

COMMISSION OF
THE EUROPEAN COMMUNITIES

Seminar on
IODINE FILTER TESTING

Séminaire sur
L'ESSAI DES FILTRES A IODE

Seminar über
JODFILTER UND IHRE PRÜFUNG

Volume I

Karlsruhe (W. Germany), 4-6 December 1973

PROCEEDINGS – ACTES – TAGUNGSBERICHTE

Seminar on
IODINE FILTER TESTING

Séminaire sur
L'ESSAI DES FILTRES A IODE

Seminar über
JODFILTER UND IHRE PRÜFUNG

*Seminar organized by the
Directorate-General Social Affairs
Directorate Health Protection
Karlsruhe (W. Germany), 4-6 December 1973*

Volume I

**Volume II presenting an analysis of
the discussions and conclusions of
the Seminar will be published in
Summer 1974**

LEGAL NOTICE

The Commission of the European Communities and its departments are not responsible for any use which may be made of the following information.

FOREWORD

Chaper III of the Euratom Treaty entrusts the Commission of the European Communities with the task of health protection of persons exposed to radiation in the course of their work and of the population in general; the Commission understands this to mean that, in addition to working out standards for radiological protection and control of radioactivity in the environment, it should tackle the mainly technical problems arising from the application of health physics in this area.

Since in all considerations of safety in nuclear engineering iodine is a critical element from the point of view of health protection, techniques of retention of this fission product require particular attention, especially as there have been considerable development and varied experience in this field in recent years.

The aim of the seminar in Karlsruhe was to bring together specialists in filtering techniques and representatives of nuclear plant operators, licensing authorities and supervisory bodies for an exchange of views and experience to assess the state of the art and discuss, in particular, methods and criteria to give operators and authorities some idea of the quality and efficiency of iodine retention systems. At the seminar, special attention was therefore paid to in situ measurements on iodine filters and their correlation with laboratory tests and also to practical experience of the operational behaviour of these filters. Thirty-one

II

papers were discussed during the three-day meeting which was found most valuable by the 100 or so persons attending. At the end of the seminar it was proposed to start a comparison programme of methods used for measuring the retention efficiency of sorbent materials in the various specialized laboratories; many participants, moreover, were in favour of organizing another conference on the subject of iodine filters in a few years' time in order to allow another exchange of views on design development and experience; this proposal was adopted by the participants.

This volume contains the papers discussed in Karlsruhe and will be followed by a summary of the discussions later this year. The Commission hopes that these will provide information and help to harmonize and co-ordinate ideas and methods in this important and highly complex field of nuclear engineering and health protection.

Dr. P. RECHT

P R E F A C E

Les activités que la Commission des Communautés Européennes exerce en fonction du chapitre III du Traité Euratom en matière de protection sanitaire des personnes professionnellement exposées aux rayonnements et de la population consistent non seulement à élaborer des normes de radioprotection et à surveiller la radioactivité dans l'environnement, mais aussi à étudier certains problèmes techniques liés à la pratique de la surveillance dans les installations nucléaires. Cette préoccupation a conduit la Direction de la Protection Sanitaire à examiner plus particulièrement les problèmes que pose la rétention de l'iode radioactif susceptible d'être libéré dans le milieu, problèmes qui sont considérés comme délicats et complexes. L'iode, radio-élément critique au point de vue sanitaire, occupe une place importante dans les études de sécurité en matière de technique nucléaire; la manière d'obtenir la rétention de ce produit de fission appelle une attention particulière, surtout qu'au cours des dernières années, les techniques ont beaucoup évolué et fait l'objet d'expériences nombreuses.

L'objectif du séminaire de Karlsruhe était de réunir des spécialistes en matière de filtration de l'iode avec ceux qui, parmi les exploitants, les autorités compétentes délivrant les autorisations et les organismes agréés de contrôle, sont concernés par ces problèmes, en vue d'échanger les idées et les expériences, d'examiner l'état d'avancement de la technique et de discuter en particulier des méthodes et des critères sur la base desquels on peut se faire une idée de la qualité et de l'efficacité de la rétention de l'iode. Les experts ont eu l'occasion de présenter

des mesures in situ sur des filtres d'iode et de les comparer avec les essais en laboratoire, ainsi que de contrôler le comportement de ces filtres dans la pratique. Ce séminaire de trois jours, qui a réuni plus de 100 participants et au cours duquel 31 exposés ont été discutés, a été considéré comme très utile. Parmi les conclusions et recommandations formulées à l'issue du congrès, on a proposé notamment de procéder à une comparaison des méthodes utilisées dans les différents laboratoires spécialisés pour apprécier la qualité des matériaux d'adsorption; d'autre part, il a été préconisé d'organiser dans quelques années une nouvelle réunion sur le même thème "Filtres d'iode" permettant ainsi, sur le plan scientifique et pratique à la fois, une nouvelle confrontation des expériences acquises et des conceptions, déjà réalisée par le présent séminaire.

Ce recueil contient les communications présentées à Karlsruhe, et il est prévu de le faire suivre dans l'année d'un résumé des discussions. La Commission espère contribuer ainsi à l'information et à une meilleure concertation et harmonisation des points de vue et des méthodes dans un domaine important de la technique nucléaire et de la radioprotection qui se caractérise par une complexité particulière.

Dr. P. RECHT

V O R W O R T

Die Kommission der Europäischen Gemeinschaften versteht den ihr in Kapitel III des Euratom-Vertrages zuteil gewordenen Auftrag hinsichtlich des Gesundheitsschutzes von berufsmässig strahlenexponierten Personen und der Bevölkerung allgemein dahingehend, dass sie neben der Ausarbeitung von Strahlenschutznormen und der Ueberwachung der Radioaktivität in der Umwelt, sich auch insbesondere solcher, vorwiegend technischen Probleme annimmt, die sich bei der praktischen Durchführung der Strahlenschutzüberwachung ergeben. Diese Sicht der Dinge hat die Direktion Gesundheitsschutz bewogen, auch mit Aufmerksamkeit die komplexen Probleme zu untersuchen, die die Rückhaltung von radioaktivem Jod aufgibt. Angesichts der grossen Bedeutung, die das Radio-Jod als eine in sanitärer Hinsicht kritische Komponente bei allen Sicherheitsbetrachtungen in der Kerntechnik hat, liegt auf der Hand, dass die Technik der Rückhaltung dieses Spaltprodukts eine besondere Beachtung verdient, zumal auf diesem Gebiet in den letzten Jahren erhebliche Entwicklungen angelaufen und vielfältige Erfahrungen angefallen sind.

Das Ziel des Seminars in Karlsruhe war, die Spezialisten auf dem Gebiet der Filterungstechnik mit Interessenten auf der Betreiberseite, bei den Genehmigungsbehörden und den Kontrollorganen zu einem Meinungs- und Erfahrungsaustausch zusammenzuführen, dabei den Stand der Technik auszuloten und insbesondere die Methoden und Kriterien zu diskutieren, die es erlauben, sich ein verlässliches Bild von Güte und Wirksamkeit der Jodrückhaltesysteme

VI

zu verschaffen. So standen bei diesem Seminar die "in-situ"-Messungen an Jodfiltern und ihre Korrelation mit Labortests sowie die praktischen Erfahrungen hinsichtlich des Betriebsverhaltens dieser Filter im Vordergrund. Im Laufe der dreitägigen, von den über 100 Teilnehmern als sehr nützlich angesehenen Veranstaltung, in der 31 Vorträge zur Diskussion standen, wurde angeregt, einen Vergleich der in den verschiedenen spezialisierten Laboratorien verwendeten Methoden zur Messung der Qualität der Adsorbermaterialien anzustellen; weiterhin wurden Stimmen laut, die auf eine neuerliche Veranstaltung nach einigen Jahren zielten, in der Entwicklungen und Erfahrungen aus wissenschaftlicher und praktischer Sicht diskutiert werden sollten, so wie es in diesem Seminar der Fall war.

Hier werden nun die in Karlsruhe diskutierten Vorträge der Öffentlichkeit übergeben. Es ist vorgesehen, eine Zusammenfassung der Diskussionen im Laufe dieses Jahres folgen zu lassen. Die Kommission hofft, damit zur Information und zu einer besseren Abstimmung und Angleichung der Auffassungen und Methoden auf einem wichtigen Gebiet der Kerntechnik, das durch besondere Komplexität gekennzeichnet ist, beizutragen.

Dr. P. RECHT

VII

C O N T E N T S

	Page
FOREWORD	I - VI
SESSION I: BASIC ELEMENTS	
Chairman: P. Sigli, CEA, Fontenay-aux-Roses	
Verhalten von Jod-Sorptionsmaterialien	1
<u>J.G. Wilhelm</u>	
The behaviour of iodine species in the Windscale AGR	25
<u>J.J. Hillary</u>	
The release of fission-products from zircaloy-clad UO ₂ fuel at around 1000° C	37
<u>J.J. Hillary, J.C. Taylor</u>	
Piégeage et désorption d'iode dans les réacteurs graphite-gaz	53
J. Barbier, G. Benezech, B. Cadet, J. Miribel, <u>P. Sigli</u>	
Répartition de l'iode entre les différents milieux d'un réacteur graphite-gaz et son environnement ...	71
<u>J. Barbier</u>	
Messungen zur Bestimmung der Jodzusammensetzung in der Raum- und Gebäudeluft eines Kernkraftwerkes mit Siedewasserreaktor	95
<u>K. Pfeiffer</u>	
The ageing of impregnated charcoals	121
<u>L.R. Taylor, R. Taylor</u>	
SESSION II: DESIGN OF IODINE TRAPPING SYSTEMS	
Chairman: J.J. Hillary, UKAEA, Windscale	
The design of iodine trapping plants in the U.K. for CEGB gas-cooled reactor use	149
<u>F.H. Passant</u>	
Jodfilter für Kernkraftwerke	163
<u>H.J. Strauss, G. Staschik, K. Winter</u>	
Jodrückhaltung in Wiederaufarbeitungsanlagen	175
<u>F. Herre</u>	

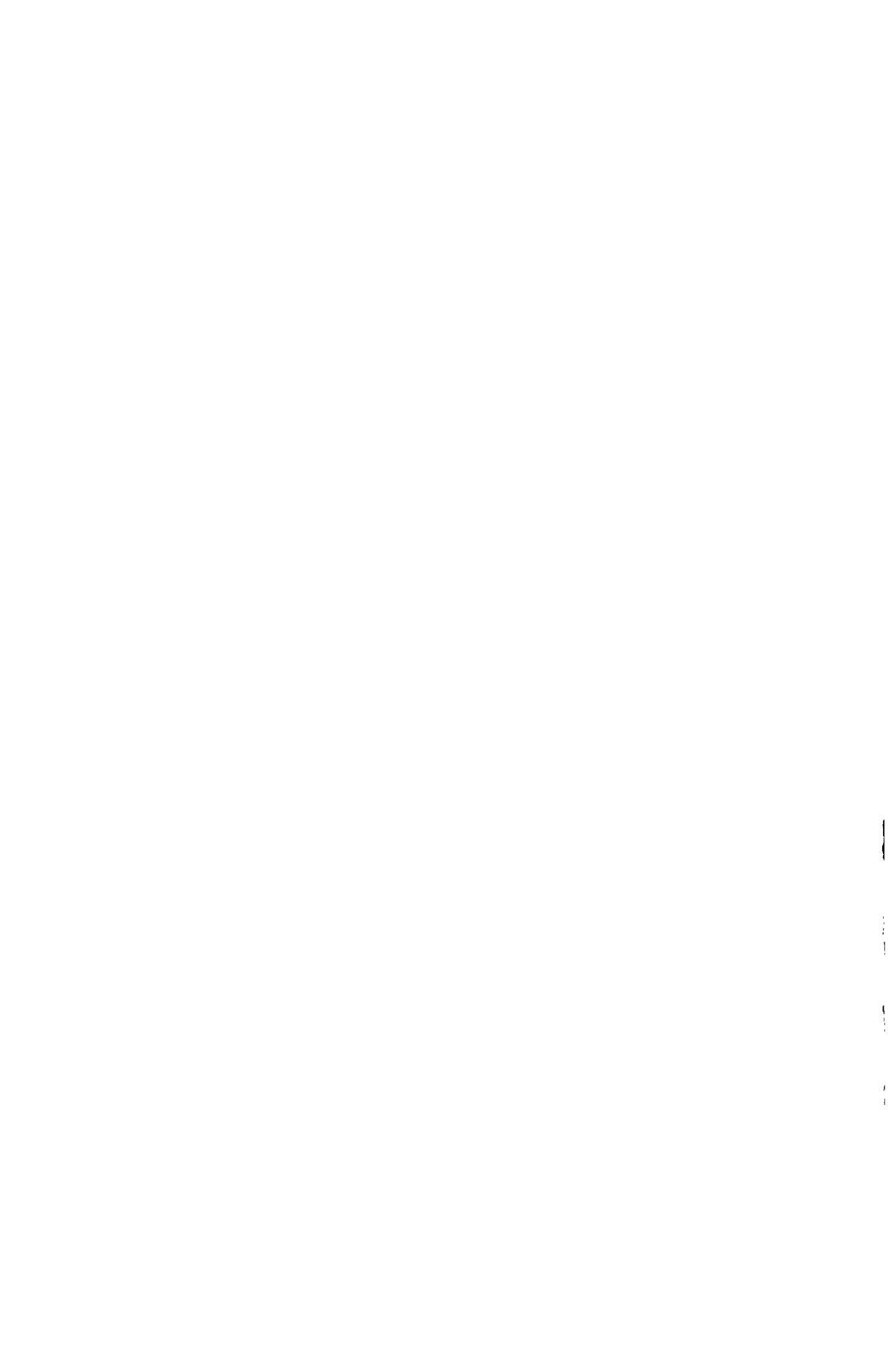
The name of the author who presented the paper is underlined.

VIII

	Page
Jodfilterung aus der Abluft von Wiederaufarbeitungsanlagen	185
<u>J. Furrer</u> , J.G. Wilhelm	
Utilisation des zéolithes argentées pour le piégeage à haute température de l'iode	199
M. Belval, <u>J. Miribel</u>	
SESSION III: TEST METHODS FOR THE PERFORMANCE OF IODINE SORPTION SYSTEMS	
Chairman: J.G. Wilhelm, GfK, Karlsruhe	
Prüfung von Jodfilteranlagen	211
<u>J.G. Wilhelm</u> , H.G. Dillmann, K. Gerlach	
Iodine sorption plant test procedures in the United Kingdom	237
<u>J.J. Hillary</u>	
Contrôle des pièges à iode des centrales nucléaires.	259
<u>P. Sigli</u> , L. Trehen	
Testing methods for iodine filters of nuclear plants	271
N. Fiorentino, S. Lanza, S. Malossi, <u>H. Mazzini</u> , G. Messorè	
Methods used at KEMA for measuring iodine adsorption on charcoal and experiences with charcoal filters installed at a nuclear power plant	315
<u>G. van der Lugt</u> , L.C. Scholten	
Iodine filter testing in Sweden	329
R. Hesböl, B. Normann, <u>L. Devell</u>	
Der technische Filterprüfstand in Karlsruhe	353
<u>H.G. Dillmann</u> , F. Brüderle, J.G. Wilhelm	
SESSION IV: OPERATIONAL EXPERIENCE WITH IODINE SORPTION SYSTEMS	
Chairman: J.G. Wilhelm, GfK, Karlsruhe	
Experience at Windscale of full scale iodine sorption plant testing with methyl iodide	361
<u>J.J. Hillary</u> , L.R. Taylor	
Experience in testing iodine sorption plants associated with CEGB gas-cooled reactors	391
<u>M. Stead</u>	
Operating experience of the SGHWR iodine sorption system	405
<u>J.J. Clifton</u>	

IX

	Page
Essais de pièges à iode dans les centrales nucléaires d'ELECTRICITE DE FRANCE	415
<u>M. Gence</u>	
Operating experience with iodine filtering systems in Italian nuclear power plants	431
N. Fiorentino, S. Malossi, G. Messori, G. Sacco (not presented at the seminar)	
Ergebnisse und Erfahrungen aus der Untersuchung von Jodfiltern	465
<u>J.G. Wilhelm, K. Gerlach</u>	
Erfahrungen mit Jodfiltern bei der Herstellung jod- markierter Verbindungen im Curie-Massstab	483
<u>G. Schulze-Pillot</u>	
Expérience d'utilisation de filtres à iode au C.E.N./ S.C.K.	489
<u>G. Fieuw, R. Boulenger</u>	
Experiences with charcoal filter systems installed in several buildings at the R.C.N. site	503
<u>J.R.D. Stoute, G.C.H. Groen</u>	
SESSION V: REGULATORY ASPECTS OF IODINE TRAPPING SYSTEMS	
Chairman: L.F. Franzen, I.R.S., Köln	
Regulatory controls applied to iodine trapping plants in UK nuclear installations	511
<u>H.A. Wright</u>	
Genehmigungsrechtliche Aspekte der Jodabscheidung im Normalbetrieb und bei Störfällen	523
<u>L.F. Franzen</u>	
Background information for USAEC Regulatory Guide 1.52	547
<u>R. Zavadski</u>	
LIST OF PARTICIPANTS	565



VERHALTEN VON JOD-SORPTIONSMATERIALIEN

J.G. Wilhelm

Gesellschaft für Kernforschung
Karlsruhe - B.R. DEUTSCHLAND

KURZFASSUNG. Es werden die Jodverbindungen angegeben, die in der Abluft von Kernkraftwerken zu erwarten sind. Die chemischen Reaktionen, durch die Spaltjod an den heute verwandten Sorptionsmaterialien abgetrennt wird, werden kurz erläutert.

Die Bedeutung der wichtigsten Einflussgrößen für die Auslegung der Sorptionsbetten, wie Art und Korngröße des Sorptionsmaterials sowie relative Feuchte und Temperatur des Trägergases wird aufgrund experimenteller Ergebnisse diskutiert. Ueber einige Untersuchungen zur Abhängigkeit des Abscheidegrades von der Konzentration an elementarem Jod und Methyljodid in der Raumluft wird berichtet.

Die Ergebnisse von Standzeituntersuchungen zur Alterung und Vergiftung des Sorptionsmaterials werden wiedergegeben und Massnahmen diskutiert, die zur Verlängerung der Einsatzzeit führen.

SUMMARY. BEHAVIOUR OF IODINE SORPTION MATERIALS. All iodine compounds to be found in the air vented from nuclear power plants are given. The chemical reactions by means of which fission-product iodine is retained by the sorption materials used nowadays, are explained briefly.

The importance of the main parameters affecting the layout of sorption beds, such as type and grain size of the sorption material and relative humidity and temperature of the carrier gas, are discussed with reference to experimental results. Experiences on the dependence of the retention efficiency on the concentration of elementary iodine and methyl-iodide in the air are reported.

The results are given of residence time experiments on the ageing and poisoning of the sorption material and measures to prolong service life are discussed.

RESUME. COMPORTEMENT DES MATERIAUX UTILISES POUR LA SORPTION DE L'IODE. Les composés iodés auxquels on peut s'attendre dans l'air sortant de centrales nucléaires sont indiqués. Les réactions chimiques par lesquelles on sépare l'iode de fission dans les matériaux de sorption actuellement utilisés sont brièvement expliquées. En se basant sur des résultats d'expérience, on discute de la signification des paramètres les plus importants pour la conception des filtres à sorption, tels que la nature et la granulométrie des matériaux de sorption ainsi que l'humidité relative et la température du gaz porteur. Il est rendu compte de quelques expériences portant sur la dépendance du taux de séparation en fonction de la concentration de l'iode élémentaire et de l'iodure de méthyle dans l'air ambiant. On communique les résultats d'examen de longue durée relatifs au vieillissement et à l'empoisonnement des matériaux sorbants, et on discute des mesures destinées à en prolonger leur durée d'emploi.

1. Einleitung

Unter den Spaltprodukten, die während des Betriebes und bei Störfällen eines Kernkraftwerkes oder einer Wiederaufarbeitungsanlage abgegeben werden können, nimmt das Jod eine Sonderstellung ein. Diese ist begründet durch die hohe Spaltausbeute einzelner Jodisotope, die Flüchtigkeit von elementarem Jod und vielen Jodverbindungen, die für längere Transportzeiten ausreichend langen Halbwertszeiten verschiedener Jodisotope wie ^{131}J und ^{129}J und die Rückhaltung und Anreicherung im menschlichen Körper, insbesondere in der Schilddrüse.

Jodfilter gehören heute zu den üblichen Sicherheitseinrichtungen von Kernkraftwerken. Berechnungen der erwarteten Umgebungsbelastung zeigen im allgemeinen, daß mit Dekontaminationsfaktoren der Abluft zwischen 10^2 und 10^3 eine ausreichende Reduktion der Jodfreisetzung erreicht werden kann. Die Abscheideleistung von Spaltjodfiltern hängt von einer Vielzahl von Einflußgrößen ab, von denen die wichtigsten hier kurz diskutiert werden sollen.

2. Formen des Spaltjodes

Freigesetztes Spaltjod kann in verschiedenen, luftgetragenen Formen auftreten, deren Anteil an der insgesamt freigesetzten Spaltjodmenge in weiten Bereichen schwankt und von den Bedingungen während der Freisetzung und auf dem Transportweg abhängig ist. Nach heutiger Erkenntnis sind vor allem elementares Jod, Methyljodid aus der Reaktion von org. Luftverunreinigungen mit Jod und an Partikel gebundenes Jod für die Auslegung von Jodfiltern zu berücksichtigen (1, 2). Mit weiteren anorg. gasförmigen Jodverbindungen wie z. B. Jodwasserstoff und org. Jodverbindungen höheren Molekulargewichtes ist zu rechnen.

Bei den kleinen Massenkonzentrationen an Jod, die in der Raum- und Abluft kerntechnischer Anlagen zu erwarten sind, treten wegen des relativ hohen Partialdampfdruckes sowohl elementares Jod als auch Methyljodid bereits bei Raumtemperatur praktisch ausschließlich in Gasform auf. Jod enthaltende Partikel bestehen entweder aus Jodverbindungen mit sehr niedrigem Dampfdruck (z. B. eine Reihe

von Metalljodiden) oder an Partikeln aus anderen Stoffen adsorbiertem Jod. Jodfilter sind daher immer aus mindestens einem Schwebstofffilter und einem Gas-Sorptionsteil aufgebaut. Im Mittelpunkt dieses Seminars steht die Abscheidung gasförmigen Jodes.

Für sicherheitstechnische Betrachtungen kann als Arbeitshypothese angenommen werden, daß im Sicherheitsbehälter eines wassergekühlten Reaktors nach einem Störfall vorhandenes, luftgetragenes Jod zu 85 % aus elementarem Jod, 10 % aus organischen Jodverbindungen und zu 5 % aus Aerosolen besteht. In gasgekühlten Reaktoren kann man mit einem wesentlich höheren Anteil des Jodes in Form von Methyljodid und an Partikel gebundenem Jod rechnen. In den folgenden Vorträgen wird auf diesen Punkt näher eingegangen.

Da elementares Jod durch Adsorption bzw. Chemiesorption an den Oberflächen der Räume und Einbauten, an den Wandungen der Lüftungskanäle usw. teilweise zurückgehalten wird, ist zu erwarten, daß mit steigender Entfernung vom Freisetzungsort des Spaltjodes der Anteil an leichtflüchtigen, reaktionsträgen Jodverbindungen wie Methyljodid relativ zum insgesamt luftgetragenen Jod ansteigt. Außerdem wächst der durch chem. Reaktion des elementaren Jodes zu Jodverbindungen umgesetzte Anteil mit der Verweilzeit in Luft und der Möglichkeit des elementaren Jodes, nach Adsorption an Oberflächen mit dort vorhandenen Verbindungen zu reagieren und durch Desorption wieder in die Atmosphäre zu gelangen.

Es sei darauf hingewiesen, daß verschiedenste Messungen auf die Existenz weiterer, gasförmiger Jodverbindungen deuten, die durch heute bekannte Jod-Sorptionsmaterialien nur mit geringem Abscheidungsgrad zurückgehalten werden. Der Anteil derartiger Jodverbindungen am luftgetragenen Jod ist jedoch gewöhnlich sehr gering und es gibt wenig Grund zu der Annahme, daß Jodverbindungen, die sich durch speziell entwickelte Sorptionsmaterialien mit extrem großer innerer Oberfläche nicht adsorbieren bzw. sich nicht durch Chemiesorption oder Isotopenaustausch an die Imprägnierung des Jod-Sorptionsmaterials binden lassen, im menschlichen Körper oder z. B. am Gras in wesentlichen Anteilen zurückgehalten werden.

Trotzdem sollte die Art und das Reaktionsverhalten dieser "schwer abscheidbaren Jodverbindungen" aufgeklärt werden um ggf. geeignete Sorptionsmaterialien entwickeln und mit Sicherheit ausschließen zu können, daß eine Umwandlung in leicht abscheidbare bzw. inkorporierbare Verbindungen auf dem Transportweg erfolgt.

3. Jod-Sorptionsmaterialien

Elementares Jod läßt sich durch Adsorption und Chemisorption an Aktivkohle mit hohen Abscheidegraden zurückhalten. Organische Jodverbindungen wie das Methyljodid werden in weitaus geringerem Maße adsorbiert, insbesondere dann, wenn hohe relative Luftfeuchten auftreten und eine gleichzeitige Adsorption von Wasserdampf erfolgt.

Die Abb. 1 zeigt die Durchlässigkeit einer nicht imprägnierten Aktivkohle gegenüber ^{131}J in Form von elementarem Jod (untere Kurve) und Methyljodid (obere Kurve). Die Aktivkohle (aus einem Jodfilter) wurde mit Luft von 70 % relativer Feuchte (r. F.) ins Wasserdampf-Adsorptionsgleichgewicht gebracht und anschließend mit dem radioaktiv markiertem J_2 bzw. CH_3J in Luft gleicher relativer Feuchte beaufschlagt. Aufgetragen ist die Durchlässigkeit in Abhängigkeit von der Bett-Tiefe bzw. Verweilzeit. Während ^{131}J in Form von Methyljodid praktisch nicht zurückgehalten wurde, zeigt die Kurve für die J_2 -Durchlässigkeit ein steiles Abscheidungsprofil, das bis zu einer Bett-Tiefe von ca. 2 cm in der halblogarithmischen Darstellung durch eine Gerade beschrieben wird und abbiegt, nachdem eine Durchlässigkeit von ca. 0,1 % unterschritten wurde. Man kann daraus schließen, daß das elementare Jod (gerader Kurventeil) durch eine oder mehrere Jodverbindungen verunreinigt war, die nach Abscheidung des elementaren Jodes das Abscheidungsverhalten der noch vorhandenen Restaktivität bestimmten und sich mit der vorhandenen Aktivkohle nicht ausfiltern lassen. Es handelt sich wahrscheinlich um Methyljodid oder ähnliche Jodverbindungen, die in geringem Anteil bei der Jodherstellung oder auf dem Transportweg entstanden. Wegen der großen chemischen Reaktionsfähigkeit des elementaren Jodes dürfte ein Anteil an Jodverbindungen praktisch immer im Joddampf vorhanden

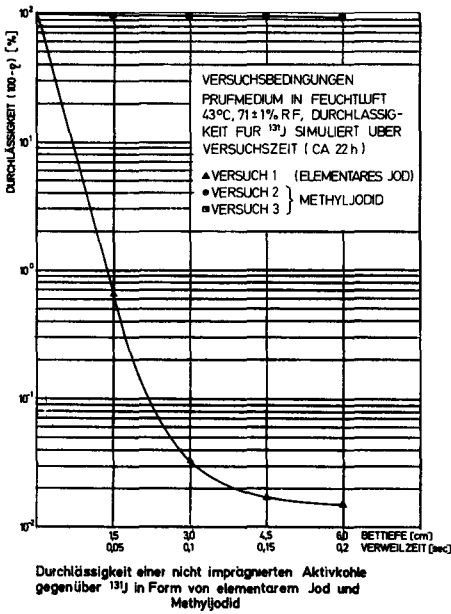


Abb. 1

sein. Die Höhe dieses Anteils schwankt mit der Qualität der J₂-Präparation und der Luftfeuchte. Eine nicht imprägnierte Aktivkohle ist daher zur Abscheidung von Jod aus Feuchtluft nicht geeignet. Geeignete Imprägnierungen der Aktivkohle zur Abscheidung von Methyljodid sind durch inaktives Jod und Jodsalze (3, 4) sowie durch tertiäre Amine, wie z. B. das Triäthylendiamin, gegeben (5).

Da Aktivkohle nicht bei hoher Temperatur und in NO_x-haltigen Abgasen eingesetzt werden kann, wurden andere Sorptionsmaterialien auf anorganischer Grund-

lage entwickelt. Silber- oder versilberter Kupferdraht scheiden bei frischer Metalloberfläche elementares Jod mit hohen Abscheidungsgraden ab, versagen aber gegenüber Jod in Form von Methyljodid. Wird das Silber in Molekularsiebe eingebaut, z. B. in Linde Molekularsieb 13 X und damit aktiviert, ist es ein geeigneter Reaktionspartner auch zur Abscheidung von Jod in Form von Methyljodid (6, 7). Die Silberform von Molekularsieben ist als Jod-Sorptionsmaterial für den Einsatz auch bei hohen Temperaturen ausgezeichnet geeignet, der Preis dieses Materials liegt jedoch außerordentlich hoch, da hohe Silbergehalte zur Erreichung ausreichender Abscheidungsgrade notwendig sind und vorwiegend nur das in einer äußeren Schicht liegende Silber bei den üblichen kurzen Verweilzeiten reagiert.

Weitere nicht brennbare Materialien, die zur Abscheidung von Jod und Methyljodid eingesetzt werden können, werden auf der Basis von Kieselsäure oder Aluminiumoxyd hergestellt und mit Silbernitrat imprägniert. Als Beispiel sei das gemeinsam von der Gesellschaft für Kernforschung und der Fa. Bayer, Leverkusen,

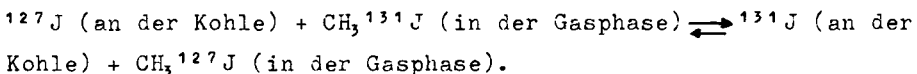
entwickelte Jod-Sorptionsmaterial AC-6120 genannt (8, 9). Mit diesem Material können bei relativ niedrigem Silbereinsatz hohe Abscheidegrade erreicht werden, außerdem ist es für den Einsatz in den NO_x -haltigen Abgasen einer Wiederaufarbeitungsanlage geeignet.

4. Abscheidungsreaktionen an Jod-Sorptionsmaterialien

An Aktivkohle wird elementares Jod durch Adsorption und Chemisorption abgeschieden. Infolge des günstigen Adsorptionsverhaltens von elementarem Jod, der Porenstruktur und extrem großen inneren Oberfläche der eingesetzten Aktivkohlen (ca. 800-1000 m^2/g nach BET) ist bereits durch die Adsorption ein wesentlicher Abscheidungsmechanismus für elementares Jod gegeben, die sich einstellenden Adsorptions-Desorptionsgleichgewichte zwischen Jod in der Gasphase und Jod an der Oberfläche der Aktivkohle führen auch in feuchter Luft zur Abscheidung von elementarem Jod mit hohen Abscheidegraden.

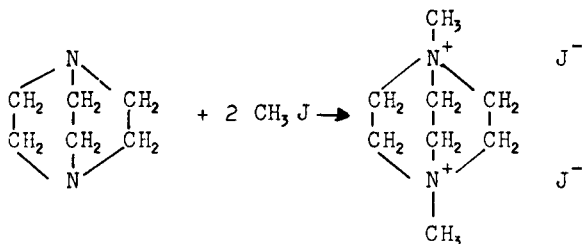
Die Adsorption von Methyljodid an Aktivkohle wird durch die gleichzeitige Adsorption von Wasserdampf aus feuchter Luft so stark beeinträchtigt, daß nicht imprägnierte Aktivkohle bei Luftfeuchten $> 30\%$ r. F. und Raumtemperatur keine brauchbare Abscheideleistung mehr zeigt; steigende Temperatur und Luftfeuchte verschieben das Adsorptions-Desorptionsgleichgewicht weiter zur ungünstigen Seite.

Als Methyljodid vorliegendes ^{131}J wird an die heute üblichen Jodfilterkohlen durch Isotopenaustausch (3, 4) oder Bildung quartärer Ammoniumsalze gebunden. Zum Isotopenaustausch wird die Aktivkohle mit größeren Mengen (0,5 - 5 Gewichts%) an inaktivem Jod oder Jodsalzen ($^{127}\text{J}_2$, K^{127}J) imprägniert. Es läuft folgender Austauschvorgang ab (der mit dem sicherheitstechnisch bedeutendsten Jodisotop ^{131}J formuliert wird, aber auch für andere Jodisotope gilt):



Praktisch tritt also radioaktives Methyljodid in das Aktivkohlebett ein und verläßt es wieder als inaktives Methyljodid. Hydrolyse und Adsorption treten zusätzlich als Abscheidemechanismen untergeordneter Bedeutung auf. Der für den Isotopenaustausch geschwindigkeitsbestimmende Schritt ist durch die Adsorption und Desorption des Methyljodids an der Oberfläche der Aktivkohle gegeben. Ein durch den Isotopenaustausch erreichbarer Dekontaminationsfaktor wird durch das Verhältnis von inaktivem ^{127}J und ^{131}J an der Oberfläche der Kohle bestimmt. Durch die Imprägnierung der Aktivkohle mit großen Mengen an ^{127}J , die extrem kleinen Mengen an adsorbiertem ^{131}J gegenüberstehen, wird die Lage des Gleichgewichtes der oben angegebenen Reaktion weitgehend nach rechts verschoben. Bei genügend hoher Reaktionsgeschwindigkeit bzw. ausreichend langen Verweilzeit der Abluft in der Aktivkohle können hohe Dekontaminationsfaktoren erreicht werden.

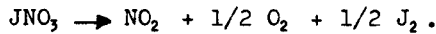
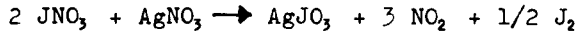
Ein weiteres sehr erfolgreiches Imprägnierungsmittel zur Abscheidung von Methyljodid ist das Triäthylendiamin:



Die Abscheidungswirkung beruht hier auf der Bindung des Methyljodids in Form des aus Triäthylendiamin und Methyljodid gebildeten quartären Ammoniumsalzes an die Kohle. Die Reaktionen, die für Methyljodid formuliert wurden, gelten z. T. auch für andere org. Jodverbindungen, z. B. für höhere Alkylhalogenide.

Silber, das in Molekularsiebe eingebaut wurde, reagiert bei der Umsetzung mit elementarem Jod zu Silberjodid. Methyljodid wird ebenfalls zu AgJ umgesetzt, als Reaktionsprodukte wurden Dimethyläther und Methanol nachgewiesen (10).

Silbernitrat (als Imprägnierung auf SiO_2 - und Al_2O_3 -Trägermaterial) reagiert mit elementarem Jod vermutlich nach (11, 12):



Das Jod wird also als Silberjodid und Silberjodat gebunden.

Methyljodid und andere Alkylhalogenide reagieren mit der Silbernitratimprägnierung nach (13, 14):



ebenfalls zu Silberjodid.

Die Endprodukte der Reaktion des Jodes oder Methyljodids mit Silber bzw. Silbernitrat sind außerordentlich stabil. Derartig imprägnierte Materialien eignen sich daher besonders zur Abscheidung aus Gasen bei hoher Temperatur oder dann, wenn im Jod-Sorptionsmaterial eine große Zerfallswärme freigesetzt wird.

5. Einfluß des Silbergehaltes auf die Abscheideleistung anorganischer Jod-Sorptionsmaterialien

Wegen des hohen Silberpreises kommt der Relation zwischen Silbergehalt und Abscheideleistung eines anorg. Sorptionsmaterials besondere Bedeutung zu.

In Abb. 2 sind die mit Linde Molekularsieb 13 X in der Silberform (LMS 13 X Ag) für ^{131}J in Form von Methyljodid erreichten Abscheidegrade (Stäbchendurchmesser: 1/16") in Abhängigkeit von dem Silbergehalt angegeben. Die Kurven wurden für eine scheinbare lineare Luftgeschwindigkeit von 25 cm/s der Feuchtluft (30°C, 70 % r. F.) bestimmt. Es zeigt sich ein sehr starker Abfall des Abscheidegrades mit sinkendem Silbergehalt und ein Anteil an nicht reagierendem Silber. Höchstmögliche Silbergehalte (mehr als 1/3 vom Gewicht des Sorptionsmaterials) sind zur Erreichung befriedigender Abscheidegrade unbedingt notwendig.

Die Abb. 3 zeigt die Durchlässigkeit von AC-6120 in Abhängigkeit vom Silbergehalt unter den Bedingungen, die für die Versuche in

PRÜFBEDINGUNGEN

FEUCHTLUFT, 30°C, 70% r F
 VORBEFEUCHTUNG ≥ 20 h
 CH_3J -BELADUNG $\leq 350 \mu\text{g/g}$
 (berechnet für 10 cm Bett-Tiefe)
 CH_3J -EINLEITUNG 1-2 h
 NACHSTROMZEIT 20-22 h

- = 2,5 cm Bett-Tiefe
- × = 5,0 cm Bett-Tiefe
- = 7,5 cm Bett-Tiefe
- ▽ = 10,0 cm Bett-Tiefe

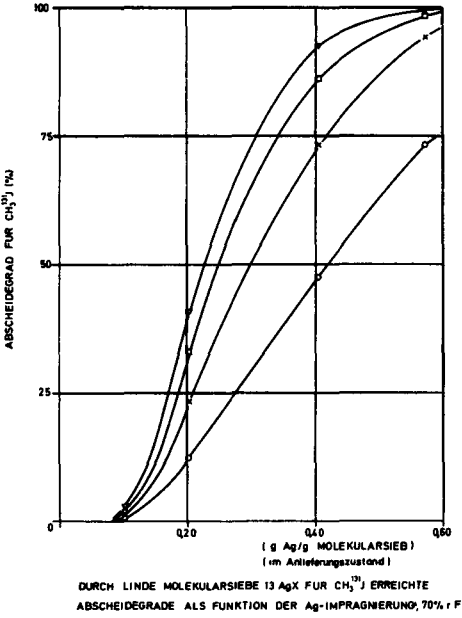


Abb. 2

Prüfbedingungen

Feuchtluft, 30°C, 70% r F
 Vorbefeuchtung ≥ 20 h
 CH_3J -Beladung $1,5 \pm 0,5 \text{ mg/g}$
 (berechnet für 10 cm Bett-Tiefe)
 CH_3J -Einleitung 1 h
 Nachstromzeit mit Feuchtluft ≥ 20

- = 2,5 cm Bett-Tiefe (AC 6120)
- × = 5,0 cm Bett-Tiefe (AC 6120)
- = 7,5 cm Bett-Tiefe (AC 6120)
- ▽ = 10,0 cm Bett-Tiefe (AC 6120)
- = 10,0 cm Bett-Tiefe (Zeolith)

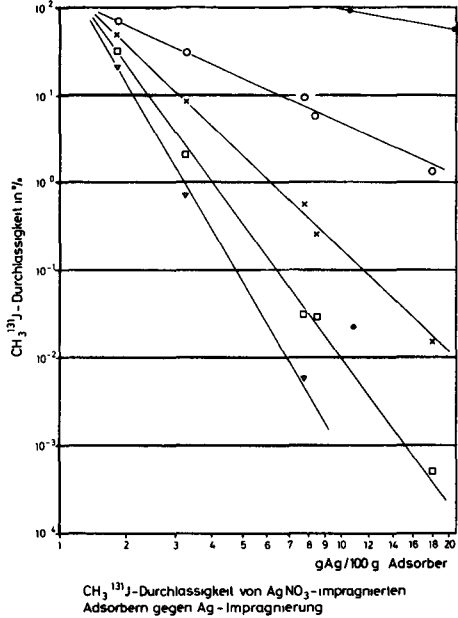


Abb. 3

Abb. 2 angegeben wurden. Es werden mit wesentlich niedrigeren Silbermengen gleiche Abscheideleistungen erreicht. Die oberste Kurve in Abb. 3 gilt für LMS 13 X Ag mit einem Silbergehalt im angegebenen Bereich und ermöglicht einen Vergleich der Abscheideleistung bei gleichem Einsatz von Silber. Zu berücksichtigen ist, daß LMS 13 X Ag in der benutzten Stäbchenform (1/6" Durchmesser) bei gleicher Bett-Tiefe und linearer Luftgeschwindigkeit nur ein Drittel des Druckabfalles des AC-6120 (Kugeln, 1 - 2 mm Durchmesser) verursacht. Korrigiert man durch Verringerung der Bett-Tiefe auf gleichen Druckabfall, ergibt sich immer noch eine um mehr als eine Größenordnung bessere Abscheideleistung.

6. Einfluß der Korngröße und Form des Jod-Sorptionsmaterials auf die Abscheideleistung

Große Bedeutung für die Abscheideleistung haben die Korngröße und die Form der Partikel eines Jod-Sorptionsmaterials. Eine Ver-

kleinerung der Korngröße des gleichen Materials führt zu wesentlich höheren Abscheidegraden, außerdem begünstigen Formen mit möglichst großer Oberfläche im Verhältnis zum Volumen die Abscheidung (15, 16).

Adsorber AC 6120
Beladung ca 1,5 mg CH₃J/g KTB
(berechnet für 10 cm Bett-Tiefe)
Trägergas Feuchtluft (Taup 30°C)
150°C, 2,5% NO₂

○ = 25 cm Bett-Tiefe
◊ = 50 cm Bett-Tiefe
□ = 7,5 cm Bett-Tiefe
△ = 10,0 cm Bett-Tiefe

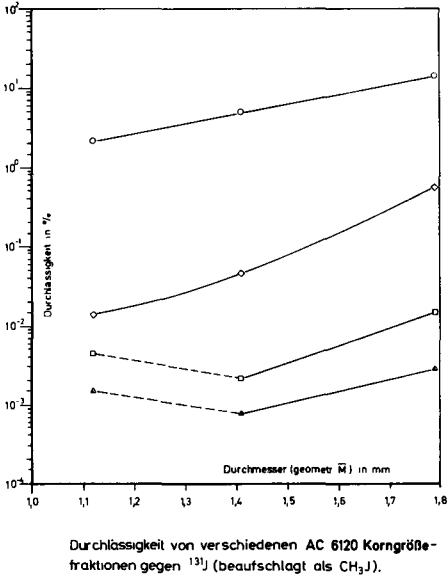


Abb. 4

Die Abb. 4 zeigt die Durchlässigkeit von Testbetten verschiedener Korngrößenfraktionen des AC-6120 gegenüber ¹³¹J, das als Methyljodid beaufschlagt wurde. Bei einer Bett-Tiefe von 5 cm ergab eine Reduktion des Kugeldurchmessers des Jod-Sorptionsmaterials um 40 % eine um fast 2 Größenordnungen geringere Durchlässigkeit. (Das scheinbare Ansteigen der Durchlässigkeit in den Kurven für 7,5 und 10,0 cm Bett-Tiefe ist wahrscheinlich auf Verunreinigungen des Prüfmittels durch schwer absehbare Komponenten zurückzuführen, die nach der Ausfilterung von mehr als 99,99 % des Prüfmittels das Abscheidungsprofil entscheidend beeinflussten).

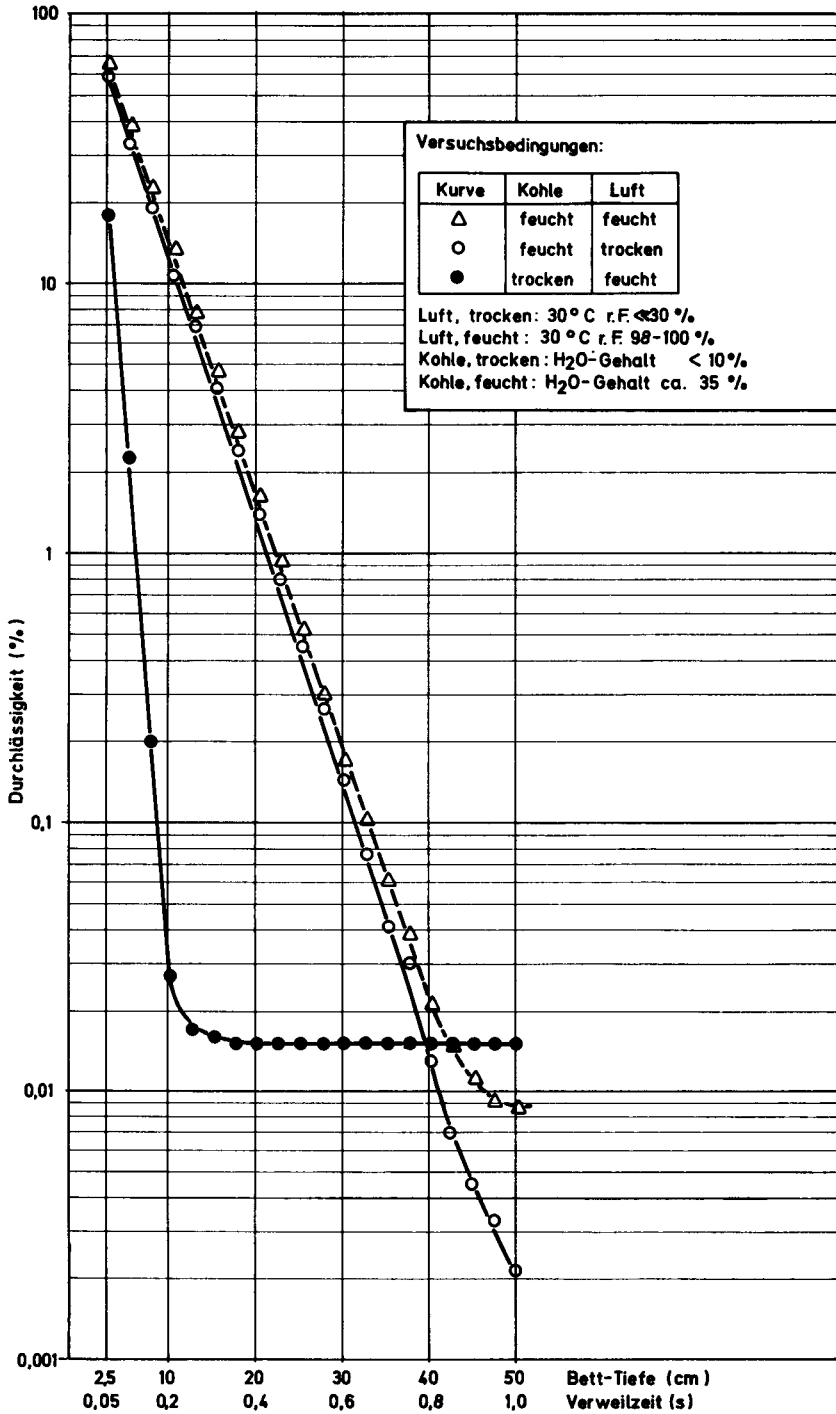
Zur vergleichenden Beurteilung der Abscheideleistung eines Jod-Sorptionsmaterials müssen der Partikeldurchmesser und die Partikelform berücksichtigt werden. Da für die Auslegung einer Filteranlage die Druckdifferenz, die sich bei einem bestimmten Volumenstrom über das Filter einstellt, von großer Bedeutung ist, sollte man die Abscheideleistungen verschiedener Jod-Sorptionsmaterialien zu Vergleichszwecken auf Bett-Tiefen umrechnen, die zu gleichen Druckdifferenzen führen.

7. Einfluß der relativen Feuchte des Trägergases auf die Abscheideleistung von Jod-Sorptionsmaterialien

Die Adsorption von Jod und Methyljodid wird durch gleichzeitig adsorbiertes Wasser behindert. In Abhängigkeit von der relativen Gas(Luft)feuchte wird die Oberfläche der Kohle in steigendem Maße mit Wasser beladen, das durch die Adsorption von einzelnen Wassermolekülen und Aggregationen, von monomolekularen und polymolekularen Schichten und, bei extrem hohen Luftfeuchten, durch Kapillarkondensation aufgenommen wird. Die größeren Poren der Aktivkohle werden auch bei 100 % relativer Luftfeuchte nicht mit Wasser gefüllt.

Die Adsorption von Wasser im Sorptionsmaterial beeinflusst vor allem die Abscheidung von radioaktivem Jod, das in Form von Methyljodid vorliegt. In Abb. 5 ist die Durchlässigkeit von jodimprägnierter Aktivkohle für ^{131}J , das in Form von Methyljodid beaufschlagt wurde, in Abhängigkeit von der Bett-Tiefe wiedergegeben. Es wurden Versuche mit vorbefeuchteter und trockener Aktivkohle als Sorptionsmaterial und feuchter und trockener Luft als Trägergas für das Methyljodid durchgeführt. Die Kurven zeigen, daß die Durchlässigkeit der imprägnierten Aktivkohle nach Vorbefeuchtung (eingestellt wurde das Wasserdampf-Adsorptionsgleichgewicht bei 98 - 100 % r. F. und 30°C) gegenüber der Jodaktivität in trockener ($\ll 30$ % r. F.) und feuchter Luft (98 - 100 % r. F.) bis zur Erreichung geringer Durchlaßgrade praktisch gleich ist.

Wird trockene Aktivkohle mit Methyljodid in feuchter Luft kurzzeitig beaufschlagt (damit keine größeren Mengen Wasser an der Aktivkohle adsorbiert werden), ergeben sich wesentlich geringere Durchlaßgrade, jedoch knickt die Kurve ab, nachdem der größte Anteil der Aktivität abgeschieden wurde. Die Umsetzung eines geringen Anteiles des Methyljodids in eine schwer abscheidbare Verbindung durch Reaktion mit dem Wasserdampf der Luft ist anzunehmen. Die gleiche Erscheinung ist auch bei dem Abscheidungsversuch mit hoher Luftfeuchte und vorbefeuchteter Aktivkohle festzustellen.



Durchlässigkeit von Aktivkohlebetten für ¹³¹J (als CH₃J beaufschlagt) bei verschiedenen Feuchtebedingungen für Aktivkohle bzw. Luft

Abb. 5

Versuche mit trockener Aktivkohle und trockener Luft (nicht eingezeichnet) ergaben ebenfalls eine hohe Abscheideleistung der Aktivkohle. Das Abknicken der Kurve erfolgte im Vergleich zur Beaufschlagung mit Feuchtluft später, so daß insgesamt eine kleinere Durchlässigkeit über eine entsprechende Bett-Tiefe der Aktivkohle erreicht wurde.

Zur Abscheideleistung von Jodfiltern können aufgrund der in Abb. 5 wiedergegebenen Kurven folgende Aussagen gemacht werden:

- Wasserdampfadsorption an der Aktivkohle führt zu erhöhter Durchlässigkeit.
- Ein durch adsorbiertes Wasser vorbefeuchtetes Filter scheidet auch aus trockener Luft radioaktives Jod, das als Methyljodid beaufschlagt wurde, mit verringerter Abscheideleistung ab.
- Wird ein trockenes Aktivkohlefilter mit radioaktivem Methyljodid in Feuchtluft beaufschlagt, ist anfänglich eine hohe Abscheideleistung zu erwarten, die erst mit steigender Wasseradsorption an der Aktivkohle sinkt.
- Am ungünstigsten für die Abscheidung ist die Beaufschlagung mit radioaktivem Methyljodid bei vorbefeuchteter Aktivkohle und hoher Luftfeuchte.

Aus hier nicht im einzelnen angeführten Abscheidungsversuchen geht weiter hervor:

- Aktivkohle, deren Makroporen durch auskondensiertes Wasser gefüllt wurden (z. B. durch Taupunktunterschreitung in der Kohle) verliert ihre Fähigkeit, Spaltjod in Form von Methyljodid ausreichend abzuscheiden.

Abb. 6 zeigt die Abscheidegrade, die mit Aktivkohlebetten verschiedener Bett-Tiefe bei Luftfeuchten zwischen 40 und 100 % r. F. erreicht wurden. Diese und alle folgenden Versuche wurden mit Jod-Sorptionsmaterial durchgeführt, das sich im Adsorptions-Desorptionsgleichgewicht mit dem Wasserdampf der anströmenden Feuchtluft befand. Während bei 40 % r. F. der anströmenden Luft mit einem 10 cm tiefen Aktivkohlebett ein Abscheidegrad von 99,88 % erreicht wurde, konnte bei 98 - 100 % r. F. unter sonst

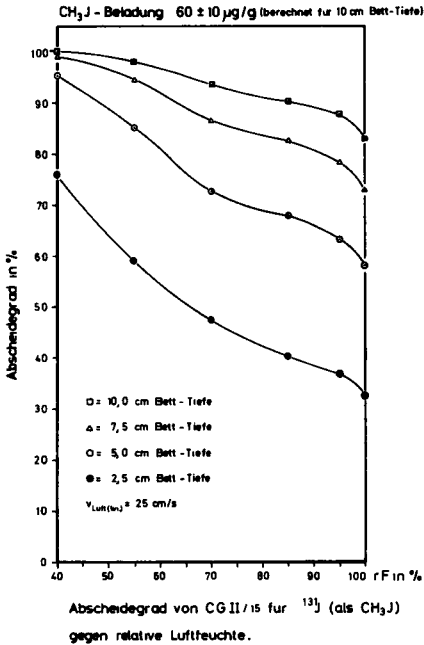


Abb. 6

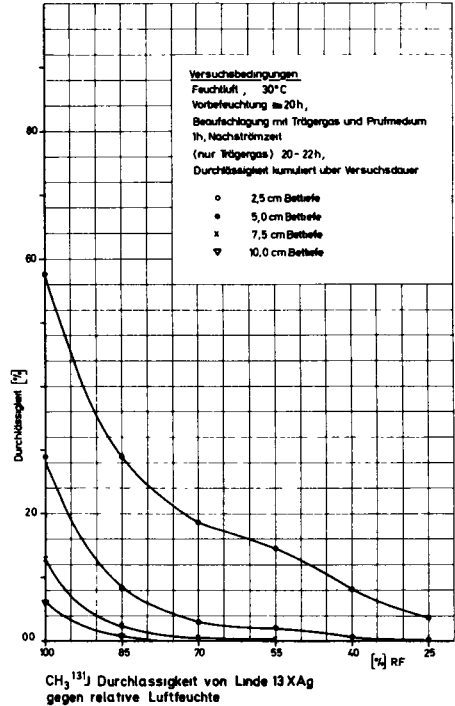


Abb. 7

gleichen Bedingungen nur noch ein Abscheidegrad von 86 % gemessen werden. Der Durchlaßgrad stieg durch die Erhöhung der Luftfeuchte auf den 12fachen Wert.

Abb. 7 zeigt die Abhängigkeit der Durchlässigkeit von LMS 13 X Ag gegenüber ¹³¹J, beaufschlagt in Form von Methyljodid, in Abhängigkeit von der relativen Luftfeuchte im Bereich von 25 - 100% r. F.. Auch hier zeigt sich eine Erhöhung der Durchlässigkeit mit steigender Luftfeuchte. Bei sehr hohen relativen Luftfeuchten tritt eine so hohe Durchlässigkeit auf, daß eine Begrenzung der max. relativen Luftfeuchte auf 70 % sinnvoll erscheint.

In Abb. 8 sind die Ergebnisse entsprechender Untersuchungen mit AC-6120 als Sorptionsmaterial wiedergegeben. Die Kurven weisen auf eine starke Abhängigkeit der Durchlässigkeit von der relativen Luftfeuchte hin. Oberhalb von ca. 70 % r. F. steigt die Durchlässigkeit so schnell an, daß ebenfalls eine Begrenzung der maximalen relativen Luftfeuchte auf 70 % zweckmäßig sein dürfte.

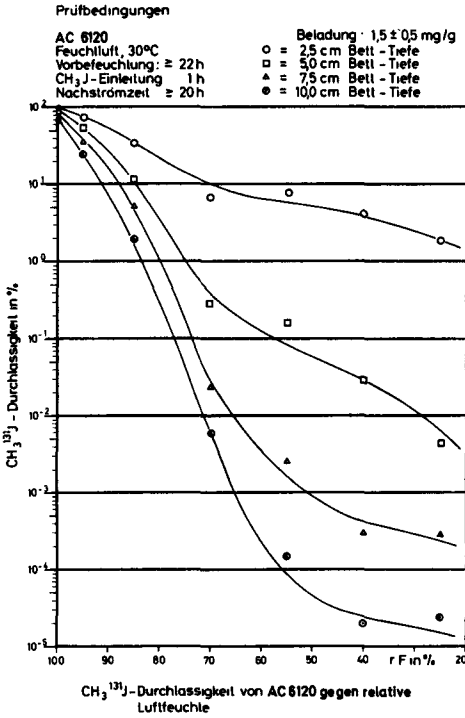


Abb. 8

Abschließend zu diesem Kapitel sei darauf hingewiesen, daß die relative Feuchte des Trägergases und die damit zusammenhängende Wasserdampfadsorption am Jod-Sorptionsmaterial unter den Bedingungen, unter denen die meisten Jodfilter zur Reinigung der Abluft arbeiten, die wichtigsten Einflußfaktoren in Hinsicht auf die Abscheideleistung darstellen.

8. Abscheidung von radioaktivem Jod bei hohen Temperaturen des Trägergases

Hohe Temperaturen des Trägergases können folgende Effekte am Jod-Sorptionsmaterial bewirken:

- Veränderung der Materialien und ihrer Imprägnierung, so daß niedrigere Abscheidegrade erreicht werden.
- Desorption von bereits abgeschiedenem Jod.
- Entzündung von brennbaren Sorptionsmaterialien wie Aktivkohle.

Die Entzündungstemperaturen von Aktivkohlen schwanken stark und sind von einer Vielzahl von Randbedingungen abhängig. Unterhalb von 200°C ist eine Entzündung der Aktivkohlen in Luft relativ selten. Weit unterhalb der Entzündungstemperatur kann Desorption bereits abgeschiedenen Jodes einsetzen (17, 18). Die Temperaturgrenze für den Einsatz von Aktivkohle ist daher in Hinsicht auf das Desorptionsverhalten festzulegen.

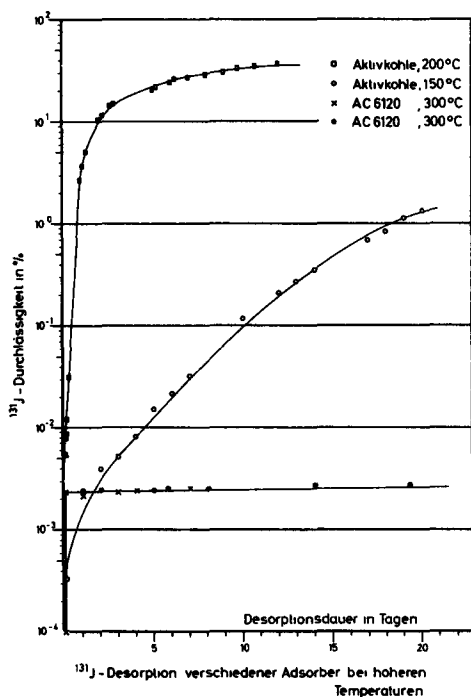


Abb. 9

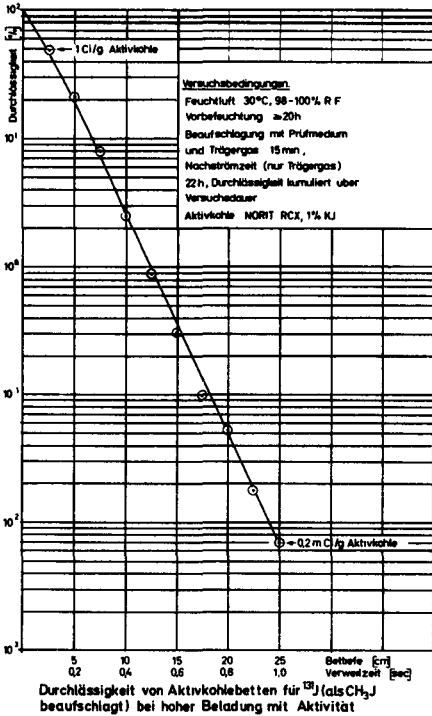
nach 24 Stunden überschritten. Es wird sowohl einfache Desorption des adsorbierten Jodes als auch Oxidation der Aktivkohle und der Jodsalze der Imprägnierung angenommen, durch die z. B. Metalljodide in elementares Jod überführt werden, das anschließend desorbiert, z. T. unter Reaktion zu leichter flüchtigen Jodverbindungen. Das Sorptionsmaterial AC-6120 zeigte in 300°C heißer Luft während einer Spülzeit von 20 Tagen keine merkliche Desorption. Aufgrund der vorliegenden Untersuchungsergebnisse wird die hier angeführte Jodfilterkohle in der BRD nur bis zu Temperaturen von 120°C eingesetzt.

9. Abscheidung von Spaltjod mit hoher spezifischer Aktivität

Die Laborversuche an Jod-Sorptionsmaterialien werden gewöhnlich nur mit sehr geringer Aktivität (Größenordnung mCi) durchgeführt. Um die Uebertragbarkeit auf Störfallbedingungen nachzuweisen, bei denen hohe Aktivitätsbeladungen des Jod-Sorptionsmaterials auftreten, wurden Abscheidungsversuche mit hoher spezifischer

Abb. 9 zeigt die Durchlässigkeit von 10 cm tiefen Betten aus jodimprägnierter Aktivkohle und AC-6120 bei höheren Temperaturen in Abhängigkeit von der Zeit. Die Betten wurden zu Versuchsbeginn mit ^{131}J in Form von Methyljodid beaufschlagt. Die einzelnen Punkte in den Kurven geben die bis zu den entsprechenden Betriebszeiten aufsummierten, durch die Testbetten durchgebrochene ^{131}J -Aktivitäten in % Durchlässigkeit an. Aus der Abb. 9 geht hervor, daß bei einer üblichen jodimprägnierten Kohle bereits bei 150°C starke Desorption auftritt. Ein Wert von 1 % Durchlässigkeit wird bei 150°C nach 18 Tagen und bei 200°C bereits

Aktivität des Prüfmittels ($\text{CH}_3^{131}\text{J} + \text{CH}_3^{127}\text{J}$) bei hoher Luftfeuchte (98 - 100 % r. F.) durchgeführt. Durch die hohe Luftfeuchte wurde eine Abscheidung des Methyljodids durch Adsorption weitgehend ausgeschlossen, so daß die Versuchsergebnisse eine Aussage über die Wirkung des Isotopenaustauschprozesses an jodimprägnierter Aktivkohle erlauben (19).



Die Abb. 10 zeigt die Durchlässigkeit von zehn aufeinanderfolgenden Testbetten. Die Beladung der einzelnen Testbetten sinkt infolge der Abscheidung von 1 Ci/g Aktivkohle auf 0,2 mCi/g Aktivkohle ab. Die Kurve zeigt keinen Einfluß der unterschiedlichen Aktivitätsbeladung auf die Durchlässigkeit der Einzelbetten. Der Vergleich mit weiteren Versuchen unterschiedlicher Aktivitätsbeladung zeigte das gleiche Ergebnis.

Bei Abscheidung hoher Jodaktivität ist mit hoher γ -Dosisleistung am Sorptionsmaterial zu rechnen. Unter Gegenwart von Wasser kann das an der Aktivkohle abgeschiedene Jod teilweise in organische Jodverbindungen überführt werden, die desorbieren und dadurch die Durchlässigkeit erhöhen (20).

Abb. 10

10. Abscheidung von Spaltjod bei kleinsten Konzentrationen

Eine maximale Abgabe von ^{131}J über den Kamin eines Kernkraftwerkes im Normalbetrieb in der Höhe von $\leq 0,1$ mCi/h setzt eine Fortluftkonzentration des Spaltjodes von $\leq 10^{-6} \mu\text{g}/\text{m}^3$ voraus, wenn ein Volumenstrom der Fortluft von 20.000 m^3/h und ein Verhältnis von 1 : 20 zwischen den Mengen an ^{131}J und den anderen Spaltjodisotopen angenommen wird. Wird diese Fortluftkonzentra-

tion durch einen Dekontaminationsfaktor des Jodfilters von 10^2 erreicht, sind für die Rohluftkonzentration Werte $\leq 10^{-4} \mu\text{g}/\text{m}^3$ anzusetzen, also extrem niedrige Konzentrationswerte, die noch unter dem natürlichen Jodgehalt der Luft (ca. $10^{-3} \mu\text{g}/\text{m}^3$) liegen (21).

Zur Zeit wird diskutiert, ob ein Konzentrationseffekt auftritt, durch den die Abscheidegrade in diesem niedrigen Konzentrationsbereich stark herabgesetzt werden.

Abscheidungsversuche mit aufeinanderfolgenden Filterbetten, die sich zu großen Bett-Tiefen addieren, zeigen ein Absinken des Abscheidegrades der Einzelbetten, nachdem ein gewisser Gesamtab-scheidegrad erreicht wurde (s. Abb. 5). Zu diskutieren ist, ob es sich um einen Konzentrationseffekt handelt, durch den die Abscheidung von bekannten Jodformen wie z. B. Methyljodid und elementarem Jod grundsätzlich im Bereich kleinster Konzentrationen nicht mehr mit ausreichenden Abscheidegraden möglich ist, oder ob es sich um eine teilweise Umsetzung zu schwerabscheidbaren Verbindungen handelt, die nach der Ausfilterung des elementaren Jodes und Methyljodids übrigbleiben und dann das Abscheidungsprofil der restlichen ^{131}J -Aktivität bestimmen. Untersuchungen, die in unserem Labor durchgeführt wurden, zeigten folgende Ergebnisse:

- Eine feste Konzentrationsgrenze für das Absinken der Abscheidegrade für J_2 und Methyljodid kann nicht angegeben werden.
- Methyljodid zeigte dann bei kleinsten Rohluftkonzentrationen ($\leq 10^{-6} \mu\text{g}/\text{m}^3$) das gleiche Abscheidungsverhalten wie bei höheren (Faktor 10^9) Konzentrationen (Abb. 11), wenn das Methyljodid durch Zugabe kleinster Mengen zum Trägergasstrom und nicht durch Vorfilterung auf den gewünschten Konzentrationswert eingestellt wurde.
- Nach der Abscheidung eines hohen Anteils des Methyljodids durch Filterung tritt auch in höheren Konzentrationsbereichen ein Abfall des Abscheidegrades mit steigenden Bett-Tiefen auf.
- Versuche mit kleinsten Konzentrationen ($\leq 10^{-6} \mu\text{g}/\text{m}^3$) von elementarem Jod in der Rohluft zeigten eine Reduktion des Abscheide-

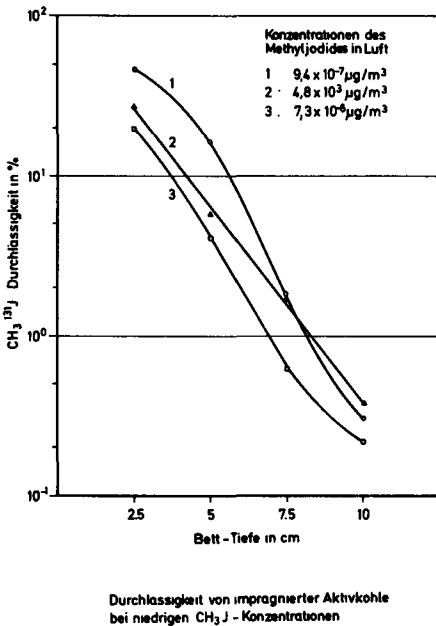


Abb. 11

grades, die aufgrund des Abknickens des anfänglich steilen Abscheidungsprofiles auf das Auftreten schwer adsorbierbarer Jodverbindungen zurückgeführt werden kann.

Aus diesen experimentellen Ergebnissen kann nur der Schluß gezogen werden, daß die scheinbare Konzentrationsabhängigkeit durch die teilweise Umsetzung von elementarem Jod bzw. von Methyljodid zu schwerer abscheidbaren Verbindungen oder durch das Auftreten von flüchtigen Nebenprodukten vorgetäuscht wird, die bei der J₂ bzw. CH₃J-Synthese entstehen und vor der Einleitung nicht vollständig aus der Probe abgetrennt wurden. Da die Atmosphäre mit

organischen Verunreinigungen beladen ist, die Konzentrationen im Bereich mehrerer mg/m³ erreichen können und mit Spaltjodkonzentrationen gearbeitet wurde, die demgegenüber um 10⁹ Größenordnungen kleiner sind, ist die teilweise Umsetzung des reaktionsfähigen elementaren Jodes mit diesen Verbindungen zu erwarten. Auch Reaktionen mit dem Wasserdampf der Luft sind denkbar. Die Eigenschaften der durch Umsetzung entstandenen Jodverbindungen verhindern offensichtlich eine wirkungsvolle Abscheidung durch Adsorption und Chemiesorption, sie dürften wahrscheinlich, falls sie ausreichend beständig sind, aus diesem Grunde auch durch Inhalation bzw. Ingestion nicht in wesentlichen Anteilen aufgenommen werden.

11. Die Alterung von Jod-Sorptionsmaterialien

Die Abscheideleistung von Jodfiltern sinkt mit der Betriebszeit infolge von Beladung mit Filterschadstoffen, die die wirksame Oberfläche des Sorptionsmaterials durch Ablagerung reduzieren

oder mit der Imprägnierung bzw. der Trägersubstanz zu unerwünschten Produkten reagieren. Außerdem können, davon unabhängig, Veränderungen der Imprägnierung ablaufen, z. B. durch Kristallwachstum während der Lagerung, durch das auch die Abscheideleistung nicht im Betrieb befindlicher Jodfilter oder der Ersatzchargen des Sorptionsmaterials herabgesetzt werden kann.

Die Anwesenheit von Filterschadstoffen im Abgas kann die Anwendung bestimmter Sorptionsmaterialien ausschließen. Aktivkohle kann z. B. zur Filterung der NO_2 -haltigen Abgase einer Wiederaufarbeitungsanlage nicht eingesetzt werden, da sie in den NO_2 -haltigen Abgasen schnell ihre Abscheidewirkung verliert und außerdem in so heftige Reaktion mit dem NO_2 eintreten kann, daß die Aktivkohle in Brand gerät.

Das Absinken der Abscheideleistung des Sorptionsmaterials mit der Zeit, ein Summeneffekt aus einer Vielzahl von Vorgängen, wird an dieser Stelle unter dem Begriff der "Alterung" zusammengefaßt. Im Laufe des Seminars wird noch viel zu diesem Thema, insbesondere im Zusammenhang mit imprägnierter Aktivkohle, zu berichten sein. Es werden deshalb nur einige Angaben zur Alterung anorganischer Jod-Sorptionsmaterialien gemacht, die aber qualitativ auf das Verhalten jodimprägnierter Aktivkohlen übertragen werden können.

In der Abb. 12 ist das Alterungsverhalten von vier aufeinanderfolgenden Filterbetten aus AC-6120 zu je 2,5 cm Bett-Tiefe wiedergegeben. Aufgetragen wurde der Abscheidegrad für ^{131}J , das als Methyljodid beaufschlagt wurde, in Abhängigkeit von der Betriebszeit bzw. der Anzahl der Luftwechsel (bezogen auf das Volumen des Sorptionsmaterials bei 10 cm Bett-Tiefe). Die scheinbare lineare Luftgeschwindigkeit während der Alterung und beim nachfolgenden Abscheidungsversuch betrug 25 cm/s. Durch die Filterbetten wurde kontinuierlich Luft aus einem Reaktorgebäude gesaugt, die Daten können daher als repräsentativ für ein Umluftfilter, das unter gleichen Bedingungen arbeitet, angesehen werden. Die Kurven zeigen, daß der Gesamtabscheidegrad über vier Filterbetten entsprechend 10 cm Bett-Tiefe nach 5,2 Monaten Dauerbetrieb nur

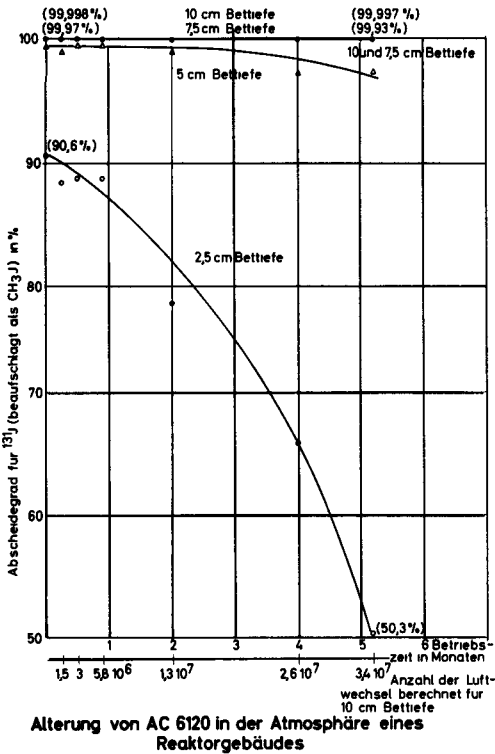


Abb. 12

hatte eine gute Abscheideleistung und hohe Aufnahmekapazität für die Filterschadstoffe.

Es empfiehlt sich daher, zur Erhöhung der zulässigen Filterbetriebszeit einen ausreichenden "Alterungszuschlag" zur Bett-Tiefe des Jod-Sorptionsmaterials vorzusehen. Durch Vergrößerung der Bett-Tiefe konnte bei allen von uns bisher untersuchten Jod-Sorptionsmaterialien eine weit überproportionale Erhöhung der Einsatzzeit erreicht werden.

Abb. 13 zeigt die Alterung von LMS 13 X Ag in Industrieluft an einem zukünftigen Reaktorstandort. In diesem Fall erfolgte ein starker Durchgriff der Alterung auf das zweite Filterbett, der sich in einem relativ steilen Abfall des Gesamtabscheidegrades über 5 cm Bett-Tiefe bemerkbar machte. Versuche mit Vorbetten aus silberfreien Molekularsieben brachten keine besseren Ergebnisse.

Abschließend kann aufgrund umfangreicher Alterungsmessungen an verschiedensten Jod-Sorptionsmaterialien gesagt werden, daß die

sehr wenig, von 99,998 auf 99,997 %, abgesunken war. Im ersten Filterbett trat jedoch im gleichen Zeitraum ein starker Abfall des Abscheidegrades von 90,6 auf 50,3 % auf. Aus diesen Werten geht, wie zu erwarten, hervor, daß die Alterung des Jod-Sorptionsmaterials von der Rohluftseite her erfolgte. Die differentiellen Abscheidegrade, d. h. die Abscheidegrade jedes einzeln für sich ausgewerteten Filterbettes (die in Abb. 12) nicht eingetragen wurden) zeigen bereits für das zweite Filterbett kein Absinken der Abscheideleistung innerhalb von 5,2 Monaten. Das erste Filterbett

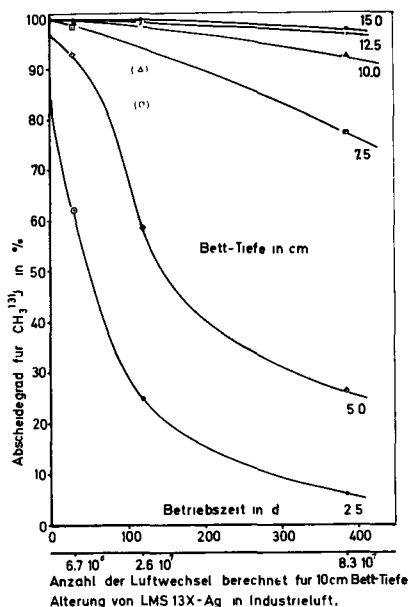


Abb. 13

Aktivkohlen oder anorganischen Jod-Sorptionsmaterialien mit Silber oder Silbersalzimprägnierung verlängert werden kann.

Die Versuche, die den graphischen Darstellungen dieses Vortrages zugrundeliegen, wurden mit Apparaturen durchgeführt, die im folgenden Seminarvortrag "Prüfung von Jodfilteranlagen" eingehend beschrieben werden. An gleicher Stelle wird ebenfalls die angewandte Präparations- und Meßtechnik angegeben.

Literaturverzeichnis

- (1) D.H.F. Atkins and A.E.J. Eggleton, Iodine Compounds Formed on Release of Carrier-Free Iodine-131, AERE-M-1211 (1963).
- (2) J.J. Hillary and J.G. Taylor, The Civil AGR Highly Active Gas Treatment Test, UKAEA, TRG Report 888(W) (1965).
- (3) R.E. Adams, W.E. Browning, Jr., Wm. B. Cottrell, G.W. Parker, The Release and Adsorption of Methyl Iodide in the HFIR Maximum Credible Accident, USAEC-Report ORNL-TM-1291 (1965).

Verwendung von flachen Filterbetten, die häufig ohne ausreichenden Alterungszuschlag ausgelegt werden, unzweckmäßig und auch vom Sicherheitsstandpunkt her völlig abzulehnen ist. Der Kostenaufwand für die häufige Erneuerung und ggf. nachfolgende Prüfung steht in keinem Verhältnis zu den Einsparungen an Jod-Sorptionsmaterial in der einzelnen Filtereinheit.

Vergleichende Untersuchungen zeigten, daß mit jodimprägnierten Aktivkohlen relativ kurze Betriebszeiten erreicht werden und die Einsatzzeit der Jodfilter bei Verwendung von triäthylendiaminimprägnierten

- (4) G.W. Parker, G.E. Creek, A. Ferreli, Retention of Methyl Iodide by Impregnated Carbons under Ambient Conditions, CONF-660904 (1966), S. 199.
- (5) D.A. Collins, L.R. Taylor, R. Taylor, The Development of Impregnated Charcoals for Trapping Methyl Iodide at High Humidity, TRG 1300(W) (1967).
- (6) W.J. Maeck, D.T. Pence, J.H. Keller, A Highly Efficient Inorganic Adsorber for Airborne Iodine Species, CONF-680821 (1968), S. 185.
- (7) J.G. Wilhelm, Trapping of Fission Product Iodine with Silver-Impregnated Molecular Sieves, Actes du Congres Saclay, 4. - 6. Nov. (1969), S. 265.
- (8) J.G. Wilhelm, H. Schüttelkopf, Inorganic Adsorber Materials for Trapping of Fission Product Iodine, CONF-700816 (1970), S. 568.
- (9) J.G. Wilhelm, H. Schüttelkopf, An Inorganic Adsorber Material for Off-Gas Cleaning in Fuel Reprocessing Plants, CONF-720823 (1972), S. 540.
- (10) Ch. Donner, T. Tamberg, Zur Abscheidung von Methyljodid und Aethyljodid an Silber-Zeolithen, Atomwirtschaft 16, 28 (1971).
- (11) W.C. Schmidt, Treatment of Gaseous Effluents, TID-7534 (1957), S. 371.
- (12) K.C. Patil, C.N.R. Rao, J.W. Lacksonen, C.E. Dryden, The Silver Nitrate-Iodine Reaction: Iodine Nitrate as the Reaction Intermediate, J. Inorg. Nucl. Chem. 29 (1967), S. 407.
- (13) G.D. Parfitt, A.L. Smith, A.G. Walton, J. Phys. Chem. 69 (1965), S. 661.
- (14) J.G. Wilhelm, H.G. Dillmann, K. Gerlach, H. Schüttelkopf, Jod-filterprogramm, in KFK 1565 (1971), S. 175.

- (15) J.G. Wilhelm, Adsorbentmaterialien zur Abscheidung von Spaltjod aus den Abgasen kerntechnischer Installationen, Reaktortagung 1970, Tagungsbericht, S. 339.
- (16) D.T. Pence, F.A. Duce, W.J. Maeck, Developments in the Removal of Airborne Iodine Species with Metal-Substituted-Zeolites, CONF-720823 (1972), S. 417.
- (17) J. Caron, J. Vandermeersch, A. Charmathieu, M.F. Thal, Piégeage de l'iode et de l'iodure de méthyle à température élevée, Actes du Congrès, Saclay (1969), S. 285.
- (18) H. Schüttelkopf, J.G. Wilhelm, Jodfilterprogramm, in KFK 1365 (1970), S. 110.
- (19) J.G. Wilhelm, H.G. Dillmann, K. Gerlach, Testing of Iodine Filter Systems under Normal and Postaccident Conditions, CONF-720823 (1972), S. 434.
- (20) A.G. Evans, Effect of Intense Gamma Radiation on Radioiodine Retention by Activated Carbon, CONF-720823 (1972), S. 401.
- (21) C.E. Junge, Air Chemistry and Radioactivity, Academic Press, New York (1963).
- (22) J.G. Wilhelm, H.G. Dillmann, J. Furrer, K. Gerlach, Filterprogramm, in KFK 1818 (1972), S. 93.

THE BEHAVIOUR OF IODINE SPECIES IN THE WINDSCALE AGR

J.J. Hillary

U.K.A.E.A.

Windscale - U.K.

SUMMARY. Iodine-131 has been released into the coolant of WAGR from a number of deliberately or operationally defected fuel pins. This iodine has been found principally in the form of methyl iodide and, based on the majority of the results, has a chemical decomposition half-life, due to plate-out during passage round the gas circuit, of about 2 1/2 min. Methyl iodide which was injected separately into the circulating coolant was found to have a similar half-life. The ratio of the steady state Iodine-131 release from the fuel to that remaining gas borne was found to be 4,500. The deposition of iodine has been observed on the cooler surfaces of the heat exchangers. The deposition velocity, corresponding to a 2 1/2 min half-life, for these heat exchanger surfaces was 0.02 cm/sec.

RESUME. COMPORTEMENT DES COMPOSES IODES A L'AGR A WINDSCALE. De l'iode 131 a été libéré dans le réfrigérant du réacteur WAGR par un certain nombre de crayons de combustibles endommagés délibérément ou en exploitation. Cet iode apparaissait principalement sous forme d'iodure de méthyle et, d'après la majorité des résultats, avait, compte tenu du dépôt au cours du passage dans le circuit gazeux, une période de décomposition chimique d'environ 2,5 minutes. De l'iodure de méthyle injecté séparément dans le réfrigérant en circulation avait une période similaire. Le rapport entre l'iode libéré du combustible en régime continu et l'iode restant sous forme gazeuse était de 4.500. On a constaté un dépôt d'iode sur les surfaces plus froides des échangeurs thermiques. La vitesse de déposition, correspondant à une période de 2,5 minutes, sur ces surfaces des échangeurs était de 0,02 cm/sec.

KURZFASSUNG. VERHALTEN VON JOD UND JODVERBINDUNGEN IM AGR-REAKTOR VON WINDSCALE. Jod-131 wurde aus einer Reihe absichtlich oder während des Betriebs beschädigter Brennstoffstäbe in das Kühlmittel des WAGR eingeführt. Dieses Jod wurde hauptsächlich in Form von Methyljodid wiedergefunden; aus der Mehrzahl der Ergebnisse liess sich eine chemische Zerfallrate entsprechend einer Halbwertszeit von etwa 2,5 Minuten ableiten, die auf das Niederschlagen an Wandungen während des Durchgangs durch den Gaskreislauf zurückzuführen ist. Methyljodid, das getrennt davon in das umlaufende Kühlmittel eingegeben wurde, wies eine ähnliche Halbwertszeit auf. Für das Verhältnis zwischen dem aus dem Brennstoff im Gleichgewicht abgegebenen Jod-131 und dem in der Gasphase befindlichen Jod wurde ein Wert von 4.500 ermittelt. Die Ablagerung von Jod wurde insbesondere an den kühleren Flächen der Wärmeaustauscher beobachtet. Die Ablagerungsgeschwindigkeit auf diesen Wärmeaustauscherflächen beläuft sich entsprechend einer Halbwertszeit von 2,5 Minuten auf 0,02 cm/s.

INTRODUCTION

1. Advanced gas cooled reactors (AGRs), commercial developments of the Windscale prototype, are under construction at a number of sites in the United Kingdom. UK siting criteria impose strict limits on the release of radioactivity. A knowledge of the behaviour of the more hazardous fission product nuclides is therefore required. One of the most important nuclides to be considered in an assessment of the potential hazard arising from the postulated release of radioactivity from an AGR is iodine-131,⁽¹⁾ and the behaviour of this isotope, including its likely chemical form, has been studied in the Windscale AGR.

2. Several fuel pins with deliberately defective cans have been irradiated in the Windscale AGR. Associated with these experiments, a ^{131}I monitoring programme has been carried out, in which CO_2 coolant from channels containing this experimental fuel, and from other channels, has been passed through samplers which permitted the physical and chemical form of the iodine to be assessed by selective filtration, sorption or reaction. The release of iodine from operational fuel pin failures has also been studied. A separate experiment, in which methyl iodide was injected into the reactor coolant circuit, was carried out. It should be noted that although this work was carried out during a period in which a number of fuel pins in WAGR became defective, more recently the reactor has been operated, for a period of about 2 years, with no fuel pin failures.

EXPERIMENTS

Gas sampling

3. Reactor coolant gas samples were taken from the exit point of each experimental (defected) fuel channel, from the exit of a channel near the outer edge of the core which contained no fuel or normal, undefected fuel, and in some cases from the return sections of two heat exchangers (Fig.1). After flowing along some tens of feet of small bore mild steel piping, where it cooled to near ambient temperature, the gas sample was passed through Maypack type samplers (Fig. 2). The flowrate was normally equivalent to 45 l/min at 20°C, 760 mm, and the sampling period varied from a few minutes to several hours. The sampler consisted of the following components, listed in the order in which the coolant sample was presented to them:

- (a) six acid cleaned copper gauzes to react with elemental iodine;
- (b) millipore membrane filter to trap particulates;
- (c) three charcoal papers to collect relatively readily sorbed iodine vapour compounds;
- (d) two portions of 50 ml 207B coal based charcoal, usually impregnated with potassium iodide (18-52 mesh) to trap penetrating iodine vapour compounds such as methyl iodide.

4. In later packs the charcoal papers were omitted. The ^{131}I activity on each component of the pack was subsequently measured by gamma spectrometry techniques. The second of the two charcoal components has always been found to be virtually free from iodine.

5. Gas samples were usually taken with the reactor under full power operating conditions.

6. A gas chromatographic method was used for identification of the gas-borne iodine species leaving one of the experimental (defected) fuel channels. The iodine compounds were first concentrated from the gas phase by passage through a 30 cm long x 5 mm diameter column of 30% silicone oil on celite, cooled to -70°C , at a flow rate of 0.4 l/min for half an hour. The sorbed iodine compound(s) were then eluted at 100°C in a flow of nitrogen into a further column which consisted of a 4 m long x 5 mm diameter bed of 10 w/o squalane on PTFE, which was held at $50 \pm 1^{\circ}\text{C}$. Nitrogen gas was again used as eluant and the sorbed ^{131}I activity was counted on a gamma scintillation measuring device, after concentration by freezing on cold charcoal. The system was calibrated with labelled methyl iodide prepared by passing an inert gas (argon or helium) through a mixture of dimethyl sulphate and an aqueous solution of $\text{Na}^{127}\text{I} + \text{Na}^{131}\text{I}$.

Methyl iodide injection

7. The experiment was carried out with the reactor at full power. The injection was made at a humidrier return point. Gas samples were withdrawn through Maypack samplers from a channel which contained no defective fuel and from a heat exchanger outlet.

8. The apparatus used for the injection is shown in Fig. 3. Methyl iodide

(50 mCi or ~ 10 mg) was prepared as above and condensed into a silica capsule by cooling with liquid nitrogen. The capsule was subsequently sealed and transferred to the steel injection apparatus. The latter, which was enclosed in a glove box situated inside the reactor containment building, was connected to the reactor pressure circuit through valves. The capsule was inserted into the apparatus with its stem projecting through an open ball valve. The methyl iodide was released at 20°C into the pressurized CO₂ by rotating the valve, which crushed the capsule stem, and was displaced quickly into the reactor coolant circuit by successive pressure purges.

9. A background gas sample was withdrawn at each station before the injection was made, followed by a series of consecutive samples over the ensuing half-hour.

Heat exchanger surfaces

10. Immediately following the occurrence of the first operational fuel pin failure, entry was made to the interior of a heat exchanger at reactor shutdown and specimens of various steels which had been suspended in the reactor coolant flow at various temperatures were withdrawn and analysed for ¹³¹I. A sample of economizer fin was also taken at this time.

RESULTS AND DISCUSSION

11. Iodine-131 which has been released into the gas phase from hot irradiated fuel is found in various physical and chemical forms, principally free elemental iodine, attached to particles, or combined with organic material mainly as methyl iodide.

12. During the Windscale AGR coolant monitoring programme, virtually all the iodine found in the sampler is thought to have been in the form of methyl iodide. Typically, less than 10% of the iodine was found on the sampler components other than the charcoal granules. On one or two occasions the presence of methyl iodide was confirmed by the gas chromatography technique. However, much of any molecular and particle-borne iodine present would probably have been deposited during passage along the narrow bore steel sample pipe.

13. The results of the measurements made on coolant samples are plotted in Fig. 4, which presents the variation with time, separately, of the iodine concentration c_d found in the channel or channels known to contain defective fuel (as indicated by failed fuel detection gear) and the corresponding concentration c_c of iodine in a channel or channels (and in early work at heat exchanger outlets) which were known not to contain defective fuel; Fig. 5 plots the ratios of c_d/c_c when simultaneous measurements were taken. Where the measurements indicated that fission products were being released in more than one channel, c_d was calculated by summing the separate contributions.

14. It is convenient to consider the results (Figs 4 and 5) in three phases:

- (a) deliberately defected fuel data, days 0 to 375;
- (b) deliberately defected fuel pins plus individually occurring operational failures, days 375 to 800;
- (c) the period (800 days onwards) in which operational failures occurred more frequently, and occasionally such that more than one was present in the core at any one time.

15. During phase (a), the ratio c_d/c_c (Fig. 5) had an arithmetic mean value of 37, and over two-thirds of the individual values lay within 50% of the mean; one very low value of 6.4 (day 173) is regarded as spurious. The mean value for the c_d/c_c for phase (b) was 29, with three-quarters of the values lying within 50% of the mean.

16. During phase (c), the mean value for c_d/c_c was 22 and a much wider scatter is evident. However, the four low values (5-7) which were based on the fission product emission from a known deliberately failed pin and were obtained in the period from 844 to 847 days were measured at a time when the failed fuel detection gear background had risen but no individual channels could be identified in which this signal indicated a positive fuel failure. This does not necessarily imply that ^{131}I was not being released, since its radioactive half-life is much longer than the fission gas isotopes which are used for failed fuel detection and it would more readily escape the can. Further, since only a few channels could be sampled simultaneously for ^{131}I , and a complete core scan, channel by channel, could only be carried out over a period of several days, it is likely that the pin which was releasing ^{131}I

(especially if this emission was intermittent) may not have been identified. An accidentally failed fuel pin was detected a few days later. Similar considerations apply to the ratio value of 4.3, measured on day 1126; a failed fuel pin was detected a short time later on the same day. The ratio value of 3.2 obtained on day 1043 is probably spurious. If these low values which occurred during phase (c) are ignored for the reasons explained above, the arithmetic mean value becomes 29. The overall mean value, for c_d/c_c , phases (a), (b) and (c) is 33.

17. The half-life of ^{131}I for removal by deposition in the circuit which corresponds to this ratio can be calculated. The production rate is estimated from the product of the 'dirty' channel ^{131}I concentration c_d , and the flowrate of coolant in the channel (2 kg/s) whilst the decay rate is equal to $c_c m \ln 2 / T$ where c_c is the 'clean' channel (or heat exchanger) ^{131}I concentration, m is the total mass of coolant (14,700 kg) and T is the half-life of iodine in the circuit. Thus, at equilibrium, $c_d f = c_c m (\ln 2 / T)$.

18. The ratio c_d/c_c of 33 corresponds to a chemical decomposition half-life of 2.6 min. A similar half-life of 3 min was found for methyl iodide-131 injected into the coolant circuit.

19. It is to be noted that a small amount of iodine always remains gas borne. This amount ($c_c m$) expressed as a fraction of the total steady-state release of iodine from the defective fuel pin, $c_d f$ times the mean life of ^{131}I (radioactive half-life of $^{131}\text{I} \div \ln 2 = 8.05 / 0.693$ days), represents the reciprocal of the total circuit decontamination factor (DF). The circuit DF corresponding to the c_d/c_c value of 33 is 4500.

20. Immediately following the first operational fuel pin failure, samples of various steels which had been suspended in the gas stream in one of the heat exchangers were removed, together with a piece of fin from the economizer, and counted for ^{131}I . The results are plotted against specimen temperature in Fig. 6, and although there is considerable scatter, they show predictably a tendency for iodine to be held at the cooler end of the heat exchanger, ie on economizer and evaporator sections, at temperatures below about 300°C. Some variation with the surface condition of the steel sample was noted, more iodine being found, as expected, on roughened material.

21. The total ^{131}I found on the heat exchanger economizer and evaporator surfaces, assuming the small steel samples were representative, was 1.3 Ci at reactor shut-down. The measured, approximately steady state (Fig. 4) ^{131}I release from that first failure was 1.5 Ci, thus showing that the major proportion of the ^{131}I release was deposited on these heat exchanger surfaces.

22. Assuming that the economizer and evaporator surfaces of the Windscale AGR are effective sorbents for gas-borne ^{131}I under normal full-power operating conditions, these results may be conveniently expressed in terms of a deposition velocity, V_g which then affords a convenient basis for comparison with other work. In this case, V_g represents the ratio of the circuit gas volume V to available area for deposition A multiplied by the decay constant (or $\ln 2/T$) for iodine in the circuit. For a chemical decomposition half-life T of 2.6 min, circuit volume of 3×10^4 cu. ft and economizer and evaporator area of 1.7×10^5 sq. ft,

$$V_g = \frac{V \ln 2}{AT} = 0.024 \text{ cm/s.}$$

CONCLUSIONS

23. Iodine-131, released into the Windscale AGR from deliberately or operationally failed fuel pins, is found principally in the form of methyl iodide.

24. The majority of the results indicate that this iodine has a chemical decomposition half-life of $2\frac{1}{2}$ min; methyl iodide, separately injected into the coolant circuit, was found to have a similar half-life. This half-life corresponds (a) to a ratio of the steady state ^{131}I release from the fuel pin to that which remains gas-borne of 4500, which is thus the overall circuit decontamination factor, and (b) to a deposition velocity of 0.02 cm/s to the cooler parts of the heat exchangers, where iodine was found to have been deposited.

REFERENCE

1. BEATTIE, J R and BRYANT PAMELA M. Assessment of environmental hazards from nuclear fission product releases. AHSB(S)R 135, 1970.

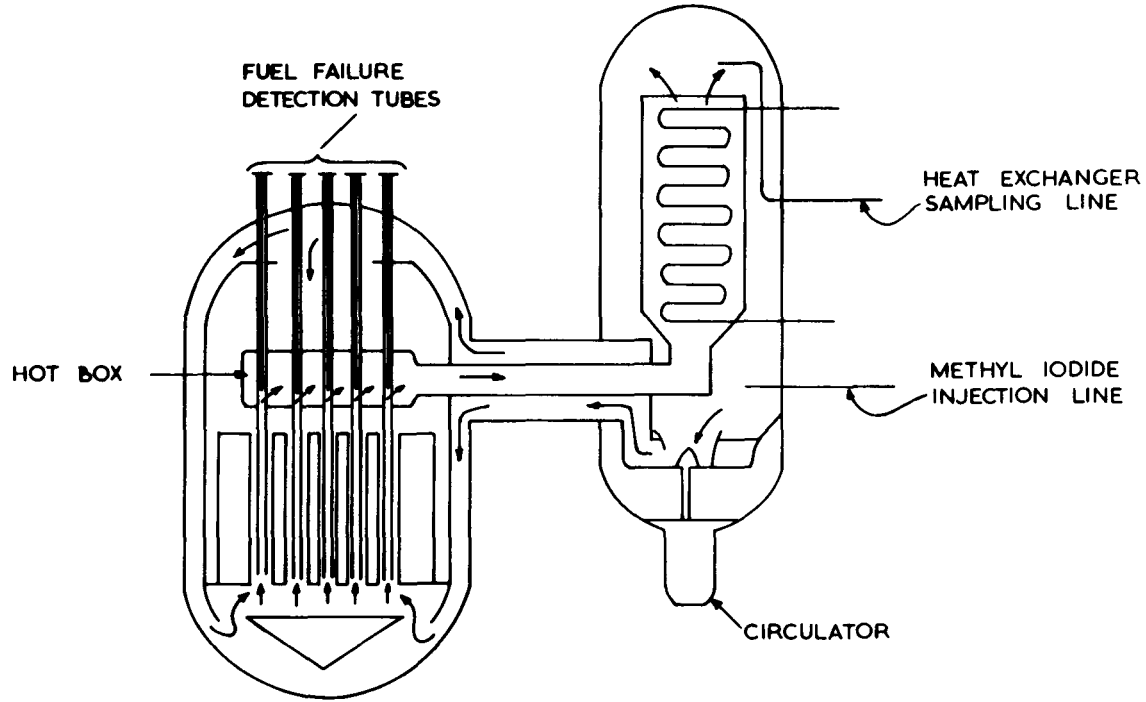


FIG.1. SAMPLING AND INJECTION POINTS IN THE WAGR GAS CIRCUIT.

COMMERCIAL

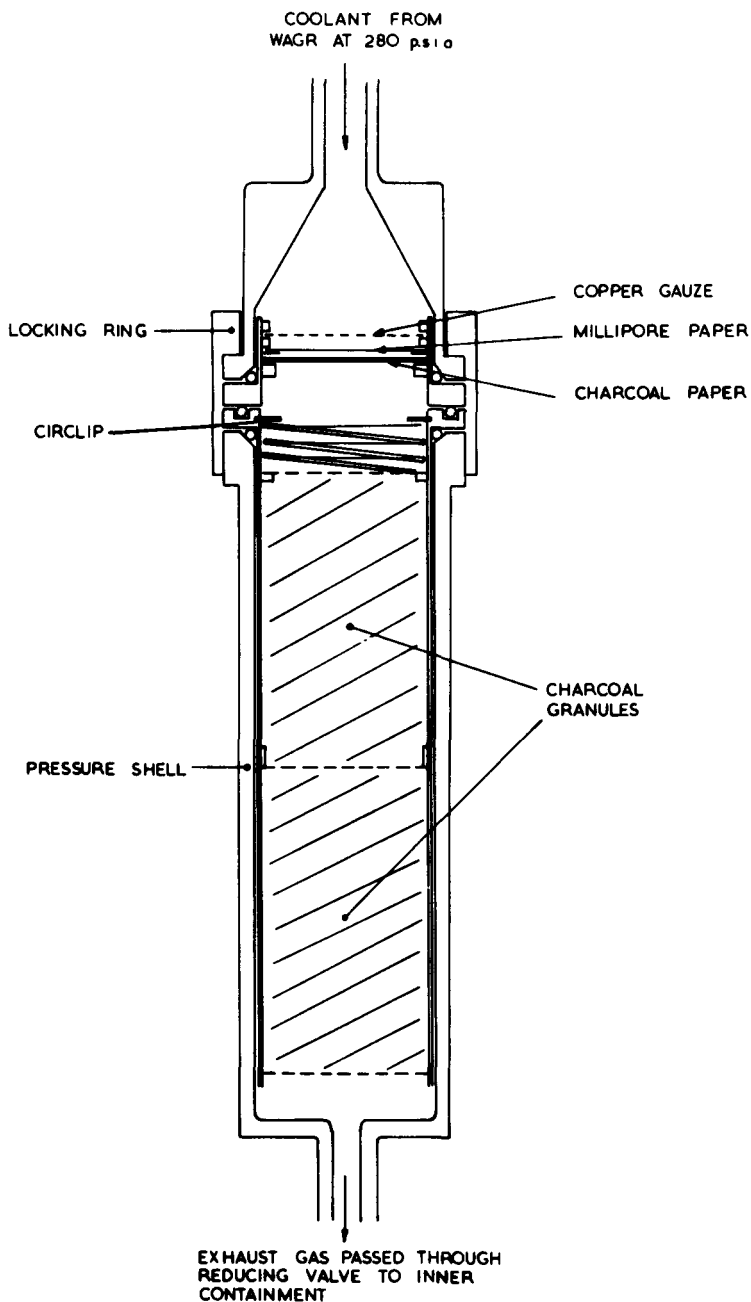


FIG. 2. SAMPLING PACK.

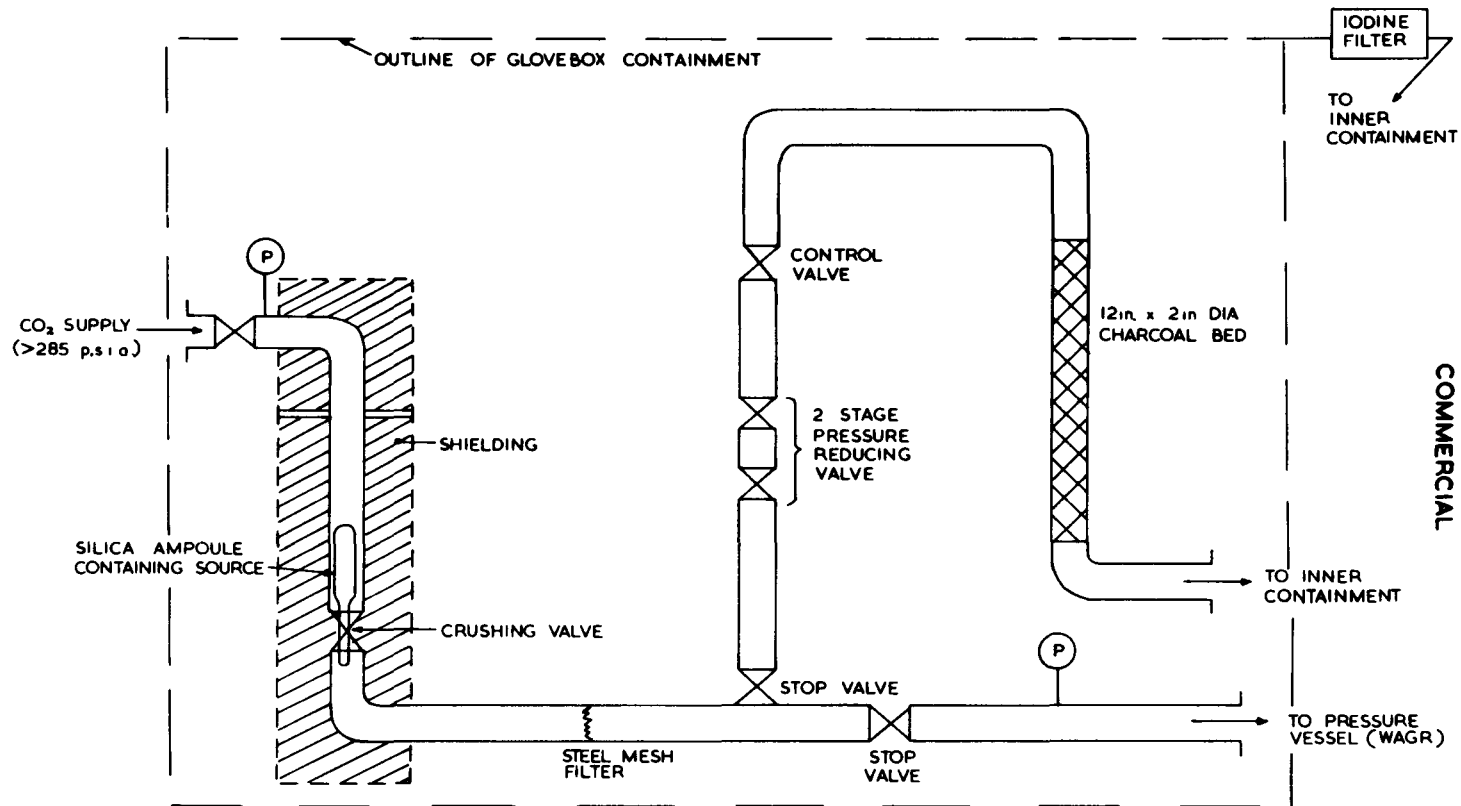


FIG. 3. METHYL IODIDE INJECTION APPARATUS.

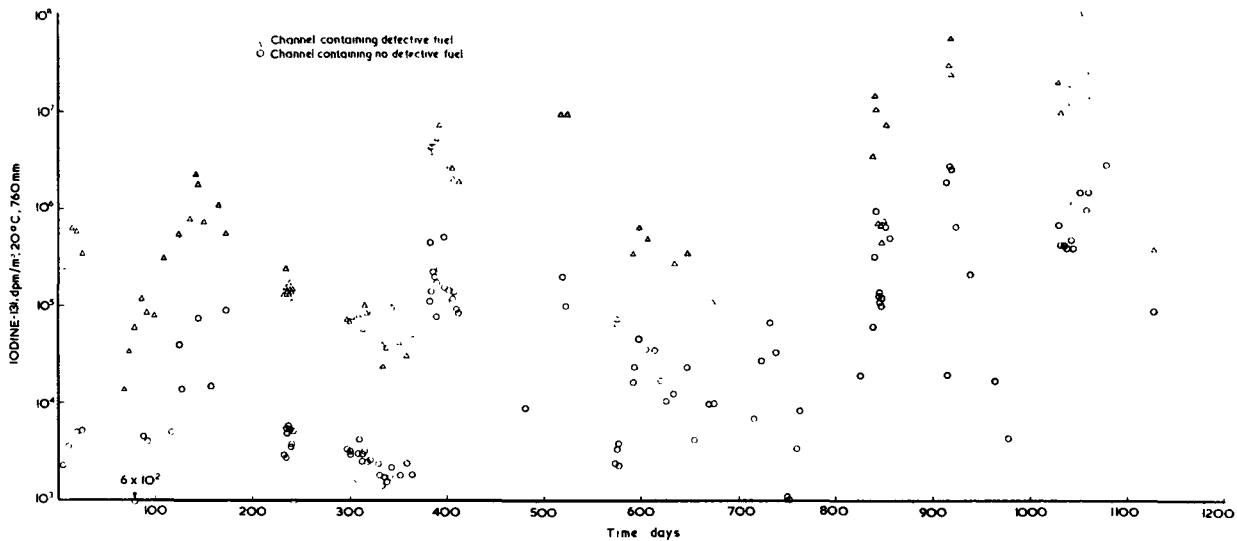


Fig. 4. Gas borne ^{131}I concentration $_{\text{WAGR}}$

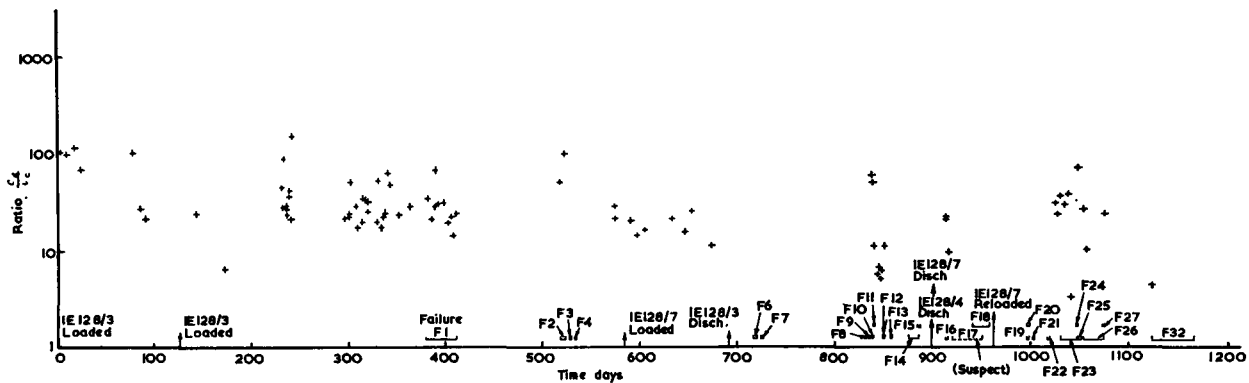


Fig. 5. Ratio c_0/c_c vs time

- LEGEND: ○ FINE MACHINE FINISH
x SAND BLASTED FINISH
● FINISH NOT KNOWN (EITHER OF ABOVE)
SS STAINLESS STEEL SPECIMEN (REMAINDER SILICON KILLED OR RIMMING STEELS)
○- LIMIT OF DETECTION VALUE

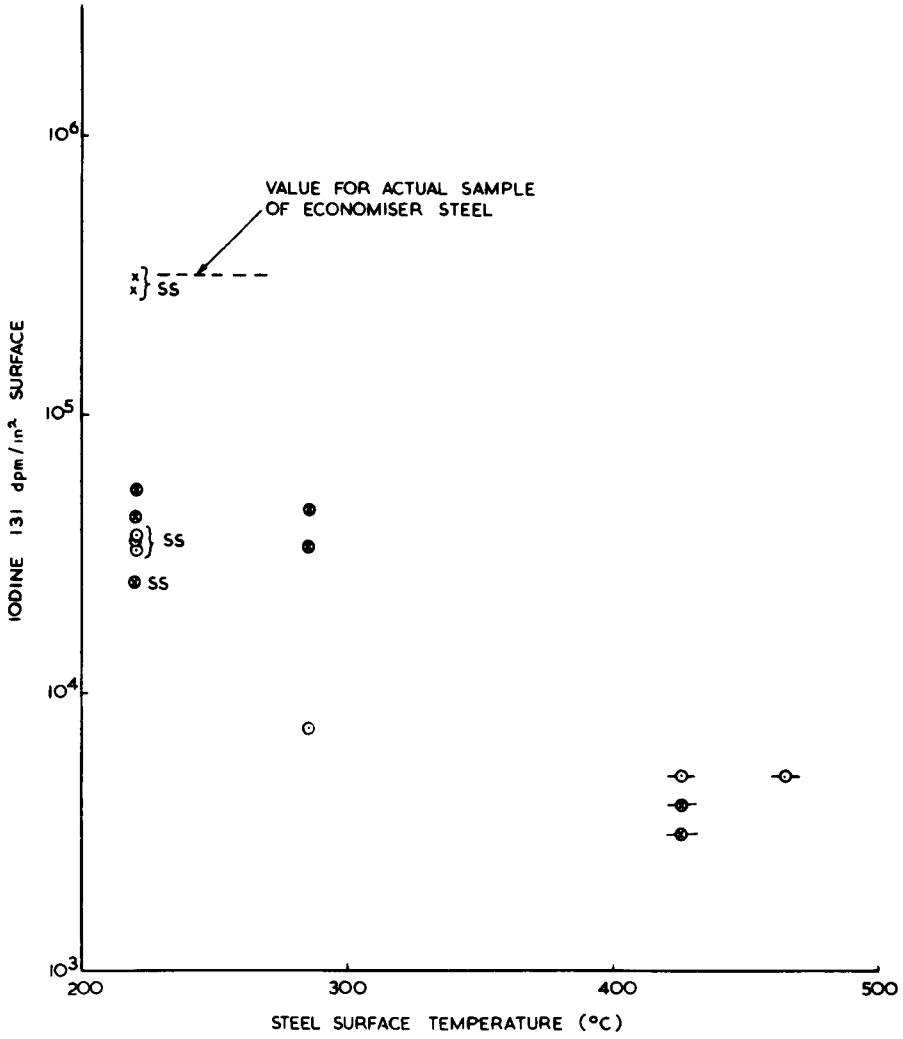


FIG.6. IODINE DEPOSITION VS HEAT EXCHANGE SURFACE TEMPERATURE.

THE RELEASE OF FISSION PRODUCTS FROM
ZIRCALOY-CLAD UO_2 FUEL AT AROUND $1000^\circ C$

J.J. Hillary and J.C. Taylor

U.K.A.E.A.
Windscale - U.K.

SUMMARY. Fission product release experiments have been carried out with Zircaloy-clad UO_2 fuel pins including two which were available from an irradiation experiment in SGHWR.

The pins were caused to fail in flowing steam at $\sim 1000^\circ C$, which are conditions relevant to some SGHWR fault situations, and the escaped fission products Xe-133, I-131, and in some cases Kr-85, were trapped and measured.

The results of these experiments are assessed with a view to providing the best present estimates of inert gas/I-131 release ratios for use in reactor incident evaluation.

RESUME. EMISSION DE PRODUITS DE FISSION PAR DU COMBUSTIBLE A L' UO_2 GAINÉ DE ZIRCALOY PORTE A ENVIRON $1000^\circ C$. Des essais d'émission de produits de fission ont été faits avec des crayons d' UO_2 à gaine de zircaloy, dont deux provenaient d'une expérience d'irradiation au SGHWR.

Les crayons ont été rendus défectueux dans un courant de vapeur à $\sim 1000^\circ C$, ce qui reproduit des conditions types de certains incidents du SGHWR et on a capté et mesuré les produits de fission émis Xe-133, I-131, et dans certains cas Kr-85.

Le but de ces expériences est d'obtenir de meilleures estimations du rapport entre gaz inertes et I-131 libérés pour servir à des évaluations d'accident de réacteurs.

KURZFASSUNG. FREISETZUNG VON SPALTPRODUKTEN AUS UO_2 -BRENNNELEMENTEN MIT ZIRCALOY-HUELLEN BEI ETWA $1.000^\circ C$. Es wurden Versuche zur Freisetzung von Spaltprodukten aus UO_2 -Brennstoffstäben mit Zircaloy-Hüllen durchgeführt; zwei davon stammten aus einem Bestrahlungsversuch im SGHWR-Reaktor.

Die Stäbe wurden nach Einbringen in einen Heissdampfstrom bei $\sim 1.000^\circ C$ beschädigt; dies sind Bedingungen, die für gewisse Störfälle beim SGHWR-Reaktor typisch sind. Die freigesetzten Spaltprodukte Xe-133, I-131 und bei einigen Versuchen auch Kr-85 wurden eingefangen und gemessen.

Die Ergebnisse dieser Versuche werden daraufhin geprüft, ob sie die derzeit beste Bestimmung des Verhältnisses der Freisetzungsraten von Edelgasen/Jod-131 abgeben, die bekanntlich für die Abschätzung der Folgen von Reaktorunfällen benötigt werden.

INTRODUCTION

1. A programme of work previously carried out under conditions relevant to postulated depressurisation incidents in the SGHWR included experiments to measure fission product release at temperatures $\sim 1000^{\circ}$ in flowing steam. These experiments used small Zircaloy-clad UO_2 fuel pins that had been irradiated in an MTR.⁽¹⁾

2. More recently, fuel pins from an irradiation experiment in SGHWR became available, and since these corresponded more closely in size and irradiation conditions to typical SGHWR fuel, the above work was extended by two additional failure tests using these pins in a modified experimental assembly.

EXPERIMENTAL

3. The small pins used for the earlier part of the work consisted of a 38 mm length of UO_2 of 14.5 mm diameter contained in a helium-filled 0.63 mm thick Zircaloy-2 can. At one end of the fuel a plenum occupied 10% of the can volume, and the total pin length was 63 mm. The conditions of irradiation in an MTR were such that the can temperature was maintained at about $300^{\circ}C$ with ratings varying from 21 to 43 kW/kgU. The highest ratings gave a calculated fuel centre temperature of $> 2000^{\circ}C$ and should have released a substantial amount of fission products from the UO_2 matrix.

4. The experimental conditions under which the fission products were released from the pin have been previously described in detail⁽¹⁾, and release temperatures are given again in Table I. Briefly, the pin was mounted vertically in a silica chamber and was held for a period at $300^{\circ}C$ in a stream of superheated steam to allow fission products near the can wall to attain chemical equilibrium with their environment at a temperature close to that of normal operation. It was then heated by RF induction to $\sim 1000^{\circ}C$ and the can was punctured by a laser beam focussed at the plenum surface. The fission products discharged from the pin were carried through a chamber at $100^{\circ}C$ where they contacted evaporating water sprayed by an air jet, and after passing through a hot demister were led through a

condenser, water bubbler and cold demister to a fission product trap of copper gauze, 'absolute' glass fibre paper, charcoal paper and charcoal granules. A gas sampling point before this trap enabled the inert fission gas release to be measured, and the helium release to be checked against the amount used in filling the pin. The I-131 was measured on rig components and in the water by standard γ -spectrometric techniques.

5. The large-scale experiments used 1.14 m long pins from an experimental assembly, irradiated in SGHWR to 3160 Mwd/teU at a final mean rating of 20.4 kW/kgU, and were the most highly-rated available from the outer ring of the centre segment of the fuel cluster. The fuel consisted of a stack of solid UO_2 pellets 17.8 mm diameter and density 10.6 g/cm^3 enriched to 1.9% U^{235} , and was clad in 0.45 mm thick Zircaloy-2. The fuel decay time was 9-10 weeks at the time of carrying out the failure tests.

6. A simplified flow diagram of these release experiments is given in Fig. 1, and an experiment is described in detail in the Appendix.

7. The cleaned fuel pin was mounted horizontally in a silica containment tube within a resistance furnace, which maintained a constant temperature along the pin. After initial purging with argon, steam was added to the gas flow and the pin was heated. Since the rate of temperature rise was relatively slow compared with the RF heating of the small pins, the temperature was taken steadily to $\sim 1000^\circ\text{C}$ without pausing at 300°C . The laser was fired through a hole in the furnace wall at $\sim 1000^\circ\text{C}$ and the temperature was either increased or maintained for some time after failure. The effluent gas was led from the furnace tube to a water-cooled condenser and demister, and the majority of the uncondensed argon was then passed to a fission product trap comprising a coarse cotton-wool plug, copper mesh, a glass fibre 'absolute' paper, charcoal paper and a bed of activated charcoal granules; a proportion of the outlet flow was taken from just upstream of the fission product trap, and was retained in evacuated gas sample bulbs.

8. The gas was subsequently analysed by γ - and mass-spectrometry. The silica furnace tube, rig components downstream of this, and condensed water were examined by standard γ -spectrometric techniques.

9. A summary of the conditions that applied during the experiments is included in Table II. In these experiments with the longer fuel pins, considerable reaction of Zircaloy with steam at temperatures upwards of 750°C was indicated by increased outlet gas flow, while at temperatures above 1000°C the outlet flow decreased due to hydriding. In the first experiment, which included a 38-minute period after laser firing and a final temperature of 1200°C, the Zircaloy was so embrittled that the pin broke into a number of pieces during handling subsequent to the experiment. Under the less extreme conditions of the second experiment, the Zircaloy seemed little affected.

RESULTS

10. The short pin results that have previously been reported are presented again in Table I for convenience.

11. The first two short-pin experiments used fuel irradiated at 21 and 26 kW/kgU and fission product release was very small. Releases were considerably higher from the more highly-rated fuel used in the two subsequent short-pin experiments, and from these 2% and 5% of the Xe-133 inventory was discharged. The I-131 escape was considerably smaller than that of Xe-133 and amounted to 0.2% and 0.35% respectively of the inventory.

12. The measured releases of inert gas and I-131 from the longer pins are given in Table II. The Xe-133 releases (0.065% and 0.050%) and I-131 releases (0.018% and 0.0065%) were relatively small, but considerably larger than those of the similarly rated small pins. The long-lived Kr-85 release was about 10 times greater than that of short-lived Xe-133.

13. Penetrating forms of I-131 which persisted beyond the cold demister of the short pin experimental assembly amounted to about 10% of the total I-131 release; in three cases the majority of the penetrating forms was methyl iodide, and in the fourth case, particulate.

14. The distribution of I-131 in the components of the longer pin release experiments is given in Table III. It can be seen that material passing the cotton wool plug amounted to 6.3% (in the higher temperature experiment) and 3.3% of the total iodine release. Only a proportion of the

iodine retained in the cotton wool could be classed as truly penetrating, but if this is included, the iodine remaining gas-borne at the fission product trap amounted to 9.6% and 11.1% of the total release.

15. Measurements of Cs-137 release were made only in the case of short pin experiments 3 and 4, and amounted to 0.037% and 0.27% of inventory respectively.

DISCUSSION

16. Assessment of I-131 release from reactor fuel during a depressurisation incident can be made by applying experimentally determined inert gas/I-131 release ratios to calculations of the inert gas that has been released from the matrix during the reactor life-time of the fuel.

17. Since Xe-133 and I-131 are of relatively similar half-life, the release ratios of the two isotopes gives the clearest indication of any retention processes in the pin which will limit the escape of I-131; this ratio has been termed the 'retention factor' for iodine.

18. The values derived from these experiments (neglecting short-pin tests 1 and 2 where releases were small and atypical) are 10 and 14 for the short pins, and 3.6 and 7.7 for the longer pins.

19. In other work on fission product release recently concluded⁽²⁾ it was observed that small AGR-type pins irradiated in an MTR similarly gave larger retention factors than the larger typical AGR pins irradiated in WAGR. Whether this effect is due to the difference in geometry or in irradiation conditions is not clear. It is considered, however, that the results from pins more closely resembling typical reactor fuel, and irradiated under typical reactor conditions, should be preferred for safety analysis purposes.

20. Comparing short-pin experiments 3 and 4, a larger retention factor where fission product release is greater is again in accordance with the larger number of experimental results obtained using AGR-type fuel.⁽²⁾

21. The releases of inert gas from the two longer pins were very similar,

and the difference in retention factor in these two experiments is probably due to the difference in experimental conditions during and subsequent to fission product release from the pins.

22. During the longer period and more elevated temperatures applied to the first long pin experiment, continuing iodine release processes could have been operating, and although the hole produced in the cladding by the laser was small (1 mm diameter), one cannot preclude the possibility of diffusion of steam or steam reaction products into the can. Taking into account also the extent of can reaction with steam/hydrogen and the consequent can fragility in this experiment it is considered that the experimental conditions of the first experiment were somewhat extreme in comparison to a reactor incident not involving cladding loss and fuel-coolant chemical reaction, and that the can retention factor of the second experiment is more relevant to these reactor conditions.

23. It should also be noted that the releases from the longer pins were small, and the Xe-133/I-131 release ratio could therefore be considerably affected by any processes (thermal-or corrosion-induced) which led to release of fission products directly from the matrix during the course of the experiments; such releases, being presumably proportionally equal and having little residence time in the can, would tend to reduce the Xe-133/I-131 ratio.

24. The variation of the can retention factor with temperature cannot be well established from the few available results; nevertheless if the differences between long and short pin irradiation conditions and geometry are assumed to produce little effect, and the release ratios are plotted against maximum experimental temperature for the four pins, there appears a trend for smaller retention factors at higher temperatures. (Fig. 2)

25. The results of these experiments may be compared with those from two in-pile experiments carried out by ORNL^(3,4) in which a cluster containing a central pre-irradiated fuel pin was caused to fail during a reactor transient.

26. In these latter experiments all the volatile fission products (I-131,

Xe-133, Kr-85, Cs-137) were released to roughly the same extent. Neither type of experiment is a complete simulation of an SGHWR loss of coolant accident; although the ORNL experiments were carried out in-pile and might thus seem to be more representative, the actual conditions of the ORNL fuel pins at failure may well have been further removed from an SGHWR incident in which reactor trip precedes can failure. The larger relative iodine release in the ORNL experiments may, for instance, be due to substantial fuel-coolant chemical reaction via the breached can wall (especially in the first experiment where the can had a large breach), or to excessive fuel temperature during the transient (especially in the second experiment), either of which could produce a 'burst' of activity directly from the fuel matrix.

27. In view of the above experiments and the few results from the work reported here, it is difficult to arrive at can retention factors that can be applied with confidence over a range of conditions. A value of 7 at failure temperatures up to 1000°C seems reasonably justified, but this value would almost certainly be reduced at increased temperatures.

28. The ratio of long-lived inert gas to I-131 release also provides a factor that could be used in evaluating I-131 release in reactor incident conditions. This factor, however, combines the retention factor discussed above and another factor which relates the releases of long-term to short-term isotopes from the fuel matrix. This latter factor is difficult to evaluate, and is dependent on the extent and mode of fission product release from the matrix during the lifetime of the fuel in the reactor; it would tend to increase for longer burn-up fuel, and to decrease for comparatively new fuel at low burn-up where the fission product release rate is relatively small. A value of 70 for the long-life inert gas/I-131 release ratios could be derived from the two longer pin experiments. Properly the use of this should be restricted in application to fuel of equal or greater burn-up than that of the fuel used in these experiments but if it were applied generally to reactor fuel of varied burn-up, errors resulting from its extended use would be relatively small.

29. In the short-pin experiments, only 10% or less of the total I-131 release was in a penetrating form; the furnace tube holding the fuel pin

was designed to provide minimum opportunity for iodine to deposit, and the majority of the I-131 released was captured by the water spray and the condensate.

30. In the longer pin experimental assembly, a greater extent of furnace tube surface was available for iodine deposition, but there was only poor contacting with water further downstream. Under these considerably different conditions, and even including the iodine retained on the cotton wool plug, penetrating iodine forms (mainly particulate) amounted at most to 11% of the release from the longer pins.

31. The longer pin experiments therefore bear out the conclusions derived from lute models and short-pin results⁽¹⁾ that penetrating iodine forms amount to 10% of total iodine released, but reduce the iodine retention factor from 10 to 7.

32. The series of factors proposed for deriving iodine release estimates at temperatures up to 1000°C in SGHWR fault conditions is as follows:-

	Factor for determining total iodine release	Factor for determining penetrating iodine release
Xe-133/I-131	7	70
*Kr-85/I-131	70	700
*Or Xe-134/I-131		

CONCLUSIONS

33. Values for inert gas/I-131 ratios have been derived which may be tentatively used in predicting total and penetrating I-131 release under reactor incident conditions.

34. The values are based on a very few relatively simple out-of-pile experiments with low burn-up fuel and further work should be carried out, particularly with fuel irradiated in SGHWR to high burn-up.

REFERENCES

1. COLLINS, R D, HILLARY, J J and TAYLOR, J C. Air cleaning for reactors with vented containment. TRG Report 1318(W).
2. HILLARY, J J and TAYLOR, J C. The release of fission products from AGR type fuel at around 1000°C. TRG Report 2317(W).
3. LORENZ, R A. HOBSON, D O and PARKER, G W. Final report on the first fuel rod failure transient test of a zircaloy-clad fuel rod cluster in TREAT. ORNL-4623.
4. LORENZ, R A and PARKER, G W. Final report on the second fuel rod failure transient test of a zircaloy-clad fuel rod cluster in TREAT. ORNL-4710.

APPENDIX

A typical experiment with longer fuel pins

35. After washing and drying, the fuel pin was loaded into the silica furnace tube and the final rig connections were made. The apparatus was purged with argon, leak-tested, and the argon flows were adjusted to provide 100 ml/min through the silica furnace tube and an additional 150 ml/min directly to the condenser.

36. Hot air was passed around the furnace joints to prevent condensation of water, and cooling air was directed at the laser lens. Heat was applied to the water boiler and inlet gas heater, and a water flow of 0.15 ml/min was provided to give a steam flow of 190 ml/min (NTP). The main furnace heating to the silica tube was then applied, and a proportion of the argon flow was diverted from a point just before the filter/charcoal assembly into evacuated bulbs.

37. As heating proceeded, steam condensed in the receiver downstream from the silica furnace tube; when the temperature of the furnace reached 800°C, the main outlet flowmeter began to indicate an increased flow due to hydrogen production.

38. At 1000°C the laser was fired; at this temperature the outlet flowmeter indicated that the majority of the steam had reacted by the time it had left the furnace tube. The laser puncture hole was 500 mm from the upstream end of the fuel pin, and it was not possible to determine the gas composition at this point.

39. The furnace was held close to 1000°C for some minutes, during which time an activity increase was registered by a γ -probe attached to the sample bulb. The main furnace was then switched off, followed by the water flow, water boiler, and inlet gas heater. Hot air flow to the furnace ends was discontinued, and furnace cooling was accelerated by a cool air flow. The sampling flow was terminated, the inlet argon flows were stopped, and the pin was cooled overnight in an argon atmosphere.

40. After removing the fuel pin, blanked-off ends were secured to the furnace tube which was then inserted in a Perspex container and removed for examination. The fission product content was measured by traversing the tube in front of a collimated γ -scanning device. Other rig components downstream of the furnace tube were broken down and arranged into suitable geometries for γ -spectrometric analysis. The gas bulbs were sampled and the gas samples were analysed by γ - and mass-spectrometry.

TABLE I

Iodine release from Zr-2 clad UO₂ at 1000°C (small pins)

All results expressed as % of total fuel inventory (Xe-133 or I-131)

Test No.	Rating (end of irradiation) kW/kgU	Fuel burn-up MWd/teU	Calc. fuel centre temp. °C	Release temp. °C	Xe-133 escape from can %	I-131 escape from can %	I-131 penetrating condensing/ contacting system %
1	21	1150	1080	925	not measured	10 ⁻⁵	10 ⁻⁶
2	26	360	1290	700	0.1	5 x 10 ⁻⁵	6 x 10 ⁻⁶
3	39	850	2030	1050	2	0.20	0.02
4	43	1300	2300	900	5	0.35	0.02

TABLE II

Iodine release from longer fuel pins

All results expressed as % of total fuel inventory (Xe-133 or I-131)

Test No.	Rating (end of irradiation) kW/kgU	Fuel burn-up MWd/teU	Failure temp. °C	Max temp. after failure °C	Time above failure temp. after failure min	Inlet gas comp. by vol at 100°C H ₂ O/Ar	Outlet gas comp. by vol during and subsequent to failure H ₂ /Ar	Xe-133 %	Kr-85 %	I-131 %
1	20.4	3160	1050	1200	38	1.94	0.5	0.065	0.56	0.018
2	20.4	3160	1020	1040	4	1.45	1.0	0.050	0.65	0.0065

TABLE III

Distribution of I-131 released from longer fuel pins

Results expressed as % of total fuel inventory

	Experiment 1	Experiment 2
Furnace tube	48.2	78.1
Condensed water	19.1	7.6
Demister	21.9	0.7
PVC lines and other rig surfaces	1.2	➤ 2.5
Fission product trap		
Cotton wool plug	➤ 3.3	7.7
'Penetrating' species {		
Copper mesh	0.53	0.13
Absolute filter	5.7	3.1
Charcoal paper	0.03	0.01
Charcoal granules	0.04	0.16

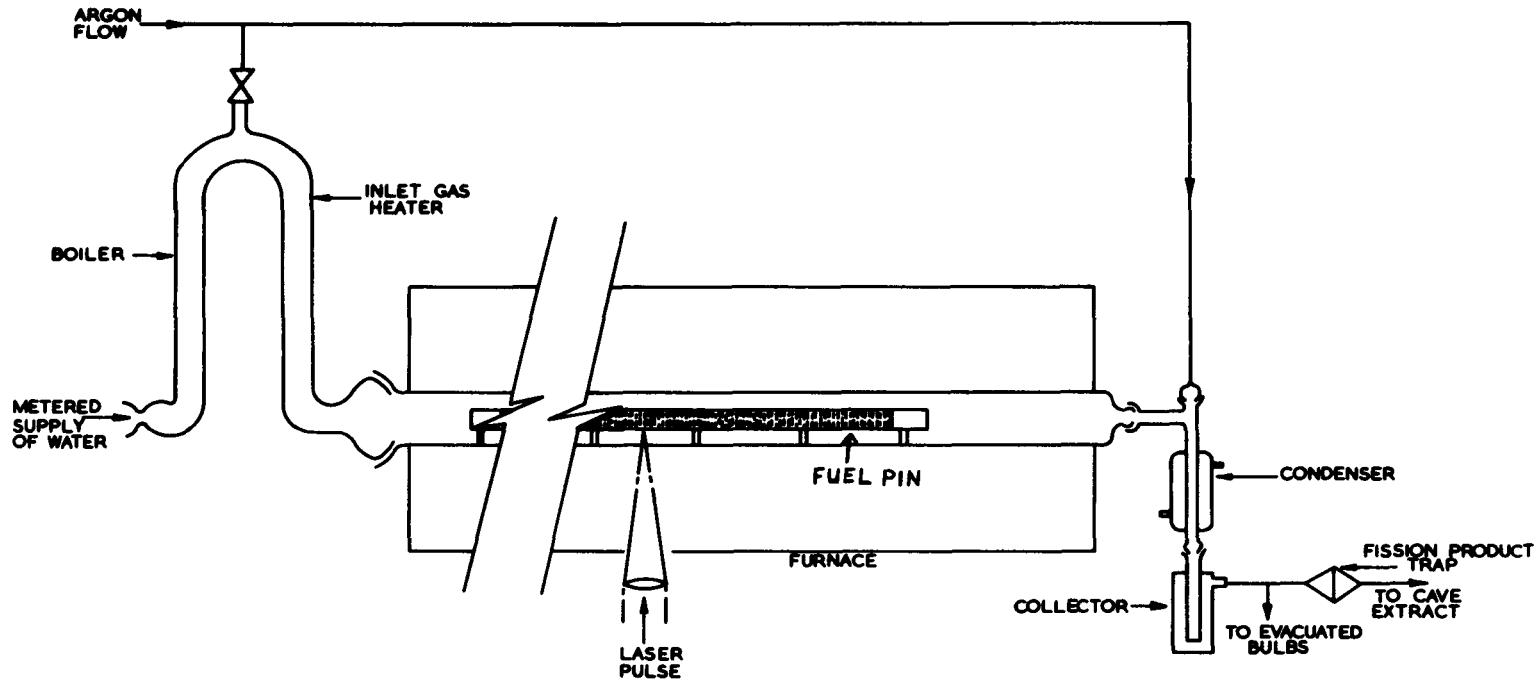


FIG.1. FLOW DIAGRAM FOR LONGER PIN RELEASE EXPERIMENTS

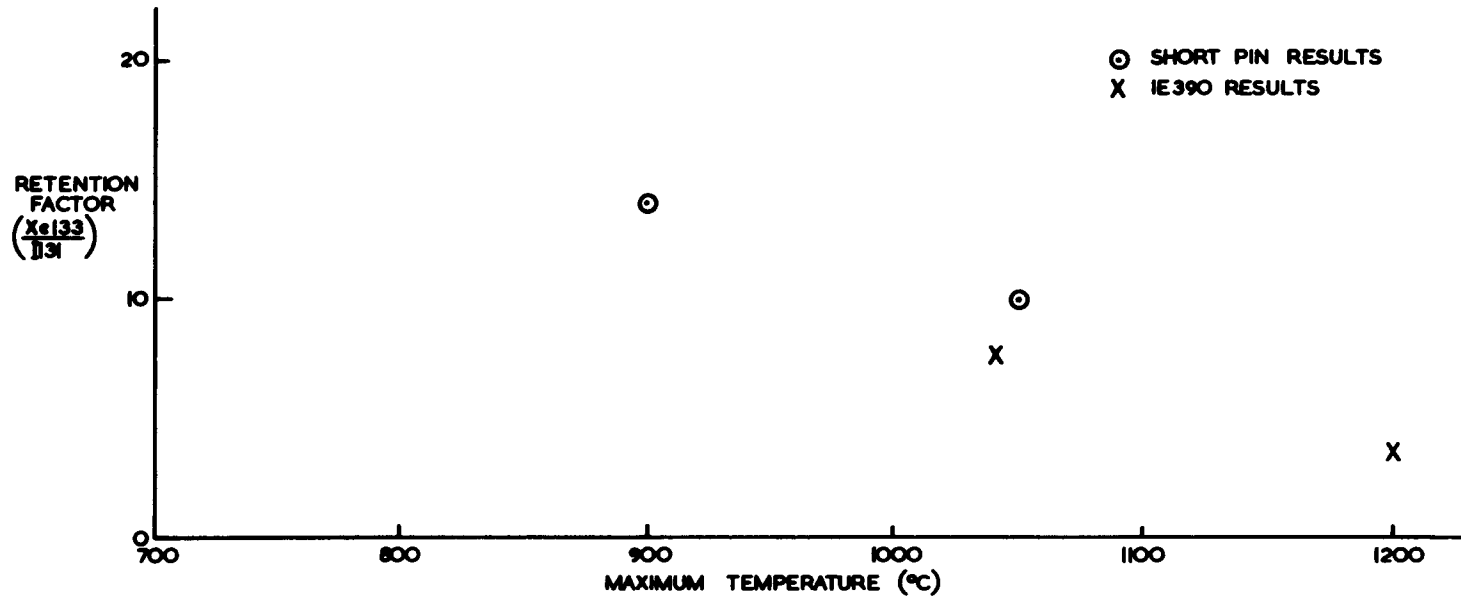


FIG.2. VARIATION OF RETENTION FACTOR WITH TEMPERATURE

PIEGEAGE ET DESORPTION D'IODE DANS LES
REACTEURS GRAPHITE-GAZ

P. Sigli

C.E.A.

Fontenay-aux-Roses - FRANCE

G. Benezech et J. Miribel

C.E.A.

St.Paul-lez-Durance - FRANCE

J. Barbier et B. Cadet

E.D.F.

St.Denis, Paris; Chinon, Avoine - FRANCE

RESUME. Les mesures d'exploitation effectuées dans les six réacteurs de type graphite-gaz exploités par l'EDF ont permis de supposer l'existence de phénomènes de piégeage de l'iode par les structures internes.

Dans le but de confirmer cette hypothèse, une expérience fut entreprise sur le réacteur de CHINON-1. Elle consistait en l'injection d'iode radioactif dans le circuit primaire et en l'étude de l'évolution de sa concentration et de sa forme physico-chimique. Les résultats montrent que la transformation de l'iode moléculaire en forme pénétrante est très rapide. On observe une vitesse de piégeage par les structures internes importante. Le phénomène de désorption est lent.

KURZFASSUNG. ABLAGERUNG UND DESORPTION VON JOD IN GRAPHIT-GAS-REAKTOREN. Die Betriebsmessungen in den sechs von der EDF betriebenen Graphit-Gas-Reaktoren liessen die Existenz von Jodablagerungsvorgängen an den Reaktoreinbauten vermuten.

Zur Bestätigung dieser Vermutung wurden am Reaktor CHINON-1 Versuche vorgenommen. Dabei wurde radioaktives Jod in den Primärkreislauf injiziert und die Aenderung seines Konzentrationsverlaufs und seiner physiko-chemischen Form untersucht.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Umwandlung des molekularen Jods in die durchdringende Form sich sehr rasch vollzieht. Die Geschwindigkeit der Ablagerung an den Reaktoreinbauten ist sehr hoch. Der Desorptionsvorgang verläuft nur langsam.

SUMMARY. TRAPPING AND DESORPTION OF IODINE IN GRAPHITE-GAS REACTORS. Operational monitoring in the six gas-cooled graphite-moderated reactors used by Electricité de France has suggested that iodine trapping might be occurring in internal structures.

To confirm this theory, an experiment was carried out on the CHINON-1 reactor. It entailed injecting radioactive iodine into the primary circuit and studying the changes in its concentration and physical and chemical nature.

The results showed that transformation of molecular iodine into a penetrating form was very rapid. High rates of trapping by internal structures were observed. The desorption phenomenon was slow.

Introduction

Les six réacteurs de type graphite-gaz exploités par Electricité de France présentent à des niveaux différents d'un réacteur à l'autre, des contaminations en produits de fission résultant de pollution se présentant sous diverses formes.

Parmi les radionucléides produits, les iodes et plus particulièrement ^{131}I font l'objet d'une surveillance soutenue.

Les mesures d'exploitation effectuées dans des conditions opératoires les plus variées montrent systématiquement une activité volumique en ^{131}I beaucoup plus faible que celle que l'on pourrait logiquement attendre de la pollution en Uranium du coeur de nos réacteurs.

C'est ainsi que la pollution en Uranium du coeur du réacteur de Chinon 1 calculée à partir de l'activité volumique des gaz nobles de fission s'élève à environ 10 W. Cette estimation repose sur l'hypothèse que la majeure partie des gaz nobles émis reste dans le fluide caloporteur. Si la répartition de l'iode entre les différents milieux constituant le réacteur (Uranium, fluide caloporteur, structures internes) se faisait dans les mêmes proportions que pour les gaz nobles de fission, on devrait trouver une activité volumique en ^{131}I du fluide caloporteur de l'ordre de 10^{-6} Ci/m³. En fait on mesure une activité volumique de l'ordre de 10^{-10} Ci/m³.

Le rapport entre les activités en ^{131}I calculée et mesurée se situe donc entre 1000 et 10 000.

L'importance de ce rapport nous a conduits à envisager un piégeage de l'iode par les structures internes du réacteur et à entreprendre des expériences destinées à mettre ce phénomène en évidence.

L'une d'entre elles, qui fait l'objet de cet exposé, consistait en une injection de quelques Curies d' ^{131}I dans le fluide caloporteur d'un réacteur et à étudier l'évolution de l'activité volumique en iode.

La forme physico-chimique de l'iode jouant manifestement un rôle important dans les mécanismes de répartition entre les divers milieux, nous avons jugé nécessaire d'organiser l'expérimentation de façon à tenter de faire la part entre ^{131}I moléculaire et les formes pénétrantes.

L'arrêt à terme de Chinon 1 a permis de réaliser cette expérience qui risquait d'entraîner l'indisponibilité du réacteur et qui, de ce fait, n'était pas envisageable sur les autres installations.

Conditions expérimentales

L'expérience consiste à injecter dans le circuit primaire, en amont du réacteur, 4 Ci d' ^{131}I auxquels ont été ajoutés 10 g d'iode naturel nécessaire à la génération.

Des prélèvements sont effectués à l'amont et à l'aval du réacteur dès la fin de l'injection.

Description du réacteur

Chinon 1 est le premier réacteur à Uranium Naturel, modéré au Graphite et refroidi au Gaz construit et exploité par Electricité de France. La première divergence a eu lieu le 16 septembre 1962, le premier couplage au réseau est intervenu le 14 juin 1963.

Les principales caractéristiques en sont les suivantes :

<u>Puissance thermique</u>	300 MW
<u>Puissance Electrique Nette</u>	70 MW
<u>Combustible</u>	Uranium Naturel
	Masse de combustible
	Flux maximal
	0,5% Mo
	140 t
	3.10^{13} n/cm ² /s

<u>Modérateur</u>		graphite
	Masse du modérateur	1050 t
	Nombre de canaux	1140
<u>Fluide caloporteur</u>		anhydride carbonique CO ²
	Masse totale	60 t
	Débit massique nominal	1600 kg/s
	Pression	25 b
	Température entrée réacteur	145°C
	Température sortie réacteur	330°C
	Impuretés contenues et teneurs moyennes en ppm en volume :	
	Hydrogène H ₂	60
	Azote N ₂	120
	Méthane CH ₄	30
	Oxyde de carbone CO	15000
	Eau H ₂ O	20

Pertes de CO₂ du circuit primaire. Le bilan de consommation de CO₂ permet de les estimer en moyenne à 3t/j. Ce chiffre a été confirmé lors d'une expérience d'injection d'hélium dans le fluide caloporteur. Le but principal de cette expérience était d'obtenir quelques informations sur la vitesse d'homogénéisation du mélange gazeux CO₂-He.

Circuits des rejets. Les différentes fuites de CO₂ sont collectées et récupérées par le collecteur principal de vidange, équipé d'un filtre à iode au charbon imprégné. La valeur de l'efficacité du filtre, de l'ordre de 2.10⁴, a permis d'effectuer l'expérience dans de bonnes conditions.

Le schéma, figure n°1, présente le principe du circuit primaire et permet de localiser les points d'injection de l'iode et de prélèvements.

Dispositif d'injection

Le procédé de génération était fondé sur l'échange isotopique entre du radio-iode de sodium sous forme solide et des vapeurs d'iode naturel.

Le dispositif d'injection, schématisé sur la figure n° 2, se composait, en série, d'un réservoir de ¹²⁷I moléculaire et d'un générateur contenant environ 4 Ci de radiiodure de sodium. Le réservoir de ¹²⁷I était pourvu d'un circuit de contournement destiné à assurer le réchauffage des circuits avant la génération proprement dite de ¹³¹I.

L'ensemble a été installé en parallèle avec la soufflante principale du circuit primaire de façon à pouvoir bénéficier de la pression différentielle de celle-ci pour assurer la circulation de CO₂.

Dispositifs de prélèvement

Le matériel de prélèvement était constitué de "Porte-charbon de Contrôle" doubles [1] d'une part et de dispositifs de type "May-Pack"[2] d'autre part.

Les Porte-charbon de Contrôle devaient permettre de suivre l'évolution de l'activité volumique totale de ¹³¹I dans le fluide caloporteur, chaque Porte-charbon de Contrôle était constitué de deux couches successives de charbon qui, imprégné à l'iodure de potassium, présentait, dans les conditions de l'expérience, une bonne efficacité quelle que fut la forme physico-chimique de l'iode. Chaque couche de charbon avait une épaisseur de 5cm. La seconde couche de charbon permettait de vérifier la pleine efficacité de la première.

