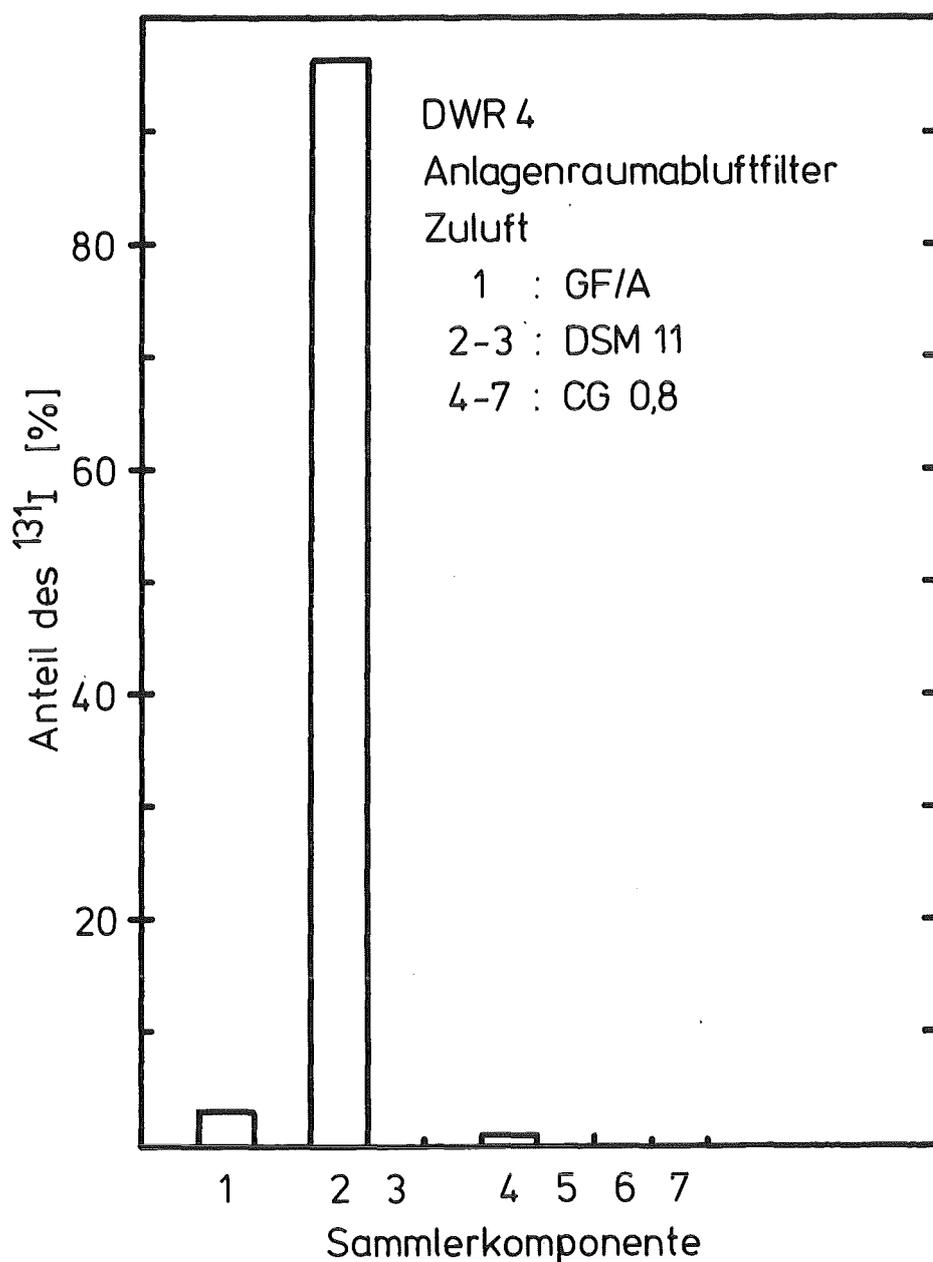


KIK LAF II D8397

Verteilung des  $^{131}\text{I}$  im diskriminierenden  
Iodsammler (anlagenfremdes  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ )

Abb. 4 <sup>+</sup>

<sup>+</sup> nach Sammelperiode 8  
(nach achtwöchigem Betrieb  
des Iodfilters.)



KfK LAF II D8398

Verteilung des  $^{131}\text{I}$  im diskriminierenden  
Iodsammler (anlagenfremdes  $^{131}\text{I}_2$ )

Abb. 5<sup>+</sup>

<sup>+</sup> vor Sammlerperiode 1  
(direkt nach Inbetriebnahme  
des Iodfilters)

Tabelle 7:  $^{131}\text{I}$ -Konzentration in der Zuluft und Abluft des Anlagenraumabluftfilters (anlagenfremdes  $^{131}\text{I}$ )

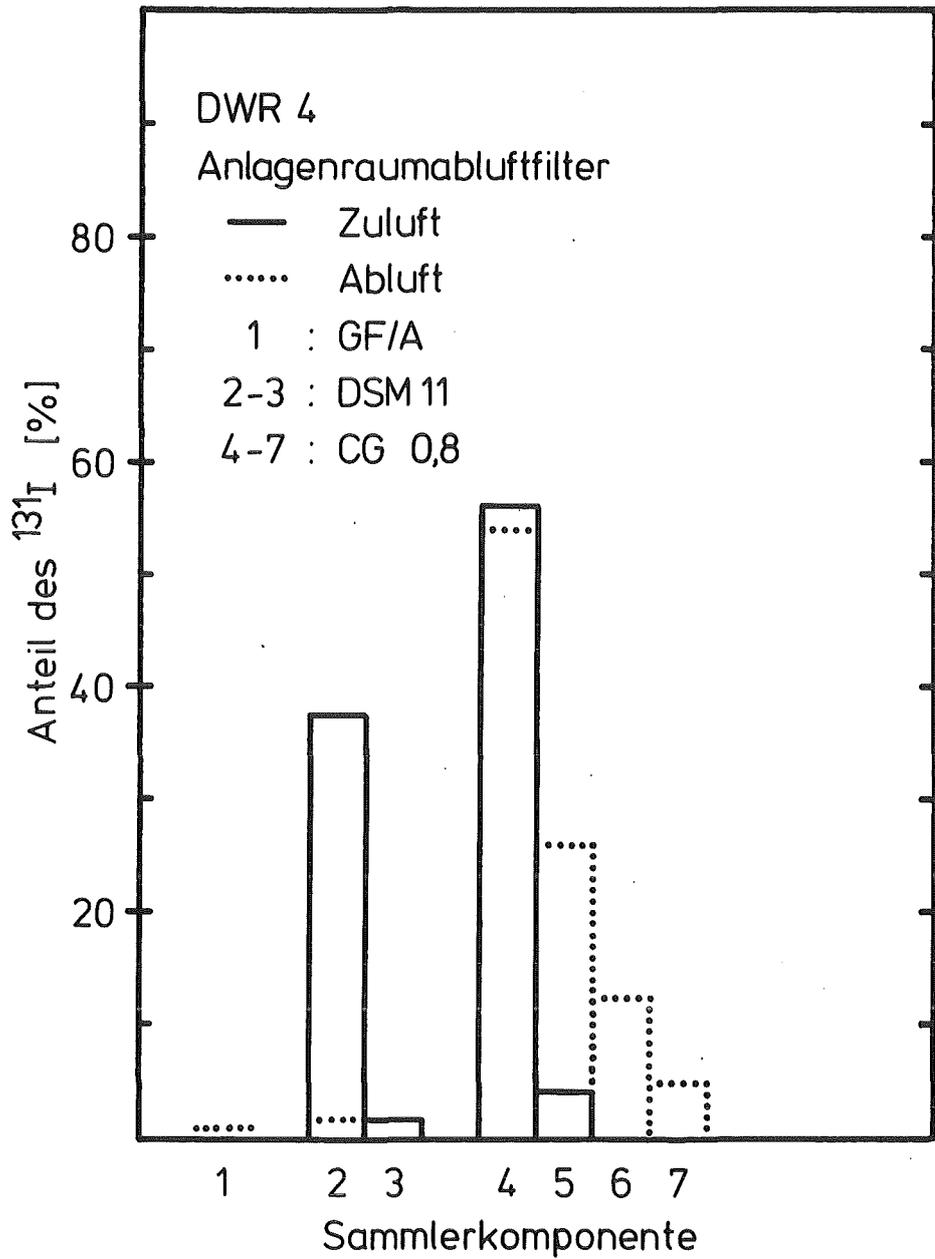
Zeit der Messung <sup>a)</sup>	Position des Entnahmerohrs	Zuluft		Abluft	
		$^{131}\text{I}$ -Konzentration ( $\text{Ci}/\text{m}^3$ ) <sup>b)</sup>			
		$\text{CH}_3\text{I}$	$\text{I}_2$	$\text{CH}_3\text{I}$	$\text{I}_2$
vor Sammelperiode 1 <sup>c)</sup>	vertikal	1,0 ( -6 )	3,0 ( -8 )	1,5 (-12)	< 1,7 (-14) <sup>d)</sup>
	horizontal	9,9 ( -7 )	4,2 ( -8 )	5,8 (-12)	< 1,7 (-14) <sup>d)</sup>
nach Sammelperiode 8 <sup>e)</sup>	vertikal	1,4 ( -6 )	- f)	1,2 (-10)	- f)
	horizontal	1,3 ( -6 )	- f)	1,1 (-10)	- f)

