

**KfK 3821**  
**Oktober 1984**

# **Deterministische Berechnung der Jodfreisetzung über das Auflöserabgas im Normal- und Störfall**

**K. Nagel, J. Voit**  
**Institut für Datenverarbeitung in der Technik**  
**Projekt Nukleare Sicherheit**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Datenverarbeitung in der Technik  
Projekt Nukleare Sicherheit

KfK 3821

Deterministische Berechnung der Jodfreisetzung über  
das Auflöserabgas im Normal- und Störfall

K. Nagel, J. Voit



Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Zusammenfassung

Die experimentellen Ergebnisse über den Dekontaminationsfaktor der Jodsorptionsfilterstrecke der Anlage PASSAT sind die Grundlagen für die Berechnung der Freisetzung von Jod durch das Auflöserabgas.

Der Dekontaminationsfaktor eines Sorptionsfilters ist abhängig von der relativen Feuchte des Abgases und der Restbett-Tiefe der Filterschüttung. Die relative Feuchte ist durch die Temperatur des Abgases festgelegt und ändert sich bei Ausfall eines oder beider Erhitzer der Anlage.

Die experimentell bekannte Abhängigkeit des Dekontaminationsfaktors von relativer Feuchte und Restbett-Tiefe wurde den Rechnungen durch vier verschiedene zweidimensionale Approximationen zugrundegelegt. Weitere Voraussetzungen für die Rechnungen waren sowohl zwei unterschiedliche Auflösungsverfahren wie Batchbetrieb und Säurezudosierung als auch Normalbetrieb der Anlage und Ausfall der Erhitzer.

## Calculated Release of Iodine under Different Operation Conditions

### Abstract

On the basis of experimental results using PASSAT, a prototype of a head-end filter facility, we investigated deterministically the release of iodine by dissolver off-gas.

The retention factor of the iodine filter is influenced by relative humidity of the off-gas and the available bed depth of the sorption filter. The relative humidity will be determined by off-gas temperature.

The experimentally known dependence of the iodine retention factor on filter bed depth and relative humidity is described using four different two-dimensional approximations.

For two kinds of dissolution processes of spent fuel:  
batchwise operation and dosage of acid,  
the release of iodine have been calculated under different operation conditions:  
normal facility operation and failure of the electric heaters.

## Inhaltsverzeichnis

	Seite
I Einleitung	3
II Approximationen der Joddurchlässigkeit	5
III Jodquellterm in Abhängigkeit vom Auflösungsverfahren	7
IV Rechnungen zur Freisetzung von Jodisotopen	8
IV.1 Normalbetrieb	8
IV.2 Störfälle	11
V Schlußfolgerungen	19
Literaturverzeichnis	20
Anhang	21

## I Einleitung

PASSAT, eine Testanlage zur Entfernung von Aerosolen und Jodisotopen aus dem Auflöserabgas einer geplanten Wiederaufarbeitungsanlage, dient diesem Bericht als Grundlage zur Berechnung der Jodfreisetzung in Normal- und Störfallbetrieb /1/. Abbildung 1 zeigt ein vereinfachtes Schaltbild der wichtigsten Komponenten der Anlage zur Jodentfernung.

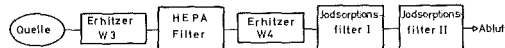


Abbildung 1: Schematische Darstellung der Jodsorptionsfilterstrecke

Die bisherigen experimentellen Untersuchungen unter Verwendung eines silbernitratimprägnierten Jodsorptionsmaterials (AC6120) haben gezeigt, daß die Joddurchlässigkeit von der relativen Feuchte des jodtragenden Abgases und der Restbett-Tiefe der Filterschüttung abhängt. Abbildung 2 stellt die experimentellen Ergebnisse als Punkte

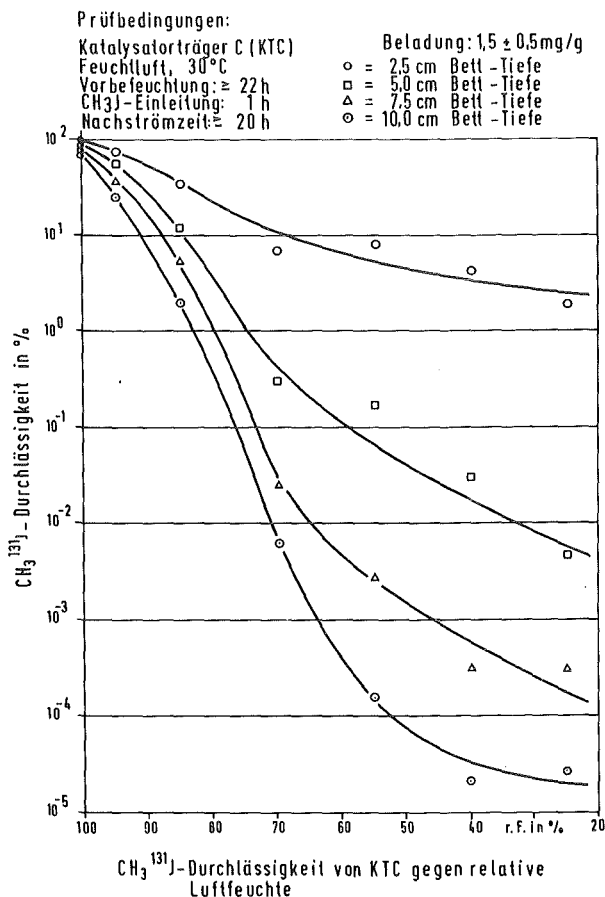


Abbildung 2: Experimentelle Ergebnisse der Joddurchlässigkeit in % als Funktion der relativen Feuchte des Abgases und der Bettiefe.



dar, und zwar den Logarithmus der Joddurchlässigkeit in % für bestimmte relative Feuchten in % und Restbett-Tiefen in cm. Diese Punkte reichen selbstverständlich nicht aus, um das Gesamtverhalten des Sorptionsfilters zu beschreiben. Daraus ergibt sich die Aufgabe, die experimentell ermittelten Ergebnisse so zu ergänzen, daß auch die Zwischenwerte sowohl in Richtung relativer Feuchte als auch in Richtung Restbett-Tiefe berechnet werden können. Dabei sind folgende Randbedingungen zu berücksichtigen:

- bei einer relativen Feuchte von  $Y = 25\%$  wird die minimale Durchlässigkeit erreicht,
- bei  $Y = 100\%$  wird die maximal mögliche Durchlässigkeit  $DL = 100\%$  erreicht,
- bei einer Restbett-Tiefe von  $X = 10$  cm wird die minimale Durchlässigkeit erreicht,
- bei einer Restbett-Tiefe von  $X = 0$  cm wird die maximal mögliche Durchlässigkeit  $DL = 100\%$  erreicht.

Diese Randbedingungen lassen sich auf folgende Weise zusammenfassen:

- 1.)  $0\% \leq Y \leq 25\% \Rightarrow Y = 25\%$ ,
- 2.)  $DL = 100\%$  für  $Y = 100\%$ ,
- 3.)  $X \geq 10$  cm  $\Rightarrow X = 10$  cm,
- 4.)  $DL = 100\%$  für  $X = 0$  cm.

Noch eine Bemerkung zu der relativen Feuchte. Für die Approximationen standen uns keine experimentellen Daten mit relativen Feuchten  $< 25\%$  zur Verfügung. Da in diesem Bereich die Durchlässigkeit eher noch kleiner wird, liegt man für die Jodfreisetzung auf der sicheren Seite, wenn Randbedingung 1 benutzt wird. Die Folge dieser Modellannahme ist aber, daß relative Feuchten unter  $25\%$  keinen Einfluß auf die Durchlässigkeit und die Jodfreisetzung im Modell haben können.