La vitesse frontale sur le charbon était limitée à 20 cm/s à l'aide de diaphragmes fixes ; le débit de gaz prélevé s'élevait à 2 m³/h. La température du gaz analysé était inférieure à 50°C.

Les dispositifs de type May Pack étaient constitués, successivement dans le sens d'écoulement du gaz échantillonné de :

- 1 filtre en laine de verre comprimée destiné à arrêter ^{131}I fixé sur les aérosols.
- 7 couches de knit-mesh en laine de cuivre argenté dans le but de retenir l'iode moléculaire.
- 3 couches de charbon non imprégné.
- 6 couches de charbon imprégné au triéthylènediamine (TEDA).

Le rôle de ces deux types de charbon est de retenir les formes pénétrantes de l'iode.

- 1 filtre en laine de verre comprimée dont l'objet était d'arrêter les produits d'érosion des charbons.

Chaque couche d'absorbant avait une épaisseur de 1 cm.

Deux dispositifs de type May Pack, prévus pour fonctionner à la pression du circuit primaire, furent placés, l'un à l'amont, l'autre à l'aval du réacteur. Leur but était de fournir des résultats intégrés sur la durée totale de l'expérience. Le débit de gaz prélevé s'élevait à $1\text{m}^3/\text{h}$.

Les autres appareils, fonctionnant à la pression atmosphérique avaient pour but, de fournir des renseignements sur l'évolution dans le temps de chaque forme d'iode, moléculaire ou pénétrante. Le débit de prélèvement était réglé à $2\text{m}^3/\text{h}$.

Les prélèvements effectués par les dispositifs de type May-Pack destinés à fournir des résultats intégrés sur la durée de l'expérience seront désignés par l'expression prélèvements continus. Les prélèvements effectués à l'aide des autres dispositifs de type May-Pack seront appelés discontinus.

Méthodes de mesure

Les activités ont été mesurées à l'aide de sélecteurs 400 et 4000 canaux à détecteur I Na (4x4in.) et Ge-Li.

Déroulement de l'expérience

L'ensemble de l'expérimentation s'est déroulé selon trois phases. La première phase couvrait l'injection et les évolutions rapides à court terme. L'évolution escomptée de l'activité volumique de ^{131}I étant rapide, il était indispensable d'effectuer des prélèvements de courte durée (5mn) avec une périodicité de 10 mn. Il était donc nécessaire d'injecter une quantité de ^{131}I suffisante pour que les activités recueillies durant cette première phase soient mesurables. Le diagramme, figure n° 3, donne l'échelonnement prévu des différentes opérations.

L'activité volumique de ^{131}I résultant de la pollution du réacteur avait été préalablement mesurée.

L'objectif de la seconde phase était de suivre l'évolution, après l'injection, de l'activité volumique de ^{131}I , dans les conditions normales d'exploitation du réacteur. Les faibles activités volumiques du CO_2 nécessitaient alors des prélèvements de durée accrue.

La troisième phase devait permettre d'évaluer la rapidité de désorption des structures dans des conditions différentes c'est-à-dire réacteur à l'arrêt et circuits principaux vidangés.

Résultats expérimentaux

Une expérience préalable de génération fut effectuée en Laboratoire pour obtenir l'assurance que la production de formes pénétrantes d'iode ne devait être imputée qu'au réacteur ou au fluide caloporteur. Cette expérience consistait à générer ^{131}I en atmosphère de CO_2 de qualité commer-

ciale. On a observé qu'au maximum 7 % de l'iode généré était sous forme pénétrante (voir figure n° 4).

On peut donc conclure de ce résultat que toute forme pénétrante constatée au cours de l'expérience principale est imputable à une transformation de l'iode moléculaire dans le réacteur ou les circuits principaux.

Formes physico-chimique de l'iode

Des prélèvements effectués avant l'injection sur dispositifs de type May-Pack ont montré une activité volumique en ^{128}I du fluide caloporteur de $3,5 \cdot 10^{-6} \text{ Ci/m}^3$, uniquement sous forme pénétrante. Nous n'avons pas pu déterminer avec certitude la source de cette pollution en ^{128}I qui ne peut être attribuée entièrement à l'activation de ^{127}I de fission. Il y a donc lieu de supposer que l' ^{128}I provient en majeure partie de l'activation d'iode naturel, de forme physico-chimique inconnue, introduit accidentellement dans le réacteur. Malgré ces inconnues, en raison des lois des réactions d'équilibre, on peut penser que les formes pénétrantes de l'iode sont prépondérantes en réacteur.

Les principaux résultats de l'expérience proprement dite sont les suivants:
1°/- Les tableaux I et II ci-dessous regroupent les résultats des mesures d'activité volumique des deux formes de ^{131}I obtenues à partir des dispositifs de type May-Pack.

Tableau 1 - Prélèvement discontinus amont réacteur

Heure	^{131}I moléculaire 10^{-6} Ci/m^3	^{131}I forme pénétrante 10^{-6} Ci/m^3
1	2	3
To + 12mn	0,007	0,07

Tableau 2 - Prélèvements discontinus aval réacteur

Heure	^{131}I moléculaire 10^{-6} Ci/m^3	^{131}I forme pénétrante 10^{-6} Ci/m^3
To + 5 mn	0,003	0,278
To + 15 mn	non mesurable	0,05
To + 35 mn	d°	0,02
To + 45 mn	d°	0,01
To + 55 mn	d°	0,005

La colonne 1 de chaque tableau indique l'heure de début de prélèvement décomptée à partir de l'instant origine To correspondant à la fin de l'injection. La durée de chaque prélèvement était de 5 minutes. Les colonnes 2 et 3 indiquent l'activité volumique en ^{131}I respectivement sous forme moléculaire et sous forme pénétrante.

Le diagramme, figure n° 5, donne la répartition de l'activité ^{131}I retenue sur les différentes couches du premier dispositif de type May-Pack, à l'aval du réacteur.

2°/- La proportion d'iode moléculaire sur les prélèvements continus est voisine de 15 % sensiblement identique pour les deux échantillons. Cependant, il y a lieu de signaler que le prélèvement effectué à l'amont du réacteur

a été mis en service 12 mn après son homologue, effectué à l'aval du réacteur et que, de ce fait ces prélèvements ne permettent pas, à eux seuls, de conclure quant à la vitesse de formation des formes pénétrantes.

Les principales conclusions sont les suivantes :

1°/- Il y a transformation de l'iode moléculaire en forme pénétrante à l'intérieur des circuits principaux. L'examen des tableaux 1 et 2 permet de le constater.

2°/- La transformation de l'iode moléculaire en forme pénétrante est rapide. En effet, les constatations sont les suivantes :

- la proportion d'iode moléculaire sur le prélèvement continu effectué à l'aval du réacteur est de 15 %. Ce prélèvement a débuté au temps T_0 .

- l'échantillon discontinu prélevé à $T_0 + 5$ mn contient 1 % d'iode moléculaire.

Il résulte de ces constatations que l'apport d'iode moléculaire sur le prélèvement continu a eu lieu au tout début de l'expérience.

D'autre part, on constate sur le tableau 2 que le second échantillon effectué à $T_0 + 15$ mn ne contient plus d'iode moléculaire en quantité mesurable.

La disparition de l'iode moléculaire est donc beaucoup plus rapide que celle des formes pénétrantes. La différence de comportement des deux formes peut être attribuée à la transformation de l'iode moléculaire en forme pénétrante.

3°/- La transformation de l'iode moléculaire en forme pénétrante s'effectue au cours du passage dans le réacteur.

En effet, le premier prélèvement discontinu, effectué à $T_0 + 12$ mn à l'amont du réacteur, révèle une proportion d'iode moléculaire de 10 %, alors que cette proportion n'est que de 1 % sur le premier prélèvement discontinu effectué à l'aval du réacteur. Cette différence nous conduit à penser qu'une partie de l'iode généré est restée fixée sur les tuyauteries situées en amont du point de prélèvement amont. L'iode moléculaire retenu un temps relativement long sur les tuyauteries ne s'étant pas transformé, la conversion de l'iode moléculaire en forme pénétrante est imputable au passage dans le cœur du réacteur et s'effectue pratiquement complètement en un seul passage. Ce temps de passage est de l'ordre de 1 s.

La suite de l'exposé ne portera donc que sur l'évolution de l'iode sous sa forme pénétrante.

Evolution de l'activité volumique de l'iode dans le fluide caloporteur

Les courbes figures n° 6 et n° 7 établies selon des échelles de temps différentes montrent que la décroissance de l'activité volumique totale de ^{131}I est extrêmement rapide et que l'état d'équilibre est atteint au bout d'environ 80 heures. Les évolutions relevées à l'aval ou à l'amont du réacteur sont identiques.

Ces résultats expérimentaux nous ont permis d'estimer la constante de temps de piégeage de ^{131}I inférieure à 10 mn.

Le niveau d'équilibre de l'activité de ^{131}I est resté constant à $4 \cdot 10^{-10}$ Ci/m³ jusqu'à l'arrêt du réacteur qui a eu lieu le 16 avril 1973 soit 20 jours après l'injection.

Désorption de l'iode

L'évolution de l'activité volumique de ^{131}I au cours de la période de fonctionnement aux conditions nominales a permis de fixer une limite inférieure à la constante de temps de désorption de l'iode. On a ainsi trouvé que cette constante de temps devait être plus grande que 40 jours. Il est en effet impossible d'obtenir une meilleure précision en raison d'une activité volumique à l'équilibre en ^{131}I après injection trop peu

différente de celle mesurée avant l'expérience.

Après l'arrêt, le réacteur et les circuits ont été vidangés entre le 16 et le 18 Avril 1973. L'activité volumique moyenne en ^{131}I du fluide caloporteur au cours de la vidange avait pour valeur $1,4 \cdot 10^{-10} \text{ Ci/m}^3$. La variation de pression n'a donc pas entraîné de déséquilibre appréciable entre les deux milieux : structures internes et fluide caloporteur.

L'objectif de la troisième phase de l'expérimentation était de déterminer la constante de temps de désorption de ^{131}I . Dans ce but, il fut procédé, à la pression atmosphérique, à un renouvellement aussi intense que possible de l'atmosphère des circuits, afin d'obtenir une activité volumique en ^{131}I la plus faible possible. Une soufflante auxiliaire, destinée normalement à l'évacuation de la puissance résiduelle avait été maintenue en service pour assurer l'homogénéisation de l'atmosphère. Le renouvellement ayant été arrêté, l'évolution de l'activité volumique de ^{131}I fut observée. Cette évolution est indiquée sur la figure n° 8. On constate qu'elle présente un maximum au-delà duquel la pente de la courbe tend vers la période de ^{131}I .

La constante de temps de désorption pour les conditions de température et de pression (température moyenne du graphite : 60°C , pression atmosphérique) peut être obtenue à partir de la valeur initiale de l'activité volumique de l'atmosphère et de la valeur de l'activité absorbée par les structures. Elle a été estimée à environ 105 jours. On comprend alors pourquoi, au cours de la seconde phase, il n'a pas été possible de donner une meilleure définition de la valeur de la constante de temps de désorption. Cette expérience a permis également de constater que le phénomène d'adsorption de l'iode varie avec les conditions de fonctionnement du circuit. Ainsi dans les conditions de cette dernière expérience (température moyenne 60°C , pression atmosphérique) la constante de temps d'adsorption s'élevait à environ 13 heures, valeur très supérieure à celle trouvée lors du fonctionnement nominal. Le débit de la soufflante auxiliaire étant très faible vis-à-vis du débit nominal du fluide caloporteur, il est très vraisemblable que le débit de gaz a une influence sur la vitesse d'adsorption de l'iode.

Conclusion

Dans les réacteurs graphite-gaz :

1°/- Les formes pénétrantes de l'iode - et en particulier l'iodure de méthyle - sont des formes stables et rapidement prépondérantes en réacteur.

2°/- Il y a piégeage rapide de l'iode sous forme pénétrante par les structures internes. La constante de temps de piégeage, pour les conditions d'exploitation de Chinon 1 a été estimée inférieure à 10 minutes.

3°/- Le phénomène de désorption est très lent.

Il faut, cependant, être très prudent dans l'utilisation de ces résultats, et en particulier ceux concernant l'adsorption, pour d'autres réacteurs et dans d'autres conditions. Il est, en effet, très probable que la vitesse de piégeage de l'iode dépend, entre autres paramètres, de la configuration des circuits et du réacteur, de la géométrie du canal et du débit de fluide caloporteur. On doit constater, en particulier, une différence de comportement de l'iode, pour un même réacteur, s'il est en marche nominale ou s'il vient d'être arrêté brusquement sur incident de combustible. Cette remarque est fondée sur des observations faites par ailleurs qui ont montré une augmentation appréciable d'activité volumique de ^{131}I alors que le réacteur venait de passer de la pleine puissance à la puissance nulle. Le seul facteur important dans cette évolution croissante semblait être la diminution importante du débit de fluide caloporteur.

Ainsi, en cas d'accident survenant sur le combustible, paraîtrait-il souhaitable de maintenir le débit maximal de fluide caloporteur après la chute de barres afin de conserver le plus longtemps possible le bénéfice des phénomènes décrits dans cet exposé.

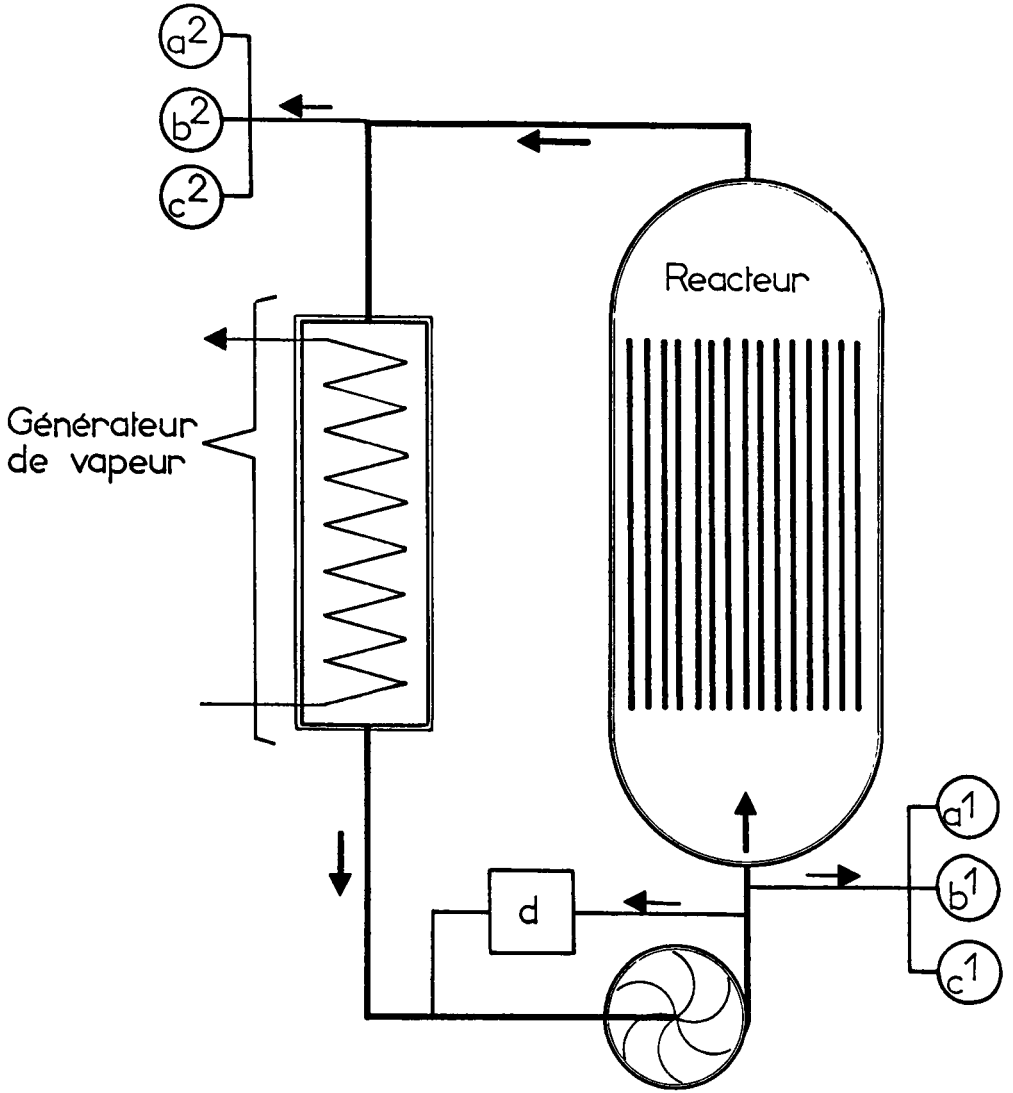
L'expérimentation qui mettait en oeuvre 4 Ci de ^{131}I s'est traduite par un rejet atmosphérique d'environ 1 mCi.

Bibliographie

- [1] F. BILLARD - J. BRION - Contrôle des installations d'épuration de l'air. Essais de conformité des éléments. Tests in situ. Rapport CEA R 3227-1967.
- [2] M. J. MEGAW and F. G. MAY - The behaviour of Iodine released in Reactor Containers - J. of Nuclear Energy - 1962.

Liste des figures

- Figure n° 1 - Schéma de principe du circuit primaire de Chinon 1 montrant l'implantation des prises d'injection et de prélèvement.
- Figure n° 2 - Schéma de principe du générateur d'iode.
- Figure n° 3 - Echelonnement des différentes opérations.
- Figure n° 4 - Expérience préalable de génération de ^{131}I . Répartition de ^{131}I sur les différentes couches d'absorbants du dispositif de type May-Pack.
- Figure n° 5 - Prélèvement sur dispositif de type May-Pack à T₀+5 minutes et à l'aval du réacteur. Répartition ^{131}I sur les différentes couches d'absorbants.
- Figure n° 6 - Evolution de l'activité volumique totale ^{131}I en fonction du temps.
- Figure n° 7 - Evolution de l'activité volumique totale ^{131}I en fonction du temps.
- Figure n° 8 - Expérience de désorption de ^{131}I . Evolution de l'activité volumique.



Prélèvements discontinus } c - porte charbon de contrôle
 } a - dispositifs de type "May Pack"

Prélèvements continus } dispositifs de type "May Pack"
 } b - à la pression du circuit

d - générateur d'iode

FIG. 1

vers aspiration
soufflante principale

CO₂, 140°C, 25 b venant
du reflux de la
soufflante principale

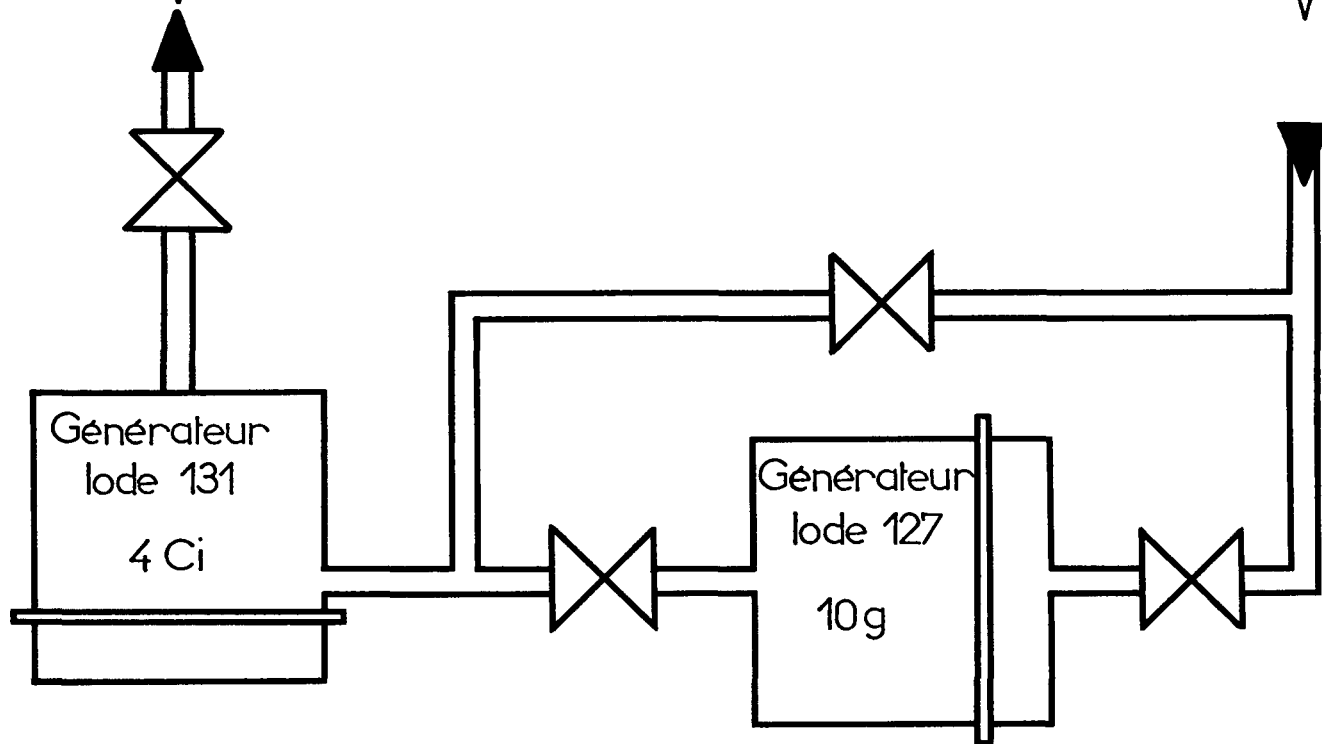


FIG. 2

INJECTION

Rechauffage }
 generateur }

Generation

PRELEVEMENTS

Dispositifs { discontinu amont
 de type { discontinu aval
 "May Pack" { continus aval et amont

Ponté charbon de controle
 aval et amont

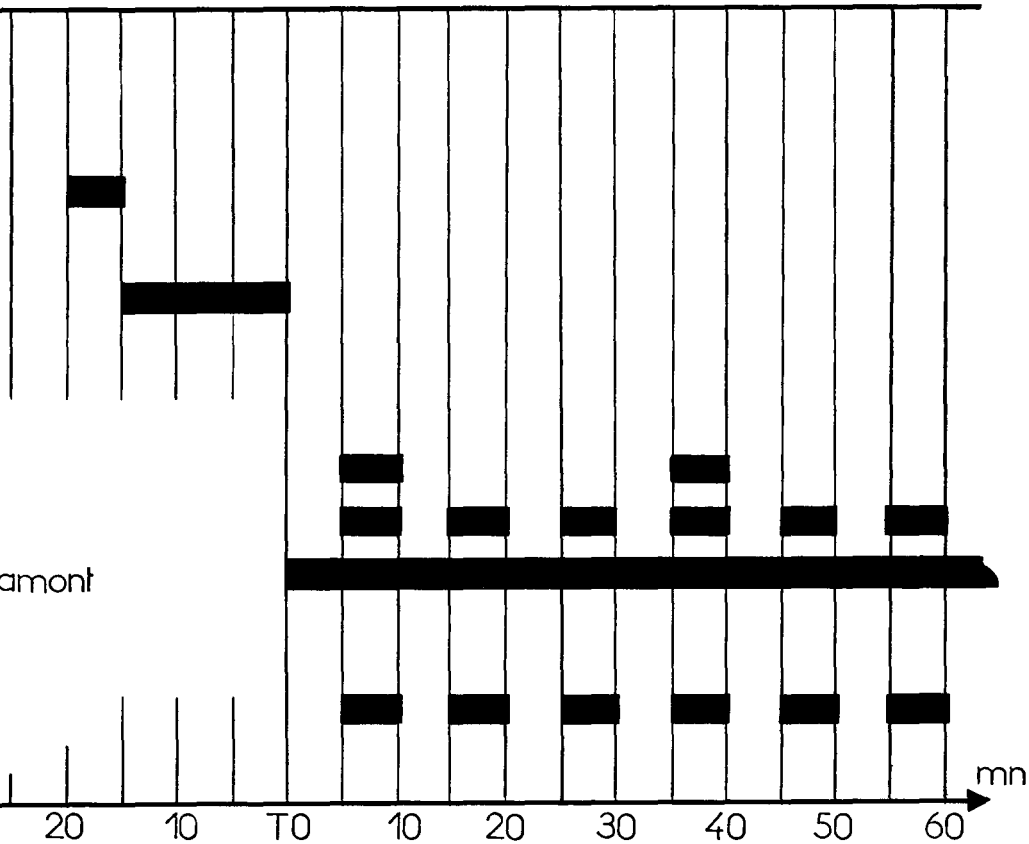


FIG. 3

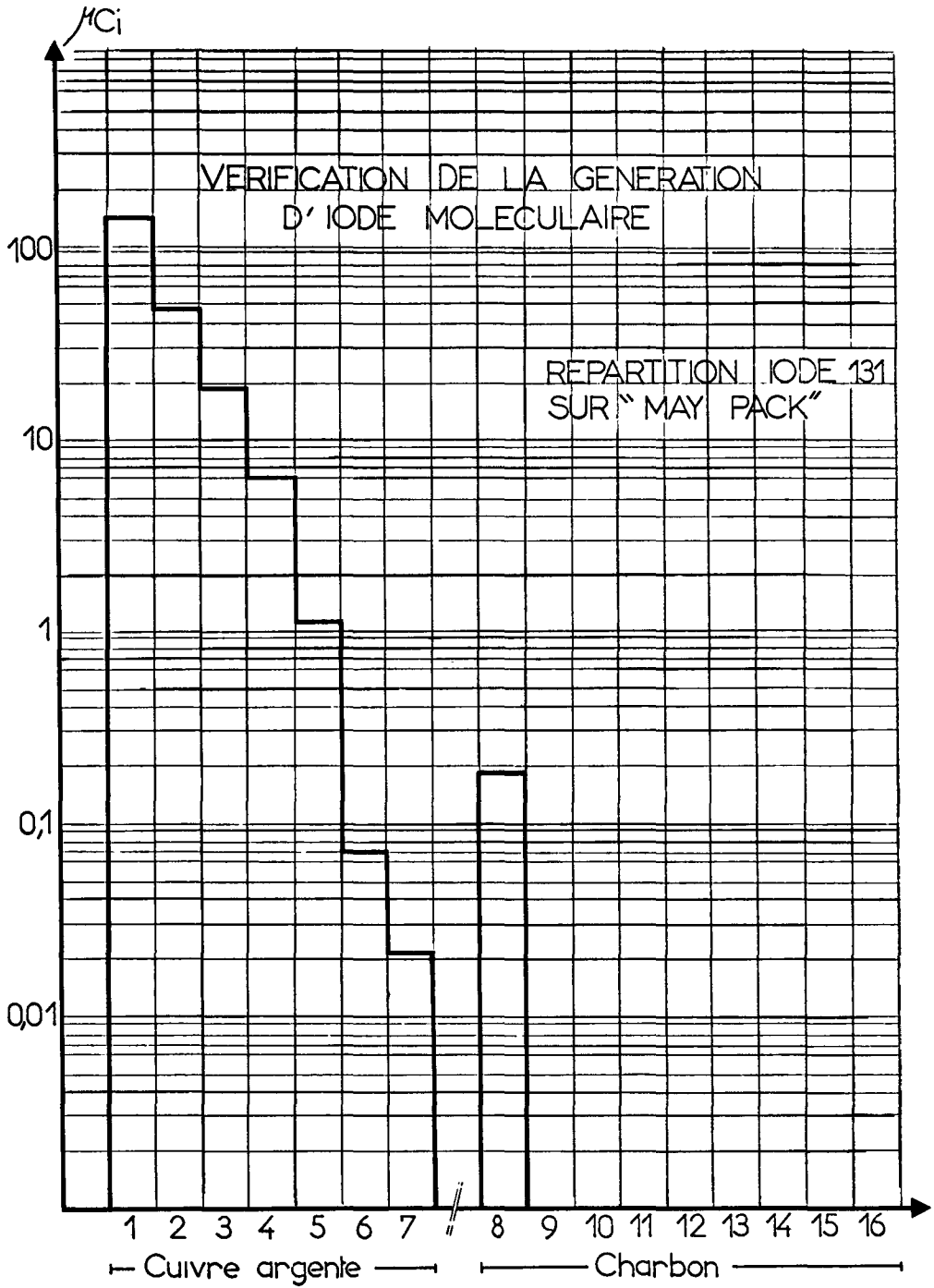


FIG. 4

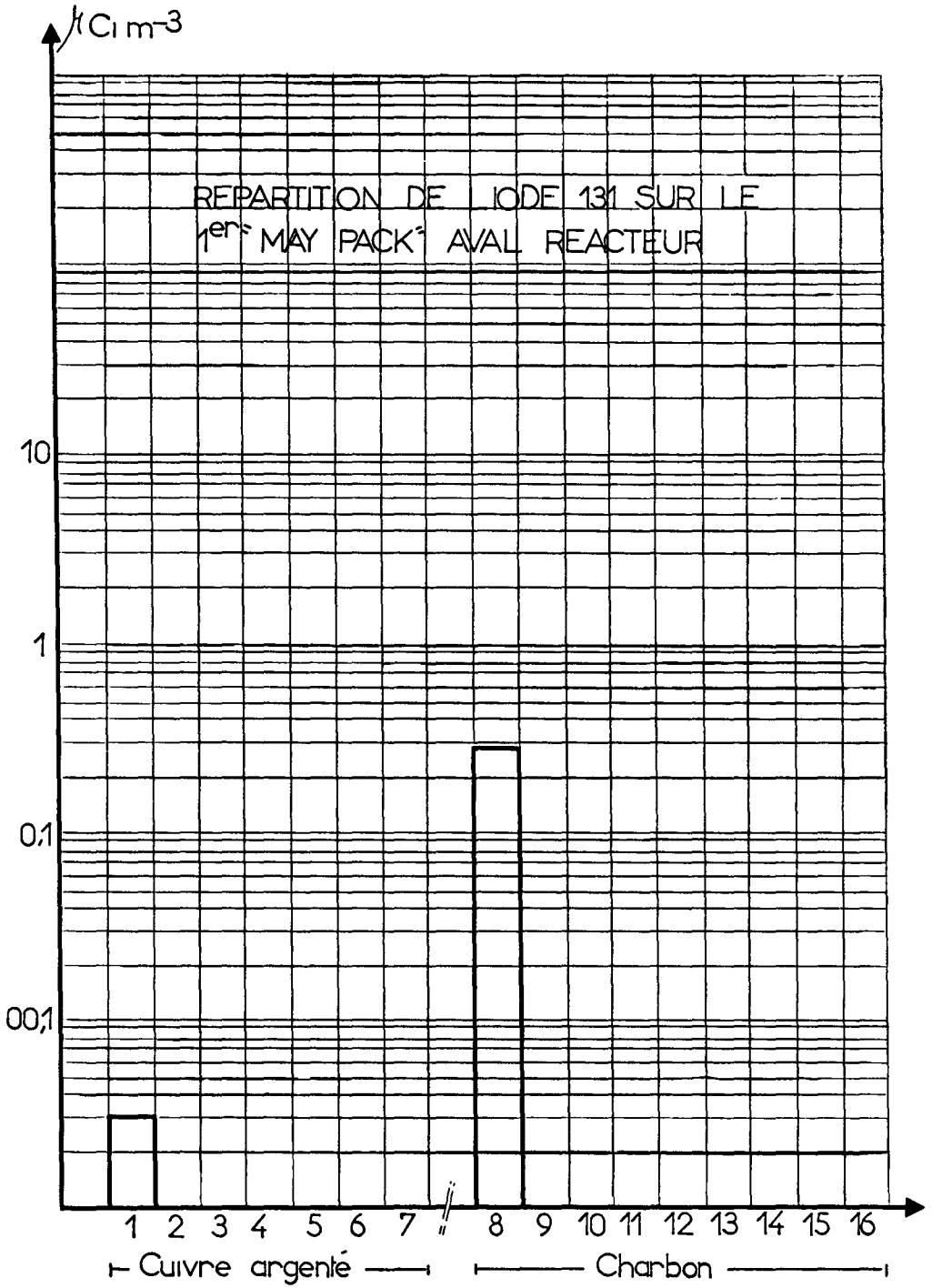


FIG. 5

EVOLUTION DE L'ACTIVITE VOLUMIQUE
TOTALE DE L'IODE 131

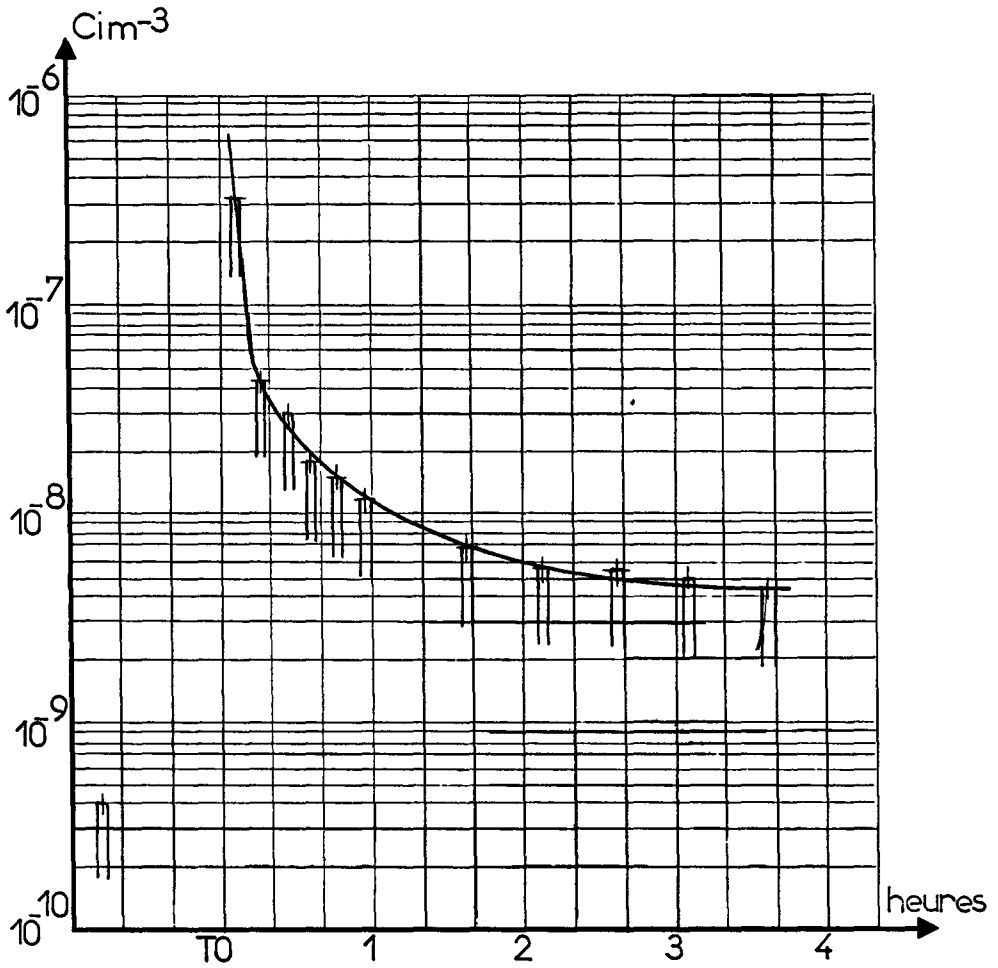


FIG. 6

EVOLUTION DE L'ACTIVITE VOLUMIQUE
DE L'IODE 131

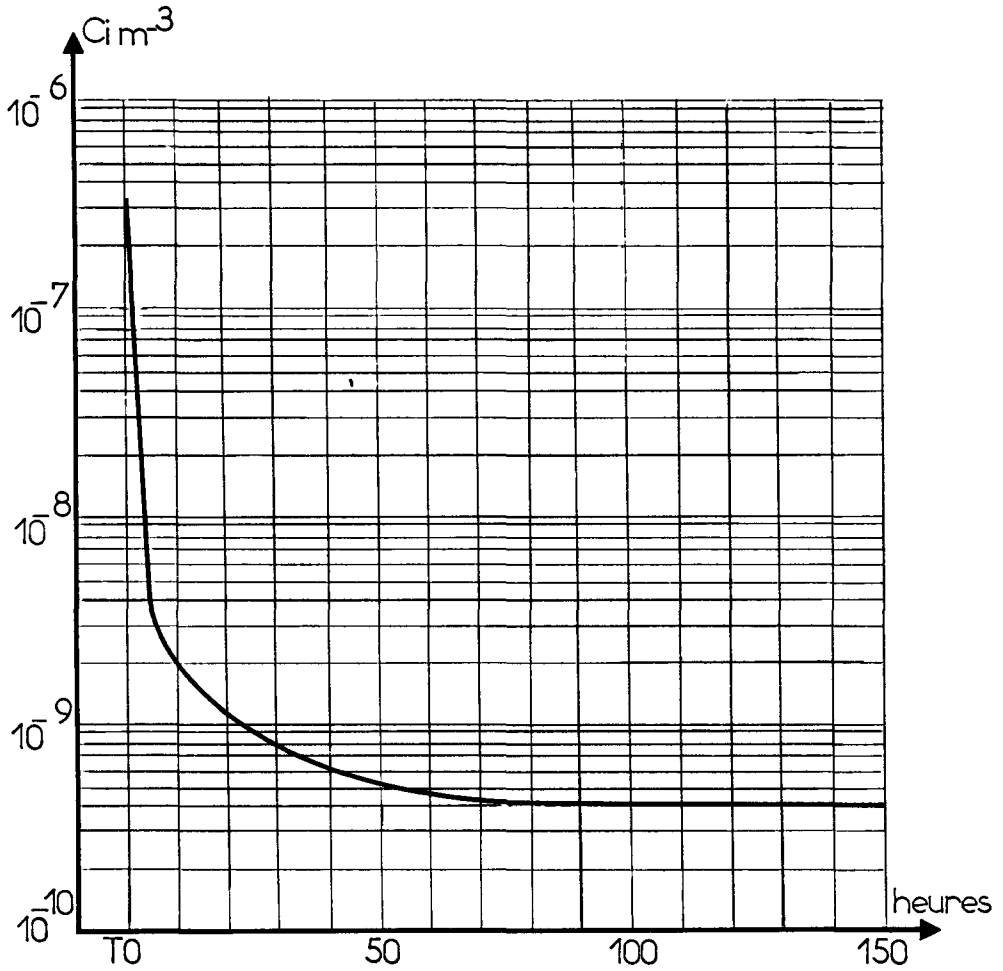


FIG. 7

DESORPTION DE L' IODE 131
EVOLUTION DE L' ACTIVITE VOLUMIQUE

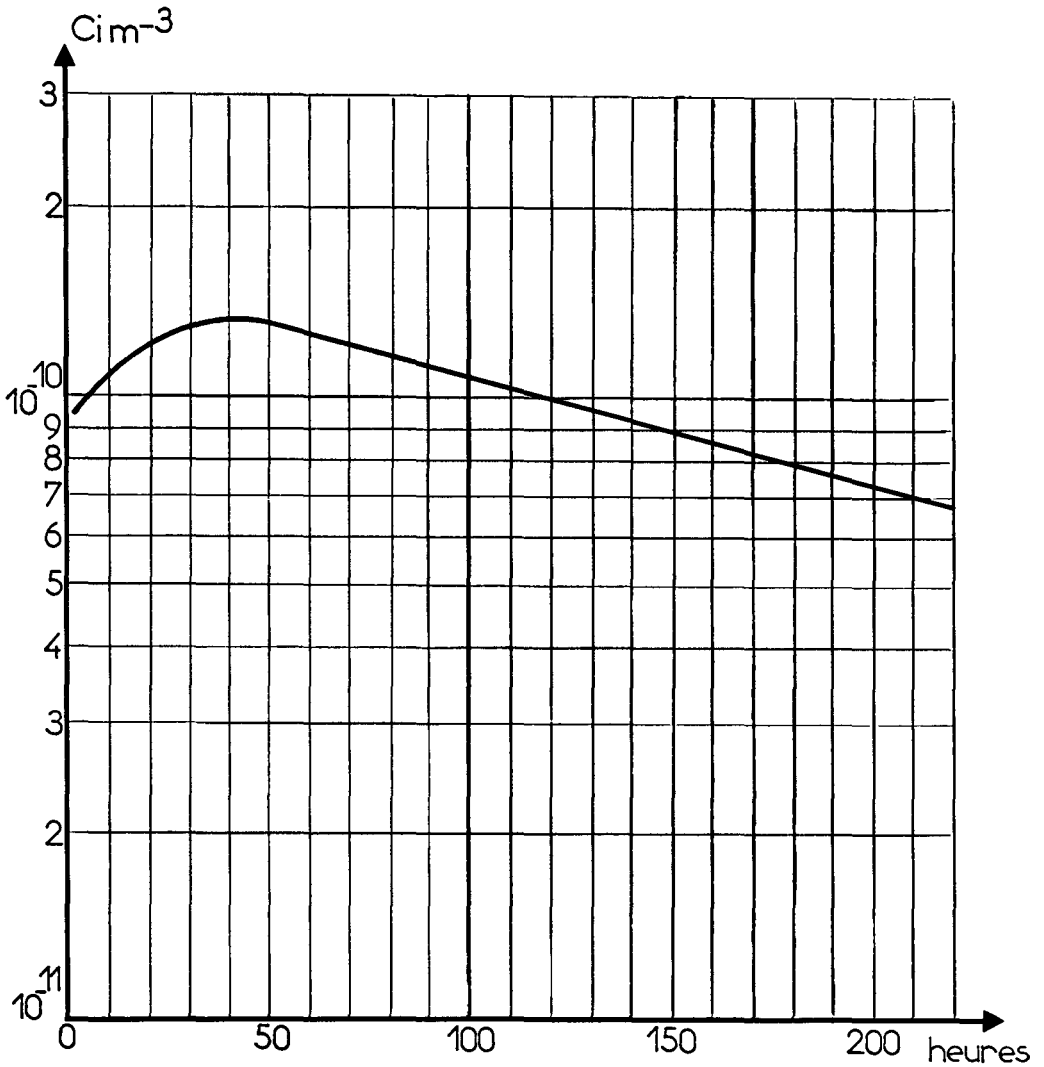


FIG. 8

REPARTITION DE L'IODE ENTRE LES DIFFERENTS MILIEUX
D'UN REACTEUR GRAPHITE GAZ ET SON ENVIRONNEMENT

J. Barbier

E.D.F.

Saint-Denis, Paris - FRANCE

RESUME. Parmi les produits de fission, l'iode 131 s'inscrit dans une chaîne comportant l'étain, l'antimoine et les Tellures 131 et 131m . La distribution de l'iode entre les divers milieux : combustible, gaz carbonique, structures et environnement, est très dépendante du comportement des Tellures 131 et 131m .

Deux expériences montrent que la presque totalité de l'iode qui se retrouve dans l'environnement y serait introduite par l'intermédiaire du Tellure. Pour que cette thèse soit complète, il serait nécessaire de montrer que le Tellure se retrouve en une forme encore plus pénétrante que celle observée pour l'iode.

Dans ce cas, la protection de l'environnement contre la contamination en iode avec des filtrations spécifiques de l'iode ne serait pas suffisante. Il faudrait envisager de leur donner une efficacité suffisante pour le Tellure.

KURZFASSUNG. VERTEILUNG DES JODS AUF DIE VERSCHIEDENEN BEREICHE EINES GRAPHIT-GAS-REAKTORS UND SEINE UMGEBUNG. Unter den Spaltprodukten steht das Jod- 131 in einer Zerfallsreihe, die Zinn, Antimon sowie Tellur- 131 und 131m umfasst.

Die Verteilung des Jods auf die verschiedenen Bereiche - Brennstoff, Kohlendioxid, Reaktorkomponenten und die Umgebung - hängt sehr weitgehend von dem Verhalten des Tellur- 131 und 131m ab.

Zwei Versuche zeigen, dass nahezu das gesamte Jod, das in der Umgebung vorgefunden wird, über das Tellur dorthin gelangt sein muss. Um diese Ansicht zu erhärten müsste nachgewiesen werden, dass das Tellur in einer Form vorkommt, die es noch leichter die Filter passieren lässt als beim Jod beobachtet wurde.

In diesem Fall würde der Schutz der Umgebung gegen die Kontamination mit Jod durch spezifische Jodfilter allein nicht ausreichen. Es müssten für Tellur wirksame Filter vorgesehen werden.

SUMMARY. IODINE PARTITION BETWEEN THE DIFFERENT MEDIA OF A GRAPHITE-GAS REACTOR AND ITS ENVIRONMENT. As a fission product, iodine 131 forms part of a chain linking tin, antimony and tellurium 131 and 131m .

The partition of iodine between the various media of the plant, namely fuel, carbon dioxide, walls and environment, depends very largely on the behaviour of tellurium 131 and tellurium 131m .

Two experiments prove that almost all the iodine found in the environment comes from tellurium. To demonstrate this theory conclusively it would be necessary to show that tellurium exists in a still more penetrating form than that observed for iodine.

If this is so, environmental protection against iodine contamination using special iodine trapping techniques is inadequate ; one should think of increasing their effectiveness so as to filter out tellurium.

S O M M A I R E

I - INTRODUCTION

II - ETUDE DU PARTAGE DE L'IODE ENTRE LES DIFFERENTS MILIEUX D'UN REACTEUR

- II - 1. Rôle des structures
- II - 2. Mécanisme du piégeage par les structures
- II - 3. L'iode dans son contexte de produit de filiation
- II - 4. Cinétique de la distribution de l'iode
 - II - 4.1. Transferts virtuels à l'intérieur d'un même milieu réel
 - II - 4.1.1. Activité
 - II - 4.1.2. Changement de formes chimiques
 - II - 4.2. Transferts physiques d'un milieu réel vers un autre
 - II - 4.3. Exposé du problème
 - II - 4.4. Evolution de la quantité d'un nucléide dans un sous-milieu
 - II - 4.4.1. Equation de base
 - II - 4.4.2. L'équilibre
 - II - 4.4.3. Les coefficients de partage des courants
 - II - 4.4.4. Echange bilatéral entre gaz et structures
- II - 5. Application au problème de l'iode
 - II - 5.1. Principaux résultats des expériences effectuées à Chinon 1
 - II - 5.2. Signification des résultats expérimentaux
 - II - 5.3. Application à un réacteur en régime normal
 - II - 5.4. Application à l'accident nucléaire

III - ORIENTATION A DONNER AUX ETUDES A ENTREPRENDRE

- III - 1. Confirmation de la présence de tellure par d'autres expériences
- III - 2. Recherche de moyens pour échantillonner et piéger le tellure
- III - 3. Etude de la répartition dans l'environnement dans le cas de la filiation
- III - 4. Examen des autres filières radioactives

IV - CONCLUSIONS

I - INTRODUCTION

Parmi les radionucléides produits dans les réacteurs d'ELECTRICITE DE FRANCE, les iodes, et plus particulièrement l'isotope 131, sont l'objet de la surveillance la plus soutenue.

Jusqu'au deuxième semestre de 1971, on n'avait pas encore observé d'iode de façon notable et systématique dans les réacteurs graphite gaz. Les observations faites sur des échantillons de gaz prélevés dans des conditions très variées étaient alors presque toujours négatives. Des traces d'iode furent observées, au hasard, sans qu'il ait été possible de faire le moindre recoupement avec des évènements pouvant en expliquer la présence à un instant plus qu'à un autre. Pourtant, la présence de gaz nobles donnait la certitude qu'il y avait une libération de produits de fission dans le fluide caloporteur.

Depuis 1966, un dispositif basé sur l'utilisation d'un volume de reconstitution a été exploité [1]. Il permet de suivre l'activité volumique du Xe 138 dans le gaz carbonique à partir de la mesure continue de l'activité de son descendant, le Cs 138, qui se dépose sur un filtre placé en aval du volume.

Connaissant l'activité volumique du Xe 138 et en supposant qu'il soit entièrement dispersé dans le gaz carbonique, on peut calculer la puissance du combustible dégazé et les activités correspondantes des iodes.

Dès 1966, et longtemps après, on a constaté qu'il y avait toujours une présence de gaz nobles et une absence quasi totale d'iode dans le gaz carbonique.

Plus tard, des incidents ayant entraîné la pollution des réacteurs par de l'oxyde d'uranium, les activités volumiques des iodes devinrent mesurables. Ainsi, on a pu évaluer que l'iode 131 du gaz carbonique représentait une infime partie de l'iode 131 produit. Cette partie est différente d'un réacteur à un autre. Pour un même réacteur, elle dépend de la ventilation et du type de pollution. On peut grossièrement la situer entre 10^{-4} et 10^{-3} . L'iode 131 produit ne se retrouvant pas entièrement dans le gaz carbonique, il fallait essayer de comprendre comment

il se répartit dans les différents milieux d'un réacteur.

Certains faits montrèrent que les évolutions pouvaient être très complexes. Dès lors, la nécessité d'inscrire les observations dans un cadre de description convenable devint évidente.

Cet exposé est un résumé de l'application à un modèle mathématique à des observations faites, en partie, avec des sondes Ge Li au cours de deux expérimentations principales récentes effectuées à Chinon 1. Ces expérimentations consistaient, pour l'une, en une injection d'iode dans le réacteur [2]; pour l'autre, en une introduction de combustible dans un canal du réacteur.

II - ETUDE DU PARTAGE DE L'IODE ENTRE LES DIFFERENTS MILIEUX D'UN REACTEUR

II - 1. Rôle des structures

L'idée, déjà exprimée en 1966, que le graphite joue un rôle important s'est imposée un peu plus après certaines observations.

Lorsque les réacteurs sont arrêtés pour des travaux, ils sont décomprimés et balayés avec de l'air. Longtemps après leur arrêt, on constate qu'il y a encore de l'iode 131 et de l'iode 132 qui apparaissent dans l'air de balayage. Cela peut être dû à une désorption à long terme, soit du combustible, soit des structures, ou encore des deux à la fois.

Parmi les structures, on est obligé de faire une part spéciale au graphite. Il joue, sans aucun doute, le même rôle que les autres structures pour les rétentions superficielles, mais de plus, sa porosité lui confère un rôle supplémentaire de rétention à long terme.

Par la suite, nous distinguerons des structures superficielles et des structures profondes. Ces dernières impliquent des migrations à long terme des produits introduits à travers les structures superficielles.

II - 2. Mécanisme du piégeage sur les structures

En excluant la pénétration en profondeur, il faut remarquer

que, dans les faits, le piégeage sur les structures est le résultat de deux mouvements principaux :

L'un correspond à une migration du nucléide depuis le milieu gazeux jusqu'à la surface des structures. Nous allons essayer de montrer, qu'au moins dans les conditions qui sont celles d'un réacteur, la vitesse de cette migration n'est pas spécifique du nucléide.

Le déplacement, par rapport aux structures, d'un nucléide situé dans le milieu gazeux, est le résultat de deux mouvements :

. celui du nucléide par rapport au gaz pris comme référence, qui est spécifique à la fois du milieu et de la forme physico-chimique du nucléide,

. et celui du gaz par rapport aux structures.

Dans le but de favoriser les échanges thermiques, les écoulements du gaz carbonique ont été volontairement organisés pour être turbulents devant les surfaces prépondérantes de structure que sont les canaux du réacteur et les échangeurs. Dans ces conditions, les sollicitations au mouvement du nucléide dans le gaz changent constamment de direction, annulant ainsi le mouvement moyen et l'effet spécifique qui lui était lié. Dans la somme des deux termes, il ne reste pratiquement que celui qui est indépendant du nucléide. En conclusion, dans un réacteur, tous les nucléides se déplacent du milieu gazeux vers la surface des structures avec la même vitesse moyenne.

L'autre mouvement principal résulte d'un retour du nucléide vers le milieu gazeux par suite de sa désorption du matériau des structures. L'affinité de la molécule, pour le matériau qui la retient, lui est spécifique. La vitesse de désorption qui en dépend est donc spécifique du nucléide.

II - 3. L'iode dans son contexte de produit de filiation

L'iode n'est pas nécessairement un produit direct de la fission. C'est un maillon dans une chaîne de filiation qui peut aller de l'étain au xénon et au-delà, en passant par l'antimoine et le tellure (figure n° 3)

Les ascendants de l'iode sont susceptibles, comme lui, d'être déplacés d'un milieu vers un autre. L'étude du partage de l'iode, entre les différents milieux, ne peut pas être faite, logiquement, sans qu'il en soit tenu compte dans le modèle.

II - 4. Cinétique de la distribution de l'iode

La figure n° 1, hors texte, montre les cheminements possibles depuis la production (flèche grasse horizontale) jusqu'à l'activité de l'iode dans l'environnement (flèche grasse verticale).

Les colonnes représentent les différents milieux. Le combustible, le gaz carbonique ; les structures superficielles et les structures profondes qui sont déterminantes dans le partage des produits de fission, sont représentées dans le plan principal. En arrière plan, partant du gaz, il y a le cheminement vers l'extérieur (environnement) à travers les équipements d'épuration des rejets (filtres et pièges).

Chaque nucléide est représenté sur un niveau qui se prolonge dans tous les milieux.

La chaîne de filiation du tableau est simple. Elle a été choisie pour soutenir la discussion, sans complication, avec des embranchements dus à des isomères. Le cas échéant, il faudrait, bien entendu, en tenir compte.

II - 4.1. Transferts virtuels à l'intérieur d'un même milieu réel

II - 4.1.1. Activités

Les flèches verticales de la figure n° 1 correspondent aux changements d'espèces des noyaux. Ce sont les activités du nucléide de la chaîne, dans chacun des milieux. Chaque milieu réel est donc subdivisé en autant de sous-milieux virtuels que de radionucléides à considérer. L'activité n'est pas un déplacement réel. C'est un transfert virtuel d'un sous-milieu vers un autre, à l'intérieur d'un même milieu réel.

C'est ainsi que la flèche grasse verticale représente l'activité de l'iode dans l'environnement.

II - 4.1.2. Changement de formes chimiques

Si l'on devait envisager qu'il y ait diverses formes chimiques en cause pour un même nucléide, avec passage de l'une à l'autre dans un même milieu, il faudrait créer autant de subdivisions des sous-milieus.

Il n'est pas fait état d'un cas semblable dans la figure n° 1 bien qu'il existe certainement.

II - 4.2. Transferts physiques d'un milieu réel vers un autre

Les flèches horizontales correspondent au passage réel des radionucléides d'un milieu vers un autre.

Des échanges bilatéraux peuvent intervenir dans certains cas. Ils sont représentés par les couples de flèches opposées reliant deux milieux.

L'écoulement représenté par la flèche grasse horizontale est cependant virtuel. Il correspond à la productivité de l'ascendant originel de la chaîne de filiation. Si ρ % est son rendement de fission et P la puissance du combustible, la productivité a pour valeur :

$$A_{Ci} = 0.85^{Ci/W} P \cdot 0,01 \cdot \rho \%$$

Elle a la dimension d'une activité. C'est un "courant" de noyaux, exprimé en curie, qui alimente un "réseau" de courants partiels.

II - 4.3. Exposé du problème

Le problème consiste : premièrement, à mettre en évidence les cheminements qui sont prépondérants, dans le réseau, pour aller de la production de l'ancêtre originel jusqu'à l'activité de l'iode dans l'environnement ; deuxièmement, à déterminer dans quelles conditions et quelle mesure ils sont prépondérants.

Pour aboutir, il faut déterminer les coefficients de partage des courants à chaque niveau, dans chaque colonne. Pour cela il faut connaître l'égalité qui règle l'évolution de la quantité d'un nucléide

dans son sous-milieu.

II - 4.4. Evolution de la quantité d'un nucléide dans un sous-milieu

II - 4.4.1. Equation de base

Un sous-milieu m est occupé par la quantité Q_m du nucléide qui lui est particulier. Il est alimenté par un certain nombre de courants issus d'un même nombre de sous-milieus. Ces courants sont désignés par A_{im} . L'indice i correspond à son sous-milieu d'origine.

Du sous-milieu m s'échappent d'autres courants A_{mJ} vers autant d'autres sous-milieus. L'indice J correspond au sous-milieu de destination.

La variation $\frac{dQ_m}{dT}$ de la quantité Q_m du nucléide est égale à la somme algébrique des courants :

$$\frac{dQ_m}{dT} = \sum_i A_{im} - \sum_j A_{mj}$$

Parmi les courants de fuite A_{mJ} on distingue le courant virtuel λQ_m correspondant à l'activité.

Partant de l'hypothèse, généralement vérifiée, que les fuites réelles sont proportionnelles, elles aussi, à Q_m , d'autres A_{mJ} auront pour expression $\varphi_{mJ} Q_m$, φ_{mJ} étant la constante de fuite réelle du nucléide vers un sous-milieu J .

On aura :

$$\frac{dQ_m}{dT} = \sum_i A_{im} - Q_m \left(\lambda + \sum_j \varphi_{mj} \right)$$

II - 4.4.2. L'équilibre

Après une perturbation originelle, l'équilibre d'un réseau est obtenu lorsque toutes les variations $\frac{dQ_m}{dT}$ sont nulles.

Mathématiquement, cela intervient lorsque l'on fait tendre T vers l'infini. Pratiquement, on peut considérer que l'équilibre est atteint au bout d'un temps n'excédant pas quatre fois l'inverse de la constante de fuite $\left(\lambda + \sum_j \varphi_{mj} \right)$ la plus faible de toutes les constantes de fuite du réseau.

A l'équilibre l'égalité précédente devient :

$$\sum_i A_{im\infty} = Q_{m\infty} (\lambda + \sum_j \varphi_{mj})$$

$A_{im\infty}$ et $Q_{m\infty}$ sont les valeurs que prennent les courants et les quantités quand T tend vers l'infini.

II - 4.4.3. Les coefficients de partage des courants

Le courant de fuite totale d'un sous-milieu se subdivise en courants partiels.

On a l'activité :
$$\lambda Q_{m\infty} = \sum_i A_{im\infty} \frac{\lambda}{\lambda + \sum \varphi_{mj}}$$

et un courant :
$$\varphi_{mj} Q_{m\infty} = \sum_i A_{im\infty} \frac{\varphi_{mj}}{\lambda + \sum \varphi_{mj}}$$

Les coefficients de partage sont :

$$\frac{\lambda}{\lambda + \sum_j \varphi_{mj}} \text{ pour l'activité et } \frac{\varphi_{mj}}{\lambda + \sum_j \varphi_{mj}} \text{ pour une fuite physique}$$

II - 4.4.4. Echange bilatéral entre gaz et structures

Figure n° 2.

Si l'on appelle Q_1 la quantité d'un nucléide dans le gaz ; Q_2 sa quantité retenue sur les structures superficielles ; λ sa constante radioactive ; φ_{12} sa constante de déplacement du gaz vers les structures et φ_{21} sa constante de désorption des structures ; si par ailleurs, on considère que la fuite vers l'extérieur et la pénétration profonde des structures sont négligeables, on aura à l'équilibre :

$$A_1 + \varphi_{21} Q_2 = Q_1 (\lambda + \varphi_{12})$$

$$A_2 + \varphi_{12} Q_1 = Q_2 (\lambda + \varphi_{21}) \quad -$$

A_1 et A_2 étant les apports, du nucléide dans le gaz et dans les structures autres que ceux de l'échange bilatéral.

On peut définir les coefficients de partage du nucléide pour les milieux 1 et 2 par les quantités : $\frac{Q_1}{Q_1 + Q_2}$ et $\frac{Q_2}{Q_1 + Q_2}$

Du système on tire :
$$\frac{Q_1}{Q_1+Q_2} = \frac{\lambda \frac{A_1}{A_1+A_2} + \varphi_{21}}{\lambda + \varphi_{12} + \varphi_{21}}$$

et :
$$\frac{Q_2}{Q_1+Q_2} = \frac{\lambda \frac{A_2}{A_1+A_2} + \varphi_{12}}{\lambda + \varphi_{12} + \varphi_{21}}$$

Dans le cas particulier où A1 et A2 seraient uniquement les activités de l'ascendant dans le gaz et sur les structures, on peut envisager deux hypothèses extrêmes :

1 - si l'ascendant est entièrement dans le gaz A2 = 0

on a : A
$$\frac{Q_1}{Q_1+Q_2} = \frac{\lambda + \varphi_{21}}{\lambda + \varphi_{12} + \varphi_{21}}$$
 et : B
$$\frac{Q_2}{Q_1+Q_2} = \frac{\varphi_{12}}{\lambda + \varphi_{12} + \varphi_{21}}$$

2 - si l'ascendant est entièrement sur les structures A1 = 0

ce qui donne : C
$$\frac{Q_1}{Q_1+Q_2} = \frac{\varphi_{21}}{\lambda + \varphi_{12} + \varphi_{21}}$$
 et : D
$$\frac{Q_2}{Q_1+Q_2} = \frac{\lambda + \varphi_{12}}{\lambda + \varphi_{12} + \varphi_{21}}$$

Remarque : $\lambda (Q_1 + Q_2)$ est l'activité totale
 λQ_1 est l'activité dans le gaz
 λQ_2 est l'activité dans les structures.

II - 5. Application au problème de l'iode

II - 5.1. Principaux résultats des expériences effectuées à Chinon 1

Trois informations principales ont été obtenues à partir de l'expérience d'injection d'iode [2]

- 1° - L'iode injecté sous forme moléculaire s'est retrouvé, en totalité, sous une forme pénétrante en un seul passage dans le coeur du réacteur,
- 2° - La constante de déplacement du gaz vers les structures est de l'ordre de 10 h^{-1} à pleine puissance,
- 3° - La constante de désorption de l'iode des structures est

faible (de l'ordre de $0,06 \text{ h}^{-1}$).

L'expérience d'introduction de combustible a montré que :

1° - la constante de déplacement du gaz vers les structures est de l'ordre de 7 h^{-1} , en léger désaccord avec l'autre expérience.

Elle est la même pour les tellures et les iodes.

2° - La constante de désorption de l'iode des structures est trop petite pour être mesurable avec précision.

3° - la constante de désorption des tellures est de l'ordre de $0,633 \text{ h}^{-1}$ (au moins dix fois supérieure à celle de l'iode).

4° - Pratiquement, ne sortent du combustible que les produits de fission qui sont situés et qui sont propulsés par la fission, de telles sortes qu'ils cheminent suffisamment dans le métal pour s'en échapper.

Parmi eux, et dans la configuration de l'expérience, un pour cent environ a été effectivement injecté dans le gaz carbonique instantanément.

La presque totalité des autres semble avoir été retenue. Elle s'est échappée à moyen terme dans des conditions diverses.

II - 5.2. Signification des résultats expérimentaux

L'ionisation intense du milieu est sans aucun doute le facteur essentiel de la rapidité des transformations chimiques. Dans le cas de l'iode, la transformation a été complète en moins d'une seconde. Cet heureux résultat évite la prise en compte de plusieurs formes chimiques.

Dans le gaz carbonique d'un réacteur, outre le carbone et l'oxygène qui constituent la masse du milieu, il y a des impuretés hydrogénées. Il y en a peu : quelques dizaines de ppm d'eau ; quelques centaines de ppm d'hydrogène et de méthane. Cela est tout de même très suffisant pour que l'on puisse envisager la formation

de molécules organiques, avec n'importe quel radionucléide. Dans ces conditions, il n'est pas raisonnable de croire qu'en matière de formation de molécules pénétrantes, un halogène puisse être privilégié.

La constante de désorption du tellure des structures qui est plus grande que celle de l'iode montre que lui aussi est transformé en une forme pénétrante.

L'iode adsorbé sur les structures y est bien retenu. Pour un réacteur en puissance on peut négliger son courant de retour vers le gaz. Ce n'est pas le cas pour les tellures.

Pratiquement, les produits de fission restent dans le combustible ou en sortent instantanément. Pour ceux qui sortent, il existe un effet de rétention superficielle. Cet effet a été intense dans le cas de la 2ème expérience à cause d'une configuration particulière du combustible. Il est négligeable lorsque l'uranium est finement divisé et dispersé. Il est ainsi possible d'éliminer du réseau les transferts des produits de filiation depuis le combustible jusqu'au gaz.

II - 5.3. Application à un réacteur en régime normal

La figure n° 3 représente le réseau que l'on obtient avec la chaîne 131, compte tenu des résultats expérimentaux. Il y manque quelques données pour nous permettre de faire complètement le point sur la répartition de l'iode. Ce sont les constantes de désorption de l'antimoine et de l'étain des structures. Il est cependant possible de juger de l'importance relative (IR) des tellures par rapport à l'iode. Elle est comprise entre deux valeurs extrêmes correspondant respectivement aux cas d'un antimoine situé en totalité dans le gaz ou sur les structures.

A l'équilibre, l'activité de l'iode 131 dans l'environnement est égale à la somme des débits de noyaux d'étain ; d'antimoine ; de tellure métastable ; de tellure et d'iode. L'importance relative (IR) des tellures par rapport à l'iode peut être définie comme le

rapport des débits de rejet du tellure par le débit de rejet de l'iode.

$$(IR) = \frac{\textcircled{2} + \textcircled{3}}{\textcircled{1}} \quad (\text{Cf figure 3})$$

Comme on ne peut préjuger de l'efficacité des filtres et des pièges, il n'en est pas tenu compte dans le calcul. Ainsi, la constante de fuite φ_{15} est unique pour tous les nucléides et elle est égale à celle du réacteur (Cf figure 1).

Enfin, la constante de fuite du réacteur (φ_{15}) est généralement faible (410^{-3} h^{-1} pour Chinon 1 au moment de l'expérience) Elle est négligeable devant la constante de déplacement du gaz vers les structures (φ_{12}). Ainsi elle n'intervient pas dans le calcul de (IR).

En annexe 1 on trouve la récapitulation des données nécessaires au calcul de (IR) et un tableau donnant les coefficients de partage des tellures dans l'alternative d'un ascendant situé en totalité dans le gaz ou sur les structures. Les nombres γ sont repérés en fonction de leur utilisation dans le calcul de (IR) en annexe 2.

Le résultat des calculs $37 < (IR) < 97$ montre qu'à Chinon 1, moins de 3% de l'iode dans l'environnement pourrait provenir effectivement du rejet de l'iode. La plus grosse partie serait due au rejet de Te 131 m.

Remarque : à Chinon 1 $\varphi_{12} = 7 \text{ h}^{-1}$
à St-Laurent $\varphi_{12} = 35 \text{ h}^{-1}$

La valeur de (IR) est proportionnelle à φ_{12} . Si, par ailleurs, la valeur de φ_{21} pour le tellure était la même à St-Laurent qu'à Chinon 1, on aurait pour St-Laurent $180 < (IR) < 470$

II - 5.4. Application à l'accident nucléaire

L'accident nucléaire se présente sous des auspices différents.

On retiendra tout d'abord, l'habituelle formation d'hydrure

ou d'oxyde d'uranium qui sont pulvérulents l'un et l'autre. Tant que la poudre est maintenue sous flux, le processus de transfert des produits de fission est le même que celui précédemment décrit. C'est sans doute l'éventualité la plus redoutable en cas d'accident.

Cependant, il est un autre processus qui pose le problème de façon différente. Dans le combustible irradié, il se forme une multitude de micro-cavités qui retiennent les produits de fission. Lorsque survient un accident, une certaine quantité de micro-cavités sont ouvertes, libérant ainsi, les produits qui étaient retenus.

La libération est instantanée, et en cela le processus est semblable au précédent. Cependant les proportions sont différentes. Dans les cavités (et même dans le métal) les activités à l'équilibre des nucléides d'une même chaîne sont égales. Puisqu'ils sont libérés ensemble, les courants des nucléides sont entre eux comme leurs quantités, soit comme l'inverse de leurs constantes radio-actives.

D'autre part, l'aspect transitoire du phénomène nous oblige à considérer (IR) de façon différente.

Si on appelle Q_{10} la quantité d'un nucléide injecté dans le gaz pendant toute la durée de l'incident et q , sa quantité finalement rejetée dans l'environnement, si le gaz est le milieu 1, les structures le milieu 2, et l'environnement le milieu 5, on a :

$$q = Q_{10} \varphi_{15} \frac{\lambda + \varphi_{21}}{\lambda (\lambda + \varphi_{12} + \varphi_{21})}$$

On peut définir (IR) comme le rapport des q des tellures par le q de l'iode. Dans ce cas on ne tient pas compte des appoints dus à l'activité des ascendants. Ils ne modifient pas sensiblement le résultat.

Le tableau ci-après résume la situation pour $P = 117$ W, puissance pour laquelle, dans la formule du paragraphe II - 4.2., l'activité est égale à un curie pour un rendement de fission de 1%.

Nucléide	Activité du nucléide dans le combustible	Quantité Q 10 correspondante	Quantité q finalement sortie
Tem	0,83 Ci	35 Ci h	125 Ci h
Te	2,38 Ci	1,5 Ci h	0,22 Ci h
I	3,04 Ci	850 Ci h	120 Ci h

On voit que l'importance du tellure métastable est comparable à celle de l'iode.

III - ORIENTATION A DONNER AUX ETUDES A ENTREPRENDRE

III - 1. Confirmation de la présence de tellure par d'autres expériences

Dans cet exposé, le calcul de l'importance relative du tellure est entièrement basé sur une seule expérience et un cheminement logique mais hypothétique. Il n'est pas exclu que la cinétique des produits de filiation soit encore plus complexe qu'il n'y paraît. L'exploitation des résultats de l'expérience d'injection d'iode montre que les valeurs théoriques que l'on obtient en supposant une pénétration profonde non négligeable de l'iode dans le graphite, sont en bon accord avec les valeurs expérimentales.

Pour évaluer expérimentalement l'importance relative du tellure, il serait donc utile de reprendre des expériences dans lesquelles seraient mis en oeuvre des dispositifs utilisant des volumes de reconstitution. L'utilisation de tels dispositifs a déjà permis de mettre qualitativement en évidence la présence des ascendants de l'iode dans le gaz carbonique de nos réacteurs.

III - 2. Recherche de moyens pour échantillonner et piéger le tellure

Le fait que l'iode se présente sous une forme pénétrante a soulevé bien des problèmes tant du point de vue de son échantillonnage que de celui de son piégeage.

A la rigueur, dans le cas du tellure, on peut utiliser des volumes de reconstitution pour en mesurer la concentration dans le

gaz carbonique. Cela ne résout pas le problème de son élimination. Il faut donc rechercher des moyens pour en assurer le piégeage. Comme pour l'iode, on pourrait envisager, par exemple, l'emploi d'additifs au charbon.

III - 3. Etude de la répartition dans l'environnement dans le cas de la filiation

Un nucléide qui vient d'être formé par désintégration de son ascendant se trouve provisoirement sous une forme ionisée. Cela favorise de nouvelles associations dont la nature dépend du milieu. Bien que l'on ne puisse préjuger du résultat, il est probable que le cheminement d'un noyau depuis la cheminée jusqu'au sol ne soit pas grandement influencé par sa forme physico-chimique. Mais la forme sous laquelle il se trouve au sol a certainement une grande influence sur sa rétention. Le problème est semblable à celui du dépôt sur les structures, mais il est beaucoup plus compliqué à cause de la diversité des situations.

III - 4. Examen des autres filières radio-actives

L'iode et le tellure ne sont probablement pas les seuls radionucléides qui peuvent être transformés en des formes pénétrantes. Il faut donc examiner toutes les filières pour s'assurer que les filiations qu'elles engendrent ne constituent pas des cas semblables à celles de la filière de l'iode 131.

IV - CONCLUSIONS

Le piégeage sur les structures est évidemment favorable aux objectifs de la radioprotection. Cependant, la spécificité de ses effets modifie les données et l'importance relative des différents radionucléides. La prise en considération complète des filiations modifie le problème de la distribution des produits de fission en le compliquant. Dans l'étude du cheminement des nucléides depuis le combustible jusqu'à l'organe critique, la constante de fuite φ est à l'installation industrielle ce qu'est la période biologique à l'homme. L'expérience montre qu'il faut généra-

liser son emploi pour avoir quelques chance de résoudre les problèmes complexes de la distribution des nucléides dans l'espace et dans le temps. Cela met en oeuvre une méthode très comparable à celle bien connue des réseaux. Encore faut-il connaître les valeurs numériques des paramètres φ .

Note de l'auteur

En étendant le raisonnement tenu dans cet exposé, à l'étude du cheminement des radionucléides à travers un milieu finement divisé (filtres et pièges) on aboutit à des fonctions de Bessel. Le développement de ce thème eut été mieux conforme à l'objectif du séminaire. Mais il nous manque un support expérimental pour lui donner la sanction qu'il mérite. Il faut toutefois remarquer que le problème du transfert des radionucléides est très proche des problèmes électriques. Par analogie, on peut imaginer les développements que cela implique et le parti qui peut en être tiré :

- notions comparables à la capacité ; à la résistance, et aboutissant à des paramètres métriques bien adaptés pour définir les matériaux. Paramètres qui sont comparables à la capacité linéique et à la résistivité etc.
- notions comparables à celles de la propagation dans les câbles avec des réponses identiques et des efficacités d'épuration ou de reconcentration qui peuvent être exprimées en neper.

REFERENCES

- 1 J. BARBIER - B. HOUPIN - G. CORDIER -
M. DELPLA.
La contamination du circuit primaire du réacteur de Chinon.
1er congrès international de radioprotection - Rome, 1966.

- 2 J. BARBIER - G. BENEZECH - B. CADET -
J. MIRIBEL - P. SIGLI.
Piégeage et désorption de l'iode dans les réacteurs
graphite gaz.
Congrès international de radioprotection de Washington.

- 3 A. ROGUIN
La détection des ruptures de gaine dans les piles nucléaires
refroidies par le gaz.

Figures :

- 1 Cheminements des produits de filiation.
- 2 Echange bilatéral entre gaz et structures.
- 3 Chaîne de filiation des radionucléides de masse 131.
Cinétique de la filière 131 à Chinon 1.

Annexes :

- 1 Récapitulation des données.
Partage des tellures entre gaz et structures.
 - 2 Calcul de l'importance relative des tellures.
-

ANNEXE 1 : Données nécessaires au calcul de (IR)

Récapitulation des données

Constante radio-active : du Te 131 m	Te m = 0,024	h^{-1}	
	du Te 131	Te = 1,6	h^{-1}
	de I 131	I = 0,0036	h^{-1}
Constante de déplacement dans le gaz	$\varphi_{12} = 7$	h^{-1}	
Constante de désorption du tellure des structures	$\varphi_{21} = 0,633$	h^{-1}	

Production à partir de l'antimoine	2,6 %	
Elle est partagée en 15 % vers Te 131 m soit et 85 % vers Te 131 soit	0,39 %	⑦
	2,21 %	
Production à partir du Te 131 m	0,44 %	
Production totale de Te 131 m	0,83 %	①
Partage du Te 131 m vers le Te 131 vers l'iode 131	0,22	④
	0,78	⑥

Partage des tellures entre gaz et structures

Application des formules du chapitre II - 5.4.4.

		Répartition du Te 131		Répartition du Te 131 m	
		Gaz	structures	Gaz	structures
Ascendant dans le gaz	formule	A	B	A	B
	coefficient	⑤ 0,242	0,758	② 0,085	③ 0,915
Ascendant sur les structures	formule	C	D	C	D
	coefficient	⑥ 0,0685	0,93	② 0,085	③ 0,915

Remarque : La répartition du Te 131 m est indépendante de la répartition de son ascendant.

ANNEXE 2 : Calcul de l'importance relative des tellures (IR)					
milieu	nucléide	provenance	opération	Ci pour 117 W	
gaz	Te m		① × ②	I	0,07
struct.	Te m		① × ③	II	0,76
gaz	Te	Te m du gaz	I × ④ × ⑤	0,003 /	
	Te	Te m des structures	II × ④ × ⑥	+ 0,0114	
	Te	Activité partielle position Sb indifférente		III	0,0151
environnement	Te m		I × $\varphi_{15}/\lambda_{Te m}$	2,9	
	le		III × $\varphi_{15}/\lambda_{Te}$	+ 0,0095	
	Te m + Te	Fuite partielle position Sb indifférente		VI	2,9
	I	Te m du gaz	I × ⑧ × $\varphi_{15}/(\lambda_I + \varphi_{12})$	0,0078	
	I	le du gaz	III × $\varphi_{15}/(\lambda_I + \varphi_{12})$	+ 0,0021	
	I	Fuite partielle position Sb indifférente		VII	0,010
POSITION DE L'ANTIMOINE				Gaz	structures
Gaz	Te	directe de Sb gaz	⑦ × ⑤	IV	0,54
	Te	Sb structures	⑦ × ⑥	V	0,15
environnement	Te		IV × $\varphi_{15}/\lambda_{Te}$	0,34	
	Te		V × $\varphi_{15}/\lambda_{Te}$	0,094	
	Te m + Te	Report de la fuite partielle VI		+ 2,9	+ 2,9
	Te m + Te	Fuite totale		VIII	3,24
	I	Sb via Te	IV × $\varphi_{15}/(\lambda_I + \varphi_{12})$	0,077	
	I	Sb via Te	V × $\varphi_{15}/(\lambda_I + \varphi_{12})$	0,021	
	I	Report de la fuite partielle VII		+ 0,010	+ 0,011
	I	Fuite totale		IX	0,087

(IR) = VIII / IX

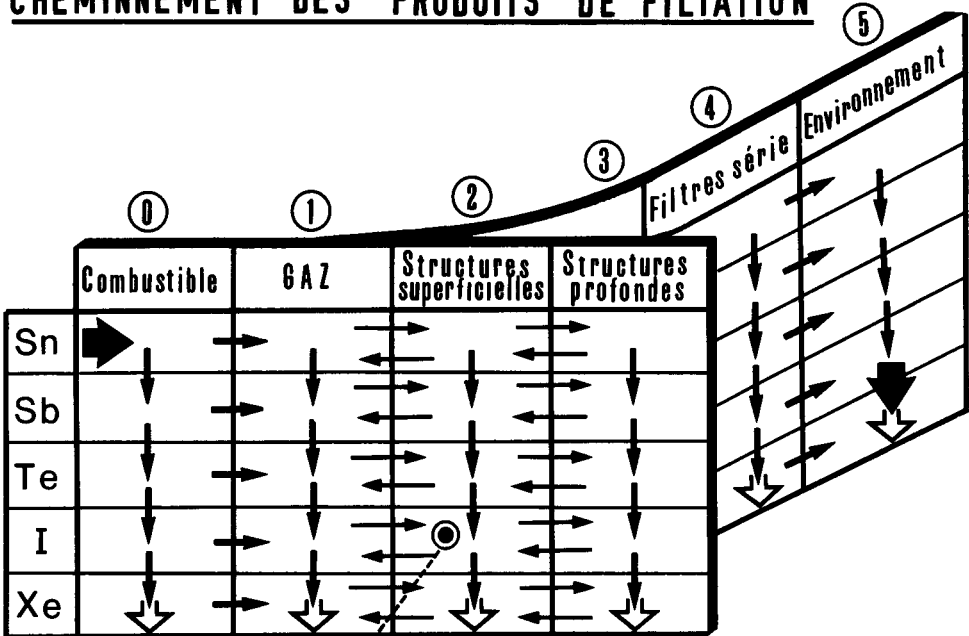
37 < (IR) < 97

Les repères en chiffres arabes correspondent aux chiffres de l'annexe 1.

- La constante de fuite du réacteur 15 est prise arbitrairement égale à 1 h^{-1}

Figure N°1

CHEMINEMENT DES PRODUITS DE FILIATION



HYPOTHESE: $A_{mj} = Q_m \varphi_{mj}$

Equation: $\frac{dQ_m}{dt} = \sum_i A_{im} - Q_m(\lambda + \sum_j \varphi_{mj})$

Equilibre: $\frac{dQ_m}{dt} = 0$

$A_2 + Q_1 \varphi_{12} + Q_3 \varphi_{32} = Q_2(\lambda + \varphi_{21} + \varphi_{23})$

M1	M2	M3
	A2 Te	
φ_{12}	↓	φ_{23}
Q1	Q2	Q3
φ_{21}	↓	φ_{32}
	λ	

COEFFICIENT de PARTAGE de $\sum_i A_{im}$
POUR OBTENIR A L'EQUILIBRE:

l'activité

$$\frac{\lambda}{\lambda + \sum_j \varphi_{mj}}$$

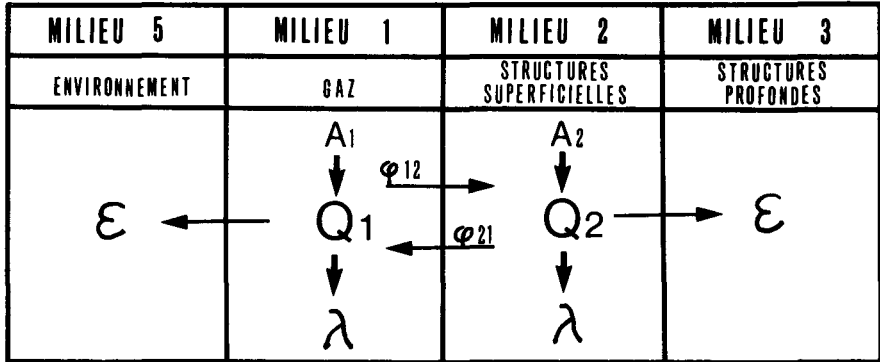
ou

un transfert

$$\frac{\varphi_{mj}}{\lambda + \sum_j \varphi_{mj}}$$

Figure N°2

ECHANGE BILATERAL ENTRE GAZ ET STRUCTURES



$$\frac{dQ_1}{dt} = A_1 + \varphi_{21} Q_2 - Q_1 (\lambda + \varphi_{12} + \varepsilon)$$

$$\frac{dQ_2}{dt} = A_2 + \varphi_{12} Q_1 - Q_2 (\lambda + \varphi_{21} + \varepsilon)$$

A l'équilibre: pour $A_2 = 0$

A
$$\frac{Q_1}{Q_1 + Q_2} = \frac{\lambda + \varphi_{21}}{\lambda + \varphi_{12} + \varphi_{21}}$$

B
$$\frac{Q_2}{Q_1 + Q_2} = \frac{\varphi_{12}}{\lambda + \varphi_{12} + \varphi_{21}}$$

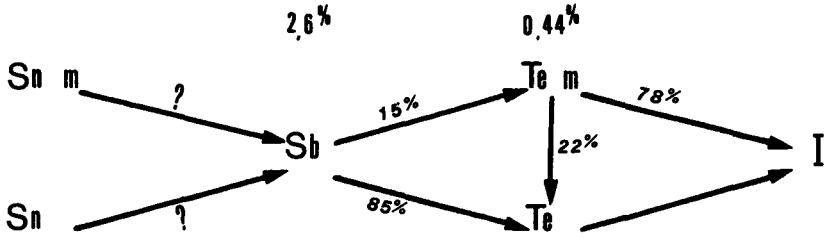
pour $A_1 = 0$

C
$$\frac{Q_1}{Q_1 + Q_2} = \frac{\varphi_{21}}{\lambda + \varphi_{12} + \varphi_{21}}$$

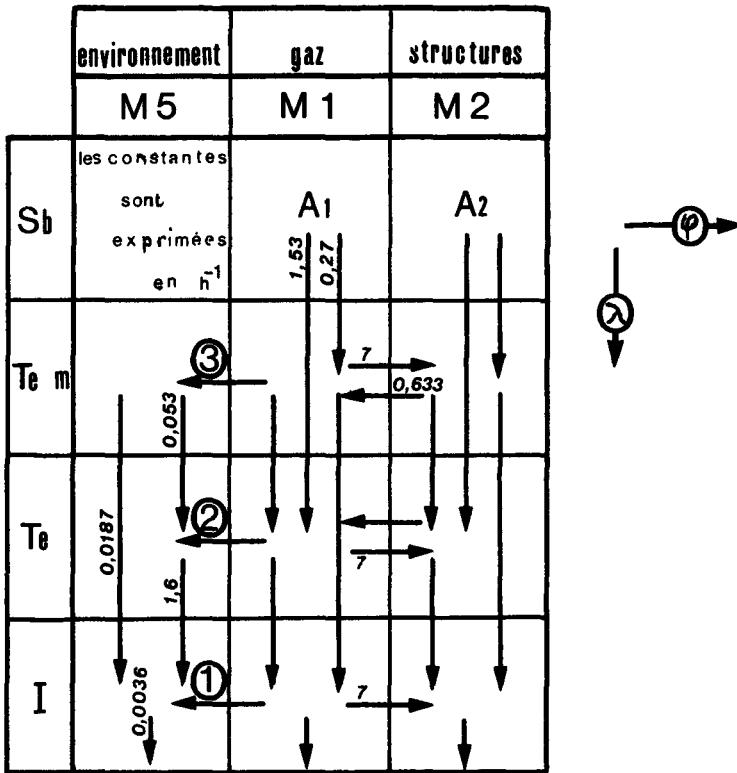
D
$$\frac{Q_2}{Q_1 + Q_2} = \frac{\lambda + \varphi_{12}}{\lambda + \varphi_{12} + \varphi_{21}}$$

Figure N°3

Chaîne de filiation des radionucléides de masse 131



Réseau partiel de la filière 131 à Chinon 1



MESSUNGEN ZUR BESTIMMUNG DER JODZUSAMMENSETZUNG IN DER RAUM-
UND GEBÄUDELUFT EINES KERNKRAFTWERKES MIT SIEDEWASSERREAKTOR

K. Pfeiffer

Kraftwerk Union
Frankfurt/Main - B.R. DEUTSCHLAND

KURZFASSUNG. Das aus Kühlmittelleckagen in die Raum- und Gebäudeluft eines Kernkraftwerkes freigesetzte Spaltjod kann als gasförmiges elementares Jod, gasförmiges anorganisch oder organisch gebundenes Jod und als Aerosol-Jod vorliegen. Die Zusammensetzung hängt von den jeweiligen Betriebsbedingungen ab. Zur Abschätzung der Anteile der verschiedenen Jodkomponenten wurden unter Anwendung der Mehrfiltermethode in einem Siedewasserreaktor-Kernkraftwerk Versuche mit verschiedenen Filtermedien durchgeführt. Im Einzelnen wurden Aerosol-Faserfilter, Aktivkohle-Filter, KJ - imprägnierte Aktivkohle sowie der Ag NO₃ - imprägnierte Katalysatorträger AC-6120 eingesetzt. Nach den bisherigen Ergebnissen ergab sich für die von Faserfiltern leicht filterbare Komponente ("Aerosoljod") ein Anteil von 30 - 40 %. Für die von gewöhnlicher Aktivkohle leicht filterbaren Komponente ergab sich ein Anteil von 50 - 60 %, während der Anteil der schwer filterbaren Komponente unterhalb 10 % liegt und zwischen Werten von 3 - 6 % schwankt. Bei simulierten Leckagen in einer Versuchskammer wurden Aerosoljodanteile von bis zu 80 % gemessen.

SUMMARY. MEASUREMENTS OF THE IODINE COMPOSITION IN THE PLANT ENCLOSURES OF A BWR NUCLEAR POWER PLANT. Fission-product iodine released by coolant leakage into the air in the rooms and buildings of a nuclear power station may be present as elementary iodine, gaseous inorganic or organic bound iodine, or as aerosols. The composition depends on the operating conditions at the time of release. To determine approximately the proportions of the various iodine components, experiments were carried out in a BWR nuclear power plant with various filter media, using the multi-filter method. Particulate filters, fibre filters, activated charcoal filters, KI-impregnated activated charcoal filters, and silver nitrate-impregnated catalyst carrier AC-6120 were used. The results so far obtained indicate that the component readily trapped by fibre filters (aerosol iodine) account for 30 - 40 % of the total. The fraction of components readily absorbed by normal activated charcoal is 50 - 60%, while the fraction of components which are difficult to remove by filtration is below 10 %, ranging from 3 to 6 %. With simulated leakages in an experimental chamber the proportion of aerosol iodine was sometimes as high as 80 %.

RESUME. MESURES EN VUE DE LA DETERMINATION DES DIVERS COMPOSES IODES PRESENTS DANS L'AIR A L'INTERIEUR D'UNE CENTRALE NUCLEAIRE A REACTEUR A EAU BOUILLANTE. L'iode de fission libéré par les fuites du caloporteur dans l'air à l'intérieur d'une centrale nucléaire peut se présenter sous forme d'iode élémentaire gazeux, de composés gazeux minéraux ou organiques de l'iode et d'aérosol. La composition dépend des conditions de fonctionnement. Afin de déterminer les pourcentages des différents composants iodés, des essais ont été réalisés avec différents milieux filtrants dans une centrale nucléaire à réacteur à eau bouillante, en utilisant la méthode du filtrage sélectif. Ont été utilisés des filtres en fibre pour aerosol, des filtres à charbon actif, du charbon actif imprégné de KI ainsi qu'un support catalytique AC-6120 imprégné d' Ag NO₃. Selon les résultats obtenus

jusqu'ici, on a pour les éléments facilement filtrables par les filtres à fibres (iode sous forme d'aérosol), un pourcentage de 30 - 40 %, pour les éléments facilement filtrables par le charbon activé ordinaire, un pourcentage de 50 - 60 %, tandis que pour les éléments difficilement filtrables le pourcentage est inférieur à 10 % et compris entre 3 et 6 %. Lors d'essais de fuites simulées dans une chambre expérimentale, on a mesuré des teneurs d'aérosols d'iode atteignant 80 %.

1. Problemstellung

Angesichts der immer größer werdenden Anzahl von kerntechnischen Anlagen, insbesondere Kernreaktoren und Wiederaufbereitungsanlagen, werden zunehmende Bemühungen unternommen, die Aktivitätsabgabe an die Umgebung zu reduzieren. Dabei steht mit Rücksicht auf die große Spaltausbeute sowie die ungünstigen radiologischen Eigenschaften des Isotops Jod 131 die Einrichtung von Jodfilteranlagen im Vordergrund.

Ein Teil der aus dem Spaltprozeß des Kernbrennstoffes stammenden Jodisotops können beim Betrieb mit schadhaften Brennelementen in das Reaktorkühlmittel gelangen und werden bei Normalbetrieb durch kleine Leckagen oder bei angenommenen Kühlmittelverlustunfällen in die Raum- und Gebäudeluft der Anlage freigesetzt.

Nach bisherigen Erfahrungen kann Spaltjod als Aerosol, gasförmig elementar und anorganisch oder organisch gebunden in der Luft einer Reaktoranlage vorliegen.

Der totale Abscheidegrad einer Filteranlage - zumeist eine Kombination aus Schwebstoff- und Aktivkohlefiltern - setzt sich aus den Einzelabscheidegraden für die betreffenden Jodkomponenten zusammen. Da sich diese Einzelabscheidegrade beträchtlich voneinander unterscheiden, ist beim Bau einer Jodfilteranlage die Frage nach der Zusammensetzung der Jodanteile in der zu filternden Luft von Interesse. Die vorliegende Arbeit hatte die Zielsetzung, Anhaltspunkte für die Zusammensetzung der Jodaktivität zu ermitteln, wie sie als Folge von Kühlmittelleckagen in einem Kraftwerk mit wassergekühltem Kernreaktor auftritt.

Die im folgenden geschilderten Messungen wurden in den Monaten März/April 1973 im Kernkraftwerk Gundremmingen durch-

geführt. Zu jenem Zeitpunkt bestand eine Undichtigkeit an einer Armatur der Primärwasserreinigung, woraus eine erhöhte Jodaktivitätskonzentration in der Luft, der aus Strahlungsgründen nicht begehbaren und lüftungstechnisch von begehbaren Bereichen abgetrennten Räume des Umwälzsystems, resultierte.

2. Beschreibung der Messungen

2.1 Probenahme und Filtermaterial

Die Luftproben wurden an einer Probenahmestelle des Umluftkanals genommen, durch den der Luftstrom aus dem Raum, in dem die Reaktorwasserleckage vorlag, zu dem Umluftkühler geführt wurde. Zur Probenahme wurde ein handelsüblicher Jod- und Aerosol-Probensammler, Typ Herfurth 1351, verwendet, dessen Filterhalterung in geeigneter Weise erweitert worden war. Die Abbildung 1 zeigt schematisch die Anordnung der Meßfilter. Der Strom der zu untersuchenden Luft konnte über mehrere hintereinander geschaltete Aerosol- und Jodfilter geführt werden. Die in den einzelnen Filtern zurückgehaltene Jodaktivität wurde mit einem Ge/Li-Detektor/Vielkanalanalysator bestimmt. Ausgewertet wurde die Aktivität der Isotope J 131 und J 133. Im gleichen Zeitraum wurden Messungen in den Abluftströmen des Reaktor- und Aufbereitungsgebäudes, des Maschinenhauses sowie in der Kaminabluft selbst angestellt. Die Messungen wurden über einen Zeitraum von insgesamt 10 Tagen durchgeführt. Zur Proben-sammlung wurden folgende Filter eingesetzt:

Asbest Faserfilter vom Typ Schleicher und Schüll,
Aktivkohle vom Typ Cesco,
Aktivkohle, 1 % - KJ imprägniert, Typ CGI (CEAG),
Silber-Katalysatorträger SORBAG AC 6120.

2.2 Filteranordnung

Zur Bestimmung der Zusammensetzung des Jodgemisches in der Meßluft wurde die Mehrfiltermethode herangezogen. Dabei wurden folgende Komponenten unterschieden:

Eine Aerosolkomponente A, die von gewöhnlichen Schwebstofffiltern gut, von Aktivkohle- und Katalysatorträgerfiltern dagegen schlecht oder gar nicht zurückgehalten wird.

Eine gasförmig elementare Jodkomponente B, die von Schwebstofffiltern schlecht, von den drei anderen Filtersorten hingegen gut angelagert wird.

Eine gasförmig organisch gebundene Jodkomponente C, die von Schwebstofffiltern nicht abgeschieden wird, an gewöhnlicher Aktivkohle schlecht adsorbierbar ist und nur von imprägnierter Aktivkohle bzw. dem Katalysatorträger SORBAG gut zurückgehalten wird.

Zur Bestimmung der Komponente A wurden in mehreren Versuchen bis zu 7 Asbest-Faserfilter angeordnet. Um den von diesem Filtertyp schwer filterbaren Anteil (Komponente B) zu erfassen, wurden den Faserfiltern mehrere Aktivkohlefilter nachgeschaltet.

Zur Bestimmung der Komponente B wurden mehrere Aktivkohlepatronen in den Luftstrom gebracht, denen zur Erfassung der Komponente A ein oder mehrere Faserfilter nachfolgten.

Eine Unterscheidung zwischen den Komponenten B und C müßte nach dieser Arbeitshypothese möglich sein, wenn man durch entsprechende Vorfilterung die Komponente A aus dem Luftstrom entfernte und diesen über eine Kette von gewöhnlichen Aktivkohlefilterpatronen schickte.

Das Auftreten eines schwer filterbaren Anteiles würde dann vom Vorhandensein der Komponente C herrühren.

Bei jedem Versuch wurde zur Bestimmung der Gesamtkativität L_0 hinter dem letzten Meßfilter ein Sicherheitsbett angeordnet, das entweder KJ imprägnierte Aktivkohle oder den vom Kernforschungszentrum Karlsruhe entwickelten Katalysatorträger SORBAG enthielt. Dadurch sollte sichergestellt werden, daß selbst geringste Mengen der schwer filterbaren Komponente C bei der Messung erfaßt würden.

In Tabelle II ist die Anordnung der Meßfilter der einzelnen Versuche dargestellt. Dabei wurden folgende Abkürzungen verwendet

FF	Asbest Faserfilter
Ak	Aktivkohle
Aki	Aktivkohle, KJ imprägniert
S	Katalysatorträger

2.2.1 Bestimmung der von Schwebstofffiltern gut zurückgehaltenen Jodaktivität

In der Abbildung 2 ist der Aktivitätsverlauf für J 131 in Abhängigkeit von der Filternummer dargestellt, wie er sich in einer aus 5 Faserfiltern und 4 Aktivkohlefiltern bestehenden Meßanordnung ergab.

Der Hauptanteil (98 %), der von den Faserfiltern zurückgehaltenen Aktivität ist im ersten Filter enthalten. Aus der vergleichsweise langsamen Aktivitätsabnahme zwischen dem 2. und 4. Faserfilter ist das Auftreten der von diesem Filtertyp schwer filterbaren Komponente B zu erkennen. Aus dem Vorhandensein dieser Komponente resultiert das hohe Aktivitätsinven-

tar der ersten darauffolgenden Aktivkohlepatrone. Aus dem Aktivitätsverlauf zwischen Filter Nr. 7 und 9 ist eine, vermutlich auch für Aktivkohle schwerer filterbare Komponente zu vermuten (C). Der Aktivitätsinhalt des Sicherheitsfilters lag unterhalb der Meßgrenze und wurde nicht in das Diagramm aufgenommen.

Abbildung 3 zeigt die eben dargestellten Ergebnisse zusammen mit zwei Wiederholungsmessungen.

Allen Versuchen gemeinsam ist das Auftreten jeweils einer leicht- und einer schwer filterbaren Komponente für beide Filtersorten.

In Abbildung 4 ist die Durchlässigkeit der Faserfilterkette dargestellt, wie sie sich aus dem Aktivitätsinventar $A_1, A_2 \dots$ bis A_n der Faserfilter bezogen auf die Gesamtaktivität L_0 der Versuche 5, 6 und 7 ergibt. Hinter dem ersten Filter fällt die Durchlässigkeitskurven bei allen Versuchen annähernd parallel verlaufen.

2.2.2 Bestimmung der von Aktivkohlefiltern gut zurückgehaltenen Jodaktivität

In Abbildung 5 ist das Aktivitätsinventar an J 131 von 4 in Reihe geschalteten Aktivkohlefiltern dargestellt, denen 1 Faserfilter und zwei Filter mit KJ imprägnierter Aktivkohle nachgeschaltet sind. Der Aktivitätsabfall entlang der Filterkette erfolgt nur langsam. Der Grund muß also im Vorhandensein ein oder mehrerer für Aktivkohle schwer filterbarer Komponenten liegen. Aufgrund des hohen Inventars

des Schwebstofffilters (Filter Nr. 5) muß es sich dabei unter anderem um die Komponente A handeln. Das geringe Inventar der beiden zuletzt stehenden imprägnierten Aktivkohlefilter zeigt an, daß der Anteil der Komponente C sehr klein verglichen mit der Gesamtaktivität sein muß.

Abbildung 6 zeigt das Aktivitätsinventar von 6 in Reihe geschalteten Aktivkohlepatronen mit einem Faserfilter am Ende. Bei Vergleich mit der eben diskutierten Anordnung (Abbildung 5) wird der Filtereffekt der Aktivkohle auf die Aerosolkomponente ersichtlich. Bei nur 4 Aktivkohlefiltern betrug der Anteil im Faserfilter ca 18 % an der Gesamtaktivität, während er bei Hinzunahme von weiteren 2 Aktivkohlefiltern in Versuch 9 (Abbildung VI) auf nunmehr 8 % abgefallen ist.

In Abbildung 7 sind drei Versuche mit 4 und ein Versuch mit 6 reihegeschalteten Aktivkohlefiltern dargestellt. Zum Vergleich dazu in der nebenstehenden Abbildung 8 der Verlauf der J 131 - Aktivität in 6 Aktivkohlefiltern, denen ein Faserfilter vorgeschaltet wurde. Man sieht, daß nach dem Entfernen der Komponente A die verbleibende Jodaktivität fast zur Gänze bereits in den ersten beiden Filtern zurückgehalten wird.

Abbildung 9 zeigt die Durchlässigkeit aus 7 Versuchen an in Reihe geschalteten Aktivkohlepatronen. Die obere Kurvenschar stellt die Durchlässigkeit dar, wie sie ohne Vorfilterung gemessen wird, während sich bei einer Vorfilterung mit einem oder mehreren Faserfiltern die untere Kurvenschar ergibt. Eine Mittelung der Durchlässigkeit ergibt den in Abbildung 10 gezeigten Verlauf.

2.3 Filteranordnung bei den Messungen in der Gebäudeabluft

Die Zielsetzung bei den Messungen der Jodaktivität der Gebäudeabluft war die Bestimmung des Aerosol- und gasförmigen Jodanteils. Zu diesem Zweck wurden in mehreren Versuchen 4 Filterpatronen des Katalysatorträgers SORBAG mit einem oder mehreren Faserfiltern kombiniert.

2.3.1 Aufbereitungsgebäude

Abbildung 11 und 12 zeigen das Ergebnis zweier Messungen der J 131 Aktivität in der Abluft des Aufbereitungsgebäudes. Auffällig ist der vergleichsweise niedrige Anteil an Aerosoljod, der in den gezeigten Fällen 0,24 bzw. 3,6 % ausmacht.

2.3.2 Reaktorgebäude

Abbildung 13 und 14 zeigen die Meßergebnisse bei der Untersuchung der Reaktorgebäudeabluft. Das Aktivitätsinventar der vierten bzw. dritten und vierten Filterpatrone lag unterhalb der Meßgrenzen. Der in den Aerosolfiltern zurückgehaltene Anteil lag bei 31,2 und 30,9 %.

2.3.3 Kamin- und Maschinenhausabluft

Die letzten beiden Abbildungen (15, 16) zeigen Meßergebnisse aus der Kamingesamtabluft und der Maschinenhausabluft. Der Aerosolanteil in der Kaminabluft lag bei ca. 12,5 %. Der Anteil in der Maschinenhausabluft lag unterhalb der Meßgrenze

3. Diskussion der Ergebnisse

3.1 Umluft

3.1.1 Faserfilter

Aus Abbildung 4 folgte, daß im Hinblick auf die Filterung von Jod durch Schwebstofffilter 2 Komponenten unterschieden werden können:

- a) Eine gut filterbare Komponente A, die praktisch vollständig im ersten Filter zurückgehalten wird.
- b) Eine schlecht filterbare Komponente B, welche sich durch den langsamen exponentiellen Verlauf der Durchlässigkeitskurve hinter dem ersten Filter ausdrückt.

Eine Extrapolation der Durchlässigkeitskurven gegen das nullte Filter liefert ein Maß für die Anteile dieser beiden Komponenten in der Eintrittsaktivität vor dem ersten Filter.

Für die leicht filterbare Komponente A ergibt sich ein Anteil von 40 % (Schwankung zwischen 36 % - 41 %), während sich für die zweite Komponente ein Anteil von ca. 60 % ergibt (Schwankung zwischen 59 % und 64 %).

3.1.2 Aktivkohlefilter

Eine analoge Behandlung der Meßergebnisse an Aktivkohlefiltern zeigt das Auftreten von ebenfalls 2 verschieden gut rückhaltbaren Komponenten (B, respektive A und C). Die Extrapolation der Durchlässigkeitskurve ergibt einen Anteil von ca. 50 % (50 % - 52 %) für die leicht filterbare Komponente (B)

während die schwer filterbaren Komponenten im Mittel ebenfalls 50 % ausmachen. Durch Entfernen des Aerosolanteils aus der Meßluft sinkt der schwer filterbare Anteil auf ca. 7 % (3% - 7,5 %) ab.

3.1.3 Ergebnis

Aus den voneinander unabhängigen Meßreihen folgt somit für A, B und C ein Anteil von ca. 40 %, 50 %, und 7 %. Diese Ergebnisse wurden bei der Auswertung der J 133 - Aktivität bestätigt.

3.2 Abluft

Die in der Gebäudeabluft durchgeführten Messungen gestatten nur die Abschätzungen des Anteils der an Aerosole gebundenen Jodaktivität. In der Abluft des Maschinenhauses und des Aufbereitungsgebäudes wurden vernachlässigbar geringe Aerosolanteile nachgewiesen. Der dagegen verhältnismäßig hohe Anteil von ca. 30 % in der RG-Gebäudeabluft stammt sicherlich aus dem Beitrag der zur Unterdruckhaltung der Loop-Räume zugeführten Abluftrate von 2000 m³/h. Der dagegen geringere Anteil von 12 % in der Kamingesamtabluft entsteht durch eine Verdünnung mit dem "aerosolärmeren" Anteil des Aufbereitungsgebäudes.

Eine Aufschlüsselung des gasförmigen Jodanteils in der Gebäudeabluft aus den letztgenannten Messungen war nicht möglich. Zwar ergab sich bei dem Versuch, die Filteraktivität der Katalysatorträgerpatronen nach der Mehrfiltermethode auszuwerten in fast allen Fällen ein Verlauf, der bei Vorfilterung des Aerosolanteils das Auftreten einer schwer- und einer leicht filterbaren Komponente andeutete. Jedoch lag das Meßergebnis der dritten und vierten Patrone so nahe an der Meßgrenze,

daß eine Diskussion nicht sinnvoll erscheint.

Eine Wiederholung der Messungen war bis jetzt nicht möglich, da die Jodaktivitätskonzentration in den Umluft-räumen nach Behebung der Undichtigkeit so niedrig ist, daß eine Messung nur wenig Erfolg versprach. Der trotzdem im Oktober durchgeführte Versuch wurde nach ca. 8 Tagen Sammelzeit abgebrochen. Die in dieser Zeit in der 1. Filterpatrone akkumulierte Aktivität betrug ca. 10^{-3} /u Ci. Bereits das Inventar der zweiten Patrone lag unterhalb der Meßgrenze. Die J 131 Konzentration der Luft ergab sich daraus durch Normierung auf die gesammelte Luftmenge zu ca. $5 \cdot 10^{-12}$ Ci/m³, d.h. etwa 1/500 MZK.

4. Schlußfolgerung

Die geschilderten Ergebnisse zeigen, daß bei Kühlmittel-leckagen offensichtlich ein großer Teil des freigesetzten Spaltjods an Aerosole gebunden ist. Die vorliegenden Meß-ergebnisse liefern dafür einen Wert von ca. 40 %. Der gas-förmige Anteil, der auf das von Aktivkohle leicht filterbare elementare Jod entfällt, hatte bei unseren Messungen einen Anteil von ca. 50 %, während der schwer filterbare Anteil bei ca. 7 % lag. Die unter normalen Betriebsbe-dingungen zum Abluftkamin gelangende Jodaktivität enthält wesentlich geringere Aerosolanteile.

Abschließend möchte ich der Betriebsleitung von KRB für die Genehmigung zur Durchführung dieser Messungen danken. Der Abteilung Physik/Chemie und Strahlenschutz, unter Lei-tung von Herrn Dipl-Phys. N. Eikelpasch schulde ich großen Dank für die Unterstützung bei den Experimenten.

Jodkomponente	Bez.	Filtertyp			
		Aerosolfilter	Aktivkohle	Aktivkohle (impr.)	Katalysatorträger
Aerosoljod	A	gut	schlecht	schlecht	nicht
Gasf. elem. Jod	B	schlecht	gut	gut	gut
Gasf. organ. geb. Jod	C	nicht	schlecht	gut	gut

TabI Rückhaltefähigkeit der verwendeten Filtertypen gegenüber den verschiedenen Jod-Komponenten

Versuch Nr.	Filter Nr.											
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
1	AK	AK	AK	AK	FF	AKi	AKi					
2	AK	AK	AK	AK	FF	AKi	AKi					
3	AK	AK	AK	AK	FF	AKi	AKi					
4	FF	AK	AK	AK	AK	AK	AK	FF	AKi			
5	FF	FF	FF	FF	FF	AK	AK	AK	AK	AKi		
6	FF	FF	FF	FF	FF	FF	AK	AK	AK	AK	AKi	
7	FF	FF	FF	FF	FF	FF	FF	AK	AK	AK	AK	S
9	AK	AK	AK	AK	AK	AK	FF	S				

Tab.II Anordnung der Filter

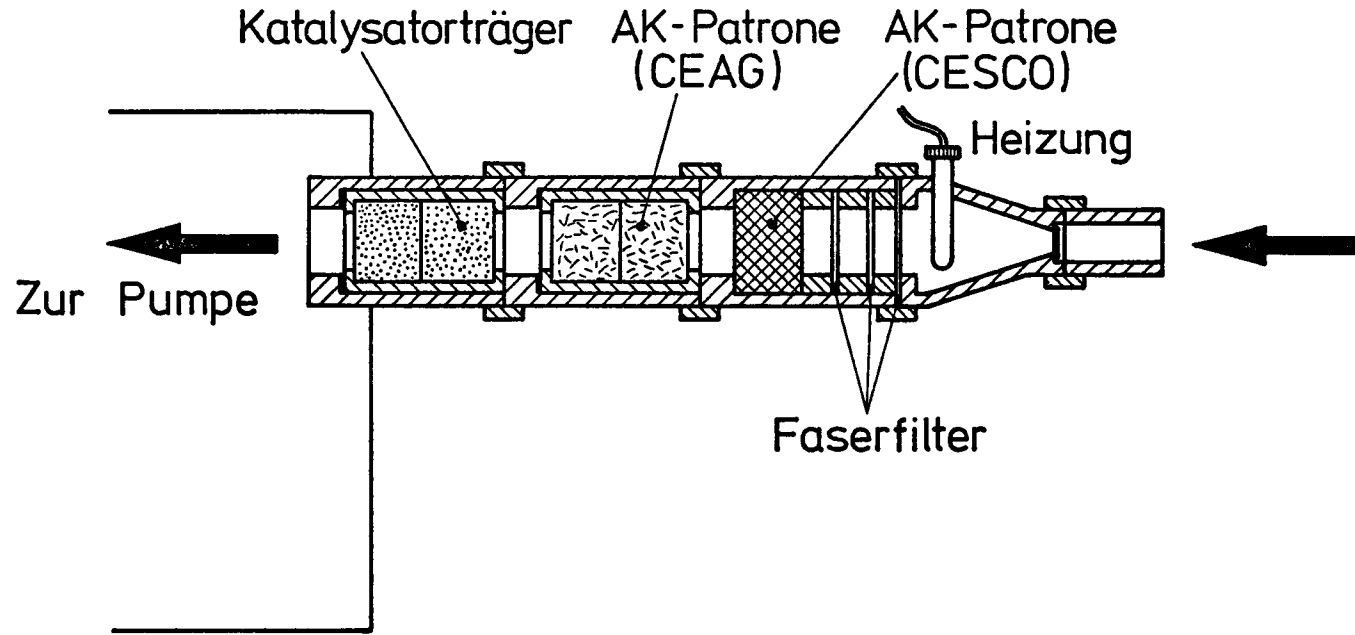


Abb. 1 Schematische Darstellung der Probenahmeverrichtung

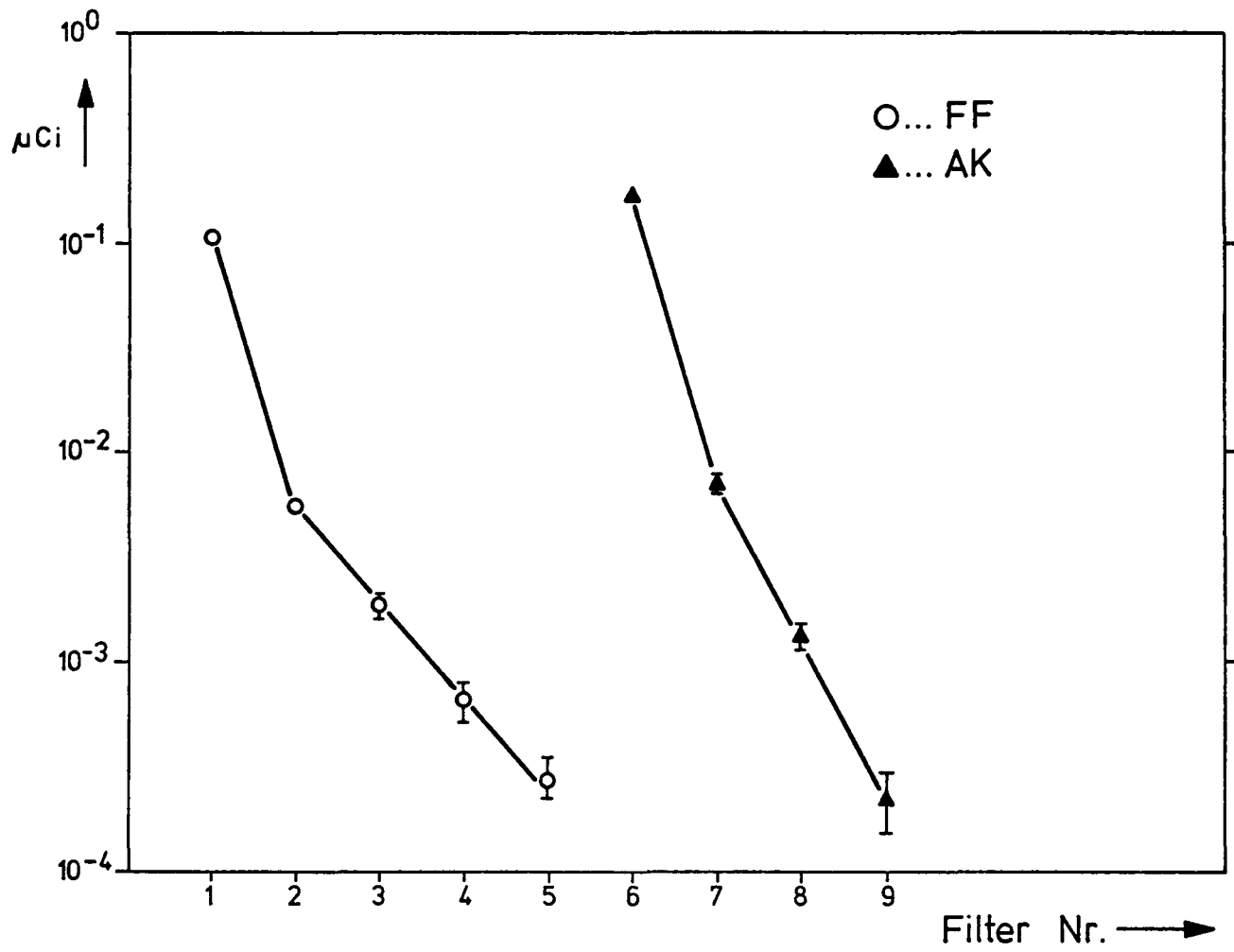


Abb. 2: Aktivitätsverlauf Versuch 5

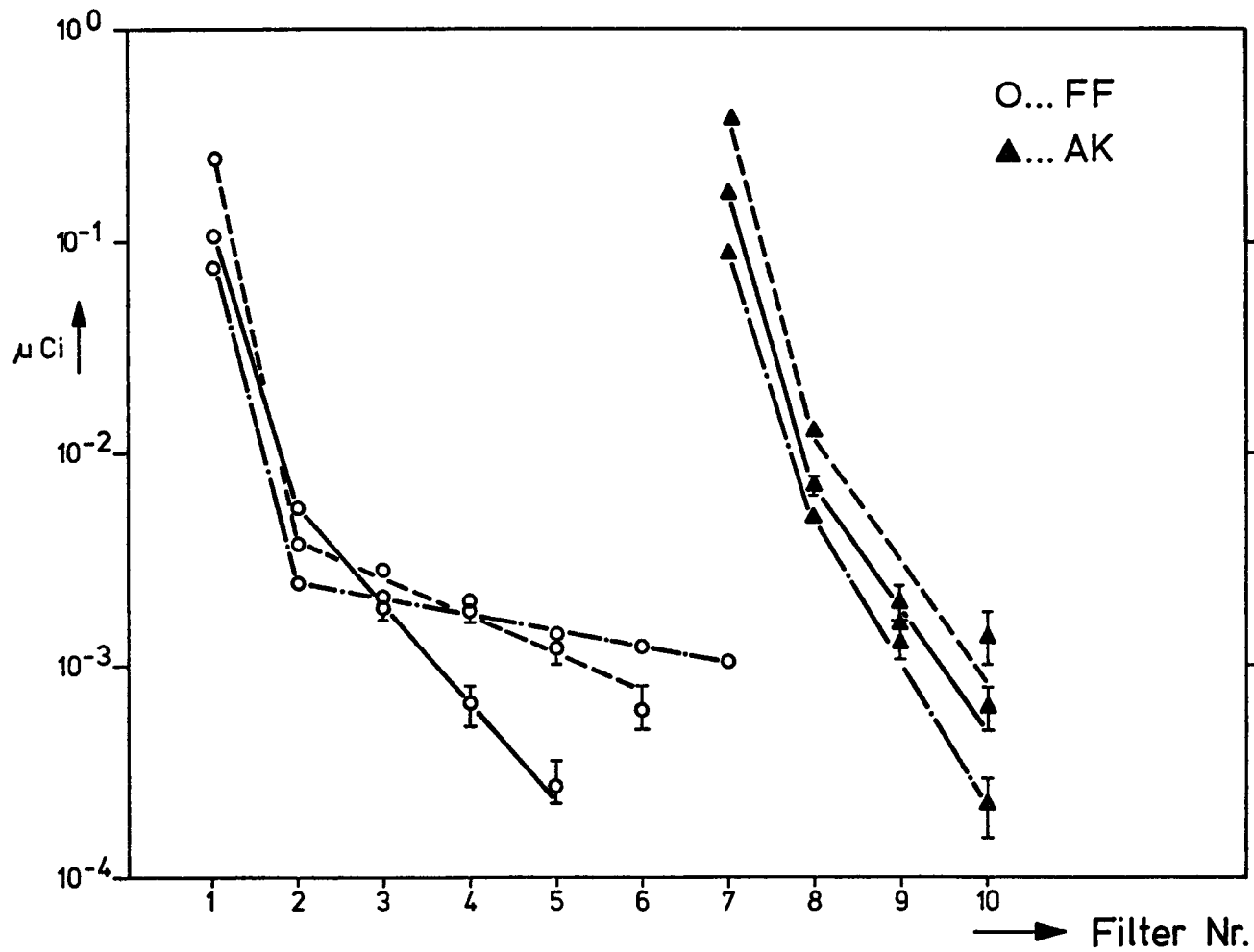


Abb.3 : Aktivitätsverlauf Versuche 5, 6 und 7

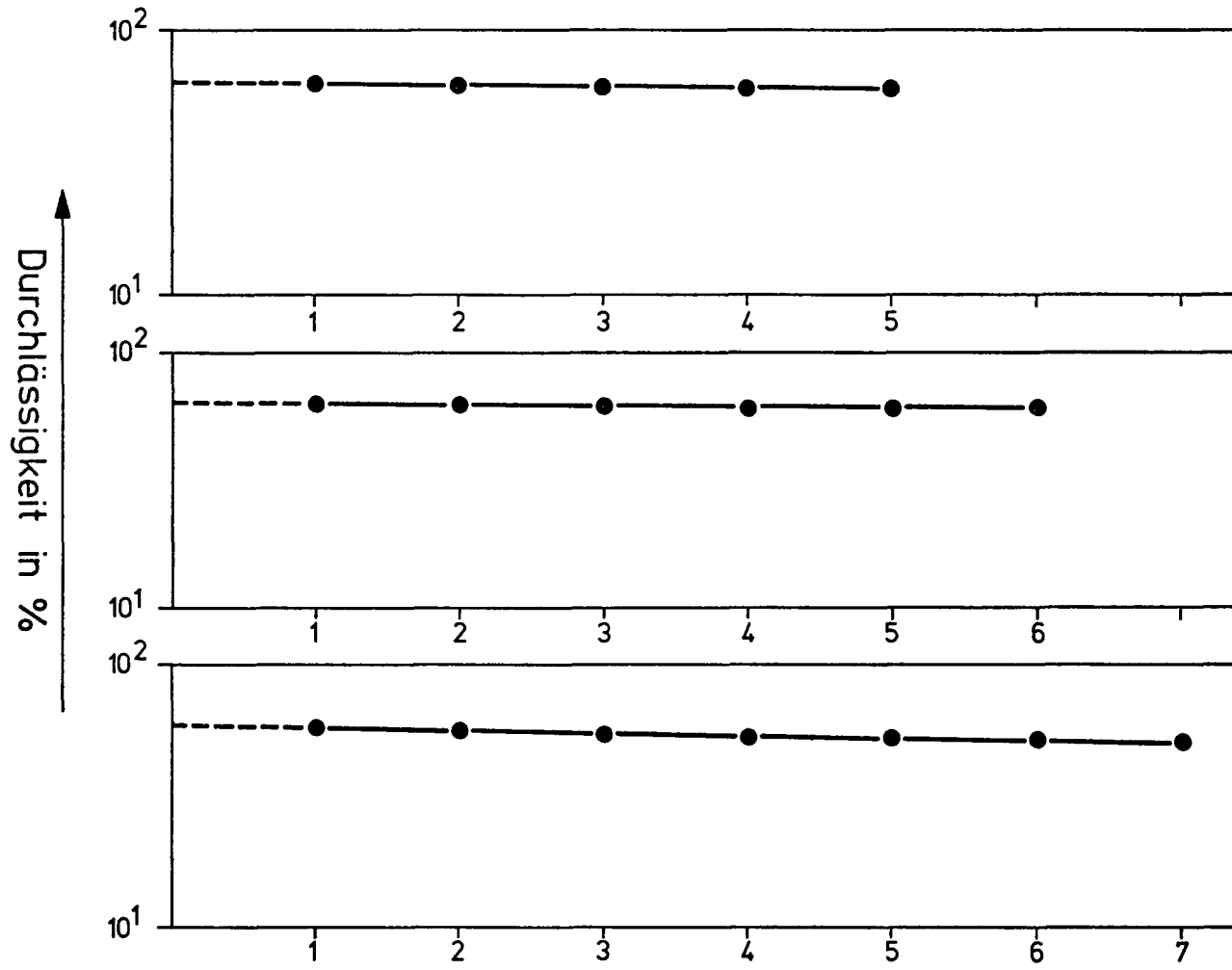


Abb. 4: Durchlässigkeit Versuche 5, 6 und 7 Filter Nr.

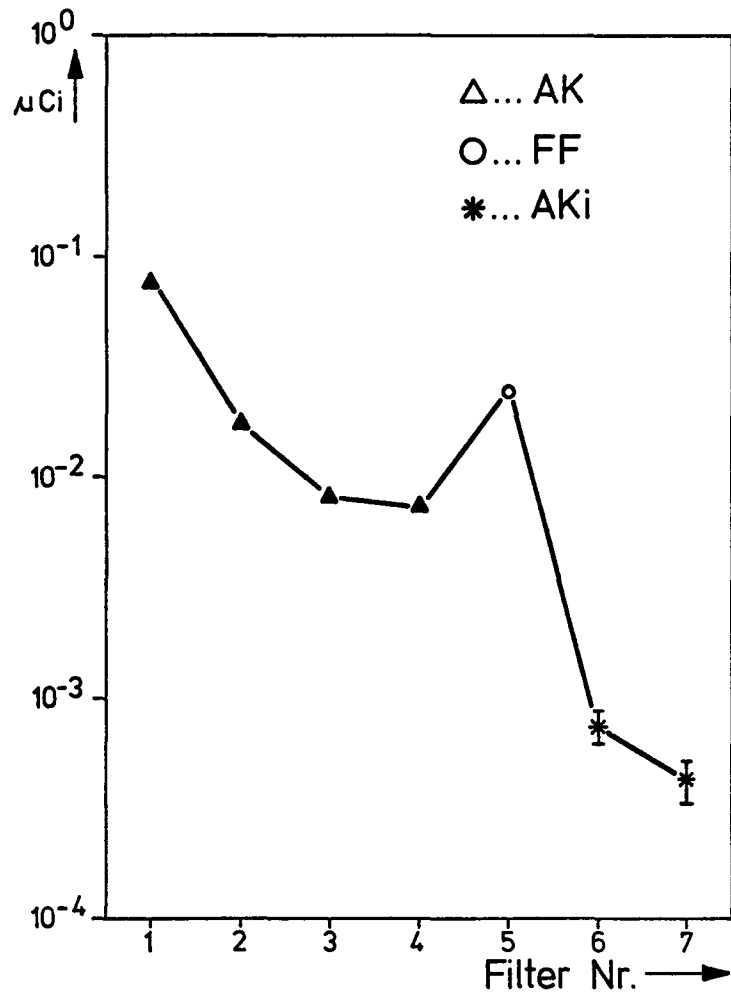


Abb. 5: Aktivitätsverlauf Versuch 1

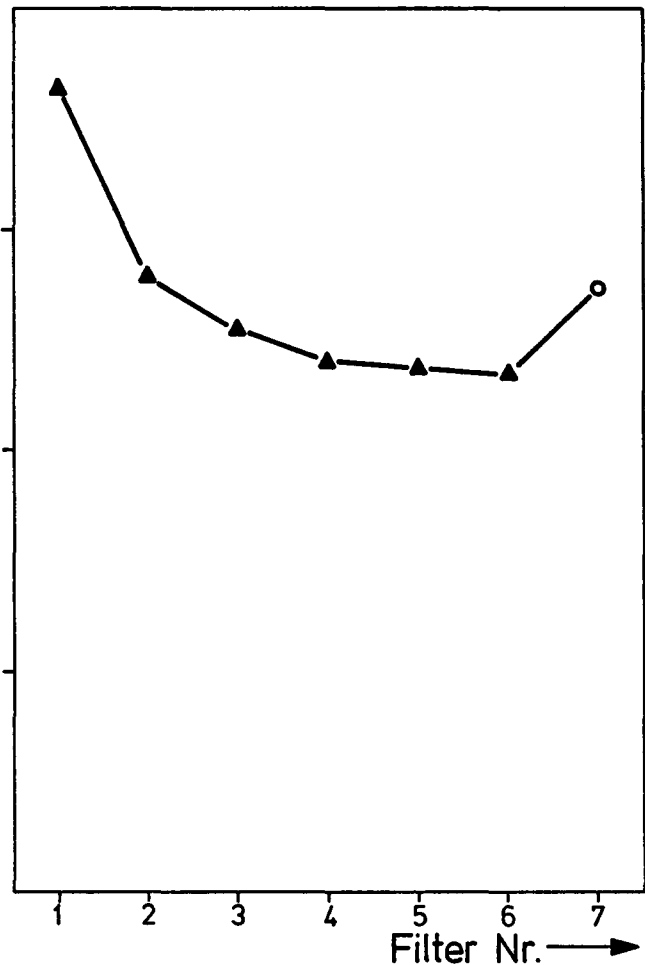


Abb. 6: Aktivitätsverlauf Versuch 9

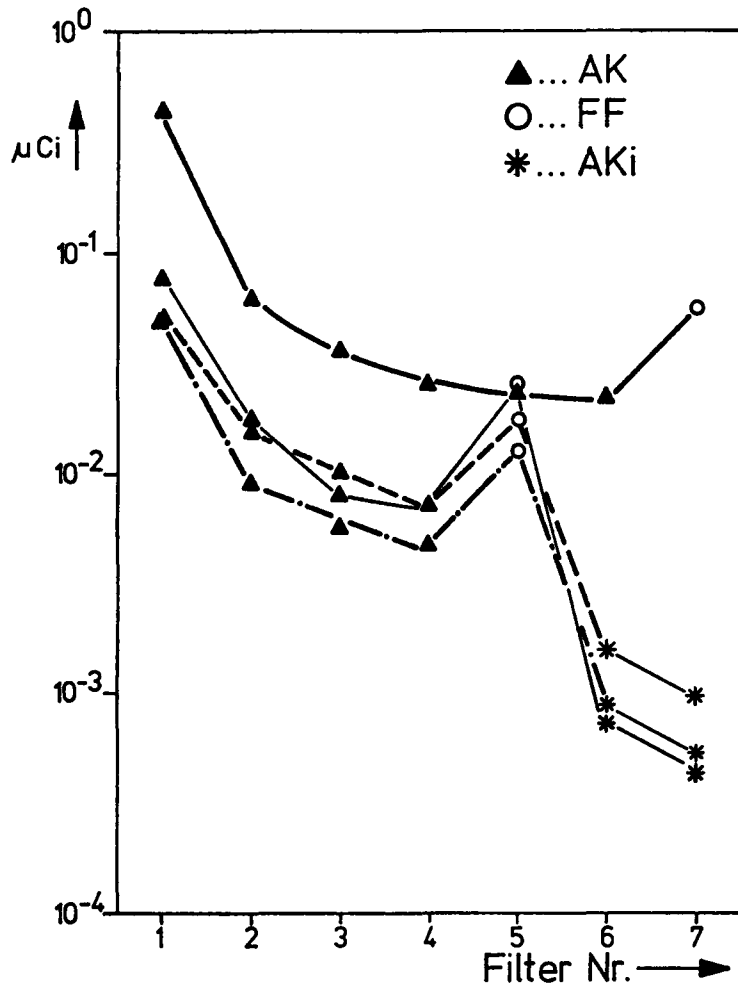


Abb. 7: Aktivitätsverlauf
 Versuch 1, 2, 3 und 9

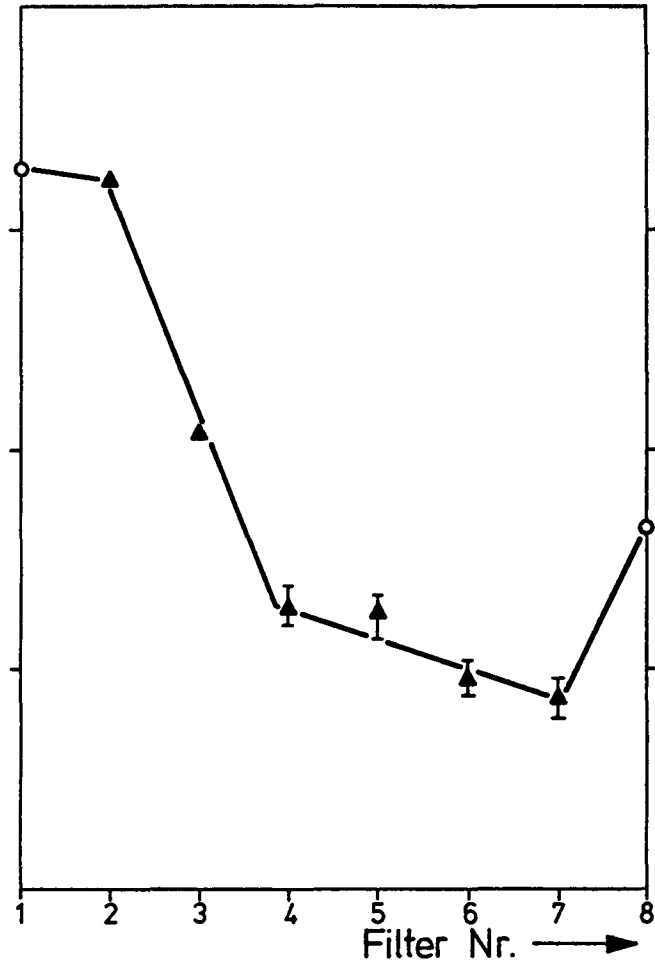


Abb. 8: Aktivitätsverlauf Versuch 4

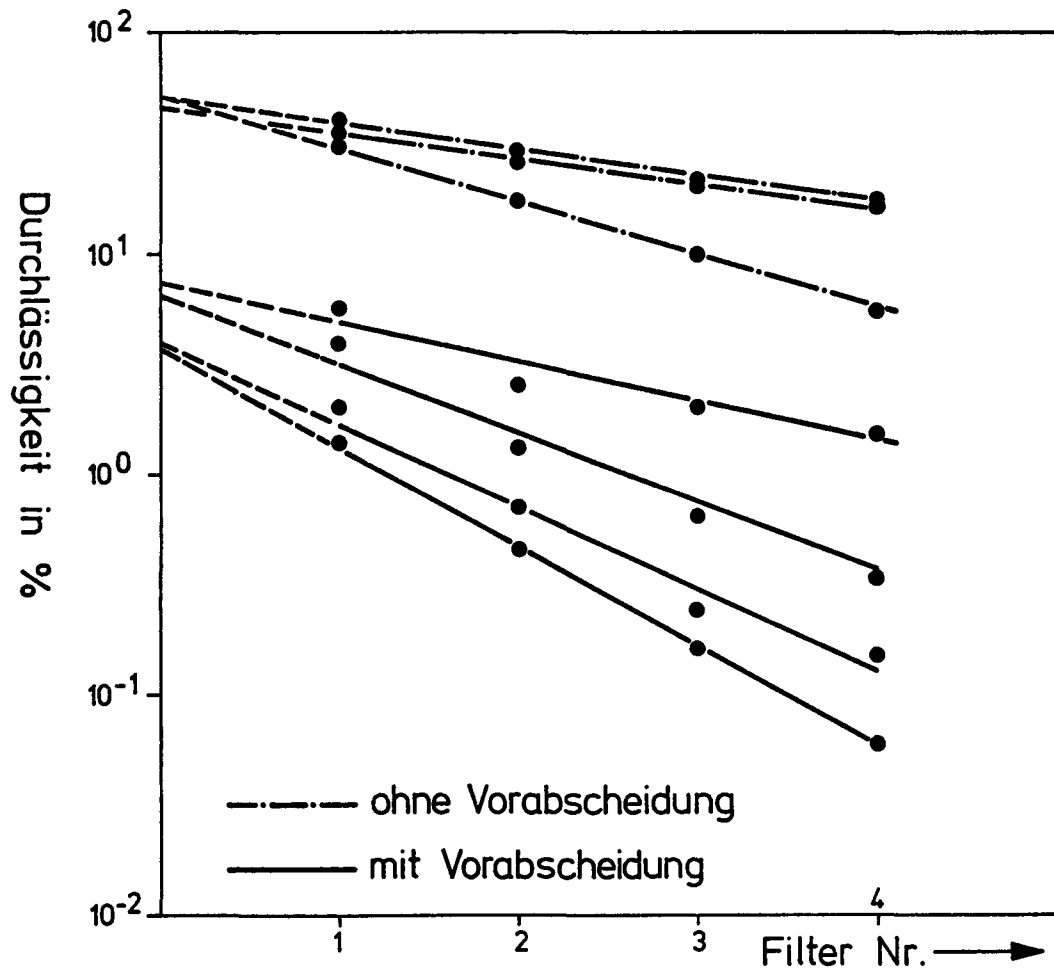


Abb.9: Durchlässigkeit mit bzw. ohne Vorabscheidung der Aerosolaktivität

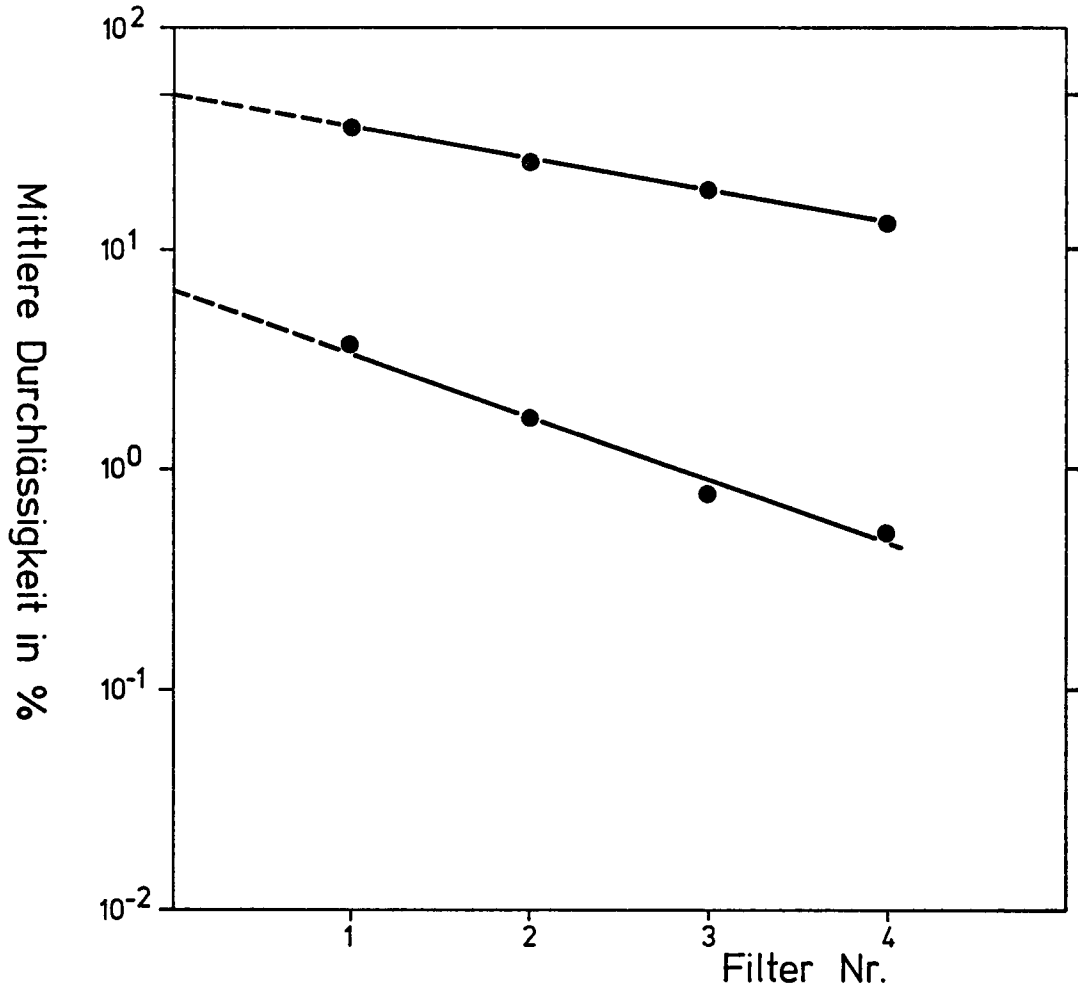


Abb.10: Mittelwert der Durchlässigkeit

(e)

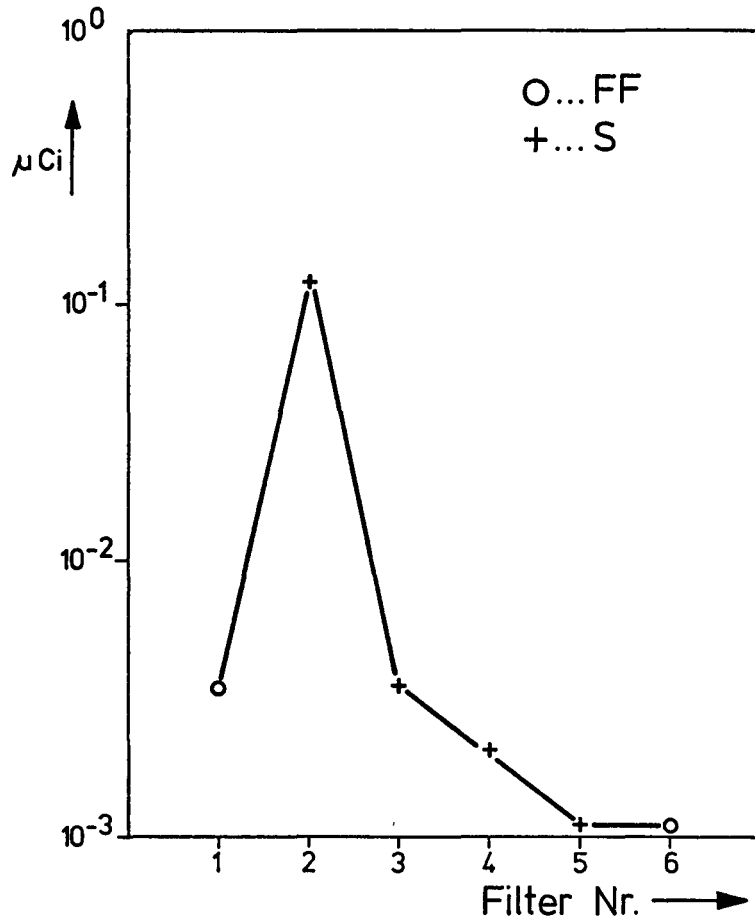


Abb.11: Aktivitätsmessung
Aufbereitungsgebäude - Abluft

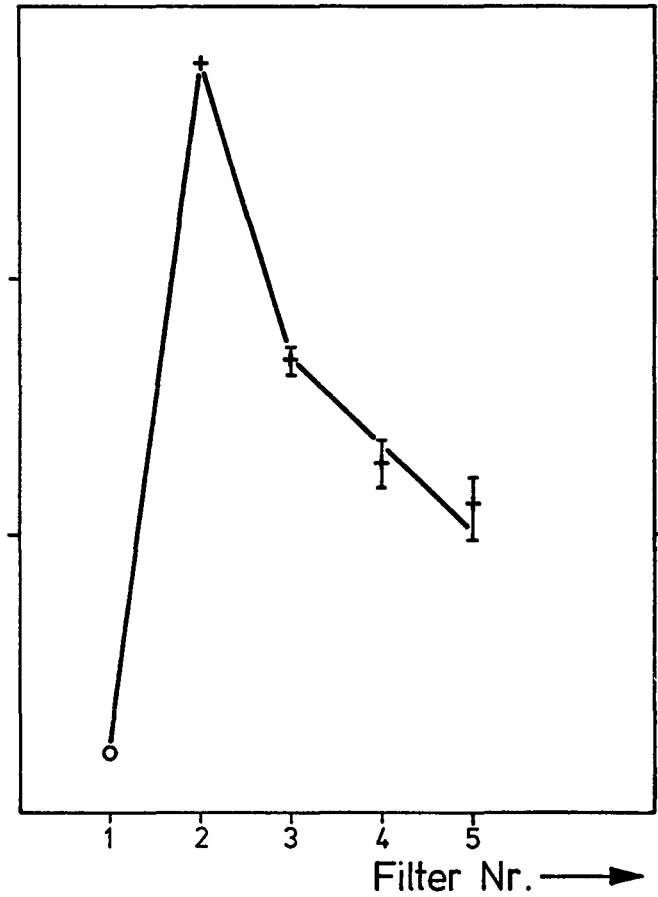


Abb.12: Aktivitätsmessung
Aufbereitungsgebäude - Abluft

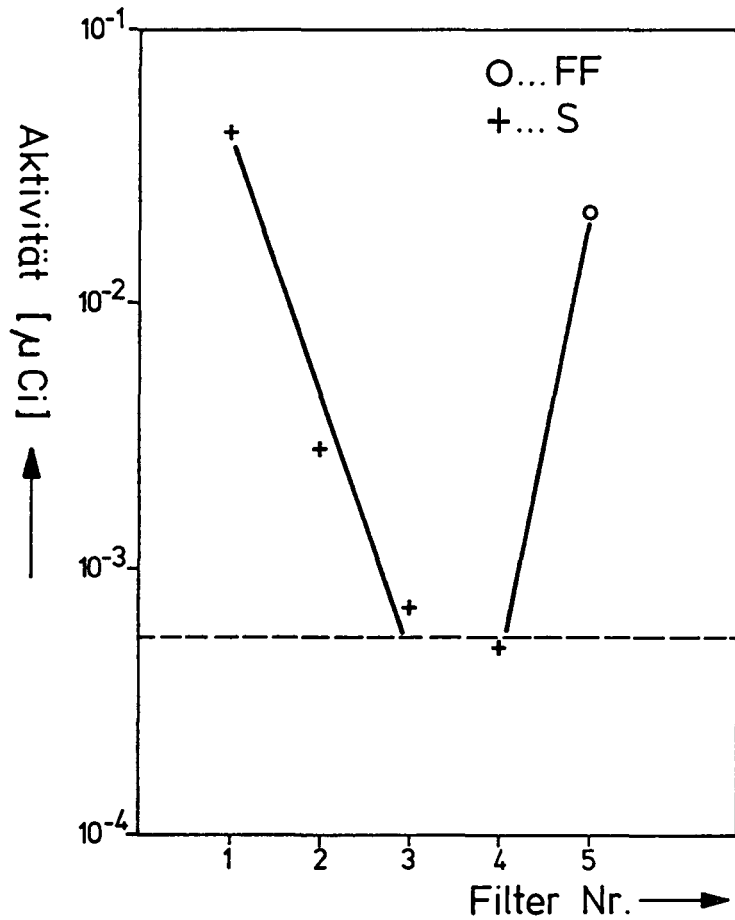


Abb.13: Aktivitätsmessung
 Reaktorgebäude - Abluft

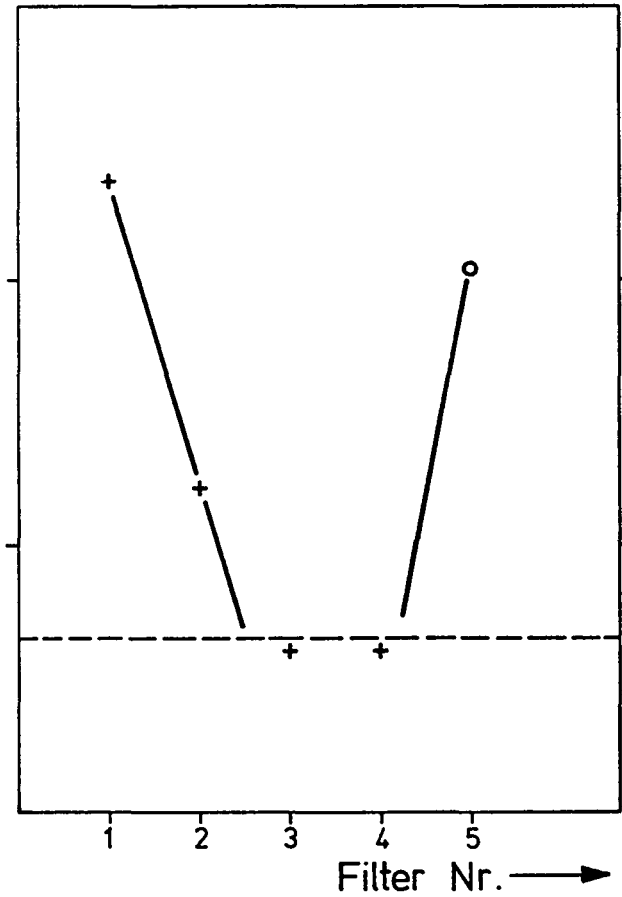


Abb.14: Aktivitätsmessung
 Reaktorgebäude - Abluft

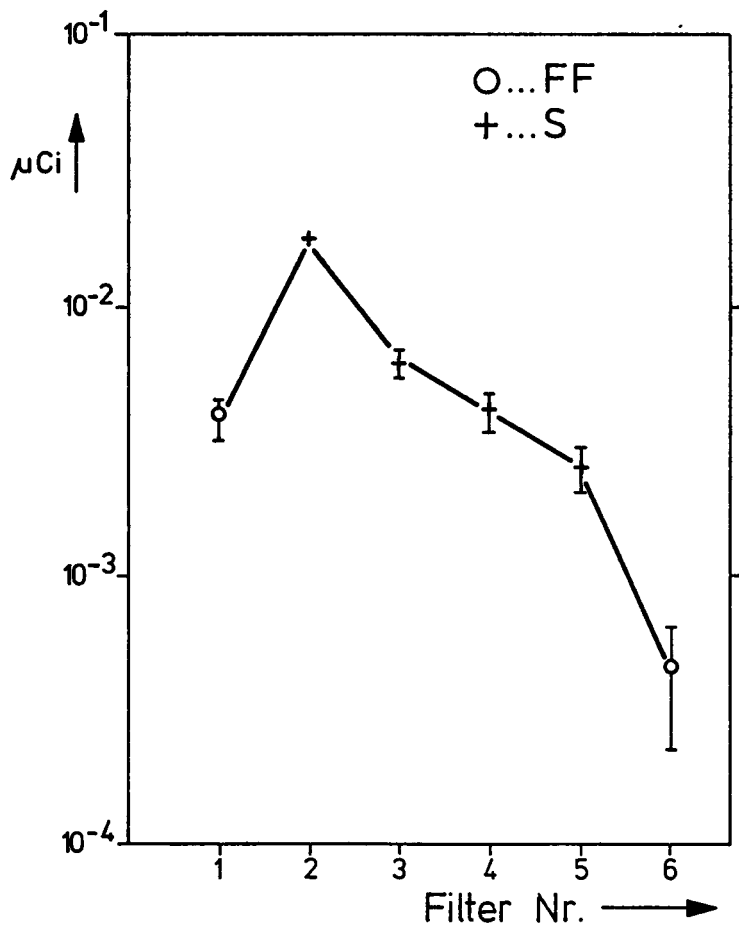


Abb.15: Aktivitätsmessung
Kamin - Abluft

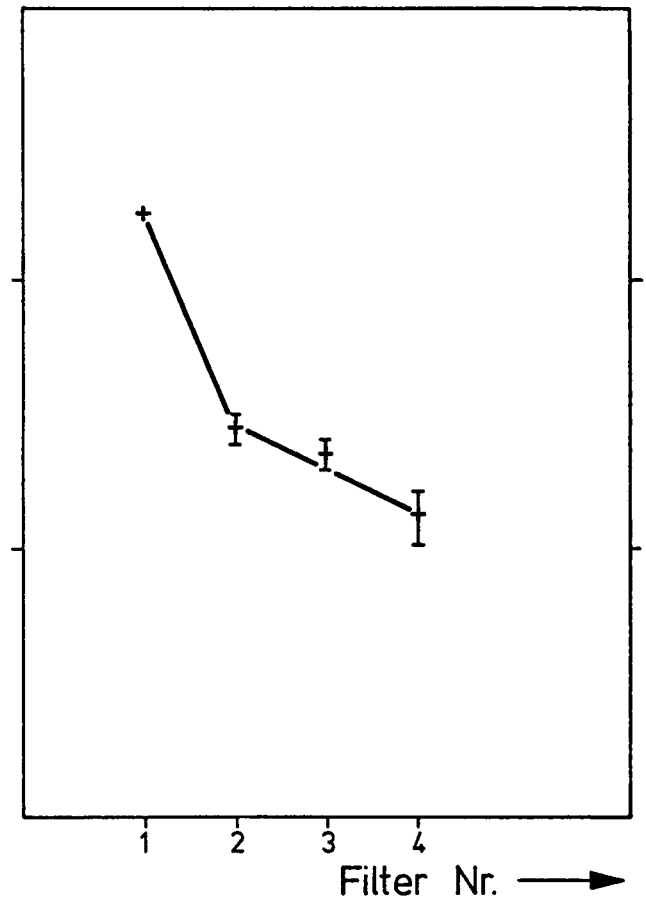


Abb.16: Aktivitätsmessung
Maschinenhaus - Abluft

THE AGEING OF IMPREGNATED CHARCOALS

L.R. Taylor and R. Taylor

U.K.A.E.A.
Windscale - U.K.

