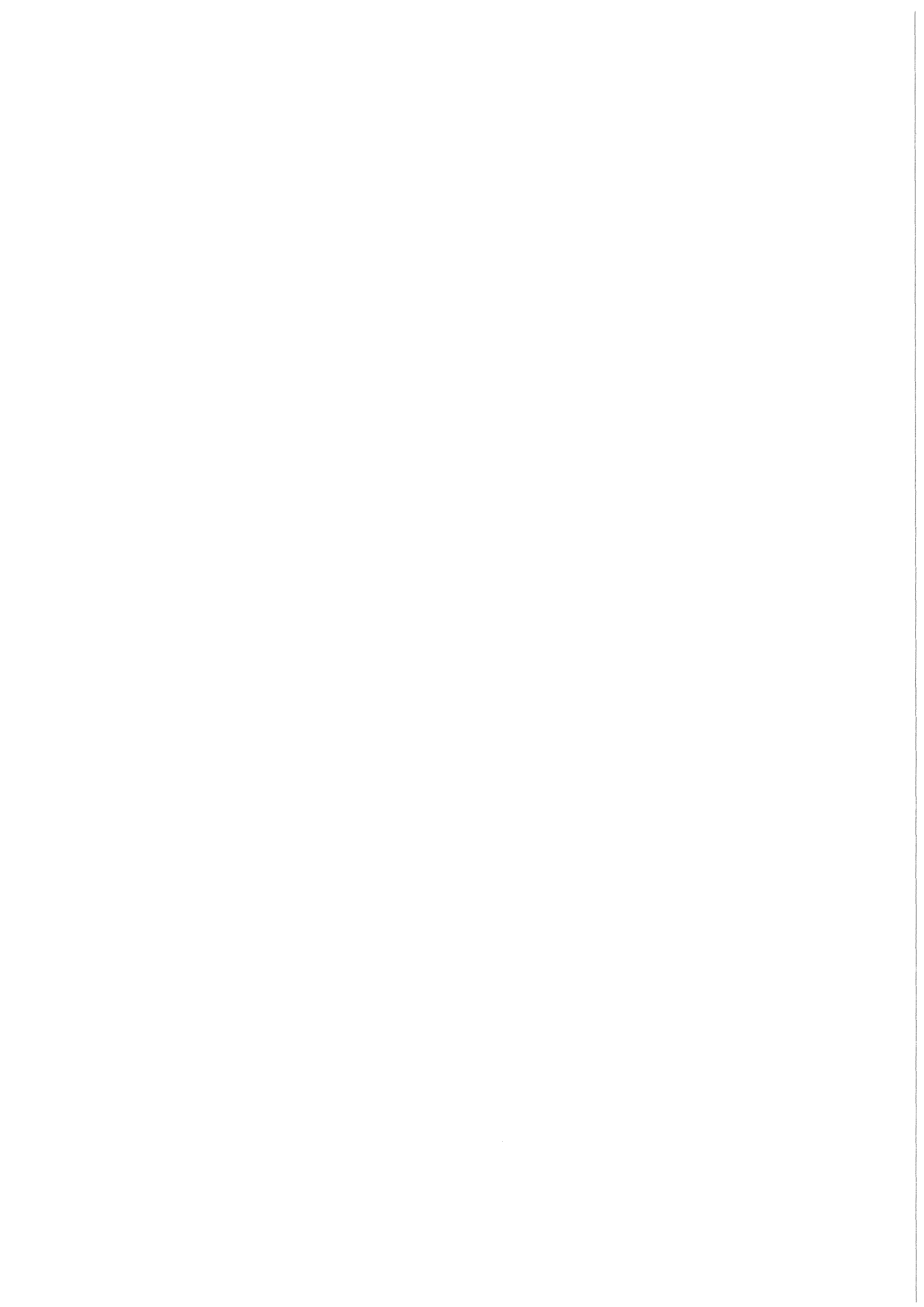


**KfK 3796**  
**November 1984**

# **Abscheidung von elementarem <sup>131</sup>I an Aktivkohlen unter extremen Bedingungen**

**H. Deuber**  
**Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

KfK 3796

Abscheidung von elementarem  $^{131}\text{I}$  an Aktivkohlen unter extremen Bedingungen

H. Deuber

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Abscheidung von elementarem $^{131}\text{I}$ an Aktivkohlen unter extremen Bedingungen

### Kurzfassung

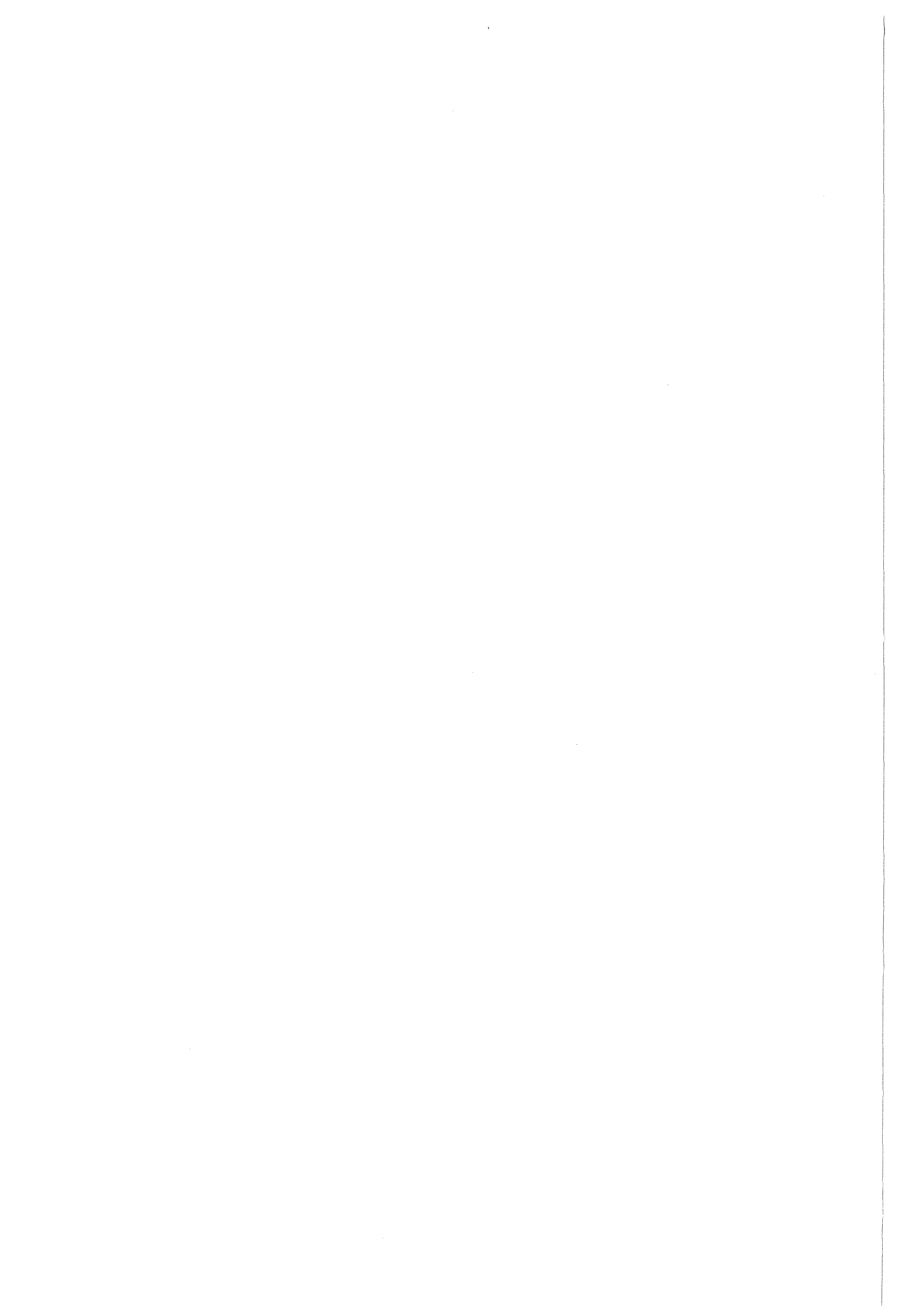
Unter extremen Bedingungen (Temperatur:  $180\text{ }^{\circ}\text{C}$ ), die im Ringraum eines Druckwasserreaktors während eines Auslegungsstörfalls allerdings nicht zu erwarten sind, wurde kein entscheidender Unterschied im Ausmaß der Abscheidung von  $^{131}\text{I}$ , beaufschlagt als elementares Iod, durch verschiedene frische und gealterte kommerzielle Aktivkohlen festgestellt (bei gleicher Alterungszeit). Bei frischen Aktivkohlen war das  $^{131}\text{I}$ , das tiefe Kohlebetten durchdrang, in einer nichtelementaren Form. Im Gegensatz dazu durchdrang bei gealterten Aktivkohlen auch elementares  $^{131}\text{I}$  entsprechende Aktivkohlebetten.

## Retention of Elemental $^{131}\text{I}$ by Activated Carbons Under Extreme Conditions

### Summary

Under extreme conditions (temperature:  $180\text{ }^{\circ}\text{C}$ ), which, however, have not to be expected in the annulus of a pressurized water reactor during a design basis accident, no significant difference was found in the extent of the retention of  $^{131}\text{I}$  loaded as elemental iodine, by various fresh and aged commercial activated carbons (at the same aging time). With fresh carbons, the  $^{131}\text{I}$  passing through deep beds of activated carbon was in a nonelemental form. To the contrary, with aged carbons, also elemental  $^{131}\text{I}$  passed through equivalent carbon beds.

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	Seite
Verzeichnis der Tabellen	III
Verzeichnis der Abbildungen	IV
1. Einleitung	1
2. Frühere Untersuchungen	2
3. Experimentelles	3
4. Ergebnisse	8
4.1 Durchlaßgrad für $^{131}\text{I}$	8
4.2 Chemische Form des penetrierenden $^{131}\text{I}$	13
5. Zusammenfassung	15
6. Literatur	16
Anhang A: Durchlaßgrad für $^{131}\text{I}$ als $\text{I}_2$ (als Funktion der Bettiefe)	17
Anhang B: Verteilung des $^{131}\text{I}$ auf Test- und Sicher- heitsbetten ( $^{131}\text{I}$ als $\text{I}_2$ )	27



<u>Verzeichnis der Tabellen</u>	Seite
Tab. 1 Daten der untersuchten Aktivkohlen	5
Tab. 2 Testparameter	6
Tab. 3 Durchlaßgrad verschiedener imprägnierter Aktivkohlen für $^{131}\text{I}$ als $\text{I}_2$	10
Tab. 4 Durchlaßgrad verschiedener nichtimprägnierter Aktivkohlen für $^{131}\text{I}$ als $\text{I}_2$	12



Verzeichnis der Abbildungen

Seite

Textteil

Durchlaßgrad für  $^{131}\text{I}$  als  $I_2$  (als Funktion der Bettiefe)  
in Tests unter gleichen Bedingungen:

Abb. 1 207B (KI) 7

Durchlaßgrad für  $^{131}\text{I}$  als  $I_2$  bei verschiedenen Bettiefen und  
Alterungszeiten (0 und 12 Monate):

Abb. 2 207B (KI), 207B (TEDA), Kiteg II, Radshield 25 11

Abb. 3 208C (KI), 208C (TEDA), BJN 4712, Radshield 26 11

Anhang A: Durchlaßgrad für  $^{131}\text{I}$  als  $I_2$  (als Funktion der Bettiefe)

Keine Alterung:

Abb. A-1 207B (KI), 207B (TEDA) 18

Abb. A-2 Kiteg II, Radshield 25 19

Abb. A-3 208C (KI), 208C (TEDA) 20

Abb. A-4 BJN 4712, Radshield 26 21

Alterungszeit: 0, 6 und 12 Monate:

Abb. A-5 207B (KI) 22

Abb. A-6 207B (TEDA) 23

Abb. A-7 Kiteg II 24

Abb. A-8 Radshield 25 25

Keine Alterung:

Abb. A-9 207B, 208C 26

Anhang B: Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf Test- und Sicherheitsbetten  
( $^{131}\text{I}$  als  $I_2$ )

Alterungszeit: 0 und 12 Monate:

Abb. B-1 207B (KI) 28

Abb. B-2 207B (TEDA) 29

Abb. B-3 Kiteg II 30

Abb. B-4 Radshield 25 31

Keine Alterung:

Abb. B-5 207B 32

Abb. B-6 208C 33

## 1. Einleitung

Deutsche Druckwasserreaktoren (DWR) sind mit Iodfiltern zur Filtration der Ringraumabluft im Störfall ausgerüstet /1/. In den RSK-Leitlinien für DWR wird für diese Filter ein Abscheidegrad von  $\geq 99,99$  % bzw. ein Durchlaßgrad von  $\leq 0,01$  % für elementares Radioiod gefordert. Die entsprechenden Werte für organisches Radioiod (vorwiegend  $\text{CH}_3\text{I}$ ) sind 99 % bzw. 1 % /2/.