Wir werden im folgenden für vier zur Verfügung stehende Approximationen die Joddurchlässigkeit des Filters berechnen und die Ergebnisse vergleichen.

## II Approximationen der Joddurchlässigkeit

Die einfachste Art, die Messungen zu ergänzen, ist die lineare Interpolation der experimentellen Punkte in beide Richtungen /2/. Diese Approximation hat den Vorteil, daß sie die Experimente recht genau widerspiegelt, aber sie läßt keine Extrapolationen über den Bereich der Messungen hinaus zu. Sie dient zur Abschätzung der Genauigkeit in den Freisetzungsberechnungen der drei anderen Approximationen.

Die zweite Approximation hat die Gestalt /3/:

$$\text{Log DL} = A \cdot \text{EXP}(-0.04 \cdot X^2) + K \cdot Y^L - 5.$$

$$A = 2. - (K \cdot Y^L - 5.)$$

$$K = 3.6737 \cdot 10^{-5}$$

$$L = 2.64$$

X = Restbett-Tiefe in cm, Y = rel. Feuchte in %,

DL = Joddurchlässigkeit in % .

Diese Darstellung der Durchlässigkeit läßt Extrapolationen über die experimentellen Werte hinaus zu, sie verhält sich gut an den Rändern: X = 0 cm , Y = 100% bzw. X ≥ 10 cm, Y ≤ 25% . Ein Nachteil dieser Approximation ist die Wiedergabe der Werte für Y > 70%. Zur Untersuchung der Auswirkungen, die dieser Nachteil der zweiten Anpassung besonders auf Störfälle hat, wurde eine dritte Approximation verwendet:

$$\text{Log DL} = A \cdot \text{EXP}(-0.04 \cdot X^2) + 0.09 \cdot Y - 7.$$

$$A = 9. - 0.09 \cdot Y$$

Approximation und experimentelle Werte sind in der Abbildung 3 dargestellt. Die Abbildung demonstriert eine recht gute Darstellung der Ergebnisse für Y = 25, 85, 95 und 100% relativer Feuchte. Die errechneten Werte sind jedoch zu groß für den mittleren Bereich Y = 40, 55 und 70% relativer Feuchte. Ein wesentlicher Vorteil der zuletzt genannten Approximation gegenüber der vorletzten ist, daß

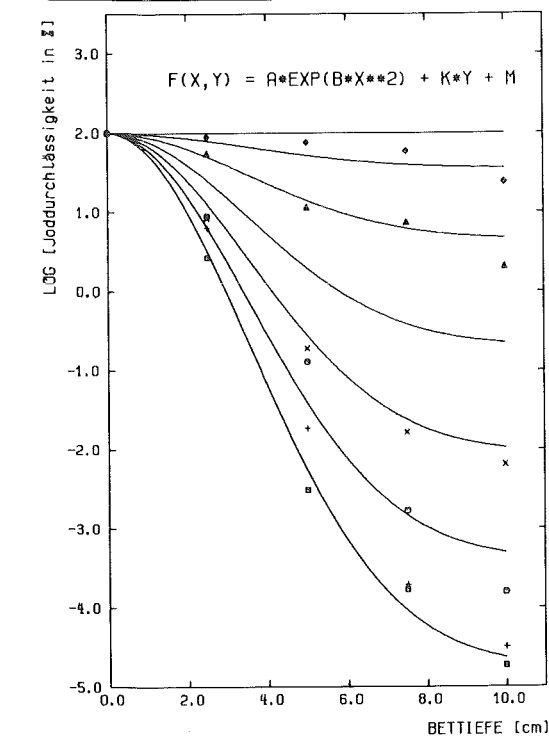


Abbildung 3: Approximation der Durchlässigkeit (logarithmisch) eines Sorptionsfilters  $F(X,Y)$  abhängig von der Restbett-Tiefe  $X$  und der relativen Feuchte  $Y$ .

der Logarithmus der Durchlässigkeit linear abhängig ist von der relativen Feuchte. Solche Vereinfachungen sind wünschenswert besonders dann, wenn das zugrundeliegende Modell zur Beschreibung von Störfallabläufen recht anspruchsvoll ist /4/. In dieser Arbeit wurde als Approximation folgende Darstellung gewählt:

$$\ln DL = X \cdot (Y/100 - 1) \cdot (3.751 + 2.185 \cdot (Y/100 - 1)) + 2 \cdot \ln 10 .$$

Die Approximation geht von einem Produktansatz zwischen  $X$  und  $Y$  aus, wobei  $X$  linear und  $Y$  quadratisch eingeht. Der Term  $(+ 2 \cdot \ln 10)$  ergibt sich aus der Umrechnung von Bruchteilen in Prozente. Die beiden anderen Approximationen haben eine viel stärkere  $X$ -Abhängigkeit (quadratisch exponentiell), während die  $Y$ -Abhängigkeit vergleichbar ist. Die vier vorgestellten Approximationen werden den Freisetzungsberechnungen von Jodisotopen im bestimmungsgemäßen Betrieb (Normalbetrieb) und bei Störfällen zugrundegelegt.

### III Jodquellterm in Abhängigkeit vom Auflösungsverfahren

Außer der Joddurchlässigkeit des Filters ist eine weitere wichtige Voraussetzung zur Berechnung der Jodfreisetzung die Bestimmung des Jodquellterms oder des Jodanteils im Abgas. Den Rechnungen liegen zwei Auflösungsverfahren der Brennstäbe zugrunde: Batchbetrieb und Säurezudosierung.

Beim Batchbetrieb wird die gesamte Brennstoffcharge in 7.2 molare Salpetersäure geschnitten und dann aufgekocht. Durch das Aufkochen erreicht der Jodaustrag aus dem Auflöser innerhalb der ersten Stunde ein Maximum und fällt anschließend langsam ab.

Bei der Säurezudosierung gibt man die Brennstoffcharge in 3 molare Salpetersäure und kocht diese auf. Eine entsprechende Zudosierung an konzentrierter Salpetersäure (< 12 molar) ergibt einen vergleichmäßigten Austrag an Jod, Krypton und Xenon aus dem Auflöser. Zur Restjodaustreibung wird anschließend mehrere Stunden bei ca. 110°C gekocht. Abbildung 4 zeigt den Jodanteil im Abgas für die zwei Auflösungsverfahren. Während die Kurve für den Jodaustrag im Batchbetrieb auf gemessenen und extrapolierten Werten aus der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) beruht /3/, entspricht die Kurve für die Säurezudosierung einer idealisierten Vergleichmäßigung mit gleichem Flächeninhalt von 129 g Jod.

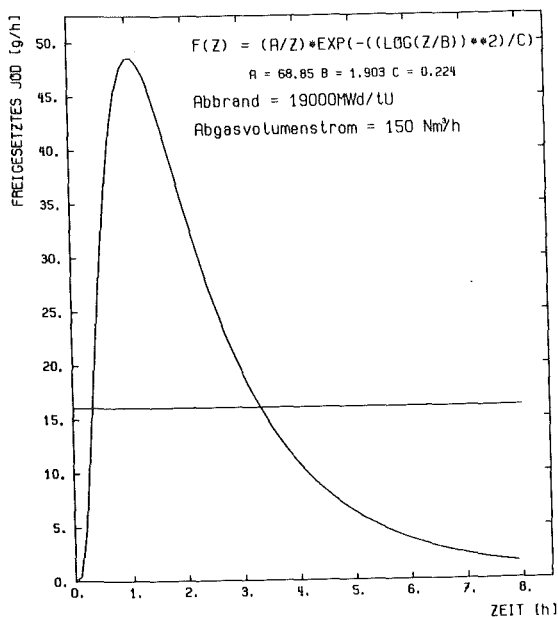


Abbildung 4: Jodaustrag aus dem Auflöser als Funktion der Zeit für Batchbetrieb und ideale Säurezudosierung (konst. Jodstrom).

