

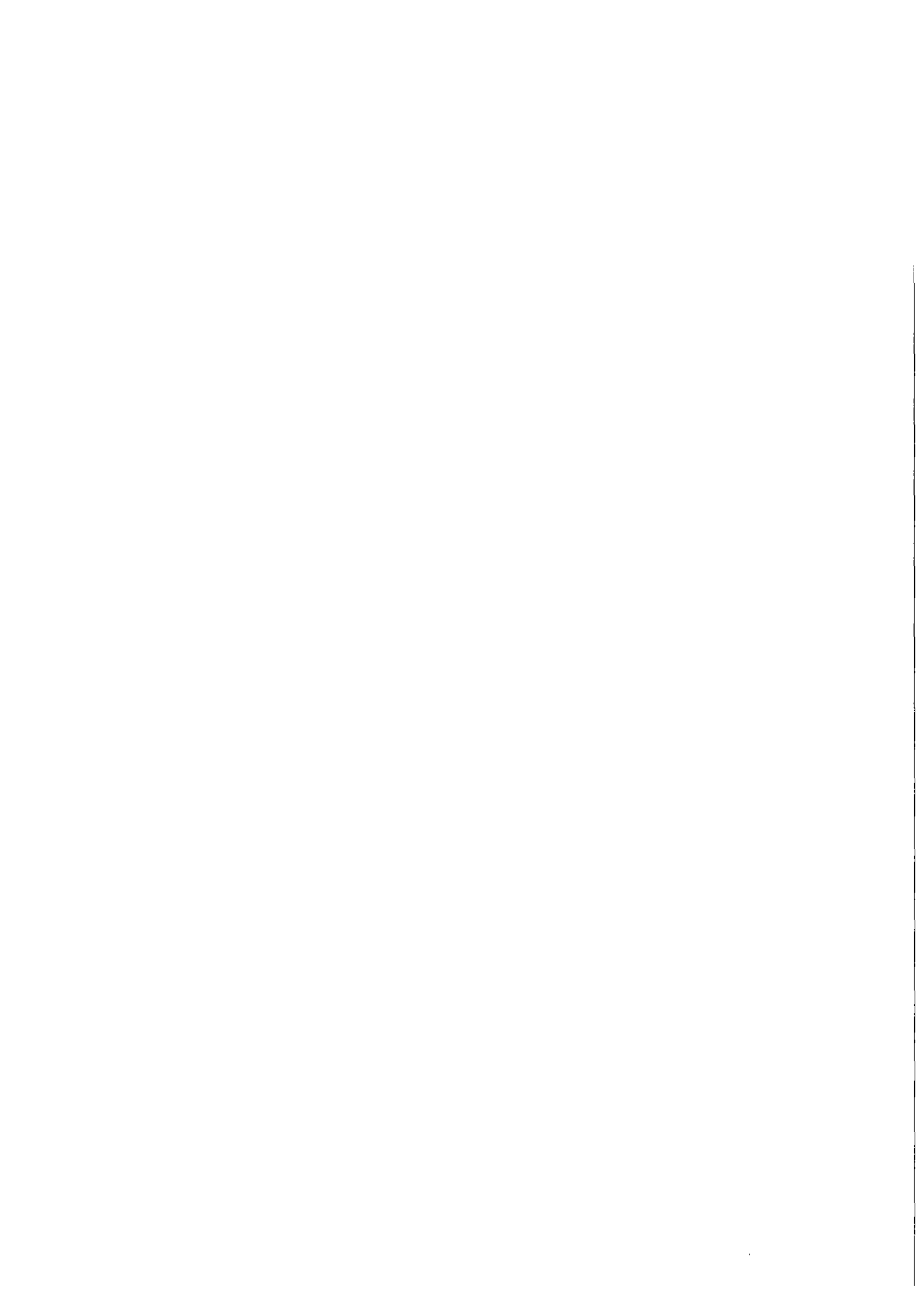
KfK 3194 B

Juli 1981

# **Untersuchung zur Ertüchtigung von Iod-Sorptionsfiltern zur Reinigung der Abluft von Kernkraftwerken**

J. G. Wilhelm, J. Furrer, R. Kaempfer  
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik  
Projekt Nukleare Sicherheit

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik  
Projekt Nukleare Sicherheit

KfK 3194 B

Untersuchung zur Ertüchtigung von Iod-Sorptions-  
filtern zur Reinigung der Abluft von Kernkraftwerken

*J. G. Wilhelm, J. Furrer, R. Kaempffer*

Kernforschungszentrum Karlsruhe, GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Kurzfassung

Ein Verfahren zur Erhöhung der zulässigen Einsatzdauer von Iod-Sorptionsfiltern war zu entwickeln. Nach qualitativer und quantitativer Bestimmung von Filterschadstoffen in der Abluft des Sicherheitsbehälters eines Druckwasserreaktors wurde die Voradsorption der Schadstoffe durch Aktivkohle und die Möglichkeit der Schadstoff-Desorption mit heißer Luft als Spülgas untersucht. Nur die Schadstoff-Voradsorption erwies sich als ein Verfahren, das in Kernkraftwerken mit Erfolg durchgeführt werden kann.

Wegen der Schwierigkeit, kontaminierte Aktivkohle zu lagern bzw. zu beseitigen, ist der Aktivkohleverbrauch zur sicheren Einhaltung eines bestimmten Mindestabscheidegrades von entscheidender Bedeutung. Zur Reduktion des Aktivkohleverbrauches wurde ein besonderer Filtertyp entwickelt und die Abscheideleistung auf der Basis gleichen Kohleverbrauches mit einem herkömmlichen Festbettfilter verglichen. (Versuche mit Modellfiltern)

## Improvement of Radioiodine Filters Installed in Nuclear Power Plants

### Abstract

A method had to be developed allowing to extend the authorized service life of iodine sorption filters. After the qualitative and quantitative assessment of filter pollutants in the exhaust air of a PWR safety containment the investigations concentrated on the adsorption of the pollutants through additional activated carbon, if applicable provided as a guard bed, and on the possibility of pollutant desorption with hot air as the sweeping gas. Only pollutant adsorption proved to be a method to be applied with success in nuclear power stations.

