

KfK 4198  
April 1987

# **Untersuchungen zum Einfluß von Brandprodukten auf die Abscheidung von Radioiod mit Aktivkohlen**

H. Deuber, V. Giraud  
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

KfK 4198

Untersuchungen zum Einfluß von Brandprodukten auf die  
Abscheidung von Radioiod mit Aktivkohlen

H. Deuber, V. Giraud

Das diesem Bericht zugrundeliegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesminister des Innern (Förderungskennzeichen: SR 302) gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt der Veröffentlichung liegt bei den Autoren.

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Untersuchungen zum Einfluß von Brandprodukten auf die  
Abscheidung von Radioiod mit Aktivkohlen

Kurzfassung

Es wurden Untersuchungen zum Einfluß von gasförmigen Brandprodukten aus relevanten, in Kernkraftwerken verwendeten Materialien auf die Abscheidung von Methyljodid ( $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ ) an kommerziellen imprägnierten Aktivkohlen durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen, daß mit Iodfiltern großer Bettiefe (Verweilzeit:  $\geq 0,5$  s) bei Einsatz der üblicherweise verwendeten imprägnierten Aktivkohlen eine ausreichend hohe Rückhaltung von Radioiod erreicht wird. Dies gilt auch bei starker Beaufschlagung mit gasförmigen Brandprodukten.

Investigations on the Influence of Combustion Products  
on the Retention of Radioiodine by Activated Carbons

Abstract

Investigations were performed on the influence of gaseous combustion products from relevant materials used in nuclear power plants on the retention of methyl iodide ( $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ ) by commercial impregnated activated carbons. It is concluded that with iodine filters of large bed depths (residence time:  $\geq 0.5$  s), when containing a usually employed impregnated activated carbon, a sufficiently high retention of radioiodine should be achievable even with a high challenge of gaseous combustion products.

1. The first part of the document discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions and activities. It emphasizes that this is crucial for ensuring transparency and accountability in the organization's operations.

2. The second part of the document outlines the various methods and tools used to collect and analyze data. It highlights the need for consistent and reliable data collection processes to support effective decision-making.

3. The third part of the document focuses on the role of technology in data management and analysis. It discusses how modern software solutions can streamline data collection, storage, and reporting, thereby improving efficiency and accuracy.

4. The fourth part of the document addresses the challenges associated with data management, such as data quality, security, and privacy. It provides strategies to mitigate these risks and ensure that data is used responsibly and ethically.

5. The fifth part of the document concludes by summarizing the key findings and recommendations. It stresses the importance of ongoing monitoring and evaluation to ensure that data management practices remain effective and aligned with the organization's goals.

6. The sixth part of the document provides a detailed overview of the data collection process, including the identification of data sources, the design of data collection instruments, and the implementation of data collection procedures.

7. The seventh part of the document discusses the various methods used for data analysis, such as descriptive statistics, inferential statistics, and qualitative analysis. It explains how these methods are used to interpret the data and draw meaningful conclusions.

8. The eighth part of the document focuses on the importance of data visualization in presenting the results of data analysis. It discusses different types of charts and graphs and how they can be used to effectively communicate complex data to a wide range of stakeholders.

9. The ninth part of the document addresses the ethical considerations surrounding data management and analysis. It discusses the need to protect individual privacy, ensure data security, and use data responsibly to avoid any potential harm or bias.

10. The tenth part of the document provides a final summary and concludes the report. It reiterates the key findings and emphasizes the importance of data management and analysis in achieving organizational success and growth.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Relevante Materialien und Brandprodukte	2
3. Experimentelles	3
4. Ergebnisse	6
4.1 Abscheidung von Radioiod	6
4.2 Weitere Untersuchungen	23
5. Zusammenfassung	27
6. Literatur	28

Verzeichnis der Tabellen

- Tab. 1 Parameter der Tests mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$
- Tab. 2 Abscheidegrad von 207B (KI) für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  bei verschiedenen Typen und Mengen der Brandprodukte
- Tab. 3 Abscheidegrad von 207B (TEDA) für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  bei verschiedenen Typen und Mengen der Brandprodukte
- Tab. 4 Abscheidegrad von 208C (KI) und 208C (TEDA) für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  bei verschiedenen Typen der Brandprodukte bei einer Menge von 1 g
- Tab. 5 Organische Brandprodukte der eingesetzten Materialien



Verzeichnis der Abbildungen

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Brandproduktmengen (207B (KI)):

Abb. 1	PVC-Kabel	Seite	12
Abb. 2	FRNC-Kabel	"	12
Abb. 3	Mineralöl	"	13
Abb. 4	Dekontfarbe	"	13

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Brandproduktmengen (207B (TEDA)):

Abb. 5	PVC-Kabel	Seite	14
Abb. 6	FRNC-Kabel	"	14
Abb. 7	Mineralöl	"	15
Abb. 8	Dekontfarbe	"	15

Durchlaßgrad bei verschiedenen Brandproduktmengen:

Abb. 9	207B (KI)	Seite	16
Abb. 10	207B (TEDA)	"	16

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Brandproduktmengen (208C (KI)):

Abb. 11	PVC-Kabel	Seite	17
Abb. 12	FRNC-Kabel	"	17
Abb. 13	Mineralöl	"	18
Abb. 14	Dekontfarbe	"	18

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Brandproduktmengen (208C (TEDA)):

Abb. 15	PVC-Kabel	Seite	19
Abb. 16	FRNC-Kabel	"	19
Abb. 17	Mineralöl	"	20
Abb. 18	Dekontfarbe	"	20

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Brandproduktmengen und Spülzeiten (PVC-Kabel):

Abb. 19	207B (KI)	Seite 21
Abb. 20	207B (TEDA)	" 21

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen HCl-Mengen und Spülzeiten:

Abb. 21	207B (KI)	Seite 22
Abb. 22	207B (TEDA)	" 22

pH-Wert des wässrigen Extraktes von Aktivkohlebetten bei Beaufschlagung mit gasförmigen Brandprodukten (PVC-Kabel, HCl):

Abb. 23	207B (KI)	Seite 26
Abb. 24	207B (TEDA)	" 26

## 1. Einleitung

In der Literatur werden zahlreiche Untersuchungen zum Einfluß verschiedener Faktoren auf die Abscheidung von Radioiod an imprägnierten, in Iodfiltern von Kernkraftwerken eingesetzten Aktivkohlen beschrieben /1, 2, 3/. Entsprechende Untersuchungen zum Einfluß von Brandprodukten waren jedoch nicht bekannt /4/, obwohl im Falle eines Feuers in einem Kernkraftwerk dieser Einfluß von Bedeutung sein kann.

In diesem Bericht wird auf Untersuchungen zum Einfluß von gasförmigen Brandprodukten aus vier relevanten, in Kernkraftwerken verwendeten Materialien auf die Abscheidung von Methyljodid ( $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ ) an vier kommerziellen imprägnierten Aktivkohlen eingegangen. Es ist darauf zu verweisen, daß auch andere organische Iodverbindungen, die schwerer abscheidbar sind /5/, im Falle eines Feuers in einem Kernkraftwerk gebildet werden können, z.B. durch Reaktion von elementarem Iod ( $\text{I}_2$ ) mit Brandprodukten. Die Beeinflussung der Abscheidung von elementarem Iod selbst sollte im vorliegenden Zusammenhang vernachlässigt werden können /6/. Feuer in Iodfiltern, die zu einer Freisetzung von Radioiod führen können, lagen außerhalb des Bereiches unserer Untersuchungen.

## 2. Relevante Materialien und Brandprodukte

Wie in vielen industriellen Anlagen ist in einem Kernkraftwerk das Inventar brennbarer Materialien erheblich. Im vorliegenden Zusammenhang sind nur die brennbaren Materialien relevant, die sich in Räumen befinden, die mit Iodfiltern entlüftet werden. Solche Räume sind z.B. die Anlagenräume in Druckwasserreaktoren. Relevante Materialien sind Kabel mit Isolationsmaterialien, insbesondere PVC und FRNC\*-Materialien. Außerdem müssen Schmiermittel (Mineralöle) und Dekontfarben (Expoxydharze) in Betracht gezogen werden /4/.

Die aus den genannten Materialien entstehenden Brandprodukte hängen vom Typ des Materials und den Brandbedingungen ab. Abgesehen von Kohlenoxiden, Kohlenwasserstoffen und Wasser, die allgemein entstehen, wird Chlorwasserstoff (HCl) in großen Anteilen bei der Verbrennung von PVC-Kabeln freigesetzt. Bei FRNC-Kabeln können organische Säuren wie Essigsäure entstehen. Bei Mineralölen können, zusätzlich zu verdampftem Öl, Schwefeloxid und Stickoxide in kleinen Anteilen freigesetzt werden. Im Falle der Expoxydharze ist mit der Erzeugung von Aminen und Blausäuren zu rechnen. Diese Verbindungen können aus Nebenbestandteilen (z.B. Härtern) entstehen.

Bezüglich der Beaufschlagung von Iodfiltern mit Brandprodukten im Falle eines Brandes in einem Kernkraftwerk können keine realistischen allgemeinen Zahlen angegeben werden. Zur Illustration sei folgendes Beispiel angegeben, das sich auf einen deutschen Druckwasserreaktor bezieht. Es wird angenommen, daß das Inventar an PVC-Kabeln im Containment 10.000 kg beträgt und daß die Hälfte verbrennt. Die größte Abluftfilteranlage mit Iodfiltern für einen Durchsatz von etwa  $130.000 \text{ m}^3/\text{h}$  bei einer Verweilzeit von 1 s enthält etwa 20.000 kg Aktivkohle. Falls diese Iodfilter also mit den Brandprodukten aus den PVC-Kabeln des Containments beaufschlagt würden, betrüge die Beladung 0,25 g Brandprodukte pro g Aktivkohle oder 25 %. Offensichtlich können mit anderen Annahmen andere Zahlen errechnet werden.

