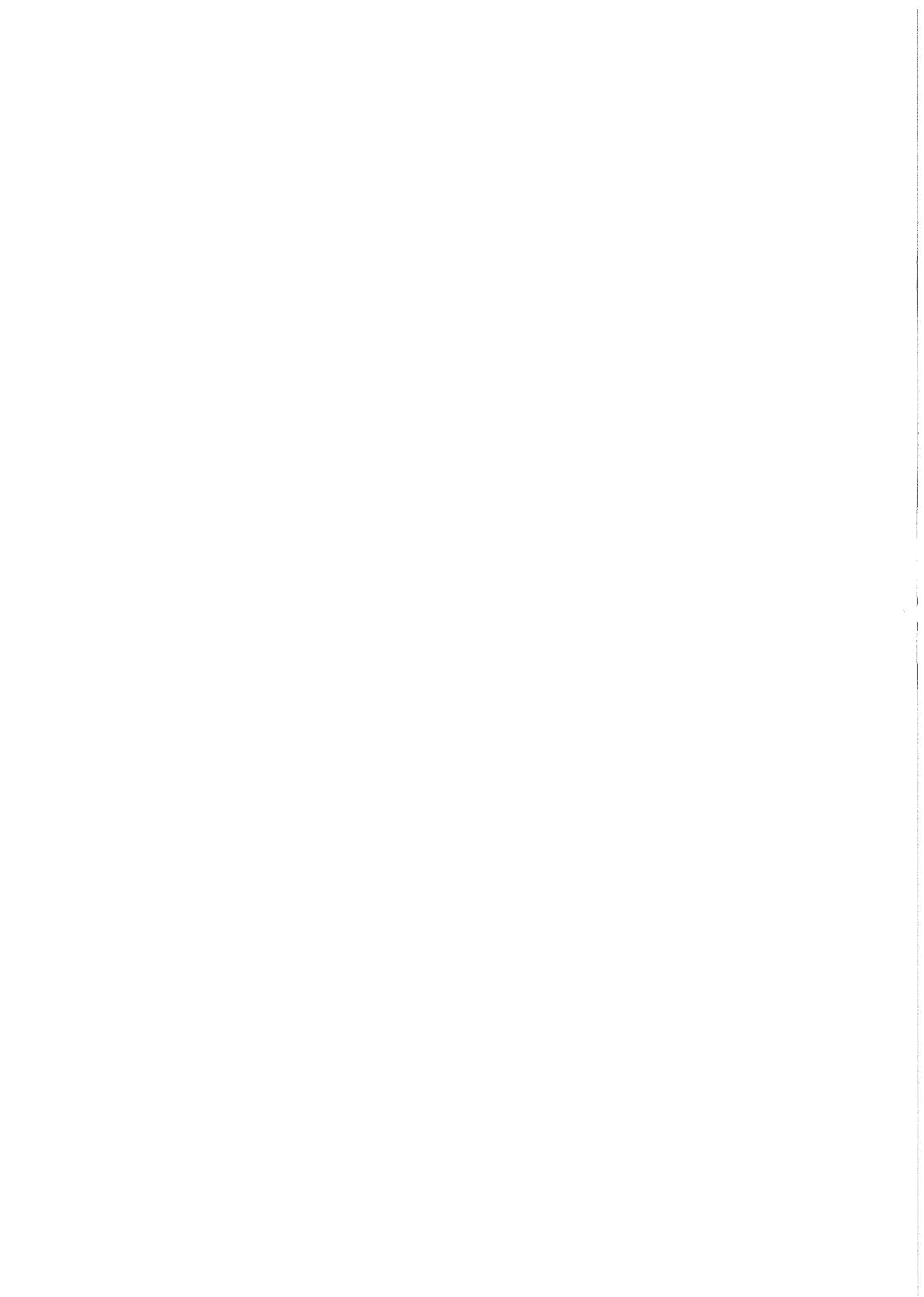


KfK 3746
Juni 1984

Parametrische Untersuchungen zur Abscheidung von Methyliodid an einer KI-imprägnierten Aktivkohle

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe



K E R N F O R S C H U N G S Z E N T R U M K A R L S R U H E

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

KfK 3746

Parametrische Untersuchungen zur Abscheidung von
Methyliodid an einer KI-imprägnierten Aktivkohle

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

Parametrische Untersuchungen zur Abscheidung von
Methyliodid an einer KI-imprägnierten Aktivkohle

Kurzfassung

Es wird auf Untersuchungen zur Abscheidung von Methyliodid ($\text{CH}_3^{131}\text{I}$) an einer typischen Charge der in Iodfiltern deutscher Kernkraftwerke vorwiegend eingesetzten Aktivkohle 207B (KI) eingegangen. Die bei Variation von etwa zehn Parametern erzielten Ergebnisse sind relevant für die Durchführung von Aktivkohletests sowie für Auslegung, Betrieb und Überwachung von Iodfiltern.

Parametric Investigations on the Retention of
Methyl Iodide by a KI Impregnated Activated Carbon

Abstract

Investigations are described on the retention of methyl iodide ($\text{CH}_3^{131}\text{I}$) by a typical batch of the activated carbon 207B (KI) which is mostly used in the iodine filters of German nuclear power plants. The results obtained with variation of about ten parameters are relevant both for the testing of activated carbons and for the design, operation and surveillance of iodine filters.

| <u>Inhaltsverzeichnis</u> | Seite |
|---------------------------------|-------|
| 1. Einleitung | 1 |
| 2. Grundlagen | 2 |
| 3. Frühere Untersuchungen | 6 |
| 3.1 Temperatur | 6 |
| 3.2 Relative Feuchte | 7 |
| 3.3 Lineare Luftgeschwindigkeit | 7 |
| 3.4 Vorströmzeit | 8 |
| 3.5 Einleitzeit | 8 |
| 3.6 Nachströmzeit | 9 |
| 3.7 Trägerkonzentration | 9 |
| 3.8 Schüttdichte | 10 |
| 3.9 Bettdurchmesser | 10 |
| 3.10 Mischungsgrad | 10 |
| 3.11 Weitere Parameter | 11 |
| 4. Experimentelles | 12 |
| 5. Ergebnisse | 19 |
| 5.1 Temperatur | 19 |
| 5.2 Relative Feuchte | 20 |
| 5.3 Lineare Luftgeschwindigkeit | 21 |
| 5.4 Vorströmzeit | 22 |
| 5.5 Einleitzeit | 23 |
| 5.6 Nachströmzeit | 23 |
| 5.7 Trägerkonzentration | 24 |
| 5.8 Schüttdichte | 25 |
| 5.9 Bettdurchmesser | 25 |
| 5.10 Mischungsgrad | 26 |
| 5.11 Weitere Parameter | 27 |
| 6. Zusammenfassung | 50 |
| 7. Literatur | 53 |
| 8. Anhang: Testauswertung | 60 |

| <u>Verzeichnis der Tabellen</u> | Seite |
|---|-------|
| Tab. 1 Korngrößenverteilung von 207B (KI) verschiedener Chargen | 14 |
| Tab. 2 Schüttdichte und Wassergehalt sowie Leistungs- index von 207B (KI) verschiedener Chargen für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ in Tests unter gleichen Bedingungen | 15 |
| Tab. 3 Testparameter | 16 |
| Tab. 4 Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ als Funktion der Temperatur | 28 |
| Tab. 5 Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ als Funktion der relativen Feuchte | 29 |
| Tab. 6 Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ als Funktion der linearen Luftgeschwindigkeit | 30 |
| Tab. 7 Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ als Funktion der Vorströmzeit, Einleitzeit und Nachströmzeit | 31 |
| Tab. 8 Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ als Funktion der Trägerkonzentration und Nachströmzeit | 32 |
| Tab. 9 Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ als Funktion verschiedener Parameter (Temperatur, relative Feuchte, Nachströmzeit) | 33 |
| Tab. 10 Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ als Funktion verschiedener Parameter (Zustand der Kohle, relative Feuchte, Vorströmzeit) | 34 |
| Tab. 11 Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ als Funktion verschiedener Parameter (Schüttdichte der Kohle, Durchmesser der Kohlebetten, Anordnung der Kohle) | 35 |

| <u>Verzeichnis der Abbildungen</u> | Seite |
|---|-------|
| Abb. 1 Apparatur zur Prüfung von Iodsorptionsmaterial | 17 |
| Abb. 2 Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe in Tests unter gleichen Bedingungen | 18 |
| Abb. 3 Leistungsindex als Funktion der Temperatur | 36 |
| Abb. 4 Leistungsindex als Funktion der relativen Feuchte | 37 |
| Abb. 5 Leistungsindex als Funktion der Luftgeschwindigkeit | 38 |
| Abb. 6 Leistungsindex als Funktion von Vorströmzeit, Einleitzeit und Nachströmzeit | 39 |
| Abb. 7 Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Temperaturen | 40 |
| Abb. 8 Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen relativen Feuchten | 41 |
| Abb. 9 Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen linearen Luftgeschwindigkeiten | 42 |
| Abb. 10 Durchlaßgrad als Funktion der Verweilzeit bei verschiedenen linearen Luftgeschwindigkeiten | 43 |
| Abb. 11 Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Vorströmzeiten | 44 |
| Abb. 12 Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Einleitzeiten | 45 |

| | | |
|---------|--|----|
| Abb. 13 | Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Nachströmzeiten | 46 |
| Abb. 14 | Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Trägerkonzentrationen | 47 |
| Abb. 15 | Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Schüttdichten der Kohle | 48 |
| Abb. 16 | Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Anordnungen der Kohle | 49 |

Verzeichnis einiger Symbole

| | |
|------------|--|
| DF | Dekontaminationsfaktor |
| h | relative Feuchte, % |
| K | Leistungsindex ($k \log e$), s^{-1} |
| k | Geschwindigkeitskonstante der Über-Alles-Reaktion (Abscheidung von $CH_3^{131}I$, Gl. (1)), s^{-1} |
| k' | $k v^{-1}$, cm^{-1} |
| l | Bettiefe, cm |
| P | Durchlaßgrad, % |
| Δp | Druckabfall, mbar |
| R | Abscheidegrad, % |
| ρ | Schüttdichte, $g\ cm^{-3}$ |
| t | Temperatur, $^{\circ}C$ |
| τ | Verweilzeit des Luftstroms im Bett ($l v^{-1}$), s |
| v | lineare Luftgeschwindigkeit im Bett (bezogen auf Rohr ohne Sorbens), $cm\ s^{-1}$ |
| x | Volumenanteil eines Sorbens im Bett, %. |

1. Einleitung

Zur Reduzierung der Abgabe von Radioiod mit der Abluft von Kernkraftwerken werden Iodfilter eingesetzt, die Aktivkohle enthalten /35, 57/. Die Aktivkohle ist imprägniert, um organisches Radioiod, das meistens in großen Anteilen auftritt /19, 50/, bei höherer relativer Luftfeuchte effektiv zurückzuhalten. (Elementares Radioiod, eine weitere wesentliche Iodform, wird auch ohne Imprägnans hinreichend stark abgeschieden.) Methyl-iodid ist in der Regel die überwiegende Form des organischen Radioiods und wird in Aktivkohletests als Modellsubstanz für organische Iodverbindungen verwendet /4, 40/.

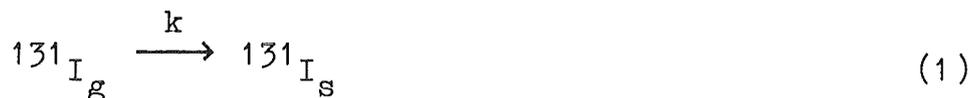
Zur Abscheidung von Methyl-iodid ($\text{CH}_3^{131}\text{I}$) an imprägnierter Aktivkohle, die von vielen Parametern beeinflusst wird, ist eine große Zahl von Untersuchungen durchgeführt worden /28, 35, 57/. Wegen Einsatzes verschiedener Aktivkohlen, Verwendung unterschiedlicher Parameterbereiche und auch infolge unzureichender Meßgenauigkeit fehlen aber belastbare relevante quantitative Daten. Das gilt insbesondere für die Optimierung des Testens von Aktivkohle: Bei Tests unter ähnlichen Bedingungen werden unbefriedigend hohe, nicht verständliche Unterschiede gefunden /47/. Aber auch für die Optimierung von Auslegung, Betrieb und Überwachung von Iodfiltern fehlen teilweise Daten, z.B. hinsichtlich der Bedeutung der Luftgeschwindigkeit und der Packungsdichte der Aktivkohle.

Im vorliegenden Bericht wird auf die Abscheidung von $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ an einer typischen Charge der in Iodfiltern deutscher Kernkraftwerke vorwiegend eingesetzten Aktivkohle 207B (Imprägnans: KI; Korngröße: 8 - 12 mesh) eingegangen, und zwar in einem Parameterbereich, der für das Testen von Aktivkohle sowie für Auslegung, Betrieb und Überwachung von Iodfiltern relevant ist.

Über die Ergebnisse wurde teilweise schon berichtet /20/. Berichte über weitere, im vorliegenden Zusammenhang wichtige neue Daten liegen vor /21, 22/.

2. Grundlagen

Die Abscheidung von $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ an KI-imprägnierter Aktivkohle ist eine sehr komplexe Reaktion. Die Über-Alles-Reaktion läßt sich folgendermaßen formulieren:

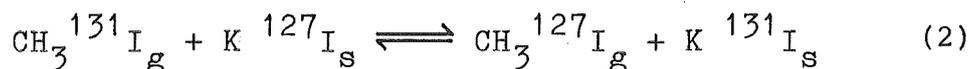


k : Geschwindigkeitskonstante der Reaktion, s^{-1}

g : im Luftstrom

s : auf der Porenoberfläche (gebunden)

Die Reaktion wird i.allg. auf Isotopenaustausch zurückgeführt und folgendermaßen ausgedrückt:



Hydrolyse des $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ zu CH_3OH ist ebenfalls postuliert worden /15/.

Entsprechend den Vorstellungen über Reaktionen zwischen Gasen und porösen Festkörpern /37, 48, 49/ können bei Annahme von Isotopenaustausch folgende Schritte der Reaktion unterschieden werden /35/:

- a) Diffusion des $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ zur Kornoberfläche;
- b) Diffusion des $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ in die Poren;
- c) Adsorption des $\text{CH}_3^{131}\text{I}$;
- d) Isotopenaustausch;
- e) Desorption des $\text{CH}_3^{127}\text{I}$;
- f) Diffusion des $\text{CH}_3^{127}\text{I}$ aus den Poren;
- g) Diffusion des $\text{CH}_3^{127}\text{I}$ von der Kornoberfläche weg.

Im ersten und letzten Schritt erfolgt Diffusion durch eine Schicht stehender Luft (Filmdiffusion). Obwohl grundsätzlich alle Schritte für die Geschwindigkeit der Reaktion von Bedeutung sein können, ist damit zu rechnen, daß in vielen Fällen nur wenige oder sogar nur ein einziger Schritt geschwindigkeitsbestimmend ist /30, 31, 37, 38, 49/.

Die Komplexität der Reaktion beruht außer der Vielzahl der Schritte auf weiteren Faktoren wie komplexe Struktur der Poren /23/ und ihrer Oberfläche /6/.

Eine Berechnung der Geschwindigkeitskonstante k aus grundlegenden physikalisch-chemischen Daten, etwa wie bei homogenen Gasreaktionen, ist infolge der geschilderten Komplexität auch in grober Näherung nicht möglich. Man ist also auf halbempirische Beziehungen angewiesen, die nur von begrenzter praktischer Bedeutung sind. Genaue Daten können nur empirisch gewonnen werden.

Die Über-Alles-Reaktion entspricht erfahrungsgemäß i. allg. einer irreversiblen Reaktion erster Ordnung. Es gilt also /37, 52/:

$$k = \frac{1}{\tau} \cdot \ln \frac{[\text{CH}_3^{131}\text{I}]_0}{[\text{CH}_3^{131}\text{I}]} \quad (3)$$

$$[\text{CH}_3^{131}\text{I}] = [\text{CH}_3^{131}\text{I}]_0 \cdot e^{-k\tau} \quad (4)$$

$[\text{CH}_3^{131}\text{I}]_0$: Konzentration des $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ vor dem Bett

$[\text{CH}_3^{131}\text{I}]$: Konzentration des $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ in oder hinter dem Bett (entsprechend Wert von τ)

τ : Verweilzeit, s

Die Wirksamkeit eines Sorbens hinsichtlich der Rückhaltung einer radioaktiven Substanz läßt sich durch verschiedene Größen, wie Dekontaminationsfaktor (DF), Abscheidegrad (R, %), Durchlaßgrad (P, %) und Leistungsindex (K, s⁻¹) charakterisieren. DF, R und P lassen sich folgendermaßen durch Aktivitäten ausdrücken:

$$DF = \frac{A_i}{A_p} \quad (5)$$

$$R = \frac{100 A_r}{A_i} \quad (6)$$

$$P = \frac{100 A_p}{A_i} \quad (7)$$

A_i : eingeleitete Aktivität

A_r : abgeschiedene Aktivität

A_p : durchgelassene Aktivität

Die genannten Größen können in identischer Weise ebenfalls durch Aktivitätskonzentrationen dargestellt werden.

Zwischen Dekontaminationsfaktor, Abscheidegrad und Durchlaßgrad besteht folgender Zusammenhang:

$$\frac{100}{DF} = 100 - R = P \quad (8)$$

Der Leistungsindex ist folgendermaßen definiert:

$$K = \frac{1}{\tau} \cdot \log DF \quad (9)$$

Aus den Gl. (3) und (9) folgt:

$$K = k \log e \quad (10)$$

Der Leistungsindex ist also eine Geschwindigkeitskonstante.

Aus den angegebenen Beziehungen läßt sich folgendes herleiten:

$$P = 100 \cdot e^{-k \tau} \quad (11)$$

$$P = 100 \cdot e^{-k' l} \quad (12)$$

$$k = \frac{K}{\log e} \quad (13)$$

$$k' = \frac{K}{v \log e} \quad (14)$$

l : Bettiefe, cm

v : lineare Luftgeschwindigkeit, $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$

Die Gl. (11) und (12) implizieren, daß bei halblogarithmischer graphischer Darstellung von P und τ bzw. l eine Gerade resultiert. Das ist erfahrungsgemäß bis auf bestimmte Ausnahmen der Fall (vgl. Abb. 2). Diese Ausnahmen sind bei $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ großer Reinheit im wesentlichen bedingt durch:

- a) verschieden starke Abscheidung innerhalb des Bettes, z.B. infolge verschieden starker Alterung;
- b) reversible Abscheidung, z.B. infolge Sekundärreaktionen (Oxidation) bei hoher Temperatur.