Due to the difficulties arising in the storage or disposal of contaminated activated carbon, the consumption of activated carbon is of decisive importance for the safe adherence to a given minimum removal efficiency. A special filter type was developed with a view to reduce the consumption of activated carbon and the removal efficiency obtained was compared with that of a conventional deep bed filter on the basis of similar carbon consumption (test with model filters).

# Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	S. 1
2. Ziel des Vorhabens	S. 1
3. Arbeitsprogramm	S. 1
4. Problemstellung	S. 2
5. Qualitative und quantitative Messung organischer Filterschadstoffe in der Sicherheitsbehälterabluft eines Druckwasserreaktor-Kernkraftwerkes	S. 2
6. Bestimmung der Filterbeladung in Abhängigkeit von der Einsatzdauer	S. 6
7. Erhöhung der zulässigen Einsatzdauer von Iod-Sorptionsfiltern	S. 8
7.1 Schutzbett	S. 8
7.2 Durchführung von Desorptionszyklen	S. 11
7.3 Gegenstromfilter	S. 12
8. Zusammenfassung	S. 16

## 1. Einleitung

Die Einsatzdauer von Iod-Sorptionsfiltern ist in der Regel durch die Vergiftung mit Filterschadstoffen begrenzt. Diese können an der Aktivkohle adsorbiert werden (wie z. B. Kohlenwasserstoffe und im praktischen Filterbetrieb insbesondere Lösungsmittelkomponenten) oder auch nach erfolgter Adsorption chemisch mit der Aktivkohle oder der Imprägnierung reagieren. Durch Oxidantien wie  $O_2$ ,  $O_3$  und  $NO_2$  können die für Adsorption und Abscheidungsreaktionen bevorzugten aktiven Zentren zerstört werden, so daß sowohl die Adsorptionskapazität reduziert, als auch die Reaktionsgeschwindigkeit der Umsetzung mit Radioiod beeinträchtigt wird.

Die Summe dieser Erscheinungen führt zu einem schnellen Absinken der Abscheideleistung der Iod-Sorptionsfilter, falls keine Gegenmaßnahmen vorgesehen wurden.

## 2. Ziel des Vorhabens

Das Ziel des Vorhabens war die Entwicklung eines Verfahrens zur Erhöhung der zulässigen Einsatzdauer von Iod-Sorptionsfiltern. Damit sollte eine ausreichende Verfügbarkeit dieser wichtigen sicherheitstechnischen Einrichtung erreicht werden.

## 3. Arbeitsprogramm

Das Arbeitsprogramm umfaßte:

- Die qualitative und quantitative Messung organischer Filterschadstoffe in der Abluft von Kernkraftwerken.
- Die Bestimmung der Filterbeladung mit organischen Schadstoffen in Abhängigkeit von der Einsatzdauer.
- Die Bestimmung der Durchbruchzeit der organischen Filterschadstoffe im praktischen Filterbetrieb.
- Die Erhöhung der zulässigen Einsatzdauer von Iod-Sorptionsfiltern durch Voradsorption unter Reduzierung des Verbrauches an Iod-Sorptionsmaterial (Aktivkohle).

#### 4. Problemstellung

Ein wesentliches Problem für die zuverlässige Einhaltung der im Genehmigungsverfahren festgelegten Abscheidegrade von Iod-Sorptionsfiltern ist durch das schnelle Absinken der Abscheideleistung infolge der Schadstoff-Beaufschlagung der imprägnierten Aktivkohle gegeben, die als Iod-Sorptionsmaterial eingesetzt wird. Es war anzunehmen, daß die Konzentration der an der Aktivkohle adsorbierbaren Schadstoffe der Filterzuluft um Größenordnungen über der von Radioiod liegt. Da chemische Verfahren zur Beseitigung der Filterschadstoffe, beispielsweise Oxidation und Abbau zu  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und anderen Stoffen, die das Iod-Sorptionsfilter vergleichsweise gering oder nicht schädigen würden, wegen der großen Luftmengen (Größenordnung: bis zu  $10^5 \text{ m}^3/\text{h}$ ) praktisch nicht durchführbar sind, kommt nur eine Voradsorption der Schadstoffe an Aktivkohle in Frage.

#### 5. Qualitative und quantitative Messung organischer Filterschadstoffe in der Sicherheitsbehälterabluft eines Druckwasserreaktor-Kernkraftwerkes

Es wurde ein gaschromatographisches Untersuchungsprogramm mit kontinuierlicher qualitativer und quantitativer Überwachung der Anlagenraumabluft eines Kernkraftwerkes auf die wichtigsten Filterschadstoffe durchgeführt. Kernstück der Versuchsanordnung war ein Prozeß-Gaschromatograph, mit dem kontinuierlich zehn Kohlenwasserstoffe selektiv im Bereich von  $10$  bis  $10^4$  ppb gemessen werden können.