SUMMARY. Activated charcoals impregnated with potassium iodide or triethylenediamine are widely used for the trapping of iodine species. This report describes laboratory work on accelerated dynamic ageing and real-time static ageing of impregnated charcoals. From these investigations an equation, which allows predictions of ageing performance to be made, has been developed. The predictions of the ageing equation are compared with the results obtained from the real-time dynamic ageing performance of an installed full-scale iodine trapping plant.

RESUME. VIEILLISSEMENT DE CHARBONS IMPREGNES. Le charbon actif imprégné d'iodure de potassium ou de triéthylènediamine sert couramment à piéger les composés iodés. Le présent rapport décrit les travaux de laboratoire relatifs aux vieillissements dynamiques accélérés et statiques en temps réel de charbons imprégnés. Ces recherches ont permis d'établir une équation prédisant les performances en fonction du vieillissement. Les valeurs ainsi prédites sont comparées à celles des performances mesurées après vieillissement dynamique en temps réel d'une installation de piégeage d'iode grandeur nature.

KURZFASSUNG. ALTERUNG VON IMPRAEGNIERTER HOLZKOHLE. Aktivierte Holzkohle, die mit Kaliumjodid oder Triäthylendiamin imprägniert ist, wird in grossem Umfang zum Auffangen von Jod oder Jodverbindungen benutzt. Dieser Bericht beschreibt die Laborarbeiten über die beschleunigte dynamische Alterung und über die tatsächliche zeitliche Alterung von imprägnierter Holzkohle bei statischen Bedingungen. Aus diesen Untersuchungen wurde eine Gleichung abgeleitet, die Voraussagen über den Alterungsprozess ermöglicht. Die Voraussagen gemäss dieser Alterungsgleichung werden mit den Ergebnissen verglichen, die für den dynamischen "real-time"-Alterungsvorgang bei einer Jod-Auffangananlage im technischen Massstab erzielt wurden.

INTRODUCTION

1. An important duty of part of the trapping plant fitted to nuclear reactors and to irradiated fuel element handling facilities is to provide protection against the release of Iodine-131 to the environment. Molecular iodine may be adsorbed by a variety of materials but organic compounds containing iodine, for example methyl iodide, are more difficult to trap. At the present time activated charcoal is the preferred adsorbent and impregnation of the charcoal with potassium iodide or triethylenediamine (TEDA) greatly increases its effectiveness towards methyl iodide, particularly at high relative humidity.

2. The development of impregnated charcoals for trapping methyl iodide and other forms of iodine in a variety of conditions has been described in previous reports (1, 2). In these reports a brief account of dynamic ageing has been given⁽¹⁾ and the necessity of sizing a trapping plant to allow for ageing of the charcoal has been emphasised⁽²⁾.

3. This report considers laboratory-scale accelerated dynamic ageing tests and real-time static ageing. The results of the laboratory work are compared with ageing data obtained from a real-time dynamic ageing situation in an installed charcoal bed in full-time use on one of the Windscale fuel element handling facilities.

4. As in previous reports on the trapping of iodine species on charcoal, it must be emphasised that the results are applicable only to charcoal beds which are properly installed and maintained. Leakage paths round a charcoal bed will completely invalidate any predictions of charcoal performance.

EXPERIMENTAL

GENERAL

5. A standard test for the determination of charcoal efficiency against methyl iodide has been in use for some years at RDL Windscale. This standard test, which is described in Reference 1, was used to determine the efficiency of charcoals after various ageing periods and procedures. The results of the tests are reported in the form of an index of performance $K = (\log_{10} DF)/t$,

as in previous work.

6. The charcoal samples used in this work cover a range of preparative procedures but were all of the same charcoal-base type, ie Sutcliffe-Speakman type 207B and, with one exception, the granules were all in the size range $-2\text{mm}/+ 1.40\text{ mm}$. The charcoals were either impregnated in the laboratory or provided by Sutcliffe-Speakman Ltd as samples of impregnated material made by normal commercial manufacturing processes. In addition some tests were carried out on samples taken from a large consignment of charcoal supplied by Sutcliffe-Speakman Ltd for use in full-scale plants at Windscale.

ACCELERATED DYNAMIC AGEING

7. Two small-scale rigs were used for the laboratory work on accelerated dynamic ageing. The first rig to be brought into operation is shown diagrammatically in Fig. 1. This was designed as a "once-through" rig which was to operate under fairly realistic conditions to examine the behaviour of charcoal when exposed to active cell air.

8. The rig consisted of 25mm nominal bore glass columns containing a 75mm depth of charcoal. The columns were designed so that they could be mounted in the ageing rig, aged, and then removed and re-mounted in the standard methyl iodide test rig without disturbing the charcoal. In the ageing rig the columns containing the charcoal were mounted on a manifold connected to the suction side of a large rotary pump. Four columns were operated simultaneously. Rota-meters were mounted up-stream of each charcoal bed and flow rates were adjusted to 17l/m through each bed. The rig was installed in a very large concrete cell which contained a variety of other equipment. The air passing through the charcoal was not filtered or treated in any way. The air used for ageing therefore contained normal atmospheric dusts and impurities together with concrete dust from the cell and oil mist from nearby equipment. Relatively high hydrocarbon concentrations were present in the air from time to time, due to the presence of large diesel engines exhausting to atmosphere near the building. The relative humidity of the air was not controlled and was simply allowed to follow the normal atmospheric conditions; in general the relative humidity would be in the range 60% to 80%. The conditions used in this rig were

probably somewhat more arduous than those normally encountered on fuel element handling caves, where the charcoal bed would be preceded by (at least) an effective filter system.

9. The second accelerated dynamic ageing rig was more sophisticated than the first. A schematic diagram is shown in Fig. 2. A 150mm diameter section of glass pipe line contained a 12mm-deep bed of charcoal granules firmly held between two stainless steel mesh discs to prevent movement of the granules at the high gas velocities used. The test section was part of a simple recirculation loop between output and input of two large centrifugal blowers operating in parallel. The whole loop was maintained slightly above atmospheric pressure by bleeding clean air into the low pressure side of the circuit. The bleed air was cleaned by passage through an absolute filter and a deep charcoal bed consisting of equal quantities of KI- and TEDA- impregnated charcoals, followed by an equivalent volume of non-impregnated 207B base charcoal. The circuit was maintained in a clean state by a full-flow un-impregnated charcoal bed. Very high flow rates could be achieved in this system and ageing to 8×10^8 bed volume changes of air was completed in about 4 weeks of continuous operation.

STATIC AGEING

10. Two types of static ageing have been used in the present series of experiments. Initially the charcoals under test were spread out in stainless-steel trays filled to a depth of about 10mm. The trays were then exposed to the normal circulation of air in a disused office in one of the process buildings at Windscale.

11. Later samples of charcoal were set aside in normal screw-top bottles to age without free air access. The bottles were opened only for the removal of test samples and were immediately re-closed. Since no material which had been tested was ever returned to stock there was no risk of contamination. Two samples from production batches supplied to Windscale for filling full-scale plants were aged for the first part of the ageing process in the drum in which they were supplied. Only the later part of their ageing was in a screw-capped bottle. The bottles and drums containing the ageing material were stored in the laboratory.

REAL-TIME DYNAMIC AGEING

12. One of the Windscale fuel examination caves has a readily accessible charcoal bed installed. One face of this charcoal bed was designed to contain removable sample packs so that the change in behaviour of the charcoal during realistic operational conditions could be monitored. The sample packs approximated to the geometry required for the standard methyl iodide test equipment so that they could be removed from the charcoal bed, tested in the standard manner in the laboratory and then replaced in the charcoal bed for further ageing. Samples from this charcoal bed were tested with small mass loadings of iodine (usually $\approx 10 \mu\text{g/g}$) since repeated loadings of $100 \mu\text{g CH}_3\text{I/g}$ charcoal, as used in the standard test, might have confused the results by over-loading the charcoal with consequent deterioration in performance(1).

RESULTS AND DISCUSSION

13. In previous work reported by this laboratory an index of performance has been used to compare the efficiency of various charcoals. The same index of performance is used in the present work and is defined as $K = (\log_{10} DF)/t$

where DF = Decontamination Factor

$$= \frac{\text{Total activity of I-131 approaching the charcoal bed}}{\text{" " " " leaving " " "}}$$

and t = the stay-time (in seconds) of the carrier gas in the charcoal bed at the pressure and temperature of the bed.

$$= \frac{\text{Geometric volume occupied by the charcoal granules}}{\text{Volumetric flow rate (at temperature and pressure)}}$$

For the standard test used in the present work the temperature was 20°C and pressure was normal atmospheric in all cases.

14. The dynamic ageing process must be dependent on the volume of gas 'seen' by unit mass of charcoal. A useful method of expressing the extent of ageing is to use the concept of the number of bed volumes of air passed through the bed, ie the number of bed volume changes (BVC). All dynamic ageing results are therefore reported in BVC =

$$\frac{\text{Total volume of gas passed through bed}}{\text{Geometric volume occupied by charcoal granules}}$$

15. The standard test involves the equilibration of the charcoal bed with

98-100% RH air for 16h before loading the $\text{CH}_3^{131}\text{I}$. The number of bed changes inherent in this part of the standard test is only 1×10^5 BVC and is negligible compared with the ageing period.

16. For static ageing, time is the only variable and the unit of weeks has been used as a standard for calculation rather than the less familiar SI unit of seconds; however, seconds are plotted on the axes of the graphs presented.

ACCELERATED DYNAMIC AGEING

17. The results obtained from the 'once-through' accelerated ageing tests are shown in Table I. The results are plotted in Fig. 3. In spite of some scatter the points fall close to a straight line relationship between $\log_{10}K$ and the number of bed volume changes. The scatter in the results of the laboratory impregnated material may be due to each test batch of charcoal being impregnated individually rather than as a bulk batch. The same base charcoal was used for each test batch. The commercially prepared charcoals came from a single drum of each type of charcoal.

18. Two points of interest may be noted. The first is that laboratory KI- and TEDA- impregnated materials both have very similar ageing slopes, that is they have the same ageing characteristics, since the equation of the line is of the form:

$$\log_{10}K' = \log_{10}K_0 + CN$$

where N is the number of BVC,

K' is Performance Index after N BVC.

K₀ is the original Index of Performance.

C is a constant.

The difference between the values of -0.18×10^{-8} and -0.20×10^{-8} for the ageing slopes is within the experimental errors for this work. Likewise, the ageing characteristics for the commercial preparations, whilst differing from the laboratory material, are again very similar at -0.31×10^{-8} for KI- and -0.27×10^{-8} for TEDA- impregnated material. These results suggest that there is a significant difference either between the laboratory and commercial impregnation techniques or in the behaviour of the base charcoals used for these particular preparations.

19. The second point of interest is that TEDA- and KI- impregnated charcoal both have the same ageing characteristic when impregnated on the same base charcoal. This suggests that the base charcoal is the main factor in the ageing process. It seems probable that the charcoal surface is being poisoned in some way, rather than the ageing being due to modification or loss of the impregnant. This effect is discussed in more detail below.

20. The data obtained from the recirculation rig are given in Table II and are plotted in Fig. 4. Only laboratory impregnated materials were tested and the same batch of base charcoal was used for both impregnants. As the results show, the rate of ageing of KI- and TEDA- impregnated charcoals cannot be distinguished from each other. Both charcoals fit the same ageing slope of -0.12×10^{-8} over the range of BVC up to 8×10^8 . There is a suggestion of a somewhat more rapid ageing over the first period up to 1×10^8 BVC and on a plot of the results to this limit, the best-fit line for both charcoals gives an ageing slope of -0.18×10^{-8} .

21. As in the case of the 'once-through' ageing results, the closeness of the ageing characteristics of the KI- and TEDA- impregnated materials suggests that the ageing process is one which affects the base charcoal rather than the impregnant. This is to be expected if the trapping mechanism is a two-stage process. The first stage (probably fast) would be the adsorption of methyl iodide onto the surface of the activated charcoal. The second stage (probably relatively slow) would be the migration of the methyl iodide molecule over the surface of the charcoal either to a site of lower thermodynamic potential, resulting in trapping at an 'active centre', or to the proximity of a TEDA molecule, followed by trapping by chemical reaction and formation of the quaternary ammonium salt.

22. Comparison of the ageing characteristics of laboratory impregnated charcoals in clean and dirty air shows that ageing is more rapid in the case of dirty air. This result is probably due to blinding of the charcoal surface by dusts and atmospheric impurities in the dirty air. The appearance of the charcoal after ageing in the 'once-through' rig showed a marked variation from front to back of the column. The front half of the bed presented a tarry appearance after about two or three times 10^8 BVC. Deterioration of the front of the bed was confirmed by scanning the column after

the standard test using the 0.364 MeV γ radiation from ^{131}I as a measure of the distribution of iodine. Scanning was carried out using a very heavily shielded sodium iodide crystal with an accurate 5mm collimated slit assembly. Typical results obtained in this way are shown in Fig. 9 (See also para. 40). These results show that the front of the charcoal bed becomes progressively less effective at high values of BVC.

23. The accelerated dynamic ageing results show a deterioration in performance in the order: laboratory-impregnated charcoal in clean air, followed by laboratory-impregnated charcoal in dirty air and finally commercial charcoal in dirty air. It would be prudent, therefore, to take the performance of commercial charcoal in dirty air as the standard for prediction of the performance of large-scale trapping plants. Accordingly an equation of the form:

$$\log_{10}K' = \log_{10}K_0 - 0.3 \times 10^{-8}N$$

where N is the number of BVC since measurement of K_0 should be used to predict the dynamic ageing of large-scale charcoal beds.

STATIC AGEING

24. The results obtained from the static ageing experiments are given in Table III. The charcoals tested include laboratory-impregnated, small commercial samples and samples taken from large commercial consignments to Windscale.

25. The ageing characteristic slope, from plots of the type shown in Fig. 5, is quoted in Table III and some of the results are plotted in Figs 5 and 6. The results are for -2mm/+1.4 mm granules, except for one batch of -0.85mm/+0.50mm granules which shows that the static ageing rate for the finer grade material is not very different from that of the normal sized material.

26. The results show a wide range of variation for the ageing characteristic of each impregnant. There is no correlation between the preparative method and performance.

27. There is a tendency for TEDA-impregnated material to have a better performance (low value of slope) than the KI-impregnated. However, one TEDA-

impregnated charcoal (laboratory-impregnated; L/166) gave a poor performance which was comparable to the poorer KI-impregnated charcoals.

28. The results suggest that there may be a variation in the ageing performance of the base charcoal. If this postulate is correct then batch-to-batch variation in the base charcoal may account for the wide spread of results and the reason for the apparent better performance of the TEDA material may be a bias due to not taking a sufficient number of TEDA samples for ageing.

29. Interest in the performance characteristics of the base charcoal was increased when it was noted that a batch of charcoal (identified as Batch 3), supplied for laboratory experimental work, consistently gave very low results in the standard test. Careful comparisons with the charcoal used in the development work on impregnated charcoals (identified as Batch 2) showed conclusively that Batch 3 was consistently inferior to Batch 2. At about this time a KI-impregnated commercial sample was supplied (UKA/31) which gave a very high Index of Performance in the standard test. Sutcliffe-Speakman Ltd were asked to supply a sample of the base charcoal from which UKA/31 was made and this base charcoal (UKA/32) was investigated intensively in the laboratory. Full analytical data were obtained on UKA/32, Batch 2 and Batch 3 in an attempt to identify a chemical reason for the variation in performance of these three charcoals. No significant differences were found by chemical analysis. Various physical measurements including surface area were made but again no significant differences could be detected between the three charcoals.

30. Discussions held with the staff of Sutcliffe-Speakman Ltd proved inconclusive, except for the information that the base charcoal UKA/32 was from a relatively recent production batch and therefore had been 'activated' recently. Sutcliffe-Speakman Ltd supplied the activation dates of Batches 2 and 3 which, in the case of Batch 3, was several years before the date of the first Windscale test on the material. This information, together with the early results coming from the ageing programme, led to a series of experiments on the ageing of the base charcoal.

BASE CHARCOAL AGEING

31. The ageing of the base charcoals was followed by allowing the base

charcoal to age without impregnants present. Each individual sample of the base charcoal was impregnated with KI on the day before the standard test was carried out. In the case of UKA/32 a parallel set of ageing experiments were done with the charcoal aged in the impregnated form. The limited supply of UKA/32 available only allowed an ageing test on the KI impregnant. It would have been more instructive to have been able to have compared base charcoal, KI-impregnated and TEDA-impregnated ageing but this was not possible.

32. The results of base charcoal static ageing are reported in Table IV where the age is the period of time between activation of the charcoal and the time of the standard test. The data for B3/211 and the first two results for B2/256 were taken from experiments which had been carried out, as part of the routine experimental programme, some time before the ageing of base charcoal was recognised as an important parameter.

33. The results are plotted in Fig. 7 and show that the three charcoals are a surprisingly good fit to a single line with an ageing characteristic slope of -1.3×10^{-3} . Also on the plot is shown the ageing of 0.5 wt.% KI-impregnated UKA/32 (ie material aged in the impregnated form). These results again lie very close to the line. Although it appears that a line of slightly steeper slope could be fitted to the points representing impregnated UKA/32, the change in slope involved is within experimental errors.

34. These results show that the ageing of the base charcoal is the most important factor. Any deterioration of impregnant makes only a minor contribution to the overall deterioration in performance.

35. Taken in isolation, the results of base charcoal ageing are very convincing but there are serious anomalies when comparison is made with static ageing of impregnated charcoals. Most of the TEDA ageing results show this type of material to have a significantly better performance than that of the base charcoals. This could be explained by assuming that the amino group present in TEDA acted as an inhibitor of ageing or as a sink for impurities which were a cause of ageing. For example, a probable

candidate for the slow poisoning process is the migration of sulphur from the bulk of the charcoal to active sites on the surface. The amino groupings of TEDA could trap this sulphur as a mercaptan and thus reduce poisoning. However, one TEDA result is in agreement with the base charcoal ageing data and therefore the impurity sink theory cannot be consistently true. Further, two of the KI-impregnated charcoals (UKA/14 and UKA/48) show ageing characteristics significantly better than the base charcoals tested separately.

36. If one considers all the static ageing results it must be inferred that there is a variation in the ageing characteristics of various batches of charcoal. It appears probable that there is some bias in the results (particularly TEDA) due to an insufficient number of charcoals being tested. However, if the mean slope from the KI-impregnated material (-1.1×10^{-3}) is compared with the slope for the base charcoal (-1.3×10^{-3}), then the errors involved by the use of either as a "constant" in an ageing equation are relatively small. The only serious anomaly is then the TEDA-impregnated material which, in general, ages significantly more slowly. Therefore, the use of an ageing equation of the form:-

$$\log_{10} K'' = \log_{10} K_0 - 1.3 \times 10^{-3} \tau$$

where K_0 = index of performance ($\log_{10} DF$)/t at start of ageing

K'' = " " after τ weeks ageing

τ = age in weeks

will tend to give a somewhat pessimistic result, based on present knowledge. The precise value of the static ageing constant has a relatively small effect on the half-life of ageing. A value of 1.3×10^{-3} represents a half-life of 4.5 years, 1.1×10^{-3} a half-life of 5.25 years and 1.0×10^{-3} is equivalent to 5.75 years. In most operational situations the number of bed volume changes, in periods comparable with the half-life of static ageing, will lead to dynamic ageing effects orders of magnitude greater than those due to static ageing.

REAL-TIME DYNAMIC AGEING

37. For the prediction of the overall change in performance with dynamic and static ageing, the two equations may be combined into the form:-

$$\log_{10} K_t = \log_{10} K_o - 0.3 \times 10^{-8} N - 1.3 \times 10^{-3} \tau$$

This equation has been tested against the results obtained from samples taken from the charcoal bed installed on a fuel element examination facility at Windscale. This particular charcoal bed contained equal quantities of 5 wt.% TEDA- and 0.5 wt.% KI-impregnated charcoals. The two types of charcoal were arranged in nominally discrete layers during the period of operation under review. The layers were nominally 40mm thick in the sequence KI:TEDA:KI:TEDA. Fig. 8 shows the results obtained over a period of about 4 years. It should be noted that the age scale is not linear with BVC since two fan units are available, each for use under different circumstances. Also, modifications were made to the fan drives during the test period. Ten sample packs were available for testing at any one time and a minimum of two packs were used. In most cases 4 to 8 packs were removed at the end of each test period.

38. At about 1.3×10^8 BVC the main charcoal bed was replaced and a new charge of mixed TEDA- and KI-impregnated charcoal was introduced. All the sample packs except two were recharged with the new charcoal. The two sample packs with old charcoal were allowed to continue ageing to provide long-term information. Due to uncertainties in flow-rate data for the plant in the period from 1.5 to 2.0×10^8 BVC, the accuracy of the last four sample points is considerably less than that for the earlier samples.

39. The line drawn in Fig. 8 is for the complete ageing equation. The line is a good fit to the experimental points but a slightly better fit would have been obtained, in this case, by using a static ageing constant of -1.0×10^{-3} .

40. The sample packs were scanned using the collimated γ - spectrometer after each period of ageing. The results for one of the packs is shown in Fig. 9. Curve A is typical of a good impregnated charcoal which has not been aged. Curve B is typical of the results after long periods of dynamic ageing either in the full-scale plant or in the "once-through" accelerated dynamic ageing rig. In all cases the peak of the γ - activity profile slowly moved downstream through the charcoal bed as the number of BVC increased. At the same time the front edge of the peak became less

steep and more erratic while the downstream edge tended to lose its exponential decay characteristic.

CONCLUSIONS

41. The dynamic and static ageing of impregnated charcoals have been studied in the laboratory and an equation has been proposed to enable predictions of ageing to be made.
42. The use of the ageing equation to predict the real-time ageing of charcoal in a full-scale trapping plant has shown good agreement between predicted and actual ageing results.
43. There are some anomalies in the results which can be fully resolved only by a much larger programme of static ageing on a large number of different batches of charcoal.
44. An extension of the experimental work to compare dynamic and static ageing in CO₂ with the present results in air is desirable.
45. The work reported here emphasises the necessity of using freshly activated charcoal to ensure maximum performance and life of installed trapping plants.

REFERENCES

1. COLLINS, D A, TAYLOR, L R and TAYLOR, R. The Development of Impregnated Charcoals for Trapping Methyl Iodide at High Humidity. 1967. TRG Report 1300(W).
2. TAYLOR, R and YUILLE, W D. The trapping of Methyl Iodide at High Pressure and High Temperature. 1971. TRG Report 2135(W).

TABLE I

Accelerated dynamic ageing: Once-through rig

Charcoal	Impregnant	Sample type	BVC	$(\log_{10} DF)/t$	Slope $\times 10^8$
207B	KI (0.5 wt.%)	Laboratory impregnation	Nil 3×10^7 6×10^7 2.5×10^8 4×10^8	10.4 7.9 and 9.7 8.2 and 7.2 3.2 2.0	- 0.18
207B	TEDA (5 wt.%)	Laboratory impregnation	Nil 3×10^7 6×10^7 2.5×10^8 4×10^8	15.0 12.9 10.7 and 10.8 4.1 2.5	- 0.20
207B	KI (0.5 wt.%)	Commercial impregnation	Nil 2.5×10^8	10.4 1.8 and 1.7	- 0.30
207B	TEDA (5 wt.%)	Commercial impregnation	Nil 2.5×10^8	18.3 3.6	- 0.28

TABLE II

Accelerated dynamic ageing: Recirculation rig

Charcoal	Impregnant	Sample Type	BVC	(log ₁₀ DF)/t	Slope x 10 ⁸	
207B	KI (0.5 wt %)	Laboratory impregnation	Nil	16.0	11.7 and 12.4	- 0.12
			5 x 10 ⁵	14.1		
			1 x 10 ⁶	15.6		
			5 x 10 ⁶	12.7		
			1 x 10 ⁷	12.6		
			4 x 10 ⁷	11.9		
			5 x 10 ⁷	10.7 and 9.1		
			1 x 10 ⁸	1.7		
207B	TEDA (5 wt %)	Laboratory impregnation	Nil	17.2 and 17.2	11.6 and 10.7	- 0.12
			5 x 10 ⁵	15.8		
			1 x 10 ⁶	16.9		
			5 x 10 ⁶	13.0 and 13.8		
			1 x 10 ⁷	11.6		
			1 x 10 ⁸	1.6		
			8 x 10 ⁸			
			8 x 10 ⁸			

TABLE III

Static ageing: impregnated charcoals

Sample code	Impregnant	Sample type	Age (Weeks)	$(\log_{10} DF)/t$	Slope $\times 10^3$
UKA/13	KI (0.5 wt.%)	Commercial sample	0	17.5	- 1.3
			133	12.4	
			180	9.1	
			210	7.8	
			276	7.8	
			331	6.9	
UKA/14	KI (0.5 wt.%)	Commercial sample	0	10.8	- 0.7
			119	9.6	
			163	9.0	
			194	6.8	
UKA/32	KI (0.5 wt.%)	Laboratory-impregnation	0	18.3	- 1.3
			110	12.8	
			144	11.4	
			207	8.8	
			264	8.3	
UKA/48	KI (0.5 wt.%)	Commercial sample	0	11.9	- 0.7
			127	9.3	
			195	9.0	
			247	8.5	
			291	7.6	
UKA/50	KI (0.5 wt.%)	Commercial sample	0	12.4	- 1.0
			138	8.0	
			195	8.4	
			247	7.8	
L/109	KI (0.5 wt.%)	Laboratory-impregnation	0	17.4	- 1.4
			82	12.2	
			191	8.9	
			228	7.9	
L/166	KI (0.5 wt.%)	Laboratory-impregnation	0	13.4*	- 1.3
			44	11.0*	
			54	11.8*	
			80	10.7*	
			104	9.7* and 10.4	
Drum 1	KI (0.5 wt.%)	Large-scale commercial prep	0	11.2	- 1.0
			169	7.5	
			208	6.0	
			270	6.0	
			327	5.4	

TABLE III (Cont'd)

Sample code	Impregnant	Sample type	Age (Weeks)	$(\log_{10} DF)/t$	Slope $\times 10^3$
Drum 41	KI (0.5 wt.%)	Large-scale commercial prep	0	11.5	- 1.1
			171	7.1	
			209	7.1	
			270	6.1	
			327	5.7	
Bin 80	KI (0.5 wt.%)	Large-scale commercial prep	0	11.6	- 1.5
			38	11.0	
			132	7.3	
			176	6.3	
			210	5.6	
L/152	KI (0.5 wt.%)	Laboratory impregnation (small granules)	0	31.5	- 1.4
			3	30.2	
			171	18.6	
			206	15.3	
			271	13.7	
UKA/12	TEDA (5 wt.%)	Commercial sample	0	14.0 and 14.7	- 0.5
			134	12.4	
			180	12.1	
			209	11.5	
			269	10.4	
			324	10.2	
UKA/49	TEDA (5 wt.%)	Commercial sample	0	15.2 and 16.9	- 0.5
			134	12.0	
			195	11.7	
			251	13.4	
			275	11.7	
UKA/51	TEDA (5 wt.%)	Commercial sample	0	15.1 and 14.4	- 0.3
			247	12.5	
			306	13.4	
			327	12.0	
Drum 26	TEDA (5 wt.%)	Large-scale commercial prep	0	16.1 4	- 0.5
			175	14.5 4	
			208	11.8 4	
			264	12.3	
			323	10.7	

TABLE III (Cont'd)

Sample code	Impregnant	Sample type	Age (Weeks)	$(\log_{10} DF)/t$	Slope $\times 10^3$
L/166	TEDA (5 wt.%)	Laboratory impregnation	0	19.8*	- 1.3
			36	17.3*	
			46	15.9*	
			72	14.1*	
			125	13.1	
			184	13.4	
			219	10.6	

* Aged in open tray.

- Ageing period in drum, as supplied

TABLE IV

Static ageing: base charcoal

Sample code	Date charcoal activated	Date of first standard test	Age since activation (weeks)	$(\log_{10} DF)/t$
B2/256	February 1965	5/5/66	62	14.8
			68	12.5
			78	11.9
			98	11.3
			110	10.3
B3/211	August 1962	6/4/66	185	10.5
			198	10.3
			208	9.7
UKA/32	June 1966	15/12/66	26	18.1
			136	13.6
			170	11.4
			233	8.2

FIG.1. DYNAMIC AGEING RIG - ONCE THROUGH

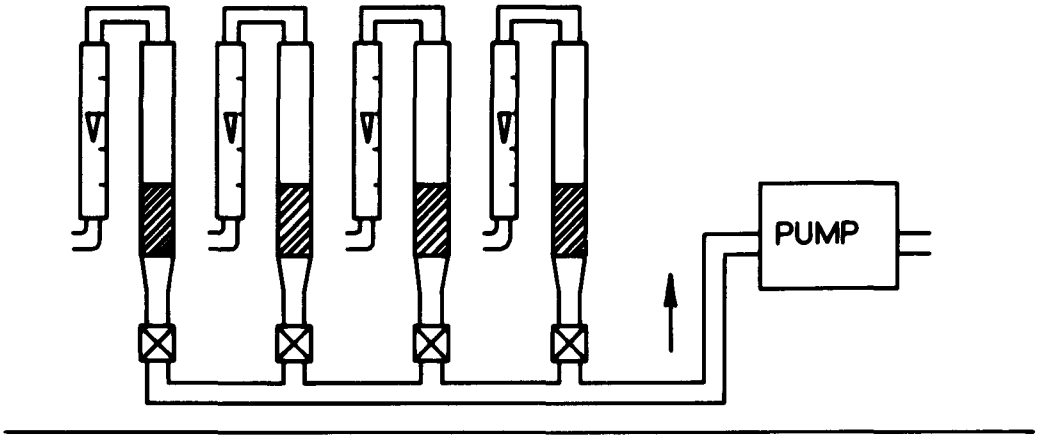
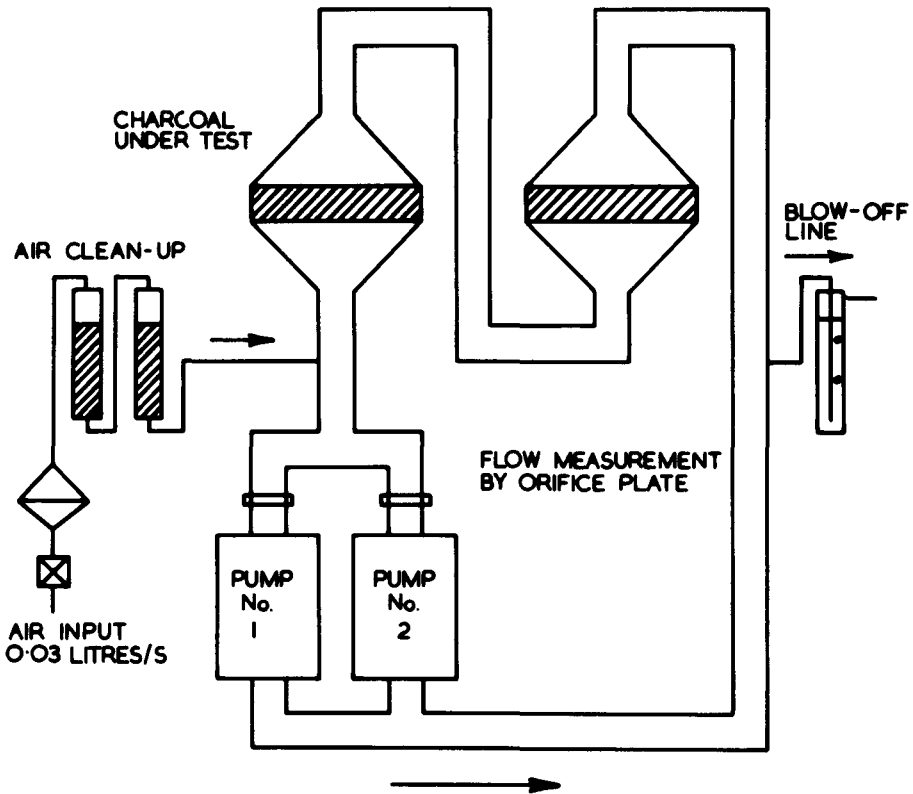


FIG.2. DYNAMIC AGEING RIG - RECIRCULATION



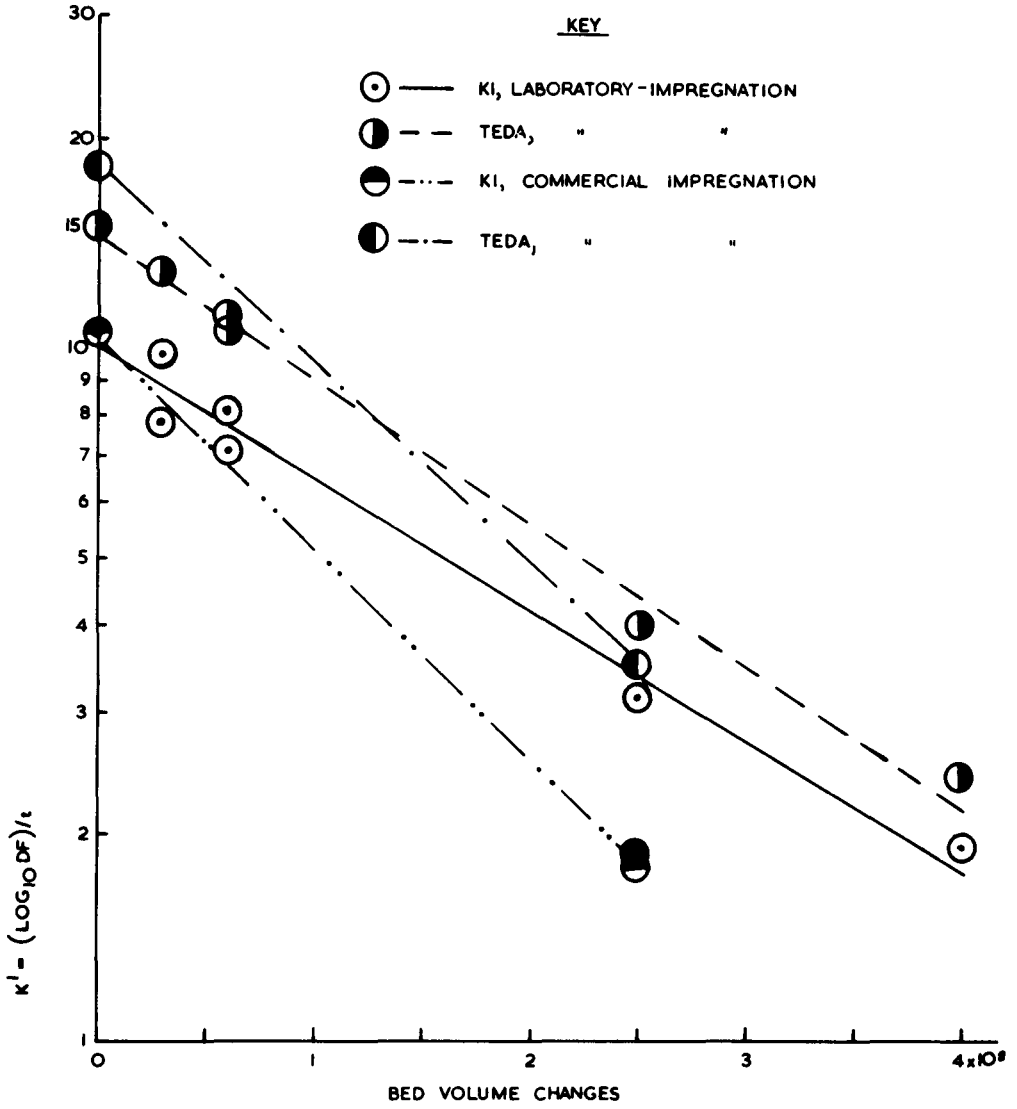


FIG. 3. ACCELERATED DYNAMIC AGEING: ONCE-THROUGH¹ RIG

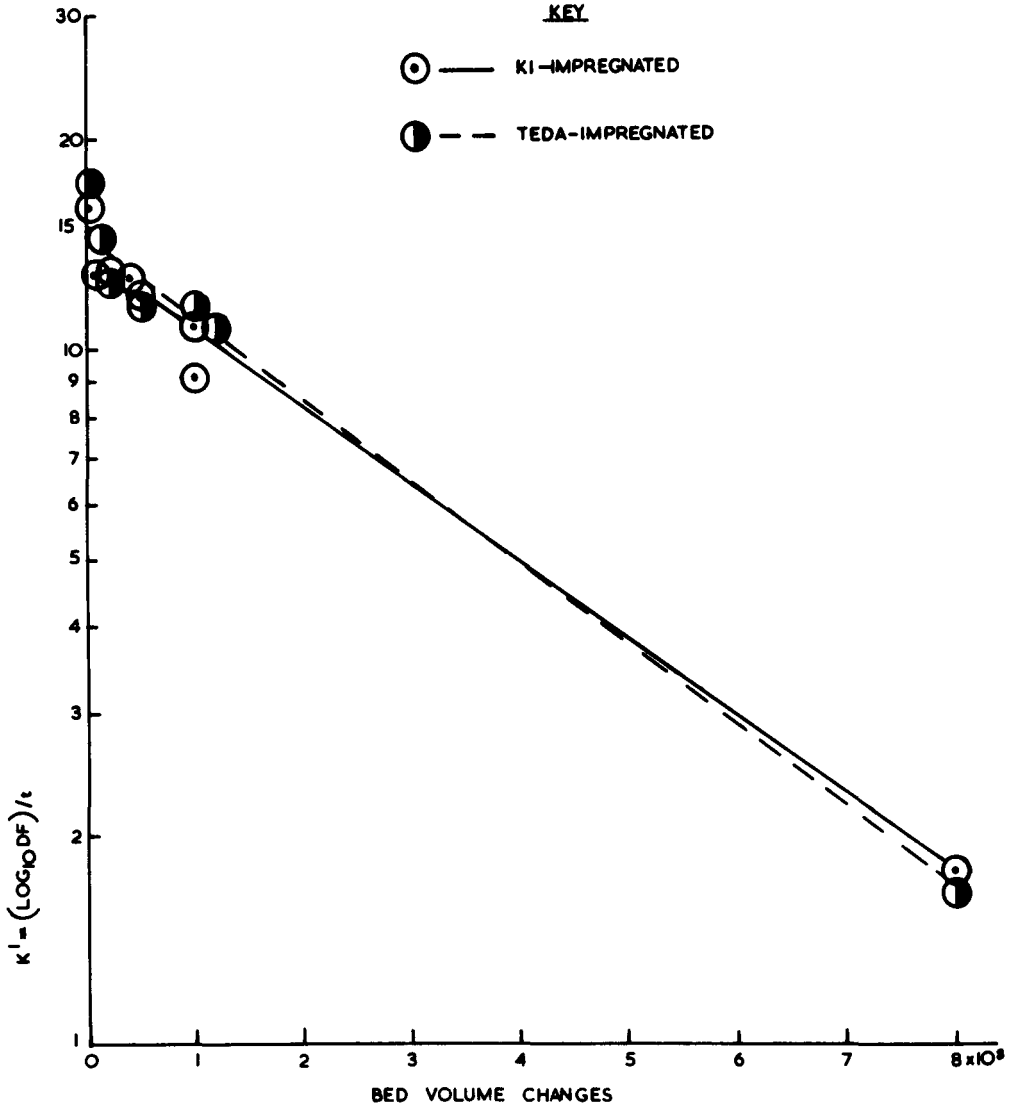


FIG. 4. ACCELERATED DYNAMIC AGEING: RECIRCULATION RIG.

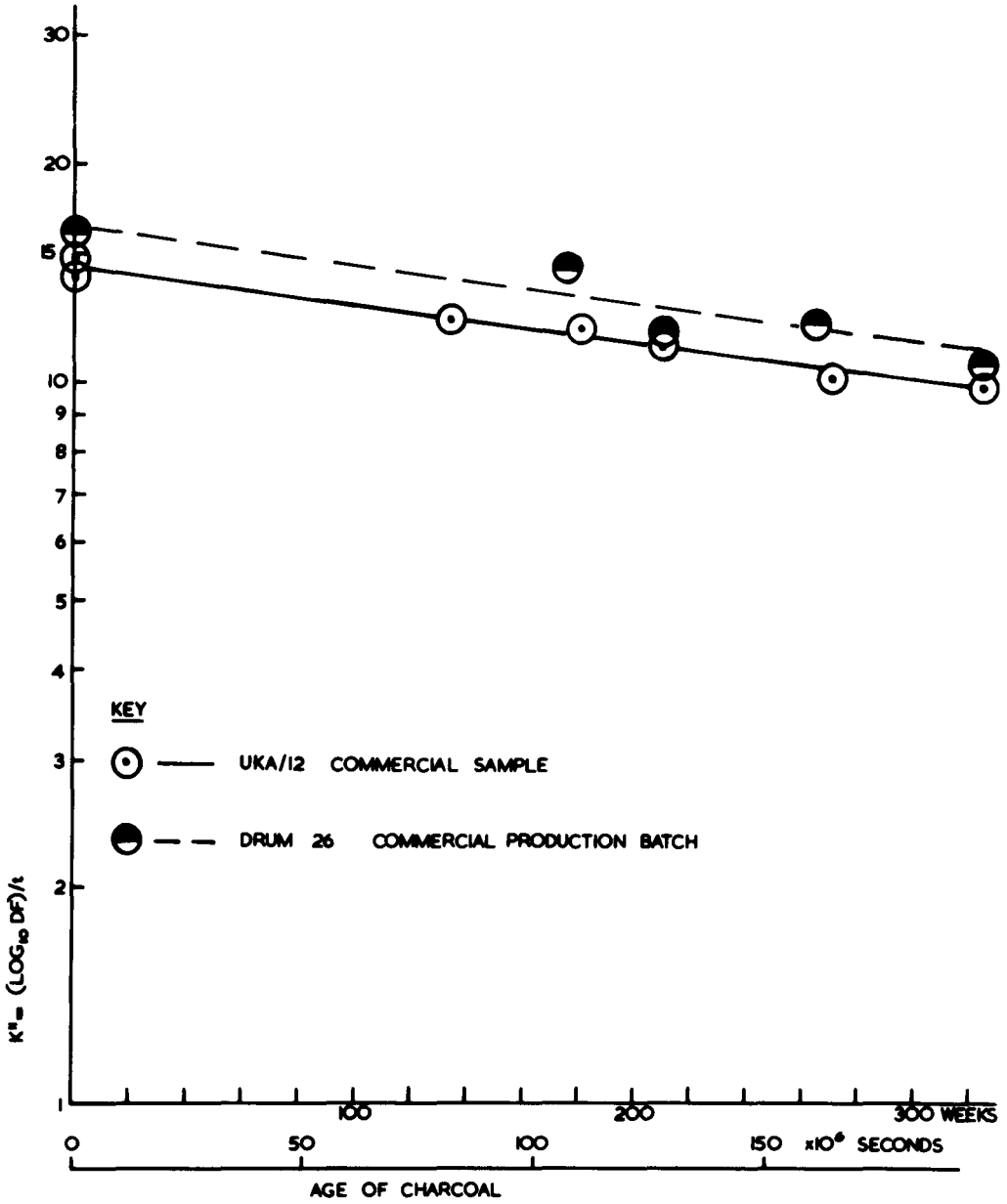


FIG.5. TYPICAL STATIC AGEING RESULTS: TEDA CHARCOAL

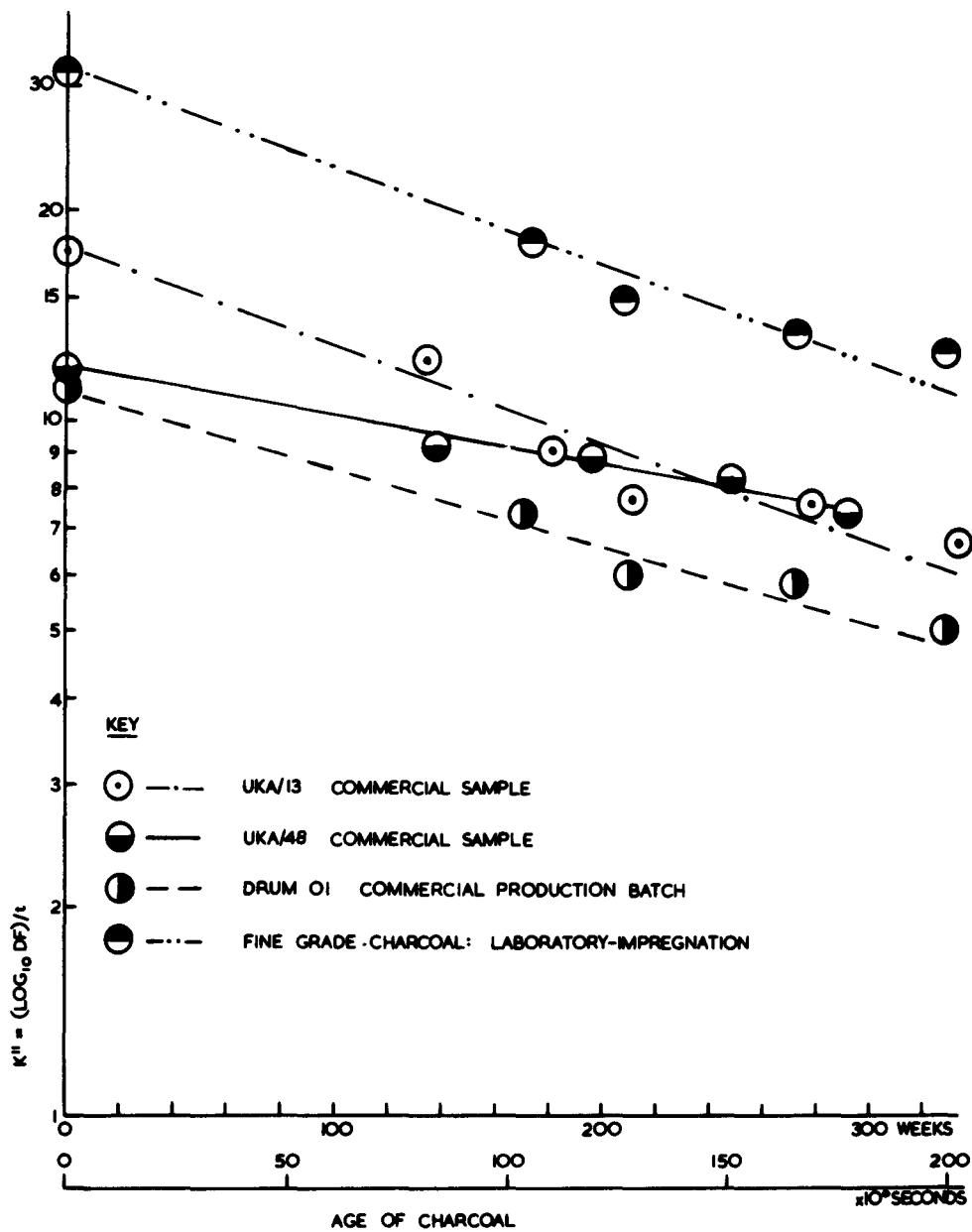


FIG.6. TYPICAL STATIC AGEING RESULTS: KI CHARCOAL

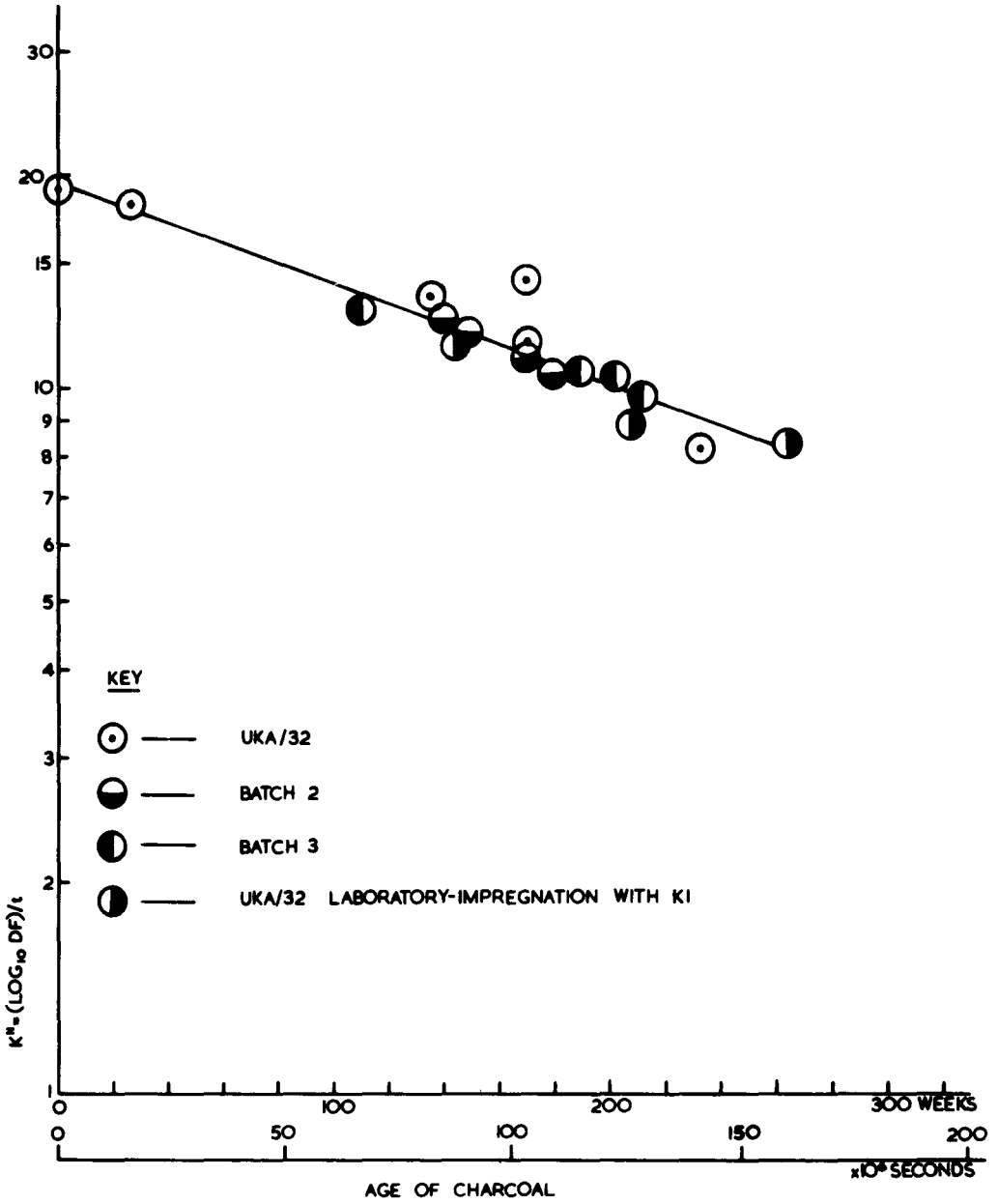


FIG.7. STATIC AGEING OF BASE CHARCOALS

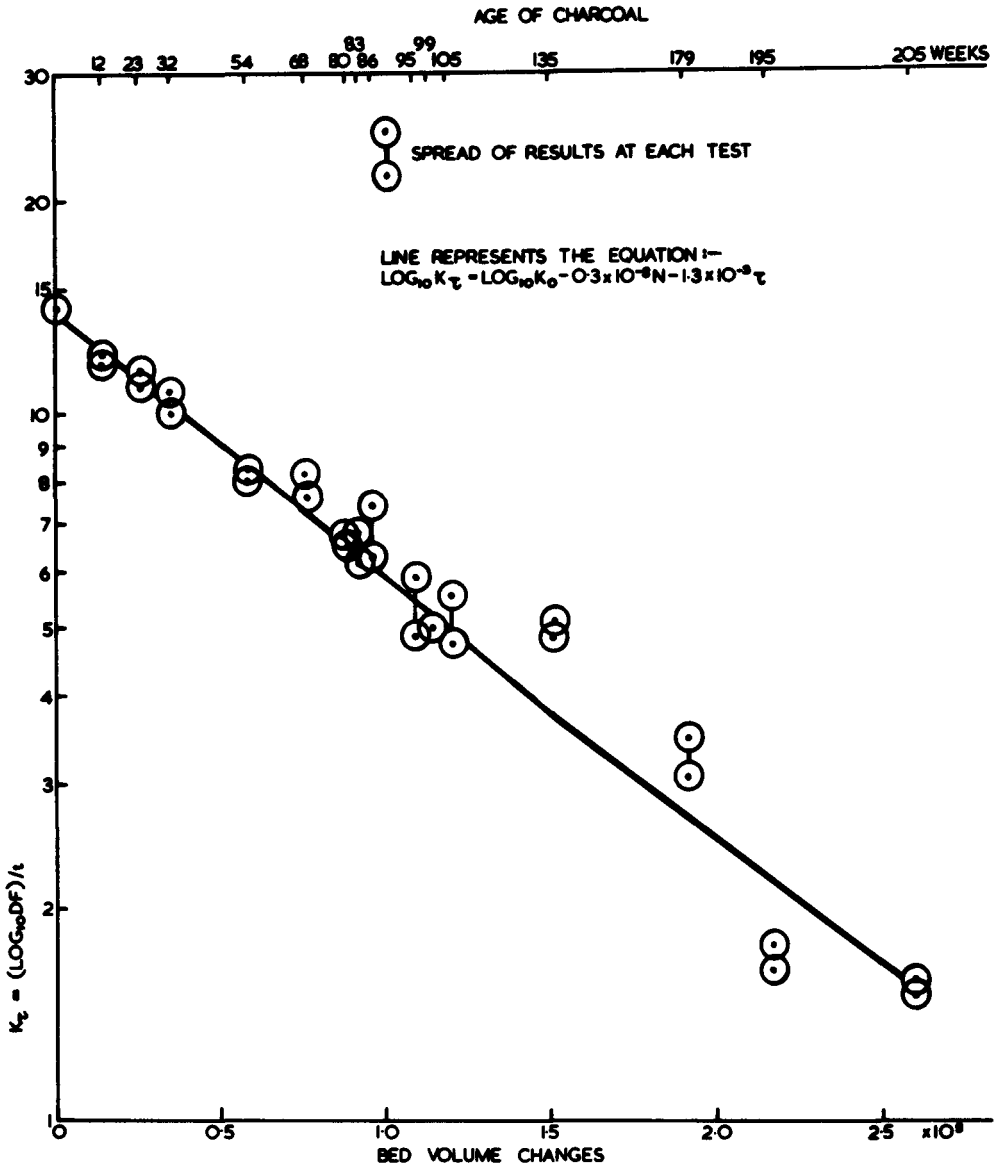


FIG.8. REAL-TIME DYNAMIC AGEING: INSTALLED PLANT

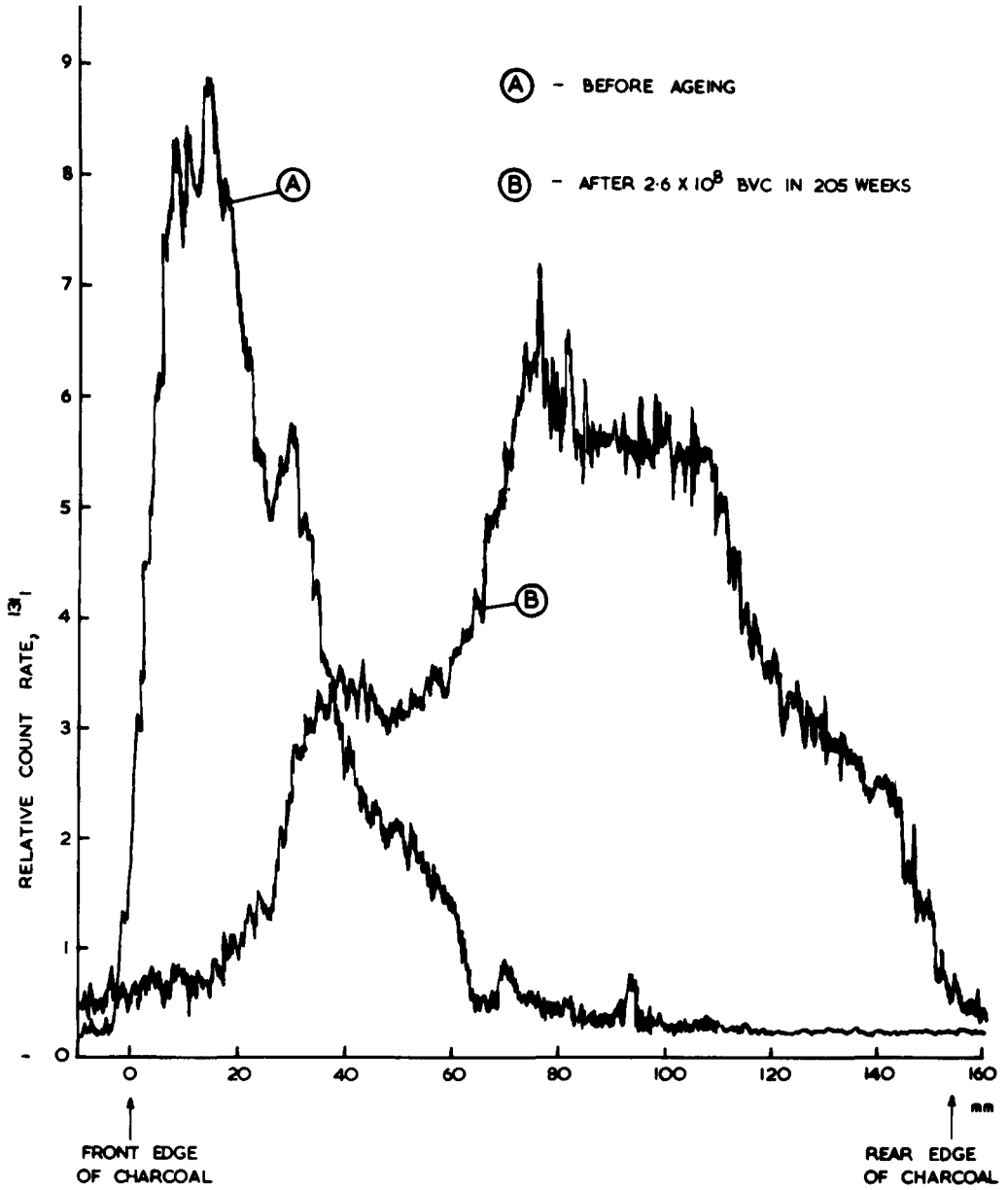


FIG. 9. GAMMA ACTIVITY PROFILE : SAMPLE TUBE No. 7
BEFORE AND AFTER AGEING.

THE DESIGN OF IODINE TRAPPING PLANTS IN THE U.K.
FOR CEGB GAS-COOLED REACTOR USE

F.H. Passant

Central Electricity Generating Board
Cheltenham, Gloucestershire - U.K.

SUMMARY. The design principles and practice for iodine adsorption plants used on the Central Electricity Generating Board's CO₂ cooled reactors are described. In general, a single adsorption bed has been provided on magnox reactor stations through which the reactor coolant can be discharged to atmosphere following the unlikely event of a major release of fission products into the reactor circuit. The Advanced Gas-Cooled Reactor stations under construction employ several adsorption beds for routine discharge of reactor coolant, charge/discharge machine coolant and fuel handling cells coolant in addition to an emergency use adsorption bed.

The adsorption beds, all utilizing impregnated activated charcoal, have been improved in design over the years to accommodate more stringent requirements for performance, reliability and ease of maintenance. Descriptions are given of current designs including provisions for testing and servicing and the provision of pre-and post filtration in conjunction with the adsorption beds.

Incorporation of iodine adsorption beds into ventilation systems associated with CEGB nuclear power stations has not so far been necessary but the design of such beds is under consideration for possible future use on A.G.R.s. A brief description of the type of bed likely to be employed is given.

RESUME. CONCEPTION DES INSTALLATIONS D'ADSORPTION D'IODE AU ROYAUME-UNI POUR LES REACTEURS REFROIDIS AU GAZ DU CEGB. Le rapport expose sur quels principes ont été conçues les installations d'adsorption d'iode utilisées pour les réacteurs refroidis au CO₂ du Central Electricity Generating Board et l'expérience ainsi acquise. En général, les réacteurs magnox n'ont été équipés que d'un seul lit adsorbant à travers lequel le réfrigérant du réacteur peut être rejeté à l'air au cas improbable où un dégagement important de produits de fission se produirait dans le circuit primaire. Les réacteurs avancés refroidis au gaz (AGR), en cours de construction, utilisent, outre un lit de secours, plusieurs lits adsorbants pour les rejets de routine de réfrigérant du réacteur, de la machine de chargement/déchargement du combustible et des cellules de manipulation de celui-ci.

Les lits adsorbants, tous au charbon actif imprégné, ont été améliorés au fil des ans pour satisfaire aux exigences plus strictes de rendement, de fiabilité et de facilité de maintenance. On décrit aussi les conceptions actuelles des installations y compris les dispositions pour le contrôle et l'entretien et celles pour la préfiltration et la post-filtration associées à l'adsorption.

Jusqu'ici, on n'a pas dû équiper les circuits de ventilation des centrales nucléaires du CEGB de lit adsorbant l'iode, mais on étudie la conception de tels lits pour un emploi éventuel sur des réacteurs avancés refroidis au gaz. Le type de lit qui pourrait être utilisé est brièvement décrit.

KURZFASSUNG. DIE KONSTRUKTION VON JOD-ADSORPTIONS-VORRICHTUNGEN, DIE IM VEREINIGTEN KOENIGREICH FUER GASGEKUEHLTE REAKTOREN DES CEEGB BENUTZT WERDEN. Konstruktionsgrundsätze und Ausführungsformen von Jod-Adsorptions-Vorrichtungen werden beschrieben, die bei den CO₂-gekühlten Reaktoren des Central Electricity Generating Board (CEGB) üblich sind. Im allgemeinen ist bei den Magnox-Reaktoranlagen ein einziges Adsorptionsbett vorgesehen, durch das das Reaktorkühlmittel in dem unwahrscheinlichen Fall einer grösseren Freisetzung von Spaltprodukten in den Reaktorkreislauf in die Atmosphäre abgeleitet werden kann. Bei den gegenwärtig im Bau befindlichen fortschrittlichen gasgekühlten Reaktoranlagen (AGR) werden zusätzlich zu einem Filterbett für Notfälle mehrere Filterbetten für die routinemässige Ableitung des Reaktorkühlmittels, des Kühlmittels für die Beschickungsmaschine sowie des Kühlmittels für die Zellen zur Behandlung von Brennstoffelementen benutzt.

Die Adsorptions-Filter, bei denen durchweg imprägnierte Aktivkohle benutzt wird, sind im Verlauf der Jahre konstruktionsmässig verbessert worden, um höheren Anforderungen im Hinblick auf Leistung, Zuverlässigkeit und einfache Wartung gerecht zu werden. Es werden die üblichen Konstruktionsmodelle beschrieben, einschliesslich der Test- und Wartungsvorrichtungen sowie der den Adsorptionsfiltern vor- und nachgeschalteten Filter.

Ein Einbau von Adsorptions-Jodfiltern in die Ventilationssysteme bei den CEEGB-Kernkraftwerken war bisher nicht notwendig, doch wird die Konstruktion derartiger Einrichtungen im Hinblick auf eine etwaige künftige Verwendung für Kernkraftwerke vom Typ AGR erwogen. Es folgt eine kurze Beschreibung des Filter-Modells, das wahrscheinlich zum Einsatz kommt.

1. Introduction

This paper discusses the development of the design principles and practice of iodine trapping plants on Central Electricity Generating Board carbon dioxide cooled reactor power stations. There are a total of eight operating twin reactor magnox stations and four twin Advanced Gas-Cooled Reactor (AGR) stations under construction in the U.K. owned by the C.E.G.B. In addition the South of Scotland Electricity Board have one twin reactor magnox station in operation and one twin AGR under construction which have trapping plants similar to those on C.E.G.B. stations.

The importance of preventing a major fission product release to the environment in the unlikely event of an accident involving the nuclear fuel in the reactor was recognised at an early date and each of the magnox reactor stations was provided with trapping plant capable of removing particulate and volatile fission products from the carbon dioxide coolants of these reactors. The plants were intended for use in emergencies only. Release of fission products to atmosphere in normal operation of magnox reactors is extremely unlikely and no plant is provided for this purpose. Normally a single trapping plant serves each station.

The possibility of fission product release to atmosphere in the normal operation of AGR stations is greater due to differences in fuel design and operating conditions. Consequently these stations are provided with trapping plants for use in normal operation as well as in emergencies.

The design principles currently applied have evolved over many years as a result of development based on operating experience. The design data applied has been derived from research work carried out by the United Kingdom Atomic Energy Authority.

2. Design of Magnox Reactor trapping plants

Although the need to prevent fission product escape to atmosphere was recognised in the design and construction stage of magnox reactor stations little was known about fission product transport in reactor circuits, in particular about the various forms that iodine could take and the relative behaviour of these forms. It was known that iodine could exist attached to particles and as vapour of elemental iodine and compounds of iodine. Trapping plants were designed therefore to remove all forms of iodine and other fission products attached to particles. The plants were based on a need to discharge the reactor coolant to

atmosphere through them in a reasonable period of time (normally 24 hours) following accidents which may involve gross fission product release into the intact reactor circuit. Provision was also made for enforced discharge of gas from the reactor circuits at atmospheric pressure following depressurisation accidents although the probability of fission product release to the circuit in such circumstances is small. These requirements dictated the size of the plants provided although, in retrospect, it can be noted that their trapping capacity for all fission products, and in particular iodine, is adequate.

The plants at each station vary a great deal in detail but that at Oldbury Power Station is typical and is described below. Figure 1 shows a simplified diagram of the trapping plant excluding valves, instrumentation, etc. The vessels and pipework are designed for operation at up to reactor inlet pressure and temperature, i.e. 24 bar and 250°C. The plant comprises a main trapping vessel with separate vessels for pre- and post- filters (ceramic elements). The main vessel is about 2m in diameter and is arranged for downwards flow of CO₂ through the following:-

- (i) Approximately 0.6m depth of silver coated copper knitmesh for elemental iodine vapour sorption.
- (ii) 'Absolute' filters (Vokes type) for trapping particles of size above 0.1 micrometers.
- (iii) 0.3m depth activated charcoal (Sutcliffe Speakman type 207B, 8 - 12 mesh) for iodine and iodine compounds sorption.
- (iv) Approximately 0.6m depth of silver coated copper knitmesh for elemental iodine vapour sorption (in case of desorption from charcoal).

The plant is designed for a minimum gas stay-time (defined as the ratio of charcoal volume to gas volumetric flow rate) of 0.5 second in the charcoal although when in use the stay-time may be much longer than this. The plant is heavily shielded against fission product activity and all operating duties are performed from outside this shielding. No provisions were made for routine maintenance of the vessel internals nor for routine performance testing (although the latter have been added subsequently).

Experience with the Oldbury and other magnox reactor station trapping plants has brought to light a number of poor design features

some of which it has been possible to overcome at the magnox stations but all of which have led to much improved designs for the AGR plants. The more important of these are summarised below.

- (a) No specification of iodine efficiency was made and plants were not tested during commissioning. Laboratory tests on the charcoal used in the beds were not specified.
- (b) No provision was made for in situ testing of the plants for iodine trapping efficiency.
- (c) No provision was made for removal of samples of charcoal from the plants during service for laboratory tests.
- (d) Access to the plant through the shielding is difficult and the engineering of the plant is not designed for routine maintenance of the vessel internals (e.g. welded joints in pipes necessitating cutting, rewelding and radiography each time access is required). These difficulties lead to prolonged outage periods for maintenance, an undesirable feature for essential safety plant.
- (e) The design of the internals of the main trapping vessels is not simple and poor engineering of vessel internals has led to poor trapping performance due to gas by-passing the charcoal.

The experience on performance testing of the magnox reactor trapping plants is reported in detail in Reference (1), from which it can be seen that, having recognised and overcome some of the features discussed above, good iodine trapping performances are currently achieved. It is not now considered that the plants will need to remove large amounts of elemental iodine since it is known that this will deposit readily on cool surfaces inside the reactor circuit before gas is discharged via the trapping plant. The silver coated copper knitmesh is thus no longer necessary in these plants. The most likely penetrating iodine species is methyl iodide and all tests, both laboratory and in situ, are carried out using this compound.

3. Design of AGR Trapping Plants

The design of trapping plants currently being installed in AGR power stations is based on magnox reactor plants experience. The plants are similar to the ones discussed earlier incorporating high efficiency filtration and iodine sorption on granulated charcoal. The detailed

design features are discussed below.

(i) Functional Design

The trapping plants must be capable of removing particulate-borne fission products and all compounds of iodine with an efficiency of better than 99.9% from:-

- (a) all routine and controlled emergency discharges of reactor and refuelling machine coolant to atmosphere,
- and (b) all discharges of irradiated fuel coolant to atmosphere from the fuel handling route.

It is also required to be able to recirculate reactor coolant through trapping plant back into the reactors.

(ii) Engineering Design

All vessels, valves and pipework associated with the trapping plant for reactor coolant treatment must conform to the standards appropriate to the reactor auxiliary pressure circuits. (e.g. design pressure 50 bar, temperature 300°C, to British Standard 1500 Class 1).

Access to the vessels and their internals should be consistent with a requirement for routine (e.g. annual) and easy maintenance. (e.g. labyrinth entrance via shielding, provision of vessel head lifting equipment, adequate space for men and equipment access).

(iii) Charcoal Specification

The type of charcoal specified for use with carbon dioxide is Sutcliffe Speakman Ltd., coal-based 207B, size 8 - 12 mesh (1.4 - 2.0mm) impregnated with 1.5% by weight of potassium iodide. The charcoal must be laboratory tested before installation (UKAEA test procedure, Reference (2) for performance with methyl iodide. This choice of charcoal is based on Reference (3).

The minimum volume of charcoal required is based on a maximum capacity for methyl iodide sorption of 50 microgram per gram charcoal (derived from Reference (3)). The minimum depth of charcoal is specified to be 0.3m based on a need to prevent channelling of gas and consequential poor performance.

The maximum operating temperature is limited to about 200°C to prevent desorption of iodine from the charcoal.

Data used in determining the ageing characteristics of the charcoal is derived from Reference (4) and used in the design to ensure a lifetime of not less than about five years for the charcoal.

(iv) Additional Features

All trapping plants must incorporate the following design features considered essential for satisfactory operation, testing and maintenance.

- (a) Provisions for testing the performance of the plants, in situ, in operational conditions. These include suitable injection points upstream of the plants and gas sampling points both upstream and downstream of the plants. Sampling pipes must be kept as short as practicable and have as few bends as possible.
- (b) Provision for the easy removal of a representative sample of charcoal for laboratory tests at regular intervals.
- (c) Temperature, flow and differential pressure instrumentation must be provided for the main trapping vessel.
- (d) All filters must be easily cleaned in situ or readily replaced during maintenance.
- (e) The plant must be designed such that radiological hazards during maintenance are minimised. (It is not intended to maintain or re-use plant which has been heavily contaminated due to use in an emergency situation and provision is made for the isolation of such plant and installation of replacements as necessary.)

A typical plant incorporating the design features discussed above is that installed at the Hartlepool Power Station by British Nuclear Design and Construction Limited. A simplified schematic of the reactor coolant discharge system is shown in Figure 2. The main trapping plant consists of two cartridge type absolute filter units in parallel followed by two charcoal beds in parallel, all the units being in separate pressure vessels. The two identical plants can be used singly for either reactor blowdown or in parallel. The testing points for in situ performance checks are shown on Figure 2. All injection and sampling pipework is terminated at a test panel for convenience.

The filter and charcoal units meet all the requirements discussed above and simplified drawings of these are shown in Figures 3 and 4. The drawings are self-explanatory. Use of the two trapping plants in parallel enables the reactor coolant inventory of about 80 tonnes of carbon dioxide

to be discharged to atmosphere in about 12 hours. The methyl iodide capacity of each charcoal bed is about 10 gram at a loading of 50 micro-gram per gram charcoal and the anticipated trapping efficiency of the beds for methyl iodide is better than 99.9% even after 5 years ageing. In addition to the design features discussed earlier an important feature to note is the elimination of possible gas by-pass paths around the charcoal by filling the vessels radially with charcoal. The segment assembly on top of the bed of charcoal prevents gross movement of the charcoal in the vessel, another possible cause of poor performance.

The trapping plant described above is appropriate for reactor coolant treatment on the AGR power stations. Other plants used for refuelling machine coolant treatment and fuel handling route coolant (carbon dioxide or air) treatment are similar in design and will not be discussed separately.

4. Design of Trapping Plants for Ventilation Air

The design of trapping plants (principally for iodine) for installation in reactor building ventilation systems is under consideration in the C.E.G.B. for possible future use if required. The function of the plants would be to remove methyl iodide from all power station ventilation extracts which could contain iodine 131 with an efficiency of not less than 95%.

Since the plants in question may need to be installed into existing facilities without excessive interference with their continued operation their design is constrained by such factors as available pressure drop and space. Absolute filters are already included in all the systems likely to require iodine removal and the additional plant would involve only charcoal filters. The designs under consideration are based on beds of charcoal of medium depth (approximately 10 cm) arranged in 'Vee' configuration in standard size ventilation filter housings. Such charcoal filters are currently manufactured in quantity by Vokes Ltd. for use in water reactor installations outside the U.K.

The type of charcoal likely to be specified for use in these plants is a 50%/50% mixture of 1.5% potassium iodide impregnated, and 5% tetraethylene-diamine impregnated 207B charcoal manufactured by Sutcliffe Speakman Ltd. Optimisation of charcoal granule size, air stay-time, pressure drop and efficiency of methyl iodide removal has not yet been

completed, but initial studies indicate that, for the large ventilation air flows under consideration (up to about $70 \text{ m}^3/\text{s}$), the plant sizes and costs will be large (up to about £200,000 per power station). These trapping plants will incorporate all the design features discussed earlier consistent with achieving satisfactory performance and ease of in situ testing and maintenance.

References

- (1) Stead M.
Experience in testing iodine sorption plants associated with C.E.G.B. gas cooled reactors.
Seminar Paper - Session IV, Paper 20

- (2) Hillary J. J.
Iodine sorption plant test procedures in the U.K.
UKAEA, TRG Report 2497(W) Part 1.
Seminar Paper - Session III, Paper 15

- (3) Collins D. A., Taylor L. R. and Taylor R.
The development of impregnated charcoals for trapping methyl iodide at high humidity.
UKAEA, TRG Report 1300 (W), 1967.

- (4) Taylor L. R., and Taylor R.
The ageing of impregnated charcoals.
Seminar Paper - Session I, Paper 6.

List of Figures

- Figure 1. Simplified Diagram of Typical Magnox Reactor Fission Product Trapping Plant (Oldbury).
- Figure 2. Simplified Schematic of Typical AGR Fission Product Trapping Plant (Hartlepool).
- Figure 3. Absolute Filter Unit (Hartlepool Trapping Plant).
- Figure 4. Charcoal Bed Unit (Hartlepool Trapping Plant)

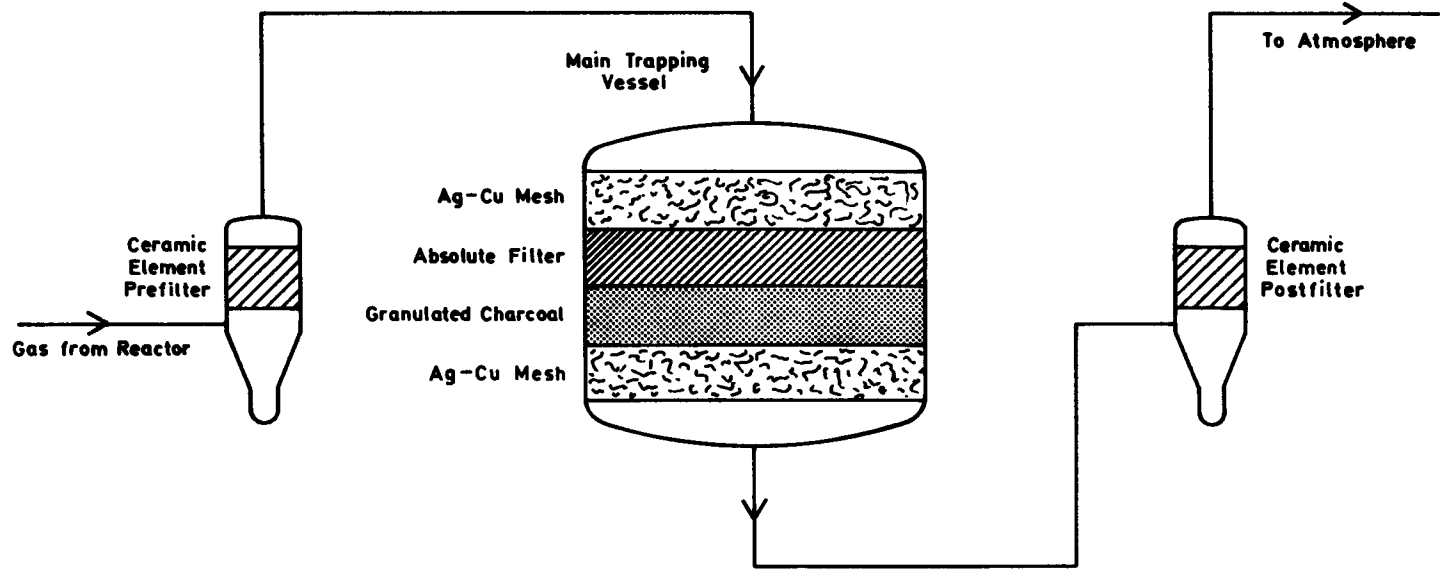


Fig. 1
Simplified Diagram of Typical Magnox Reactor
Fission Product Trapping Plant (Oldbury)

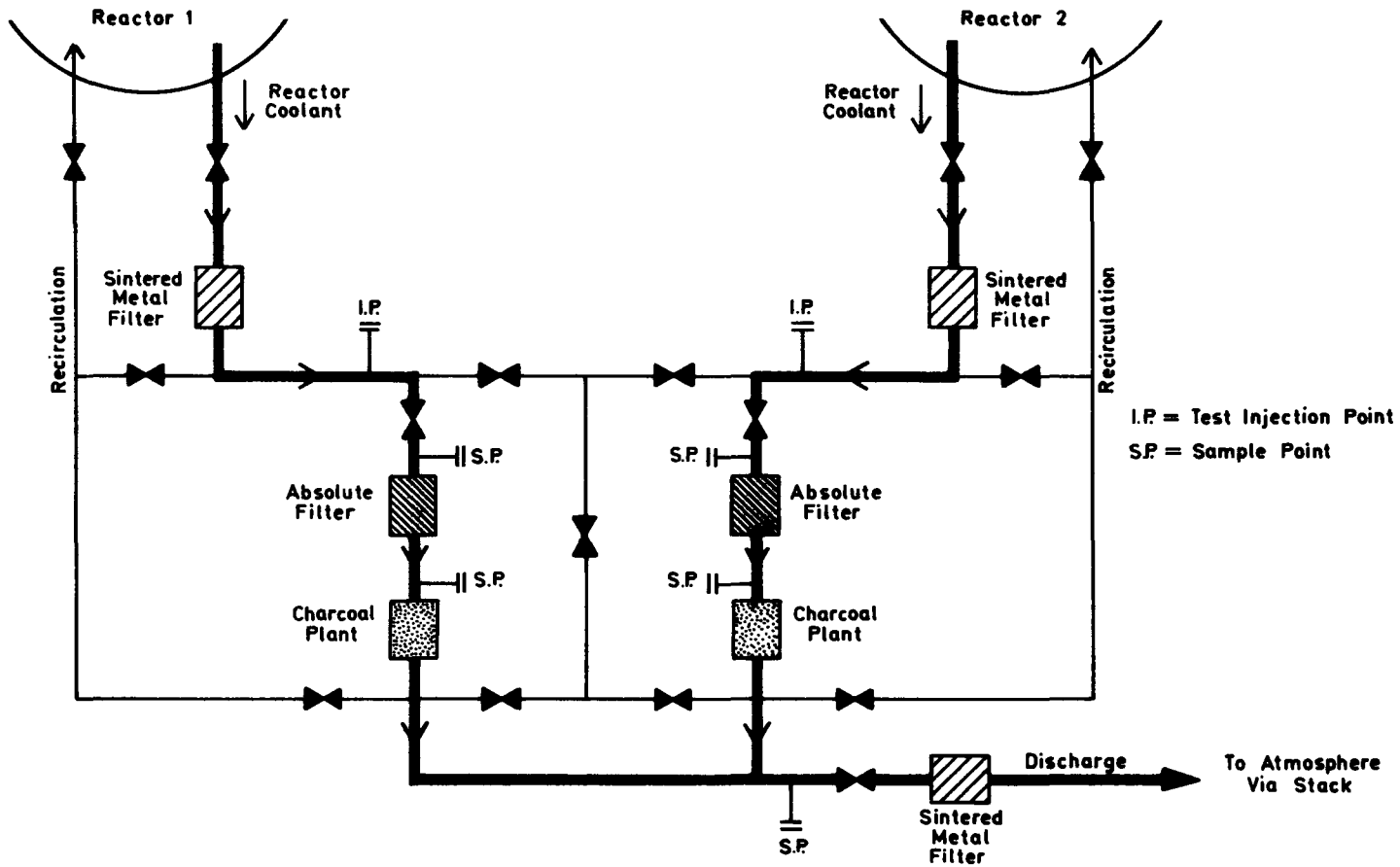
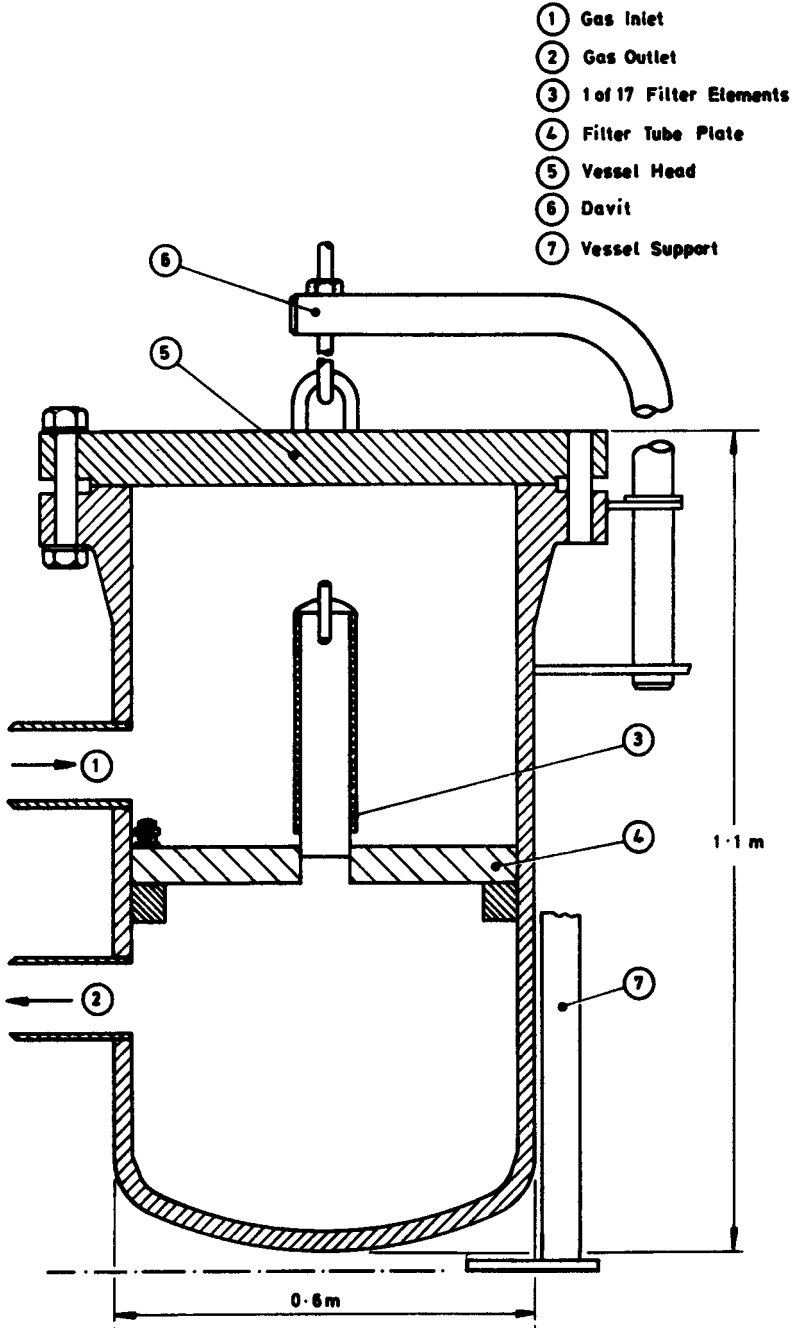
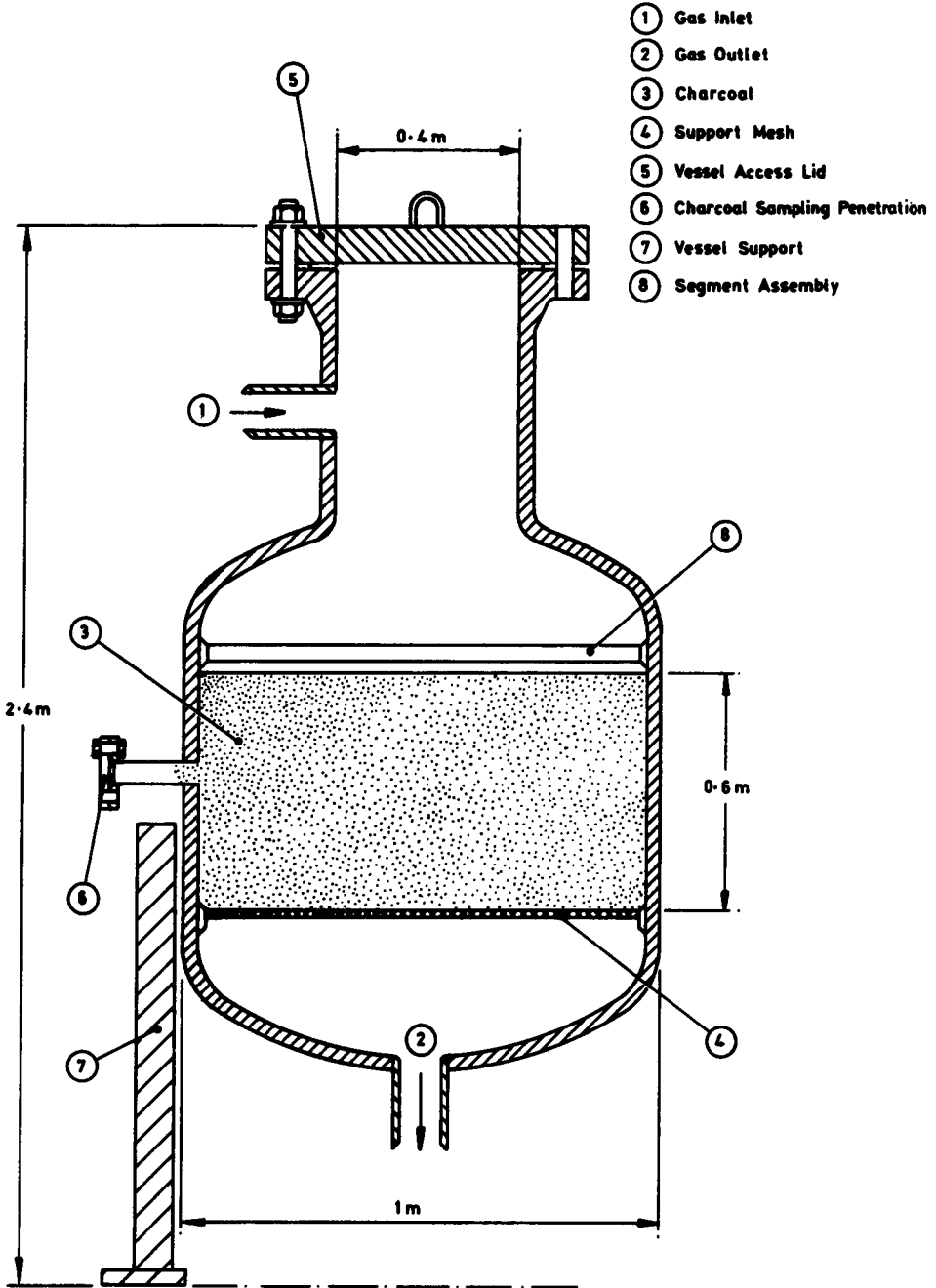


Fig. 2
Simplified Schematic of Typical AGR
Fission Product Trapping Plant (Hartlepool)



By Permission of
Pall (Europe) Ltd.

Fig. 3
Absolute Filter Unit (Hartlepool Trapping Plant)



By Permission of
Pall (Europe) Ltd.

Fig. 4
Charcoal Bed Unit (Hartlepool Trapping Plant)

JODFILTER FUER KERNKRAFTWERKE

H.J. Strauss, G. Staschik und K. Winter

Geagfilter und Entstaubungstechnik
Dortmund - B.R. DEUTSCHLAND

KURZFASSUNG. Um radioaktive Ableitungen, in diesem Falle von Radiojod und seinen organischen Verbindungen, in die Atmosphäre zu unterbinden, muss verhindert werden, dass die im Containment enthaltene Luft - die nach einem Zwischenfall radioaktives Spaltjod enthalten kann - in die freie Atmosphäre entweicht. Diese Bedingung wird erfüllt, wenn

- a) das Containment absolut dicht ist, oder
- b) der Druck im Containment immer kleiner als der der freien Atmosphäre ist.

Da bei jedem Zwischenfall durch freigesetzte Wärmeenergie notwendigerweise auch ein Druckanstieg erfolgt und da darüber hinaus wegen vorhandener Durchföhrung ein Containment nie absolut dicht gehalten werden kann, ergeben sich zwei Lösungsmöglichkeiten :

Einmal kann ein doppelwandiges Containment so gebaut werden, dass von innen nach aussen tretende verunreinigte Luft aus dem Ringspalt zwischen den beiden Containmentwänden abgesaugt und in Abluftfiltern gereinigt wird oder, dass im Innern eines einwandigen Containments für eine schnelle Wärmeabfuhr - und damit für ein schnelles Abbrechen eines sich aufbauenden Druckes - und durch eine Umluftreinigung mit einem Containment-Filter für eine schnelle Verringerung des Verunreinigungspegels Sorge getragen wird.

Wegen der Temperaturabhängigkeit der Abscheidung von Radiojod oder von radioaktiven Organojodverbindungen durch Kohle, hat es sich als vorteilhaft herausgestellt, im Containment-Filter anorganische Sorbentien einzusetzen, die speziell ausgerüstet sind. Die Anordnung dieser Sorbentien kann in Form einer Planschicht- oder Ringschichtanordnung erfolgen, wobei die Ringschichtanordnung bezüglich den zu stellenden Anforderungen Vorteile bietet. Die Adsorption kann in diesem Falle bis zu einer Temperatur von 300° C aufrecht erhalten werden, wenn die auf Keramikbasis aufgebauten Sorbentien in besonderer Weise imprägniert werden.

SUMMARY. IODINE SORPTION PLANTS FOR NUCLEAR POWER STATIONS. To prevent radio-active leaks into the atmosphere, in this case radio-active iodine and its organic compounds, the air in the containment building which may contain radio-active fission-product iodine after an incident must be prevented from escaping into the atmosphere. This can be done if

- a) the containment is completely airtight, or
- b) the pressure in the containment is maintained below atmospheric pressure.

Since there is an increase in pressure every time an incident occurs through the release of heat energy, and since, due to the tions a containment can never be kept absolutely airtight, there are two possible solutions :

A double-walled containment can be built, so that any polluted air escaping from the annular space between the two containments is sucked out and cleaned in absolute filters, or provision can be made within a single-wall containment for a rapide extraction of heat and hence for a rapid release of the pressure as it builds up and

a rapid reduction in the level of atmospheric contamination by recirculating the air through a containment filter. Because the trapping of radioactive iodine or organic iodine compounds by charcoal is temperature dependent, it has been found advantageous to put inorganic adsorbents into the containment filters, which have been specially fitted. These adsorbents can be placed either in flat or circular layers, the latter being more efficacious in meeting the requirements. In this case adsorption can be maintained up to a temperature of 300°C, if the sorbents built up on a ceramic base are specially impregnated.

RESUME. FILTRES A IODE POUR CENTRALES NUCLEAIRES. Pour éviter que des effluents radioactifs, ici de l'iode radioactif et ses composés organiques, ne soient rejetés dans l'atmosphère, il faut empêcher l'air contenu dans le confinement - qui, après un accident, peut contenir de l'iode de fission radioactif - d'échapper à l'air libre. Cette condition est remplie si :

- a) Le confinement est absolument étanche, ou
- b) la pression dans celui-ci est toujours inférieure à celle de l'air libre.

Puisqu'à chaque accident l'énergie thermique libérée provoque forcément une hausse de pression et que, par ailleurs, du fait des accès existants, le confinement ne peut jamais être entièrement étanche, deux solutions sont possibles :

ou la double enceinte est conçue de sorte que l'air pollué s'échappant de l'intérieur vers l'extérieur soit aspiré dans l'espace annulaire entre les deux enceintes et épuré sur les filtres d'extraction d'air ou bien on fait en sorte qu'à l'intérieur d'une enceinte simple la chaleur se dissipe rapidement et qu'ainsi cesse vite de monter puis qu'en épurant en circuit fermé l'air de celle-ci sur un filtre d'enceinte le niveau de contamination y tombe au plus tôt.

La rétention sur charbon de l'iode radioactif ou des composés d'iode organo-iodés radioactifs dépendant de la température, il est apparu indiqué d'utiliser pour le filtre d'enceinte des adsorbants minéraux qui soient spécialement équipés. On peut disposer ces adsorbants en couche plane ou annulaire, celle-ci offrant certains avantages quant aux performances requises. Dans ce cas, l'adsorption peut être maintenue jusqu'à une température de 300° C, si les sorbants à base de céramique ont été spécialement imprégnés.

Die bei der Kernspaltung entstehenden Jodisotope stellen im Spaltproduktinventar eines Reaktors nur einen Teil der radioaktiven Stoffe dar. Dieser Teil ist jedoch von besonderem Interesse, da er wegen seines hohen Dampfdrucks bei einem Zwischenfall, der mit Austreten von Spaltprodukten verbunden ist, leicht als Joddampf in die Luft übergehen kann. Dort kann es sich an vorhandene Teilchen des Aerosols anlagern, kann mit (praktisch immer (auch in sauberer natürlicher Luft im Bereich weniger ppm) vorhandenen) organischen Dämpfen reagieren und sogar mit den Oberflächen in (chemische) Wechselwirkung treten. Daher sind bei einem Spaltproduktaustritt

- mit Radiojod beladene Schwebstoffe
- dampfförmiges Radiojod
- dampfförmige Radiojod-Verbindungen

in der Luft nachweisbar. Jod und Jodverbindungen werden leicht inkorporiert und konzentriert in der Schilddrüse abgelagert. Von dort aus kann eine unerwünschte Strahlenbelastung ausgehen. Da aus technischen Gründen ein Spaltprodukt-Austritt nicht voll ausgeschlossen werden kann, ist durch geeignete Maßnahmen für das Abscheiden der in die Luft gelangenden Spaltprodukte zu sorgen. Die Orte des Austretens sind im Regelfall das Reaktorcore, das Abklinglager und schließlich die Anlage zur Kernbrennstoff-Wiederaufbereitung. Sieht man von den Wiederaufbereitungsanlagen einmal ab, kann das Jod primär nur im Containment des Reaktors freigesetzt werden. Bei einigen Reaktortypen könnte mit dem Dampf-Wasserkreislauf allerdings ein Übertreten in andere Kraftwerkteile möglich sein. Dies gilt jedoch auch für z.B. radioaktive Edelgase, die aus dem Kondensator abgezogen und einer Verzögerungsstrecke zugeführt werden. Die in der Verzögerungsstrecke enthaltenen Sorbentien sorgen jedoch auch für die gewünschte Jodabscheidung, so daß diesem Problem hier keine weitere Aufmerksamkeit gewidmet werden soll. Beim natriumgekühlten schnellen Brüter wird

ebenfalls ein Prozeßgas frei, das wie das aus dem Kondensator abziehende Gas aufbereitet werden kann.

Im Schadensfall ist mit einem Übertritt von Radiojod in die Luft des Containments zu rechnen. Diese Containmentluft ist mit lüftungstechnischen Mitteln zu behandeln. Dabei soll verhindert werden, daß verunreinigte Luft überhaupt aus dem Containment austritt. Dies wird beim doppelwandigen Containment durch das Absaugen der Luft des Raumes zwischen den beiden Hüllen, des Ringspalts, erreicht. Beim einfachen Containment ist eine Unterdruckhaltung vorgesehen, bei der immer so viel Luft aus dem Containment abgesaugt wird, daß ein bestimmter Unterdruck gegenüber dem atmosphärischen Druck aufrechterhalten wird. In beiden Fällen wird Luft abgesaugt, die in einer Filteranlage gereinigt werden muß. Quantitativ wird der Grad dieser Reinigung z.B. durch den Dekontaminationsfaktor erfaßt. Diese Dekontaminationsfaktoren werden von den möglicherweise auftretenden Jodkonzentrationen bestimmt. Während bei der Ringspaltabsaugung am Doppelcontainment Dekontaminationsfaktoren von 10^3 ausreichend sein können, wird bei der Reinigung des Prozeßgases mit höheren Dekontaminationsfaktoren, die u.U. 10^6 übersteigen, zu rechnen sein.

In den Anfängen der Reaktortechnik hatte sich unimprägnierte Aktivkohle zur Jodabscheidung eingeführt. Das Erkennen von Organojodverbindungen als Ursache für zu geringes Abscheidevermögen, besonders bei sehr kleinen Konzentrationen und auch bei extrem hohen relativen Feuchten, führte zur Verwendung von mit KJ-J imprägnierten Kohlen, die jetzt als Stand der Technik anzusehen sind. Die Vorteile der Aktivkohle sind ihre große innere Oberfläche von etwa $1000 \text{ m}^2/\text{g}$, die (relativ) leicht mit hinreichender Gleichmäßigkeit in gewünschter Weise imprägniert werden kann, - und - besonders bei geformter Aktivkohle, die auch wegen verringerter Entmischungsfahr bevorzugt werden sollte - ihre Härte, die keinen Abrieb erwarten läßt. Nachteilig sind die leichte Belegbarkeit der freien Oberfläche mit fremden Stoffen, besonders mit organischen Dämpfen, die im Laufe der Betriebszeit zu einer Verringerung der Adsorptionsfähigkeit der Kohle führt und ihre Brennbarkeit, über die noch zu sprechen sein wird. Um dem Nachteil der Brennbarkeit abzuhelpen, sind in jüngster

Zeit auch unbrennbare Sorbentien zum Einsatz gekommen. Darunter Zeolite mit Silberdotierung, Adsorber auf SiO_2 -Basis mit Silbernitrat-Imprägnierung oder Adsorber auf Al_2O_3 -Basis mit Silberimprägnierung. Diese Sorbentien haben eine etwa um eine Größenordnung kleinere innere Oberfläche, verglichen mit Aktivkohle. Dies hat zur Folge, daß zum Erreichen des gleichen Abscheidegrades bei der Adsorption größere Schichtdicken und längere Verweilzeiten nötig werden. Der wesentliche Vorteil gegenüber der Kohle ist ihre Unbrennbarkeit; auch scheint bei ihnen die Gefahr einer Fremdbeladung geringer zu sein als bei Aktivkohle.

Für die Anordnung der Sorbentien haben sich - neben der in Filterzellen - Plan- und Ringschichten (Bild 1, Bild 2) eingeführt, die im Gegensatz zu den Filterzellen ohne besondere Abdichtung so angeordnet werden, daß dem zu reinigenden Luftstrom kein anderer Weg bleibt, als

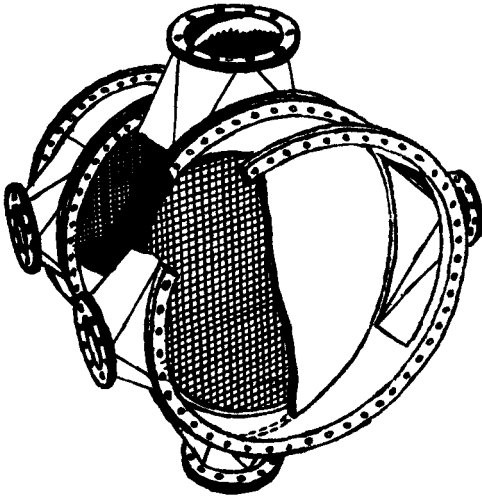


Bild 1: Aktivkohlefilter mit planer Schicht. Die zwischen den Siebblechen angeordnete Schicht steht senkrecht. Die Aktivkohle kann vom oberen Stutzen aus eingefüllt und durch den unteren Stutzen abgezogen werden. Die Luft wird durch die (hier) seitlich gezeichneten Stutzen zu- bzw. abgeführt. (Werkphoto CEAG)

durch die Sorptionsschicht zu strömen. Beide Schichtanordnungen haben ihre Berechtigung, besonders wenn davon ausgegangen wird, daß die Platzverhältnisse oft den Raum für die eine oder die andere Anordnung nicht hergeben. Die Form der Schicht und die Verweilzeit bestimmen dabei über Anströmgeschwindigkeit und zulässige Druckdifferenz die Kohlekörnung. So werden z.B. für Aktivkohle-Planschichten geformte Kohle mit einer Körnung von 2 mm in Schichtdicken von 200 bis 500 mm und für Ringschichten geformte Kohle mit Körnungen von 0.8 bis 1 mm in Schichtdicken von 100 bis 300 mm eingesetzt. Typische Anströmgeschwindigkeiten sind Werte bis 0.5 m/s (also

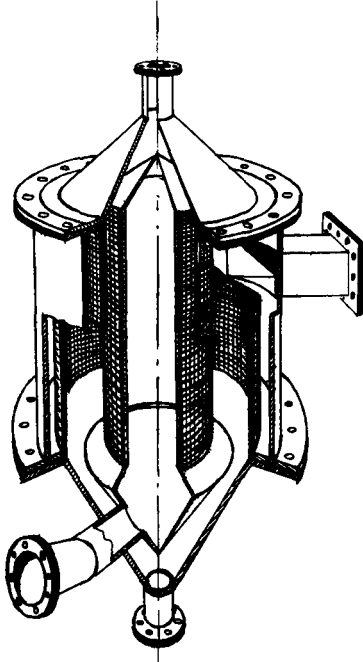


Bild 2: Aktivkohlefilter mit Ringschicht. Die zwischen den zylindrischen Siebblechen angeordnete Schicht steht senkrecht. Die Aktivkohle kann - wie auch bei der Planschicht - durch den oberen Stutzen eingefüllt und durch den unteren Stutzen abgezogen werden. Die Luft kann durch den unteren, zur Seite gerichteten Stutzen zu- und durch den seitlich am Filter angebrachten Stutzen abgeführt werden.

(Werkphoto CEAG)

Verweilzeiten von 10^{-1} bis 10^0 Sekunden), und dabei stellen sich Druckdifferenzen von etwa 1000 bis 3000 Nm^{-2} ein. Diese Druckdifferenzen können in besonderen Fällen durchaus auch bei Werten bis zu 5000 Nm^{-2} liegen!). Die Schichten werden im Regelfall stehend ausgeführt und von Lochblechen, die oft mit Siebgewebe belegt sind, gehalten. Für diese Lochbleche und diese Siebgewebe sollten Edelstähle gewählt werden, während für die Gehäuse selbst oft Normalstähle ausreichen, wenn sie mit einem entsprechenden Oberflächenschutz versehen sind. Oft wird dafür eine 4-fache Behandlung mit Lacken vorgeschrieben, deren Eigenschaften hinsichtlich notwendiger Dekontaminierungen untersucht und für gut befunden wurden. Bei dieser Oberflächenbehandlung besteht jedoch immer die Gefahr, daß Lösemittel noch über lange Zeit hinweg abgegeben werden. Damit kann die eingesetzte Kohle geschädigt werden. Aus diesem Grunde sollte eine lösemittelfreie Oberflächenbeschichtung, z.B. mit Glasmit, das geprüft und in die Dekontaminierbarkeitsklasse "Sehr gut" eingestuft wurde, vorgezogen werden. Das Gehäuse liegt bei der Ringspalt- und auch bei der Containmentabsaugung im Unterdruck. Es treten jedoch Fälle auf, in denen der volle Containment-

druck als Überdruck im Filter wirksam werden kann. Da das Volumen derartiger Filter im Regelfall größer 2000 l ist, muß der Behälter, wenn der wirkende Überdruck 0.5 Bar überschreiten kann, so ausgebildet werden, daß er der Druckgasverordnung entspricht. Wegen der beengten Platzverhältnisse im Containment ist auf hinreichend Luft oberhalb und unterhalb des Filters zu achten. Nur so kann ein Aufsetzen der Füllbehälter sowie der Behälter für das verbrauchte Sorbens und damit ein störungsfreier Austausch des Sorbens sichergestellt werden. Ist mit hoher Aktivität durch adsorbiertes Radiojod zu rechnen, sollte eine Fernbedienbarkeit vorgesehen werden. So kann z.B. eine Schubförderanlage das beladene Sorbens aus dem Filter in geeignete Abklingbehälter fördern und eine zweite das neue Material aus einem Vorratsbehälter dem Filter zuführen. Allerdings ist in diesen Fällen die abgehende Förderluft zu reinigen. Jedoch dürfte der dazu notwendige Aufwand, gemessen an der zu lösenden Aufgabe, gering sein, denn um etwa 4 m³ Aktivkohle in ein derartiges Filter zu fördern, muß mit einem Förderluftanfall von um 100 m³ gerechnet werden. Soll der Fördervorgang in etwa einer Stunde abgeschlossen sein, müßte die Reinigungsanlage für die Förderabluft für etwa 100 m³/h ausgelegt werden. Die dazu notwendige Filteranlage ist einmal vom Luftstrom, zum anderen auch vom Luftzustand her gesehen (Normaltemperatur, relative Feuchte weit unter 100 %), ohne großen Aufwand realisierbar. Die notwendigen Ventil- und Schieberbetätigungen können natürlich pneumatisch und elektromotorisch erfolgen, so daß eine tatsächliche Fernbedienbarkeit erreicht werden kann, zumal der Förderstrom des verbrauchten Sorbens, der des neuen sowie der Füllstand im Filter getrennt überwacht werden können. Diese Art der Förderung ist besonders dort interessant, wo die Container für das verbrauchte und für das neue Sorbens wegen der Enge am Einbaort nur mit Schwierigkeiten transportiert werden können.

Die Bedingungen, unter denen das Jod (elementar oder in Verbindungen) abgeschieden werden muß, variieren von Einsatzfall zu Einsatzfall selbst dann, wenn die gleichen Umstände für den Auslegefall angenommen werden. Besondere Bedeutung kommen hier den Parametern Temperatur und Feuchte zu. Daneben sind es luftfremde Bestandteile, die nicht notwendig radioaktiv zu sein brauchen, wie anorganische

oder organische Gase bzw. Dämpfe, die die Wirksamkeit des Gassorptionsfilters beeinflussen können. Werden bei einem Zwischenfall etwa größere Wärmemengen freigesetzt, können organische Stoffe (verdampfte Weichmacher, Schmiermittel u.ä.) als Dampf in die Luft übergehen und so in das Filter gelangen. Natürlicherweise werden diese Stoffe auch adsorbiert, und sie belegen so die innere, aktive Oberfläche des Sorbens. Sollten etwa einmal Beschichtungsarbeiten oder Lackierungen im Containment vorgenommen werden, besteht durch die dabei frei werdenden Lösemittel akute Gefahr für die Gassorptionsfilter.

Wird als Sorbens Aktivkohle eingesetzt, sollte die obere Grenztemperatur mit 125 °C angesetzt werden. Bei höheren Temperaturen besteht bereits merkliche Oxidationsneigung der Kohle, die mit steigender Temperatur schließlich so rasch zunimmt, daß die stille Oxidation in einen Brand übergehen kann. Ein derartiger Brand führt - wegen der freiwerdenden Wärme - zu einer vollständigen Desorption der Kohle. Das Löschen eines derartigen Brandes ist nur durch Inertisierung möglich. Dabei ist Wasserdampf als nicht inert gegenüber der glühenden Kohle anzusehen (Wassergasbildung!). Nicht ausgeschlossen werden kann auch eine Veränderung der Struktur der Aktivkohle durch oxidierend wirkende Stoffe wie etwa Stickstoffoxide oder Ozon.

Für den Fall der Temperaturüberschreitung oder der unvermeidbaren Anwesenheit störender Gase oder Dämpfe ist ein Ersatz der Aktivkohle durch andere Sorbentien möglich. Hier können etwa mit Silber dotierte Zeolite oder mit Silber imprägnierte poröse Stoffe auf Kieselsäure- oder Aluminiumoxidbasis eingesetzt werden. Dies kann besonders dann notwendig werden, wenn die Luft im Containment selbst mit einem Containmentfilter (Bild 3) gereinigt werden soll. Um mit derartigen Filtern entsprechende Wirkungen zu erreichen, ist neben dem notwendigen Dekontaminationsfaktor ein großer Luftstrom von der Filtereinheit zu verarbeiten und die gereinigte Luft muß, dies ist das zweite Problem, so in dem Containment ausgeblasen werden, daß eine Verdünnung wirksam werden kann.

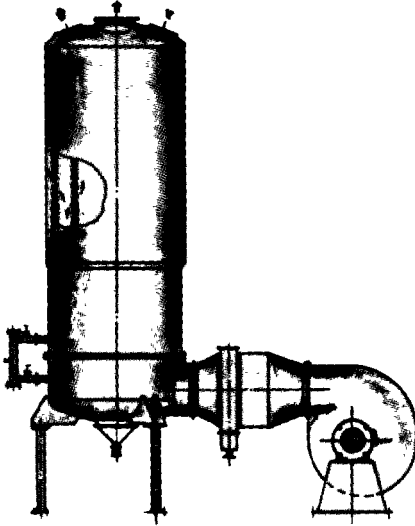


Bild 3: Containment-Filter mit Ventilator und vorge-schaltetem Tropfenabscheider zur Umluftreinigung in einem Containment. Die Kontroll-filter sind seitlich am Filterkessel untergebracht, und sie verbinden den Rohluftraum unterhalb des unteren Flansches mit dem Reinfluftraum.

(Werkphoto CEAG)

Unter Berücksichtigung dieser Umstände sind die Filter so auszulegen, daß die geforderten Dekontaminationsfaktoren erreicht werden, Fak-toren, die je nach Art der kerntechnischen Anlage und deren sicher-heitstechnischem Risiko, einzeln festgelegt werden müssen. Bei nor-malen Siedewasser- oder Druckwasser-Reaktoren wird im Regelfall ein Dekontaminationsfaktor von um 10^3 ausreichen, der bei Temperaturen unter $125\text{ }^{\circ}\text{C}$ und Feuchten unter 100 % mit KJ-J imprägnierter Aktivkohle erreicht werden kann. Ist mit einer Feuchte von 100 % und mehr (Nebelbildung) zu rechnen, empfiehlt es sich, die aus der üblichen Verfahrenstechnik bekannten Apparatekomponenten zu be-nutzen. (Bild 4)

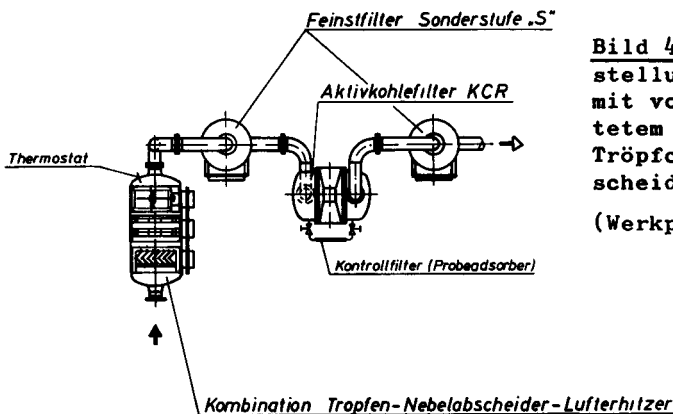


Bild 4: Schematische Dar-stellung eines Jodfilters mit vor- und nachgeschal-tetem "S"-Filter sowie Tröpfchen- und Nebelab-scheider und Heizregister.

(Werkphoto CEAG)

Nach einer mechanischen Tröpfchen- und einer Nebelabscheidung kann eine darauffolgende Wiederaufheizung die relative Feuchte auf unter 100 % bringen und so den Einsatz von Aktivkohle ermöglichen. Besteht Brandgefahr oder müssen Bedingungen angenommen werden, die die Verwendung von Aktivkohle ausschließen, kann auf die oben genannten unbrennbaren Sorbentien ausgewichen werden. Hier ist jedoch auf eine sorgfältige Anpassung von Körnung, Schichtdicke und Geschwindigkeit an die Bedingungen des Einsatzfalles zu achten. Die Jodfiltereinheit für eine in der Zwischenzeit ausgeführte Anlage zeigt das Bild 5, das dazu gehörende Heizregister ist in Bild 6 gesondert dargestellt.

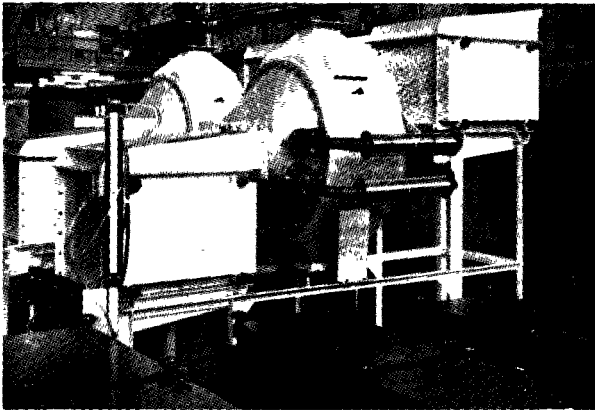


Bild 5: Jodfilter mit vor- und nachgeschaltetem "S"-Filter. (Doppelanlage). Anordnung der Aktivkohle in stehender, planer Schicht. Die beiden Kontrollfilter sind vor dem Aktivkohlekessel zu erkennen.

(Werkphoto CEAG)

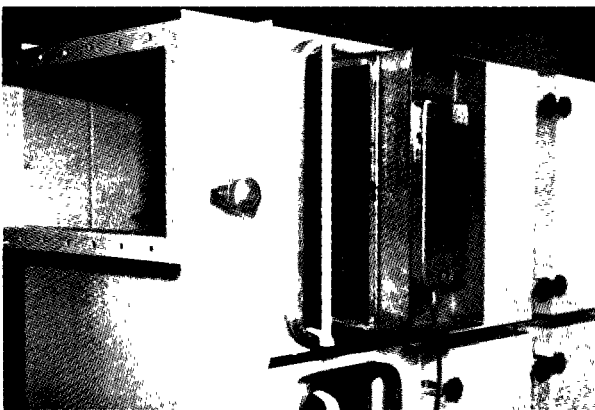


Bild 6: Heizregister in einem RPT-Filtergehäuse.

(Werkphoto CEAG)

Im allgemeinen können - besonders wenn die Gassorptionsfilter zweistufig ausgeführt werden - auch höhere Dekontaminationsfaktoren auf diese Weise beherrscht werden. In besonderen Fällen, etwa wegen der möglicherweise auftretenden hohen Jodkonzentrationen in der Abluft von Wiederaufbereitungsanlagen müssen andere Abscheideverfahren eingesetzt werden. Hier ist es wegen der anfallenden Säurenebel notwendig von Waschstufen auszugehen, in denen aus der Abluft Gase, Dämpfe und Nebel mit entsprechenden Waschflüssigkeiten die jodspezifische Reaktionspartner enthalten, ausgewaschen werden, Stufen also, die im Bereich der physikalischen oder chemischen Adsorption arbeiten. Diesen Stufen, die Dekontaminationsfaktoren von um 10^2 erreichen, können Gassorptionsfilter dann nachgeschaltet werden.

In jedem Fall empfiehlt es sich, die zur Adsorption noch verfügbare frei Oberfläche eines Sorbens zu überwachen. Dies kann nach einfacher Probenahme z.B. aus einem Monitorfilter so geschehen, daß ein qualitativer Test mit Tetrachlorkohlenstoff oder eine quantitative Bestimmung der noch freien Oberfläche mit Hilfe des BET-Gerätes vorgenommen wird. Empfehlenswerter aber sind die Tests, die von der GfK Karlsruhe durchgeführt werden, und bei denen an Hand der Kontrollfilter der aktuelle Abscheidegrad gegenüber radioaktivem Methyljodid bestimmt wird. Jede Jodfilteranlage wird normalerweise mit solchen Kontrollfiltern versehen (s. dazu Bild 4).

JODRÜCKHALTUNG IN WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN

F. Herre

Ges. zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH.
Karlsruhe - B.R. DEUTSCHLAND

KURZFASSUNG. Die Jodfiltereinrichtungen der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) werden beschrieben sowie über die Ergebnisse von Vorversuchen und den zweijährigen Betrieb berichtet. Die Probleme der Jodrückhaltung bei Grossanlagen werden aufgezeigt.

SUMMARY. IODINE RETENTION IN REPROCESSING PLANTS. A description is given of the iodine filtering equipment at the reprocessing plant at Karlsruhe (WAK), together with details of preliminary test results and operating experience in the two years to date. The problems of iodine retention in large-scale plants are listed.

RESUME. RETENTION D'IODE DANS LES USINES DE RETRAITEMENT. Le rapport décrit les dispositifs de rétention d'iode de l'usine de retraitement de Karlsruhe (WAK) et expose les résultats tant d'essais préliminaires que de deux ans d'exploitation. Il présente les problèmes soulevés par la rétention d'iode dans de grandes installations.

Abgasreinigungssysteme für Jod wurden mit wenigen Ausnahmen für den Einsatz in Reaktoren ausgewählt und geprüft. Ihre Technik kann nicht ohne weiteres auf das Abgasreinigungssystem einer Wiederaufarbeitungsanlage übertragen werden, da sich Jodfreisetzung und Abluftzusammensetzung deutlich von den Verhältnissen in den Reaktoren unterscheiden.

So besteht das Auflöserabgas im wesentlichen aus

Luft mit hoher relativer Feuchte
nitrosen Gasen mit gerissener Salpetersäure
J-131, J-127, J-129
Xe-133, Xe-131 m
Kr-85.

Edelgase sind praktisch ohne Einfluß auf das Abgasreinigungssystem für Jod, dagegen können Feuchtigkeit und Stickoxide die Abscheideleistung eines Jod-Rückhaltungssystems erheblich mindern.

Im Gegensatz zu dem im Reaktor eingesetzten Brennstoff ist die Jodaktivität je t vergleichsweise gering, nämlich rund 10^6 mal kleiner.

1. Erfahrungen mit der WAK

1.1 Jodanfall und Maßnahmen zur Rückhaltung

Die WAK ist für 35 t Uran/a ausgelegt worden, wobei für den Brennstoff ein Abbrand von 20 000 MWd/t, 20 MW/t Leistung und 150 d Kühlung angesetzt wurden. Für diesen Standardbrennstoff errechnet man einen Jodanfall von

2,4 Ci Jod 129/a und
40 Ci Jod 131/a.

Es wurden daher und wegen des Erfahrungsgewinns Maßnahmen zur Rückhaltung vorgesehen.

Dabei war an einen Rückhaltefaktor von $\approx 10^2$ gedacht worden.

Die Hauptmenge des Jods wird im Dissolver in einer ≈ 11 molar salpetersauren Lösung freigesetzt und im nitrosen Abgasstrom mitgerissen. Unter solchen Bedingungen kam seinerzeit nur eine nasse Wäsche infrage. Wir haben daher die Jodwäsche folgendermaßen in das Abgassystem eingebunden:

Die Auflöserabgase durchlaufen zuerst einen Rücklaufkondensator und werden hier auf ca. 30° C gekühlt, wobei der in den Gasen enthaltene Wasserdampf kondensiert. Die nichtkondensierbaren Gase gelangen zusammen mit dem Kondensat in einen Verweilbehälter. Hier werden die nitrosen Gase durch Luft-sauerstoff zu NO_2 oxydiert. Um einen Sauerstoffüberschuß zu erreichen, wird zusätzlich Luft in den Behälter geleitet. Über eine im Verweilbehälter angebrachte Kühlschlange wird die Reaktionswärme abgeleitet.

Nach der erforderlichen Verweilzeit treten die Gase mit ca. 30° C in eine Waschkolonne ein und werden im Gegenstrom mit Wasser gewaschen. Die sich im Sumpf der Kolonne ansammelnde Salpetersäure wird umgewälzt. Die Reaktionswärme, die bei der Bildung der Salpetersäure entsteht, wird über eine Außenmantelkühlung abgeführt.

Ein Teil dieser neugebildeten Salpetersäure wird zum Lösekes-
sel geleitet. Das Restgas wird mit einer Temperatur von ca. 30° C zum Abgasfilter abgezogen und von dort zur weiteren Be-
handlung zum Jod-Wäscher geleitet, wo es nochmals mit ver-
dünnter Salpetersäure gewaschen wird. Bei Bedarf kann auch
Natronlauge als Waschlösung eingesetzt werden. Die Waschlösung
wird über einen Kühler umgepumpt und kann nach Erschöpfung ab-
gezogen werden. Nach Trocknung in einem Erhitzer treten die Ab-
gase mit einer Temperatur von ca. 50° C in eines der wechsel-
weise betriebenen Absolutfilter ein.

Gebälse fördern schließlich das gereinigte Abgas über eine Edelstahlleitung, die innerhalb des Kamins bis zu seinem oberen Ende, getrennt von der Gebäudeabluft, verläuft. Die Abgasreinigung ist für einen Durchsatz von $75 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ausgelegt.

Ein zweiter Jodwäscher dient zur Rückhaltung des im Behälterventilationssystem anfallenden Jodes. Dieses System ist für $500 \text{ m}^3/\text{h}$ ausgelegt.

1.2 Vorversuche

Die atomrechtliche Errichtungsgenehmigung für die WAK enthält die Auflage, nachzuweisen, daß mit den vorgesehenen Apparaten der Abgasbehandlung ein Jod-Rückhaltefaktor von 100, d. h. eine Entfernung von 99 % Jod aus dem Abgas erreicht wird.

Es wurde daher im Jahre 1968 von Knoch (1) eine Reihe von Versuchen im Maßstab 1 : 1 unternommen, um diesen Nachweis zu erbringen. Dabei war es selbstverständlich, daß nur eine Simulation mit mehr oder weniger guter Annäherung an die späteren, tatsächlichen Betriebsverhältnisse möglich sein konnte.

Bei der Versuchsanordnung und Durchführung waren folgende Abweichungen gegenüber den vorgesehenen Betriebsbedingungen gegeben:

- Das Abgas wurde nicht durch Auflösen bestrahlter Kernbrennstoffe erzeugt, sondern mit Hilfe von Abschätzungen aus den einzelnen Gaskomponenten zusammengesetzt. Jod wurde nur in elementarer Form zugegeben.
- Untersucht wurde nur die Wirkungsweise des Kondensators mit Oxydationsbehälter, des Wäschers 1 und des Wäschers 2. Filter und Wärmeaustauscher befanden sich nicht im Versuchskreislauf.

- Den Versuchen wurden die ungünstigsten Bedingungen zugrundegelegt:
Freisetzung der Hauptmenge Jod einer Auflösercharge während 1 Std.; vollständiger Übergang des Jods in die Gasphase.

Das Ergebnis der Versuche war folgendes:

- Große Dampfmen gen begünstigen die Jodentfernung im Kondensator-Verweilbehälter. Möglicherweise wirken kleine Wassertropfchen als Kondensationskeime für Jod oder umgekehrt.
- Große NO_2 -Mengen im Abgas verringern die Jodentfernung im Kondensator-Verweilbehälter.
- Der Aufbau hoher Säurekonzentrationen im Wäscher verringert die Jodentfernung. Da die Löslichkeit des Jods in HNO_3 nicht wesentlich von der im Wasser verschieden ist, muß es sich hier um eine Abnahme der Reaktionsgeschwindigkeit oder aber Mitwirkung von hydrolytischen Reaktionen bei Abwesenheit von Säure handeln.
- Die Kapazität von Wasser bzw. HNO_3 als Waschflüssigkeit ist nur begrenzt, da die Löslichkeit von Jod nur $\approx 300 \text{ mg J/l}$ (20° C) beträgt. NaOH reagiert chemisch und hat daher eine größere Adsorptionskapazität.
- Das Verhalten organischer Jodverbindungen wurde nicht untersucht.
- Die behördliche Auflage, einen Rückhaltefaktor von 100 nachzuweisen, kann erfüllt werden. Die gemessenen Werte betragen ≈ 40 bis 3000. Für den Betrieb ließ sich voraussehen, daß eine entsprechende Rückhaltung des Jods evtl. auch mit Wasser bzw. Säure als Waschflüssigkeit erreicht werden kann, da die pro Zeiteinheit anfallenden Mengen höchstwahrscheinlich viel geringer sein werden als im Versuch angenommen. Im Bedarfsfall müßte Natronlauge als Waschflüssig-

keit verwendet werden.

1.3 Betriebserfahrungen

Die WAK wurde am 9.9.1971 in Betrieb genommen, so daß jetzt über 2 Jahre Betriebserfahrungen vorliegen. Insgesamt wurden ≈ 25 t Brennstoff aufgearbeitet.

Das kalkulatorische Jod-131-Inventar, bezogen auf den Tag der Auflösung, betrug $1,1 \cdot 10^{-2}$ Ci. Es war nicht möglich, mit J-131 nachzuweisen, daß die Jodrückhalteeinrichtungen mindestens 99 % des anfallenden Jods zurückhalten.

Aus diesem Grunde hat Wilhelm (2) ein Verfahren entwickelt, das es erlaubt, den Rückhaltefaktor für Jod mittels Jod 129 zu bestimmen.

Dieses Verfahren wurde in der WAK unter rauen Betriebsbedingungen erfolgreich erprobt. Eine genaue Bestimmung des Rückhaltefaktors der WAK-Wäscher steht jedoch noch aus, da die nötigen zusätzlichen Meßeinrichtungen noch nicht in die vorhandene Installation eingebaut werden konnten.

Im Betrieb zeigte sich, daß das Waschwasser des Jodturms schon nach 5 Auflösungen 5 m salpetersauer war. Dieses rührt von der nur unvollkommenen NO/NO₂-Oxidation her. Damit entfiel die Möglichkeit, 1 bis 2 m Natronlauge als Waschflüssigkeit einzusetzen, da bereits nach 1 bis 2 Auflösungen die Waschwirkung nachläßt. Es kann also nur mit der vorhandenen Einrichtung sauer gewaschen werden, was, wie wir ja wissen, nur eine geringe Rückhaltung ergibt.

2. Probleme bei Großanlagen

2.1 Jodanfall und Rückhaltefaktoren

Eine große Wiederaufarbeitungsanlage wird rund 1500 t Uran/a

an Leichtwasser-Reaktor-Brennelementen durchsetzen. Der Abbrand wird mit 60 000 MWd/t, die Leistung in den letzten drei Betriebsmonaten mit 30 MW/t angenommen werden müssen. Eine Mindestkühlzeit von 150 d vor Aufarbeitung wird vorausgesetzt.

Der Jodanfall einer solchen Anlage beträgt rund 1 to/a. Zu der gesamten Jodmenge trägt das Isotop 131 praktisch nichts bei. Von dem Anfallenden sind rund 80 % Jod 129.

Welche Rückhaltefaktoren sind für diese Jod-Mengen nötig?

- Jod 131

Jod 131 verursacht wegen seiner kurzen Halbwertszeit keine Langzeitrisiken. Die zulässige jährliche Aktivitätsabgabe kann man durch längere Lagerung vor der Auflösung, durch eine Rückhaltung oder die Kombination beider erreichen. Mit einem 100 m hohen Schornstein wird man zur Einhaltung von rund 100 mrem/a Schilddrüsenbelastung je nach Windverteilung und unter Berücksichtigung des Milchzyklus rund 1 bis 10 Ci/a ableiten können. Diese maximalen Ableitwerte erfordern für 150 d Kühlzeit einen Rückhaltefaktor von 330 bis 3300. Die Erhöhung der Kühlzeit auf 180 d reduziert die angegebenen Werte auf 1/10. Eine weitere Reduktion um den Faktor 10 ergibt sich, weil üblicherweise alte Reaktoren im Sommer entladen, die betrachtete Großanlage jedoch nur einen Tagesdurchsatz von 5 t besitzt.

- Jod 129

Für Jod 129 erhält man unter den oben genannten Bedingungen als maximal zulässige Ableitungen bei Berücksichtigung des Milchzyklus (3) 0,2 bis 2 Ci/a. Diese maximal zulässigen Ableitwerte erfordern Rückhaltefaktoren von 50 bis 500. Man kann jedoch J-129 nicht wie Jod 131 behandeln und nur von einer einmaligen Immission ausgehen, vielmehr muß man den weltweiten Aufbau des Jod 129 betrachten. Angaben hierzu findet man z. B. bei König (3) sowie bei Brauer et. al. (4).

Es scheint sinnvoll zu sein, J-129, soweit wie es technisch möglich ist, zurückzuhalten und in eine lagerfähige Form überzuführen.

- Kritikalitätsstörfall

Betrachtet man die jährlich anfallenden Jodmengen, so fragt man sich, wie diese Jodmengen in Relation zu denjenigen eines Kritikalitätsstörfalls stehen. Es hat sich eingebürgert, bei Sicherheitsbetrachtungen von Lösungssystemen mit

10^{18} Spaltungen im Falle eines Einzelburstes und mit 10^{20} Spaltungen im Falle des "Weiterkochens"

zu rechnen, obwohl man anhand der CRAC-Untersuchungen und der tatsächlich vorgekommenen Unfälle um den Faktor 10 bis 100 weniger Spaltungen gemessen hat. Für unsere überschlägige Abschätzung wollen wir einen Einzelburst mit 10^{18} Spaltungen ansetzen und nach dem Jodanfall, der für den Milchzyklus wichtigen Isotope 129 und 131 fragen. Die Jodisotope entstehen nicht sofort. Da die Vorgänger Antimon und Tellur sowie ihre Verbindungen weniger flüchtig sind, verbleiben sie in der Lösung oder adsorbieren an den Behälterwänden. Lösung und Behälterwände bilden demnach die Quelle des Jods, von dem dies mehr oder weniger vollständig abdampft. Der Transport vom Entstehungsort bis zum Kaminende dauert eine gewisse Zeit, d. h. die ganz kurzlebigen Isotope zerfallen schon innerhalb der Anlage, die etwas längerlebigen Isotope bis zum Aufpunkt.

Das Zeitintegral über den Aktivitätsverlauf ergibt die Gesamtaktivität. Sie beträgt bezogen auf den Jahresanfall nur

$$\begin{aligned} & 4 \cdot 10^{-8} \% \text{ bei Jod 129} \\ & 1,5 \cdot 10^{-2} \% \text{ bei Jod 131.} \end{aligned}$$

Daraus folgt, daß selbst Kritikalitätsstörfälle die anfallende längerlebige Jodmenge nur unwesentlich beeinflussen. Für die kurzlebigen Isotope errechnet man ohne Rück-

haltung eine Inhalationsdosis von weniger als $80 \text{ mrem}/10^{10}$ Spaltungen.

Aus dem obigen ergibt sich damit, daß die Ableitungen von Jod aus Wiederaufarbeitungsanlagen unter dem Aspekt des Jod-129-Aufbaus und nicht unter demjenigen der einmaligen Immission gesehen werden müssen. Demnach sind auch die Rückhalteeinrichtungen so auszulegen, daß das Jod endlagerfähig ausgebracht werden kann.

2.2 Verfügbare Rückhalteverfahren

Über die heute zur Verfügung stehenden Rückhalteverfahren gibt eine Zusammenstellung von Roth und Beutner (5) aus dem Jahre 1969 und ein von Ferguson (6) kürzlich gehaltenen Vortrag Auskunft.

Großtechnisch erprobte Systeme sind nur Waschtürme, versilberte Kupferspäne sowie Silberreaktoren. Diese Systeme wurden vor allem im Hinblick auf eine Jod 131 Rückhaltung entwickelt. Sie sind im Grunde nur als Verzögerungsstrecken anzusehen. Ein direkter Jodaustrag ist bei diesen Systemen im allgemeinen nicht vorgesehen.

Bedenkt man jedoch, daß eine Rückhaltung von Jod 129 in endlagerfähiger Form möglich sein muß, so kann man zur Zeit nur auf Verfahren zurückgreifen, die nicht über den Labormaßstab hinaus entwickelt wurden. Es handelt sich hierbei um das JODEX-Verfahren, die Quecksilbernitrat-Salpetersäurewäsche und Feststoff-Filter aus silberimprägnierten Molekularsieben bzw. Katalysatorträgern. Von allen Verfahren werden hohe Rückhaltefaktoren bis zu 10^4 berichtet.

Man muß daher feststellen, daß heute kein technisch ausgereiftes, prüf- und abnahmefähiges Verfahren zur Verfügung steht, mit dem Jod 129 in ausreichendem Maße zurückgehalten werden kann.

Literatur

- (1) W. Knoch
Vorläufige Versuchsergebnisse zur
Jodwäsche, GWK-Laborbericht, Sept.
1968 (nicht publiziert)
- (2) J.C. Wilhelm
An inorganic absorber material for
offgas cleaning in fuel repro-
cessing plants
Prov. 12th AEC air cleaning con-
ference
Conf./720 822 Oak Ridge 1972
- (3) König
Umweltaspekte von J-129, KFK-1543
- (4) F.P. Brauer
J.K. Soldat
H. Tenny und
R.S. Strebin Jr.
Natural Iodine and Iodine-129 in
mammalian thyroids and environmen-
tal samples taken from locations in
the United States
IAEA-Symposium on environmental
surveillance around nuclear
installations
Warschau, Nov. 1973
- (5) B.F. Roth und
P. Beutner
Jodabtrennung aus dem Prozeßabgas
von Wiederaufarbeitungsanlagen
Juni 1969
- (6) D.E. Ferguson
Chemical Reprocessing of Nuclear
Fuel.

JODFILTERUNG AUS DER ABLUFT VON WIEDERAUFBEREITUNGSANLAGEN

J. Furrer und J.G. Wilhelm

Gesellschaft für Kernforschung
Karlsruhe - B.R. DEUTSCHLAND

KURZFASSUNG. Zukünftige Wiederaufbereitungsanlagen werden z.Z. für einen Brennstoff-Durchsatz von 1500 t/a konzipiert. Setzt man voraus, dass der Brennstoff aus Leichtwasser-Reaktoren stammt, nach 2 Jahren Leistungsbetrieb entladen und einer Kühlzeit von 160 Tagen aufgearbeitet wird, muss ein Gesamtdeskontaminationsfaktor von 1800 erreicht werden, um eine Emission von 0,1 mCi/h an J-131 über den Abluftkamin der Wiederaufbereitungsanlage nicht zu überschreiten.

Ausserdem fallen im Verlauf eines Betriebsjahres der Wiederaufbereitungsanlage ca. 280 kg J-129 mit einer Gesamtaktivität von 46 Ci J-129 an. Es erscheint zweckmässig, das J-129 ($T_{1/2} 1,7 \cdot 10^7 a$) bereits am Anfang des Aufarbeitungsprozesses an feste Sorptionsmaterialien zu binden, die endlagerungsfähig sind. Damit werden alle Probleme vermieden, die durch das Auftreten von J-129 in den Abfall-Lösungen des Wiederaufbereitungsprozesses gegeben sind.

Es wird über das Abscheidungsverhalten von Jod-Sorptionsmaterial in Laborversuchen mit Luft-NO₂-Gemischen als Trägergas berichtet. Ausserdem wird die Wirksamkeit des Materials in den Behälter- und Auflöserabgasen einer Wiederaufbereitungsanlage diskutiert.

SUMMARY. IODINE TRAPPING FROM THE EXHAUST AIR OF REPROCESSING PLANTS.

Reprocessing plants are at present being planned for a fuel throughput of 1500 t/a. Assuming that the fuel comes from light water reactors, is discharged after 2 years of full power operation and reprocessed after a cooling period of 160 days, a total decontamination factor of 1800 must be achieved, to prevent emission in excess of 0.1 mCi/h I-131 through the exhaust stack of the reprocessing plant. In addition, approx. 280 kg I-129 with a total activity of 46 Ci I-129 are produced during one year's operation. It would seem advisable to bind, immediately at the beginning of reprocessing, the I-129 ($T_{1/2} 1.7 \times 10^7 y$) to solid sorption materials, which can be permanently stored. This would eliminate all problems presented by the occurrence of I-129 in the waste solutions from the reprocessing plant.

The retention behaviour of iodine sorption material in laboratory tests with air-NO₂ mixtures as carrier gas is described. In addition the efficiency of the material in the tank and solvent exhaust gases of a reprocessing plant is discussed.

RESUME. FILTRAGE DE L'IODE DE L'AIR EXTRAIT D'INSTALLATIONS DE RETRAITEMENT. On conçoit actuellement de futures installations de retraitement d'une capacité de 1500 t/a de combustible. Si l'on admet que le combustible provient de réacteurs à eau légère, déchargé après deux ans d'exploitation en puissance et retraité après un refroidissement de 160 jours, le facteur total de décontamination doit atteindre 1800 pour que l'émission d'I-131 par la cheminée d'évacuation d'air de l'installation de retraitement ne dépasse pas 0,1 mCi/h.

En outre, en une année d'exploitation de l'installation de retraitement, il apparaît environ 280 kg d'I-129 d'une activité totale de 46 Ci. Il apparaît opportun de lier l'I-129 ($T_{1/2} 1,7 \times 10^7 a$) dès le début du processus de retraitement à des matériaux de sorption solides susceptibles d'un entreposage final. Tous les problèmes que

pose l'apparition de l'I-129 dans les solutions de rejet au cours du processus de retraitement sont ainsi évités.

Il est rendu compte de la tenue des matériaux de sorption de l'iode au cours d'essais de rétention en laboratoire avec des mélanges air-NO₂ utilisés comme gaz porteur. En outre, on discute de l'efficacité du matériau sur les gaz d'extraction des réservoirs et des dissolvants.