## IV Rechnungen zur Freisetzung von Jodisotopen

### IV.1 Normalbetrieb

Mit den Angaben der vorausgegangenen Kapitel lassen sich Freisetzen von Jodisotopen im bestimmungsgemäßen Betrieb berechnen. Die Rechnungen gelten für ein Jodsorptionsfilter von 60 cm Schütthöhe und einer Aufnahmekapazität an Jod von 12.1 kg. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 und 2 und in der Abbildung 5 dargestellt.

Tabelle 1: Freisetzung von Jodisotopen im Normalbetrieb bei batchweiser Auflösung.

Zeit (h)	Restbett-Tiefe (cm)	Freisetzung (g) aufgrund der Approximation			
		1	2	3	4
624.9	10.00	$1.88 \cdot 10^{-3}$	$2.03 \cdot 10^{-3}$	$2.38 \cdot 10^{-3}$	$1.33 \cdot 10^{-3}$
635.0	9.00	$1.94 \cdot 10^{-3}$	$2.08 \cdot 10^{-3}$	$2.44 \cdot 10^{-3}$	$1.39 \cdot 10^{-3}$
649.3	7.99	$2.08 \cdot 10^{-3}$	$2.16 \cdot 10^{-3}$	$2.53 \cdot 10^{-3}$	$1.71 \cdot 10^{-3}$
660.4	7.00	$2.45 \cdot 10^{-3}$	$2.33 \cdot 10^{-3}$	$2.72 \cdot 10^{-3}$	$3.24 \cdot 10^{-3}$
673.7	5.99	$3.61 \cdot 10^{-3}$	$2.95 \cdot 10^{-3}$	$3.43 \cdot 10^{-3}$	$1.06 \cdot 10^{-2}$
688.3	5.00	$7.28 \cdot 10^{-3}$	$6.94 \cdot 10^{-3}$	$7.88 \cdot 10^{-3}$	$4.74 \cdot 10^{-2}$
698.1	3.99	$3.93 \cdot 10^{-2}$	$4.98 \cdot 10^{-2}$	$5.45 \cdot 10^{-2}$	$2.26 \cdot 10^{-1}$
712.8	2.99	$5.23 \cdot 10^{-1}$	$6.60 \cdot 10^{-1}$	$7.00 \cdot 10^{-1}$	1.09

Tabelle 2: Freisetzung von Jodisotopen im Normalbetrieb bei idealer Säurezudosierung.

Zeit (h)	Restbett-Tiefe (cm)	Freisetzung (g) aufgrund der Approximation			
		1	2	3	4
625.8	10.00	$1.88 \cdot 10^{-3}$	$2.03 \cdot 10^{-3}$	$2.38 \cdot 10^{-3}$	$1.33 \cdot 10^{-3}$
638.3	9.00	$1.94 \cdot 10^{-3}$	$2.08 \cdot 10^{-3}$	$2.44 \cdot 10^{-3}$	$1.39 \cdot 10^{-3}$
650.8	8.00	$2.08 \cdot 10^{-3}$	$2.16 \cdot 10^{-3}$	$2.52 \cdot 10^{-3}$	$1.71 \cdot 10^{-3}$
663.3	7.00	$2.45 \cdot 10^{-3}$	$2.32 \cdot 10^{-3}$	$2.72 \cdot 10^{-3}$	$3.26 \cdot 10^{-3}$
675.9	6.00	$3.60 \cdot 10^{-3}$	$2.95 \cdot 10^{-3}$	$3.43 \cdot 10^{-3}$	$1.08 \cdot 10^{-2}$
688.3	5.00	$7.27 \cdot 10^{-3}$	$6.92 \cdot 10^{-3}$	$7.86 \cdot 10^{-3}$	$4.72 \cdot 10^{-2}$
700.8	4.00	$3.89 \cdot 10^{-2}$	$4.93 \cdot 10^{-2}$	$5.40 \cdot 10^{-2}$	$2.26 \cdot 10^{-1}$
713.4	3.00	$5.20 \cdot 10^{-1}$	$6.56 \cdot 10^{-1}$	$6.96 \cdot 10^{-1}$	1.10

Im Normalbetrieb sind die freigesetzten Mengen an Jod bei batchweiser Auflösung immer geringfügig größer als bei Säurezudosierung.

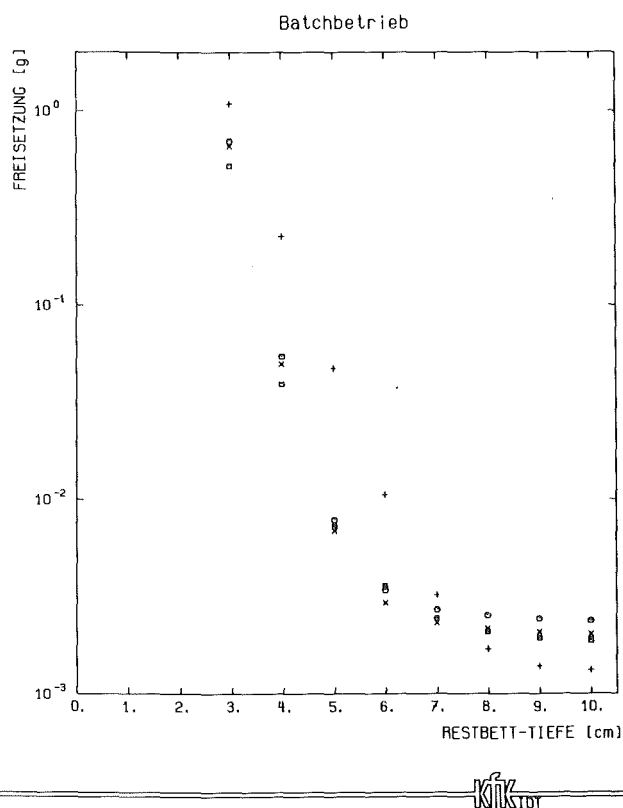
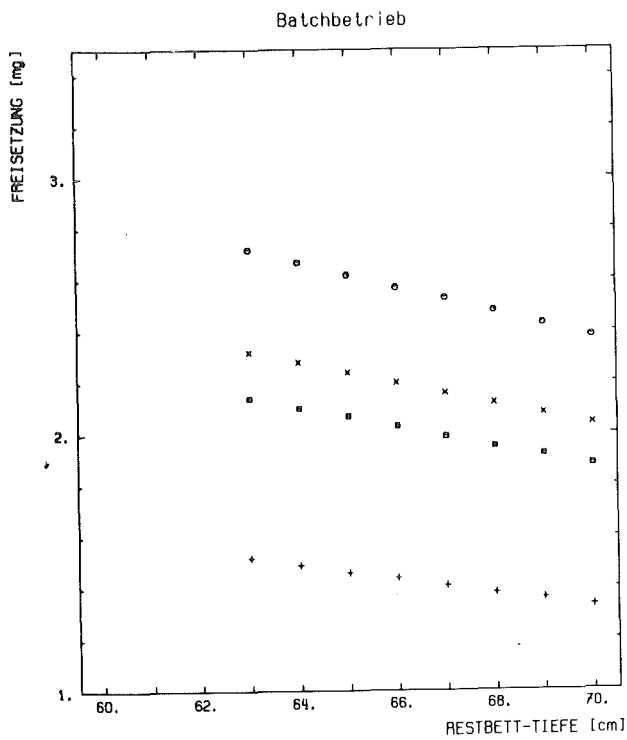


Abbildung 5: Gesamtmenge Jod, die bei Beladung eines Jodfilters freigesetzt wird, abhängig von der Restbett-Tiefe beim Filterwechsel, die Ergebnisse beruhen auf folgenden Approximationen: (□) lineare Interpolation, (x) zweite Approximation, (o) dritte Approximation, (+) vierte Approximation.