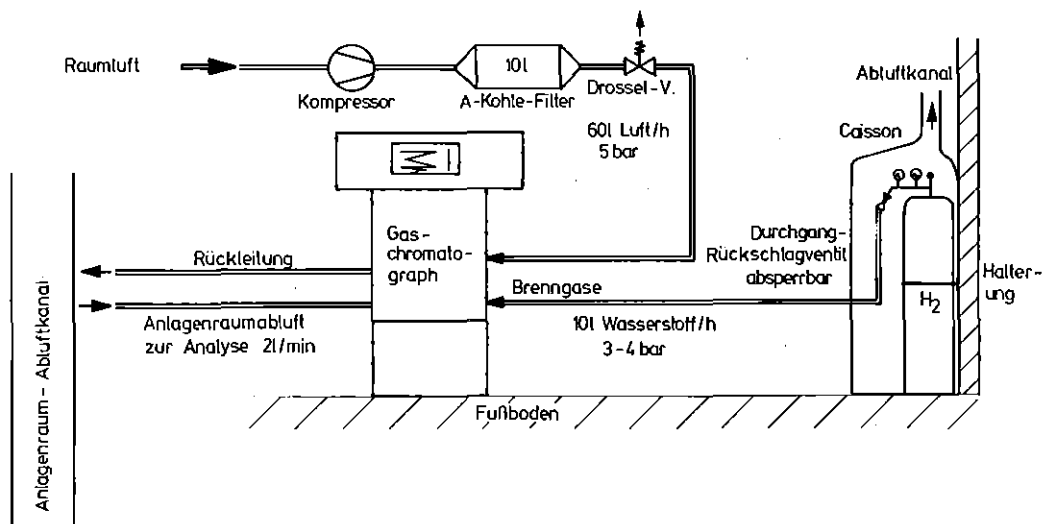


Abb. 1 Geräteanordnung für gaschromatographische Untersuchungen der Anlagenraumabluft in einem KKW.



Der Gesamtablauf einer Analyse dauert 30 Minuten. Während in der Trennsäule das aus der Abluft abgeschiedene Gemisch getrennt wird, beginnt nach dem Ausheizen der Speichersäule und anschließender Konditionierung mit Trägergas bereits erneut die Speicherung der Kohlenwasserstoffe aus der Abluft für den nächsten Analysengang.

Im Überwachungszeitraum wurden beim bestimmungsgemäßen Betrieb des Reaktors folgende minimale bzw. maximale Konzentrationen an organischen Lösungsmitteln festgestellt /1, 2/:

a) In der Woche vor Beginn der Revision:

		Ablesegenauigkeit
Aceton	: 250 - 500 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	( $\pm$ 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
Benzol	: 50 - 90 "	( $\pm$ 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
Butylacetat	: 60 - 280 "	( $\pm$ 6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
Dekan	: 60 - 110 "	( $\pm$ 3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
Ethylbenzol	: 420 - 500 "	( $\pm$ 8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
Methylenchlorid	: 350 - 900 "	( $\pm$ 70 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
Nonan	: 55 - 110 "	( $\pm$ 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
Toluol	: 340 - 570 "	( $\pm$ 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
Gesamt-Xylo1	: 4400 - 5100 "	( $\pm$ 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

Gesamtlösungsmittel : 6 - 8  $\text{mg}/\text{m}^3$

o-Xylo1 und m-, p-Xylo1 werden getrennt erfaßt.

Die starken Schwankungen der Ablesegenauigkeit ergeben sich aus den bei der Eichung gewählten Meßbereichen. Da bei Aceton, Methylenchlorid und Benzol kurzzeitig wesentlich höhere Konzentrationen festgestellt wurden, mußte eine niedrige Nachweisempfindlichkeit eingestellt werden.

b) Während der Revision:

In den ersten Tagen der Revision wurden folgende Eichgrenzwerte überschritten:

		Ablesegenauigkeit
Aceton	: 6,0 mg/m <sup>3</sup>	(± 60 µg/m <sup>3</sup> )
Benzol	: 3,5 "	(± 35 µg/m <sup>3</sup> )
Buthylacetat	: 1,1 "	(± 11 µg/m <sup>3</sup> )
Dekan	: 0,3 "	(± 3 µg/m <sup>3</sup> )
Ethylbenzol	: 0,8 "	(± 8 µg/m <sup>3</sup> )
Nonan	: 0,3 "	(± 3 µg/m <sup>3</sup> )

Die Konzentrationen an organischen Lösungsmitteln stiegen, wie die Werte zeigen, in der Interventionsphase extrem stark an (Benzol z. B. auf mehr als den 38fachen Wert; Aceton auf mehr als den 11fachen Wert).

Anschließend wurden nach erneuter Festlegung verschiedener Eichgrenzwerte zeitweise folgende Höchstwerte gemessen (die Maxima wurden nicht bei jeder Verbindung zum gleichen Zeitpunkt erreicht):

Aceton	: 6,0 mg/m <sup>3</sup>
Benzol	: 3,3 "
Butylacetat	: 0,38 "
Dekan	: 0,53 "
Ethylbenzol	: 0,73 "
Methylenchlorid	: 14,0 "
Nonan	: 2,5 "
Toluol	: 1,5 "
Xylol	: 7,4 "
Gesamtlösungsmittel	: 34 mg/m <sup>3</sup>

c) Nach Beendigung der Revision:

Für eine mehrmonatige Zeitdauer war ein erhöhter Anteil an Lösungsmitteln, verglichen mit der Meßperiode vor der Revision, festzustellen. Zeitweise traten Extremwerte (>10 mg/m<sup>3</sup>) auf, die aber für die einzelnen Verbindungen nicht auf die gleiche Zeitspanne fielen. Folgende Extremwerte wurden gemessen:

Aceton	:	15 mg/m <sup>3</sup>
Benzol	:	10 "
Methylenchlorid	:	25 "
Nonan	:	10 "
Xylol	:	10 "

Als Maximalwert für die Gesamt-Lösungsmittelkonzentration ergab sich ein Wert von 63 mg/m<sup>3</sup>. Erst nach 2 - 3 Monaten sank die Lösungsmittelkonzentration wieder annähernd auf die Werte vor der Revision ab.