\* flame retardent, non-corrosive

### 3. Experimentelles

Als Repräsentanten für relevante, in Kernkraftwerken verwendete Materialien wurden folgende zur Erzeugung von Brandprodukten verwendet:

- a) ein PVC-Kabel;
- b) ein FRNC-Kabel;
- c) ein Mineralöl;
- d) eine Dekontfarbe.

Die Materialien wurden in einer genormten Verbrennungsapparatur verbrannt /7/.

Als Repräsentanten für in Iodfiltern von Kernkraftwerken eingesetzte imprägnierte Aktivkohlen wurden folgende eingesetzt:

- a) 207B (KI);
- b) 207B (TEDA);
- c) 208C (KI);
- d) 208C (TEDA).

Das Grundmaterial der ersten beiden Aktivkohlen ist Steinkohle, das der anderen beiden Aktivkohlen Kokosnußschale. Die Korngröße aller Aktivkohlen war 8 - 12 mesh /8/. Die Imprägnantien waren, wie angegeben, entweder KI oder TEDA. In den Iodfiltern deutscher Kernkraftwerke wird vorwiegend 207B (KI) eingesetzt.

Die Rückhaltung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  an den Aktivkohlen wurde mit unserer Standard-Testapparatur bestimmt /3/.

Im einzelnen wurde, wie im folgenden beschrieben, vorgegangen. Zuerst wurde das Aktivkohlebett (bestehend aus 20 Teilbetten) über Nacht in der Testapparatur mit Feuchtluft konditioniert. Dann wurde es in der Verbrennungsapparatur während einer Zeit von i.allg. 0,1 h mit Brandprodukten beaufschlagt. Die Verbrennung wurde bei 700 °C in einem Luftstrom durchgeführt. Vor dem

Aktivkohlebett wurde der Luftstrom verdünnt (so daß die Luftgeschwindigkeit so groß war wie im nachfolgenden Test mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ ) und durch ein Glaswollefilter geleitet. I.allg. direkt danach, nach Wiedereinstellung der Testbedingungen, wurde die Aktivkohle in der Testapparatur mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  beaufschlagt, ebenfalls während 0,1 h. In einigen Fällen wurde, zur Untersuchung des Einflusses der Dauer der Brandprodukteinwirkung,  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  20 h nach Beladung mit Brandprodukten eingeleitet. (Die "Spülzeit" betrug 20 h.) Weitere Daten der Tests mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  finden sich in Tab. 1.

Wie in Tab. 1 angegeben, betrug die Menge des verbrannten Materials 0,1, 1 oder 10 g. Folglich war die maximale Beladung nominell etwa 0,1 g Brandprodukte pro g Aktivkohle und somit in der in Kap. 2 berechneten Größenordnung. Ein großer Teil der nicht gasförmigen Brandprodukte wurde vom Glaswollefilter (und von der Rohrwand) zurückgehalten. Dieser Effekt scheint jedoch von geringer Bedeutung für die Rückhaltung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  zu sein, wie durch Vergleichstests mit und ohne Glaswolle gezeigt wurde.

Zum Vergleich wurden auch Tests mit 1 g HCl durchgeführt. Wie erwähnt, entsteht diese Verbindung bei der Verbrennung von PVC. Außerdem wurde die Rückhaltung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  an nicht mit Brandprodukten beaufschlagten (frischen) Aktivkohlen bestimmt.

Zusätzlich zu den beschriebenen Untersuchungen wurden einige Messungen zur Bestimmung der organischen Brandprodukte auf den Aktivkohlebetten durchgeführt. Dazu wurden die  $\text{CCl}_4$ -Extrakte der Aktivkohlebetten massenspektrometrisch untersucht. Außerdem wurden die pH-Werte /9/ und die  $\text{Cl}^-$ -Konzentrationen der  $\text{H}_2\text{O}$ -Extrakte der Aktivkohlebetten nach Beaufschlagung mit Brandprodukten aus dem PVC-Kabel bzw. nach Beladung mit HCl bestimmt.

Tab. 1: Parameter der Tests mit  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$

Parameter	Einheit	Wert
Temperatur	$^{\circ}\text{C}$	30
relative Feuchte	%	70
lineare Luftgeschwindigkeit	cm/s	50
Bettiefe <sup>a</sup>	cm	50
Verweilzeit	s	1
Vorströmzeit	h	$\geq 16$
Einleitzeit <sup>b</sup>	h	0,1
Nachströmzeit <sup>c</sup>	h	2
eingeleitete Brandprodukte <sup>d</sup>	g	0; 0,1; 1; 10
eingeleitetes $^{131}\text{I}$ <sup>e</sup>	mCi	0,1
eingeleitetes $^{127}\text{I}$ <sup>e</sup>	mg	1

<sup>a</sup> 20 Betten von 2,5 cm Tiefe (Gewicht: je ca. 5 g)

<sup>b</sup> jeweils für Brandprodukte und  $\text{CH}_3\text{I}$   
(Einleitung der Brandprodukte i.allg. direkt vor  
der des  $\text{CH}_3\text{I}$ )

<sup>c</sup> nach Einleitung des  $\text{CH}_3\text{I}$

<sup>d</sup> verbranntes Material

<sup>e</sup> als  $\text{CH}_3\text{I}$

## 4. Ergebnisse

### 4.1 Abscheidung von Radioiod

Dieses Kapitel enthält die Ergebnisse der Untersuchungen zum Einfluß der in Kap. 3 genannten Brandprodukte auf die Abscheidung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  an den in Kap. 3 aufgeführten Aktivkohlen. Die Testparameter sind in Tab. 1 enthalten. Die Ergebnisse werden i. allg. in Form des Durchlaßgrades für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  präsentiert.

Die Abb. 1 bis 8 zeigen den Durchlaßgrad der Aktivkohlen 207B (KI) und 207B (TEDA) als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Brandproduktmengen. Ohne Beaufschlagung mit Brandprodukten (Menge: 0 g) wurde der in der gewählten Darstellung übliche lineare Abfall des Durchlaßgrades mit steigender Bettiefe gefunden. Für Brandproduktmengen von 0,1 g waren die Durchlaßkurven ebenfalls fast linear. Verglichen mit den frischen Aktivkohlen war der Durchlaßgrad in einigen Fällen etwas höher, insbesondere bei 207B (TEDA).

Für die Brandproduktmengen von 1 und 10 g waren die Durchlaßkurven nicht linear: flach bei kleinen Bettiefen und steil bei großen Bettiefen. I.allg. waren bei großen Bettiefen die Durchlaßkurven fast parallel zu den Durchlaßkurven der frischen Aktivkohlen. Wie aus Alterungsuntersuchungen bekannt /10, 11/, entspricht diese Form der Durchlaßkurven einer Abnahme der Einwirkung auf die Aktivkohle bei steigender Bettiefe, mit einer vernachlässigbar kleinen Einwirkung bei großer Bettiefe im Falle paralleler Durchlaßkurven.

Die Abb. 1 bis 8 zeigen, daß bei gleicher Brandproduktmenge bei großen Bettiefen ( $\geq 12,5$  cm) die Zunahme des Durchlaßgrades für alle Brandprodukte ähnlich war, sowohl bei 207B (KI) als auch bei 207B (TEDA). Bei der höchsten Beaufschlagung betrug die Zunahme des Durchlaßgrades meistens 1 bis 2 Größenordnungen, mit einer Tendenz zu niedrigeren Werten für 207B (KI) und höheren Werten für 207B (TEDA).



Für kleine Bettiefen wird ein Überblick in den Abb. 9 und 10 gegeben. Diese zeigen den Durchlaßgrad von 207B (KI) bzw. 207B (TEDA) bei einer Bettiefe von 5 cm für verschiedene Mengen und Typen der Brandprodukte. Wie ersichtlich, war die Einwirkung der Brandprodukte aus dem PVC-Kabel am stärksten. Bei 207B (KI) lag der Durchlaßgrad bei der maximalen Beaufschlagung zwischen 70 und 80 % im Falle der Brandprodukte aus dem PVC-Kabel und zwischen etwa 20 und 40 % im Falle der Brandprodukte aus den anderen Materialien. Bei 207B (TEDA) waren die entsprechenden Werte 60 bis 70 % bzw. 30 bis 40 %. (Der höhere Wert bei den Brandprodukten aus dem Öl könnte auf einem experimentellen Fehler beruhen).

Die starke Einwirkung der Brandprodukte aus dem PVC-Kabel bei kleinen Bettiefen ist auch aus den Tab. 2 und 3 ersichtlich, die die Abscheidegrade der ersten fünf Betten 207B (KI) bzw. 207B (TEDA) bei verschiedenen Typen und Mengen der Brandprodukte enthalten.

Aus allen bei 207B (KI) und 207B (TEDA) bei kleinen und großen Bettiefen erzielten Ergebnissen geht hervor, daß i.allg. die Brandprodukte aus dem PVC-Kabel einen starken Einfluß über eine geringe Bettiefe ausübten, die anderen Brandprodukte jedoch einen schwächeren Einfluß über eine größere Bettiefe, mit einer resultierenden Zunahme des Durchlaßgrades von ähnlicher Größenordnung bei großen Bettiefen.

Bei den Aktivkohlen 208C (KI) und 208C (TEDA) war, soweit Ergebnisse vorliegen, die Zunahme des Durchlaßgrades durch die Einwirkung der Brandprodukte ähnlich der bei 207B (KI) und 207B (TEDA) beobachteten Zunahme. Die Ergebnisse waren den bei 207B (TEDA) erzielten am ähnlichsten. (s. Abb. 11 bis 18 und Tab. 4).

Wie erwähnt, wurde in einigen Tests das  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  nicht direkt nach der Beladung mit Brandprodukten, sondern nach 20stündigem Spülen eingeleitet. Einige Ergebnisse sind in den Abb. 19 und 20 dargestellt. Es ist ersichtlich, daß im untersuchten Bereich die

Dauer der Einwirkung der Brandprodukte aus dem PVC-Kabel von nur geringer Bedeutung war, sowohl für 207B (KI) als auch für 207B (TEDA).