In der Testanlage PASSAT sind zwei Jodsorptionsfilter hintereinander geschaltet, d.h. die gesamte zur Verfügung stehende Restbett-Tiefe ist immer größer als 10 cm. Die freigesetzten Jodmengen sind im Normalbetrieb für zwei Jodfilter bei batchweiser Auflösung in Tabelle 3 und Abbildung 6 dargestellt, und für die ideale Säurezudosierung sind sie in Tabelle 4 aufgelistet.

**Tabelle 3:** Freisetzung von Jodisotopen im Normalbetrieb bei Batchbetrieb und zwei hintereinandergeschalteter Jodfilter.

Zeit (h)	Restbett-Tiefe (cm)	Freisetzung (g) aufgrund der Approximation			
		1	2	3	4
625.0	70.00	$1.88 \cdot 10^{-3}$	$2.04 \cdot 10^{-3}$	$2.38 \cdot 10^{-3}$	$1.33 \cdot 10^{-3}$
637.6	69.00	$1.92 \cdot 10^{-3}$	$2.08 \cdot 10^{-3}$	$2.43 \cdot 10^{-3}$	$1.36 \cdot 10^{-3}$
650.1	68.00	$1.95 \cdot 10^{-3}$	$2.12 \cdot 10^{-3}$	$2.48 \cdot 10^{-3}$	$1.38 \cdot 10^{-3}$
662.6	67.00	$1.99 \cdot 10^{-3}$	$2.16 \cdot 10^{-3}$	$2.53 \cdot 10^{-3}$	$1.41 \cdot 10^{-3}$
675.1	66.00	$2.03 \cdot 10^{-3}$	$2.20 \cdot 10^{-3}$	$2.57 \cdot 10^{-3}$	$1.44 \cdot 10^{-3}$
687.6	65.00	$2.07 \cdot 10^{-3}$	$2.24 \cdot 10^{-3}$	$2.62 \cdot 10^{-3}$	$1.46 \cdot 10^{-3}$
700.1	64.00	$2.10 \cdot 10^{-3}$	$2.28 \cdot 10^{-3}$	$2.67 \cdot 10^{-3}$	$1.49 \cdot 10^{-3}$
712.6	63.00	$2.14 \cdot 10^{-3}$	$2.32 \cdot 10^{-3}$	$2.72 \cdot 10^{-3}$	$1.52 \cdot 10^{-3}$



**Abbildung 6:** Wie Abb.5 für zwei hintereinandergeschaltete Jodfilter.

**Tabelle 4:** Freisetzung von Jodisotopen im Normalbetrieb bei idealer Säurezu-  
dosierung und zwei hintereinandergeschalteter Jodfilter.

Zeit (h)	Restbett- Tiefe (cm)	Freisetzung (g) aufgrund der Approximation			
		1	2	3	4
625.9	70.00	$1.88 \cdot 10^{-3}$	$2.04 \cdot 10^{-3}$	$2.38 \cdot 10^{-3}$	$1.33 \cdot 10^{-3}$
638.3	69.00	$1.92 \cdot 10^{-3}$	$2.08 \cdot 10^{-3}$	$2.43 \cdot 10^{-3}$	$1.36 \cdot 10^{-3}$
650.8	68.00	$1.95 \cdot 10^{-3}$	$2.12 \cdot 10^{-3}$	$2.48 \cdot 10^{-3}$	$1.38 \cdot 10^{-3}$
663.4	67.00	$1.99 \cdot 10^{-3}$	$2.16 \cdot 10^{-3}$	$2.53 \cdot 10^{-3}$	$1.41 \cdot 10^{-3}$
675.9	66.00	$2.03 \cdot 10^{-3}$	$2.20 \cdot 10^{-3}$	$2.57 \cdot 10^{-3}$	$1.44 \cdot 10^{-3}$
688.4	65.00	$2.07 \cdot 10^{-3}$	$2.24 \cdot 10^{-3}$	$2.62 \cdot 10^{-3}$	$1.46 \cdot 10^{-3}$
700.9	64.00	$2.10 \cdot 10^{-3}$	$2.28 \cdot 10^{-3}$	$2.67 \cdot 10^{-3}$	$1.49 \cdot 10^{-3}$
713.4	63.00	$2.14 \cdot 10^{-3}$	$2.32 \cdot 10^{-3}$	$2.72 \cdot 10^{-3}$	$1.52 \cdot 10^{-3}$

Die Berücksichtigung zweier Jodfilter zeigt, daß die Freisetzung von Jod bei einer Beladung des ersten Filters bis zu einer Restbett-Tiefe von 3 cm um etwa den Faktor 250 kleiner ist als nur mit einem Filter.

#### IV.2 Störfälle

Störfälle in diesem Zusammenhang sind:

- Ausfall des Erhitzers W3 vor dem Schwebstofffilter,
- Ausfall des Erhitzers W4 vor dem Jodfilter,
- gleichzeitiger Ausfall beider Erhitzer während der Auflösungsperiode (CCF: common cause failure),
- Ausfall beider Erhitzer, jedoch nicht gleichzeitig während der Auflösungsperiode (CMF: common mode failure).

Die Störfälle werden nur innerhalb des Zeitraums einer Auflösungsperiode (8 Stunden) betrachtet, da unterstellt werden kann, daß die Erhitzer in der nachfolgenden Verarbeitungsperiode (16 Stunden) repariert oder ersetzt werden können. Außerdem wird bei den durchgeführten Störfallrechnungen angenommen, daß die Jodfilter zum Auflösungsbeginn unbeladen sind.

Ein Erhitzerausfall bedeutet, daß die Abgastemperatur hinter dem Er-



hitzer absinkt und die relative Feuchte zunimmt. Die relative Feuchte  $Y$  ist das Verhältnis der Sättigungsdrücke des Dampfes am Eingang der Anlage  $p_s(T_E)$  und an den Jodfiltern  $p_s(T_J)$ .

$$Y = (p_s(T_E)/p_s(T_J)) \cdot 100$$

Das Gas strömt mit einer Sättigungstemperatur  $T_E = 30^\circ\text{C}$  in die Anlage. Der Sättigungsdruck des Dampfes ist eine Funktion der Temperatur und läßt sich im Bereich  $30^\circ\text{C} \leq T \leq 130^\circ\text{C}$  nach Clausius-Clapeyron wie folgt approximieren /5/:

$$\ln p(T) = -5070/(T + 273.15) + 13.62$$

Der Ausfall von W3 hat zwar ein Absinken der Temperatur vor W4 zur Folge, aber W4 erreicht die Abgastemperatur von  $130^\circ\text{C}$  trotzdem, so daß dieser Störfall keinen Einfluß auf die Freisetzung hat.