#### Schlußfolgerungen:

- Die Konzentrationen organischer Verbindungen, die in der Abluft von Kernkraftwerken (hier des Sicherheitsbehälters) auftreten, können hohe Werte erreichen.
- Es liegen Vielstoffgemische wechselnder Zusammensetzung und Konzentration vor. Vorwiegend treten Komponenten auf, die in Lösungs- und Reinigungsmitteln verwendet werden.
- Die Menge an organischen Verbindungen in der Abluft steigt während und nach der Revision stark an (konventionelle Reinigung, Dekontamination, Prüfverfahren unter Verwendung organischer flüchtiger Stoffe, Klebe- und Anstricharbeiten usw.).
- Die Auswirkung auf die Iod-Sorptionsfilter sollte durch Überprüfung der Aktivkohle (Laborprüfung von Kohleproben) ca. 2 - 3 Monate nach der Revision kontrolliert werden, um die Summe der Einwirkungen ausreichend zu erfassen und der kommenden längeren Betriebsperiode (mit geringerer Schadstoffbeaufschlagung) gesicherte Abscheidegrade zugrunde legen zu können.

## 6. Bestimmung der Filterbelastung in Abhängigkeit von der Einsatzdauer

Durch gaschromatographische Analysen der  $\text{CCl}_4$  Extrakte von Aktivkohlefiltern, die mit der Abluft des Sicherheitsbehälters eines DWR-KKW beaufschlagt werden, wurde die Schadstoffbelastung in Abhängigkeit von Beaufschlagungsdauer und Bett-Tiefe des Filterbettes festgestellt /1, 2, 3/. Die Ergebnisse von Messungen nach 2, 4 und 14 Monaten Betriebszeit sind in der Abb. 2 wiedergegeben.

Nach 2 Monaten waren Lösungsmittel mit höherer Flüchtigkeit (wie Xylol und Toluol) bis zu ca. 20 cm in die Aktivkohleschicht eingedrungen. Verbindungen mit niedrigerer Flüchtigkeit wurden nur in den ersten 10 cm der Aktivkohleschicht gefunden. Nach 4 Monaten waren die leichter flüchtigen Komponenten durch die 50 cm tiefe Aktivkohleschicht durchgebrochen, während die schwerer flüchtigen Komponenten bis ungefähr 20 cm tief eingedrungen waren. Nach 14 Monaten zeigte die Gesamtbelastung mit organischen Verbindungen höherer Flüchtigkeit einen Anstieg mit größerer Bett-Tiefe, die schwerer flüchtigen Verbindungen drangen bis zu 25 cm tief ein mit hoher örtlicher Belastung in den Abschnitten von 5 - 10 und 10 bis 15 cm.

Durch die Adsorption der schwerer flüchtigen Verbindungen wurden die leichter flüchtigen sukzessive verdrängt. Der Gesamtgehalt an organischen Verbindungen in den ersten wenigen Zentimetern des Aktivkohlebettes fiel mit steigender Betriebsdauer ab, wahrscheinlich infolge zusätzlicher Schädigung der Aktivkohle durch Oxidation und anderer chemischen Reaktionen, die zu einer Reduktion der Adsorptionskapazität führten. Beispielsweise betrug die Belastung des Abschnittes von 0 - 5 cm 7 Gewichtsprozent nach 2 Monaten, aber nur 1 Gewichtsprozent nach 14 Monaten Betriebsdauer (lineare Luftgeschwindigkeit: 50 cm/s).

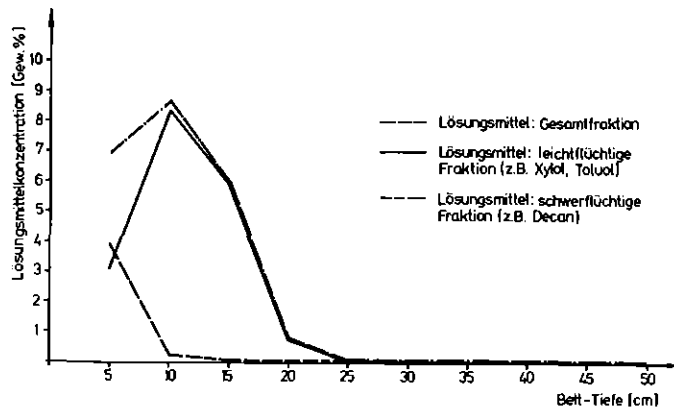
### Schlußfolgerungen:

- Die leichter flüchtigen organischen Verbindungen durchdringen auch tiefe Aktivkohlebetten innerhalb weniger Monate Betriebsdauer. Dies führt langfristig zu einer Belastung, die grundsätzlich von der Lage des Adsorptions-Desorptionsgleichgewichtes entsprechend der Konzentration dieser Stoffe in der Filterzuluft abhängig ist. Schwankungen der Konzentration in der Filterzuluft führen zu ungleichmäßiger Belastung über die Tiefe des Aktivkohlebettes.

### Konzentration der Lösungsmittel in der Iodadsorptionskohle

(Kohle: SA 1565/ Imprägn. 1% KI; 1,5-3mm)