Vor allem um festzustellen, mit welchen Aktivkohlen die genannten Werte für elementares Radioiod am besten erreicht werden können, wurden Untersuchungen zur Abscheidung von elementarem  $^{131}\text{I}$  an verschiedenen kommerziellen Aktivkohlen unter simulierten Störfallbedingungen durchgeführt.

Über Untersuchungen, die unter Bedingungen durchgeführt wurden, die hinsichtlich der Bedingungen im Ringraum eines DWR während eines Auslegungsstörfalls als konservativ angesehen werden können (maximale Temperatur:  $130^\circ\text{C}$ ), wurde bereits berichtet /3/. Es ergab sich bei verschiedenen frischen und gealterten kommerziellen Aktivkohlen kein entscheidender Unterschied in der Abscheidung von  $^{131}\text{I}$ , beaufschlagt als  $\text{I}_2$ . In allen Fällen war das  $^{131}\text{I}$ , das tiefe Aktivkohlebetten (25 cm entsprechend einer Verweilzeit von 0,5 s) durchdrang, in einer nichtelementaren Form. Es wurde geschlossen, daß der geforderte Abscheidegrad von 99,99 % für elementares Radioiod mit verschiedenen Aktivkohlen gleichermaßen erreicht werden kann.

In diesem Bericht wird auf analoge Experimente eingegangen, die zur Ergänzung der genannten Untersuchungen bei extremen Bedingungen (Temperatur:  $180^\circ\text{C}$ ) durchgeführt wurden. Es ist zu betonen, daß diese Bedingungen im Ringraum eines DWR während eines Auslegungsstörfalls nicht zu erwarten sind.

## 2. Frühere Untersuchungen

Auf frühere, in der Literatur beschriebene Untersuchungen wurde bereits eingegangen /3,4/. Bei den hier interessierenden Temperaturen (ca. 200 °C) wurde bei Aktivkohlen aus Kokosnußschale meist eine bessere Abscheidung von  $I_2$  als bei Aktivkohlen aus Steinkohlen gefunden. Mit Imprägnans wurde teils dieselbe, teils eine geringere Abscheidung als ohne Imprägnans verzeichnet. Wie bei tieferen Temperaturen fiel der Abscheidegrad mit zunehmender Alterungszeit, Nachströmzeit (Spülzeit) und Temperatur. Es wird angenommen, daß bei den hier interessierenden Temperaturen neben physikalischer Adsorption auch chemische Vorgänge (z.B. Bildung von KI) für die Abscheidung von  $I_2$  an Aktivkohle relevant sind.

Es ist zu betonen, daß in früheren Experimenten in der Regel eine geringe Verweilzeit (0,1 bis 0,2 s) verwendet wurde. Außerdem wurde generell keine genaue Analyse der chemischen Form des die untersuchte Aktivkohle penetrierenden Iods durchgeführt.

### 3. Experimentelles

Die Experimente wurden entsprechend den Untersuchungen bei tieferen Temperaturen /3/ durchgeführt. Daten der untersuchten kommerziellen Aktivkohlen gehen aus Tab. 1 hervor. Es wurden acht imprägnierte und, zum Vergleich, zwei nichtimprägnierte Aktivkohlen verwendet. Die Aktivkohlen 1 bis 4 sind gängige Aktivkohlen. 207B (KI) wird in den Iodfiltern deutscher Kernkraftwerke vorwiegend eingesetzt. Die Aktivkohlen 5 bis 8 sind weniger gängige, teilweise experimentelle Aktivkohlen. Die Aktivkohlen 5, 6 und 8 unterscheiden sich jeweils nur durch das Grundmaterial von den Aktivkohlen 1, 2 und 4. Die nichtimprägnierten Aktivkohlen (9 und 10) werden in Iodfiltern von Kernkraftwerken nicht verwendet (geringe Abscheidung von organischem Radioiod bei hoher relativer Feuchte).

Es wurden frische und zum Teil auch gealterte Aktivkohlen untersucht. Die Alterung erfolgte in der Anlagenraumabluft eines DWR. Die in dieser Abluft auftretenden, die Abscheidung von Radioiod an Aktivkohle beeinflussenden Schadstoffe bestehen vorwiegend aus organischen Substanzen (Toluol, Xylol, Nonan, Decan, Dodecan). Anorganische, die Alkalinität der Aktivkohle herabsetzende Substanzen sind zu vernachlässigen /5,6,7,8/. Im Rahmen der vorliegenden Untersuchungen ergaben sich die gleichen Befunde. Die Alterungszeit betrug 6 und 12 Monate (ca. 30 °C, 40 % r.F., 50 cm/s).

Die Parameter der Labortests sind in Tab. 2 wiedergegeben. Die Testbetten waren unterteilt, um den Abscheidegrad oder Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bzw. Verweilzeit zu messen. Bei den gealterten Aktivkohlen wurden die Aktivkohlestrecken unverändert eingesetzt, d.h. die Aktivkohleschichtung wurde nicht verändert.

Zur Unterscheidung der die Testbetten durchdringenden Iodverbindungen bestanden die nachgeschalteten, bei ca. 80 °C betriebenen Sicherheitsbetten aus verschiedenen Sorbentien: DSM11 (für I<sub>2</sub>), AC6120 (für CH<sub>3</sub>I u. a.) und 207B (KI) (für schwerer abscheidbare Iodverbindungen).

Das elementare Iod war mit <sup>131</sup>I markiert. Der minimal nachweisbare Durchlaßgrad betrug ca. 10<sup>-5</sup> %. Bei den frischen Aktivkohlen wurde (nach dem Test)

nur an den vorderen Testbetten  $^{131}\text{I}$  festgestellt. (Wenn zwei aufeinanderfolgende Testbetten aktivitätsfrei waren, wurden keine weiteren Testbetten gemessen.)

Die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse geht aus zwei Tests unter gleichen Bedingungen bei der Aktivkohle 207B (KI) hervor. Die Abb. 1 enthält den Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe. Es läßt sich ein steiler und flacher Teil der Durchlaßkurve unterscheiden. (In Test 2 ist der flache Teil nicht deutlich ausgeprägt.) Der steile Teil kann  $\text{I}_2$  zugeschrieben werden, der flache Teil zumindest weitgehend anderen, schwerer abscheidbaren Iodverbindungen, die in geringen Anteilen als Verunreinigungen vorhanden sind oder im Testbett gebildet werden.

Berechnet aus den ersten drei Teilbetten ergaben sich in den genannten Tests folgende mittlere K-Werte und Standardabweichungen derselben:

$$\text{Test 1: } K = 62 \pm 4 \text{ s}^{-1};$$

$$\text{Test 2: } K = 66 \pm 7 \text{ s}^{-1}.$$

Wie ersichtlich lagen die Standardabweichungen der mittleren K-Werte wie i. allg. auch in den Tests bei tieferen Temperaturen /3/ unter  $10 \text{ s}^{-1}$  und somit nicht höher als in vergleichbaren, d.h. etwa gleich hohe K-Werte liefernden Tests mit  $\text{CH}_3\text{I}$  /9/.

Die relativ hohen Unterschiede im flachen Teil der Durchlaßkurven reflektieren das stark schwankende Auftreten von anderen Iodverbindungen als  $\text{I}_2$  in geringen Anteilen.

Tab. 1: Daten der untersuchten Aktivkohlen

Nummer	Bezeichnung	Grundmaterial	Korngröße <sup>a)</sup> [mesh]	Imprägnans <sup>b)</sup>	Lieferant
1	207B (KI)	Steinkohle	8 - 12	KI	Sutcliffe Speakman
2	207B (TEDA)	Steinkohle	8 - 12	TEDA	Sutcliffe Speakman
3	Kiteg II	Kokosnuß- schale	8 - 16	KI + tertiäres Amin	Nuclear Consulting Services
4	Radshield 25	Kokosnuß- schale	8 - 16	tertiäres Amin	Charcoal Engineering
5	208C (KI)	Kokosnuß- schale	8 - 12	KI	Sutcliffe Speakman
6	208C (TEDA)	Kokosnuß- schale	8 - 12	TEDA	Sutcliffe Speakman
7	BJN 4712	Holzkohle	≈ 14	KI	Degussa
8	Radshield 26	Steinkohle	8 - 16	tertiäres Amin	Charcoal Engineering
9	207B	Steinkohle	8 - 12	—	Sutcliffe Speakman
10	208C	Kokosnuß- schale	8 - 12	—	Sutcliffe Speakman

a) 8 - 12 mesh: BS 410 /10/; 8 - 16 mesh: ASTM D2862 /11/;  
 ≈ 14 mesh: Stäbchendurchmesser 1,2 mm

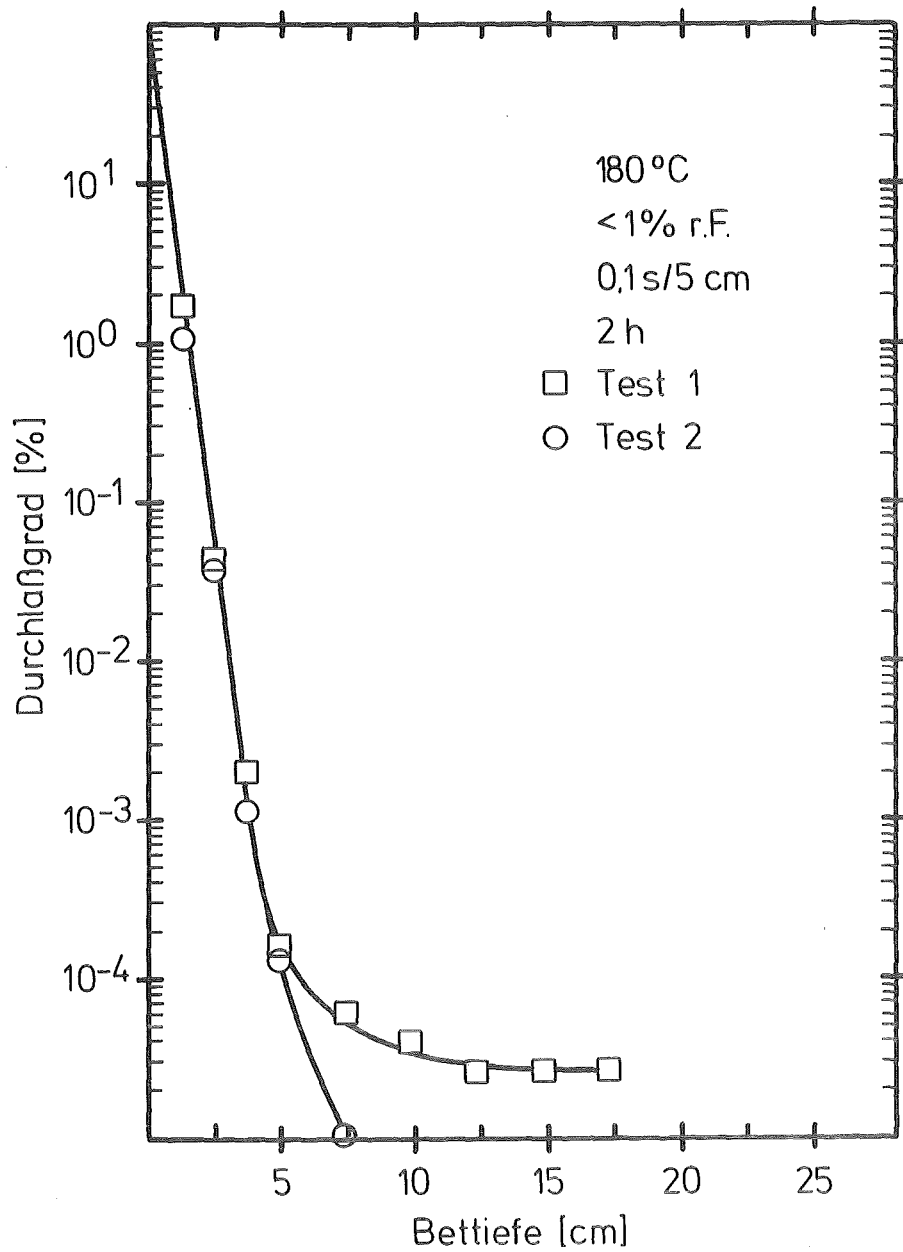
b) bei Kiteg II und BJN 4712 noch weitere Imprägnantien; —: kein Imprägnans

Tab. 2: Testparameter

Parameter	Einheit	Wert
Temperatur	°C	180
relative Feuchte a)	%	< 1
lineare Luftgeschwindigkeit	cm/s	50
Bettiefe b)	cm	25
Verweilzeit	s	0,5
Vorströmzeit	h	1
Einleitzeit	h	1
Nachströmzeit	h	2
I <sub>2</sub> -Konzentration	mg/m <sup>3</sup>	1

a) Taupunkt: 30 °C

b) 10 Betten einer Tiefe von 2,5 cm; erste 2 Betten in Teilbetten einer Tiefe von 1,25 cm unterteilt; Bettdurchmesser jeweils 2,5 cm; Reihenfolge der Betten wie bei der Alterung im KKW (Abmessungen der (ganzen) Betten ebenfalls für nachgeschaltete Sicherheitsbetten geltend)



KIK LAF II 08335

Durchlaßgrad von 207B (KI) für  $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$   
in Tests unter gleichen Bedingungen

Abb. 1 a)

a)  $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$ ;  $^{131}\text{I}$  beaufschlagt als  $\text{I}_2$   
(auch im folgenden);  
weitere Parameter: s. Tab. 2



## 4. Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Untersuchungen zur Abscheidung von  $^{131}\text{I}$ , beaufschlagt als  $\text{I}_2$ , an den in Tab. 1 aufgeführten imprägnierten und nichtimprägnierten Aktivkohlen unter den in Tab. 2 verzeichneten Bedingungen wiedergegeben. Wie erwähnt, wurden teilweise auch Messungen mit Aktivkohlen durchgeführt, die während 6 und 12 Monaten in der Anlagenraumabluft eines DWR gealtert worden waren. Die Alterung ist im folgenden jeweils ausdrücklich vermerkt, d.h. ohne diesen Vermerk beziehen sich die Ergebnisse auf neue Aktivkohlen. Zunächst wird auf den Durchlaßgrad für  $^{131}\text{I}$  eingegangen, dann auf die chemische Form des die Testbetten penetrierenden  $^{131}\text{I}$ .