Die Ergebnisse der Vergleichstests mit HCl werden in den Abb. 21 und 22 gezeigt, sowohl ohne als auch mit 20stündigem Spülen nach dem Einleiten des HCl. Ohne Spülen war bei großen Bettiefen der Durchlaßgrad ähnlich dem bei gleicher Brandproduktmenge erzielten (vgl. Abb. 1 bis 8). Bei kleinen Bettiefen war der Durchlaßgrad jedoch viel höher. Bei einer Bettiefe von 5 cm betrug der Durchlaßgrad etwa 90 % bei 207B (KI) und etwa 60 % bei 207B (TEDA). Ähnliche Werte wurden nur bei viel höheren Brandproduktmengen aus dem PVC-Kabel beobachtet (vgl. Abb. 9 und 10).

Der Einfluß des HCl war also stark, aber nur über eine kleine Bettiefe, so wie es prinzipiell bei den Brandprodukten aus dem PVC-Kabel der Fall war. Es ist zu schließen, daß HCl ein wesentlicher Faktor bei der Einwirkung der Brandprodukte aus dem PVC-Kabel auf die Abscheidung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  an Aktivkohlen darstellt. Dieses ist in Einklang mit weiteren Untersuchungen (s. Kap. 4.2).

Tab. 2: Abscheidegrad von 207B (KI) für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  bei verschiedenen Typen und Mengen der Brandprodukte (Testbedingungen : Tab. 1)

Brandprodukt <sup>a</sup>		Abscheidegrad einzelner Betten (%) <sup>b</sup>				
Typ	Menge (g)	Bett 1	Bett 2	Bett 3	Bett 4	Bett 5
keines	-	70	67	69	62	63
PVC-Kabel	0,1	63	65	67	67	69
	1,0	21	55	60	51	60
	10,0	5	21	43	55	57
FRNC-Kabel	0,1	63	69	69	72	73
	1,0	47	63	64	66	65
	10,0	43	46	52	55	55
Mineralöl	0,1	66	71	68	62	62
	1,0	51	62	70	69	71
	10,0	48	54	53	55	57
Dekontfarbe	0,1	65	70	74	74	75
	1,0	52	58	63	63	65
	10,0	32	37	42	46	52

<sup>a</sup> Typ und Menge des verbrannten Materials

<sup>b</sup> Numerierung der Betten in Strömungsrichtung; Verweilzeit pro Bett: 0,05 s

Tab. 3: Abscheidegrad von 207B (TEDA) für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  bei verschiedenen Typen und Mengen der Brandprodukte (Testbedingungen: Tab. 1)

Brandprodukt <sup>a</sup>		Abscheidegrad einzelner Betten (%) <sup>b</sup>				
Typ	Menge (g)	Bett 1	Bett 2	Bett 3	Bett 4	Bett 5
keines	-	82	81	83	84	83
PVC-Kabel	0,1	72	81	83	84	83
	1,0	25	68	75	78	79
	10,0	7	29	70	73	77
FRNC-Kabel	0,1	67	70	82	87	87
	1,0	54	74	78	81	83
	10,0	36	51	62	68	72
Mineralöl	0,1	69	76	83	83	86
	1,0	57	74	80	83	84
	10,0	18	29	45	59	66
Dekontfarbe	0,1	75	84	83	87	84
	1,0	51	69	75	77	79
	10,0	33	48	70	74	77

<sup>a</sup> Typ und Menge des verbrannten Materials

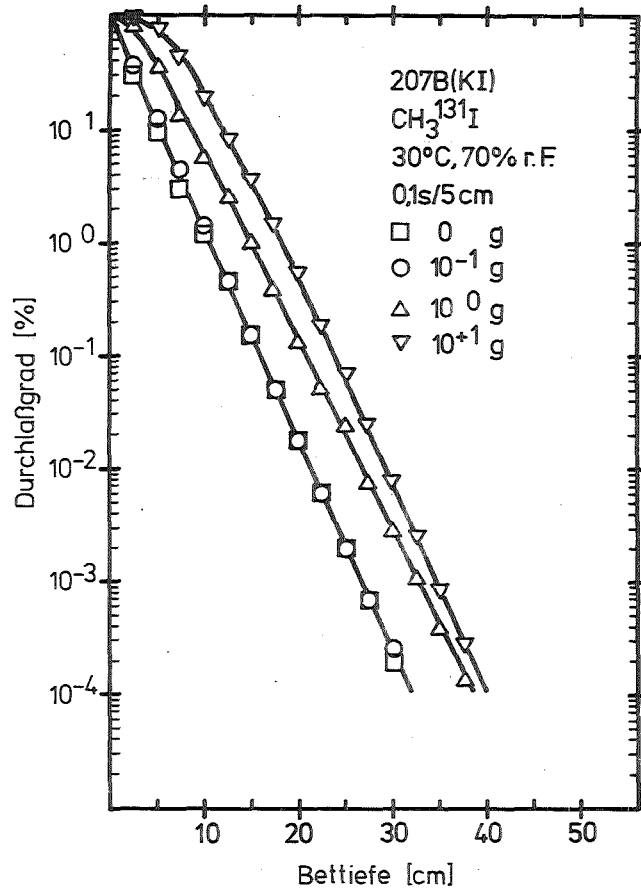
<sup>b</sup> Numerierung der Betten in Strömungsrichtung; Verweilzeit pro Bett: 0,05 s

Tab. 4: Abscheidegrad von 208C (KI) und 208C (TEDA) für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  bei verschiedenen Typen der Brandprodukte bei einer Menge von 1 g (Testbedingungen: Tab. 1)

Aktivkohle	Brandprodukt <sup>a</sup>	Abscheidegrad einzelner Betten (%) <sup>b</sup>				
		Bett 1	Bett 2	Bett 3	Bett 4	Bett 5
208C (KI)	keines	87	87	87	87	88
	PVC-Kabel	27	74	85	87	87
	FRNC-Kabel	62	79	83	85	87
	Mineralöl	63	75	79	82	85
	Dekontfarbe	60	81	86	87	90
208C (TEDA)	keines	85	85	85	85	86
	PVC-Kabel	33	66	85	87	87
	FRNC-Kabel	61	80	85	84	86
	Mineralöl	57	69	73	77	80
	Dekontfarbe	60	80	84	86	84

<sup>a</sup> Typ des verbrannten Materials

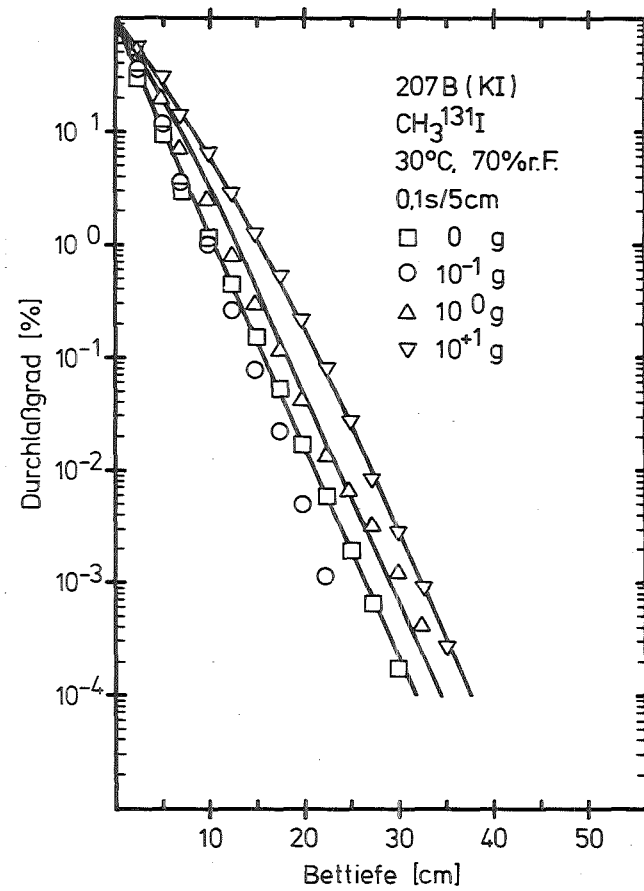
<sup>b</sup> Numerierung der Betten in Strömungsrichtung; Verweilzeit pro Bett: 0,05 s



KIK LAF II D8556

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (PVC-Kabel)