- a) Sammelperioden: aneinandergrenzende, fortlaufend nummerierte Meßzeiträume von einwöchiger Dauer
- b) Zehnerpotenzen durch Exponenten in Klammern wiedergegeben
- c) direkt nach Neufüllung und Inbetriebnahme des Anlagenraumabluftfilters
- d) kein  $^{131}\text{I}$  festgestellt (Absorption von  $^{131}\text{I}$  an vorgeschaltetem Tropfenabscheider)
- e) nach achtwöchigem kontinuierlichem Betrieb des Anlagenraumabluftfilters
- f) kein Test durchgeführt

Tabelle 8: Dekontaminationsfaktor des Anlagenraumabluftfilters  
für anlagenfremdes  $^{131}\text{I}$  ( $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ ) a)

Zeit der Messung	Dekontaminationsfaktor		
	Mittelwert b)	Maximalwert c)	Minimalwert d)
vor Sammel- periode 1	2,8 (5)	6,8 (5)	1,7 (5)
nach Sammel- periode 8	1,2 (4)	1,3 (4)	1,1 (4)

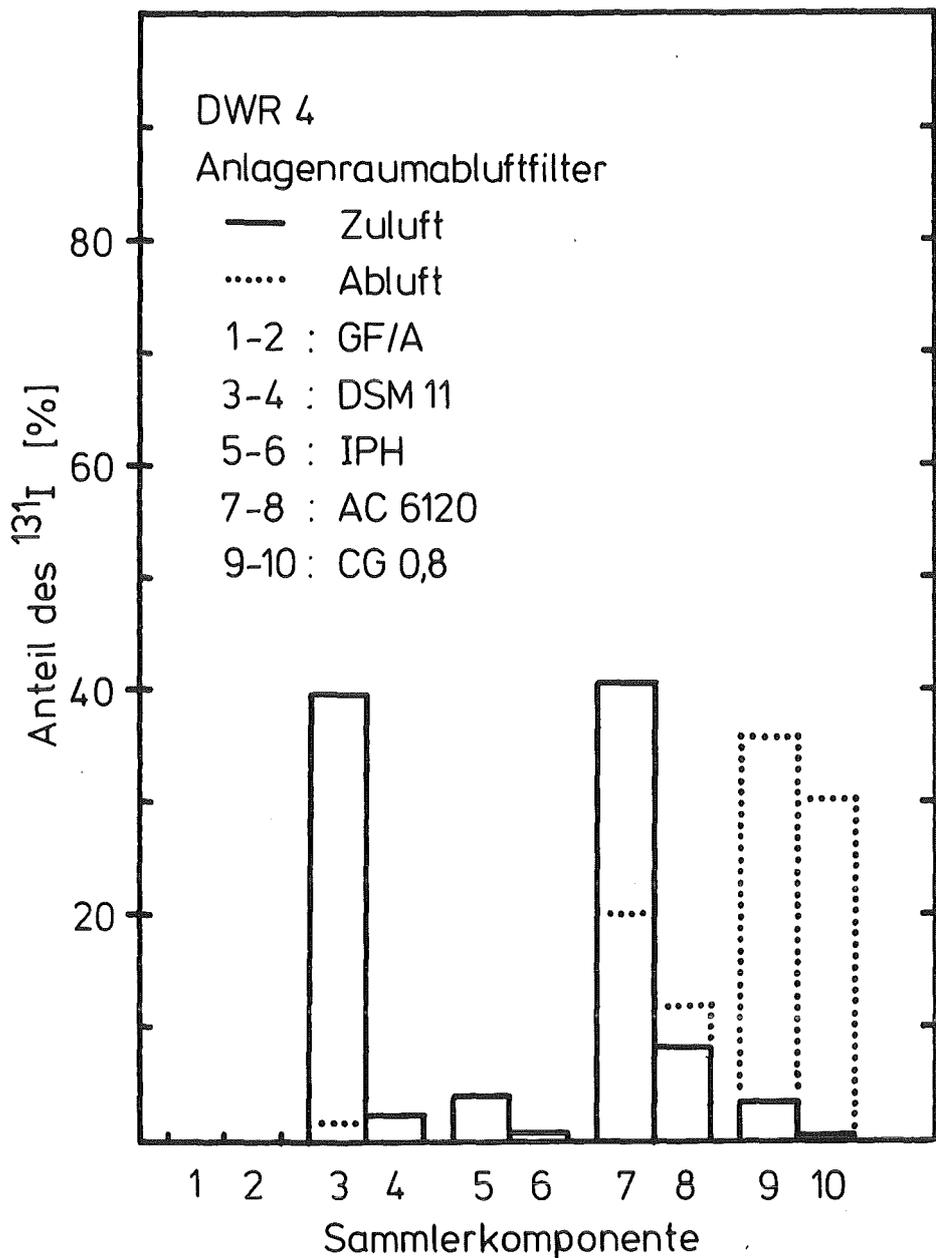
- a) entsprechend den Werten der Tabelle 7
- b) errechnet aus den mittleren Konzentrationen
- c) errechnet aus der höchsten Konzentration in der Zuluft und der niedrigsten Konzentration in der Abluft
- d) errechnet aus der niedrigsten Konzentration in der Zuluft und der höchsten Konzentration in der Abluft



Verteilung des  $^{131}\text{I}$  im diskriminierenden Iodsammler (anlageneigenes  $^{131}\text{I}$ )

Abb. 6 <sup>+</sup>

<sup>+</sup> in Sammelperiode 5



KfK LAF II D83100

Verteilung des  $^{131}\text{I}$  im diskriminierenden Iodsammler (anlageeigenes  $^{131}\text{I}$ )

Abb. 7 +

+ in Sammelperiode 8

Tabelle 9:  $^{131}\text{I}$ -Konzentration und Anteil der  $^{131}\text{I}$ -Komponenten in der Zuluft und Abluft des Anlagenraumabluftfilters (anlageneigenes  $^{131}\text{I}$ )