### 4.1 Durchlaßgrad für $^{131}\text{I}$

Zuerst seien die imprägnierten Aktivkohlen behandelt. In den Abb. A-1 bis A-4 (Anhang A) ist der bei den frischen Aktivkohlen 1 bis 8 jeweils ermittelte Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe dargestellt. Die Abb. A-5 bis A-8 enthalten die bei den Aktivkohlen 1 bis 4 bei verschiedenen Alterungszeiten (keine Alterung oder Alterung während 6 bzw. 12 Monaten) erzielten Ergebnisse. (Bei den Aktivkohlen 5 bis 8 wurden keine Alterungsversuche durchgeführt.)

Wie bei den schon aufgeführten Ergebnissen (Abb. 1) läßt sich ein steiler Teil (Bettiefe  $\leq$  ca. 5 cm) und flacher Teil (Bettiefe  $>$  ca. 5 cm) der Durchlaßkurve unterscheiden. Wie bereits erwähnt, kann der steile Teil  $\text{I}_2$  zugeschrieben werden, der flache Teil zumindest weitgehend anderen, schwerer abcheidbaren Iodverbindungen, die in geringen Anteilen als Verunreinigungen vorhanden sind oder im Testbett gebildet werden (vgl. Kap. 4.2). Der Einfluß der Alterung ist in beiden Teilen der Durchlaßkurve festzustellen.

Tab. 3 sowie die Abb. 2 und 3 geben einen Überblick der bei verschiedenen Bettiefen und Alterungszeiten gemessenen Durchlaßgrade. Es ist folgendes zu erkennen:

#### a) Frische Aktivkohlen:

Die bei verschiedenen Aktivkohlen gefundenen Durchlaßgrade unterschieden sich nur in geringem Maße. Die Durchlaßgrade lagen bei einer Bettiefe von

5 cm etwa zwischen  $10^{-4}$  und  $10^{-3}$  %, bei größeren Bettiefen etwa zwischen  $10^{-5}$  und  $10^{-4}$  %.

b) Gealterte Aktivkohlen:

Die bei verschiedenen Aktivkohlen erhaltenen Durchlaßgrade unterschieden sich wieder nur geringfügig (207B (TEDA):s.u.). Bei einer Alterungszeit von 12 Monaten lagen die Durchlaßgrade bei einer Bettiefe von 5 cm zwischen  $10^{-1}$  und  $10^0$  %, bei einer Bettiefe von 25 cm etwa zwischen  $10^{-2}$  und  $10^{-1}$  %.

Die bei 12 Monate gealtertem 207B (TEDA) gemessenen Werte sind insbesondere bei größeren Bettiefen wegen Entzündung der Aktivkohle in Bettiefen zwischen 7,5 und 15 cm nur bedingt vergleichbar.

In den Untersuchungen bei tieferen Temperaturen /3/ wurde, wie erwähnt, ebenfalls kein entscheidender Unterschied in den bei verschiedenen Aktivkohlen ermittelten Durchlaßgraden festgestellt. Die dort bei einer Bettiefe von 5 cm bei frischen Aktivkohlen gemessenen Durchlaßgrade stimmen zudem mit den hier erzielten in guter Näherung überein. Bei den gealterten Aktivkohlen liegen wegen unterschiedlicher Nachströmzeiten keine vergleichbaren Durchlaßgrade vor.

Es seien nun die zum Vergleich mit nichtimprägnierten Aktivkohlen (207B, 208C) durchgeführten Tests besprochen. Wie aus Tab. 4 und Abb. A-9 hervorgeht, unterscheiden sich die bei 207B und 208C erhaltenen Durchlaßgrade praktisch nicht. Die Durchlaßgrade stimmen zudem in etwa mit den bei den entsprechenden imprägnierten Aktivkohlen erzielten überein (vgl. Abb. A-1, A-3).

In den Untersuchungen bei tieferen Temperaturen /3/ wurden gleiche Ergebnisse verzeichnet (teilweise nur bei vergleichbarer relativer Feuchte).

Tab. 3: Durchlaßgrad verschiedener imprägnierter Aktivkohlen für  $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$   
(vgl. Abb. 2 und 3)

Temperatur : 180 °C

relative Feuchte : < 1 %

Nachströmzeit : 2 h

weitere Parameter: s. Tab. 2

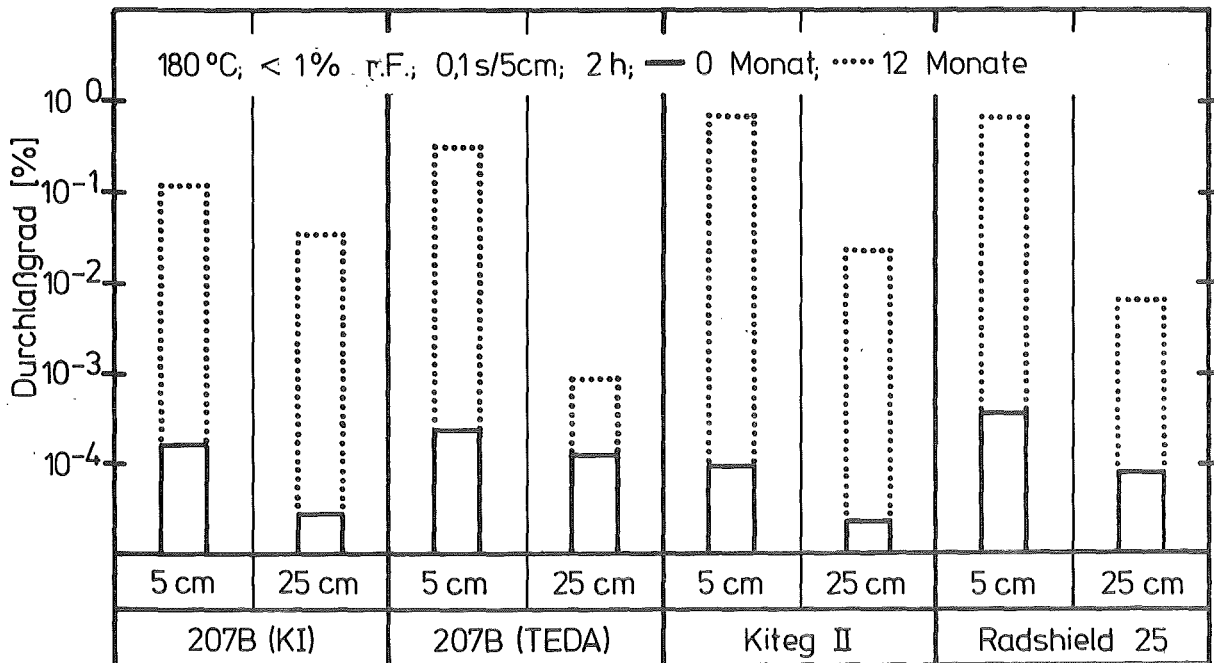
Kohle	Bettiefe [cm]	Verweilzeit [s]	Durchlaßgrad [%] a)	
			0 Monate b)	12 Monate b)
207B (KI)	5	0,1	1,7 (-4)	1,2 (-1)
	25	0,5	2,8 (-5) <sup>d)</sup>	3,7 (-2)
207B (TEDA)	5	0,1	2,4 (-4)	3,2 (-1) <sup>c)</sup>
	25	0,5	1,3 (-4)	9,0 (-4) <sup>c)</sup>
Kiteg II	5	0,1	9,8 (-5)	7,3 (-1)
	25	0,5	2,3 (-5) <sup>d)</sup>	2,4 (-1)
Radshield 25	5	0,1	3,7 (-4)	6,9 (-1)
	25	0,5	8,2 (-5) <sup>d)</sup>	6,5 (-3)
208C (KI)	5	0,1	2,3 (-4)	—
	25	0,5	9,2 (-5) <sup>d)</sup>	—
208C (TEDA)	5	0,1	7,5 (-5)	—
	25	0,5	5,0 (-5) <sup>d)</sup>	—
BJN 4712	5	0,1	1,1 (-4)	—
	25	0,5	1,6 (-5) <sup>d)</sup>	—
Radshield 26	5	0,1	7,2 (-4)	—
	25	0,5	3,0 (-5) <sup>d)</sup>	—

a) 1,7 (-4) =  $1,7 \cdot 10^{-4}$  usw.; — : kein Test durchgeführt

b) Alterungszeit (6 Monate: s. Anhang A)

c) Nachströmzeit 0,5 h (Entzündung der Aktivkohle zwischen 7,5 und 15 cm Betttiefe; Löschung mit  $\text{N}_2$ )

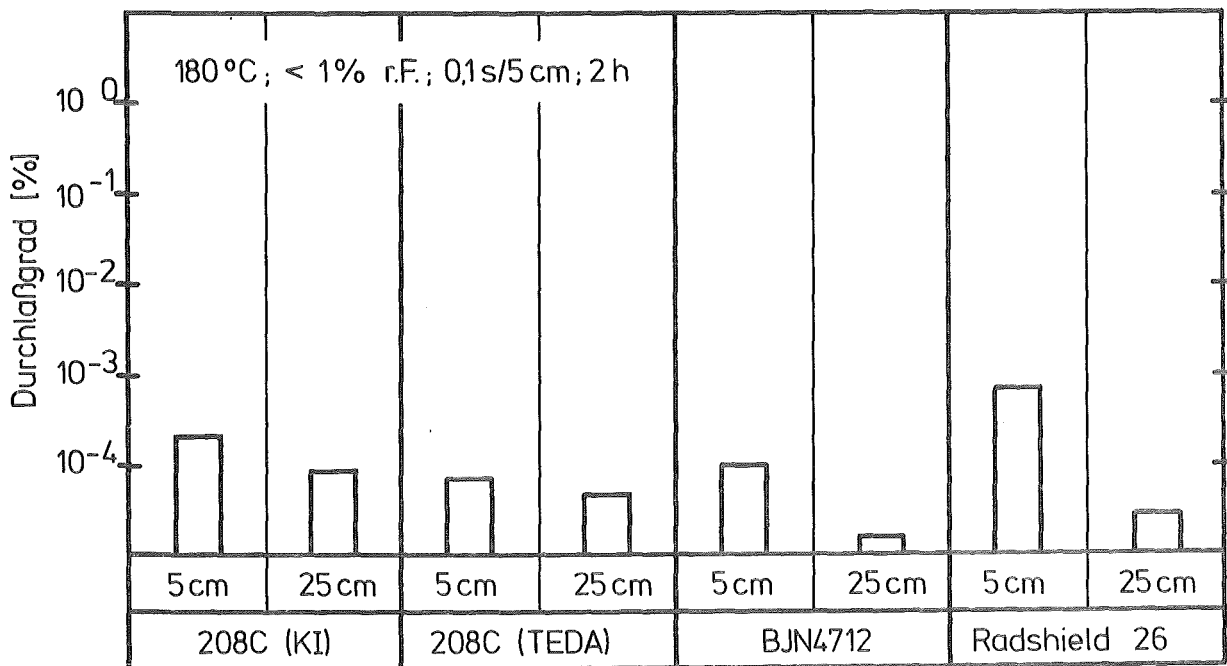
d) extrapoliert (s. Anhang A)



KIK LAF II D8354

Durchlaßgrad verschiedener imprägnierter Aktivkohlen für <sup>131</sup>I als I<sub>2</sub> bei verschiedenen Bettiefen und Alterungszeiten

Abb. 2 a), b)



KIK LAF II D8355

Durchlaßgrad verschiedener imprägnierter Aktivkohlen für <sup>131</sup>I als I<sub>2</sub> bei verschiedenen Bettiefen (keine Alterung)

Abb. 3 b)

- a) 207B (TEDA), 12 Monate: Nachströmzeit 0,5 h (Entzündung)
- b) 25 cm: teilweise extrapolierte Werte (s. Anhang A)

Tab. 4: Durchlaßgrad verschiedener nichtimprägnierter Aktivkohlen für  $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$

Temperatur : 180 °C  
relative Feuchte : < 1 %  
Nachströmzeit : 2 h  
weitere Parameter: s. Tab. 2

Kohle	Bettiefe [cm]	Verweilzeit [s]	Durchlaßgrad a) [%]
207B	5	0,1	1,7 (-4)
	25	0,5	3,1 (-5) <sup>b)</sup>
208C	5	0,1	6,5 (-4)
	25	0,5	2,4 (-5) <sup>b)</sup>

a)  $1,7 (-4) = 1,7 \cdot 10^{-4}$

b) extrapoliert (s. Anhang A)

#### 4.2 Chemische Form des penetrierenden $^{131}\text{I}$

Zunächst sei auf die bei den imprägnierten Aktivkohlen erzielten Ergebnisse eingegangen. In den Abb. B-1 bis B-4 (Anhang B) ist für die Aktivkohlen 1 bis 4 die Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf die Test- und Sicherheitsbetten bei verschiedenen Alterungszeiten (0 oder 12 Monate) der Testbetten angegeben. Der Effekt der Alterung ist klar erkenntlich: Bei den gealterten Aktivkohlen wurden viel höhere Anteile des  $^{131}\text{I}$  an den Testbetten 2 bis 10 und an den Sicherheitsbetten gefunden.