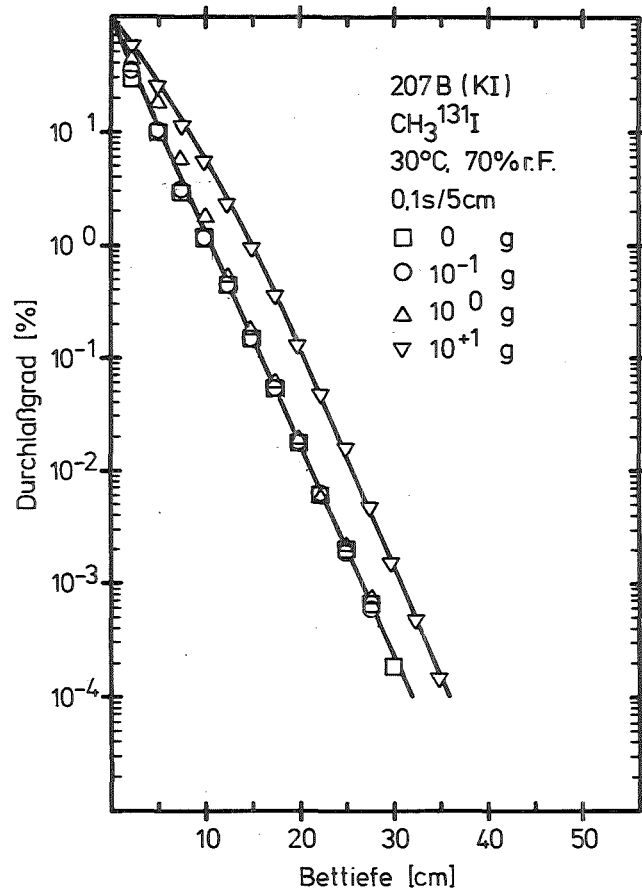
Abb. 1



KIK LAF I D8635

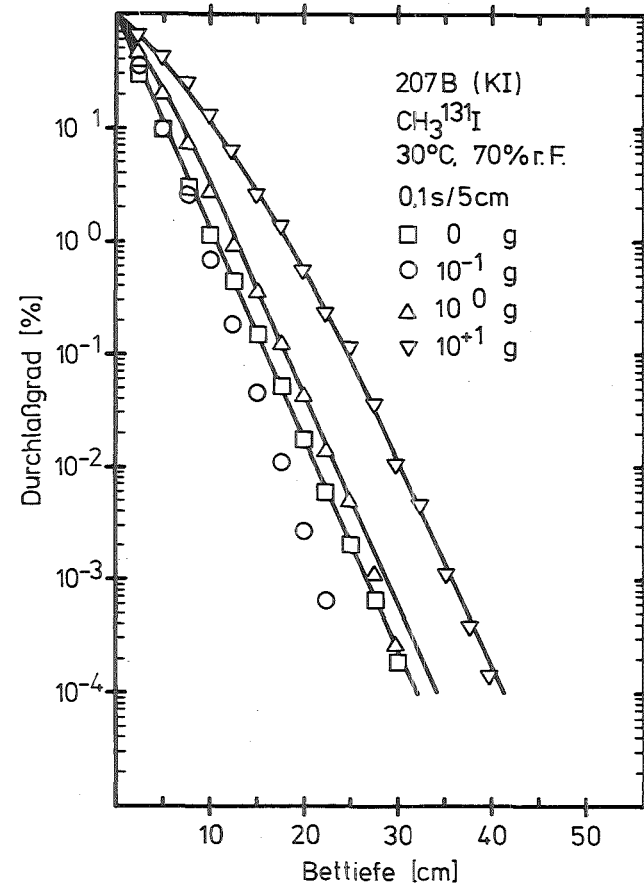
Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (FRNC-Kabel)

Abb. 2



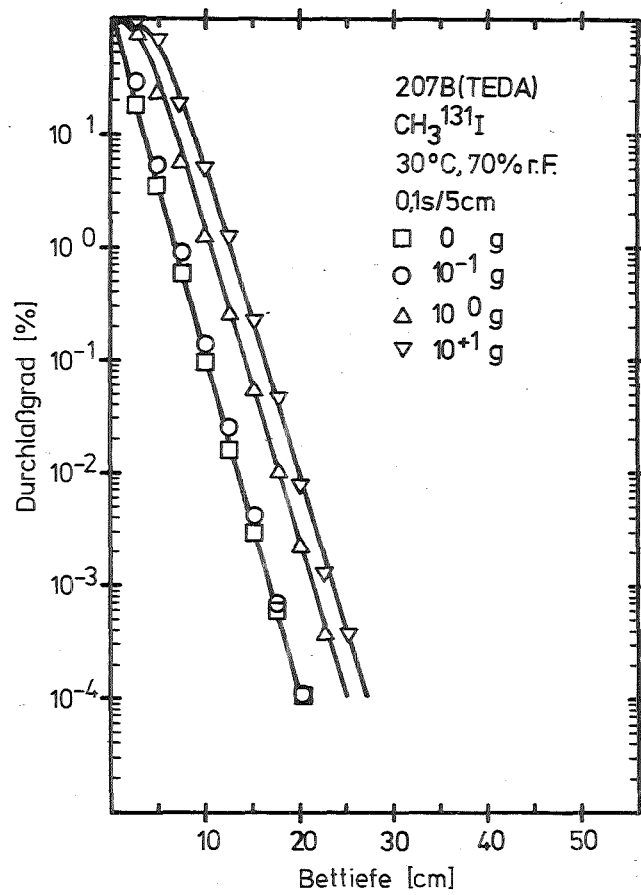
Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
bei verschiedenen Brandproduktmengen  
(Mineralöl)

Abb. 3



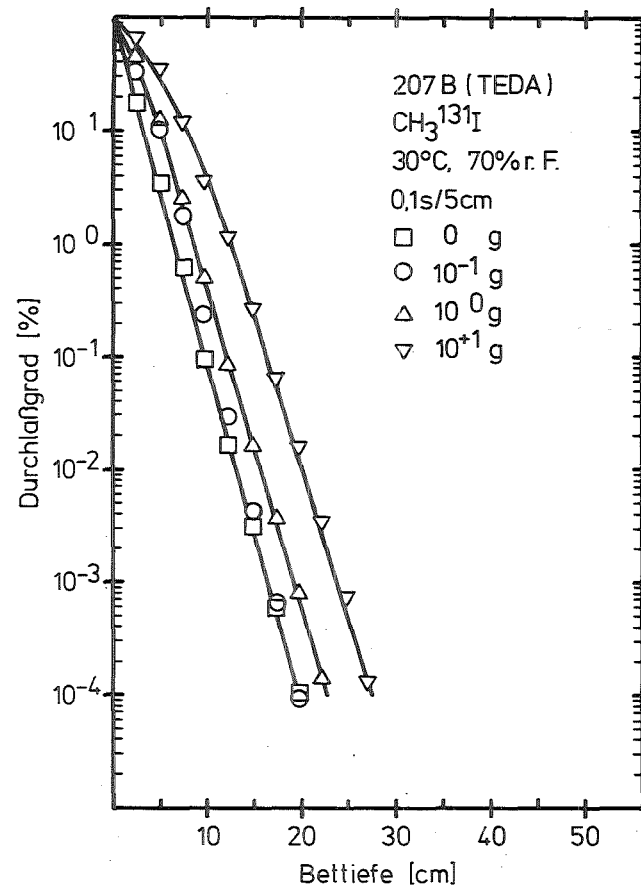
Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
bei verschiedenen Brandproduktmengen  
(Dekontfarbe)

Abb. 4



Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (PVC-Kabel)

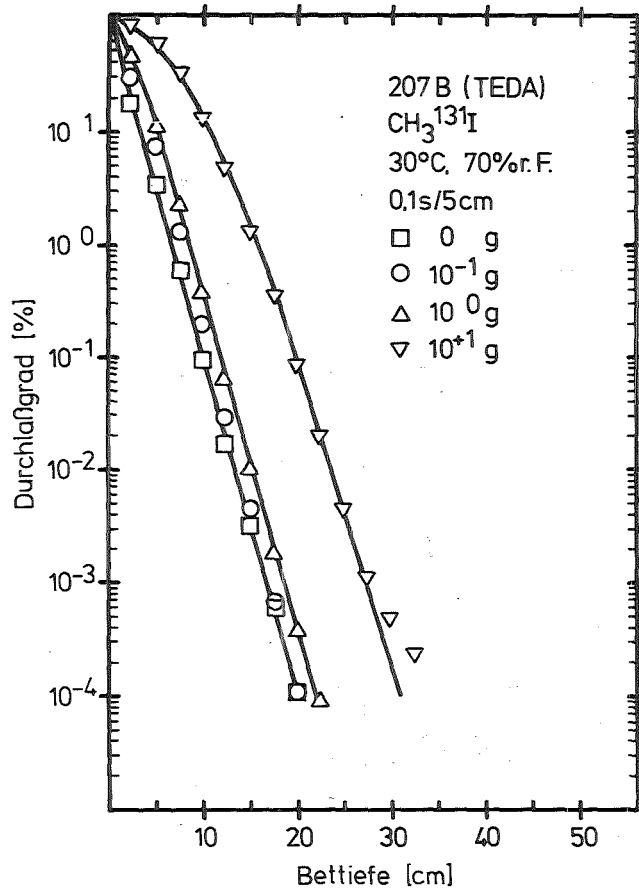
Abb. 5



Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (FRNC-Kabel)