Beim Ausfall von W4 fällt die Abgastemperatur am Jodfilter nach folgender Exponentialfunktion ab /3/:

$$T = 71.4 \cdot e^{-0.8 \cdot z} + 58.6$$

$T$  = Temperatur in  $^\circ\text{C}$ ,  $z$  = Zeit in Stunden.

Nach ungefähr 5 Stunden hat die Abgastemperatur ca.  $60^\circ\text{C}$  erreicht, was einer relativen Feuchte von ca. 22% entspricht. Da die relative Feuchte unter 25% liegt, ist die Jodfreisetzung im Modell wie beim störungsfreien Betrieb.

Ein sicher seltener aber möglicher Störfall ist der gleichzeitige Ausfall beider Erhitzer innerhalb der Auflösungsperiode von 8 Stunden. In diesem Fall ändert sich die Abgastemperatur nach /3/:

$$T = 106 \cdot e^{-0.51 \cdot z} + 24.$$

$T$  = Temperatur in  $^\circ\text{C}$ ,  $z$  = Zeit in Stunden.

Nach ungefähr 2.2 Stunden hat das Abgas eine relative Feuchte von 25% erreicht. Hieraus folgt, daß ein Ausfall beider Erhitzer nach 5.8 Stunden oder später relativ zum Auflösungsbeginn keinen Einfluß mehr auf die Jodfreisetzung im Modell hat (vgl. Tabellen 5 und 6).

Tabelle 5: Freisetzung von Jod bei gleichzeitigem Ausfall beider Erhitzer relativ zum Auflösungsbeginn bei Batchbetrieb.

Zeit (h) relativ zum Auflösungsbeginn	Freisetzung (g) aufgrund der Approximation			
	1	2	3	4
0.0	7.52	7.20	7.91	7.27
0.5	5.28	5.04	5.59	5.09
1.0	3.54	3.34	3.78	3.39
1.5	2.16	2.01	2.35	2.04
2.0	1.07	$9.48 \cdot 10^{-1}$	1.22	$9.76 \cdot 10^{-1}$
2.5	$2.15 \cdot 10^{-1}$	$1.24 \cdot 10^{-1}$	$3.29 \cdot 10^{-1}$	$1.45 \cdot 10^{-1}$
3.0	$1.55 \cdot 10^{-2}$	$3.88 \cdot 10^{-3}$	$4.31 \cdot 10^{-2}$	$5.57 \cdot 10^{-3}$
4.0	$3.22 \cdot 10^{-5}$	$3.72 \cdot 10^{-5}$	$4.23 \cdot 10^{-4}$	$3.11 \cdot 10^{-5}$
5.0	$2.41 \cdot 10^{-5}$	$2.62 \cdot 10^{-5}$	$3.28 \cdot 10^{-5}$	$1.72 \cdot 10^{-5}$

Tabelle 6: Freisetzung von Jod bei gleichzeitigem Ausfall beider Erhitzer relativ zum Auflösungsbeginn bei idealer Säurezudosierung.

Zeit (h) relativ zum Auflösungsbeginn	Freisetzung (g) aufgrund der Approximation			
	1	2	3	4
0.0	42.16	41.21	43.28	41.43
0.5	34.11	33.16	35.22	33.38
1.0	26.06	25.10	27.18	25.33
1.5	18.01	17.05	19.12	17.28
2.0	9.96	9.00	11.07	9.23
2.5	2.13	1.26	3.19	1.46
3.0	$1.57 \cdot 10^{-1}$	$3.90 \cdot 10^{-2}$	$4.22 \cdot 10^{-1}$	$5.61 \cdot 10^{-2}$
4.0	$1.06 \cdot 10^{-4}$	$1.35 \cdot 10^{-4}$	$3.92 \cdot 10^{-3}$	$1.56 \cdot 10^{-4}$
5.0	$2.49 \cdot 10^{-5}$	$2.80 \cdot 10^{-5}$	$5.44 \cdot 10^{-5}$	$1.87 \cdot 10^{-5}$

Beim Ausfall beider Erhitzer in den ersten zwei Stunden relativ zum Auflösungsbeginn liefern alle Approximationen nahezu das gleiche Ergebnis. Zwischen 2 und 8 Stunden gibt es Abweichungen, die aber keinen entscheidenden Einfluß mehr haben, da die insgesamt frei-

gesetzte Jodmenge in diesem Zeitabschnitt um eine oder mehrere Größenordnungen kleiner ist als vorher (vgl. Abbildung 7).

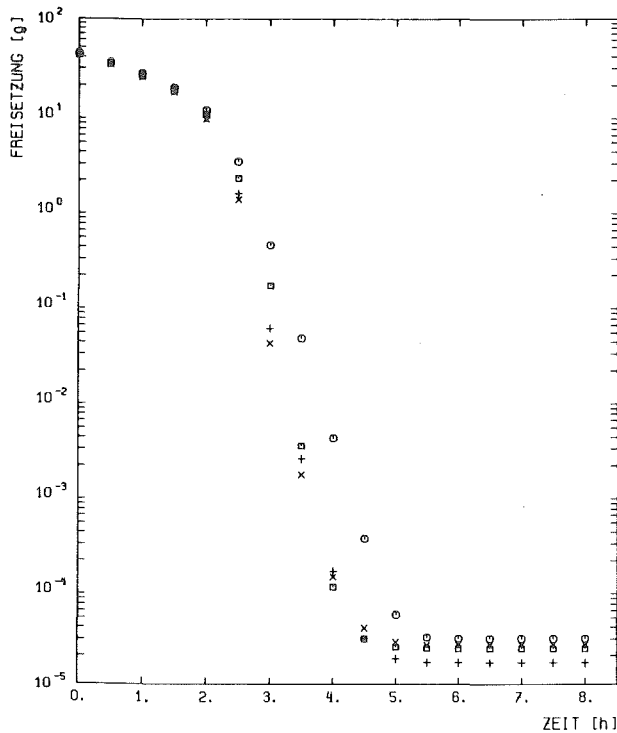


Abbildung 7: Freisetzung von Jod bei gleichzeitigem Ausfall beider Erhitzer und idealer Säurezudosierung, Symbole s. Abb. 5.

Abbildung 8 stellt das Verhältnis der Freisetzung bei idealer Säurezudosierung und Batchbetrieb für den gleichzeitigen Ausfall beider Erhitzer dar. Die Unterschiede beruhen auf Unterschiede im Jodquellterm (vgl. Abbildung 4). Wie bereits früher erwähnt, wird bei einem gleichzeitigen Ausfall beider Erhitzer nach 2.2 Stunden die relative Feuchte größer als 25%, was erst zu Abweichungen vom Normalbetrieb führt. Zu dieser Zeit aber hat der Jodstrom beim Batchbetrieb bereits sein Maximum überschritten und fällt wieder ab.

Nach Abbildung 8 erreicht das Verhältnis der Freisetzung bei idealer Säurezudosierung und Batchbetrieb sein Maximum, wenn beide Erhitzer 3 Stunden nach Auflösungsbeginn gleichzeitig ausfallen. In diesem Fall wird bei der idealen Säurezudosierung 10 mal mehr Jod freigesetzt als im Batchbetrieb.