3. Frühere Untersuchungen

In der Literatur ist eine Vielzahl von Untersuchungen zur Abscheidung von $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ an imprägnierten Aktivkohlen zu finden /28, 35, 57/. Im folgenden werden nur mit KI_x -imprägnierten Aktivkohlen durchgeführte Arbeiten berücksichtigt. Es wird auf alle Parameter eingegangen, die bei einer vorgegebenen Kohle von Bedeutung sein können und in einschlägigen Testvorschriften /3/ festgelegt werden. Diese Parameter sind Temperatur, relative Feuchte, lineare Luftgeschwindigkeit, Vorströmzeit (Vorbefeuchtungszeit), Einleitzeit, Nachströmzeit (Spülzeit) und Trägerkonzentration ($\text{CH}_3^{127}\text{I}$ -Konzentration). Außerdem wird u.a. auf Schüttdichte (Packungsdichte), Bettdurchmesser und Mischungsgrad (Anordnung) der Aktivkohle eingegangen. Soweit nicht anders angegeben, werden die Testbedingungen im wesentlichen durch die in Tab. 3 aufgeführten Werte abgedeckt. Es wird meistens der Einfluß der Parameter auf den Leistungsindex skizziert, auch wenn dieser in der betreffenden Veröffentlichung explizit nicht angegeben ist.

3.1 Temperatur

Bei konstanter relativer Feuchte wurde bei Erhöhung der Temperatur von Raumtemperatur auf größenordnungsmäßig 100°C meistens ein Anstieg von K gefunden /8, 29, 46/. Der Anstieg war teils linear, teils stärker als linear. In einigen Untersuchungen wurde im genannten Temperaturbereich keine Änderung von K festgestellt /1,5/. Bei Temperaturen zwischen 100°C und 200°C wurden bei längerer Nachströmzeit relativ niedrige K-Werte gefunden /9/.

Der Anstieg von K mit steigender Temperatur beruht auf der Erhöhung der Geschwindigkeit fast aller Reaktionsschritte. Die bei sehr hohen Temperaturen relativ geringen K-Werte können auf sekundäre Reaktionen, insbesondere auf Oxidationen zurückgeführt werden.

3.2 Relative Feuchte

Bei Erhöhung der relativen Feuchte der Luft wurde von allen Experimentatoren eine Erniedrigung von K festgestellt, zumindest in bestimmten Feuchtebereichen /5,8,9,11,13,17,33,39,46,51,53/. Die Erniedrigung von K war teils kontinuierlich (linear oder exponentiell), teils nicht kontinuierlich. Im letzten Fall wurde ein starker Abfall von K bei mittlerer relativer Feuchte (40 - 60 %) beobachtet.

Der negative Einfluß der relativen Feuchte auf K ist vor allem auf die verringerte Adsorptionsgeschwindigkeit von $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ nach Beladung der Aktivkohleoberfläche mit Wasser zurückzuführen. Eine verringerte Diffusionsgeschwindigkeit in den verengten Poren kann ebenfalls von Bedeutung sein.

Die Wasseraufnahme der Aktivkohle ist mit zunehmender relativer Feuchte bei mittleren Werten besonders groß. Eine Korrelation zwischen Wasseraufnahme und K ist aber nur in begrenztem Umfang möglich /16, 17/.

3.3 Lineare Luftgeschwindigkeit

Von fast allen Experimentatoren wurde eine Zunahme von K mit ansteigender linearer Luftgeschwindigkeit beobachtet, zumindest in bestimmten Geschwindigkeitsbereichen /5,12,14,34,36,38,39,42,46/. Die Erhöhung war meistens kontinuierlich, und zwar schwächer als linear. Bei Luftgeschwindigkeiten oberhalb von 20 bis 40 cm/s war die Änderung relativ gering. In einer Arbeit wurde keine Änderung von K im gesamten Geschwindigkeitsbereich festgestellt (25 - 120 cm/s)/8/.

Der i. allg. beobachtete positive Einfluß der Luftgeschwindigkeit auf K ist auf eine Erhöhung der Filmdiffusionsgeschwindigkeit zurückzuführen: Die Schichtdicke der ruhenden Luft an

der Kornoberfläche nimmt mit steigender Luftgeschwindigkeit ab. Steigende Turbulenz trägt dazu bei. (Der allmähliche Übergang von laminarer in turbulente Strömung erfolgt bei den vorliegenden Bedingungen größenordnungsmäßig zwischen 10 und 100 cm/s.)

3.4 Vorströmzeit

Bei frischer Aktivkohle wurde ohne Vorströmen ein größerer K-Wert als mit Vorströmen während 10 bis 20 h gefunden /17, 46, 53, 54, 56/. Mit weiter zunehmender Vorströmzeit war K praktisch konstant. In einer Arbeit wird über eine Abnahme von K mit steigender Vorströmzeit im gesamten untersuchten Bereich (ca. 100 h) berichtet /16/.

Bei gealterter Aktivkohle wurden bei niedriger Temperatur ähnliche Ergebnisse, bei hoher Temperatur (80 - 90 °C) jedoch teilweise eine Zunahme von K mit steigender Vorströmzeit festgestellt /29, 54, 55/.

Die Abnahme von K mit zunehmender Vorströmzeit auf etwa 10 bis 20 h beruht auf steigender Adsorption von Wasser bis zum Adsorptionsgleichgewicht. Eine Abnahme mit weiter steigender Vorströmzeit ist auf sekundäre Reaktionen (Reaktionen von O₂ und H₂O mit der Aktivkohle und/oder dem Imprägnans) zurückzuführen. Diese Reaktionen sind zum Teil irreversibel /16, 17/. Die Erhöhung von K beim Vorströmen von gealterter Aktivkohle beruht auf Desorption von Schadstoffen (z. B. Lösungsmitteln).

3.5 Einleitzeit

In einer Arbeit wurde kein Einfluß der Einleitzeit auf K beobachtet /46/. In einer anderen Arbeit wurde eine Erhöhung von K mit steigender Einleitzeit im untersuchten Bereich (10 h) festgestellt /11/.

Ein Einfluß der Einleitzeit ist insbesondere über die Trägerkonzentration bzw. Beladung der Aktivkohle möglich (s. Kap. 3.7).

3.6 Nachströmzeit

Bei niedrigen Temperaturen wurde meistens keine Änderung von K mit steigender Nachströmzeit verzeichnet, selbst nicht bei Nachströmzeiten bis 100 h und mehr /11, 18, 34, 38, 39, 42, 46/. Teilweise wurde aber eine laufende Abgabe von ^{131}I während der gesamten Nachströmzeit von mehreren Stunden beobachtet /8, 38, 43/.

Bei hohen Temperaturen (100 - 200 °C) wurde eine starke Desorption von ^{131}I beim Nachströmen festgestellt /9/.

Die Desorption von ^{131}I beim Nachströmen ist auf sekundäre Reaktionen (Oxidation) zurückzuführen.

3.7 Trägerkonzentration

Die Trägerkonzentration ($\text{CH}_3^{127}\text{I}$ -Konzentration) ist verknüpft mit der Beladung der Aktivkohle (s. u.). Bei Variation der Trägerkonzentration bzw. Beladung über bis zu neun Größenordnungen wurde praktisch keine Änderung von K verzeichnet /10, 11, 26, 34, 38, 53/. Bei Annäherung der Beladung auf 10^{-4} bis 10^{-3} g ^{127}I /g Aktivkohle trat jedoch ein Abfall von K ein. Eine untere Grenze der Konstanz von K konnte nicht verifiziert werden.

Die obere Grenze kann auf eine merkliche Rückreaktion des Isotopenaustausches zurückgeführt werden. Das ist der Fall bei - gegenüber K ^{127}I - nicht vernachlässigbarer Beladung der Aktivkohle mit $\text{CH}_3^{127}\text{I}$. Diese ist, je nach den Testbedingungen, nur in grober Näherung aus der Beladung mit ^{131}I berechenbar, da das $\text{CH}_3^{127}\text{I}$ schon während des Tests in erheblichem Maße wandern bzw. desorbieren kann /32, 58/.

Die bei großer Bettiefe bzw. Verweilzeit teilweise feststellbare Abnahme von K kann auf in geringen Anteilen vorhandene schwerer abscheidbare Iodformen zurückgeführt werden. Im übrigen ist durch den natürlichen Iodgehalt der Luft von größenordnungsmäßig 10^{-8} g/m³ /44/ eine untere Grenze für die CH₃¹²⁷I-Konzentration gegeben. (Für Iodfilter in Kernkraftwerken wäre eine untere Grenze der Konstanz von K für CH₃¹³¹I also bedeutungslos.)

3.8 Schüttdichte

Bei Zunahme der Schüttdichte (Packungsdichte) der Aktivkohle von etwa 0,4 auf 0,6 g/cm³, eine in praktischer Hinsicht erhebliche Variation, wurde ein Anstieg von K festgestellt. K war der Schüttdichte proportional /46/. Diese Proportionalität läßt sich mit einfachen Überlegungen unter der Annahme herleiten, daß die Erhöhung der Schüttdichte, abgesehen von einer Erhöhung der Aktivkohlemenge im Bett, keine weiteren Systemänderungen bewirkt.

3.9 Bettdurchmesser

Untersuchungen über den Einfluß des Bettdurchmessers auf K sind nicht bekannt. Grundsätzlich ist ein Einfluß des Bettdurchmessers über den Wandeffekt anzunehmen: In der Nähe der Wand ist die Dichte gering und die lineare Luftgeschwindigkeit weist in einer Entfernung von etwa einem Korndurchmesser von der Wand ein Maximum auf /45/. Dieser Effekt ist bei kleinem Bettdurchmesser also am größten.

3.10 Mischungsgrad

Der Mischungsgrad der Aktivkohle (Anordnung) ist insbesondere bei gealterter Aktivkohle von möglichem Interesse. Im Falle unveränderter Schichtung der Aktivkohle ist nämlich die Alterung in dem in Strömungsrichtung vorderen Teil des Bettes am größten.

Es ist eine Arbeit bekannt, in der der Einfluß des Mischungsgrades auf K untersucht wurde /25/. Eine zunehmende Alterung der Aktivkohle wurde durch einen steigenden Anteil an Kies, der $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ praktisch nicht abscheidet, simuliert. Der K-Wert des gemischten Systems war geringfügig niedriger als der des nicht gemischten. Wie in Kap. 5.10 gezeigt wird, ist ein Einfluß des Mischungsgrades auf K jedoch nicht zu erwarten. (Eventuelle strahlungsmeßtechnische Effekte müssen selbstverständlich berücksichtigt werden.)

3.11 Weitere Parameter

Der K-Wert wird noch von weiteren Parametern wie Korndurchmesser und Wassergehalt (vor und nach dem Test) beeinflusst. In einer Arbeit wurde eine umgekehrte Proportionalität zwischen K und Korndurchmesser festgestellt /27/. Ein hoher Wassergehalt läßt einen niedrigen K-Wert erwarten. Eine exakte Korrelation des Wassergehaltes und des K-Wertes ist aber nicht möglich /16, 17/.

Eine große Bedeutung hat, wie in Kap. 2 erwähnt, die von Charge zu Charge schwankende Struktur der Poren und ihrer Oberfläche, so daß die K-Werte verschiedener Chargen derselben Aktivkohle stark variieren können.

Die in den vorliegenden Untersuchungen verwendete Aktivkohle 207 B (KI, 8 -12 mesh) zeigt, wie andere Aktivkohlen guter Qualität, bei einer relativen Feuchte von 98 - 100 % und sonstigen, in Tab. 3 wiedergegebenen Bedingungen (Standardwerte), K-Werte zwischen 7 und 9. In der Literatur werden für dieselbe Aktivkohle unter ähnlichen Bedingungen, gemessen über acht Jahre an verschiedenen Chargen, K-Werte zwischen 6 und 14 angegeben /27/.

4. Experimentelles

Die Untersuchungen wurden, wie erwähnt, mit der in Iodfiltern deutscher Kernkraftwerke vorwiegend eingesetzten Aktivkohle 207 B (Imprägnierung: 1,5 % KI; Korngröße: 8 - 12 mesh; Grundmaterial: Steinkohle) der Firma Sutcliffe Speakman, England, durchgeführt. In den parametrischen Tests wurde, außer im Falle einer gealterten Aktivkohle, immer dieselbe Charge (A) eingesetzt. In einigen Tests unter Standardbedingungen (s.u.) wurden auch andere Chargen (B-E) verwendet. Die Korngrößenverteilung der untersuchten Chargen geht aus Tab. 1 hervor. Weitere Daten sind in Tab. 2 enthalten. Obwohl der Leistungsindex für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ bei der Charge A am niedrigsten war, kann sie als typische Charge angesehen werden.

$\text{CH}_3^{131}\text{I}$ wurde in der üblichen Weise aus Na^{131}I und $(\text{CH}_3)_2\text{SO}_4$ hergestellt. Es wurde eine Aktivität von 10^{-4} bis 10^{-3} Ci ^{131}I pro Test verwendet. Damit betrug der minimal nachweisbare Durchlaßgrad 10^{-6} bis $10^{-5}\%$.

Die Untersuchungen wurden mit der in Abb. 1 wiedergegebenen Standardapparatur bei Normaldruck durchgeführt. Lediglich bei hoher Temperatur wurden geringfügige Abänderungen vorgenommen. Weitere Angaben zur Durchführung der Tests finden sich in der Literatur /57/.

Die Testparameter sind in Tab. 3 aufgeführt. Angegeben sind die Standardwerte (Ausgangswerte) und die Variationsbereiche. Wie bei der Aufführung der Ergebnisse in Kap. 5 angegeben, wurden die Bereiche teilweise überschritten. Außerdem wurden noch weitere Parameter untersucht. Soweit nicht anders verzeichnet, wich jeweils nur ein Parameter vom Standardwert ab. Die Testbetten bestanden aus 20 Teilbetten (Tiefe und Durchmesser jeweils 2,5 cm).

Die in Tab. 3 angegebenen Standardwerte entsprechen im wesentlichen den Testbedingungen für Aktivkohle aus Normalbetriebs-

filtern deutscher Kernkraftwerke und somit den Auslegungsbedingungen dieser Filter. Die Werte, die in ausländischen Laboratorien bei Routinetests häufig verwendet werden, sind in Tab. 3 ebenfalls verzeichnet.

Die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse geht aus den Resultaten hervor, die in jeweils zwei Tests mit den Chargen A bis E unter Standardbedingungen erzielt wurden (Tab. 2, Abb. 2). Die Standardabweichungen (1σ -Vertrauensebene) der mittleren Leistungsindexe der Teilbetten von 0,2 bis 0,4 s⁻¹ sind typische Werte. Lediglich bei extremen Testbedingungen und/oder Vorliegen von nur wenigen Werten (z.B. bei extrem starker Abscheidung) ergeben sich größere Standardabweichungen. In verschiedenen Labors gemessene K-Werte unterscheiden sich in viel stärkerem Maße /47/.

Im folgenden wird, wie oben, der Mittelwert der Leistungsindexe der Teilbetten (differentielle Leistungsindexe) und die Standardabweichung des Mittelwertes verwendet. Es läßt sich zeigen, daß der genannte Mittelwert identisch ist mit dem Leistungsindex des jeweiligen Gesamtbettes (integraler Leistungsindex). Niedrige, bei großer Bettiefe teilweise auftretende differentielle Leistungsindexe werden bei der Mittelwertbildung nicht berücksichtigt. (Diese können auf schwerer abscheidbare Iodformen zurückgeführt werden.) Nähere Angaben zur Testauswertung finden sich im Anhang.

Bei der Wiedergabe der Ergebnisse in Kap. 5 wird als Leistungsindex der Charge A unter Standardbedingungen gemäß Tab. 2 folgender Wert verwendet:

$$K = 12,5 \pm 0,3 \text{ s}^{-1}$$

Die Änderung dieses Wertes während der Zeit der Untersuchungen infolge von Alterung ist praktisch vernachlässigbar, da die Untersuchungen im wesentlichen während eines Zeitraums von nur einem halben Jahr durchgeführt wurden.