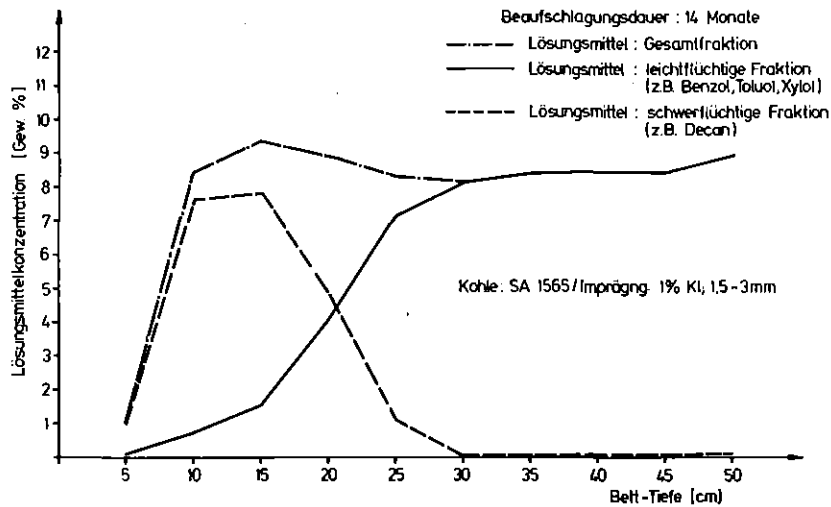
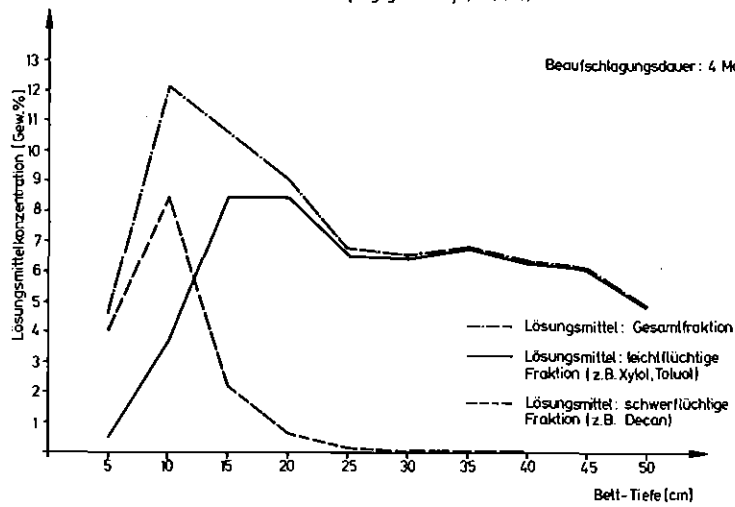
Beaufschlagungsdauer : 2 Monate



### Konzentration der Lösungsmittel in der Iodadsorptionskohle

(Kohle: SA 1565/ Imprägn. 1% KI; 1,5-3mm)

Beaufschlagungsdauer : 4 Monate



Konzentration der Lösungsmittel in der Iodadsorptionskohle

Abb. 2 Lösungsmittelkonzentration in Abhängigkeit von der Bettiefe

- Die Retentionszeit für das Gemisch der in der Filterzuluft vorkommenden leichter flüchtigen organischen Stoffe ist so kurz, daß eine Vordesorption durch ein vorgeschaltetes Aktivkohlebett mit praktikablen Abmessungen nicht möglich ist. Der Verlust an Abscheideleistung durch diese Stoffe kann daher nur durch Vergrößerung der Bett-Tiefe des Iod-Sorptionsfilters selbst erfolgen, so daß trotz reduzierter Abscheideleistung infolge der Vorbeladung der Aktivkohle noch ein ausreichender Abscheidegrad erreicht wird.
- Die organischen Verbindungen mit niedrigerer Flüchtigkeit können durch ein vorgeschaltetes Aktivkohlebett (Schutzbett) für einen sinnvollen Zeitraum, bezogen auf die angestrebte Einsatzdauer eines kerntechnischen Iod-Sorptionsfilters, zurückgehalten werden. Dieses Bett schützt auch vor einem schnellen Verlust der Adsorptionskapazität infolge chemischer Reaktionen der Aktivkohle.

## 7. Erhöhung der zulässigen Einsatzdauer von Iod-Sorptionsfiltern

### 7.1 Schutzbett

Aufgrund der Ergebnisse, die unter 5. wiedergegeben sind, wurden zwei hintereinander geschaltete Aktivkohlefilter hergestellt und mit der Abluft des Sicherheitsbehälters eines DWR-KKW beaufschlagt. Jeder Filter war 25 cm tief und in Einzelabschnitte von 5 cm unterteilt /3, 4/. Nach Beendigung der Versuche wurden die Aktivkohlefilter zerlegt und abschnittsweise ausgemessen, so daß für Bett-Tiefen von 5, 10, 15, 20 und 25 cm Einzelabscheidegrade angegeben werden können.

In Tab. I sind die Einzelabscheidegrade in Abhängigkeit von der Betttiefe und Beaufschlagungsdauer wiedergegeben. Die Werte bestätigen im Prinzip die Schlußfolgerungen aus 5. Das durch ein erstes, 25 cm tiefes Aktivkohlebett geschützte Filter zeigt vergleichsweise hohe Abscheidegrade, die

während der gesamten Beaufschlagungsdauer 99 % nicht unterschreiten und zwischenzeitlich, wahrscheinlich infolge geringerer Konzentration an Filterschadstoffen und entsprechender Verschiebung der Gleichgewichtslage, wieder ansteigen (z. B. 99,1 % nach 10 Monaten, 99,97 % nach 12 Monaten Beaufschlagungsdauer). Das erste Aktivkohlefilter sinkt, bezogen auf 5 cm Bettiefe, von 93,7 % auf 5,5 % nach 14 Monaten Beaufschlagungsdauer ab. Der niedrigste Gesamt-Abscheidegrad aus Filter No. I und II sinkt zu keinem Zeitpunkt innerhalb der 14 Monate Betriebsdauer unter 99,9 %.

Für das Schutzbett könnte zur Radioiodabscheidung imprägnierte und nicht imprägnierte Aktivkohle eingesetzt werden. Versuche zeigten eine vergleichbare Rückhaltung schwerer flüchtiger organischer Verbindungen. Da der Strömungswiderstand der Filter in der Lüftungstechnik eine wesentliche Rolle spielt und unter anderem von der Bettiefe abhängig ist, auf der anderen Seite aber bei Einsatz einer nicht imprägnierten Aktivkohle die Abscheideleistung des Schutzbettes gegenüber Radioiod nicht gesichert ist und damit nicht einbezogen werden kann, sollte das Schutzbett auch aus imprägnierter Aktivkohle bestehen /3/.