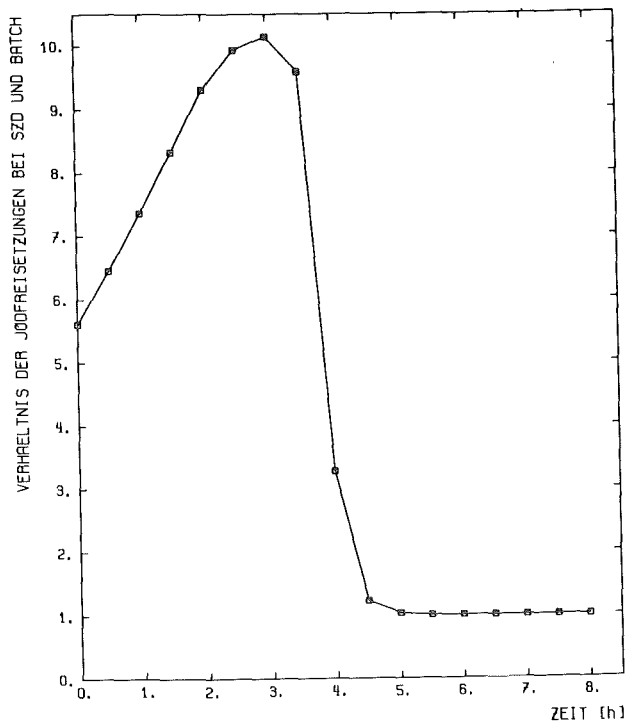


Abbildung 8: Vergleich der Freisetzungsmengen an Jod der beiden Auflösungsverfahren als Funktion der Zeit des gleichzeitigen Ausfalls beider Erhitzer relativ zum Auflösungsbeginn.

Ein weiterer Störfall, der berücksichtigt werden sollte, ist ein Ausfall beider Erhitzer innerhalb der Auflösungsperiode von 8 Stunden, aber zu verschiedenen Zeitpunkten.

Ein Ausfall des Erhizers W3 vor dem HEPA-Filter hat keinen Einfluß auf die Abgastemperatur am Jodfilter. Der nachfolgende Ausfall des Erhizers W4 senkt die Temperatur am Filter, und zwar entsprechend dem gleichzeitigen Ausfall beider Erhitzer. Die berechneten Ergebnisse dieses Falls sind aber bereits weiter oben angegeben.

Fällt Erhitzer W4 zuerst aus, dann sinkt die Abgastemperatur ab. Durch den späteren Ausfall von W3 folgt die Temperaturänderung einer anderen Funktion. Beide Temperaturfunktionen müssen beim Übergang ineinander den gleichen Temperaturwert ergeben, was für die zweite Temperaturfunktion eine Zeittransformation bedeutet.

Die Ergebnisse der Rechnungen sind in den Abbildungen 9 und 10 wieder-

gegeben, wobei jedes Einzelbild zu einer der vier verwendeten Approximationen der Durchlässigkeit gehört.

Als Ordinate ist jeweils die pro Auflösungsperiode von 8 Stunden kumuliert freigesetzte Jodmenge in g aufgetragen. In jedem der 4 Bilder sind 5 Kurven eingezeichnet. Die oberste Kurve, die bei  $t = 0$  Stunden beginnt, betrifft den Ausfall des Erhitzers W4 zum Zeitpunkt des Auflösungsbeginns, die zweitoberste Kurve, die bei  $t = 0.5$  Stunden beginnt, betrifft den Ausfall des Erhitzers W4 zum Zeitpunkt  $t = 0.5$  Stunden nach Auflösungsbeginn usw. und schließlich die unterste Kurve, die bei  $t = 2$  Stunden beginnt, betrifft den Ausfall des Erhitzers W4 zum Zeitpunkt  $t = 2$  Stunden nach Auflösungsbeginn.

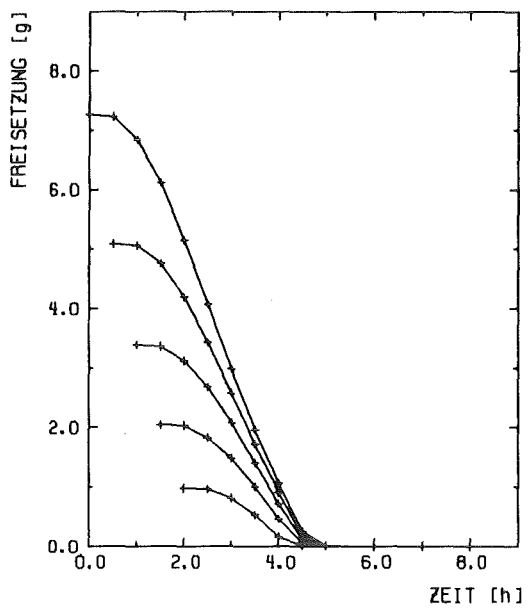
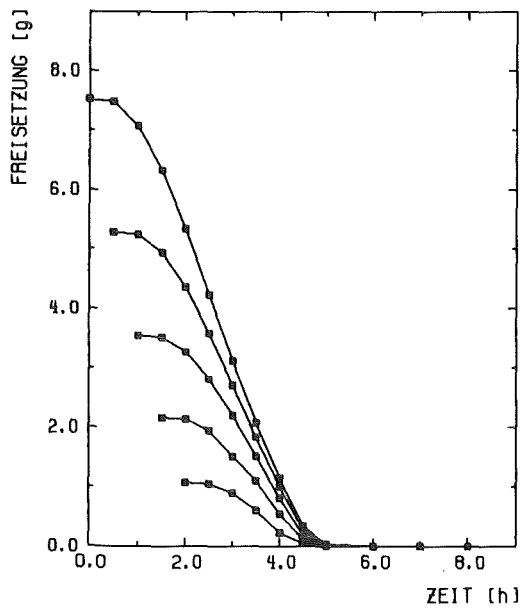
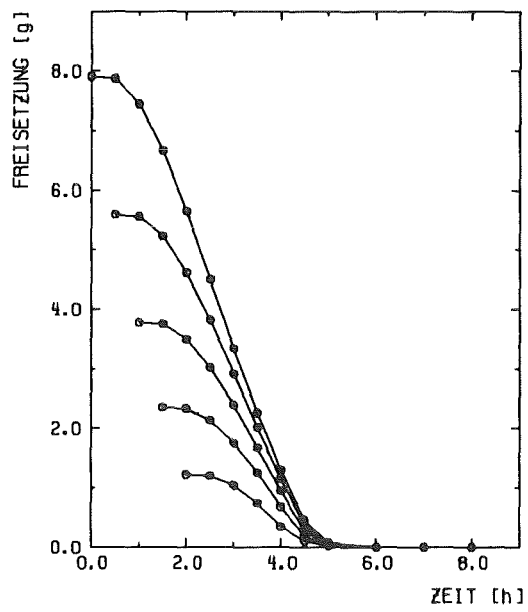
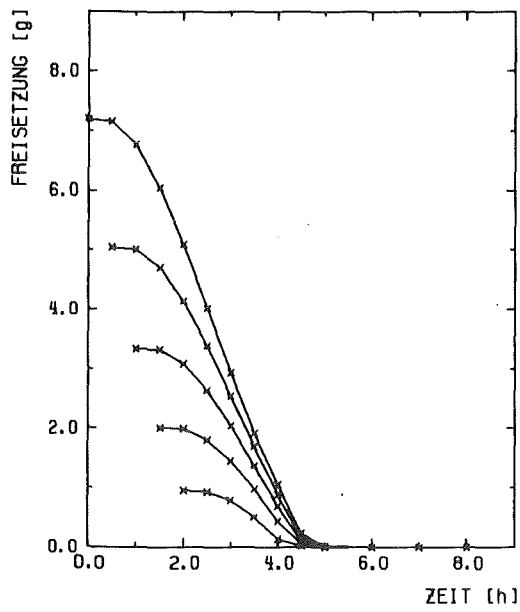
Die berechneten Punkte auf jeder Kurve haben einen Abstand von 0.5 Stunden. Die Punkte bedeuten am Kurvenbeginn den gleichzeitigen Ausfall der beiden Erhitzer W4 und W3. Die nachfolgenden Kurvenpunkte bedeuten den späteren Ausfall des Erhitzers W3 nach dem bereits vorher erfolgten Ausfall des Erhitzers W4.