Sammel- periode	Zuluft				Abluft <sup>a)</sup>			
	$^{131}\text{I}$ - Konzentration <sup>b)</sup> (Ci/m <sup>3</sup> )	Anteil der $^{131}\text{I}$ -Komponenten (%)			$^{131}\text{I}$ - Konzentration <sup>b)</sup> (Ci/m <sup>3</sup> )	Anteil der $^{131}\text{I}$ -Komponenten (%) <sup>c)</sup>		
		orga- nisch	elemen- tar	schweb- stoff.		orga- nisch	elemen- tar	schweb- stoff.
1	4,3 ( - 10 )	47 <sup>d)</sup>	52	< 1	3,5 ( - 14 )	45 <sup>d)</sup>	55	-
2	6,9 ( - 10 )	50	50	< 1	1,4 ( - 13 )	96	4	-
3	5,4 ( - 10 )	54	46	< 1	2,7 ( - 13 )	93	5	2
4	5,4 ( - 10 )	57	43	< 1	3,8 ( - 13 )	90	6	4
5	5,5 ( - 10 )	61	39	< 1	3,7 ( - 13 )	97	2	1
6	6,3 ( - 10 )	55	45	< 1	4,6 ( - 13 )	95	5	-
7	7,8 ( - 10 )	56	43	< 1	6,4 ( - 13 )	100	-	-
8	9,2 ( - 10 )	58 <sup>d)</sup>	42	< 1	5,4 ( - 13 )	98 <sup>d)</sup>	2	-

a) Werte der Sammelperiode 1 nicht belastbar (Desorption von  $^{131}\text{I}$ , eingeleitet als  $\text{I}_2$  in vorhergehendem Test, von vorgeschaltetem Tropfenabscheider)

b) Zehnerpotenzen durch Exponenten in Klammern wiedergegeben

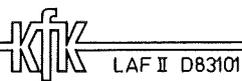
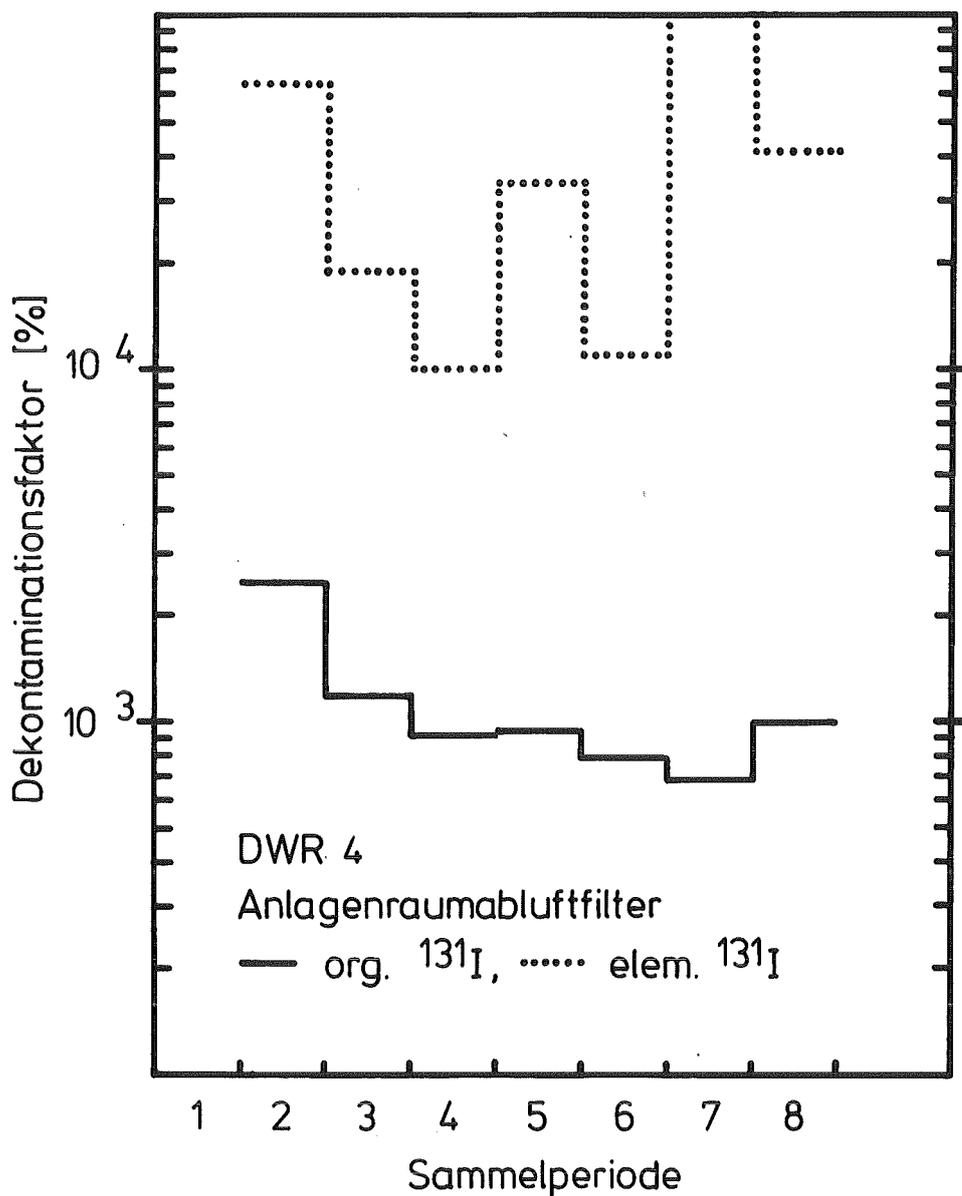
c) - : Nachweisgrenze von 2 (-15) Ci  $^{131}\text{I}/\text{m}^3$  unterschritten

d) Anteil des  $^{131}\text{I}$  an IPH-, AC 6120- und CG 0,8-Betten (sonst an CG 0,8-Betten)

Tabelle 10: Dekontaminationsfaktor des Anlagenraumabluftfilters  
für anlageneigenes  $^{131}\text{I}$  a)

Sammel- periode	Dekontaminationsfaktor		
	organisches $^{131}\text{I}$	elementares $^{131}\text{I}$	gesamtes $^{131}\text{I}$
1 b)	-	-	-
2	2,5 (3)	6,5 (4)	4,9 (3)
3	1,2 (3)	1,9 (4)	2,0 (3)
4	9,1 (2)	1,0 (4)	1,4 (3)
5	9,3 (2)	3,4 (4)	1,5 (3)
6	7,8 (2)	1,1 (4)	1,4 (3)
7	6,8 (2)	> 1,0 (5) c)	1,2 (3)
8	1,0 (3)	4,2 (4)	1,7 (3)

- a) entsprechend den Werten der Tabelle 9
- b) keine sinnvollen Werte errechenbar
- c) kein elementares  $^{131}\text{I}$  in der Abluft des Anlagenraumabluftfilters festgestellt



Zeitlicher Verlauf des Dekontaminationsfaktors für anlageneigenes  $^{131}\text{I}$