#### Schlußfolgerungen

- Die Wirkung eines vorgeschalteten Schutzbettes wird durch die Messung der Abscheideleistung zweier hintereinander geschalteter Aktivkohlefilter bestätigt.
- Zur Erreichung eines möglichst hohen Abscheidegrades bei möglichst geringem Strömungswiderstand sollte auch das Schutzbett aus imprägnierter Aktivkohle bestehen.
- Die Verteilung der Schadstoffe auf das erste und zweite Filterbett (siehe 5.) und die in Tab. I angegebenen Abscheidegrade legen den Einsatz eines Gegenstromfilters nahe. Aussichtsreich erscheint auch eine regelmäßig durchzuführende Desorption leichtflüchtiger Filterschadstoffe.

Tab. I Abscheidegrade zweier aufeinander folgender Aktivkohlefilter als Funktion der Bett-Tiefe und Beaufschlagungsdauer

Aktivkohletyp: SA 1565, KI-Imprägnierung, 8 - 14 mesh  
 Filterzuluft: Abluft des Sicherheitsbehälters eines Druckwasserreaktors,  $v_{lin}$  50 cm/s  
 Prüfbedingungen: Feuchtluft, 40 °C, 75 % r. F.,  $v_{lin}$  50 cm/s während 1 h Konditionierung, 1 h Beladung mit Prüfmittel und 1,5 h Nachspülerdauerzeit  
 Prüfmittel:  $CH_3^{131}I + CH_3^{127}I$

Filter-No.	Beaufschlagungsdauer (Mo.)	Abscheidegrade in %				
		Bettiefe in cm				
		5	10	15	20	25
I	0	93,7	99,6	99, 97	99,996	99,999
II	0	"	"	"	"	"
I	2	46,3 +)	86,3 +)	96,2 +)	99,3 +)	99,91 +)
II	2 ++)	88,3	98,6	99,90	99,98	99,998
I	4	23,3 +)	60,8 +)	86,0 +)	95,6 +)	98,7 +)
II	4 ++)	72,6	93,8	98,5	99,7	99,92
I	6	16,6 +)	51,5 +)	81,1 +)	95,3 +)	99,1 +)
II	6 ++)	73,2	93,2	98,6	99,7	99,96
I	8	14,5	46,8 +)	71,8 +)	89,1 +)	95,4 +)
II	8 ++)	66,7	90,0	97,2	99,2	99,8
I	10	10,0	39,1	64,0	84,9	94,3
II	10 ++)	61,8	85,0	94,0	97,6	99,1
I	12	7,8	34,3	59,9	83,1	94,6
II	12 ++)	76,1	95,2	99,1	99,8	99,97
I	14	5,5	28,0	53,0	73,6	90,0
II	14 ++)	72,1	92,6	98,1	99,5	99,90

+) Mittelwert

++) geschützt durch erstes, 25 cm tiefes Aktivkohlefilter aus gleicher Aktivkohle



## 7.2 Durchführung von Desorptionszyklen

Tab. II Regeneration von Schadstoff-beladenen Aktivkohlefiltern durch Desorption mit erhitzter Luft.

Aktivkohletyp: SA 1565, KI-Imprägnierung, 8 - 14 mesh  
 Filterzuluft: Abluft des Sicherheitsbehälters eines DWR,  $v_{lin}$  50 cm/s.  
 Testfilter: Zwei aufeinander folgende Filter, Bettiefe je Filter 25 cm.  
 Desorptionszyklus : Trockene Luft von 90°C mit  $v_{lin}$  von 50 cm/s für 5 h durchgeleitet  
 Prüfbedingungen: Feuchtluft, 40°C, 75 oder 98-100 % r.F. während 1 h Konditionierung, 1 h Beladung mit Prüfmittel und 1,5 - 2,0 h Nachspüldauer  
 Prüfmittel :  $CH_3^{131}I + CH_3^{127}I$

Filter		Prüfbedingungen	Abscheidegrad in % +)				
No.	Zustand		Bett-Tiefe in cm				
			5	10	15	20	25
I	frische A-Kohle	40 °C, 75 % r. F.	93,7	99,6	99,97	99,996	99,999
II	"	" "	"	"	"	"	"
I	nicht desorbiert	" "	14,3	36,3	53,9	70,3	82,8
I	desorbiert	" "	19,0	47,1	69,2	83,1	91,6
II	nicht desorbiert	" "	38,4	61,4	76,4	85,6	91,8
II	desorbiert	" "	54,7	81,8	94,2	97,9	99,2
I	nicht desorbiert	30 °C, 98 - 100 % r. F.	10,4	21,5	32,1	44,2	50,7
I	desorbiert	" "	15,5	31,6	46,0	60,4	69,7
II	nicht desorbiert	" "	23,5	40,7	52,2	61,6	68,9
II	desorbiert	" "	39,0	63,3	77,5	86,3	91,4

+ ) Mittelwert aus 2 Messungen

In Tab. II sind die Ergebnisse von Regenerationsversuchen an Schadstoff-beaufschlagten Iod-Sorptionsfiltern wiedergegeben.

Diese und weitere, hier nicht aufgeführte Versuche zeigen, daß die Durchführung einer Vor-Ort-Regeneration durch Spülung mit heißer Luft nicht zu befriedigenden Ergebnissen führt, da sich das sehr komplexe Schadstoffgemisch im Gegensatz zu den Laborversuchen mit einzelnen Verbindungen nicht mit genügender Sicherheit desorbieren läßt /3/. Eine (wirksamere) Regeneration mit Dampf kann aufgrund der Verhältnisse in den Lüftungsanlagen von Kernkraftwerken nicht durchgeführt werden und wurde daher nicht im Einzelnen untersucht.