Zur Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf die Sicherheitsbetten ist weiterhin folgendes zu sagen:

a) Frische Aktivkohlen:

Das  $^{131}\text{I}$  wurde nur am ersten oder ersten und zweiten 207B (KI)-Bett gefunden.

b) Gealterte Aktivkohlen:

Das  $^{131}\text{I}$  wurde an beiden DSM11-Betten, beiden AC6120-Betten und an den ersten zwei bis fünf 207B (KI)-Betten gemessen. Bei den letzteren wurde das meiste  $^{131}\text{I}$  am zweiten oder dritten Bett festgestellt, abgesehen vom nur bedingt vergleichbaren Test mit 207B (TEDA) (Abb. B-2).

Bei den frischen Aktivkohlen 5 bis 8 wurde eine analoge Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf die Test- und Sicherheitsbetten ermittelt (nicht wiedergegeben).

Aus der Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf die Sicherheitsbetten ist zu schließen, daß die Testbetten bei frischen Aktivkohlen nicht von  $\text{I}_2$  und  $\text{CH}_3\text{I}$ , sondern nur von  $\text{I}$  in stärker penetrierenden Formen durchdrungen wurden, bei gealterten Aktivkohlen dagegen von allen genannten Formen, insbesondere auch von  $\text{I}_2$ . Bei gealtertem 207B (KI) und Kiteg II überwog sogar das  $\text{I}_2$  bei weitem.

In den Untersuchungen bei tieferen Temperaturen /3/ war dagegen, wie erwähnt, in allen Fällen das die Testbetten durchdringende  $\text{I}$  in nichtelementarer Form.

Es seien nun die bei den nichtimprägnierten Aktivkohlen (207B, 208C) erzielten Ergebnisse erwähnt. In den Abb. B-5 und B-6 ist die Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf die Test- und Sicherheitsbetten dargestellt. Es ist praktisch kein Unterschied zu den entsprechenden Tests mit imprägnierter Aktivkohle festzustellen.

Insgesamt ist aus den Untersuchungen bei  $180\text{ }^{\circ}\text{C}$  zu schließen, daß u.U. bei extremen, im Ringraum eines DWR während eines Auslegungstörfalls allerdings nicht zu erwartenden Temperaturen ( $> 150\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) ein Abscheidegrad der Störfallfilter von 99,99 % für elementares Radioiod unterschritten werden kann.

## 5. Zusammenfassung

Als Ergänzung von Untersuchungen zur Abscheidung von elementarem  $^{131}\text{I}$  an Aktivkohlen bei Temperaturen von  $\leq 130\text{ }^{\circ}\text{C}$  wurden analoge Experimente bei  $180\text{ }^{\circ}\text{C}$  durchgeführt. Diese Temperatur ist im Ringraum eines Druckwasserreaktors während eines Auslegungsstörfalls allerdings nicht zu erwarten.

Wie bei  $\leq 130\text{ }^{\circ}\text{C}$  ergab sich bei verschiedenen frischen und gealterten kommerziellen Aktivkohlen kein entscheidender Unterschied im Ausmaß der Abscheidung von  $^{131}\text{I}$ , beaufschlagt als  $\text{I}_2$  (bei gleicher Alterungszeit). Wie bei  $\leq 130\text{ }^{\circ}\text{C}$  war bei frischen Aktivkohlen das  $^{131}\text{I}$ , das tiefe Aktivkohlebetten (25 cm entsprechend einer Verweilzeit von 0,5 s) durchdrang, in einer nichtelementaren Form. Im Gegensatz dazu durchdrang bei gealterten Aktivkohlen, wegen deutlich verringerter physikalischer Adsorption an der mit Schadstoffen beladenen Kohlenoberfläche, auch elementares  $^{131}\text{I}$  entsprechende Aktivkohlebetten.

An der Durchführung und Auswertung der Messungen waren beteiligt:

K. Bleier, H. Fischer, A. Ladanyi, W. Sellien, R. Sommerlatt und S. Winkler.



## 6. Literatur

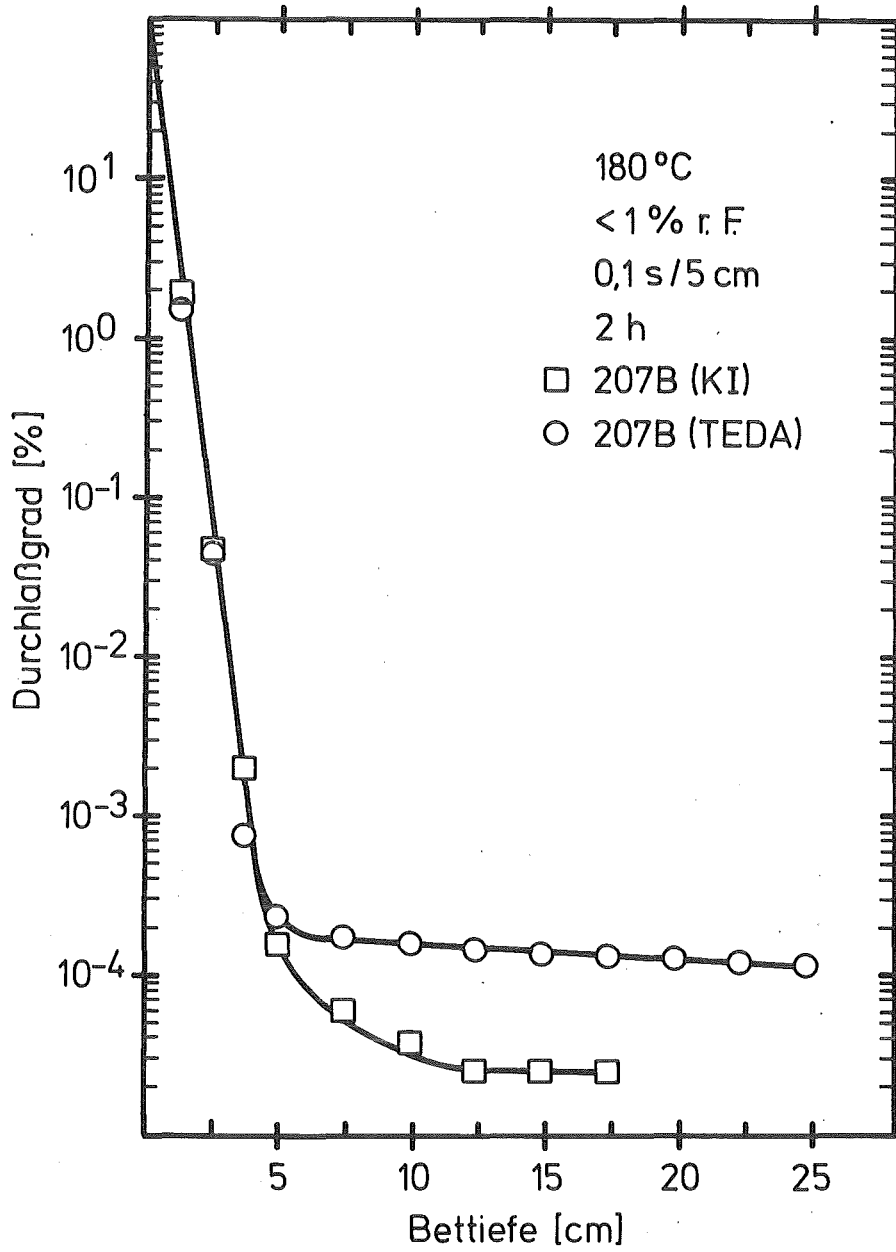
- /1/ Wilhelm, J.G.,  
Iodine Filters in Nuclear Installations,  
Commission of the European Communities,  
V/2110/83 (1982)
- /2/ Reaktorsicherheitskommission,  
RSK-Leitlinien für Druckwasserreaktoren,  
Gesellschaft für Reaktorsicherheit (1981)
- /3/ Deuber, H.,  
Abscheidung von elementarem  $^{131}\text{I}$  an Aktivkohlen unter Störfallbedingungen,  
KfK 3776 (1984)
- /4/ 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.-5.8.1982,  
CONF-820833 (1983) 248
- /5/ Furrer, J. et al.,  
Alterung und Vergiftung von Iodisorptionsmaterialien in Kernkraftwerken/  
Aging and Poisoning of Iodine Filters in Nuclear Power Plants,  
Kerntechnik 18 (1976) 313
- /6/ 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.-23.10.1980,  
CONF-801038 (1981) 465
- /7/ Deuber, H., Gerlach, K.,  
Untersuchungen zur Abscheidung von  $^{131}\text{I}$  durch ein Iodfilter eines  
Druckwasserreaktors,  
KfK 3594 (1983)
- /8/ Deuber, H., Gerlach, K.,  
Untersuchungen zur Alterung von Aktivkohlen in der Abluft eines Druck-  
wasserreaktors (DWR4),  
KfK 3711 (1984)
- /9/ Deuber, H., Gerlach, K.,  
Parametrische Untersuchungen zur Abscheidung von Methyljodid an einer  
KI-imprägnierten Aktivkohle,  
KfK 3746 (1984)
- /10/ British Standard Institution,  
Specification for Test Sieves,  
BS 410 (1976)
- /11/ American Society for Testing and Materials,  
Standard Test Method for Particle Size Distribution of Granular  
Activated Carbon,  
ASTM D2862 (1970)

Anhang A

Durchlaßgrad für  $^{131}\text{I}$  als  $I_2$  (als Funktion der Bettiefe)

Daten der untersuchten Aktivkohlen: Tab. 1

Testparameter: Tab. 2

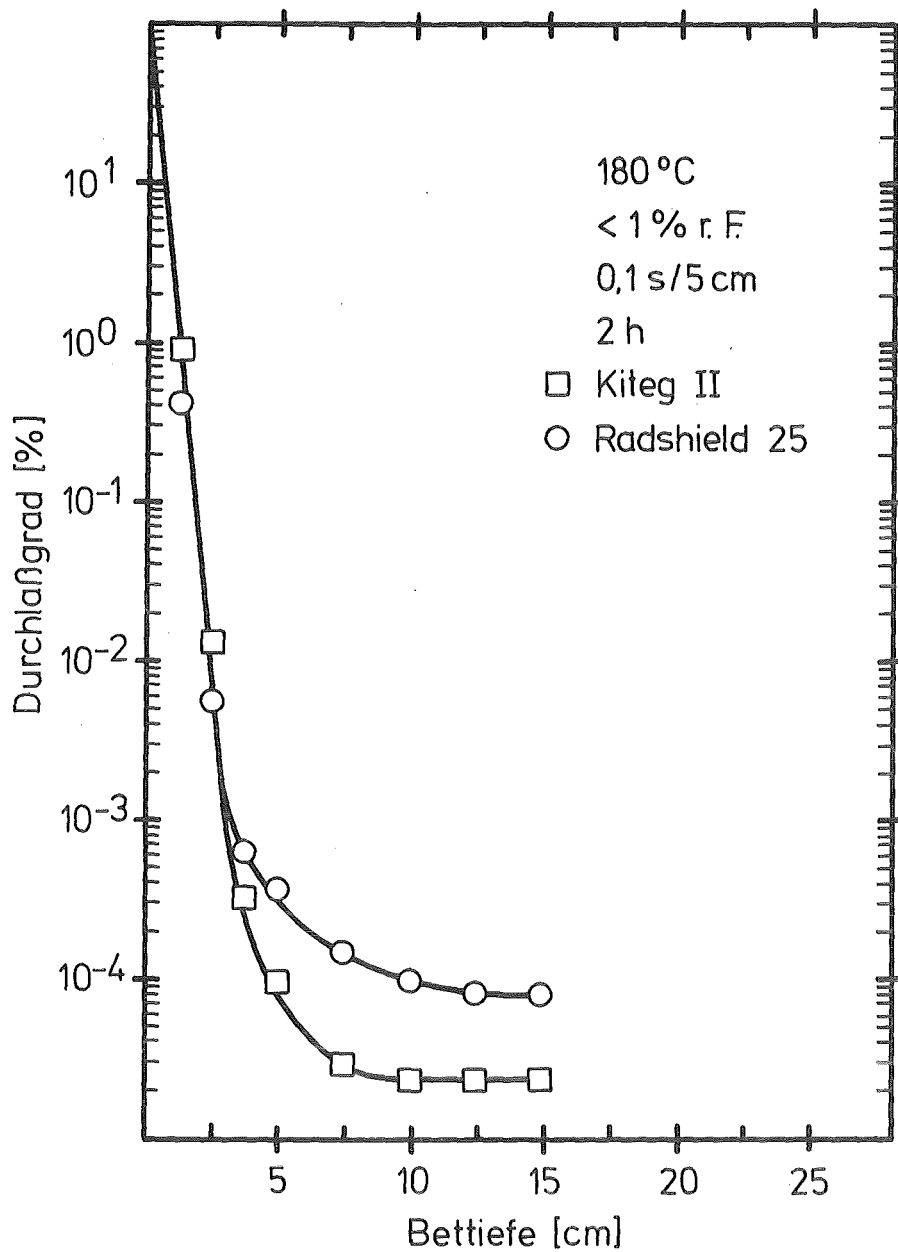


KIK LAF II D839

Durchlaßgrad von 207B (KI) und 207B (TEDA)  
für  $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$