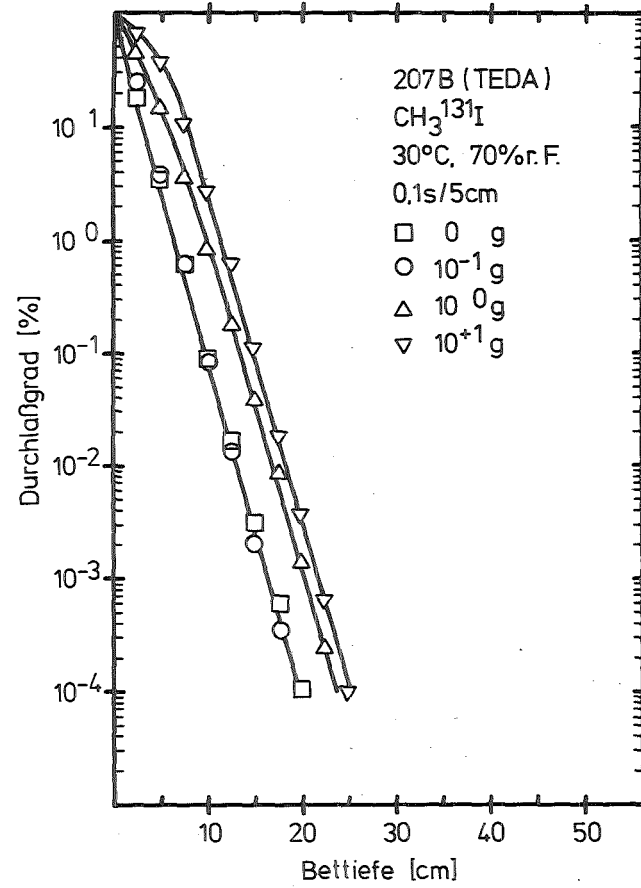
Abb. 6





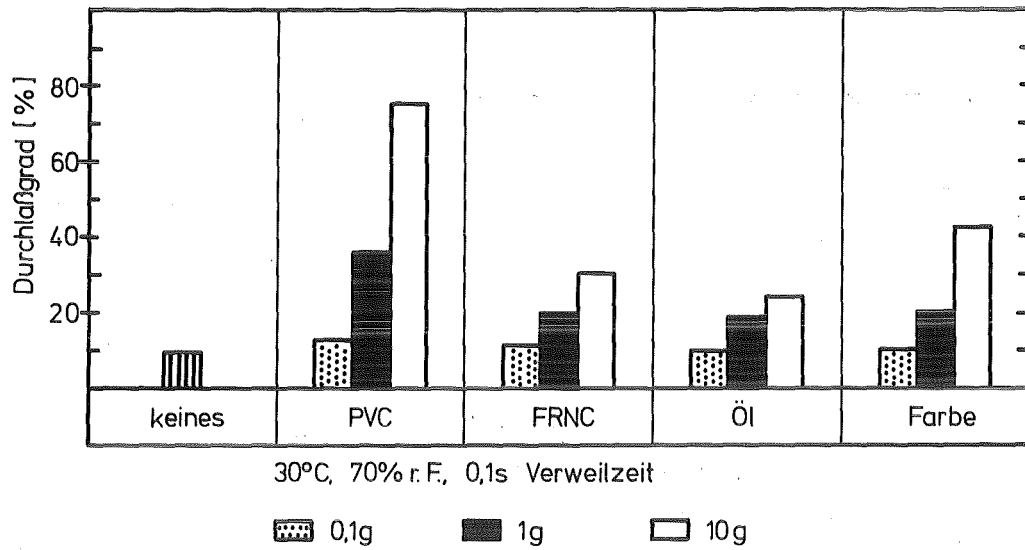
Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (Mineralöl)

Abb. 7



Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (Dekontfarbe)

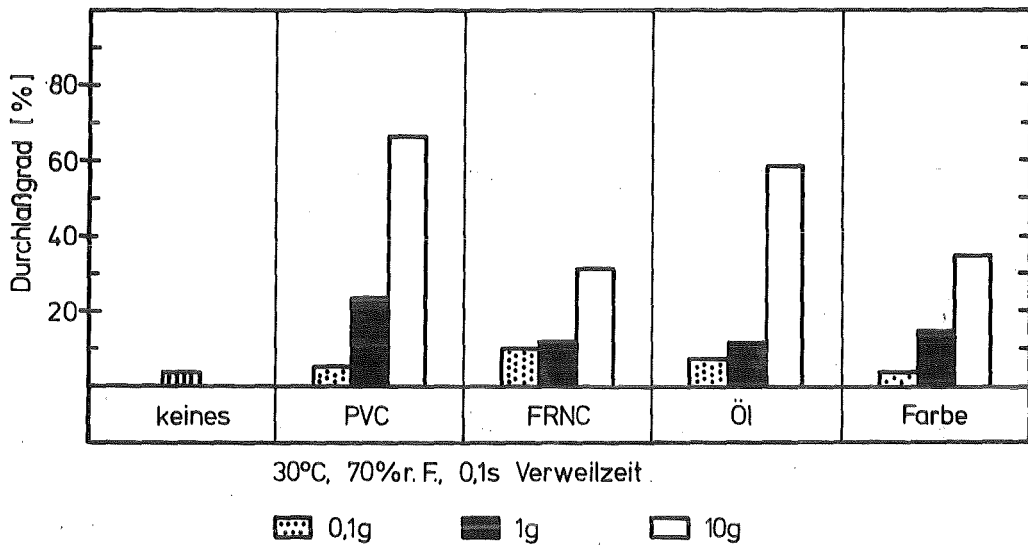
Abb. 8



KIK LAF II D8656

Durchlaßgrad von 207B(KI) für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  bei verschiedenen Brandproduktmengen

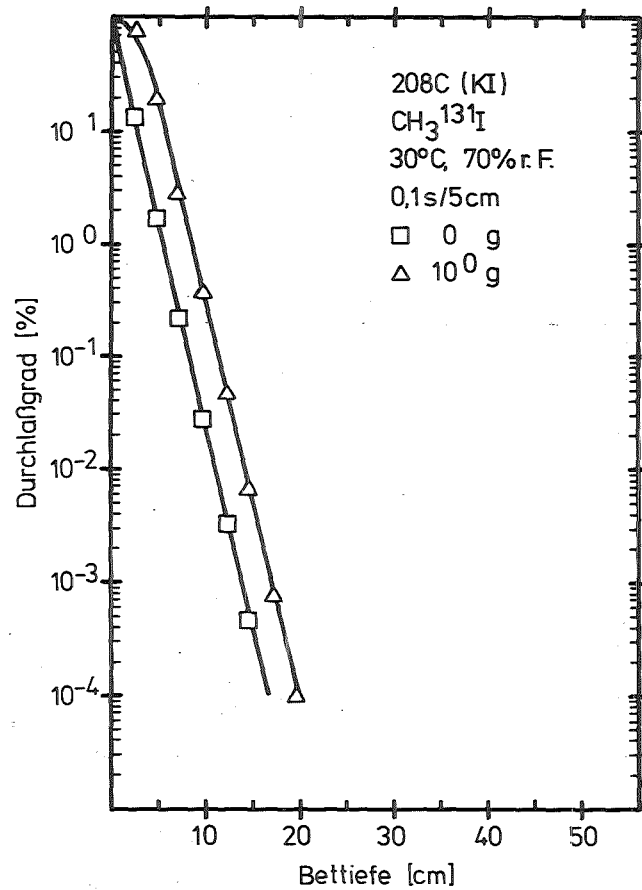
Abb. 9



KIK LAF II D8657

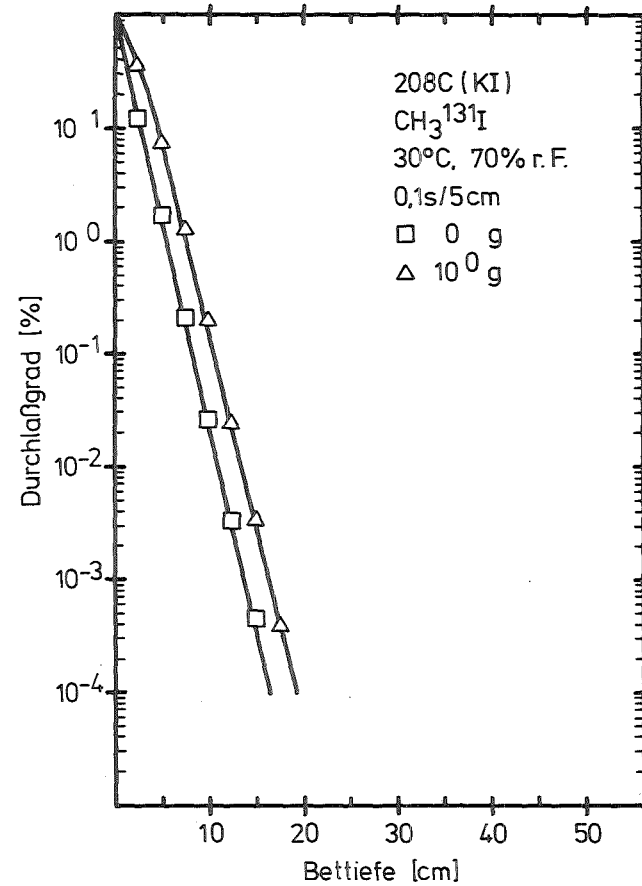
Durchlaßgrad von 207B(TEDA) für  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  bei verschiedenen Brandproduktmengen

Abb. 10



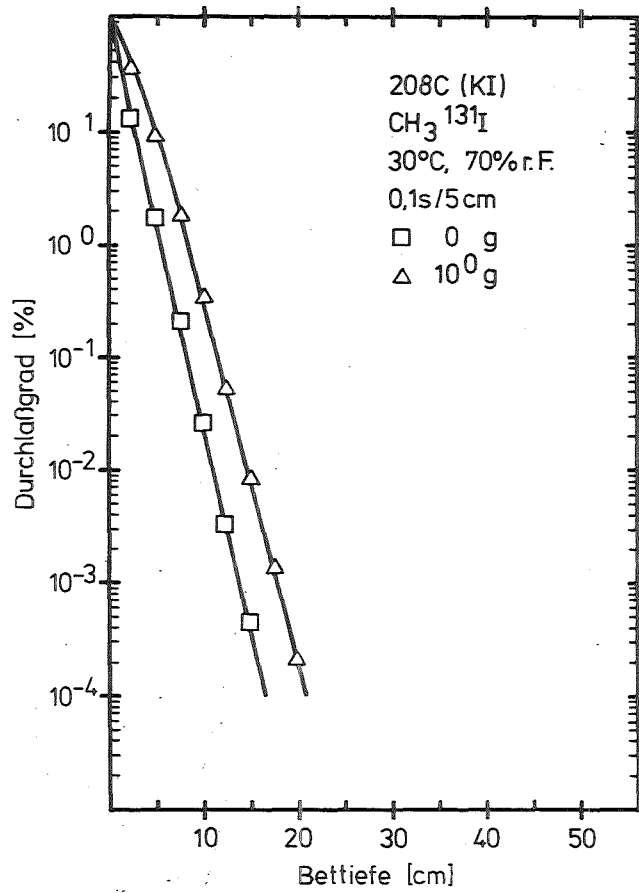
Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (PVC-Kabel)