Voneinander unabhängig wird der Ausfall des Erhitzers W4 und der des Erhitzers W3 in zeitlichen Abständen von 0.5 Stunden untersucht. Durch dieses Zeitraster wird das gestellte deterministische Problem ausreichend beschrieben.

Die Anfangspunkte der Kurvenschar eines Bildes beziehen sich auf den gleichzeitigen Ausfall der beiden Erhitzer W4 und W3. Verbindet man die Anfangspunkte in Abb.10, so erhält man die Kurven der Abb.7, wenn man noch die unterschiedlichen Ordinatenkalen berücksichtigt.

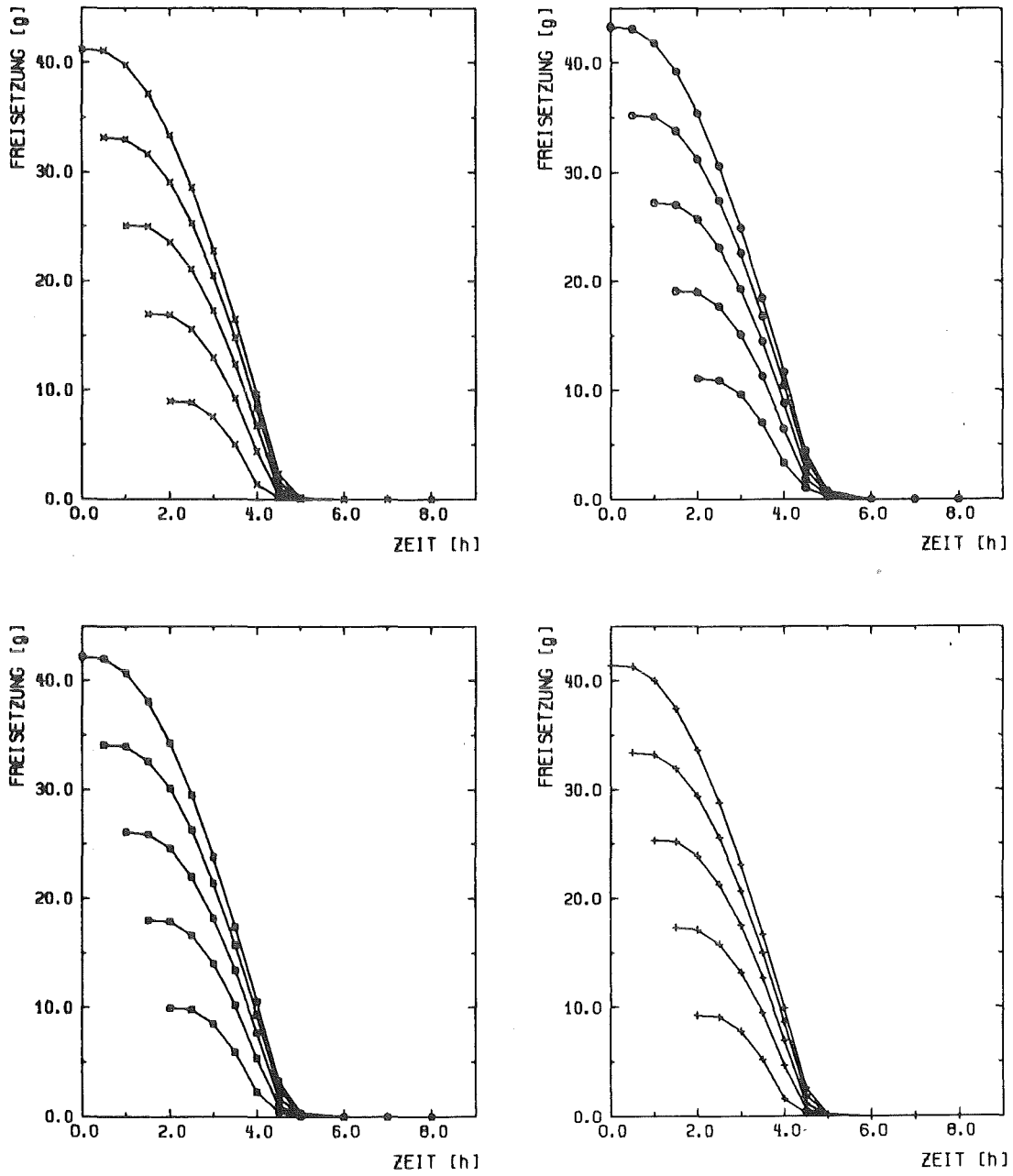
Die innerhalb von 8 Stunden maximal freigesetzte Jodmenge liegt bei dem Störfall Ausfall von W4 sowie gleichzeitigem oder späterem Ausfall von W3 und batchweiser Auflösung bei ca. 7.5 g, und zwar bei gleichzeitigem Ausfall beider Erhitzer W4 und W3 zum Auflösungsbeginn.

Fällt W4 erst 2 Stunden nach Auflösungsbeginn aus und zwar gleichzeitig mit W3, erniedrigt sich die innerhalb von 8 Stunden maximal freigesetzte Jodmenge bei batchweiser Auflösung auf ca. 1 g. Ein gegenüber W4 späterer Ausfall von W3 führt zu noch kleineren Jodfreisetzungen.



KIK  
TDT

Abbildung 9: Freisetzung von Jod im Störfall bei batchweiser Auflösung in Abhängigkeit der Zeit zwischen Auflösungs- und Störfallbeginn. Störfall ist Ausfall beider Erhitzer, aber nicht immer gleichzeitig, Symbole s. Abb. 5.



---

**KIK**  
IDT

Abbildung 10: Wie Abb. 9 für ideale Säurezuosierung.

Hieraus folgt, daß der Störfall gleichzeitiger Ausfall beider Erhitzer wichtig ist für die Abschätzung der Freisetzungen beim Nacheinander-ausfall der Erhitzer W4 und W3, da er für den komplizierteren Fall eine obere Abschätzung der freigesetzten Jodmengen bei sonst gleichen Verhältnissen (Auflösungsverfahren, Approximation der Durchlässigkeit usw.) liefert.

#### V Schlußfolgerungen

1. Die vier untersuchten Approximationen liefern in etwa vergleichbare Ergebnisse. In dem Zusammenhang soll erwähnt werden, daß die Approximation 2 die Log DL-Werte, die Approximation 3 die DL-Werte am besten wiedergibt. Die Approximation 4 ist jeweils die zweitbeste Approximation sowohl bei den Log DL- wie bei den DL-Werten.

Für kompliziertere Modelle als den hier behandelten ist es durchaus gerechtfertigt und ausreichend, die funktional einfache Approximation 4 zu verwenden. Will man jedoch ganz sicher gehen, sollte in diesem Fall z.B. bei den freigesetzten Jodmengen ein Sicherheitszuschlag eingeführt werden.

2. Das Auflösungsverfahren hat im Normalbetrieb auf die freigesetzten Jodmengen praktisch keinen Einfluß (betrachtet wird ein Dauerbetrieb von ca. 710 Stunden). Das gilt sowohl für den Betrieb mit einem Filter als auch mit zwei hintereinandergeschalteten Filtern.