Abb. 8 <sup>+</sup>

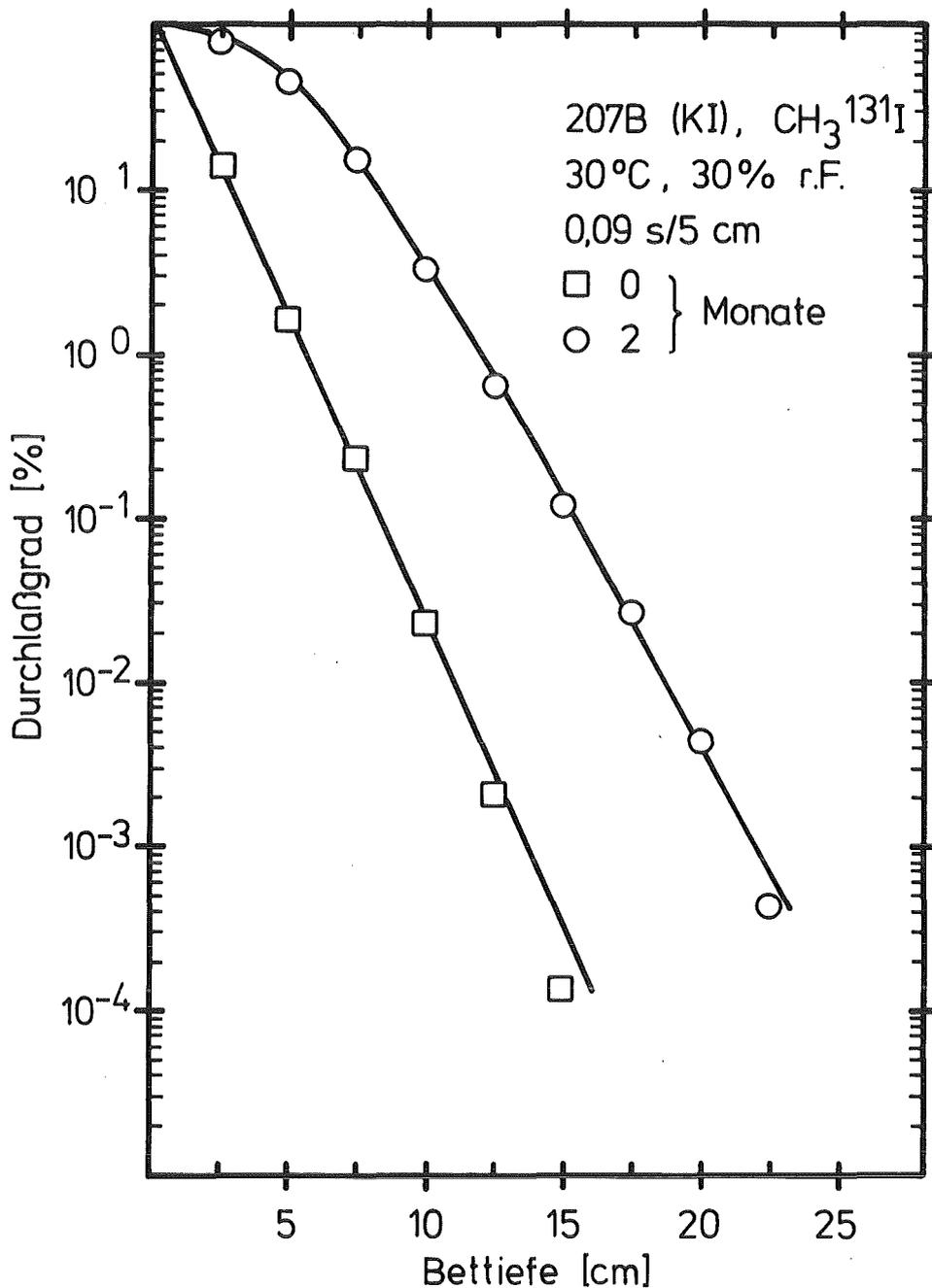
<sup>+</sup> vgl. Tabelle 10

Tabelle 11: Abscheidegrad der Aktivkohle 207B (KI) für  $^{131}\text{I}$ , beaufschlagt als  $\text{CH}_3\text{I}$ , vor und nach Alterung in der Anlagenraumabluft

Abscheidung unter Betriebsbedingungen des Anlagenraumabluftfilters:  
 Temperatur: 30 °C; rel. Feuchte: 30 %; Verweilzeit: 0,09 s/5 cm (vgl. Tabelle 6)

Bettiefe a) (cm)	Abscheidegrad (%) b)			
	integral		differentiell c)	
	vor Alterung	nach Alterung d)	vor Alterung	nach Alterung d)
2,5	86,2	14,1	86,2	14,1
5,0	98,3	52,2	87,7	44,3
7,5	99,77	84,8	86,6	68,2
10,0	99,976	96,8	89,5	78,8
12,5	99,9979	99,38	91,0	80,8
15,0	99,99986	99,88	93,2	80,6
17,5	-	99,971	-	76,0
20,0	-	99,9954	-	83,9
22,5	-	99,99952	-	89,7

- a) Originalschichtung der gealterten Aktivkohle (aus Bypass)
- b) - : maximal nachweisbarer Abscheidgrad überschritten  
(ebenso bei höherer als der angegebenen Bettiefe)
- c) Abscheidegrad eines Bettes von 2,5 cm Tiefe
- d) Dauer: 2 Monate



KfK LAF II D83102

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
bei verschiedenen Alterungszeiten

Abb. 9<sup>+</sup>

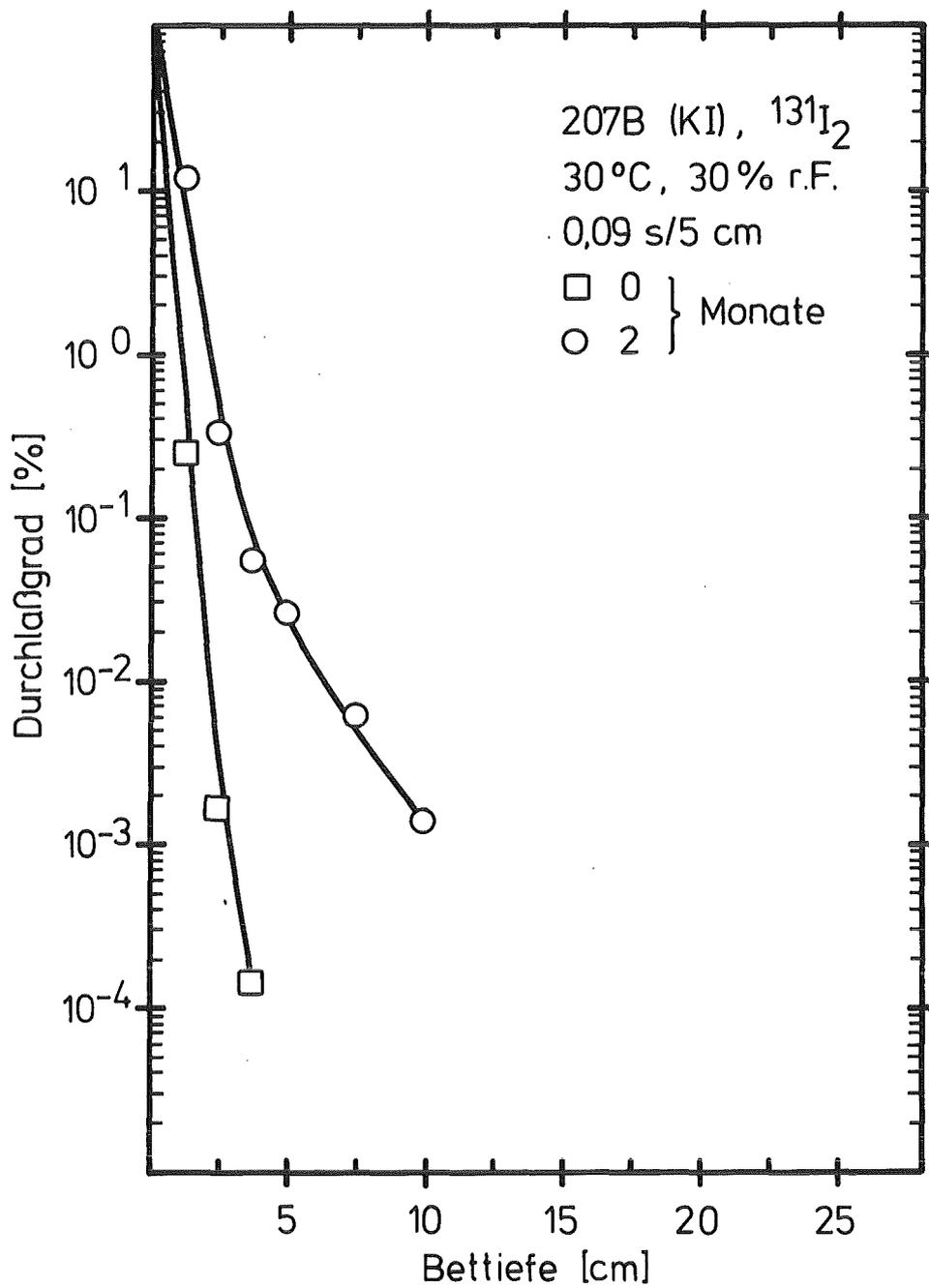
<sup>+</sup> Betriebsbedingungen; vgl. Tabelle 11