Die wachsende Zahl von Kernreaktoren erfordert die Wiederaufarbeitung von abgebrannten Brennelementen, d. h. die Abtrennung der weiter verwertbaren wertvollen Bestandteile wie Uran und Plutonium vom Spaltproduktgemisch. In Deutschland werden z. Z. bestrahlte Brennelemente an der Wiederaufarbeitungsanlage in Karlsruhe mit dem PUREX-Verfahren aufgearbeitet. Diese Prototyp-Anlage ist für einen kleinen Teil der Kapazität einer großen Wiederaufarbeitungsanlage ausgelegt. Zukünftige Wiederaufarbeitungsanlagen werden für einen Brennstoff-Durchsatz von 1500 t/a geplant. Derartige Anlagen können den Brennstoff für eine installierte Kernkraftwerksleistung von 45 GW_{el} aufarbeiten. Setzt man voraus, daß dieser Brennstoff aus Leichtwasserreaktoren stammt, nach 2 Jahren Leistungsbetrieb entladen und einer Kühlzeit von 160 Tagen aufgearbeitet wird, ist mit einem Anfall von ca. $1,6 \cdot 10^3 \text{ Ci } ^{131}\text{J}$ pro Jahr zu rechnen. Um eine Emission von 0,1 mCi/h nicht zu überschreiten, muß ein Dekontaminationsfaktor von 1800 in der obengenannten Anlage mit Sicherheit erreicht werden; dies entspricht einem Abscheidegrad der eingesetzten Filter von 99,95 %.

Außerdem fallen im Verlaufe eines Betriebsjahres der Wiederaufarbeitungsanlage bei einem geplanten Abbrand von 60.000 MWd/t U (1) ca. 788 kg ^{129}J , mit einer spezifischen Aktivität des ^{129}J von $1,63 \cdot 10^{-4} \text{ Ci/g}$, d. h. eine Gesamtaktivität von 128,4 Ci ^{129}J , an.

Nach Abschätzungen von Russel und Hahn (2) werden bei Berücksichtigung aller Verteilungsfaktoren in einer großen Anlage der Nuclear Fuel Services in West Valley ohne zusätzliche Filterung 90 % des Gesamtjodinventars an ^{129}J über den Kamin abgegeben. Ueber den Zeitraum des Auflöserprozesses wurde eine 5 - 10 %ige ^{129}J -Abgabe von Cochran et. al (3) gemessen. Eine beträchtliche Menge ^{129}J wird zusätzlich bei der Rückgewinnung der Salpetersäure freigesetzt; weiter scheidet sich Jod durch die langen Abgaswege vorübergehend ab und wird allmählich mit dem Abluftstrom ausgetragen.

Hauptmerkmale zur Bewertung der sicherheitstechnischen Bedeutung des ^{129}J

1. Durch die hohe Spaltausbeute von 1 % werden große ^{129}J -Mengen erzeugt.
2. Die Halbwertszeit von $1,7 \cdot 10^7 \text{ a}$ kann zu einer dauerhaften lokalen und möglicherweise weltweiten Kontamination führen.

3. Die physiologische Anreicherung in der Schilddrüse ist eine Gefahrenquelle.
4. Die niedrige β - und γ -Energie bereiten beim Nachweis Schwierigkeiten.

Es erscheint zweckmäßig, das ^{129}J bereits am Anfang des Aufarbeitungsprozesses an feste Sorptionsmaterialien im Abgasstrom zu binden, die abgepackt in Fässern ohne weiteren Arbeitsgang endlagerungsfähig sind. Jod sollte nicht in Lösungen angereichert werden, da mit teilweiser Freisetzung, vor allem bei der Durchführung von Verfahrensschritten zur Ueberführung der flüssigen Abfälle in eine feste Form gerechnet werden muß. Dies gilt vor allem für Verfahrensschritte, bei denen höhere Temperaturen angewandt werden wie bei der Bituminierung, Verglasung und Verbrennung der radioaktiven Abfälle.

Ziele der Entwicklung von Jodfiltern

1. Der Abscheidegrad soll $\geq 99,99\%$ betragen.
2. Die Kapazität der Jodfilter soll möglichst groß sein.
3. Die dauerhafte Bindung des Jodes an das Sorptionsmaterial soll gewährleistet werden, so daß ein leicht handliches endlagerungsfähiges Produkt entsteht.

Die bisher durchgeführten Arbeiten betrafen den zukünftigen Einsatz eines Jod-Sorptionsmaterials in den Abgasfiltern von Wiederaufarbeitungsanlagen. In Zusammenarbeit mit der Fa. Bayer, Leverkusen, wurde das Jod-Sorptionsmaterial AC-6120 entwickelt; es hat eine Silber-Imprägnierung von 7,5 Gew.%, eine Korngröße von 1 - 2 mm und eine spezifische Oberfläche von $\sim 125 \text{ m}^2/\text{g}$.

Probenahme in der Wiederaufarbeitungsanlage

Die Abscheidung des ^{129}J wurde in den Originalabgasen der Wiederaufarbeitungsanlage durchgeführt. Abb. 1 zeigt den bisher benutzten Aufbau der Probenahmestelle. Es werden Teilströme von Auflöser- bzw. Behälterabgasen mit konstanter linearer Luftgeschwindigkeit (25 cm/s) durch Testbetten mit dem Sorptionsmaterial AC-6120

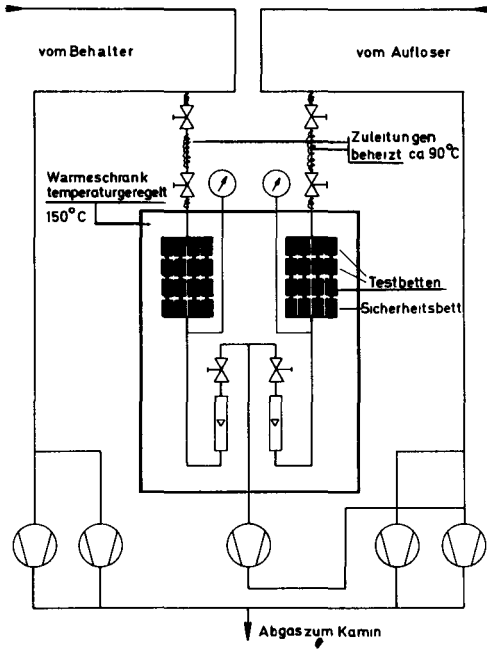


Abb. 1 Probenahmestelle Abgas Wiederaufarbeitungsanlage

bei konstanter Temperatur von 150°C gesaugt. Die filtrierten Abgase werden wieder in den Abluftkanal zurückgeleitet. Eine Vorheizung der Abgase verhindert das Auskondensieren von NO_2 bzw. N_2O_4 , HNO_3 , HNO_2 und Wasser im Leitungssystem und in den Sorptionsbetten.

Die Untersuchungen mit dem Sorptionsmaterial AC-6120 bezogen sich auf das Standzeitverhalten in Luft (4) und in den Abgasen der Wiederaufarbeitungsanlage. Zusätzlich wurde die Abscheidung von Methyljodid in Luft/ NO_2 -Gemischen bei einem NO_2 -Gehalt der Luft

von 1 - 10 Vol.% in Laborversuchen untersucht.

Wirksamkeit der Jodfilter

Bestimmt man nach einer Betriebsperiode das Verhältnis von Jod in Filterbetten und Jod im nachgeschalteten Sicherheitsbett, kann man die über die Betriebszeit kumulierte Durchlässigkeit des Jod-Sorptionsmaterials ermitteln. Für die Bestimmung dieser Durchlässigkeit in Abhängigkeit von der Beladung ist das langlebige ^{129}J und das inaktive ^{127}J (Isobarenausbeute: 20 % der Ausbeute an ^{129}J) heranzuziehen, da der Abscheidegrad eines Filterbettes mit steigender Beladung sinkt und die Jodbeladung nicht gleichmäßig über die Betttiefe erfolgt. Falsche Werte erhält man, falls die Bestimmung der kumulierten Durchlässigkeit mit Jodisotopen durchgeführt wird, die gegenüber der Beaufschlagungszeit eine kurze Halbwertszeit haben. Die nach einer bestimmten Betriebsperiode vorhandene Durchlässig-

keit des Jodfilters kann durch Laborversuche an Proben des Sorptionsmaterials ermittelt werden (z. B. mit $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ als Prüfmittel, Tab. I).

Tab. I Abscheidegrade von AC-6120 nach Einsatz in einer Wiederaufarbeitungsanlage (Laborversuche)

Adsorbiermaterial: AC-6120; Imprägnierung: ca. 74 mg Ag/g AC-6120

Einsatzzeit in den Abgasen der Wiederaufarbeitungsanlage:

Abscheideperiode I: 13 d; II: 20 d; III: 10 d; IV: 34 d

Laborversuche

Trägergas: Feuchtluft 150°C (Taupunkt 30°C), teilweise mit Zusatz von 2,5 % NO_2

Vorströmzeit: ≥ 24 h

Beaufschlagung (Prüfmedium + Trägergas): 1 h

Nachströmzeit (nur Trägergas): ≥ 21 h

Prüfmedium: ca. 1,5 mg $^{127}\text{J}/\text{g}$ AC-6120 vermischt mit ca. 2,5 μCi $\text{CH}_3^{131}\text{J}/\text{g}$ AC-6120 (berechnet für 10 cm Bett-Tiefe)

Abscheideperiode	Abgas aus:	^{127}J -Menge in mg ⁺⁺)	Abscheidegrade in %			
			Bett-Tiefe in cm			
			2,5	5,0	7,5	10,0
			Verweilzeit in s			
			0,1	0,2	0,3	0,4
I ⁺⁾	Auflöser	19	95,4	99,951	99,9949	99,9965
II	"	76	63,1	98,9	99,9989	99,9998
III	"	171	60,3	97,8	99,9969	99,9997
IV	"	373	45,5	90,7	99,979	99,9999
I	Behälter	0,16	73,0	99,85	99,9998	99,9999
II	"	1,3	54,4	81,1	93,3	97,7
III	"	0,32	90,9	99,96	99,9997	99,99995
IV	"	5,0	41,5	71,5	90,2	96,6
Vergleichsversuch	-	0	93,8	99,972	99,9998	99,99992

⁺⁾ Versuche wurden mit 2,5 % NO_2 gefahren.

⁺⁺⁾ angegeben ist die Summe der in den 4 Test-Betten abgeschiedenen ^{127}J -Mengen.

Die während der Beladung in den einzelnen Filterbetten abgeschiedenen ^{129}J -Mengen wurden durch Aktivierungsanalyse bestimmt. Zur Gegenkontrolle diente die chemische Analyse des Gesamtjodgehaltes von ^{129}J und ^{127}J nach verschiedenen Verfahren, die abhängig vom Jod-Gehalt der Probe angewandt wurden. In Spalte 3 der Tab. I sind die ^{129}J -Mengen für verschiedene Abscheideperioden aufgeführt.

Unter Verwendung der Ergebnisse der quantitativen Jodanalyse wurden außerdem die Abscheidegrade in Abhängigkeit von der spezifischen Jod-Beladung des AC-6120 für verschiedene Filterbett-Tiefen berechnet. Abb. 2 zeigt die Kurven für die Abhängigkeit des Abscheidegrades von der spezifischen Beladung in Auflöser Abgasen; während aus Abb. 3 die entsprechenden Kurven für Behälterabgase zu entnehmen sind.

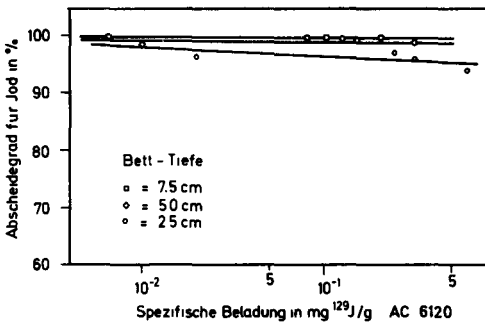


Abb. 3 Abscheidegrad von AC-6120 für Jod aus dem Behälter-Abgas als Funktion der spezif. Beladung

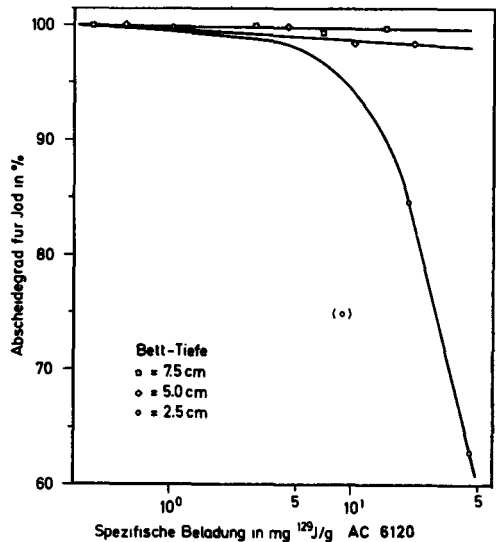


Abb. 2 Abscheidegrad von AC-6120 für Jod aus dem Auflöserabgas als Funktion der spezif. Beladung

Der Kurvenverlauf zeigt deutlich das Absinken der Abscheidegrade der Testbetten mit steigender spezifischer Beladung infolge des Verbrauches an Silberimprägnierung durch Umsetzung der Halogene zu Silberhalogeniden. Frühere Untersuchungen (5) weisen auf einen vollständigen Verbrauch des vorhandenen Silbers in Laborversuchen bei

der Reaktion mit Jod bzw. Methyljodid hin. Da neben ^{129}J und ^{127}J auch Brom als Spaltprodukt auftritt, wird ein zusätzlicher Anteil der Silberimprägnierung aufgebraucht. Potentiometrische Titrations ergaben auf dem ersten Sorptions-Bett einen AgBr-Anteil von 15 - 20 % des Gesamt-Silberhalogenidgehaltes. Die Abhängigkeit der Abscheidegrade von der Vorbeladung mit Jod in den Originalabgasen der Wiederaufarbeitungsanlage ist in Spalte 4 der Tab. I deutlich zu erkennen. Dabei ist zu berücksichtigen, daß die Hauptmenge der schon vorhandenen Halogene auf den ersten beiden Betten durch chemische Reaktion gebunden wurde.

Die in den Behälter-Abgasen beladenen Testbetten zeigten bereits nach Aufnahme geringer ^{129}J -Mengen in nachfolgenden Laborversuchen relativ niedrige Abscheidegrade. Diese wurden durch sehr unterschiedliche Komponenten herbeigeführt. Der Vergiftungseffekt beruht teilweise auf der Reduktion der Imprägnierung zu Silberoxid durch organische Lösungsmittelbestandteile, die organische Phosphate, Nitrate und weitere Radiolyseprodukte sowie die Lösungsmittel Dodecan und Tributylphosphat enthalten. Die Bildung von Silberphosphat wird nicht ausgeschlossen.

Abscheidegrad von AC-6120 in Luft- NO_2 -Mischungen verschiedener Konzentrationen

Die in Wiederaufarbeitungsanlagen eingesetzten Jod-Sorptionsmittel müssen auch nach wochenlangem Kontakt mit NO_2 ihre volle Wirksamkeit beibehalten. Aktivkohle verliert ihre Abscheideeigenschaften gegenüber Spaltjod durch Reaktion mit NO_2 zu leicht entzündlichen Reaktionsprodukten. Ag-Zeolithe können nach kurzer Kontaktzeit zu gallertartigen Massen aufquellen. Auf Abb. 4 wird die Durchlässigkeit von AC-6120 für $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ als Funktion der NO_2 -Konzentration in Luft für verschiedene Filterbett-Tiefen gezeigt. Bei einer Arbeitstemperatur von 150°C ergibt sich ein relativ geringer Einfluß im Bereich zwischen 1 % und 10 % NO_2 . Damit ist eine wichtige Voraussetzung für die Funktion eines Abluftfilters an Wiederaufarbeitungsanlagen erfüllt, da in den Auflöser-Abgasen der NO_2 -Gehalt stark schwankt.

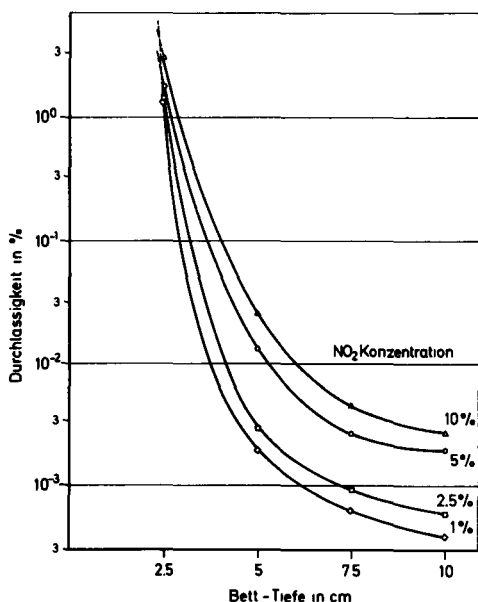


Abb. 4 Durchlässigkeit von AC-6120 für $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ in Abhängigkeit vom NO_2 -Anteil in der Luft

In Tab. II sind die im Labor-test mit dem Prüfmittel aus $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ und $\text{CH}_3^{127}\text{J}$ gemessenen Abscheidegrade in Luft/ NO_2 -Mischungen aufgeführt.

Regeneration der Filterbetten

Die Testbetten aus AC-6120 in den Auflöser- und Behälterabgasen der Wiederaufarbeitungsanlage wiesen bei allen Versuchen unterschiedliche Färbungen auf. Das Sorptionsmaterial aus den Auflöserabgasen färbte sich nur auf den ersten Zentimetern in Anströmrichtung schwach grau, während die

Proben aus den Behälterabgasen über alle aufeinanderfolgenden Betten dunkelgraublau durchgefärbt waren. Die starke Verfärbung war mit einer Verringerung des Abscheidegrades verbunden. Die Umsetzung des verfärbten Sorptionsmaterials mit NO_2 führte zur Entfärbung und zur Regeneration mit guten Abscheidegraden.

In Abb. 5 sind die Ergebnisse von drei Laborversuchen (Kurve 1, 2 und 3) mit dem Sorptionsmaterial AC-6120 wiedergegeben, das 20 Tage mit Behälterabgasen in der Wiederaufarbeitungsanlage beaufschlagt wurde. Die Testbett-Temperatur betrug bei allen Versuchen 150°C , der Taupunkt war auf 30°C eingestellt und die lineare Luftgeschwindigkeit ergab 25 cm/s .

Kurve 1 zeigt die hohe Durchlässigkeit des Sorptionsmaterials gegenüber $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ als Prüfmedium in Luft, während durch Kurve 4 die geringe Durchlässigkeit von frischem AC-6120 dargestellt wird. Kurve 2 gibt die Durchlässigkeit von AC-6120 nach einer Regenerationszeit von 24 h in einem Gemisch von Luft und 2,5 % NO_2 wieder.

Tab. II Abscheidegrad von Jodadsorbiermaterial AC-6120 in Luft-NO₂-Mischungen verschiedener Konzentrationen

Adsorber-Material: ca. 80 mg/g AC-6120
 Trägergas : Feuchtluft (1 ata), 150°C (Taupunkt 30°C),
 vermischt mit NO₂, lineare Luftgeschwindigkeit: 25 cm/s
 Vorströmzeit : 24 h
 Beaufschlagung (Trägergas + Prüfmedium): 1 h
 Nachströmzeit : 20 h
 Prüfmedium : ca. 1,5 mg CH₃¹²⁷J/g AC-6120, vermischt mit
 5 - 9 µCi CH₃¹³¹J/g AC-6120 (Beladung berechnet
 auf 10 cm Bett-Tiefe)

NO ₂ (Vol. %) im Trägergas	Integrale Abscheidegrade für CH ₃ J (%)			
	Bett-Tiefe in cm			
	2,5	5,0	7,5	10,0
	Verweilzeit in s			
	0,1	0,2	0,3	0,4
1	98,4	99,9981	99,9994	99,9996
2,5	98,5	99,9971	99,9991	99,9994
5,0 +)	98,1	99,986	99,9972	99,9980
10,0 +)	96,7	99,973	99,9954	99,9973
	Differenzielle Abscheidegrade für CH ₃ J (%)			
	Bett 1	Bett 2	Bett 3	Bett 4
1	98,4	99,88	68,9	36,2
2,5	98,5	99,81	67,9	31,5
5,0 +)	98,1	99,30	78,2	27,3
10,0 +)	96,7	99,20	83,2	43,4

+) Mittelwert von 2 Versuchen

Als Trägergas wurde während der Beaufschlagung mit Methyljodid ebenfalls NO_2 -haltige Luft verwendet. Kurve 3 zeigt die Durchlässigkeit des Sorptionsmaterials nach einer Regenerationszeit von 21 h in Luft mit 2,5 % NO_2 . Die Beaufschlagung mit Methyljodid erfolgte nach mehrstündigem Spülen der Apparatur und des Sorptionsmaterials mit Luft. Als Trägergas wurde während der Beaufschlagung und der Nachströmzeit NO_2 -freie Luft genommen.

In Abb. 6 sind die Ergebnisse von zwei Abscheideversuchen im Labor mit AC-6120 wiedergegeben, das vorher 20 Tage mit Auflöserabgasen beaufschlagt wurde.

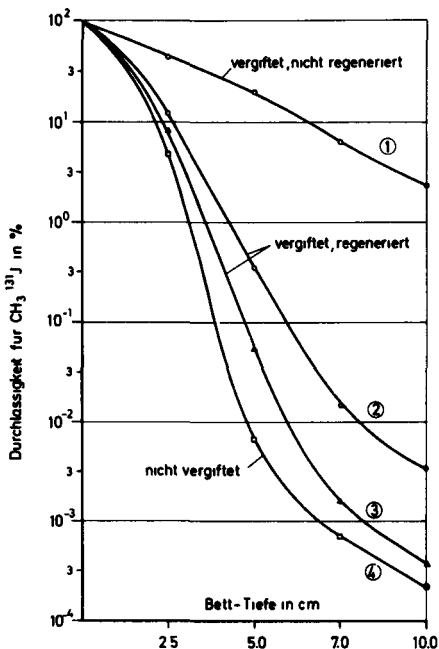


Abb. 5 Versuche zur Regeneration von vergiftetem AC-6120 durch NO_2 nach Einsatz im Behälterabgas

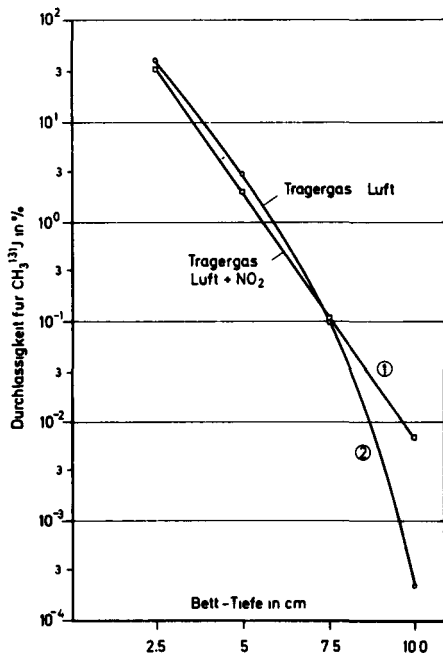


Abb. 6 Durchlässigkeit von AC-6120 gegenüber $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ nach Einsatz im Auflöserabgas

Die Bedingungen der Laborversuche, deren Ergebnisse in Abb. 5 durch die Kurven 1 und 2 wiedergegeben sind, entsprechen denen, die in Abb. 6 für die Kurven 1 und 2 angegeben wurden. Da das Auflöserabgas NO_2 enthält und organische Verunreinigungen des Gasstromes nur in geringem Maße auftreten, ist eine Vergiftung wie in den Behälterabgasen nicht zu erwarten. Dementsprechend ist auch kein Regenerationseffekt im Verlauf des Abscheidungsversuches im Labor unter

Tab. III Abscheidegrade von AC-6120 nach Einsatz in einer Wiederaufarbeitungsanlage, Laborversuche zur Regeneration

Adsorbiermaterial AC-6120; Imprägnierung: 78 mg Ag/g AC-6120

Einsatzzeit in den Abgasen der Wiederaufarbeitungsanlage: 20 d

Laborversuche

Trärgas: Feuchtluft 150°C (Taupunkt 30°C), teilweise mit Zusatz von 2,5 % NO₂
Vorströmzeit: ≥ 24 h

Beaufschlagung (Prüfmedium + Trärgas): 1 h

Nachströmzeit (nur Trärgas): ≥ 21 h

Prüfmedium: ≈ 1,5 mg CH₃¹²⁷J/g AC-6120, vermischt mit ≥ 2,5 μCi CH₃¹³¹J/g AC-6120
(berechnet für 10 cm Bett-Tiefe)

AC-6120 aus Abgasstrom von:	Zusammensetzung des Trärgases im Laborversuch	Abscheidegrade in %			
		Bett-Tiefe in cm			
		2,5	5,0	7,5	10,0
		Verweilzeit in s			
		0,1	0,2	0,3	0,4
Auflöser	Luft	63,1	98,9	99,9989	99,9998
Auflöser	Luft + 2,5 % NO ₂	68,7	98,0	99,89	99,9922
Behältern	Luft	54,4	81,1	93,3	97,7
Behältern	Luft + 2,5 % NO ₂	88,1	99,68	99,986	99,9968
Behältern	Vorströmzeit Luft + NO ₂ dann nur Luft	91,7	99,937	99,990	99,9995 ^{+))}
kein Abgas	Luft	95,0	99,9925	99,99994	99,99999 ^{+))}

^{+))} Meßgrenze erreicht

Anwendung von NO_2 -haltigem Trägergas festzustellen.

Aus dem Verlauf der Kurven können folgende Schlußfolgerungen gezogen werden:

- AC-6120 wird in den Behälterabgasen zusätzlich zur Jodbelastung vergiftet. Durch Einwirkung von NO_2 wird die Vergiftung weitgehend beseitigt (Vergleich von Kurve 1 und 3, Abb. 5).
- Wurde das AC-6120 durch ein NO_2 -Luftgemisch regeneriert, erhöht ein weiterer NO_2 -Zusatz zur Luft während der Beaufschlagung mit Methyljodid die Durchlässigkeit in geringem Maße (Vergleich von Kurve 2 und 3, Abb. 5).
- Durch einen geringen NO_2 -Gehalt in den zu filternden Abgasen kann die Vergiftung des AC-6120 weitgehend vermieden werden. Geringere Durchlässigkeit und höhere Standzeiten des Jodfilters sind zu erwarten.
- Da in den Auflöserabgasen einer Wiederaufarbeitungsanlage NO_2 auftritt, sollten die Behälter- und Auflöserabgase vor dem Jodfilter gemischt werden. Dies gilt jedoch nur dann, wenn die Jodmengen in den Behälterabgasen so groß sind, daß eine Abscheidung erfolgen muß und durch die Zumischung der Behälterabgase vor dem Filter keine wesentliche Verringerung der Abscheideleistung für die aus den Auflöserabgasen stammenden, relativ großen Jodmengen eintritt.

In Tab. III sind die in den hier diskutierten Versuchen erreichten Abscheidegrade aufgeführt.

Zusammenfassung

Ein Brennstoff-Durchsatz von 1500 t/a in einer geplanten großen Wiederaufarbeitungsanlage erfordert eine Filterung der radioaktiven Abgase mit hohem Abscheidegrad. Bei einem angenommenen Abbrand von 60.000 MWd/t U fallen 788 kg ^{129}J über den Zeitraum eines Jahres an; d. h. eine Gesamtaktivität von 128,5 Ci ^{129}J .

Das Jod Sorbens AC-6120 ist durch seine chem. Stabilität gegen NO_x -haltige Abgase bei einer Temperatur ab 120°C (zur Vermeidung der Kondensation von HNO_3) ein wirksames Agens zur Chemiesorption •

des Spaltjodes, das nach Auflösen der Brennelemente in den Auflöserabgasen in hohen Konzentrationen als luftgetragener Kontaminant gasförmig oder partikelförmig auftritt.

Bei einer angestrebten Kühlzeit der eingelagerten Brennelemente von 160 Tagen ist ^{131}J noch mit einer Aktivität vorhanden, die zur Filterung der Abgase zwingt. Bei der Auflösung von einer Tonne abgebrannter Brennstoffe erhält man pro Tonne Uran ca. $1 \text{ Ci}^{131}\text{J}$, d. h. bei 1500 t Durchsatz pro Jahr ist ein Anfall von ca. $1,5 \cdot 10^3 \text{ Ci}^{131}\text{J}$ zu erwarten. Diese hohe Aktivität an ^{131}J erfordert eine zuverlässige Abscheideleistung der eingesetzten Filter, um unzulässige Belastungen der Umgebung einer Wiederaufarbeitungsanlage mit ^{131}J zu verhindern.

Konstruktion und Entwicklung von Jod-Sorptionsfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen müssen ausgerichtet sein auf große Jodkapazität der Filter, Strahlungsbeständigkeit, NO_x -Beständigkeit und ausreichende mechanische Festigkeit des Sorptionsmaterials.

Als Lösungsmöglichkeit bieten sich an:

1. Schüttbett-Filter in Form von endlagerungsfähigen automatisch verschließbaren Fässern.
2. Wanderbett-Filter mit diskontinuierlicher Beschickung.

In beiden Fällen ist das Sorptionsmaterial AC-6120 zur Abscheidung von Spaltjod einzusetzen.

Literaturverzeichnis

- (1) Dr. HERRE, Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen, Karlsruhe, private Mitteilung.
- (2) J.G. RUSSELL, Paul B. HAHN, Radiolog. Health Data Rep.12 (1971)
- (3) J.A. COCHRAN, et al, BRH/NERHL 70-3.
- (4) J.G. WILHELM, H.G. DILLMANN, K. GERLACH, CONF-720823, Vol. 1, 434 - 444 (1972).
- (5) J.G. WILHELM, H. SCHUETTELKOPF, CONF-720823, Vol. 2, 540 - 550 (1972).

UTILISATION DE ZEOLITHES ARGENTÉES POUR LE
PIÉGEAGE A HAUTE TEMPERATURE DE L'IODE

M. Belval et J. Miribel

C.E.N. Cadarache
St. Paul-lez-Durance - FRANCE

RESUME. Le problème du piégeage de l'iode dans les boucles à haute température en vue des études de problèmes de sûreté a été résolu par l'emploi de tamis moléculaires 13X argentés.

Le présent rapport fait état des essais qui ont été réalisés sur un certain nombre de matériaux.

Un piégeage économique est constitué par du tamis 13X argenté à 260 g/l. Son efficacité à 400° C pour une vitesse de passage de 70 cm/s est de l'ordre de 10^4 .

KURZFASSUNG. VERWENDUNG VON SILBERZEOLITHEN ZUR JODABSCHIEDUNG BEI HOHER TEMPERATUR. Das Problem der Jodabscheidung in Hochtemperaturkreisläufen im Hinblick auf die Klärung von Sicherheitsfragen konnte durch die Verwendung von silberbeladenen Molekularsieben des Typs 13X gelöst werden.

In dem vorliegenden Bericht werden die Versuche erörtert, die mit einer Reihe von Materialien durchgeführt worden sind.

Eine wirtschaftliche Abscheidung wird mit dem silberbeladenen (260 g/l) 13X-Sieb erreicht. Sein Wirkungsgrad bei 400° C und einer Durchlaufgeschwindigkeit von 70 cm/s liegt bei 10^4 .

SUMMARY. UTILIZATION OF SILVERED ZEOLITES FOR IODINE TRAPPING AT HIGH TEMPERATURE. The problem of trapping iodine in loops at high temperatures, as it bears on studies of safety problems, has been solved by the use of 13X silver-coated molecular sieves.

This report describes the tests which have been carried out on various materials.

An economical method of trapping is the use of a 260 g/l silver-coated 13X sieve. Its efficiency, at 400° C and a flow rate of 70 cm/s is in the region of 10^4 .

The appendix describes the method of manufacturing these sieves and the various tests conducted in order to determine manufacturing standards.

Pour mener à bien les expériences liées à l'étude des problèmes de sûreté des réacteurs haute température, il est nécessaire de piéger aux alentours de 600° C les produits de fission ou d'activation volatils ou à tension de vapeur élevée à cette température et en particulier les radioiodes. Nous avons donc été amenés à rechercher un matériau susceptible de piéger l'iode et répondant aux spécifications suivantes :

- conserver une efficacité d'au moins 99 % à 600° C pendant trois mois.
- avoir un taux de désorption négligeable,
- ne pas dégager à la température d'utilisation des corps susceptibles soit de s'activer, soit d'être corrosifs vis à vis des matériaux de la boucle dans laquelle ils sont utilisés,
- avoir le prix de revient le moins élevé possible.

Dans le cas particulier des expériences HTR, le piégeage est effectué sous atmosphère d'hélium ; on pourrait penser que les charbons actifs (qui ne peuvent pas s'enflammer sous atmosphère inerte) conservent à 600° C une efficacité suffisante. Des essais effectués sur deux types de charbon ont infirmé cette idée. Nous avons alors essayé les zéolithes argentées. Les essais effectués sur une boucle d'étude à des températures différentes, d'une part, et avec des teneurs en argent variables, d'autre part, ont montré que ce matériau constituait un piège efficace à haute température.

I - DESCRIPTION DE LA BOUCLE EXPERIMENTALE -

Le dispositif expérimental (figure 1) est un circuit fermé comprenant une partie froide (à température ambiante) et une partie chaude dans laquelle la température peut être réglée entre 20° C et 600° C.

La zone froide comprend essentiellement :

- un circulateur de gaz
- un volume tampon
- un débitmètre
- une bouteille d'argon avec détendeur

La zone chaude est constituée par :

- un four de réchauffage
- un générateur d'iode
- un élément piège contenant le matériau à essayer.

Un piège constitué par six pots de charbon de 1 cm d'épaisseur refroidis par des injections discontinues d'azote liquide permettant de maintenir la température à -120°C et destiné à arrêter l'iode non fixé à chaud, fait la transition entre la zone chaude et la zone froide. Les divers éléments sont reliés par une tuyauterie chauffée à l'aide de pyrothénax. Un régulateur de température permet de maintenir dans la boucle la température désirée.

La mesure de l'activité sur les pièges était effectuée par spectrométrie γ .

L'efficacité est considérée comme le rapport entre la quantité qui entre et la quantité qui sort.

II - ESSAIS DE PIEGEAGE DE L'IODE SUR CHARBON ACTIF -

Deux types de charbon ont été essayés. Dans chaque cas, ils étaient préalablement conditionnés sous vide à une température de 110°C pendant soixante-douze heures.

II.1. - Charbon NC 8/16 référence 1184 -

Lorsque le charbon, sous atmosphère inerte, est porté à une température supérieure à 450°C , on observe une distillation. Pour cette raison, il n'a pas été jugé utile de poursuivre l'essai.

II.2. - Charbon de houille TS -

Les essais ont été effectués sur des colonnes de 6 cm de charbon traversées par un fluide (argon) contaminé en iode au débit de $3\text{m}^3.\text{h}^{-1}$ TPN. Le temps d'émission d'iode moléculaire a été limité à une heure, et le charbon était ensuite balayé par un gaz propre pendant un temps suffisamment long pour permettre de mesurer la vitesse de désorption. Deux essais à des températures différentes ont permis de montrer que les charbons ne constituaient pas un matériau convenable pour le piégeage de l'iode à haute température. En effet, le tableau [I] suivant, qui résume les deux essais, fait apparaître, outre une mauvaise efficacité, un taux de désorption important.

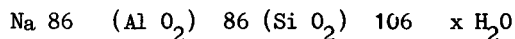
TABLEAU I

RESUME DES ESSAIS SUR CHARBON

	1° ESSAI	2° ESSAI
Température de piégeage	450 ° C	350 ° C
Débit du fluide	3 m 3.h ⁻¹	3 m 3.h ⁻¹
Vitesse de passage sur le charbon	77 cm.s ⁻¹	66 cm.s ⁻¹
Epaisseur de charbon	6 cm	6 cm
Durée de l'émission d'iode	1 h	1 h
Durée totale de l'essai	57 h	160 h
Activité d'I ² passée sur le piège	496 µCi	31,4 µCi
	(+ 3mg I ¹²⁷)	(+ 3mg I ¹²⁷)
Activité d'I ² retenue en fin d'injection	295,3 µCi	21,8 µCi
Activité d'I ² retenue en fin d'essai	235,3 µCi	11,5 µCi
Efficacité "instantanée" pendant l'injection	2,5	3,3
Efficacité en fin d'essai	1,9	1,55
Vitesse de désorption	4 % h	4 % h

III - ESSAIS DE PIEGEAGE DE L'IODE SUR TAMIS ARGENTES -

Une première série d'essais a été effectuée à l'aide d'un tamis moléculaire 13 X de formule :



dont les ions Na avaient été en partie échangés par des ions Ag à l'aide d'une solution saturée de nitrate d'argent et contenant dans ses pores une quantité d'argent métallique équivalent à celle échangée.

Dans une deuxième série d'essais, les tamis comportaient une quantité d'argent moins importante.

III.1.- Influence de la température -

Les essais ont été effectués sur la boucle décrite précédemment.

Les conditions expérimentales étaient les suivantes :

- Gaz vecteur : Hélium
- Concentration en I^{127} : 20 mg. m⁻³
- Vitesse frontale sur le tamis : 70 cm.s⁻¹
- Epaisseur de la boucle de tamis : 7 couches de 1 cm
- Température : variable de 50° à 500 ° C suivant les essais
- Durée de l'essai : 3 heures

L'efficacité en fonction de la température pour une couche de 5 cm de tamis argenté est représentée sur la figure 2. On peut voir sur la courbe qu'à partir de 200 ° C, l'efficacité reste constante et est de l'ordre de 10⁴.

III.2. - Influence de la concentration en iode dans le gaz vecteur-

Les conditions expérimentales étaient les suivantes :

- Gaz vecteur : Hélium
- Température du gaz vecteur: 300 ° C
- Durée de l'essai : 3 heures
- Composition du piège : 6 couches de 1 cm de tamis argenté
- Concentration en iode dans le gaz vecteur : de 2.10⁻³ à 9,6.10⁻¹ mg/l

- Vitesse de passage : 70 cm/s

L'efficacité en fonction de la concentration est représentée figure 3.

III.3. - Influence du temps de fonctionnement -

III.3.1 - Essai sur 500 h avec une seule injection d'iode pendant un temps court -

Les conditions expérimentales étaient les suivantes :

- Température du gaz vecteur : 350 ° C
- Composition du piège : 6 couches de 1 cm de tamis argenté
- vitesse de passage : 70 cm.s⁻¹
- Concentration en iode dans le gaz vecteur pendant l'injection : 2.10⁻³ mg/l
- Durée de l'injection : 3 heures
- Quantité totale d'iode injecté : 3 mg
- Durée totale de l'essai : 500 heures

Deux sondes gamma étaient placées respectivement sous le piège chaud et sous le piège froid. L'activité des deux pièges était enregistrée.

Aucune augmentation notable de l'activité du piège froid n'a été observée pendant toute la durée de l'expérience. Un comptage sur les pots de charbon après démontage de la boucle a montré que l'activité fixée était de l'ordre du bruit de fond. On peut donc affirmer qu'aucune désorption de l'iode sur les tamis argentés ne se produit dans le temps.

III.3.2.- Essai de longue durée avec injection d'iode échelonnées dans le temps -

Les conditions expérimentales étaient les suivantes :

- Température du gaz vecteur : 550 ° C
- Composition du piège : 5 couches de 1 cm de tamis
- Vitesse de passage : 60 cm.s⁻¹
- Concentration en iode lors de chaque injection : 9 générations de 18,8 mg d'iode à la concentration de 18 mg.m⁻³

- 1 injection de 380 mg à 4365 mg.m⁻³
- Durée des injections : 30 mn pour les 9 premières 5 mn pour la 10ème
 - Quantité totale d'iode injecté : 549 mg d'iode 127 marqué à l'iode 131
 - Durée totale de l'essai : 646 heures

Comme dans l'essai précédent, un piège charbon froid était placé en aval et l'activité des deux pièges était enregistrée.

Après les neuf premières générations, aucune activité décelable n'était enregistrée sur le détecteur aval. Etant donné la sensibilité de ce détecteur, on peut affirmer que l'efficacité des 5 cm était supérieure à 10³.

Au cours de la dixième injection (avec une concentration 120 fois supérieure à celle des injections précédentes), un passage d'iode a pu être décelé par le détecteur aval. Un comptage sur les pots de charbon froid et sur les pots contenant le tamis a permis de définir l'efficacité après la dixième injection :

$$e = 3,2.10^2$$

III.4. - Utilisation du tamis argenté pour le piégeage de l'iode dans une boucle en pile -

Le tamis argenté était utilisé dans les conditions suivantes :

- Gaz vecteur : Hélium
- Température : 450 ° C
- Pression : 40 bars
- Vitesse de passage : 40 cm/s
- Nature de l'iode : Produit de fission

Le piège était constitué par deux couches de tamis argenté maintenues par des plaques d'acier inoxydable fritté.

Une partie importante de l'iode était retrouvée sur le premier fritté. L'efficacité du tamis argenté était légèrement inférieure à 100.

IV - C O N C L U S I O N S -

Les tamis moléculaires argentés constituent un excellent matériau. Néanmoins c'est le seul matériau adapté à l'heure actuelle, au piégeage dans les boucles HTR. Les quantités utilisées étant faibles le prix du tamis est négligeable devant le coût des expériences.

B I B L I O G R A P H I E

[1] - I.N 1224

A highly efficient inorganic for airborne
iodine Species -

W.J. MAECK - D T. PENCE - J.M. KELLER -

[2] - K.F.K. 1065

Trapping of fission product iodine with Silver
impregnated molecular Sieves -

J.G. WILHELEM -

BOUCLE EXPERIMENTALE

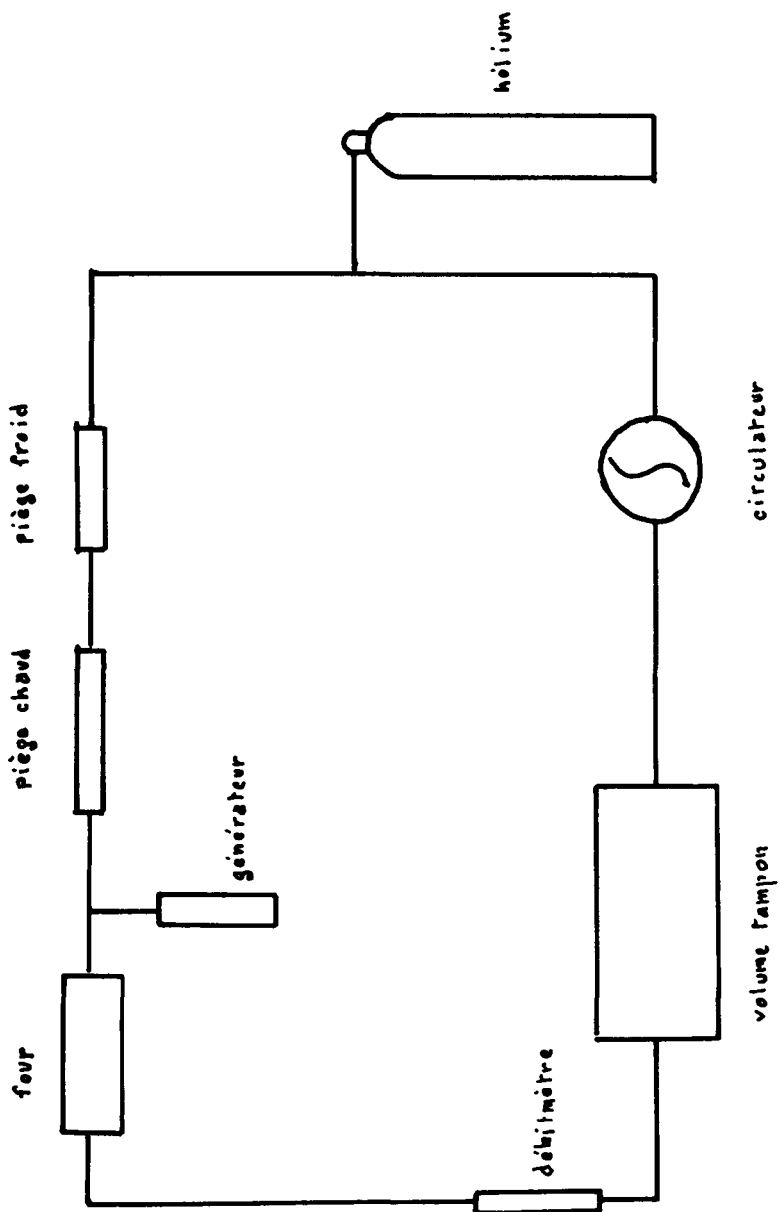
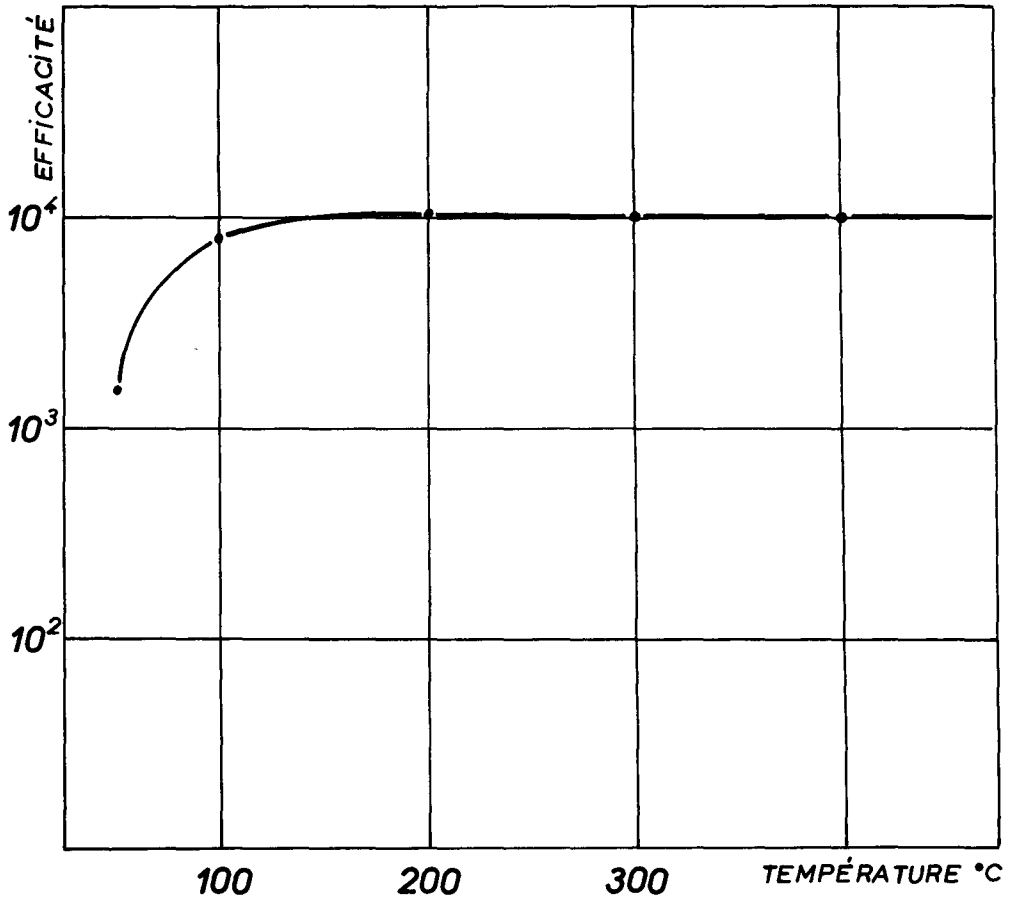


FIG. 1

Tamis moléculaires 13 X argentés



conditionnés à 400°C
gaz vecteur: Hélium
concentration en Iode 127: 20 mg.m⁻³
vitesse: 70 cm.s⁻¹

fig.2

Tamis moléculaires 13 X argentés

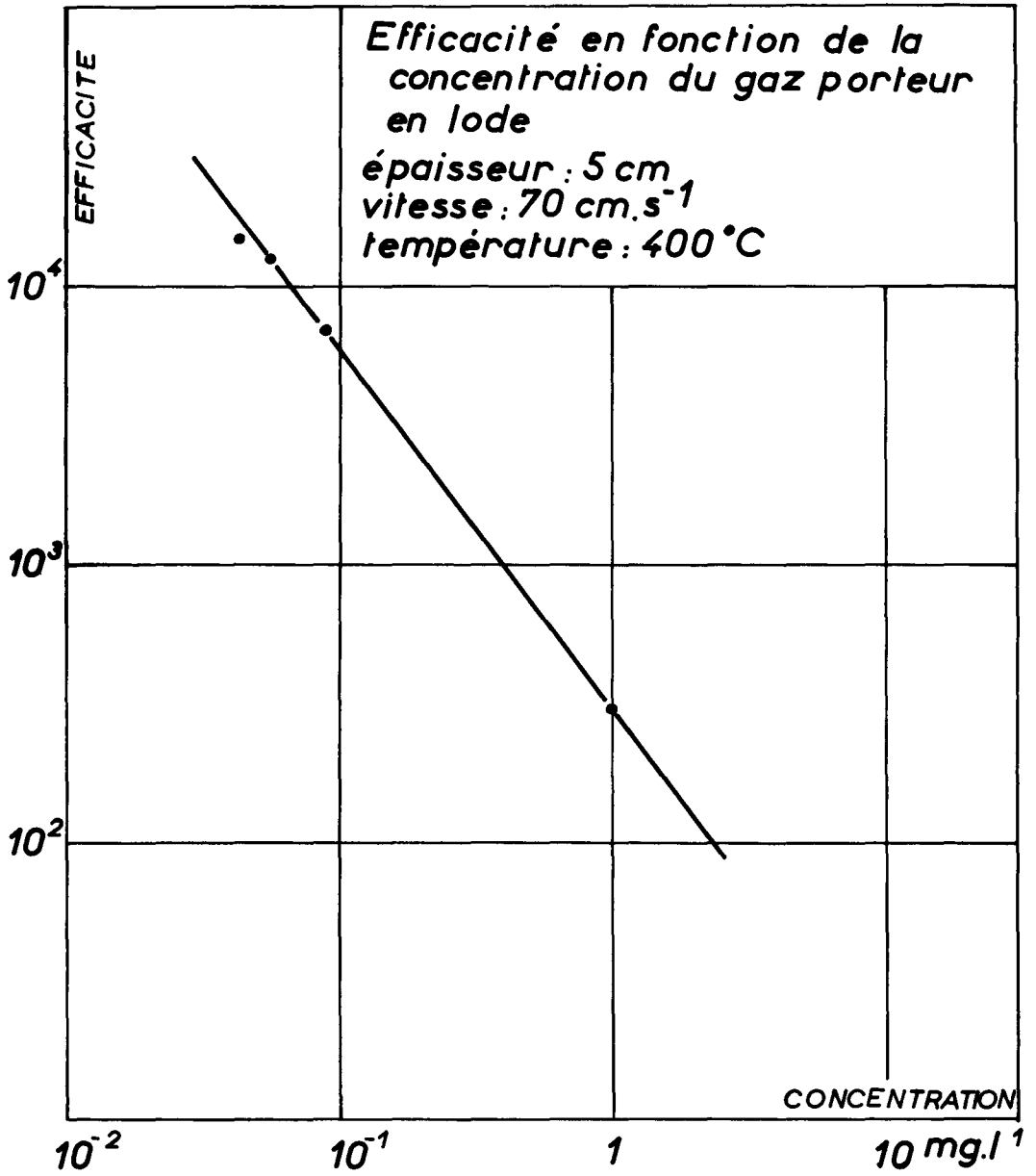


fig.3

PRÜFUNG VON JODFILTERANLAGEN

J.G. Wilhelm, H.G. Dillmann und K. Gerlach

Gesellschaft für Kernforschung
Karlsruhe - B.R. DEUTSCHLAND

KURZFASSUNG. Das in der BRD praktizierte Verfahren zur Prüfung von Jodfiltern für kerntechnische Anlagen besteht aus der Chargen-Prüfung des Sorptionsmaterials unter Standard- und simulierten ungünstigsten Störfallbedingungen und der Vor-Ort-Prüfung der eingebauten Jodfilteranlage. Ausserdem wird in geeigneten Zeitabständen Sorptionsmaterial aus sogenannten Kontrollfiltern untersucht, die im Bypass zum Sorptionsteil der Jodfilter angeordnet sind. Die angewandten Prüfverfahren und Prüfapparaturen werden im einzelnen beschrieben und diskutiert.

Zum zukünftigen Umfang der Filterprüfung werden aufgrund der gewonnenen Erfahrungen Vorschläge gemacht, die als Diskussionsgrundlage für ein einheitliches Prüfverfahren dienen sollen.

SUMMARY. THE TESTING OF IODINE FILTER SYSTEMS. The method used in the Federal Republic of Germany for testing iodine filters for nuclear plants consists of batch testing the sorption material under normal and simulated incident conditions, and of in situ testing the filters after installation. In addition to this, sorption material from test filters, which are situated in a by-pass line to the filter's sorption section, are examined at appropriate intervals. The methods and equipment used in testing are described and discussed in detail. Based on the experience obtained, proposals are made concerning the extent to which filter testing will be carried out in the future. They are intended to form the background of discussions on a uniform method of testing.

RESUME. ESSAI DE DISPOSITIFS DE FILTRATION D'IODE. La méthode utilisée en RFA pour essayer des filtres à iode destinés aux installations nucléaires consiste à essayer des charges de la substance sorbante dans des conditions normales et dans des conditions simulées d'accident et à examiner in situ le dispositif de filtration d'iode. En outre, à intervalles de temps appropriés, on contrôle le matériau sorbant de filtres dits de contrôle, placés en dérivation à la partie sorbante des filtres à iode. On décrit et discute cas par cas des méthodes et appareillages de contrôle utilisés.

Les résultats ainsi obtenus permettent de formuler des propositions sur l'ampleur future des essais de filtres, qui serviront ensuite de base de discussion pour la mise au point d'une méthode de contrôle uniforme.

1. Art und Umfang der Prüfungen

Die Inbetriebnahme- und Wiederholungsprüfungen von Jodfiltern sollen die Abscheideleistung gegenüber Spaltjod nachweisen. Auf Anforderung der Aufsichtsbehörde oder anderer Auftraggeber werden z. Z. folgende Prüfungen durchgeführt:

- Vor der Inbetriebnahme werden Proben der Originalcharge der im Jodfilter eingesetzten, ungebrauchten Aktivkohle im Labor unter Einstellung der ungünstigsten zu erwartenden Betriebsbedingungen in Hinsicht auf Verweilzeit, relative Luftfeuchte, Temperatur, Druck und Beladung geprüft. Die Tiefe des Testbettes entspricht der des Jodfilters. Als Prüfmittel wird radioaktiv markiertes Methyljodid, u. U. auch elementares Jod, eingesetzt.
- Vor der Inbetriebnahme von Jodfilteranlagen, die während oder nach Störfällen zur Reinigung der Abluft eines Kernkraftwerkes dienen, werden außerdem Vor Ort-Prüfungen durchgeführt, die in erster Linie zur Feststellung mechanischer Lecks bestimmt sind. Als Prüfmittel wird ebenfalls radioaktiv markiertes Methyljodid oder elementares Jod eingesetzt. Die Vor Ort-Prüfungen werden unter normalen Betriebsbedingungen der Jodfilteranlagen durchgeführt. Zum Teil werden auch Anlagenabluftfilter, die nur bei Normalbetrieb benutzt werden, einer Vor Ort-Prüfung unterzogen (1).

Im Abstand von einem oder mehreren Jahren bzw. nach dem Wechsel der Aktivkohlefilterzellen oder einem Austausch der Aktivkohle sind Vor Ort-Wiederholungsprüfungen vorgesehen.

- Nach bestimmten Betriebszeiten wird die Abscheideleistung der Jodfilter durch Laboruntersuchung von Aktivkohleproben aus Kontrollfiltern überprüft. Diese Untersuchung ist weniger aufwendig als eine Vor Ort-Prüfung, kann aber nur dann durchgeführt werden, wenn die Aktivkohle in den Kontrollfiltern und den Jodfiltern aus der gleichen Charge stammt und über den gleichen Zeitraum mit der gleichen Abluft beaufschlagt worden ist. Es werden dieselben Prüfbedingungen angewendet wie bei der eingangs angegebenen Laborprüfung der ungebrauchten Aktiv-

kohle. Mechanische Lecks der Jodfilter werden durch diese Laborprüfung nicht erfaßt.

2. Prüfmethode zur Bestimmung der Jod-Abscheideleistung von Aktivkohle im Laborversuch

2.1. Prüfbedingungen der Laborversuche

Bevor auf Einzelheiten der Prüfmethode und der Apparaturen eingegangen wird, erscheint es notwendig, die Anforderungen zu diskutieren, die an Jodfilter gestellt werden und bei der Prüfung der Aktivkohle zu berücksichtigen sind.

In der BRD werden z. Z. Jodfilter in Abluftanlagen eingesetzt, die unter einem Druck nahe dem Atmosphärendruck arbeiten. Filteranlagen, die der Atmosphäre im Sicherheitsbehälter bei einem GaU unmittelbar ausgesetzt werden und die dort vorhandene Aktivität durch Umluftbetrieb schnell abbauen bzw. im Abluftbetrieb mit extrem hohen Dekontaminationsfaktoren reduzieren müssen, werden bisher nicht gebaut. Bei den meisten Abluftfilteranlagen muß trotzdem mit dem Auftreten von Abluft sehr hoher relativer Feuchte gerechnet werden, zumal Filteranlagen älterer Bauweise gewöhnlich nicht mit Einrichtungen zur Reduzierung der relativen Luftfeuchte durch Erhitzung oder Absenkung der Taupunkttemperatur, z. B. durch Auskondensation von Wasser oder durch Trocknung, eingerichtet sind. Besondere sicherheitstechnische Bedeutung kommt den Abluftfilteranlagen zu, die während oder nach Reaktorstörfällen eingesetzt werden. Dies sind z. B. die Ringraum- bzw. Ringspaltabluftfilteranlagen wassergekühlter Reaktoren, die zur Aufrechterhaltung eines Unterdruckes im Ringraum zwischen dem Reaktorsicherheitsbehälter und einer diesen umschließenden Betonkuppel, Blechhaut oder des Reaktorgebäudes eingesetzt werden.

Setzt man nach einem Kühlmittelverlust-Unfall ein einwandfreies Funktionieren (geringe Leckrate) des inneren, druckaufnehmenden Sicherheitsbehälters sowie kein Auftreten zusätzlicher Dampfleckagen aus den im Ringraum vorhandenen

Anlageteilen voraus, können extrem hohe Luftfeuchten nur vor bzw. bei Störfallbeginn (nicht belüfteter bzw. klimatisierter Ringraum) und gegen Ende des Abkühlungsprozesses des Sicherheitsbehälters vorliegen, da die relative Luftfeuchte im Ringraum durch die schnelle Erwärmung der Sicherheitsbehälterwandung und damit des im Ringraum befindlichen Luftvolumens abgesenkt wird. Die für die Aktivkohle des Ringraum-Abluftfilters kritischste Kombination von relativer Luftfeuchte und Temperatur des Trägergases wäre durch 100 % relative Feuchte (r. F.) und die dazugehörige Taupunkttemperatur bzw. die dem Taupunkt am nächsten liegende, im Ringraum zu erwartende Temperatur und die entsprechende relative Luftfeuchte gegeben.

Die meisten Untersuchungen der Abscheideleistung einzelner Aktivkohlen werden in unserem Labor daher bei hoher relativer Feuchte der als Trägergas für das Prüfmittel benutzten Luft durchgeführt. Ueberwiegend wird bei relativen Luftfeuchten von 98 - 100 % gearbeitet. Da an den von uns bisher untersuchten imprägnierten Aktivkohlen bei gleichzeitigem Auftreten von extrem hoher Luftfeuchte und erhöhter Temperatur höhere Abscheidegrade gemessen wurden als bei extrem hoher Luftfeuchte und Raumtemperatur, werden die Prüfungen zur Ermittlung des Abscheidegrades üblicherweise bei Raumtemperatur vorgenommen. Die Ergebnisse der Laborprüfung der Aktivkohle bei 98 - 100 % r. F. sind nur dann mit ausreichender Sicherheit übertragbar, wenn Taupunktunterschreitungen in der zu reinigenden Abluft und Kondensateinspeicherung in der Aktivkohle entweder unter den zu erwartenden Betriebsbedingungen nicht möglich sind oder durch konstruktive Maßnahmen eingeschränkt werden. Da dies nicht immer der Fall ist, zeigte sich bei der Prüfung von Jodfilteranlagen, die durch Kondensateinspeicherung infolge Abkühlung der Abluft auf dem Weg zur Filteranlage und Taupunktunterschreitung in der Aktivkohle unbrauchbar geworden waren, obwohl durch das dem Aktivkohlefilter vorgeschaltete Schwebstofffilter der Klasse S während der relativ kurzen Betriebsperioden, in denen Taupunktunterschreitungen möglich

waren, Nebelabscheidung erfolgte.

2.2. Prüfmittelherstellung

Die Abb. 1 und 2 zeigen schematisch die Apparaturen, in denen radioaktiv markiertes Methyljodid bzw. elementares Jod für die Laborprüfung von Jod-Sorptionsmaterial hergestellt wird.

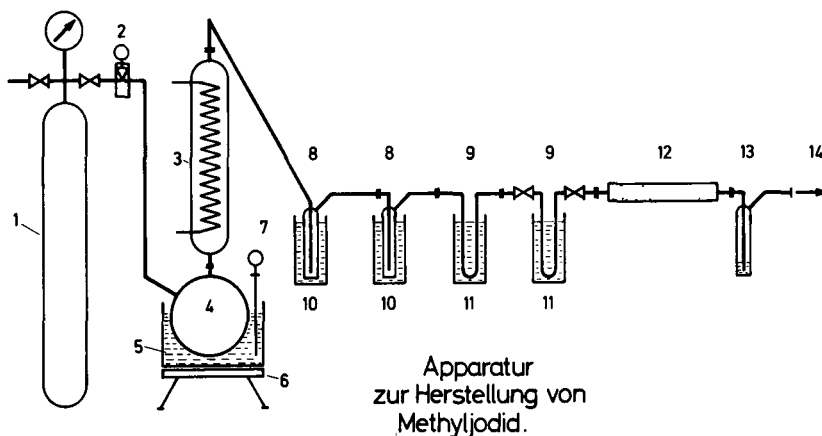


Abb. 1

- | | |
|-------------------------------------|---------------------------------------|
| 1. He-Druckflasche | 8. Wasserfallen |
| 2. Durchflußmesser | 9. U-Rohre |
| 3. Rückflußkühler | 10. Dewar mit CO ₂ /Aceton |
| 4. Reaktionsgefäß | 11. Dewar mit N ₂ fl. |
| 5. Wasserbad | 12. Aktivkohle-Filter |
| 6. Heizplatte und Magnet-
rührer | 13. Blasenähler |
| 7. Thermometer | 14. Zum Abzug |

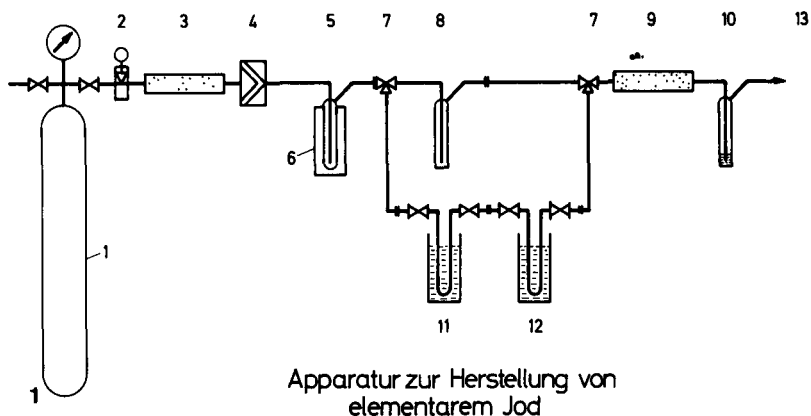
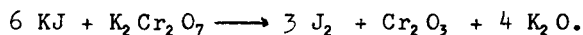


Abb. 2

- | | |
|-------------------------------|----------------------------------|
| 1. Druckflasche, synth. Luft | 8. Wasserfalle |
| 2. Durchflußmesser | 9. Aktivkohle-Filter |
| 3. Trockenmittel | 10. Blasenähler |
| 4. Schwebstofffilter Klasse S | 11. Dewar mit Eis/Kochsalz |
| 5. Reaktionsgefäß | 12. Dewar mit N ₂ fl. |
| 6. Ofen | 13. Zum Abzug |
| 7. Dreiweghahn | |

Es werden folgende Reaktionen angewandt:



Als Träger wird für beide Darstellungsmethoden $K^{127}J$ eingesetzt, die ^{131}J -Aktivität wird in Form von $K^{131}J$ in wässriger Lösung in das Reaktionsgefäß eingebracht. Da es sich um übliche präparative Darstellungsmethoden handelt, werden an dieser Stelle keine weiteren Einzelheiten angegeben. Es sei lediglich darauf hingewiesen, daß die Herstellung aus-

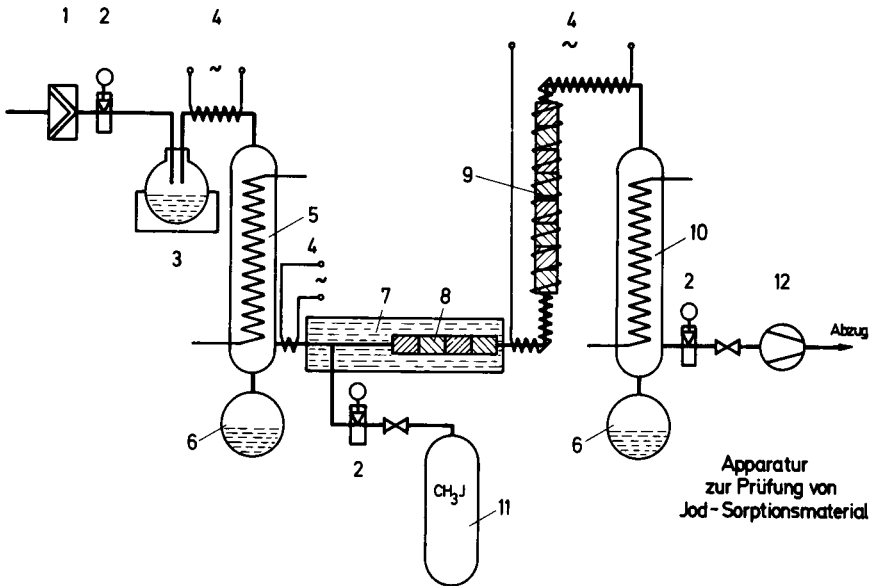
reichend reiner Endprodukte ein Arbeiten in vollständig fettfreien Glasapparaturen und eine zusätzliche Destillation der gewünschten Endprodukte voraussetzt. Wurde elementares Jod hergestellt, sollte unmittelbar vor dem Einleiten in die Prüfapparatur die in dem Probengefäß immer in geringem Anteil auftretende "leichtflüchtige Fraktion" durch kurzes Abblasen entfernt werden.

2.3. Prüfapparaturen

In Abb. 3 ist das Fließbild einer bei der Gesellschaft für Kernforschung entwickelten Apparatur zur Prüfung der Abscheideleistung von Jod-Sorptionsmaterialien unter Normaldruck wiedergegeben. Diese Feuchtluftapparatur erlaubt Messungen im Bereich von 5 - 100 % r. F. bei Temperaturen des Trägergases (gewöhnlich Luft) zwischen 10 und 80°C und einem Durchsatz bis zu 1,8 m³/h.

Das Jod-Sorptionsmaterial wird in Form von Testbetten eingebracht, die einen Durchmesser von 2,5 cm haben. Es können mehrere Testbetten hintereinander bis zu einer Bett-Tiefe von insgesamt 50 cm eingesetzt werden. Das pro Testbett benötigte Jod-Sorptionsmaterial wird eingewogen, nachdem eine genaue Bestimmung des Schüttgewichtes durchgeführt wurde. Dadurch wirken sich Schwankungen des Durchmessers der Glasrohre, die zur Testbett-Herstellung benutzt werden, nicht auf die genau einzuhaltende Verweilzeit des Trägergases im Testbett aus. Durch Einrütteln des Jod-Sorptionsmaterials mit einem Stampfvolumeter werden reproduzierbare Packungsdichten erreicht und Lecks vermieden. Die Testbetten werden durch wenig adsorbierende Netze und Federn aus Edelstahl im Glasrohr festgehalten und nach dem Einrütteln durch Ausaugen mit einem Staubsauger vom Abrieb befreit.

Die Funktionsweise der in Abb. 3 wiedergegebenen Feuchtluftapparatur sei kurz beschrieben. Durch ein Schwebstofffilter der Klasse S [1] wird Laborluft angesaugt. Mit einem Durchflußmesser [2] wird der Volumenstrom bestimmt.



Apparatur zur Prüfung von Jod-Sorptionsmaterial

Abb. 3

- | | |
|-------------------------------|---|
| 1. Schwebstofffilter Klasse S | 8. Testbetten mit Jod-Sorptionsmaterial |
| 2. Durchflußmesser | 9. Sicherheitsbetten mit Jod-Sorptionsmaterial, geheizt |
| 3. Verdampfer | 10. Entfeuchter |
| 4. Heizstrecke | 11. Druckflasche mit CH_3J |
| 5. Taupunktkühler | 12. Pumpe |
| 6. Kondensatbehälter | |
| 7. Badthermostat | |

Anschließend wird der Luft Dampf aus einem Dampferzeuger [3] zugemischt. Das Luft-Wasserdampfgemisch wird zur Vermeidung von Kondensation über ein beheiztes Rohr [4] in einen sogenannten Taupunktkühler [5] geleitet, der doppelwandig ausgeführt ist und eine sehr eng gewickelte Kühleisenschlange besitzt. Die nach außen isolierte Doppelwandung und die Kühleisenschlange werden vom Kühlmittel aus einem Kryomat (nicht eingezeichnet) im Gegenstrom zur Feuchtluft durchströmt. Der Kryomat reguliert die Temperatur des Kühlmittels mit einer Genauigkeit von $\pm 0,03^\circ\text{C}$. Die Temperatur der Feuchtluft wird im Taupunktkühler auf den Sollwert

eingestellt und innerhalb eines Schwankungsbereiches von $\pm 0,1^{\circ}\text{C}$ konstant gehalten. Die überschüssige Luftfeuchte kondensiert im Taupunktkühler und wird in einem Rundkolben [6] aufgefangen, gemessen und in bestimmten Zeitabständen daraus abgezogen. Die Feuchtluft mit nun genau eingestelltem Taupunkt wird durch ein schwach beheiztes, doppelwandiges Rohr aus dem Kühler abgezogen und beim Durchgang durch ein anschließendes, langes Glasrohr [7], das durch einen Bad-Thermostaten temperiert wird, auf eine vorgegebene Temperatur gebracht. Der Bad-Thermostat wird innerhalb einer Schwankungsbreite von $\pm 0,03^{\circ}\text{C}$ auf dem vorgegebenen Sollwert gefahren. Die relative Feuchte der Luft (oder eines anderen, beliebigen Trägergasgemisches) ergibt sich aus der Differenz zwischen der im Taupunktkühler eingestellten Taupunkttemperatur und der im Thermostatenrohr [7] eingestellten Feuchtlufttemperatur. Sind z. B. Feuchtlufttemperatur und Taupunkttemperatur gleich, beträgt die relative Luftfeuchte 100 %. Diese Betrachtung setzt voraus, daß zwischen Taupunktkühler und Testbett kein Druckabfall auftritt, der gleichzeitig zu einer Reduzierung des Wasserdampfdruckes und damit einer Herabsetzung der relativen Luftfeuchte führen würde. Um diesen Effekt auszugleichen, muß die Taupunkttemperatur ggf. etwas angehoben werden.

Zur Abscheidung eventuell noch vorhandener Tröpfchenaerosole aus dem Kondensationsprozeß im Taupunktkühler wird in das Thermostatenrohr eine Filterstrecke aus Glaswatte eingesetzt (nicht eingezeichnet). Diese wird vorwiegend bei sehr hohen Luftfeuchten benötigt, da anderenfalls die in sehr geringen Mengen auftretenden Tröpfchenaerosole durch die Nacherhitzung der feuchten Luft zwischen Taupunktkühler und Testbetten [8] verdampft werden. Das zu prüfende Jod-Sorptionsmaterial befindet sich in den Testbetten.

Als Prüfmittel benutztes gasförmiges $\text{CH}_3^{127}\text{J} + \text{CH}_3^{131}\text{J}$ -Gemisch wird in einer mit gereinigter und getrockneter Preßluft aufgefüllten Druckflasche aus Edelstahl [11] vorrätig gehalten und über einen Durchflußmesser [2] der

Feuchtluft so weit vor dem Testbett zugemischt, daß eine gleichmäßige Konzentration über den Rohrquerschnitt erreicht wird. Elementares, radioaktives Jod als Prüfmittel wird unmittelbar aus dem bei der Darstellung benutzten U-Rohr in die Feuchtluft eingespeist. Die Konzentration des Jodes wird über die Temperatur des U-Rohres und den Volumenstrom des Trägergases durch das U-Rohr eingestellt. Durch Messung der Dosisleistung des im U-Rohr vorhandenen Jodes wird die Abnahme der ^{131}J -Aktivität im U-Rohr überwacht und daraus die Konzentration in der Feuchtluft fortlaufend berechnet.

Nach dem Passieren der Testbetten wird das Feuchtluft-Prüfmittelgemisch durch eine Vorheizstrecke und geheizte Sicherheitsbetten [9] gesaugt, die aus einem Jod-Sorptionsmaterial bekannt hoher Abscheideleistung bestehen. Die Vorheizung wird so bemessen, daß die relative Luftfeuchte bei Erreichen der Sicherheitsbetten unter 30 % gesunken ist. Der Anteil an Prüfmittel, der von den Testbetten nicht zurückgehalten wurde, wird erfahrungsgemäß bereits durch einige von mindestens acht aufeinanderfolgenden Sicherheitsbetten abgeschieden. Durch Ausmessung der Aktivität in den Sicherheitsbetten kann nach jedem Versuch die Vollständigkeit der Prüfmittelabscheidung überprüft werden. Die Abluft der Sicherheitsbetten wird entfeuchtet [10], gemessen und über eine Membranpumpe [12] in die Abluft des Isotopenabzuges, in dem sich die Apparatur befindet, abgegeben.

Der Volumenstrom \dot{V}_{TB} der Feuchtluft durch die Testbetten bestimmt die Verweilzeit. Da eine Messung von \dot{V}_{TB} bei extrem hohen relativen Luftfeuchten schwierig durchzuführen ist und die verschiedenen möglichen Betriebsbedingungen eine umständliche Eichung des Durchflußmessers bedingen würden, wird der Volumenstrom \dot{V}_{L} der angesaugten Laborluft (Meßstelle hinter dem Schwebstofffilter [1], der einem bestimmten \dot{V}_{TB} entspricht, nach (I) berechnet:

$$\dot{V}_L = \frac{\dot{V}_{TB} \cdot T_L \cdot \left(P_L - \frac{\varphi_{TB} \cdot P_{S,TB}}{100} \right)}{T_B \cdot \left(P_L - \frac{\varphi_L \cdot P_{S,L}}{100} \right)} ; \quad (I)$$

T_L = Temperatur der Laborluft, in °K

T_B = Temperatur der Feuchtluft im Testbett, in °K

P_L = Druck der Laborluft, in mb

φ_{TB} = relative Luftfeuchte im Testbett, in %

φ_L = relative Feuchte der Laborluft, in %

$P_{S,TB}$ = Sättigungsdruck des Wasserdampfes bei T_B , in mb

$P_{S,L}$ = Sättigungsdruck des Wasserdampfes bei T_L , in mb

Die Temperatur wird an allen wichtigen Stellen der Apparatur (z. B. im Taupunktkühler und an den Test- und Sicherheitsbetten) fortlaufend gemessen und registriert; sämtliche Heizstrecken werden über Kontaktthermometer und Thyristorregler gesteuert. Die relative Luftfeuchte wird durch psychrometrische Messung (diskontinuierlich), durch Messung der Taupunkt- und Testbett-Temperatur (kontinuierlich) und, bei Versuchen mit 98 - 100 % r. F., durch die Taupunktspiegelmethode (kontinuierlich) kontrolliert. Bei der Anwendung der zuletzt genannten Methode werden an der Wandung des Thermostatenrohres [7] kleine Beschlaginseln von Wasserdampfkondensat erzeugt, die über die Versuchsdauer auf gleicher Größe gehalten werden. Im Handel erhältliche Feuchte-meßgeräte bewährten sich bisher nur zum Anzeigen von kurzfristigen Veränderungen der relativen Luftfeuchte, jedoch nicht zur direkten Messung, da ausreichende Linearität der Anzeige im Bereich der einzustellenden Luftfeuchten und genügende Konstanz der Messung über längere Betriebsdauer nicht gegeben waren. Die Regelung der Feuchtluftapparaturen arbeitet auf ca. + 1 % r. F. genau, die Apparaturen können

ohne Beaufsichtigung über Nacht betrieben werden und lassen daher Dauerversuche über mehrere Tage ohne zusätzlichen Personalaufwand zu.

Es ist entscheidend für die Reproduzierbarkeit von Abscheidungsuntersuchungen, daß sich das Jod-Sorptionsmaterial im Adsorptions-Desorptionsgleichgewicht mit der anströmenden Luftfeuchte befindet.

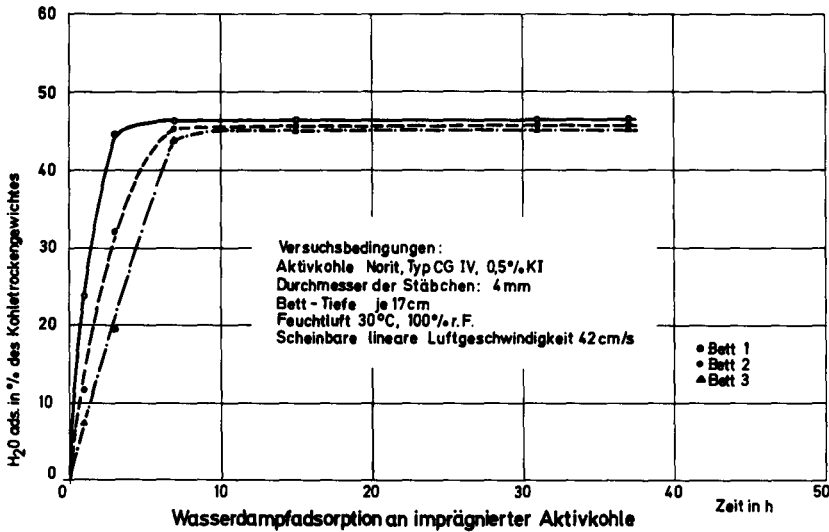


Abb. 4

Abb. 4 zeigt die Abhängigkeit der an imprägnierter Aktivkohle adsorbierten Wassermenge von der Anströmzeit und Bett-Tiefe. Da die meisten Untersuchungen für Jodfilter mit einer Bett-Tiefe von 50 cm durchgeführt werden, wurde eine auf der sicheren Seite liegende Vorbefeuchtungszeit von ≥ 20 h festgelegt. Infolge des Druckabfalls über die Testbett-Tiefe tritt bei isothermen Versuchsbedingungen ein Abfall der relativen Luftfeuchte mit der Testbett-Tiefe auf. Dieser Effekt führt bei größeren Bett-Tiefen zur Verringerung der Wasserdampfadsorption in aufeinanderfolgenden Teilbetten und ist auf Abb. 4 deutlich zu erkennen.

Abb. 5 zeigt den Aufbau einer Apparatur, die eine Prüfung von Jod-Sorptionsmaterialien in Dampf-Luftgemischen unter erhöhtem Druck und bei hoher Temperatur erlaubt. Unter diesen Bedingungen ist die Regelung und Einstellung von Temperatur, Druck und relativer Feuchte mit verringerter Genauigkeit möglich, so daß größere Schwankungen der Versuchsergebnisse auftreten, als bei Benutzung der in Abb. 3 wiedergegebenen Apparatur beobachtet wurden. Die Messung von Abscheidegraden bei erhöhtem Druck und höherer Temperatur eignet sich deshalb nach Meinung des Verfassers nicht als Standardmethode zur Bestimmung der Abscheideleistung von Jod-Sorptionsmaterialien.

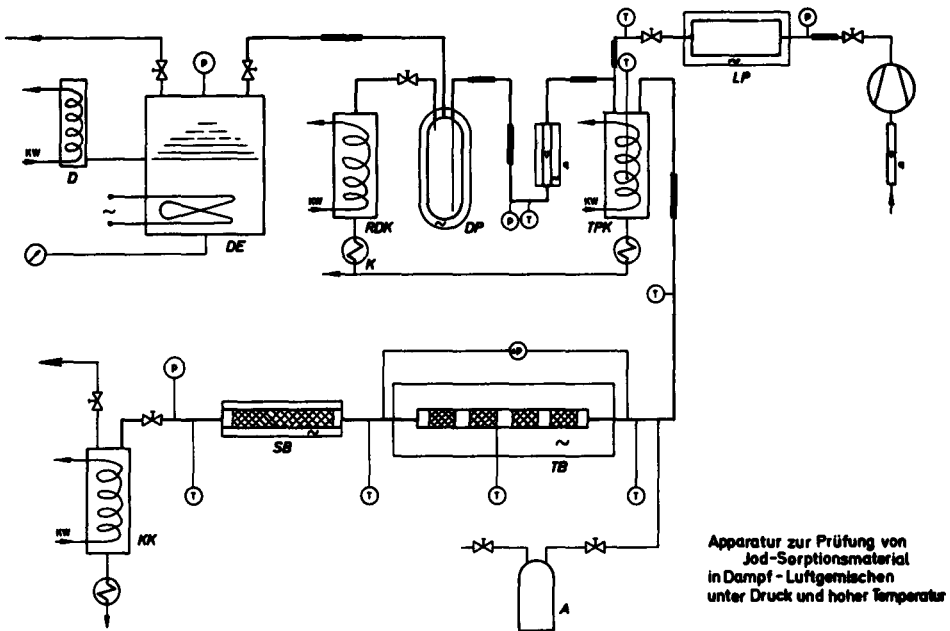


Abb. 5

D	Destille	KK	Kondensatkühler
DE	Dampferzeuger	SB	Sicherheitsbett
RDK	Rückdampfkühler	TB	Testbett
DP	Dampfpufler	A	Aktivitätsaufgabe
TPK	Taupunktkühler	K	Kondensatabscheider
LP	Luftpuffer	KW	Kühlwasser bzw. Kühlmittel

2.4. Auswertung der Abscheidungsuntersuchungen

Zur Versuchsauswertung werden die Test- und Sicherheitsbetten demontiert, das Jod-Sorptionsmaterial jedes Einzelbettes wird in ein gesondertes Plastikschildchen überführt und sorgfältig durchmischt, damit eine gleichmäßige Verteilung der Aktivität in der Probe gewährleistet ist. Durch Messung des Photopeaks der 0,36 MeV γ -Linie mittels NaJ(Tl)-Szintillationsdetektor und Vielkanalanalysator wird die Aktivität jedes Einzelbettes bestimmt. Die Meßergebnisse werden mit einem Computerprogramm mit Geometriefaktor, Zerfallszeit und Untergrundzählrate korrigiert und sowohl auf Einzelabscheidegrad jedes Testbettes (differentieller Abscheidegrad) als auch Gesamtabseidegrad in Abhängigkeit von der Bett-Tiefe (integraler Abscheidegrad) ausgewertet. Die Abscheidegrade ergeben sich auf einfachste Weise aus dem Verhältnis der im betrachteten Testbett abgeschiedenen Aktivität zur in den gesamten Test- und Sicherheitsbetten abgeschiedenen Aktivität. Diese Auswertung liefert mehr Informationen und ist wesentlich genauer als eine Bestimmung des Abscheidegrades an einem nicht unterteilten Testbett durch Messung der Roh- und Reinluftkonzentration mit Hilfe von Probensammlern, da bei dem zuletzt genannten Verfahren die Durchflussschwankungen des Roh- und Reinluftteilstromes in das Meßergebnis eingehen. Mit dem Computerprogramm werden außerdem die differentiellen und integralen Durchlaßgrade sowie die Leistungsindices errechnet. Für jeden Abscheidungsversuch wird ein Abscheidungsprofil (log Durchlaßgrad gegen Bett-Tiefe) gezeichnet. Lecks in den Testbetten, Fehler in der Versuchsdurchführung und Verunreinigungen des Prüfmediums können meistens unmittelbar aus den differentiellen Abscheidegraden und dem Abscheidungsprofil erkannt werden.

Für die Bestimmung des Abscheidegrades einer Probe des Jod-Sorptionsmaterials werden jeweils zwei Einzelversuche durchgeführt. Die Durchlaßgrade der Einzelversuche werden gemittelt. Die prozentualen Fehler der Einzelwerte gegenüber dem Mittelwert hängen von dem insgesamt erreichten Abscheide-

grad η ab. Bei einem Abscheidegrad zwischen 99 und 99,9 % wird im allgemeinen eine Abweichung der Einzelwerte der Durchlaßgrade ($100-\eta$) vom Mittelwert in Höhe von ± 30 % des Mittelwertes nicht überschritten. Bei Abweichungen > 50 % werden die Abscheidungsversuche wiederholt.

Außer der Abscheideleistung werden in jedem Versuch die Wasseraufnahme des Jod-Sorptionsmaterials (in % vom Trockengewicht), die Beladung mit Prüfmittel (in μg Prüfmittel pro g Aktivkohle) und der Druckabfall über die gesamte Testbett-Tiefe (bei einer scheinbaren linearen Luftgeschwindigkeit von 25 cm/s) bestimmt und protokolliert.

3. Vor Ort-Prüfungen

Eine Vor Ort-Prüfung soll eine Aussage über die Leckdichtigkeit der Anlage, und, soweit möglich, über den Zustand des Jod-Sorptionsmaterials und den erreichbaren Abscheidegrad erlauben.

3.1. Prüfmittel

Ein ideales Prüfmittel sollte folgende Anforderungen erfüllen:

1. Kleinste Mengen des Prüfmittels sollten mit einem einfachen, hochempfindlichen Nachweisverfahren quantitativ und mit guter Reproduzierbarkeit nachgewiesen werden können.
2. Die Abscheideleistung der Jodfilter sollte durch das Prüfmittel nicht beeinträchtigt werden.
3. Das Prüfmittel sollte sich in Sammeleinrichtungen mit geringem Aufwand anreichern und dann unmittelbar messen lassen, da bei großen Filteranlagen meistens nur eine sehr geringe Konzentration des Prüfmittels in der Abluft erreicht werden kann.
4. Das Prüfmittel sollte von einwandfreien Jodfiltern unter Prüfbedingungen praktisch vollständig und für aus-

reichende Zeit zurückgehalten werden, um einen empfindlichen Lecknachweis zu erlauben.

5. Falls das Jod-Sorptionsmaterial verbraucht ist, sollte dies durch die Beaufschlagung der Filter mit Prüfmittel nachgewiesen werden können; Aussagen über den aktuellen Zustand des Jod-Sorptionsmaterials sollten aus den Ergebnissen der Vor Ort-Prüfung hervorgehen.
6. Das Prüfmittel sollte sich weitgehend wie das tatsächlich auszufilternde Jod verhalten.
7. Das Prüfmittel sollte einen niedrigen Siedepunkt haben um während der Prüfung nicht zu kondensieren; es sollte an den Oberflächen der Strukturmaterialien von Jodfilter und Zuleitung nur wenig adsorbiert werden.
8. Das Prüfmittel sollte nicht als natürliche Verunreinigung in den zur Probenahme benutzten Materialien auftreten, wie z. B. inaktives Jod.
9. Das Prüfmittel sollte mit geringem Aufwand gehandhabt werden können und billig sein.
10. Durch das Prüfmittel sollte keine nennenswerte Belastung des Personals und der Umgebung der Reaktoranlage hervorgerufen werden.

Von keinem bisher bekannten Prüfmittel werden alle Anforderungen erfüllt, jedoch kommt radioaktiv markiertes Methyljodid einem idealen Prüfmittel relativ nahe. Die unter 1 - 8 genannten Anforderungen werden vollständig, 9 nicht und 10 nur bei Beachtung entsprechender Vorsichtsmaßnahmen erfüllt. In Fällen, in denen wegen der Filterauslegung die unter 4 genannte Anforderung durch radioaktiv markiertes Methyljodid nicht erfüllt wird, kann elementares, ebenfalls radioaktiv markiertes Jod als Prüfmittel verwendet werden. Jedoch werden dann zusätzlich die unter 5 und 7 genannten Anforderungen nicht oder nur teilweise erfüllt.

Ein echter Nachteil ist durch die Radioaktivität des Methyljodids oder Jodes gegeben. Durch eine geeignete Handhabungs- und Prüftechnik kann das Sicherheitsrisiko vollständig beherrscht werden (2).

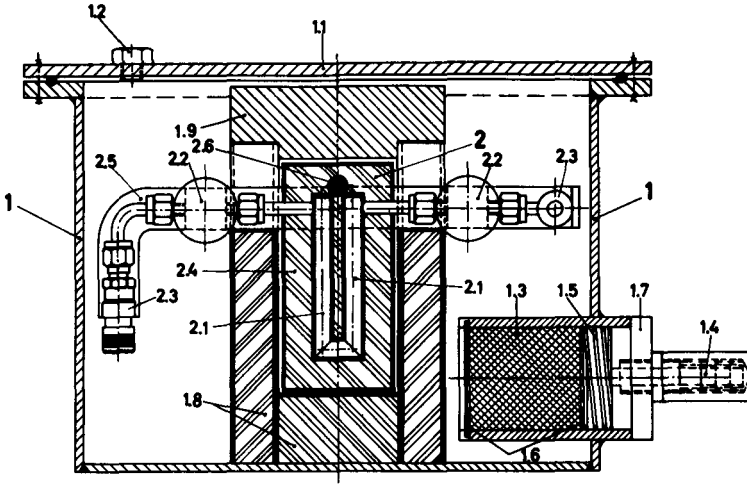
3.2. Transport des radioaktiven Prüfmittels

Die Abb. 6 zeigt einen von uns benutzten Probenbehälter und den zugehörigen Transportbehälter, in dem der Transport der Radioaktivität praktisch problemlos durchgeführt werden kann. Der Probenbehälter, der im Prinzip aus einem bleiabschirmten U-Rohr aus Edelstahl besteht, wird als zweites U-Rohr der in Abb. 1 gezeigten Apparatur bei der Herstellung des radioaktiv markierten Methyljodids ($\text{CH}_3^{131}\text{J} + \text{CH}_3^{127}\text{J}$) benutzt. Durch den letzten Destillationsschritt wird das Prüfmittel bereits in dem abgeschirmten Probenbehälter abgeschieden, ein Risiko beim Umfüllen und zusätzliche Strahlenbelastung wird dadurch vermieden. Der Transportbehälter wird durch ein eingebautes Jodfilter (1.3.7 in Abb. 6) entlüftet, es kann daher kein Druck im Innern entstehen. Vor dem Öffnen wird der Transportbehälter über das eingebaute Aktivkohlefilter mit Luft gespült. Ist durch eine mechanische Beschädigung des Probenbehälters radioaktives Prüfmittel aus dem Probenbehälter ausgetreten, wird es durch den Spülvorgang in das Aktivkohlefilter transportiert und dort festgehalten. Das Aktivkohlefilter ist nicht abgeschirmt, darin befindliche Aktivität ist leicht nachzuweisen. Vor dem Öffnen des Transportbehälters kann daher eine Undichtigkeit des Probenbehälters bereits festgestellt und eine Kontamination der Umgebung sicher vermieden werden.

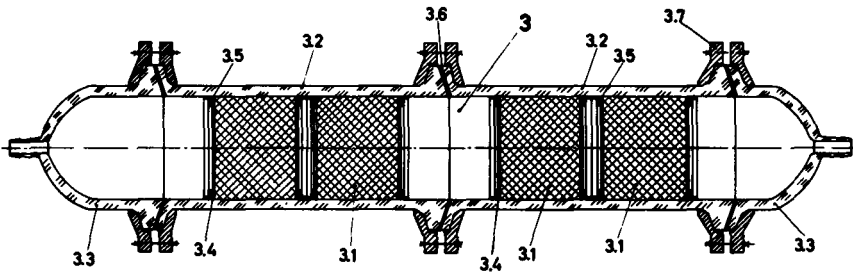
3.3. Durchführung der Vor Ort-Prüfung

Die Abb. 6 zeigt weiter einen Probensammler für Vor Ort-Prüfungen. Der Aufbau zur Vor Ort-Prüfung eines Jodfilters ist in Abb. 7 wiedergegeben. Zur Prüfung wird Prüfmittel in den Abluftkanal vor dem Filter eingespeist (möglichst mindestens 10 Rohrdurchmesser vor den beiden Rohrluft-Probensammlern). Durch Roh- und Reinluftprobensammler (Abnahme

Reinluft möglichst 10 Rohrdurchmesser hinter dem Filter) werden Proben gezogen, die Aktivkohlebetten der Probensammler werden, wie bereits beschrieben, demontiert und ausgemessen.



Prüfmittel- und Transportbehälter
für
Hauptprüfung



Probensammler

Abb. 6

1. Transportbehälter für Hauptprüfung
 - 1.1 Gasdichter Deckel
 - 1.2 Belüftung (gasdicht verschließbar)
 - 1.3 Aktivkohlefilter
 - 1.4 Absaugstutzen (gasdicht verschließbar)
 - 1.5 Druckfeder
 - 1.6 Sieb
 - 1.7 Verschlussschraube
 - 1.8 Bleiabschirmung (fest)
 - 1.9 Abschirmdeckel

2. Prüfmittelbehälter
 - 2.1 U-Rohr mit Prüfmedium
 - 2.2 Faltenbalgventil
 - 2.3 Selbstschließende, gasdichte Schnellkupplungen
 - 2.4 Abschirmbehälter mit U-Rohr
 - 2.5 Halterung für Kupplungen und Ventile
 - 2.6 Handgriff

3. Probensammler (Rohluft)
 - 3.1 Aktivkohlebett
 - 3.2 Glasrohr
 - 3.3 Endstück mit Schlaucholive
 - 3.4 Drahtnetz
 - 3.5 Feder
 - 3.6 Dichtung
 - 3.7 Spannflansch

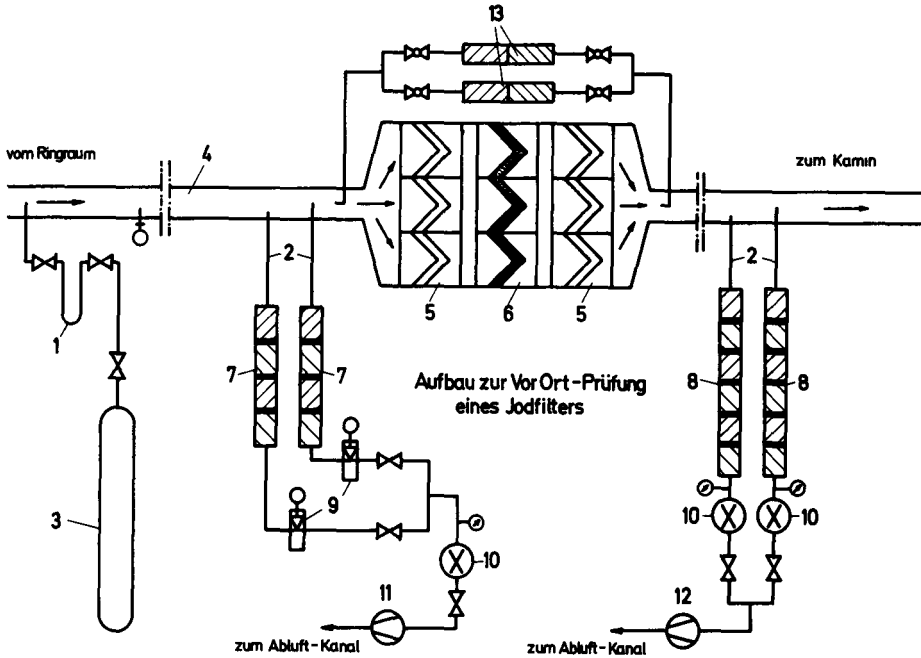


Abb. 7

- 1 U-Rohr mit Methyljodid
- 2 Entnahmerohre
- 3 Preßluftflasche
- 4 Lüftungskanal
- 5 Schwebstofffilter Klasse S
- 6 Aktivkohlefilterzellen
- 7 Rohluft-Probensammler
- 8 Reinluft-Probensammler
- 9 Durchflußmesser
- 10 Trockengasuhr
- 11 Pumpe zur Rohluftentnahme
- 12 Radialgebläse für Reinluftentnahme

3.4. Berechnung der benötigten Prüfmittelaktivität

Die zur Vor Ort-Prüfung einzusetzende Prüfmittelaktivität ist nach der Größe des nachzuweisenden mechan. Lecks festzulegen. Das kleinste nachzuweisende mechan. Leck L_{\min} , ausgedrückt in % Durchlaßgrad, wird bei unseren Messungen

meistens auf einen Wert festgelegt, der dem Quotienten

$$L_{\min} = \frac{\text{max. zulässiger Durchlaßgrad des Jodfilters}}{100}$$

entspricht.

Aus

$$A_P = \frac{V_J \cdot 100 \cdot A_B}{V_{Rn} \cdot L_{\min}} \quad (\text{II})$$

mit A_P = Aktivität des eingesetzten Prüfmittels, in Ci

A_B = Aktivität des ersten Aktivkohlebettes eines
Reinluftprobensammlers, in Ci

V_J = Volumenstrom durch das Jodfilter während der
Prüfung, in m^3/h

V_{Rn} = Teilstrom durch einen Reinluftprobensammler,
in m^3/h

läßt sich die einzusetzende Prüfmittelaktivität berechnen. Bei Benutzung eines abgeschirmten Meßplatzes dürften in einem Aktivkohlebett eines Probensammlers ohne Schwierigkeiten $1 \cdot 10^{-9}$ Ci ^{131}J nachzuweisen sein. Die dafür einzusetzende Prüfmittelaktivität liegt nach (II) für die meisten Jodfilteranlagen im Bereich zwischen 0,1 und 0,01 Ci.

Gewöhnlich werden 150 l/h Rohluft und 6 m^3/h Reinluft durch die entsprechenden Probensammler gezogen. Aus dem Verhältnis der Aktivität von Roh- und Reinluftprobensammlern werden nach:

$$DF = \frac{Z_{R_{Rh}} \cdot V_{Rn}}{Z_{R_{Rn}} \cdot V_{Rh}} \quad (\text{III})$$

mit DF = Dekontaminationsfaktor

$Z_{R_{Rh}}$ = Nettozählrate eines Rohluft-Probensammlers in
ipm

ZR_{Rn} = Nettozählrate eines Reinluft-Probensammlers in ipm

V_{Rh} = Volumenstrom durch einen Rohluft-Probensammler in m^3/h

die Dekontaminationsfaktoren berechnet und der Mittelwert gebildet. Nach

$$D = \frac{100}{DF} \quad (IV)$$

mit D = Durchlaßgrad

wird der Durchlaßgrad des Jodfilters aus dem mittleren Dekontaminationsfaktor berechnet.

3.5. Sicherheitstechnische Ueberlegungen, Vorprüfung

Bei großen Lecks könnte die nach (II) berechnete Aktivität zu einer Umgebungsbelastung führen. Daher wird eine Vorprüfung mit geringer Aktivität (≤ 2 mCi) des Prüfmittels durchgeführt. Die Abb. 8 zeigt den dafür benutzten Prüfmittel- und Transportbehälter. Da die niedrige Aktivität keine zusätzliche Abschirmung benötigt, kann eine Druckflasche benutzt werden, deren Umfang zur Abschirmung (wegen des Gewichtes der erforderlichen Blei-Menge) zu groß wäre. Aus der Druckflasche kann ein, durch ein aufsteckbares Manometer kontrollierbarer, genau festgelegter Anteil des Gases und damit der Aktivität entnommen werden. Die bei der Vorprüfung auf einem Reinluftprobensammler abgeschiedene Aktivität wird mit einem tragbaren, batteriebetriebenen Einzelkanalanalysator ausgemessen. Die Nachweisgrenze der Vorprüfung wird über die eingesetzte Aktivität auf 1 % Durchlaßgrad gelegt. Da aufgrund einer optischen Inspektion und der Messung des Druckabfalls über die Jodfilter ein Leck, das zu einem Durchlaßgrad > 10 % führt, mit Sicherheit ausgeschlossen wird, kann die Abgabe von ^{131}J -Aktivität über den Kamin bei der Vorprüfung höchstens 10 % von max. 2 mCi, also maximal 0,2 mCi betragen. In diesem Fall würde die Hauptprüfung entfallen.

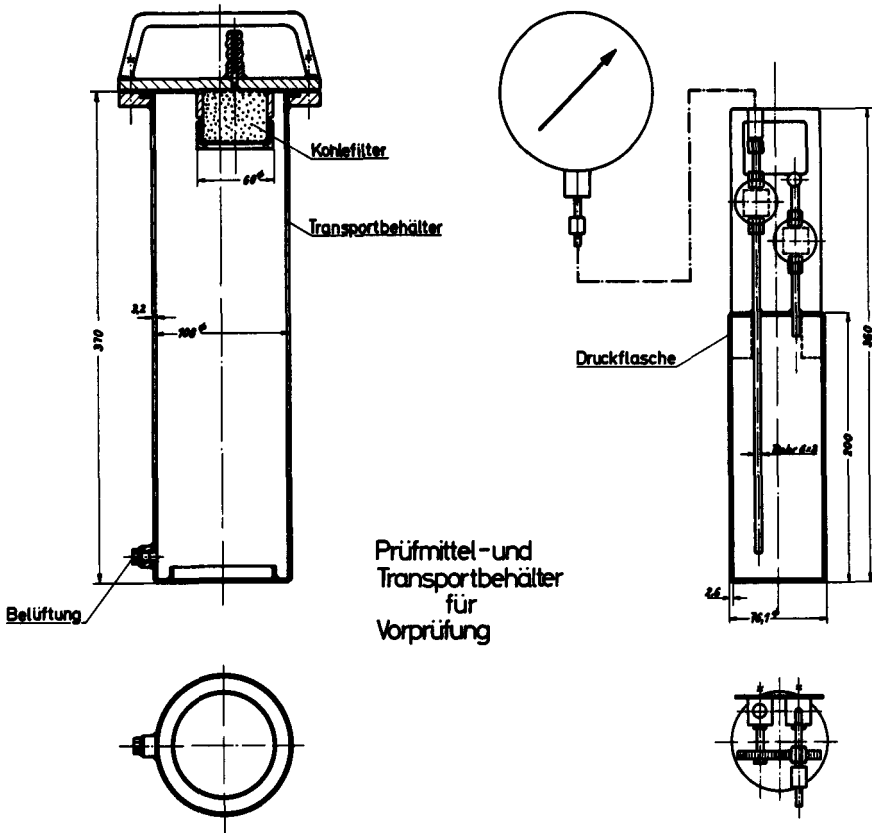


Abb. 8

Wurde bei der Vorprüfung keine meßbare Aktivität auf der Reinluftseite festgestellt, also nachgewiesen, daß der Durchlaßgrad $\leq 1\%$ ist, wird die Hauptprüfung durchgeführt, bei der unter ungünstigsten Umständen maximal 1 % der eingesetzten Aktivität durch das Jodfilter gelangen kann; bei einem Einsatz von 50 mCi für die Hauptprüfung also $\leq 0,5$ mCi. In dem sehr unwahrscheinlichen Fall, daß der Durchlaßgrad des Filters der Nachweisgrenze der Vorprüfung entspricht, würden also insgesamt 0,52 mCi aus der Vor- und Hauptprüfung über den Abluftkamin abgegeben werden. Da Methyljodid nicht an Gras adsorbiert wird, ist der Milchfaktor für die Berechnung der Umgebungsbelastung nicht anzuwenden. Bei Berücksichtigung des Kaminfaktors zeigt sich, daß die maximale Schilddrüsenbelastung eines Menschen am Aufpunkt unter ungünstigsten Bedingungen in der Größenordnung von μrem

oder darunter liegt. Eine Abschätzung der maximalen Umgebungsbelastung unter Berücksichtigung des Kurzzeit-Verdünnungsfaktors wird vor jeder Vor Ort-Prüfung durchgeführt und den Aufsichtsbehörden auf Wunsch zur Verfügung gestellt.

4. Diskussionsbeitrag zum Zeitabstand zwischen Wiederholungsprüfungen

4.1. Laborprüfungen

Die Prüffrequenz sollte sich nach der Betriebsart des Jodfilters und seiner Auslegung richten. Bei Filtern im "stand-by-Betrieb" (z. B. Störfall-Filter) dürften Wiederholungsprüfungen des Jod-Sorptionsmaterials aus den Kontrollfiltern im Jahresabstand ausreichen. Jodfilter, die häufig oder dauernd in Betrieb sind, sollten ca. vier Monate nach Inbetriebnahme einer Wiederholungsprüfung durch Untersuchung des Abscheidungsverhaltens des Sorptionsmaterials aus einem Kontrollfilter unterzogen werden. Falls die Prüfung keine wesentliche Erhöhung des Durchlaßgrades gezeigt hat, wäre eine zweite Wiederholungsprüfung des Sorptionsmaterials nach einer längeren Zeitspanne zu diskutieren.

Die Prüfergebnisse aus den Wiederholungsprüfungen des Jod-Sorptionsmaterials sollten in einer Kurve dargestellt werden, die die Abhängigkeit des Durchlaßgrades von der Betriebszeit beschreibt. Der Kurvenverlauf kann als Anhalt für die Festlegung der zukünftigen Prüffrequenz der betreffenden Jodfilter dienen.

4.2. Vor Ort-Prüfungen

Falls Jodfilter während oder nach Störfällen eingesetzt werden müssen, sollten Vor Ort-Prüfungen bei der Inbetriebnahme des Kernkraftwerkes und nach jedem Austausch des Sorptionsmaterials oder jedem Wechsel der Filterzellen durchgeführt werden. Generell sollte die Prüffrequenz von Vor Ort-Wiederholungsprüfungen (ohne Wechsel von Filterzellen oder Sorptionsmaterial) in Abhängigkeit von der techn. Ausführung diskutiert werden. Vor Ort-Wiederholungsprüfungen

an Störfall-Filteranlagen im Abstand von einem Jahr dürften dann unumgänglich sein, wenn kein repräsentatives Sorptionsmaterial aus den Kontrollfiltern im Laborversuch geprüft werden kann.

Bei Abluft-Jodfiltern für den Normalbetrieb sollte nach einer gewissen Erfahrung mit der jeweiligen Filteranlage der Schwerpunkt nicht auf die Vor Ort-Prüfung, sondern die mit geringerem Aufwand durchzuführende Prüfung des Sorptionsmaterials aus den Kontrollfiltern gelegt werden. Die Bedeutung von Alterungseffekten des Sorptionsmaterials dürfte für den Abscheidegrad größer sein als das eventuelle Auftreten von mechanischen Lecks. Moderne Jodfilter, zu denen Schüttbettfilter zu zählen sind, lassen diese Empfehlung durch ihre Konstruktion berechtigt erscheinen.

Literaturverzeichnis

- (1) J.G. WILHELM, Testing Iodine Filters for Nuclear Installations, Proceedings "Treatment of Airborne Radioactive Wastes", IAEA, Wien 1968.
- (2) J.G. WILHELM, Nachweis des Abscheidegrades der MCA-Jodfilter Obrigheim, Vor Ort-Prüfung, Externer Bericht der Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe, 20/68-3, Juni 1968.

IODINE SORPTION PLANT TEST PROCEDURES IN THE UNITED KINGDOM

J.J. Hillary

U.K.A.E.A.
Windscale - U.K.

SUMMARY. The United Kingdom approach to performance monitoring of Iodine Sorption Plant combines in-situ testing at full-scale with laboratory tests of the sorbent (usually impregnated charcoal) using a realistic labelled iodine compound, methyl iodide-131. Plant performance can then be evaluated under a wide variety of operational conditions difficult to achieve conveniently on the plant. Essentially, the full-scale test gives a measure of the extent to which gas may by-pass the charcoal. Laboratory testing is also important in the assessment of in-service performance of the sorbent, to check ageing and possible poisoning effects. In a typical large scale test, the source is released upstream of the plant. Penetration is measured by withdrawing a proportion of the main gas flow through charcoal samplers situated in upstream and downstream locations and comparing the sampler activities. There is considerable experience in the conducting of these large scale tests with milli-curie levels of methyl iodide-131, according to well developed safety procedures. The laboratory test for iodine sorption materials is carried out with methyl iodide-131 in air at near 100 % relative humidity. This represents rather pessimistic operating conditions which can conveniently be achieved reproducibly. Performance is again measured by charcoal samplers.

RESUME. METHODES D'ESSAI DES INSTALLATIONS D'ADSORPTION D'IODE AU ROYAUME-UNI. La méthode utilisée au Royaume-Uni pour contrôler le fonctionnement des installations de sorption d'iode combine les essais in situ, grandeur nature, aux essais en laboratoire du sorbant (généralement du charbon de bois imprégné), effectués en utilisant un composé iodé réaliste, de l'iodure de méthyle (I-131). Le fonctionnement de l'installation peut ainsi être évalué dans une large gamme de conditions opératoires difficiles à reproduire commodément sur place. Avant tout, l'essai grandeur nature permet de mesurer à quel point le gaz peut outrepasser le charbon. L'essai en laboratoire sert, lui, à déterminer l'efficacité du sorbant en service pour contrôler les effets du vieillissement et d'un éventuel empoisonnement. Au cours d'un essai type à grande échelle, le rejet intervient en amont de l'installation. La pénétration est mesurée en déviant une partie du flux principal de gaz au travers de témoins de charbon situés en amont et en aval de l'installation et en comparant les activités de leurs témoins. On a acquis une vaste expérience de la pratique de ces essais à grande échelle, avec des activités de l'ordre du millicurie d'iodure de méthyle (I-131), tout en observant des mesures de sécurité très au point. L'essai en laboratoire de matériaux sorbant l'iode est effectué avec de l'iodure de méthyle (I-131) dans de l'air à près de 100 % d'humidité relative. Ce sont là des conditions opératoires plutôt pessimistes reproductibles à volonté. L'efficacité est mesurée ici encore à l'aide de témoins de charbon.

KURZFASSUNG. PRUEFVERFAHREN FUER JODSORPTIONSANLAGEN IM VEREINIGTEN KOENIGREICH. Die Ueberwachung der Abscheidegrade von Jodsorptionsanlagen im Vereinigten Königreich besteht darin, dass Prüfungen an Ort und Stelle im technischen Maßstab mit Laborprüfungen des Sorptionsmittels (in der Regel imprägnierte Aktivkohle) kombiniert werden, wobei eine in der Praxis vorkommende mit Jod-131 markierte Verbindung, nämlich Methyljodid verwendet wird. Der Abscheidegrad der Anlage kann so unter den vielfältigsten Betriebsbedingungen ermittelt werden, die an der Anlage selbst nur mit grossen Schwierigkeiten zu realisieren sind.

Die vollmaßstäbliche Prüfung ergibt im wesentlichen in welchem Ausmaß Gas die Aktivkohle auf Nebenwegen umgeht. Die Laborprüfung ist ebenfalls wichtig für die Bewertung des Abscheidegrads des Sorptionsmittels im Betrieb sowie für die Prüfung der Alterungs- und ggf. Vergiftungseffekte.

Bei einem typischen Grossversuch wird die Jodquelle vor dem Abscheider freigesetzt. Die Abscheidung wird gemessen indem ein Teil des Hauptgasstroms durch Sonden vor und hinter dem Abscheider abgezweigt und durch Kohlepatronen geleitet wird; durch Vergleich der Aktivität in diesen Probenahmegeräten wird der Abscheidegrad ermittelt.

Umfangreiche Erfahrungen wurden bei der Durchführung derartiger Grossversuche mit Methyljodid (markiert mit Jod-131) im Millicurie-Bereich gewonnen; dabei konnten die festgelegten präzisen Sicherheitsmassregeln eingehalten werden.

Die Laborprüfung von Jodsorbentien wird mit Methyljodid (J-131) in Luft bei einer relativen Feuchte von nahezu 100 % ausgeführt. Das sind verhältnismässig ungünstige Betriebsbedingungen, die leicht reproduzierbar sind. Der Abscheidegrad wird wiederum mit Hilfe von Probenahmegeräten mit Aktivkohlepatronen gemessen.

INTRODUCTION

1. The fission product trapping system of a nuclear power plant is designed to control the release of activity in both normal operation and postulated accident situations. Probably the most important of these fission products is iodine-131 due to the combination of its large nuclear yield, ready volatility, chemical reactivity and high radio-biological hazard⁽¹⁾, and the plant design criteria are usually dominated by the requirements for efficient trapping of this isotope under a variety of conditions.
2. A particularly critical component of iodine-131 releases has been found to consist of combined organic species, principally methyl iodide^(2, 3,4,5), and considerable efforts have been devoted⁽⁶⁾ to the development of suitable sorption materials for the effective control of this compound.
3. It should be noted that the trapping system also incorporates a high-efficiency particulate filter unit to deal with particle-borne iodine-131 and other fission products. Separate test methods are used for this plant component.
4. Given the installation of a properly designed and constructed iodine sorption plant, the need remains to obtain as good a measurement as possible of its true operational performance; the measurement should be sufficiently reliable to give confidence in the event of actual usage of the plant in a postulated incident situation.
5. A typical schedule for proving iodine sorption plant in the United Kingdom is based on a combination of in-situ tests at full-scale with a supporting programme to monitor the efficiency of the sorption material (usually impregnated charcoal) in the laboratory. A realistic, labelled, compound of the fission product iodine-131 is employed, namely methyl iodide. This integrated approach allows plant performance to be evaluated under a variety of conditions, some of which may not be obtained conveniently on the plant.
6. An important additional feature, which gives useful data on in-service deterioration of the sorption material is to provide a facility which

enables samples of sorbent from the main sorption bed, which have experienced typical bed operating conditions, to be withdrawn for periodic laboratory testing. Preferably the samples should then be replaced in the main bed for further in-service use. This affords a check on ageing predictions and the possible occurrence of poisoning effects.

7. Procedures based on the use of methyl iodide-131 are described and discussed. Experience in the application of these procedures is described elsewhere⁽⁷⁾.

IN-SITU TEST METHOD AT FULL SCALE

8. The procedure for testing the installed iodine sorption unit of a fission product trapping plant consists essentially of releasing a plug source of methyl iodide-131 into the gas flow upstream of the unit and measuring the proportion which penetrates by withdrawing part of the gas flow immediately upstream and downstream of the unit through special gas sampler devices. The ratio of the activity found in the downstream unit to that in the upstream unit gives the penetration value. (Alternatively the performance can be presented as a decontamination factor, which is the reciprocal of the fractional penetration, or as an efficiency factor). As well as providing a convenient direct activity comparison with the downstream device, the activity received on the upstream sampler affords a check on the efficient operation of the sampling system, given a knowledge of the main gas flow-rate, the sample flow-rate and the activity of the added source.

9. The plant is typically set-up for the test as in Fig. 1 in its normal operational mode. It is also a usual precautionary feature, particularly with new plant or plant which has experienced some change (eg a fresh charge of sorption material) or modification, for a preliminary test with a source of low activity to be carried out to give a minimum value for the plant performance prior to the use of a larger source.

10. About a milligramme of methyl iodide, labelled with usually milli-curie amounts of iodine-131, is prepared in a silica capsule by passing an inert gas through a mixture of dimethyl sulphate and an aqueous solution of potassium iodide-131. The methyl iodide-131 which is volatilised into the gas phase is condensed by freezing techniques into the capsule which is then sealed. The source preparation procedure is described in more detail at

Appendix 1 and at Fig. 2.

11. The sampler devices consist of small volumes of fine mesh (-18 + 52 BSS) coal-based 207B charcoal impregnated with 1.5% potassium iodide which is considerably more efficient for trapping methyl iodide than the larger mesh (-8 +12 BSS) plant material⁽³⁾. The samplers are so operated that the stay-time (defined as the ratio of the charcoal volume - usually 50 ml - to the volumetric rate of gas-flow through the sampler - usually 20 litres/min) is at least 0.1 sec. The efficiency is checked occasionally by placing a further sampler downstream of the primary device and assessing any activity which may penetrate the latter; usually only a very small proportion is found on the secondary sampler.

12. The operational plant unit is tested prior to source release with these sampler devices and 'base-line' or background samples are taken to ensure that any extraneous activity which may interfere with the test result is detected. After replenishing the samplers, and adjusting the flow through them, the source of methyl iodide-131 is released (relevant techniques and apparatus are described elsewhere⁽⁴⁾).

13. Routes by-passing the charcoal or a very poor charcoal performance contribute to the penetrating values derived from the initial sample activities. The samples are changed at intervals, starting after the source has been completely released, to evaluate longer term desorption from the charcoal. Where possible the source residue is checked to ensure that release has taken place. A typical pattern of sampling timetable is given in Table I.

14. Each sample is then assessed for its iodine-131 content by conventional gamma-spectrometry techniques and the values found are compared to evaluate the plant performance.

15. It should be noted that the performance of the sorption material will normally be better in-situ than in the high humidity laboratory test (described below) since the humidity in the plant test will almost invariably be lower. However, this will not often be apparent in practice since the plant test is relatively much less sensitive.

LABORATORY TESTING UNDER STANDARDISED CONDITIONS

16. The general arrangement and layout of the apparatus for the testing of iodine trapping plant sorption materials is shown in Figs 3 and 4. The rig is constructed in glassware and is composed essentially of eight parallel systems each of which comprises a source-holding bulb from which methyl iodide-131 vapour is displaced into a flow of moisture-saturated gas (usually air) and thence to a test material bed. The penetration of the bed is measured by two full-flow samplers in series which because of the known high efficiency of the charcoal used, would trap any methyl iodide that passes through the bed.

17. The sorbent, normally charcoal, is loaded to each test position and is vibrated by tapping to its normal settled packing density. In practice one or possibly two of the eight test samples are operated as controls to ensure that a particular experiment is satisfactory.

18. Each 40 ml sample of sorption material is pre-equilibrated with air at near saturation with respect to its moisture content (normally in the range 96-99% relative humidity as measured by wet-and-dry bulb hygrometry) for about 16 hours at a staytime of 0.4 sec. Since the penetration by methyl iodide is dependant on the charcoal water content, the reproducibility of this equilibration period is important. To ensure constant humidity the carrier gas is saturated with water vapour at slightly above ambient temperature. This is then cooled to ambient by passage through a heat exchanger and mist removed by passage through a high efficiency filter. The humidity is reduced to close to 98% and is checked frequently. It is particularly important that water is not allowed to condense on the test bed, since this will result in a relatively poor trapping efficiency for methyl iodide. For this reason a range of relative humidity somewhat below 100% is chosen. The charcoal moisture content is also checked occasionally to ensure that a particular sample is not oversaturated, either initially or subsequent to saturation in the test rig.

19. In a typical experiment, following the pre-equilibration stage, each of the source-holding bulbs is loaded with about 1 mg methyl iodide vapour labelled with iodine-131 (equivalent to an average charcoal loading of 50 µg/g) and the twin sampler holders charged with the initial sample of

25 mls each, fine mesh (-18 +52 BSS) 207B charcoal impregnated with 1.5% KI. The gas flows are adjusted to achieve the correct test stay-time (normally 0.20 sec). The loading of methyl iodide to the test material is then achieved by displacement of the contents of the holding bulb over a period of 10 minutes at an approximately constant rate. This is equivalent to a mean methyl iodide concentration in the main gas stream arriving at the test material of about 10 mg/m^3 . The charcoal samplers are changed hourly over the duration of the test, usually four hours.

20. The sampler charcoal is transferred to sealed plastic sachets following a test and the iodine-131 content, including that of the test material, is assessed by a standard γ -spectrometry counting system. The measured penetration of the test material is then clearly the activity found on the full-flow samplers relative to the total found on the test bed and the samplers.

21. The normal test pattern is such that essentially the whole of this measured penetration occurs within the first hour (probably much less than this): the purpose of the extended elution period is to ensure that desorption from the sorption material (due to poisoning, or ageing) is detected.

DISCUSSION

22. Commencing with the viewpoint that an in-situ test method for iodine sorption plant should be based on a species of iodine, early work at Windscale was directed to the development of procedures based upon the elemental form. Iodine was passed over heated reactor fuel materials in an attempt to produce a proportion of iodine which was in a relatively penetrating form, attached to particles. This work was not particularly encouraging due to the small yield of these particles under the prevailing experimental temperature conditions and the ease with which the chemically reactive elemental iodine deposited on the surfaces of metal pipework: this meant that very little of the original iodine source material was carried to the plant under test. In one of these development tests a useful result was obtained (8). However, even in this case it arose from the conversion of a proportion of the elemental iodine at low mass (carrier free) to a combined form, probably methyl iodide.

23. The identification of methyl iodide as an important component in fis-

sion product releases from irradiated fuel has led to its adoption as a basis for a simple in-situ test method. It is also both relatively stable and comprises probably the most penetrating form of iodine from a sorption point of view. It is appropriate, in considering the reasons for the selection of this technique as the test method, to briefly appraise the alternative methods which are presently available. They are listed in Table II together with their main features:

24. In the UK, the emphasis has been placed on the choice of a test agent which is as realistic as possible, with the assumption that such a single agent is more likely to suffice. Thus methyl iodide-131 has been selected, and over a number of years of development and usage confidence has been gained with a procedure which has given satisfactory results. It should be stressed however that its safe use requires the strict application of well-defined safety rules which have also been evolved. The mass of the test agent requires control to ensure the use of only a small fraction of the saturation value for the sorption material: the usual test amount is about a milligramme. The sensitivity of the method is such that with normal gamma-spectrometry equipment penetrations below 0.1% can be measured using a source at millicurie levels of activity at plant flowrates of 1000 ft³/min (30m³/min).

25. Other methods, as is evident from Table II, have merit in one respect or another. For example, a method based on freon, a halogenated hydrocarbon refrigerant, has been developed in the USA⁽⁹⁾ and forms the basis for the procedure described in the relevant regulatory guide⁽¹⁰⁾.

26. The data presented in Table II are not intended to be exhaustive but to indicate in broad terms the alternatives which are available. A full appraisal of the relative merits of individual test methods would only be possible if a systematic comparative programme was carried out.

Performance evaluation

27. The integrated programme of iodine plant testing combines a number of different aspects each of which gives rise to specific data. These data require correlation to give the maximum advantage.

28. The full scale in-situ test gives information on plant mechanical performance or the extent to which gas by-passes the sorption material and will also give relatively coarse data on the sorption material behaviour with methyl iodide.

29. Under a different, more carefully controlled set of conditions - usually in air at high humidity - the laboratory testing with methyl iodide gives more exact data on the sorption material performance which can be applied to the plant. For example, based on previous experience with impregnated charcoals, the results can be interpreted in terms of a 'K' value, an index of performance ⁽⁶⁾, where $K = (\log_{10} DF)/t$ (t is the test staytime in seconds; DF is the decontamination factor which is the reciprocal of the fractional penetration). This allows extrapolation to actual plant values of t, but the result will apply only at high humidity and may be somewhat pessimistic for some real situations.

30. In addition, laboratory work, such as described in another paper ⁽¹¹⁾ on the in-service deterioration or 'ageing' characteristics of impregnated charcoals, predicts the change in performance with time (normally in terms of the 'K' value) so that a date can be established at which it will be appropriate to replace the sorption material with a fresh charge. It is in this context that removable samples which are typical of that in the main bed are most useful, in that a check may be made on the predicted in-service performance of the sorption material. In this way a more comprehensive picture of the performance of the plant with time is built up.

31. Although normally a standardised high humidity test has been employed in the laboratory, variations in the test procedure can be introduced to reproduce conditions more relevant to a particular plant. However, experimental work at, for example, a combination of elevated temperature and pressure conditions ⁽¹²⁾ is usually much more difficult to carry out on a routine basis.

Safety Aspects

32. In general, throughout the source preparation, transportation, and application of test procedures both in-situ at full scale and in the laboratory, careful attention has been accorded to safety aspects. The main

principles which have been applied are as follows:

- (a) Double containment, including the use of a sorption material (eg charcoal)
- (b) Ventilated containment as an alternative to (a) with single containment.
- (c) Exhaust gases cleaned by traps, including effluent arising from the use of experimental safety devices.
- (d) Monitoring by competent Health Physics personnel.
- (e) Design and safety procedures agreed by an independent local safety authority.
- (f) Preliminary testing to include
 - (i) Inactive trial, to fully evaluate procedures and familiarise operators.
 - (ii) Test at low activity to demonstrate that the charcoal bed to be tested is at least sufficiently efficient to permit testing with a high-activity source.
- (g) Clear identification of responsibilities of personnel, including test plant management.

33. Examples of the application of these principles can be seen by referring to source storage for transportation (Fig. 5), and the source preparation apparatus (Fig. 2) which is operated within a well-ventilated enclosure of the fume-hood type fitted with an adjustable sliding transparent front-shield through which there is a high air flow from the operating area.

REFERENCES

- (1) BEATTIE, J R and BRYANT, P M. "Assessment of environmental hazards from nuclear fission product releases". AHSB(S)R 135. 1970.
- (2) EGGLETON, A E J and ATKINS, D H F. "The identification of trace quantities of radioactive iodine compounds by gas chromatography and effusion methods" *Radiochemica Acta* 3, 151 (1964).
- (3) COLLINS, D A et al. "Experiments relating to the control of fission-product release from Advanced Gas-cooled Reactors". *Reactor Science and Technology, J Nucl Energy PtsA/B*, Volume 20, p97 (1966).
- (4) COLLINS, R D, HILLARY, J J and TAYLOR, J C. "Air cleaning for reactors with vented containment". TRG Report 1318(W) 1967; also CONF-660904, p419.
- (5) *HILLARY, J J. "Behaviour of iodine species in the Windscale AGR". *J British Nuclear Energy Society*, volume 12, p443 (1973).
- (6) COLLINS, D A, TAYLOR, L R and TAYLOR R. "The development of impregnated charcoals for trapping methyl iodide at high humidity. TRG Report 1300(W) 1967; also CONF-660904, p159.
- (7) *HILLARY, J J and TAYLOR, L R. "Experience at Windscale of full-scale testing of installed iodine sorption plant with methyl iodide". TRG Report 2497 Part II, 1973.
- (8) HILLARY, J J, GATE, L F and GURNEY, K. "Experience in testing installed fission product trapping plant with methyl iodide". TRG Report 1548(W) 1967.
- (9) MUHLBAIER, D R. "Standardised non-destructive test of carbon beds for Reactor Confinement application". DP-1082 1967.
- (10) USAEC Regulatory Guide 1.52. "Design, testing and maintenance criteria for atmospheric clean-up system air filtration and adsorption units of light-water-cooled nuclear power plants". 1973.
- (11) *TAYLOR, L R and TAYLOR R. "The ageing of impregnated charcoals", TRG Report 2483(W) 1973.

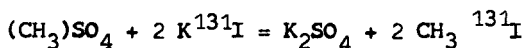
(12) TAYLOR, R and YUILLE, W D. "The trapping of methyl iodide at high pressure and temperature", TRG Report 2135(W) 1971.

*Also presented at the Seminar on Iodine Filter Testing, Karlsruhe, Dec 1973. Papers 2a(Reference 5), 19(Reference 7), 6(Reference 11).

APPENDIX I

SOURCE PREPARATION

Methyl iodide-131 sources are prepared (Fig. 2) by the methylation of iodine-131 labelled aqueous potassium iodide solution using dimethyl sulphate.



The reaction proceeds at a satisfactory rate at room temperature providing the immiscible liquors are thoroughly agitated. This is achieved by optimum design of reaction vessel, and the use of gaseous helium to act as a mixing agent and as a carrier for the volatile reaction product. On mixing, the reaction product is purged from the reaction vessel through a drying agent (granulated magnesium perchlorate) into a glass coil maintained at liquid nitrogen temperature where the pure methyl iodide is deposited. The source is then transferred by vacuum manipulation into a narrow necked silica capsule, evacuated to remove residual gases, then finally isolated from the rig using an oxy-hydrogen flame. Care is taken to ensure that the capsule neck is free from methyl iodide during sealing to avoid thermal decomposition. Alternatively the source is transferred to a pre-evacuated glass flask and thence to a series of pre-evacuated source flasks for use in the laboratory test apparatus. In this case the source strength is usually considerably less than one millicurie iodine-131.

For optimum yields (up to 95%) and maximum stability of methyl iodide care should be taken to maintain at a low level the hydrolysis products of dimethyl sulphate which interfere with the reaction; this is achieved by limiting its exposure to moisture and by using fresh material so far as this is possible.

TABLE I

Time-table of a typical in-situ test

Stage number	Time period hours	
0	0900 1000	Background run for one hour: if background contamination is suspected run for two separate periods.
	1030 1100	With stage 1 samplers running load capsule into release location.
	1100	Break capsule.
1	1100 1130	First half-hour period.
2	1130 1200	Second half-hour period.
3	1200 1400	First two-hour period.
4	1400 1600	Second two hour period.
5	1600 0900	Overnight sample.

TABLE II

Principle features of in-situ test methods

Test agent	Advantages	Disadvantages
1. <u>INACTIVE, IODINE BASED</u>		
(a) Methyl iodide-127	Less toxic than radioactive iodine. Realistic material. Relatively stable, compared with elemental iodine.	May be restricted to a leakage test if the trapping mechanism is isotopic exchange.
(b) Elemental iodine-127	As (a) but less stable (ie more reactive).	Easier to trap, this may give more optimistic result. May change to methyl iodide.
2. <u>INACTIVE, NON-IODINE BASED</u>		
Freon	Non-toxic. Not permanently sorbed.	Limited to measurement of leakage. Separate tests required to confirm no deleterious effect on a particular sorption material. Not realistic - it is not a form of iodine.
3. <u>RADIOACTIVE, IODINE BASED</u>		
(a) Methyl iodide-131	Realistic compound of radioactive iodine which the plant is designed to trap. Relatively stable. Simple to use (even at pressure) due to ease of volatility. Affords complete test of system, both plant (leakage) and sorption material. Sensitive at full scale. Gives experience of emergency monitoring procedures.	Radio-toxicity (but small source can be used to establish minimum plant performance).
(b) Methyl iodide-132	Less toxic, than methyl iodide-131 due to shorter half-life (2.3 hours compared with 8.05 days).	Contains some iodine-131. Short half-life means source must be prepared on or near test site. Gives little data on longer term effects on sorption material.

TABLE II (cont'd)

Test agent	Advantages	Disadvantages
(c) Elemental iodine-131	Realistic material	Radiotoxicity. May give more optimistic result than methyl iodide-131 due to greater chemical reactivity. May change to methyl iodide.
(d) Elemental iodine-132	Less toxic than iodine-131.	See 3(b) and 3(c) above.

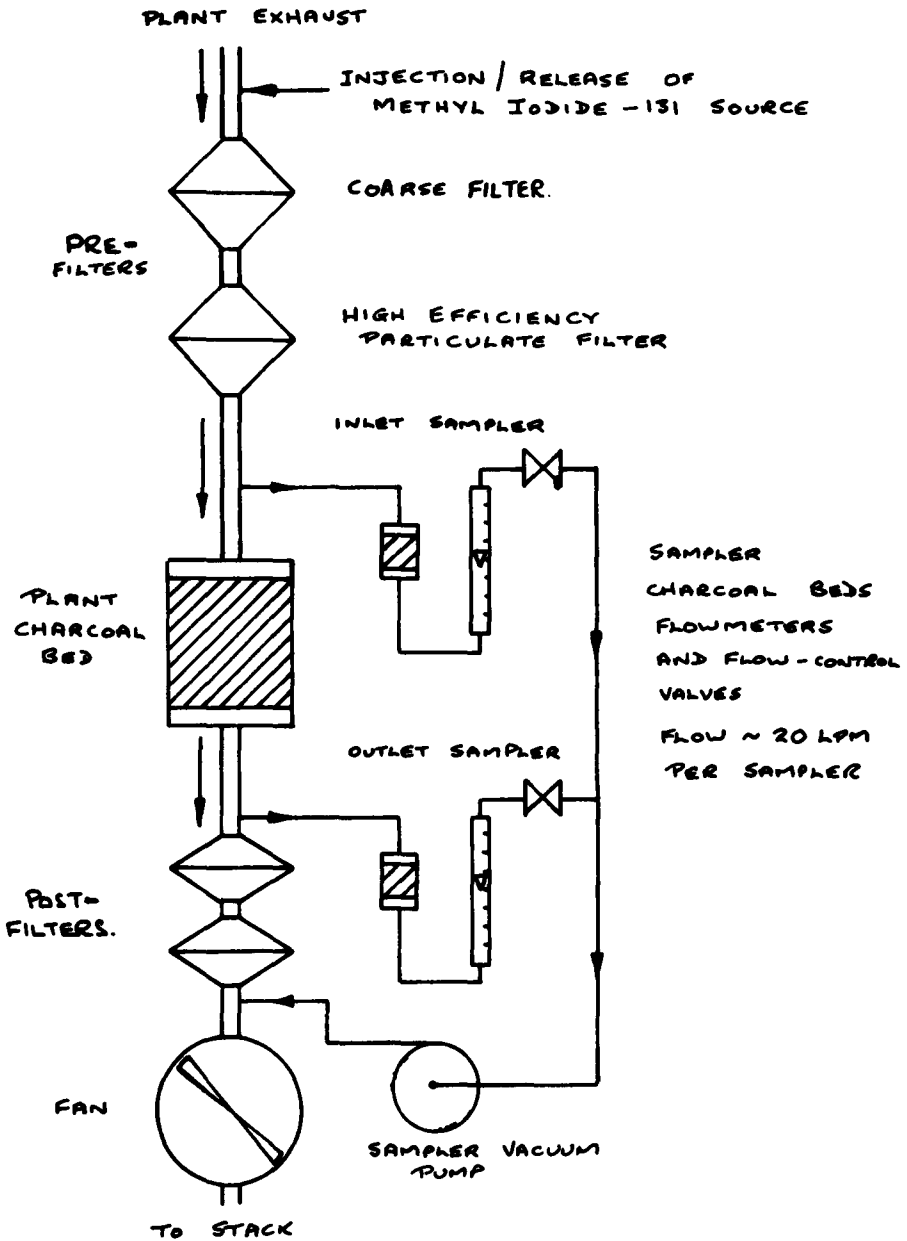


FIG. 1. : TYPICAL PLANT ARRANGEMENT FOR TESTING AN INSTALLED CHARCOAL BED.

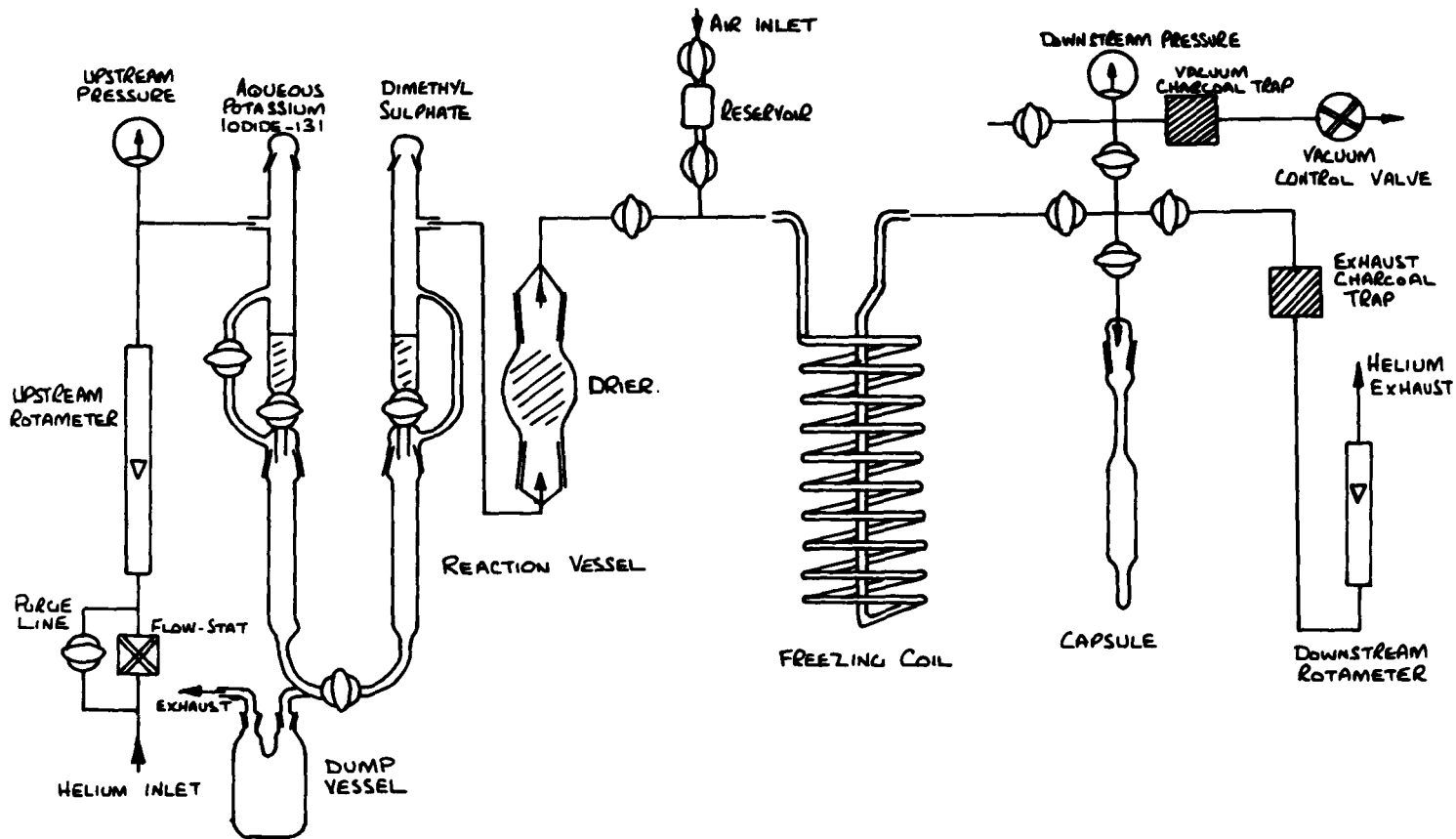


FIG. 2. METHYL IODIDE-131 SOURCE PREPARATION RIG.

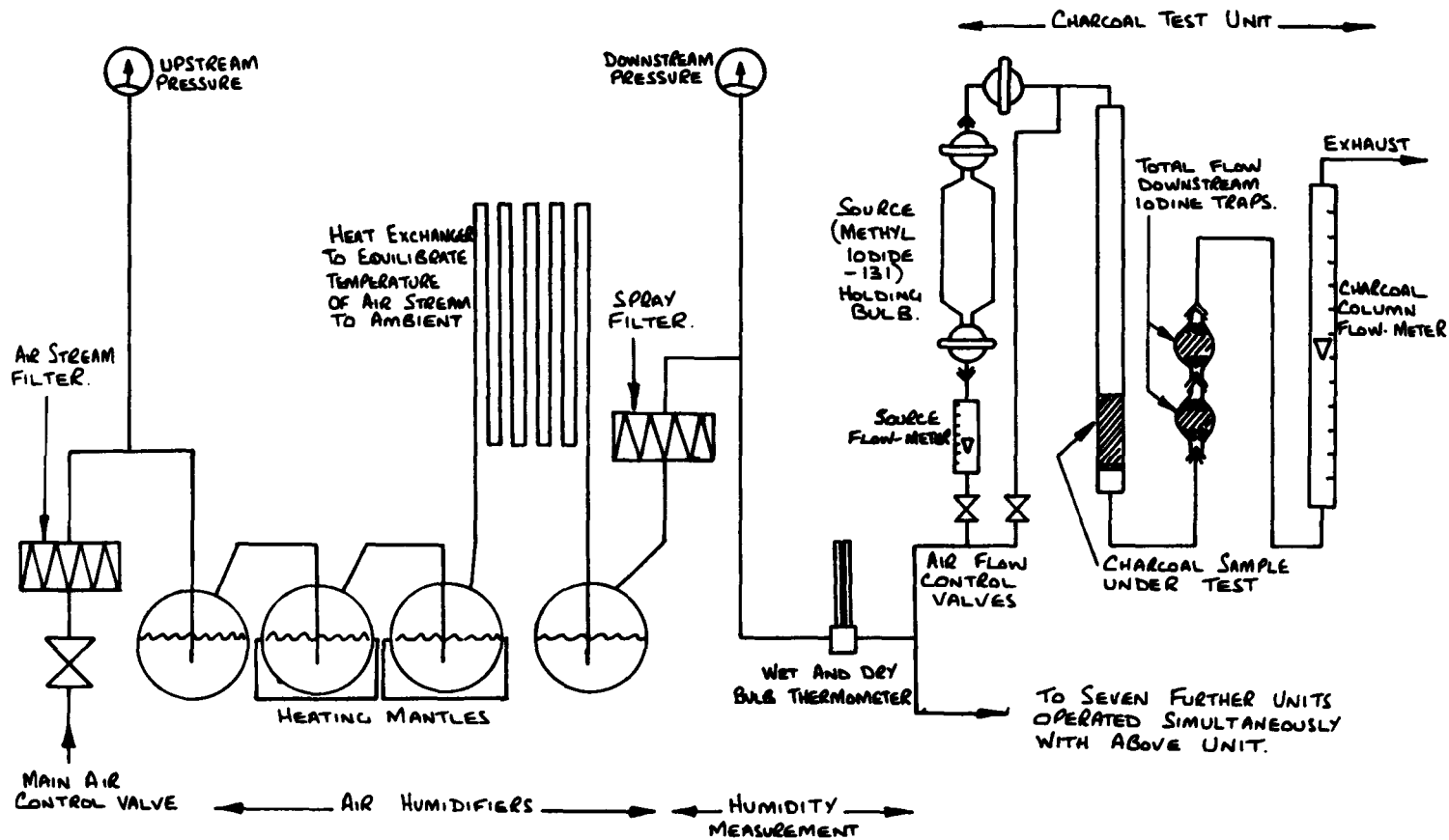


FIG. 3. WINDSCALE CHARCOAL TEST RIG - OUTLINE SKETCH.