Tab. 1: Korngrößenverteilung von 207B (KI) verschiedener Chargen^a

| Korngröße (mesh) | Gewichtsanteil (%) | | | | |
|---------------------|----------------------|----------|----------|----------|----------|
| | Charge A | Charge B | Charge C | Charge D | Charge E |
| < 8 | 2,3 | 5,2 | 2,6 | 1,7 | 2,4 |
| 8 - 12 | 85,7 | 82,5 | 84,1 | 81,2 | 85,0 |
| 12 - 16 | 10,5 | 9,6 | 11,7 | 15,1 | 11,1 |
| 16 - 22 | 0,3 | 0,5 | 0,4 | 0,8 | 0,3 |
| > 22 | 1,2 | 2,2 | 1,3 | 1,1 | 1,3 |

^a nominelle Korngröße: 8 - 12 mesh (2,0 - 1,4 mm gemäß BS410/ 7/);
weitere Daten in Tab. 2

Tab. 2: Schüttdichte und Wassergehalt sowie Leistungsindex von 207B (KI) verschiedener Chargen für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ in Tests unter gleichen Bedingungen ^a (vgl. Abb. 2)

| Charge ^b | Schüttdichte ^c (g/m ³) | Wassergehalt vor Test ^{c,d} (%) | Test- nummer | Wassergehalt nach Test ^{c,d} (%) | Leistungsindex ^e (s ⁻¹) |
|---------------------|--|--|-----------------|---|---|
| A | 0,51 | 4,0 | 1 | 17,6 | 12,4 ± 0,3 |
| | | | 2 | 17,0 | 12,5 ± 0,2 |
| B | 0,50 | 8,5 | 1 | 24,4 | 13,3 ± 0,2 |
| | | | 2 | 23,7 | 13,6 ± 0,2 |
| C | 0,48 | 9,5 | 1 | 21,7 | 13,8 ± 0,4 |
| | | | 2 | 21,5 | 14,1 ± 0,3 |
| D | 0,50 | 8,8 | 1 | 20,4 | 15,2 ± 0,2 |
| | | | 2 | 20,5 | 15,1 ± 0,4 |
| E | 0,46 | 4,0 | 1 | 22,0 | 16,1 ± 0,3 |
| | | | 2 | 22,2 | 17,0 ± 0,2 |

^a Standardwerte (s. Tab. 3)

^b s. Tab. 1

^c bestimmt in Anlehnung an Normverfahren /41, 2/

^d bezogen auf wasserfreie Kohle

^e Mittelwert der Leistungsindexe der Teilbetten und Standardabweichung des Mittelwerts

Tab. 3: Testparameter

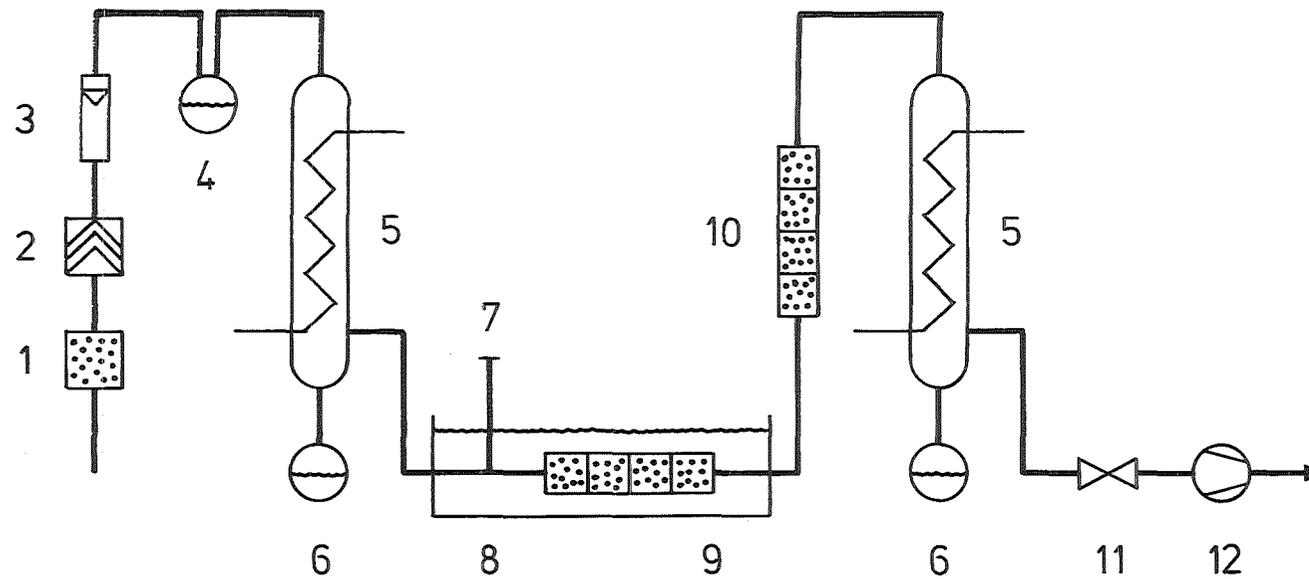
| Parameter | Einheit | Wert | | |
|----------------------------------|-------------------|---------------------------------|---------|---------------------------|
| | | beschriebene Tests ^a | | andere Tests ^b |
| | | Standard | Bereich | |
| Temperatur | °C | 30 | 20 - 80 | 20 - 30 |
| relative Feuchte | % | 70 | 20 - 99 | 70 - 99 |
| lineare Luftgeschwindigkeit | cm/s | 50 | 10 - 90 | 20 - 50 |
| Vorströmzeit ^c | h | 20 | 0 - 60 | 16 - 20 |
| Einleitzeit ^d | h | 1 | 0 - 3 | 0,2- 2 |
| Nachströmzeit ^e | h | 2 | 0 - 6 | 1 - 4 |
| Trägerkonzentration ^f | mg/m ³ | 1 | 1 -100 | ≈ 1 |

^a Werte für die in diesem Bericht beschriebenen Tests;
teilweise Bereiche überschritten und weitere Parameter variiert (s. Tab. 9 - 11);
Bettiefe: 50 cm (20 X 2,5 cm); Bettdurchmesser : 2,5 cm

^b Werte, die in verschiedenen Laboratorien häufig verwendet werden

^c Vorbefeuchtungszeit; ^d Beaufschlagungszeit; ^e Spülzeit

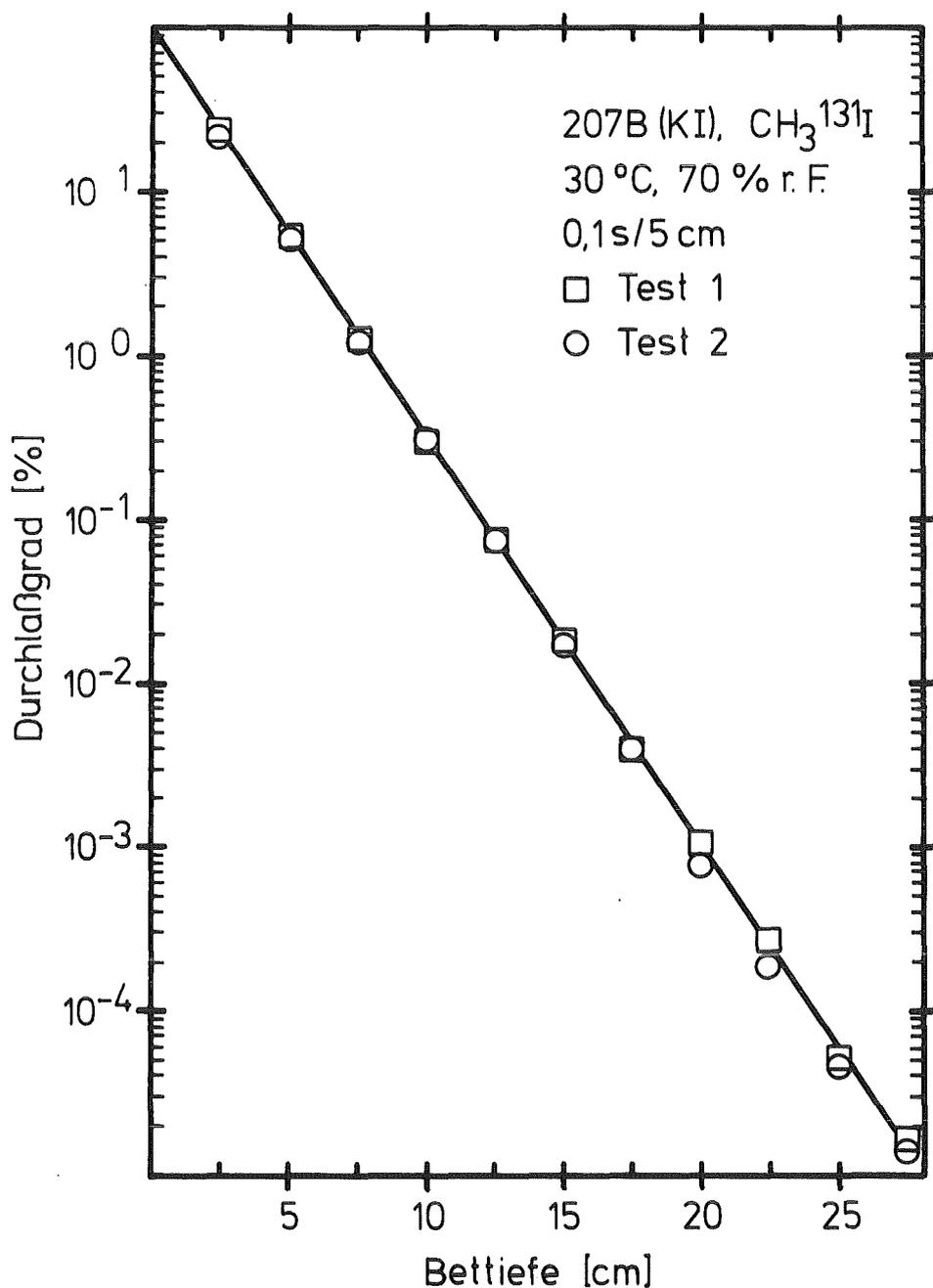
^f CH₃¹²⁷I-Konzentration (CH₃¹³¹I - Konzentration vernachlässigbar klein)



Apparatur zur Prüfung von IodSORPTIONSMATERIAL

Abb. 1

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



KfK LAF II D8214

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe
in Tests unter gleichen Bedingungen

Abb. 2^a

^a Charge A

5. Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der parametrischen Untersuchungen zur Abscheidung von $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ an der Aktivkohle 207 B (KI), Charge A, sowie die Schlußfolgerungen wiedergegeben. Auf die Ergebnisse anderer Autoren, die in Kap. 3 aufgeführt wurden, wird in der Regel nicht noch einmal eingegangen.

Die Ergebnisse werden in Form von Mittelwerten der Leistungsindexe der Teilbetten und Standardabweichungen der Mittelwerte tabellarisch und graphisch dargestellt. Teilweise werden graphisch auch die (integralen) Durchlaßgrade wiedergegeben. Aus den Leistungsindexen lassen sich andere Größen (z. B. Dekontaminationsfaktor) in einfacher Weise errechnen (s. Kap. 2).

5.1 Temperatur

Der Einfluß der Temperatur (bei konstanter relativer Feuchte bzw. angeglichenem Taupunkt) auf den Leistungsindex und den Durchlaßgrad geht aus Tab. 4 und den Abb. 3 bzw. 7 hervor. K nimmt linear mit steigender Temperatur zu. Der Zusammenhang läßt sich annähernd durch folgende Gleichung wiedergeben:

$$K = 10 + 0,084 t \quad (15)$$

t : Temperatur, °C

Der direkte Einfluß der Temperatur ist gering im Vergleich zum indirekten Einfluß über die relative Feuchte (s.u.).

Hinsichtlich der Genauigkeit bei der Bestimmung von K ergibt sich bei den vorliegenden Bedingungen folgendes: Soll (bei konstanter relativer Feuchte bzw. angeglichenem Taupunkt) K mit einem Fehler von maximal 5 % bestimmt werden, darf die Temperatur maximal ca. 5 °C von der Solltemperatur abweichen.

Einige bei 130 und 180 °C gemessene K-Werte sind in Tab. 9 aufgeführt. Infolge der großen Standardabweichung von K bei 180 °C ist ein deutlicher Einfluß der Temperatur in diesem Bereich nicht zu erkennen. Wegen der (aus apparativen Gründen) niedrig eingestellten relativen Feuchte sind die bei 130 °C und 180 °C gemessenen Werte höher als die mit Gl. (15) für diese Temperaturen und 70 % relative Feuchte berechneten Werte (21 bzw. 25 s⁻¹).

5.2 Relative Feuchte

Die bei Variation der relativen Feuchte der Luft erzielten Ergebnisse sind in Tab. 5 sowie in den Abb. 4 und 8 wiedergegeben. K fällt exponentiell mit steigender relativer Feuchte ab. Es gilt:

$$K = 35 \cdot e^{-0,015 h} \quad (16)$$

h : relative Feuchte, %

Die relative Feuchte ist (bei gleichem Taupunkt) stark von der Temperatur abhängig. Für Luft von 30 °C und 70 % r.F. läßt sich für den Bereich um 30 °C folgende Beziehung herleiten:

$$h = 380 \cdot e^{-0,056 t} \quad (17)$$

Aus den Gl. (16) und (17) folgt:

$$K = -9,3 + 0,74 t \quad (18)$$

Gl. (18) gibt den indirekten Einfluß der Temperatur auf K über die relative Feuchte wieder. Entsprechend den Multiplikatoren von t in den Gl. (15) und (18) ist der indirekte Einfluß der Temperatur rund 10mal so groß wie der direkte Einfluß.

Für die Bestimmung von K folgt aus den genannten Beziehungen, daß im Bereich von 70 % r. F. bei einem maximalen K-Fehler von 5 % die relative Feuchte maximal um etwa 2 - 3 Einheiten (%) und somit die Temperatur um maximal ca. 0,5 °C schwanken darf.

Der starke indirekte Einfluß der Temperatur auf K wird bei Iodfiltern durch Vorerhitzen der Luft ausgenutzt.

5.3 Lineare Luftgeschwindigkeit

Der Einfluß der linearen Luftgeschwindigkeit geht aus Tab. 6 sowie den Abb. 5, 9 und 10 hervor. Mit zunehmender linearer Luftgeschwindigkeit steigt K unterhalb von 30 cm/s stark an, darüber nimmt es relativ wenig zu. Es ergibt sich folgende Beziehung:

$$K = 1,9 \cdot v^{0,50} \quad (19)$$

v : lineare Luftgeschwindigkeit, $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$

Aus den Ergebnissen folgt, daß oberhalb von 30 cm/s die lineare Luftgeschwindigkeit um maximal ca. 5 cm/s schwanken darf, wenn der Fehler von K unter 5 % bleiben soll.

Mit steigender linearer Luftgeschwindigkeit nimmt der Druckabfall in einem Aktivkohlebett stark zu. Für die in den Untersuchungen eingesetzten Aktivkohlebetten (Bettiefe: 50 cm) wurde folgende Beziehung ermittelt:

$$\Delta p = 0,25 \cdot v^{1,4} \quad (20)$$

Δp : Druckabfall, mbar

Aus den Gl. (19) und (20) folgt:

$$K = 3,0 \cdot (\Delta p)^{0,35} \quad (21)$$

Gl.(21) zeigt, daß mit einer Vergrößerung der linearen Luftgeschwindigkeit, ausgedrückt durch die Erhöhung des Druckabfalls, eine sehr geringe Zunahme von K verbunden ist.

Der Durchlaßgrad hängt außer vom K-Wert von der Verweilzeit ab. Bei Kombination von Gl. (11) und (19) ergibt sich:

$$P = 100 \cdot e^{-4,3 \cdot v^{0,50} \cdot \tau} \quad (22)$$

Bei einem Bett von z. B. 10 cm Tiefe folgt für verschiedene lineare Luftgeschwindigkeiten und somit Verweilzeiten aus Gl. (22) (vgl. Abb. 9 und 10):

$$v = 10 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}, \quad \tau = 1,0 \text{ s} : P = 1,2 \cdot 10^{-4} \%$$

$$v = 50 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}, \quad \tau = 0,2 \text{ s} : P = 2,3 \cdot 10^{-1} \%$$

Bei Vergrößerung der linearen Luftgeschwindigkeit wird die Erhöhung des K-Wertes also durch die Erniedrigung der Verweilzeit überkompensiert. Die in Iodfiltern deutscher Kernkraftwerke oft verwendete lineare Luftgeschwindigkeit von 50 cm/s dürfte das ökonomisch vertretbare Maximum darstellen.

5.4 Vorströmzeit

Die bei Variation der Vorströmzeit ermittelten Ergebnisse sind in Tab. 7 sowie in den Abb. 6 und 11 dargestellt. Mit zunehmender Vorströmzeit fällt K ab, oberhalb von 20 h aber nur in geringem Maße. Bei einer Wiederholung des Tests mit 60 h Vorströmzeit wurde der gleiche K-Wert wie bei 20 h Vorströmzeit gefunden. Aus den Ergebnissen folgt, daß, entsprechend derzeitiger Praxis, bei neuer Aktivkohle eine Vorströmzeit von 16 bis 20 h zur Erzielung belastbarer Ergebnisse sinnvoll ist.

Einige weitere, bei höherer relativer Feuchte und gealterter Aktivkohle erzielten Ergebnisse sind in Tab. 10 aufgeführt. Die bei Erhöhung der Vorströmzeit von 0 auf 20 h festgestellte Differenz der K-Werte ist bei der gealterten Aktivkohle nicht kleiner als bei der neuen, sowohl bei 70 % r.F. als auch bei 99 % r.F.. Durch das Vorströmen wurde die gealterte Aktivkohle also nicht regeneriert. Aus den Ergebnissen ist zu schließen, daß, entsprechend derzeitiger Praxis, auch bei gealterter Aktivkohle eine Vorströmzeit von 16 bis 20 h sinnvoll ist. Das gilt zumindest für deutsche Kernkraftwerke, in denen erfahrungsgemäß die Alterung vorwiegend auf Einwirkung von schwerflüchtigen organischen Substanzen beruht, d.h. von Substanzen, die nicht leicht desorbieren /21, 22, 24, 55/.

5.5 Einleitzeit

Die bei verschiedenen Einleitzeiten gewonnenen Ergebnisse finden sich in Tab. 7 sowie in den Abb. 6 und 12. Ein Einfluß der Einleitzeit ist nicht festzustellen. Das bedeutet, daß zur Vereinfachung der Testdurchführung die Einleitzeit auf einige Minuten gesenkt werden kann.

5.6 Nachströmzeit

Die bei Variation der Nachströmzeit erzielten Ergebnisse sind in Tab. 7 sowie in den Abb. 6 und 13 wiedergegeben. Ein Einfluß der Nachströmzeit ist nicht zu erkennen. Ein möglicher Verzicht auf das Nachströmen ist aber generell nicht von Vorteil: Beim Nachströmen wird an der Wand der Apparatur haftendes $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ desorbiert und an der Aktivkohle abgeschieden, d.h. die Kontaminationsgefahr wird durch das Nachströmen verringert.

Aus Tab. 9 geht der Einfluß des Nachströmens bei hoher Temperatur (130 °C) hervor. Zumindest in den bei 20 % r.F. durchgeführten Versuchen ist die Abnahme des K-Wertes infolge von Desorption während des Nachströmens deutlich zu erkennen.

5.7 Trägerkonzentration

Die Ergebnisse, die bei Erhöhung der $\text{CH}_3^{127}\text{I}$ -Konzentration erhalten wurden, sind in Tab. 8 und in Abb. 14 wiedergegeben. Tab. 8 zeigt, daß der K-Wert mit steigender $\text{CH}_3^{127}\text{I}$ -Konzentration ($> 1 \text{ mg/m}^3$) abnimmt. Ein Einfluß der Nachströmzeit ist nicht zu beobachten. Aus Abb. 14 geht hervor, daß der Einfluß der $\text{CH}_3^{127}\text{I}$ -Konzentration vor allem bei kleiner Bettiefe in Erscheinung tritt. Bei $10 \text{ mg CH}_3^{127}\text{I/m}^3$ ist der Effekt nur bei kleiner Bettiefe bemerkbar.

Der Effekt kann, wie in Kap. 3.7 dargelegt, auf eine merkliche Rückreaktion des Isotopenaustausches infolge hoher Beladung der Aktivkohle mit $\text{CH}_3^{127}\text{I}$ zurückgeführt werden. Bezogen auf eine Bettiefe von 5 cm ergibt sich bei $1 \text{ mg CH}_3^{127}\text{I/m}^3$ eine Beladung von ca. $0,1 \text{ mg CH}_3^{127}\text{I/g}$ Aktivkohle und bei $10 \text{ mg CH}_3^{127}\text{I/m}^3$ eine solche von ca. $1 \text{ mg CH}_3^{127}\text{I/g}$. Die schon in früheren Untersuchungen gefundene obere Grenze für die Konstanz von K ($0,1$ bis $1 \text{ mg CH}_3^{127}\text{I/g}$) wird somit bestätigt.