Tabelle 12: Abscheidegrad der Aktivkohle 207 B (KI) für  $^{131}\text{I}$ , beaufschlagt als  $\text{I}_2$ , vor und nach Alterung in der Anlagenraumabluft

Abscheidung unter Betriebsbedingungen des Anlagenraumabluftfilters :  
 Temperatur: 30 °C; rel. Feuchte: 30 %; Verweilzeit: 0,09 s/5 cm (vgl. Tabelle 6)

Bettiefe a) (cm)	Abscheidegrad (%) b)			
	integral		differentiell c)	
	vor Alterung	nach Alterung d)	vor Alterung	nach Alterung d)
1,25	99,75	87,9	99,75	87,9
2,50	99,9982	99,67	99,29	97,2
3,75	99,99984	99,944	91,00	83,3
5,00	-	99,972	-	49,9
7,50	-	99,9932	-	75,7
10,00	-	99,9985	-	77,6

- a) Originalschichtung der gealterten Aktivkohle (aus Bypass)
- b) - : maximal nachweisbarer Abscheidegrad überschritten (ebenso bei höherer als der angegebenen Bettiefe)
- c) Abscheidegrad eines Bettes von 1,25 bzw. 2,5 cm Tiefe
- d) Dauer: 2 Monate



KIK LAF II D83103

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
bei verschiedenen Alterungszeiten

Abb. 10 <sup>+</sup>

<sup>+</sup> Betriebsbedingungen; vgl. Tabelle 12

Tabelle 13: Abscheidegrad der Aktivkohle 207 B (KI) für  $^{131}\text{I}$ ,  
beaufschlagt als  $\text{CH}_3\text{I}$ , vor und nach Alterung in  
der Anlagenraumabluft

Abscheidung unter Auslegungsbedingungen des Anlagen-  
raumabluftfilters:

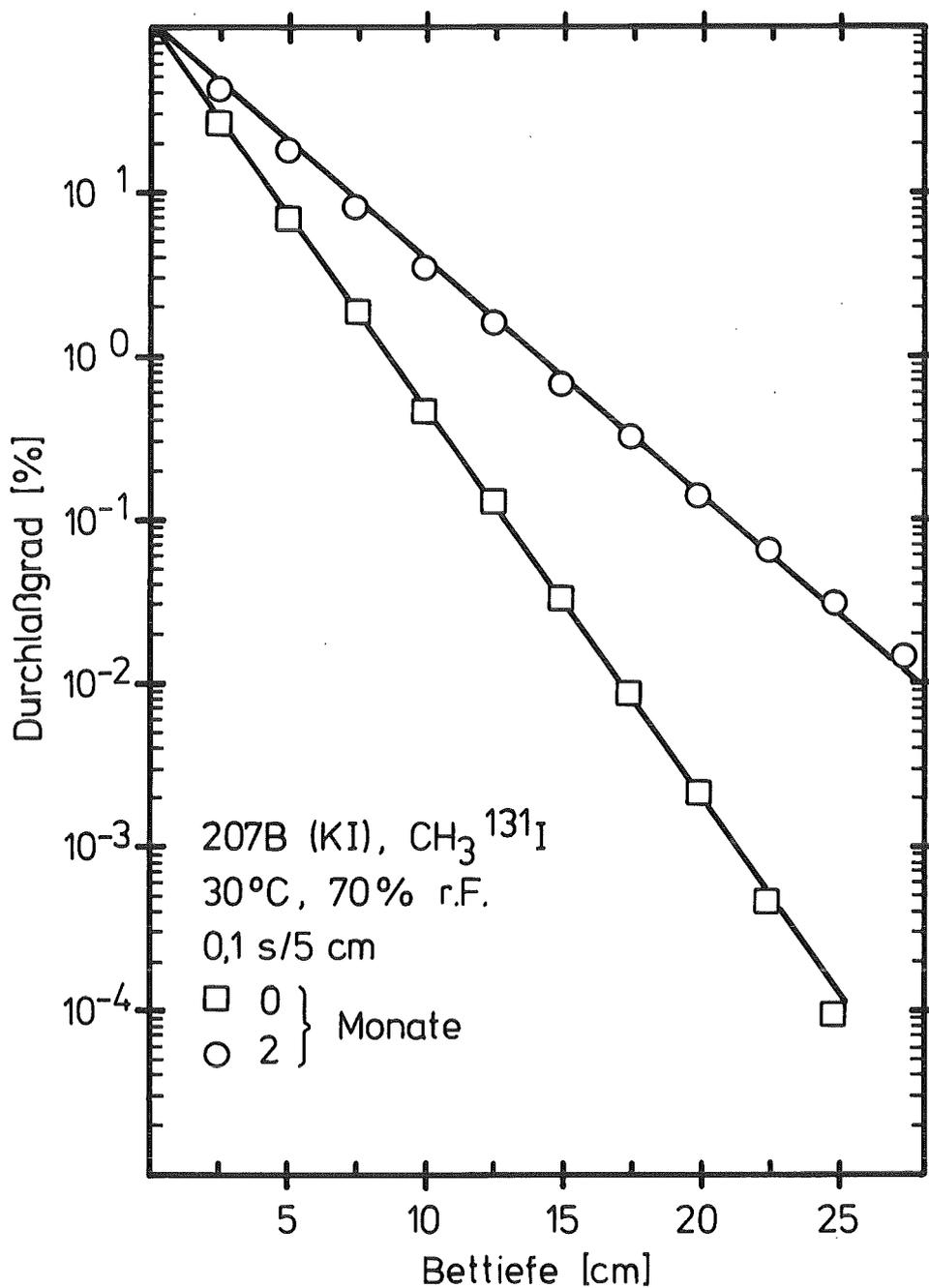
Temperatur: 30 °C; rel. Feuchte: 70 %; Verweilzeit: 0,1 s/5 cm  
(vgl. Tabelle 6)

Bettiefe <sup>a)</sup> (cm)	Abscheidegrad (integral) (%) <sup>b)</sup>	
	vor Alterung	nach Alterung <sup>c)</sup>
2,5	73,3	58,4
5,0	93,0	81,3
7,5	98,1	91,8
10,0	99,51	96,5
12,5	99,86	98,4
15,0	99,966	99,32
17,5	99,9908	99,68
20,0	99,9977	99,85
22,5	99,99950	99,932
25,0	99,999901	99,968
27,5	-	99,985
30,0	-	99,9917

a) keine Originalschichtung der gealterten Aktivkohle  
(gemischte Aktivkohle aus Kontrollfilter)