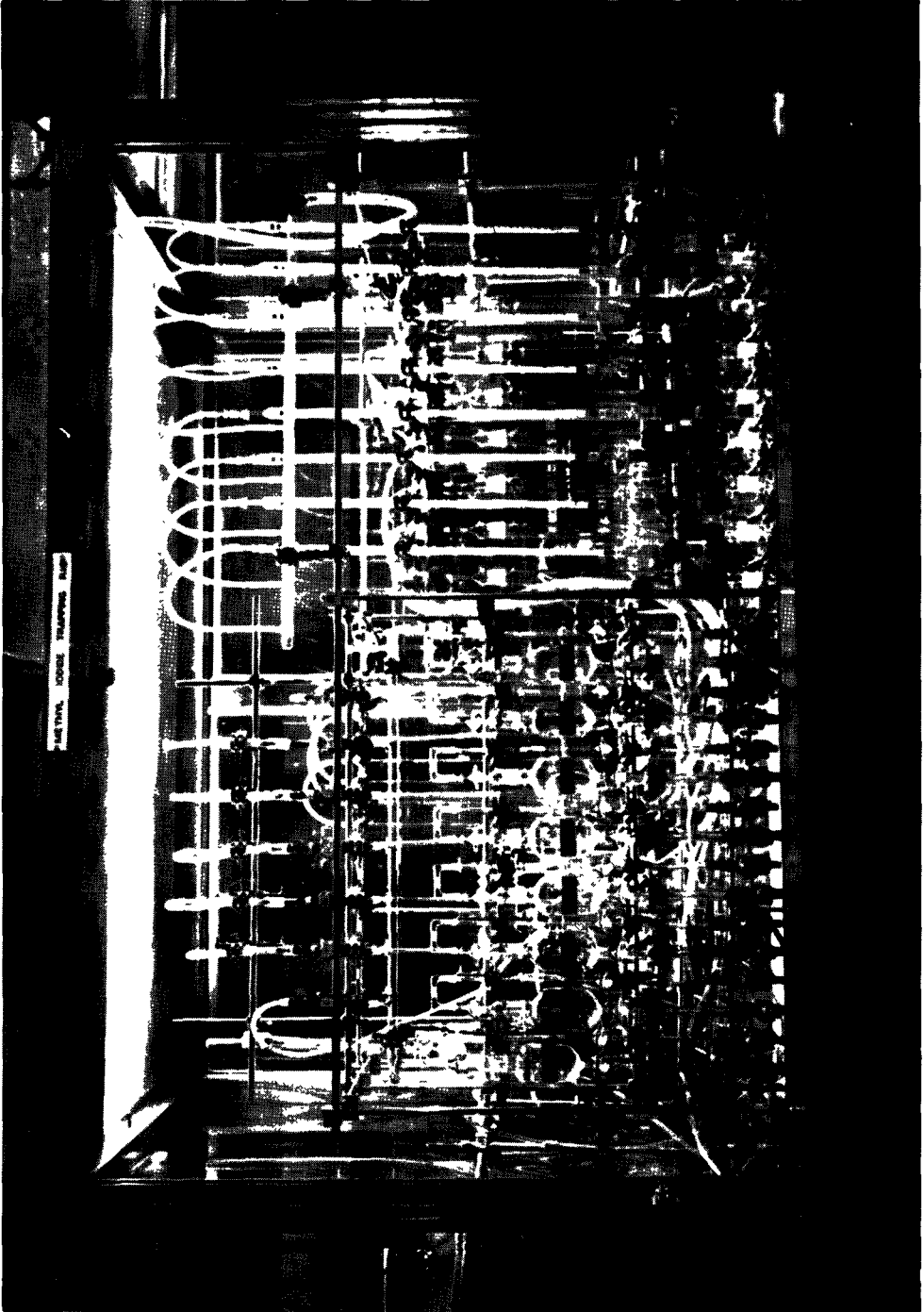


Fig. 4 - Windscale charcoal test rig - front view

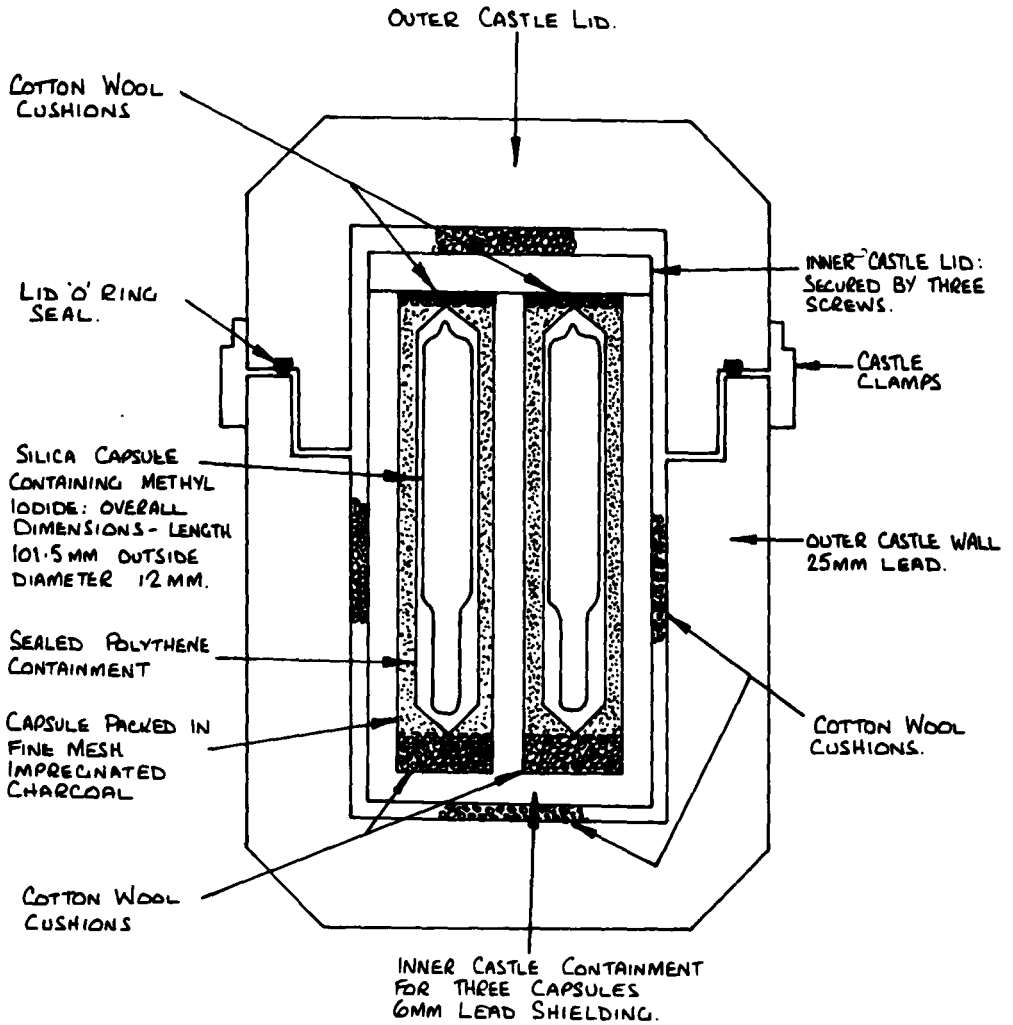


FIG 5 METHYL IODIDE TRANSPORT FLASK.

CONTROLE DES PIEGES A IODE DES CENTRALES NUCLEAIRES

P. Sigli et L. Trehen

C.E.A.

Fontenay-aux-Roses - FRANCE

RESUME. La présente communication décrit en détail la technique utilisée pour le contrôle des pièges à iode.

De l'iode 131 ou de l'iodure de méthyle marqués peuvent être injectés en amont du piège dans des canalisations d'installation où la pression est inférieure à 1,4 bar. Des prélèvements sur éléments standards sont effectués en amont et en aval du piège de charbon actif. La mesure des activités piégées conduit à l'évaluation de l'efficacité. Grâce au type de prélèvement, l'efficacité globale du piège peut être comparée à l'efficacité d'une couche de même nature, de même épaisseur, fonctionnant dans les mêmes conditions (hygrométrie, température) que le piège lui-même.

KURZFASSUNG. PRUEFUNG DER JODABSCHIEDER IN KERNKRAFTWERKEN. In der vorliegenden Mitteilung wird das Verfahren zur Prüfung der Jodabscheider ausführlich beschrieben.

Jod- 131 oder markiertes Methyljodid können vor dem Abscheider in die Abluftleitung eingespritzt werden, in der der Druck weniger als 1,4 Bar beträgt. Vor und hinter dem Aktivkohleabscheider werden Proben mit Hilfe von Standardpatronen entnommen. Die Messung der jeweils in den Patronen fixierten Aktivität ermöglicht die Ermittlung des Abscheidegrads.

Wegen der Art der Probenahme kann der Globalabscheidegrad der Jodfalle mit dem Abscheidegrad eines Aktivkohlebetts von gleicher Art und gleicher Dicke, das den gleichen Bedingungen (Luftfeuchtigkeit, Temperatur) wie der Abscheider ausgesetzt ist, verglichen werden.

SUMMARY. IODINE TRAP TESTING IN NUCLEAR POWER STATIONS. This paper gives details of the technique used for testing iodine traps. Labelled iodine 131 and methyl-iodide can be injected upstream of the trap in the piping system where the pressure is less than 1.4 bar. Samples on standard elements are taken upstream and downstream of the activated charcoal trap. The efficiency is evaluated by measuring the trapped activities.

The sampling method allows comparison of the overall efficiency of the trap with that of a bed of the same kind and the same thickness, operating under the same conditions (relative humidity, temperature) as the trap itself.

I. INTRODUCTION

L'accident de Windscale avait mis en relief l'importance des iodes radioactifs et le danger encourru par les populations avoisinantes. Des études entreprises alors, notamment en France [1] [2] [3], ont abouti au fait que les charbons actifs, de noix de coco ou de houille se révélaient efficaces pour piéger l'iode. Les réacteurs français furent, en conséquence, équipés de pièges de charbon actif, généralement de 5 cm d'épaisseur, devant servir à traiter l'air ou le CO₂ avant rejet dans l'atmosphère. Dans ce cas, la vitesse de passage sur le lit actif a été fixée à 30 cm.s⁻¹, ce qui correspond à un temps de contact apparent d'environ 0,2 s entre le gaz à épurer et la couche utile.

La situation, depuis lors, a considérablement évoluée. Des chercheurs anglais et américains [4] à [10] ont montré que l'iode ne se présentait pas uniquement sous la forme moléculaire mais également sous une ou plusieurs formes pénétrantes, identifiées comme étant principalement des iodures d'alkyles, et surtout de l'iodure de méthyle. Toutefois, il semble bien admis aujourd'hui que cette identification ne soit pas exhaustive. C'est ainsi que KELLER and al. [11] ont identifié d'autres formes possibles telles que l'acide iodhydrique ou l'acide hypoiodeux et que WILHELM citait récemment une forme d'iode non identifiée et plus pénétrante que l'iodure de méthyle.

Une controverse s'établit alors sur les proportions relatives iode moléculaire-iodure de méthyle qui pouvaient se former lors d'accident de réacteur (voir par exemple [12]). Il est certain que cette proportion dépendra étroitement du type de réacteur et du réacteur lui-même. Les chiffres cités s'évalent depuis des quantités insignifiantes d'iodure de méthyle jusqu'à des quantités avoisinant 90 % ou 100 % de la quantité totale d'iode. En fait, il convient sans doute de corriger ces valeurs très élevées en songeant que l'iode moléculaire est particulièrement bien adsorbé par la quasi totalité des matériaux et que la quantité apparente d'iodure de méthyle correspond en fait à un enrichissement dû à la disparition de l'iode moléculaire sur les structures. C'est ainsi qu'une expérience récente menée en France sur le réacteur graphite-gaz de Chinon I [13] a montré que très rapidement tout l'iode artificiellement injecté dans le réacteur se retrouvait sous forme pénétrante dans le fluide caloporteur. Un mécanisme possible de formation est d'admettre que sous rayonnement les impuretés organiques de l'anhydride carbonique (méthane notamment) sont radiolysées en donnant lieu à des radicaux libres CH₃ qui se combinent aisément à l'iode moléculaire pour former l'iodure de méthyle. Par ailleurs cette quantité diminuait rapidement, vraisemblablement par destruction dans un deuxième temps de l'iodure de méthyle sous rayonnement et piégeage de l'iode moléculaire ainsi formé.

Quoiqu'il en soit, il est apparu nettement comme une nécessité de mettre au point des adsorbants susceptibles d'être efficaces vis-à-vis des formes pénétrantes. Différents travaux, tant à l'étranger qu'en France [14], ont abouti à l'élaboration de nouveaux adsorbants efficaces. La solution la plus généralement adoptée est l'utilisation de charbons imprégnés soit à la triéthylènediamine (TEDA) soit à l'iodure de potassium. Une des limitations du charbon actif est son utilisation à température élevée, ou bien en présence d'oxyde d'azote (cas des usines de retraitement). D'autres adsorbants ont vu alors le jour, zéolites [15] ou supports de catalyseurs [16] totalement ou partiellement échangés à l'argent, par exemple. Ces dernières

solutions sont toutefois d'un coût élevé, ce qui en limite l'emploi. Il n'est toutefois pas exclu d'envisager leur utilisation pour l'épuration des effluents gazeux des usines de retraitement.

Des études ultérieures ont montré que les charbons vieillissent [17] [18] [19]. D'après COLLINS leur efficacité vis-à-vis de l'iodure de méthyle serait divisée par deux après 10^8 renouvellements d'air. Par ailleurs un vieillissement non négligeable est observé même si le piège n'est pas conçu pour un fonctionnement continu. Enfin, des empoisonnements peuvent prendre place lorsque a lieu une émission occasionnelle de solvants (peinture, trichloréthylène, etc.). L'efficacité d'un piège à iode à un instant donné est donc essentiellement fonction de "l'histoire" de ce piège, et, afin d'être sûr de l'efficacité pour le cas où se produirait un accident, il convient de s'assurer périodiquement de l'état du piège. Le test, effectué in situ, doit fournir l'efficacité du moment, dans des conditions aussi proches que possible des conditions de l'accident le plus probable (température, hygrométrie, etc.). Si la valeur de l'efficacité tombe en dessous de la valeur fixée par le rapport de sûreté, alors le charbon actif devra être remplacé.

II. TEST IN SITU - FREQUENCE DU TEST

II.1. Cas particulier des pièges en fonctionnement permanent

Un contrôle sur place et en vraie grandeur du piège est une opération relativement onéreuse. BILLARD [20] a préconisé en France l'adoption d'un système permettant d'en réduire le coût en en réduisant la fréquence. En dérivation du piège du réacteur, on dispose d'un piège témoin présentant les mêmes caractéristiques que le piège principal. La qualité de l'adsorbant utilisé pour son garnissage est la même que celle du piège principal et la vitesse de passage est au moins égale à 30 cm.s^{-1} de telle manière que son vieillissement éventuel apparaisse plus rapidement que celui du piège du réacteur. Le piège témoin, aisément démontable, est testé en laboratoire suivant une technique tout à fait analogue à celle pratiquée in situ. Dans le cas où l'efficacité du témoin s'avère insuffisante, un contrôle sur place devient nécessaire.

II.2. Contrôle in situ

Le choix d'une méthode pratique est guidée par le souci de connaître à la fois l'efficacité à l'iode moléculaire et à l'iodure de méthyle. Il apparaît donc que la technique la plus adaptée consistera à injecter de l'iode marqué soit sous forme moléculaire, soit sous forme organique, directement dans le circuit de ventilation du réacteur. Les mesures des quantités d'iode en amont et en aval du lit de charbon actif fourniront l'efficacité réelle, à un moment déterminé, du piège.

Une autre technique a été proposée [21] [22] qui consiste à mesurer l'efficacité du piège par le fréon. L'avantage de cette méthode est qu'elle fait appel à des produits non radioactifs toujours plus délicats à manipuler. Son inconvénient majeur est que l'efficacité trouvée n'est en aucun cas représentative de l'efficacité vis-à-vis de l'iode ou de l'iodure de méthyle. Ceci entraîne donc en plus le contrôle d'un échantillon du charbon constituant le garnissage. Si le premier test donne bien un aperçu des

fuites éventuelles dues au montage industriel du piège, et si le second test donne bien l'efficacité du matériau utilisé, une telle technique conduit à une information moins riche que la technique que nous préconisons qui, seule, permet d'affirmer que le piège est réellement satisfaisant ou non au moment considéré. La seule contrainte réelle est le fait que, travaillant avec des radioéléments, on devra s'assurer d'une bonne sécurité afin de prévenir tout accident pouvant survenir pendant les essais.

II.3. Nature du test, sa fréquence

On peut se demander si le contrôle à effectuer sur place doit comporter un essai à l'iode moléculaire ou un essai à l'iodure de méthyle, à moins qu'on ne considère que les deux types de test soient nécessaires.

Pour un piège neuf, dont la mise en place vient juste d'être effectuée, il nous semble que le contrôle effectué à l'iode moléculaire s'impose. Le résultat final, bien que lié aux conditions dans lesquelles s'effectue l'essai, est beaucoup plus aisément interprétable en termes de fuites ou d'étanchéité, dépendant étroitement du montage. Un essai ultérieur à l'iodure de méthyle donnera la valeur de référence à prendre en considération au départ ; le résultat obtenu étant étroitement fonction de l'hygrométrie, il convient donc de contrôler ce paramètre avec précision au cours des essais. Si l'efficacité s'avérait insuffisante, dans des conditions hygrométriques données, tandis que le premier test à l'iode moléculaire montrait que le montage était satisfaisant, alors seulement la qualité du produit de remplissage pourrait être mise en cause.

Une question qui se pose alors est de savoir quelles valeurs peuvent être retenues comme critères convenables d'efficacité, vis-à-vis de l'iode moléculaire ou de l'iodure de méthyle.

Dans le cas de l'iode élémentaire, le problème semble assez simple. Sur les réacteurs français, l'hygrométrie est le plus souvent inférieure à 40 %. Les efficacités obtenues initialement sur un piège neuf avoisinent la plupart du temps 10^4 pour une couche de 5 cm d'épaisseur. La limite minimale entraînant le renouvellement du piège est fixée à 10^3 , ce qui, compte tenu du fait que les pièges ne seront utilisés qu'en cas d'accident, demande quelques années. En ce qui concerne la valeur minimale à retenir pour l'arrêt de l'iodure de méthyle, la situation idéale serait de pouvoir contrôler, en le fixant, le degré hygrométrique au cours des essais. En absence de cette possibilité - cas général - le test sera effectué à l'hygrométrie du circuit, et on extrapolera l'efficacité trouvée à 90 % d'humidité, ou mieux à 70 % qui semble être un bon compromis, d'après les courbes trouvées en laboratoire.

Les valeurs préconisées pour ces essais sont aux USA de 20 [23], valeur qu'il semble raisonnable d'atteindre pour un piège industriel (bien qu'en toute rigueur il s'agisse d'essais en laboratoire).

Quant à la fréquence des contrôles, l'expérience acquise en France entraînerait un test tous les ans, voire même tous les deux ans, si on ne s'intéresse qu'à l'iode seul. Si on s'intéresse à l'iodure de méthyle, le manque d'expérience dans notre pays fait qu'il est encore difficile de fixer un laps de temps convenable pour contrôler l'efficacité des pièges à l'aide des formes pénétrantes de l'iode, et le débat sur ce point précis nous semble présenter un intérêt certain.

III. TECHNIQUE DU CONTROLE IN SITU

III.1. Injection d'iode ou d'iodure de méthyle

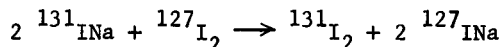
Le schéma d'ensemble du dispositif utilisé est représenté figure 1.
Le système comprend trois parties distinctes :

III.1.1. Injection d'iode 127

Un dispositif est prévu pour effectuer une injection d'iode stable destinée à représenter la quantité massique d'iode supposée qui serait relâchée en cas d'accident. Sur les réacteurs graphite-gaz français cette quantité est sensiblement de $0,5 \text{ mg.m}^{-3}$. Il suffit d'ajuster le débit d'air passant sur les paillettes d'iode pour obtenir la concentration désirée dans la gaine où se pratique l'injection.

III.1.2. Injection d'iode ou d'iodure de méthyle marqués

Le principe de la génération d'iode moléculaire a déjà été décrit par ailleurs [20]. Il s'agit en fait d'un échange isotopique entre $^{131}\text{I}^{\text{Na}}$ et $^{127}\text{I}_2$ obtenu en balayant une solution d'iodure de sodium marqué, par de l'air chargé en iode moléculaire non radioactif. La réaction d'échange peut être symbolisée par le schéma réactionnel suivant :



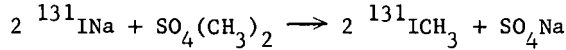
La source d'iode est une source portative composée d'un container en verre muni de deux sorties avec robinets, l'une des sorties aboutissant à un tube plongeur. Cette ampoule est contenue dans un château de plomb et est maintenue en place par de la mousse de polyuréthane. L'ensemble est complètement étanche, aux fins de transport. Le chargement est effectué par introduction d'une solution de $^{131}\text{I}^{\text{Na}}$ dans l'ampoule, réduite ensuite à l'état d'extrait sec par distillation sous vide. La protection du château de plomb permet des activités pouvant aller jusqu'à 3 Ci. Au moment de la génération il suffit de réhumidifier la source avant d'effectuer le montage de la figure 1.

Un des problèmes posés par les centrales graphite-gaz était que la gaine où devait s'effectuer l'injection était à une pression d'environ 1,2 bar absolu. Il a donc fallu imaginer un dispositif permettant de vaincre cette pression. En partant de la gaine, le système est constitué tout d'abord d'une petite trompe à air, en verre, alimentée par de l'air comprimé, puis d'une soupape de sécurité empêchant tout retour d'air et éventuellement une génération a contrario dans l'atmosphère. Vient ensuite la source proprement dite, l'iode stable, le desséchant, puis un rotamètre indiquant le débit d'air provoquant la génération. L'ensemble est contenu dans une boîte à gants, elle-même maintenue en dépression par rapport à l'extérieur. Le circuit de rejet de cette boîte est filtré sur charbon actif avant retour dans la cheminée.

Au moment de l'injection, l'ouverture, dans l'ordre, des robinets 1, 2, 6, 3, provoque la mise en dépression de la ligne d'injection, l'ouverture de la vanne n° 4 entraînant le balayage par l'air (80 l.h^{-1}).

Pour le contrôle à l'iodure de méthyle, le système utilisé est tout à fait analogue.

En plus du dispositif précédent, la ligne d'injection comporte une réserve de sulfate de méthyle ; l'ouverture des robinets 1, 2, 5 provoque par succion l'entrée du sulfate de méthyle dans la source de $^{131}\text{I}\text{Na}$. Après fermeture de 5, l'ouverture des robinets 6 et 4 provoque le balayage par l'air, et l'iodure de méthyle est libéré suivant le schéma



Dans l'un et l'autre cas la génération quasiment totale de $^{131}\text{I}_2$ ou de $^{131}\text{ICH}_3$ demande 15 à 20 minutes.

III.1.3. Prélèvements

Les prélèvements en amont et en aval du piège du réacteur sont effectués au moyen de porte-charbon de contrôle dont le schéma est donné figure 2.

Le dispositif comprend tout d'abord un filtre destiné à arrêter les poussières ou les aérosols ayant pu fixer de l'iode. Derrière se trouvent 1, 2, ..., couches de charbon actif de 5 cm d'épaisseur, tassées et maintenues en place entre deux grilles par un ressort. L'ensemble est réalisé en inox ou en laiton chromé de manière à éviter les adsorptions. On a indiqué figure 3 le schéma de montage permettant d'effectuer le prélèvement. Le passage du gaz est dû à la dépression créée par une trompe à air, et le débit de gaz passant sur le charbon est mesuré grâce à la dépression créée dans un venturi préalablement étalonné. Le débit de gaz est tel que la vitesse de passage sur le charbon est de $30 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ (égale à la vitesse de passage sur le piège) soit $3 \text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$. Généralement le prélèvement amont comporte deux couches successives de 5 cm, et si possible de la même qualité de charbon que celle utilisée sur le piège. La comparaison des activités recueillies sur chacune de ces couches donne l'efficacité intrinsèque de la couche de 5 cm, utilisée rigoureusement dans les mêmes conditions que le piège principal dans les conditions de l'essai.

La comparaison des activités prélevées en amont et en aval du piège du réacteur fournit son efficacité du moment.

Il est à noter que l'ensemble, injection et prélèvement, fonctionne uniquement à l'aide de trompes à air, alimentées par de l'air comprimé, ce qui, sur le terrain, est un avantage certain. Tous les raccords de type "rapide", permettent l'installation sur le site, en à peu près une heure, avant que ne débutent les opérations de contrôle.

III.1.4. Déroulement des opérations de contrôle

Un balayage par de l'iode 127 d'une dizaine de minutes est effectué préalablement de manière que les circuits de ventilation se saturent et que, ultérieurement, on évite au maximum l'adsorption d'iode radioactif. On procède alors à l'injection (15-20 minutes, puis balayage plus rapide de 10 minutes) suivie d'une élution sur le piège d'une heure environ. Le comptage s'effectue soit sur place, soit au laboratoire, par spectrométrie γ .

Ce système, relativement simple, est utilisé depuis plusieurs années en France pour le contrôle des pièges à l'iode moléculaire. Depuis peu, les centrales s'équipent de pièges à charbon imprégné et nous généralisons maintenant les essais à l'iodure de méthyle.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] J. PRADEL, G. CHEVALIER, F. BILLARD, CEA-R 2237, 1962
- [2] J. PRADEL, G. CHEVALIER, J. MIRIBEL, Note CEA-435, 1963
- [3] F. BILLARD, G. CHEVALIER, J. CARON, J. VANDERMEERSCH, CEA-R 2908, 1966
- [4] A.E.J. EGGLETON, D.H. ATKINS, Trans. Amer. Nucl. Soc. 6 129, 1963
- [5] R.D. COLLINS, A.E.J. EGGLETON, Proc. 3rd Int. Conf. Geneva, 13 69, 1965
- [6] J.J. HILLARY, J.C. TAYLOR, TRG-888, 1965
- [7] J.J. HILLARY, J.C. TAYLOR, TRG-954, 1966
- [8] R.E. ADAMS, W.E. BROWNING, R.D. ACKLEY, ORNL-3547, 1964
- [9] A.E.J. EGGLETON, D.H.F. ATKINS, Radiochimica Acta 3 151, 1964
- [10] W.E. BROWNING, R.E. ADAMS, R.D. ACKLEY, M.E. DAVIS, J.E. ATTRILL, Symposium on fission product release, Oak Ridge-1131, 1965
- [11] J.H. KELLER, F.A. DUCE, D.T. PENCE, W.J. MAECK, 11th Air Cleaning Conf. Aug. 31 - Sept. 3, 1970
- [12] G. BURLEY, Proc. of Symposium on treatment of airborne radioactive waste, New York, 26-30, 1968 - Voir discussion générale de la session 2, p. 163-171, IAEA, Vienna, 1968
- [13] J. BARBIER, G. BENEZECH, B. CADET, J. MIRIBEL, P. SIGLI, Congrès IRPA Washington 1973
- [14] F. BILLARD, AIEA, Vienne 1967
- [15] W.J. MAECK, D.T. PENCE, J.H. KELLER, Proc. of 10th AEC Air Cleaning Conf. New York, Aug. 28-30, 1968, USAEC Report CONF.680821, 185-203
- [16] J.G. WILHELM, H. SCHÜTTELKOPF, Proc. of AEC Air Cleaning Conference, Oak Ridge 1972
- [17] D.A. COLLINS, L.R. TAYLOR, R. TAYLOR, TGR 1300(W), 1966
- [18] W.S. DURANT, R. MILHAM, D. MUHLBAIER, DP-1028, 1966
- [19] F. BILLARD, Note CEA-N 637, 1966
- [20] F. BILLARD, J. BRION, Rapport CEA-R 3227, 1967
- [21] D.R. MUHLBAIER, TID-4500, 1964
- [22] D.R. MUHLBAIER, USAEC Report DP-1802, July 1967
- [23] Regulatory Guide 1.52, USAEC, June 1973

LISTE DES FIGURES

Figure 1 - Schéma de principe du test in situ

Figure 2 - Porte-charbon de contrôle

Figure 3 - Dispositif de prélèvement

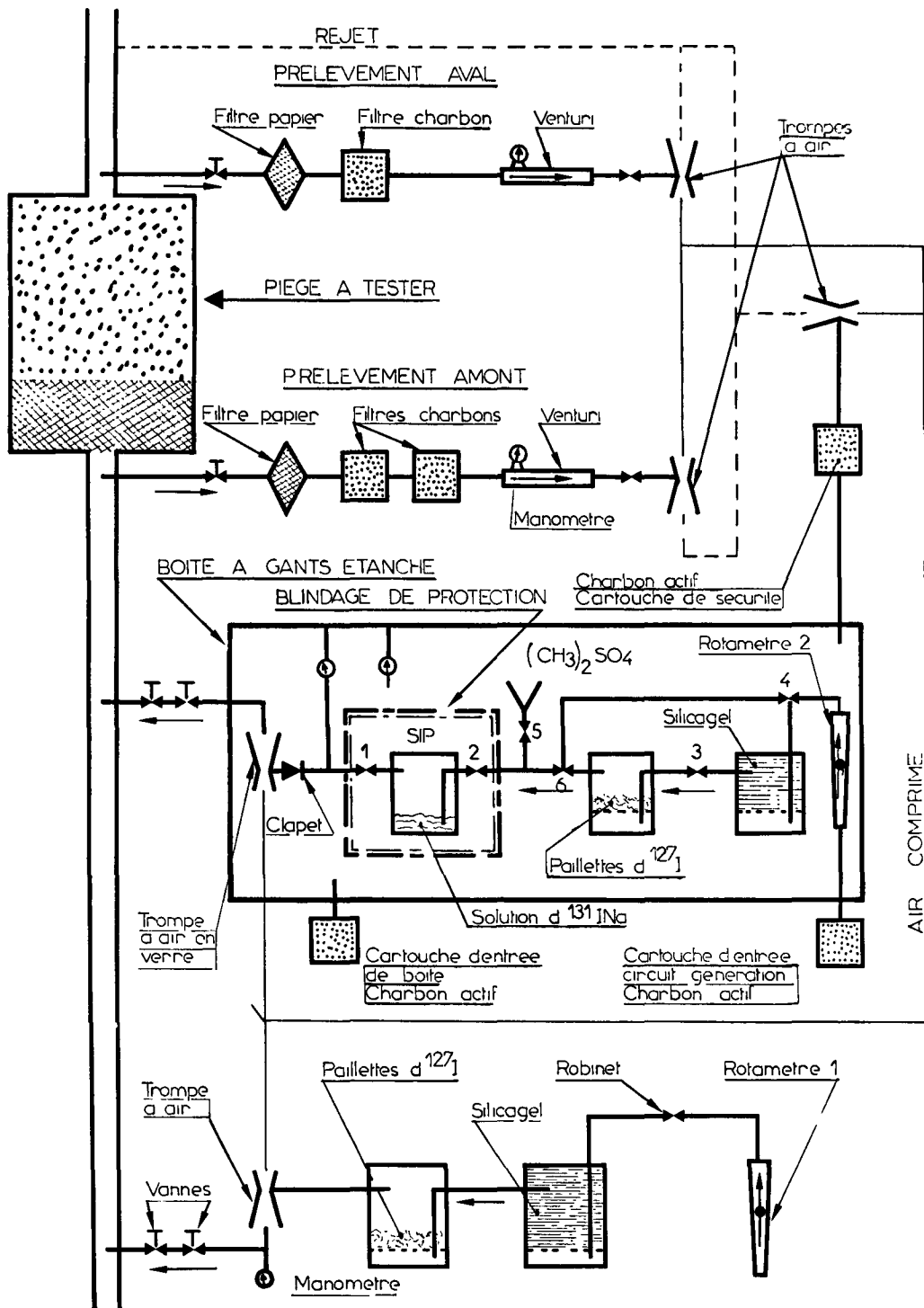


FIG. 1

Porte charbon contrôle P.C.C.

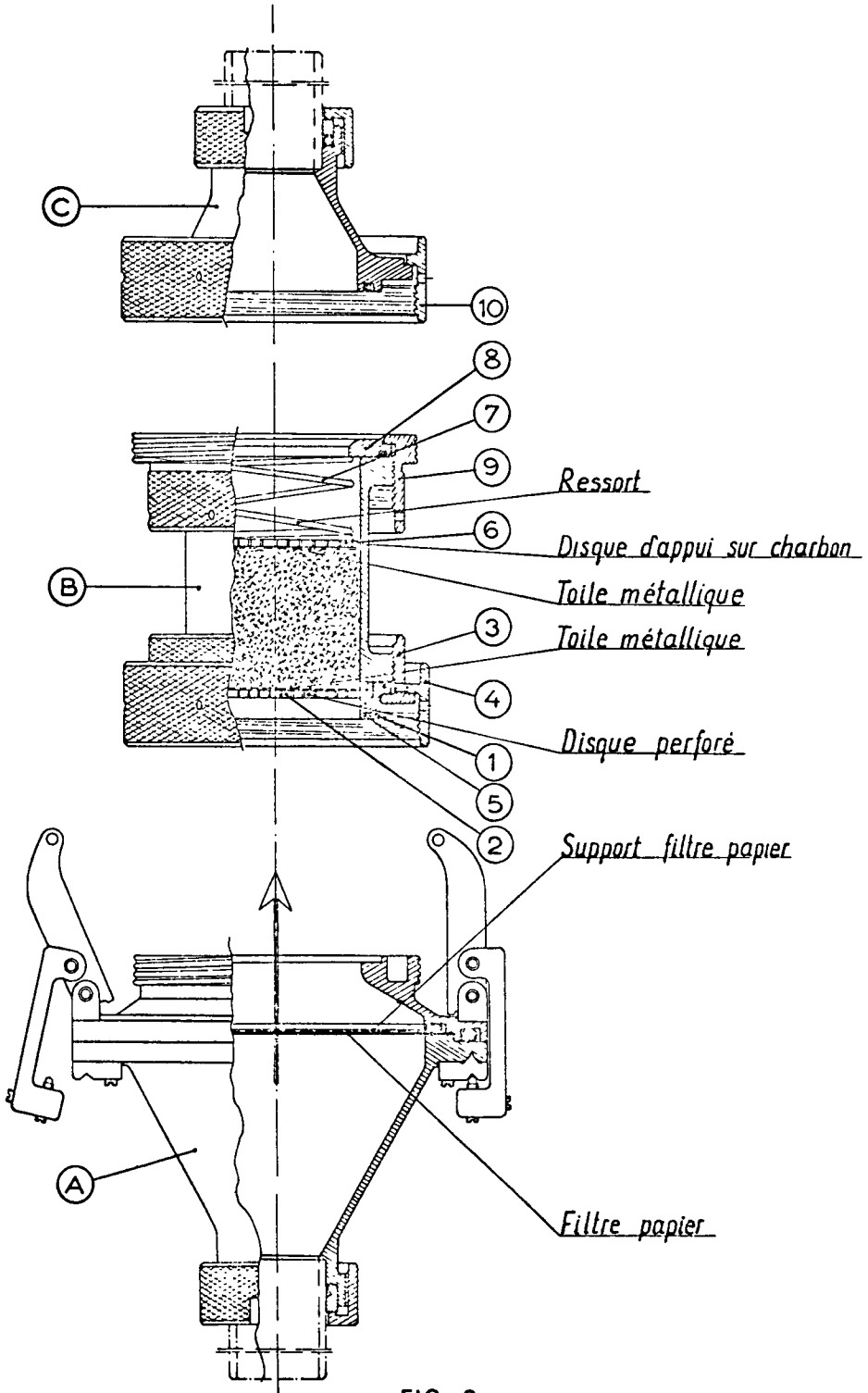


FIG. 2

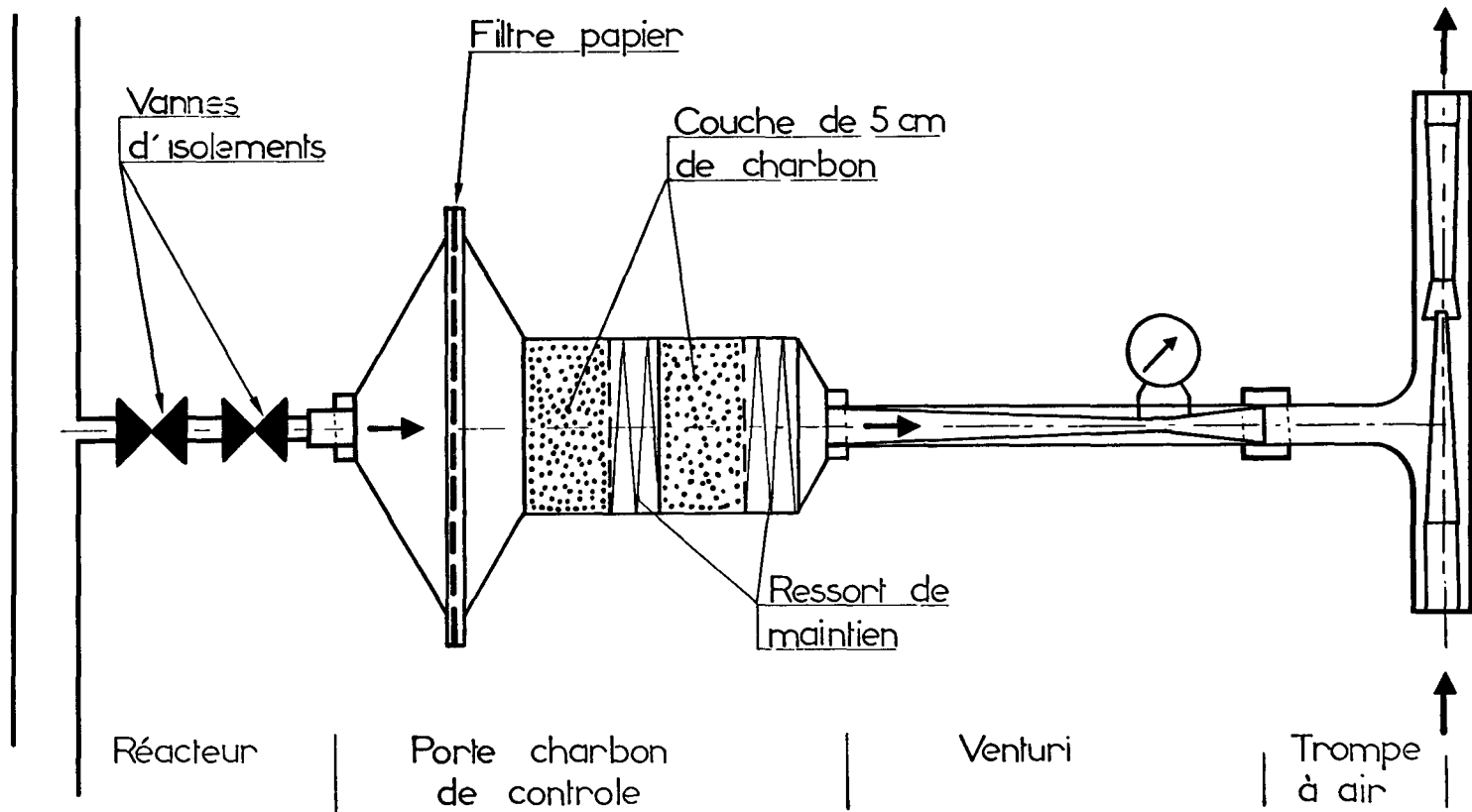
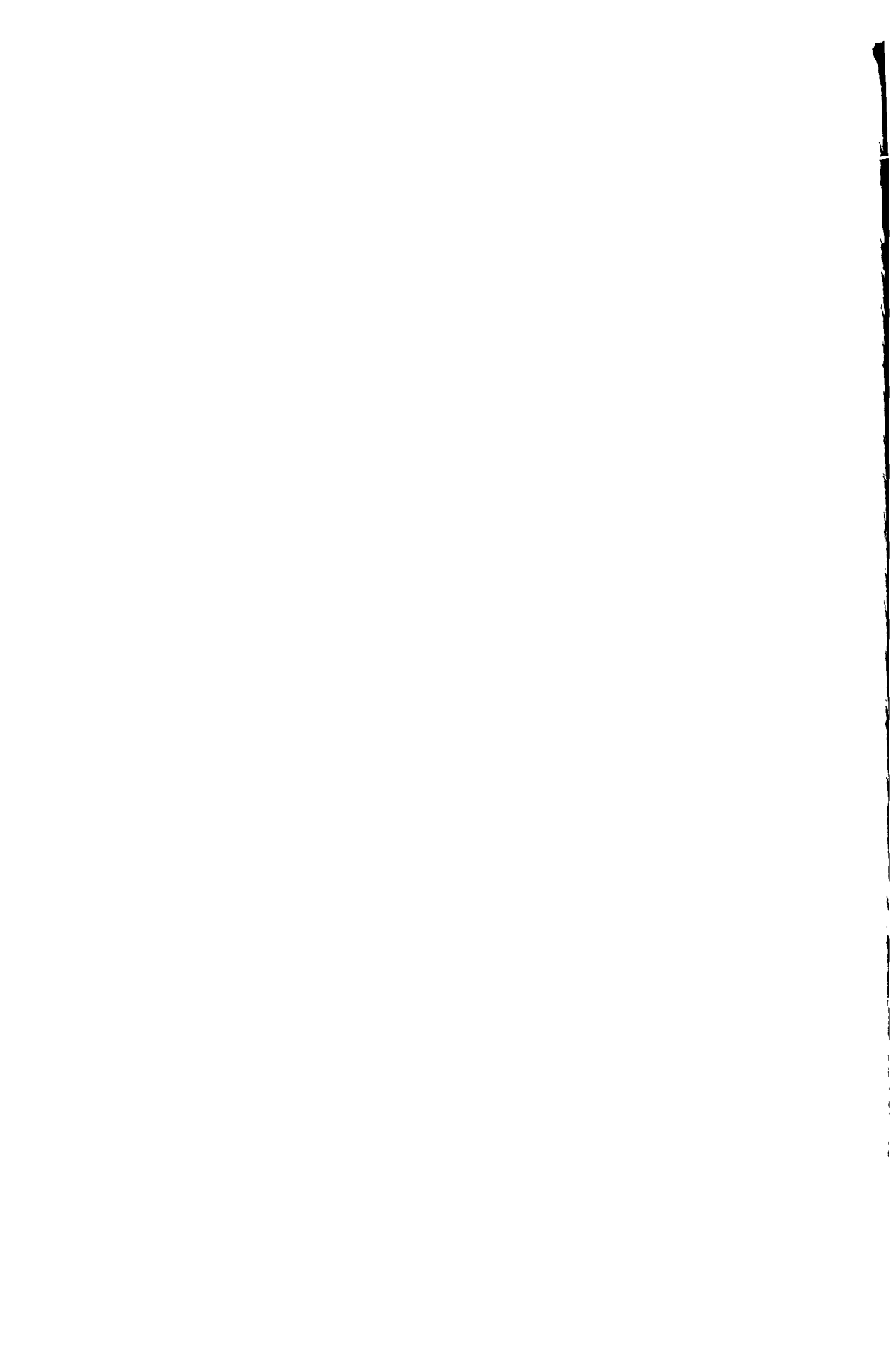


FIG. 3



TESTING METHODS FOR IODINE FILTERS OF NUCLEAR PLANTS

G. Messori

C.N.E.N.
Roma - Italy

N. Fiorentino and S. Malossi

E.N.E.L.
Trino Vercellese, Latina - Italy

S. Lanza and M. Mazzini

University of Pisa
Pisa - Italy

SUMMARY. This report discusses the characteristics of the various methods for testing the efficiency of filters and ventilation systems used in nuclear plants for the retention of iodine and its volatile compounds. A detailed report is given on the development of the equipment and instrumentation systems required for such tests, as well as on significant results pertinent to the qualification methods. Finally, some tentative indications are given as to the criteria of choice among the various experimental methods in relation to the type of testing to be performed, suggesting some simple arrangements which could considerably facilitate the execution of periodical in situ efficiency tests of iodine filtering systems.

RESUME. METHODES POUR TESTER LES FILTRES A IODE DANS LES INSTALLATIONS NUCLEAIRES. Ce rapport traite des caractéristiques des diverses méthodes de test de l'efficacité des filtres et systèmes de ventilation utilisés, dans les installations nucléaires, pour la rétention d'iode et de ses composés volatils. On y expose en détail l'équipement et l'instrumentation requis pour ces tests ainsi que les résultats significatifs relatifs aux méthodes de test.

Le rapport donne enfin quelques indications quant aux critères à adopter pour le choix entre les diverses méthodes d'essai, selon le type de test à effectuer, et suggère quelques dispositifs simples qui pourraient faciliter considérablement l'exécution in situ des tests périodiques d'efficacité des systèmes de filtres à iode.

KURZFASSUNG. PRUEFMETHODEN FUER JODFILTER VON KERNKRAFTWERKEN. Der Bericht befasst sich mit den Besonderheiten der verschiedenen Methoden zur Prüfung der Wirksamkeit von Filtern und Belüftungsanlagen, die in Kernkraftwerken zur Rückhaltung des Jods und seiner flüchtigen Verbindungen eingesetzt werden. Ueber die Entwicklung der für diese Prüfungen benötigten Ausrüstung und Instrumentierung und über Ergebnisse, die für das Prüfverfahren charakteristisch sind, wird eingehend berichtet.

Abschliessend werden einige vorläufige Anhaltspunkte für die Wahl der für die jeweilige Prüfaufgabe am besten geeigneten Testverfahren gegeben; ausserdem werden einige einfache Anordnungen vorgeschlagen, die die regelmässige Ueberprüfung an Ort und Stelle von Jodfilteranlagen auf ihre Wirksamkeit wesentlich erleichtern könnten.

The retention of radioactive iodine, both in molecular and organic (CH_3I and heavier alkyl iodides) or inorganic compound (e.g. HI) that appears in gaseous effluents, is usually carried out by activated charcoal beds, eventually impregnated with KI or TEDA (1), (2).

For special applications (heavy radioisotope loads on the filter or high temperatures) it has been proposed the use of Ag impregnated zeolites (3), (4).

All these materials are assembled in filters, to-day on sale in standard sizes, in a similar way as for H.E.P.A. filters. For these filters too, the main problem is to check at the beginning and during the plant operating life, the real performances of the filtering installation; such performances can be jeopardized by filter's preferential internal paths (faulty compacting of absorbing material during filter assembling, grain shattering, etc.) or because of bad installation (e.g. faulty sealings).

The various methods proposed so far for iodine filter testing can be classified in two categories:

- iodine methods
- freon methods.

All these methods are not made to test efficiency under operating conditions but to define the efficiency loss due to the existing of preferential paths in the filter and/or in the filtering assembly.

The capability of a filtering installation to retain a certain substance can be considered as the result of the product of the intrinsic efficiency of the absorbing material ($^{\circ}$) by an efficiency factor of the assembly which accounts for the preferential path effect. The end product of all the test methods is the definition of such a factor which is carried out measuring the installation efficiency with a

($^{\circ}$) This is to be determined with laboratory tests at reference operating conditions.

suitable tracer.

In order to obtain by this measurement a conservative evaluation of such a factor, it is sufficient that:

- tracer penetration through filtering material be very small and in any case identifiable from the penetration through the preferential paths;
- tracer penetration through preferential paths at test conditions be higher than penetration of substance to be filtered during operation.

When the tracer is the same substance to be filtered it can be difficult to comply with these conditions and, on the other hand, it might be over-prudential to evaluate an installation efficiency merely according to what stated before.

As a matter of fact a filtering installation efficiency can be written as

$$\epsilon_t = \epsilon_{mn} \frac{\epsilon_p}{\epsilon_{mp}}$$

where ϵ_{mp} and ϵ_{mn} is the absorbing material efficiency under test and under operating conditions respectively; ϵ_p is the installation efficiency measured in the test. Consequently, when it cannot be expected neither $\epsilon_{mn}/\epsilon_{mp}$ nor ϵ_{mp} to be equal to the unit, it is suitable to evaluate by laboratory tests ϵ_{mp} as well as ϵ_{mn} .

Iodine methods

To test high efficiency impregnated charcoal filters, methyl iodide vapours are injected into the gas stream which flows through the filtering system, while in the case of filters for retention of molecular iodide, molecular iodide itself is injected (5) (6). These substances change the filter condition; therefore in testing filters it is necessary to use iodine load much less than the maximum allowable one.

Tagging the iodine by one of its radioactive isotopes (for example ^{131}I), the tracer activity can be evaluated taking a sample of the gaseous mixture simultaneously up and downstream the filter (each sampler could be made with impregnated charcoal cartridges of known efficiency) and

measuring by γ counting the iodine absorbed by the cartridges. The ^{131}I activity usually used for the test is between 1 and 100 mCi, values which involve radiological safety problems.

With a device capable of producing iodine vapours at a steady rate for a long run (up to 10 hours), commercial filter tests ($W \leq 1000 \text{ m}^3/\text{h}$ and efficiency up to 99.9%) can be carried out with a top activity of $100 \mu\text{Ci}$. (°)

Filtering assemblies are usually designed for lower than $1000 \text{ m}^3/\text{h}$. flows. Assuming a test concentration equal to $0.1 \text{ mg}/\text{m}^3$, in order to carry out the tests, it is sufficient to set up a device which produces iodine vapours at a steady rate of $\sim 10^2 \mu\text{Ci}/\text{min}$, for 1+10 hrs.

Devices corresponding to these specifications have been developed at the University of Pisa.

(°)

With a detection limit of $10^{-3} \mu\text{Ci}$ for the counting instrumentation (and this is not a heavy one) this result can be easily obtained sampling the gas up and downstream with rates corresponding to 0.1% and 1% respectively of the ventilation circuit flowrate; so

$$a_m = C_m W_m \Delta t; \quad a_v = C_v W_v \Delta t; \quad a_p = W C_m \Delta t$$

$$\varepsilon = \frac{C_m - C_v}{C_m} = 1 - \frac{a_v}{a_m} \frac{W_v}{W_m}$$

and with the values stated above

$$a_m = \frac{a_v}{1 - \varepsilon} \frac{W_m}{W_v} = 10^{-1} \mu\text{Ci}$$

$$a_p = a_m \frac{W}{W_m} = 10^2 \mu\text{Ci}$$

a) Source of I₂ vapours.

When carrying out the PSICO research program (7) steady generations of molecular iodine vapours were achieved by sublimation of I¹³¹ traced iodine crystals; the preparation method is reported in (8).

The iodine vapours diffuse through a pipe and are removed by a gaseous stream (fig. 1 a).

To reach P values of the wanted order of magnitude, the device shown in fig. 1 b was made. Pipe dimensions are: length 20 cm, internal diameter 1.4 cm.

When the production temperature is less than 150°C the production rate can be written as:

$$P = 6 \cdot 10^4 \frac{D \cdot A}{l} \frac{pvM}{RTc}$$

P ranges from 160 to 1600 μ g/min when T_c ranges from 90°C to 150 °C.

A set of experiments was run to set up this device: a steady generation was checked for some hours and the trend of P verified in the above mentioned range with a good agreement with the theoretical prevision (see fig. 2).

b) Source of CH₃I vapours.

In order to generate these vapours, dry air is passed through a solution of I¹³¹ tagged CH₃I in decaline. (CH₃I is traced with I¹³¹ by isotopic exchange in propanol-water solution according to the method reported in (9); in the end CH₃I is stripped by decaline).

A set of experiments has been run to study the source generation rate vs. the following parameters (in the specified ranges):

- solution temperature T_c (-20°C + 15°C);
- dry air flowrate W_p (20 + 500 cm³/min);
- CH₃I concentration in the solution Cl (0.5 + 5 g/l).

In these tests 200 cm³ have been used and conse-

quently the solution head in the scrubber was 13 cm Results are shown in figure 3.

Freon methods

The method suggested by Muhlbaier (10) consists on injecting freon vapours at known concentration upstream the filter and on determining the trend as a function of time of the concentration downstream taking samples. The freon detection is made by a cromatograph fitted with an electronic capture detector.

The quantity of freon passing through the filtering system can be evaluated by extrapolation at the time of arrival of the step front at the sampling point downstream.

Errors due to this operation are obviously smaller if:

- the quantity of freon flowing through the charcoal is slowly variable;
- it is small compared to that which flows through the preferential paths;
- the absorption on these paths rapidly gets to equilibrium with the tracer concentration in the gas stream.

At the end of the test, the freon can be taken out of the filter by passing an air stream for a time which depends on the air speed, on its temperature, on the type of freon and on the type of charcoal in the filter.

In order to define the limiting operating conditions of the method, Muhlbaier carried out a comparative study on the behaviour of various types of freons (11) (12).

The conclusions of the study are shown for new activated charcoal in table I, taken out from (12).

It can be shown that.

- Freon 12 is suitable for testing new filters in the laboratories. It is a gas at room temperature (and so easily injectable in the ventilation circuit with known and constant concentration); its desorption is however quick (low values of the speed, of the temperature and of the relative humidity of the gas carrier, lack of impurities and of impregnants which make the desorption still faster).

Even if it allows a quick recovery of the initial conditions of the filter this is the major limitation of the method.

- Among other types of freon examined, the best behaviour is shown by freon 112, which allows to test new or used charcoal filters in the laboratory and in situ; the limits at operating conditions are higher than those normally met by the filters on the plants (°).

In any way it is necessary to set up a F 112 vapour source with a production rate known and constant during a test; otherwise it is necessary to carry out contemporarily the F 112 concentration measurement up and downstream the filter.

Because of the reduction of the number and efficiencies of the absorbing centers, due to the accumulating impurities, test operating limits for used filters with F 112, are lower than those shown on table I. However, also with filters used for 15 months, such limits are similar to those which are obtained for the test of new filters with F 12 ($v = 6 + 15$ m/min; $T_a = 25 + 30$ °C; $Q = 5\%$) (13).

-
- (°) F114B2 is not suitable for in situ testing because it decomposes when in the light; decomposition substances interfere with freon absorption on the charcoal and would give a reduction of max water content in charcoal (Q) to 5% in weight.
F 11 has a Q limit value lower than half of that relating to F 112. The minimum F 113 detectable concentration in air is five times than F 112.

The limits to the operating conditions shown on table I are interdependent; for all the freons any such limit can be extended if one or both the remainings are reduced.

After a test, freon desorption from charcoal is favoured by high values of temperature, relative humidity, air speed, and particularly by air stream opposite to the freon direction during the test. In any case with $v = 20$ m/min, $T_a = 95^\circ\text{C}$, UR 3% and opposite flow, it takes 3 days for the desorption of F 112 to reach 95% (in the case of F 12 a few hours are sufficient) (13).

Freon 12 method.

The first problem to be overcome, was the setting up of the F 12 concentration measuring methods using the available gascromatograph (Varian Aerograph mod. 1200, fitted with electronic capture detector).

On the basis of known literature (14) a stainless steel column ($L = 3$ m, $\phi = 3/32''$) filled with SF-96 at 20% on chromosorb P 80 + 100 mesh was used. On fig. 4 is shown the calibration curve of the instrument equipped with a Ni⁶³ detector.

The detection range is 0 + 4 ppm. The minimum detectable concentration comes out to be 0,03 ppm which corresponds to test charcoal filters with an efficiency higher than 99,99% with a freon 12 concentration upstream the filter of about 500 ppm.

By using small size charcoal filters the method was finalized in the PSICO 10 ventilation circuit (fig. 5). Three types of charcoal have been tested (active CECA nr. 935R, CECA n. SA 1428 impregnated and active Barnebey-Cheney n. 572), varying both bed thickness and frontal speed. All the tests were carried out at room temperature, on dry-stoved charcoal (120°C for several hours).

On fig. 6 are shown experimental results of the release time (°) vs stay time.

(°) Release time is defined as the time which elapses between the air-F 12 mixture entering the charcoal sample and the time when the F 12 concentration increases downstream.

Such a curve allows to choose the experimental conditions for carrying out a filter test at full scale, provided the charcoal filling is known. Since it is necessary to have at least 3 measurements of $\xi(t)$ to evaluate ξ_0 and this takes more than one minute, it comes out that release time must at least exceed such value. If S is known, this defines the test speed value.

F 112 method

The response range of Muhlbaier electronic capture gascromatograph (similar to that initially available) hardly covers two decades.

Therefore Muhlbaier, in the case of F 112, had to use two gascromatographs of the same kind for taking samples up and downstream, at the same time, as well as a dilution circuit to measure the sample upstream.

All this produces a considerable complication for the equipment.

Such an inconvenience can be overcome either using a stationary F 112 source (e.g. with P known and sufficiently constant during the whole test) or modifying the gascromatograph so to enlarge the response range and to sample up and downstream with the same equipment.

So, at the beginning, the job followed two main lines:

- a) set up of a F 112 vapours source with known and constant production speed;
 - b) modification of the available gascromatograph so to amplify the response range up to at least 4 - 5 decades.
- a) "Source" of Freon 112 vapours - among the various possible solutions examined to obtain such a "source", the type shown on fig. 7 has been chosen. Freon vapours, sublimating from an F 112 solid film deposited on the internal surface of some "bubble chambers" (kept at a constant temperature by the circulation of a fluid in the sleeve), are removed by an air-stream.

The results of tests carried out to determine the trend of the production rate as a function of the sleeve temperature and of the gas flow, are shown on fig. 8.

Stability tests showed that loading each refrigerator with 100 g of Freon 112, a constant P production rate is obtained until $1/5 + 1/4$ of the total Freon load is not removed.

The production is sufficient to carry out more than 10 efficiency tests on a $1.000 \text{ m}^3/\text{h}$ charcoal filter ($\Delta t > 60 \text{ min}$).

b) Modification and rating of the detecting system. Modifications of Varian Aerograph mod. 1200 have been carried out for the following purposes:

- 1) to obtain a better detecting stability;
- 2) to amplify the detecting range;
- 3) to simplify the sampling system.

The tritium detector, that formerly equipped the gascromatograph, has been replaced with Ni^{63} detector. Such detector, installed in May 1971, has not so far revealed any change of the reference current; such performance permits to avoid the gascromatograph calibration except in the case of replacement of the column.

The detector range response increase (from 2 - 3 to 5 decades) was obtained using a pulsing voltage for the detector. The relative calibration curves are shown on fig. 9.

The use of a sampling valve which injects 1 mm^3 or 1 cm^3 into the column allowed to obtain a "precolumn" dilution factor of 3 decades, so that the modified equipment range increases from the minimum detectable up to almost 8 decades.

The Freon 112 detecting equipment was finally set up using the PSICO 10 ventilation circuit (fig. 5). As for Freon 12, preliminary tests have been carried out with small active or impregnated charcoal beds.

TESTS ON FULL SIZE FILTERS

The various methods were improved by carrying out some efficiency tests on filters used on nuclear plants.

VOKES FILTER (overall dimensions 600 X 600 X 300).

This was a new filter, with a thickness of 2,5 cm of

active charcoal; during transport small charcoal pieces leaking through the grids were noted.

Tests have been carried out on the ventilation circuit of the PSICO 10 facility with the F 12 and F 112 methods.

a) Test with F 12.

The test was carried out in the following conditions:

$W = 135 \text{ m}^3/\text{h}$ corresponding to $v = 6,2 \text{ m/min}$
 $C_m = 550 \text{ ppm}$; $T_a = 25 \text{ }^\circ\text{C}$; $UR = 18\%$

The freon quantity downstream the filter was such to outscale the instrument. Therefore it is only possible to state that the efficiency, measured with the Freon 12 method, was lower than 99,8%.

b) Test with F 112.

The filter test conditions were:

$W = 380 \text{ m}^3/\text{h}$; $T_a = 24^\circ\text{C}$; $U.R. = 68\%$; ($T_c = 19 \text{ }^\circ\text{C}$;
 $W_p = 25 \text{ litres/min}$).

The time-efficiency curve concerning this test is shown on fig. 10.

The efficiency is only 99,79% probably because of a non complete filling of the filter supporting frame.

The slope of the efficiency-time curve is negligible; this is because of the F 112 quantity released from charcoal is negligible compared with that by-passing the filter through the preferential paths.

PSICO 10 FILTER (overall dimensions 600 X 600 X 300).

This is a filter with a 10 cm impregnated charcoal thickness, used for Iodine removal runs carried out with the PSICO 10. This is the only "old" filter on which were carried out efficiency tests.

The filter has not been conditioned before the tests.

a) Test with I^{131} tagged I2 vapours.

Two tests at two different rates were carried out, using an activity lower than 100 μCi on the whole.

Experimental conditions and results obtained are shown on table II: the filter efficiency variation as a function of the flow can be due to a pin-hole effect.(1).

b) Tests using F 112 freon.

Conditions for first test of the filter were:

$W = 350 \text{ m}^3/\text{h}$; $T_a = 27 \text{ }^\circ\text{C}$; $UR = 60\%$; ($T_c = 15 \text{ }^\circ\text{C}$;
 $W_p = 2.5 \text{ litres/min.}$)

Results are shown on fig. 11. Efficiency ξ_0 was 99,28%. (°).

Because of the filter thickness it is very unlikely that the rather low efficiency be due to penetration through the charcoal bulk. Most probably it is due to preferential paths at the boundary between the charcoal and the support frame and to a faulty sealing of the fittings. After 24 hours another test was carried out on the same filter, without desorption of the freon previously injected on the charcoal.

The operating conditions concerning this second test were: $W = 1000 \text{ m}^3/\text{h}$; $T_a = 27 \text{ }^\circ\text{C}$; $U.R.=55\%$;
($T_c = 25.5 \text{ }^\circ\text{C}$; $W_p = 3.5 \text{ litres/min.}$).

Test chromatogram is shown on fig. 12: a continuous penetration increase is noted (due to F 112 release which was previously absorbed by the charcoal).

Apparently the efficiency seems highly reduced compared with that revealed by the former test. But; if we consider the release of the freon previously absorbed by the charcoal (fig. 13) we have an $\xi_0 \approx 99\%$.

- (°) Higher ξ_0 value, referred to the other tests using I_2 , is due to a best charcoal compacting. This result is in good agreement with those obtained, in similar conditions, when we depressurized the PSICO 10 containment model after the tests on iodine removal by sprays the filter efficiency in iodine trapping is ranging between 99% and 99,6%.

TESTS CARRIED OUT ON THE TAPIRO REACTOR OF THE C.N.E.N. PLANT
AT CASACCIA.

With the F 112 method efficiency test were carried out on two active charcoal filters installed on the ventilation circuit of the TAPIRO reactor at the CASACCIA C.S.N..

The flow-sheet is shown in fig. 14.

Filter mod. VOKES D 8800 3/6 (overall dimensions 380 X 380 X 210). The filter is installed on the underpile room ventilation circuit and its charcoal thickness is 2,5 cm.

- Filter test conditions were:

$W = 115 \text{ m}^3/\text{h}$; $T_a = 19 \text{ }^\circ\text{C}$; UR = not measured; ($T_c = 11,5 \text{ }^\circ\text{C}$;
 $W_p = 1 \text{ litres/min.}$).

Test chromatogram is shown on fig. 15; the efficiency ξ_o is 99,88%. In this case too, no desorbing effect is noted; this is due also to the low frontal speed ($v \sim 12 \text{ m/min}$) of the air flowing through the filter.

- Filter mod. VOKES D 8800 3/3 (overall dimensions 300 X 300 X 140). The filter is installed on the by-pass of the TAPIRO main ventilation circuit line.

Filter test conditions were:

$W = 200 \text{ m}^3/\text{h}$; $T_a = 18 \text{ }^\circ\text{C}$; UR = not measured; ($T_c = 14.5 \text{ }^\circ\text{C}$;
 $W_p = 0.5 \text{ litres/min.}$).

Because of an error (the air pump was not operated in time) only two samplings were done (one at 6 min. and the other at 10 min. from injection) which gave the following results=

$\xi = 99.8\%$ at 6 min.

$\xi = 99.7\%$ at 10 min.

The increase of penetration with time at such low efficiencies, shows how, the air frontal speed was too high ($v = 35 \text{ m/min.}$).

A new test was carried out within 24 Hours.

Operating conditions were the same as for the previous test except for the temperature of the source chamber which was $T_c = 11,5 \text{ }^\circ\text{C}$.

The Chromatogram concerning the new test is shown on fig. 16, were is also shown the part concerning the release after F 112 injection was completed.

Considering the release due to the previous test, efficiencies were the following:

$\epsilon = 99,83\%$ a 2,75 min.

$\epsilon = 99,48\%$ a 5,25 min.

$\epsilon = 99,17\%$ a 7,00 min.

As one can see, the curve efficiency-time slope is further increased because of:

- 1) release of F 112 due to the first test;
- 2) numerical decrease of absorption centers due to the first test again.

TESTS PERFORMED ON THE IODINE FILTERING SYSTEM OF LATINA NUCLEAR POWER STATION.

The iodine filtering system is charged with impregnated coconut charcoal (Sutcliffe a Speakman Co. n° 207 B). A sample of this charcoal was tested in laboratory before its installation to verify the trapping efficiency (15).

The efficiency measurement of the filtering system with CH_3I is done in such a way to avoid damage of the exchange capacity of the filter.

The test line (a sketch is illustrated in fig. 17) is so conceived :

- An air stream flows through the filter, simulating the normal conditions (about 1.000 m³/h).
- In about 3 sec the amount of CH_3I is injected in the circuit.
- From the test points upstream and downstream the filter (fig. 17) air samples are drawn, during the injection time (about 5 minutes) through impregnated charcoal samples.
- With the same techniques air samples are drawn downstream the filter during the 5 hours following the injection and the sampling cartridges are changed every hour to evaluate the potential

release of CH_3I from the filter under test.

The amount of CH_3I and I^{131} are fixed during the preparation (15). An ionization chamber is used to ascertain the end of injection of the radioisotope into the circuit.

The flow through the sampling filters is measured using rotameters and is fixed at 400 lt/h corresponding to a transit time through the bed of 0.5 sec; to make sure the samplers to retain all the I^{131} two filters in series are used for the first measurement.

After the suction time the I^{131} entrapped in in each sampler is measured using a multichannel analyzer.

The measurements taken are collected in Tab. III.

The efficiency obtained in the various tests is about 95%. This value is acceptable; the tests prove that, following an accident, the activity released would be smaller than the amount calculated during the accident analysis.

TESTS CARRIED OUT AT TRINO VERCELLESE POWER PLANT.

The main component of the circuit for the absorption of the radioactive iodine, which could be present in the air of the annulus (fig. 18), is a bolted cell which contains active charcoal filter and absolute filters.

The overall dimensions of radioactive charcoal filter, type 416, manufactured by Barneby - Cheney Co., are 600 X X 600 X 300; the bed thickness is 1,3 cm.

This filter was tested at supplier Laboratory and it was declared to have a 99,9% efficiency at operating conditions.

The efficiency test, after the installation was completed, was performed in 1964 with the freon 12 method.

In order to carry out the test the ventilation circuit up and downstream the filter box was suitably modified as shown on fig. 18.

At that time the equipment for Freon 12 measurements was not available on the site; so reinforced phials having volumes of 1.000 cm^3 and 500 cm^3 were used to take samples

The test was performed as follows:

After start the fan, the diaphragm upstream the filter box was set up to have a 100 m³/h air flow and the heat resistances were adjusted so that the air temperature upstream the filter was about 23 °C.

The freon injection began with a flow of 45 dm³/h corresponding to a freon concentration in the air upstream the filters of about 450 ppm.

During freon injection (5 minutes) three air samplings were taken upstream and 10 downstream the filter at different times.

The 13 samples were sent for an external laboratory to be analyzed with an electronic capture gascromatograph, but only 8 were examined.

The results, reported on table IV, show that the active charcoal filter efficiency is about 99%.

Just one comment has to be expressed on the freon concentration upstream the filter. It was noted a fluctuation in concentration values upstream the filter, which is due to a faulty injection of air and freon.

The F 12 deposition could be the reason of the difference between foreseen and measured values of the upstream concentration.

Further tests were carried out with an installation control method using F 12 too.

Such tests are described on (15).

Conclusions

Satisfactory results obtained in setting up the instrumentation necessary for the different test methods, allowed to check their operating limits on plants and on full scale experimental loops. The results of this work also allow to plan the testing of the other Italian nuclear plants. It is foreseen to perform such tests in the next year.

In conclusion it can be said that all the methods allow to test filters or ventilation circuits which have penetrations of about 10⁻⁴. To choose between the different methods it is however necessary to have in mind their pecu-

liarities.

One can say that:

- F 12 method seems to be more suitable for testing filters or filtering installations which have never been operated;
- F 112 and CH₃I methods are specially advisable when periodical testing of filters or filtering installations is needed;
- I₂ method can be accepted only when test and operating conditions are not very different.

I₂ and CH₃I methods allow to test zeolite granular beds provided the test conditions are not very far from the real plant operating ones.

It must be kept well in mind that the above-mentioned methods allow to test installation condition only, but no information is given about the absorbing material. Due to the fact that the aim is to assess the right behaviour of the whole filtering assembly, it seems useful that cartridges filled with charcoal of the same lot, be installed together with the filter and be subjected to the same filter conditions. With these cartridges, absorbing material efficiency will be periodically measured in laboratory tests carried out at reference operating conditions (and in case of Iodine methods at the condition of in situ tests).

This allows to complete the installation efficiency analysis.

In situ, it can be sometimes difficult to have experimental conditions fit for the chosen method. In this connection it could be useful to test in advance one filter in order to state the best operating conditions in relation to plant features. Of course in new plants this drawback can be overridden if ventilation circuits are designed having in mind the following items:

- 1) Sampling points: the upstream sampling point must be situated as close as possible to the charcoal filter and far enough (20 diameters about) from tracer injection point; the distance is reduced if a mixing device is used (during the F 112 tests at the TAPIRO plant a rock wool prefilter was used).

As far as the downstream sampling is concerned, in order to have samples of the true tracer mean concentration it is advisable to put a flow mixing device close to the filter, or to use a multi-point sampling system

2) Choking and conditioning.

Due to the method restrictions it should be useful to prearrange, upstream the filter, systems which allow to choke and to heat the air which is flowing through the ventilation circuit; this in order to lower the charcoal water load and to control test flow rate during the test. In F 112 tests these systems should have the additional advantage of making it possible a desorption time reduction.

NOMENCLATURE

- a_m = activity collected by the upstream sampler (μCi).
- a_p = whole injected activity (μCi).
- a_v = activity collected by the downstream sampler (μCi).
- A = diffusion tube transversal section (cm^2).
- B.C. = detector background current.
- C_1 = CH_3I concentration in decaline (g/lit).
- C_m = upstream tracer concentration.
- C_v = downstream tracer concentration.
- d = diffusion tube diameter (cm).
- l = diffusion tube length (cm).
- L = chromatographic column length (cm).
- M = tracer molecular weight (g).
- p_v = tracer vapour pressure (atm).
- P = generation rate of tracer vapours ($\mu\text{g/min}$).
- Q = water load on the charcoal (%).
- R = ideal gas constant ($\text{lt.atm/}^\circ\text{K}$).
- R.F. = pulse rate-pulse width ratio of the power voltage of the E.C.D. ($\mu\text{s}/\mu\text{s}$).
- S = charcoal bed thickness (cm).

- t = time interval from freon injection start up (min.)
- T_a = temperature of the air passing through the filter ($^{\circ}\text{C}$).
- T_c = temperature of the tracer vapour generation device ($^{\circ}\text{C}$).
- T_{cL} = gaschromatographic column temperature ($^{\circ}\text{C}$).
- T_D = gaschromatographic detector temperature ($^{\circ}\text{C}$).
- T_{IN} = gaschromatographic injector temperature ($^{\circ}\text{C}$).
- UR = relative humidity of the air passing through the filter (%).
- v = frontal speed of the air passing through the filter (m/min.).
- V_a = power voltage of the E.C.D. (V).
- W = flowrate through the filter (m^3/h).
- W_G = nitrogen flowrate through the chromatographic column (cm^3/min).
- W_m = flowrate through the upstream sampler (m^3/h).
- W_p = flowrate of the air carrying tracer vapours (l/min.).
- WPG = nitrogen flowrate to purge the gaschromatographic detector (cm^3/min).
- W_v = flowrate through the downstream sampler (m^3/h).
- α = electrometer attenuation.
- Δ_t = efficiency test length.
- ε = filter efficiency measured at the time t .
- ε_0 = filter efficiency extrapolated at the initial time.
- ε_{mn} = absorbing material efficiency in the reference operating conditions.
- ε_{mp} = absorbing material efficiency in the test conditions.
- ε_p = installation efficiency in the test conditions.
- ε_t = installation efficiency in the reference operating conditions.
- ϕ_i = gas chromatographic column internal diameter.

ACKNOWLEDGEMENTS

A reverent thought is addressed to Ing. Maurizio PERINETTI of C.N.E.N. recently died in tragic circumstances. Jointly with Ing. Carlo ZAFFIRO for his contribution to the development of the research program (sponsored by the Safety and Control Division of the C.N.E.N.) on in situ testing of filtering assemblies of nuclear plants.

We want also extend our thanks to Dr. Nedo GELSOMINI of the Organic Chemical Institute of the Florence University and Engrs. E. VETTORI, M. CAVICCHI, P.D. ADORNI-FONTANA and L. RICCI for their contribution to the improvement of the test methods.

LIST OF THE FIGURES

- Fig. 1: Iodine vapour generation device.
- Fig. 2: I₂ generation rate from the device of Fig. 1.
- Fig. 3: CH₃I vapour production trend against carrier gas rate and temperature.
- Fig. 4: Calibration curve of the Freon 12 detection equipment, in its ultimate arrangement.
- Fig. 5: Flow-sheet of the ventilation circuit of the PSICO 10 facility.
- Fig. 6: Freon 12 release time versus stay time.
- Fig. 7: Schematic of Freon 112 vapour generation apparatus.
- Fig. 8: Trend of Freon 112 generation rate against carrier gas rate and temperature.
- Fig. 9: Calibration curve of the Freon 112 detection equipment.
- Fig. 10: Time-efficiency curve of 600 x 600 x 300 VOKES filter, during the Freon 112 test.
- Fig. 11: Time-efficiency curve for the charcoal filter of the PSICO 10 facility, during the Freon 112 test.
- Fig. 12: Chromatogram of the second Freon 112 test on the charcoal filter of the PSICO 10 facility.
- Fig. 13: Release of Freon 112 from the charcoal after the tests on the PSICO 10 facility filter.
- Fig. 14: Flow-sheet of the "TAPIRO" ventilation circuit.
- Fig. 15: Chromatogram of the Freon 112 test on the 380 x 380 x 210 VOKES filter.
- Fig. 16: Chromatogram of the second Freon 112 test on the 300 x 300 x 140 VOKES filter.
- Fig. 17: LATINA nuclear power station absorption circuit of active iodine.
- Fig. 18: TRINO VERCELLESE nuclear power station annulus ventilation circuit.

TABLE I : PROPERTIES AND TEST CONDITION LIMITS FOR SOME FREONS.

Freon	Boiling point (°C)	Minimum detectable concentration in air (ppm)	Test condition limits		
			v (m/min)	Ta (°C)	Q (%)
F12 (CCl ₂ F ₂)	-29,8	0,03	6	30	5
F11 (CCl ₃ F)	23,8	0,0003	20	30	12,5
F114 B2 (CBrF ₂ -CBrF ₂)	47,3	0,0005	20	30	20
F113 (CCl ₂ F-CClF ₂)	47,6	0,005	20	30	25
F112 (CCl ₂ F-CCl ₂ F)	92,8	0,001	20	30	27

TABLE II : EXPERIMENTAL CONDITIONS AND RESULTS OF THE TEST RUN ON PSICO 10 FILTER WITH IODINE TEST METHOD.

Temperature (°C)	Relative Humidity (%)	Rate (m ³ /h)	Upstream iodine concentration (mg/m ³)	Efficiency (%)
32 ± 1	60 ± 2	263 ± 9	0,342 ± 0,024	98,32 ± 0,34
28 ± 1	56 ± 1	986 ± 29	0,140 ± 0,011	99,10 ± 0,08

TABLE III

DATE	TIME (h)	UPSTREAM CH ₃ I CONCENTRATION		DOWNSTREAM CONCENTRATION		SUCTION TIME (min)	RELATIVE HUMIDITY (%)	TEMPERAT. (°C)
		I FILTER (cpm)*	II FILTER (cpm)*	I FILTER (cpm)*	II FILTER (cpm)*			
8 Sept. 1967	0	2660	background	50	background	5	60	26.2
	1	-	-	background	-	60	60	26
	2	-	-	background	-	60	52	26
	3	-	-	background	-	60	60	25.5
	4	-	-	background	-	60	65	25
	5	-	-	background	-	60	65	24
30 Sept. 1968	0	131543	background	5307	background	5	69	22.8
	1	-	-	39	-	60	90	22
	2	-	-	background	-	60	90	22
	3	-	-	background	-	60	90	20
	4	-	-	background	-	60	90	19
	5	-	-	background	-	60	90	18
19 Dec. 1969	0	95539	134	4106	background	5	86	10
	1	-	-	26	-	60	90	9.6
	2	-	-	background	-	60	94	9.6
	3	-	-	background	-	60	82	9.0
	4	-	-	background	-	60	86	8.2
	5	-	-	background	-	60	86	8.2
11 Dec. 1970	0	77000	204	3334	background	5	57	15.2
	1	-	-	background	-	60	62	15
	2	-	-	background	-	60	70	13.2
	3	-	-	background	-	60	76	12
	4	-	-	background	-	60	76	10.4
	5	-	-	background	-	60	86	9
17 Gen. 1972	0	100700	60	3100	60	5	52	13.8
	1	-	-	100	-	60	52	13.8
	2	-	-	background	-	60	49	15
	3	-	-	background	-	60	47	15
	4	-	-	background	-	60	48	14.2
	5	-	-	background	-	60	66	11
17 Sept. 1973	0	52205	160	2840	10	5	65	25
	1	-	-	background	37	60	65	25
	2	-	-	background	-	60	67	26
	3	-	-	background	-	60	70	26
	4	-	-	background	-	60	72	26
	5	-	-	background	-	60	75	26

* Cpm are referred to the peak area at 364 KeV free from background. Measures are made by spectrometrie using Na I (Tl) 3"x3" crystal.

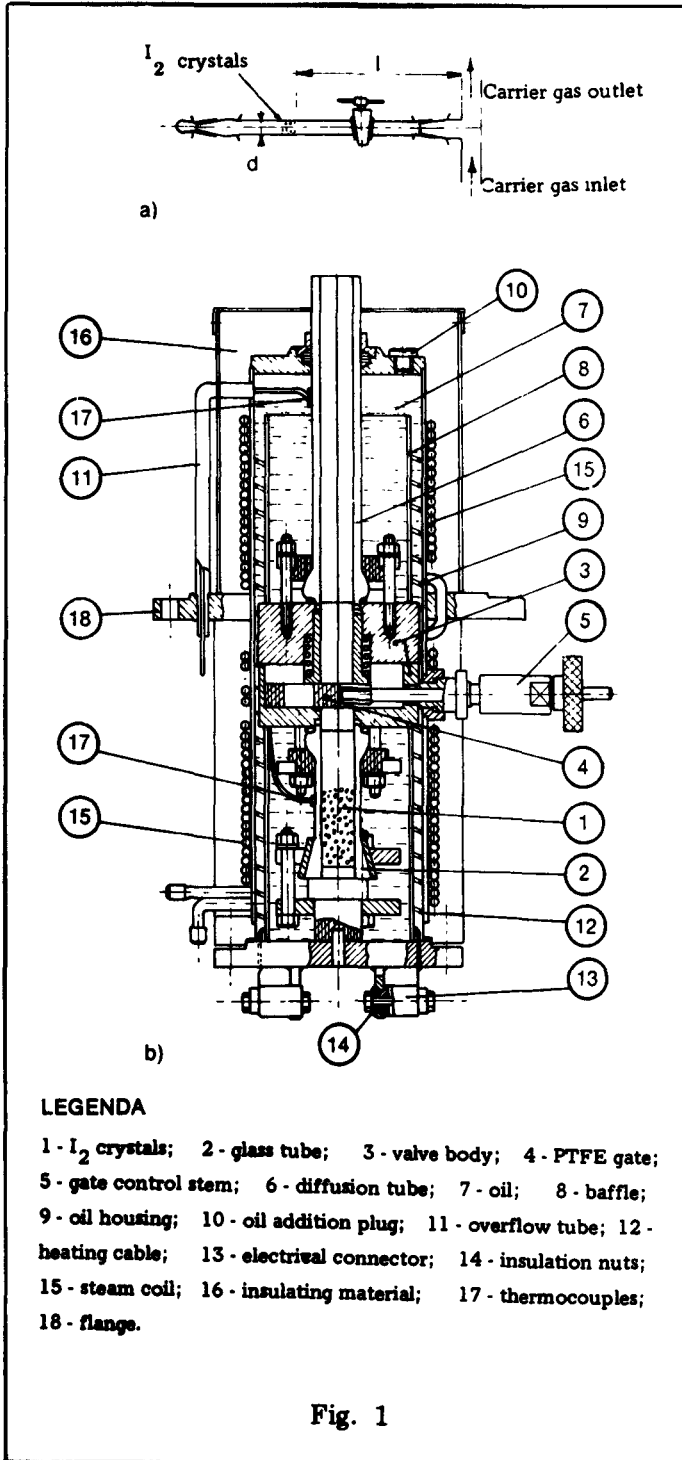
TABLE IV

Total flow-rate (m ³ /h)	F 12 flow-rate (litres/h)	Elapsed Time (sec)	Freon 12 upstream concentration (ppm)	Freon 12 downstream concentration (ppm)	Efficiency (%)
102	45	30	240	1	99.6
		60	-	1.1	99.6
		90	-	2.1	-
		150	350	-	-
		180	-	3.0	99.1
		270	290	-	-
		300	-	4.0	-

R E F E R E N C E S

- (1) KEILHOLTZ G.W.: Filters, Sorbents as Engineered Safeguards in Nuclear Installations - ORNL-NSIC-13.
- (2) MISHIMA J.: Review of Methyl Iodide Behaviour in Systems Containing Airborne Radioiodine - BNWL 319-1966.
- (3) MAECK W.J. ET AL.: A Highly Efficient Inorganic Adsorber for Airborne Species - 10th Air Cleaning Conf.-1968 Conf. 680821.
- (4) WILHELM J. G.: Trapping of Fission Product Iodine with Silver Impregnated Molecular Sieves - International Congress on the Diffusion of Fission Products, Saclay (France) 4-6/XI/1969.
- (5) SWANKS J.H.: In-place Iodine Filter Testing - IX AEC Air Cleaning Conference, CONF 660904, Boston, September 1966.
- (6) WILFELM J.G.: Testing of Iodine Filters for Nuclear Installations - Symposium on Treatment of Airborne Radioactive Wastes SM-110/60, New York, August 1968.
- (7) BUONAMICI R. ET AL.: Dispositivi per la produzione controllata di vapori di iodio - Ed. Tecnico Scientifica, Pisa 1968.
- (8) L. ARGIERO ET AL.: Preparazione di sorgenti di iodio in cristalli, tracciato con I^{131} "La Chimica e l'Industria" Vol. 53 - N. 11 - Novembre 1971.
- (9) D.H.F. ATKINS - G.M. ARKELL: "The preparation of radio iodine labelled methyl iodide by an exchange process". AERE-R-4823 del 1965.
- (10) MUHLBAIER D.R.: Standardized Nondestructive Test of Carbon Beds for Reactor Confinement Applications - DP 1082, Savannah River Laboratory, July 1966.
- (11) MUHLBAIER D.R.: Non Destructive Test of Carbon Beds for Reactor Containment Applications - Progress Report Apr-June 1964 - DP 920 Savannah River Laboratory, 1964.
- (12) MUHLBAIER D.R.: Standardized Non Destructive Test of Carbon Beds Reactor Containment Applications - Progress Report July - Sept. 1964 - DP 950 Savannah River Laboratory, 1964.

- (13) MUHLBAIER D.R.: Non Destructive Test of Carbon beds for Reactor Confinement Applications - Progress Report Oct. 1964 - Jan. 1966 - DP 1053 Savannah River Laboratory 1966.
- (14) PETERS A.H. MUHLBAIER D.R.: Nondestructive Test of Carbon Beds for Reactor Containment Applications - Progress Report June 1962 - December 1963 - DP 870 Savannah River Laboratory Feb. 1964.
- (15) F. FIORENTINO - S. MALOSSI - G. MESSORE - SACCO - "Operating experience with iodine filtering system in Italian nuclear power plants".



LEGENDA

- 1 - I_2 crystals; 2 - glass tube; 3 - valve body; 4 - PTFE gate;
5 - gate control stem; 6 - diffusion tube; 7 - oil; 8 - baffle;
9 - oil housing; 10 - oil addition plug; 11 - overflow tube; 12 -
heating cable; 13 - electrical connector; 14 - insulation nuts;
15 - steam coil; 16 - insulating material; 17 - thermocouples;
18 - flange.

Fig. 1

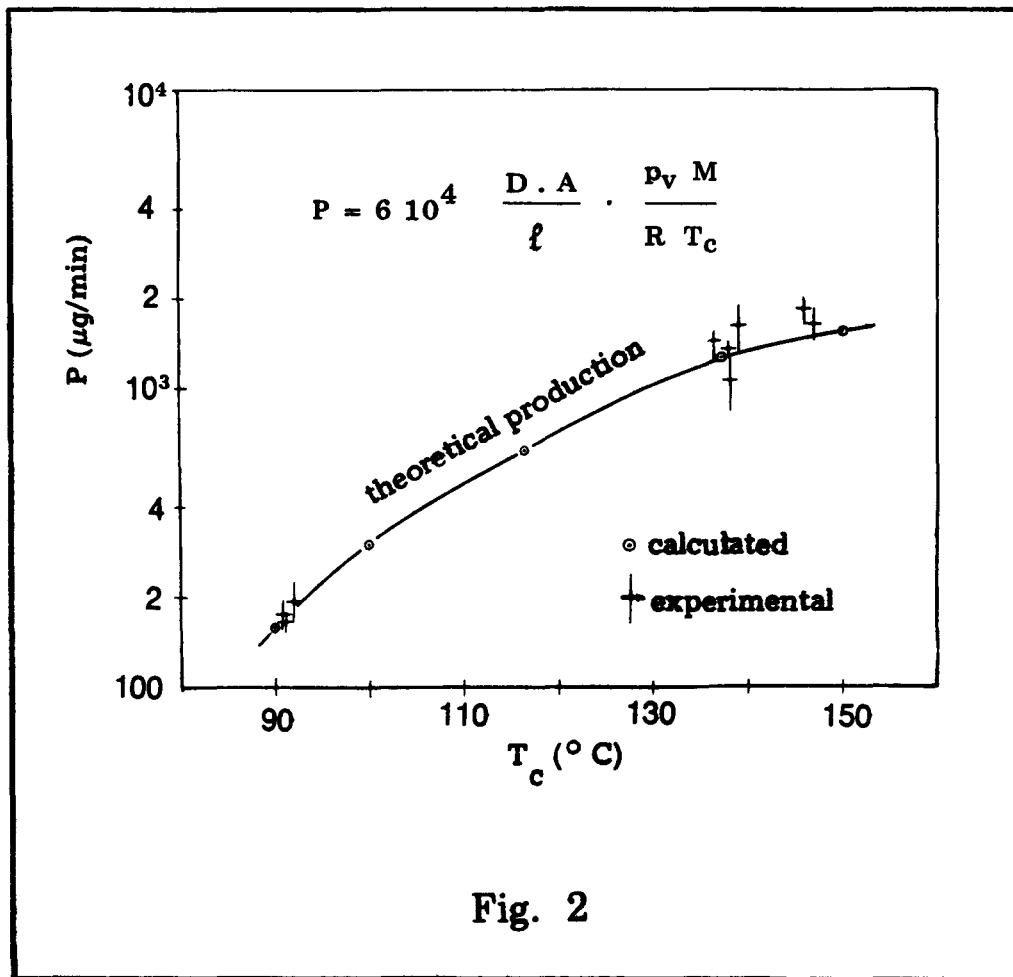


Fig. 2

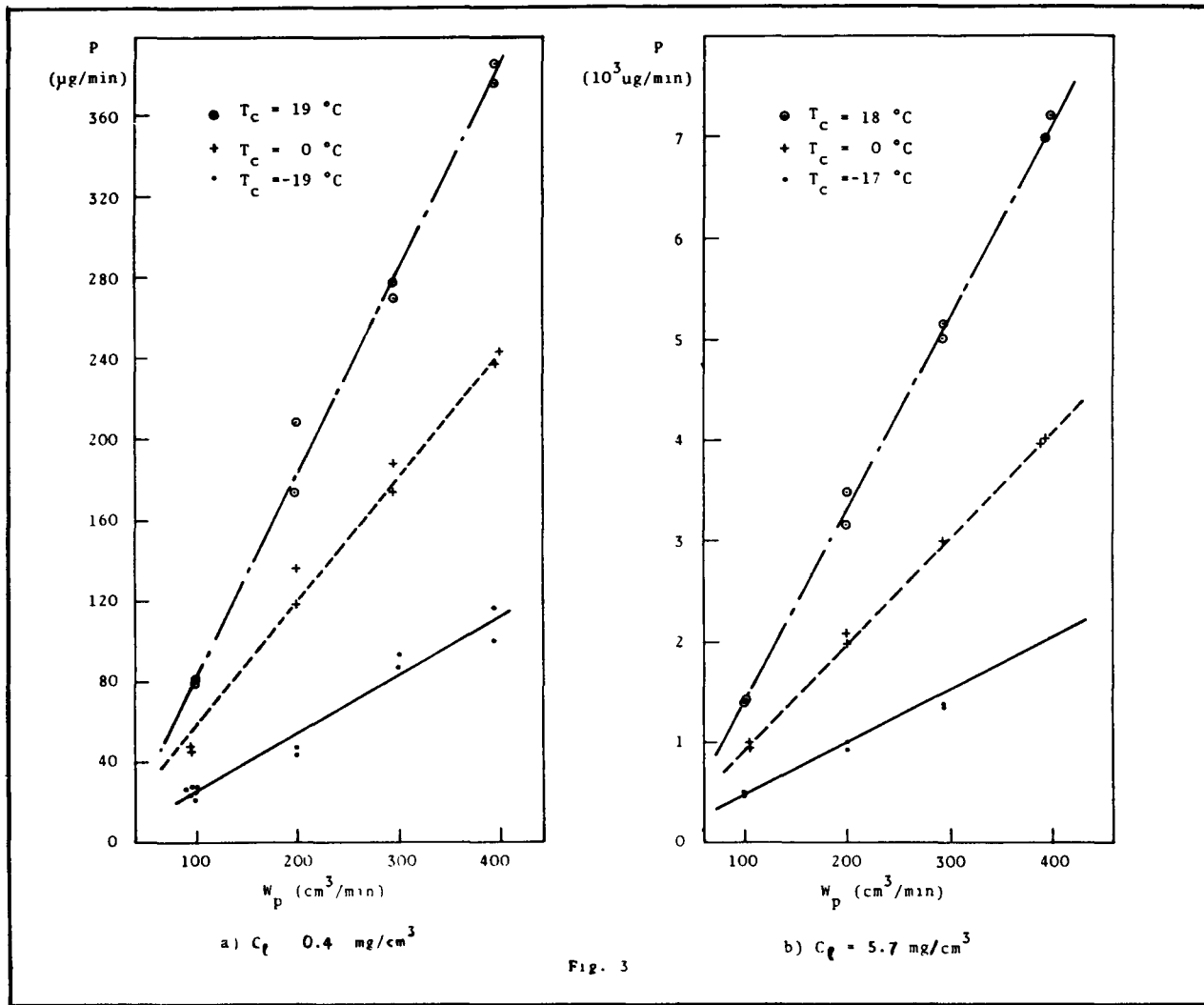


Fig. 3

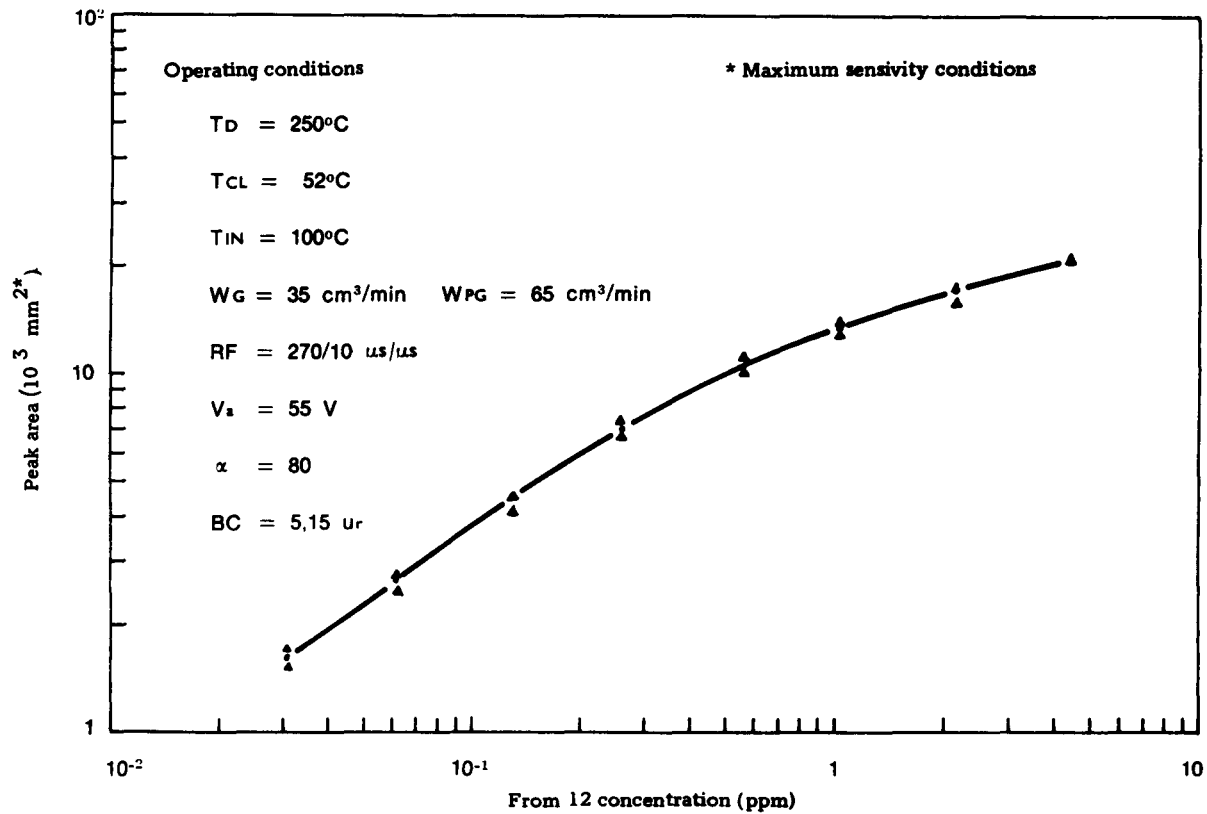
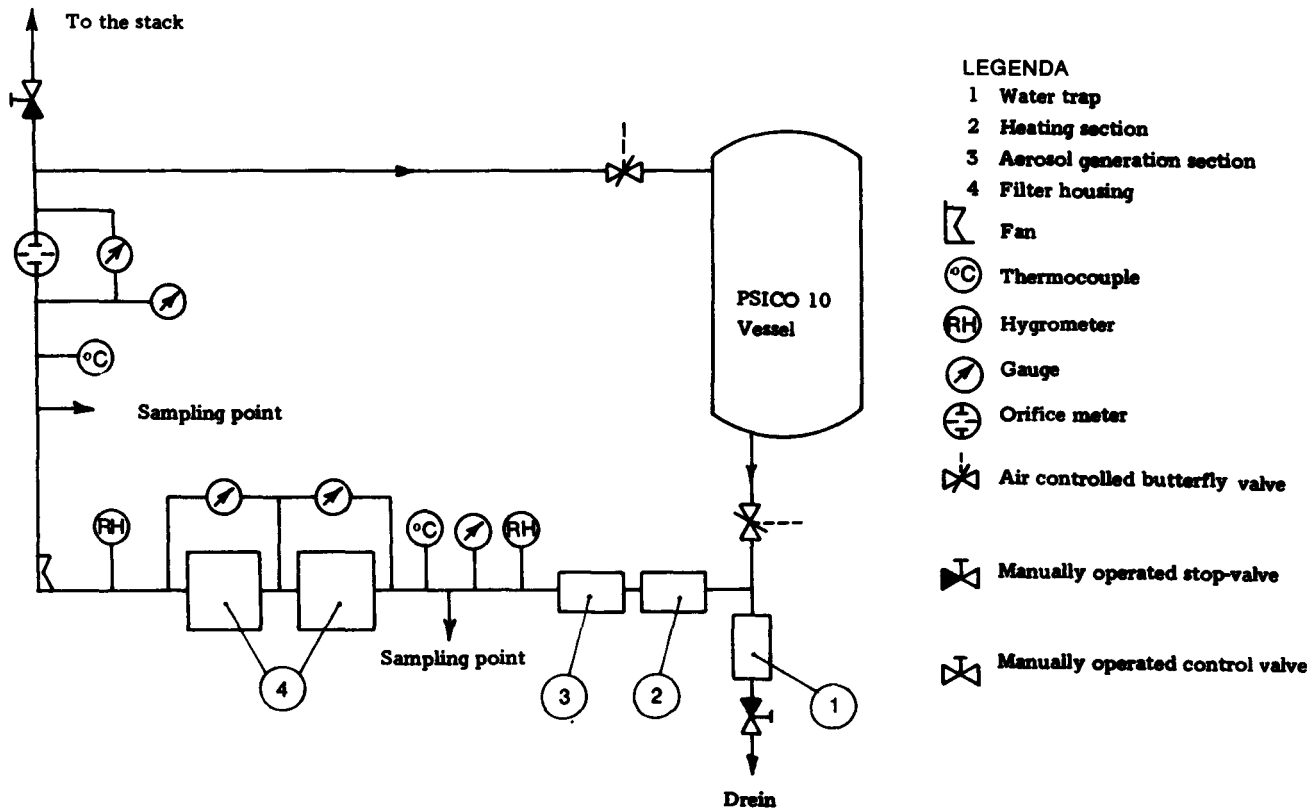


Fig. 4











- LEGENDA**
- 1 Water trap
 - 2 Heating section
 - 3 Aerosol generation section
 - 4 Filter housing
 -  Fan
 -  Thermocouple
 -  Hygrometer
 -  Gauge
 -  Orifice meter
 -  Air controlled butterfly valve
 -  Manually operated stop-valve
 -  Manually operated control valve

Fig. 5

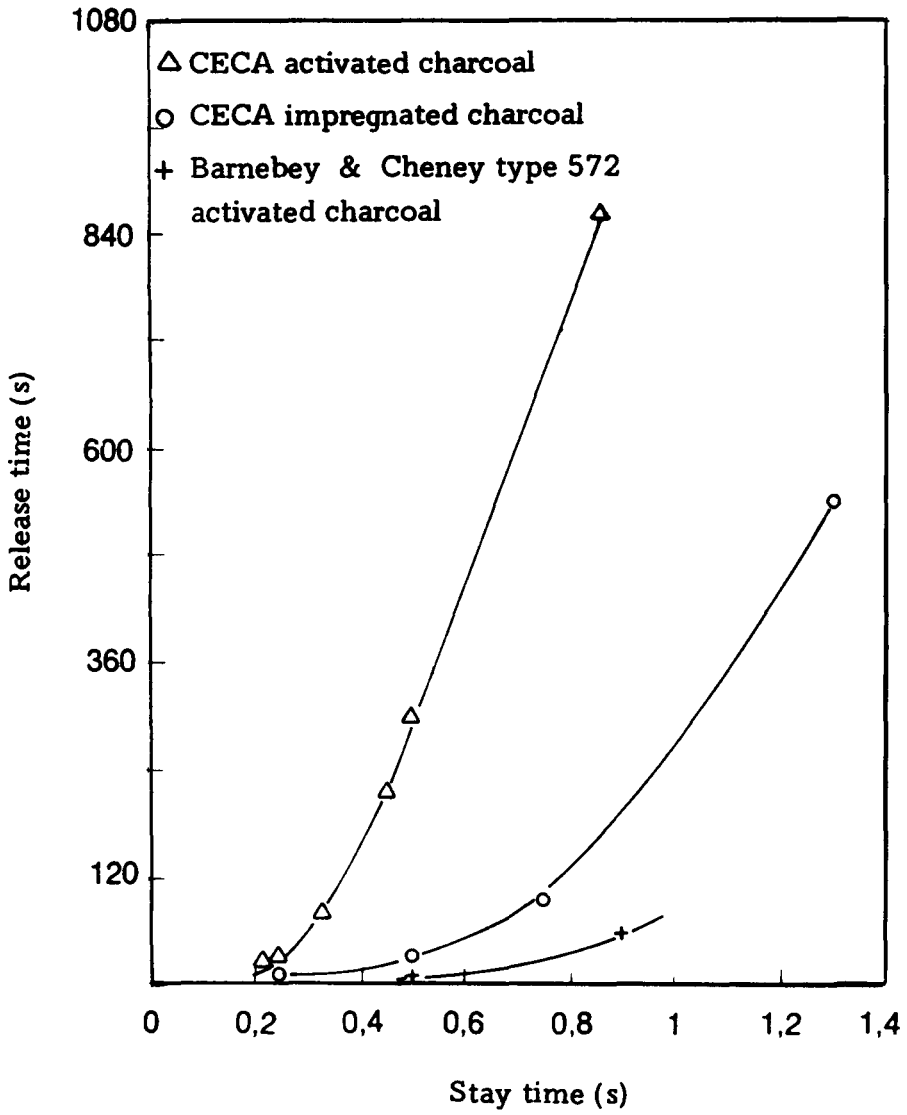


Fig. 6

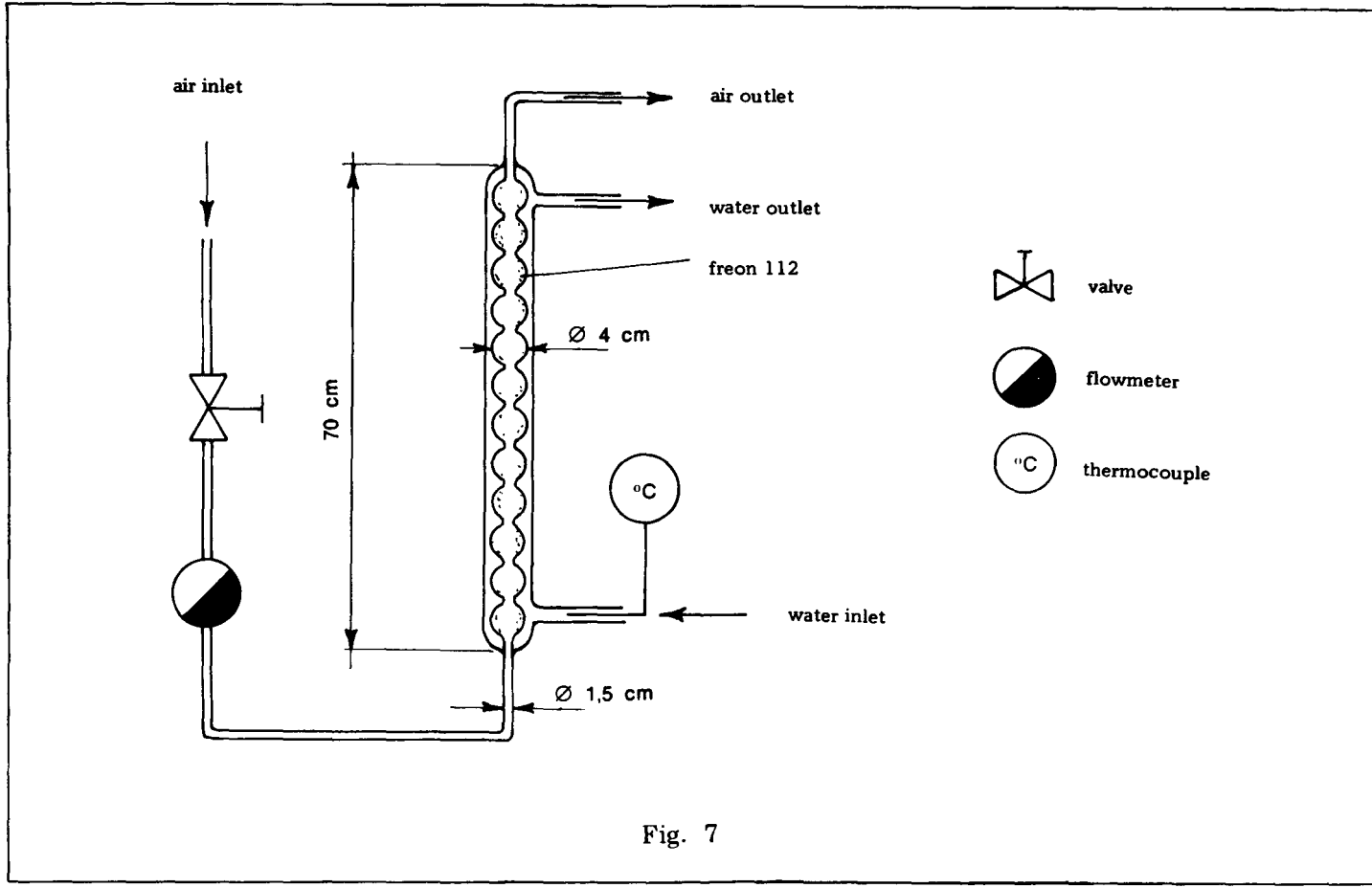


Fig. 7

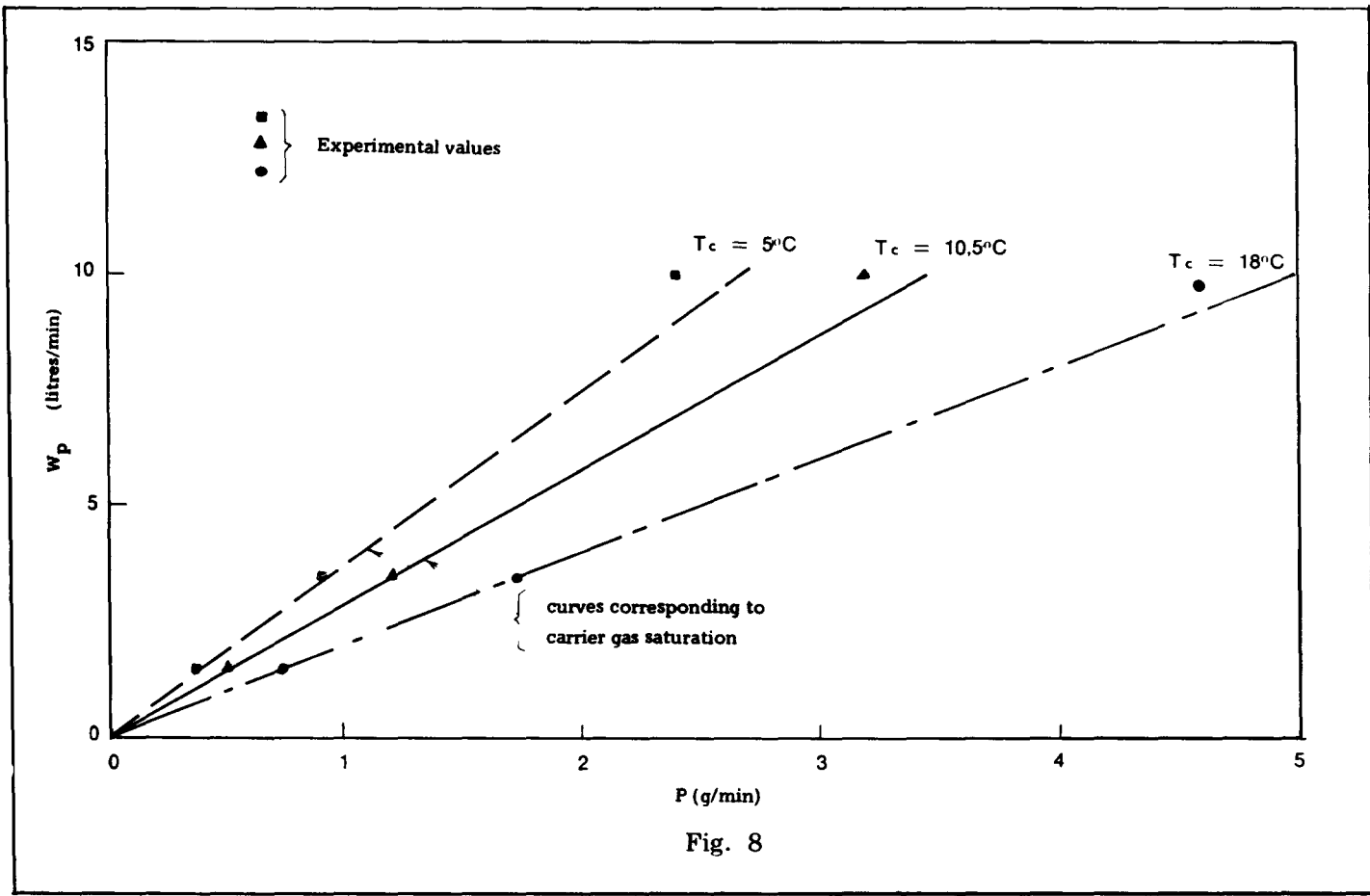


Fig. 8

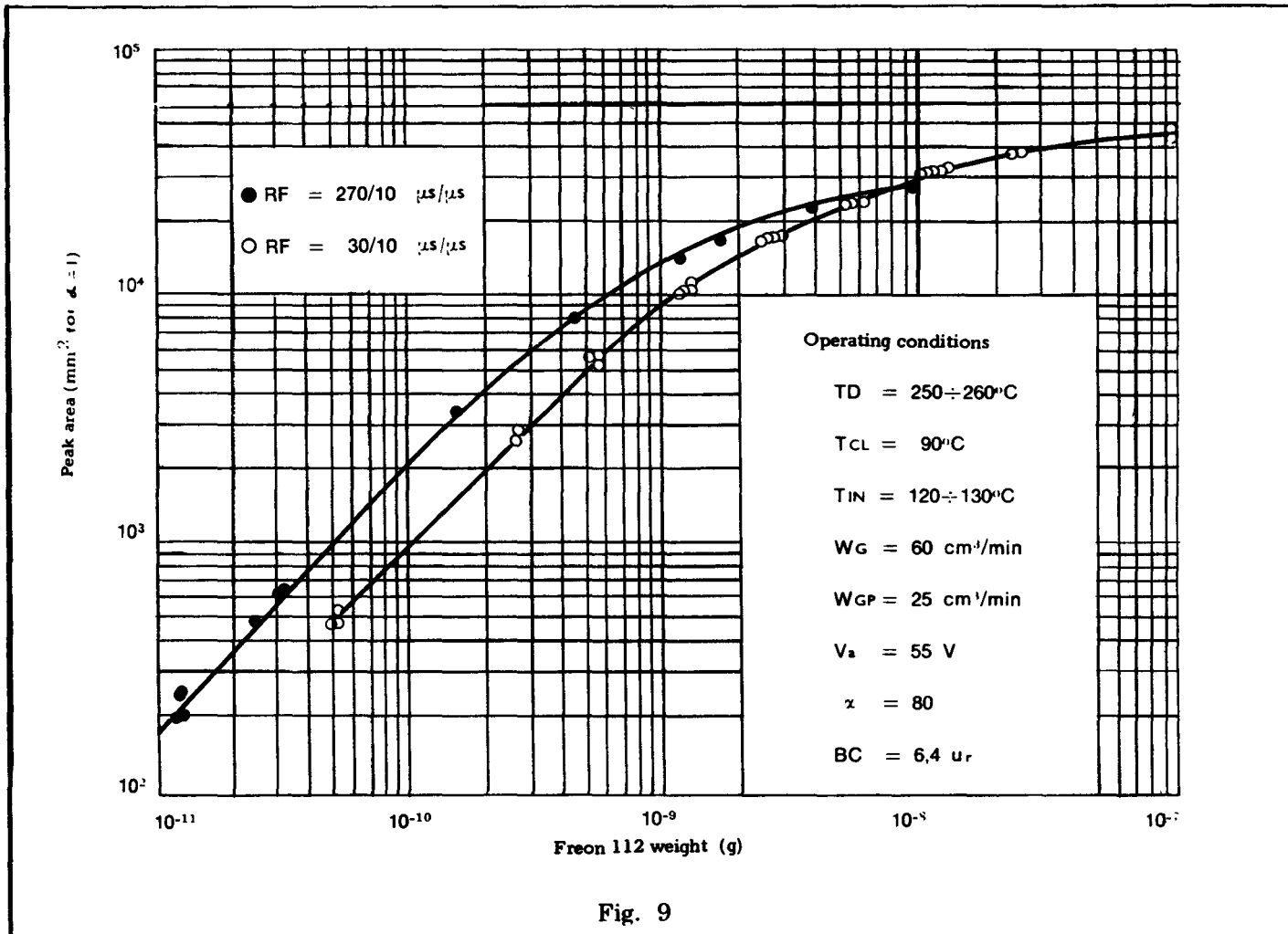
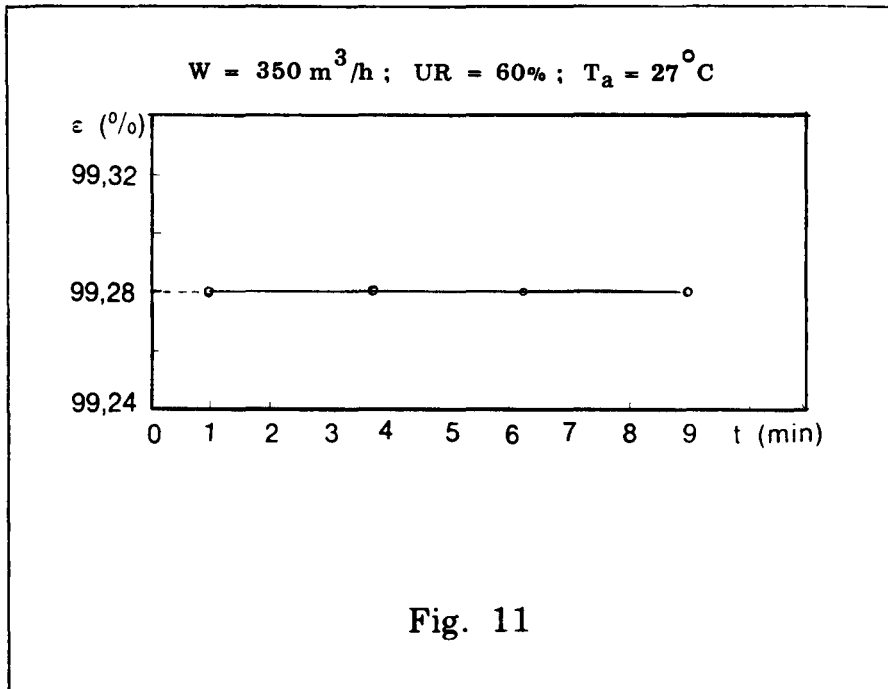
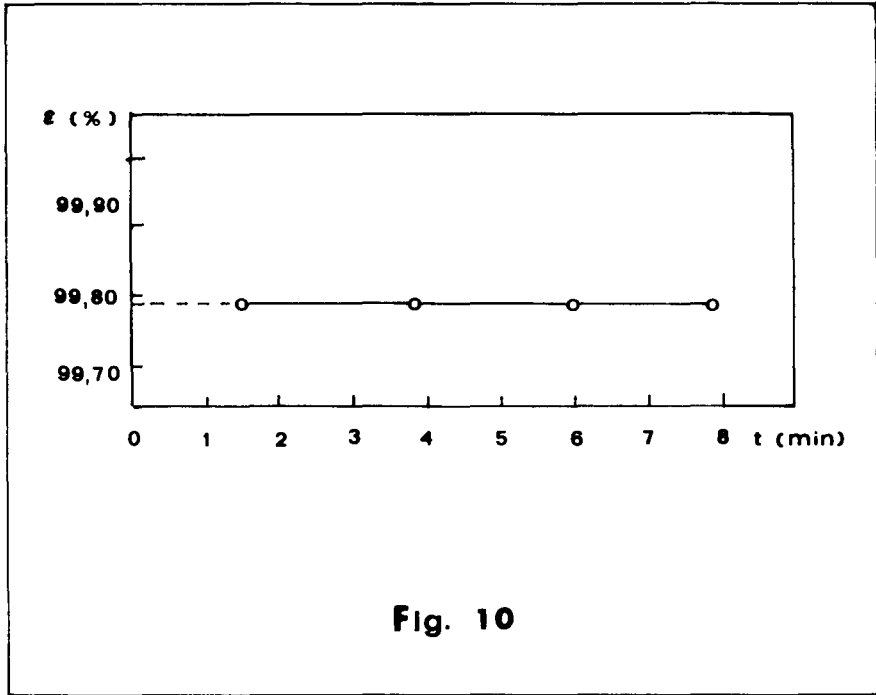
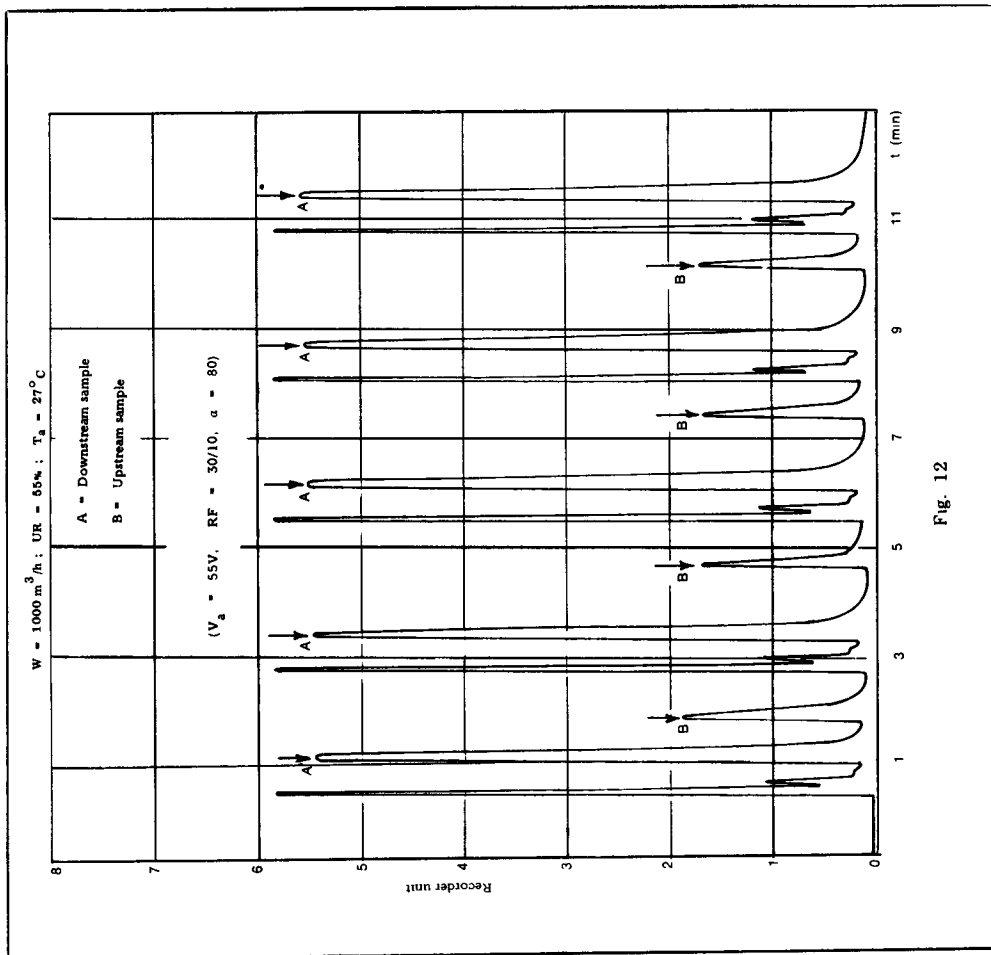


Fig. 9





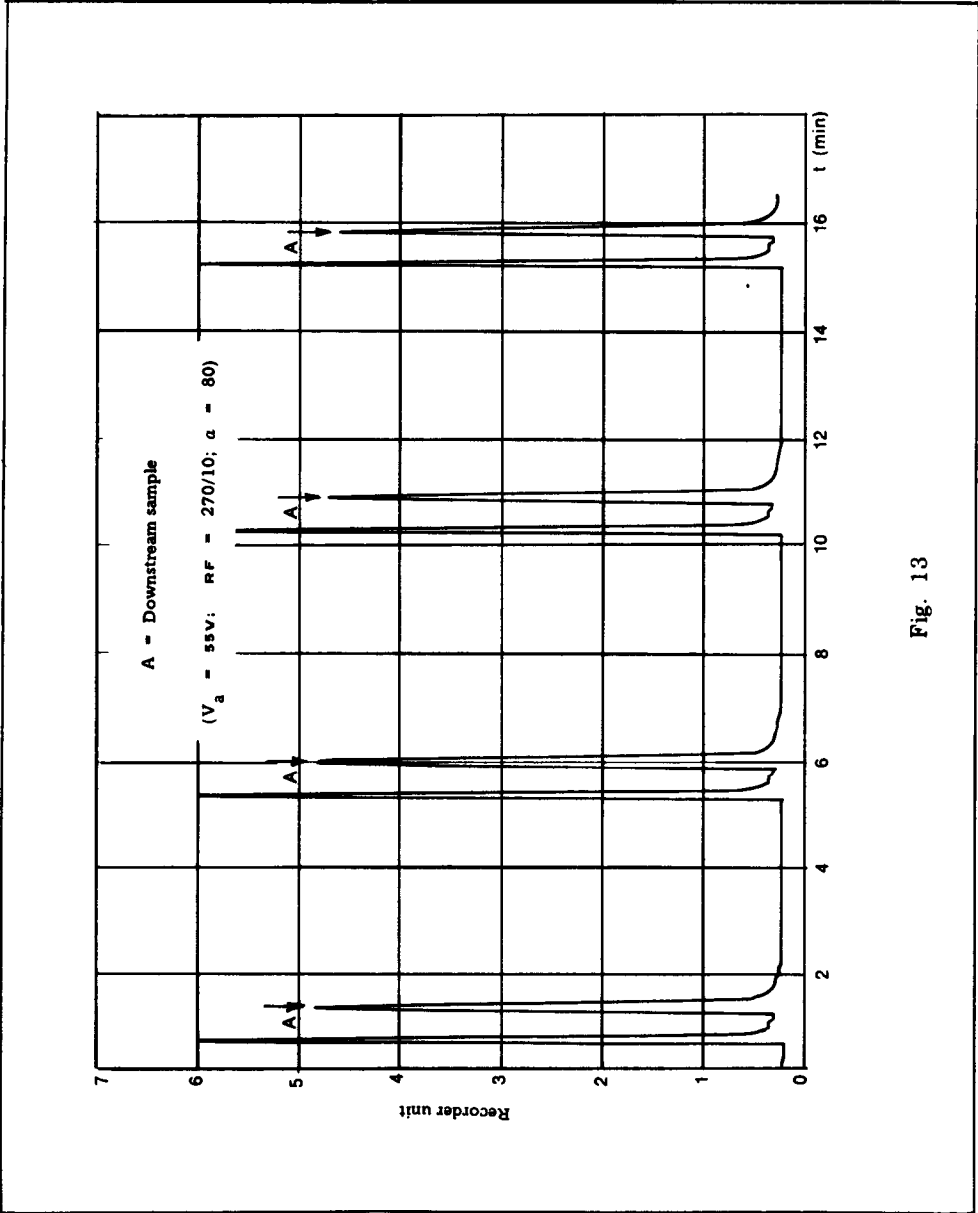
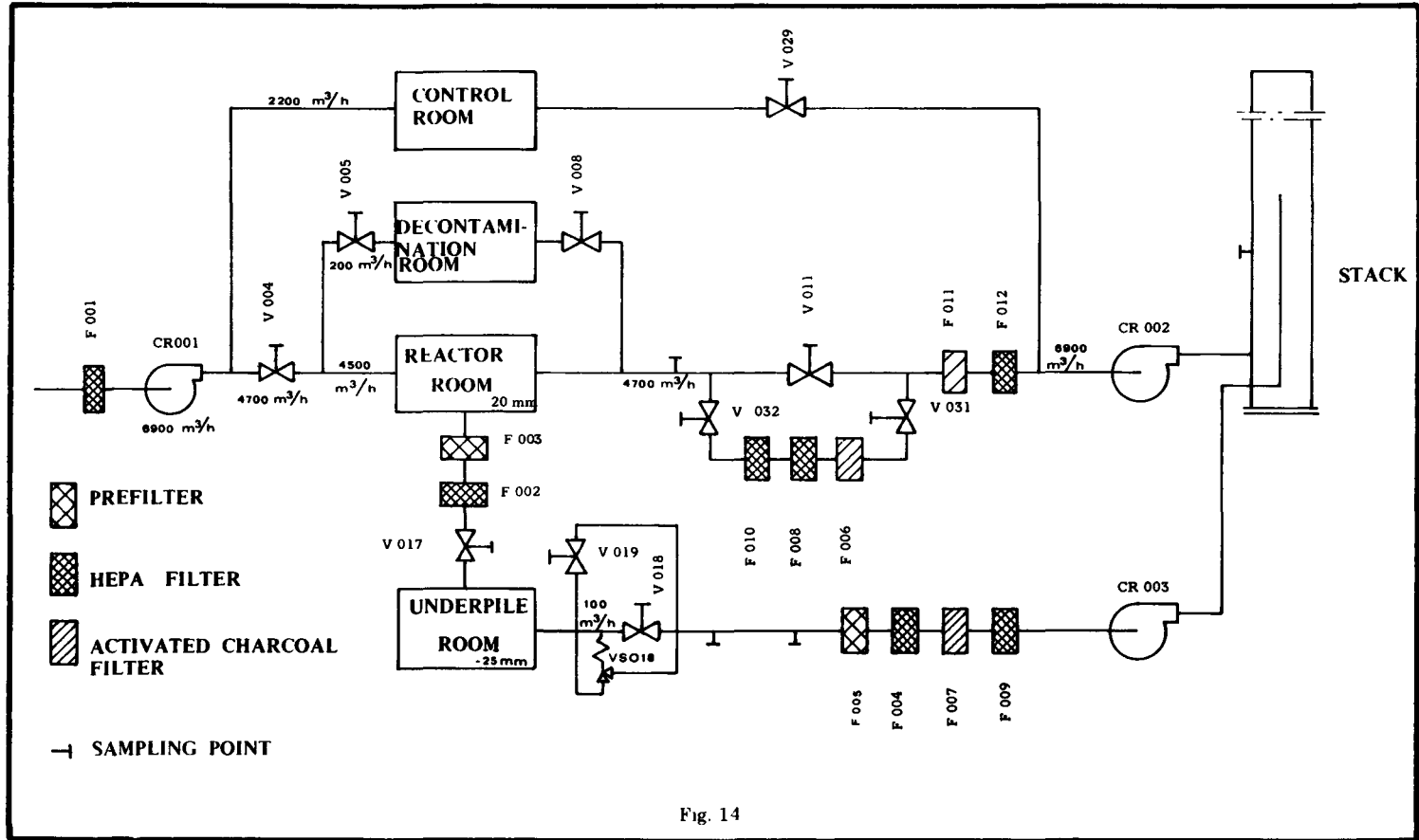


Fig. 13



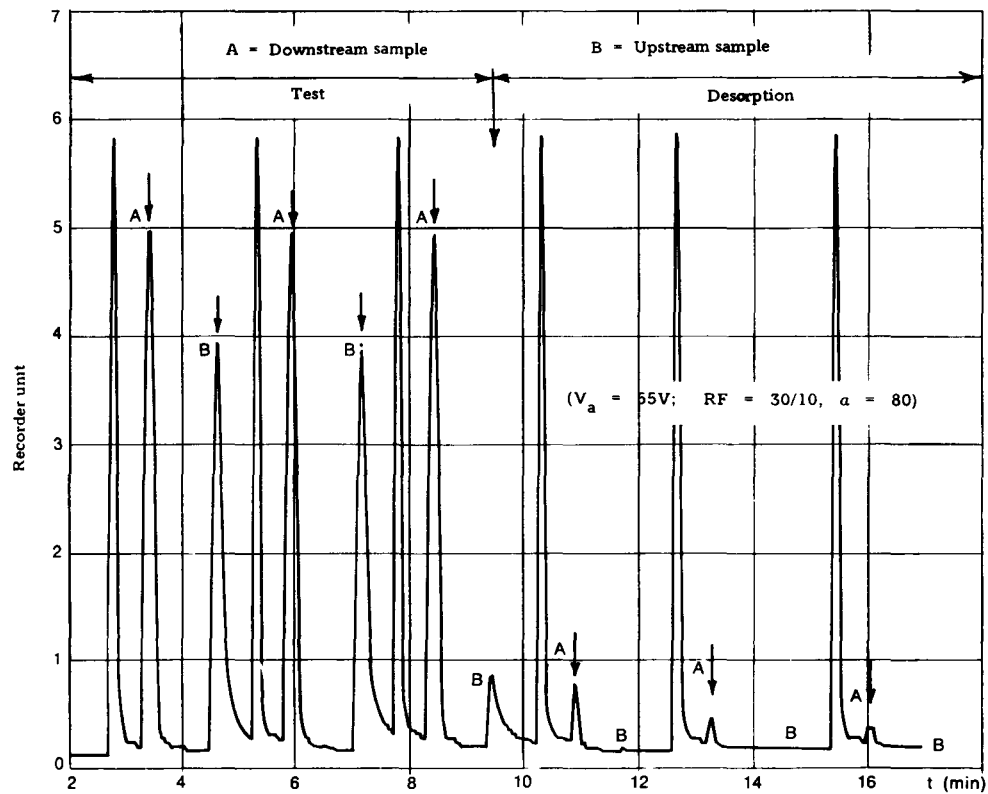
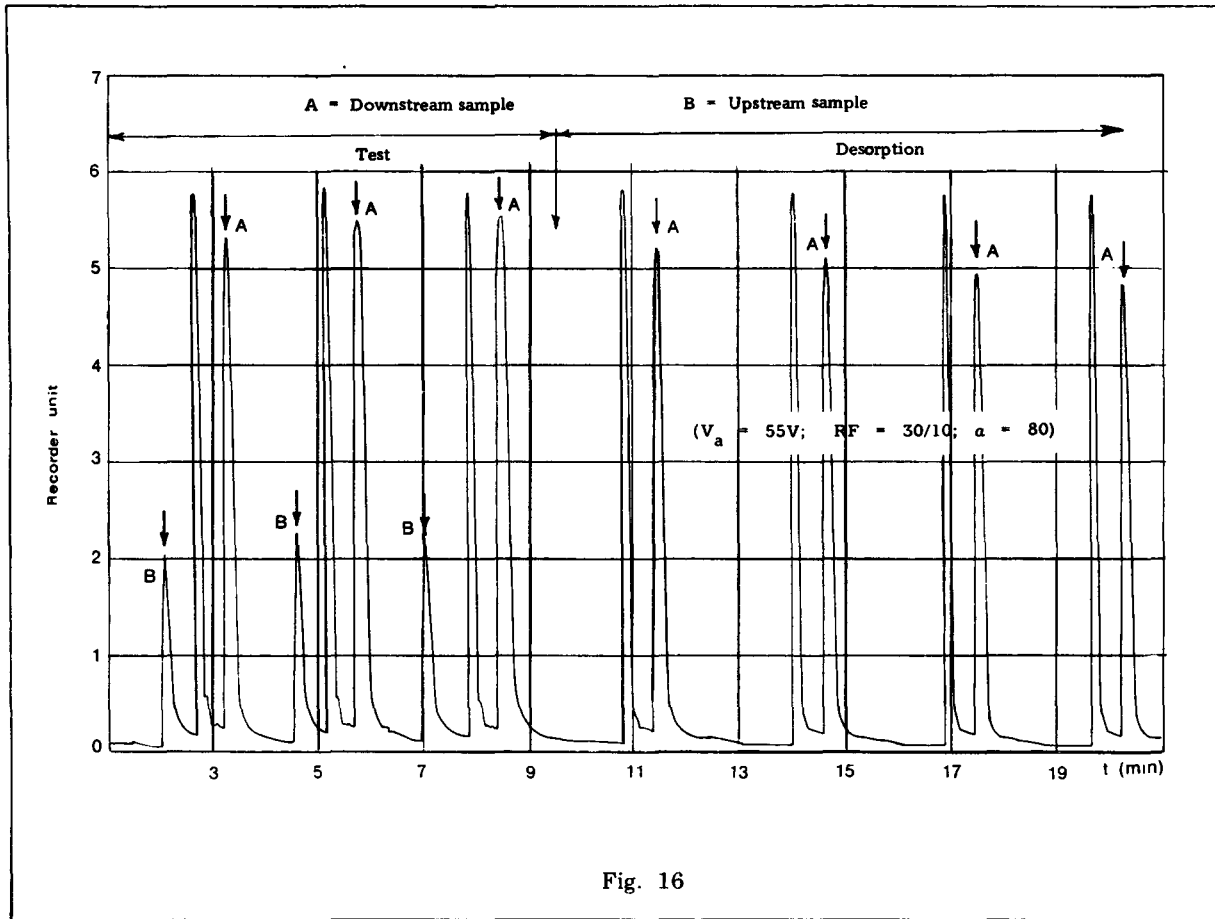


Fig. 15



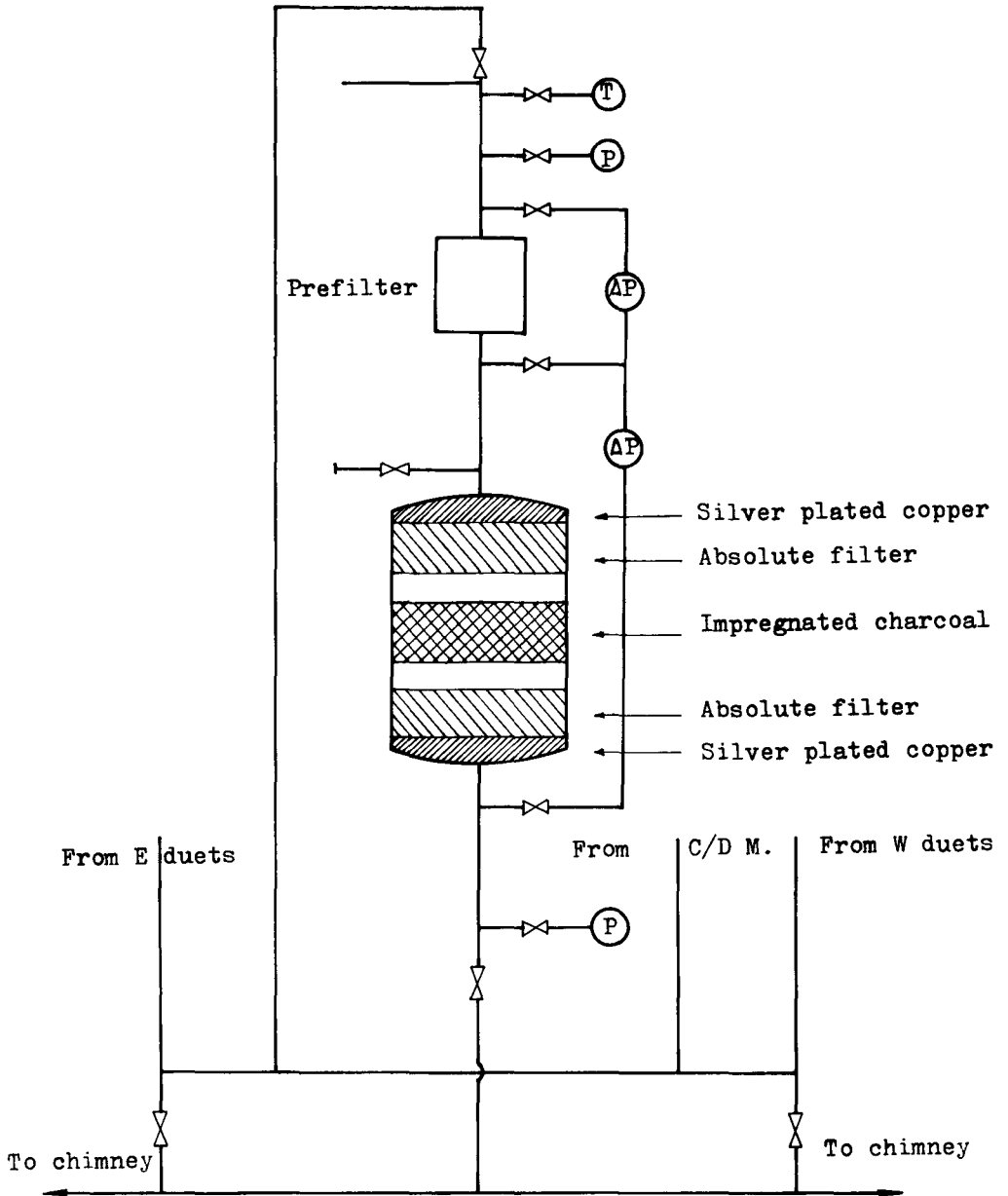


Fig. 17

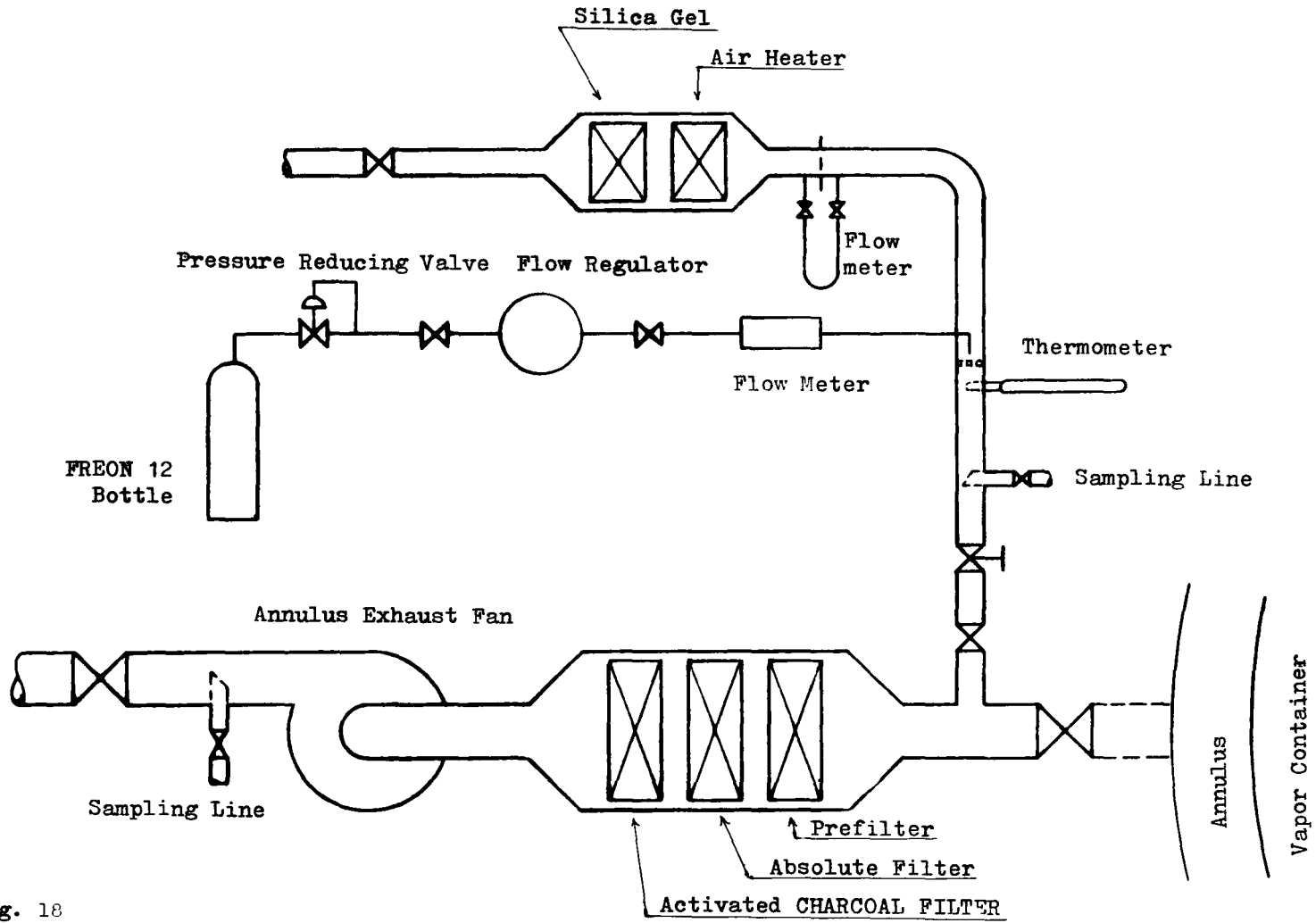


Fig. 18

METHODS USED AT KEMA FOR MEASURING IODINE ADSORPTION
ON CHARCOAL AND EXPERIENCES WITH CHARCOAL FILTERS
INSTALLED AT A NUCLEAR POWER PLANT

G. van der Lugt and L.C. Scholten

KEMA

Arnhem - Netherlands

SUMMARY. At the KEMA reactor laboratory an installation is built for the measurement of the adsorption of iodine by small beds of charcoal.

The temperature, humidity, dimensions of the bed and the flow velocity of the air in the bed are variable.

A description of the apparatus is given, especially the differences with other similar installations. Methods for in-place testing of charcoal filters are shortly described.

Experiences with iodine filters installed since 1968 at the Dodewaard nuclear power plant are given. Samples of charcoal used in these filters were measured periodically at our laboratory.

RESUME. METHODES UTILISEES A LA KEMA POUR MESURER L'ADSORPTION D'IODE SUR CHARBON ACTIF ET EXPERIENCE DES FILTRES A CHARBON ACTIF INSTALLES DANS UNE CENTRALE NUCLEAIRE. Le laboratoire nucléaire de la KEMA est équipé d'une installation de mesure de l'adsorption d'iode sur de petits lits de charbon actif. La température, l'humidité, les dimensions du lit et la vitesse d'écoulement de l'air dans ce lit sont variables.

Les auteurs décrivent l'appareil, notamment en quoi il diffère d'autres installations similaires.

Ils indiquent brièvement les méthodes d'essai in situ des filtres à charbon actif.

Ils exposent l'expérience des filtres à iode installés depuis 1968 à la centrale nucléaire de Dodewaard. Des échantillons de charbon actif utilisés dans ces filtres ont été mesurés périodiquement à notre laboratoire.

KURZFASSUNG. IM "INSTITUUT VOOR KEURING VAN ELEKTROTECHNISCHE MATERIALEN ARNEHM (KEMA)" ANGEWANDTE METHODEN ZUR MESSUNG DER JODADSORPTION IN AKTIVKOHLE UND ERFAHRUNGEN MIT AKTIVKOHLEFILTERN IN EINEM KERNKRAFTWERK. Im Reaktorlaboratorium der KEMA wird eine Anlage für die Messung der Jodadsorption mittels kleiner Aktivkohleeinsätze gebaut.

Die Temperatur, die Feuchte, die Abmessungen des Betts und die Geschwindigkeit des Luftstroms in dem Bett können vorgegeben werden. Die Anlage und insbesondere ihre Besonderheiten gegenüber ähnlichen Anlagen werden beschrieben.

Methoden für eine Prüfung der Aktivkohlefilter an Ort und Stelle werden kurz umrissen.

Die Erfahrungen mit Jodfiltern, die seit 1968 im Kernkraftwerk Dodewaard eingebaut worden sind, werden mitgeteilt. Proben von der in diesen Filtern verwendeten Aktivkohle wurden in unserem Laboratorium in regelmäßigen Zeitabständen gemessen.

1. INTRODUCTION.

In continuation of earlier work at the KEMA reactor laboratory on the mechanism of the adsorption of methyl iodide by impregnated charcoals [1], an installation was built for routine measurements of the adsorption of iodine or iodides by small beds of charcoal. This installation is used for testing charcoal samples, obtained from large charcoal beds in reactor building ventilation systems.

In this paper a description is given of the apparatus and the measuring procedure. In contrast with other similar installations a specified relative humidity of the air-flow is adjusted by mixing a flow of dry air and a flow of air saturated with water vapour. For the preparation of radioactive I_2 or CH_3I an isotopic exchange-procedure is used.

Some results on samples from the charcoal filters of the Dodewaard nuclear power plant are given.

2. DESCRIPTION OF THE APPARATUS AND THE MEASURING PROCEDURE.

2.1. Measuring installation.

Fig. 1 gives a flow scheme of the installation.

The charcoal sample to be tested (B_1) is placed in a water-bath with a constant temperature T_3 (generally $30 \pm 0.05^\circ C$). An air-flow through the apparatus is maintained by a vacuum pump P_1 . The air enters via a gas meter G_1 and a flow meter M_1 and is saturated with water vapour in a flask F_1 . This flask is filled with water and kept at a constant temperature T_1 . This temperature is adjusted at such a value that the temperature T_2 at the entrance of the cooler is 10 to 20 K higher than the temperature of the water bath. The cooler C_1 is fed by water from the water bath. The cooler has a high capacity, so that the air is cooled to a temperature just above that of the bath. When condensation occurs in the cooler, it is sure that the relative humidity of the air is 100%. From the cooler the air flows through a long glass tube in the water bath via a small flask F_3 , installed for the collection of the small amount of condensate formed in the tube, to the charcoal bed. It was calculated that for all values of the air-flow used, the diffe-

rence between the temperature of the bath and the temperature of the air at the charcoal bed is less than 0.05 K.