Abb. 11



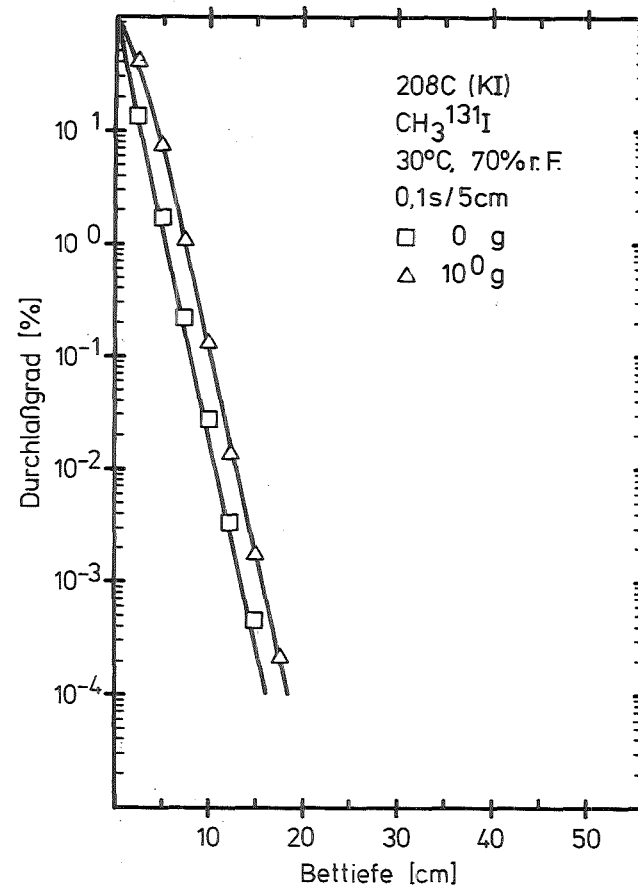
Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (FRNC-Kabel)

Abb. 12



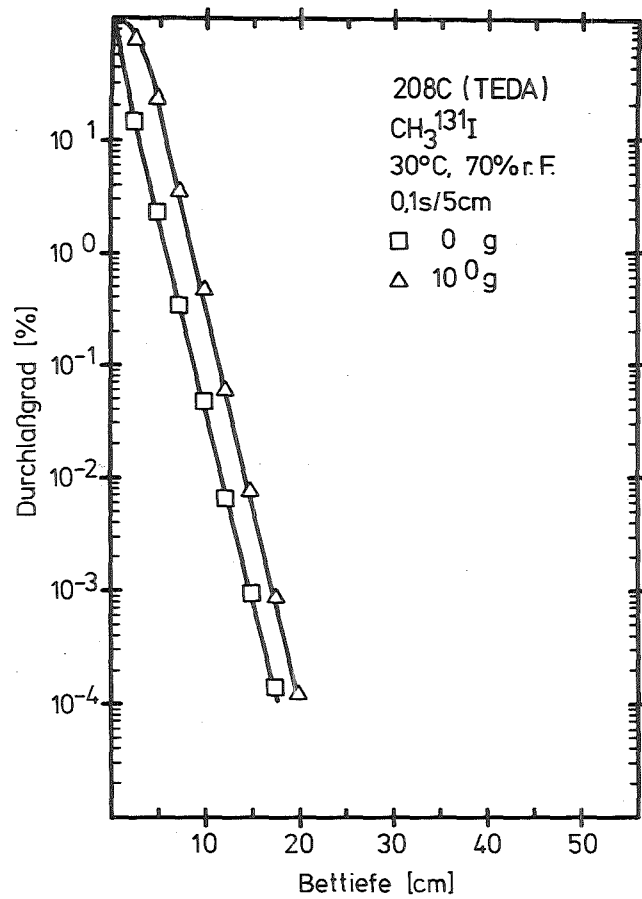
Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (Mineralöl)

Abb. 13



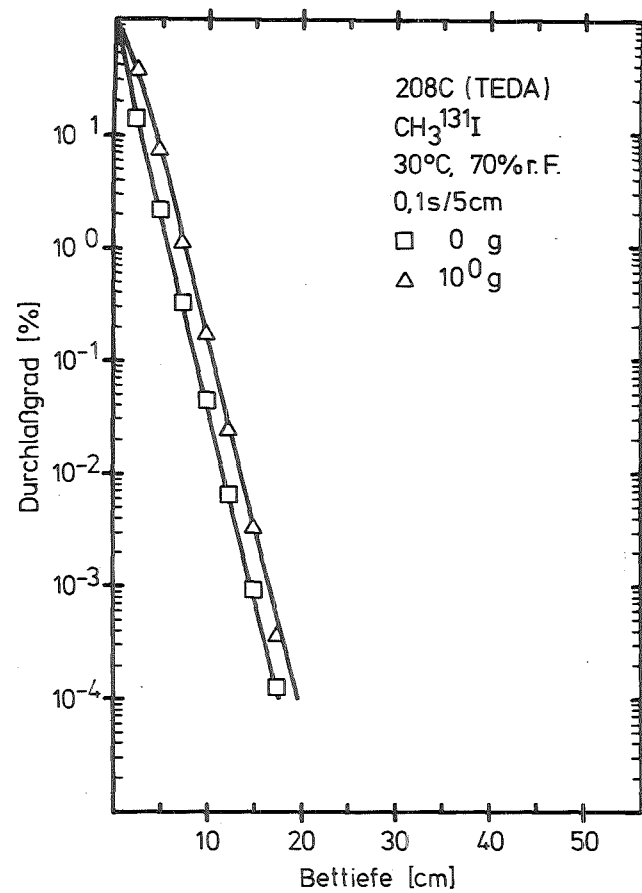
Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (Dekontfarbe)

Abb. 14



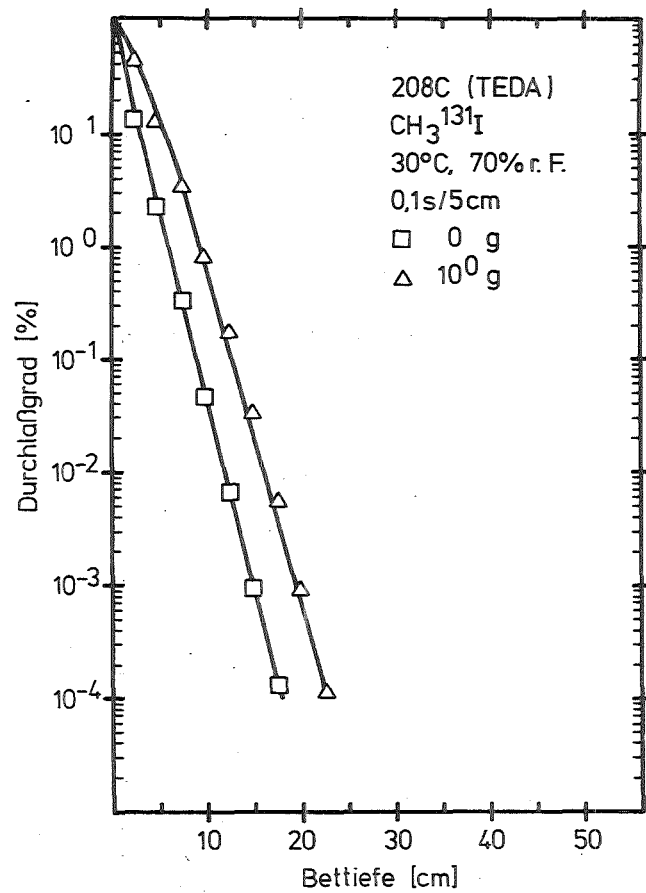
Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (PVC-Kabel)

Abb. 15



Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen Brandproduktmengen  
 (FRNC-Kabel)

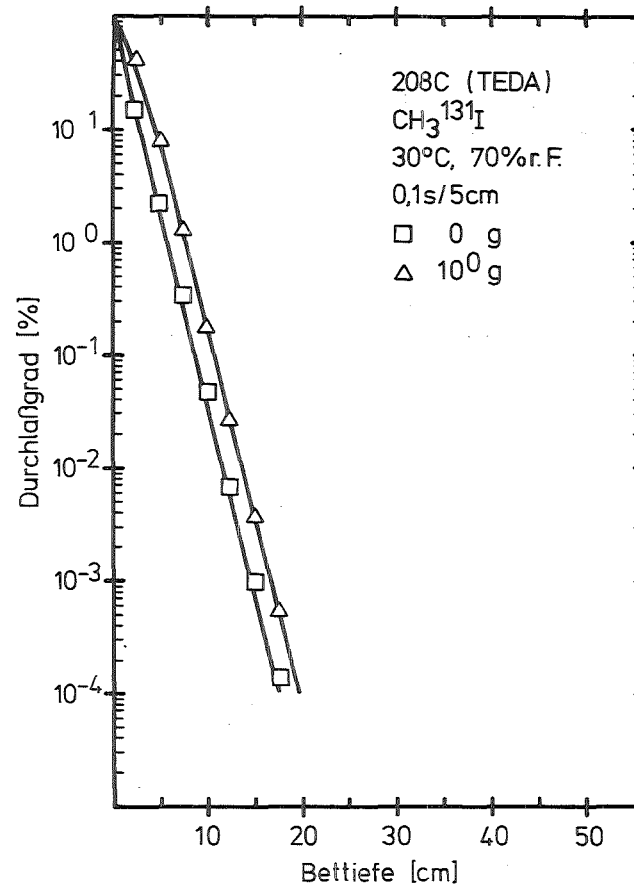
Abb. 16



KIK LAF II D8645

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Brandproduktmengen (Mineralöl)