b) - : maximal nachweisbarer Abscheidegrad überschritten

c) Dauer: 2 Monate

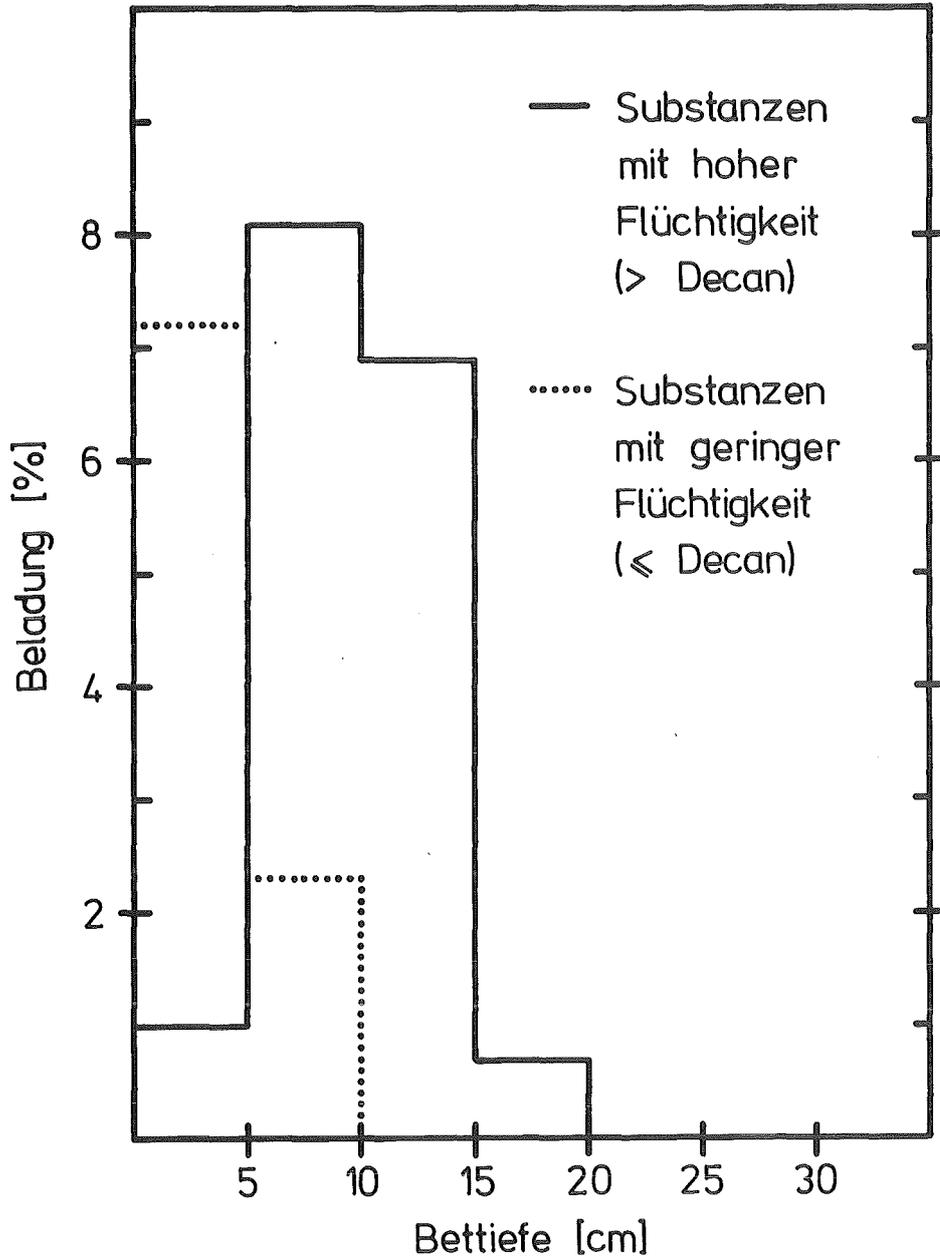


KIK LAF II D83104

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
bei verschiedenen Alterungszeiten

Abb. 11 <sup>+</sup>

<sup>+</sup> Auslegungsbedingungen; vgl. Tabelle 13



KfK LAF II D83105

Beladung von 207B (KI) mit organischen Substanzen bei einer Alterungszeit von 2 Monaten

Abb. 12 <sup>+</sup>

<sup>+</sup> Substanzen mit hoher Flüchtigkeit:  
Xylol, Nonan u.a.;  
Substanzen mit geringer Flüchtigkeit:  
Decan, Dodecan u.a.

## 5. Diskussion der Ergebnisse

---

Eine Übersicht der nach den verschiedenen Testmethoden ermittelten Dekontaminationsfaktoren des Anlagenraumabluftfilters für organisches  $^{131}\text{I}$  am Anfang und Ende der achtwöchigen Untersuchungszeit gibt Tabelle 14. Der Dekontaminationsfaktor für anlagenfremdes (eingeleitetes) organisches  $^{131}\text{I}$  ( $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ ) war mit einem Wert von  $10^5$  bzw.  $10^4$  um mehr als eine Größenordnung höher als der Dekontaminationsfaktor für anlageneigenes (in der Abluft vorhandenes) organisches  $^{131}\text{I}$ . Er entsprach dem Dekontaminationsfaktor für anlageneigenes elementares  $^{131}\text{I}$  (vgl. Abb. 8). Aus den Labortests unter Betriebs- und Auslegungsbedingungen folgten Dekontaminationsfaktoren für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  von größer als  $10^6$ , abgesehen vom Fall gealterter Aktivkohle unter Auslegungsbedingungen, in dem ein Wert von  $10^4$  bis  $10^5$  gefunden wurde.

Aus den Dekontaminationsfaktoren können folgende Schlüsse hinsichtlich der Rückhaltung des  $^{131}\text{I}$  durch das Iodfilter gezogen werden:

- a) Das Iodfilter wies, entsprechend den Dekontaminationsfaktoren für anlagenfremdes  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  und anlageneigenes  $^{131}\text{I}_2$ , eine Leckage von  $10^{-2}$  bis  $10^{-3}\%$  auf.
- b) Die tatsächliche Rückhaltung des organischen  $^{131}\text{I}$ , gegeben durch einen Dekontaminationsfaktor von größenordnungsmäßig  $10^3$ , wurde durch die Rückhaltung von  $^{131}\text{I}$  in Form von penetrierenden Iodverbindungen bestimmt.

Das Auftreten von organischen penetrierenden Iodverbindungen wurde mit speziellen diskriminierenden Iodsammlern nachgewiesen (vgl. Abb. 7). Der Anteil dieser Verbindungen in der ungefilterten Anlagenraumabluft war klein (ca. 1%), aber ausreichend zur Begrenzung der tatsächlichen Rückhaltung von organischem  $^{131}\text{I}$ . Der Anteil von 1% entspricht im hypothetischen Fall völliger Penetration dieser Verbindungen einem Dekontaminationsfaktor für organisches  $^{131}\text{I}$  von 100.

Aus den Dekontaminationsfaktoren lassen sich folgende Schlüsse hinsichtlich der Aussagekraft der Testmethoden ziehen:

- a) Vor-Ort-Tests mit anlageneigenem  $^{131}\text{I}$  können bei Unterscheidung der  $^{131}\text{I}$ -Komponenten (Einsatz von diskriminierenden Iodsammlern) realistische Werte zur Rückhaltung von  $^{131}\text{I}$  durch ein Iodfilter liefern.
- b) Labortests von Aktivkohle aus Kontrollfiltern mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  unter Auslegungsbedingungen können Dekontaminationsfaktoren ergeben, die um mehr als eine Größenordnung höher als die Dekontaminationsfaktoren für anlageneigenes organisches  $^{131}\text{I}$  unter Betriebsbedingungen sind. Bei älterer Aktivkohle ist der Unterschied relativ klein (etwa eine Größenordnung). Mit Labortests von Aktivkohle aus Kontrollfiltern mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  kann trotzdem der Zustand der Aktivkohle im Iodfilter in befriedigendem Maße überwacht werden, da, wie erwähnt, der Dekontaminationsfaktor für anlageneigenes organisches  $^{131}\text{I}$  infolge des Auftretens von penetrierenden organischen Iodverbindungen nicht unter etwa 100 fallen kann.