Die bei derzeitiger Praxis in Aktivkohletests eingehaltene maximale Beladung von $0,1 \text{ mg CH}_3^{127}\text{I/g}$ Aktivkohle ist also sinnvoll. Bei Iodfiltern in Kernkraftwerken ist im Normalbetrieb eine Überschreitung der genannten maximalen Beladung nicht zu erwarten, zumindest nicht aufgrund des in der Regel ausschlaggebenden natürlichen Iodgehalts der Luft. Hinzu kommt, daß $\text{CH}_3^{127}\text{I}$ laufend von der Aktivkohle desorbiert.

5.8 Schüttdichte

Die Ergebnisse, die bei Erniedrigung der Schüttdichte (Pakungsdichte) der Aktivkohle erzielt wurden, sind in Tab. 11 und in Abb. 15 wiedergegeben. Die niedrige Schüttdichte von $0,49 \text{ g/cm}^3$ entspricht einer losen Schüttung. Bei dieser war die Reproduzierbarkeit relativ gering (Kanalbildung). Aus den beiden Tests, in denen K-Werte mit normaler Standardabweichung ($< 0,5 \text{ s}^{-1}$) gefunden wurden, folgt ein mittlerer K-Wert von $11,9 \text{ s}^{-1}$ für die Schüttdichte von $0,49 \text{ g/cm}^3$.

Wie in Kap. 3.8 dargelegt, sollte, abgesehen von Extremwerten, K der Schüttdichte proportional sein:

$$K \propto \rho \quad (23)$$

ρ : Schüttdichte, $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$

Mit Gl. (23) folgt aus dem K-Wert von $12,5 \text{ s}^{-1}$ bei $0,51 \text{ g/cm}^3$ (normale Schüttdichte) ein K-Wert von $12,0 \text{ s}^{-1}$ bei $0,49 \text{ g/cm}^3$. Im Rahmen der Meßgenauigkeit wurde also keine Abweichung von der Proportionalität zwischen K-Wert und Schüttdichte gefunden.

Beim Herstellen von Testbetten aus Aktivkohle derselben Charge sind Schüttdichteschwankungen von mehr als ca. 5 % nicht zu erwarten. Folglich sind auch keine K-Wert-Schwankungen von mehr als 5 % zu befürchten. Bei Iodfiltern können eventuell größere Schüttdichtevariationen auftreten. Durch eine verstärkte Verdichtung der Aktivkohle (z.B. durch Anwendung von Druck) ist aber keine sinnvolle Erhöhung des Abscheidegrads der Iodfilter zu erwarten.

5.9 Bettdurchmesser

Der bei Erhöhung des Bettdurchmessers auf 5 cm festgestellte K-Wert ist in Tab. 11 angegeben. (Aus apparativen Gründen wurde der Test bei einer linearen Luftgeschwindigkeit von 25 cm/s

durchgeführt.) Er weicht von dem beim üblichen Bettdurchmesser von 2,5 cm gemessenen Wert nicht ab. Der in Kap. 3.9 beschriebene Wandeffekt macht sich also nicht bemerkbar. Bei der in Iodfiltern häufig verwendeten Aktivkohle (8 - 12 mesh) können in Testbetten von 2,5 cm Durchmesser folglich realistische K-Werte erzielt werden.

5.10 Mischungsgrad

Wie in Kap. 3.10 erwähnt, ist der Mischungsgrad der Aktivkohle (Anordnung) insbesondere bei Alterung, die in dem in Strömungsrichtung vorderen Teil des Bettes am größten ist, von möglichem Interesse. Zur Bestimmung des Einflusses des Mischungsgrades wurden zwei Tests mit gealterter ($K = 1,5 \text{ s}^{-1}$) und neuer ($K = 12,5 \text{ s}^{-1}$) Aktivkohle im Volumenverhältnis 1:1 durchgeführt. Im ersten Fall wurden die Aktivkohlen vor dem Test gemischt. Im zweiten Fall wurden die Betten 1 bis 10 aus der gealterten Aktivkohle hergestellt, die Betten 11 bis 20 aus der neuen Aktivkohle (Gesamtbettiefe: 50 cm).

Die Ergebnisse sind in Tab. 11 und in Abb. 16 verzeichnet. Bei Bezug auf die Gesamtbettiefe von 50 cm, d.h. auf das gleiche Volumenverhältnis, ergeben sich praktisch die gleichen Werte.

Dieser Befund ist mit der Annahme, daß die Abscheidung an den beiden Aktivkohlen unabhängig voneinander und nach einer irreversiblen Reaktion erster Ordnung verläuft, zu erwarten. Mit dieser Annahme läßt sich für den K-Wert eines Bettes, das zwei Aktivkohlen enthält, folgende Beziehung herleiten:

$$K = \frac{x_1 K_1}{100} + \frac{x_2 K_2}{100} \quad (24)$$

K_1, K_2 : K-Werte der Aktivkohlen

x_1, x_2 : Volumenanteile der Aktivkohlen, %

Gl. (24) gilt unabhängig von der Anordnung der Aktivkohlen.

Der aus Gl. (24) für den vorliegenden Fall folgende K-Wert von 7,0 stimmt mit den gemessenen K-Werten näherungsweise überein.

Aus den Ergebnissen folgt hinsichtlich des Testens von gealterter Aktivkohle (z.B. Aktivkohle aus Kontrollfiltern), daß bei repräsentativ gemischten Proben realistische K-Werte erhalten werden. Aus diesen können nach den bekannten Formeln die Abscheidegrade bzw. Durchlaßgrade für die jeweiligen Bettiefen berechnet werden. (Beim Testen braucht die Bettiefe also nicht mit der des Iodfilters übereinzustimmen.)

5.11 Weitere Parameter

Im Rahmen der vorliegenden Untersuchungen wurden weitere Parameter wie Korndurchmesser und Wassergehalt nur indirekt mit der Charge geändert. Die bei verschiedenen Chargen derselben Aktivkohle feststellbaren, z.T. erheblich schwankenden K-Werte werden durch die in Tab. 2 angegebenen K-Werte veranschaulicht.

Tab. 4: Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$
als Funktion der Temperatur ^a
(vgl. Abb. 3 und 7)

| Temperatur (°C) | Leistungsindex (s ⁻¹) |
|--------------------|--------------------------------------|
| 20 | 11,8 ± 0,2 |
| 30 | 12,5 ± 0,3 |
| 40 | 13,7 ± 0,1 |
| 50 | 15,1 ± 0,2 |
| 60 | 14,8 ± 0,4 |
| 70 | 16,1 ± 0,2 |
| 80 | 16,0 ± 0,3 |

^a Kohle, soweit nicht anders angegeben:

Charge A (s. Tab. 1);

Testparameter, soweit nicht anders angegeben:

Standardparameter (s. Tab. 3);

Leistungsindex: Mittelwert der Leistungsindexe
der Teilbetten und Standardabweichung des Mittel-
werts

(alle Angaben auch für folgende Tabellen geltend)

Tab. 5: Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$
als Funktion der relativen Feuchte
(vgl. Abb. 4 und 8)

| relative Feuchte (%) | Leistungsindex (s^{-1}) |
|-------------------------|---------------------------------------|
| 20 | 27,1 \pm 0,7 |
| 30 | 22,0 \pm 0,2 |
| 40 | 20,1 \pm 1,0 |
| 50 | 16,9 \pm 0,4 |
| 60 | 15,8 \pm 0,3 |
| 70 | 12,5 \pm 0,3 |
| 80 | 10,8 \pm 0,2 |
| 90 | 9,8 \pm 0,2 |
| 99 | 8,0 \pm 0,1 |

Tab. 6: Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$
als Funktion der linearen Luftgeschwindigkeit
(vgl. Abb. 5, 9, 10)

| lineare Luft- geschwindigkeit (cm/s) | Leistungsindex (s^{-1}) |
|--|---------------------------------------|
| 10 | 5,9 \pm 0,1 |
| 15 | 7,4 \pm 0,4 |
| 20 | 8,6 \pm 0,4 |
| 25 | 9,8 \pm 0,1 |
| 30 | 11,1 \pm 0,3 |
| 50 | 12,5 \pm 0,3 |
| 70 | 14,4 \pm 0,2 |
| 90 | 16,4 \pm 0,2 |

Tab. 7: Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$
als Funktion der Vorströmzeit, Einleitzeit
und Nachströmzeit
(vgl. Abb. 6, 11, 12 und 13)

| Parameter | | | Leistungsindex (s^{-1}) |
|--------------------|---------|----------------|---------------------------------------|
| Name | Einheit | Wert | |
| Vorström- zeit | h | 0 | $14,8 \pm 0,2$ |
| | | 20 | $12,5 \pm 0,3$ |
| | | 40 | $12,1 \pm 0,3$ |
| | | 60 | $11,6 \pm 0,1$ |
| Einleit- zeit | h | 0 ^a | $12,4 \pm 0,4$ |
| | | 1 | $12,5 \pm 0,3$ |
| | | 2 | $12,8 \pm 0,3$ |
| | | 3 | $12,5 \pm 0,3$ |
| Nachström- zeit | h | 0 | $13,1 \pm 0,2$ |
| | | 2 | $12,5 \pm 0,3$ |
| | | 4 | $12,5 \pm 0,2$ |
| | | 6 | $13,0 \pm 0,2$ |

^a
genau: 3 min

Tab. 8: Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ als Funktion der Trägerkonzentration und Nachströmzeit ^a
(vgl. Abb. 14)

| Trägerkonzentration (mg/m^3) | Nachströmzeit (h) | Leistungsindex (s^{-1}) |
|---|----------------------|---------------------------------------|
| 1 | 2 | $12,5 \pm 0,3$ |
| | 20 | $12,7 \pm 0,2$ |
| 10 | 2 | $10,9 \pm 0,3$ |
| | 20 | $10,1 \pm 0,1$ |
| 100 | 2 | $5,4 \pm 0,2$ |
| | 20 | $5,2 \pm 0,1$ |

^a bei $< 1 \text{ mg}/\text{m}^3$ keine signifikanten Unterschiede feststellbar

Tab. 9: Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ als Funktion verschiedener Parameter (Temperatur, relative Feuchte, Nachströmzeit) ^a

| Temperatur (°C) | relative Feuchte (%) | Nachströmzeit (h) | Leistungsindex (s ⁻¹) |
|--------------------|-------------------------|----------------------|--------------------------------------|
| 130 | 2 | 2 | 53,3 ± 1,5 |
| | | 20 | 46,3 ± 9,1 |
| | 20 | 2 | 56,5 ± 2,3 |
| | | 20 | 49,7 ± 2,3 |
| 180 | < 1 | 2 | 46,2 ± 5,6 |

^a Vorströmzeit: 1 h

Tab. 10: Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$
als Funktion verschiedener Parameter
(Zustand der Kohle, relative Feuchte, Vorströmzeit)

| Zustand der Kohle | relative Feuchte (%) | Vorström- zeit (h) | Leistungsindex (s^{-1}) | Differenz der Leistungs- indexe (s^{-1}) |
|----------------------|----------------------------|--------------------------|---------------------------------------|--|
| neu | 70 | 0 | $14,8 \pm 0,2$ | 2,3 |
| | | 20 | $12,5 \pm 0,3$ | |
| | 99 | 0 | $12,5 \pm 0,5$ | 4,5 |
| | | 20 | $8,0 \pm 0,1$ | |
| gealtert | 70 | 0 | $11,8 \pm 0,3$ | 4,5 |
| | | 20 | $7,3 \pm 0,1$ | |
| | 99 | 0 | $10,0 \pm 0,6$ | 5,7 |
| | | 20 | $4,3 \pm 0,0$ | |

Tab. 11: Leistungsindex von 207B (KI) für $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ als Funktion verschiedener Parameter
(Schüttdichte der Kohle, Durchmesser der Kohlebetten, Anordnung der Kohle)
(vgl. Abb. 15 und 16)

| Parameter | | | Leistungsindex (s^{-1}) |
|--------------|-----------------|----------------------------|---------------------------------------|
| Name | Einheit | Wert | |
| Schüttdichte | g/cm^3 | 0,51 ^a | $12,5 \pm 0,3$ |
| | | 0,49 ^b | $12,5 \pm 0,2$ ^c |
| | | | $11,3 \pm 0,4$ ^c |
| | | $7,4 \pm 1,0$ ^c | |
| Durchmesser | cm | 2,5 | $9,8 \pm 0,1$ ^d |
| | | 5,0 | $10,0 \pm 0,5$ ^d |
| Anordnung | gemischt | | $6,7 \pm 0,1$ ^e |
| | nicht gemischt | | 6,4 ^{e,f} |

^a Kohle eingerüttelt (Standardverfahren)

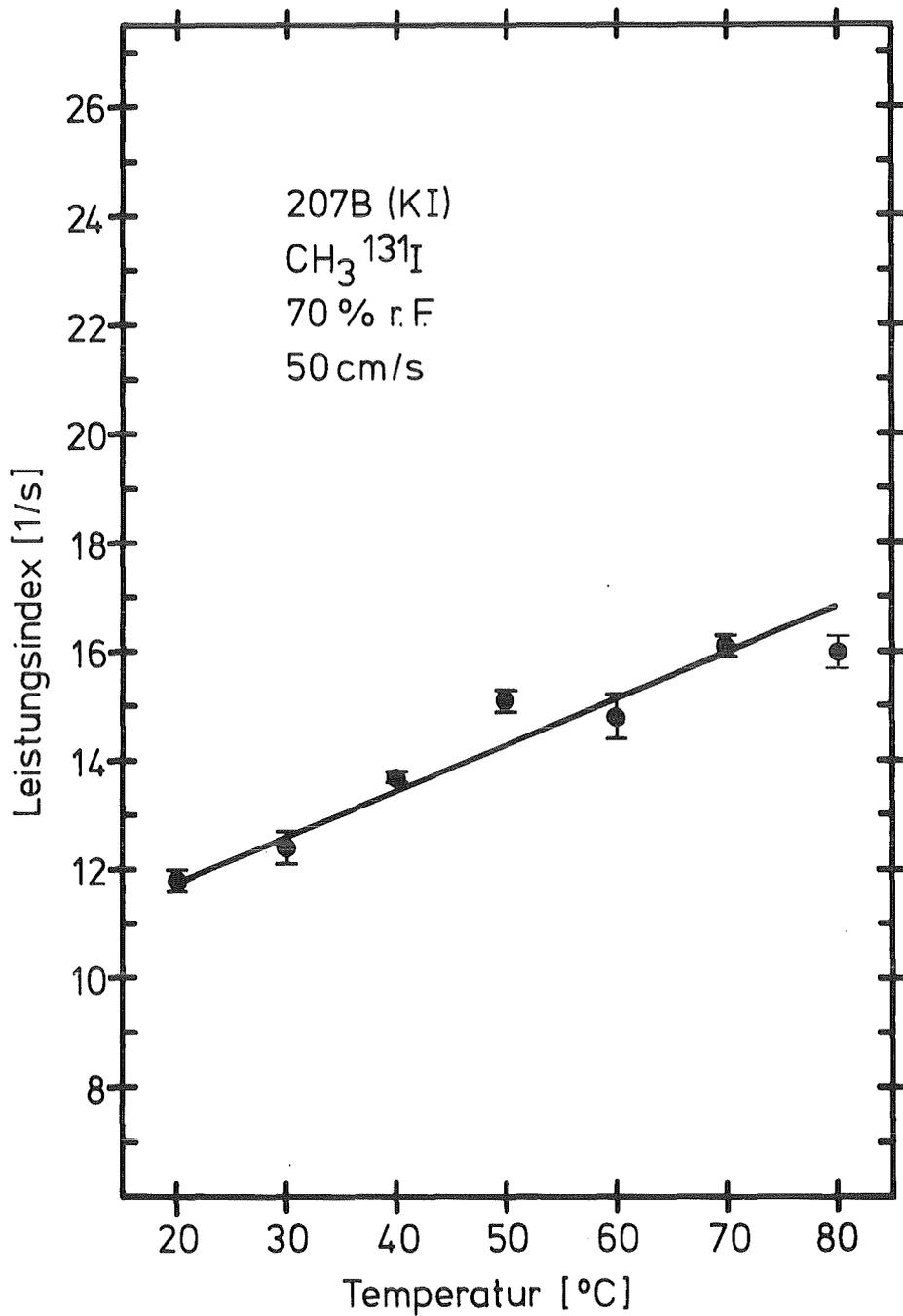
^b Kohle nicht eingerüttelt (lose Schüttung)

^c Werte von Tests unter gleichen Bedingungen;
niedriger Wert ($7,4 \text{ s}^{-1}$) bedingt durch Kanalbildung;
gemäß Gl. (23) erwarteter Wert: $12,0 \text{ s}^{-1}$

^d lineare Luftgeschwindigkeit: 25 cm/s

^e gealterte und neue Kohle im Volumenverhältnis 1:1

^f Betten 1 - 10: gealterte Kohle ($K = 1,5 \text{ s}^{-1}$);
Betten 11 - 20: neue Kohle ($K = 12,5 \text{ s}^{-1}$);
Wert für Bettiefe von 50 cm (integraler Wert)