Abb. A-1 a)

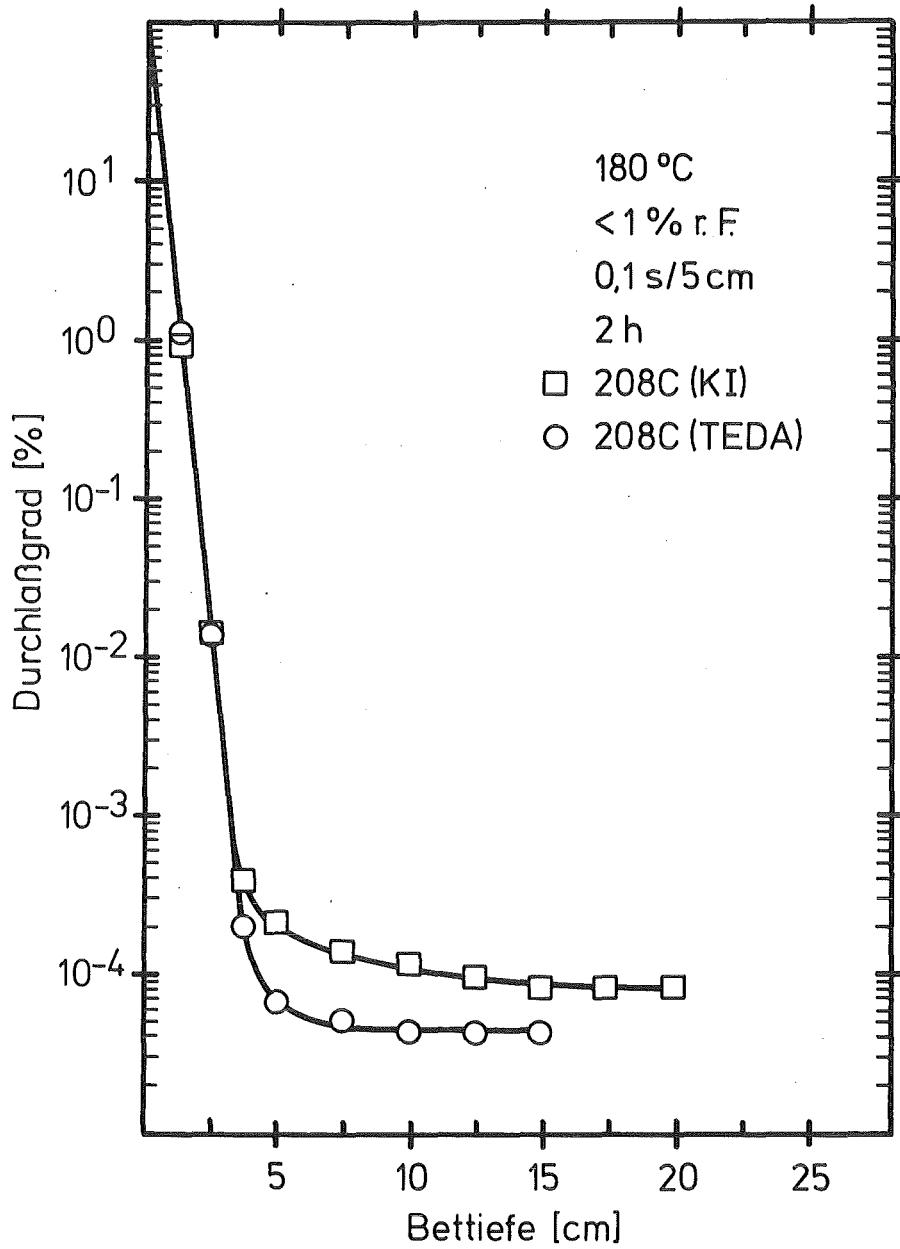
a) 207B (KI): Test 1 (vgl. Abb. 1)



KIK LAF II D8310

Durchlaßgrad von Kiteg II und Radshield 25  
für <sup>131</sup>I als I<sub>2</sub>

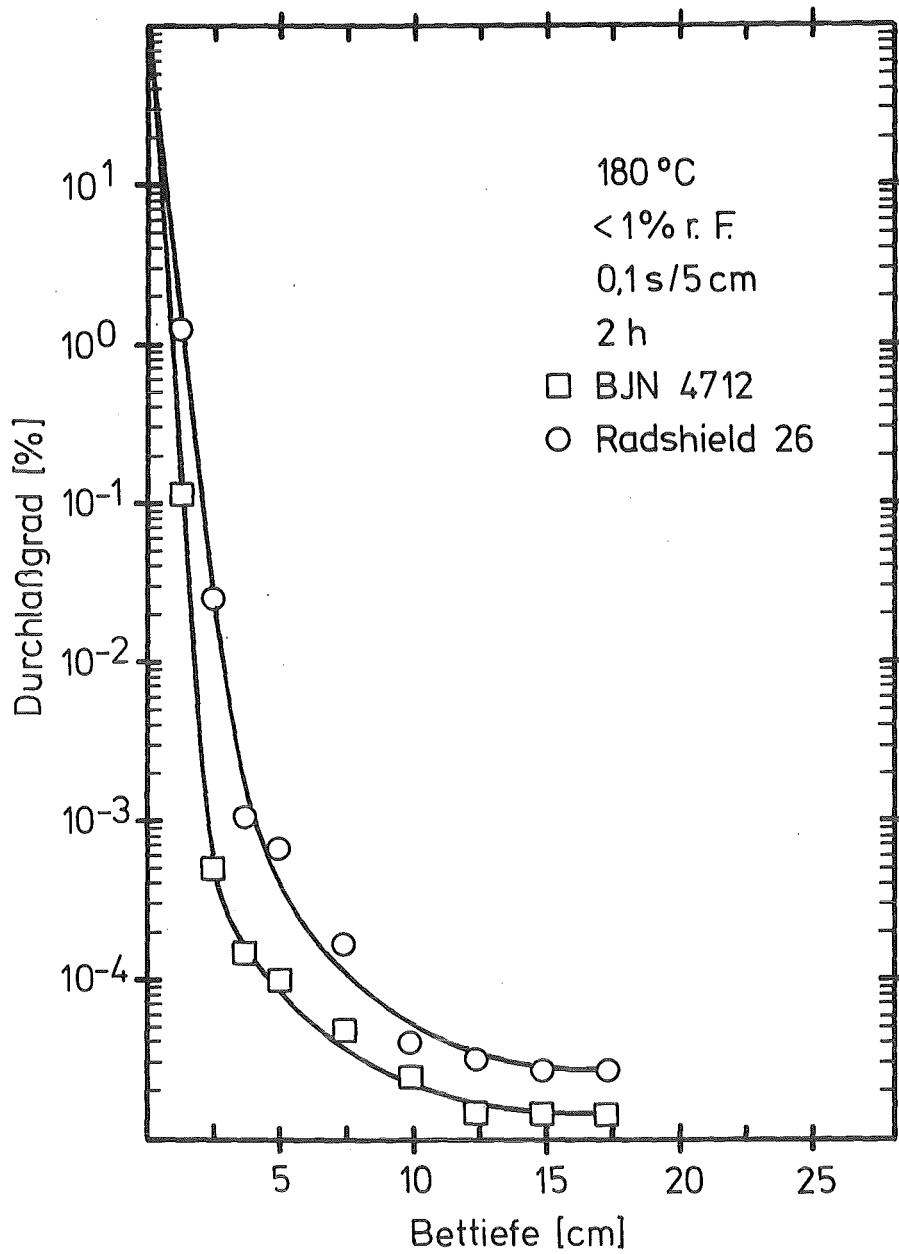
Abb. A-2



KfK LAF II D8311

Durchlaßgrad von 208C (KI) und 208C (TEDA)  
für <sup>131</sup>I als I<sub>2</sub>

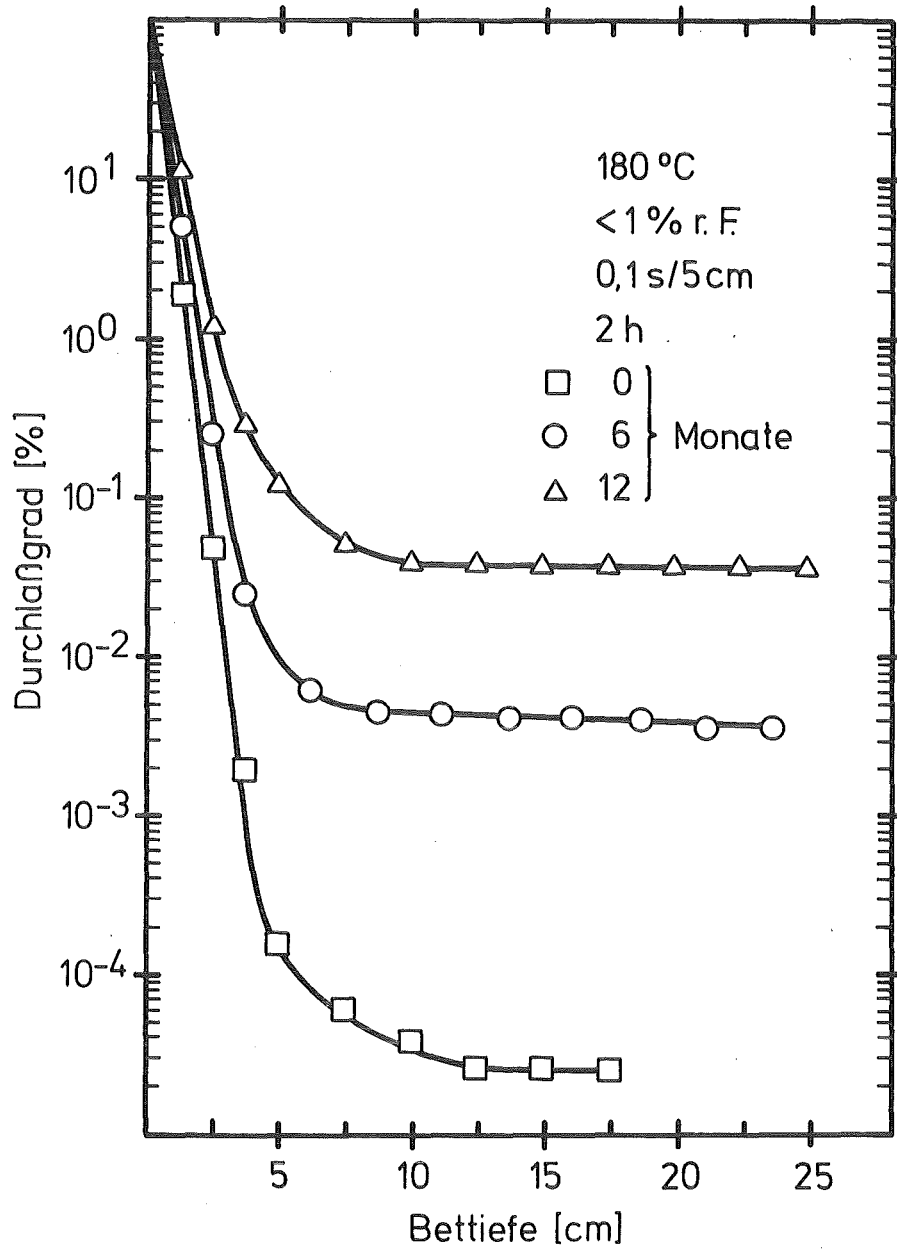
Abb. A-3



KIK LAF II D8312

Durchlaßgrad von BJN 4712 und Radshield 26  
für <sup>131</sup>I als I<sub>2</sub>