Vor-Ort-Tests mit anlageneigenem  $^{131}\text{I}$  erfordern eine ausreichend hohe  $^{131}\text{I}$ -Konzentration. Soll ein Dekontaminationsfaktor von  $10^2$  nachgewiesen werden, so ist bei einwöchiger Sammelzeit eine minimale  $^{131}\text{I}$ -Konzentration von etwa  $10^{-12} \text{ Ci/m}^3$  nötig. Solche Konzentrationen werden in wesentlichen Abluftströmen, in denen Iodfilter betrieben werden (z. B. Anlagenraumabluft von DWR, Spülluft von SWR), nach den vorliegenden Erfahrungen i. allg. überschritten / 26, 27, 31/. Es ist zudem zu überlegen, ob nicht bei Normalbetriebsfiltern generell ein niedrigerer minimaler Dekontaminationsfaktor für organisches  $^{131}\text{I}$  als  $10^2$  gefordert werden sollte /6, 32/.

Hinsichtlich der Alterung ist zu sagen, daß der Abscheidegrad für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  in den Aktivkohleschichten am niedrigsten war, die am stärksten mit schwerflüchtigen organischen Stoffen (Decan, Dodecan) beladen waren. Dieser Zusammenhang wurde bei Untersuchungen in der Anlagenraumabluft eines anderen Druckwasserreaktors bei gleicher Alterungszeit ebenfalls gefunden /5, 13, 14/. Trotzdem darf er nicht verallgemeinert werden, da die Alterung noch auf anderen Faktoren, wie Adsorption von organischen, den pH-Wert senkenden Substanzen, beruhen kann. Im vorliegenden Fall war letztere allerdings unbedeutend.

Angesichts der Bedeutung schwerflüchtiger organischer Stoffe hinsichtlich der Alterung von Aktivkohlefiltern sollte bei Vorfilterung eine deutliche Erhöhung der Standzeit möglich sein. Es sei erwähnt, daß dieses beim DWR 4 tatsächlich beobachtet wurde. Nach Abschluß der Untersuchungen wurde das Anlagenraumabluftfilter nämlich mit eingebautem Vorfilter weiterbetrieben. Das dritte Kontrollfilter wurde nach einer zusätzlichen kontinuierlichen Betriebszeit von acht Wochen geprüft. Die Ergebnisse stimmten im Rahmen der Meßgenauigkeit mit den beim ersten und zweiten Kontrollfilter erzielten überein. Die bei den drei Kontrollfiltern unter Auslegungsbedingungen erzielten Abscheidegrade für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  sind für eine Bettiefe von 30 cm im folgenden aufgeführt:

1. Kontrollfilter : AG = 99,9894 %;
2. Kontrollfilter : AG = 99,9917 %;
3. Kontrollfilter : AG = 99,9888 %.

Von stark erhöhter Standzeit eines Anlagenraumabluftfilters eines Druckwasserreaktors nach Einbau eines Vorfilters mit nichtimprägnierter Aktivkohle wird in der Literatur berichtet /33/. Mit Aktivkohlen, die in letzter Zeit auf den Markt gekommen sind /34, 35/, wäre eventuell eine weitere Erhöhung der Standzeit möglich.

Tabelle 14: Dekontaminationsfaktor des Anlagenraumabluftfilters für organisches  $^{131}\text{I}$  a) nach verschiedenen Testmethoden

Testmethode		Dekontaminationsfaktor b)		Bemerkungen
		vor / in Sammelperiode 1 (vor Alterung)	nach / in Sammelperiode 8 (nach Alterung) c)	
Vor-Ort- Test	anlagen- fremdes $^{131}\text{I}$	ca. $10^5$	ca. $10^4$	vgl. Tabelle 8
	anlagen- eigenes $^{131}\text{I}$	ca. $10^3$	ca. $10^3$	Wert der Sammelperiode 2 d); vgl. Abb. 8
Labor- Test	Betriebs- bedingungen	$> 10^6$	$> 10^6$	$30\text{ }^\circ\text{C}$ , 30 % r.F., 57 cm/s (Verweilzeit: 0,53 s); Aktivkohle aus Bypass; vgl. Abb. 9
	Auslegungs- bedingungen	$> 10^6$	$10^4 - 10^5$	$30\text{ }^\circ\text{C}$ , 70 % r.F., 50 cm/s (Verweilzeit: 0,60 s); Aktivkohle aus Kontrollfilter; vgl. Abb. 11

- a)  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  in den Vor-Ort-Tests mit anlagenfremdem  $^{131}\text{I}$  und in den Labortests  
b) gemessen bzw. extrapoliert auf eine Bettiefe von 30 cm  
c) Dauer: 2 Monate  
d) Wert der Sammelperiode 1 nicht belastbar

## 6. Zusammenfassung

Die Abscheidung von  $^{131}\text{I}$  durch ein Anlagenraumabluftfilter eines deutschen Druckwasserreaktors (DWR 4) wurde mit mehreren Methoden bestimmt, um insbesondere zuverlässige Daten zu gewinnen. Außerdem wurden Untersuchungen zur Klärung der Ursache für die Alterung der im Anlagenraumabluftfilter enthaltenen Aktivkohle (207B - KI) durchgeführt. Bei dem untersuchten Anlagenraumabluftfilter war in vorhergehenden Messungen mit anlageneigenem (in der Abluft vorhandenem)  $^{131}\text{I}$  eine sehr schnelle Alterung festgestellt worden.

Es wurden folgende wesentlichen Ergebnisse erzielt:

- a) Das Iodfilter wies, entsprechend den Dekontaminationsfaktoren für anlagenfremdes (eingeleitetes)  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  und anlageneigenes  $^{131}\text{I}_2$ , eine Leckage von  $10^{-2}$  bis  $10^{-3}$  % auf.
- b) Die tatsächliche Rückhaltung des organischen  $^{131}\text{I}$ , gegeben durch einen Dekontaminationsfaktor von größtmäßig  $10^3$ , wurde durch die Rückhaltung von  $^{131}\text{I}$  in Form von penetrierenden Iodverbindungen bestimmt.
- c) Die tatsächliche Rückhaltung von organischem  $^{131}\text{I}$  war um mehr als eine Größenordnung geringer als die Rückhaltung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  unter Auslegungsbedingungen.
- d) Die Alterung beruhte vorwiegend auf Adsorption von schwerflüchtigen organischen Stoffen (Decan, Dodecan).

Es ist zu betonen, daß die Ergebnisse weitgehend mit Befunden analoger Untersuchungen in anderen deutschen Druckwasserreaktoren übereinstimmen, soweit vergleichbare Werte vorliegen.

## 7. Literatur

- /1/ Wilhelm, J. G.;  
Iodfilter in Kernkraftwerken,  
Kommission der europäischen Gemeinschaften,  
V/1531/76-D (1976)
  
- /2/ Der Bundesminister des Innern;  
Auslegungsrichtlinien und -richtwerte für Iodsorptions-  
filter zur Abscheidung von gasförmigem Spaltiod in  
Kernkraftwerken,  
Institut für Reaktorsicherheit der Technischen  
Überwachungsvereine (1976)
  
- /3/ Normenausschuß Kerntechnik im DIN;  
Lüftungstechnische Anlagen in Kernkraftwerken,  
DIN 25 414 (1983)
  
- /4/ Reaktorsicherheitskommission;  
RSK-Leitlinien für Druckwasserreaktoren,  
Gesellschaft für Reaktorsicherheit (1981)
  
- /5/ Wilhelm, J. G. et al.;  
Behavior of gasketless deep bed charcoal filters for  
radioiodine removal in LWR power plants,  
16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,  
San Diego, 20 - 22 Okt. 1980,  
CONF - 801 038, p. 465
  
- /6/ Wilhelm, J. G. et al.;  
Operational experience with iodine filters at German LWRs,  
CEC Seminar on Iodine Removal from Gaseous Effluents  
in the Nuclear Industry, Mol, 21 - 24 Sept. 1981,  
V/5283/82, p. 625
  