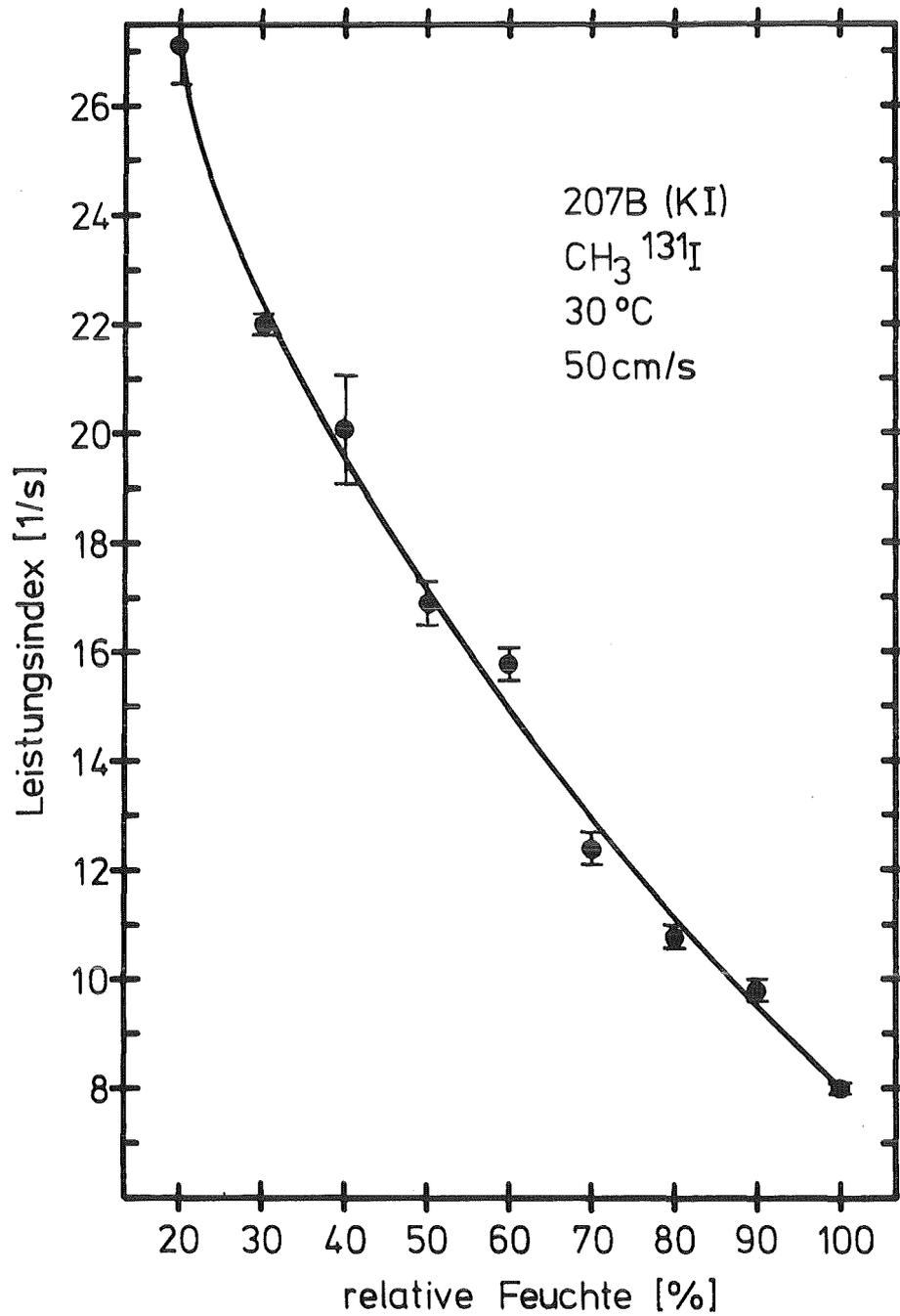


KfK LAF II D8215

Leistungindex als Funktion der Temperatur

Abb. 3^a

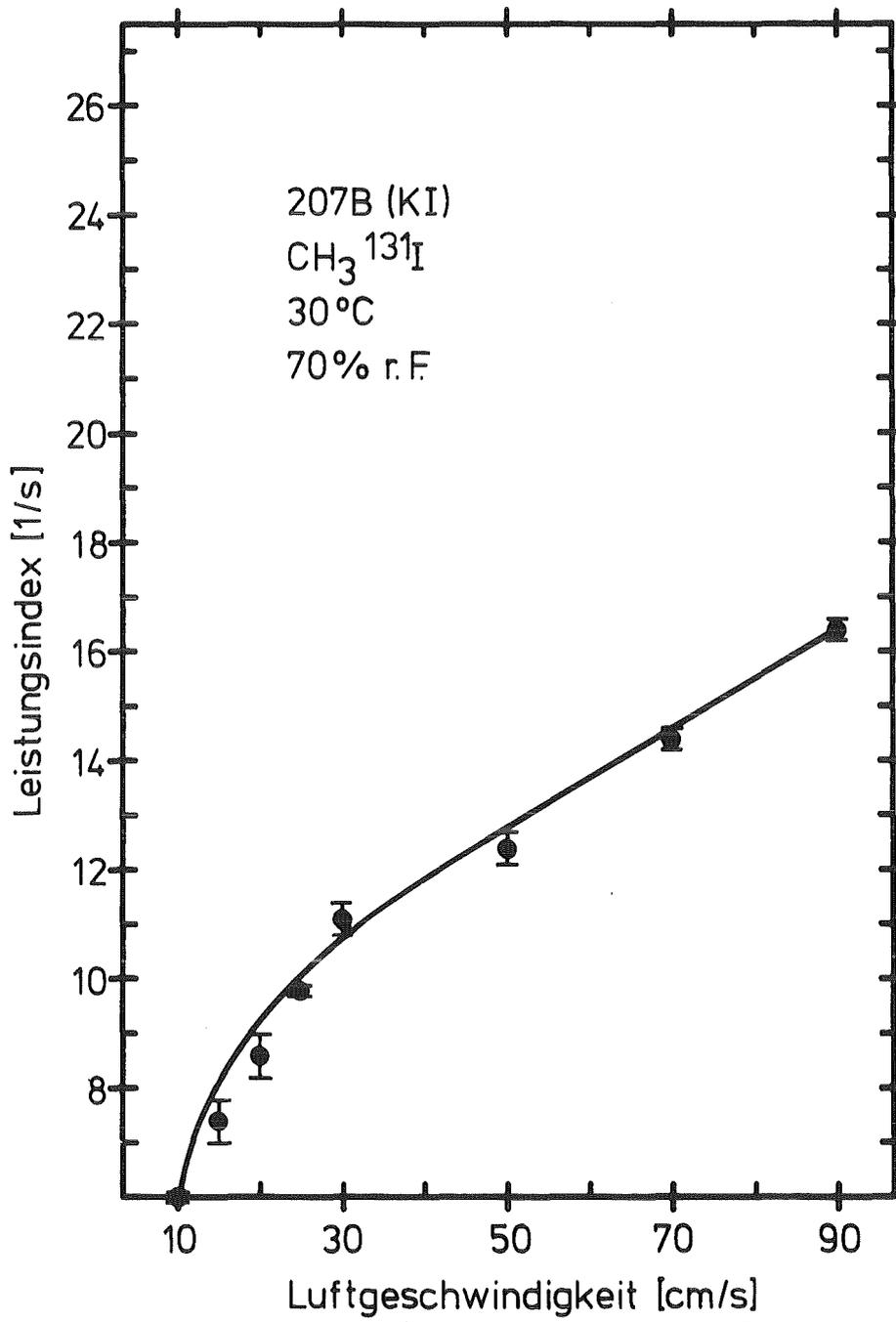
^a vgl. Fußnote von Tab. 4
(auch für folgende Abbildungen geltend)



KIK LAF II D8216

Leistungsindex als Funktion der relativen Feuchte

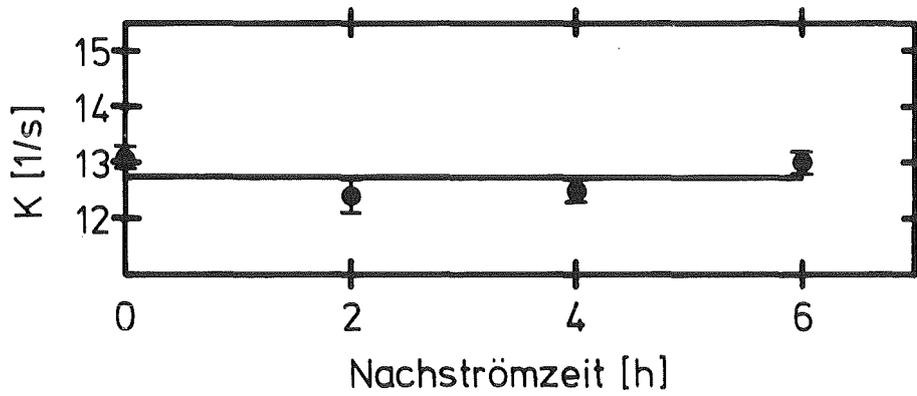
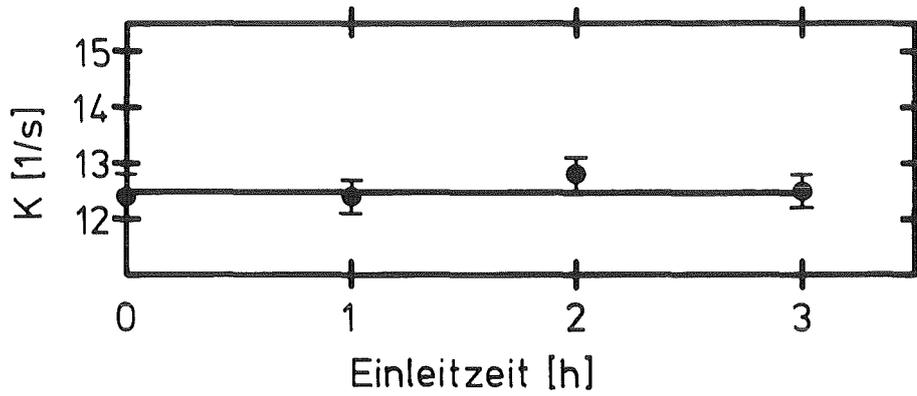
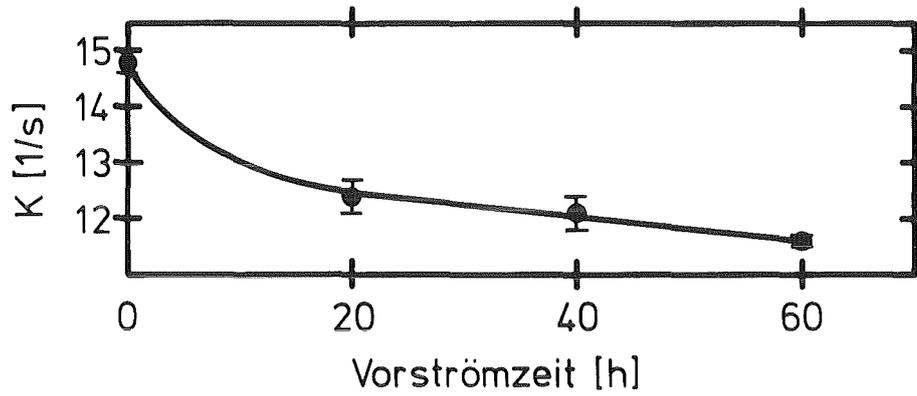
Abb. 4



 LAF II D8217

Leistungsindex als Funktion der Luftgeschwindigkeit

Abb. 5

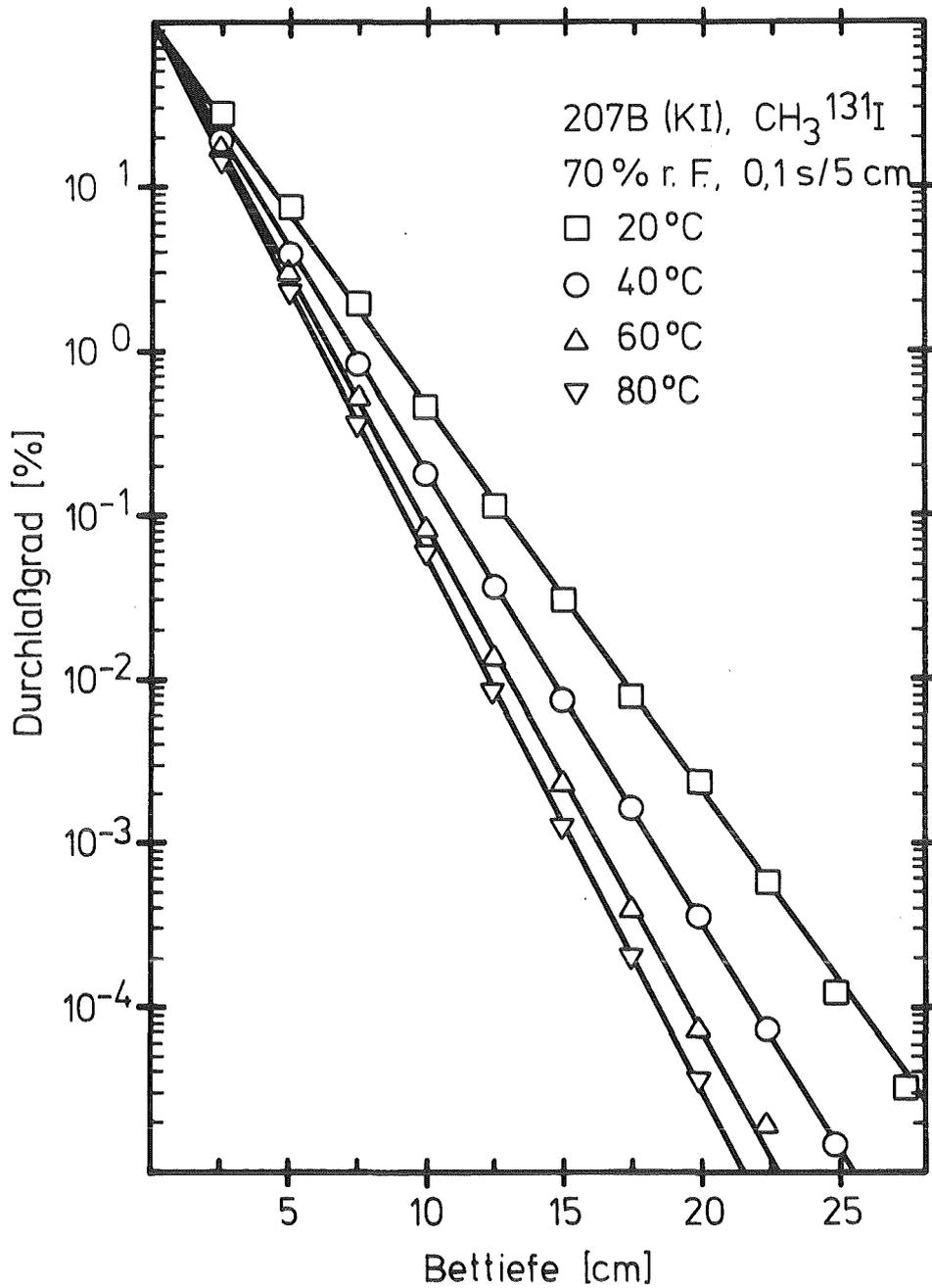


207B (KI), $\text{CH}_3^{131}\text{I}$, 30 °C, 70 % r.F., 50 cm/s

KfK LAF II D8218

Leistungsindex als Funktion von
Vorströmzeit, Einleitzeit und Nachströmzeit

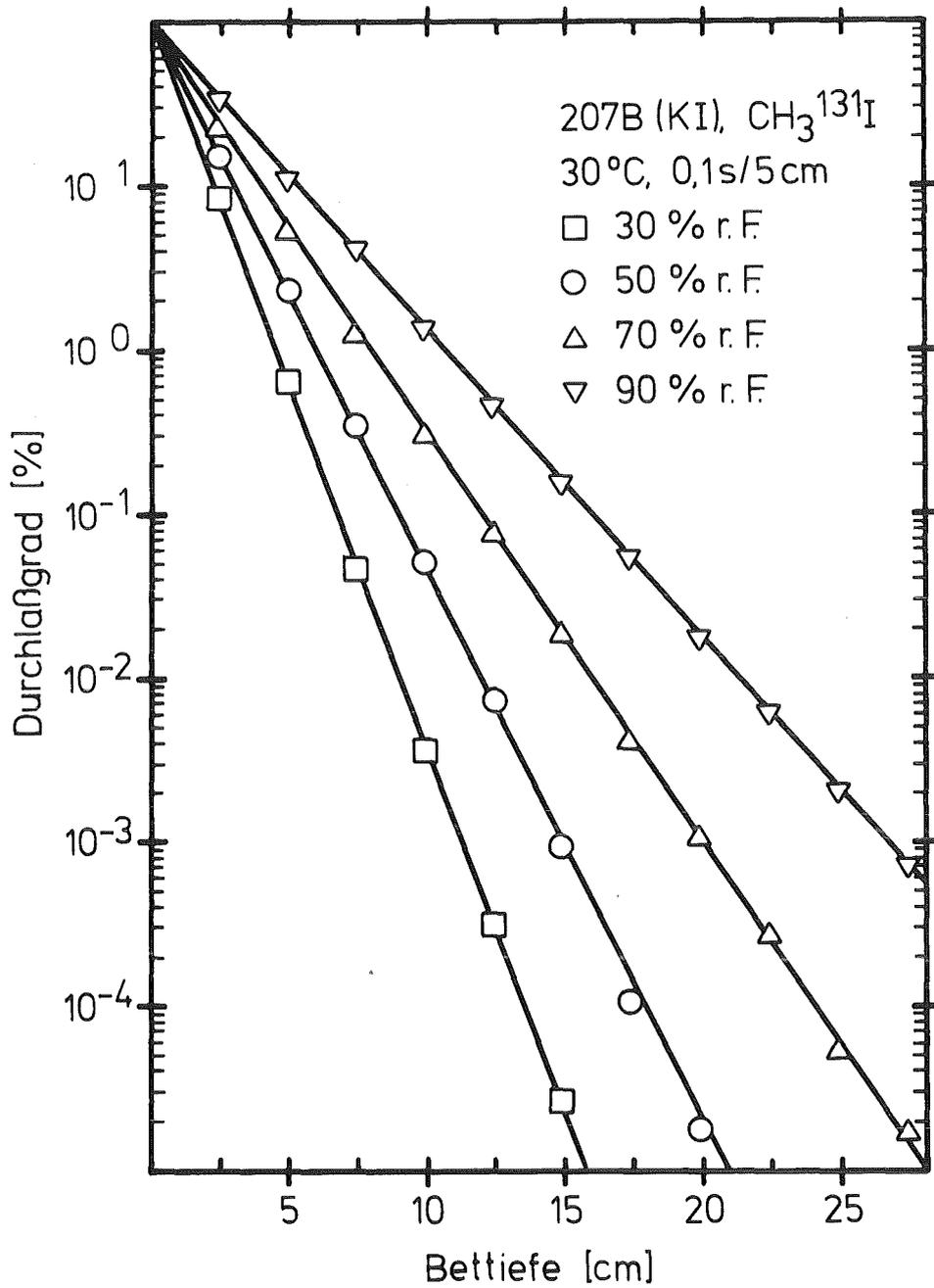
Abb. 6



KfK LAF II D8274

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe
bei verschiedenen Temperaturen