Abb. A-4

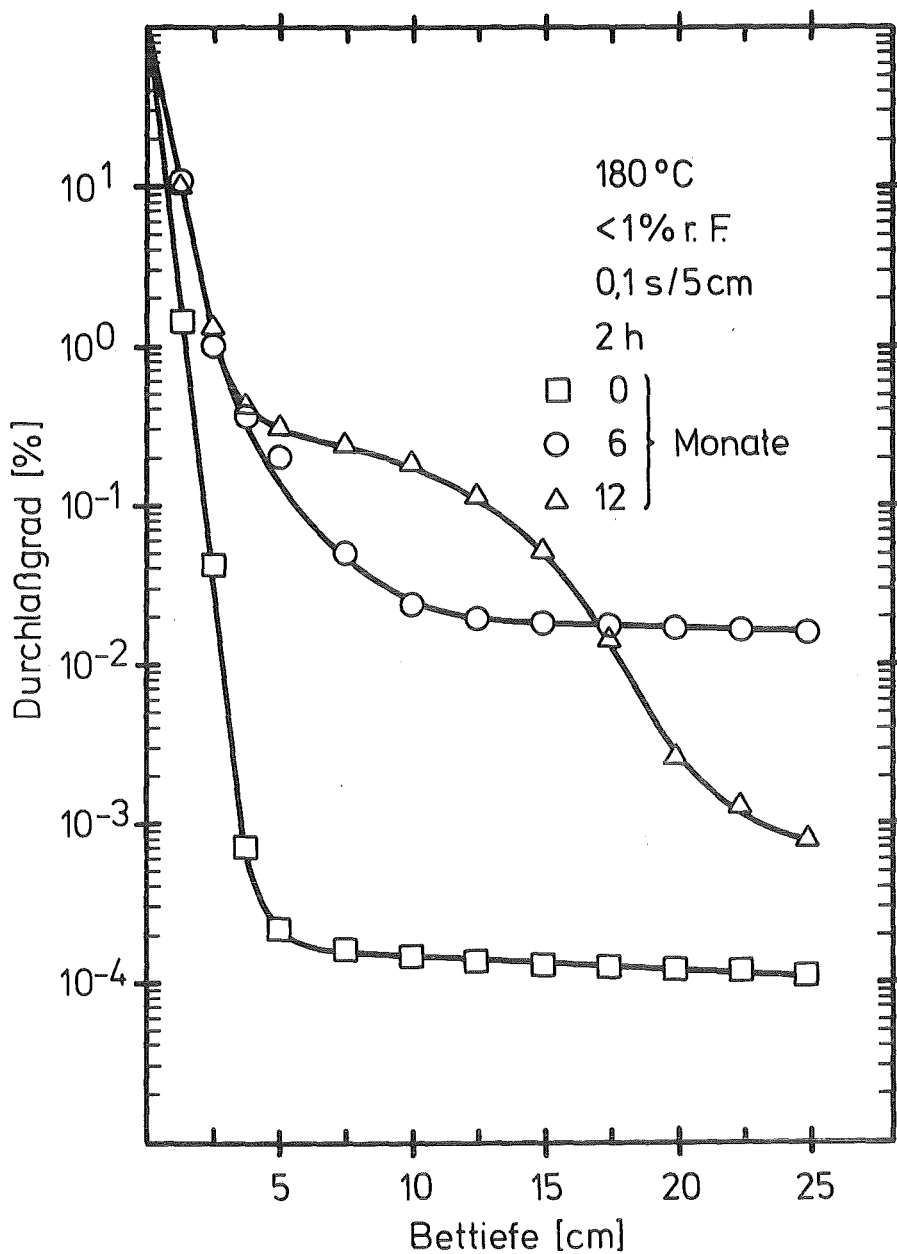


KIK LAF II D8325

Durchlaßgrad von 207B (KI) für  $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$   
bei verschiedenen Alterungszeiten

Abb. A-5 a)

- a) 0 Monate: Test 1 (vgl. Abb. 1);  
6 Monate: ohne erstes Teilbett  
(vor Labortest verlorengegangen)

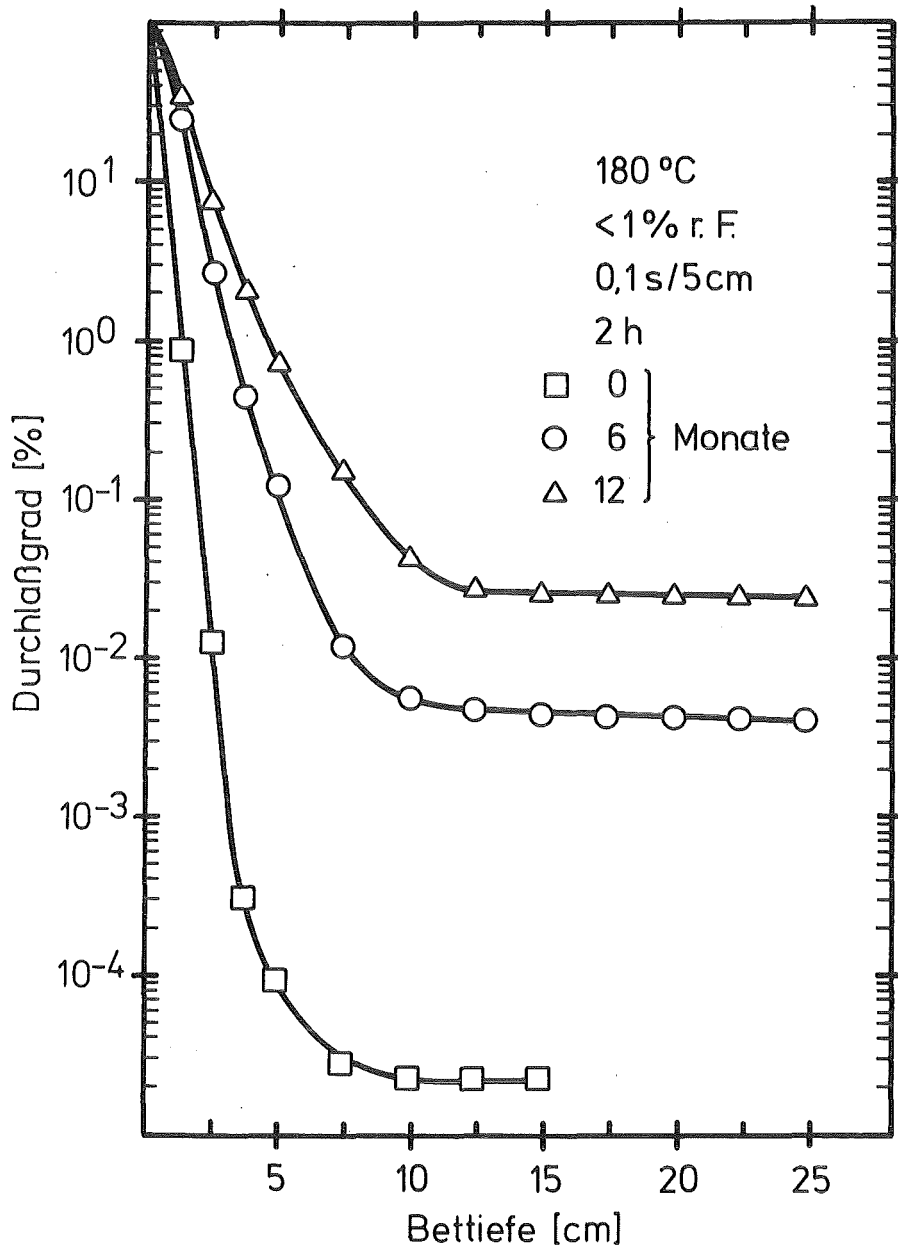


Durchlaßgrad von 207B (TEDA) für  $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$   
bei verschiedenen Alterungszeiten

Abb. A-6 a)

a) 12 Monate: Nachströmzeit 0,5 h (Entzündung)

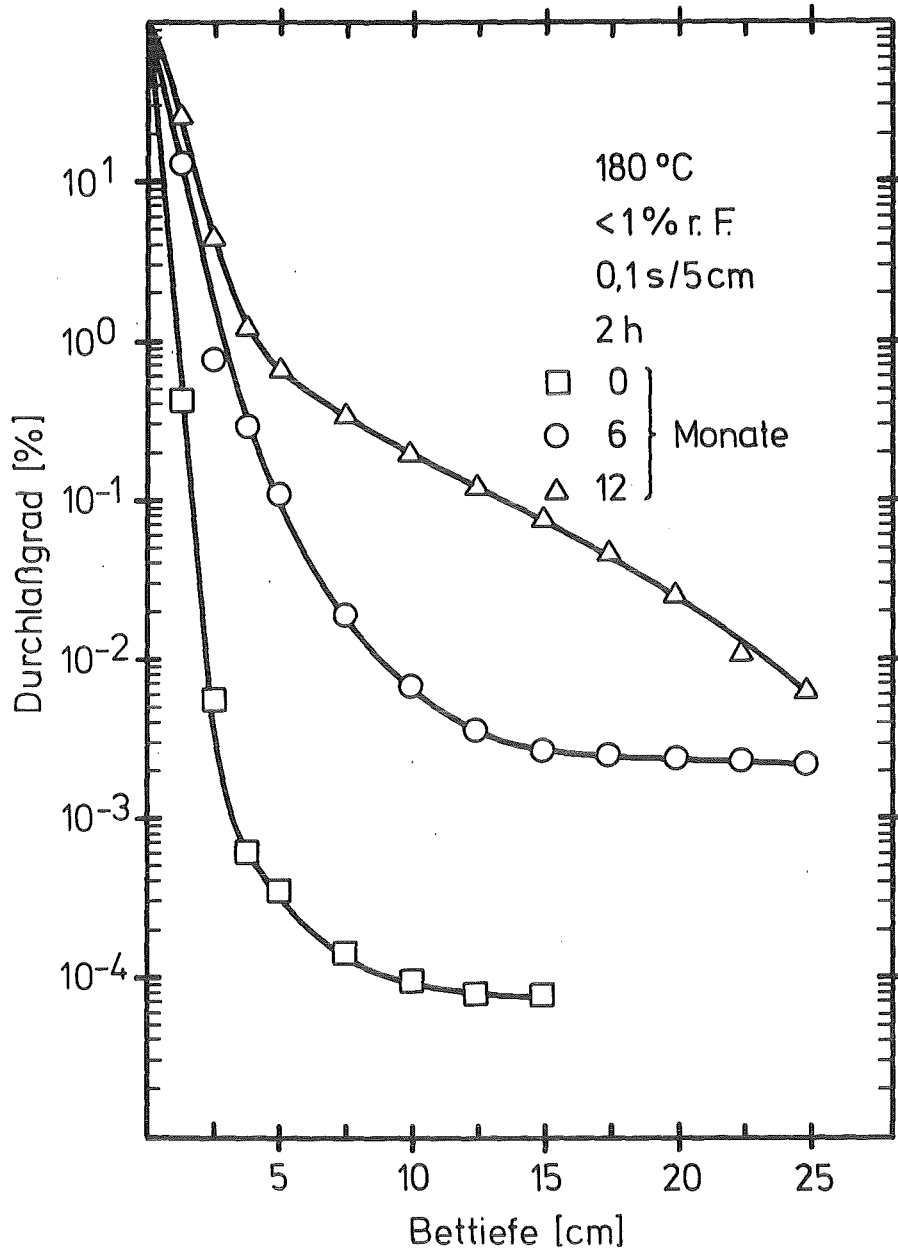




KIK LAF II D8327

Durchlaßgrad von Kiteg II für  $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$  bei verschiedenen Alterungszeiten