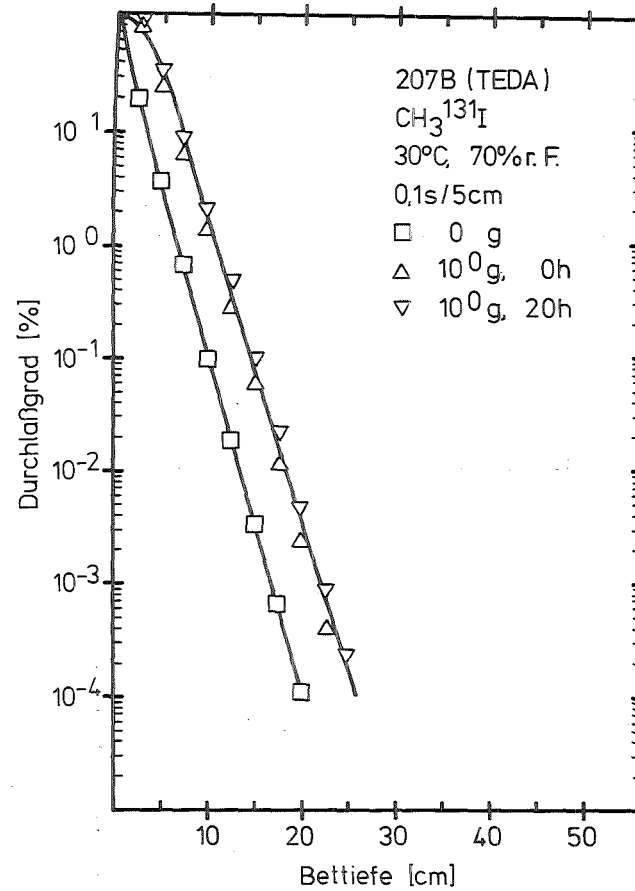
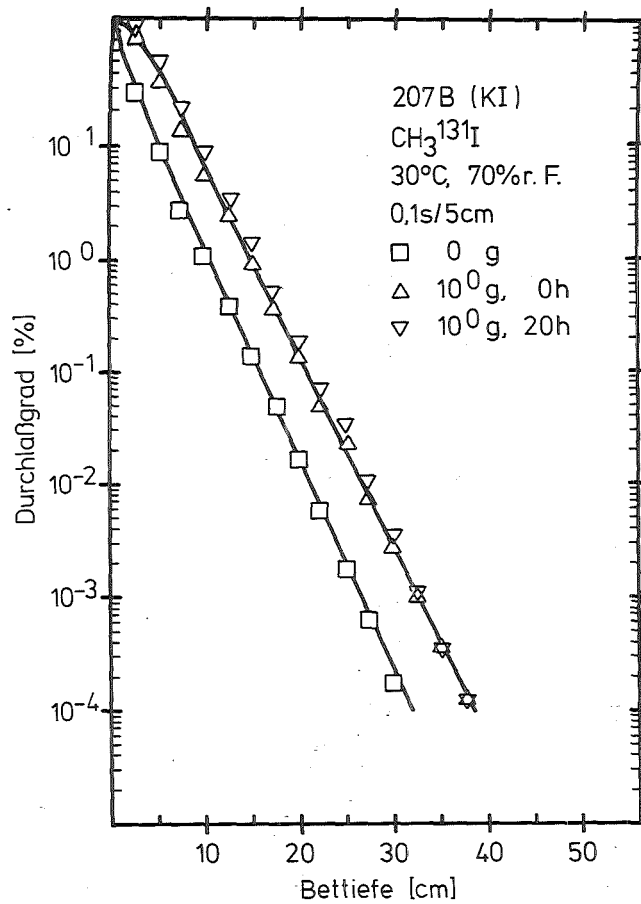
Abb. 17



KIK LAF II D8646

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Brandproduktmengen (Dekontfarbe)

Abb. 18



KIK LAF II D8653

KIK LAF II D8655

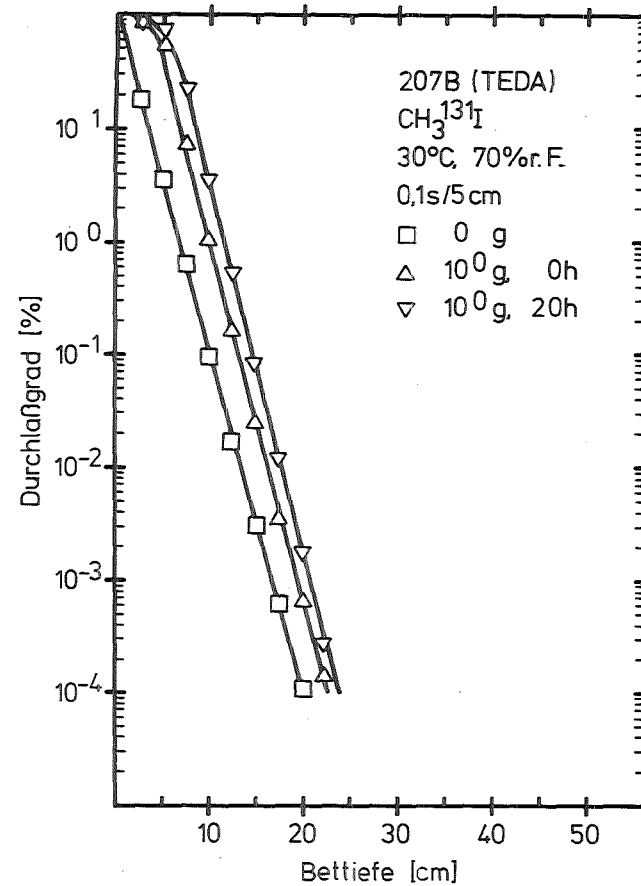
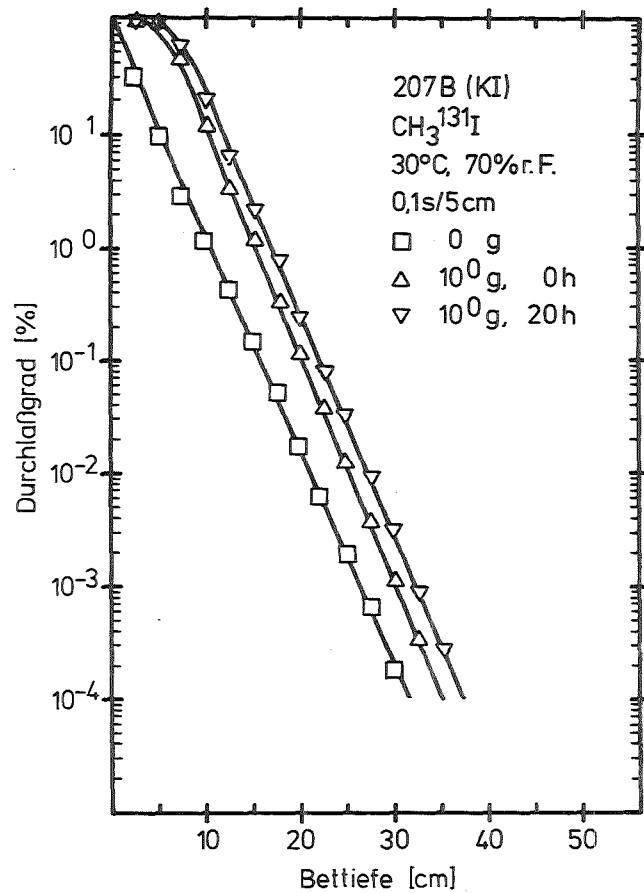
Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Brandproduktmengen und Spülzeiten (PVC-Kabel)

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Brandproduktmengen und Spülzeiten (PVC-Kabel)

Abb. 19<sup>a</sup>

Abb. 20<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Spülen, falls durchgeführt, zwischen Einleiten der Brandprodukte und Einleiten des  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$



KIK LAF I D8652

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen HCl-Mengen und Spülzeiten

KIK LAF II D8654

Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
 bei verschiedenen HCl-Mengen und Spülzeiten

Abb. 21 a

Abb. 22 a

<sup>a</sup> Spülen, falls durchgeführt, zwischen Einleiten des HCl und Einleiten des  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$



#### 4.2 Weitere Untersuchungen

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der in Kap. 3 genannten massenspektrometrischen Untersuchungen sowie der pH- und  $\text{Cl}^-$ -Messungen aufgeführt.

Die Ergebnisse der massenspektrometrischen Analysen der  $\text{CCl}_4$ -Extrakte von Aktivkohlebetten nach Beaufschlagung mit Brandprodukten sind in Tab. 5 zusammengefaßt. Die Ergebnisse beziehen sich auf die kombinierten ersten und zweiten 207B (KI)-Betten. Wie ersichtlich, waren Alkylderivate des Benzols unter den organischen Brandprodukten aller verwendeter Materialien. Aus Alterungsuntersuchungen ist bekannt, daß diese (und andere) organische Verbindungen zur Verschlechterung von Aktivkohlen in bezug auf die Rückhaltung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  beitragen /12, 13, 14, 15, 10, 11/. Offensichtlich spielten diese Verbindungen auch eine wichtige Rolle bei der Einwirkung der Brandprodukte. Die Ähnlichkeit der Verbindungen ist in Einklang mit der Ähnlichkeit in der Einwirkung der Brandprodukte verschiedener Materialien.

Einige Resultate der pH-Messungen in den  $\text{H}_2\text{O}$ -Extrakten von Aktivkohlebetten nach Einwirkung der Brandprodukte aus dem PVC-Kabel und nach Beladung mit HCl sind in den Abb. 23 und 24 dargestellt. Es ist ersichtlich, daß die Extrakte der vorderen Betten einen reduzierten pH-Wert aufwiesen. Bei den Brandprodukten aus dem PVC-Kabel betrug die Reduktion des pH-Wertes 2 bis 3 Einheiten, bei HCl 6 bis 7 Einheiten, sowohl bei 207B (KI) als auch bei 207B (TEDA). Die stärkere Abnahme des pH-Werts bei HCl korreliert mit einem stärkeren Einfluß dieser Verbindung auf die Abscheidung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ .

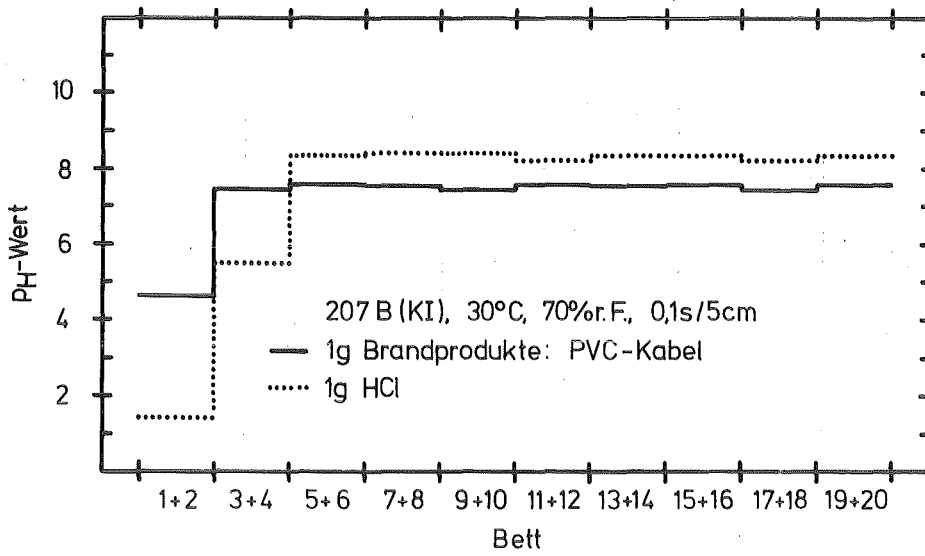
Es ist zu erwähnen, daß eine höhere  $\text{Cl}^-$ -Konzentration auch nur in den  $\text{H}_2\text{O}$ -Extrakten der vorderen Betten gefunden wurde, sowohl bei den Brandprodukten aus dem PVC-Kabel als auch bei HCl.

Die Messungen der pH-Werte und der  $\text{Cl}^-$ -Konzentrationen bestätigen, daß HCl ein wesentlicher Faktor bei der Einwirkung der Brandprodukte aus dem PVC-Kabel auf die Abscheidung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  an Aktivkohlen darstellt. Der Einfluß von sauren Verbindungen ist in diesem Zusammenhang schon früher beobachtet worden /13, 15/.

Tab. 5: Organische Brandprodukte der eingesetzten Materialien <sup>a</sup>

Material	Hauptverbindungen		Weitere Verbindungen (Auswahl)
	aromatische Verbindungen	nicht-arom. Verbindungen	
PVC-Kabel	Benzol, Methyl-	Cycloheptatrien	Benzol, Chloro-; Naphthalin
FRNC-Kabel	Benzol, Methyl-; Ethyl-	Hydroxylamin, Alkyl-; Bicyclooctatrien; Octan, Methyl-; Decen, Methyl-; Naphthalin	gerade und zyklische ungesättigte Kohlen- wasserstoffe (C <sub>6</sub> - C <sub>14</sub> ) und deren Alkylderivate
Mineralöl	Benzol, Methyl-	-	Benzol, Alkyl-
Dekont- farbe	Benzol, Methyl-, Ethyl-; Benzoldehyd; Benzofuran	Bicyclooctatrien	Cyclohexen, Alkyl-; Heptan (gerade, zyklisch); Alkyl-

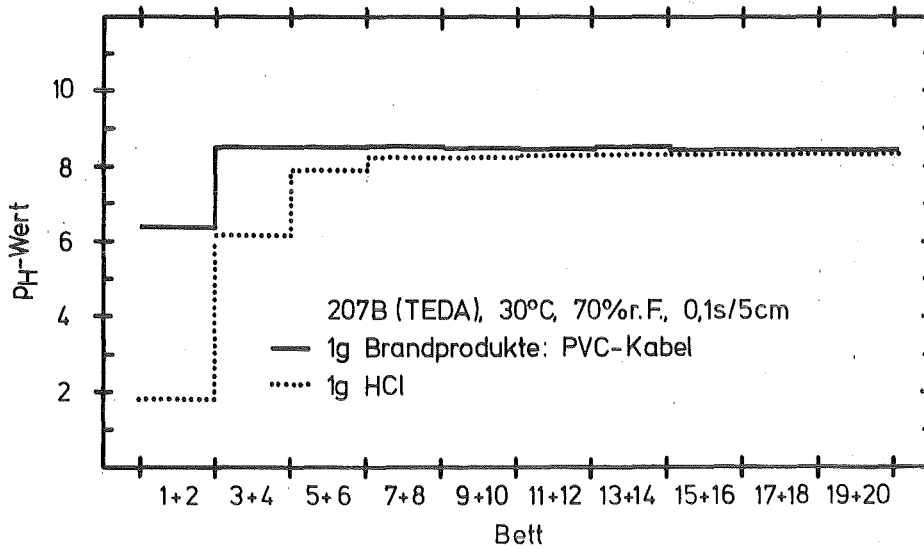
<sup>a</sup> Organische Produkte im CCl<sub>4</sub>-Extrakt der kombinierten ersten und zweiten 207B (KI)-Betten nach Beaufschlagung mit Brandprodukten



KIK LAF II D8659

pH-Wert des wässrigen Extrakts von Aktivkohlebetten bei Beaufschlagung mit gasförmigen Brandprodukten

Abb. 23



KIK LAF II D8660

pH-Wert des wässrigen Extrakts von Aktivkohlebetten bei Beaufschlagung mit gasförmigen Brandprodukten

Abb. 24

## 5. Zusammenfassung

Es wurden Untersuchungen zum Einfluß von gasförmigen Brandprodukten aus vier relevanten, in Kernkraftwerken verwendeten Materialien auf die Abscheidung von Methyljodid ( $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ ) an vier kommerziellen imprägnierten Aktivkohlen durchgeführt. Die zur Erzeugung der Brandprodukte verwendeten Materialien waren ein PVC-Kabel, ein FRNC-Kabel, ein Mineralöl und eine Dekontfarbe. Die Aktivkohlen unterschieden sich im Grundmaterial (Steinkohle oder Kokosnuß) und/oder im Imprägnans (KI oder TEDA).

Es wurde festgestellt, daß bei kleinen Bettiefen (Verweilzeiten: ca. 0,05 s) die Zunahme des Durchlaßgrades durch die Brandprodukte aus dem PVC-Kabel größer war als die durch die anderen Brandprodukte. Bei größeren Bettiefen (Verweilzeiten: ca. 0,25 s) war die Zunahme des Durchlaßgrades bei allen Brandprodukten ähnlich und praktisch unabhängig von der Bettiefe. Die Zunahme des Durchlaßgrades unterschied sich bei den verschiedenen Aktivkohlen nicht in entscheidendem Maße. Bei maximaler Beaufschlagung mit Brandprodukten (nominelle Beladung: 0,1 g Brandprodukte pro g Aktivkohle) betrug i. allg. bei größeren Bettiefen die Zunahme des Durchlaßgrades 1 bis 2 Größenordnungen. Die Brandprodukte enthielten große Anteile an Alkylderivaten des Benzols und, im Falle des PVC-Kabels, Chlorwasserstoff.

Es wurde nachgewiesen, daß mit Iodfiltern großer Bettiefe (Verweilzeit:  $\geq 0,5$  s) bei Einsatz der üblicherweise verwendeten imprägnierten Aktivkohlen eine ausreichend hohe Rückhaltung von Radioiod erreicht wird. Dies gilt auch bei starker Beaufschlagung mit gasförmigen Brandprodukten.

6. Literatur

- /1/ 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).
- /2/ KOVACH, J.L.;  
"The Evolution and Current State of Radio-Iodine Control".  
CONF 801 038 (1981) 417.
- /3/ WILHELM, J.G.;  
"Iodine Filters in Nuclear Installations".  
Commission of the European Communities, V/2110/83 (1982).
- /4/ GIRAUD, V.;  
"Die Abscheidung von Iod mit Iodfiltern in Kernkraftwerken bei Bränden (Literaturstudie)."  
KfK 3867 (1985).
- /5/ KOVACH, J.L.;  
"Adsorbent Removal Efficiencies for Organic Iodine Compounds".  
CEC European Conference on Gaseous Effluent Treatment in Nuclear Installations,  
Luxemburg, 14.-18.10.1985.
- /6/ DEUBER, H.;  
"Investigations on the Retention of Elemental Radioiodine by Activated Carbons at High Temperatures".  
Nucl. Technol. 72 (1986) 44.
- /7/ Normenausschuß Materialprüfung im DIN;  
"Erzeugung thermischer Zersetzungsprodukte von Werkstoffen unter Luftzufuhr und ihre toxikologische Prüfung."  
DIN 53 436(1981).
- /8/ British Standard Institution;  
"Specification for Test Sieves".  
BS 410 (1976).
- /9/ American Society for Testing and Materials;  
"Standard Test Method for pH of Activated Carbon".  
ASTM D 3838 (1980).

- /10/ DEUBER, H.; GERLACH, K.; KAEMPFER, R.;  
"Investigations on the Aging of Activated Carbons  
in the Exhaust Air of a Pressurized Water Reactor".  
Nucl. Techn. 70 (1985) 161.
- /11/ DEUBER, H.; GERLACH, K.; GIRAUD, V.; KAEMPFER, R.;  
"Investigations on the Aging of Various Activated  
Carbons in the Exhaust Air of a PWR over an Extended  
Period of Time".  
19th DOE/NCR Nuclear Air Cleaning Conference,  
Seattle, 18.-21.8.1986.
- /12 FURRER, J.; KAEMPFER, R.; WILHELM, J.G.;  
"Alterung und Vergiftung von Iod-Sorptionsmaterialien  
in Kernkraftwerken/Aging and Poisoning of Iodine Filters  
in Nuclear Power Plants".  
Kerntechnik 18 (1976) 313.
- /13/ KOVACH, J.L.; RANKOVIC, L.;  
"Evaluation and Control of Poisoning of Impregnated  
Carbons Used for Organic Iodide Removal".  
CONF 780 819 (1979) 368.
- /14/ WILHELM, J.G.; FURRER, J.; KAEMPFER, R.;  
"Untersuchung zur Ertüchtigung von Iod-Sorptions-  
filtern zur Reinigung der Abluft von Kernkraftwerken."  
KfK 3194 B (1981).
- /15/ DEITZ, V.R.;  
"Effects of Weathering on Impregnated Charcoal  
Performance".  
NUREG / CR-2112 (1981).

An der Durchführung und Auswertung der Messungen waren  
beteiligt:  
K. Bleier, E. Decker, M. Dehm, S. Engelhardt, A. Ladanyi  
und S. Winkler.