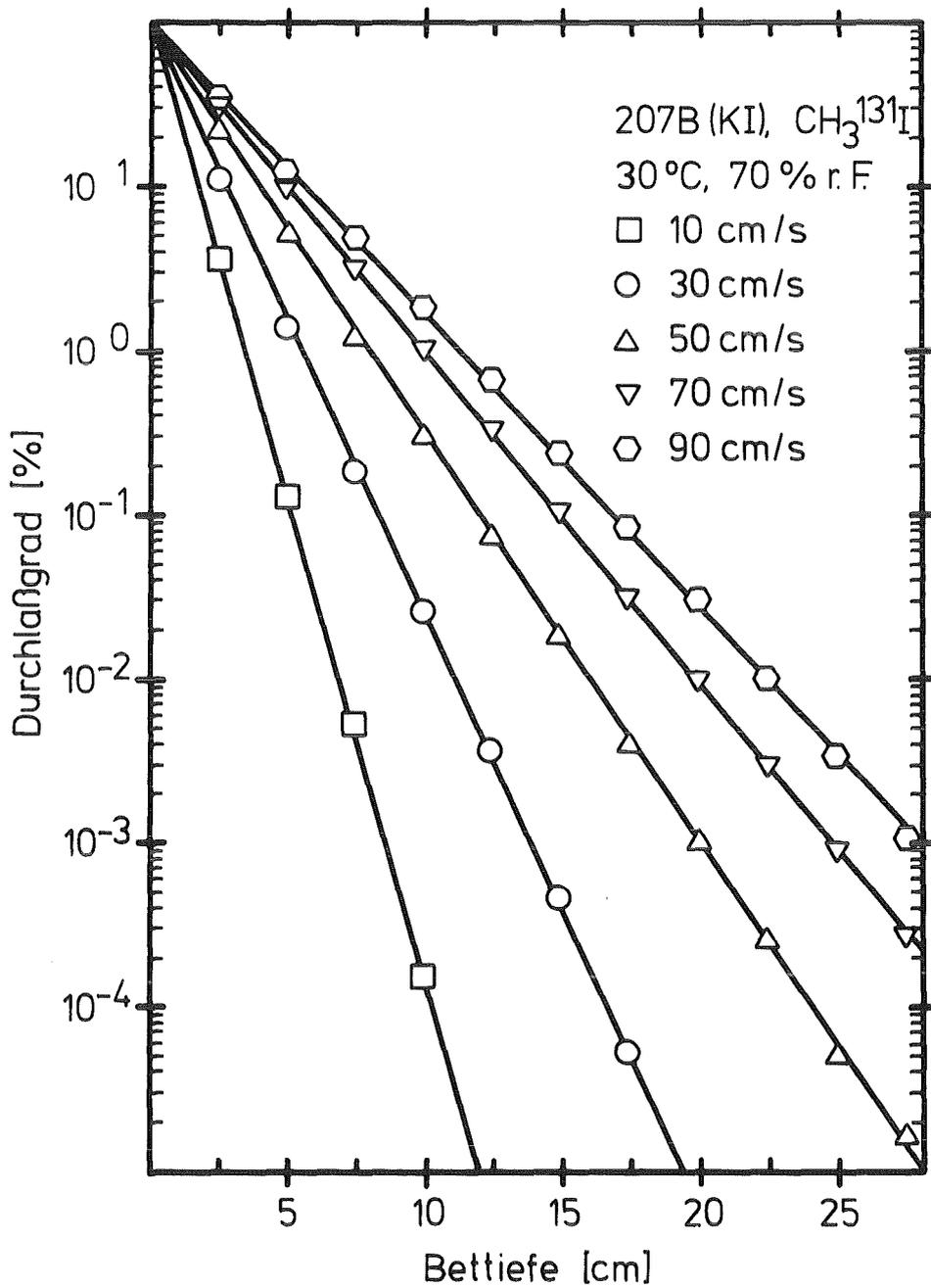
Abb. 7



KfK LAF II D8275

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe
bei verschiedenen relativen Feuchten

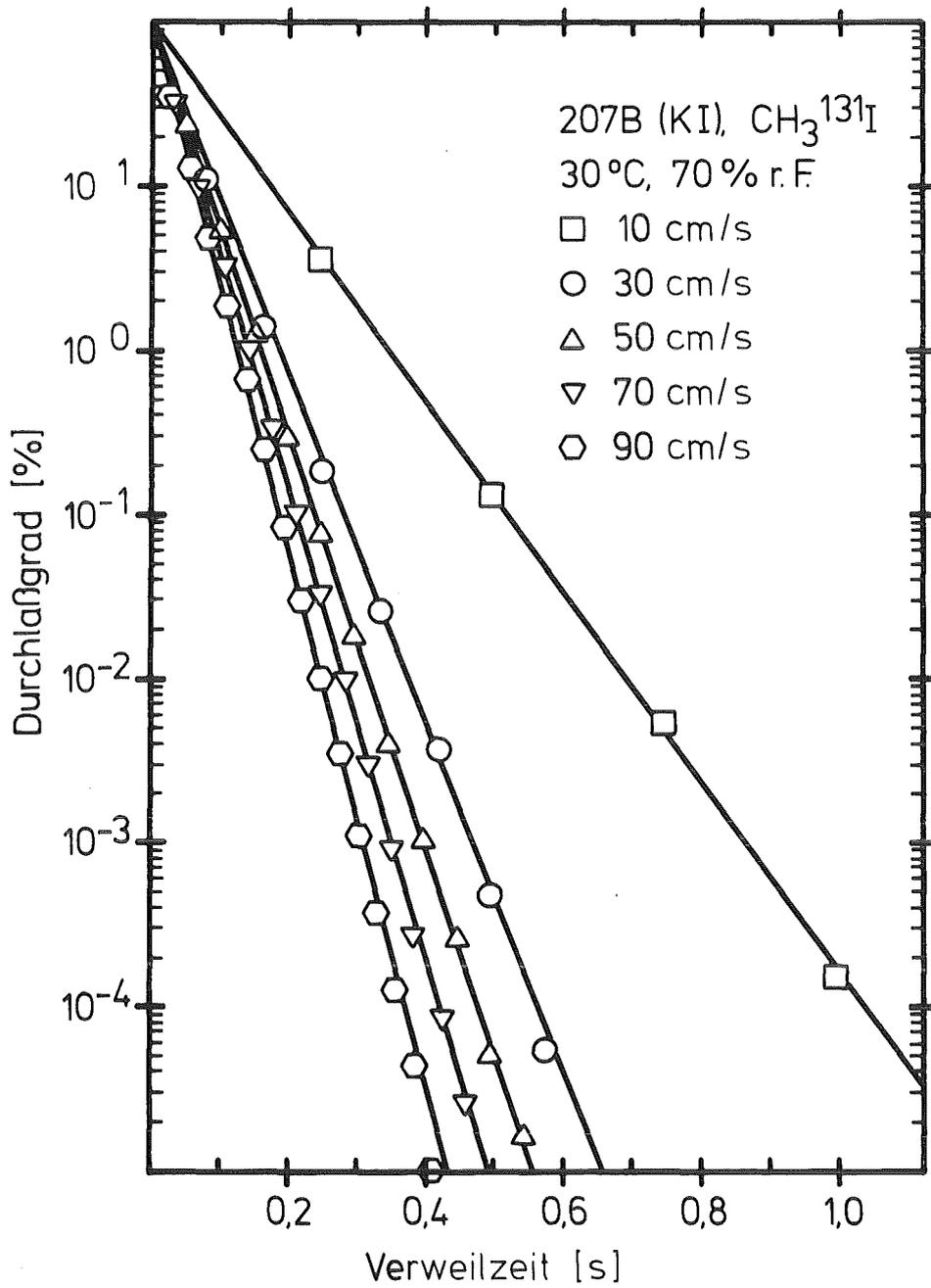
Abb. 8



KfK LAF II D8276

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe
bei verschiedenen linearen Luftgeschwindigkeiten

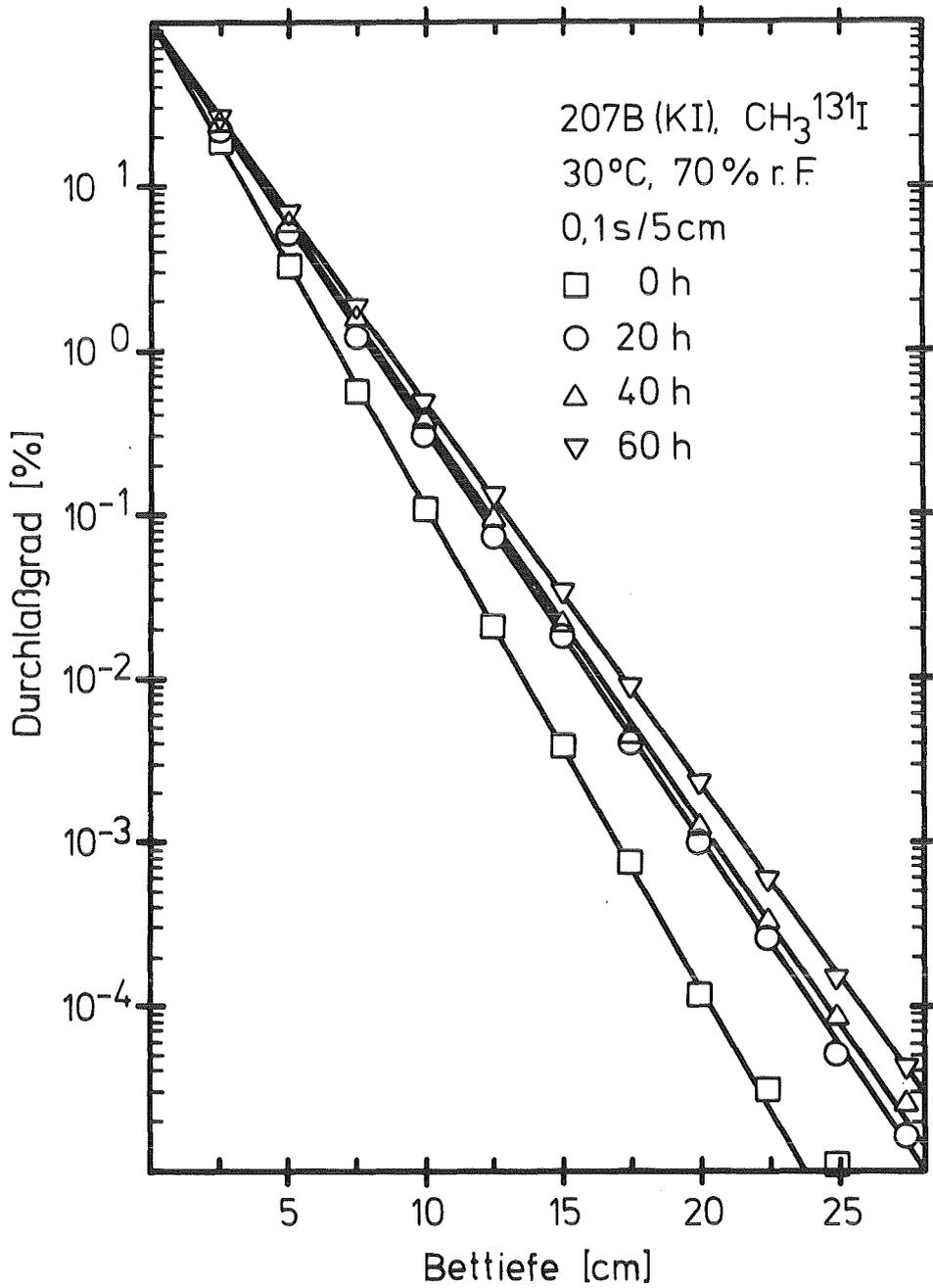
Abb. 9



KfK LAF II D8277

Durchlaßgrad als Funktion der Verweilzeit
bei verschiedenen linearen Luftgeschwindigkeiten

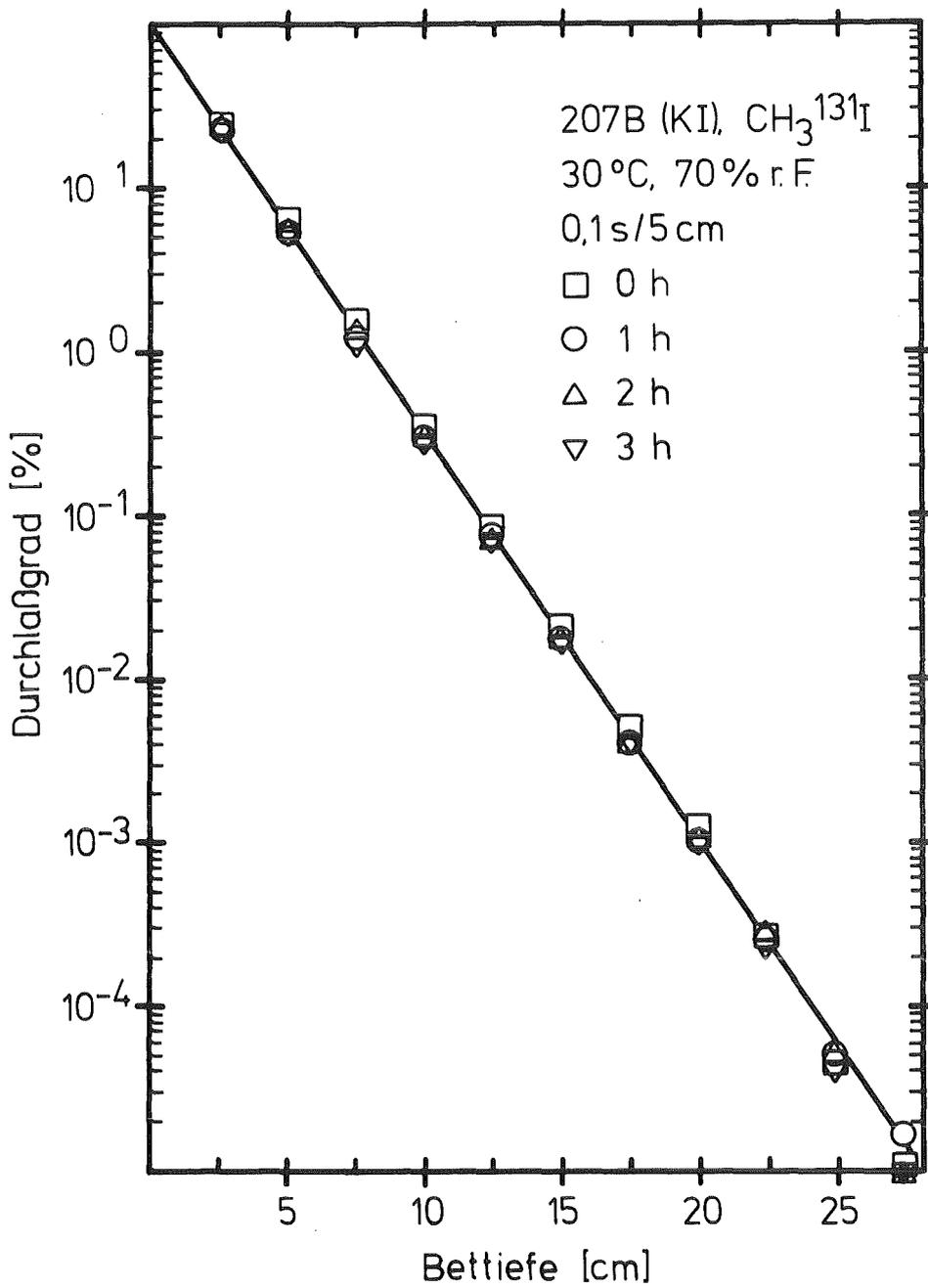
Abb. 10



KfK LAF II D8278

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe
bei verschiedenen Vorströmzeiten

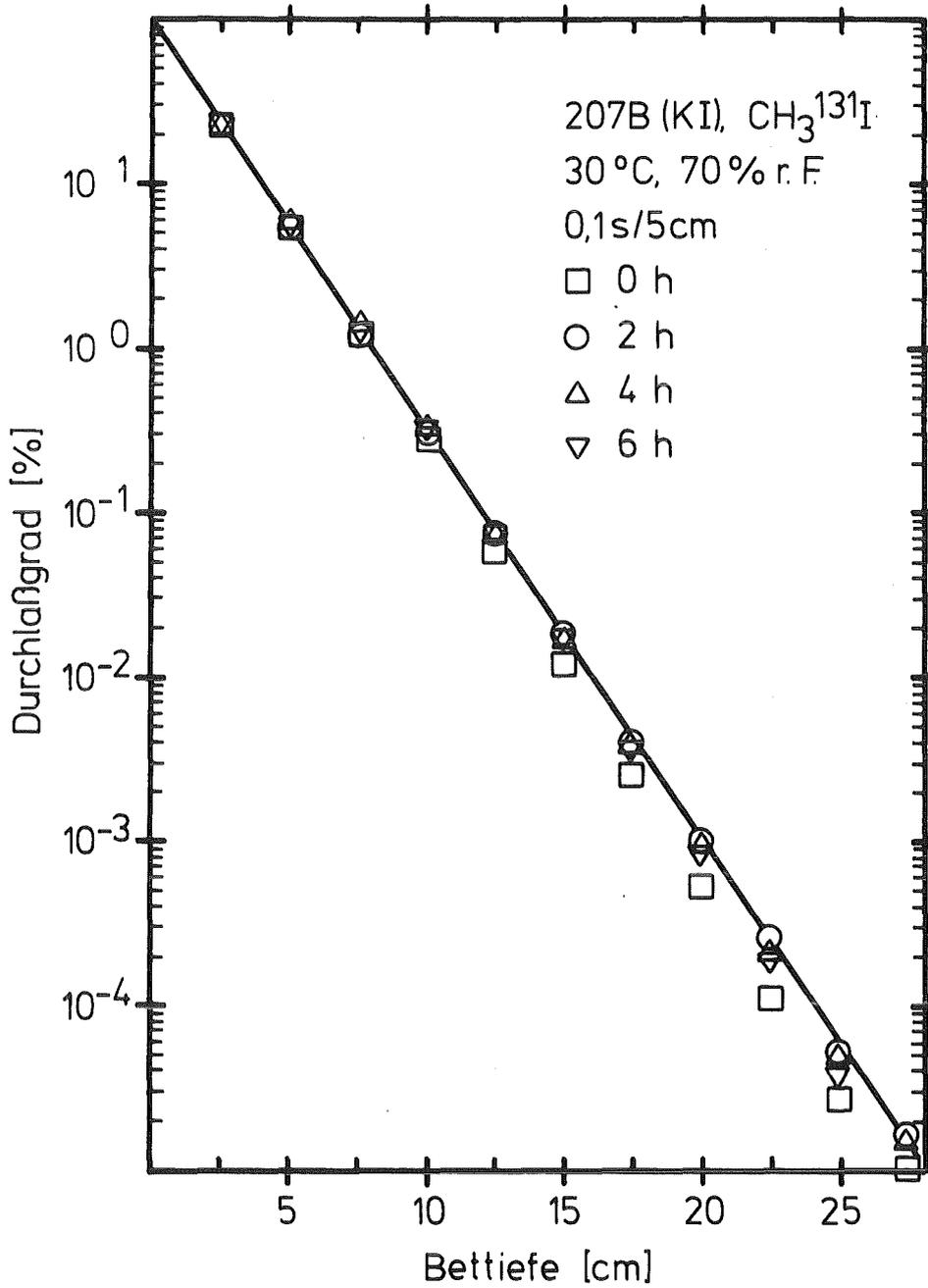
Abb. 11



KIK LAF II D8279

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe
bei verschiedenen Einleitzeiten