When relative humidities less than 100% are required, dry air is supplied between F_3 and B_1 . This air is drawn from a pressurized air cylinder, the flow is measured by a flow meter M_{2a} or M_{2b} (two different measuring ranges) and a gas meter G_2 . The air is dried by silicagel and magnesium perchlorate. The air is given the same temperature as the main flow by using a long glass tube in the water bath.

For the introduction of radioactive test gas I_2 or CH_3I into the air stream, a part of the dry air-flow is led through the storage vessel S via the flow meter M_3 . This vessel contains the total amount of radioactive gas to be used for a test. The dry air-flow is adjusted such that the total amount of air flowing through the vessel S during the injection period (usually 1 hour) is two times the volume of the vessel. A bypass over the vessel is used for the adjustment of the flow before switching the vessel into the circuit. The minimum flow of dry air added to the main flow is so low that it practically does not change the humidity and average velocity of the main flow.

After leaving the sample bed B_1 , the air is warmed up by electric heating. This lowers the relative humidity, which implies a higher adsorption efficiency of charcoal. As a consequence, the measuring charcoal bed B_2 adsorbs practically the total amount of test gas penetrated through B_1 (see fig. 2).

Behind the measuring bed B_2 the air is dried by a cooler C_2 and is led through a high volume safety bed of charcoal B_3 . Via a flow meter M_4 and a gas meter G_3 the air is blown off into a fume hood.

2.2. Preparation of radioactive tracer.

Radioactive CH_3I is prepared by drying 0.1 cm^3 of a carrier-free solution of $Na^{131}I$ in a 100 cm^3 flask. After drying, the flask is evacuated and filled with a known weight of $CH_3^{127}I$ (in most cases about $140 \mu\text{g}$). By isotopic exchange the methyl iodide becomes radioactive. The used exchange time is at least 12 hours. In this period about 20 to 50% of the activity is transferred to the methyl iodide. Then the CH_3I is brought into the evacuated storage vessel S.

Radioactive I_2 is prepared in the same way by taking a certain amount of stable I_2 instead of CH_3I . This iodine volatilizes and becomes radioactive by isotopic exchange. This gaseous I_2 is then brought into the storage vessel with the same procedure as used for the methyl iodide.

2.3. Measuring procedure.

The sample bed B_1 (diameter 2.5 cm) is filled with the charcoal to be tested and the measuring bed B_2 with Norit charcoal RKJ-0.8, a charcoal with KI-impregnation. Both beds are mounted into the installation and the required dry and wet air-flows and temperatures are adjusted. After $\frac{1}{2}$ to 1 hour, all values have become constant. The air-flow with the required humidity is now maintained for about 16 hours through the charcoal beds. It has been shown by experiments in the installation and by others [2], that after this time, even at the highest relative humidity, the amount of water absorbed in the charcoal has practically reached the equilibrium.

The labelled iodine or methyl iodide is injected from the storage vessel into the air stream during one hour. After that hour the air-flow is interrupted and the charcoal of the measuring bed B_2 is replaced by new charcoal. The air-flow is restored and then maintained during 2 hours. This procedure is repeated for another 2 hours, so that one 1-hour sample and two 2-hours samples are obtained.

The three charcoal samples from bed B_2 are prepared separately into three counting vials and the I-131 content of each sample is measured with a γ -spectrometer.

The relative activity distribution in the sample bed B_1 is measured by scanning with a collimated scintillation crystal and afterwards, the total activity of this sample charcoal is measured with the γ -spectrometer, using the same counting geometry as used for the measuring beds B_2 .

From the results of the activity measurements, three values for penetration of the test gas through the sample bed B_1 are calculated. Namely the penetration after the test gas injection period and after 2 and 4 hours of a continued air-flow through the bed.

From the results of the scanning the penetration per unit-length of the bed is calculated, giving graphs as that of fig. 2. Weighing the bed B_1 , before and after measurement, gives the amount of water absorbed in the charcoal. The loading of the charcoal with CH_3I or I_2 is calculated by dividing the weight of the total amount of test gas put in the storage vessel S by the weight of the charcoal bed B_1 .

3. IN-PLACE TESTING.

The charcoal filters of the ventilation system of the reactor hall for the KEMA Suspension Test Reactor (KSTR) in Arnhem were tested in-place. The method is described here shortly.

The filters are tested at the normal prevailing temperature and humidity. Afterwards, a sample of the charcoal is also tested in the laboratory installation at the same velocity, temperature and humidity. The difference between the penetrations, measured with the in-place test and derived from the laboratory test, is caused by leakage paths in the filter installation. The expected penetration for the filter installation at the humidity, mentioned in the specifications, can be calculated now by adding the penetration caused by the leakage paths (not humidity dependent) and the penetration measured in the laboratory installation at the specified humidity.

For the in-place test also an injection time of one hour is used with a continued air-flow during 4 hours.

The test agents CH_3I and I_2 are prepared in a way similar to that described in section 2. The activity of the test agents is chosen such that the required removal efficiency of the filters can easily be measured.

The activity concentration before and after the filters is measured by taking a sample from the airstream through charcoal filter beds [3]. The activity of these charcoal beds is measured with a 3" x 3" NaI(Tl) crystal and a multichannel analyser.

4. RESULTS OF MEASUREMENTS.

4.1. Experiments with Norit RKJ-0.8 charcoal.

The ventilation air of the KSTR reactor hall is continuously monitored on radioactive I. As soon as a specified amount of I-131 is detected, automatically special filter beds are put in line. These beds contain KI-impregnated Norit RKJ-0.8 charcoal. In order to realize the desired efficiency, the velocity through the beds can be changed. To find the influence of changes of the superficial velocities on CH_3I -penetration, measurements were carried out. The results are plotted in fig. 3. In this figure the quality factor Q is used as defined by Collins et al [4]. This factor is $Q = \frac{\log 1/p}{\Delta t}$, where p is the measured penetration after a stay-time Δt (dimension of Q: t^{-1}). At low concentrations of CH_3I the adsorption rate is proportional to the concentration. The proportionality factor Q is dependent of the humidity, and as can be seen in fig. 3, also of the loading and the velocity.

For the calculations of the impact of disposal of radioactivity on the environment, the total penetration of CH_3I is of importance and the retarded CH_3I has to be taken into account as well. Therefore, measurements were continued up to 4 hours after the injection was stopped. The results of the experiments at different relative humidities are plotted in fig. 4. At higher relative humidities nearly no delayed penetration is observed. At a relative humidity of 50% about 1/3 of the total penetration is prompt and 2/3 is delayed. The total penetration is nearly attained in 4 hours after the stop of the injection.

4.2. Experiments with charcoal of the Dodewaard power-plant.

The ventilation air from the reactor buildings of the nuclear power station Dodewaard is led through charcoal filters. These charcoal filters are of the canister type; each filter of 600 x 600 x 300 mm is containing 25 canisters. The flow per canister is about $60 \text{ m}^3/\text{h}$, corresponding with an average superficial velocity of 30 cm/s. The bed-"depth" is 36 mm.

The charcoal of the normal ventilation system is of type CPJ (trade

name of CEAG), not impregnated for methyl iodide removal. The filters were installed at the end of 1967 and have been in use nearly continuously.

The emergency ventilation system contains the same type of filter housings, however, 2 in series, so that the bed-depth is 72 mm. The flow per canister amounts to $24 \text{ m}^3/\text{h}$, corresponding with a superficial velocity of 12 cm/s.

The charcoal used is CPJM (trade name of CEAG), impregnated for methyl iodide removal, installed also in 1967. The emergency system is generally not in use.

A third type of charcoal from the power station was tested, namely CP-CG-25 (trade name of CEAG), an impregnated charcoal, kept in stock since the end of 1969 for replacement of CPJ or CPJM charcoal. In fact, it was never used in a filter system up to now.

For periodical tests in the laboratory installation, the canisters were opened and samples of the charcoal were taken. Four years after installation, the CPJ and CPJM charcoals were still in a good condition. A year later on, the measured penetration for CH_3I showed a sharp increase, so that the charcoal had to be rejected. Six years after installation, the iodine penetration at a relative humidity of 100% for CPJ charcoal was about 1%, instead of 0.1% originally.

A remarkable effect was found with the CP-CG-25 charcoal. This charcoal is never used, but kept in stock for 4 years. The measured penetrations gave, however, a similar decrease of quality as the installed charcoals. So it seems that the maximum performance time of charcoal filters is 4 to 5 years.

REFERENCES.

- [1] E.G.P. Cornelissen, G. van der Lugt, Th. van der Plas.
Adsorption of gaseous methyl iodide by active carbons.
Proceedings of a symposium on Containment and Siting of Nuclear
Power Plants. IAEA, Vienna, 1967.
STI/OUB/154 7. 647-654.
- [2] J.G. Wilhelm.
Testing of Iodine filters for Nuclear Installations.
Proceedings of a symposium on operating and development experience
in the treatment of airborne radioactive wastes. New York, 26 - 30
August 1968.
- [3] G.C.H. Groen en J.R.D. Stoute.
Het testen van jodiumfilters. RCN-publication; GBA-memo nr, 67.
- [4] D.A. Collins, L.R. Taylor and R. Taylor.
The development of impregnated charcoals for trapping methyl iodide
at high humidity. TRG-report 1300 (W).

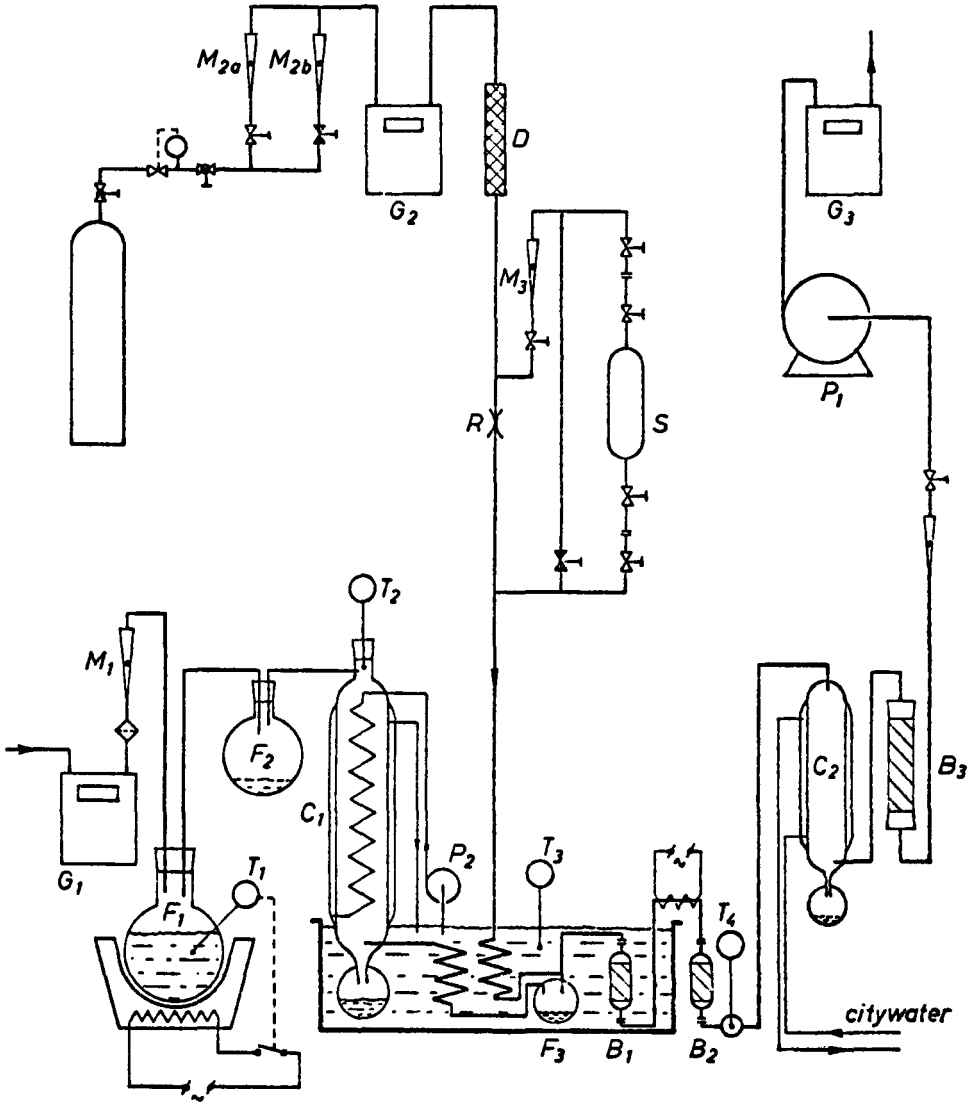
LIST OF FIGURES.

Fig. 1: Laboratory testing installation for charcoal removal efficiency.

Fig. 2: Penetration through charcoal as a function of bed-depth.

Fig. 3: Quality factor of Norit RKJ-0.8 as a function of superficial velocity at several loadings with CH_3I . Relative humidity of the air 70%.

Fig. 4: Penetration of CH_3I through 5 cm Norit RKJ-0.8 as a function of blow-through time at several relative humidities.



- | | |
|-------------------------------|--------------------------|
| <i>B</i> = charcoal bed | <i>M</i> = flowmeter |
| <i>C</i> = cooler/condensator | <i>P</i> = pump |
| <i>D</i> = drying cartridge | <i>R</i> = restriction |
| <i>F</i> = flask | <i>S</i> = storagevessel |
| <i>G</i> = gasmeter | <i>T</i> = temperature |

Figure 1

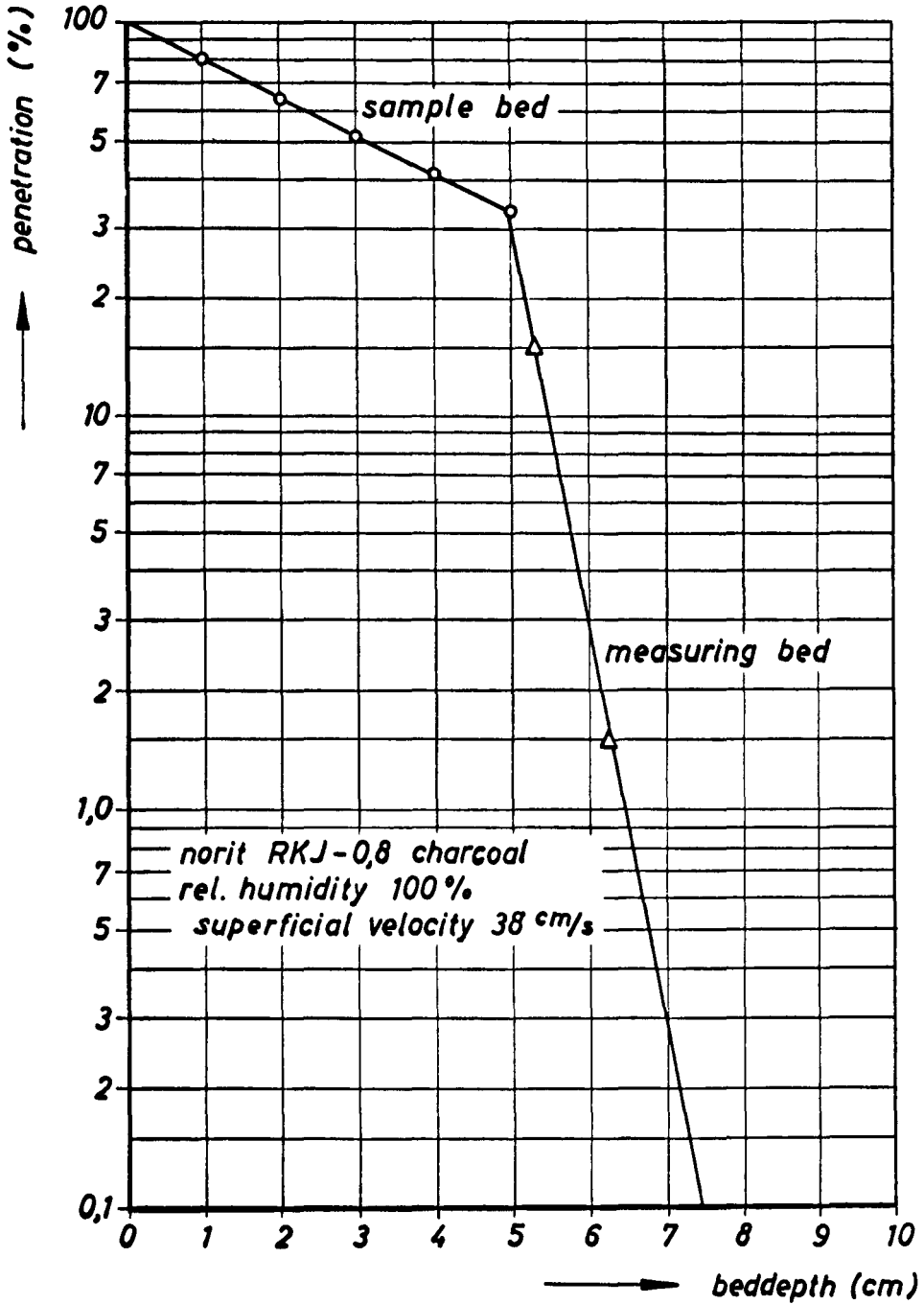


Figure 2

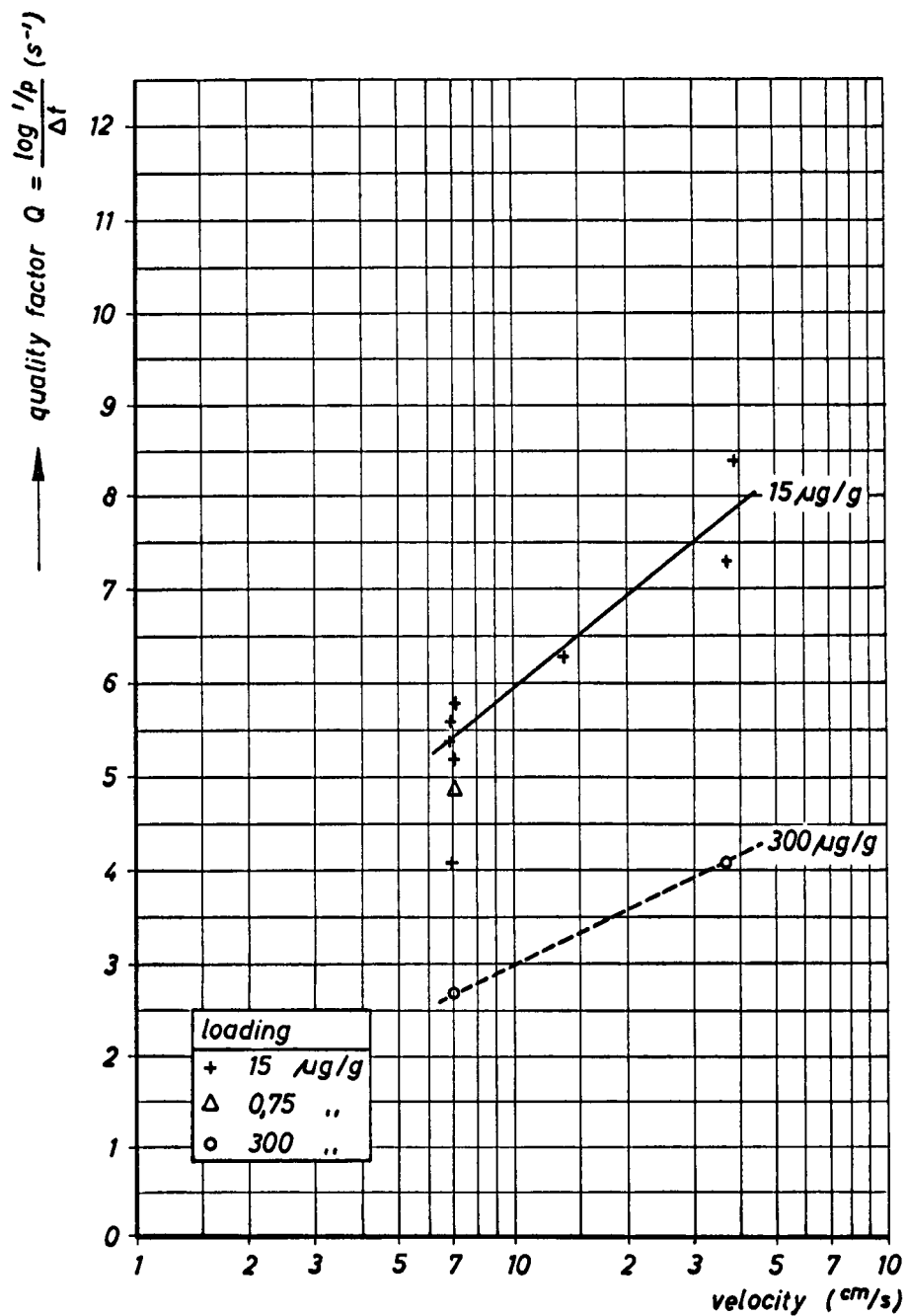


Figure 3

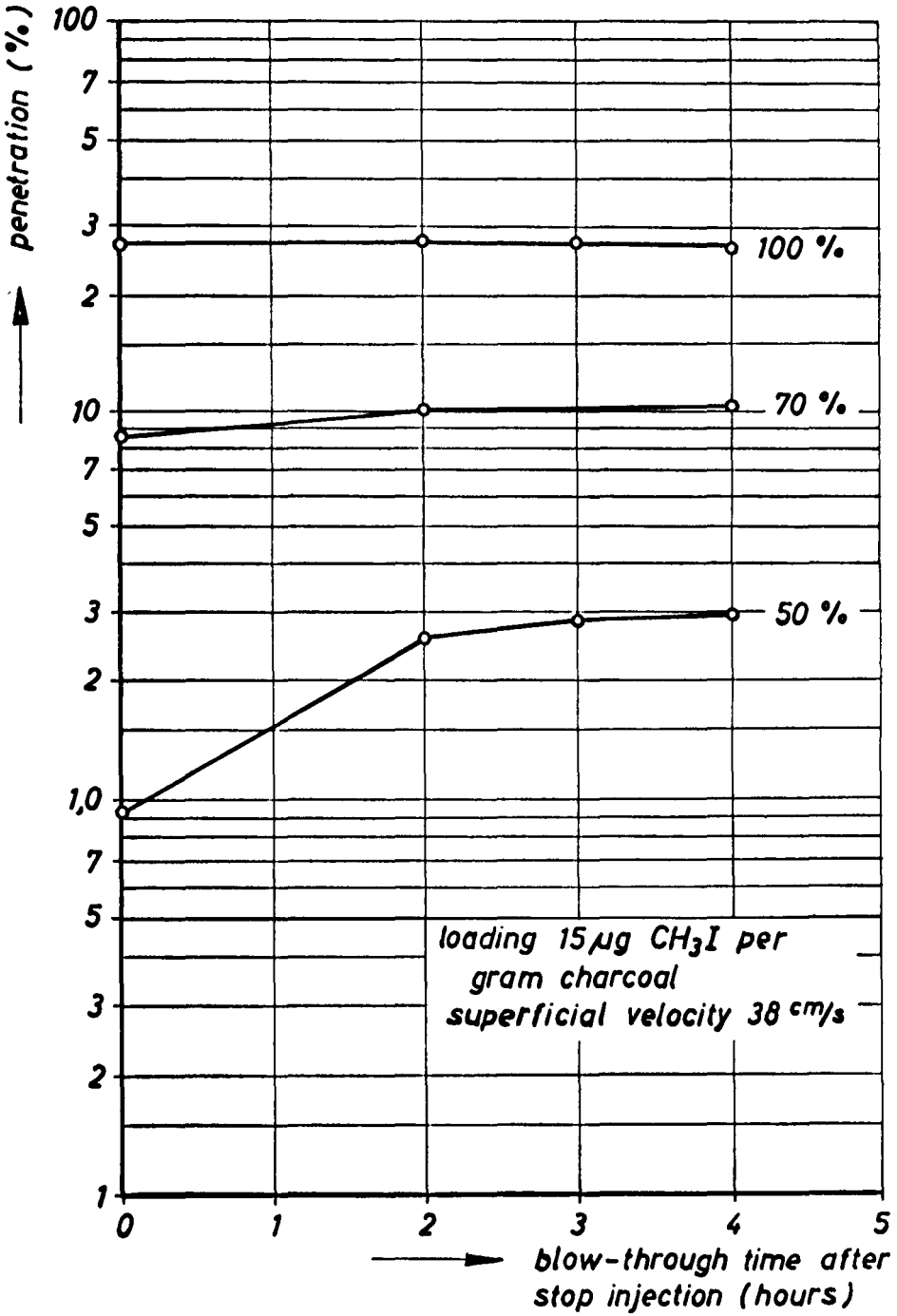


Figure 4

IODINE FILTER TESTING IN SWEDEN

R. Hesböl, B. Normann and L. Devell

Aktiebolaget Atomenergi
Studsvik - SWEDEN

SUMMARY. Charcoals and filters used for iodine removal in off-gases and ventilation ducts in nuclear power plants, and a hot cells laboratory are tested in laboratory and in-situ to investigate and check the proper behaviour of installed filter systems. In normal procedures of testing only methyl iodine is used due to more critical removal properties for this compound. The need for careful installation of filters and preoperational and periodical testing is illustrated. The poisoning of charcoal by impurities in the air has been studied and some results are given.

RESUME. ESSAIS DE FILTRES A IODE EN SUEDE. Les charbons actifs et les filtres utilisés pour éliminer l'iode dans les circuits des gaz d'extraction et les conduites de ventilation de centrales nucléaires et d'un laboratoire à cellules chaudes sont essayés en laboratoire et in situ pour rechercher et vérifier le bon comportement des systèmes de filtres mis en place. Les méthodes normales d'essai n'utilisent que de l'iodure de méthyle du fait de ses moins bonnes caractéristiques de rétention. L'auteur montre que les filtres exigent un montage méticuleux et des contrôles réguliers. L'empoisonnement du charbon par des impuretés dans l'air a été étudié et plusieurs résultats sont donnés.

KURZFASSUNG. ERPROBUNG VON JODFILTERN IN SCHWEDEN. Aktivkohlen und Filter zur Jodabscheidung in Abgasanlagen und Lüftungskanälen von Kernkraftwerken und einem Heisszellen-Labor werden im Labor und an Ort und Stelle erprobt, um die eingebauten Filteranlagen auf ihre Funktionstüchtigkeit zu prüfen. Für die normalen Prüfverfahren wird wegen der bei dieser Verbindung gegebenen schwierigeren Abscheideverhältnisse ausschliesslich Methyljodid benutzt. Die Notwendigkeit eines sorgfältigen Einbaus der Filter und die Wichtigkeit von vorbetrieblichen und Wiederholungsprüfungen wird dargelegt. Die Vergiftung der Aktivkohle durch Verunreinigungen in der Luft wurde untersucht und einige der dabei gewonnenen Ergebnisse werden beschrieben.

1. Introduction

In nuclear power plants, research reactors and some other nuclear installations, devices for iodine removal are installed due to the fact that radioiodine to some extent appears in off-gases from these installations and that the permissible releases are quite small. In this paper only the air-borne radioiodine will be considered. Parallel to the removal of radioiodine the monitoring of the releases is also important. In Sweden all nuclear installations, which are potential iodine release sources, are equipped for monitoring this group of radionuclides.

The Swedish nuclear power program already decided upon is given in Table I. It contains the introduction of BWR of ASEA-Atom design and PWR of Westinghouse design. The Oskarshamn I unit was taken into operation in 1971, and some experience has been accumulated even within the field of this seminar. The BWR type contains off-gas filters and emergency type filters for the removal of iodine and radioactive particles. The iodine filter introduced for these purposes is a 24" x 24" x 5" box filter filled with KI and TEDA impregnated carbon in equal proportions. The filter is placed horizontally in a filter holder between HEPA filters. It is not the intention of this paper to go into any detail about the filters themselves, but to give a rough background for the description of the filter testing technique and experience from that work. The off-gas filters are operated continuously, and therefore exposed to considerable poisoning and weathering. The emergency filters on the other hand are normally held at stand-by. The specification concerning iodine removal efficiency for new filter units is 99.9 % at 80 % relative humidity, and the stay-time is at least 0.2 sec.

The PWR plants will contain combined HEPA/carbon filters in the system for internal circulation and also in the system for containment pressure control. These filters have not been subjected to testing by us and will therefore not be reported upon.

Iodine removal devices are, apart from the nuclear power plants, also installed at the R2 material testing reactor, the hot cells laboratory and the isotope production plant at Studsvik. The R2 contains a wet scrubber system, but the other two facilities use carbon filters. All these systems have been subjected to supervision and testing as to iodine removal efficiency. Filter testing was established already in 1963 at Studsvik, but the technique has been modified and extended successively since that time.

The objectives of the testing which has been carried out by the filter testing group are as follows.

- Tests and studies of carbon materials as to iodine removal and poisoning
- Preoperational type tests of full-size filters as to iodine removal efficiency, tightness, packing etc
- Periodical tests of full-size filters as to efficiency and performance
- Preoperational and periodical in-situ tests of filter installations
- Tests of accuracy of iodine monitoring systems.

The testing of monitoring systems will not be dealt with in this paper.

The observation at Studsvik and elsewhere that a certain fraction of radioiodine appears as a volatile species with properties similar to methyl iodide has lead to the use of methyl iodide for the normal testing of filters.

Monitoring systems are however also tested with elemental iodine due to the risk of recording too low release values as a result of deposition in sampling tubes.

2. Testing equipment and procedures

The filter test activities, equipment and procedures fall into four main areas, namely laboratory tests of activated carbon, full-size filter testing, in-situ tests and continual monitoring of filter installations. A brief description of the equipment and procedures is given in this chapter.

2.1 Laboratory tests of activated carbon

Testing of activated carbon to determine iodine removal efficiency and poisoning effects is conveniently performed in a small scale laboratory apparatus. For this purpose an apparatus made of glass has been developed for small samples of carbon. A glass apparatus was preferred as this material is advantageous for tests with elemental iodine. The sample is contained in a cylinder with an inner diameter of 21 mm and a height of 27 or 54 mm. Corresponding volumes are 9.3 and 18.7 cm³. Tests can be performed at different conditions of air flow, humidity and temperature. High temperature tests are possible, but such tests can only be performed at low relative humidities as the apparatus up till now has not been provided with any heat insulation.

The apparatus, schematically shown in Figure 1, consists of units for iodine injection, gas supply, test sample housing and break-through analysis.

The injection unit comprises a dryer, a particulate filter and an I 131 methyl iodide source. Methyl iodide contained in a vessel and stored in a thermostat bath diffuses through a capillary tube into a small stream of dried and filtered air, which is mixed with conditioned air from the air supply unit. Appropriate humidity conditions are obtained by passing a specified fraction of the air through two water scrubbers in series. The air flow from the injection unit is too small to affect the humidity of the test gas.

The test sample surrounded by a heat jacket is confined within a lead tower. The activity growth in the carbon sample under testing is measured continuously with a count rate meter and is recorded graphically.

The break-through activity is sorbed in a serial carbon bed confined within a second lead tower. The activity growth in the second carbon bed consisting of TEDA impregnated carbon is measured and recorded in the same way.

If elemental iodine is to be used, the methyl iodide source is removed, and the gas is passed through a vessel containing iodine crystals, labelled with I 131.

The carbon sample is preconditioned during the 24 hours prior to the test.

The removal efficiency E is calculated according to

$$E = 100 \left(1 - \frac{C_b}{C_b + C_s} \right) \%$$

where C_b = count rate of second bed

C_s = count rate of test specimen.

2.2 Full-size filter testing

The objectives for the testing of full-size filters have been of different kind. Firstly preoperational type tests have been carried out on new filters to be delivered for service in nuclear installations. Of main interest is the investigation of the removal efficiency, but the operational behaviour as to pressure drop and carbon packing is also checked. Secondly, filters which have been in operation for some time were subjected to testing. In the latter case poisoning effects were studied or checks were made due to abnormal low removal efficiency of the appropriate filter bank.

The filter testing is carried out in a rig, schematically presented in Figure 2. The rig consists of an air inlet duct equipped with an orifice for flow measurements, a HEPA filter, equipment for air conditioning as to temperature and humidity, an iodine injection unit, a filter house and a fan. Iodine sampling is arranged before and after the filter by means of a multihole probe technique. In addition to this a second sampling point is arranged further downstream from the filter. The facility can be operated at conditions shown in Table II. Normally methyl iodide labelled with I 131 is used, but sometimes also vapour of elemental iodine has been injected for special tests.

Methyl iodide is synthesized simultaneously with the injection as is described in chapter 2.3. The standard amount of added methyl iodide is 0.15 g for a single test, and this amount is added during half an hour. The I 131 activity used is in the range of 10 μ Ci to 5 mCi, depending on required sensitivity in the determination of removal efficiency. The removal efficiency is determined from measurements during a short period after the supply of iodine. The desorption, over a period of days and weeks after the injection, has been checked occasionally, but found negligible compared to the initial penetration as far as impregnated carbon is concerned. Therefore in the standard test the sampling is terminated 15 minutes after the completion of the injection.

The activity in the carbon cartridges is measured by gamma spectrometry which has a sensitivity of at least 100 pCi. This means that removal efficiencies of 99.99 % can be determined.

2.3 In-situ testing

The main principles of an in-situ test of a filter system are given in Figure 3. Samples of the air flow are drawn

upstream and downstream of the filter. The sampled air is filtered in small cartridges charged with TEDA impregnated carbon. Samples are taken in duplicate. The cartridges are of standard type and have been subjected to testing, and have shown excellent removal efficiency. The filter systems have been prepared with connections for in-situ tests and consequently the equipment used for such tests has been standardized.

In practice it is normally convenient to synthesize methyl iodide at the test place simultaneously with the injection. The synthesis is easily performed and with favourable conditions the chemical yield is nearly 100 %. Methyl iodide is generated by mixing sodium iodide labelled with I 131 dissolved in water with dimethyl sulphate. The rate of addition of methyl iodide to the duct is monitored by a count-rate meter and is controlled by adjusting the air flow rate passing the mixture of reactants. In general, heating the generator is unnecessary. The pressure in the generating apparatus is maintained lower relative to the room pressure by the underpressure in the duct into which methyl iodide is injected. However, unforeseen incidents might occur to the apparatus which can lead to a risk of contamination of the room atmosphere. In order to avoid contamination of the surroundings in those cases, the generating apparatus is located inside a small portable air tight enclosure which is connected to a suitable ventilation duct. Accordingly an underpressure is maintained inside the enclosure.

About 0.15 g of methyl iodide labelled with 1 to 10 mCi of I 131 is normally used for a single test of a filter bank. Special care has to be taken to avoid and check contamination of the cartridges used for the downstream sampling as they often are extremely low in activity compared to the source. Prior to the in-situ testing the relative humidity and the air flow rate is measured.

2.4 Continual monitoring of filter efficiency

In such cases when iodine is released to the off-gases or ventilation systems, monitoring of the filter efficiency may be possible without the addition of special generated iodine simply by taking air samples upstream and downstream of the filters. This technique has been used for several years at the hot cells laboratory at Studsvik. Carbon cartridges have sampled iodine weekly and were then subjected to gamma spectrometric analysis. In Figure 4 the decontamination factor for the filter bank is given as an example of the usefulness of the technique.

On some occasions the removal efficiency obtained by this technique was compared with the efficiency determined by an ordinary in-situ test carried out by means of added methyl iodide described above. The results plotted in Figure 4 correspond very well with those obtained by the continual iodine monitoring method. The low decontamination factors during the first part of the test period were later on shown to be due to by-pass leakages between the filters and holders. After two attempts and much effort a reduction of by-pass leakage was achieved, and the decontamination factor increased by about a factor of 10.

It is the opinion of the authors that one should consider the advantage of the installation of this simple system for periodic checking of filter efficiency.

3. Poisoning and weathering of activated carbon

Several authors /1,2,3/ have reported that the removal efficiency and capacity of impregnated carbon are seriously reduced by poisoning and weathering due to gas impurities and natural constituents of the air respectively. Accordingly, filter systems in continuous operation are very sensitive to poisoning and weathering effects, and periodical checks of the filter efficiency for such systems are required.

The experience of poisoning and weathering of filters installed in nuclear power stations in Sweden is limited.

In Oskarshamnverket I, so far the only commercial nuclear power station in operation, one iodine filter system operates continuously. After one and a half years of operation corresponding to about 2×10^8 air changes, one filter was tested in the rig for full-scale filters. The test conditions and results from this test are presented in Table III. The filter contained a mixture of equal portions of TEDA and KI impregnated carbon.

The filter was preconditioned during 24 hours before the test. The injection time of methyl iodide was 30 minutes and sampling was performed during the injection and the following 15 minutes. The removal efficiency of the filter at the time of installation was better than 99.95 % at a stay-time of 0.22 sec and a relative humidity of 50 %. After one and a half years of operation at conditions met with in the nuclear power plant, the removal efficiency of the iodine filter with respect to methyl iodide was quite low according to Table III, not only at high but also at low relative humidities. The filters were therefore replaced by fresh filters.

Off-gases from hot cell laboratories or isotope production plants may be contaminated by gas impurities from the handling of chemicals in such plants. Accordingly, the iodine filters may especially become exposed to poisoning. The poisoning of filters installed in the off-gas system of the hot cells laboratory at Studsvik has been investigated in some detail. The filter bank contains 44 filters, each four inches thick. For the past three years two test filters, one charged with TEDA-impregnated carbon and the other with KI-impregnated carbon have been operated in this filter bank. Once a year, the filters were taken out of the filter bank and samples of the carbon from four different layers, each one inch thick, were taken and replaced by fresh carbon of the same

type. Subsequent to this procedure the filters were installed in the filter bank again. The carbon samples were analysed in the carbon test apparatus. The results of the tests are presented in Tables IV and V.

That prefiltering of the air might extend the operational time is indicated by the results presented in the Tables IV and V which show the distribution in depth of the effects of the poisoning and weathering within a filter charged with TEDA-impregnated carbon and KI-impregnated carbon, respectively. It is observed that the removal efficiency of methyl iodide in the layers at the front side of the filter is particularly reduced.

The distribution of the poisoning and weathering effects between the carbon layers in the filter depends of course on the operational time but also on the type of impregnated carbon in the filter, and it seems that prefiltering would be more efficient if the filters downstream are filled with TEDA-impregnated carbon compared to KI-impregnated.

Prefiltering of the air by use of activated carbon might prolong the operational time of the more expensive iodine filters. The choice will be dependant on economical considerations, which has to take into account a somewhat reduced need for in-situ tests when prefilters are used.

4. Additional experiences and conclusions

Quite early after the identification of methyl iodide in connection with iodine releases from fuel /4,5/ and the recognition that this was an important iodine species to be considered and the subsequent early investigations of impregnated carbons in some countries, we started our own testing of suitable carbons for use in Swedish nuclear installations.

The results obtained generally agreed with those of others, and for the first plant it was decided to use box filters filled with equal portions of TEDA and KI impregnated carbon and to set a stay-time limit not lower than 0.2 seconds.

In a series of tests made at an early stage it was found that the retention of methyl iodide in filters filled with unimpregnated carbon could be appreciable at favourable conditions and low iodine loading. In order to avoid misinterpretation due to such tests at too low concentrations the standard amount of iodine carrier applied in tests of full scale filters was set to 0.15 g.

The loading of methyl iodide is an important parameter in tests performed at very high humidities. The removal efficiency of KI impregnated carbon seems to be especially sensitive to the loading as is demonstrated in Figure 5, in which the removal efficiency is shown to decrease with increasing loading. The concentration applied must therefore be chosen according to conditions met with in practice. For comparisons of removal properties between different charcoals the concentration of methyl iodide has to be taken into consideration or standardized. For the latter purpose we keep the concentration less than 10^{-10} g/cm³.

To detect poisoning of filters in continual operation described here, periodical tests have to be performed. The techniques to be used may include in-situ tests and continual iodine monitoring described in the paper. Another test technique indicated, is to use small-scale parallel operated test filters, which can be subjected to laboratory investigations as to poisoning at suitable intervals.

The use of methyl iodide for the testing of the proper behaviour of iodine filter systems has proved to be suitable.

One of the objectives for in-situ tests of filter banks is to check the proper filter mounting and demonstrate the overall removal efficiency. We have experienced two or three occasions out of a few tens where the in-situ testing has exposed filter by-pass leaks.

The lay-out of equipment used for the testing of filter material and the iodine removal devices and the test procedures are certainly dependent on filter designs, testing objectives and filter specifications. The rigs and procedures described in this report seem to meet the need manifested so far. However, in order to establish standard testing procedures and to analyse poisoning effects and countermeasures for this, the Swedish Board for Reactor Safety Research has contracted some further work.

Acknowledgements

The authors of the present paper hereby express their gratitude to Miss M Persson and Messrs L Bergström and L Damberg for the assistance concerning the set-up and operation of the equipment described, and the skilful performance of the many tests carried out.

REFERENCES

1. COLLINS D.A., TAYLOR L.R. and TAYLOR R.,
The development of impregnated charcoals for
trapping methyl iodide at high humidity. (1967).
TRG-R-1300 (W).
2. ACKLEY R.D., COMBS Z and ADAMS R.E.,
Aging, weathering, and poisoning of impregnated
charcoals used for trapping radioiodine.
(March 1970).
ORNL-TM-2860.
3. WILHELM J.G., DILLMAN H.-G. and GERLACH K.,
Testing of iodine filter systems under normal
and post accident conditions.
Twelfth AEC Air Cleaning Conference. Oak Ridge,
Tenn., USA, August 28 - 31, 1972.
4. MEGAW W.J., MAY F.A.,
The behaviour of iodine released in reactor con-
tainers.
Reactor sci. & Techn. (Journal of Nucl. Energy,
parts A/B).
AERE-R 3781, 16(1962) 427-436.
5. EGGLETON A.E., ATKINS D.H.F.,
The identification of trace quantities of radio-
active iodine compounds by gas-chromatographic
and effusion methods.
Radiochimica Acta 3 (1964), No 3, 151-158.

TABLE I NUCLEAR POWER PLANTS IN SWEDEN

Reactor unit	Type	Power output (MWe)	In operation
Oskarshamn I	BWR	440	1971
" II	"	580	1974
Ringhals I	"	760	1974
" II	PWR	820	1974
Barsebäck I	BWR	580	1975
" II	"	580	1977
Ringhals III	PWR	900	1977
Forsmark I	BWR	900	1978
Ringhals IV	PWR	900	1979
Forsmark II	BWR	900	1980
Oskarshamn III		900	1980

TABLE II RIG FOR FULL-SCALE IODINE FILTER TESTING -
OPERATIONAL DATA

Air flow	50-1000 m ³ /h
Relative humidity	up to 100 %
Temperature of air	~25°C
Filter dimensions (max)	24" x 36 " x 10"
Standard iodine injection	1-5 mCi I 131
Sampling devices	1" TEDA carbon cartridges
Sampling flow	10 l/min
Detection limit of removal efficiency	up to 99.99 ± 0.002 %

TABLE III POISONING AND WEATHERING OF FILTER INSTALLED
IN A BWR OFF-GAS SYSTEM

Number of air changes 2×10^8
Filter thickness 12.5 cm
Test gas $\text{CH}_3\text{I}^{127}-\text{CH}_3\text{I}^{131}$
Injected amount 0.15 g
Injection time 30 min

Relative humidity %	Stay time seconds	Removal efficiency %
50	0.22	89
80	0.22	74
95	0.22	68
80	0.43	87

TABLE IV POISONING OF TEDA-IMPREGNATED CARBON IN A FILTER
FROM THE HOT CELL LABORATORY VENTILATION SYSTEM

Test conditions: Relative humidity 98-100 %
 Stay time 0.27 seconds
 Test gas $\text{CH}_3\text{I}^{127} - \text{CH}_3\text{I}^{131}$
 Test gas conc. $\sim 10^{-10} \text{ g/cm}^3$
 Test time <20 hours

Operation time	Number of air changes for filter	Removal efficiency of methyl iodide in %			
		Layer 0-1"	Layer 1-2"	Layer 2-3"	Layer 3-4"
12 months	$4.5 \cdot 10^7$	32	89	95	96
22 months	$8.5 \cdot 10^7$	16	63	95	96
0 months	-	99.5	-	-	-

TABLE V POISONING OF KI-IMPREGNATED CARBON CONTAINED IN A FILTER FROM THE HOT CELL LABORATORY VENTILATION SYSTEM

Test conditions: Relative humidity 98-100 %
 Stay time 0.27 seconds
 Test gas $\text{CH}_3\text{I}^{127}-\text{CH}_3\text{I}^{131}$
 Test gas conc. $\sim 10^{-10}$ g/cm³
 Test time <20 hours

Operation time	Number of air changes for filter	Removal efficiency of methyl iodide in %			
		Layer 0-1"	Layer 1-2"	Layer 2-3"	Layer 3-4"
12 months	$4.5 \cdot 10^7$	68	87	91	91
22 months	$8.5 \cdot 10^7$	33	62	78	83
0 months	-	96	-	-	-

Figure 1

Studsvik
AB ATOMENERGI SWEDEN

APPARATUS FOR TESTS OF ACTIVATED CARBONS

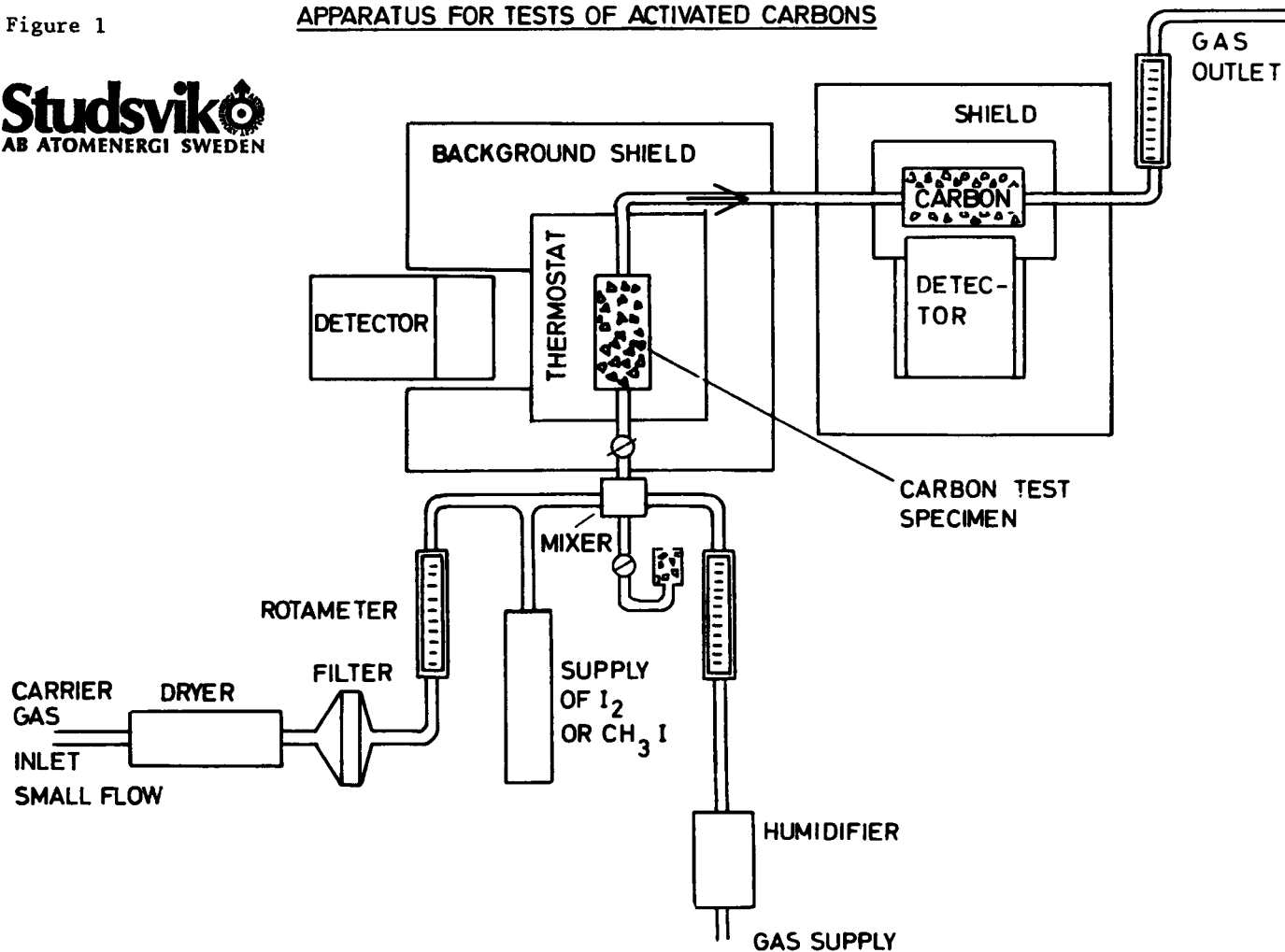


Figure 2

Facility for testing full-scale iodine filters.

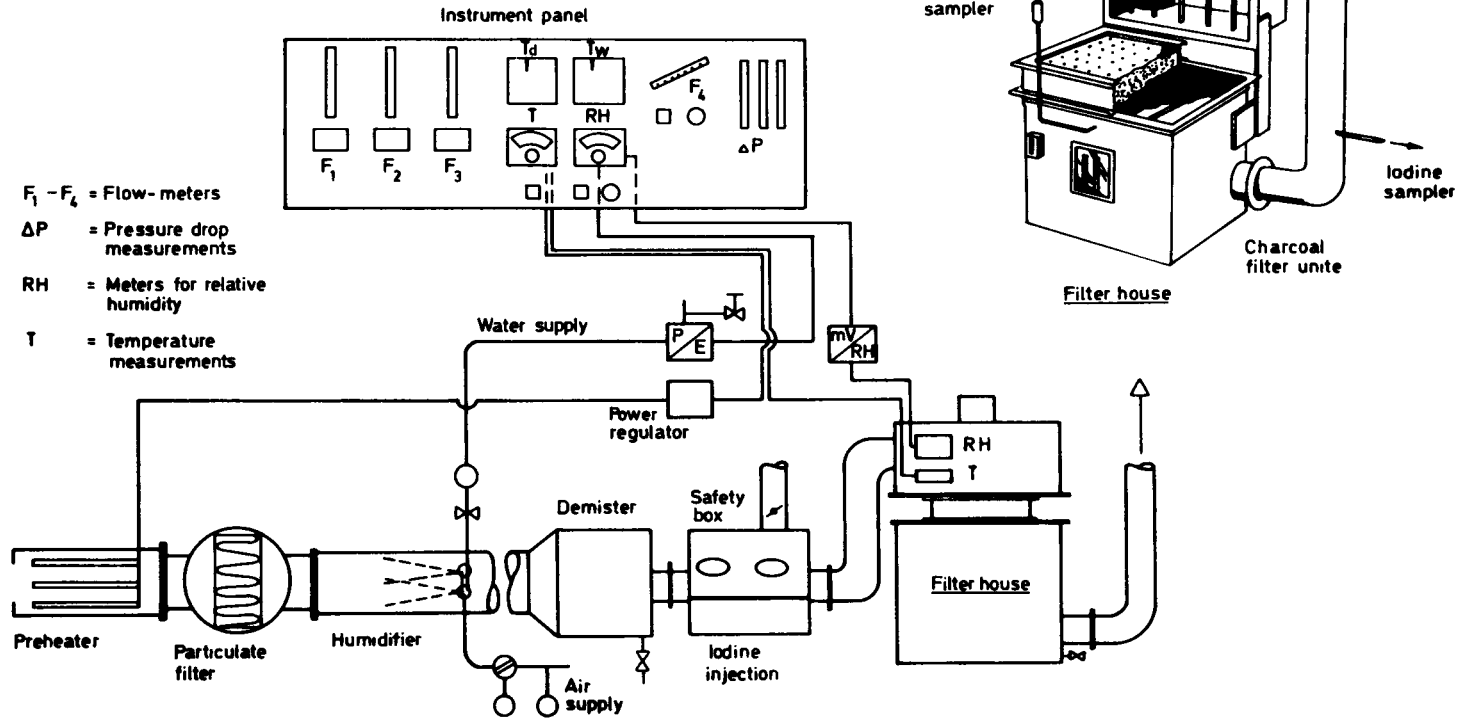
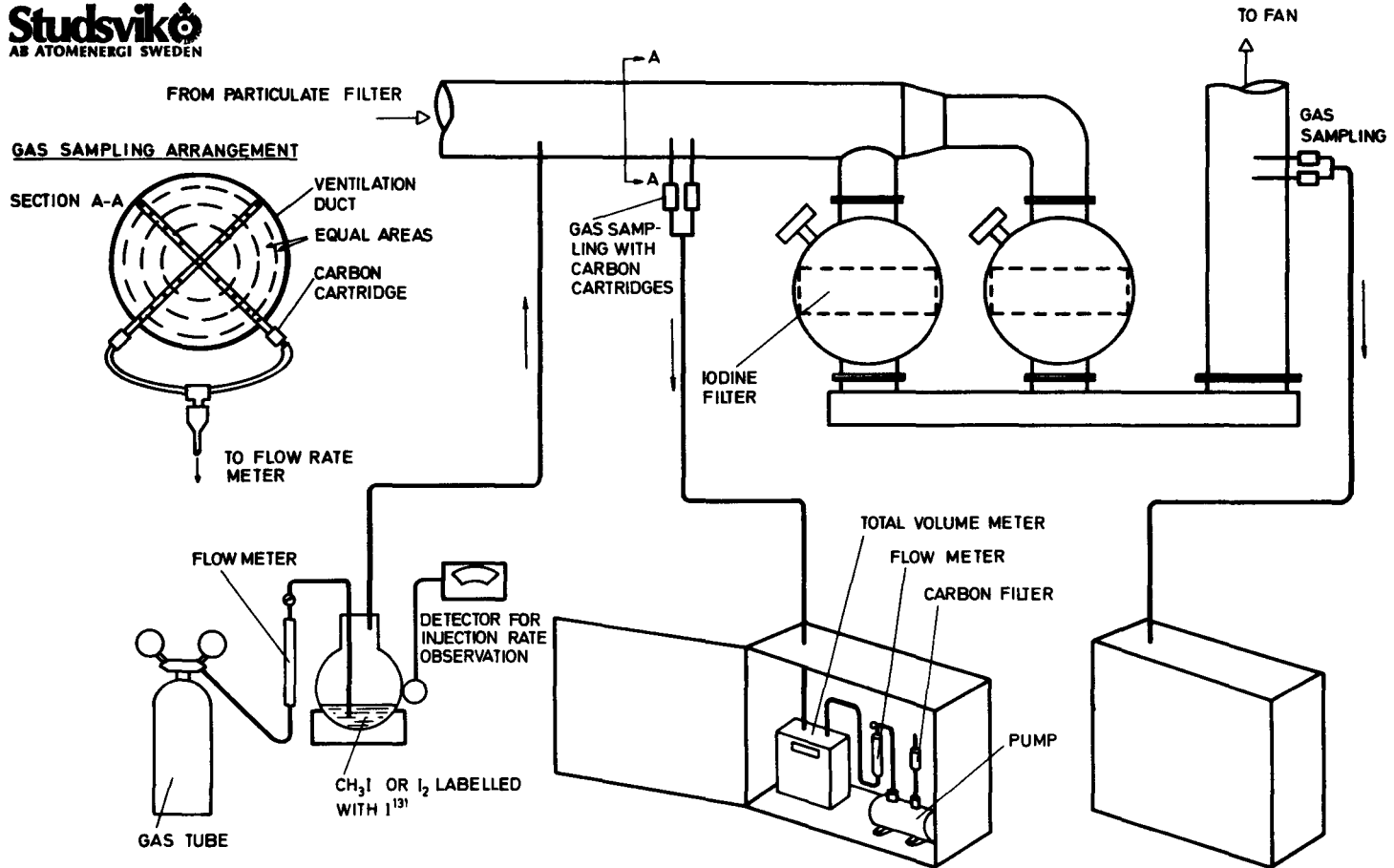


Figure 3

PRINCIPLES OF IN-SITU TESTING OF IODINE FILTERS

Studsвикo
AB ATOMENERGI SWEDEN



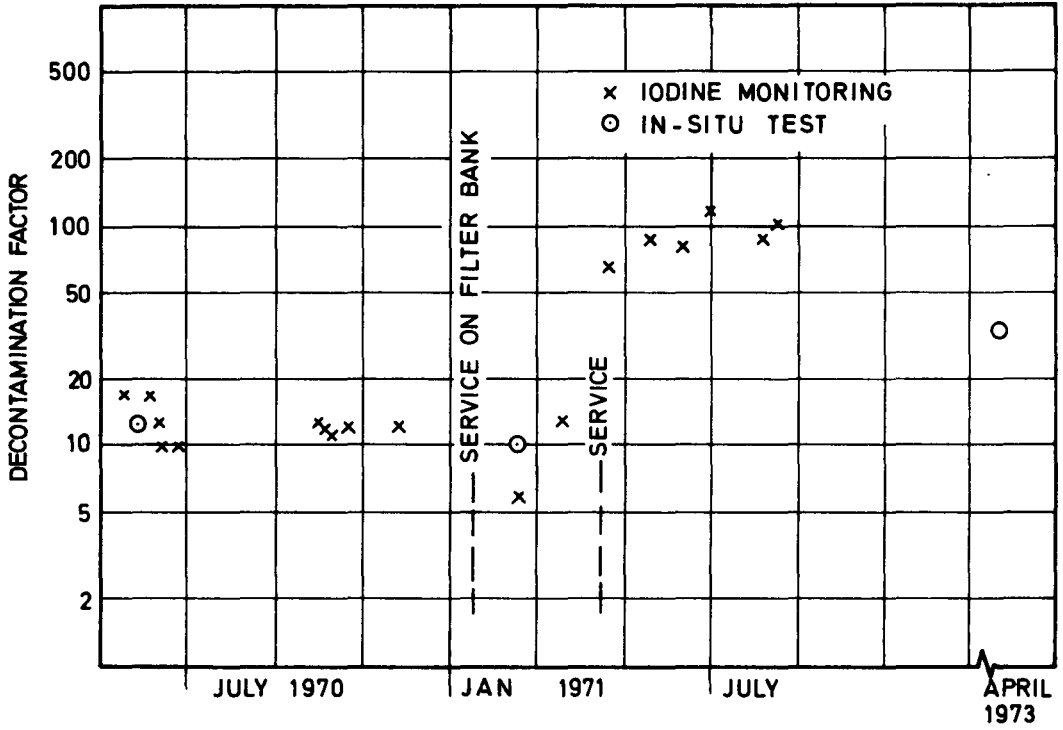


Figure 4 Decontamination factor for an iodine filter bank measured by two different techniques

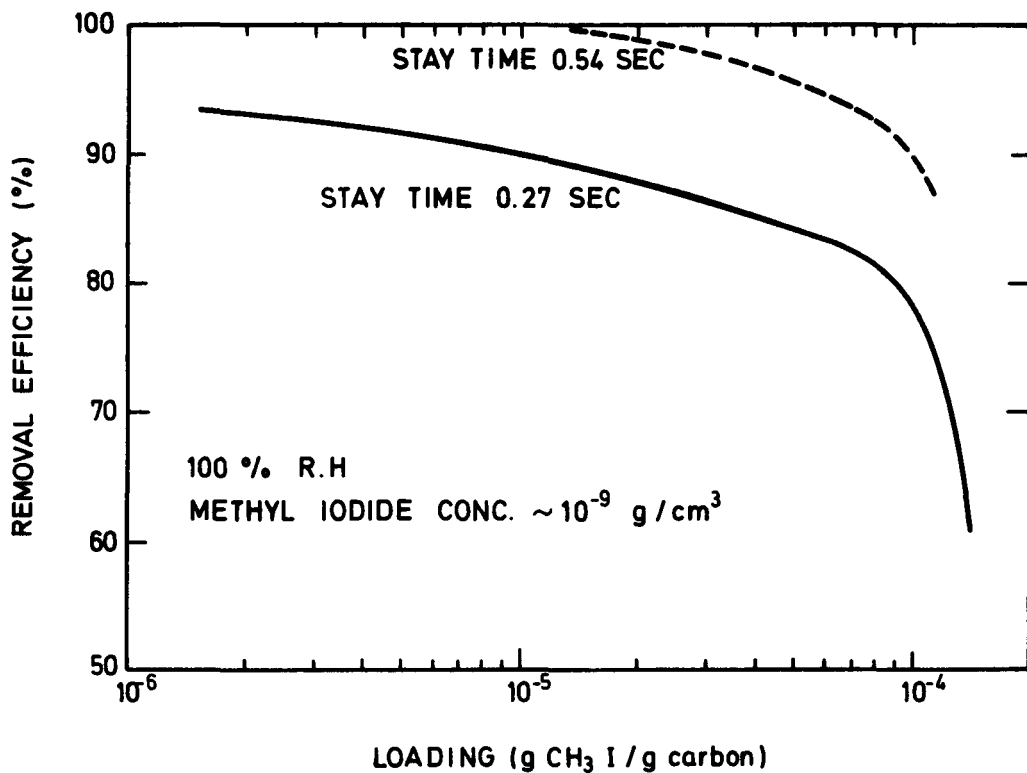


Figure 5 Decrease of removal efficiency of KI/207 B impregnated carbon as a function of loading at two different stay times

DER TECHNISCHE FILTERPRUEFSTAND IN KARLSRUHE

H.G. Dillmann, F. Brüderle und J.G. Wilhelm

Gesellschaft für Kernforschung
Karlsruhe - B.R. DEUTSCHLAND

KURZFASSUNG. Die Gesellschaft für Kernforschung hat im Rahmen ihres Filterprogramms einen Prüfstand zur technischen Erprobung von Abluft- und Umluftfiltern für kerntechnische Anlagen erstellt. Grundlage für die Auslegungsdaten sind die in den heute gebauten und geplanten Kernkraftwerken zu erwartenden Abluft- bzw. Abgasbedingungen bzw. die Zustände der Atmosphäre in den Sicherheitsbehältern nach Störfällen. Variiert werden kann die Temperatur, der Druck und die Gaszusammensetzung sowohl im Frischluft- als auch im Kreislaufbetrieb. Die Luftfeuchte kann zwischen 30 und 100 % r. F. eingestellt werden, ausserdem ist Satt- und Heissdampf-Betrieb möglich. Der Filterprüfstand ist mit allen erforderlichen Hilfseinrichtungen wie Dampferzeuger, Kältemaschine und Enthärteranlage ausgestattet. Die Instrumentierung gestattet, an mehreren Stellen des Kreislaufes Temperatur, Druck, Differentialdruck, Feuchte und Durchfluss zu messen. Wesentlichstes Messproblem ist die Feuchtemessung. Gemessen wird die Ultra-rot-Absorption des Wasserdampfes mit einem speziell neu entwickelten Gerät zur Feuchtemessung in Gasen. Zu berücksichtigen ist dabei die Druckabhängigkeit des Messeffektes und die Messspanne über ca. 3 Grössenordnungen.

Die ersten Betriebserfahrungen lassen erwarten, dass die geforderten Betriebszustände und Toleranzen eingehalten werden, so dass Filteranordnungen zur Schwebstoffabscheidung und Gassorption unter Reaktorbedingungen geprüft werden können.

SUMMARY. THE FILTER TESTING FACILITY IN KARLSRUHE. As part of its filters programme, the Gesellschaft für Kernforschung has constructed a facility for testing air filters and off-gas filters used in nuclear plants.

The lay-out of the rig is designed in accordance with the expected off-gas and air conditions in existing and planned nuclear power stations, and the air quality in containment buildings following accidents. The temperature, pressure and gas composition can be varied in both fresh-air and closed cycle operation. The atmospheric humidity can be adjusted between 30 and 100 % RH, and saturated steam and super-heated steam operation are also possible. The filter testing rig is fitted with all necessary auxiliary equipment such as steam generator, refrigeration machine and water softener. The instrumentation enables temperature, pressure, differential pressure, humidity and flow rate to be measured at several points of the circuit. The major measuring problem is the measurement of humidity. The ultra-red absorption of the water vapour is measured using a new, specially developed device for measuring humidity in gases. Account must be taken of the pressure dependence of the reading and the measuring range over approx. 3 orders of magnitude.

First operating experience suggests that the required operating conditions and tolerances will be achieved, so that aerosol filter units and gas-sorption units can be tested under reactor operating conditions.

RESUME. LE BANC D'ESSAI TECHNIQUE DES FILTRES A KARLSRUHE. Dans le cadre de son programme de filtrage, la Gesellschaft für Kernforschung

dispose d'un banc d'essai destiné aux essais techniques de filtres d'extraction et de recyclage d'air utilisés dans les installations nucléaires.

Les données de base pour la conception sont les conditions d'extraction de l'air ou des gaz ainsi que de l'état de l'air dans les enceintes de sécurité après un accident que l'on peut attendre dans les centrales déjà construites ou en projet. La température, la pression et la composition de gaz peuvent être modifiées aussi bien si l'on fonctionne avec de l'air frais que s'il y a recyclage. L'humidité relative de l'air est réglable entre 30 et 100 %, en outre, il est possible d'opérer en vapeur saturante ou en vapeur sèche. Le banc d'essai des filtres est équipé de toutes les installations auxiliaires nécessaires, telles que générateur de vapeur, machine frigorifique et adoucisseur. L'équipement permet de mesurer la température, la pression, la perte de charge, l'humidité et le débit en différents points du circuit. Le problème essentiel est de mesurer l'humidité. L'absorption infra-rouge de la vapeur d'eau est déterminée à l'aide d'un nouvel appareil spécialement conçu pour la mesure de l'humidité dans les gaz. Il faut tenir compte de ce que la mesure relevée dépend de la pression et que la marge de mesure s'étend sur environ 3 ordres de grandeur.

Au vu des premières expériences on peut espérer que les conditions de fonctionnement et les tolérances exigées seront respectées, de sorte que l'on puisse vérifier les unités de filtres pour la rétention d'aérosols et la sorption de gaz dans les conditions propres aux réacteurs.

1. Einleitung

Im Rahmen der Filterentwicklung für kerntechnische Anlagen, wie Kernkraftwerke und Wiederaufarbeitungsanlagen, hat die Gesellschaft für Kernforschung in Zusammenarbeit mit der Fa. Lurgi einen technischen Filterprüfstand errichtet. In diesem Prüfstand können alle wesentlichen Gaszustände eingestellt werden, die für die Prüfung von Abluft- und Umluftfiltern für Normal- und Störfallbetrieb benötigt werden. Auslegungsgrenzen sind die z. Z. aus Störfallanalysen an Leichtwasserreaktoren erwarteten maximalen Belastungen des Sicherheitsbehälters.

2. Die Betriebsanforderungen an den Prüfstand

Es kann sowohl Frischluft- als auch Kreislaufbetrieb gefahren werden. Bei Frischluftbetrieb sind bei Umgebungsdruck Luft-Wasserdampfgemische von 30 - 100 % rel. Feuchte und von 25 bis 50°C einstellbar. Bei Kreislaufbetrieb können Luft-Wasserdampfgemische von 25 - 151°C und 30 - 100 % rel. Feuchte, bzw. Sattdampf bis 151°C und Heißdampf bis 200°C gefahren werden. Der Druck umfaßt den Bereich von ca. 1 bis 5 at.

Der Durchsatz kann auf Werte zwischen 400 und 2000 m³/h (Betriebskubikmeter) eingeregelt werden. Der maximal zulässige Druckabfall über die Testfilter beträgt unter Normaldruck ca. 760 mmWS. Als Prüfmedium werden inaktive und radioaktiv markierte Schwebstoffe und Prüfgase verwendet.

3. Beschreibung des Kreislaufes (Bild 1), dargestellt am Frischluftbetrieb

Es wird Hallenluft angesaugt und über einen Elektro-Lufterhitzer auf einen vorgegebenen, über der Betriebstemperatur liegenden Wert erhitzt, um eine nebefreie Befeuchtung der Luft durch Dampfeinspeisung zu erhalten. Diese Luft wird über ein Vorfilter und Schwebstofffilter der Klasse S geleitet. Ueber eine Absperrarmatur gelangt die Luft in den Kreislauf und wird mit Dampf befeuchtet. Anschließend strömt das Gas je nach Betriebsart ganz oder teilweise über einen Taupunktkühler, wobei überschüssige

Gasfeuchte auskondensiert wird. Nach Durchgang durch einen Tropfenabscheider erfolgt bei Bedarf eine Nacherhitzung zur Einstellung der gewünschten relativen Feuchte. In einem Meßstrang werden Temperatur, absolute Feuchte und der Druck gemessen. Bei Anfahrbetrieb wird die auf den Nacherhitzer folgende Teststrecke bis zum Erreichen der geforderten Betriebsbedingungen über einen Bypass umfahren.

In der Teststrecke befinden sich sechs Filterpositionen gleicher Konstruktion, die je nach Bedarf mit Elementen von maximal 610 x 610 x 292 mm wie Tropfenabscheider, Schwebstofffilter, Aktivkohlefilter etc. bestückt werden können. Die erste Filterposition kann mit Wasseraerosolen bis zu einer Sprühleistung von 9 m³ H₂O/h angeströmt werden; die Tropfengrößen liegen bei ca. 60 μm. Vor der vierten Filterposition, die während der Prüfung normalerweise mit einem Aktivkohlefilter besetzt ist, befindet sich die zweite Feuchtemeßstelle. Verwendet wird das Prinzip der Ultrarotabsorption. Dabei wird das Gas abwechselnd mit Lichtimpulsen der Wellenlängen 1930 nm und 1700 nm durchstrahlt. Die Wellenlänge 1930 nm regt H₂O-Moleküle an und wird dadurch gegenüber dem Vergleichsstrahl geschwächt. Die Schwächung ist ein Maß für die absolute Feuchte. Bei dem zu überdeckenden Bereich von ca. 3 Größenordnungen für die absolute Feuchte werden drei unterschiedliche Durchstrahlungslängen gewählt. Jede Durchstrahlungslänge ist elektronisch in 3 Meßbereiche unterteilt. Dadurch erhält man 9 annähernd logarithmisch geteilte, sich überlappende Meßbereiche.

Jede Filterposition ist mit Probenahmeeinrichtungen auf der Roh- und Reinfluftseite und mit Kondensatabzugvorrichtungen versehen, die eine Messung des Kondensatanfalles erlauben. Nach der Teststrecke erfolgt eine Erwärmung des Kreislaufgases um ca. 6°C, damit in dem folgenden Sicherheitsfilter Taupunktunterschreitungen vermieden werden. Zwischen dem Sicherheitsfilter und dem Kreislaufgebläse befindet sich ein Turbinen-Durchflußmesser, mit dem der Volumenstrom dichteunabhängig gemessen wird. Das Gebläse wurde als zweistufiges Radialgebläse mit Thyristordrehzahlsteuerung und sperrwasserbeaufschlagten Gleitringdichtungen ausgeführt.

In einem nachgeschalteten Kühler wird bei Bedarf die polytrophe Verdichtungswärme abgeführt, bevor die Abluft den Kreislauf über eine Abluftfilteranlage verläßt, oder aber beim Umluftbetrieb erneut zur Befeuchtungsstelle strömt.

Zur Vermeidung von Kondensation im Kreislauf und zur Verhinderung von Wärmeverlusten durch Konvektion ist der gesamte Kreislauf in 9 getrennte Begleitheizungsabschnitte unterteilt. Jeder Abschnitt wird über Temperaturfühler und Regler auf ca. 0,1°C genau geregelt. Außerdem wurde der ganze Kreislauf wärmetechnisch isoliert.

In der Halle von 15 x 6 x 7 m sind zusätzlich die kompletten Hilfsanlagen zur Versorgung des Kreislaufes installiert.

Das gesamte Wasser für den Kreislauf wird in einer Enthärtungsanlage auf eine Wasserhärte von $< 0,1^\circ$ deutscher Härte gebracht. Im Dampferzeuger werden ca. 250 kg Sattedampf/h bei 7 bis 10 at erzeugt. Die für die Befeuchtung bzw. Regelung benötigte Menge wird einem Pufferbehälter entnommen, der Restdampf über Dach abgeblasen. Ein Kaltwassersatz mit einer max. Kälteleistung von ca. 30.000 Kcal/h mit hochgenauer Regelung versorgt über einen Zwischenkreis den Taupunktkühler zur exakten Feuchteinstellung.

Ein Sperrwasserdruckaggregat versorgt die Wellendurchführungen des Gebläses mit Druckwasser, um Leckagen von Kreislaufgas, das kontaminiert sein kann, sicher zu vermeiden.

4. Anforderungen an die Regel- und Meßtechnik

Die relative Luftfeuchte ist einer der wichtigsten Parameter bei der Prüfung von Jodfiltern. Deshalb wurde verlangt, sämtliche Einflußgrößen so genau zu regeln, daß die Schwankungen der relativen Feuchte weniger als $\pm 3\%$ betragen. Um dies zu gewährleisten, wurde der Gesamtbetriebsbereich in 4 umschaltbare Teilbereiche unterteilt.

Im Bereich 1 werden Frischluft- und Umluftbetrieb bei 1 bis 5 at und Feuchten größer als 95 % gefahren. Dazu wird das gesamte

Kreislaufgas über den Taupunktkühler geführt und auf den gewünschten Taupunkt abgekühlt. Der Taupunkt wird über ein Dreiwege-Regelventil im Kaltwasserkreislauf eingestellt. Nach Einstellung des Taupunktes erfolgt eine Nacherhitzung des Kreislaufgases zur Einstellung der geforderten relativen Feuchte.

Im Bereich 2 werden Umluftversuche bei 1 bis 5 at und Feuchten kleiner 95 % gefahren. Aufgrund der anderenfalls benötigten hohen Kälteleistung bei höheren Drücken und großen Durchsätzen erfolgt im Bereich 2 die Feuchterege- lung durch Mischung von 2 Teilströmen, wobei nur ein Teilstrom über den Taupunktkühler geführt wird. Die Feuchte wird durch Aenderung des Teilstromverhältnisses eingestellt.

Bereich 3 und 4 ist für reine Sattedampf- bzw. Heißdampfversuche vorgesehen.

Da Temperaturfehler die Genauigkeit der FeuchteEinstellung stark beeinflussen, wurden an die Temperaturmessung und -regelung ebenfalls hohe Ansprüche gestellt. Es werden zwei Widerstandsthermo- meter Pt 500 benutzt, deren Widerstandskurven mit geeichten Hauptnormalenthermometern nachgemessen wurde. Der gesamte Meß- bereich wurde in 24 sich überlappende Einzelbereiche von je 12°C unterteilt. Jeder Einzelbereich entspricht einem Regelbereich von 100 %. Es wird eine Temperaturgenauigkeit und Reproduzierbarkeit von besser 0,1°C erreicht. Die elektrische Heizleistung der Nach- erhitzer wird dazu in einem einstellbaren Festwert zwischen 0 und 90 % und eine geregelte Last von ca. 10 % unterteilt. Die Leistungseinstellung wird mit vollwellengesteuerten Thyristoren vorgenommen.

Die Druckmessung erfolgt ebenfalls an zwei Stellen des Kreis- laufes und zwar vor und in der Teststrecke. Der Gesamtdruck setzt sich zusammen aus einem festeingestellten Basisdruck und einer Druckregelspanne von 900 mmWS, die registriert wird. Die Druck- regelung erfolgt über pneumatisch gesteuerte Ventile bei konstan- ter Gasabgabe und geregelter Luft- bzw. Dampfzufuhr.

Die Durchflußmessung erfolgt mit einem rein volumetrisch messenden Turbinendurchflußmesser mit induktivem Abgriff. Der Volumenstrom wird durch Drehzahlvorwahl des Gebläseantriebes eingestellt.

5. Sicherheitsmaßnahmen

Da in dem Kreislauf auch mit radioaktivem Prüfmittel gearbeitet wird, müssen alle Maßnahmen ergriffen werden, um das Personal und die Umgebung vor unzulässig hohen Belastungen zu schützen.

Der Kreislauf wurde, mit Ausnahme der Schaltwarte, in einer eigenen Halle montiert, die an einer speziellen Lüftungsanlage mit Jodfiltern angeschlossen ist. Die Halle steht unter 5 mmWS Unterdruck.

Im Frischluftbetrieb ist im Kreislauf immer Unterdruck vorhanden, da das Gebläse vor den Abzweig zur Abluftanlage gelegt worden ist. Alle zum Betriebsablauf lösbaren Verbindungen sind mit Doppelabdichtungen mit Zwischenabsaugung versehen, um auch kleinste Leckagen nach außen zu vermeiden. Die Wellendurchtritte der Gebläse wurden mit Gleitringdichtungen mit Sperrwasseraufgabe versehen. Der Sperrwasserdruck liegt immer über dem Kreislaufdruck.

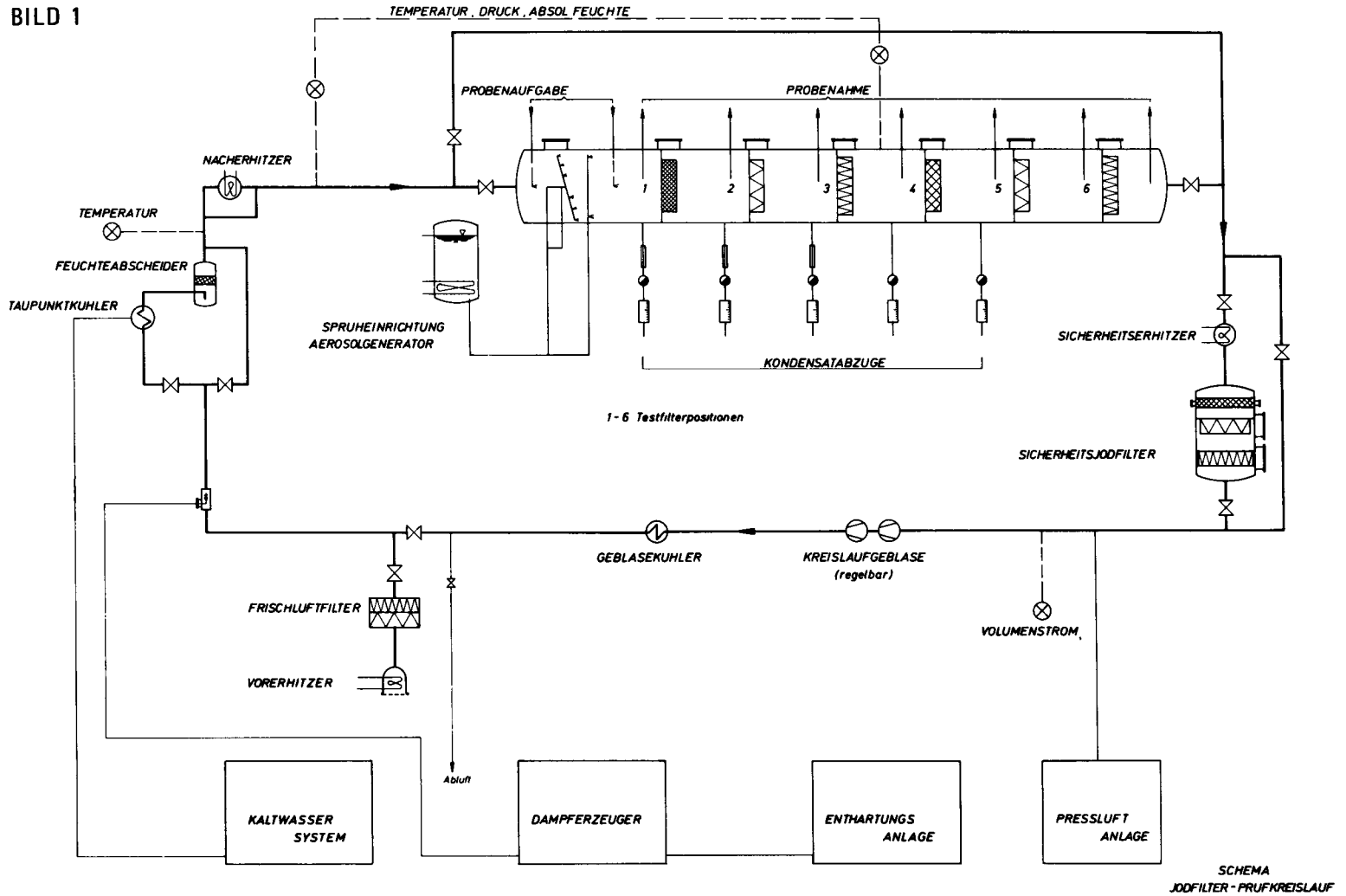
Kondensat aus dem Kreislauf, das kontaminiert sein kann, wird in einem Tank für möglicherweise radioaktives Abwasser gesammelt und entsprechend behandelt. Es sind alle notwendigen Maßnahmen getroffen, um Kontaminationen von Kühlwässern zu verhindern, wie z. B. Zwischenkreise bzw. gesicherte Ueberdrücke auf der Kühlwasserseite. Zusätzlich wird bei Versuchen z. Z. der Aktivitätsaufgabe eine Kühlwasserprobe genommen und auf radioaktives Jod hin untersucht.

Zur Vermeidung einer Kontamination des Prüfstandpersonals durch gasförmiges ^{131}J wird die Hallenluft mit einem kontinuierlich arbeitenden Jodmonitor überwacht.

Literaturverzeichnis

J. WILHELM, H.-G. DILLMANN, K. GERLACH, H. SCHUETTELKOPF, Auszug aus Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Jahresbericht 1971, KFK 1565, S. 199.

BILD 1



EXPERIENCE AT WINDSCALE OF FULL SCALE IODINE SORPTION
PLANT TESTING WITH METHYL IODIDE

J.J. Hillary and L.R. Taylor

U.K.A.E.A.
Windscale - U.K.

SUMMARY. For a number of years - since 1965 - the charcoal bed units of the iodine sorption plants at Windscale have been tested with a realistic compound of fission product iodine, methyl iodide-131. These plants have included a range of design features and have been installed to perform a variety of duties, namely the control of reactor coolant gas discharge, leakage and hot cell ventilation. This full-scale test experience, combined with supporting laboratory tests on the sorption material (principally impregnated charcoal) also using methyl iodide-131, has sometimes revealed deficiencies in the plant performance. Problems of mechanical by-passing of the charcoal and in one case extensive poisoning have been observed. Rectification measures and further testing were required to prove the satisfactory performance of the plant.

By the application of proper safety procedures many tests have been conducted with millicurie levels of iodine-131 activity without causing safety problems.

It is concluded that it is essential to carry out full-scale and laboratory testing of iodine sorption plant in order to give confidence in operational performance. Efficient operation also requires careful attention to design specification, which has been improved during the test programme, and to supervision during plant installation.

RESUME. EXPERIENCE ACQUISE A WINDSCALE DANS L'ESSAI A L'IODURE DE METHYLE EN GRANDEUR NATURE D'UNE INSTALLATION DE SORPTION D'IODE. De longue date - depuis 1965 - les unités à lit de charbon des installations de sorption d'iode de Windscale sont essayées à l'aide d'un composé réaliste d'iode de fission, l'iodure de méthyle (I-131). Ces installations présentent un certain nombre de particularités et ont été conçues pour remplir des fonctions diverses, notamment de contrôle du rejet de gaz de refroidissement du réacteur de contrôle, des fuites et de la ventilation des cellules chaudes. Ces essais grandeur nature, en liaison avec des essais complémentaires en laboratoire pratiqués sur le sorbant (principalement du charbon imprégné) au moyen d'iodure de méthyle (I-131) ont quelquefois révélé des défaillances dans le rendement de l'installation. Des problèmes de contournement du charbon se sont posés et, dans un cas, on a observé un empoisonnement important du sorbant. Il a fallu procéder à des corrections et à des essais supplémentaires pour vérifier le fonctionnement satisfaisant de l'installation. Les essais ont été réalisés avec des activités de l'ordre du millicurie d'iode 131 sans soulever des problèmes de sécurité ; pour les essais en question, des dispositions spéciales de protection doivent être élaborées et observées strictement. En conclusion, il apparaît indispensable de soumettre à des essais grandeur nature ainsi qu'à des essais de laboratoire les installations de sorption d'iode, en vue d'obtenir la confiance dans leur bon fonctionnement. Il convient également d'accorder une grande attention aux spécifications du projet qui ont fait l'objet d'amélioration du cours du programme d'essai et de surveiller la mise en place de

l'installation.

KURZFASSUNG. ERFAHRUNGEN BEI DER PRUEFUNG VON TECHNISCHEN JODSORPTIONSANLAGEN MIT METHYLJODID IN WINDSCALE. Seit einer Reihe von Jahren - nämlich seit 1965 - sind die Aktivkohleeinsätze der Jodsorptionsanlagen in Windscale mit der in der Praxis vorkommenden Verbindung des J-131 in Form von Methyljodid geprüft worden. Die Anlagen weisen eine Reihe von besonderen Konstruktionsmerkmalen auf; sie sind für verschiedenartige Aufgaben eingerichtet worden, und zwar für die Kontrolle der Ableitung von Reaktorkühlgas, die Kontrolle der Leckagen und der Belüftung von heißen Zellen.

Diese Prüfungen im technischen Maßstab haben in Verbindung mit ergänzenden Laboruntersuchungen des Sorptionsmaterials (hauptsächlich imprägnierte Aktivkohle), bei denen auch J-131 in der Verbindung Methyljodid verwendet wurde, in einigen Fällen Mängel hinsichtlich des Abscheidegrads der Anlage erkennen lassen. Mechanische Umgehung der Aktivkohle (By-Pass-Strömung) und in einem Fall weitgehende Vergiftung sind beobachtet worden. Verbesserungsmaßnahmen und weitere Prüfungen waren erforderlich, um wieder einen befriedigenden Abscheidegrad der Anlage unter Beweis zu stellen.

Die Versuche wurden mit Methyljodid (J-131) bei einer Aktivität im Millicurie-Bereich ausgeführt und warfen keine Sicherheitsprobleme auf; spezielle Sicherheitsverfahren für die Prüfung wurden entwickelt und strikt eingehalten.

Es wird für wesentlich erachtet, sowohl Prüfungen im technischen Maßstab als auch Laborprüfungen an Jodsorptionsanlagen durchzuführen, um Sicherheit über den Abscheidegrad im Betrieb zu gewinnen. Um einen wirksamen Abscheidegrad zu gewährleisten, ist ferner besondere Aufmerksamkeit bei der Auslegung erforderlich - diese wurde während des Versuchsprogramms noch verbessert - und der eigentliche Einbau des Abscheiders zu überwachen.

INTRODUCTION

1. Arising out of early work^(1,2,3) on the characterisation of iodine species released from irradiated fuel pins, a method was developed for the testing of the sorption unit of a full-scale fission product trapping plant. It was based on the use of methyl iodide-131, a realistic penetrating form of probably the most radiobiologically important fission product. This method has been developed into a standardised procedure and its early use on a number of plants at Windscale has been described⁽⁴⁾.

2. The sorption units of these plants, of a variety of designs and functions, are based on the material activated charcoal. Apart from early installations, most of the work described has been associated with the employment of impregnated charcoals, specially developed⁽⁵⁾ for effective trapping of methyl iodide under wet gas conditions.

3. An essential part of this programme has consisted of associated testing, in the laboratory, of representative samples of charcoal by a further standard test (under high humidity conditions) also involving the use of methyl iodide-131. This has provided invaluable complementary assistance in diagnosing the causes of poor full-scale plant performance, in particular to separate plant by-passing and charcoal ageing or poisoning effects, so that the correct rectification measures could be more accurately decided upon.

EXPERIMENTAL

4. Full details of the procedures which are applied for testing plant and sorption material with methyl iodide-131 at full scale and in the laboratory are described elsewhere⁽⁶⁾. Briefly, in each case a suitable source of methyl iodide-131 is prepared by passing an inert gas through a mixture of dimethyl sulphate and aqueous potassium iodide-131, and the vapourised methyl iodide-131 (b p 42.5°C) is condensed into a silica capsule - later sealed off-by freezing. The usual mass of the source is about a milligramme and its activity variable but normally at millicurie level to give adequate sensitivity for full-scale testing.

5. The unit to be tested in-situ is set up as indicated in Fig. 1. A suitable location upstream is identified for source release. This may be simply an arrangement for crushing the capsule within the ventilated hot cell atmosphere (eg by master-slave manipulator) or within a duct (Fig. 2a)

or in an apparatus (Fig. 2b) designed to crush the capsule. The volatile source is either driven into the release location (usually a large diameter duct) by gas pressure or drawn in by reduced pressure which may be available in a containment building or enclosure. The release period is short and the rate of arrival of activity at the charcoal bed varies considerably because it is dependent on the hold-up en route.

6. The apparatus (Fig. 2b) consists of a shielded capsule fracturing arrangement (for instance a wide-bore valve which upon rotation breaks the capsule) and the connecting pipework, so that the volatilising source can be passed into the release point by a flow of gas. A glove-box or suitable ventilated enclosure is employed to afford adequate safety to the operator. Charcoal bed safety traps are also fitted to ensure that any inadvertent activity release is prevented.

7. Upstream and downstream of the plant, sample points are provided through which a proportion of the main gas flow is withdrawn through charcoal samplers at a known measured flowrate. Subsequent to a test the charcoal samples are assessed for iodine-131 content by standard γ -counting techniques and the activities compared to adduce the plant performance. Early penetration, ie during the first $\frac{1}{2}$ hr, is usually an indication of gas by-pass of the charcoal (it can also result from extensive poisoning): later increase in penetration when methyl iodide is no longer reaching the charcoal is evidence of desorption which may result from in-service deterioration or by poisoning.

8. The results of the full-scale tests are expressed as a percentage penetration (either of the known added source or, more usually relating the outlet to inlet sampler activities) or a decontamination factor (DF) which is the reciprocal of the fractional penetration. Laboratory test results are given in terms of penetration under controlled conditions, particularly the charcoal stay-time (t) which is standardised at 0.2 sec; more usually these data will be converted into an index of performance or K-value, where $K = (\log_{10} DF)/t$ where DF = 100/% penetration and t is in seconds. The performance of charcoals, (the type used has been 8-12 mesh size) impregnated with 1.5% KI or 5% TEDA, is usually such that the penetration measured in the standard high humidity (near 100%) test with methyl iodide is less than 1% at 0.2 sec staytime which leads to a 'K' value of 10 or more. The

use of the above formula for K, which is discussed more fully elsewhere⁽⁵⁾ allows the performance to be evaluated for the different values of staytime which may apply on the plant.

9. The tests have been carried out on a variety of plants, installed to deal with the discharge of reactor coolant gas, reactor gas leakage and hot cell ventilation air. The following paragraphs detail the results obtained so as to illustrate the principal features which have been found to be important.

RESULTS

Reactor Gas Discharge Treatment Plants

10. Each plant is installed to deal with pressurised carbon dioxide coolant by once-through discharge and additionally to allow recirculation of reactor containment building gas (mainly air); it was tested almost exclusively in the latter role. The plant is contained in a substantial steel pressure vessel and is so designed that the orientation of flow through the charcoal is horizontal (Fig. 3). The charcoal is contained in four boxes which are mounted on the vertical sides of a square box section. It is retained by steel gauze supported by steel strip.

11. The results of tests on these duplicate units are given in Tables I & II. The result of the first test on Unit 1 is interpreted as a penetration due to the type of impregnated coconut charcoal originally used which was not very effective in trapping methyl iodide; a proportion of this penetration may however have been due to by-pass leakage. After re-charging with mixed, KI-TEDA impregnated coal-based charcoal the performance was initially very good (penetration, $< 0.015\%$, corresponding to a DF of > 6700) but soon afterwards two further tests showed that a leakage path had developed (penetration, 8.5, 8.6%). Repairs to a defective baffle plate and topping up the charcoal level largely restored the position (penetration $< 0.27\%$).

12. Later performance tests (penetration, 11.4%, falling to 0.11%) covered a period in which further repairs and topping up proved to be necessary. Subsequently, over the next two years the performance remained approximately constant (penetration around 0.1%). Penetration then increased to 0.54% with some indication of deterioration of charcoal performance. Since this

charcoal had been in service for a total period of over 5 years, it was replaced by fresh mixed impregnated material.

13. Similar tests were carried out on the duplicate unit no. 2 (Table II). After recharging with mixed, KI/TEDA impregnated coal-based charcoal, this initially showed good performance both with high pressure CO₂ under normal blowdown conditions using iodine which had been released from operationally defective fuel (penetration < 0.1%), and with air in its recirculation mode using added methyl iodide-131 (penetration < 0.01% in two separate tests).

14. The performance then deteriorated dramatically, penetration increasing to the range 5.8 to 16.4% in four separate tests in air. At first this was supposed to be the result of leakage past the charcoal. However, a sample of charcoal was withdrawn from the plant and subjected to experiments in the laboratory. These showed the presence of large amounts of organic material, principally acetic acid, and retention was poor when tested with methyl iodide. Penetration was 60 to 70% in the standard high humidity test with 0.2 sec staytime; the normal penetration is < 1%. The cause of the contamination was discovered to be a duct which allowed vapour, from organic liquors (comprising mainly acetic acid) arising in another part of the reactor plant, to discharge directly to the charcoal bed. This duct was sealed and a fresh charge of charcoal installed in the plant.

15. Further problems arose upon resumption of the test programme. In the next three tests, the penetration remained high, 3 to 4%. Examination of the main interior circumferential vessel seal revealed a potential leakage path and this was repaired by the provision of a temporary plastic seal. Testing showed that this had successfully eliminated the leakage (penetration < 0.05%) and a more permanent seal was fitted. Since that time, penetrations have remained low, 0.06% or less, during a period of over four years.

Reactor Void Ventilation Treatment Plant

16. The results of tests on this unit are given in Table III. Originally, at a period prior to the identification of methyl iodide as the principal problem for iodine trapping plant designers, this unit was laid out as an aqueous alkali scrubber device, of the Peabody type. During the mid 1960's it was converted to employ charcoal as the sorbent material and the design changed to an annular-shaped bed with horizontal flow (Fig. 4). It deals

with cooling air which sweeps over the reactor pressure vessel and which may carry leaking CO₂ and volatile fission products.

17. After charging with mixed KI/TEDA impregnated coal-based charcoal it gave satisfactory performance (penetration < 0.1%) for a period of four years, until a test which was continued for many days indicated that charcoal deterioration was occurring. Fig. 5 shows the desorption pattern; however it can also be seen that penetration early in the test was still low, indicating good plant mechanical performance. A laboratory test on a sample of the plant charcoal which was then withdrawn also showed a large penetration. The charcoal was replenished and tests over the three years or so which have elapsed since that time have shown that the plant has continued to give a satisfactory performance (penetration 0.055% or less).

Hot Cell Plants

18. Three different plants have been tested, of essentially two designs.

Plant A.

19. Originally this plant was designed with mainly horizontal, but part vertically upwards flow. An earlier paper⁽⁴⁾ describes the failure of the upwards flow section, due to charcoal fluidisation and seal or charcoal containment failure which led to loss of charcoal from the plant. This section was eliminated by blanking off and the design is now wholly horizontal flow. The design (Fig. 6) is such that individual box-shaped modules are bolted to a large frame. The charcoal is retained in these boxes by steel gauzes. Recently the box construction has been strengthened and the gauze supported by stiffer, larger-mesh gauze. A prototype of the redesigned box module was separately tested at full flow with methyl iodide and shown to be satisfactory.

20. Subsequent testing (Table IV) over a period of over three years which included charcoal replacement (due to in-service deterioration) has shown the performance to be satisfactory (penetration < 0.1%). More recently, following a second charcoal charge replacement a test indicated poor performance (penetration 2.6%). Upon examination this proved to be due to a combination of settling and sealing problems. Rectification and retesting has resulted in improved performance (penetration 0.08 to 0.13%).

Plant B

21. Tests on a now unused plant have been described⁽⁴⁾ in which the charcoal was installed in large shallow trays which gave poor performance, due probably to vibration and inadequate packing causing charcoal redistribution which allowed leakage paths to develop at the edge of each tray (Fig. 7). It was decided that an increase in the height/diameter ratio of the charcoal bed combined with more effective filling and charcoal retention arrangements would eliminate this problem. A plant design was evolved to incorporate these principles and to include the covering of seals with charcoal so that any gas leakage would be filtered by contact with sorbent.
22. Plant B consisted of such an experimental design and also incorporated a stepped arrangement (Fig. 8a) to increase the superficial face area of the bed, within overall size limitations, so that the pressure drop across the unit could be kept to a reasonable value.
23. The results of tests on this plant are given in Table V. The plant deals with six parallel facilities, termed lines 1 to 6, each of which is fitted with an iodine sorption unit as sketched in Fig. 8a. Eight such units, A to H were tested, including two spares: the units are interchangeable amongst the various lines and this feature was also tested. Originally, line 1 was equipped with unit A, line 2 with unit B, and so on. Taking two examples, lines 1 and 6, for the purposes of illustration, it is clear that in the case of line 1, unit A gave very good performance (penetration <0.002%, corresponding to a DF of 5×10^4 , also proving main seal quality) whilst unit G was poor. The tests of line 6 show similarly that unit F is very good but confirm the poor performance of unit G.
24. Generally speaking, these tests show that the basic design is satisfactory and that the methyl iodide test can be quite sensitive; a few millicuries of methyl iodide-131 was released in a flow through these units of $25 \text{ m}^3/\text{min}$. However, in two cases and possibly a third, poor performance was observed, due to defective welding during construction; this is being rectified.

Plant C

25. The basic design of this charcoal bed unit is similar to that applied for plant B, viz a stepped egg-box type. The general layout of the plant is

given in Fig. 9 and the results of plant testing in Table VI.

26. The tests show a poor performance due principally to by-passing of the charcoal bed unit. Attention to valves and the by-pass line successfully eliminated the leakage path. The performance of the charcoal bed unit was good; penetrations of 0.015 to 0.022% were associated with freshly charged charcoal, values of 0.08 to 0.097% were obtained at a later date and samples of the charcoal tested in the laboratory showed some deterioration due to service use.

DISCUSSION

27. A large number of tests have been carried out on charcoal trapping plants of varied design and duty, as a result of which a number of defects have been brought to light. In the majority of cases where poor charcoal bed plant performance has been detected, a proportion of the gas flow has by-passed the charcoal, but in a few tests poor performance has been traced to inefficient sorption by the charcoal.

28. Factors which have contributed to by-passing of the charcoal can arise in the design, construction and installation of trapping plant, and those identified by the tests at RDL Windscale have included:

Defective seals on flanges

Charcoal settling (especially when there is excessive vibration,
loose filling, or shallow beds)

Inadequate charcoal retention arrangements

Leaks through charcoal charging holes

Flow direction (eg upwards flow allowing charcoal fluidisation)

Weld defects

Defective seals on valves

29. Poor performance due to inefficient sorption by new charges of charcoal was observed in the early installations but the development of impregnated charcoal with better retentive properties and the application of rigorous laboratory tests on the charcoal before charging have eliminated this as a source of fault. In-service deterioration still occurs, however,

and it has been the practice to evaluate this by long-term behaviour studies⁽⁷⁾ in the laboratory of the charcoal type used. This information was re-inforced by withdrawal of samples from the bed when in use, for laboratory tests of sorptive efficiency. Normal ageing occurs relatively slowly and with an organised testing programme should not develop to a stage where performance is seriously impaired. In-service deterioration, nevertheless, can sometimes be much more rapid than that predicted from a knowledge of the ageing characteristics of the charcoal because of some agent not taken into account in the ageing tests. An extreme example of this has been referred to under Reactor Gas Discharge Treatment Plant No 2, the poor performance of which in a plant test was diagnosed as acetic acid poisoning by the supporting laboratory programme.

30. The work at RDL Windscale on plant performance and the defects which it has disclosed provides information that is useful for improving design, construction and installation of sorption plant. A number of the plant faults encountered could have been eliminated at the design stage. For instance, the soundest design principle is to arrange a vertically downwards gas flow through the charcoal; horizontal flow systems, although capable of giving a good performance, have proved liable to faults caused by charcoal settling and the formation of by-pass routes for the gas, whereas vertically upwards flow has presented problems due to charcoal fluidisation.

31. A further design principle would be to employ the minimum of sealing surfaces consistent with the necessity for filling and refilling the bed with charcoal; the ideal system would be, in fact, one in which the whole of the plant section was filled with charcoal. Sealing surfaces that offer the chance of by-pass leakage can sometimes be 'buried' in charcoal, thus minimising the effect of a leakage path appearing during service, but in any case for all possible leakage paths that cannot be eliminated in the design, scrupulous attention should be paid to the condition of the welds and sealants used during construction and installation. Incorporated into the design should also be provision for plant testing and for removing portions of the sorbent, preferably by samples through the length of the bed in the direction of flow, which can then be monitored for sorbent efficiency under the standardised conditions provided by laboratory tests (see Fig. 8b).

32. The specification of a suitable sorbent (eg mixed KI/TEDA impregnated charcoal) should be undertaken at an early stage of design. Extended laboratory testing may then be carried out on samples from the manufacturer; the final testing should eventually be carried out on samples from the actual charge to be used.

33. The work at RDL Windscale has demonstrated the necessity for a comprehensive plant test programme supported by laboratory tests of the sorbent material. As a general principle, a plant should not be assumed to be effective until proved to be so by properly designed tests. A newly-installed unit (even if of relatively proven design) should be tested thoroughly. Relaxation to relatively routine checks may then be possible once its performance has been shown to be acceptable, but more frequent and thorough testing should be carried out to re-establish confidence in performance if any non-routine operation is carried out on the plant, eg repair or replacement of a plant item, and especially replacement of charcoal.

34. The frequency of routine testing that should be applied to an operational plant apparently functioning normally cannot be given as a figure capable of general application. Every plant should be assessed individually, and a test programme made up bearing in mind such factors as:-

- (i) Plant duty - flow condition, proportion of life in operational service.
- (b) Plant history - penetration values measured, defects found.
- (c) Sorbent material - knowledge of characteristics and breadth of R & D examination; prediction of in-service deterioration; possibility of poisoning.
- (d) Plant function - consequences of failure.

35. Finally, tests should be carried out at a suitable time prior to charge replacement to confirm predicted deterioration through ageing; a full-scale plant test should be supported by tests in which samples of the original charge stored under laboratory conditions and samples of material removed from the plant are compared under laboratory conditions for evidence of accelerated ageing caused by, for example, slight poisoning or departures from expected operating conditions.

CONCLUSIONS

36. The programme of full-scale testing of iodine sorption plants at Windscale with methyl iodide-131 has identified a number of plant defects, principally giving rise to gas by-passing the charcoal sorption material. Defects in the latter have also been observed due to poisoning and the use of an early variety of charcoal with poor sorption characteristics.

37. These faults have been largely eliminated and good performance restored. The knowledge gained can be used to improve the design, construction and installation of future plants.

38. A comprehensive test programme should be followed which combines full scale testing, in-situ, with a supporting laboratory programme on the sorption material. Methyl iodide-131 has proved to be a satisfactory test agent.

39. A properly developed sorption material (eg impregnated charcoal) should be used as the basis for plant design.

40. Samples taken from the main plant and which are representative of the bulk sorbent should be available so that the true in-service performance can be evaluated; this affords a check on the ageing characteristics of the material and on the possible effects of unforeseen changes in operating conditions.

REFERENCES

1. EGGLETON, A E J and ATKINS, D H F. "The identification of trace quantities of radioactive iodine compounds by gas chromatographic and effusion methods". *Radiochimica Acta* 3, 151 (1964).
2. COLLINS, D A et al. "Experiments relating to the control of fission product release from Advanced Gas-cooled Reactors". *Reactor Science and Technology. J. Nuclear Energy Parts A/B*, 20, 97 (1966).
3. COLLINS, R D, HILLARY, J J and TAYLOR, J C. "Air cleaning for reactors with vented containment". TRG Report 1318(W) 1967. Also published as CONF 660904 p419.
4. HILLARY, J J, GATE, L F and GURNEY, K. "Experience in testing installed trapping plant with methyl iodide". TRG Report 1548(W) 1967.
5. COLLINS, D A, TAYLOR, R and TAYLOR, L R. "The development of impregnated charcoals for trapping methyl iodide at high humidity". TRG Report 1300(W) 1967. Also published as CONF 660904, p159.
6. HILLARY, J J. "Iodine sorption plant test procedures in the UK". TRG Report 2497(W) Part I 1973. Also published as paper 2(a), Seminar on Iodine Filter Testing, Karlsruhe, December 1973.
7. TAYLOR, L R and TAYLOR, R. "The ageing of impregnated charcoals". TRG Report 2483(W) 1973. Also published as paper 6, Seminar on Iodine Filter Testing, Karlsruhe, December, 1973.

TABLE I

Reactor Gas Discharge Treatment Plant No. 1

Event no.	Penetration %	Operation	Comments
			The plant operates occasionally in its recirculation duty, and intermittently for gas discharge. The plant system is horizontal flow with baffles, and has a stay-time of one second in the recirculation mode. The original charge was SCII charcoal (coconut-based, unimpregnated) See Fig. 3
1	2-3		High penetration due to type of charcoal.
2		Charcoal changed to 50:50. 0.5% KI-5% TEDA impregnated 207B charcoal.	
3	< 0.015		
4	8.5	Bed topped up, baffle repaired.	
5	< 0.27		
6	11.4	Bed topped up, further repairs.	
7	0.11		
8	0.12		
9	0.13		
10	0.54		Evidence of desorption
11		Charcoal replaced.	

TABLE II
Reactor Gas Discharge Treatment Plant No. 2

Event no.	Penetration %	Operation	Comments
1		Refilled with 50:50, 0.5% KI-5% TEDA impregnated 207B charcoal.	As Plant No. 1 (Table I)
2	< 0.1		Tested under gas discharge conditions with CO ₂ at pressure, and monitoring the I-131 discharge from fuel.
3	< 0.01		Normal (re-circulation) test carried out in duplicate.
4	5.8-16.4		Acetic acid poisoning confirmed by laboratory tests of charcoal sample.* Possible contribution from flange leakage.
5		Charcoal changed	
6	3-4		Three tests carried out.
7		Temporary plastic seal fitted to top flange.	
8	< 0.05		
9		More permanent plastic seal fitted to top flange.	
10	< 0.05		
11	0.06		
12	0.02		
13	0.025		
14	0.06		

*Penetration 60 to 70% in the standard high humidity test with methyl iodide; normal penetration is < 1% (K value > 10).

TABLE III

Reactor Void Ventilation Chemical Plant

Event no.	Penetration %	Operation	Comments
1	0.14	Charged with unimpregnated charcoal.	Plant duty is ventilation air treatment. The plant system is horizontal flow with baffles. The plant was originally designed as a liquid alkali scrubber system and converted to a charcoal bed in late 1964. Stay-time 0.8 seconds. See Fig. 4
2			
3		Charged with 50:50, 0.5% KI-5% TEDA impregnated 207B charcoal.	
4	<0.1		Six tests in all carried out in this period.
5	See comment		Plant had now had 4 years continuous service with air/ \sim 1% CO ₂ at about 50°C. In a test carried out at this time penetration early in the test was still low, indicating good mechanical performance and good initial retention by the charcoal. But penetration up to 2% after about a week (see Fig.5). Charcoal sample from plant gave poor performance in standard laboratory test.
6		Charged with fresh impregnated charcoal.	
7	<0.014		
8	<0.01		
9	<0.010, <0.011		Duplicate tests.
10	0.055		
11	0.03		

TABLE IV

Extract Unit of Hot Cell Plant 'A'

Event no.	Penetration %	Operation	Comments
			The plant is part of a continuous extract system. The plant initially operated with a part vertical flow, and part horizontal flow with baffles. Present stay-time 0.45 secs.
1		Bed filled with SCII charcoal.	
2	40		Initial penetration.
3	100		Penetration after 50 hours. Possible by-pass of charcoal, in addition to desorption.
4		Bed charged with 50:50 0.5% KI-5% TEDA 207B charcoal.	
5	<0.02		
6	9		Charcoal lost from upward flow section due to combination of fluidisation and containment/seal failure.
7		Upward flow section blanked off.	
8	<0.02<0.03<0.06		Three separate tests.
9	<0.02		
10		Charcoal replaced	Based on ageing measurements.
11	0.1		
12	<0.04		
13	0.013		
14		New modules of improved design installed, and charcoal changed.	
15	2.6	Charcoal topped up and seals attended to.	
16	0.08		
17	0.13		
18	0.10		
19	0.11		Charcoal due for replacement based on ageing predictions.

TABLE V
Extract Unit of Hot Cell Plant 'B'

Event no.	Penetration %	Charcoal Unit designation	Hot Cell Sub-division (line number)	Comment
				Deals with hot cell ventilation. Downward flow; egg-box type. Stay-time 0.3 seconds. See Fig. 8A.
1	< 0.035	A	1	
2	< 0.023	B	2	
3	0.28	E	5	
4	0.44	F	6	
5	6.1	G	1	
6	< 0.002	A	1	
7	2.8	G	6	
8	14.1	H	5	
9	10.6	H	5	
10	3.5	G	6	Lab tests of charcoal supplied to each of these units gave satisfactory results.
11	3.2	H	5	
12	< 0.0035	B	2	
13	0.0019	D	4	
14	< 0.0015	C	3	
15	4.0	G	6	
16	< 0.0039	F	6	

TABLE VI

Extract Unit of Hot Cell Plant 'C'

Event no.	Penetration %		Comment
	Charcoal bed only from SP1/SP2* samplers	Charcoal bed plus by-pass from SP1/SP3* samplers	
1	-	14	Deals with hot cell ventilation. Downwards flow: egg-box type. See Fig. 9 and Fig. 8(a). Stay-time 0.5 seconds. Source released in Cell A, flap valves 2,3,4,5 closed.
2	0.022	20	As above.
3	0.015	17	Source released in Cell B, flap valves 1,3,4,5 closed.
4	0.097**	3.6	As test 3, but flap valve 4 sealed.
5	0.080**	0.080	As test 3, but flap valves 4 & 5 sealed.

*Refer to Fig. 9 for locations of SP1, 2, 3 which are sample points.

**A sample of charcoal subjected to the laboratory test with methyl iodide showed deterioration which probably accounts for the reduced plant performance.

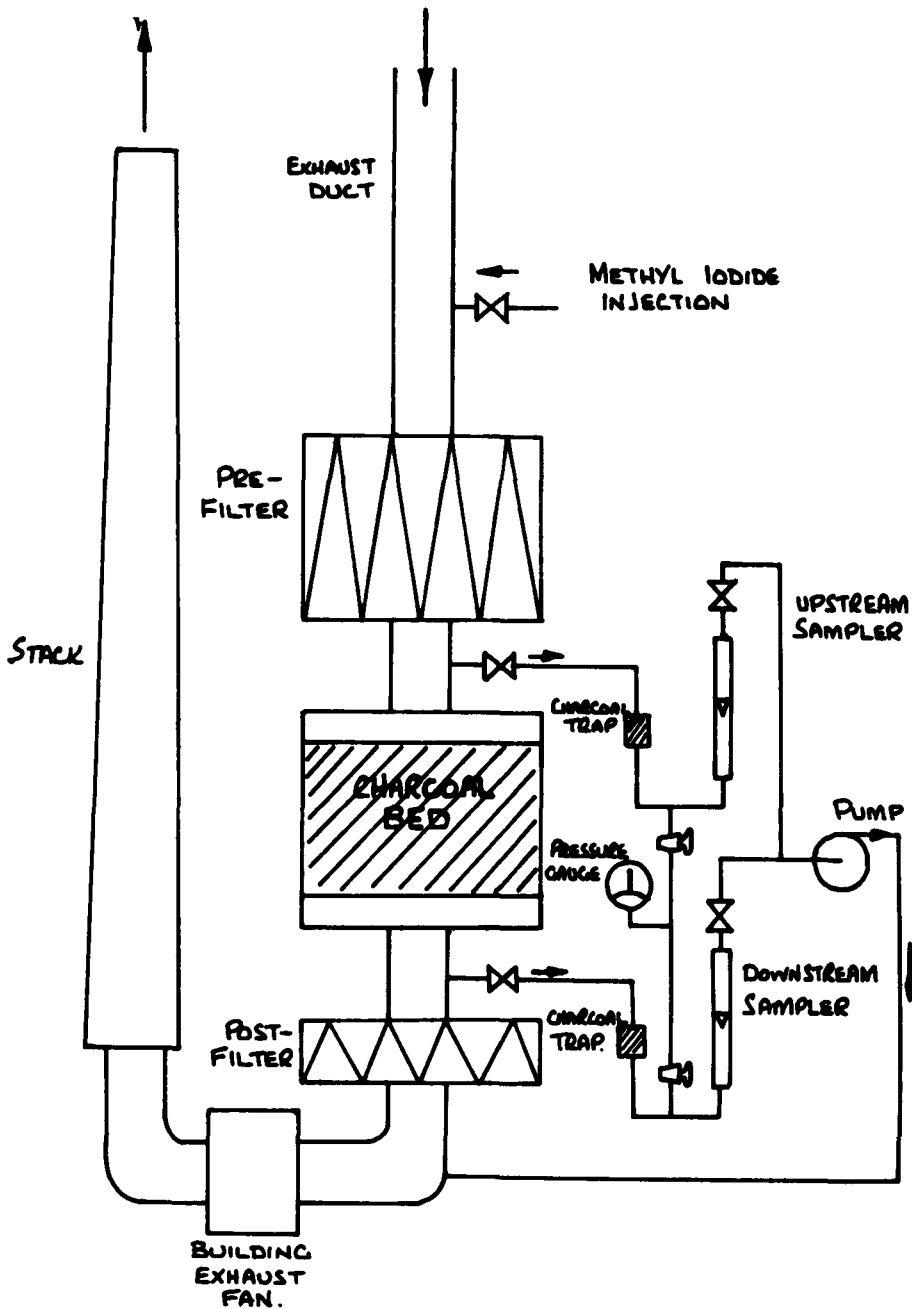


FIG. 1. GENERAL ARRANGEMENT FOR IN-SITU TEST OF IODINE TRAPPING PLANT.

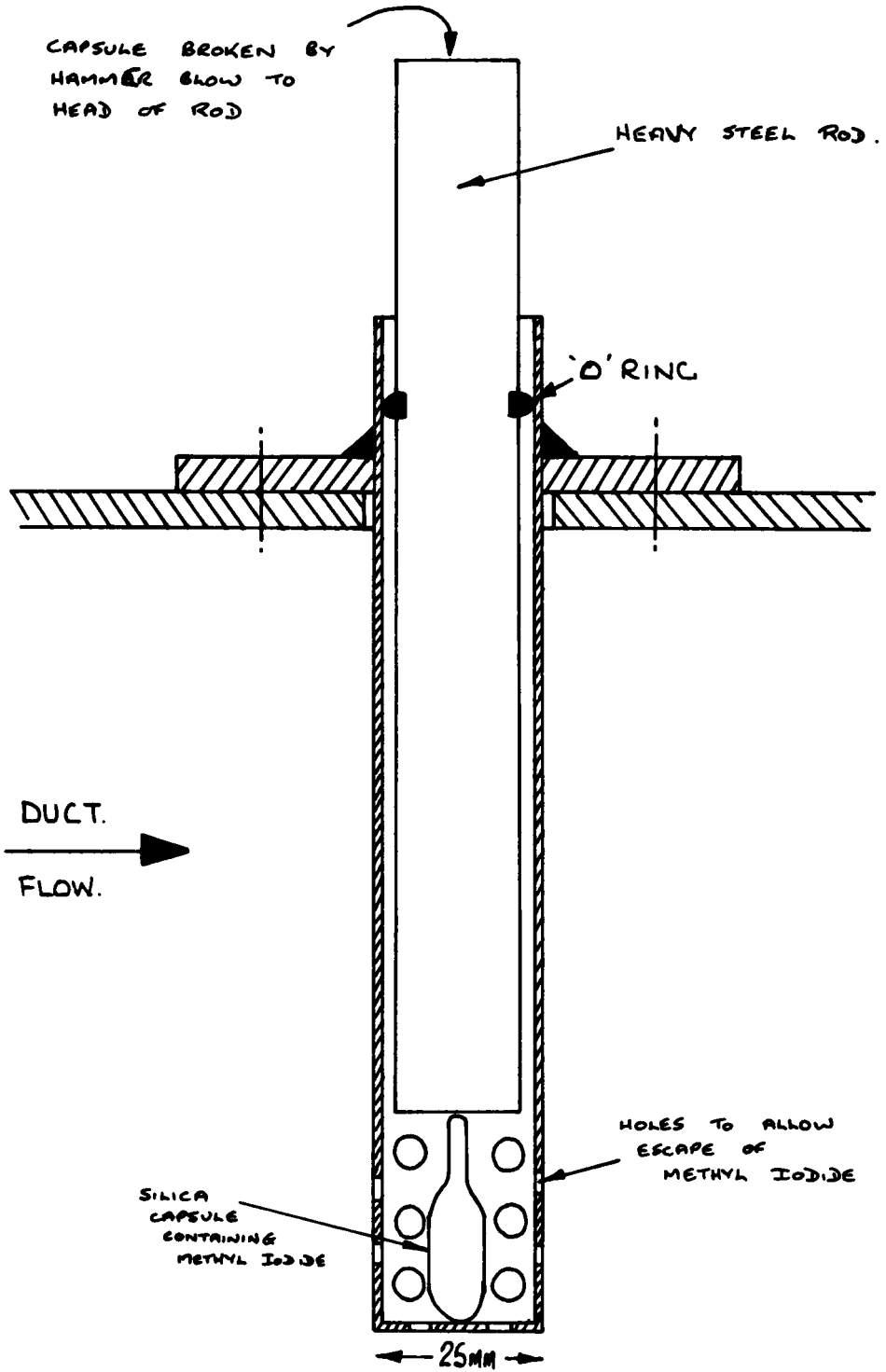


FIG. 2(a). METHYL IODIDE CAPSULE CRUSHER

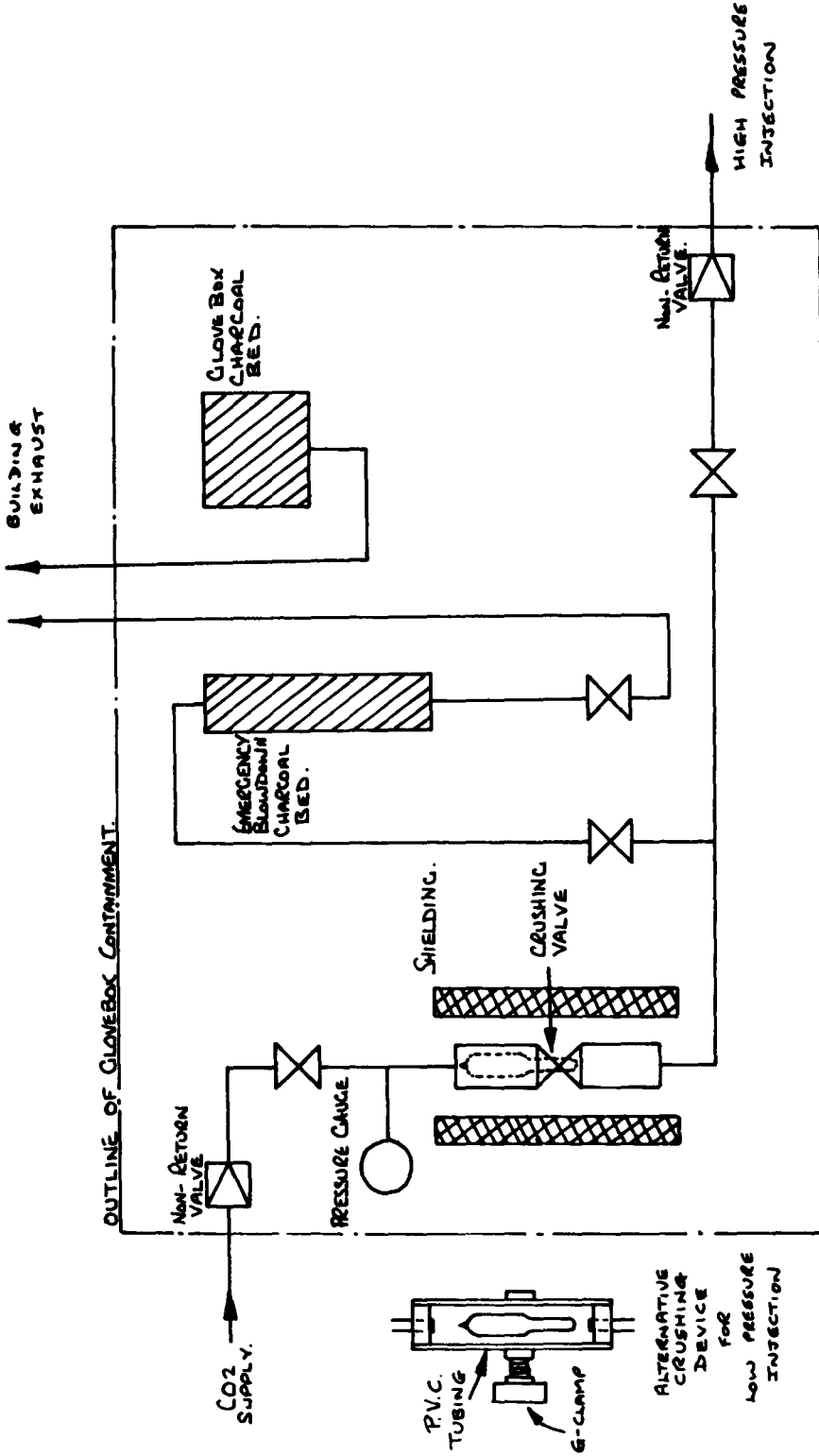


FIG. 2(b) METHYL IODIDE INJECTION APPARATUS.

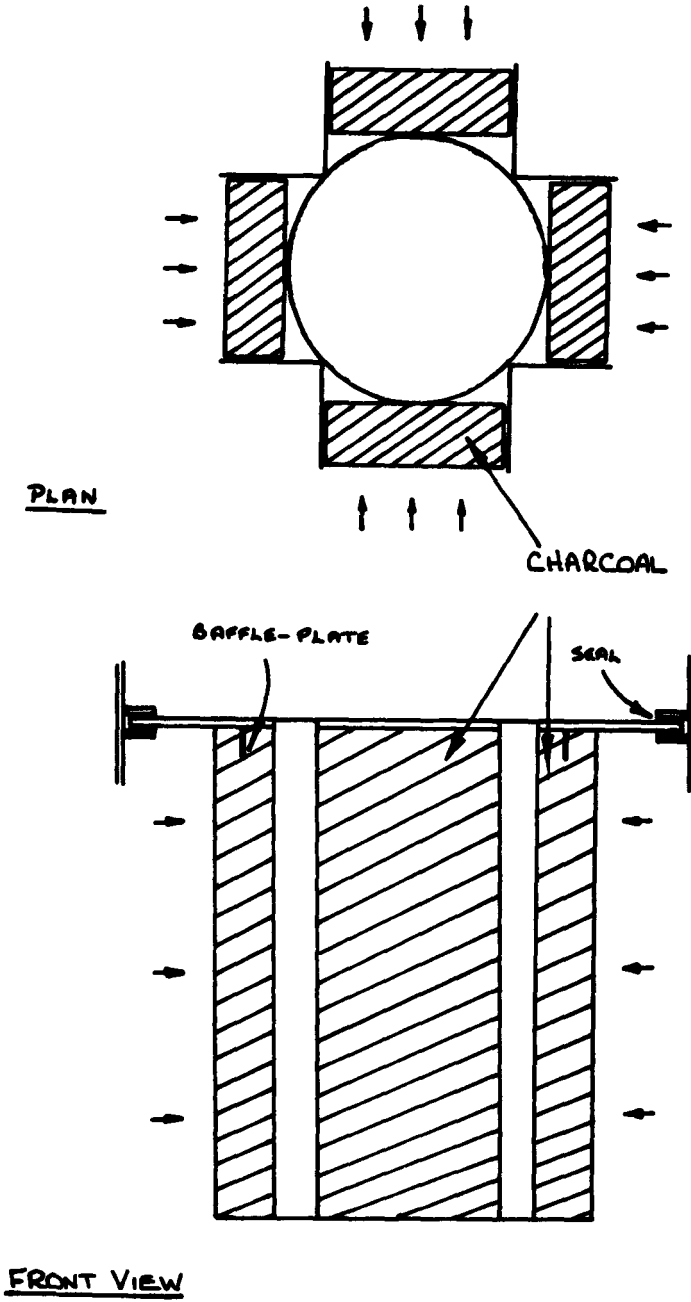


FIG. 3 REACTOR GAS DISCHARGE TREATMENT PLANT

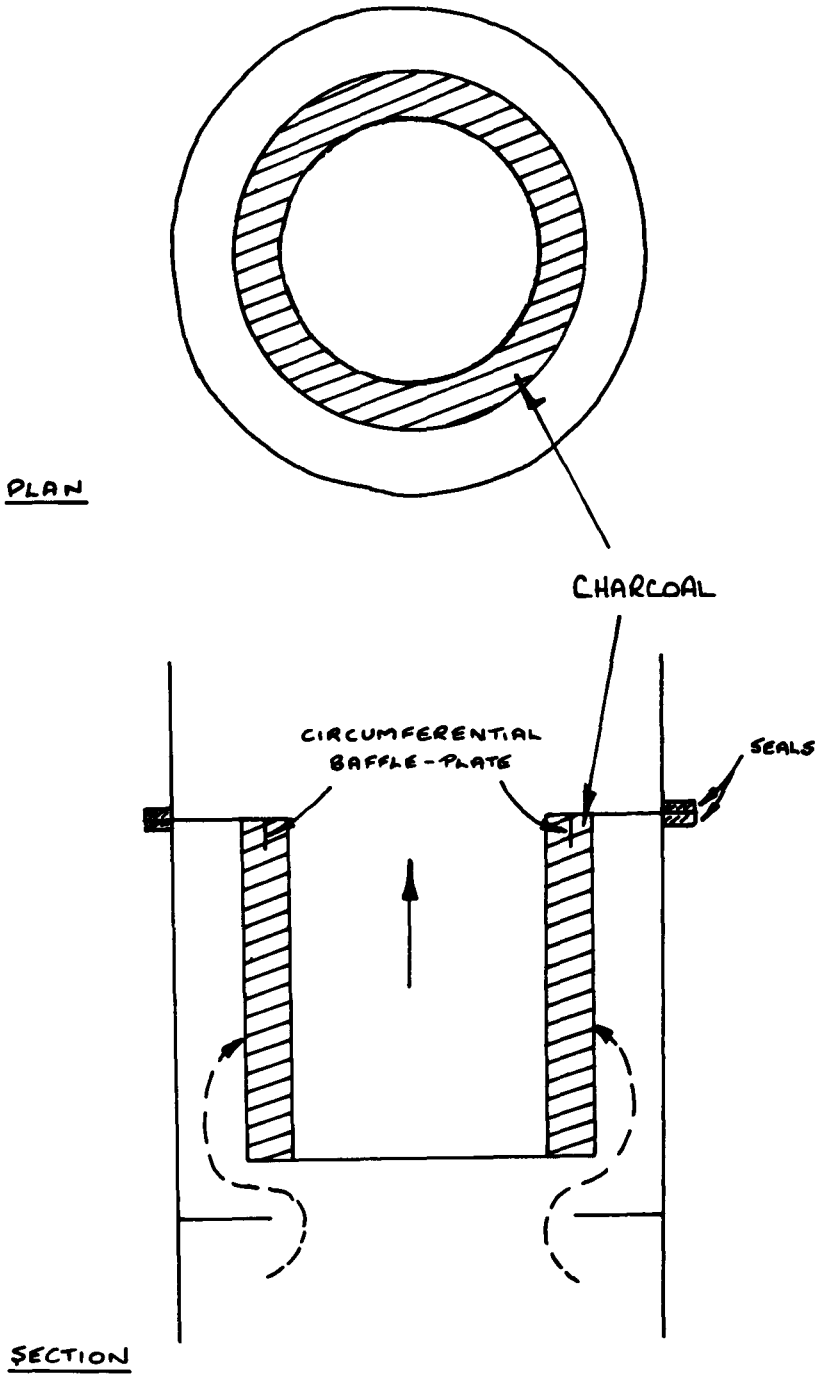


FIG. 4 REACTOR VOID VENTILATION TREATMENT PLANT.

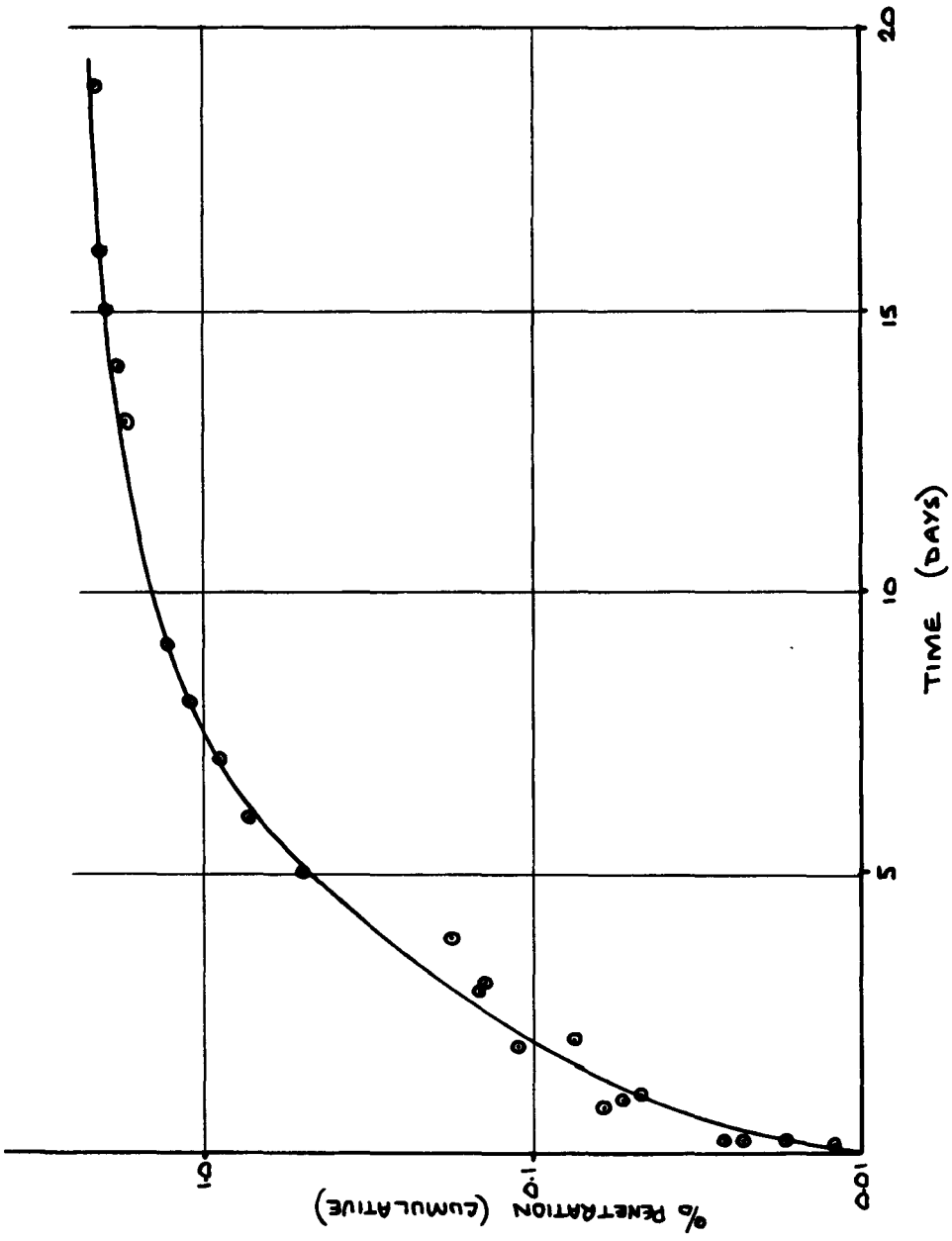


FIG. 5. PENETRATION OF METHYL IODIDE THROUGH AGED CHARCOAL

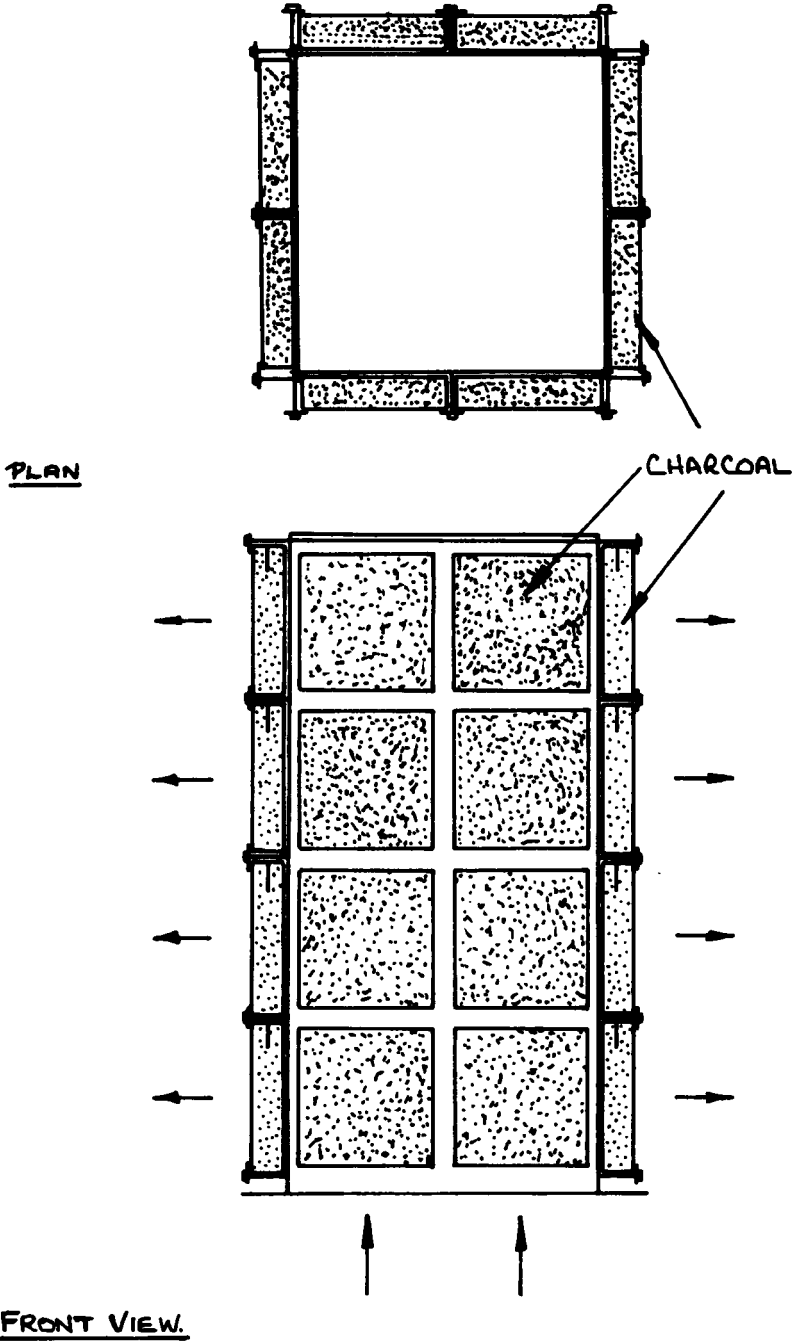


Fig. 6 Hot Cell Plant 'A' - Iodine Sorption Unit



Fig. 7 - *Shallow tray design charcoal redistribution*

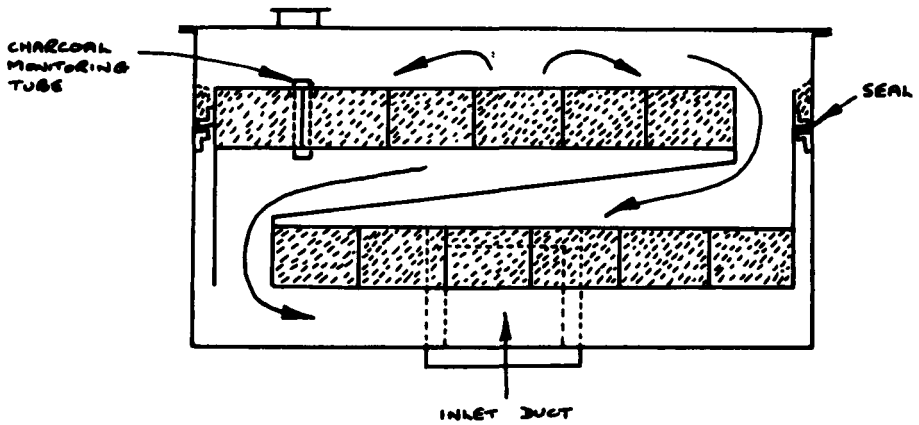
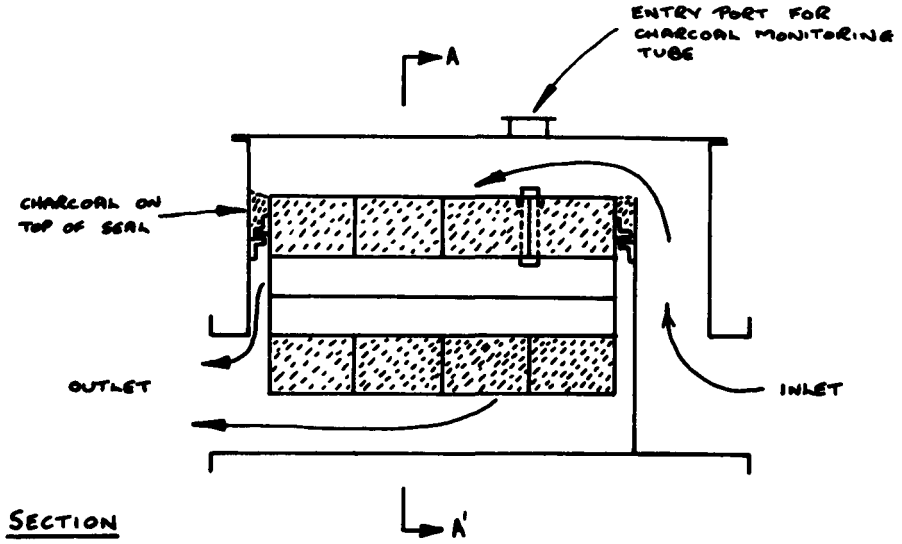


FIG 8(a) HOT CELL PLANT B : IODINE SORPTION UNIT

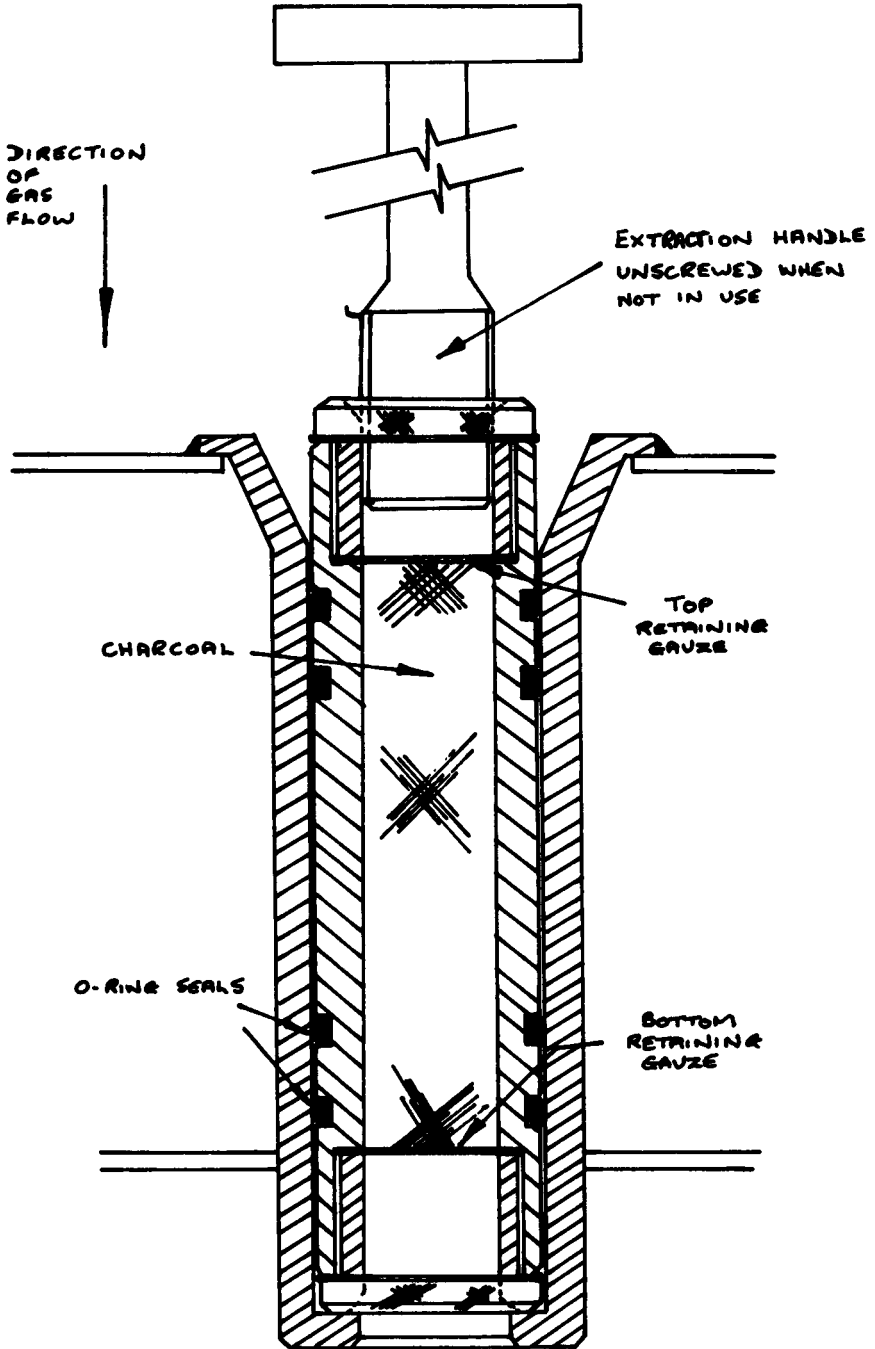


FIG 8(b) CHARCOAL MONITORING TUBE (HOT CELL PLANT B)

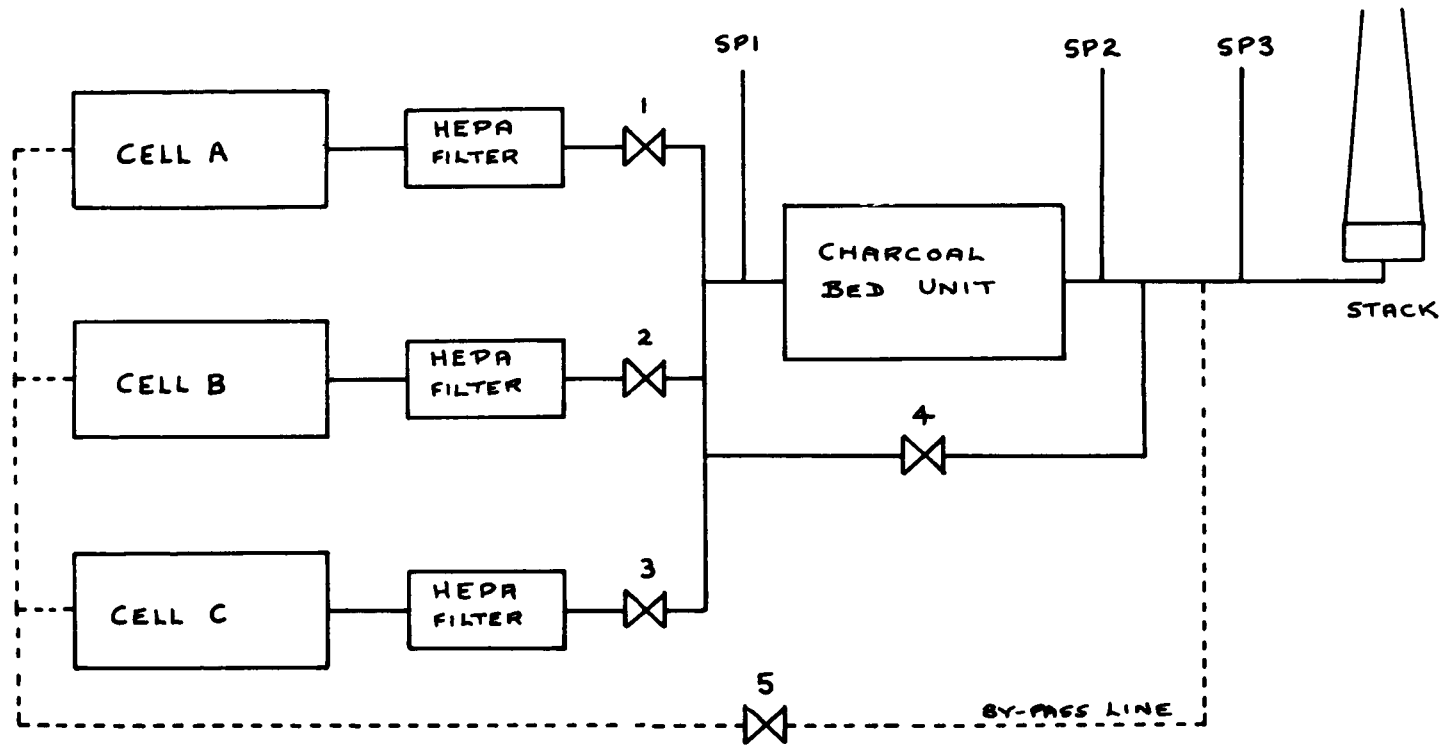


FIG 9 . HOT CELL PLANT C : GASEOUS EXHAUST TREATMENT SYSTEM.