### 7.3 Gegenstromfilter

Die üblichen Gegenstromfilter erlauben die Einhaltung einer ausreichend einheitlichen Filterbettiefe und gleichmäßiger Strömungsverteilung wegen der Bildung von Schütt- und Abzugskegeln des Sorptionsmaterials nicht. Auch die hohen Anforderungen an Leckdichtigkeit und Prüfbarkeit erforderten die Entwicklung eines neuen Filterprinzips. Dem Konzept wurde ein aus Schutzfilter (Filter No. I) und nachgeschaltetem Iod-Sorptionsfilter (Filter No. II) bestehender Aufbau zugrunde gelegt, bei dem die Aktivkohle nach dem Einsatz in Filter No. II, bei dem sie nur mit vernachlässigbaren Iodmengen und außerdem leichter flüchtigen Schadstoffen beladen wird, in das Filter No. I zur Schadstoff-Vorabscheidung überführt werden kann. Um ein Umfüllen der kontaminierten Aktivkohle zu vermeiden, wurde ein Filtergehäuse entwickelt /5/, in dem sich die Aktivkohle in einer schachtartigen Filterkammer befindet, durch die der zu reinigende Abluftstrom durch Umlenkung mehrfach durchgeleitet werden kann (MWS-Filter, Abb. 3).

Die im unteren Teil der Filterkammer befindliche Aktivkohle dient zur Schadstoff-Voradsorption. Der obere Teil der Filterkammer stellt das eigentliche Iod-Sorptionsfilter dar. Nach einer bestimmten Betriebszeit, in der die Abscheideleistung der Aktivkohle im oberen Filterkammerteil auf einen unteren Grenzwert abgefallen ist, wird die Kohle aus dem oberen in den unteren Kammerteil abgezogen und dient dort zur Schadstoff-Voradsorption.

Das beschriebene Verfahren setzt einen planparallelen Abzug der Kohle und eine geeignete Strömungsverteilung im Filter voraus. Dieses wurde durch geeignete Ausbildung der Filterkammern erreicht.

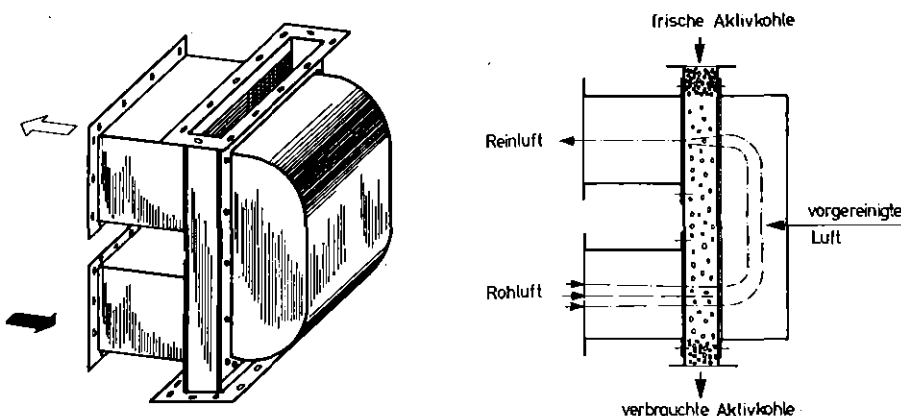


Abb. 3

Mehrweg-Sorptionsfilter (MWS-Filter)

Beim MWS-Filter ist keine Beeinflussung der Filterbettiefe durch Schütt- und Abzugkegel möglich, eine vollständige Ausnutzung von Sorptionsmaterialien bei Aufrechterhaltung einer vorgegebenen Abscheideleistung kann erreicht werden, mechanische Leckagen werden mit hoher Sicherheit ausgeschlossen und es sind Auslegungen möglich, bei denen nur relativ geringer Druckabfall über die Filterschicht auftritt.

Es wurde ein Arbeitsprogramm aufgestellt, mit dem die Abscheideleistung eines Mehrweg-Sorptionsfilters mit der eines Festbettfilters gleicher Bettiefe verglichen werden sollte. Modellfilter beider Anordnungen wurden über einen Zeitraum von 12 Monaten mit der Abluft des Sicherheitsbehälters eines Druckwasserreaktors gleichzeitig beaufschlagt, die Abscheideleistung wurde nach 6 und 12 Monaten Beaufschlagungsdauer untersucht. Der Aktivkohlewechsel erfolgte mit jeweils der Hälfte der Gesamtmenge beim MWS-Modellfilter nach 3, 6, 9 und 12 Monaten, die gesamte Aktivkohle des Festbettfilters wurde nach 6 und 12 Monaten ausgetauscht. Die Abscheidegrade wurden jeweils unmittelbar vor dem Wechsel der Aktivkohle bestimmt. Nach 6 Monaten Beaufschlagungsdauer wurden an den MWS-

Modellfiltern Abscheidegrade von 99,01 bzw. 99,32 % und an den Festbettfiltern von 98,84 bzw. 99,10 % gemessen. Nach der Gesamt-Beaufschlagungsdauer von 12 Monaten zeigte das MWS-Modellfilter einen Abscheidegrad von 99,998 % und lag damit um rund eine Größenordnung im Dekontaminationsfaktor höher, als das Modell-Festbettfilter mit 99,97 % (weitere Daten siehe Tab. III).

Als außerordentlich nachteilig erwies sich, daß infolge der stark schwankenden Lösungsmittelkonzentrationen kein optimaler Wechselzyklus für die in den Filtern eingesetzte Aktivkohle eingehalten werden konnte. Um im Versuchszeitraum von einem Jahr zu vergleichbaren Daten zu kommen, mußte die Aktivkohle in den angegebenen, vorherbestimmten Abständen unabhängig vom Zustand in den Filtern gewechselt werden.

Ein optimaler Wechsel der Aktivkohle wird erst durch fortlaufende Kontrolle des Abscheidegrades der Aktivkohlefüllungen während des Einsatzes möglich. Eine entsprechende Meßmethode, bei der das in der Abluft des Reaktors vorhandene Radioiod zur Prüfung verwendet wird, wurde unabhängig von den hier dargestellten Arbeiten entwickelt /6, 7/.