Im Störfall (betrachtet wird der Betrieb während einer Auflösungsperiode von 8 Stunden) sind die Jodfreisetzungen bei idealer Säure-zudosierung z.T. erheblich höher als beim Batchbetrieb (vgl. Abbildung 8). Das gilt sowohl für den gleichzeitigen Ausfall beider Erhitzer als auch für den Ausfall des Erhitzers W4 mit gleichzeitigem oder späterem Ausfall des Erhitzers W3.



Literaturverzeichnis

- /1/ Furrer, J., Jannakos, K., Wilhelm, J.G.:  
Aerosol- und Jodabscheidung in einer Wiederaufarbeitungsanlage;  
Konzept der Auflöser-Abgasstrecke PASSAT  
Seminar on Radioactive Effluents from Nuclear Fuel Reprocessing  
Plants, Karlsruhe, November 22-25, 1977. Proc. Luxembourg:  
Commission of the European Communities 1978. S.519-534.
- /2/ Nagel, K., Furrer, J., Becker, G., Obrowski, W., Seghal, Y.P.,  
Weymann, J.:  
Time-Dependent Analyses of Dissolver Off-gas Cleaning  
Installations in a Reprocessing Plant  
CONF-820833, p. 51 (1982)
- /3/ Nagel, K., Furrer, J.:  
Zeitabhängige Modellierung einer Jodsorptionsfilterstrecke  
KfK-3544 (1983)
- /4/ Wenzelburger, H.:  
Zur stochastischen Modellierung des ersten Störfalls in der  
Abgasreinigungsstrecke einer WAA  
12.Jahrestagung der Deutschen Gesellschaft für Operations  
Research e.V., Mannheim, 21.-23.September 1983
- /5/ Schmidt, E.:  
VDI-Wasserdampf Tafeln  
Springer Verlag, Berlin (1968)
- /6/ Voit, J.:  
FORTRAN-Programme zur Berechnung der Jodfreisetzung einer  
Jodsorptionsfilterstrecke für das Auflöserabgas  
Unveröffentlicht (1984)

Anhang

Die folgende Liste der Variablen und das Programm sind /6/ entnommen.

X Restbett-Tiefe in cm  
Y relative Feuchte in %  
T Zeit in h  
TS Zeitschritt in h  
P Auflösungsperiode (8 h)  
TA Ausfallzeitpunkt der beiden Erhitzer W4 und W3 relativ zum Auflösungsbeginn in h  
TB Ausfallzeitpunkt des Erhitzers W4 relativ zum Auflösungsbeginn in h  
JV Jodstrom vor dem Filter in g/h (Jodquellterm)  
JN Jodstrom nach dem Filter in g/h  
D Joddurchlässigkeit des Filters in %  
TG Abgastemperatur  
PS Sättigungsdruck  
BL Beladung des Filters in g Jod  
KJ kumulierte Jodfreisetzung in g

C JODFREISETZUNG PRO AUFLÖSUNGSPERIODE (8 STD) BEI AUSFALL DES  
 C ERHITZERS W4 UND GLEICHZEITIGEM ODER SPÄTEREM AUSFALL DES  
 C ERHIZERS W3 BEI BATCHWEISER AUFLÖSUNG (VARIABLER JODQUELLTERM)

C  
 C ANNAHME: JODFILTER ZUM AUFLÖSUNGSBEGINN LEER  
 C

```

    INTEGER IR,N,I,L
    DIMENSION XZ(20),YW(20),IBUF(1000)
    REAL      X,Y,BL,D,T,TS,JV,JN,KJ
    REAL      P,H,C,A,F,TA,TAS,TG,PS30,LNPS
    REAL      TGA,Z,TB,NPY,SWY
    CALL PLOTS(IBUF,1000,0)
    CALL PLOT(1.0,1.0,-3)
    L=0
    TS=0.1
    P=8.
    PS30=EXP(-5070./303.15+13.62)
    TAS=0.5
    TB=0.
500  TA=TB
    N=0
50  WRITE(6,6) TB
    WRITE(6,2) TA
    WRITE(6,3)
    N=N+1
    T=0.
    BL=0.
    KJ=0.
    D=0.
    JV=0.
    JN=0.
    Y=25.
10  X=60.*(1.-BL/12100.)
    WRITE(6,1) T,X,BL,KJ,D,JV,JN,Y
    IF(X.LT.2.95) GOTO 99
    T=T+TS
    IF(T.GT.P) GOTO 99
    H=ALOG10(T/1.903)
    JV=(68.85/T)*EXP(-H*H/0.224)
    IF(T.GT.TB) GOTO 20
    TG=130.
    GOTO 30
20  IF(T.GT.TA) GOTO 25
    TG=71.4*EXP(-0.80*(T-TB))+58.6
    GOTO 30
25  TGA=71.4*EXP(-0.80*(TA-TB))+58.6
    Z=ALOG(106./(TGA-24.))/0.51+TB
    TG=106.*EXP(-0.51*(T-TA+Z-TB))+24.
    IF(TG.LT.30.) TG=30.
30  LNPS=-5070./(TG+273.15)+13.62
    Y=(PS30/EXP(LNPS))*100.
    IF(Y.LT.25.) Y=25.
    IF(X.GT.10.) X=10.
C
C APPROXIMATION 1
    CALL LIP(X,Y,F,IR)

```

```

      IF(IR.EQ.1) WRITE(6,7)
C
C   APPROXIMATION 2
C   C=3.6737E-5*Y**2.64-5.
C   A=-C+2.
C   F=A*EXP(-0.04*X*X)+C
C
C   APPROXIMATION 3
C   C=0.09*Y-7.
C   A=-C+2.
C   F=A*EXP(-0.04*X*X)+C
C
C   APPROXIMATION 4
C   F=X*(Y/100.-1.)*(3.751+(Y/100.-1.)*2.185)/ALOG(10.)+2.
C
      D=10.**F
      JN=D*JV/100.
      KJ=KJ+JN*TS
      BL=BL+(JV-JN)*TS
      GOTO 10
99   XZ(N)=TA
      YW(N)=KJ
      TA=TA+TAS
      IF(TA.GT.P) GOTO 999
      GOTO 50
999  WRITE(6,6) TB
      WRITE(6,4)
      WRITE(6,5) (XZ(I),YW(I),I=1,N)
      L=L+1
      XZ(N+1)=0.0
      XZ(N+2)=1.0
      IF(N.LT.17) GOTO 900
      CALL SCALE(YW,8.0,N,1)
      CALL AXIS(0.,0.,11HAUSFALLZEIT,-11,8.0,0.0,XZ(N+1),XZ(N+2))
      CALL AXIS(0.,0.,11HFREISETZUNG,11,8.0,90.0,YW(N+1),YW(N+2))
      NPY=YW(N+1)
      SWY=YW(N+2)
900  YW(N+1)=NPY
      YW(N+2)=SWY
      CALL LINE(XZ,YW,N,1,1,L)
      TB=TB+TAS
      IF(TB.GT.2.0) GOTO 1000
      GOTO 500
1000 CALL PLOT(9.0,0.0,999)
      STOP
1   FORMAT(' ',8G13.6)
2   FORMAT(' AUSFALLZEITPUNKT BEIDER ERHITZER',G9.2)
3   FORMAT(' ',3X,'ZEIT',7X,'RESTTIEFE',4X,'BELADUNG',5X,
*   'FREISETZUNG')
4   FORMAT(' AUSFALLZEIT',3X,'FREISETZUNG')
5   FORMAT(' ',2G13.6)
6   FORMAT(' 1AUSFALLZEITPUNKT W4',G9.2)
7   FORMAT(' OFEHLER IN LIP')
      END

```