EXPERIENCE IN TESTING IODINE SORPTION PLANTS ASSOCIATED
WITH CEGB GAS COOLED REACTORS

M. Stead

Central Electricity Generating Board
London - U.K.

SUMMARY. Each of the C.E.G.B.'s eight nuclear power stations currently operating in the U.K. has an adsorption plant through which the reactor coolant can be discharged in the unlikely event of a major release of fission products into the reactor circuit.

The adsorption plant consists of a bed of impregnated activated charcoal together with pre and post filters and is designed to remove particulate fission products and all forms of iodine with good efficiency.

In-situ tests of the plants revealed weaknesses in design of the charcoal beds which resulted in low efficiency for iodine removal. Remedial work has been carried out and the efficiencies much improved. This work is described.

A programme of periodic testing and refurbishing of the Board's plants is being established and is discussed.

RESUME. EXPERIENCE ACQUISE DANS L'ESSAI SUR DES INSTALLATIONS D'ADSORPTION D'IODE ASSOCIEES A DES REACTEURS REFROIDIS AU GAZ DU CEGB.

Chacune des huit centrales nucléaires du C.E.G.B. en service au Royaume-Uni possède une installation d'adsorption par laquelle le gaz caloporteur du réacteur peut être relâché au cas, improbable, d'une libération massive de produits de fission dans le circuit primaire.

L'installation d'adsorption comprend un lit de charbon actif imprégné intercalé entre des filtres ; en amont et en aval elle est conçue pour retenir efficacement les produits de fission sous forme de particules et toutes les formes d'iode.

Des essais in-situ pratiqués sur ces installations ont révélé des défauts d'agencement des lits de charbon dont résultait une faible efficacité de rétention de l'iode . Après remède à ces défauts, l'efficacité s'est fortement accrue. Ce travail est décrit dans l'exposé.

Un programme, en cours d'établissement, d'essais et de mise au point périodiques des installations du Board est exposé par l'auteur.

KURZFASSUNG. ERFABRUNGEN MIT DER PRUEFUNG VON JODADSORPTIONSANLAGEN

BEI GASGEKUEHLTEN REAKTOREN DER CEGB. Jedes der acht Kernkraftwerke des Central Electricity Generating Board (CEGB) die z.Z. im Vereinigten Königreich betrieben werden, ist mit einer Adsorptionsanlage ausgestattet, durch die das Reaktorkühlmittel in dem - an sich wenig wahrscheinlichen - Fall, dass eine erhebliche Freisetzung von Spaltprodukten in den Reaktorkreislauf erfolgt ist, in die Atmosphäre abgeleitet werden kann.

Die Adsorptionsanlage besteht aus einem imprägnierten Aktivkohlebett mit vor- und nachgeschalteten Filtern und ist so ausgelegt, dass teilchenförmige Spaltprodukte sowie Jod in allen Formen wirksam beseitigt werden.

Prüfungen der Anlagen an Ort und Stelle liessen Schwächen in der Auslegung des Aktivkohlenbetts erkennen, die zu einem geringen Wirkungsgrad bei der Abscheidung von Jod führten. Verbesserungen wurden durchgeführt, und der Abscheidegrad konnte erheblich gesteigert werden.

gert werden. Diese Arbeit wird beschrieben.
Das gegenwärtig in Ausarbeitung befindliche Programm für eine regelmässige Ueberprüfung und Ueberholung der Anlagen des CEGB wird besprochen.

1. Introduction

The CEGB is currently operating eight nuclear power stations using gas cooled graphite moderated reactors of the 'magnox' type and has under construction four nuclear power stations of the advanced gas-cooled reactor (AGR) type. Each station has two reactors.

In the unlikely event of a fire in a fuel channel of one of these reactors a significant amount of gaseous, volatile and particulate fission products could be released to the carbon dioxide coolant. In order to minimise the discharge of these fission products to atmosphere the coolant from each reactor can be depressurised through trapping plant consisting of coarse and fine particulate pre-filters a charcoal bed and post filters. The charcoal bed is intended to remove iodine, generally considered to present the major hazard in the event of a release of fission products to atmosphere.

In 1968/1969 a programme of in situ tests of the plant installed at all operating stations was carried out. This showed that in general the efficiencies were below those considered achievable and indeed acceptable for removal of all forms of iodine released in an accident. In addition it has been shown ⁽¹⁾ that in order to maintain good methyl iodide removal characteristics under high humidity conditions it was necessary to use charcoal impregnated with potassium iodide in plant of this nature. The charcoal installed in all the CEGB plants was unimpregnated.

It was therefore decided to dismantle each of the plants, refurbish with freshly prepared impregnated charcoal and carry out any remedial work which was found to be necessary in order to improve their efficiency. This paper describes the remedial measures found necessary, discusses the results of efficiency tests and the future programme of re-furbishing and re-testing proposed.

2. Design Features of the Trapping Plant

The trapping plants vary in detail but are typically of the basic design shown in figs. 1 and 2.

A bed of charcoal approximately 0.3m deep is contained in a flanged basket which is supported by and bolted to a flange welded round

the circumference of the containing pressure vessel. A gasket is sandwiched between the flanges and effects a seal to prevent gas bypassing the charcoal. The gas flow is downwards through the charcoal and a mesh grid placed above the charcoal prevents any displacement.

A plate to which is fitted high efficiency particulate filters is positioned over the charcoal basket and a further gasket sandwiched between the upper face of the basket flange and this cover plate prevents gas bypassing the filters. All free space inside the pressure vessel is filled with copper or silver plated copper knitmesh to remove elemental iodine vapour. Coarse ceramic prefilters are usually housed in a separate pressure vessel upstream of the charcoal bed.

The plants are designed so that the maximum linear face velocity of gas incident on the charcoal is 0.6m/sec. giving a minimum gas 'stay-time' in the charcoal of 0.5 sec., sufficient to give a good theoretical efficiency for the removal of methyl iodide. The reactor coolant circuit can be depressurised through the plant in approximately 24 hours.

There is usually one plant at each station capable of serving both reactors except at two stations where there is a plant for each reactor.

3. Method of Testing the Plant In Situ

The method of testing this type of trapping plant was developed at UKAEA Windscale. ⁽²⁾ An equilibrium flow of carbon dioxide, usually around 5 tonnes/hour is set up by depressurising the reactor through the plant and maintaining the reactor pressure by make-up with fresh carbon dioxide. A sample of iodine 131 labelled methyl iodide is then injected into the circuit upstream of the charcoal bed by means of special equipment developed at UKAEA Windscale and shown schematically in fig. 3. The injection is made by means of a valve system contained in a glove box and suitably connected to an injection point. A capsule containing the methyl iodide is broken by means of a crushing valve and the released methyl iodide is blown into the CO₂ by maintaining a flow of nitrogen or helium at ambient temperature through the equipment from a gas bottle. The equipment permits injection at full reactor operating pressure but the test is usually carried out with the charcoal bed at near atmospheric pressure in order to obtain

design gas 'stay-time' conditions in the charcoal.

Samples of the coolant are continuously taken from positions immediately upstream and downstream of the plant and passed through samplers made of small mesh high efficiency impregnated charcoal contained in special filter holders. The sampling flow rates are kept equal by appropriate flow instrumentation.

The charcoal in the filter holders is usually changed after 30 min. then after 1 hr and again after 2 hr a total sampling period of 3 hr 30 min. The charcoal samples are counted on a suitably calibrated gamma spectrometer and the ratio between total activity of inlet and outlet samples obtained. Any corrections necessary for differing flow rates are applied to the results.

Three tests are usually carried out:-

- (a) A preliminary test using no methyl iodide in order to check flow rates, injection equipment etc.
- (b) A test using approximately 100 μ Ci of iodine 131 labelled methyl iodide to give a preliminary estimate of the bed efficiency.
- (c) A test using approximately 10 mCi of iodine 131 labelled methyl iodide.

The weight of methyl iodide in each test sample is 1 mg. Labelled methyl iodide is used for the test as it is known that this compound is present in the coolant circuit following a release of fission products and of all the species of vapour iodine it is the most penetrating. The test conditions are made as near as practicable to conditions which would obtain in an emergency so that a realistic assessment of performance of the plant can be made.

4. Testing and Refurbishing Programme

4.1 Initial Tests on the Trapping Plant

A programme of methyl iodide tests on trapping plant installed at operating stations was carried out during 1968/1969. The results of these tests are shown in Table I.

Table I. Results of Initial Methyl Iodide Tests on Trapping Plant

Station	Efficiency (E%)	Decontamination Factor (DF) = $\frac{100}{100-E}$
Bradwell	98.1	53
Berkeley	97.9	48
Hinkley Point	99.84	625
Trawsfynydd	99.3	140
Dungeness RI	98.73	79
RII	99.98	5500
Sizewell RI	97.93	48
RII	96.74	33
Oldbury	87.80	8
*Wylfa	99.55	220

* First tested 1970.

The charcoal used in the beds at the time of these tests was unimpregnated activated coal-based charcoal known as 207 B charcoal. Laboratory tests had shown that under dry gas conditions the decontamination factor of the charcoal itself for methyl iodide with a 'stay-time' of 0.5 sec should be in the range 10^5 to 10^6 when freshly prepared. The charcoal performance deteriorates (ages) with time however but according to empirical ageing data ⁽³⁾ the DF of the charcoal was expected to be in the range 10^3 to 10^4 at the time of the tests. The test results indicate therefore that either the charcoal was not up to its normal specification or that there was a significant amount of gas bypassing the charcoal bed due to faulty seals or channelling paths through the charcoal.

The outlet samples taken for periods long after the injection had ceased showed no breakthrough of methyl iodide with time. In all cases the majority of activity was contained in the first outlet sample collected. This indicates that the low decontamination factor is due to leakage paths rather than inferior charcoal since methyl iodide would tend to desorb from the latter over a period of time.

More recent work ⁽¹⁾ has shown that the ability of 207 B charcoal to remove methyl iodide decreases sharply under conditions of high humidity. However, by impregnating the charcoal with potassium iodide its performance is maintained up to near 100% R.H. The possibility of having to use the charcoal beds at CEGB stations under

conditions of high coolant humidity cannot be entirely ruled out and it was decided to replace the charcoal in the beds with impregnated charcoal. A programme of work was therefore initiated to dismantle each plant, identify and eliminate any leakage paths and replace the charcoal with impregnated charcoal.

4.2 Refurbishing Programme

The trapping plant and associated pipe-work is usually located in a shielded cell below ground adjacent to the reactor buildings (fig. 4) except in the case of two stations where it is situated in a shielded room within the reactor buildings.

The pressure vessel containing the charcoal bed was in each case dismantled by successive removal of the pressure vessel lid, the knitmesh filling the space in the top of the vessel and, after undoing the flange bolts, the top plate containing the high efficiency filters (fig. 1). This gave access to the charcoal which in all cases was found to be evenly distributed in the containing basket with no evidence of channelling. Removal of the charcoal basket from the pressure vessel exposed gaskets (fig. 2) which effect a seal to prevent gas bypassing the charcoal. Examination of this gasket revealed that in some cases the gasket was discoloured due to contact with hot gas and it was evident that in certain areas it had not been compressed.

It was found by measurement that the flange forming the lower sealing face and which is welded to the pressure vessel, was, in most cases distorted making it impossible to achieve a satisfactory seal and thus allowing gas to bypass the charcoal. It appeared that welding had caused the flange to distort. In order to ensure a satisfactory seal it was necessary in some cases to machine the flange. In other cases where there was only relatively minor distortion a hard setting sealing compound was used.

The charcoal bed and filters were re-assembled using new gaskets and 207 B activated charcoal impregnated with 1.5% by weight of potassium iodide. This charcoal was tested in the laboratory before being installed in the plant and its decontamination factor for methyl iodide with a 'stay-time' of 0.5 sec. (minimum design stay-time on CEGB beds) was approximately 10^6 . The absolute filters situated above the

charcoal were also replaced.

The refurbishing work took on average three to four days for each trapping plant.

4.3 Re-testing of the Trapping Plant

Following the refurbishing work each plant was re-tested in a similar manner to the previous tests. The results of these tests are shown in Table II together with the results obtained prior to the refurbishing work.

Table II. Results of Methyl Iodide Tests on Trapping Plant before and after Refurbishing Work

Station	Initial Tests		Re-tests after refurbishing	
	Efficiency (%)	Decontamination factor	Efficiency (%)	Decontamination factor
Bradwell	98.1	53	99.71	350
Berkeley	97.9	48	99.92	1327
Hinkley Point	99.84	625	99.82	569
Trawsfynydd	99.3	140	not yet re-tested	
Dungeness RI	98.73	79	99.93	1507
RII	99.98	5500	99.996	25000
Sizewell RI	97.93	48	not yet re-tested	
RII	96.74	33	not yet re-tested	
Oldbury	87.80	8	99.997	35000
Wylfa	99.55	220	99.9976	42000

It can be seen that attention to seals in the charcoal bed has in general considerably improved the overall DF of the plant. The addition of fresh charcoal may also have contributed to the improved DF but as the old material which was removed was thought to have a DF in the range $10^3 - 10^4$ the main improvement was brought about by remedial work on seals.

Since laboratory tests showed that the impregnated charcoal loaded into the beds had a DF of approximately 10^6 it follows that even where the plant has a high overall DF some leakage is still occurring. However the sensitivity of station counting equipment is such as to make it impracticable to measure the overall DF of plant greater than 30,000 to 40,000.

In cases where the DF is still low it is believed that excessive bypassing of the charcoal via seals is still occurring and further remedial work is necessary.

5. Future Testing and Re-furbishing Work

Although laboratory tests demonstrate that freshly prepared charcoal as now installed at CEGB magnox stations has a DF of 10^6 this figure will not be achieved overall for the plant due to unavoidable minor leaks, nor is it considered necessary to achieve such a degree of leak tightness. The acceptable DF should therefore be dictated by what is achievable on a well constructed and maintained trapping plant. It can be seen from table II that this is the range 1500 - 40,000.

Consideration of possible releases to the environment following postulated accidents leads to the conclusion that it is desirable for the trapping plant to have a minimum DF of around 200 to ensure that radiation doses in the vicinity of the stations remain acceptable in the event of a maximum credible release of iodine. However using ageing data derived at Windscale ⁽³⁾ it can be shown that the DF of impregnated charcoal stored in a static atmosphere will fall from 10^6 to 200 in approximately 6 years and from 10^3 to 200 in approximately 2 years.

It is currently envisaged therefore that the charcoal may require changing every 6 years and in order to ensure that the charcoal is following the postulated ageing pattern in situ tests of the type described in this paper will be carried out every 2 years.

The frequency of changing the charcoal will of course be dictated by the results of the periodic tests and the proposed programme of testing and replacement of the charcoal would be revised in the light of any new 'ageing' data.

6. Conclusion

Each of the fission product trapping plants installed at the eight magnox stations currently operated by the CEGB has been dismantled, remedial work carried out on seals and fresh charcoal impregnated with potassium iodide installed. This has resulted in most cases in a significant improvement in the overall DF of this plant to methyl iodide and thus to other forms of iodine.

A programme of testing and replacement of charcoal is now proposed which will ensure that at all times the plant is capable of reducing iodine discharges to the environment to acceptable levels in the event of an accident.

References

- (1) COLLINS, DA, TAYLOR, LR and TAYLOR, R. The Development of Impregnated Charcoals for Trapping Methyl Iodide at High Humidity, 1967 TRG Report 1300 (W).
- (2) HILLARY, JJ, GATE, LF, and GURNEY, K. Experience in Testing Installed Fission Product Trapping Plant with Methyl Iodide. 1967 TRG Report 1548 (W).
- (3) TAYLOR, LR and TAYLOR, R. The Ageing of Impregnated Charcoals. To be published. TRG Report 2483 (W).

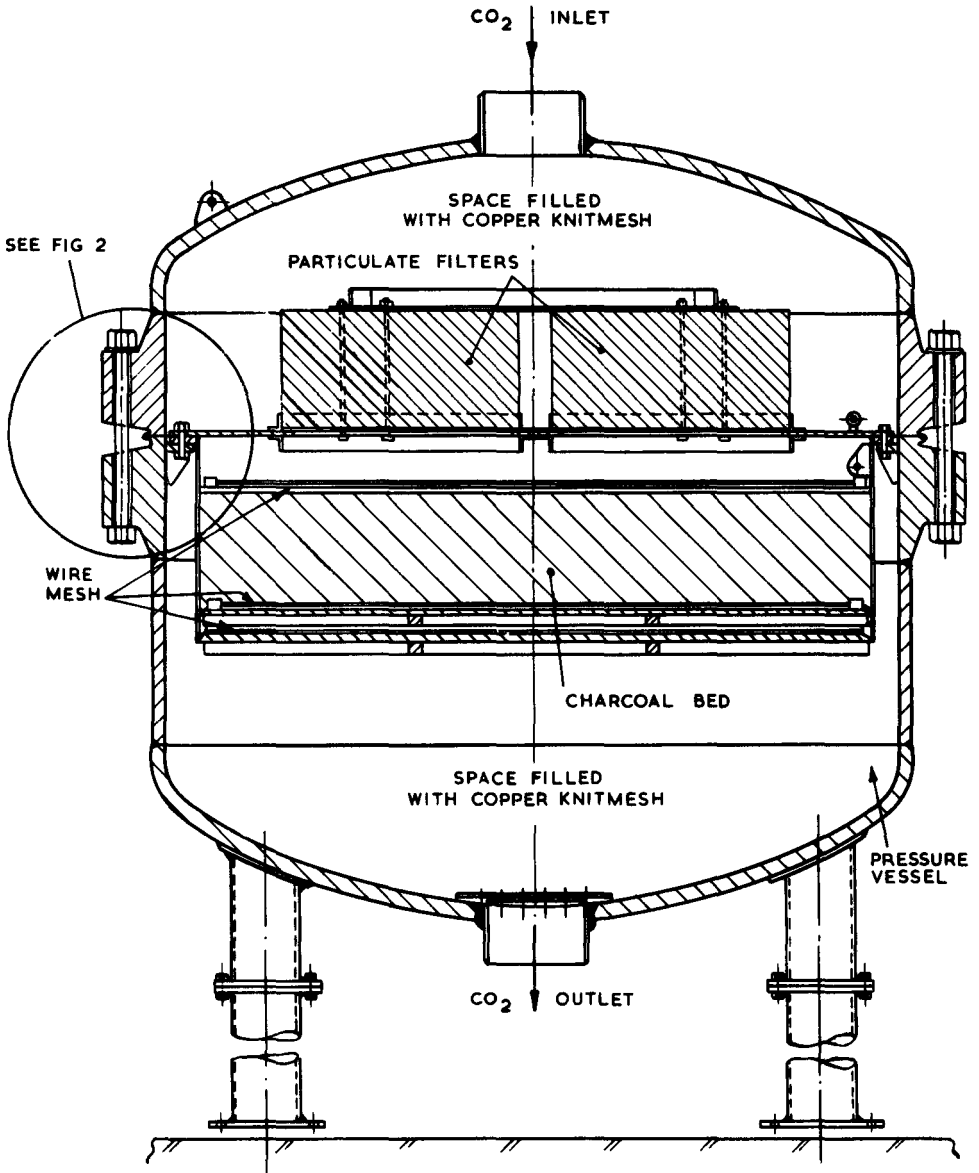


FIG. 1. TYPICAL ARRANGEMENT OF FISSION PRODUCT TRAPPING PLANT.

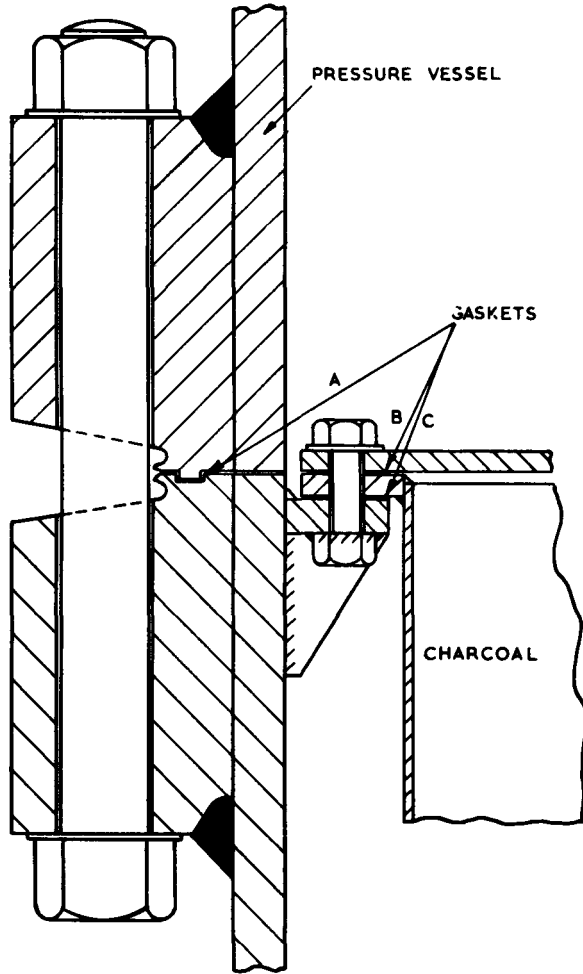


FIG. 2. DETAIL OF SEALS IN FISSION PRODUCT TRAPPING PLANT.

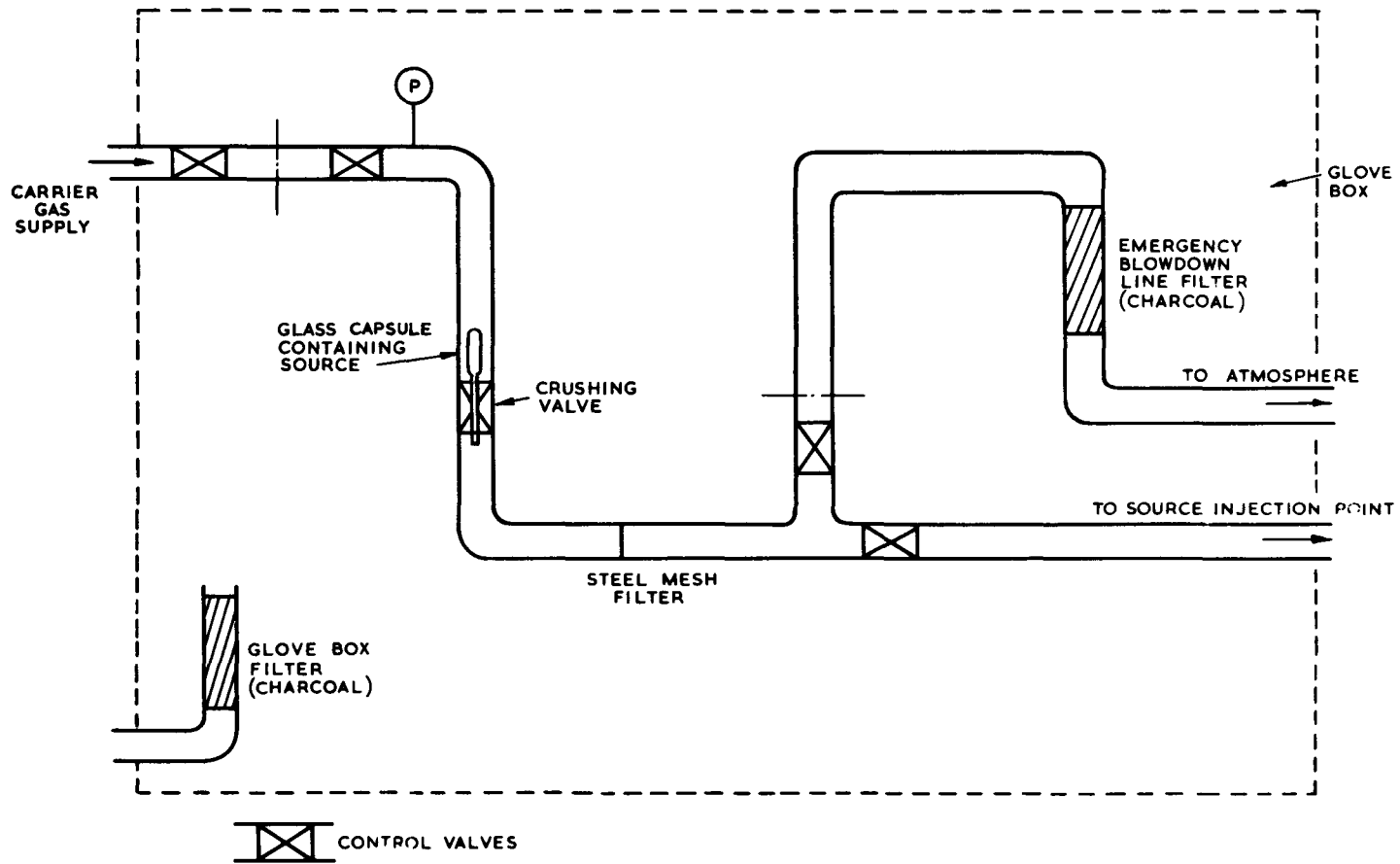


FIG. 3. METHYL IODIDE INJECTION EQUIPMENT

96/16121

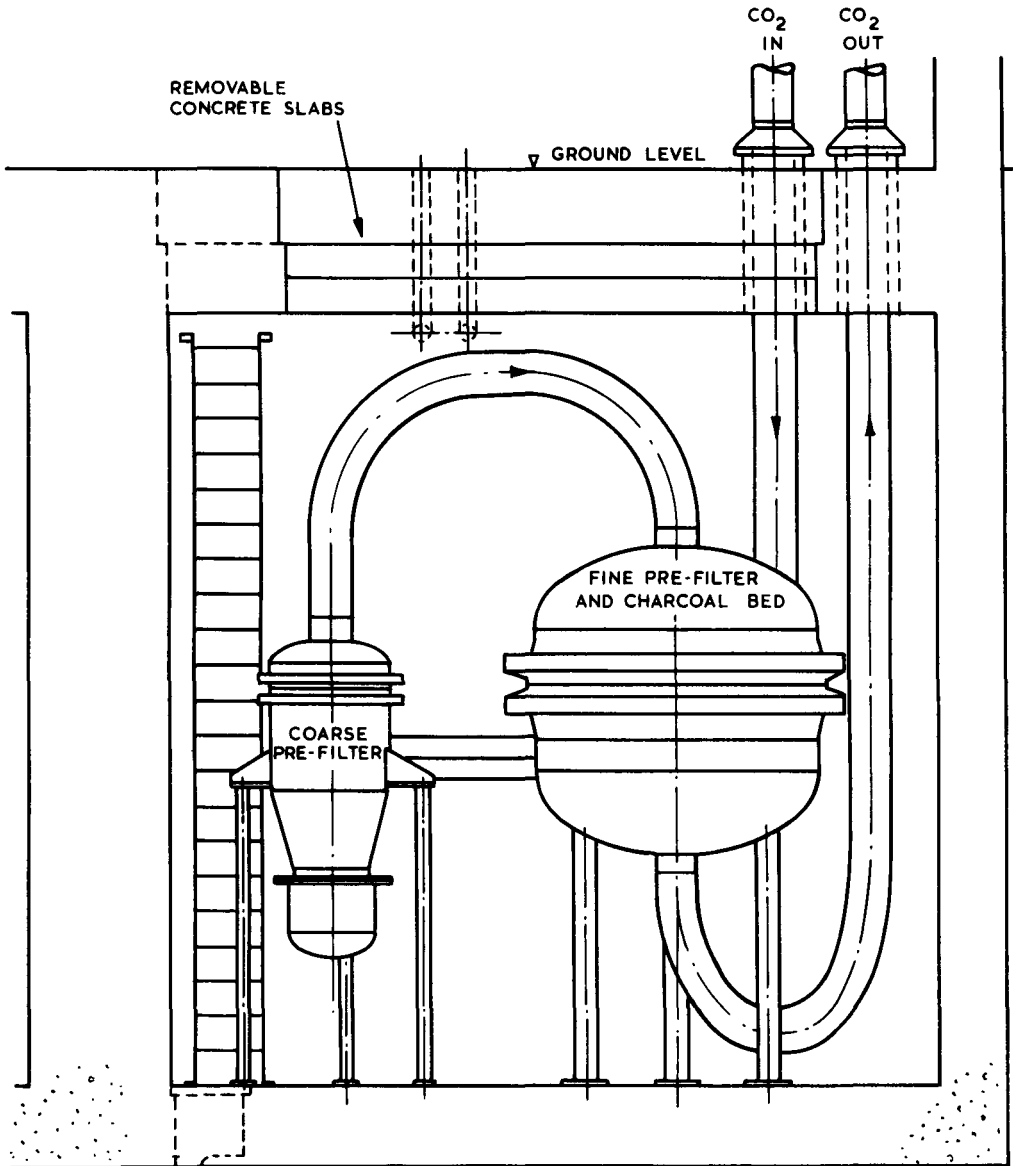


FIG. 4. LOCATION OF FISSION PRODUCT TRAPPING PLANT IN SHIELDED CELL.

OPERATING EXPERIENCE OF THE SGHWR IODINE SORPTION SYSTEM

J.J. Clifton

U.K.A.E.A.

Dorchester, Dorset - U.K.

SUMMARY : The prototype Steam Generating Heavy Water Reactor currently operated by the UKAEA at Winfrith in Dorset has two large ventilation clean-up plants as part of the normal operating and post-accident filtration system. Each clean-up plant is capable of dealing with 4,600 litres of air per second. A clean-up plant consists of particulate filters and a bed containing 2,600 kg of charcoal which has been impregnated with chemicals to improve the retention of methyl iodide at high humidity. The performance of the charcoal is tested at routine intervals with radioactive methyl iodide. The tests are carried out in-situ at ambient humidities in the range 60 to 70 % and in the laboratory at high (> 98 %) humidity. The paper describes the design and layout of the SGHWR filter units, the method of testing and the operational test experience and mechanical performance during six years of continuous operation. Included in the paper is a brief description of the tests carried out on iodine filtration units installed in the extract ventilation system of a "hot cell" facility.

RESUME. EXPERIENCE ACQUISE AVEC L'EXPLOITATION DU SYSTEME DE FILTRATION D'IODE DU SGHWR. Le prototype de réacteur à eau lourde générateur de vapeur (SGHWR) exploité par le UKAEA à Winfrith dans le Dorset possède deux grandes installations d'épuration par ventilation qui font partie du système de filtration fonctionnant en routine et après un accident. Chaque installation d'épuration peut traiter 4600 l d'air par seconde. Elle comprend des filtres à particules et un lit de 2600 kg de charbon, imprégné de produits chimiques pour améliorer la rétention de l'iodure de méthyle lorsque l'humidité est élevée. L'efficacité du charbon est testée à intervalles réguliers à l'iodure de méthyle radioactif. Les essais sont pratiqués in situ avec une humidité ambiante allant de 60 à 70 % et au laboratoire avec une humidité élevée (> 98 %). Le rapport décrit la conception et l'aménagement des unités filtrantes du SGHWR, la méthode d'essai et l'expérience recueillie au cours d'essais de fonctionnement ainsi que le rendement mécanique obtenu au cours de six années d'exploitation continue.

L'exposé contient également une brève description des essais pratiqués sur les unités de filtration d'iode aménagées sur le système d'extraction d'air d'une cellule chaude.

KURZFASSUNG. BETRIEBSERFAHRUNG MIT DEM JODABSCHIEDUNGSSYSTEM DES SCHWERWASSERREAKTORS FUER DAMPFERZEUGUNG (SGHWR). Der Prototyp-Schwerwasserreaktor für Dampferzeugung, der z.Z. von der UKAEA in Winfrith, Dorset, betrieben wird, ist mit zwei leistungsfähigen Abscheideanlagen für die Abluft als Teil des normalen Betriebs- und des Unfall-Filtersystems ausgestattet. Jede der Abscheideanlagen hat eine Durchsatzleistung von 4.600 l Luft pro Sekunde. Die Abscheideanlage besteht aus Teilchenfiltern und einem Bett mit 2.600 kg Aktivkohle, die chemisch imprägniert worden ist, um die Rückhaltung von Methyljodid bei hoher Luftfeuchtigkeit zu verbessern. Die Leistungsfähigkeit der Aktivkohle wird in regelmässigen Zeitabständen mit radioaktivem Methyljodid geprüft. Die Prüfungen werden an Ort und Stelle bei einem

Feuchtigkeitsgehalt der Umgebungsluft von 60 bis 70 % und im Laboratorium bei hoher Luftfeuchtigkeit (≥ 98 %) ausgeführt. In dem Beitrag wird die Konstruktion und die Anordnung der Filteranlagen des Schwerwasserreaktors für Dampferzeugung, das Prüfverfahren, die Erfahrung mit den Betriebstests sowie der mechanische Zustand nach sechs Jahren ununterbrochenen Betriebs beschrieben. Der Beitrag enthält ferner eine kurze Beschreibung der Prüfung von Jodfilteranlagen, die in das Abluftsystem einer heißen Zelle eingebaut sind.

1 Introduction

The SGHWR is a direct cycle, pressure tube reactor, using light water as the coolant and heavy water as the principal moderator. The core of the 100 MW(e) prototype reactor, and its steam drums, circulating pumps and associated primary coolant pipework are housed in a concrete shielded structure called the primary containment. This containment, the turbo-generating plant and the fuel storage pond are housed in a fairly conventional but relatively leaktight building which forms the secondary containment. An integral part of the vented containment system for the prototype SGHWR is an efficient and reliable fission product treatment plant. This plant, although primarily intended for use in emergencies is also used on occasions to control fission product releases during normal operation. The ventilation system has been designed in such a way that during normal operation of the reactor, air from above the storage pond containing irradiated fuel elements is continuously exhausted to atmosphere via a fission product treatment plant and extract fan. In the event of an incident releasing fission products into the secondary containment the ventilation system is automatically switched so that the same fission product treatment plant and fan recirculate containment air and pass just sufficient to atmosphere, after treatment, to maintain a suitable depression below atmosphere within the secondary containment. Two treatment plants are provided and at least one is always operating.

As will be seen below, the most important part of each fission product clean-up plant is a large charcoal bed, the primary purpose of which is to remove airborne radioactive iodine so as to ensure that this is not released to atmosphere. The plant also controls releases of particulate matter.

2 Description of the Clean-up Plants

The fission product treatment plants are housed in separate shielded cells. Each cell is 14 m. long, 3 m. wide and 5 m. high, has 0.6 m. thick concrete walls and is capable of treating 4.6 cubic metres of air per second. The air enters from below at one end of the cell, passes through a flameproof roughing filter, an absolute particulate filter, charcoal beds and a further set of particulate filters, and then leaves via a duct in the floor

of the cell at the end farthest from the entry point.

The charcoal beds consist of 30 trays each 2 m. long and 0.9 m. wide. These trays are arranged in three vertical banks of ten steel trays, the bottom of each tray being made from stainless steel mesh. The trays are arranged in vertical frames with adjacent trays sealed to each other. All metal to metal joints are seal welded and the whole assembly is painted with an epoxy paint after installation. Steel to concrete joints are sealed with a polysulphide rubber sealer. Each tray contains a 100 mm. deep bed of Sutcliffe-Speakman 207B charcoal. The total weight of charcoal in each treatment plant is 2.7 Te. At the normal flowrate of $4.6 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ the air is in contact with charcoal for about 1.2 seconds. Before construction of the clean-up plant it was known that the performance of charcoal beds, normally satisfactory for cleaning up penetrating forms of iodine such as methyl iodide, deteriorated considerably when discharges of high humidity were experienced. Since it was thought that methyl iodide would probably be a significant constituent of any fission product release it was necessary to develop a charcoal that would perform well under high humidity conditions. An extensive programme of work was carried out in the United Kingdom⁽¹⁾ to develop suitable charcoal doping agents, the best results being given by triethylenediamine and potassium iodide supported on type 207B charcoal. At SGHWR half of the charcoal is doped with 1.5% potassium iodide and the other half with 5% triethylenediamine (as recommended in (1)).

3 Testing

It has been policy at Winfrith to carry out regular in-situ testing of all forms of air-cleaning filtration systems. Experience has shown that this is the only way to ensure that such filtration systems are effective when installed. Each fission product treatment plant is tested immediately after replacement of charcoal and then at six-monthly periods thereafter. It is felt that such in-situ tests are necessary after charcoal replacement in order to check that the charcoal has been correctly positioned, that the charcoal used is effective, and that disturbed door seals have been correctly replaced. Periodic testing is justified on the grounds that it is known that the performance of charcoal deteriorates with age and that it is affected by airborne substances which may cause temporary or permanent reductions in performance. It is also necessary, in some

systems, to check that the charcoal is still in position. Apart from initial and six-monthly in-situ tests, visual inspections (to check the mechanical integrity of the system) are carried out at least once a year. These inspections are normally done when the particulate filters are changed. In practice it is usual to carry out one of the six-monthly in-situ tests of the charcoal immediately after the plant has been opened to change particulate filters. In this way the effectiveness of disturbed door seals can be determined.

Each time the clean-up plant is opened and access to the charcoal obtained a sample is taken from each of the two types of charcoal in the beds. The samples are taken from different trays at each time of entry. These samples are then sent for laboratory testing and analysis. The reason for carrying out both in-situ and laboratory tests is that it is impracticable to test the beds in-situ at high humidities. It is customary therefore to carry out in-situ testing at ambient humidities of the order of 60 to 70% relative humidity and laboratory test charcoal samples at high humidities of the order of 98 to 100% relative humidity. Until recently all laboratory samples have been tested at the United Kingdom Atomic Energy Authority's Laboratories at Windscale and the method of testing has already been described at this seminar. Equipment has now been provided at the reactor to test charcoal samples and in the future it is proposed to test and analyse most of the samples at the reactor and send samples at less frequent intervals to Windscale for cross-checking.

In-situ testing is carried out with methyl iodide labelled with radioactive iodine-131. The methyl iodide is released into a ventilation duct at a distance of some 100 m. upstream of the clean-up plant to be tested. It is believed that after passing through a number of bends and valves the methyl iodide is thoroughly mixed with the air and uniformly distributed in the air. A sample of air is extracted from the ventilation ducting before and after the clean-up beds and passed through sampling packs containing new "doped" charcoal. From the activity measured on these sampling packs it is then possible to determine the decontamination factor for the clean-up units. Usually two sets of sample packs are taken at both inlet and outlet. The first set of samples are put into position a few minutes before the methyl iodide is released. These samples are then replaced by the second set one hour after release. The second set remain

in position and continue sampling for a further twenty-four hours. Sampling in this manner enables the initial decontamination factor of the beds to be determined and also enables the longer term retention to be assessed. In-situ testing is carried out at the normal flow-rate of 4.6 cubic metres per second. The decontamination factors are generally of the order of 1000 or more. Using the normal type of charcoal sampling pack containing some 30 cubic centimetres of charcoal at a flowrate of 10 litres per minute it has been necessary to release quantities of methyl iodide containing tens of millicuries of iodine-131 in order to achieve adequate counting sensitivity at the downstream end of the clean-up plant. The handling of this quantity of radio-iodine involves a number of direct or potential radiological hazards and in the past a compromise has had to be reached between sensitivity and the size of iodine source used. Recently a sample pack has been designed which enables some 1.6 litres of charcoal to be used at a flowrate of about 3 litres per second. This sample pack is currently used to sample from downstream of the filter beds and enables decontamination factors of a few thousand to be determined for a release of only one or two millicuries of methyl-iodide-131. The smaller size of sample pack is still used at the inlet sampling point where it gives more than adequate sensitivity.

The methyl-iodide-131 is received in the form of a small volume of liquid, under partial vacuum, sealed in a pyrex glass ampoule. This ampoule is placed in a holder which is inserted into the centre of the ventilation duct. The methyl-iodide is released by crushing the ampoule with a screw driven steel pin which is an integral part of the holder. The glass fragments are retained by stainless steel gauze.

4 Operational Experience

4.1 Inspection

During six years of operation the beds have been inspected for mechanical damage or disturbance at least ten times. No evidence of damage to the charcoal or the trays containing it has been observed at any time. The surface of the charcoal has always been found undisturbed. Lack of charcoal disturbance is attributed to the down-flow design of the charcoal tray and the low (83 mm. per sec) flow velocity of the air through the charcoal.

4.2 Charcoal Testing

The first in-situ tests were carried out in 1967 immediately after the beds were loaded with their initial charge of charcoal. The results showed a decontamination factor of greater than 1500 for clean-up plant number 1 but only 930 for plant number 2. Since the theoretical decontamination factor for the charcoal was several orders of magnitude greater than this, it was concluded that the in-situ decontamination factor was being determined primarily by air bypassing the charcoal beds via the seals on the doors linking the various compartments inside the clean-up plant. Examination of these seals showed this to be a distinct possibility, and clamps were fitted at 300 mm.intervals to strengthen the seals. Re-testing showed a decontamination factor of greater than 1500 for both clean-up plants. The limit of sensitivity was determined by the activity of the source used but indications were that even with charcoal in good condition it would be difficult to obtain a decontamination factor much greater than a few thousand (due to bypass leakage). It should be noted that, assuming the charcoal to be 100% effective at removing methyl iodide, a flow of only 5 litres per second bypassing the charcoal reduces the decontamination factor to one thousand. However, for the purpose for which the beds were constructed a decontamination factor of 1000 at ambient relative humidity was considered to be satisfactory, and the question of redesign was not felt necessary.

During the first two years of operation faulty performance of the reactor feed water clean-up beds led to crud deposition on fuel pins. This in turn led to defects in the pins of some 30 fuel elements. The release of iodine from these defective pins into the primary or secondary containment air, which could be diverted through the fission product clean-up plants, made it possible to determine the efficiency of the charcoal beds. In all cases these showed decontamination factors to be greater than 1000 at ambient relative humidities. The performance of the reactor full flow condensate clean-up bed was soon remedied, and after about two years most of the fuel which had crud deposited on it during the first few months of operation had been discharged or cleaned. Fuel failures became rare, and so formal in-situ testing of the fission product clean-up plant

was recommenced. Measurements on samples taken from the charcoal beds towards the end of 1969 showed that decontamination factors were quite low at 98 to 100% relative humidity. Moreover the charcoal samples were noted to be evolving a vapour detectable by smell and subsequently found to be a complex mixture of aliphatic compounds. In-situ tests at ambient relative humidities determined decontamination factors still around 1000. It was therefore concluded that the performance of the charcoal at high humidities was impaired due to the doping agents being poisoned by the presence of some aliphatic compound. Further laboratory tests were carried out at high humidities to confirm the earlier tests. These later tests indicated that decontamination factors were somewhat higher and it appeared that the beds were slowly recovering, possibly due to the contaminating material gradually desorbing. Laboratory tests carried out on charcoal samples at relative humidities around 50% indicated decontamination factors of the order of 10^4 . At this level the performance of the beds during in-situ testing under normal humidity conditions would be unaffected (being determined by bed bypassing), but it would be expected that the performance during high humidity conditions might be seriously impaired. A further laboratory test carried out on charcoal heated for a period to drive off the contaminant showed a marked increase (about 100 times) in performance.

It was decided to change the charcoal during the latter part of 1971. This was done, and laboratory and in-situ tests were carried out on the new charcoal. The laboratory tests determined decontamination factors of 10^{11} for the potassium iodide doped charcoal and 10^{14} for the charcoal doped with triethylenediamine. The in-situ tests indicated decontamination factors greater than 1300 for both filtration plants. Further in-situ tests carried out in October 1972 and April 1973 at relative humidities in the range 60 to 70% showed that decontamination factors were greater than 1000, but charcoal samples taken for laboratory analysis at the same time showed a marked deterioration in performance. The decontamination factors of 10^{11} determined for the new charcoal installed in the filtration plants in late 1971 had deteriorated to decontamination factors of 3×10^4 for unit number 1 and 3×10^3 for unit number 2 at relative humidities in the range 98 to 100%. This deterioration would not of course be

detected by in-situ tests carried out at relative humidities of 60 to 70%. Samples taken for laboratory analysis in the Spring of 1973 again showed a further reduction in performance at high humidities, although in-situ testing still indicated decontamination factors in excess of 1000. The Spring 1973 in-situ measurements were carried out using the large sampling device mentioned earlier with a release of only a few mCi of methyl-iodide-131. The laboratory samples again showed detectable traces of aliphatic compounds.

5 Conclusions

The operational experience of the SGHWR iodine sorption beds has shown that whilst satisfactory decontamination factors have been maintained, the deterioration in the performance of the charcoal at high humidities has been somewhat higher than predicted⁽²⁾. This deterioration is believed to be due to the effect of poisoning of the doping agents added to the charcoal to improve its efficiency at high humidities. The source of the poisoning material has not yet been established, although it is believed to be one or more of the many types of oil used in the power station. Efforts are being made to identify the nature, source and the time during which the poison is present in the air passing through the filtration plant. Samples of filtration plant inlet air passed through new charcoal are being analysed weekly. Once the nature and source of the contaminant is identified it may be possible to operate the ventilation system in such a manner that contaminated air is not passed through the filtration plant for the period during which it is present.

Mechanically the beds have given exceptionally good performance, showing that the basic design of down-flow trays is satisfactory. The question of air bypassing the filtration medium becomes of increasing importance as the size of system increases and is generally the limiting factor in determining the bed efficiency.

6 Operating Experience of the Iodine Sorption Units installed in a 'hot-cell' facility

It may be of interest to mention that similar techniques are used elsewhere at Winfrith, eg. in a 'hot-cell' facility used to carry out post-irradiation examination of a variety of reactor fuel elements. Iodine sorption units are installed in the extract ventilation system from each cell. Each sorption unit is 0.6 m. wide, 0.6 m. long and 0.75 m. deep, and two such

units are provided in each extract system. These two units can be operated in series or in parallel with each other. Normally they operate in parallel and are then able to process some 230 litres of air per second. Each unit contains Sutcliffe-Speakman 207B charcoal impregnated with 1.5% potassium iodide. The charcoal container sits on a seal within concrete shielding and the air flow is normally upwards through each unit.

In-situ testing is carried out at approximately six monthly intervals by releasing millicurie amounts of methyl-iodide-131 into the ventilation system. The decontamination factors measured have been disappointingly poor in the range 10 to 50 for the sorption units as designed and fitted. This has been adequate for the type of fuel being examined up to the present, but steps are being taken to improve the performance, in case there is a need to examine short-cooled fuel elements in the future. The poor performance again arises primarily because the original mechanical design was such that the charcoal could be bypassed. One unit has been modified to increase the effectiveness of the bottom sealing arrangement. When tested recently the decontamination factor of this particular unit was 270 compared with the two previous measurements of 32 and 33 before modification.

Further modifications are in hand to increase the effectiveness of all the sealing arrangements and to securely retain the charcoal to prevent the upward flow of air through the unit from disturbing the charcoal.

References

- 1 Collins, D A, Taylor, L R and Taylor, R. The Development of Impregnated Charcoals for Trapping Methyl Iodide at High Humidity. 1967. TRG Report 1300(W).
- 2 Taylor, L R and Taylor, R. The Ageing of Impregnated Charcoals. Seminar Paper - Session 1, paper 6.

ESSAIS DE PIEGES A IODE DANS LES CENTRALES NUCLEAIRES
D'ELECTRICITE DE FRANCE

M. Gence

E.D.F.
Saint-Denis, Paris - FRANCE

RESUME. Les circuits de rejet gazeux des centrales sont équipés actuellement de pièges à iode constitués par du charbon actif non imprégné. Ses facultés de piégeage pour l'iode moléculaire sont bonnes. Des mesures récentes tendant à prouver que l'iode se présente plutôt sous la forme d'iodure organique, il est envisagé de remplacer ce charbon par de nouvelles charges imprégnées à l'iodure de potassium (IK).

La perte d'efficacité en fonction du temps nécessite un contrôle périodique qui peut être effectué soit in situ sur le piège entier, soit par mesure en laboratoire d'un prélèvement de charbon provenant du piège ou d'un piège témoin disposé en parallèle. Les contrôles effectués dans les centrales s'inspirent de ces deux méthodes ; les essais in situ permettent le contrôle total du piège (charbon + structures) aux conditions nominales de fonctionnement. Les résultats des contrôles montrent une baisse d'efficacité des pièges en fonction du temps, le vieillissement du charbon n'étant pas toujours le seul responsable.

Les circuits sont équipés à demeure de prises qui doivent obéir à des conditions précises permettant d'obtenir des résultats représentatifs. Ces conditions ne peuvent pas toujours être réunies dans les conceptions actuelles des circuits de ventilation où les contrôles doivent inclure les filtres et préfiltres accolés aux pièges et où les longueurs droites sont insuffisantes pour assurer une bonne homogénéisation du traceur. Il convient de tenir compte de ces conditions d'essai au stade de la conception.

KURZFASSUNG. VERSUCHE MIT JOD-ABSCHIEDERN IN DEN KERNKRAFTWERKEN DER ELECTRICITE DE FRANCE. Die Gasableitungssysteme der Kraftwerke sind zur Zeit mit Jod-Abscheidern ausgestattet, die aus nicht-imprägnierter Aktivkohle bestehen. Der Abscheidegrad dieser Anlagen für molekulares Jod ist gut. Da jüngste Messungen darauf hinweisen, dass das Jod eher in Form von organischen Jodiden vorliegt, wird in Betracht gezogen, die bisherige Kohle durch eine mit Kaliumjodid (KJ) imprägnierte Aktivkohle zu ersetzen.

Die Abnahme der Wirksamkeit mit der Zeit erfordert eine Kontrolle in regelmässigen Zeitabständen, die entweder an Ort und Stelle an der gesamten Abscheideanlage oder durch Labormessung einer Aktivkohleprobe, die aus der Abscheideanlage selbst oder aus einem parallel geschalteten Kontrollabscheider entnommen wurde, durchgeführt werden kann. Die in den Kraftwerken durchgeführten Kontrollen basieren auf diesen beiden Methoden ; die an Ort und Stelle durchgeführten Versuche ermöglichen die Gesamtkontrolle des Abscheiders (Aktivkohle + Komponenten) zu nominalen Betriebsbedingungen. Die Ergebnisse der Kontrollen zeigen einen Rückgang der Wirksamkeit der Abscheider in Abhängigkeit von der Zeit, wofür jedoch das Altern der Aktivkohle allein nicht immer verantwortlich ist.

Die Ableitungssysteme sind mit ständigen Entnahmestellen ausgerüstet, die genauen Bedingungen entsprechen müssen, damit repräsentative Ergebnisse gewonnen werden können. Diese Bedingungen werden bei den derzeitigen Konstruktionen der Belüftungssysteme nicht immer erfüllt,

bei denen die Kontrollen die den Abscheidern vor- und nachgeschalteten Filter einschliessen müssen und bei denen die geraden Leitungstrecken nicht ausreichen, um eine gleichmässige Verteilung der Tracersubstanz zu gewährleisten. Diese Versuchsbedingungen sollten bei der Konstruktion berücksichtigt werden.

SUMMARY. IODINE TRAPPING PLANT TESTING AT THE NUCLEAR POWER STATIONS OF ELECTRICITE DE FRANCE. Off-gas systems in nuclear power stations are presently fitted with iodine traps making use of non-impregnated activated charcoal. This equipment is quite satisfactory for retention of molecular iodine but as recent experience tends to prove that most iodine present is to be found in the form of organic iodides, there are plans to replace the charcoal with new charges impregnated with potassium iodide (KI).

Owing to loss of efficiency with time, periodic controls are necessary. These can either be carried out in-situ on the entire unit or in the laboratory by quantitative analysis of a charcoal sample taken from the charcoal bed or from a reference trap connected in parallel. The controls carried out in nuclear power stations are based on both of these methods ; in-place testing allows the entire trap (charcoal and filters, etc ..) to be tested under normal operating conditions. Results obtained show that filtering efficiency decreases with time, though charcoal ageing is not always the only factor responsible. The off-gas systems used are fitted with permanent intake orifices. These must respond to specific conditions if representative results are to be obtained. It has not always been possible to combine all of these in current designs of ventilation systems, where the controls must include the filters and prefilters connected to the trap and where the straight sections are not long enough to ensure proper homogenization of the trace. These test requirements should therefore be borne in mind at the design stage of the installation.

SOMMAIRE

1 - INTRODUCTION

1.1. Nécessité de contrôle

2 - METHODE D'ESSAI ET DE CONTROLE

2.1. Contrôle global

2.1.1. Méthode employée

2.1.2. Matériel de contrôle utilisé

2.1.3. Equipement du circuit

2.2. Contrôle partiel par prélèvement d'un échantillon du piège

2.3. Contrôle par piège témoin

2.3.1. Méthode de contrôle

2.3.2. Equipement du circuit

3 - EMPLACEMENT DES PIEGES A IODE

3.1. Pièges sur circuit de vidange CO₂

3.1.1. Type de contrôle employé

3.1.2. Recommandation d'emploi

3.2. Pièges sur un circuit d'air de ventilation

3.2.1. Type de contrôle préconisé

3.2.2. Recommandation d'emploi

4 - RESULTATS DES CONTROLES EFFECTUES SUR LES CENTRALES GRAPHITE GAZ

4.1. Circuits de ventilation des locaux

4.2. Circuit de rejet en vidange du CO₂

4.2.1. Contrôle in situ

4.2.2. Contrôle en laboratoire de l'efficacité du charbon par prélèvement

5 - CONCLUSION

I - INTRODUCTION

Les centrales nucléaires possèdent dans leurs circuits de rejet d'effluents gazeux des pièges constitués de charbon actif dont le but est de retenir les produits volatils provenant du combustible (iode et iodes principalement).

Le pouvoir de rétention ou efficacité de ces pièges vis-à-vis de ces produits volatils est maximal à la mise en service et diminue avec le temps et l'usage. La validité d'un piège installé n'est pas établie pour toute la durée de fonctionnement de la centrale. Un contrôle s'impose.

1.1. Nécessité de contrôle

Le contrôle à la réception permet, d'une part, de vérifier la qualité des produits et de déceler les malfaçons éventuelles (fuites par contournement), d'autre part, d'établir une valeur initiale pour la comparaison avec les contrôles futurs.

Le contrôle périodique permet la surveillance de l'évolution de la qualité de cette barrière et est imposé par le décret d'autorisation de construction de la centrale.

2 - METHODE D'ESSAI ET DE CONTROLE

Le contrôle peut être effectué :

- . soit globalement sur le piège entier,
- . soit par prélèvement de la matière du piège,
- . soit par prélèvement d'un charbon témoin.

2.1. Contrôle global

Le contrôle se fait généralement sur le site et convient pour un essai de réception aussi bien que pour un contrôle périodique. Il est représentatif de la qualité du produit et de la conservation de l'intégrité des structures (joints, soudures ...). De plus, ce contrôle s'effectue généralement dans les conditions normales de fonctionnement du piège.

Remarque : Le test d'élu-tion ne peut pas être effectué pour les pièges situés sur les circuits de vidange du CO₂ où le contrôle, de durée 1 heure, n'est représentatif que d'un usage de durée limitée du piège.

2.1.1. Méthode employée

Le contrôle global d'un piège en place consiste à injecter dans la partie amont du circuit une quantité d'iode marqué à l'iode 131 et à effectuer, dans le même temps, un prélèvement de gaz en amont et en aval du piège dans les conditions normales de fonctionnement.

Après analyse de ces prélèvements, le rapport d'activité amont sur activité aval conduit à la valeur de l'efficacité du piège.

Ces contrôles sont effectués dans nos centrales avec le concours du C.E.A. - Service de Techniques de Protection et de Pollution Atmosphérique (STEPPA) pour la réalisation de l'injection et des prélèvements ainsi que pour les analyses et interprétation des résultats.

2.1.2. Matériel de contrôle utilisé

Le dispositif d'injection comprend deux parties :

- une source d'iode portative (S.I.P.) contenant le traceur radioactif (¹³¹I)
- un générateur d'iode 127 injectant une masse d'iode représentative de la concentration réelle en cas d'incident, et assurant une saturation préalable des parois pour diminuer les pertes du traceur. La concentration volumique totale en iode est fonction du débit de gaz (0,5 mg/m³ en moyenne).

Les prélèvements s'effectuent à l'aide de deux tubes prélevant au centre de la conduite et reliés à deux porte-charbons de contrôle (P.C.C.).

En amont, le gaz prélevé traverse successivement :

- . un filtre papier arrêtant les aérosols,
- . deux porte-charbons actifs,
- . un débitmètre,
- . un organe déprimogène assurant la circulation du gaz (trompe à air)

Le deuxième charbon est destiné au contrôle de l'efficacité du premier et pare aux risques de fuite éventuelle.

En aval, le gaz prélevé suit un chemin identique en traversant un seul porte-charbon.

2.1.3. Equipement du circuit

Les prises d'essai et leurs raccordements, installés à demeure dans la perspective de contrôles périodiques, doivent être disposés avec soin pour avoir des mesures significatives malgré les faibles quantités de traceur employé.

L'injection dans le gaz du circuit à contrôler se fait par deux tuyauteries pénétrant dans la conduite et placées de façon à obtenir une bonne homogénéisation de l'iode en tenant compte des longueurs droites et des coudes éventuels.

Les tubes de prélèvement doivent être identiques en dimensions et présenter un état de surface intérieur poli et exempt d'aspérités ou décrochements du diamètre pouvant retenir l'iode.

Le prélèvement amont doit se faire le plus près possible du piège de façon à être représentatif de la concentration réelle traversant le piège.

Le prélèvement aval, situé le plus près possible du piège, doit assurer un prélèvement homogène non affecté par des veines préférentielles éventuellement produites par un élément fuitard.

2.2. Contrôle partiel par prélèvement d'un échantillon du piège

Ce contrôle consiste, dans la mesure, en laboratoire, d'un échantillon de charbon actif prélevé dans le piège.

Il peut être systématique ou avoir lieu :

- . après une utilisation particulière du piège (vidange ou ventilation d'un local contaminé)
- . après un accident ayant nécessité l'usage du piège
- . après un incident concernant le piège lui-même entraînant une diminution de la qualité du piège (huile, solvants, humidité excessive)

Ce type de contrôle n'est pas représentatif de la totalité du piège et ne présume pas des fuites possibles des structures.

Si ce mode de contrôle doit être fréquemment utilisé, il y a lieu de prévoir, à l'origine, un accès facile et un démontage aisé du piège. Si le contrôle est exécuté par un laboratoire extérieur, il convient de s'assurer que le transport ne modifie pas les caractéristiques du prélèvement en évitant les secousses et le contact avec des polluants.

2.3. Contrôle par piège témoin

2.3.1. Méthode de contrôle

Ce contrôle consiste à placer, en parallèle sur le piège, un piège témoin de dimensions réduites et facilement récupérable pour mesures périodiques en laboratoire.

Ce piège témoin est installé de façon à suivre en permanence l'évolution du charbon actif du piège principal, et subir les mêmes conditions de vitesse de température, d'humidité, ou de concentration de polluants du gaz traversant le piège principal.

Ce contrôle est représentatif de l'efficacité du piège pour autant que l'on se soit assuré par contrôle global de la qualité des structures.

2.3.2. Equipement du circuit

Pour être représentatif des caractéristiques du gaz prélevé, le circuit dérivé doit présenter, entre autres particularités, un piquage amont isocinétique dont l'orifice est dirigé face au flux, et une absence de perte de charge singulière (vannes à passage direct, coudes à grand rayon). Le piquage amont doit être situé dans le milieu de la tuyauterie, en un lieu où on attend une bonne homogénéité

Remarque : Ce type de contrôle par charbon témoin convient davantage aux circuits de ventilation dont le piège est en fonctionnement permanent. Il est souhaitable, sur les installations nouvelles, de prévoir à la construction, l'équipement des circuits aux fins de contrôle, de façon que ces dispositifs fonctionnent au mieux de leurs

possibilités en réservant l'emplacement et les longueurs droites nécessaires.

3 - EMPLACEMENT DES PIEGES A IODE

Les pièges à iode sont situés, principalement, sur les circuits de vidange du CO₂ des réacteurs graphite gaz, ou sur les circuits d'air de ventilation des locaux avant rejet à l'atmosphère.

3.1. Pièges sur circuit de vidange CO₂

3.1.1. Type de contrôle employé

La conception des circuits de vidange existants permet facilement le contrôle in situ et en fonctionnement des pièges. Cette méthode convient parfaitement pour l'évaluation de l'efficacité. Toutefois, ce contrôle n'exclue pas l'usage du prélèvement partiel de la charge de charbon actif dans des buts particuliers - tels que l'évaluation de l'efficacité résiduelle après usage (cas d'un incident de fusion de combustible à St-Laurent) ou le contrôle du relâchement des poussières de charbon dû au détassement - ni l'utilisation d'un charbon témoin dont le contrôle périodique peut être d'un emploi moins onéreux que le contrôle global. Cependant, dans ce type de circuit, le charbon témoin présente moins d'intérêt du fait que la circulation du gaz est peu fréquente.

3.1.2. Recommandation d'emploi

Le charbon actif étant sensible à des poisons tels que les solvants de peinture, les huiles ... il est important, afin qu'il soit disponible lors d'un rejet chargé en iode actif, de le conserver en bon état.

Ce résultat est atteint en plaçant le piège en attente sur un circuit dérivé et confiné au moyen de vannes amont et aval, les vidanges normales étant conduites à la cheminée par un circuit direct.

3.2. Pièges sur un circuit d'air de ventilation

3.2.1. Type de contrôle préconisé

La conception des circuits existants sur les centrales graphite gaz ne favorise pas la méthode du contrôle global in situ. Les filtres et les préfiltres, étant en général, accolés au piège à charbon actif ne rendent pas possible la disposition orthodoxe des prises d'injection et de prélèvement pour l'essai du piège seul. Le contrôle global ne peut se faire qu'en incorporant le préfiltre et le filtre absolu. Cette incorporation nécessite d'augmenter la durée des prélèvements de contrôle amont et aval pour éviter que des rétentions momentanées du traceur sur ces filtres, suivies de relâchements tardifs, conduisent à une interprétation optimiste du résultat.

La méthode de contrôle à préconiser sur de tels circuits est le contrôle périodique par charbon témoin, avec un contrôle global in situ initial (éventuellement filtres aérosols compris) pour dépister les fuites de contournement et établir une valeur de référence de l'efficacité.

3.2.2. Recommandation d'emploi

Cette conception entraînant l'usage permanent du piège à iode, l'expose à un vieillissement prématuré le rendant impropre à piéger l'iode à l'occasion d'un besoin urgent.

Ce vieillissement est dû, d'une part, à un empoisonnement progressif par les vapeurs d'huile ou de solvants de peinture entraînées dans l'air de ventilation à l'occasion de travaux, d'autre part, à une corrosion et au colmatage des pores du charbon pouvant être provoqué par le bioxyde d'azote NO provenant de la réduction par le carbone du peroxyde d'azote NO₂ découlant de la radiolyse de l'azote atmosphérique dans les structures du réacteur (1).

Ces remarques conduisent à recommander pour les installations nouvelles, la mise en place du piège en attente sur un circuit dérivé où il est confiné au moyen de vannes amont et aval commandées ou manuelles.

4 - RESULTATS DES CONTROLES EFFECTUES SUR LES CENTRALES GRAPHITE GAZ.

(1) Etude C.E.A. STEP n° 637 avril 1967

4.1. Circuits de ventilation des locaux

Aucun essai n'a été effectué à ce jour par suite des difficultés rencontrées pour la mise en oeuvre orthodoxe d'un contrôle (filtre et préfiltre accolés). Il est néanmoins prévu dans l'avenir de contrôler ces pièges qui sont en place depuis la mise en service de la centrale, d'autant plus que le fonctionnement en régime permanent rend très probable une baisse d'efficacité due au vieillissement du charbon.

4.2. Circuit de rejet en vidange du CO₂

4.2.1. Contrôle in situ

Depuis leur mise en service, les pièges à iode ont été contrôlés une fois pour chaque centrale. Ces pièges sont constitués par du charbon actif non imprégné (SA 1184) ; l'épaisseur du lit de charbon est de 5 cm. Le traceur utilisé pour le contrôle est ¹³¹I .

Le tableau I résume les résultats principaux obtenus. Il apparaît pour quelques pièges à iode, un relâchement de poussières de charbon conduisant à deux valeurs de l'efficacité. L'efficacité réelle à prendre en compte est l'efficacité globale qui tient compte de ce relâchement.

TABLEAU N° 1- Résultats obtenus dans les centrales E. D. F. lors des contrôles in situ

CENTRALE	EDF 1	EDF 2	EDF 3	ST-LAURENT 1	ST-LAURENT 2	BUGEY 1
Date de mise en service	charbon renouvelé le 1 ^{er} mars 1973	juillet 64	avril 67	février 69	décemb. 71	juin 72
Date du contrôle	6 mars 73	mai 72	septemb. 72	septemb. 70	mai 71	oct. 72
Débit de CO ₂ max. m ³ /4 essai	3200	4200 4200	12 000 4000	15 400 10 000	15 400 8000	18 000 18 000
Nombre de file de vidange	1	2	1	2	2	2
Pression du CO ₂ bar	1,2	1,2	1,2	1,2	1,2	1,3
Température du CO ₂ max. °C essai	60	60 55 et 30	175 60	220 60	220 30	220 180
volume de charbon dm ³	1 x 190	2 x 230	1 x 540	2 x 643	2 x 643	2 x 643
Efficacité globale	13 000	600	460	2000 3000	5000 5000	332 4900
sans relâchement de poussières		1200	535	2000 3000	5000 5000	338 6600

Ces résultats semblent montrer que l'accroissement du temps d'utilisation du piège depuis la mise en service jusqu'à la date de contrôle, s'accompagne d'une baisse de l'efficacité. La figure n° 1 représente cette baisse en fonction du temps d'utilisation. Les faibles valeurs observées pour les pièges EDF 2 et EDF 3 peuvent être expliquées par la présence d'huile dans le charbon (EDF 3) ou par un détassage du charbon (EDF 2). La faible valeur d'un des deux pièges de Bugey 1 qui, bien que récemment mis en service, présente une efficacité réduite, pourrait être due à un défaut des structures.

4.2.2. Contrôle en laboratoire de l'efficacité du charbon par prélèvement

Le tableau n° II résume les résultats obtenus. Il est important de noter que ces mesures ne tiennent pas compte des défauts possibles des structures contenant le charbon (fuites de contournement, ou passages préférentiels dans le charbon mal tassé) et se rapportent uniquement à la qualité de l'absorption du charbon.

Tableau n° II - Résultats obtenus lors des contrôles en laboratoire des prélèvements de charbons actifs prélevés dans les centrales EDF

CENTRALE	EDF 3	EDF 3	EDF 3	EDF 2	SLE 1
Date de mise en service	avril 67	avril 67	avril 67	juin 63	février 69
Date du contrôle	juin 67	octobre 70	janvier 71	mai 69	avril 70
efficacité globale	450	77	5000	67 000	50 000
poussières exclues	3000	15 000	8750	67 000	50 000
observations	présence d'huile détachement de poussières	relâchement de poussières	stock magasin charbon soufflé avant mesures		après utilisation pour vidange

Contrairement aux conclusions que l'on pourrait tirer du tableau précédent, ces valeurs semblent être indépendantes de la durée d'utilisation. Les résultats montrent que, pris isolément, le charbon peut être très bon alors qu'installé dans un piège dont l'efficacité globale est mauvaise (EDF 2 : mauvais tassement) ou que le charbon ne correspond plus à la qualité requise (EDF 3 : relâchement de poussières).

La figure n° 2 montre les valeurs de l'efficacité mesurée sur les prélèvements en fonction du temps de présence dans le piège.

5 - CONCLUSION

Bien que les contrôles in situ soient peu nombreux, il semble qu'il y ait diminution de l'efficacité globale en fonction du temps d'utilisation (figure n° 1) alors que les résultats des contrôles effectués sur des prélèvements de charbon ne montrent pas d'évolution analogue mais semblent plutôt avoir une répartition aléatoire (figure n° 2).

Le contrôle global a l'avantage de tester à la fois le charbon et les structures. Il tient compte de l'action des polluants et du temps agissant sur le vieillissement du charbon ainsi que des défauts d'étanchéité et de tassement se rapportant aux structures.

La comparaison des résultats obtenus lors des contrôles in situ et des contrôles par prélèvement, montre qu'il n'y a apparemment aucune relation entre ces deux séries de mesures.

Le contrôle par prélèvement du charbon dépend de la façon dont est effectué le prélèvement. Si le prélèvement est effectué en vrac dans le piège, le détassement et l'étanchéité des joints ne sont pas testés.

On observe ainsi sur le piège à iode de la centrale EDF 2 un écart important entre le test in situ dont la valeur est 600 et le test sur prélèvement en vrac dont la valeur est 67 000. La présence abondante de poussière consécutive à un détassement du charbon en vrac est à l'origine de cet écart.

Si le contrôle est effectué par prélèvement d'un élément structuré constitutif d'un ensemble, l'étanchéité des joints n'est pas testée. Le détassement peut être observé sur cet élément mais il est difficile d'étendre le résultat à l'ensemble sans risque d'erreur.

L'exemple donné par SLE 1, dont le piège à iode est constitué d'éléments structurés, donne pour le test in situ la valeur 3000 et pour le test par prélèvement la valeur 50 000 sans qu'une raison particulière en soit apparue.

De ces observations il apparait que le contrôle in situ est un test plus représentatif de l'état de ce type de piège que le contrôle par prélèvement, et il semblerait qu'une durée de 3 à 4 ans dans les conditions d'utilisation de ces pièges dans les centrales graphite gaz soit un délai maximal au-delà duquel la baisse d'efficacité nécessite un remplacement des éléments actifs.

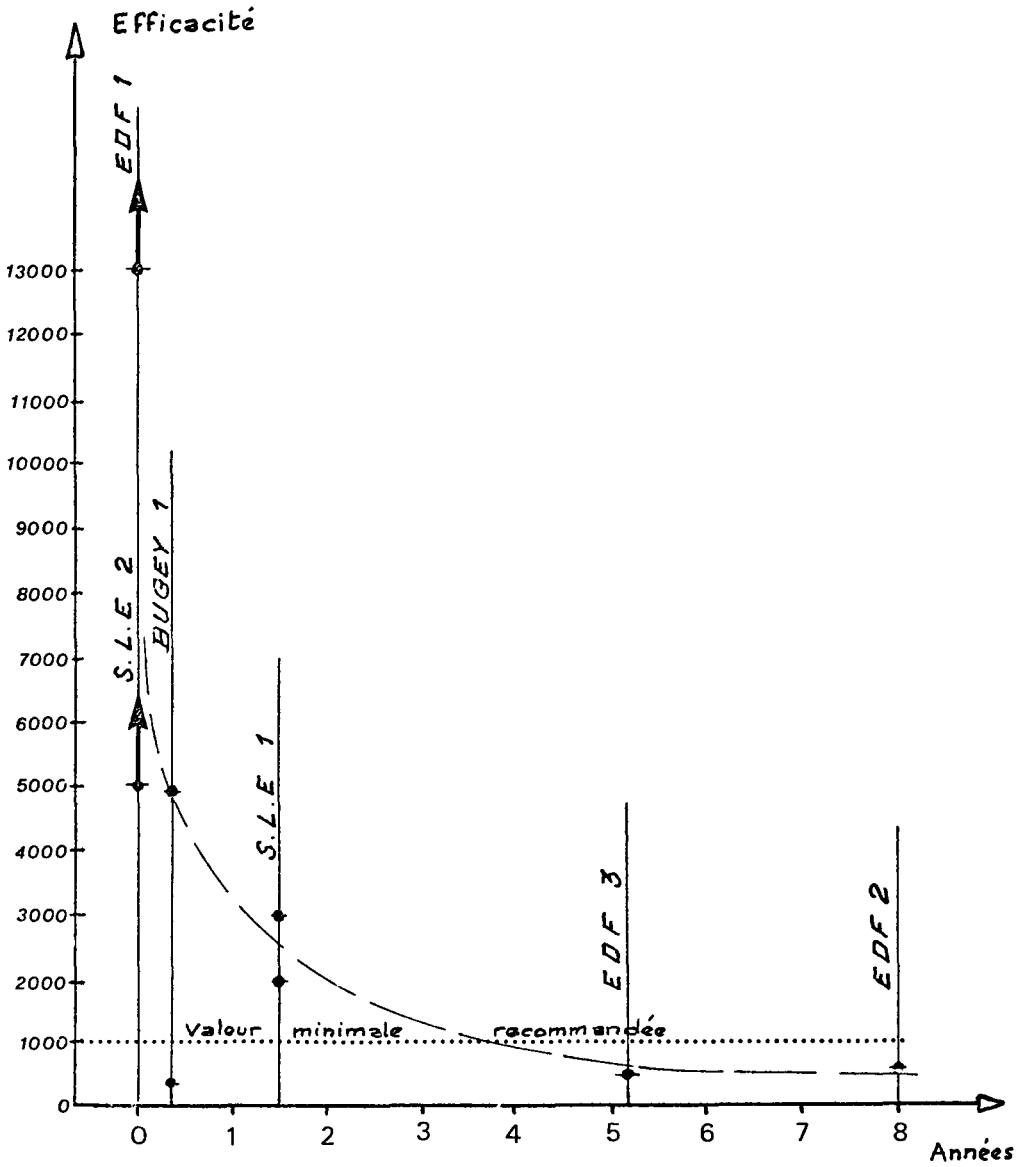


Fig. 1 Contrôle in situ - Efficacité des pièges en fonction de la durée d'utilisation

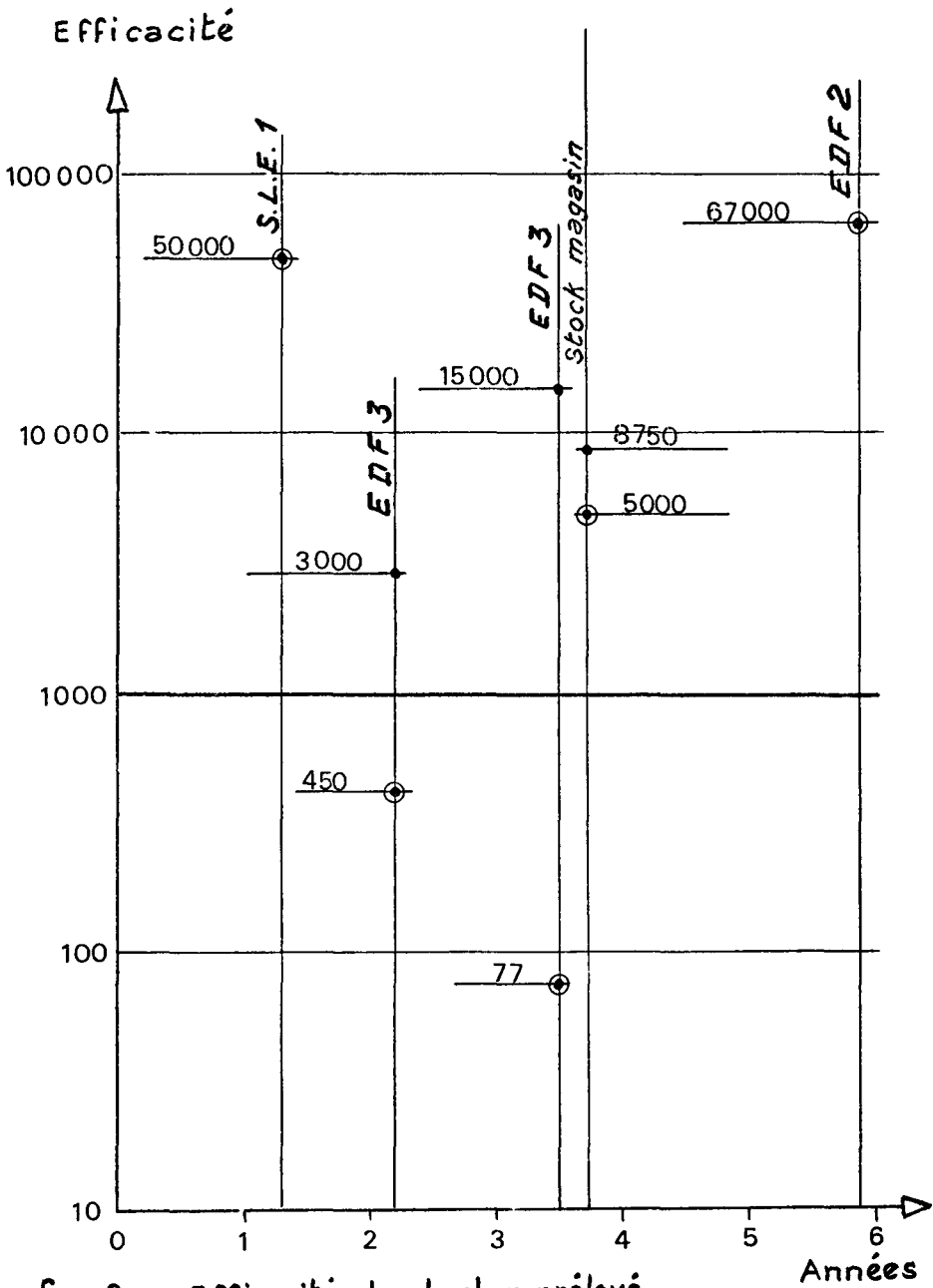


Fig. 2 - Efficacité du charbon prélevé en fonction de la durée d'utilisation

- ⊙ Efficacité globale
- Efficacité sans les poussières

OPERATING EXPERIENCE WITH IODINE FILTERING SYSTEMS
IN ITALIAN NUCLEAR POWER PLANTS

G. Messore

C.N.E.N.

Roma - Italy

N. Fiorentino, S. Malossi and G. Sacco

E.N.E.L.

Trino Vercellese, Latina - Italy

SUMMARY. A critical survey is presented of the various tests performed on the iodine filtering systems of the Latina and Trino Vercellese nuclear power stations.

The methods used, the results and practical difficulties encountered are illustrated, as well as the way in which this experience has been used to improve gradually the test equipment and test procedures from the time of initial plant start-up.

RESUME. EXPERIENCE ACQUISE AVEC LES SYSTEMES DE FILTRATION DE L'IODE EQUIPANT LES CENTRALES NUCLEAIRES EN ITALIE. Le rapport passe en revue les divers tests effectués sur les systèmes de filtration d'iode des centrales nucléaires de Latina et de Trino Vercellese. Outre les méthodes utilisées, les résultats obtenus et les difficultés pratiques rencontrées, on y décrit comment l'expérience acquise depuis le démarrage des centrales a permis d'améliorer peu à peu l'équipement et le déroulement des tests.

KURZFASSUNG. BETRIEBSERFAHRUNGEN MIT JODFILTERANLAGEN IN ITALIENISCHEN KERNKRAFTWERKEN. Es wird ein kritischer Ueberblick über die verschiedenen an den Jodfilteranlagen der Kernkraftwerke Latina und Trino Vercellese durchgeführten Prüfungen gegeben. Die angewandten Prüfmethode, die Ergebnisse und die Schwierigkeiten in der Praxis werden beschrieben und es wird gezeigt, wie diese Erfahrungen seit der Inbetriebnahme der Kraftwerke zur schrittweisen Verbesserung der Prüfeinrichtungen und Prüfverfahren genutzt worden sind.

1 - Introduction

Latina and Trino Vercellese nuclear power plants have special circuits for removal of Iodine radioactive Isotopes released during accidents.

Until now the correct installation of the filter beds has been checked using techniques experienced in U.S.A. or in U.K. or specifically designed by E.N.E.L..

Hereunder are shown the methods to evaluate the filtering systems efficiency installed at Latina and Trino Vercellese plants, and some remarks on the results obtained.

2 - Latina Plant

The reactor design has been done in such a way to protect the core against the increasing of fuel temperature over the normal operating limits.

It has been taken into account the possibility of a failure after a can burst and the presence of fission products in the main circuit.

Whilst the solid fission products are kept in special by-pass filters of CO₂ humidrier, I¹³¹, I¹³² and I¹³⁵ are not completely captured and the result may be radioactivity diffusion after a normal gas leakage in to the main circuit.

A filter for Iodine absorption has been installed on the reactor discharge lines in order to allow a safety discharge of gas to the chimney during CO₂ clean up.

In the very improbable case of gas duct rupture, Iodine absorption circuit allows the suction of irradiated CO₂ between pressure vessel and biological shield in order to facilitate the burst sealing and the removal of most dangerous fission products.

2.1 Description of the circuit

The absorption circuit of active Iodine (figure 1)

is a pressure vessel 170 cm high with a diameter of 120 cm; it contains an absorption unit together with an absolute filter connected to the vacuum system.

The main components of this circuit are:

- a) - coarse grain pre-cleaner (100% per 10 micron; from 95 - 98% to 2 micron);
- b) - absolute filter (from 99,9% to 0,1 micron);
- c) - active charcoal filter;
- d) - Silver-plated copper gauze, upstream and downstream the filter.

It can be cleaned at 300°C and 12,8 atm; the gas flows in the impregnated charcoal at the maximum speed of 5 cm. per minute.

The absorption unit, installed at the moment, is a cylinder of 108 cm diameter, 30 cm high and contains Sutcliffe - Speakman 207 B charcoal impregnated with Potassium Iodide, 200 kg approx.

Until July 1966 the absorption unit contained impregnated charcoal with a different component (Aceticarbone NC-8/16 of Italian CECA).

The replacement of the first active charcoal bed has been decided after the results of experiments obtained by UKAEA, (1) from which it was evident that in the case of gas with high humidity the retention efficiency is very low except if charcoal beds are impregnated with particular components (Potassium Bromide, Calcium Iodide, Piperazine etc.).

In laboratory tests the charcoal used at the moment (Sutcliffe - Speakman 207 B) has shown a good retention efficiency of Methyl Iodide in the air with humidity between 5% and 100%.

Said charcoal gave also good results during tests with Methyl Iodide in CO₂. The charcoal used was impregnated short time before.

Although there are no official results on the probable efficiency reduction of the impregnation with time, from our experimental results it appears that there is no substantial reduction of the efficiency.

2.2 Efficiency measurement

The efficiency test of a filtering and absorption system for Iodine radioactive Isotopes imposes at first the check of the efficiency of the absorption unit only and than a complete check of all the installation.

Usually the first efficiency test of the filtering bed is done by manufacturers.

On the plant, the efficiency system test is done also in order to check if during transport and installation, there was charcoal particles settlement in the filtering bed caused by vibrations, producing by-pass paths of the test gas.

After years of operation of such a system it could occur a light pulverization of active charcoal particles. These particles, under gas current during discontinuous use of the system, are brought away reducing filter retention capacity of Iodine radioactive Isotopes.

Therefore, the choice of the gas flow direction through the filtering bed is of paramount importance.

The best solution is a "top to bottom" gas flow, (as in Latina) in order to help the bed compacting.

For Latina system the filtering bed has been prepared on the plant following all precautions given by experts.

Before the installation a simulated test has been carried out with charcoal samples loaded in absorption cartridges (append. 1).

On the bases of good results obtained during the laboratory tests, final tests have been carried out in order to ascertain the correct installation of filtering cartridge and to measure Iodine radioactive Isotopes system efficiency.

The method used has been prepared at UKAEA Laboratories (1).

Methyl Iodide is prepared in the Laboratory and put in a phial pre-arranged for injection. The preparation

method is described in Reference (1).

The injection is performed by connecting the phial at one side to the air bottle and at the other to the inlet duct of the filtering system.

Turning on contemporary the two taps of the phial and opening the compressed air bottle all the contents of the phial is injected in 3 sec. The injection is checked radiometrically.

2.3 Remarks

All the measurements are shown in table I. In the same table are shown the temperature and humidity percentage during the tests.

It appears that the immediate retention efficiency of filtering bed is about 95%. It means that there is no filter release neither because of preferential by-pass through the filter bed nor for by-passing the filter itself. It appears too that there is no release from the filter in the first 5 hours.

If, from one side, we can be satisfied by the results of the measurements, from the other side, we have not to forget the difficulties found during the preparation of Methyl Iodide to be injected and during the test itself.

However, these tests might turn out dangerous to the staff, due to inhalation and irradiation hazards; therefore, if not absolutely necessary, it is more suitable to use other techniques, good much the same as those, but certainly less dangerous.

The best value of the pressure upstream the methyl iodide phial is about $0,1 \text{ kg/cm}^2$.

During the preparation and the injection every operator use a mask for CH_3I .

We had no troubles for the above operations.

As far as the test planning is concerned, while the Freon test can be carried out at any moment, the test using Iodine requires a very rigorous planning.

In fact, because of the very short half life of Iodine the time necessary to supply the source and carry out the test has to be as short as possible (within 7 days).

As a consequence, the test must be carried out at a pre-fixed time even if the weather is not good and the humidity in the filter may be increased.

In the table I it is possible to see how during the various tests the atmospheric humidity ranges between 47% and 94%.

CH₃I is prepared working under hood. Notwithstanding during all the operations it is necessary to be very careful to avoid gas releases.

The operator works with a source and therefore he receives a small radiation dose.

For all the tests done until now we had no inconveniences and we noticed that the radiation dose to the operator's hands was about 10 mRem each time.

A big hazard is represented by the transport by hand of the phial from the Laboratory to the place where it has to be used.

This hazard cannot be avoided since the phial has to be filled at the Laboratory and injected as close as possible to the filter that is near the reactor building.

Other possibility of hazard appears at injection moment. The air pressure used to inject the methyl Iodide has to be checked very carefully to avoid the phial breakage.

As far as the time for carrying out each test, 8 working hours are enough except, of course the time necessary for the supply of the source.

One more point to be considered is the amount of release referred to the discharge formula.

At the moment we are using for the tests 1mCi Iodine 131 and since the filter retention coefficient is about 95%, every tests contributes at 5% to Iodine discharge formula $(\frac{Q}{10^{-3}} (I^{131}) \leq 1\text{Ci})$.

We said previously that there are various tests techniques to be used, but for Latina, the experience has shown that it is not possible to use Freon 112 because of circuit location and Freon 12 is usually used just for new filters.

Moreover in the emergency plan it is supposed to have a release of I^{131} at the moment of fuel burst of either in molecular form and for approx. 5% in CH_3I form.

Part of the above iodine is absorbed from the dust and part is plated out on circuit surfaces.

In any case will arrive an $I + CH_3I$ mixture to the charcoal filter even if not in the proportion of 95 to 5.

Therefore our test with pure CH_3I is quite conservative for two reasons:

- 1) - because molecular I^{131} is easily absorbed by active charcoal;
- 2) - because I^{131} absorbed from the dust is stopped by absolute filter.

We finally remind that the use of air with high humidity percentage, instead of CO_2 , is more conservative than in a real case of accident.

3. TRINO VERCELLESE nuclear power station.

3.1 Circuit description

The circuit consists of a chamber which contains the filtering unit that is a Barnebey - Cheney Co: dimensions 60 cm x 60 cm x 30 cm 12 mm deep with type 316 stainless steel screens and type 416 high density carbon bed (10 x 14 mesh).

The filter actually used is still the original one installed at the beginning of plant operation.

The filter efficiency guarantee from the supplier was 99,9% during normal operating conditions.

3.2 Efficiency measurements and remarks.

The system efficiency, after filter installation, was measured using Freon 12 and afterwards, with a special technique that consists in detecting, by a halogen leak detector, the presence downstream the filter of Freon 12 injected upstream and flowing through a special by-pass.

The circuit for the first test is shown on fig. 4.

The test was carried out as follows: Started the fan the diaphragm upstream the air injection box was adjusted to obtain through the filter a gas flow of 100 m³/h.

The heater was set to have an air temperature downstream the resistances about 23 °C. Freon 12 injection begun at a flow rate of 45 dm³/h; (to have a filter inlet Freon 12 concentration of about 450 ppm).

Every 30 seconds from injection and for a total time of 5 minutes injection time, air samples were taken up and downstream the filter using special phials.

Gas samples, were analyzed at the EDISON Laboratories in Bollate, by a gaschromatograph fitted with an electronic capture detector.

Unfortunately, due to difficulties during the transport of the phials from the plant to the laboratories, the gas contained in 8 phials only was analyzed and precisely 3 samples taken upstream and 5 downstream the filter.

Table V shows freon 12 concentration at different time. The system efficiency is 99%.

A first consideration is to be done on the freon concentration upstream the filter, since this concentration, besides not reaching the forecast 450 ppm, fluctuates between 240 and 350 ppm. Such inconvenience is probably due both to a unstable freon and air injection and to freon 12 deposition on the walls.

The lack of a gaschromatograph to be used on the plant was a limitation to the method application.

Therefore, to control filter efficiency with

equipments always available on site, it was set up a cheaper threshold method which makes use of a halogen leak detector.

Such detector is very sensitive but not sufficiently precise nor selective to measure the efficiency of a filter with an absolute method.

Such detector could be satisfactory used in case of filter test with a relative method.

Fig. 5 shows schematically the test circuit permanently installed on the annulus ventilation circuit containing the charcoal filter to be tested periodically.

The test circuit has to:

- a) supply a controlled and measurable air flow much lower than that of the ventilation system and in any case sufficiently low to face the air speed which passes through the filter even if this has previously absorbed a rather great water quantity;
- b) to partially dry the air such to not increase the filter humidity during the test;
- c) inject a fixed quantity of Freon and mix it with the upstream filters air;
- d) allow the leak detector calibration at the beginning of each test.

The special freon injection device is followed by a mixer (fig. 6).

The leak detector is installed on the ventilation system line, about 3 metres downstream the filtering celles.

Such lenght is necessary to mix the air injected through the by-pass with the air that passes through the filters.

The leak detector calibration (Appendix 2) as well as the flow meter (put on the freon injection line) calibration, are done only to check the order of magnitude of the concentrations involved, whilst for the efficiency check only air flow measurements are used.

From the freon injection, up through the end. the test must not last more than 5 minutes, because exactly after 5 minutes the filter begins to release the freon

accumulated and must be "washed" for a few hours with the full ventilation system flow before other tests can be carried out. This time limit is a limitation to the circuit length in relation to the air flow, since the time elapsed between the freon injection and the leak detector measurement must be much lower than five minutes to avoid confusing the freon that leaks from a possible filter defect with the freon that is desorbed.

The total air flow in the test circuit is about $40 \text{ m}^3/\text{h}$, that corresponds to a through filter speed of about $3 \text{ cm}/\text{sec}$.

The Freon flow is about $0,018 \text{ m}^3/\text{h}$.

The by-pass flow is about $0,033 \text{ m}^3/\text{h}$.

The reading equipment is Halogen Leak Detector^a of General Electric, consisting of a sensitive head model H-2 and a control unit cat. W-50-42 100 FAFF 1.

The Detector has several interchangeable scales to be cleared manually, scaled by the supplier for freon injections.

The calibration is to be carried out before every test since it depends strictly on the sensitive head use. To prevent from zero fluctuations the less sensitive scale is normally used ($10^{-6} \text{ cm}^3/\text{sec}$).

Values measured are listed on Table VI. From this table and fig. 7 it comes out that any possible leak from the filter installed is little compared with the artificial one.

In fact the detector reading approaches, when the by-pass is closed, the same value indicated before freon injection.

On the other hand, this return to background value appears after about three times the running time of ventilation line involved (about $70 + 80$ seconds on the basis of volumes involved and of total air flow).

The last concentration increase downstream the filtering celles is due to the freon which begins to be desorbed from the filters.

The rather high background value in the ventilation line is about the same as that in the room where the filters are installed and from which the blower sucks the

air to be injected into the circuit under test. This background may be due to freon discharged in the room but also to the presence of other organic vapours (paint for example) to which the leak detector, instrument not very selective, is sensitive.

It must be noted that, if the background value does not change during the few test minutes, other changes does not affect the test results.

The rather long time elapsed from the beginning of freon injection up to its arrival to the detector through the opened by-pass, as well as the long time necessary to return at background value after the by-pass closure, is due to the fact that the by-pass line enters a chamber in a zone where the turbulence is poor and therefore the mixing with the main stream is slow.

3.3 Future improvements for the annulus filtering system.

In recent years carbon filters having an efficiency higher than 99%, even in presence of highly moist air, have been developed.

In order to modify the limit of the leak rate passing from 0.1% a day of free volume of the plant container at the design temperature and pressure to 0.3%, according to the practice commonly accepted for the new nuclear power plants in U.S.A. and Europe, it has been considered the possibility of using such components at TRINO along with other modifications.

In fact, passing from the efficiency of the actual carbon bed filters equal to 90% to that of the new filters equal to 99%, the radiological hazards of the maximum hypothetical accident with the new leak rate of 0.3% a day and with new filtering system with result less heavy of those with the leak rate of 0.1% and with the actual filtering system.

Basically the system includes two separate and equal filtering units, as indicated in fig. 8.

Each unit is designed to assure an adequate depression in the annulus.

The unit is made up of one filtering system and one exhaust fan with servooperated butterfly valves, normally closed; the valves are opened upon a signal supplied by a pressure switch placed on the delivery side of the exhaust fan.

In the event of operating air lack, the valves move into opened position so that the availability of the system is always achieved.

In the filtering system case are orderly assembled: a moisture separator and prefilter, a heating system, an absolute filter, an activated charcoal filter and another absolute filter.

The structure of the case is such to allow the replacement of the internal components; the seal of the holes is assured by rubber gaskets.

The continuous measurements of the pressure drop across the filtering system is provided by a Δp cell, with indications both locally and in the control room.

Connections for the efficiency tests of the various filters are provided.

Air taken from the annulus was assumed to be saturated (relative humidity = 100%) at the maximum temperature of 120 °C.

Such conditions are the worst that might verify into the plant container during the accident and are certainly much more severe of those existing in the annulus atmosphere.

The purpose of the heating system, installed downstream the moisture separator, is to decrease the relative humidity of the air from 100% to 70% maximum. In such a way the efficiency of the carbon filters for the iodine removal will be much improved.

The cell of the activated charcoal used for the radioactive iodine removal, both in the elementary form and as an organic compound, has a carbon bed with a thickness of about 50 mm and allows a contact time for carbon-gas of about 0,25 sec.

The carbon used is MSA type 85851, impregnated with iodine.

During numerous tests, conducted at the Oak Ridge

Laboratories with filters having the aforesaid characteristics and in conditions of temperature and humidity close to those assumed for the TRINO filtering system, it was always found out an efficiency higher than 99%, not only for the molecular iodine, but also for the methyl iodide, even after prolonged period of operation.

The correct installation of the carbon filters will be periodically checked, as required by the Plant Technical Specifications, by carrying out a test with Freon 112. The connections for gas inlet and for sampling are already provided on the cell.

The expected procedure is described in (3).

At the present it is under evaluation the possibility of transferring on industrial scale the laboratory apparatus for the Freon 112 gas production.

Eventually, to avoid the impregnation of the carbon beds by humidity during standing periods, an electrical heater, thermostat operated, will be provided in order to maintain the air temperature of the filters higher than the dew point corresponding to the environment conditions.

On the basis of the aforesead considerations and on account of the available experimental results, it is assumed that, carrying out the proposed modifications, the overall efficiency of the emergency ventilation system of the annulus for trapping radioactive iodine might be assumed, with the highest confidence, equal to 99%.

Conclusions

The italian nuclear power plants were constructed between 1958 and 1963, that is before the preparation of specifications for testing iodine filter installations.

The consequence was that, without technical specifications, the filtering systems were built not having in mind the need to have in the circuits all the facilities necessary for the execution of the tests measurements.

For LATINA the test method adopted is the injection in about 3 seconds of CH_3I marked with I^{131} and we believe that no other test method can give better results.

However for TRINO VERCELLESE nuclear power station, since the beginning of the plant operation, the filtering system was modified in order to run a test with Freon 12 to verify the design specifications of the carbon bed filters and repeat periodically the test.

For TRINO VERCELLESE we confirm the validity of the Freon 12 test method, but we believe that, using Freon 112, we can reach even better results as reported in (3).

In the future all the experience gained so far will be used to arrange the filtering systems for the execution of the test adopting the more up to date techniques.

R E F E R E N C E S

- (1) "Progress report on the trapping of the methyl iodide at high relative humidity". R. Taylor and L.R. Taylor.
- (2) G. Bertoni "Private communications".
- (3) "Testing methods of iodine filters of nuclear plants". F. Fiorentino - S. Lanza - S. Malossi - M. Mazzini - G. Messoro.

TABLE I

Date	Time (h)	INLET		OUTLET		SUCTION TIME (min.)	HUMIDITY (%)	TEMPERA- TURE (°C)
		I° FILTER	II° FILTER	I° FILTER	II° FILTER			
8 Sept. 1967	0	2660	background	50	background	5	60	26,2
	1	-	-	background	-	60	60	26
	2	-	-	background	-	60	52	26
	3	-	-	background	-	60	60	25,5
	4	-	-	background	-	60	65	25
	5	-	-	background	-	60	65	24
30 Sept. 1968	0	131543	background	5307	background	5	69	22,8
	1	-	-	39	-	60	90	22
	2	-	-	background	-	60	90	22
	3	-	-	background	-	60	90	20
	4	-	-	background	-	60	90	19
	5	-	-	background	-	60	90	18
19 Dec. 1969	0	95539	134	4106	background	5	86	10
	1	-	-	26	-	60	90	9,6
	2	-	-	background	-	60	94	9,6
	3	-	-	background	-	60	82	9,0
	4	-	-	background	-	60	86	8,2
	5	-	-	background	-	60	86	8,2

Cpm are referred to the pack area at 364 KeV. Measures are made by spectrometrie using Na I (Tl) 3"x 3" cristal free from background.

Date	Time (h)	INLET		OUTLET		SUCTION TIME (min.)	HUMIDITY (%)	TEMPERA- TURE (°C)
		I° FILTER	II° FILTER	I° FILTER	II° FILTER			
11 Dec. 1970	0	77000	204	3334	background	5	57	15,2
	1	-	-	background	-	60	62	15
	2	-	-	background	-	60	70	13,2
	3	-	-	background	-	60	76	12
	4	-	-	background	-	60	76	10,4
	5	-	-	background	-	60	86	9
17 Gen. 1972	0	100700	60	3100	60	5	52	13,8
	1	-	-	100	-	60	52	13,8
	2	-	-	background	-	60	49	15
	3	-	-	background	-	60	47	15
	4	-	-	background	-	60	48	14,2
	5	-	-	background	-	60	86	11
17 Sept. 1973	0	52205	160	2840	10	5	65	25
	1	-	-	background	37	60	65	25
	2	-	-	background	-	60	67	26
	3	-	-	background	-	60	70	26
	4	-	-	background	-	60	72	26
	5	-	-	background	-	60	75	26

APPENDIX 1

Laboratory test of Sutcliffe - Speakman 207 B charcoal.

The test has been done in this way:

- Preparation of methyl iodide, marked with I^{131} as described in Ref. (1).
- Injection in the test circuit (fig. 2) with an air stream at 99% humidity.
- Activity measurement of the column containing the charcoal to be tested and of the 3 filters in series, at fixed intervals of time.

The air flow was fixed at 400 l/h corresponding to a transit time in the column of 0,5 sec.

To know the methyl iodide distribution along the column, a special screen was arranged to γ scan the column at different height using Na I (Tl) assembly collegate to a monochamel analyzer fixed at 364 Kev.

The column and filters activity was measured hour by hour using portable ionization chamber and at experiment end with γ multichannel analyzer.

Results (2).

TABLE II

Column and filters γ activity

Time (h)	Column (mr/h)	Filter 1 (mr/h)	Filter 2 (mr/h)	Filter 3 (mr/h)
0	70	5	1	0,5
0,5	70	5	0,7	0,5
1	70	5	0,9	0,5
2	70	5	1,2	0,5
3	70	5	1,5	0,5
4	70	5	1,2	0,5

TABLE III

Column γ scanning (normalized at column inlet)

Time	Column inlet	Column middle	Column outlet
0	1	0,40	0,20
1	1	0,55	0,17
2	1	0,56	0,18
3	1	0,64	0,24
4	1	0,44	0,14

TABLE IV

Column and filters activity (mCi) at test end.

Column	1,8 mCi
Filter 1	0,13 "
Filter 2	0,02 "
Filter 3	0,0034"
Total	1,95 "

To evaluate the methyl production efficiency, the activity was measured in the different components (fig. 3) i.e. U tube, injection phial and charcoal trap on the exhaust line, finding these values:

U tube	=	25	μ Ci
phial (after injection)	=	0,5	μ Ci
charcoal trap on exhaust line	=	265	μ Ci
Total	=	0,29	mCi

It is evident that 15% of the ¹³¹I was lost (0,29/1,95) and than the efficiency was 85%.

From the values of Table II (activity values constants) and Table III (minimum change along the column at different time) it is deduced that there was a complete retention and decontamination efficiency was 99,82%.

This value is the ratio between the filter n. 3 activity and the filters n. 1 and 2 and column total activity.

The saturation value was $45 \mu \text{gr}(\text{CH}_3\text{I})/\text{gr.}(\text{charcoal})$.

TABLE V

Test Date	Total flow rate (m ³ /h)	F 12 flow rate (l/h)	Elapsed Time (sec)	Freon 12 upstream concentration (ppm)	Freon 12 downstream concentration (ppm)	Efficiency (%)
8/10/64	102	45	30	240	1	99,6
			60	-	1,1	99,6
			90	-	2,1	-
			150	350	-	-
			180	-	3,0	99,1
			270	290	- -	-
			300	-	4,0	-

TABLE VI

Test Date	Total flow rate (m ³ /h)	F 12 flow rate (l/h)	By-pass flow rate (l/h)	Elapsed time (sec)	Leak detector current (10 ⁻⁶ A)	NOTE
6/12/67	39,5	17	33	0	2,3	Freon ON
				120	2,5	
				130	2,8	
				140	2,6	
				150	2,5	Freon OFF
				190	2,4	
				220	2,3	
				330	2,4	
				340	2,6	
8/4/70	56	30	56	0	2+3	Freon ON
				53	7,0	By-pass OFF
				72	out of F.S.Range	
				99	8,4	
				127	6,0	
				150	6,8	
				168	7,2	
				184	8,0	Freon OFF
				216	8,2	
				279	10,0	
312	out of range					

Test Date	Total flow rate (m ³ /h)	F 12 flow rate (l/h)	By-pass flow rate (l/h)	Elapsed time (sec)	Leak detector current (10 ⁻⁶ A)	NOTE
9/11/71	56	30	56	0	2,0	Freon ON
				30	2,1	
				70	3,6	
				90	2,9	
				110	2,8	
				130	2,1	
				150	2,2	
				170	2,2	
				190	2,3	Freon OFF
				210	2,2	
				250	2,9	
				12/3/73	56	28
50	1,15					
70	1,35					
90	2,70	By-pass OFF				
110	4,00					
130	4,60					
150	4,45					
170	4,35					
190	3,65					
210	2,90	Freon OFF				
230	2,65					
250	2,95					
270	3,35					

APPENDIX 2

CALIBRATION PROCEDURE FOR THE LEAK DETECTOR

(reference to the attached figure 9),

1. Open the stop valve of the pressurized air supply system and adjust the outlet pressure at 1 Kg/cm^2 .
2. Open the valve V_A and adjust air flow rate at about $28,3 \text{ l/h}$ on the rotameter.

Note: This flow rate must be maintained constant during all the operations.

3. Set instrument range on the 10×10^{-6} . Wait at least five minutes for instrument stabilization, then set leak rate meter on 1×10^{-6} .

In such a way any out-of range swing caused by background signal oscillation during the measurement can be avoided.

Note: the leak detector must be powered at least half an hour before starting the measurement for stabilization purpose.

4. Close valve V_A and connect to the Freon supply a sample bottle with 1 vpm of Freon 12 in air. Then open the valve V_S and pull out of the bottle the gas sample by means of a surge bottle (like Mariotte bottle water filled). Maintain the flow rate at about $28,3 \text{ l/h}$ by rotameter.

Note: The exact amount of Freon 12 for calibration sample preparation is taken with a Hamilton gas microsyringe.

Because of the high diffusion of Freon the afore-said operation is made away from the point of the leak detector calibration apparatus.

5. Read leak detector indicator.
6. Close Freon supply.
7. Flash the line for complete removal of residual Freon and repeat point 1 through 2.
8. Repeat point 4 with sample bottle of $0,5 \text{ vpm}$.
9. Repeat point 5.

F I G U R E S

- Fig. 1 - LATINA iodine absorption circuit.
- Fig. 2 - Charcoal laboratory test.
- Fig. 3 - Methyl iodide preparation.
- Fig. 4 - TRINO VERCELLESE iodine absorption circuit. -
First test.
- Fig. 5 - TRINO VERCELLESE iodine absorption circuit. Test
with Halogen Leak Detector.
- Fig. 6 - Freon 12 injection devise and mixer.
- Fig. 7 - Results of tests performes on activated carbon
filter of annulus ventilation system.
- Fig. 8 - Annulus ventilation system modification.
- Fig. 9 - Leak detector calibration system.

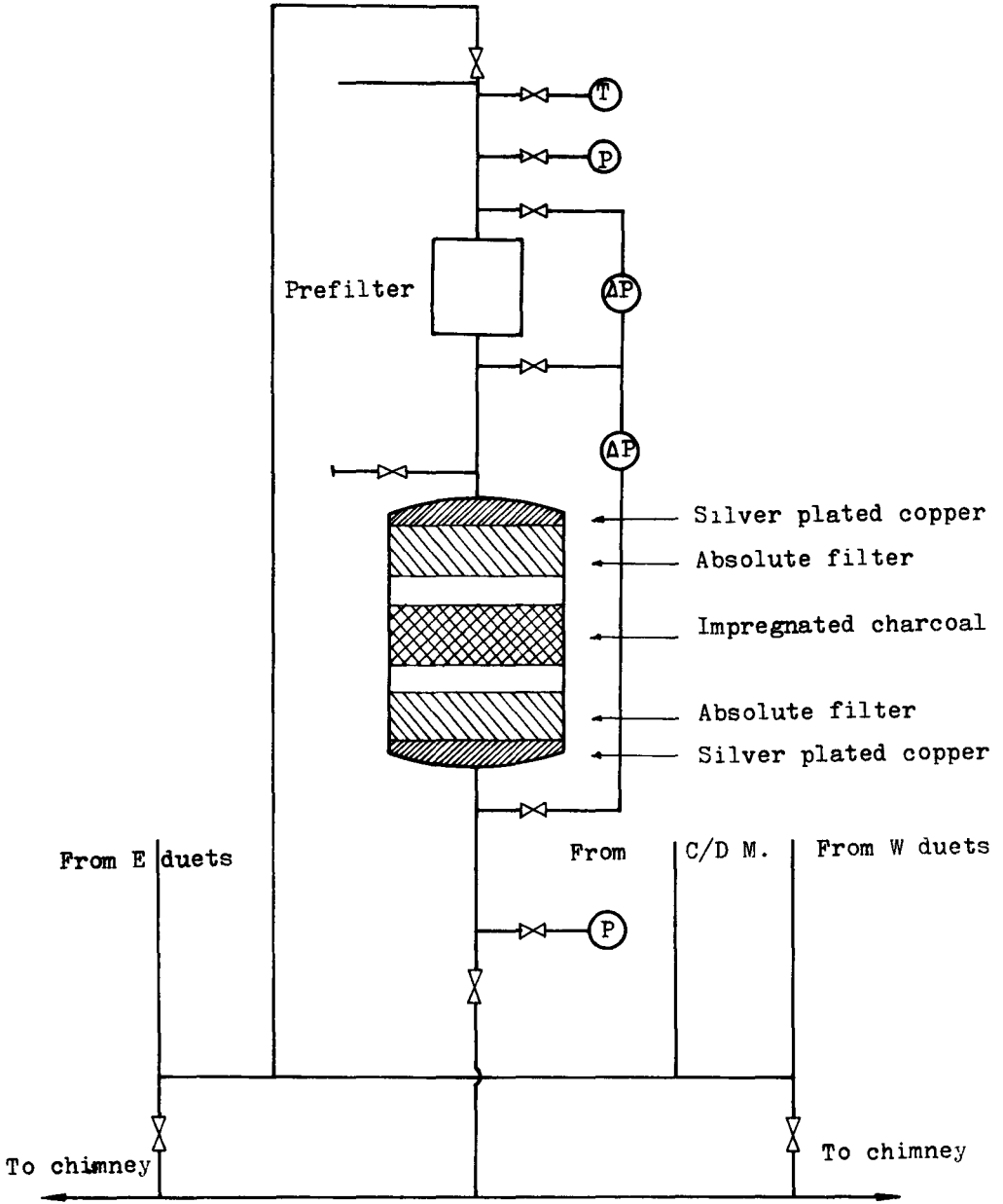


Fig. 1

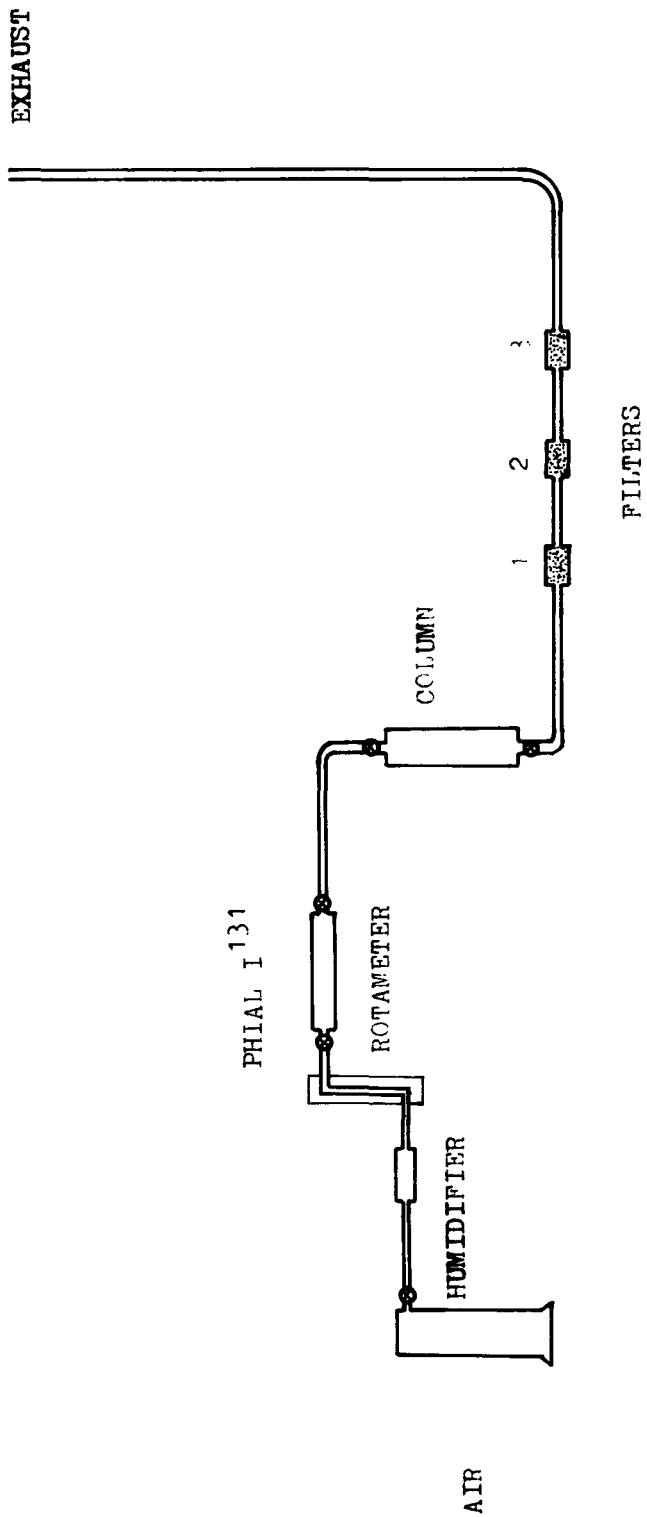


Fig. 2

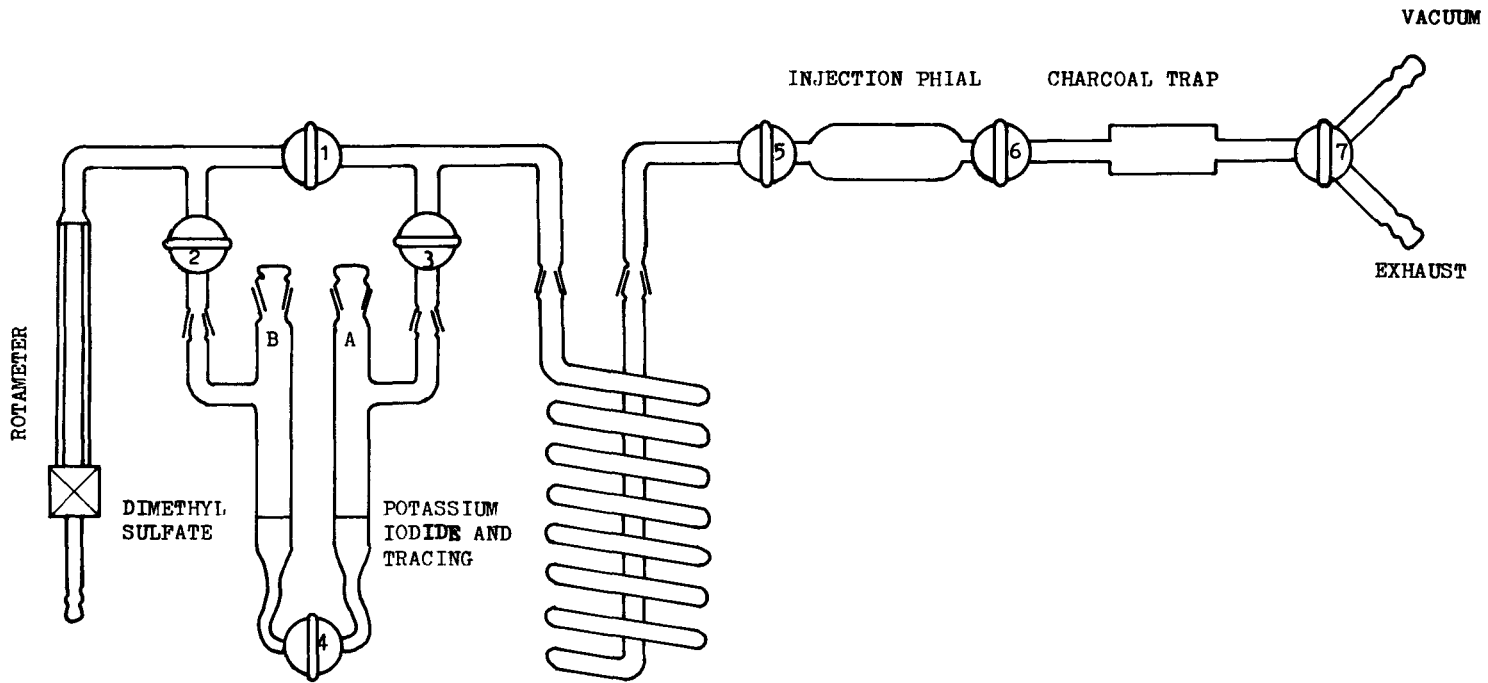


Fig. 3

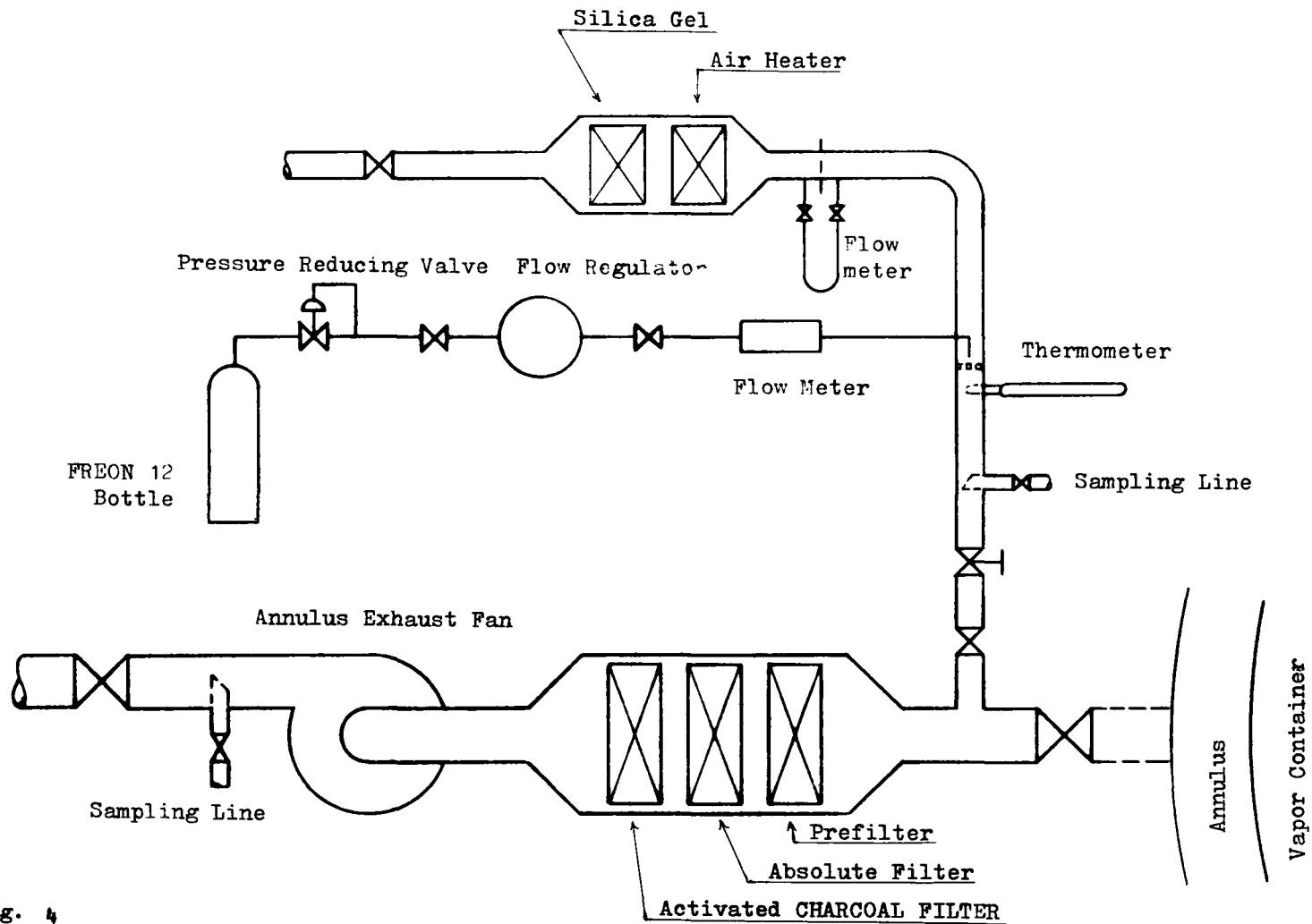


Fig. 4

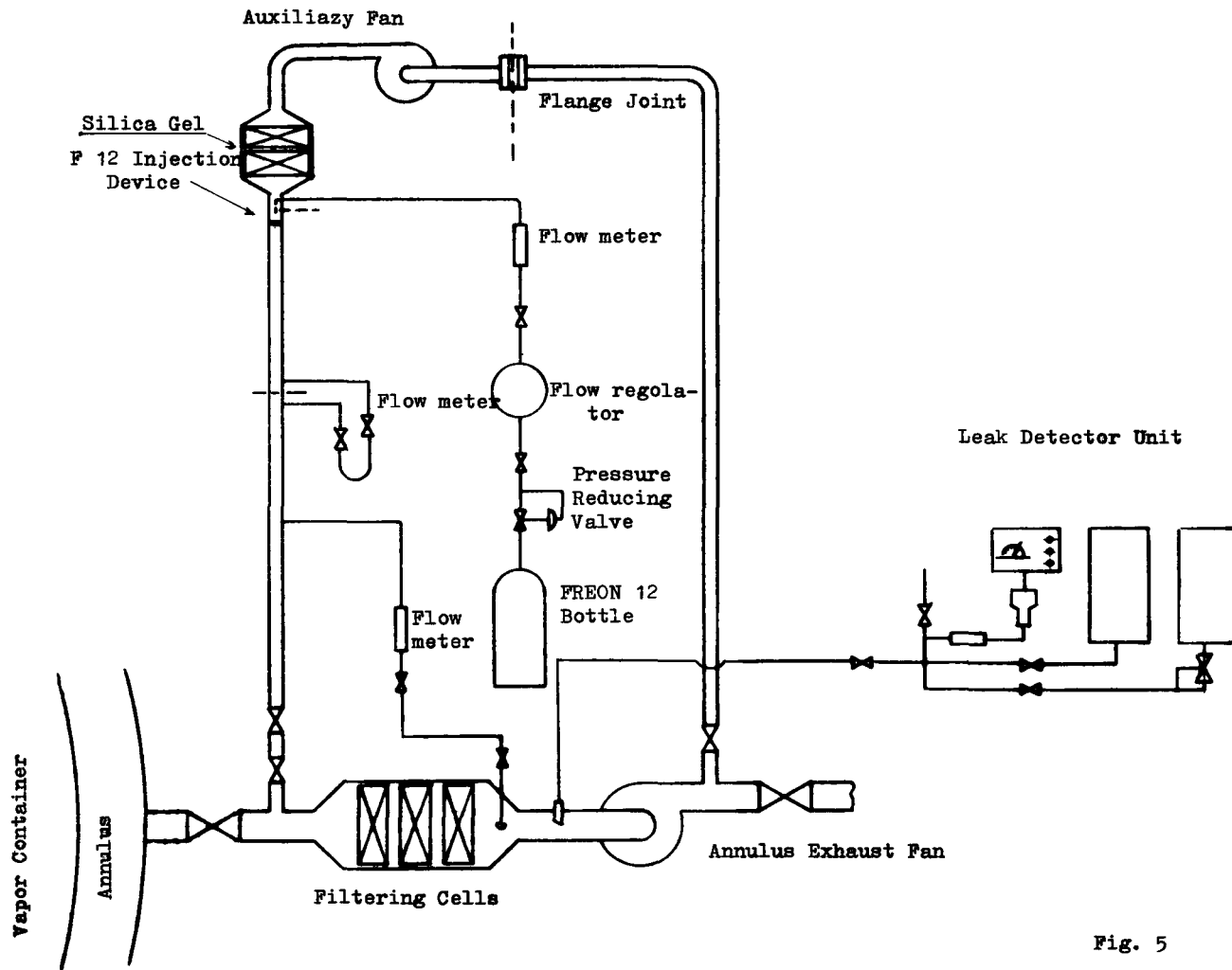


Fig. 5

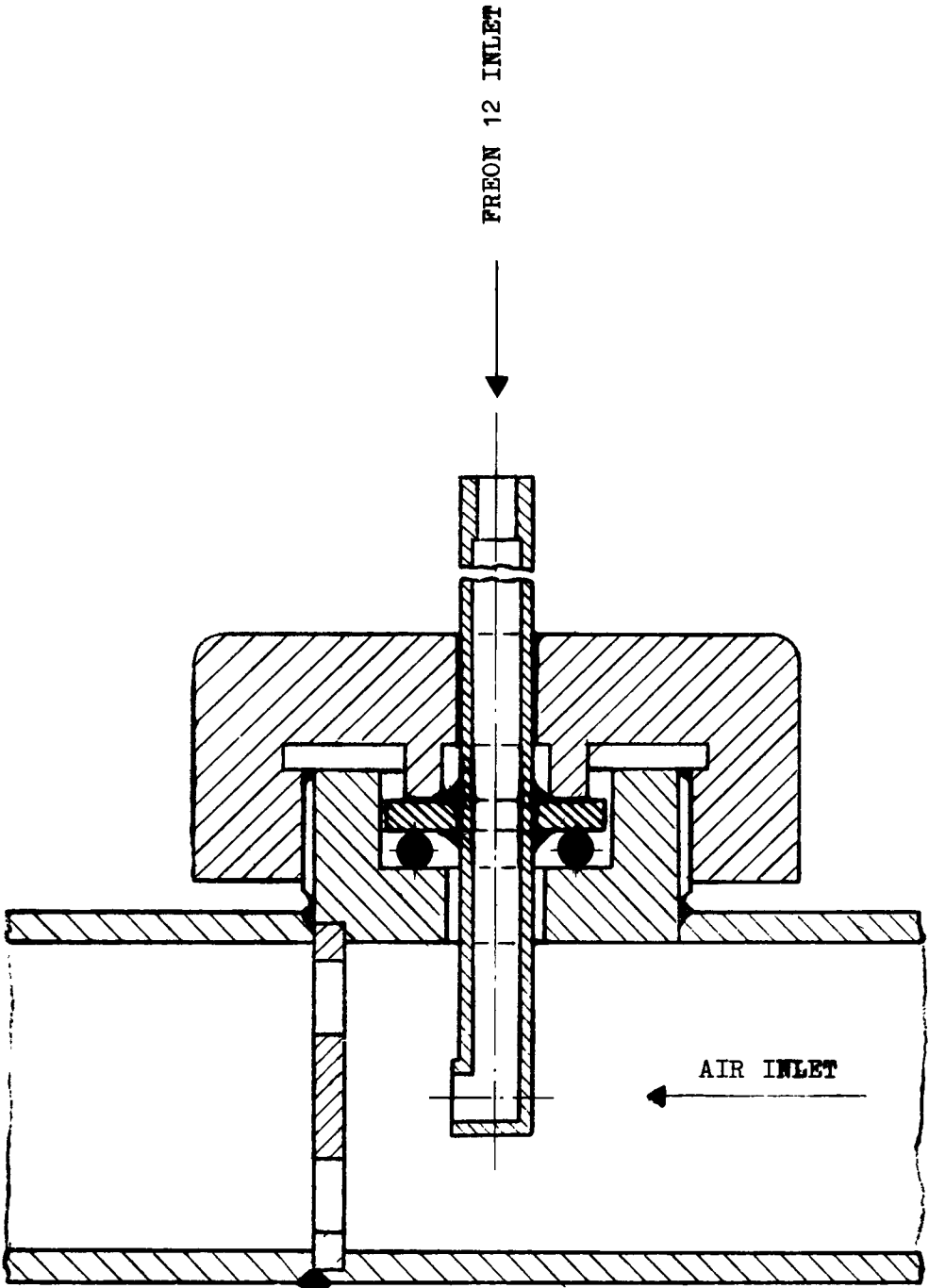
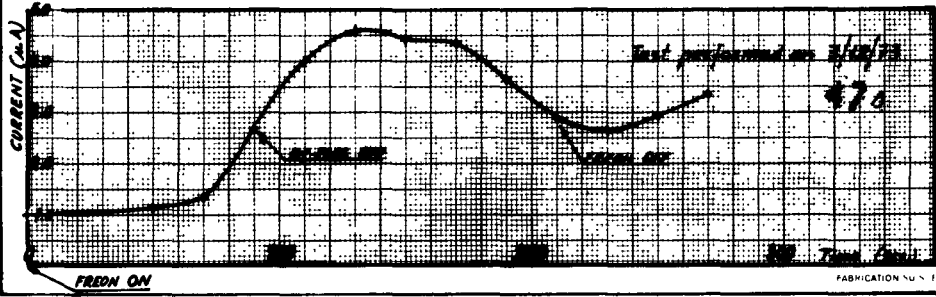
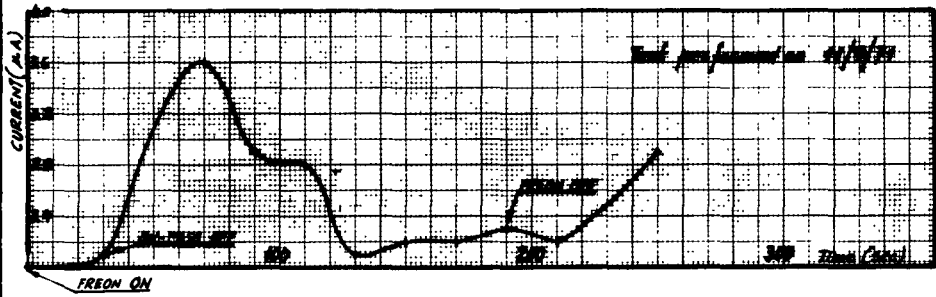
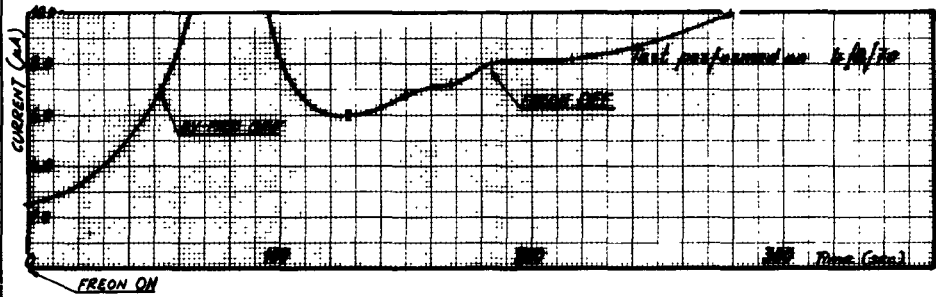
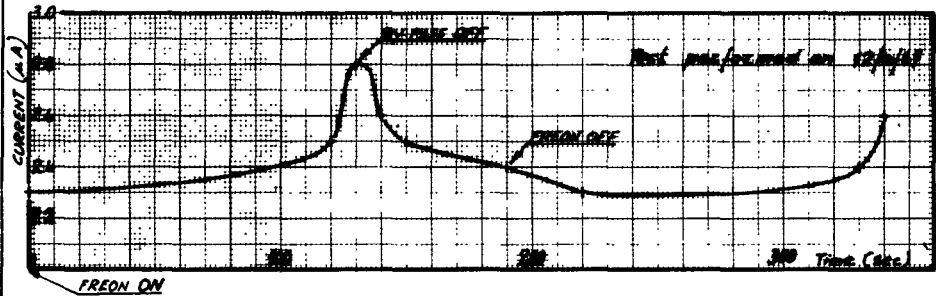


Fig. 6

RESULTS OF TESTS PERFORMED ON ACTIVATED CARBON FILTER OF ANNULUS VENTILATION SYSTEM

FIG. 7



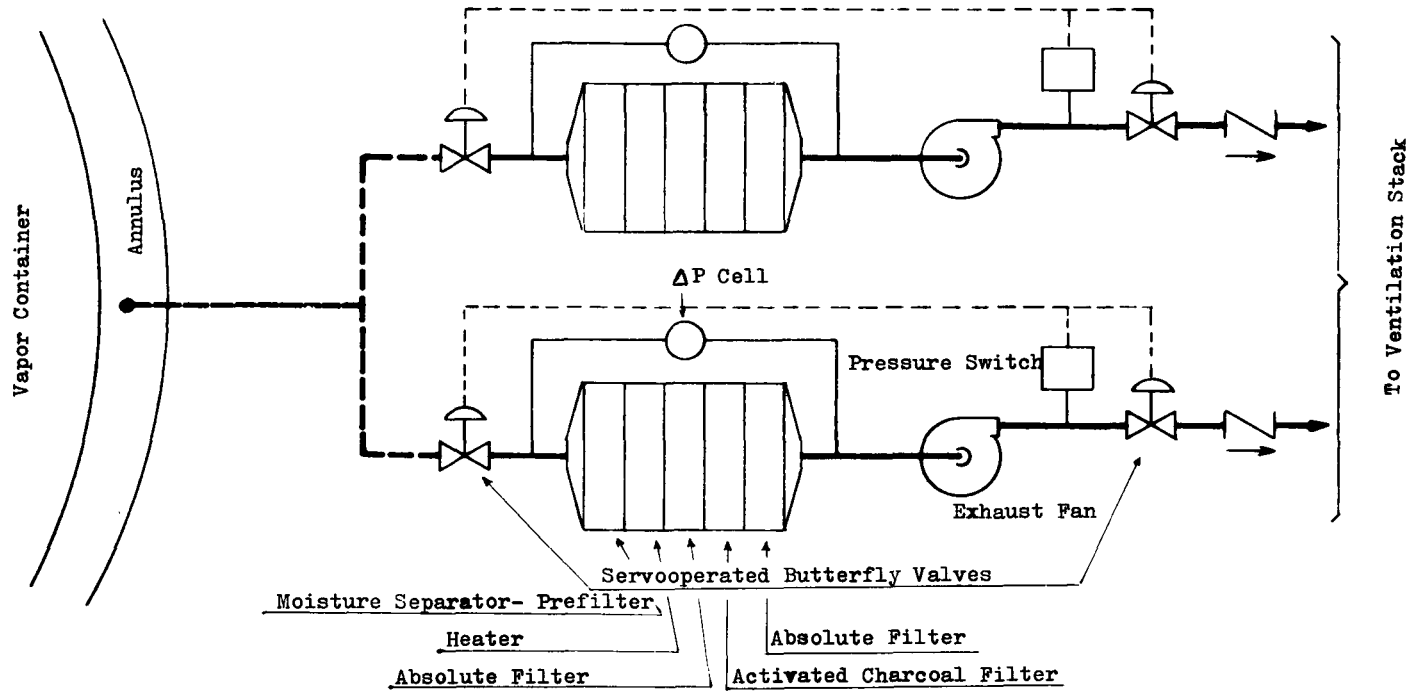


Fig. 8

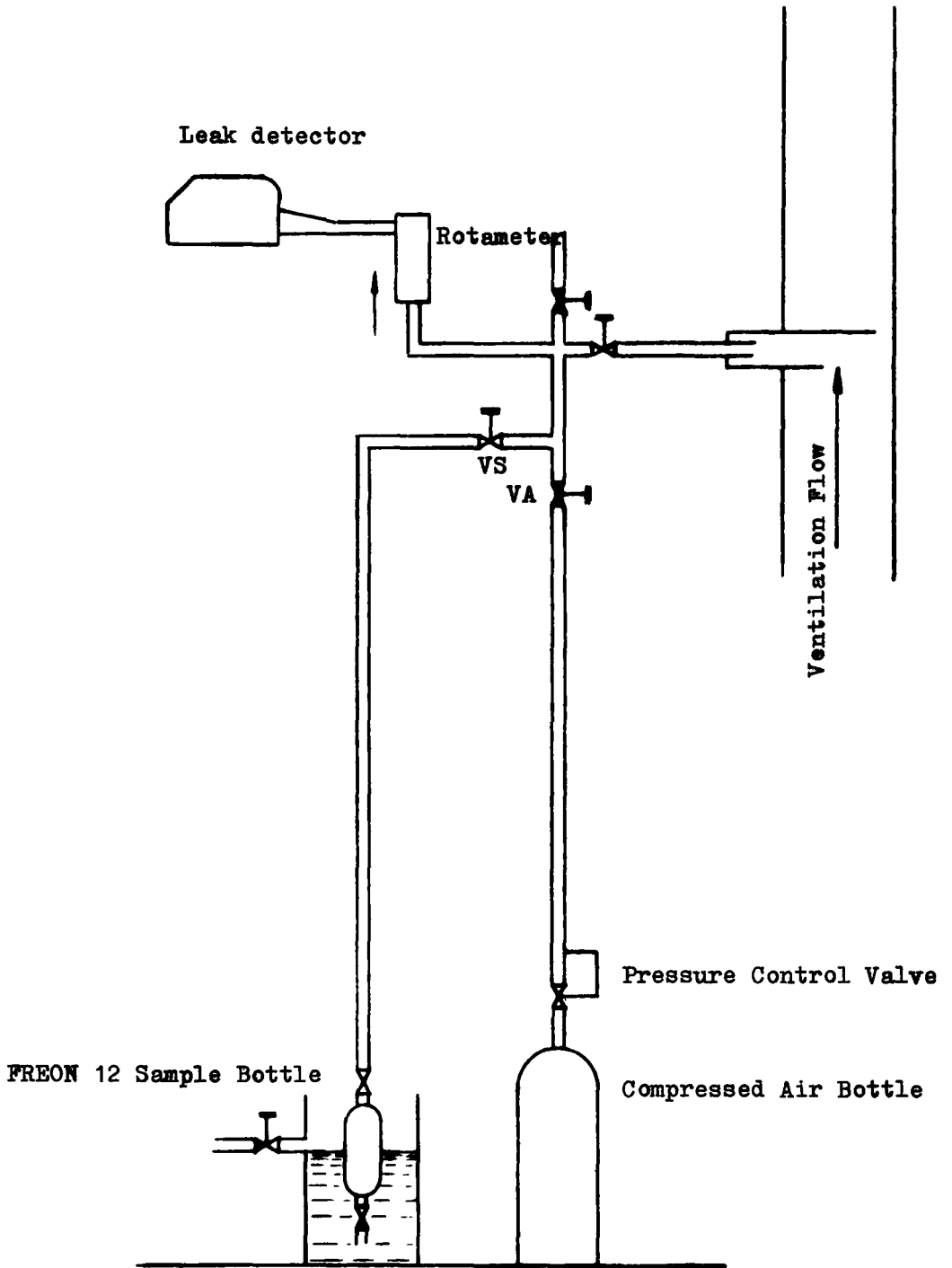


Fig. 9

ERGEBNISSE UND ERFAHRUNGEN AUS DER UNTERSUCHUNG VON JODFILTERN

J.G. Wilhelm und K. Gerlach

Gesellschaft für Kernforschung
Karlsruhe - B.R. DEUTSCHLAND

KURZFASSUNG. Es werden die Ergebnisse von Laboruntersuchungen einzelner Chargen der imprägnierten Aktivkohle unter simulierten Störfallbedingungen und von Vor-Ort-Prüfungen der Jodfilter wiedergegeben, die mit diesen Aktivkohle-Chargen ausgestattet wurden. Bei einigen Messungen zeigte sich ein erhebliches Absinken des Abscheidungsgrades als Folge von Vergiftung und Alterung der Aktivkohle. Es wurden deshalb gezielte Untersuchungen zur Standzeit der imprägnierten Aktivkohle durchgeführt, über die ebenfalls berichtet wird.

SUMMARY. RESULTS AND INFORMATION OBTAINED FROM TESTS ON IODINE FILTERS. Results are given of laboratory tests on batches of impregnated activated charcoal under simulated accident conditions, and of in-situ tests on iodine filters equipped with charges of this activated charcoal.

Some measurements showed that the rate of retention had fallen considerably due to poisoning and ageing of the activated charcoal. For this reason specific tests were carried out to determine the service life of impregnated charcoal. An account is given of these tests.

SOMMAIRE. RESULTATS ET EXPERIENCES DE L'ESSAI DE FILTRES A IODE. Les auteurs livrent les résultats d'essais en laboratoire de différentes charges de charbon actif imprégné dans des conditions simulées d'accident ainsi que des contrôles in situ des filtres à iode chargés de charbon actif.

Pour certaines mesures, on a constaté une nette diminution du degré de rétention par suite de l'empoisonnement et du vieillissement du charbon actif. On a donc procédé à des études tendant à déterminer la durée d'emploi du charbon actif imprégné sur lesquelles les auteurs font également le point.

Die Prüfmethode für das Sorptionsmaterial im Laborversuch und für die Vor-Ort-Prüfungen wurden bereits ausführlich beschrieben (1).

1. Laboruntersuchungen

Die Laboruntersuchung des Sorptionsmaterials erstreckt sich auf die Prüfung von Proben der Aktivkohle oder anderer Sorptionsmaterialien, die zur Füllung der Schüttbettfilter bzw. der Filterzellen verwendet werden. Es kommen nur Proben der tatsächlich eingesetzten Originalcharge des Sorptionsmaterials in Frage.

Bei Wiederholungsprüfungen, die mit Sorptionsmaterial aus den Kontrollfiltern durchgeführt werden, ist es entscheidend, daß das ebenfalls aus der Originalcharge stammende Sorptionsmaterial in den Kontrollfiltern während der Stand- und Betriebszeit des Jodfilters mit einem Teilstrom der Abluft von gleicher Zusammensetzung beaufschlagt wurde, wie sie in dem Hauptstrom durch das Jodfilter vorlag. Außerdem sollen die scheinbare lineare Abluftgeschwindigkeit und die Verweilzeit der Abluft im Sorptionsmaterial des Jodfilters und des Kontrollfilters übereinstimmen. Bei unseren Prüfungen stellten wir fest, daß diese Voraussetzungen nicht in jedem Fall gegeben waren. Sieht man von Konstruktionsfehlern bei den Kontrollfiltern, z. B. dem Einbau von Lochblechen zu geringer freier Oberfläche ab, so war als häufigste Fehlerquelle festzustellen, daß die Übereinstimmung der im Jodfilter und im Kontrollfilter eingesetzten Charge des Sorptionsmaterials nicht mit hinreichender Sicherheit festzustellen war. Durch entsprechende Betriebsanweisungen und eine normierte Beschriftung der Kontrollfilter sollte diese Unsicherheit zu beseitigen sein. Bei Filteranlagen, die mit Aktivkohlefilterzellen ausgerüstet sind, wurde die zusätzliche Beschaffung von Aktivkohle aus der Originalcharge, die bei der Bestellung der Filterzellen zu berücksichtigen ist, wiederholt nicht durchgeführt. Eine ordnungsgemäße Füllung der Kontrollfilter war dann von vornherein nicht möglich.

Ueblicherweise werden bei den Laboruntersuchungen zur Abscheideleistung des Sorptionsmaterials die ungünstigsten Bedingungen in Hinsicht auf relative Abluftfeuchte, Temperatur und Jodbeladung eingestellt, die bei dem Betrieb der Jodfilter erwartet werden können. Diese Bedingungen sind jedoch im Einzelfall häufig nicht mit befriedigender Genauigkeit zu definieren, so daß konservative, d. h. auf der sicheren Seite liegende Annahmen gemacht werden müssen.

Aus dem umfangreichen Datenmaterial (2, 3, 4, 5, 6) der Laborprüfungen von Aktivkohlen und anderen Sorptionsmaterialien seien an dieser Stelle nur einige Beispiele wiedergegeben, die Aussagen zur Notwendigkeit von Chargenprüfungen und zur Prüfung des Sorptionsmaterials aus den Kontrollfiltern bzw. Jodfiltern erlauben.

1.1. Chargenprüfungen

Entscheidend für die Notwendigkeit der Prüfung von Einzelchargen des Sorptionsmaterials vor dem Einsatz in Jodfiltern ist die Frage, ob verschiedene Chargen des gleichen Sorptionsmaterials vom gleichen Aktivkohlehersteller in ihrer Abscheideleistung überhaupt gegeneinander variieren und die Abweichungen größer als die Fehlerbreite der Laboruntersuchung sind. Weiter sollte bekannt sein, ob eine einmal geprüfte Einzelcharge nach entsprechender Lagerzeit unter weitgehendem Ausschluß äußerer Einwirkungen noch die ursprünglich gemessenen Werte erreicht. In Tabelle I werden dazu einige Beispiele angeführt. Die Daten wurden bei 98 - 100 % relativer Feuchte des Trägergases sowie einer Temperatur von 30 bzw. 31,2°C ermittelt, die Bett-Tiefe betrug 50 cm, die Verweilzeit 1 s entsprechend einer scheinbaren linearen Luftgeschwindigkeit von 50 cm/s. Die Beladung betrug $\leq 10 \mu\text{g CH}_2\text{J/g Kohle}$.