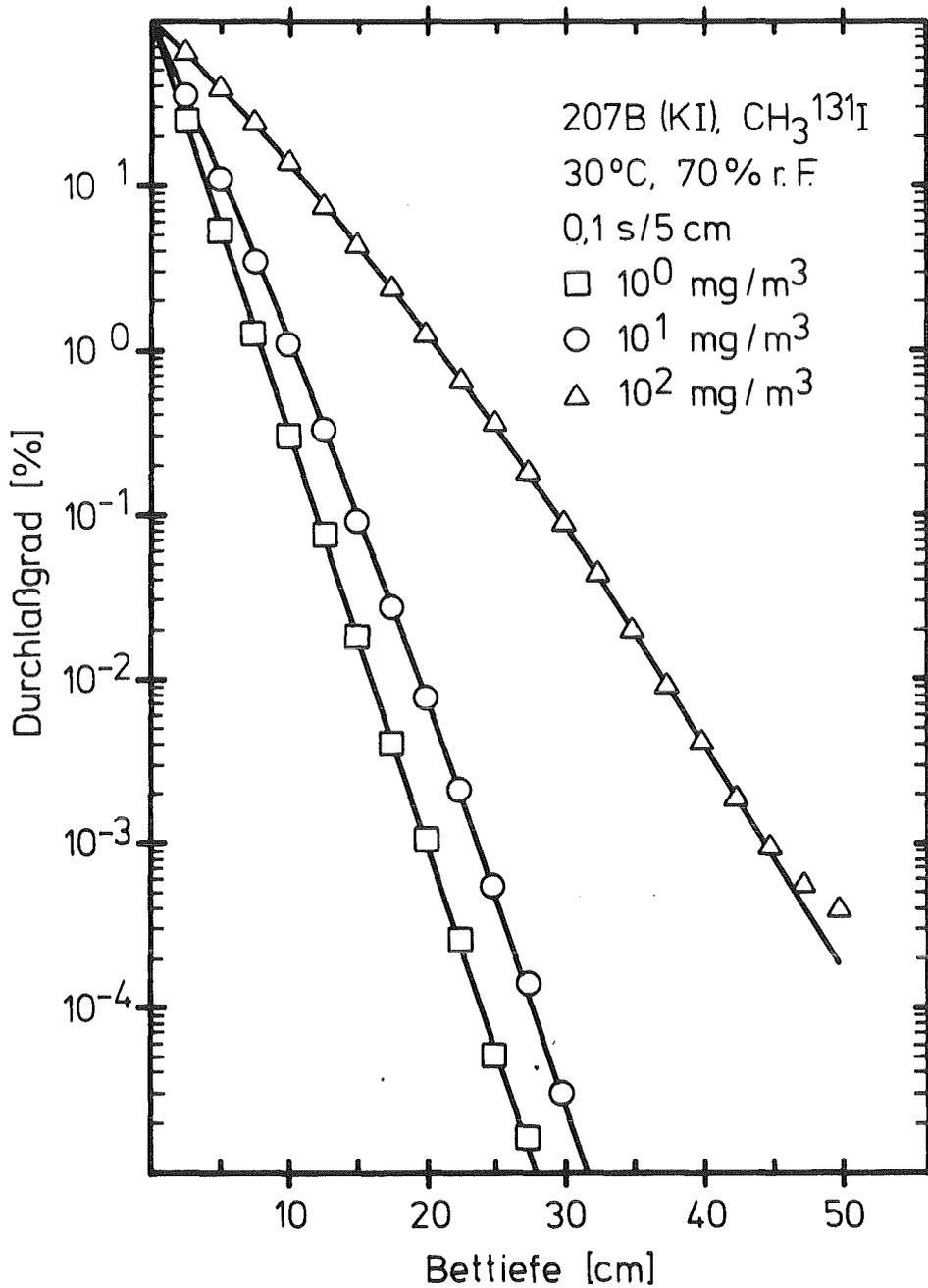
Abb. 12



kfk LAF II D8280

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe
bei verschiedenen Nachströmzeiten

Abb. 13

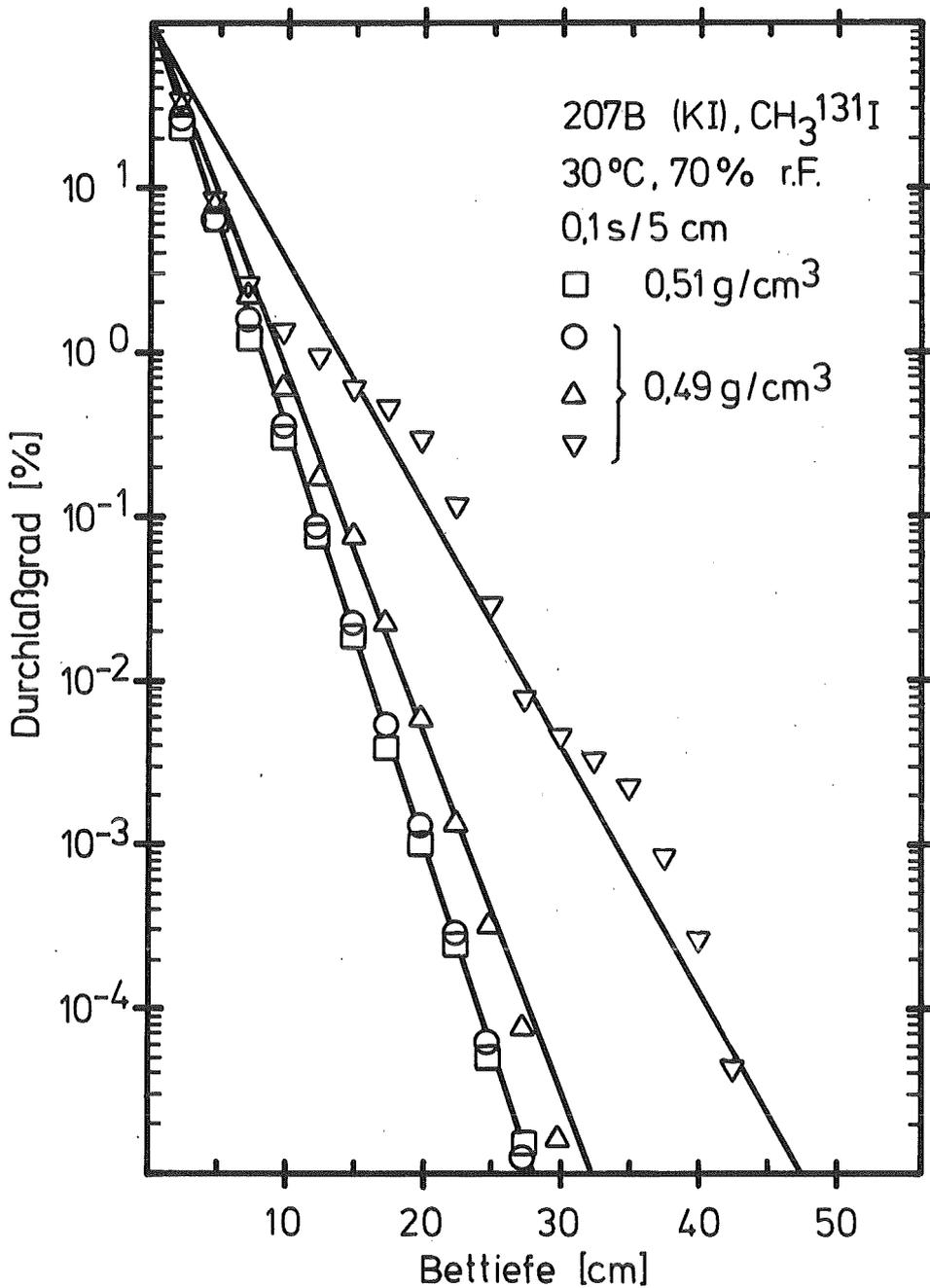


KIK LAF II D8282

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe
bei verschiedenen Trägerkonzentrationen

Abb. 14^a

^a bei $< 1 \text{ mg/m}^3$ keine signifikanten
Unterschiede feststellbar.

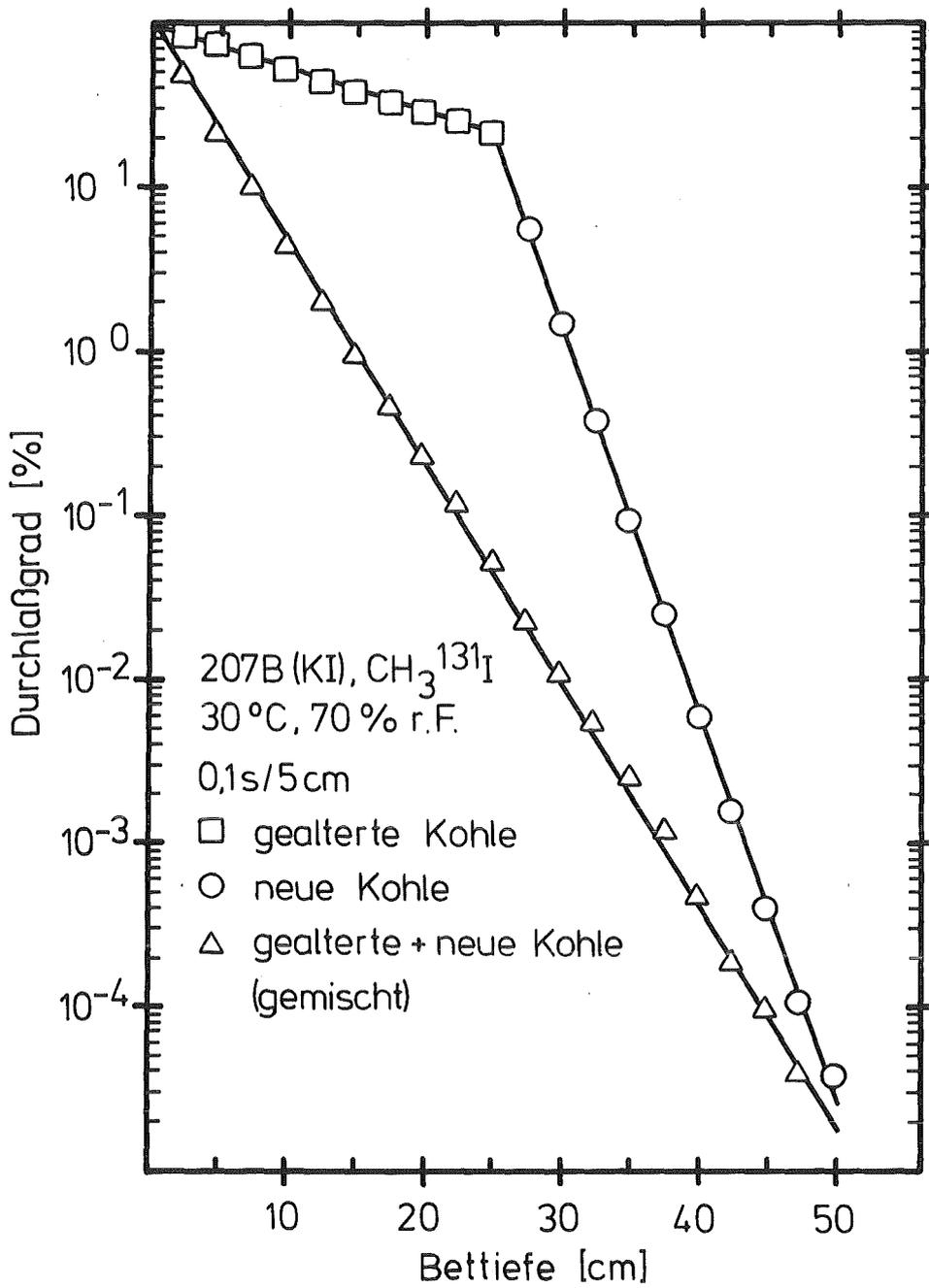


KfK LAF II D83163

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe
bei verschiedenen Schüttdichten der Kohle

Abb. 15^a

^a hohe Durchlaßgrade (▽) bedingt durch
Kanalbildung



KfK LAF II D83164

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Anordnungen der Kohle

Abb. 16

6. Zusammenfassung

Es wurden parametrische Untersuchungen zur Abscheidung von Methyljodid ($\text{CH}_3^{131}\text{I}$) an einer typischen Charge der Aktivkohle 207B (Imprägnans: KI; Korngröße 8 - 12 mesh) zur Gewinnung von belastbaren relevanten quantitativen Daten durchgeführt. $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ wird als Modellsubstanz für organische Iodverbindungen in Tests von Aktivkohle verwendet und tritt in der Regel in großen Anteilen in der Abluft von Kernkraftwerken auf. Die genannte Aktivkohle wird in Iodfiltern deutscher Kernkraftwerke vorwiegend eingesetzt.

Der untersuchte Parameterbereich (vgl. Tab. 3) ist relevant für Aktivkohletests sowie Auslegung, Betrieb und Überwachung von Iodfiltern. Die verwendeten Ausgangstestbedingungen ("Standardtestbedingungen") entsprechen im wesentlichen den Testbedingungen für Aktivkohle aus Normalbetriebsfiltern deutscher Kernkraftwerke und somit den Auslegungsdaten dieser Filter. Die Standardbedingungen sind u.a. (vgl. Tab. 3):

- a) Temperatur : 30 °C;
- b) relative Luftfeuchte : 70 °C;
- c) lineare Luftgeschwindigkeit: 50 cm/s.

Ausgehend von den Standardbedingungen wurde in der Regel ein einziger Parameter variiert. Der Einfluß der Temperatur, relativen Luftfeuchte und linearen Luftgeschwindigkeit auf den Leistungsindex (K, s^{-1}) läßt sich folgendermaßen wiedergeben (a, b, c: Konstanten):

- a) Temperatur ($t, ^\circ\text{C}$):

$$K = a + 0,084 t$$

Soll (bei konstanter relativer Luftfeuchte) K mit einem Fehler von maximal 5 % bestimmt werden, darf die Temperatur maximal ca. 5 °C von der Solltemperatur abweichen.

b) Relative Luftfeuchte (h, %):

$$K = b \cdot e^{-0,015 h}$$

Bei einem maximalen K-Fehler von 5 % darf die relative Luftfeuchte (im Bereich um 70 %) maximal um etwa 2 - 3 Einheiten (%) schwanken. Da die Temperatur die relative Luftfeuchte stark beeinflusst, darf erstere bei gleichem K-Fehler um maximal ca. 0,5 °C schwanken.

c) Lineare Luftgeschwindigkeit (v, cm · s⁻¹):

$$K = c \cdot v^{0,50}$$

Bei v > 30 cm/s ist der Einfluß der linearen Luftgeschwindigkeit relativ gering. In diesem Bereich darf sie um ca. 5 cm/s schwanken, wenn der Fehler von K unter 5 % bleiben soll.

Für den Durchlaßgrad (P, %), der auch von der Verweilzeit (τ, s) abhängt, resultiert folgende Beziehung (d: Konstante):

$$P = 100 \cdot e^{-d \cdot v^{0,50} \cdot \tau}$$

Aufgrund des höheren Exponenten (1 gegenüber 0,5) ist der Einfluß der Verweilzeit auf den Durchlaßgrad viel stärker als der der linearen Luftgeschwindigkeit. Die in Iodfiltern deutscher Kernkraftwerke oft verwendete lineare Luftgeschwindigkeit von 50 cm/s dürfte das ökonomisch vertretbare Maximum darstellen.

Der Einfluß der weiter untersuchten Parameter auf den Leistungsindex ist im relevanten Bereich gering oder im Rahmen der Meßgenauigkeit nicht feststellbar. Diese Parameter sind:

- a) Vorströmzeit (Vorbefeuchtungszeit) (bei > ca. 20 h);
- b) Einleitzeit;
- c) Nachströmzeit (Spülzeit) (bei < ca. 100 °C);
- d) $\text{CH}_3^{127}\text{I}$ -Konzentration (bei < ca. 10 mg/m³);
- e) Schüttdichte (Packungsdichte) der Aktivkohle;
- f) Durchmesser des Aktivkohlebettes;
- g) Mischungsgrad (Anordnung) der Aktivkohle.

Bei Variation der Aktivkohlecharge kann der Leistungsindex um weit mehr als 10 % schwanken.

Es kann davon ausgegangen werden, daß die meisten Befunde auch für andere Testbedingungen gelten, z.B. für eine relative Luftfeuchte von 95 bis 100 %, die oft in Aktivkohletests verwendet wird.