### Schlußfolgerungen

- Ein nach einem neuen Prinzip arbeitendes kerntechnisches Iodsorptionsfilter, dessen Konzept die Erkenntnisse der geschilderten Arbeiten berücksichtigt, wurde entwickelt.
- Der Vergleich zwischen Mehrweg-Sorptionsfilter und Festbettfilter konnte wegen der bestehenden Randbedingungen (zu kurze Vergleichsdauer, Wechsel der Aktivkohle nach vorgegebener Standzeit unabhängig vom Zustand) weder in befriedigendem Umfang noch unter optimaler Ausnutzung der Aktivkohlefüllungen durchgeführt werden.
- Ein optimaler Einsatz von Iod-Sorptionsfiltern setzt eine fortlaufende Kontrolle des aktuell erreichbaren Abscheidegrades voraus. Ein geeignetes Verfahren dazu wurde, unabhängig von den hier dargestellten Arbeiten, entwickelt.

Tab. III: Abscheidegrade von MWS- und Festbett-Modellfiltern nach 0, 6 und 12 Monaten Beaufschlagungsdauer

Aktivkohletyp : SA 1565, KI-Imprägnierung, 8 - 14 mesh

Filterzuluft : Abluft des Sicherheitsbehälters eines Druckwasserreaktors  $v_{lin} = 50 \text{ cm/s}$

Prüfbedingungen: Feuchtluft,  $30^\circ\text{C}$ , 40 % r.F.,  $v_{lin} 50 \text{ cm/s}$ , 0,5 h Konditionierung, 1 h Beladung mit Prüfmittel und 1,5 h Nachspülen

Prüfmittel :  $\text{CH}_3^{131}\text{I} + \text{CH}_3^{127}\text{I}$

Filterart	Teil-filter	Beaufschlagungs-dauer	Abscheidegrade in %			
			Bettiefe in cm			
			5	10	15	30
MWS so- wie Fest- bett	I	0 Monate	99,3	99,998	99,99994	-
	II		"	"	"	-
	I+II		-	-	-	+) )
MWS	I	6 Monate Intervention zwischen 4. und 6. Monat	34,7	71,4	87,2	-
	II		59,0	82,6	92,3	-
	I+II		-	-	-	99,01
MWS (Parallel- filter)	I		35,9	77,0	90,9	-
	II		60,4	83,2	92,5	-
	I+II		-	-	-	99,32
Festbett	I	6 Monate Intervention zwischen 4. und 6. Monat	19,7	60,7	83,3	-
	II		63,1	85,7	94,6	-
	I+II		-	-	-	99,10
Festbett (Parallel- filter)	I		20,2	59,7	82,9	-
	II		58,2	83,0	93,2	-
	I+II		-	-	-	98,84
MWS	I	12 Monate	37,5	85,9	97,7	-
	II		89,4	99,2	99,9	-
	I+II		-	-	-	99,9977
MWS (Parallel- filter)	I		38,5	86,5	97,9	-
	II		88,9	99,0	99,9	-
	I+II		-	-	-	99,9979
Festbett	I	12 Monate	13,8	52,3	84,5	-
	II		85,4	98,1	99,8	-
	I+II		-	-	-	99,969
Festbett (Parallel- filter)	I		13,0	52,5	89,0	-
	II		84,3	97,9	99,7	-
	I+II		-	-	-	99,967

+) Nachweisgrenze von  $\eta = 99,99999 \%$  überschritten

### Schlußbemerkung

Da inzwischen Kernkraftwerke mit großen MWS-Filteranlagen ausgerüstet werden, könnte durch Parallelbetrieb eines Festbettfilters alten Types und eines MWS-Filters unter Verwendung des neuen Prüfverfahrens die durch Einführung des MWS-Filtertypes erhöhte Einsatzdauer in praxi nachgewiesen werden. Bisher wurde ein Paralleleinbau beider Filtertypen aus übergeordneten Gesichtspunkten leider nicht durchgeführt.

### 8. Zusammenfassung

Die Konzentration organischer Verbindungen in der Sicherheitsbehälter-Abluft eines Druckwasserreaktor-Kernkraftwerkes erreichte während und nach der Revision hohe Werte. Vorwiegend traten in den untersuchten Vielstoffgemischen Komponenten auf, die in Lösungs- und Reinigungsmitteln verwendet werden. Die leichter flüchtigen organischen Verbindungen durchdringen tiefe Aktivkohlebetten innerhalb weniger Monate Betriebsdauer. Organische Verbindungen mit niedrigerer Flüchtigkeit können für einen sinnvollen Zeitraum in Bezug auf die angestrebte Beladungsdauer eines Iod-Sorptionsfilters zurückgehalten werden. Der Einsatz eines Schutzbettes erhöht die Filterstandzeit erheblich. Mit dem Modell eines "Gegenstromfilters" spezieller Konstruktion (MWS-Filter) wurde nach einem Jahr Betriebszeit ein um eine Größenordnung höherer Abscheidegrad bei gleichem Aktivkohleverbrauch wie bei einem Festbettfilter erreicht.

Literaturhinweise

- /1/ KFK 2700 (1978), S. 4400 - 24
- /2/ KFK 2750 (1978), S. 4400 - 20
- /3/ J. G. Wilhelm, H. Deuber, J. Furrer, K. Gerlach  
Behaviour of Gasketless Deep Bed Charcoal Filters for Radioiodine  
Removal in LWR Power Plants,  
16<sup>th</sup> DOE Air Cleaning Conference, Oct. 1980, San Diego, USA
- /4/ R. Kaempffer, J. Furrer, J. G. Wilhelm  
Betriebsverhalten und Auslegung von Aktivkohlefiltern zur Radio-  
iodabscheidung, JSSN 0173 - 0924, S. 876 (1980)
- /5/ KFK 2500 (1977) S. 129
- /6/ J. G. Wilhelm  
Developments in Nuclear Air Cleaning in Germany,  
CONF - 780819, S. 963 (1979)
- /7/ H. Deuber, J. G. Wilhelm  
Determination of the Physico-Chemical <sup>131</sup>I Species in the Exhausts  
and Stack Effluent of PWR Power Plants, CONF-780819, S 446 (1979)