- /7/ Deuber, H., Wilhelm, J. G.;  
Bestimmung der physikalisch-chemischen Komponenten des  
Radioiods in der Kaminabluft von Kernkraftwerken,  
KfK-Ext. 30/78-1 (1978)

- /8/ Deuber, H., Wilhelm, J. G.;  
Determination of the physico-chemical  $^{131}\text{I}$  species in the  
exhausts and stack effluent of a PWR power plant,  
15th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,  
Boston, 7 - 10 Aug. 1978,  
CONF - 780 819, p. 446
- /9/ Emel, W. A. et al.;  
An airborne radioiodine species sampler and its application  
for measuring removal efficiencies of large charcoal  
adsorbers for ventilation exhaust air,  
14th ERDA Air Cleaning Conference,  
Sun Valley, 2 - 4 Aug. 1976,  
CONF - 760 822, p. 389
- /10/ Kabat, M. J.;  
Selective sampling of hypiodous acid,  
14th ERDA Air Cleaning Conference,  
Sun Valley, 2 - 4 Aug. 1976,  
CONF - 760 822, p. 490
- /11/ Pietrik, I. et al.;  
Die Bestimmung von chemischen Jodformen in Luft des  
Kernkraftwerks "Bruno Leuschner" Greifswald, 1. Mitteilung:  
Physikalische und chemische Formen von Jod in Kernkraftwerken  
und deren Bestimmung,  
Kernenergie 24 (1981), p. 68
- /12/ Kovach, J. L., Rankovic, L.;  
Evaluation and control of poisoning of impregnated carbons  
used for organic iodide removal,  
15th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,  
Boston, 7 - 10 Aug. 1978,  
CONF - 780 819, p. 368
- /13/ Wilhelm, J. G. et al.;  
Untersuchung zur Ertüchtigung von Iodsorptionsfiltern  
zur Reinigung der Abluft von Kernkraftwerken,  
KfK 3194 B (1981)
- /14/ Furrer, J., Wilhelm, J. G.;  
Verbesserte Iodfilter für Kernkraftwerke und Wieder-  
aufarbeitungsanlagen,  
CEC Seminar on Iodine Removal from Gaseous Effluents  
in the Nuclear Industry, Mol, 21 - 24 Sept. 1981,  
V/5283/82, p. 257

- /15/ Deitz, V. R.;  
Effects of weathering on impregnated charcoal performance,  
NUREG / CR-2112 (1981)
- /16/ Hillary, J. J., Taylor, L. R.;  
The performance of commercially prepared impregnated charcoals  
for the trapping of methyl iodide,  
TRG 2906 (W) (1977)
- /17/ Collins, R. D. et al.;  
The ageing of charcoals used to trap radioiodine,  
IAEA/NEA (OECD) Symposium on Management of Gaseous  
Wastes from Nuclear Facilities,  
Wien, 18 - 22 Feb. 1980,  
STI/PUB/561, p. 571
- /18/ Hillary, J. J. et al.;  
The ageing of European charcoals used to trap radio-iodine,  
CEC Seminar on Iodine Removal from Gaseous Effluents  
in the Nuclear Industry, Mol, 21 - 24 Sept. 1981,  
V/5283/82, p. 167
- /19/ Furrer, J. et al.;  
Alterung und Vergiftung von Iodisorptionsmaterialien,  
KfK 2600 (1978), p. 126
- /20/ American Society for Testing and Materials;  
Standard test method for pH of activated carbon,  
ASTM D 3838 (1980)
- /21/ Deuber, H., Wilhelm, J. G.;  
Occurrence of penetrating iodine species in the exhaust  
air of PWR power plants,  
16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,  
San Diego, 20 - 23 Okt. 1980,  
CONF - 801 038, p. 1354
- /22/ Keller, J. H. et al.;  
Hypoiodous acid: an airborne inorganic iodine species in  
steam-air mixtures,  
11th AEC Air Cleaning Conference,  
Richland, 31 Aug. - 3 Sept. 1970,  
CONF - 700 816, p. 467
- /23/ Wilhelm, J. G., Schüttelkopf, H.;  
An inorganic adsorber material for off-gas cleaning  
in fuel reprocessing plants,  
12th AEC Air Cleaning Conference,  
Oak Ridge, 28 - 31 Aug. 1972,  
CONF - 720 823, p. 540

- /24/ Wilhelm, J. G.;  
Verhalten von Iodisorptionsmaterialien,  
CEC Seminar on Iodine Filter Testing,  
Karlsruhe, 4 - 6 Dez. 1973,  
V/559/74, p. 1
- /25/ Wilhelm, J. G. et al.;  
Head-end iodine removal from a reprocessing plant  
with a solid sorbent,  
14th ERDA Air Cleaning Conference,  
Sun Valley, 2 - 4 Aug. 1976,  
CONF - 760 822, p. 447
- /26/ Deuber, H.;  
Die physikalisch-chemischen Radioiodkomponenten in der  
Abluft eines Druckwasserreaktors (DWR 3),  
KfK 3207 (1981)
- /27/ Deuber, H.;  
Die physikalisch-chemischen Radioiodkomponenten in der  
Abluft eines Druckwasserreaktors (DWR 2),  
KfK 3206 (1981)
- /28/ Deuber, H., Gerlach, K.;  
Laboratory tests of activated carbon for methyl iodide  
retention: influence of various parameters,  
IAEA Seminar on the Testing and Operation of Off-Gas  
Cleaning Systems at Nuclear Facilities,  
Karlsruhe, 3 - 7 Mai 1982, IAEA-SR-72/34
- /29/ Shiomi, H. et al.;  
A parametric study on removal efficiency of impregnated  
activated charcoal and silver zeolite for radioactive  
methyl iodide,  
17th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,  
Denver, 2 - 5 Aug. 1982,  
CONF - 820 833, p. 199
- /30/ Deuber, H., Wilhelm J. G.;  
Retention of elemental radioiodine by deep bed carbon  
filters under accident conditions,  
17th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,  
Denver, 2 - 5 Aug. 1982,  
CONF - 820 833, p. 248
- /31/ Deuber, H.;  
Die physikalisch-chemischen  $^{131}\text{I}$ -Komponenten in der Abluft  
eines Siedewasserreaktors (SWR 4),  
KfK 3424 (1982)

- /32/ Deuber, H.;  
Aspects of retention of airborne  $^{131}\text{I}$  in light water reactors  
during normal operation,  
IAEA Seminar on the Testing and Operation of Off-Gas Cleaning  
Systems at Nuclear Facilities,  
Karlsruhe, 3 - 7 Mai 1982, IAEA-SR-72/21
- /33/ Scholten, L. C.;  
Experiences with a charcoal guard bed in a nuclear power plant,  
17th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,  
Denver, 2 - 5 Aug. 1982,  
CONF - 820 833, p. 278
- /34/ Underhill, D. Laskie, J.;  
Modified TEDA impregnants for methyl iodide removal,  
16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,  
San Diego, 20 - 23 Okt. 1980,  
CONF - 801 038, p. 531
- /35/ Kovach, J. L. et al.;  
TEDA vs. quinuclidine: evaluation and comparison of two  
tertiary amine impregnants for methyl iodide removal  
from flow air stream,  
17th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,  
Denver, 2 - 5 Aug. 1982,  
CONF - 820 833, p. 652.

Die diesem Bericht zugrunde liegenden Arbeiten wurden mit Mitteln des Bundesministers des Innern gefördert.

An der Durchführung und Auswertung der Messungen waren beteiligt: R. Butz, K. Görtz, H. Hengst, R. Kauffeld, A. Ladanyi, E. Sebök, R. Sommerlatt und S. Winkler.

Die gaschromatographischen Untersuchungen wurden von R. Kaempffer durchgeführt.