7. Literatur

- /1/ Adams, R.E. et al.,
Removal of Radioactive Methyl Iodide from Steam-Air Systems,
ORNL-4040 (1967)
- /2/ American Society for Testing and Materials,
Standard Test Methods for Moisture in Activated Carbon,
ANSI/ASTM D 2867 (1970)
- /3/ American Society for Testing and Materials,
Standard Test Methods for Radioiodine Testing of
Nuclear-Grade Gas-Phase Adsorbents,
ASTM D 3803 (1979)
- /4/ American Society of Mechanical Engineers,
Nuclear Power Plant Air Cleaning Units and Components,
ANSI/ASME N 509 (1980)
- /5/ Billard, F.,
Solution adoptée en France pour l'épuration des
radioiodides,
IAEA Symposium on Containment and Siting of Nuclear
Power Plants,
Vienna, 3. - 7.4.1967, STI/PUB/ 154 (1967) 681
- /6/ Billinge, B.H.M. et al.,
The Desorption of Chemisorbed Oxygen from Activated Carbon
and Its Relationship to Aging and Methyl Iodide Retention
Efficiency,
Carbon 22 (1984) 83
- /7/ British Standard Institution,
Specification for Test Sieves,
BS 410 (1976)
- /8/ Broadbent, D. et al.,
An Investigation of the Performance of a Modular Charcoal
Filter Under Non-Ambient Conditions,
CEC Seminar on Iodine Removal from Gaseous Effluents in
the Nuclear Industry,
Mol, 21. - 24.9.1981, V/5283/82 (1982) 311

- /9/ Caron, J. et al.,
Piégeage de l'iode et de l'iodure de méthyle à
température élevée,
Congrès international sur la diffusion des produits
de fission
Saclay, 4. - 6.11.1969, p. 285
- /10/ Charamathieu, A. et al.,
Efficacité à l'iodure de méthyle de charbons imprégnés,
CEA-N-199 (1968)
- /11/ Collins, D.A. et al.,
The Development of Impregnated Charcoals for Trapping
Methyl Iodide at High Humidity,
TRG 1300 (W) (1967)
- /12/ 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,
Vienna, 18. - 22.2.1980, STI/PUB/561 (1980) 571
- /13/ Deckers, B., Balliauw, A.,
Le contrôle des pièges à iode dans les centrales
nucléaires en Belgique,
CEC Seminar on Iodine Removal from Gaseous Effluents in
the Nuclear Industry,
Mol, 21. - 24.9.1981, V/5283/82 (1982) 659
- /14/ Deitz, V.R. et al.,
Dependance of Gas Penetration of Charcoal Beds on
Residence Time and Linear Velocity,
14th ERDA Air Cleaning Conference,
Sun Valley, 2.- 4.8.1976, CONF - 760 822 (1977) 233
- /15/ Deitz, V.R., Blachly, C.H.,
New Charcoal Impregnants for Trapping Methyl Iodide,
I. Salts of the Iodine Oxyacids with Iodide or Iodine
and Hexamethylenetetramine,
14th ERDA Air Cleaning Conference,
Sun Valley, 2. - 4.8.1976, CONF - 760 822 (1977) 294
- /16/ Deitz, V.R., Blachly, C.H.,
The Effect of Exposure Time in the Prehumidification of
Impregnated Charcoals,
14th ERDA Air Cleaning Conference,
Sun Valley, 2. - 4. 8.1976, CONF - 760 822 (1977) 836

- /17/ Deitz, V.R.,
Effects of Weathering on Impregnated Charcoal
Performance,
NUREG / CR-2112 (1981)
- /18/ Deuber, H.
Die physikalisch-chemischen Radioiodkomponenten in der
Abluft eines Druckwasserreaktors (DWR 3),
KfK 3207 (1981)
- /19/ Deuber, H.,
Aspects of Retention of Airborne ^{131}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. - 7.5.1982, IAEA-SR-72/21
- /20/ 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. - 7.5.1982, IAEA-SR-72/34
- /21/ Deuber, H., Gerlach, K.,
Untersuchungen zur Abscheidung von ^{131}I durch ein Iod-
filter eines Druckwasserreaktors,
KfK 3594 (1983)
- /22/ Deuber, H., Gerlach, K.,
Untersuchungen zur Alterung von Aktivkohlen in der Abluft
eines Druckwasserreaktors (DWR 4),
KfK 3711 (1984)
- /23/ Dubinin, M.M.,
Water Vapor Adsorption and the Microporous Structures of
Carbonaceous Adsorbents,
Carbon 18 (1980) 355
- /24/ Furrer, J. et al.,
Alterung und Vergiftung von Iod-Sorptionsmaterialien in
Kernkraftwerken / Ageing and Poisoning of Iodine Filters
in Nuclear Power Plants,
Kerntechnik 18 (1976) 313
- /25/ Grimm, J.J. et al.,
Radioiodine Adsorption Geometry Effects,
16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,
San Diego, 20. - 23.10.1980, CONF - 801 038 (1981) 1481

- /26/ Hesböl, R. et al.,
Iodine Filter Testing in Sweden,
CEC Seminar on Iodine Filter Testing,
Karlsruhe, 4.- 6.12.1973, V/559/74 (1974) 329
- /27/ Hillary, J.J., Taylor, L.R.,
The Performance of Commercially Prepared Impregnated
Charcoals for the Trapping of Methyl Iodide,
TRG 2906 (W) (1977)
- /28/ Holladay, D.W.,
A Literature Survey: Methods for the Removal of Iodine
Species from Off-Gases and Liquid Waste Streams of
Nuclear Power and Nuclear Fuel Reprocessing Plants, with
Emphasis on Solid Sorbents,
ORNL/TM - 6350 (1979)
- /29/ Hunt, J.R. et al.,
Iodine Removal Adsorbent Histories, Aging and Regenera-
tion,
14th ERDA Air Cleaning Conference,
Sun Valley, 2. - 4.8.1976, CONF - 760 822 (1977) 287
- /30/ Jonas, A.L.,
Reaction Steps in Gaseous Sorption by Impregnated
Carbon,
Carbon 16 (1978) 115
- /31/ Jonas, A.L.,
Fundamental Properties of Activated Carbons:
Effect on Rate Controlling Steps in Gas Sorption,
Symposium on Characterisation of Porous Solids,
Neuchatel, 9. - 12.7.1978, p. 181
- /32/ Jonas, L.A. et al.,
Desorption Kinetics of Methyl Iodide from Impregnated
Charcoal,
Nucl. Techn. 48 (1980) 77
- /33/ Juhola, A.J., Friel, J.V.,
Effect of Pore Structure on the Activated Carbon's
Capability to Sorb Airborne Methylradioiodide,
15th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,
Boston, 7. - 10.8.1978, CONF - 780 819 (1971) 335
- /34/ Kovach, J.L., Hunt, J.R.,
Iodine Fission Product Mass Transfer in Adsorbent Media,
13th AEC Cleaning Conference,
San Francisco, 12. - 15.8.1974, CONF - 740 807 (1975) 736

- /35/ Kovach, J.L.,
The Evolution and Current State of Radio-Iodine Control,
16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,
San Diego, 20. - 23.10.1980, CONF - 801 038 (1981) 417
- /36/ Krześniak, J.W., Porstendörfer, J.,
Selection of Some Filter Materials Used in Sampling of
Airborne Radioactive Iodine and Methyl Iodide,
Nucleonika 24 (1979) 259
- /37/ Levenspiel, O.,
Chemical Reaction Engineering,
John Wiley and Sons, New York (1962)
- /38/ van der Lugt, G., Scholten, L.C.,
Methods Used at KEMA for Measuring Iodine Adsorption on
Charcoal and Experience with Charcoal Filters Installed
at a Nuclear Power Plant,
CEC Seminar on Iodine Filter Testing,
Karlsruhe, 4. - 6.12.1973, V/559/74 (1974) 315
- /39/ May, F.G., Polson, H.J.,
Methyl Iodide Penetration of Charcoal Beds: Variation
with Relative Humidity and Face Velocity,
AAEC/E 322 (1974)
- /40/ Normenausschuß Kerntechnik im DIN,
Lüftungstechnische Anlagen in Kernkraftwerken,
DIN 25 414 (1983)
- /41/ Normenausschuß Pigmente und Füllstoffe im DIN,
Allgemeine Prüfverfahren für Pigmente und Füllstoffe,
Bestimmung des Stampfvolumens und der Stampfdichte,
DIN ISO 787, Teil 11 (1983)
- /42/ Parker, G.W. et al.,
Retention of Methyl Iodide by Impregnated Carbon Under
Ambient Conditions,
9th AEC Air Cleaning Conference,
Boston, 13. - 16.9.1966, CONF - 660 904 (1967) 199
- /43/ Romans, J.B., Deitz, V.R.,
A Non-Radioactive Determination of the Penetration of
Methyl Iodide through Impregnated Charcoals During Dosing
and Purging,
15th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,
Boston, 7. - 10.8.1978, CONF - 780 819 (1979) 313

- /44/ Schüttelkopf, H.,
Die Messung von stabilem Iod in der Umgebungsluft, in:
KfK 2600 (1978) 167
- /45/ Schwartz, C.E., Smith, J.M.,
Flow Distribution in Packed Beds,
Ind. Eng. Chem. 45 (1953) 1209
- /46/ 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. - 5.8.1982, CONF - 820 833 (1983) 199
- /47/ Sigli, P.,
Essais interlaboratoires sur la retention d'iodure de
méthyle par différents adsorbants,
CEC Seminar on Iodine Removal from Gaseous Effluents in
the Nuclear Industry,
Mol, 21. - 24.9.1981, V/5283/82 (1982) 449
- /48/ Smith, J.M.,
Chemical Engineering Kinetics,
McGraw-Hill Book Company, New York (1970)
- /49/ Szekely, J. et al.,
Gas-Solid Reactions,
Academic Press, New York (1976)
- /50/ Till, H.,
Radioiodine in Gaseous Effluents from Nuclear Power
Plants,
IAEA/NEA (OECD) Symposium on Management of Gaseous Wastes
from Nuclear Facilities,
Vienna, 18. - 22.2.1980, STI/PUB/561 (1980) 123
- /51/ Vujisić, L. et al.,
Methyl Iodide and Molecular Iodine Adsorption on Impreg-
nated Activated Charcoal,
KTG/DatF Jahrestagung Kerntechnik,
Berlin, 25. - 27.3.1980, p. 884
- /52/ Wheeler, A., Robell, A.J.,
Performance of Fixed-Bed Catalytic Reactors with Poison
in the Feed,
J. Cat. 13 (1969) 299

- /53/ Wilhelm, J.G.,
Verhalten von Iodisorptionsmaterialien,
CEC Seminar on Iodine Filter Testing,
Karlsruhe, 4. - 6.12.1973, V/559/74 (1974) 1
- /54/ Wilhelm, J.G. et al.,
Behavior of Gasketless Deep Bed Charcoal Filters for Ra-
dioiodine Removal in LWR Power Plants,
16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,
San Diego, 20. - 23.10.1980, CONF - 801 038 (1981) 465
- /55/ Wilhelm, J.G. et al.,
Untersuchung zur Ertüchtigung von Iodisorptionsfiltern
zur Reinigung der Abluft von Kernkraftwerken,
KfK 3194 B (1981)
- /56/ 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. - 24.9.1981, V/5283/82 (1982) 625
- /57/ Wilhelm, J.G.,
Iodine Filters in Nuclear Installations,
Commission of the European Communities, V/2110/83 (1982)
- /58/ Wood, E.O., Valdez, F.O.,
Nonradiometric and Radiometric Testing of Radioiodine
Sorbents Using Methyl Iodide,
16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,
San Diego, 20. - 23.10.1980, CONF-801 038 (1981) 448

Die Tests wurden im wesentlichen von A. Hengst durchgeführt
und von H. Fischer sowie A. Ladanyi ausgewertet.

8. Anhang : Testauswertung

An dieser Stelle wird anhand der Ergebnisse von zwei Tests etwas näher auf die Auswertung der Untersuchungen zur Abscheidung von $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ an Aktivkohlen eingegangen. Bei diesen Tests handelt es sich um die Abscheidung von $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ an der in den parametrischen Untersuchungen eingesetzten Charge A der Aktivkohle 207B (KI) unter Standardbedingungen (vgl. Tab. 2 und Abb.2).

Die beiden folgenden Tabellen stellen routinemäßig mit Computer erzeugte Ausdrücke dar. Wiedergegeben sind Abscheidegrad, Durchlaßgrad und Leistungsindex der einzelnen Teilbetten von 2,5 cm Tiefe und der jeweiligen Summe der Teilbetten (Teilstrecken). Die Werte der Teilbetten werden als differentielle Werte, diejenigen der Teilstrecken als integrale Werte bezeichnet.

Aus den Tabellen ist insbesondere ersichtlich, daß nach Abscheidung des praktisch gesamten ^{131}I in den vorderen Betten bei den Betten 13 und 14 keine Abscheidung von ^{131}I mehr festgestellt wurde. (Die Betten 15 bis 20 wurden daher nicht mehr gemessen.) In den folgenden, bei höherer Temperatur betriebenen vorderen Sicherheitsbetten (nicht aufgeführt) wurde aber noch eine geringe Aktivität gemessen. Dieses Phänomen kann auf unvermeidbar vorhandene schwerer abscheidbare ^{131}I -Komponenten in sehr geringen Anteilen zurückgeführt werden.

Die Leistungsindexe der Betten (KD) waren erwartungsgemäß im Rahmen der Meßgenauigkeit konstant bis sich ab Bett 12 die schwerer abscheidbaren ^{131}I -Komponenten deutlich bemerkbar machten. Bei der Berechnung des mittleren Leistungsindex wurden daher nur 11 Betten berücksichtigt. Es ergaben sich, wie in Tab. 2 bereits aufgeführt, in den beiden Tests folgende Mittelwerte:

Test 1 (laufende Nr. 2254) : $\text{KD} = 12,35 \pm 0,30$

Test 2 (laufende Nr. 2255) : $\text{KD} = 12,51 \pm 0,23$

Diese Mittel der differentiellen Werte stimmen, wie ersichtlich, mit den entsprechenden integralen Werten (KI) überein.

Daten der Aktivkohle 207B (KI), Charge A, für
CH₃¹³¹I aus Tests unter gleichen Bedingungen

Test 1

SORPTIONSTEST: ABSCHIEDERAD, DURCHLASSGRAD, LEISTUNGSINDEX

NR.; DATUM; TEMP.(°C); FEUCHTE(%): 2254, 20.1.82, 30, 70
DURCHFLUSS(L/H); EINLEITZEIT(H); MEDIUM: 882.; 1.; 131JCH3
AKTIVITAETSMENGE(MCI); TRAEGER-KONZ.(MG/M3): 0.69D+00; 0.13E+01

| NR. | MAT | TI(CM) | AGD(%) | AGI(%) | DGD(%) | DGI(%) | KD(1/S) | KI(1/S) |
|-----|--------|--------|---------|-----------|----------|-----------|----------|----------|
| 1 | 207B-K | 2.50 | 76.7701 | 76.770108 | 23.2299 | 23.229892 | 12.67906 | 12.67906 |
| 2 | 207B-K | 5.00 | 77.2833 | 94.722930 | 22.7167 | 5.277070 | 12.87309 | 12.77608 |
| 3 | 207B-K | 7.50 | 76.2490 | 98.746641 | 23.7510 | 1.253359 | 12.48635 | 12.67950 |
| 4 | 207B-K | 10.00 | 76.1012 | 99.700462 | 23.8988 | 0.299538 | 12.43249 | 12.61775 |
| 5 | 207B-K | 12.50 | 75.2919 | 99.925990 | 24.7081 | 0.074010 | 12.14322 | 12.52285 |
| 6 | 207B-K | 15.00 | 75.8184 | 99.982103 | 24.1816 | 0.017897 | 12.33029 | 12.49076 |
| 7 | 207B-K | 17.50 | 77.9266 | 99.996050 | 22.0734 | 0.003950 | 13.12262 | 12.58102 |
| 8 | 207B-K | 20.00 | 73.6178 | 99.998958 | 26.3822 | 0.001042 | 11.57379 | 12.45512 |
| 9 | 207B-K | 22.50 | 75.0849 | 99.999740 | 24.9151 | 0.000260 | 12.07075 | 12.41241 |
| 10 | 207B-K | 25.00 | 80.2279 | 99.999949 | 19.7721 | 0.000051 | 14.07895 | 12.57907 |
| 11 | 207B-K | 27.50 | 68.7008 | 99.999984 | 31.2992 | 0.000016 | 10.08933 | 12.35273 |
| 12 | 207B-K | 30.00 | 49.4794 | 99.999992 | 50.5206 | 0.000008 | 5.93063 | 11.81755 |
| 13 | 207B-K | 32.50 | 0.0 | 99.999992 | 100.0000 | 0.000008 | 0.0 | 10.90851 |
| 14 | 207B-K | 35.00 | 0.0 | 99.999992 | 100.0000 | 0.000008 | 0.0 | 10.12933 |

T:TIEFE; AG:ABSCHIEDERAD; DG:DURCHLASSGRAD; K:LEISTUNGSINDEX
D:DIFFERENTIELL; I:INTEGRAL

Test 2

SORPTIONSTEST: ABSCHIEDERAD, DURCHLASSGRAD, LEISTUNGSINDEX

NR.; DATUM; TEMP.(°C); FEUCHTE(%): 2255, 22.1.82, 30, 70
DURCHFLUSS(L/H); EINLEITZEIT(H); MEDIUM: 882.; 1.; 131JCH3
AKTIVITAETSMENGE(MCI); TRAEGER-KONZ.(MG/M3): 0.56D+00; 0.13E+01

| NR. | MAT | TI(CM) | AGD(%) | AGI(%) | DGD(%) | DGI(%) | KD(1/S) | KI(1/S) |
|-----|--------|--------|---------|-----------|----------|-----------|----------|----------|
| 1 | 207B-K | 2.50 | 78.4168 | 78.416761 | 21.5832 | 21.583239 | 13.31767 | 13.31767 |
| 2 | 207B-K | 5.00 | 76.0937 | 94.840240 | 23.9063 | 5.159760 | 12.42974 | 12.87371 |
| 3 | 207B-K | 7.50 | 76.2086 | 98.772423 | 23.7914 | 1.227577 | 12.47162 | 12.73968 |
| 4 | 207B-K | 10.00 | 74.3729 | 99.685408 | 25.6271 | 0.314592 | 11.82603 | 12.51127 |
| 5 | 207B-K | 12.50 | 76.0000 | 99.924498 | 24.0000 | 0.075502 | 12.39576 | 12.48817 |
| 6 | 207B-K | 15.00 | 77.5343 | 99.983038 | 22.4657 | 0.016962 | 12.96960 | 12.56841 |
| 7 | 207B-K | 17.50 | 76.5038 | 99.996015 | 23.4962 | 0.003985 | 12.58005 | 12.57008 |
| 8 | 207B-K | 20.00 | 78.3374 | 99.999137 | 21.6626 | 0.000863 | 13.28579 | 12.65954 |
| 9 | 207B-K | 22.50 | 78.7545 | 99.999817 | 21.2455 | 0.000183 | 13.45466 | 12.74789 |
| 10 | 207B-K | 25.00 | 75.2457 | 99.999955 | 24.7543 | 0.000045 | 12.12700 | 12.68580 |
| 11 | 207B-K | 27.50 | 71.1747 | 99.999987 | 28.8253 | 0.000013 | 10.80452 | 12.51478 |
| 12 | 207B-K | 30.00 | 58.9604 | 99.999995 | 41.0396 | 0.000005 | 7.73594 | 12.11654 |
| 13 | 207B-K | 32.50 | 0.0 | 99.999995 | 100.0000 | 0.000005 | 0.0 | 11.18450 |
| 14 | 207B-K | 35.00 | 0.0 | 99.999995 | 100.0000 | 0.000005 | 0.0 | 10.38561 |

T:TIEFE; AG:ABSCHIEDERAD; DG:DURCHLASSGRAD; K:LEISTUNGSINDEX
D:DIFFERENTIELL; I:INTEGRAL