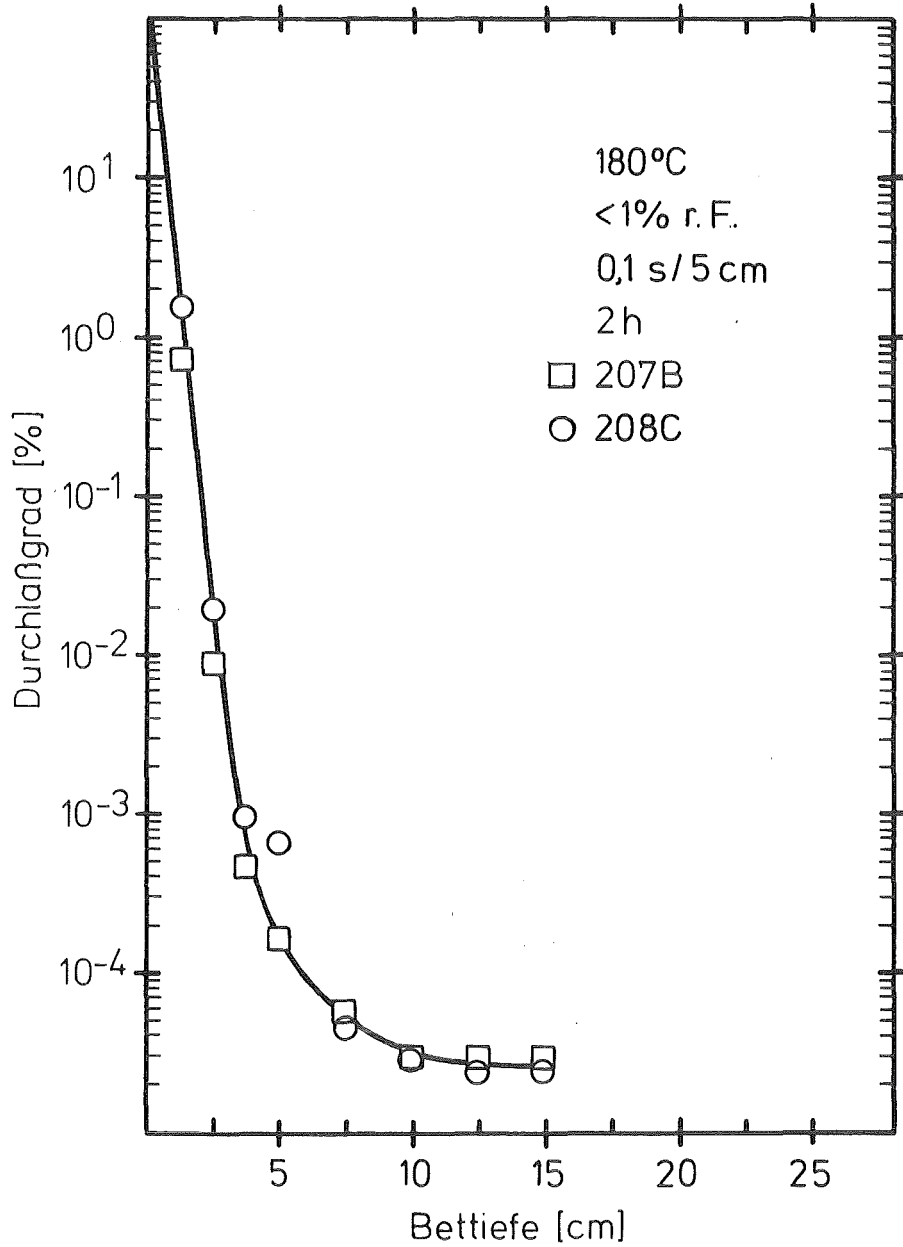
Abb. A-7



KJK LAF II D8328

Durchlaßgrad von Radshield 25 für  $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$  bei verschiedenen Alterungszeiten

Abb. A-8



KfK LAF II D8349

Durchlaßgrad von 207B und 208C für  $^{131}\text{I}$   
als  $\text{I}_2$

Abb. A-9

Anhang B

Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf Test- und Sicherheitsbetten ( $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$ )

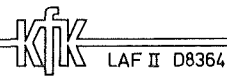
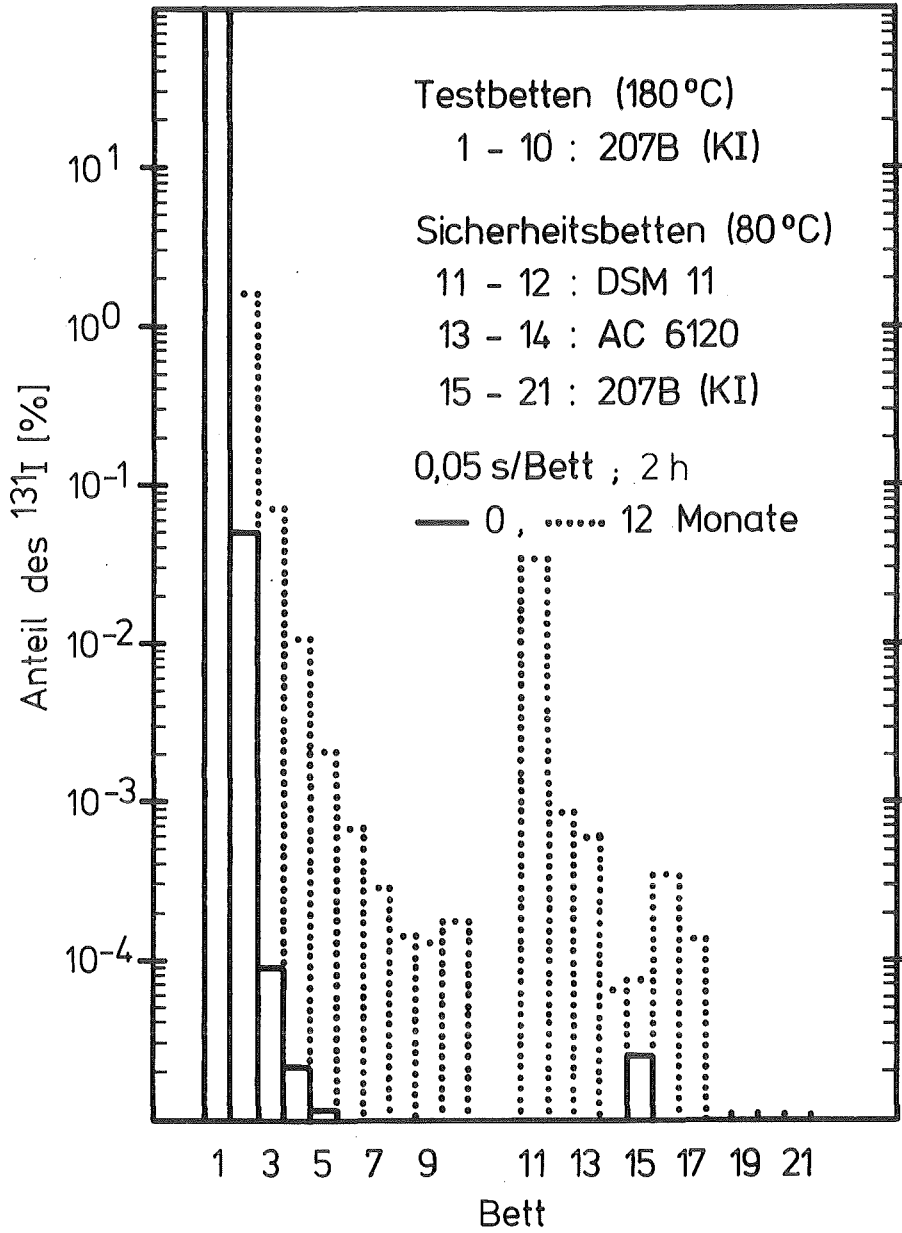
Sicherheitsbetten:

DSM11 : Abscheidung von  $\text{I}_2$

AC6120 : Abscheidung von leicht abscheidbaren organischen Iodverbindungen (z.B.  $\text{CH}_3\text{I}$ )

207B (KI) : Abscheidung von schwerer abscheidbaren Iodverbindungen

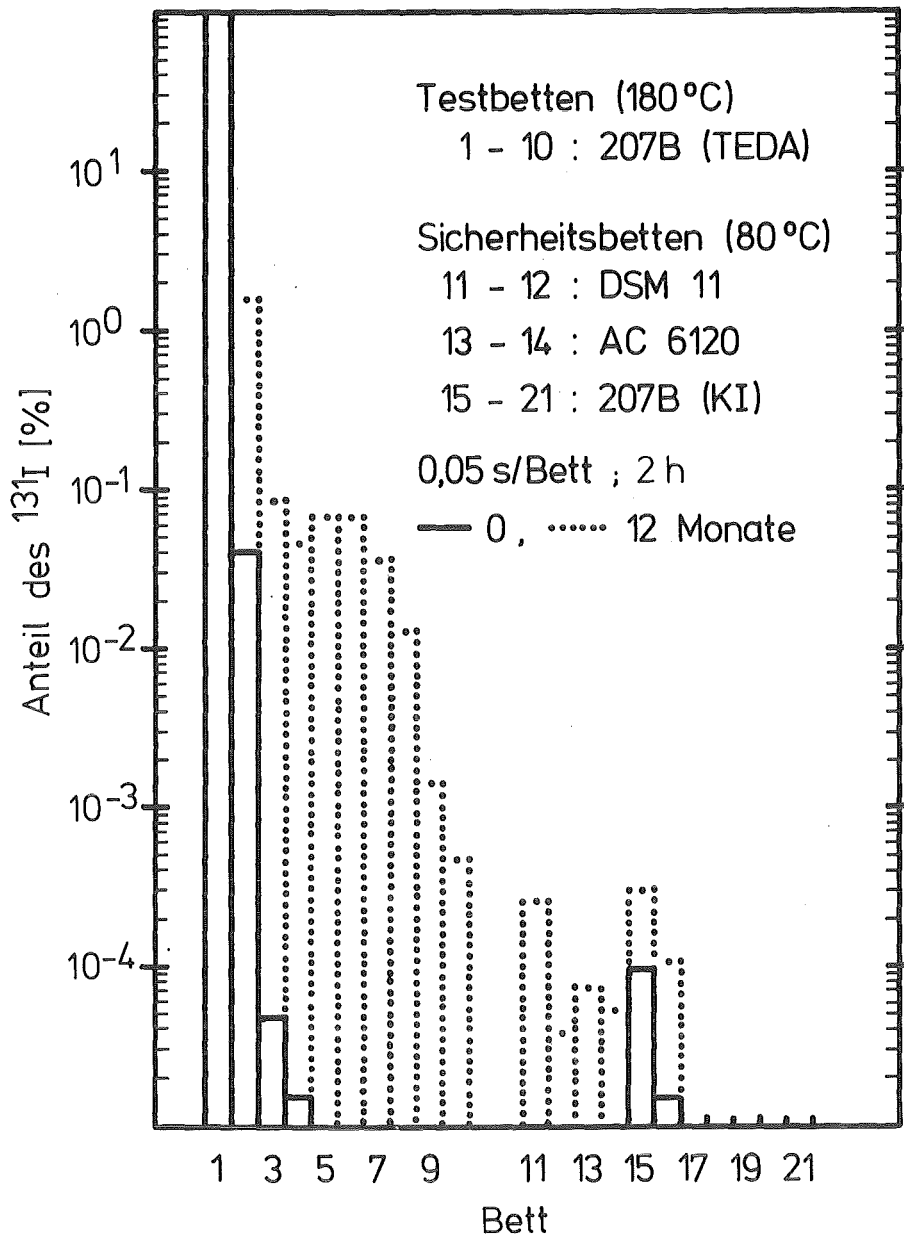
(Aus der Verteilung folgender Durchlaßgrad: Anhang A)



Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf Test- und Sicherheitsbetten bei verschiedenen Alterungszeiten ( $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$ )

Abb. B-1 a)

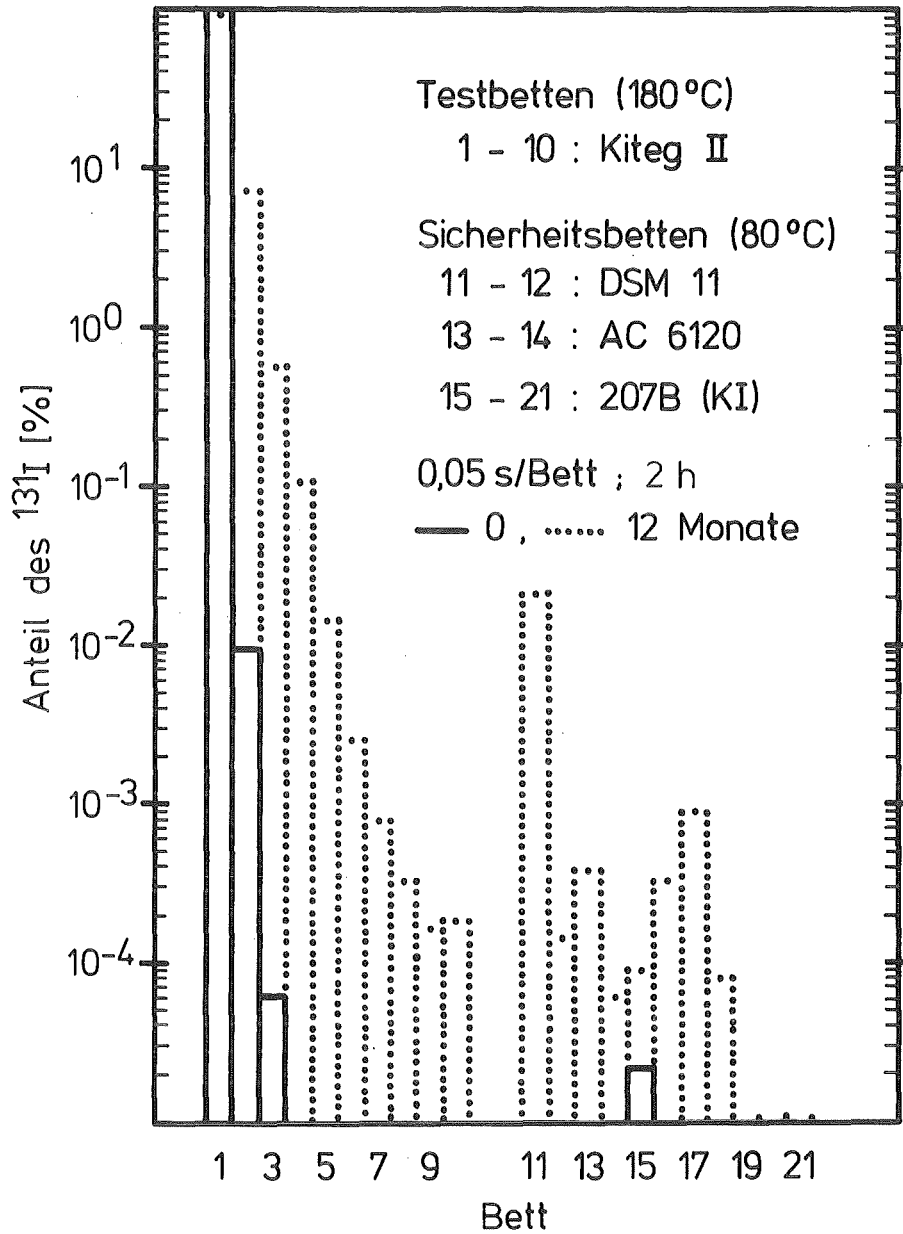
a) 0 Monate: Test 1 (vgl. Abb. 1)



Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf Test- und Sicherheitsbetten bei verschiedenen Alterungszeiten ( $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$ )

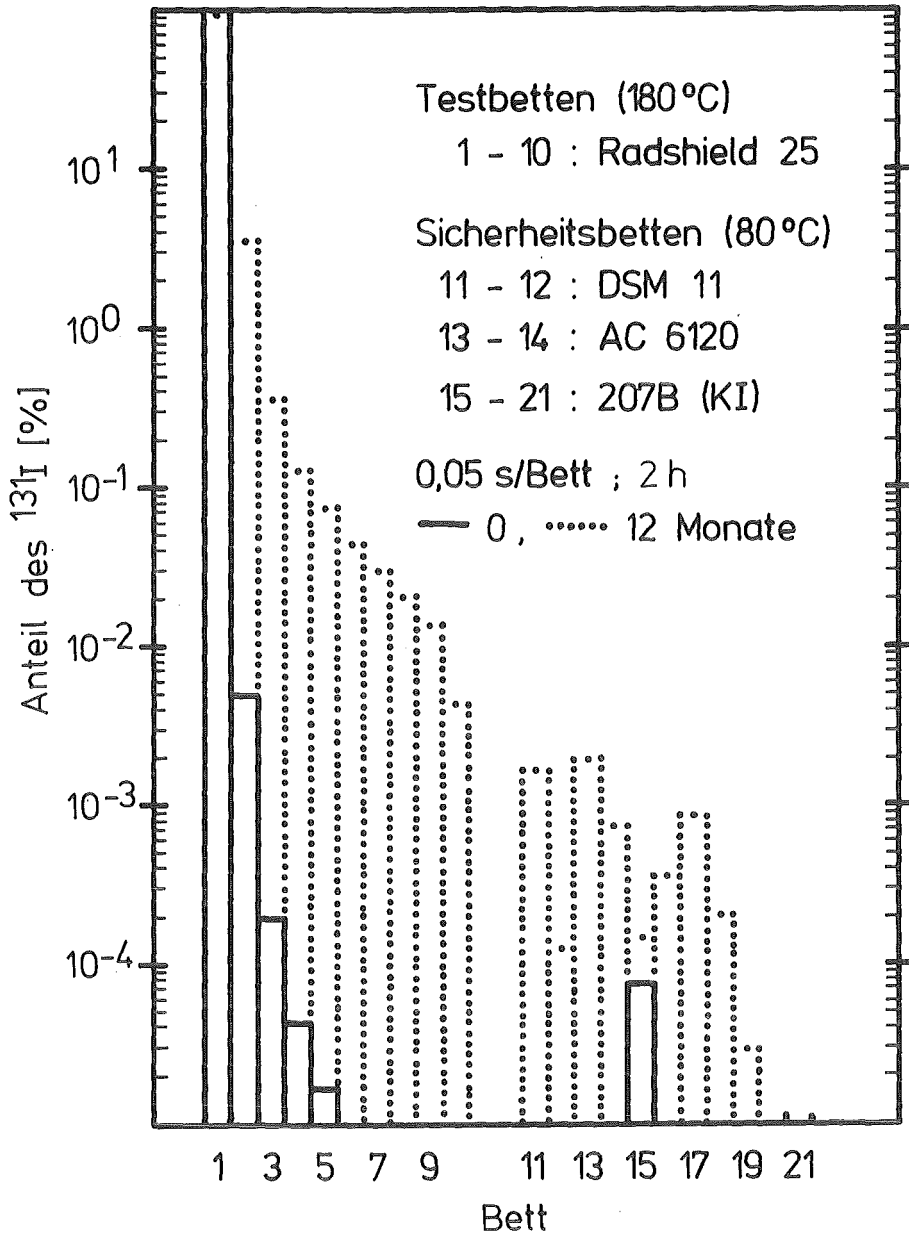
Abb. B-2 a)

a) 12 Monate: Nachströmzeit 0,5 h (Entzündung)



Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf Test- und Sicherheitsbetten bei verschiedenen Alterungszeiten ( $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$ )

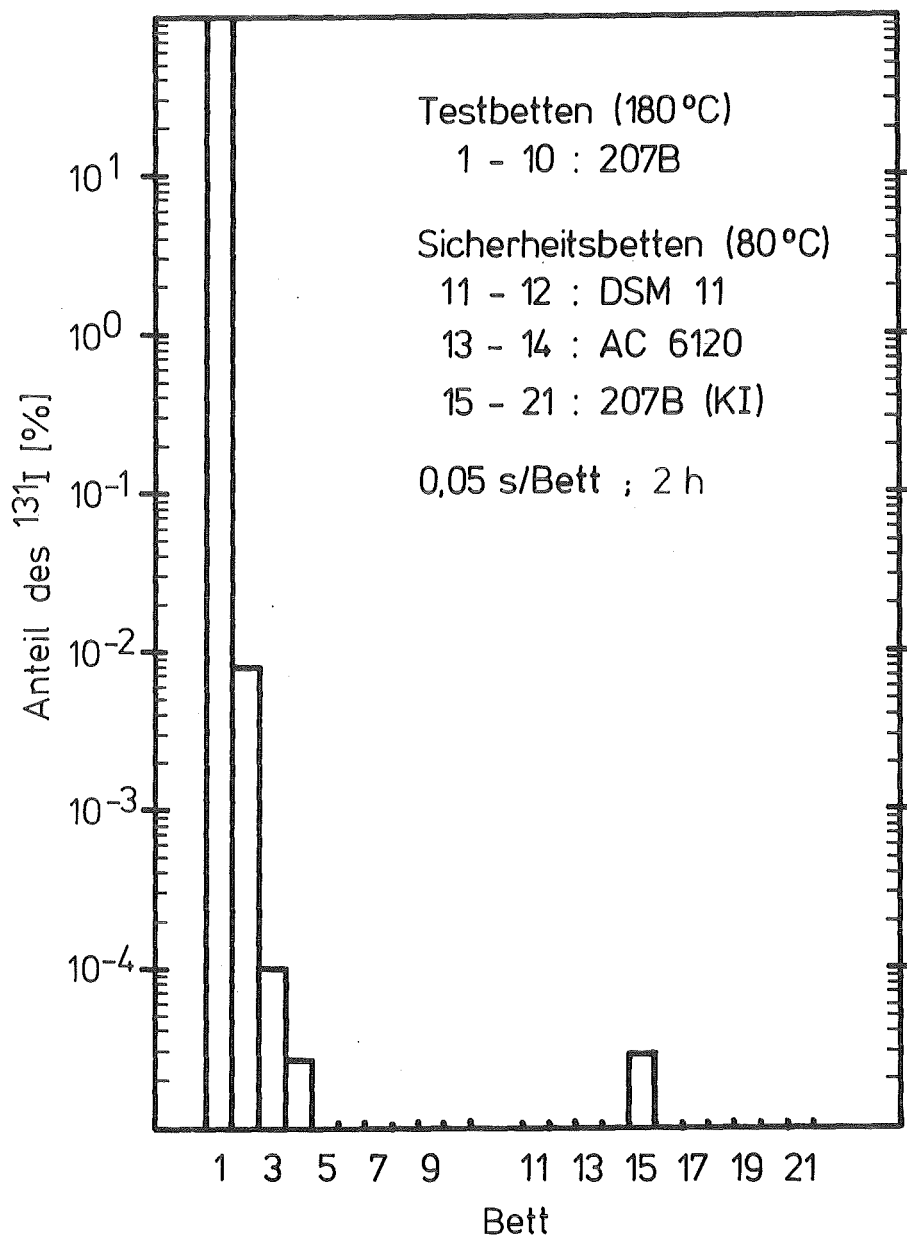
Abb. B-3



Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf Test- und Sicherheitsbetten bei verschiedenen Alterungszeiten ( $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$ )

Abb. B-4

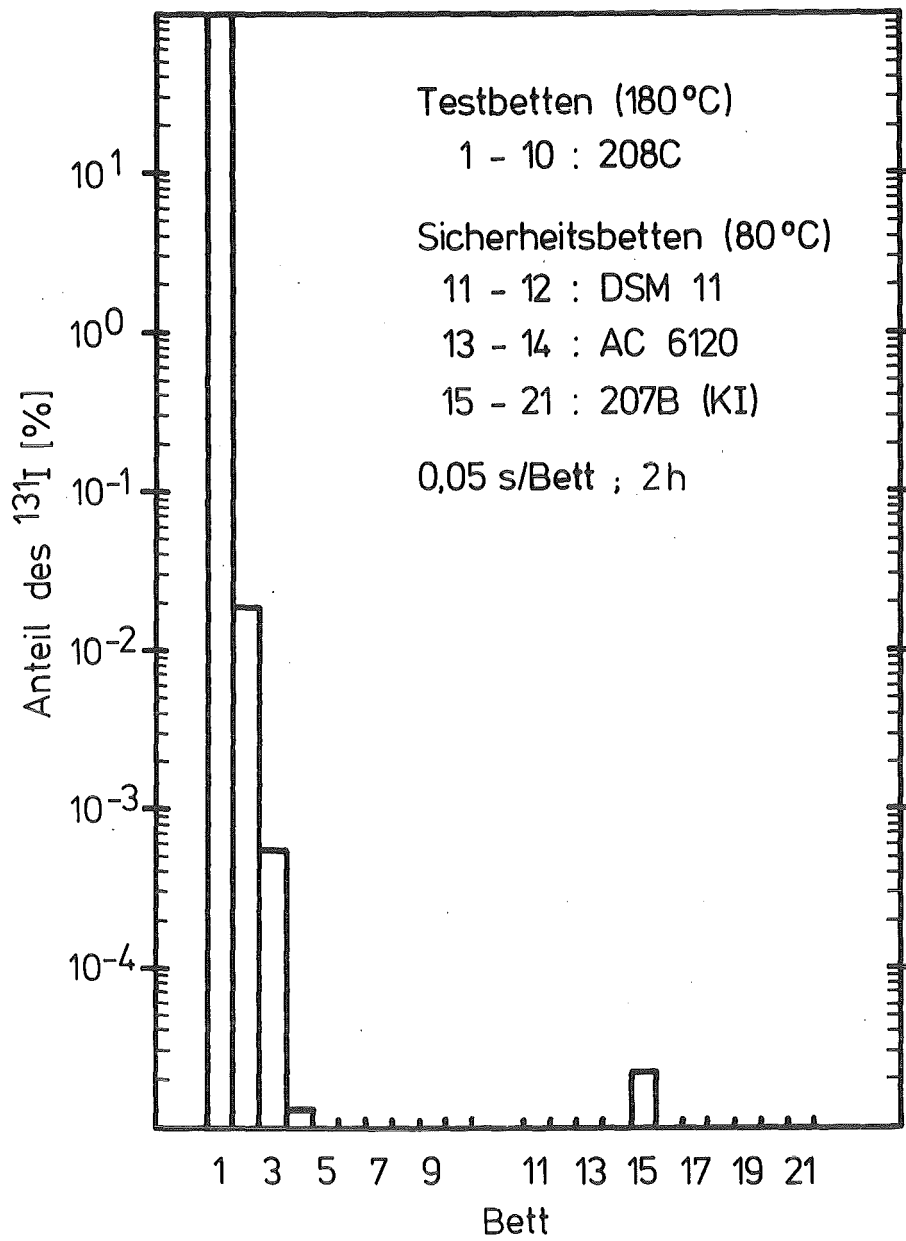




KfK LAF II D8370

Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf Test- und Sicherheitsbetten  
( $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$ )

Abb. B-5



KIK LAF II D8371

Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf Test- und Sicherheitsbetten  
( $^{131}\text{I}$  als  $\text{I}_2$ )

Abb. B-6