Tab. I: Abscheideleistung von verschiedenen Chargen KJ-imprägnierter Aktivkohlen gleichen Typs gegenüber ^{131}J
Prüfmittel: Gemisch von $\text{CH}_4^{127}\text{J}$ + $\text{CH}_4^{131}\text{J}$

Charge Nr.	Prüftermin	Abscheidegrad in %	Durchlaßgrad in %
I (frisch)	Okt. 1967	99,98	0,02
wdh.	" "	99,97	0,03
I (frisch)	(Mittelwerte)	99,975	$0,025 \pm 0,005$
II (frisch)	Juni 1970	99,82	0,18
wdh.	" "	99,87	0,13
II (frisch)	(Mittelwerte)	99,845	$0,155 \pm 0,025$
II, 14 Monate gelagert	August 1971	99,89	0,11
wdh.	" "	99,88	0,12
II, 14 Monate gelagert	(Mittelwerte)	99,885	$0,115 \pm 0,005$
II, 33 Monate gelagert	März 1973	98,99	1,01
wdh.	" "	99,25	0,75
II, 33 Monate gelagert	(Mittelwerte)	99,12	$0,88 \pm 0,13$
III (frisch)	April 1973	99,993	0,007
IV (frisch)	Juni 1973	99,996	0,004
wdh.	" "	99,988	0,012
IV (frisch)	(Mittelwerte)	99,992	$0,008 \pm 0,004$

Die Kohlenproben waren vor der Prüfung nicht zur Filterung eingesetzt worden.

Die Werte in Tab. I zeigen deutlich, daß die Abscheideleistung in Abhängigkeit von Einzelcharge und Lagerzeit schwankt. Der geforderte Abscheidegrad der Aktivkohle im Labortest von $\geq 99,9$ % unter angegebenen Bedingungen wurde relativ häufig unterschritten. Die Lagerung der imprägnierten Aktivkohle erfolgte in verschlossenen Plastiksäcken innerhalb von ebenfalls verschlossenen Blechtrommeln, so daß ein unmittelbarer Zutritt von Luft verhindert wurde. Die Veränderung des Wassergehaltes der Kohle während der Lagerung war unbedeutend. Die ungewöhnliche Erhöhung der Durchlaßgrade der Charge II bei ca. 3jähriger Lagerung läßt sich nicht nachweislich auf äußere Einwirkungen zurückführen. Der Grund für die unterschiedliche Abscheideleistung der frischen Aktivkohlechargen ist mit hoher Wahrscheinlichkeit auf eine wechselnde Imprägnierungstechnik des Aktivkohleherstellers zurückzuführen.

1.2. Prüfung von Jod-Sorptionsmaterial aus Kontrollfiltern und Versuche zur Ermittlung der zulässigen Filterbetriebszeit

Das Sorptionsmaterial in den Jodfiltern ist während des Einsatzes einer Reihe von Einflüssen ausgesetzt, die zur Verringerung der Abscheideleistung führen. Dazu gehört die Beladung mit Filterschadstoffen wie Oeldämpfen und anderen organischen und anorganischen Verbindungen, die Einspeicherung von Wasser, die Oxidation bzw. Verwitterung der Kohle und Vorgänge, die zur chemischen Umsetzung oder Vergiftung der Imprägnierung führen.

In Tab. II sind die Ergebnisse von Abscheidungsuntersuchungen an Aktivkohleproben aus Kontrollfilter wiedergegeben. Die Versuchsbedingungen für die Aktivkohle aus den Kontrollfiltern, die parallel zu Schüttbettfiltern angeordnet waren, sind gleich den Versuchsbedingungen für die in Tab. I angegebenen Chargenprüfungen. Alle im zweiten Teil der Tab. II angeführten Untersuchungen betreffen eine Jodfilteranlage, deren Sorptionsteil aus zwei hintereinandergeschalteten, mit Aktivkohlefilterzellen versehenen

Tab. II: Abscheideleistung von KJ-imprägnierter Aktivkohle aus
Kontrollfiltern gegenüber ^{131}J
Prüfmittel: Gemisch von $\text{CH}_3^{127}\text{J}$ + $\text{CH}_3^{131}\text{J}$

Art der Jod- filter	Art der Abluft	Einsatzzeit in Monaten	Abscheide- grad in %	Durchlaß- grad in %
Schüttbett	Anlagen- raumab- luft	0	99,9998 ⁺⁾	0,0002 ⁺⁾
"	"	ca. 25 (Be- triebszeit)	72,9 ⁺⁾	27,1 ⁺⁾
"	"	ca. 25 (Be- triebszeit)	72,7 ⁺⁾	27,3 ⁺⁾
"	Ring- raumab- luft	0	99,88	0,12
"	"	ca. 25 (Standzeit)	91,6	8,4
Filterzellen, Filterbank- Nr.	Art der Abluft	Einsatzzeit in Monaten	Abscheide- grad in %	Abscheide- grad gegen- über J_2 in %
I	Kon- troll- raum	0	98,8	-
I	"	6 (Betriebs- zeit)	26,0	-
I	"	0	98,1	99,99958
I	"	5 (Betriebs- zeit)	77,4	99,983
I	"	0	keine Probe	-
I	"	19	47,2	-
II	"	0	98,7	-
II	"	16	83,0	99,989
II	"	0	keine Probe	-
II	"	19	23,3 ⁺⁺⁾	-

⁺⁾ Filter mit sehr hoher Verweilzeit von 2 s.

⁺⁺⁾ Filterbankangabe von Betreiber eventuell vertauscht.

Filterbänken besteht. Die Aktivkohleproben aus den zugehörigen Kontrollfiltern mit einer Bett-Tiefe von 5 cm wurden bei 71 % relativer Luftfeuchte, 43°C und einer Verweilzeit von 0,17 bzw. 0,2 s mit 40 - 160 µg radioaktiv markiertem CH_3J pro g Aktivkohle bzw. 280 - 320 µg J_2 pro g Aktivkohle beaufschlagt. Diese Daten entsprechen den bei Störfällen erwarteten ungünstigsten Betriebsbedingungen.

Tab. II zeigt ein starkes Absinken der Abscheideleistung mit der Betriebs- bzw. Standzeit. Die gaschromatographische Untersuchung eines CCl_4 -Extraktes der Aktivkohle aus den Schüttbettfiltern ergab Lösungsmittelbeladungen in Höhe von 60 bzw. 0,3 g Lösungsmittel pro kg Aktivkohle im Anlagen- bzw. Ringraumabluftfilter. In Abb. 1 wird das Chromatogramm eines Extraktes der Aktivkohle aus einem dieser Anlagenabluftfilter und in Abb. 2 das eines handelsüblichen Lackfarbenverdünners wiedergegeben. In den Chromatogrammen besteht völlige Übereinstimmung in der Zusammensetzung der schwerflüchtigen Komponenten. Das leichtflüchtige Aethylacetat ist in der Aktivkohle nur noch in Spuren vorhanden, da es beim Abluftbetrieb ausgespült wurde (7). Die Lösungsmittelbeladung der Aktivkohlefilter wurde durch umfangreiche Anstricharbeiten im Kernkraftwerk verursacht, die verbliebene Abscheideleistung ist völlig unzureichend.

Auch bei dem im zweiten Teil der Tab. II angeführten 2stufigen Jodfilter sank der Abscheidegrad schnell ab. Dieses Filter ist kontinuierlich in Betrieb, da die Kontrollraumabluft der Reaktoranlage nur gefiltert abgegeben werden kann. Bis auf eine Ausnahme, die eventuell auf einer Verwechslung beruht, lagen die von der ersten Filterbank nach einiger Betriebszeit erzielten Abscheidegrade weit unter denen der zweiten Filterbank. Die erste Filterbank adsorbierte den größten Anteil der Filterschadstoffe, unter denen u. a. Leichtöl nachgewiesen wurde. Um das Absinken der Abscheideleistung von Jodfiltern mit der Betriebszeit besser untersuchen zu können, wurden Proben verschiedener Jod-Sorptionsmaterialien an einem zukünftigen Standort für ein

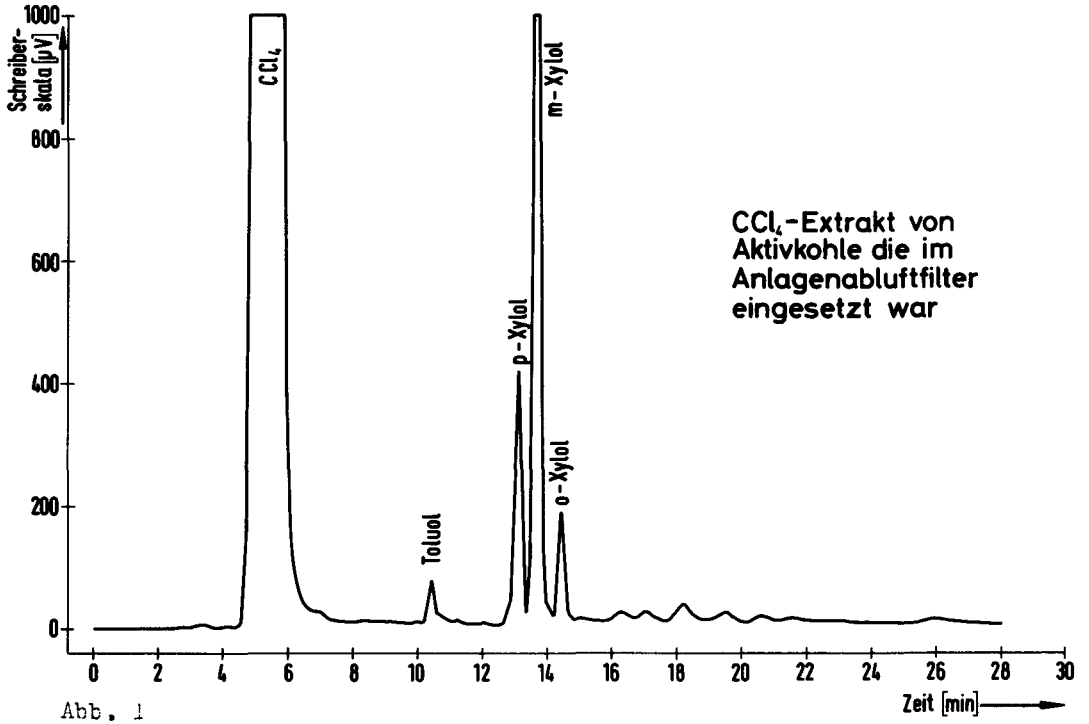


Abb. 1

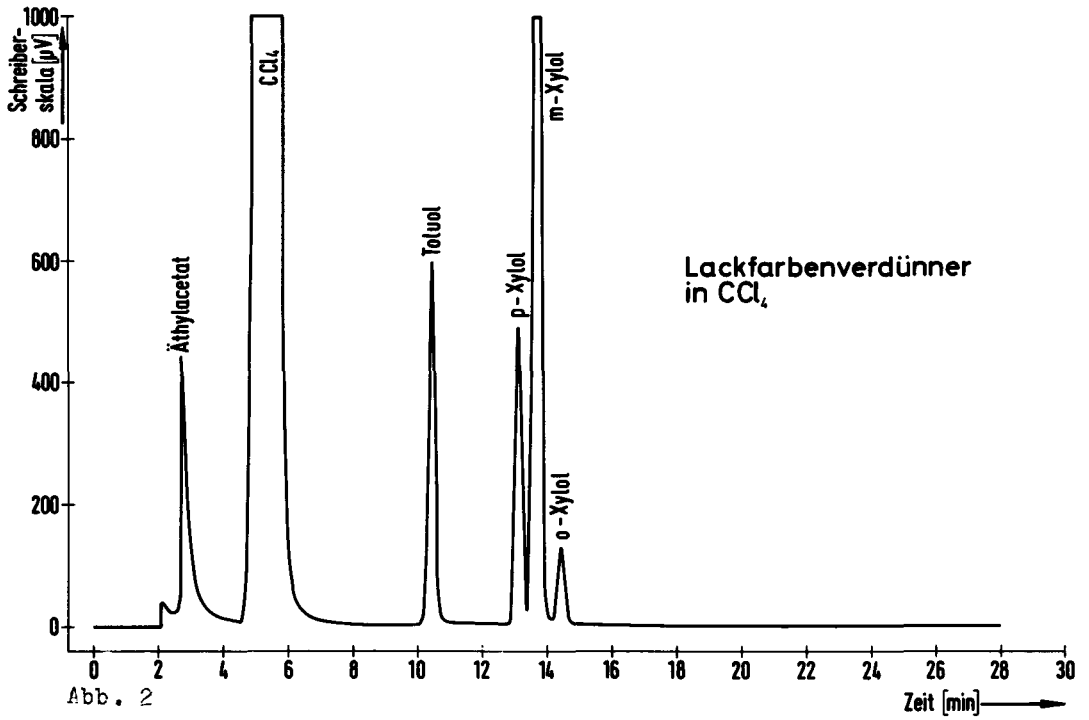


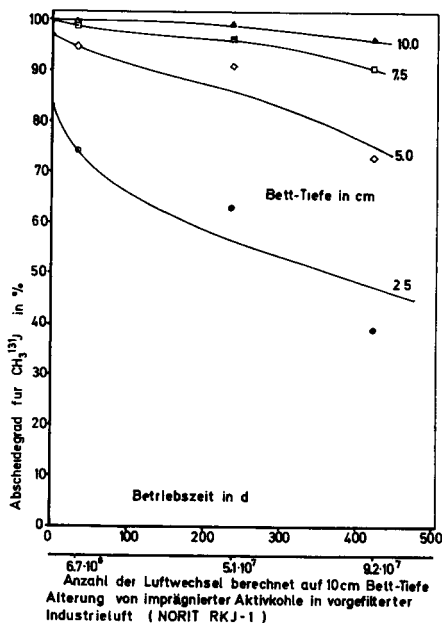
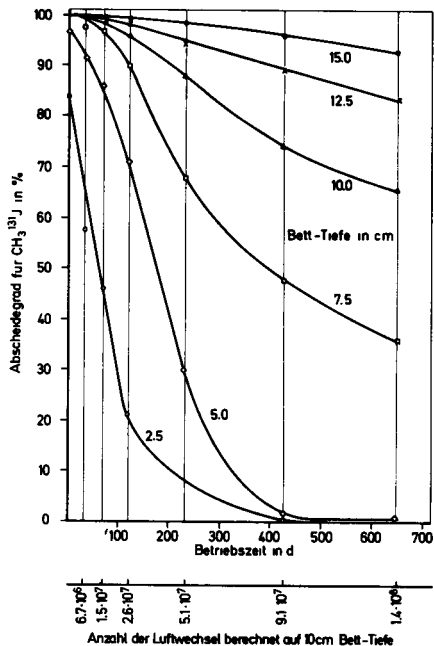
Abb. 2

Kernkraftwerk mit der dort vorhandenen Industrieluft beaufschlagt. Ein Teil der Versuchsergebnisse von nachfolgenden Abscheidungsuntersuchungen mit radioaktiv markiertem Methyljodid ist aus den Abb. 3 und 4 und der Tab. III zu entnehmen. Das Absinken des erreichbaren Abscheidegrade mit der Betriebszeit, ein Summeneffekt der vorstehend aufgeführten Einflüsse, wurde unter dem Begriff "Alterung" zusammengefaßt.

Aus den Werten in Tab. III ist deutlich zu erkennen, daß die Veränderung der Aktivkohle vorwiegend auf den ersten wenigen Zentimetern Bett-Tiefe erfolgte und nur langsam die folgenden Aktivkohlebetten erfaßte. Tiefere Aktivkohlebetten erreichten weitaus längere Standzeiten als es dem höheren Einsatz an Aktivkohle entsprach. Um ausreichende Filterbetriebszeiten zu erreichen, bieten sich prinzipiell folgende Wege an:

- Wahl von Jod-Sorptionsmaterialien mit erhöhter Alterungsbeständigkeit,
- Einbau von zusätzlichen Voradsorbern, die Schadstoffe aus der durch Jodfilter zu reinigenden Abluft entfernen oder zerstören,
- Berücksichtigung eines zur Voradsorption von Filterschadstoffen ausreichenden "Alterungszuschlages" zur Bett-Tiefe des Jodfilters.

Beim Auftreten relativ leichtflüchtiger Schadstoffe in der Abluft, z. B. von Lösungsmitteln, wird eine genügende Voradsorption häufig nicht zu erreichen sein. Die Abscheideleistung der Jodfilter kann dann, wie in Tab. II gezeigt, sehr stark absinken. Deshalb ist zu erwägen, ob eine unnötige Schadstoffbeladung der zu filternden Abluft ggf. durch gezielte Betriebsanweisungen vermieden werden kann.



Alterung von Norit RKJ -1 in Industrieluft

Abb. 4

Abb. 3

Tab. III: Abhängigkeit des Abscheidegrades einer KJ-impregnierten Aktivkohle von der Betriebszeit in Industrieluft, Aktivkohle: NORIT RKJ-I, stranggepreßt, KJ-impregnierte Aktivkohle, Stäbchendurchmesser: 1 mm. Prüfmittel: Gemisch von CH₃¹³¹J + CH₃¹²⁷J, alle Labort Prüfungen bei 100 % r. F. und 30°C

Anzahl der Luftwechsel pro Testbett	Betriebszeit in Tagen	Abscheidegrade von aufeinanderfolgenden Einzelbetten gegenüber ¹³¹ J in Form von CH ₃ ¹²⁷ J, Angaben in %					
		1. Bett	2. Bett	3. Bett	4. Bett	5. Bett	6. Bett
0	0	83,2	84,4	84,8	83,4	-	-
2,7 · 10 ⁷	30	58,4	77,9	80,4	84,3	79,2	76,2
6,0 · 10 ⁷	70	46,6	76,5	81,6	82,4	81,5	68,0
1,0 · 10 ⁸	120	20,5	62,8	66,4	69,3	69,0	72,5
2,0 · 10 ⁸	240	0,5	29,2	54,2	61,3	60,8	58,6
3,7 · 10 ⁸	424	0,3	1,4	47,3	51,2	57,2	62,8
5,6 · 10 ⁸	649	0,2	0,9	35,3	45,8	52,3	57,2
Anzahl der Luftwechsel pro 10 cm	Betriebszeit in Tagen	Abscheidegrade von Aktivkohlebetten verschiedener Bett-Tiefe gegenüber ¹³¹ J in Form von CH ₃ ¹²⁷ J, Angaben in %					
		Bett-Tiefe in cm					
		2,5	5,0	7,5	10,0	12,5	15,0
		Verweilzeit in s					
		0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6
0	0	83,2	97,4	99,60	99,93	-	-
6,7 · 10 ⁶	30	58,4	90,8	98,2	99,72	99,94	99,986
1,5 · 10 ⁷	70	46,6	87,4	97,7	99,59	99,92	99,980
2,6 · 10 ⁷	120	20,5	70,4	90,1	97,0	99,05	99,74
5,1 · 10 ⁷	240	0,5	29,6	67,7	87,5	95,11	98,0
9,1 · 10 ⁷	424	0,3	1,6	48,2	74,7	89,2	96,0
1,4 · 10 ⁸	649	0,2	1,1	36,0	65,3	83,4	92,9

2. Vor Ort-Prüfungen

Aus der großen Anzahl der einzelnen Prüfergebnisse wurden einige in den Tab. IV und V zusammengestellt. Die Daten zeigen bei Schüttbettfiltern mit wenigen Ausnahmen hohe Abscheidegrade. In einem Fall (Nr. 3) wurde ein mechanisches Leck festgestellt, das auf einen defekten Kontrollfilter zurückgeführt werden konnte und bei der vorangegangenen optischen Inspektion nicht zu erkennen war. Die Kontrollfilter wurden meistens zu Beginn der Vor Ort-Prüfungen ausgebaut, demontiert, auf einwandfreie Kohlefüllung und vorschriftsmäßigen Zusammenbau untersucht und nur dann wieder eingebaut und in die Vor Ort-Prüfung mit radioaktivem Prüfmittel einbezogen, wenn offensichtliche Fehler beseitigt werden konnten. Der größte Anteil der inspizierten Kontrollfilter zeigte mangelhafte Kohlefüllung. Einige nicht vom Hersteller der Jodfilter gelieferte Kontrollfilter waren unzureichend konstruiert. Häufig konnte der Aus- und Einbau der Kontrollfilter nur sehr umständlich durchgeführt werden und beanspruchte einen relativ großen Anteil der für die Vor Ort-Prüfung vorgesehenen Zeit. Kontrollfilter, die nicht in die Vor Ort-Prüfung einbezogen werden konnten, wurden gesondert im Laborversuch auf ihre Leckdichtigkeit geprüft, ein Verfahren, daß zu erheblicher Mehrbelastung und zu Mehrkosten führt und in Zukunft hoffentlich vermieden werden kann.

Ein Schüttbettfilter (Nr. 12 in Tab. IV) mußte zusätzlich mit radioaktiv markiertem elementarem Jod geprüft werden, da aufgrund der eingesetzten Aktivkohle die Rückhaltung des in Form von $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ beaufschlagten ^{131}J zu gering war, um ein mechanisches Leck genügend empfindlich nachweisen zu können. Die wenigen bisher durchgeführten Vor Ort-Wiederholungsprüfungen an Schüttbettfiltern zeigten im allgemeinen gute Werte. Es ist jedoch zu berücksichtigen, daß bei Nachweis eines starken Absinkens der Abscheideleistung (durch vorhergehende Laborprüfung von Aktivkohle aus den Kontrollfiltern) die Aktivkohle in den Jodfiltern unmittelbar vor der Vor Ort-Prüfung erneuert wurde.

Tab. IV: Ergebnisse von Vor Ort-Prüfungen an Aktivkohle-Schütt-
bettfiltern, Prüfmittel: Gemisch von CH₂¹²⁵J + CH₂¹³¹J

Nr.	Art der Prüfung	Verweilzeit in s	r. F. in %	Abscheidegrad in %	Bemerkungen
1	Inbetriebnahme	1	ca.55	99,9998	Filter für Störfallbetrieb
1a	Wiederholung nach 19 Monaten	1	" 50	99,994	
1b	Wiederholung nach 28 Monaten	1	" 38	99,9998	r.F. geringer als bei vorhergehender Prüfung
2	Inbetriebnahme	1	" 50	99,9996	Filter für Störfallbetrieb
2a	Wiederholung nach 26 Monaten	1	" 55	99,9997	Kohle vorher gewechselt, da η_K auf 92 % gesunken
3	Inbetriebnahme	2	" 60	99,982	Filter für Normalbetrieb, Leck im Kontrollfilter
3a	Wiederholung nach 26 Monaten	2	" 28	99,99992	Kohle vorher gewechselt, da η_K auf 73 % gesunken
4	Inbetriebnahme	2	" 60	99,9992	Filter für Normalbetrieb
4a	Wiederholung nach 26 Monaten	2	" 28	99,99995	Kohle vorher gewechselt, da η_K auf 73 % gesunken
5	Inbetriebnahme	1	" 58	99,9992	Filter für Störfallbetrieb
6	Inbetriebnahme	1	" 28	99,9992	Filter für Normalbetrieb
7	Inbetriebnahme	1	" 28	99,9993	Filter für Normalbetrieb
8	Inbetriebnahme	1	" 82	99,9999 ^{*)}	Filter für Störfallbetrieb, Füllung mit Ersatzkohle
9	Inbetriebnahme	1	ca.35	99,99997	Filter für gemischten Betrieb
10	Inbetriebnahme	1	" 35	99,99995	Filter für gemischten Betrieb
11	Inbetriebnahme	0,9	" 78	99,99997	Filter für Störfallbetrieb
11a	Wiederholung nach 28 Monaten	0,9	≥ 100	93,3	Kondensateinspeicherung
12	Inbetriebnahme	0,4	" 48	98,4	Filter für gemischten Betrieb, Auslegung zu knapp für CH ₂ J-Prüfung
12a	Inbetriebnahme	0,4	" 28	99,93	Prüfung mit J ₂

^{*)} Originalkohle vor Prüfung 33 Monate gelagert, Laborprüfung zeigte verminderten Abscheidegrad, deshalb frische Aktivkohle eingefüllt.

η_K = Abscheidegrad Kontrollfilter

Tab. V: Ergebnisse von Vor Ort-Prüfungen an Jodfiltern mit Aktivkohlefilterzellen. Prüfmittel:
Gemisch von $\text{CH}_3^{127}\text{J}$ + $\text{CH}_3^{131}\text{J}$

Nr.	Art der Prüfung	Verweilzeit in s	r. F. in %	Abscheidegrad η in %	Bemerkungen
1	Inbetriebnahme	0,6	ca. 30	98,5	Filter für Störfallbetrieb, defekte Dichtung
1a	"	0,6	" 41	99,96	Lecks vorher beseitigt, Prüfung nach Reparatur
2	"	0,6	" 40	99,97	Filter für Normalbetrieb
3	"	0,6	" 41	99,96	" " "
4	"	0,4	" 28	99,924	" " "
Nr. 5 - 10 Filter für gemischten Betrieb (Normal- u. Störfallbetrieb)					
5	"	0,2	" 60	(I) 99,96) Beide Filterbänke neu, grobe) Lecks bei Inspektion besei-) tigt
5	"	0,2	" 60	(II) $\geq 99,4^+$	
5	"	0,4	" 60	(I+II) $\geq 99,9997^+)$	
6	Wiederholung	0,2	" 20	(I) 55,7) Beide Filterbänke 4 Monate alt
6	"	0,2	" 20	(II) 99,9	
6	"	0,4	" 20	(I+II) 99,96	
7	"	0,2	" 50	(I) 99,92) Filterbank I vor Prüfung er- neuert, kein Leck, Filter- bank II 10 Monate alt
7	"	0,2	" 50	(II) 92,4	
7	"	0,4	" 50	(I+II) 99,994	
8	"	0,2	" 65	(I) 75,9) Filterbank I 10 Monate alt
8	"	0,2	" 65	(II) 94,8	
8	"	0,4	" 65	(I+II) 98,6	
9	"	0,2	" 35	(I) 99,8) Filterbank I und II vor Prüfung erneuert, kleine Lecks vorhanden
9	"	0,2	" 35	(II) 99,3	
9	"	0,4	" 35	(I+II) 99,999	
10	"	0,2	" 36	(I) 99,1) Filterbank I und II vor Prüfung erneuert, kleine Lecks vorhanden
10	"	0,2	" 36	(II) 98,8	
10	"	0,4	" 36	(I+II) 99,99	

+) Aktivität der Probensammler nach der zweiten Filterbank nahe 0-Effekt.

An Filteranlagen, die mit Aktivkohlefilterzellen ausgerüstet sind, wurde in einigen Fällen bereits vor der Beaufschlagung mit Prüfmittel durch Ableuchten der Filtersitze mit einer Quarz-Jodidlampe festgestellt, daß größere mechan. Lecks zwischen der Dichtfläche des Filtergehäuses und der Filterzelle auftraten. Kleine Lecks in Filterbänken wurden wiederholt festgestellt, jedoch toleriert, wenn ein annehmbarer Gesamtabscheidegrad erreicht wurde. Weiter zeigte sich bei Prüfungen, die in der Tab.IV nicht aufgeführt wurden, daß die Anpreßvorrichtungen der Filtergehäuse zu schwach waren, um einen einwandfreien Dichtsitz der relativ schweren Aktivkohlefilterzellen sicherzustellen. Durch Besichtigung und nachfolgenden Tuschiertest konnte nachgewiesen werden, daß die Aktivkohlefilterzellen nicht gleichmäßig auf die Dichtsitze gepreßt wurden und dadurch mechanische Lecks auftraten. Alle Fehler, die bereits bei der Inspektion zu erkennen waren, die jeweils der Beaufschlagung mit Prüfmittel vorausgeht, wurden selbstverständlich vor Durchführung der Prüfung mit radioaktivem Prüfmittel beseitigt und beeinflussten daher die in den Tabellen aufgeführten Abscheidegrade nicht mehr. In einem Extremfall wurde festgestellt, daß die Aktivkohlefilterzellen eines Störfallfilters vollständig fehlten, obwohl die Reaktoranlage bereits längere Zeit in Betrieb war.

Bei Vor Ort-Wiederholungsprüfungen von Anlagen, die mit Aktivkohlefilterzellen ausgestattet sind und dauernd mit Abluft beaufschlagt werden, konnte das starke Absinken des Abscheidegrades bereits durch die Vor Ort-Prüfung nachgewiesen werden, obwohl die Prüfbedingungen (geringe relative Luftfeuchte) die Abscheidung des Prüfmittels begünstigte (Tab. V). Auch konnten während der Vor Ort-Prüfungen Taupunktunterschreitungen erkannt werden.

Zusammenfassung

Die Laborprüfungen der frischen imprägnierten Aktivkohle bei hohen relativen Luftfeuchten ergaben für verschiedene Chargen des gleichen Aktivkohletyps vom gleichen Hersteller Schwankungen des Durchlaßgrades um fast eine Größenordnung. Bei mehrjähriger Lager-

zeit unter weitgehendem Luftabschluß wurde in einem Fall eine Erhöhung des Durchlaßgrades von unbenutzter Aktivkohle um nahezu den 6fachen Wert festgestellt. Die Aktivkohle in den Original- und Kontrollfiltern zeigte im Verlauf von mehreren Monaten Filterbetrieb ein starkes Absinken des Abscheidegrades. In einigen Fällen konnten Schadstoffbeladungen durch Lösungsmittel, Leichtöl und Wasserdampfkondensat nachgewiesen werden. Versuche zeigten, daß durch einen Zuschlag zur Bett-Tiefe der Aktivkohle bzw. den Einbau von Vorfiltern das Absinken des Abscheidegrades mit der Betriebsdauer wesentlich verringert werden kann, falls das Abscheidungsverhalten der Filterschadstoffe eine ausreichende Voradsorption erlaubt.

Bei Inbetriebnahmeprüfungen von Schüttbettfiltern wurden mechanische Lecks bisher nur in den Kontrollfiltern nachgewiesen, die unsachgemäß konstruiert bzw. gefüllt worden waren. Da die geprüften Schüttbettfilter bis auf eine Ausnahme nur von einem einzigen Hersteller stammten, sollte diese Aussage jedoch nicht überbewertet werden. An Jodfilteranlagen, die mit Aktivkohlefilterzellen (Filterelementen) ausgerüstet waren, traten mechanische Lecks durch ungeeignete Anpreßvorrichtungen bzw. mangelnden Dichtsitz wiederholt auf. Die Auslegung der Anpreßvorrichtungen von Filtergehäusen erwies sich in einigen Fällen als zu schwach, Verkanten der Aktivkohlefilterzellen wurde beobachtet. Taupunktunterschreitung in der zu filternden Abluft wurde bei Vor Ort-Prüfungen wiederholt festgestellt. Durch Vor Ort-Wiederholungsprüfungen mit radioaktiv markiertem Methyljodid konnte ein Absinken der Abscheideleistung der Aktivkohle unmittelbar erkannt werden.

Generell kann ausgesagt werden, daß Jodfilteranlagen mit Schüttbettfiltern wegen der einfachen Konstruktion, des Fehlens von Anpreßvorrichtungen und von langen Dichtwegen zwischen der Roh- und Reinluftseite der Filter und der meist vorhandenen, mit geringem Aufwand zu erreichenden großen Bett-Tiefen bei der Vor Ort-Prüfung bessere Resultate erbrachten als Anlagen, die mit Aktivkohlefilterzellen ausgerüstet sind.

Die Durchführung von Inbetriebnahme- und Wiederholungsprüfungen der Abscheideleistung von Jodfiltern erscheint zumindestens dann unumgänglich, wenn die Filter während und nach Störfällen eine sichere Abscheidung von Spaltjod gewährleisten müssen. Durch Laboruntersuchung von Proben der Aktivkohle aus den Kontrollfiltern kann die notwendige Prüffrequenz der Vor Ort-Prüfung niedrig gehalten werden, falls die Leckanfälligkeit der Jodfilter entsprechend gering ist. Bei geeignet konstruierten Schüttbettfiltern ist dies nach Meinung des Verfassers zu erwarten.

In Hinsicht auf eine mögliche Schadstoffbeladung und andere Einflüsse, die zum Absinken der Abscheideleistung führen können, sollten Jodfilter, die während und nach Störfällen zur Reinigung der Abluft eines Kernkraftwerkes eingesetzt werden müssen, nicht bei Normalbetrieb benutzt werden. Eine Trennung von Jodfilteranlagen für Normalbetrieb und Störfallbetrieb ist daher zu fordern. Die vorstehend behandelten Untersuchungen wurden ausschließlich an Jodfiltern in neueren Reaktorstationen durchgeführt. Auf die Unsicherheit, die in Hinsicht auf die Betriebssicherheit älterer Jodfilteranlagen besteht, sei hingewiesen.

Literaturverzeichnis

- (1) J.G. WILHELM, H.G. DILLMANN und K. GERLACH, Prüfung von Jodfilteranlagen, Seminarbericht "Jodfilter und ihre Prüfung", Karlsruhe 4 - 6 Dezember 1973.
- (2) J.G. WILHELM, Arbeitsbericht der Jodfiltergruppe für das Jahr 1968, Auszug aus: Externer Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe 20/69-2, S. 56 - 73.
- (3) H. SCHUETTELKOPF, J.G. WILHELM, Jodfilterprogramm, Auszug aus den Jahresberichten 1969 und 1970 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, KFK 1158, S. 85-99, KFK 1365, S. 105-136.
- (4) J.G. WILHELM, Adsorbermaterialien zur Abscheidung von Spaltjod aus den Abgasen kerntechnischer Einrichtungen, Tagungsbericht der Reaktortagung 1970, S. 339 - 342.

- (5) J.G. WILHELM, H.G. DILLMANN, K. GERLACH und H. SCHUETTELKOPF, Jodfilterprogramm, Auszug aus dem Jahresbericht 1971 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, KFK 1565, S. 175-207.
- (6) J.G. WILHELM, H.G. DILLMANN, J. FURRER und K. GERLACH, Filterprogramm, Auszug aus dem Jahresbericht 1972 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, KFK 1818, S. 93 - 120.
- (7) J. FURRER, R. KAEMPFER, J.G. WILHELM, Poisoning Effects on Iodine Filters in Nuclear Power Plants (to be published).

ERFAHRUNGEN MIT JODFILTERN BEI DER HERSTELLUNG
JODMARKIERTER VERBINDUNGEN IM CURIE-MASSSTAB

G. Schulze-Pillot

Farbwerke Hoechst AG
Frankfurt/M.-Höchst - B.R. DEUTSCHLAND

KURZFASSUNG. Bei der Herstellung jodmarkierter Verbindungen wird Jod in Form von elementarem Jod, Jodid und organischen Verbindungen freigesetzt. Die Aktivitätskonzentration der verarbeiteten Lösungen liegt in der Grösse von Ci/ml, die freigesetzten Aktivitätsmengen betragen bis zu 100 mCi. Die Freisetzung kann stossartig oder in Zeiten bis zu etwa 1 Stunde erfolgen.

Die Arbeiten werden in Boxen ausgeführt, deren Abluft zweistufig über Jodaktivkohlefilter gereinigt wird. Der Dekontaminationsfaktor der zweistufigen Filterung liegt unter Betriebsbedingungen über eine Zeit von 24 Stunden gemessen bei 10^4 bis 10^5 . Dieser Wert ist niedriger als nach den Angaben über den Rückhaltegrad der einzelnen Filterstufen zu erwarten ist. Es wurden daher Messungen über den Rückhaltegrad als Funktion der Zeit nach Freisetzung der Aktivität ausgeführt.

SUMMARY. EXPERIENCE WITH IODINE FILTERS IN THE PRODUCTION OF IODINE TAGGED COMPOUNDS ON THE CURIE SCALE. During the production of iodine tagged compounds, iodine is released in the form of pure iodine, iodide and organic compounds. The order of activity concentration in the treated solutions used is Ci/ml and the amount of radio-active material released can be as high as 100 mCi. This may all be released instantaneously or over periods of up to one hour.

The work is carried out in cells from which the exhaust air passes over activated charcoal iodine filters at two levels. Under operating conditions the decontamination factor of the two-level filtering measured over a period of 24 hours lies between 10^4 and 10^5 . This figure is lower than expected from the retention efficiency of each individual filter. The retention efficiency as a function of the time after release of the radioactive substance was therefore also measured.

RESUME. EXPERIENCE DES FILTRES A IODE UTILISES LORS DE LA PRODUCTION DE COMPOSES MARQUES A L'IODE EN QUANTITES DE L'ORDRE DU CURIE. Au cours de la production de composés marqués à l'iode, il se dégage de l'iode sous forme élémentaire, d'iodure et de composés organiques. La concentration d'activité des solutions traitées est de l'ordre du Ci/ml, les quantités d'activité libérées atteignant 100 mCi. Le dégagement peut se produire par bouffées ou durer jusqu'à 1 heure environ.

Les travaux sont effectués en cellules dont l'air extrait est épuré à deux niveaux par filtration d'iode sur charbon actif. Le facteur de décontamination résultant de cette filtration à deux niveaux, mesuré sur 24 heures dans des conditions de service, va de 10^4 à 10^5 . Cette valeur est inférieure à celle que l'on pourrait prévoir d'après la valeur du facteur de rétention de chacun des niveaux de filtration. Aussi a-t-il été procédé à des mesures de l'évolution dans le temps du facteur de rétention après un dégagement d'activité.

1. Boxen, Filterung und Abluftführung

Im Radiochemischen Laboratorium der Farbwerke Hoechst werden im Rahmen der Produktion von Radiopharmaka jodmarkierte Verbindungen hergestellt. Bei diesen Arbeiten kann Jod in Form von elementarem Jod oder Jodid und als organische Verbindung freigesetzt werden. Die Aktivitätskonzentration der verarbeiteten Lösungen beträgt bis zu Ci/ml. Bei den radiochemischen Arbeiten können Aktivitätsmengen bis zu etwa 100 mCi freigesetzt werden. Die Freisetzung kann stoßartig erfolgen oder sich über Zeiten von Stunden erstrecken.

Die Arbeiten werden in Boxen ausgeführt, deren Abluft zweistufig über imprägnierte Aktivkohlefilter gereinigt wird (Bild 1). In der ersten Stufe ist an jeder Box ein CEAG-Filter CG 2, R 0,75 eingesetzt (Kohle-

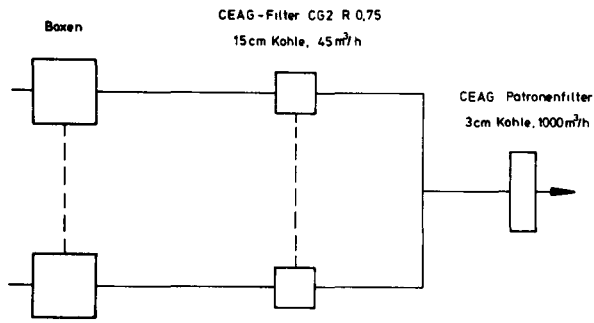


Bild 1 Abluftführung

schicht 15 cm, Luftstrom $45 \text{ m}^3/\text{h}$). In der zweiten Filterstufe wird die Abluft aus den Primärfiltern zusammengeführt und über ein CEAG-Patronenfilter geleitet (Kohleschicht 3 cm, Luftstrom $1.000 \text{ m}^3/\text{h}$).

Die Boxenabluft wird anschließend in den Sammelkamin des Gebäudes geleitet, der $40.000 \text{ m}^3/\text{h}$ Digestorien- und Raumabluft führt. Mit dieser Luftmenge dürfen $8 \text{ } \mu\text{Ci } ^{131}\text{J}$ pro Stunde abgegeben werden, wenn man die maximal zulässige Konzentration bei Abgabe aus dem Kontrollbereich zu Grunde legt und voraussetzt, daß nur ^{131}J in der Abluft vorhanden ist.

Aus dem Verhältnis von maximal 100 mCi in den Boxen freigesetzter ^{131}J -Aktivität zu $8 \text{ } \mu\text{Ci}$ maximal zulässiger Abgabeaktivität ergibt sich ein erforderlicher Dekontaminationsfaktor von mindestens 10^4 .

2. Abluftaktivität und Rückhaltegrad der Filter

2.1 Meßanordnung

Bei der Kontrolle der Abluft auf Radiojod verwenden wir Aktivkohlefilterpatronen zur diskontinuierlichen Messung und eine Szintillationssonde mit Aktivkohlepapierfilter zur kontinuierlichen Überwachung. Beide Filter werden täglich gewechselt.

Den Rückhaltegrad der Abluft-Jodfilter messen wir mit Aktivkohlepapierfiltern (Bild 2). Die Filterblättchen sind dabei in Probenhalter eingesetzt,

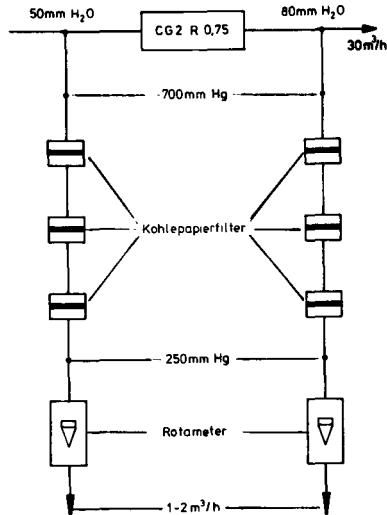


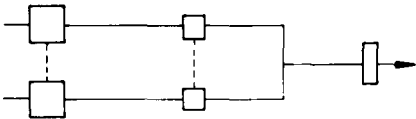
Bild 2 Messung des Rückhaltegrades

die beiderseitig mit Schlauchanschlüssen versehen sind. Die durchströmende Luftmenge wird mit Rotametern kontrolliert. Auf diese Weise wird die Aktivitätskonzentration an beiden Seiten des Filters zur Bestimmung des Rückhaltegrades gemessen. Der Druckabfall am Filterblättchen beträgt etwa 150 mm Hg, der Luftstrom liegt bei 1 bis 2 m³/h. Es werden jeweils mehrere Probenhalter hintereinander gesetzt, um den Abscheidegrad der Filterblättchen für die am Meßort vorliegende Zusammensetzung der Abluft zu bestimmen.

In einem Zeitraum von 22 Stunden wurde der Rückhaltegrad in Intervallen von 2 bis 3 Stunden während des Tages und von 11 Stunden während der Nacht gemessen.

2.2 Meßergebnisse

Die Standzeit der untersuchten Filter ist in allen Fällen kleiner als 1 Jahr. Die Dekontaminationsfaktoren der Boxenfilter liegen zwischen 10⁵ und 10² (Bild 3).



Zeit	Boxen		Filter CG2 15cm Kohle, 45m ³ /h		Patronenfilter 3cm Kohle 1000m ³ /h	
	¹³¹ I-Abgabe		Dekontaminations-Faktoren			
	mCi	mCi/h	Boxtyp			
	A	B				
10 ⁰⁰ - 12 ⁰⁰	4	2	10 ⁵	10 ³	< 10	
12 ⁰⁰ - 14 ⁰⁰	2	1	10 ³	10 ²	< 10	
14 ⁰⁰ - 17 ⁰⁰	3	1	10 ⁴	10 ³	< 10	
17 ⁰⁰ - 21 ⁰⁰	3	1	10 ⁵	10 ³	< 10	
21 ⁰⁰ - 8 ⁰⁰	11	1	10 ⁵	10 ³	< 10	
	23mCi		10 ⁴	10 ³	< 10	

Bild 3 Dekontaminationsfaktoren

In der Tabelle ist unterschieden zwischen Boxtyp A und B. Der Unterschied bezieht sich auf den Arbeitsvorgang und die dabei freigesetzten Aktivitätsmengen. In beiden Boxtypen wird Jod elementar, als Jodid und in organischen Verbindungen frei. Im Typ A werden mCi/h freigesetzt, im Typ B nur $\mu\text{Ci/h}$. Die Aktivitäten in der zweiten Spalte geben die insgesamt in den Boxen freigesetzten Mengen in abgerundeten Werten an.

Die Dekontaminationsfaktoren der CG 2-Filter für die Abluft aus den Boxen Typ B sind um den Faktor 100 niedriger als für die Abluft aus Typ A. Es ist nicht damit zu rechnen, daß der Anteil organisch gebundenen Jods in der Abluft aus Typ B größer ist, da der Abscheidegrad in den Kohlepapierfiltern für A und B keinen signifikanten Unterschied zeigt. Der einzige erkennbare Unterschied liegt in der Jodkonzentration. Sie beträgt für die Abluft aus Typ A $10^{-5} \mu\text{Ci/cm}^3$ ($10^{-4} \mu\text{g/m}^3$) und bei Typ B $10^{-8} \mu\text{Ci/cm}^3$ ($10^{-7} \mu\text{g/m}^3$). Der starke Unterschied im Dekontaminationsgrad läßt sich nur dadurch erklären, daß der Dekontaminationsfaktor im Bereich geringer Jod-Konzentrationen mit der angebotenen Konzentration abnimmt.

Der zeitliche Verlauf der Dekontaminationsfaktoren zeigt nach der Zeit stärkster Einspeisung der Aktivität (10^{00} - 12^{00}) ein Absinken zwischen 12^{00} und 14^{00} bei Typ A von 10^5 auf 10^3 und bei Typ B von 10^3 auf 10^2 und danach wieder einen Anstieg auf die Anfangswerte. Dieser Verlauf läßt darauf schließen, daß innerhalb des ersten Zeitintervalls in relativ kurzer Zeit ein starker Aktivitätsstoß auf das Filter gekommen ist, der im zweiten Zeitintervall teilweise desorbiert wird. Daraus ergibt sich für dieses Zeitintervall insgesamt ein geringerer Dekontaminationsfaktor. Über 22 Stunden liegt der Dekontaminationsfaktor im Mittel bei 10^4 für Typ A und bei 10^3 für Typ B.

Das Patronenfilter zeigt für die in den Filtern CG 2 vorgefilterte Luft nur einen Dekontaminationsfaktor kleiner als 10. Auch hier läßt der Abscheidegrad in den Kohlepapierfiltern nicht darauf schließen, daß die dem Patronenfilter angebotene Luft größtenteils aus organisch gebundenem Jod besteht. Die Jodkonzentration liegt vor dem Patronenfilter bei nur $10^{-9} \mu\text{Ci/cm}^3$ ($10^{-8} \mu\text{g/m}^3$).

Das gleiche Filter zeigte bei direktem Anschluß an die Boxenabluft Typ A mit $10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ ($10^{-4} \mu\text{g}/\text{m}^3$) einen Dekontaminationsfaktor von 10^4 . Der niedrige Dekontaminationsfaktor des Patronenfilters in der Position als Sekundärfilter gibt damit ein weiteres Beispiel für das Absinken des Dekontaminationsfaktors mit abnehmender Aktivitätskonzentration im Bereich sehr niedriger Aktivitätskonzentration des Jods.

Das Patronenfilter ist hier nur als Sicherheitsfilter zu betrachten, das bei einem Durchbruch eines der Primärfilter einen Aktivitätsausbruch verhindert.

EXPERIENCE D'UTILISATION DE FILTRES
A IODE AU C.E.N./S.C.K.

G. Fleuw et R. Boulenger

C.E.N./S.C.K.
Mol - BELGIQUE

RESUME. Au C.E.N./S.C.K. l'air des cellules de production d'I-131 à partir d'oxyde de Tellure irradié est filtré par des filtres au charbon actif avant d'être rejeté à l'atmosphère. L'efficacité des filtres est vérifiée périodiquement tandis que les rejets en I-131 à la cheminée sont monitorés de façon continue. Le débit de ventilation est de $400 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$, les concentrations en iode en amont du filtre sont de l'ordre de $10\text{-}10 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$. Un rendement minimum de 95% est exigé. La procédure de vérification ainsi que les résultats obtenus sont présentés et commentés.

KURZFASSUNG. BETRIEBSERFAHRUNGEN MIT JODFILTERN IM C.E.N./S.C.K. Im C.E.N./S.C.K. wird die Abluft aus den Zellen für die Erzeugung von J-131 aus bestrahltem Telluroxid vor der Abgabe an die Atmosphäre durch Aktivkohlefilter gefiltert. Die Filter werden regelmässig auf ihre Wirksamkeit geprüft und die J-131-Abgaben über den Kamin kontinuierlich überwacht.

Der Belüftungsdurchsatz beträgt $400 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$, die Jodkonzentrationen vor dem Filter liegen bei $10\text{-}10 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$. Es wird ein Abscheidegrad von mindestens 95% gefordert. Das Prüfverfahren und die dabei gewonnenen Ergebnisse werden beschrieben und erörtert.

SUMMARY. EXPERIENCE WITH IODINE SORPTION UNITS AT THE C.E.N./S.C.K. At the C.E.N./S.C.K. the air in the cells where I-131 is produced from irradiated tellurium oxide passes through activated charcoal filters before it is released into the atmosphere. The efficiency of the filters is checked at regular intervals and the I-131 release in the chimney is monitored continuously.

The ventilation system has a flow-rate of 400 m^3 per hour and the iodine concentrations up-stream of the filter are of the order of $10\text{-}10 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$. The minimum retention efficiency is 95%. Checking methods and results are described and discussed.

Principe de production d'iode

Des cellules de production d'iode-131 sont exploitées par l'Institut des Radioéléments (I.R.E.) dans les laboratoires du C.E.N./S.C.K. à Mol [1]. Le principe de production de l'iode-131 consiste dans l'irradiation d'oxyde de tellure suivie d'une extraction sans entraîneur de l'iode produit.

L'iode-131 se forme par désintégration du ^{131}Te ($T_{1/2}$: 25 min) formé par irradiation de ^{130}Te par neutrons thermiques; cet isotope se trouve à 34,27 % dans le tellure naturel. Des cibles contenant de l'ordre de 50 g de TeO_2 sont irradiées à des flux de 10^{14} n.cm 2 .s $^{-1}$ pendant des périodes variant de 3 à 10 jours. Les activités en ^{131}I ainsi obtenues par capsule varient de 8 à 20 Ci, l'activité d'iode-129 produite est négligeable.

La séparation de l'iode après irradiation est effectuée dans un appareillage situé dans une cellule blindée maintenue en dépression de 30 mm d'eau par rapport au laboratoire. Les gaz provenant des réactions chimiques sont filtrés par une cartouche au charbon actif avant d'entrer en contact avec l'atmosphère de la cellule.

Les récipients à effluents liquides se trouvant dans la partie inférieure sont ventilés directement vers la cellule.

Filtration et contrôle de l'air

L'air de balayage de la cellule est évacué vers la cheminée du réacteur BR1 dont la hauteur effective est de 72 m compte tenu d'un débit de 36 000 m 3 .h $^{-1}$ [2].

Avant d'être rejeté dans la conduite générale de ventilation du réacteur l'air provenant de la cellule de production d'iode, ainsi que de certaines installations voisines est filtré par une batterie de filtres, comprenant deux caissons en parallèle composés dans l'ordre de passage de l'air (Fig. 1)

- d'un préfiltre
- d'un filtre à charbon actif
- d'un préfiltre
- d'un filtre absolu.

Deux batteries en parallèle sont prévues afin d'assurer la continuité de

la filtration lors de travaux d'entretien ou de remplacement de filtres. Le débit total pour une batterie de filtres composée de deux caissons est de $400 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

Les préfiltres sont du type Vokes "Spark Arrestor". Ils sont constitués d'une couche de laine de verre entre deux treillis métalliques. Les filtres absolus sont du type Vokes A55/5.

Les filtres au charbon sont formés de caissons de $609 \text{ mm} \times 609 \text{ mm}$ de surface, l'épaisseur du charbon actif est de 100 mm . La vitesse de passage est de $15 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$, soit un temps de contact de $0,67 \text{ s}$.

Semestriellement, ainsi que lors du remplacement du filtre absolu, la batterie de filtres est testée in situ au moyen de D.O.P. [3], un rendement global de minimum $99,90 \%$ est exigé lors de ces tests. Les rejets en ^{131}I à la cheminée sont contrôlés au moyen d'un "moniteur iode-131" [4]. Le détecteur comprend une cartouche de charbon actif parcourue par un débit d'air dérivé de la cheminée, placée dans le puits ($1 \frac{1}{2}'' \times 2 \frac{1}{2}''$) d'un cristal NaI (Tl) de $3 \frac{1}{2}'' \times 3 \frac{1}{2}''$. Le cristal est vu par un photomultiplicateur. Cet ensemble est protégé par un château de plomb de 85 mm d'épaisseur. Une pompe assure un débit d'air d'environ $1,5 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. L'électronique comprend un amplificateur, un sélecteur d'amplitude à monocanal, un ratemeter logarithmique dont l'indication est transmise à une unité d'alarme, les alimentations nécessaires et un panneau auxiliaire. Le monocanal est centré sur le pic à 360 keV de l'iode-131 avec une largeur de fenêtre d'environ 70 keV .

Pour un débit de ventilation de $36\ 000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ à la cheminée une augmentation de 1 cps correspond à un rejet de $2 \mu\text{Ci}$ à la cheminée. Des niveaux-guides de rejet en routine ont été calculés compte tenu des conditions météorologiques moyennes existantes dans la région afin de ne pas dépasser $250 \text{ pCi} \cdot \text{L}^{-1}$ en iode-131 dans le lait [5] [6] de vaches se trouvant dans les prairies les plus exposées entourant le site.

Un niveau-guide de rejet de 11 mCi par jour [2] a été obtenu pour la cheminée du BR1. Durant les années 1970 à 1972 des rejets annuels totaux de respectivement $70, 75$ et 70 mCi ont été observés. En période normale de production les rejets sont de l'ordre de $0,5 \text{ mCi}$ par jour.

Au cas où l'on constate une augmentation significative dans les valeurs obtenues par le moniteur d'iode-131 à la cheminée, le passage vers l'autre

batterie de filtres est effectué tandis que par des mesures des concentrations en ^{131}I avant et après filtre le rendement de la filtration est vérifié, les causes des perturbations en sont déterminées.

Observations d'orientation

Afin de nous former une idée concernant la forme et la nature de l'iode rejeté à partir de la cellule de production d'iode des prélèvements ont été faits en amont et en aval de la batterie de filtres. Ces prélèvements ont été réalisés au moyen de quatre cartouches de charbon actif de 25 cm^3 placées en série et à travers desquelles l'air est aspiré à raison de $1\text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$.

Compte tenu des impératifs de production les conditions d'observation ne pouvaient être fixées a priori, les résultats obtenus ne sont donc pas nécessairement reproductibles; ils donnent néanmoins des indications utiles concernant la forme d'iode telle quelle apparaît in situ lors de l'exploitation de la cellule.

A titre d'exemple les résultats de quelques observations sont présentés en détail. Lors d'un essai deux prélèvements ont été effectués simultanément; l'un en amont et l'autre en aval des batteries de filtres, sur des ensembles de quatre cartouches de 25 cm^3 de charbon actif de qualité "Pleuger" non imprégné en granules de 2,5 mm.

Ces cartouches, placées en série, étaient précédées d'un filtre Whatman GFA. Le prélèvement a eu lieu pendant 1 heure, un volume de respectivement $0,9\text{ m}^3$ et $1,2\text{ m}^3$ fut aspiré en amont et en aval de la batterie. L'humidité relative variait de 57 à 51 %.

Les résultats obtenus sont repris au Tableau 1.

Nous constatons qu'en amont de la batterie de filtres :

- l'activité spécifique en iode-131 est de $7,5\cdot 10^{-6}\text{ Ci}\cdot\text{m}^{-3}$, soit $1,6\cdot 10^{-10}\text{ g}\cdot\text{m}^3$ d'iode au total;
- 5 % de l'activité totale est arrêtée par le filtre Whatman GFA;
- 9 % de l'activité totale retenue par le charbon actif se trouve sous une forme peu réactive (Fig. 2);
- le rendement de la première cartouche est de 97,6 %, le rendement moyen des cartouches suivantes est de 73 %;
- un essai de désorption fut effectué en aspirant de l'air non filtré pen-

dant 4 heures à raison de $1 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ à travers la première cartouche, la quantité désorbée était de 0,23 %.

En aval de la batterie de filtres nous obtenons :

- une activité spécifique de $6,7 \cdot 10^{-8} \text{ Ci} \cdot \text{m}^{-3}$ soit $1,4 \cdot 10^{-12} \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$ en iode, le rendement de la batterie fut donc de 99,1 %;
- 100 % de l'iode se trouve sous une forme piégeable à faible rendement par le charbon actif;
- le rendement moyen des cartouches est de 60,7 %;
- un essai de désorption effectué dans les mêmes conditions sur la première cartouche donna une désorption de 0,24 %.

Lors d'une autre observation deux prélèvements furent effectués simultanément en amont et en aval de la batterie. Les quatre cartouches de 25 cm^3 furent remplies de charbon actif imprégné à 1 % de KI (NORIT RKJ-I), les cartouches furent suivies d'un filtre Whatman GFA. L'aspiration a lieu pendant 2,25 heures à raison de $1,2 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

Les résultats sont repris au Tableau 2. Nous constatons qu'en amont de la batterie :

- l'activité spécifique est de $2,8 \cdot 10^{-5} \text{ Ci} \cdot \text{m}^{-3}$, soit $6 \cdot 10^{-10} \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$ iode totale;
- de la Fig. 2 l'on déduit que 3,5 % de l'activité totale se trouve sous une forme difficile à piéger par le charbon imprégné;
- le rendement de la première cartouche est de 97,9 %;
- le rendement moyen des cartouches suivantes est de 42,6 %.

Pour les échantillonnages en aval nous obtenons :

- une activité spécifique de $0,84 \cdot 10^{-6} \text{ Ci} \cdot \text{m}^{-3}$ soit $1,74 \cdot 10^{-11} \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$ en iode;
- 11 % de l'activité totale se trouve sous une forme moins piégeable;
- le rendement de la première cartouche est de 96,9 %;
- le rendement moyen des cartouches suivantes est de 74,6 %;
- le rendement de la batterie de filtres au moyen de l'essai est de 97,0 %.

Une série d'échantillonnages fut effectuée en amont de la batterie de filtres au moyen d'un ensemble "MAYPACK" [7] constitué de :

- cinq grilles en cuivre argenté;
- un filtre Whatman AGF;
- trois filtres ACG/B;

- quatre cartouches remplies de charbon actif imprégné de 1 % KI (NORIT RKJ-I).

Les résultats sont donnés au Tableau 3. Nous pouvons en conclure que la composition de l'iode ne varie que dans certaines limites lors d'opérations normales de production.

Expérience en cours d'exploitation

Le contrôle le plus direct du bon fonctionnement des filtres est obtenu à partir des résultats du moniteur d'iode à la cheminée qui mesure en direct et en continu les rejets. Toutefois une mesure de l'efficacité globale de la batterie est effectuée de quinze en quinze jours.

L'expérience a montré qu'un rendement global minimum de 95 % est exigé afin de ne pas dépasser, lors des opérations de production, le rejet journalier toléré en routine.

Les causes principales d'intervention durant les trois dernières années sont :

- le mauvais remplissage du caisson contenant le charbon actif;
- le placement incorrect du caisson;
- l'augmentation brusque de l'activité en amont du filtre suite à la saturation de la cartouche se trouvant sur l'appareillage de production.

Dans les cas cités les mesures correctives peuvent être prises sans délai afin de réduire les rejets.

Suite à la qualité de réactifs employés lors de l'extraction de l'iode-131 et lors de certaines mises au point, il est arrivé que la composition de l'iode rejeté s'écarte brusquement de sa forme normale et contient une partie importante d'iode non piégeable.

La batterie de filtres se transforme dans ce cas en "ligne de délai". Lors de cette situation les mesures des concentrations en amont et en aval de la batterie ne permettent plus de se former une idée exacte du rendement intrinsèque. Dans ces conditions il y a donc lieu d'identifier au plus vite la source afin de l'éloigner ou de la neutraliser (enlèvements des déchets liquides, ou mise de ces déchets sous forme d'iodure) après quoi la partie de la batterie affectée est mise en "chômage" et la batterie de réserve mise en opération. Toute action précipitée risque de faire perdre l'avantage de la batterie de réserve et de conduire à l'arrêt momentané de la pro-

duction pour des raisons de sécurité.

Des mesures en amont au moyen de plusieurs cartouches ou au moyen du MAYPACK permettent, grâce à la rapidité et simplicité, d'obtenir des éléments précieux pour les décisions à prendre.

Conclusion

L'expérience acquise lors de l'exploitation des cellules de production d'iode-131 à Mol a démontré la nécessité d'un contrôle continu des rejets, non seulement pour évaluer l'impact sur l'environnement mais également pour contrôler toute déviation par rapport aux conditions normales d'exploitation.

Les résultats cités ont été obtenus dans les conditions normales d'exploitation. Ils ne constituent pas une recherche systématique en vue de déterminer les diverses formes chimiques de l'iode s'échappant de l'installation de production et de ses annexes tel que le stockage des déchets liquides.

Des mesures effectuées avant et après filtration au moyen de dispositifs comprenant des milieux divers d'absorption permettent néanmoins de rassembler les éléments d'appréciation nécessaires pour prendre les mesures correctives adéquates.

TABLEAU 1

Observations avec du charbon actif non-imprégné

	A_i μCi	$\frac{\Sigma A_i}{A_t}$	Pénétration	$\frac{A_i}{A_t}$	Rendement des cartouches %
AMONT					
Whatman	0,32	-	-	-	-
Cartouche n° 1	6,3	0,976	0,024	0,976	97,6
n° 2	0,11	0,993	0,007	0,017	71,4
n° 3	0,033	0,998	0,002	0,005	75,0
n° 4	0,008	0,999	0,0004	0,001	72,7
AVAL					
Whatman	$2,6 \cdot 10^{-4}$	-	-	-	-
Cartouche n° 1	$470 \cdot 10^{-4}$	0,585	0,415	0,585	58,5
n° 2	$200 \cdot 10^{-4}$	0,833	0,167	0,249	59,9
n° 3	$85 \cdot 10^{-4}$	0,939	0,061	0,106	63,4
n° 4	$30 \cdot 10^{-4}$	0,976	0,024	0,037	61,2

A_t : quantité totale théorique absorbée par le charbon actif

TABLEAU 2

Observations avec du charbon actif imprégné (1 % KI)

	A_i μCi	$\frac{\Sigma A_i}{A_t}$	Pénétration	$\frac{A_i}{A_t}$	Rendement des cartouches %
AMONT					
Cartouche n° 1	74,0	0,979	0,021	0,979	97,9
n° 2	0,76	0,989	0,011	0,010	48,7
n° 3	0,29	0,993	0,007	0,004	36,2
n° 4	0,22	0,996	0,004	0,003	43,0
Whatman	0,94	-	-	-	-
AVAL					
Cartouche n° 1	$220 \cdot 10^{-4}$	0,969	0,031	0,969	96,9
n° 2	$5,7 \cdot 10^{-4}$	0,994	0,006	0,025	79,8
n° 3	$1,0 \cdot 10^{-4}$	0,998	0,002	0,004	69,4
n° 4	$0,3 \cdot 10^{-4}$	0,999	0,0006	0,001	74,7
Whatman	$0,53 \cdot 10^{-4}$	-	-	-	-

A_t : quantité totale théorique absorbée par le charbon actif

TABLEAU 3

Essais "MAYPACK"

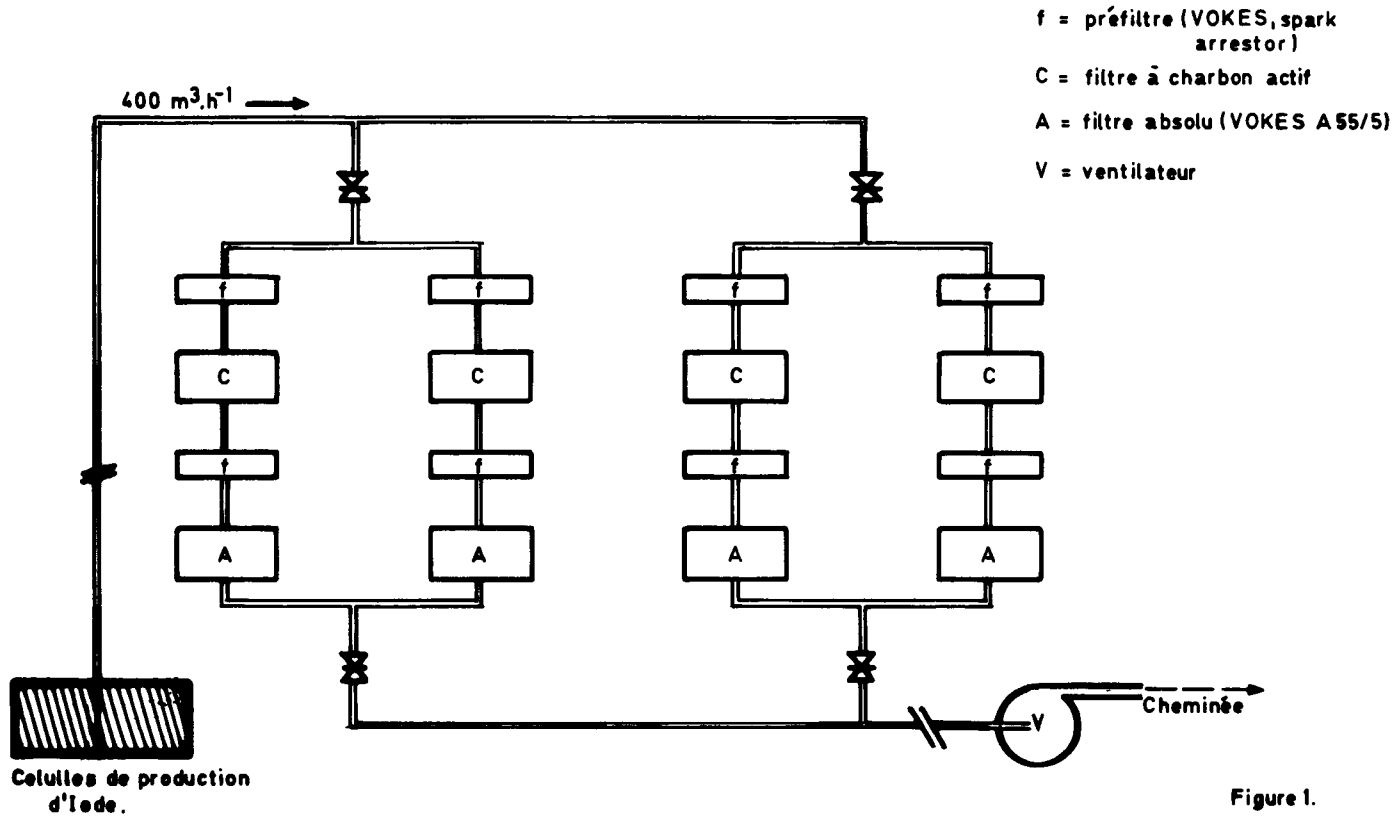
Pourcentage d'iode retenu par chaque élément filtrant

	cuivre-argenté	Whatman GFA	Filtre ACG/G	Cartouches au charbon actif
1 ^{er} essai	0,9	1,1	33	65
2 ^e essai	0,9	0,5	45	53
3 ^e essai	1,0	1,0	36	62
4 ^e essai	1,6	1,2	65	32
5 ^e essai	1,8	0,2	58	40

Références

- [1] Mekers, J., Morel, A.
Cellules production d'iode-131, note technique (1969)
- [2] de Maere, X., Bultynck, H., Osipenco, A.
Coordination des rejets à l'atmosphère des installations nucléaires
du C.E.N. (Mol) R 2445 (1968)
- [3] Filter Units, Protective clothing, Gas-mask Components and related
Products : Performance-Test Methods, MIL-STD-282 (1956)
- [4] Osipenco, A.
Moniteur iode-131 à la cheminée du BR1, note technique (1968)
- [5] Kirchmann, R., Boulenger, R.
Contamination du lait consécutive à un rejet atmosphérique accidentel
d'iode-131, R 2247 (1963)
- [6] de Maere, X.
Evaluation des niveaux-guides applicables à des rejets de routine,
concertés ou accidentels, dans l'atmosphère, document interne (1967)
- [7] Megaw, W.J., May, F.G.
The behaviour of iodine released in reactor containers, AERE-R 3781
(1961)

Schema de principe de la ventilation des cellules de production d'Iode.



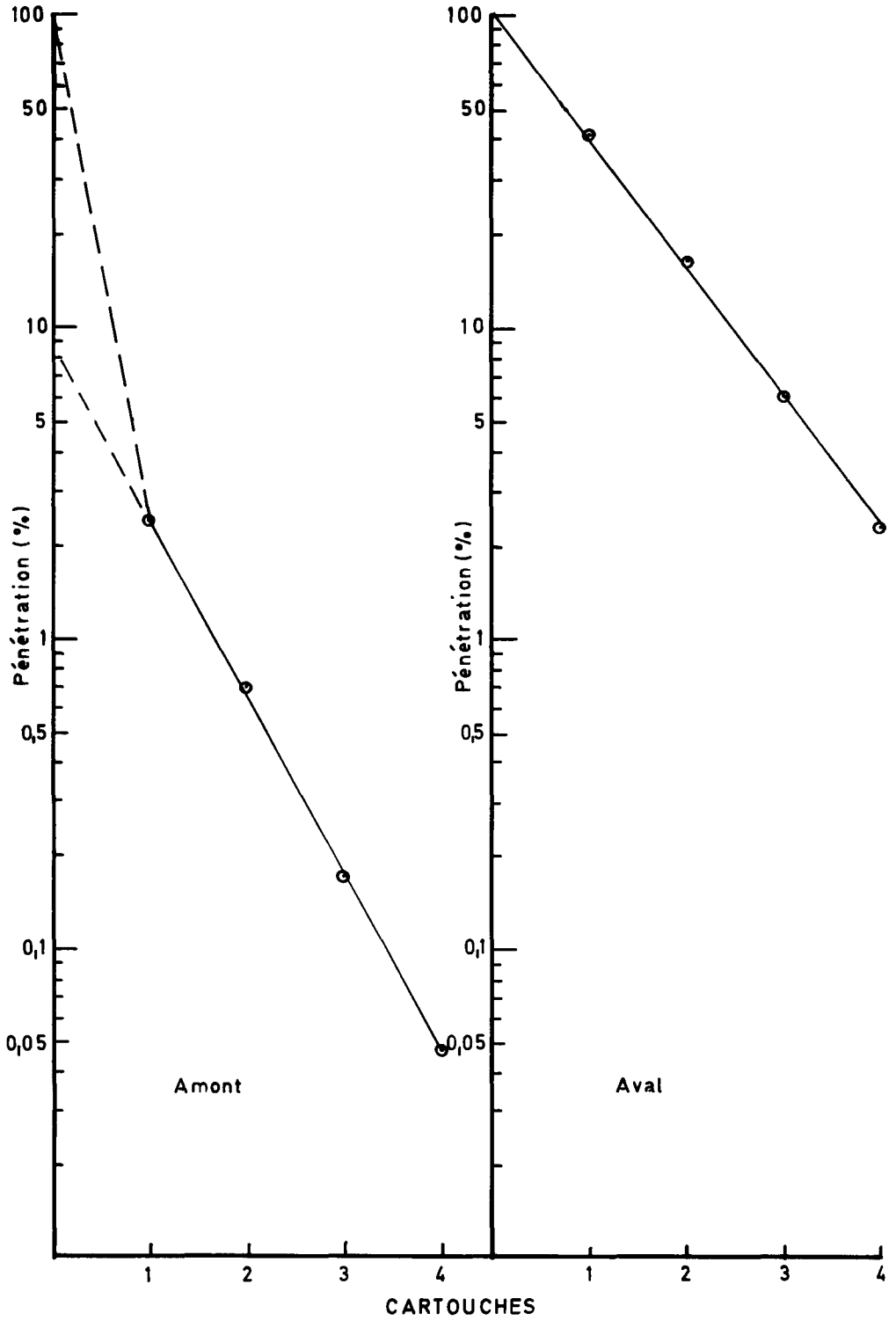


Figure 2

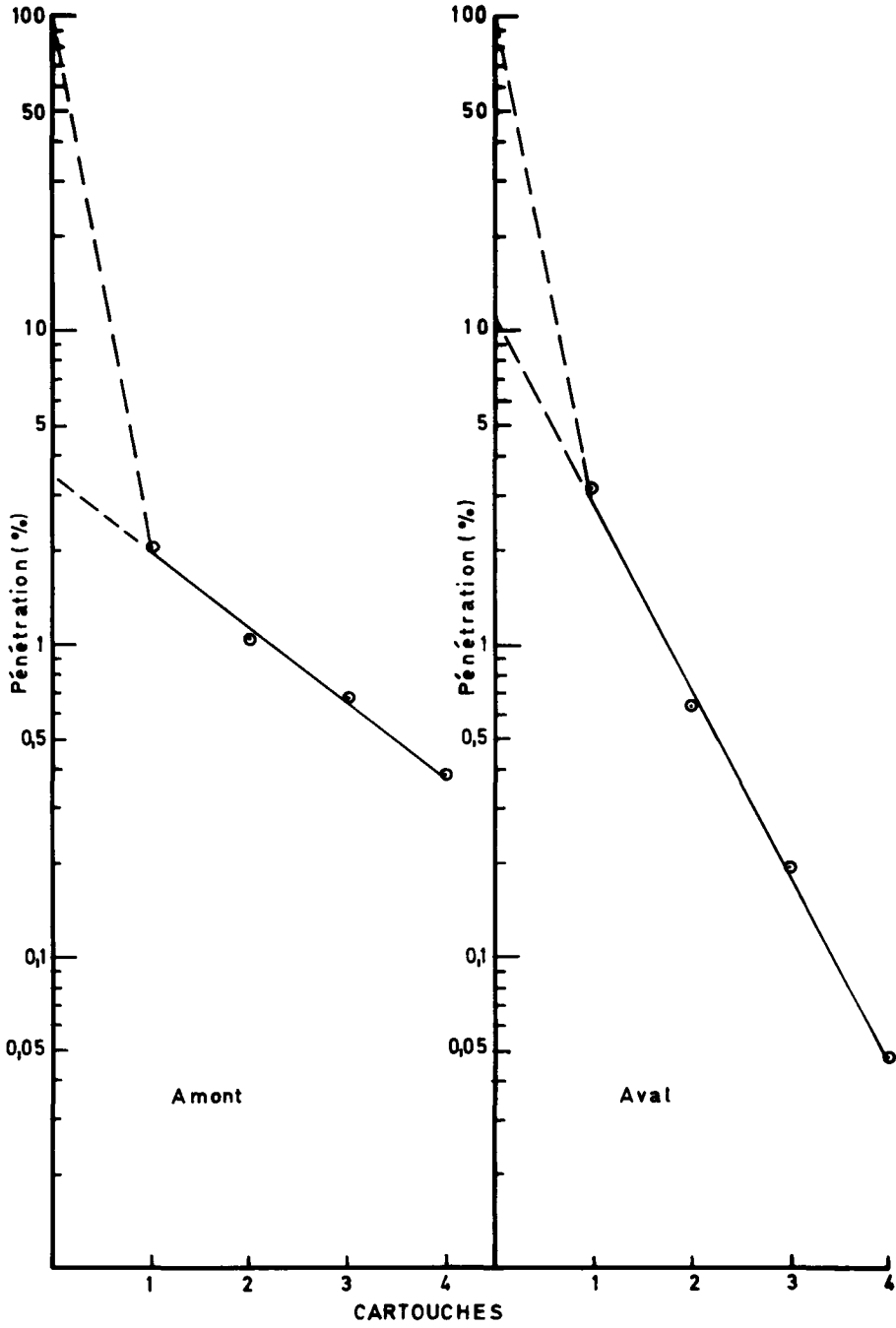


Figure 3

EXPERIENCES WITH CHARCOAL FILTER SYSTEMS
INSTALLED IN SEVERAL BUILDINGS AT THE R.C.N. SITE

J.R.D. Stoute and G.C.H. Groen

R.C.N.

Petten - NETHERLANDS

SUMMARY. The air cleaning systems on the R.C.N.-site are under supervision of the Health Physics Department, this department thus having gained some experiences with such systems. In this paper experiences are dealt with regarding the charcoal filters of the offgassystem of the H.F.R. (pool-type research reactor), of the waste department and of the isotope-production plant owned by Philips Duphar. Among other things the results of periodical tests are discussed, tests being carried out with elemental iodine, methyl iodide and with the gaseous effluents normally present in the ventilation ducts of the isotope-production plant.

RESUME. EXPERIENCE DES SYSTEMES DE FILTRES A CHARBON INSTALLES DANS DIFFERENTS BATIMENTS SUR LE SITE DU R.C.N. Sur le site du R.C.N., les systèmes d'épuration de l'air sont supervisés par le service de physique sanitaire qui a ainsi acquis quelque expérience de ceux-ci. Le rapport relate l'expérience des filtres à charbon placés sur le circuit d'extraction de gaz du H.F.R. (réacteur de recherche du type piscine), des locaux du département des déchets et de l'installation de production d'isotopes de Philips Duphar. Les auteurs discutent notamment des résultats des tests périodiques réalisés avec de l'iode élémentaire, de l'iodure de méthyle et avec les effluents gazeux normalement présents dans les conduites de ventilation de l'installation de production d'isotopes.

KURZFASSUNG. ERFAHRUNGEN MIT ADSORPTIONSKOHLE-FILTERSYSTEMEN IN GEBÄUDEN DES RCN. Die Luftreinigungssysteme im Reactor Centrum Nederland (RCN) werden vom Health Physics Department überwacht; diese Abteilung hat somit bereits einige Erfahrungen mit derartigen Systemen sammeln können. Dieser Bericht behandelt insbesondere die Erfahrungen, die mit Holzkohlefiltern des Abgassystems des HFR (Pool-Typ-Forschungsreaktor), der Abteilung für die Behandlung radioaktiver Abfälle und der zur Philips Duphar gehörenden Isotopen-Erzeugungsanlage gesammelt wurden. Unter anderem werden die periodisch durchgeführten Tests erörtert; diese Tests werden mit elementarem Jod, mit Methyljodid und mit den normalerweise in den Abluftleitungen der Isotopenerzeugungsanlage vorhandenen Abgasen angestellt.

1. At the site of R.C.N. (Reactor Centrum Nederland) in Petten a number of separate buildings are situated. Some of these buildings have a forced ventilation system; equipped with charcoal filters are:
 - the reactor hall, which contains the 50 M Watt pool type research reactor (HFR). The filters are part of the off-gas system.
 - the building for waste treatment (GRA) where waste is handled and stored containing among other things appreciable amounts of iodine-131.
 - the health physics building (GBA) where in some radiochemical laboratories tests are carried out with iodine or other nuclides.
 - the radioisotope production plant of Philips Duphar where relatively large amounts of radioactive material are handled.The filters of the systems mentioned above are all tested by the Health Physics Department regularly.

2. The test of charcoal filters can be carried out by several methods and agents. The following agents have proven their value in practice:
 - Elemental or molecular iodine-131.

The iodine is obtained by treating an amount of sodium iodide-131 and condensing the molecular iodine in a cooled metal spiral. In situ the metal spiral is connected to the duct and warmed up with hot water in order to liberate the iodine.
 - Methyl iodide-131.

The methyl iodide is generated on the spot in a special device by a reaction between sodium iodide-131 and dimethylsulphate. It is then immediately blown into the duct.
 - So called production iodide.

Originating from several cells, shielded boxes and other areas, there is in the exhaust of a production plant a continuous supply of gas containing various compounds of iodine. With selective sampling (see par. 4) we could assess the ratio between molecular iodine and other compounds (mainly methyl iodide). This ratio obeys roughly the Poisson-distribution with the top at about 5-10.

It is interesting to note that the ratio of elemental iodine to other compounds during tests with elemental or molecular iodine varies from 15 to 670 with an arithmetic mean value of 125 and that this ratio during tests with methyl iodide varies between $2 \cdot 10^{-4}$ and 0.1

3. Which of the forementioned test agents is to be preferred, depends on a number of circumstances. In making the choice, the following facts have been taken into account.
- The number of charcoal filters with non-impregnated charcoal has remarkably decreased since it became clear that a considerable percentage of the iodine produced is converted into methyl iodide or other organic compounds somewhere in the ventilation system.
 - Elementary or molecular iodine is so readily trapped on most types of activated (and impregnated) charcoal that it can be said that if methyl iodide can be retained, the retention of elementary iodine will be automatically assured. This is discussed further in par.5.
 - The generation and use of molecular iodine are not so simple compared with that of methyl iodide. This is mainly due to the loss of test material in several parts of the equipment. Also in the ducts between injection point and filter beds there is the problem of adsorption of iodine.

As a result the testing of charcoal is normally done by upstream injection of in-situ generated methyl iodide-131.

The radiochemistry plant however generates so much iodine, that it can easily be used for regularly testing. As has been set forth, the air upstream of the filters contains elementary or molecular iodine as well as methyl iodide, both in sufficient amounts.

4. The tests are always carried out by taking samples from the ducts upstream and downstream of the filterbanks, with sampling pipes reaching up to the centerline of the ducts. The sampling flow is of the order of $1.5 \text{ m}^3/\text{h}$ and the sampling time is about 40-60 minutes. The sample holders are of the May-pack type and contain the following parts.
- A glassfibre filter for trapping of iodine associated with aerosol particles (Whatman GF/A)
 - Two discs of charcoal paper (Whatman ACG/B). In this material only elementary or molecular iodine is trapped with a considerable efficiency.
 - A bed of 5 cm activated charcoal impregnated with 0.5% potassium iodide, e.g. NORIT 0.8. The stay time of the air in the charcoal is

of the order of 0.3 sec. at $1.5 \text{ m}^3/\text{h}$.

5. The tests with production iodide gave us the possibility to study the ratio of the decontamination factor with elementary iodine and the decontamination factor with methyl iodide. It turned out that this ratio varies considerably. We did not find any correlation between the ratio e.g. the age of the filter. All filters showed ratios generally between 10 and 150. This confirms the presumption that testing with methyl iodide gives sufficient information about the condition of a charcoal filter.

We have found however exceptions when we tested charcoal filters which were not preceded by absolute (HEPA) filters. In such cases the portion of the iodine which is associated with aerosol particles can easily penetrate the charcoal filter channels (the penetration for aerosol particles is found to be some 3-10%). In the downstream sampling pack this aerosol-borne iodine can be interpreted as elementary iodine, giving a rather low value for the ratio of the decontamination factor with elementary iodine and the decontamination factor with methyl iodide: we found values between 0.1 and 1.

6. Another reason for finding erroneous penetrations can be delayed iodine desorption from the filter itself and from the downstream ducts. So, during a week or so, after a high supply of iodine to the filter one finds always too low decontamination factors D . This can be illustrated with the data of table I.

In view of this problem, we test the filters concerned on the days of high releases from the production cells.

7. We can also follow the behaviour of an installed filter as a function of time. The data of one case are represented in figure 1, where the "quality factor" being $\log D$ over stay-time is plotted versus the number of air changes. It can be seen that the curve for methyl iodide roughly follows the exponential law mentioned by Collins (1). Of course the slope of the line depends on the circumstances under which the filter is operated, e.g. the concentration of attacking agents in the effluent. Generally speaking one can say that under severe circumstances the operational life-time of a filter can be as short as

2 months, whereas the life-time normally is of the order of 1.5 to 2 years as we have observed with the filters installed in the off-gas system in the HFR building. Obviously the frequency of testing must be matched with the expected life-time and can vary between once per fortnight and once per half year.

TABLE I Influence of supply

Date (1971)	Supply	D(CH ₃ I)	D(I ₂)
December 6	+	150	22400
" 13		3.6*	2643
" 14		24.8	708
" 15		13.9	652
" 16		10.5	196
" 17		10.4	230
" 20	+	62.5	16667

+ large supply as a result of iodine release from production cell

* obviously incorrect measurement.

8. In a few percent of our tests we found a poor result caused by leakage paths. Sometimes this leakage occurs as a result of malfunction of the mechanical means for pressing the filter with its sealing against the seats, sometimes the sealings are of inferior quality or (as we incidently found in the HFR) dried out after use for some two years. Of course, this differs from one manufacturer to another. In some cases the leakage was thought to be caused by channelling and settling of the charcoal in its bed.

As we have only charcoal filters of the standard cell type with the 5 cm thick activated charcoal beds in the form of dihedrals between two perforated sheets, the occurrence of settling and channelling can only be influenced by the manufacturer. A good technique seems to ensure the settlement of the charcoal by pieces of elastic closed-pores mat.

9. Concluding we can say that the behaviour of a charcoal filter bank is for a great deal determined by the concentration of attacking agents in the air which flows through the filters.

With the modern types of charcoal filters the construction has only a minor influence.

10. Reference:

- (1) D.A. Collins and L.R. Taylor, The development of impregnated charcoals for trapping methyl iodine at high humidity, TRG Report 1300 (W) (1967).

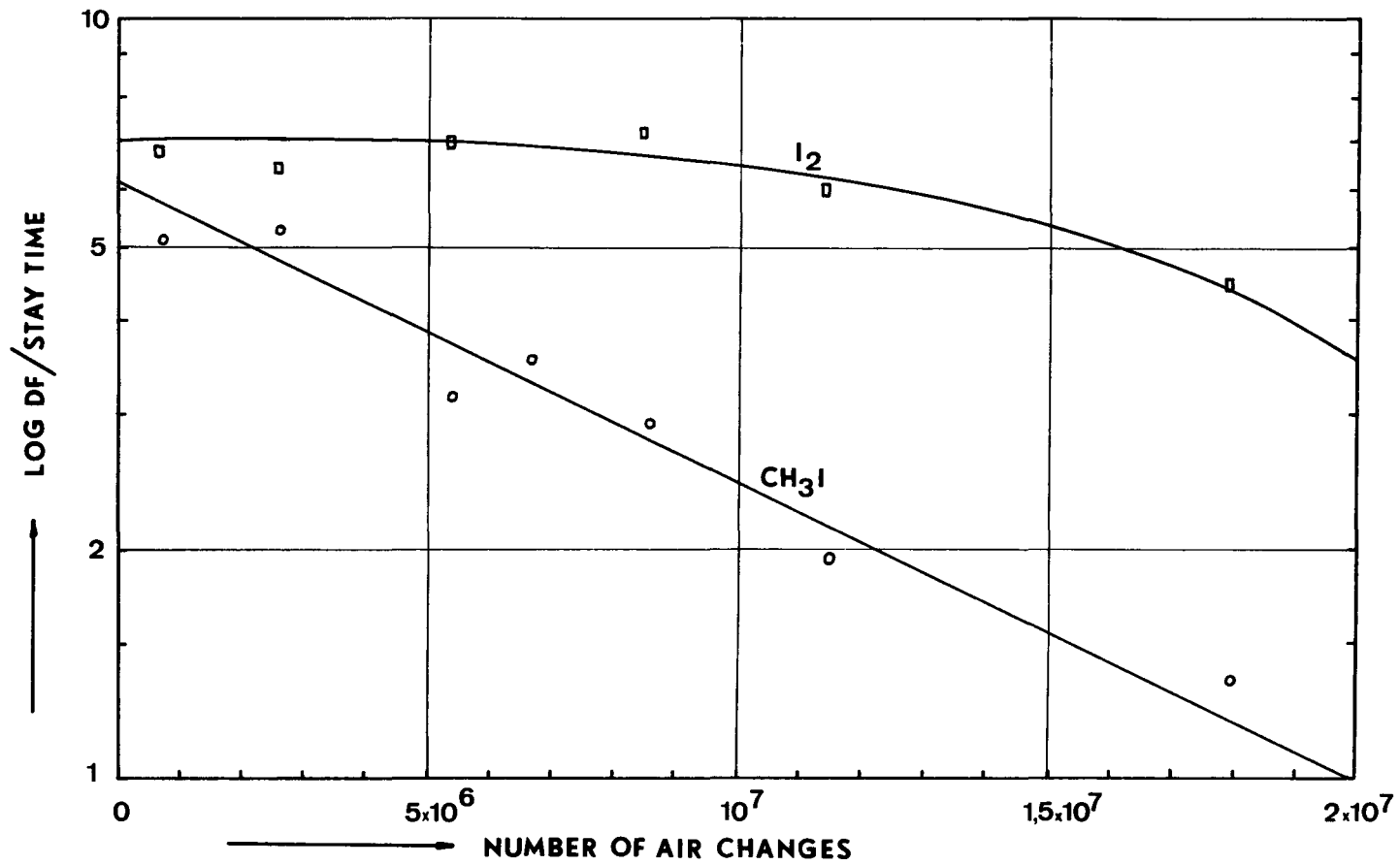


Figure 1.

REGULATORY CONTROLS APPLIED TO IODINE TRAPPING
PLANTS IN UK NUCLEAR INSTALLATION.

H.A. Wright

Department of Trade and Industry
Nuclear Installations Inspectorate
London - U.K.

SUMMARY. The principal Acts which control environmental aspects of nuclear power, the Government's Departments and regulatory agencies involved are briefly described.

The requirements for Iodine Absorber Plants and the controls applied to the design, construction, commissioning, operation, maintenance and testing of such plants are outlined, and the role of the regulatory agencies is discussed.

RESUME. CONTROLES REGLEMENTAIRES APPLIQUES AUX DISPOSITIFS D'ADSORPTION D'IODE DES INSTALLATIONS NUCLEAIRES DU ROYAUME-UNI. Les principaux textes réglementaires concernant les incidences de l'énergie nucléaire sur l'environnement, les services gouvernementaux et les organismes de contrôle intéressés sont brièvement décrits. Les prescriptions s'appliquant aux installations d'adsorption d'iode et les contrôles concernant la conception, la construction, la mise en service, l'entretien et l'essai de celles-ci sont mis en lumière; le rôle joué par les organes réglementaires est examiné.

KURZFASSUNG. BEHOERDLICH ANGEORDNETE KONTROLLEN FUER JOD-ADSORPTIONSVORRICHTUNGEN VON KERNANLAGEN IM VEREINIGTEN KOENIGREICH. Die wichtigsten Gesetze, die auf dem Gebiet der Kernenergieerzeugung unter dem Gesichtspunkt des Umweltschutzes erlassen wurden, die zuständigen Regierungsstellen und die Ueberwachungsbehörden werden kurz abgehandelt.

Die an Jod-Adsorptionsvorrichtungen zu stellenden Anforderungen und die Kontrollen in bezug auf Entwurf, Ausführung, Bauabnahme, Betrieb, Wartung und Prüfung derartiger Vorrichtungen werden dargestellt und die Aufgaben der Ueberwachungsbehörden erörtert.

1 INTRODUCTION

Legislation and the associated Regulatory Controls applied to Nuclear Installations in the United Kingdom have been introduced to safeguard the public by ensuring that any releases of radioactivity to the environment are minimised.

The main fission product of interest is radioactive iodine, which may be released into the gaseous coolant as a result of failure of fuel cladding. An important safety feature is therefore the provision of plant to reduce any radioactive iodine present in the coolant before it is discharged into the atmosphere.

This paper describes the controls imposed on the owners and operators of nuclear power plants. It deals briefly with the broader aspects of environmental control, but describes more specifically those controls which apply to the design, construction, operation and testing of these plants, with particular reference to their influence on ensuring suitable provision is made for the removal of iodine.

2 UK GOVERNMENT REGULATIONS AND ORGANISATION

The principle Acts of Parliament which control the environmental aspects of nuclear power stations and other large nuclear installations are the Radioactive Substances Act of 1960 and the Nuclear Installations Acts of 1965 and 1969.

Under the Radioactive Substances Act, disposal of radioactive materials from these plants is controlled jointly by the Department for the Environment (DOE) and the Ministry of Agriculture, Fisheries and Food (MAFF). This Act requires that persons keeping or using radioactive materials should be registered and that no radioactive waste should be disposed of without prior authorisation. In fixing the terms of the authorisations due regard is paid to the capacity of the environment to accept these wastes and to the need of the installation to make discharges. Inspectors in DOE and MAFF appointed under this Act have power to enter and inspect any premises to enforce its provision and ensure that disposal is carried out in accordance with the authorisation.

The DOE and MAFF work closely together in operating these controls, MAFF would take the lead in cases where the disposal is likely to affect fisheries or the food chain, while DOE would assume this role where the general environment is concerned.

The Nuclear Installations Acts are administered in England and Wales by the Department of Trade and Industry, and in Scotland, by the Scottish Economic Planning Department. The Ministers responsible for these Departments are assisted in the detailed execution of the Acts by the Nuclear Installations Inspectorate, which was set up in 1959 when the main features of the present legislation were first introduced, and the first four commercial twin reactor magnox stations were already under construction. These and five more stations are now operating with a further five stations of the Advanced Gas Cooled Reactor type under construction.

Under these Acts no body or person other than the UK Atomic Energy Authority or a Government Department may construct or operate a nuclear reactor or other prescribed nuclear installation unless the site has been licensed for that purpose by the responsible Minister. The two nationalised undertakings, the Central Electricity Generating Board (CEGB) and the South of Scotland Electricity Board (SSEB), own and operate all the commercial nuclear power stations referred to above and so they were the only two bodies who held licenses for major nuclear installations until the Atomic Energy Authority Act of 1971. This Act detached the main fuel processing plants and isotope preparation units from the UK Atomic Energy Authority to form private companies, which thereby became subject to the licensing regime of the Nuclear Installations Acts. These companies are the British Nuclear Fuels Ltd and the Radiochemical Centre Ltd.

The responsible Ministers may attach to the Site Licence any conditions considered necessary or desirable in the interests of safety. They are legally enforceable and any infringement carries statutory penalties. These conditions can be changed at the Minister's discretion and the flexibility of this licensing system facilitates the protection

of the public (and operators) from ionising radiations since appropriate controls can be applied to any of the nuclear installations licensed under these Acts whenever necessary. The power to impose conditions on the licensee enables the Nuclear Inspectorate to devise suitable controls for the design and construction of a nuclear plant and of its operation and these have been discussed in detail in (1) and (2). For example, the installation of the plant is regulated by conditions requiring the licensee to submit information on the design, and any supporting development and testing programme in advance of construction. Arrangements must be made to ensure the quality of materials, manufacture and installation, and also to ensure an adequate testing programme is undertaken after construction is completed. At a later stage, when the reactor is ready to receive fuel, new conditions are attached to the licence which regulate the operation of the plant. These conditions cover such matters as, radiological protection; plant operating limits; operating and maintenance procedures; the storage of new and irradiated fuel; the storage of radioactive waste and emergency arrangements. The licensee is also required to appoint a Safety Committee to consider any matter of relevance to safety in the operation of the plant.

These licence conditions are kept free from technical detail as far as it is practicable and the licensee may meet the requirements of some conditions by preparing his own procedural and technical documents. Provided these documents are found to be satisfactory to the Nuclear Inspectorate, they can be approved formally and become part of the requirements imposed upon him. This formal approval is implemented by the issue of a simple legal document on behalf of the Minister. Thus adequate safety controls can be readily introduced or modified to meet problems as they arise.

3 REGULATORY CONTROL PROCEDURES

The licensing regime briefly described above is not established until after the Site Licence has been issued. This step is not taken however until the Inspectorate is satisfied with the suitability of the site and confident that the plant can meet satisfactory safety

standards [(3) and (4)]. Conditions are then attached to the Licence, placing mandatory requirements on the licensee relating to the plant design, construction and commissioning. These conditions require the licensee to follow certain procedures by which any safety feature of the nuclear installation such as the iodine trapping plant, is judged to be acceptable before operation is permitted.

The licensee has to carry out a detailed assessment of the safety features of the nuclear plant design which he submits to the Inspectorate in the form of a Design Safety Report. This will set out the agreed safety principles and show how the design accords with them. An analysis of a range of faults and details of the consequential fuel behaviour will form an important part of this design assessment, showing among other things that the proposed plant for iodine removal is adequate. The Inspectorate will have frequent and detailed discussions with the licensee over the technical content of this report from the time the licence is issued. Manufacture and site work can proceed, however, providing the licensee is not finally committed to any major novel design feature.

To ensure high standards of construction are maintained, the licensee is required to make arrangements for inspection and testing of important items of plant at the manufacturer's works and on the site. Much of this work falls on the licensee's own inspecting organisation or on independent inspecting authorities of high repute. Each plant item is tested first as a unit and then in progressive stages until it is finally tested as part of the complete reactor system, to demonstrate the plant meets the design safety criteria. The licensee must submit their programme of tests to the Inspectorate and formal approval is required to progress from one stage of the programme to the next.

The detailed requirements of the licence conditions imposed during the construction and commissioning stages are devised firstly to ensure that the licensee has an adequate basis for the safety aspects of his design, and secondly to see that this basis remains valid throughout manufacture, installation and final testing. When all these stages

have been satisfactorily completed up to the point when the reactor is ready to be loaded with fuel, the Inspectorate issues an Approval to allow the Commissioning Programme to continue, and further conditions relevant to plant operation are attached to the licence at this time.

The Design Safety Report mentioned will have set out the basis on which the safety of reactor operation is justified. The manner in which plant items such as iodine traps are operated and subsequently maintained, must therefore continue to be consistent with that basis, or any changes to it shown to be acceptable. For this purpose appropriate requirements are imposed on the licensee by some of the additional licence conditions mentioned above. One of these requires operating rules to be drawn up and submitted to the Inspectorate for approval, laying down the safety limits which cannot be altered without being first justified to a Safety Committee and then approved by the Inspectorate. The plant must be operated in accordance with the operating instructions which implement these rules. For example, an operating rule may limit the discharge into the environment of iodine ¹³¹ within the limits justified in the Design Safety Report. The operating instructions complying with this rule could specify the activity figures of the coolant which must not be exceeded when the operator wishes to discharge this gas into the atmosphere. The actions expected to be taken by the operator in the event of the accident conditions mentioned below would also be detailed in an operating instruction.

In order to ensure that the standards of plant performance assumed in the design assessment are maintained throughout the operating life of the station, the licensee is required to draw up a Maintenance Schedule to be approved by the Inspectorate. This document contains a list of all plant items of safety significance, the type and frequency of their examination, and a reference to the appropriate instruction where the details of the maintenance are set out. The iodine trapping plant is included in this schedule with the intervals stated for example, when the decontamination factor is to be checked. The reactor must be shut down at specified intervals for internal examination of the pressure vessel.

which provides the most suitable opportunities for the inspection of the iodine trapping plant. Before an approval is given to enable the licensee to start-up the reactor, those persons appointed are required to certify the approved maintenance has been carried out.

If, as a result of experience obtained during operation, the licensee wishes to make modifications to the plant, any resulting change in the original design must first be justified to the Safety Committee, and formal approval obtained before the modification can be undertaken. This procedure has been formalised by including suitable requirements in the licence conditions. The need for renewing the charcoal beds of the CEGB iodine sorption plants after test results had indicated low efficiencies, discussed in the paper by M. Stead (5), is one problem which was considered in this manner.

All the above procedures contribute towards the protection of the public by ensuring full consideration is given to any possible release of fission products arising in normal operation, and by minimising accidental releases which might arise as a consequence of plant failure.

4 PURPOSE AND REQUIREMENTS OF IODINE TRAPPING PLANTS

The most important hazard to the public arising from a release of radioactivity are the isotopes of radioactive iodine, which may be released with other fission products, into the gaseous coolant following fuel can failure. The two reactor systems in the UK have different fuels and cladding materials, and the behaviour of the two types of fuel element under operating and fault conditions, lead to differences in the requirements for the iodine trapping plants associated with these two reactor systems.

4.1 Gas Cooled Magnox Reactors

Under normal operating conditions the fission products are retained within the uranium metal fuel or contained by its magnox sheath. A few very small failures in the magnox may occur, which are quickly detected by the sensitive burst cartridge detection equipment, and the faulty fuel element can be discharged while the reactor remains

on load. Under these circumstances the iodine activity released into the coolant is negligible, and there is no need therefore for iodine trapping plants.

Under more severe conditions however it is possible that larger quantities of radioactivity might be released and adequate provision must be made for iodine trapping plant should such circumstances arise. The assessment upon which the safety of the design was accepted, postulated the following accident conditions as a basis for the filtration design:

- (i) a single channel fire with the reactor pressurised,
- (ii) a blowdown of a fuel machine containing a burning fuel element,
- (iii) a major failure of the pressure envelope in which the sudden loss of coolant pressure leads to a single channel fire.

In the first two cases, most of the radioactive coolant gas can be passed through the iodine trap. In the third case, fission products released into the coolant would continue to have direct access to the environment through the breach even after the coolant reaches ambient pressure, and this outward movement of contaminated gas would be accompanied by the inleakage of air. As it is desirable to minimise this exchange process to limit core temperatures the operator is expected to inject fresh CO_2 into the reactor to balance the active gas extracted through the iodine removal plant by special extract fans provided.

The amount of I131 in one channel of fuel could approach about 10^4 curies, of which 25% to 50% might be released if a complete channel of fuel melted. It is estimated that approximately 95% of this iodine could plate out on the interior surfaces of the pressure circuit. The iodine trap must therefore retain about 125-250 curies of iodine in a mixture of CO_2 and air which may need to be cooled to about 200°C . Although these figures are thought to be conservative the uncertainties are not such that any serious difficulties arise in specifying the iodine sorption plant capacity, as this plant can be readily designed to trap much larger quantities than these minimum values.

4.2 Advanced Gas Cooled Reactors

Under normal operating conditions a failure of the stainless steel sheath could release a small quantity of iodine contained in the fuel/can interspace. This pin may continue to make a small contribution to the radioactive iodine content of the coolant until the faulty fuel element is discharged by means of the on-load fuelling machine. Provision is therefore made for all coolant vented to atmosphere to pass through iodine traps, one being provided for the reactor and another for the fuel discharge route blow down. These traps are only capable of removing small quantities of iodine, so an emergency iodine trap is provided to cater for any gross coolant contamination should an unexpected number of defective fuel pins exist in the reactor at the same time.

The accidents studied in the safety assessment of this reactor system as the basis of the design, includes a blocked channel with the reactor pressurised and a pressure vessel penetration failure. If a blocked channel were to lead to the release of a large proportion of the fission products present in that channel of fuel, the operator must retain the coolant within the pressure vessel while its radioactivity decays down to an acceptable level. The environmental effects due to leakage of contaminated coolant which takes place during this time can be minimised by recirculating it through the charcoal bed in the by-pass circuit and eventually blowing down the reactor through the emergency iodine trap mentioned above. For the worst depressurisation fault, few pins are estimated to fail, since the can stresses due to the build up of fission product gas pressure is well below the can rupture strength in all but the most highly irradiated pins. Should pin failures occur while the coolant pressure is falling, the operator is unlikely to be able to take any remedial measures to influence any activity which might escape to the environment. The dose to the public for this unlikely accident is however a satisfactory margin below the internationally recommended Emergency Reference Levels. Once the coolant has reached ambient pressure the damaged pins will make no further significant contribution to the coolant activity, and the operator is expected to concentrate on

maintaining a small positive pressure to inhibit air ingress.

4.3 Active Caves and Hot Boxes

Iodine removal plant for caves and hot boxes is not required if operations are restricted to irradiated fuel in which the active iodine has been allowed to decay to levels of no significance. Where this operating restriction is not imposed, it is necessary to provide one iodine trap for normal operating conditions, and a larger capacity unit for emergency use.

5 DISCUSSION

The safety control of Nuclear Installations in the UK is designed to provide the maximum flexibility in the application of regulations. The two Ministries, DOE and MAFF concerned with disposal of radioactive wastes to the environment, expect any operator of a nuclear installation to justify the need for the radioactive wastes to be discharged and subsequently monitor any effects arising from such discharges. In practice these discharges are far below the ICRP limits.

The very wide powers given to the responsible Ministers under the Nuclear Installations Acts enable them to introduce controls appropriate to any aspect of nuclear safety. Thus the design, construction, commissioning, operation and maintenance of iodine traps fall within this regulatory regime and appropriate controls are introduced whenever required. The licensing regime provides a framework for safety control but does not relieve the licensee of his responsibility for installing and operating his plants safely. The Nuclear Inspectorate provides a continual and independent assessment of the way in which the licensee carries out these responsibilities, and the success of its role reflects the co-operation existing between the Inspectorate and the licensee.

R E F E R E N C E S

- (1) Charlesworth F.R., Gausden R., "Regulatory Control of Nuclear Facilities in the UK". Deutsches Atomforum, Hamburg (1972).
- (2) Gronow W.S., Gausden R., "Licensing and Regulatory Control of Thermal Power Reactors in the United Kingdom," Principles and Standards of Reactor Safety, IAEA, Julich (1973).
- (3) Charlesworth F.R., Gronow W.S., "A Summary of Experience in the Practical Application of Siting Policy in the United Kingdom", Containment and Siting of Nuclear Power Plants (Proc. Symp. Vienna 1967), IAEA, Vienna (1967) 143.
- (4) Gronow W.S., "Application of Safety and Siting Policy to Nuclear Plants in the United Kingdom", Environmental Contamination by Radioactive Materials (Proc. Symp. Vienna 1969), IAEA, Vienna (1969) 549.
- (5) Stead M., "Experience in testing iodine sorption plants associated with CEBG gas-cooled reactors", Seminar on Iodine Filter Testing, CEC Karlsruhe (1973).

GENEHMIGUNGSRECHTLICHE ASPEKTE DER JODABSCHIEDUNG
IM NORMALBETRIEB UND BEI STÖRFÄLLEN

L.F. Franzen

Institut für Reaktorsicherheit der TÜV
Köln - B.R. DEUTSCHLAND

KURZFASSUNG. Jod als biologisch wichtigstes Spaltprodukt wurde bereits in den Gutachten und Genehmigungsbescheiden für die ersten deutschen Kernkraftwerke von der Entstehung bis zur Abgabe verfolgt. Die Kenntnisse über Menge, Konzentration, Zusammensetzung waren jedoch zunächst ungenügend und entwickelten sich im Laufe der Zeit. Dabei zeigte sich, dass der Hauptbeitrag zu Jodableitungen im Normalbetrieb nicht aus den Abgasanlagen, sondern aus den Abluftanlagen zu erwarten war. Leckagen der Primärsysteme wirkten sich aufgrund unterschiedlicher Lüftungsprinzipien (Frischluf- bzw. Umluftbetrieb) unterschiedlich auf die Jodableitungen aus.

Die Bemühungen um Verringerung der Jodableitungen führten im Laufe der Zeit zum Einbau von Aktivkohlefiltern in den verschiedensten Lüftungssystemen, wobei die Auslegungsanforderungen laufend erweitert und näher spezifiziert wurden. Eine vergleichbare Entwicklung lässt sich für die Ueberlegungen im Zusammenhang mit einschlägigen Störfallanalysen bewährter Reaktortypen erkennen. Hinsichtlich Wiederaufarbeitungsanlagen gibt es nur die Festlegungen für eine Versuchsanlage.

Das Fehlen umfangreicher Messergebnisse lässt ein einschlägiges Untersuchungsprogramm dringend erscheinen, wie es etwa aus den Vereinigten Staaten bekannt geworden ist. Die Standardisierung der Anforderungen in sicherheitstechnischen Regeln steckt noch in den Anfängen.

SUMMARY. LICENSING ASPECTS OF IODINE TRAPPING DURING NORMAL OPERATION AND IN CASE OF ACCIDENTS. In the assessment and licensing reports for the earliest German nuclear power stations iodine was already recognised as a fission product of the greatest biological importance and therefore monitored from its production to its release. At first, however, our knowledge about quantities, concentrations and composition of iodine was insufficient, and only improved in the course of time. It became apparent that the ventilation system rather than the gas exhaust system should be regarded as the main source of iodine release in normal working conditions. Leakages from the primary system resulted in varying amounts of iodine releases according to the ventilation principle applied (open or closed circuit ventilation system).

Efforts to reduce iodine releases led in time to the installation of activated charcoal filters in the most widely varying ventilation systems, and to fuller and more precise design specifications. A similar development appears in connection with considerations related to appropriate accident analyses of proved reactor types. For reprocessing plants there actually exist only regulations for a pilot-plant. The fact that so few measurements have been made makes an appropriate research programme a matter of urgency, as has been recognised from experience in the United States. Standardization of requirements in technical safety regulations has only just begun.

RESUME. ASPECTS REGLEMENTAIRES RELATIFS A LA RETENTION D'IODE EN EXPLOITATION NORMALE ET EN CAS D'ACCIDENT. L'iode étant biologiquement parlant l'un des plus importants produits de fission a été pourchassé

depuis sa formation jusqu'à son rejet dès la phase d'expertise et de licence d'autorisation des premières centrales nucléaires allemandes. Les connaissances, au début insuffisantes, que l'on avait de sa quantité, de sa concentration et de sa composition, se sont développées avec le temps. Il est alors apparu qu'en marche normale c'est des installations de rejet d'air et non de celles d'extraction de gaz qu'il fallait attendre l'essentiel des rejets d'iode, les fuites du circuit primaire ayant, du fait de principes différents de ventilation (en circuit ouvert ou avec recyclage) des effets différents sur les rejets d'iode.

Les efforts pour réduire les rejets d'iode ont conduit, par la suite, à monter des filtres à charbon actif sur les systèmes de ventilation les plus divers en développant sans cesse et précisant toujours plus les spécifications de ces filtres. On observe une évolution comparable des considérations relatives aux analyses d'accident concernant des types éprouvés de réacteur. Pour les usines de retraitement les seules spécifications qui existent concernent une installation expérimentale. L'absence de résultats de mesures suffisants fait apparaître l'urgence de lancer un programme de recherches tel celui entrepris aux Etats-Unis. La normalisation des spécifications en matière de règles techniques de sécurité ne fait que commencer.

1. Einführung

Wenn hier ein internationales Seminar über Jodfilter und ihre Prüfung so viele interessierte Fachleute anzieht, könnte man vermuten, daß es sich um ein neuartiges Problem handelt. Das ist jedoch nicht der Fall, da Radiojod als radiologisch wichtigstes Spaltprodukt bereits in den Sicherheitsanalysen der ersten deutschen Kernkraftwerke von der Entstehung bis zur Abgabe an die Umgebung verfolgt wurde. Eindrucksvoller Beleg dafür sind die Unterlagen, die im Rahmen des atomrechtlichen Genehmigungsverfahrens erstellt worden sind, insbesondere Sicherheitsberichte, Gutachten und Genehmigungsbescheide. Ihre Auswertung bildet die Grundlage der folgenden Ausführungen. Aus ihnen läßt sich mühelos entnehmen, wie sich nicht nur auf Seiten der Antragsteller, sondern auch auf Seiten der Gutachter die Kenntnisse über Menge, Konzentration und Zusammensetzung des in kerntechnischen Anlagen anfallenden Jods erweitert und verändert haben. Dies erklärt manches, aus heutiger Sicht unausgewogene Urteil, seine Unvollständigkeit und Revisionsbedürftigkeit.

Beim bestimmungsgemäßen Betrieb von Kernkraftwerken rühren die Hauptbeiträge zu den Jodableitungen nicht aus den Abgas-, sondern aus den Abluftanlagen. Insbesondere sind in diesem Zusammenhang die unvermeidlichen Leckagen aktivitätshaltiger Systeme und Komponenten zu erwähnen. Dabei wirken sich die bislang für Druck- und Siedewasserreaktoren unterschiedlichen Lüftungsprinzipien (Umluft- bzw. Frischluftbetrieb) auch unterschiedlich auf die abzuleitenden Jodmengen aus. Bei den störfallbedingten Jodfreisetzungen, insbesondere als Folge des im atomrechtlichen Genehmigungsverfahrens intensiv analysierten Auslegungstörfalls, spielt das Containmentprinzip die entscheidende Rolle. Neben der Unterscheidung nach Volldruck- und Druckunterdrückungssystem ist darauf zu achten, ob Leckagen aus dem Sicherheitsbehälter abgegeben oder rückgepumpt werden. Die Verhältnisse in Wiederaufarbeitungsanlagen stellen einen Sonderfall dar; die Erfahrungen stammen hier von einer einzigen, seit einigen Jahren in Betrieb befindlichen Versuchsanlage.

2. Druckwasserreaktoren

Zwei Kernkraftwerke mit Druckwasserreaktoren sind in der Bundesrepublik in Betrieb. Die entsprechenden Genehmigungsverfahren sind abgeschlossen, so daß hier vollständige Sätze der erstatteten Gutachten und erteilten Genehmigungsbescheide überprüft werden konnten. Daneben wurden die bisher verfügbaren Unterlagen weiterer im Bau befindlicher Anlagen herangezogen. Dem Lüftungsschema der deutschen Kernkraftwerke mit Druckwasserreaktoren liegt das Umluftprinzip (Abb. 1) zugrunde. Der Sicherheitsbehälter ist lüftungstechnisch in Anlage- und Betriebsräume aufgeteilt. Die Anlagenräume werden in reinem Umluftbetrieb gekühlt, eine Bypassstrecke ermöglicht die Abscheidung radioaktiver Stoffe, gegenüber den Betriebsräumen wird Unterdruck gehalten. Die Betriebsräume werden ursprünglich mit Frischluft gekühlt, später kommen Umluftanlagen dazu. So lassen sich die Querschnitte von Zu- und Abluftleitungen trotz steigender Blockgröße verkleinern.

Für die Festlegung der Anforderungen an die Jodfilter, wie sie sich aus den im bestimmungsgemäßen Betrieb zu erwartenden Ableitungen ergaben, fehlten zunächst Erfahrungen. Die Kenntnisse über wichtige Einflußgrößen, wie die Jodkonzentration im Kühlmittel, zu erwartende Primärkreisleckagen, Abstreiffaktoren, auftretende Jodformen und deren Eigenschaften, waren lückenhaft. Durch noch so intensives Literaturstudium konnten manche Widersprüche nicht ausgeräumt werden, denn bis heute gibt es nur wenige brauchbare Veröffentlichungen zu diesem Problemkreis. Geringfügig besser stellte sich die Situation hinsichtlich der zu erwartenden Jodfreisetzungen beim Auslegungsstörfall dar. Nach dem üblichen mechanistischen Modell, dessen Wurzeln in frühe amerikanische Berechnungsbeispiele zurückreichen, platzen dabei alle Brennelemente auf und entlassen das in dem Hohlraum zwischen Hülle und Brennstoff gespeicherte Jod. 10 % des Brennstoffs erreichen Temperaturen, bei denen darin enthaltenes Jod quantitativ ausgetrieben wird. Ergebnis ist unter Berücksichtigung 50%iger Abscheidung innerhalb des Sicherheitsbehälters eine Jodfreisetzung von 9,5 % des Kerninventars. Für die Auslegung der Jodfilter ist wichtig, daß 10 % in organischer, die Masse jedoch in elementarer Form vorliegen soll.

Weitere Details ergeben sich, wenn man einmal KWO, KKS, Biblis und KKK, wie die so praktischen Abkürzungen lauten, Revue passieren läßt:

Die ersten Äußerungen bzw. Entscheidungen für Obrigheim (KW0) zu den hier angesprochenen Fragen gehen in die Jahre 1965/67 zurück. Was blieb zur damaligen Zeit weiter übrig, als unter Zuhilfenahme des gesunden Menschenverstandes und einer kräftigen Portion Vorsicht überall dort Jodfilter vorzusehen bzw. zu verordnen, wo es aus Gründen des Umweltschutzes angebracht erschien. Interessanterweise gab es dabei kaum Auseinandersetzungen zwischen Antragsteller und Gutachter, zumindest ist aus den Unterlagen nichts darüber zu entnehmen. Was war das Ergebnis? Jodfilter wurden für die gering dimensionierte Abluftanlage ($500 \text{ m}^3/\text{h}$) der Anlagenräume und für die Ringraumabsaugung (max. $3000 \text{ m}^3/\text{h}$) vorgesehen, die ersten für den zur Unterdruckhaltung und gerichteten Luftströmung erforderlichen kontinuierlichen Betrieb, die zweiten für den Bedarfsfall der Leckageabfuhr aus dem Sicherheitsbehälter (Abb. 2). Dementsprechend waren die vorgesehenen Abscheidegrade 99 und 99,9 % (1). In den Ausführungen der Gutachter zum Auslegungsfall finden sich die zweifellos richtigen Anmerkungen: "Wir wissen von neueren Arbeiten in amerikanischen und britischen Forschungszentren, daß insbesondere die Höhe des Filterwirkungsgrades für Halogene sehr stark davon abhängt, ob die Halogene gasförmig, an Aerosole angelagert oder in Form organischer Verbindungen, die offenbar nicht zu vermeiden sind, vorliegen. Wir halten es daher für unerlässlich, daß der Betreiber bzw. Reaktorhersteller vor Aufnahme des Reaktorbetriebes den Filterwirkungsgrad für die zum Einsatz gelangende Filterart und -konstruktion experimentell unter adäquaten Versuchsbedingungen nachweist" (2). Die Genehmigungsbehörde schließlich verlangte hierzu folgende Nachweise (3):

- einen Filterwirkungsgrad für sämtliche in der Abluft enthaltenen Feststoffe und Halogene von mindestens 99,9 %,
- keine Verschlechterung der Eigenschaften, z.B. durch Alterungserscheinungen, während der gesamten Dauer der Betriebsbereitschaft der Filter,
- genügend große Kapazität der Filter,
- Vermeidung von Absorbergiften in der zu filternden Abluft,
- Vorrichtungen zur regelmäßigen und genauen Bestimmung der garantierten Filterwirkungsgrade.

Umfang und Detailliertheit dieser Forderungen sind auch aus heutiger Sicht bemerkenswert!

In Stade (KKS) waren die Forderungen der Gutachter gestiegen, die Zahl der eingebauten Jodfilter gewachsen. Wohl blieb das Grundprinzip des Lüftungs-

schemas erhalten, jedoch wurde nunmehr die Bypassumluft in den Anlagenräumen des Reaktorgebäudes ebenfalls über Jodfilter geführt (Abb. 3). Maßgebend hierfür waren offensichtlich Befürchtungen, daß sich bei längerem Reaktorbetrieb eine allgemeine Jodkontamination der Anlagenräume einstellen könnte, die entsprechend erschwerte Wartungs- und Reparaturarbeiten sowie vermeidbare Strahlenbelastungen des Betriebspersonals nach sich zöge. Hier waren $5000 \text{ m}^3/\text{h}$ durchzusetzen, wobei der Antragsteller für elementares Jod einen Abscheidegrad von 99 % und für organische Jodverbindungen von 70 % beanspruchte (4), der Gutachter aber nur pauschal 50 % zugestand (5). Der Grund für derartig niedrige Werte dürfte in der schlechten Zugänglichkeit zu sehen sein. Die Auslegung der Jodfilter für die Abluft aus Anlagenräumen und Ringraumabsaugung entsprach der von Obrigheim. Merkwürdigerweise wird in den Genehmigungsbescheiden kein Bezug auf die Jodfilter, sondern nur generell auf die Filteranlagen genommen. Das darf jedoch nicht dahingehend ausgelegt werden, daß die entsprechenden Anforderungen nicht gestellt wurden; vielmehr stellte das im Sicherheitsbericht und in den ergänzenden Unterlagen enthaltene Angebot des Antragstellers bereits Gutachter und Genehmigungsbehörde zufrieden.

Die wichtigste Neuerung im Lüftungsschema Biblis-A war dann die Einführung des Umluftprinzips auch für die Betriebsräume, allerdings ohne Filterung, so daß die Frischluft nur noch einen Bruchteil der anfallenden Wärme abzuführen hat. Abgesehen von Luftdurchsätzen und den davon abhängigen Einheitsgrößen ließen sich keine Änderungen hinsichtlich der Jodfilter finden. Unabhängig von der Betriebsart wird allgemein ein Abscheidegrad von 99 % zugrunde gelegt (6). Dazu schreiben die Gutachter: "Der Wirkungsgrad von 99 % ist grundsätzlich technisch realisierbar und beinhaltet einen Sicherheitsfaktor von 1 bis 2 Größenrechnungen. Durch geeignete Labor- und Vor-Ort-Prüfungen ist eine weitgehend gesicherte Aussage für die Wirkung unter den angenommenen Unfallbedingungen möglich. Es wird dabei vorausgesetzt, daß Detailfragen, wie Kapazität, Betriebsdauer, Feuchtigkeit, Beladung mit Aktivität und Methyljodid, Standzeit usw., zufriedenstellend untersucht werden. Der tatsächliche Wirkungsgrad der Aktivkohlefilter beim Auslegungsunfall hängt jedoch entscheidend davon ab, wieweit die tatsächlichen Verhältnisse den Annahmen entsprechen. Durch die starke Abhängigkeit des Filterwirkungsgrades von Beaufschlagungsänderungen sind auch die erwähnten Sicherheitsfaktoren bei Zusammentreffen verschiedener ungünstiger Ereignis-

nisse nicht ausreichend. So ist beispielsweise bekannt, daß Feuchteinflüsse die Wirksamkeit von Methyljodid überhaupt in Frage stellen können. In Verbindung mit dem längere Zeit unter Druck stehenden und ein Luft/Dampf-Gemisch enthaltenden Sicherheitsbehälter besteht hier zumindest die potentielle Gefahr einer erheblichen Beeinflussung des Aktivkohlewirkungsgrades und damit der Unfallauswirkungen. In diesem Zusammenhang ist auch die Anordnung der Notkühlanlagen im Ringraum bei einem angenommenen Rohrbruch in einem der Systeme als unzweckmäßig zu beurteilen. Hier muß zumindest die Möglichkeit einer ausreichenden Entwässerung gegeben sein, um den Feuchtegehalt der Ringspaltluft so gering wie möglich zu halten" (7). Da haben wir also bereits konkurrierende Anforderungen, wobei der sicheren Aufstellung der Notkühlanlagen außerhalb des Sicherheitsbehälters aber der Vorrang gegenüber einer möglichen Beeinträchtigung der Ringraumabsaugung gegeben wurde.

Der Übergang zu Unterweser (KKU) brachte nochmals eine Vermehrung der Jodfilter, nunmehr in der Bypassumluft ($5000 \text{ m}^3/\text{h}$) der Betriebsräume (Abb. 4) (8). Die Gründe dafür dürften ähnlich sein wie bei der Einführung in die Bypassumluft der Anlagenräume, obwohl bisher kein Zahlenmaterial auf Grund von Betriebserfahrungen bekanntgeworden ist, das diese Maßnahme zwingend erforderlich macht. Hinsichtlich Verfolgung möglicher Alterungserscheinungen verlangen die Gutachter ausdrücklich: "Die Aktivkohlefilter sind mit je zwei Bypassen zur Entnahme von Proben zur Verfolgung der Kohlealterung zu versehen" (9).

Das soll den Überblick über die Jodfilter in Kernkraftwerken mit Druckwasserreaktoren beschließen.

3. Siedewasserreaktoren

Eine vergleichbare Entwicklung der an die Jodfilter in deutschen Kernkraftwerken mit Siedewasserreaktoren gestellten Anforderungen läßt sich unschwer in den einschlägigen Gutachten und Genehmigungsbescheiden nachzeichnen. Jedoch fällt zweifellos auf, daß die beiden Demonstrations-Kernkraftwerke Gundremmingen (KRB) und Lingen (KWL) überhaupt keine Jodfilter haben. Hier, wie auch bei allen danach errichteten Siedewasseranlagen ist

das Frischluftprinzip zur Anwendung gekommen, wenn auch in unterschiedlicher Ausgestaltung und mit zunehmenden Anleihen beim Umluftprinzip (Abb. 5). Man kann relativ rasch über die beiden genannten Anlagen hinweggehen, die als Sonderfälle anzusehen sind. Immerhin muß festgehalten werden, daß die Jodüberwachung am Kamin bisher keine Anhaltspunkte für unzulässige Ableitungen in die Umgebung erbracht hat (Tab. I).

Konzentriert man sich auf die Baureihe KWW, KKB, KKP und KKI, die Sicherheitsbehälter mit Druckunterdrückungssystem verwenden, so ist zum grundsätzlichen Aufbau des Lüftungsschemas zu bemerken, daß unter normalen Betriebsbedingungen in der Abluft des Reaktor- und Aufbereitungsgebäudes keine Aerosol- oder Jodfilter vorhanden sind. Jedoch gibt es diese in der Spülluftanlage und in der Stopfbuchsabsaugung. Die erste ist für besondere Betriebserfordernisse, in denen mit dem Auftreten radioaktiver Stoffe gerechnet werden kann, vorgesehen. Sie dient zur Filterung und Ableitung der zur Spülung des Sicherheitsbehälters oder des Ringspaltfundaments vor Betreten durchgesetzten Luft, wird darüber hinaus zur Rückhaltung radioaktiver Stoffe eingesetzt, die beim Brennelementwechsel auf der Reaktorbedienungsbühne freigesetzt werden könnten. Die Stopfbuchsabsaugung war vom Antragsteller angeboten worden, um durch Leckagen des Primärkreises bedingte Aktivitätskonzentrationen im Reaktorgebäude und in der Gebäudeabluft gering halten zu können. Beide Systeme haben Jodfilter, auf die noch zurückzukommen ist (Abb. 6). Das mechanistische Modell, das im Zusammenhang mit der Analyse des Auslegungstörfalls bei Druckwasseranlagen bereits erläutert worden war, findet sich in leicht abgewandelter Form auch in den Gutachten für Kernkraftwerke mit Siedewasserreaktoren. Die durch den Sicherheitsbehälter mit Druckunterdrückungssystem bedingten Abweichungen bestehen darin, daß das aus dem Hohlraum zwischen Hülle und Brennstoff entweichende Jod, soweit es in elementarer Form vorliegt (90 %), beim Durchgang durch die Wasservorlage zu 99,99 % oder 99,9 %, der organische Anteil (10 %) dagegen überhaupt nicht ausgewaschen werden soll. Die Austreibung des Jods aus dem hochoberhitzten Anteil des Brennstoffes setzt erst nach Abschluß des Kondensationsvorganges ein. Die Druckkammersprühanlage soll eine weitere Verringerung der Aktivitätskonzentration in der Containmentatmosphäre bewirken, ausgenommen sind jedoch entweder Halogene pauschal oder zumindest organisches Jod. Bezogen auf das Kerninventar gelangen damit einige Prozent des Jods in das Innere des Sicherheitsbehälters, wovon wech-

selnde Anteile auf die elementare und organische Form entfallen. Hierauf ist dann bei der Auslegung der Jodfilter Rücksicht zu nehmen.

Im Falle Würgassen (KWW) wird von 1,4 % Jod im Innern des Sicherheitsbehälters mit einer 35:65-Aufteilung auf den elementaren und organischen Anteil ausgegangen (10). In den einschlägigen Gutachtens- und Genehmigungsbedingungen finden sich sonst nur allgemeine Festlegungen, die ohnehin jeder unterschreiben kann, etwa: "Als Aktivkohlefilter darf nur ein bewährter Typ verwendet werden. Der Abscheidegrad der Aktivkohle muß mindestens 99,9 %, der des eingebauten Aktivkohlefilters mindestens 99 % für eine Mischung von 90 % elementaren Jods und 10 % organischer Jodverbindungen betragen. Im Labortest sind möglichst gleiche Beladung wie nach Kühlmittelverlustunfall und 100 % relative Feuchte als Versuchsbedingungen zu wählen" (11). Nach den vorherigen Ausführungen ist die Frage nur zu berechtigt, warum hier diese 90:10-Aufteilung zwischen elementarem und organischem Jod, wenn doch hinsichtlich der Anteile in den normalen Ableitungen nur bessere Vermutungen vorliegen und bei störfallbedingten Freisetzungen ein Überwiegen des organischen Anteils zugrunde gelegt wird. Statt einer umfassenden kann nur eine partielle Antwort dahingehend gegeben werden, daß auch unter derart veränderten Beaufschlagungsbedingungen die Jodfilter den spezifizierten Abscheidegrad erreichen. Insofern hat die 90:10-Aufteilung mehr die Bedeutung eines normierten Bezugssystems. Weiter heißt es in der Betriebsgenehmigung: "Die Qualität der Filter ist laufend zu überwachen. Insbesondere muß zu Beginn jeder Inbetriebnahme der Spülluftanlage zum Brennelementwechsel geprüft werden, ob die Kapazität der Filter ohne zwischenzeitlichen Wechsel noch ausreichend ist" und: "Bei dem Aktivkohlefilter ist die Qualität der Aktivkohle mindestens einmal jährlich prüfen zu lassen" (12).

In Brunsbüttel (KKB) ergab sich gegenüber Würgassen eine neue Lage, da der Ersatz der externen Umwälzschleifen durch interne Axialpumpen zur Konsequenz hatte, daß die zugehörigen aktivitätshaltigen und druckführenden Lagerdruckwasserleitungen aus dem Sicherheitsbehälter in das Reaktorgebäude und wieder zurück geführt werden mußten. Die Diskussion über Wahrscheinlichkeit und Auswirkungen eines Bruches dieser Leitungen beschäftigte Antragsteller, Gutachter und Behörden. Die hier im Vordergrund stehenden Folgerungen für Lüftungsanlagen und Filterauslegung bestanden darin, daß

zusätzliche Anforderungen an die Spülluftanlage gestellt wurden. Danach war die Spülluftanlage so auszulegen, daß damit bei ganz oder teilweise abgeschalteter Frischluftanlage in den Räumen, in denen bei Aktivitätsfreisetzungen definierte Grenzwerte überschritten werden können, ein ausreichender Unterdruck gehalten wird. Die Ventilatoren der Spülluftanlage mußten deshalb auch an die Notstromversorgung angeschlossen werden. Da zur Zeit der Überprüfung der Lüftungsanlagen noch keine Erfahrungen mit der Stopfbuchsabsaugung in Würgassen vorlagen, wurden keine zusätzlichen Anforderungen, soweit sie sich auf die vorgesehenen Jodfilter beziehen, gestellt. Die Ringspaltabsaugung dagegen wurde ertüchtigt, indem zusätzlich zu den vorhandenen Aerosolfiltern nun auch der Einbau von Jodfiltern vorgeschrieben wurde (Abb. 7). Dies erschien im Hinblick auf die Anforderungen an die Ringraumabsaugung bei Druckwasseranlagen nur konsequent, da dann je nach den Gegebenheiten einer störfallbedingten Freisetzung radioaktiver Stoffe in den Sicherheitsbehälter zwischen Rückförderung der Leckage oder gefilterter Abgabe über Kamin gewählt werden kann. Zur Berücksichtigung der Alterung von Jodfiltern empfahlen die Gutachter: "Jodfilter sind mit einem ausreichenden Zuschlag für Alterung und Vergiftung des Absorbermaterials auszulegen. Dieser Zuschlag ist im allgemeinen dann gegeben, wenn der Abscheidegrad des neuen Jodfilters bei Beaufschlagung mit Methyljodid unter ungünstigsten Betriebsbedingungen den geforderten Gesamtabscheidegrad erreicht oder übertrifft" (13). Der Vollständigkeit halber ist noch hinzuzufügen, daß bei der Analyse des Auslegungsstörfalles dem Druckkammersprühsystem kein Kredit hinsichtlich Auswaschung radioaktiver Stoffe aus der Containmentatmosphäre gegeben wurde, so daß sich dann den Jodfiltern eine 80:20-Aufteilung von elementarem zu organischem Jod darbietet (14).

Philippsburg (KKP) und Isar (KKI) unterscheiden sich, obwohl nur kurze Zeit nach Brunsbüttel ausgelegt, in Details der Lüftungs- und Filteranlagen. So wurden allgemein die Durchsätze durch die Spülluftanlagen heraufgesetzt, um den erweiterten Aufgabenkatalog zuverlässiger abdecken zu können. Hinsichtlich der Jodzusammensetzung in den normalen radioaktiven Ableitungen lagen keine neuen Erkenntnisse vor; bei den störfallbedingten Freisetzungen führten geänderte Annahmen zu weiteren Variationen der Aufteilung nach elementarer und organischer Komponente. Erstmals in Isar wurde von den Gutachtern eine Ausrüstung der Umluftanlage im Sicherheits-

behälter mit Schwebstoff- und Aktivkohlefilter zumindest in einer Bypassstrecke gefordert, sofern nicht die Unbedenklichkeit der Kontamination nachgewiesen werden kann. Gegenwärtig ist noch nicht bekannt, ob dem seitens des Antragstellers entsprochen wurde. Es ist noch nicht ganz klar, ob diese Forderung unabweisbar ist, da offensichtlich selbst in Würiggassen nach den bekannten Störfällen keine Kontaminationsprobleme im Sicherheitsbehälter aufgetreten sind.

4. Wiederaufarbeitungsanlagen

Nicht direkt vergleichbar mit den vorstehend behandelten Kernkraftwerken sind die Verhältnisse in Wiederaufarbeitungsanlagen. In der einzigen deutschen Versuchsanlage, die bisher errichtet und betrieben wurde, ist nur in der Abgas-, nicht in der Abluftanlage eine Jodfilterung vorgesehen, da lediglich bei Störfällen, etwa Fehlschnitt von Brennelementen, mit einem Auftreten von Jod im Abluftstrom zu rechnen ist. In diesem Fall wird mit einem Filterwirkungsgrad der Aerosolfilter für Jod von 90 % gerechnet, was zwar zweifelhaft erscheint, jedoch wegen der selbst bei einem vollständigen Versagen immer noch geringen Joddosis in der Umgebung unbedenklich ist. In der Abgasanlage wird das aus dem Auflöser stammende Jod durch Rücklaufkondensator, Füllkörperkolonne, Abgasfilter, Waschkolonne und Absolutfilter abgeschieden. Aus dem Abgas der Behälterentlüftung wird Jod durch Waschkolonne und Absolutfilter, bei Durchbrechen der Wasseranlage nur durch die Waschkolonne entfernt. Da die Jodabscheidung durch Waschverfahren als technisch unerprobt angesehen wurde, hielten die Gutachter den experimentellen Nachweis eines Abscheidegrades für Jod von 99 % unter Störfallbedingungen für erforderlich (15). Dieser Wert wurde jedoch im praktischen Betrieb nicht erreicht. Allgemein muß jedoch berücksichtigt werden, daß es sich bei der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) um eine Versuchsanlage mit geringem Durchsatz handelt. Die mit ihrem Betrieb gesammelten Erfahrungen werden unter Berücksichtigung sonstiger neuer Erkenntnisse in die Planung der künftigen kommerziellen Anlage eingehen.

5. Schlußfolgerung

Rückblickend auf die Entwicklung sicherheitstechnischer Anforderungen an Jodfilteranlagen erscheint eine weitere Absicherung durch Betriebserfahrungen und eine stärkere Systematisierung unabdingbar. Entstehung, Transport, Abscheidung und Verbleib des Radiojods sind noch keineswegs in allen Einzelheiten erfaßt. Insbesondere fehlt experimentelles Material über die bei normalen Ableitungen und störfallbedingten Freisetzungen zu erwartenden Mengen, ihre Zusammensetzung und die sie beeinflussenden physikalischen und chemischen Parameter.

Im Laufe von noch nicht zehn Jahren sind in den kerntechnischen Anlagen mehr und mehr Fortluft- und Umluftanlagen mit Jodfiltern bestückt worden. Wenn man vielleicht auch nicht soweit gehen muß wie ein Gutachter, der formulierte: "Bei der Festlegung, welche Abluftstränge mit Filtern ausgerüstet sein müssen, ist von dem Grundsatz auszugehen, daß jegliche, möglicherweise aktivitätshaltige Abluft über Filter geführt werden muß. Daher sind zumindest im Bedarfsfall automatisch zuschaltbare Filter für die betreffenden Abluftkanäle vorzusehen.", so bleibt die Situation wegen des übergroßen Ermessensspielraumes doch unbefriedigend. Was die Jodfilter selbst betrifft, ist die Situation wesentlich günstiger. Die spezifizierten Abscheidegrade sowohl der Kohle als auch der fertigen Filter werden zuverlässig erreicht. Wiederholungsprüfungen kontrollieren die Einhaltung während des Betriebes, Alterungserscheinungen lassen sich frühzeitig erkennen. Andere Absorbermaterialien wurden untersucht, neue Anwendungsmöglichkeiten, speziell zum Aktivitätsabbau in Containmentatmosphären, werden noch erschlossen.

Aus den weit verstreuten Stellungnahmen der Gutachter und den Entscheidungen der Genehmigungsbehörden wurde die historische Entwicklung sicherheitstechnischer Anforderungen nachgezeichnet, wobei allerdings nur die wichtigsten Linien, nicht alle Details zum Vorschein kamen. Das liegt an den ausgewerteten Unterlagen, die einfach nicht mehr hergeben. Hier wären Sicherheitsspezifikationen, ähnlich den amerikanischen Technischen Spezifikationen, hilfreich gewesen. Es ist zu erkennen, daß in weiten Bereichen bereits eine Konsolidierung erreicht ist, die die Aufstellung sicherheitstechnischer Regeln ermöglicht. In dieser Richtung werden die begonnenen Arbeiten fortgeführt.

6. Schrifttum

- (1) Siemens AG, 300-MWe-Kernkraftwerk Obrigheim mit Druckwasserreaktor, Teil I/II, 06.1967
- (2) Technischer Überwachungs-Verein Baden e.V., Kernkraftwerk Obrigheim, Standort - Maximal anzunehmender Unfall - Abgabe radioaktiver Stoffe während des Normalbetriebs - Sicherheitsbehälter, Technischer Bericht VI-65-400, 02.1965
- (3) Wirtschaftsministerium Baden-Württemberg, Erste Teilerrichtungsge-
nehmigung für das Kraftwerk Obrigheim, 16.03.1965
- (4) Siemens AG, Kernkraftwerk Stade mit Druckwasserreaktor 1892 MW_{th} -
Sicherheitsbericht, Band I/II, 04.1972
- (5) Technischer Überwachungs-Verein Norddeutschland, Gutachten über die
Sicherheit des 600-MW_{e1}-Kraftwerks mit Druckwasserreaktor in Stade,
Teil I, 03.1968
- (6) Kraftwerk-Union AG, 1200-MWe-Kernkraftwerk mit Druckwasserreaktor
für den Standort Biblis - Sicherheitsbericht, Band I/II, 05.1969
- (7) TÜV Bayern e.V., Gutachtliche Stellungnahme zum Sicherheitsbericht
des 1200-MW_{e1}-Kernkraftwerks mit Druckwasserreaktor für den Stand-
ort Biblis, 12.1969
- (8) Kraftwerk Union AG, Sicherheitsbericht - 1300-MWe-Kernkraftwerk mit
Druckwasserreaktor für Nordwestdeutsche Kraftwerke AG, Band I/II,
03.1971
- (9) TÜV Norddeutschland, Gutachten über die Sicherheit des 1300-MWe-
Kernkraftwerks mit einem Druckwasserreaktor für den Standort Esens-
hamm, 08.1973
- (10) Arbeitsgemeinschaft der Technischen Überwachungs-Vereine Hannover/
Rheinland Kernkraftwerk Würgassen, Sicherheitsgutachten über den
600-MW-Kernkraftwerksblock mit einem AEG-Siedewasserreaktor im
Kernkraftwerk Würgassen für das atomrechtliche Genehmigungsverfah-
ren, Teil 5 - Gutachten zum Betrieb, 06.1971

- (11) Arbeitsgemeinschaft der Technischen Überwachungs-Vereine Hannover/Rheinland Kernkraftwerk Würgassen, Sicherheitsgutachten über den 600-MW-Kernkraftwerksblock mit einem AEG-Siedewasserreaktor im Kernkraftwerk Würgassen, Teil 4 - Gutachten über Steuerstäbe, Reaktordruckgefäß mit Steuerstabführungsrohren, Reaktordruckgefäßeinbauten, Kernkühlkreisläufe, Reaktorschutz, Kraftwerksregelung, Elektrische Anlagen, Lüftungsanlagen, Lagerung und Aufbereitung fester radioaktiver Abfälle, Strahlenschutzinstrumentierung, Instrumentendruckluftanlage sowie zur thermischen und hydraulischen Auslegung des Reaktorkerns und zu Störfällen, 02.1969
- (12) Minister für Arbeit, Gesundheit und Soziales sowie Minister für Wirtschaft, Mittelstand und Verkehr des Landes Nordrhein-Westfalen, 8. Teilgenehmigungsbescheid Nr. 7/8, betr. Inbetriebnahme zur Durchführung von Nulleistungs- und Leistungsprüfungen bis zu einer thermischen Leistung von 1912 MW, 27.09.1971
- (13) Technischer Überwachungs-Verein Norddeutschland e.V., Gutachten über die Sicherheit des 770-MWe-Kernkraftwerks mit einem AEG-Siedewasserreaktor für Standort Brunsbüttel, Teil IV - Gutachten zu Kühlsystemen und Hilfs- und Nebenanlagen, 02.1972
- (14) Technischer Überwachungs-Verein Norddeutschland e.V., Gutachten über die Sicherheit des 770-MWe-Kernkraftwerks mit einem AEG-Siedewasserreaktor für Standort Brunsbüttel, Teil I - Gutachten zum Standort und zur allgemeinen Konzeption der Anlage, 07.1970
- (15) Institut für Reaktorsicherheit der TÜV e.V., Gutachten über die Sicherheit der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe, 11.1967

Tabellenüberschrift:

Tab. I

Aerosol- und gasförmige radioaktive Ableitungen aus deutschen Kernkraftwerken, in Ci

Fußnoten:

- 1) Kein besonderer Wert festgelegt, Verweis auf § 34 der 1. StrSchV
- 2) 1/10 des für Edelgase festgelegten Wertes
- 3) 0,13 Ci für die Grünfütterperiode, 15 Ci für die übrige Zeit
- 4) Kein besonderer Wert festgelegt, Verweis auf § 34 der 1. StrSchV

Bildunterschriften:

Abb. 1

Umluftprinzip, dargestellt an der Lüftungsanlage für das Kernkraftwerk Stade

Abb. 2

Schema der Abluftfilterung Kernkraftwerk Obrigheim

Abb. 3

Schema der Abluftfilterung Kernkraftwerk Stade

Abb. 4

Schema der Abluftfilterung Kernkraftwerk Unterweser

Abb. 5

Frischlufprinzip, dargestellt an der Lüftungsanlage für das Kernkraftwerk Würgassen

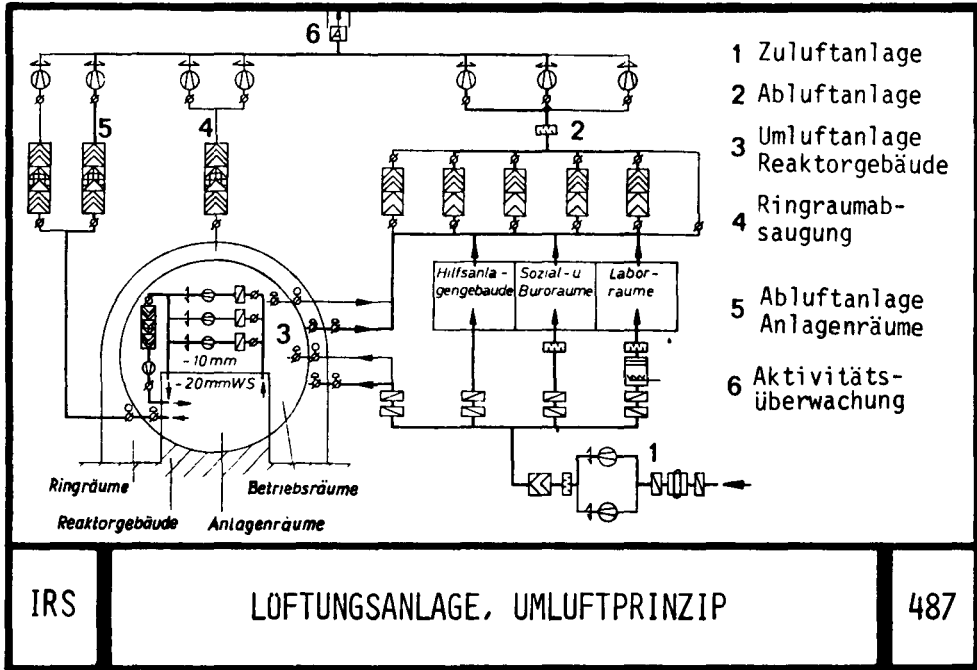
Abb. 6

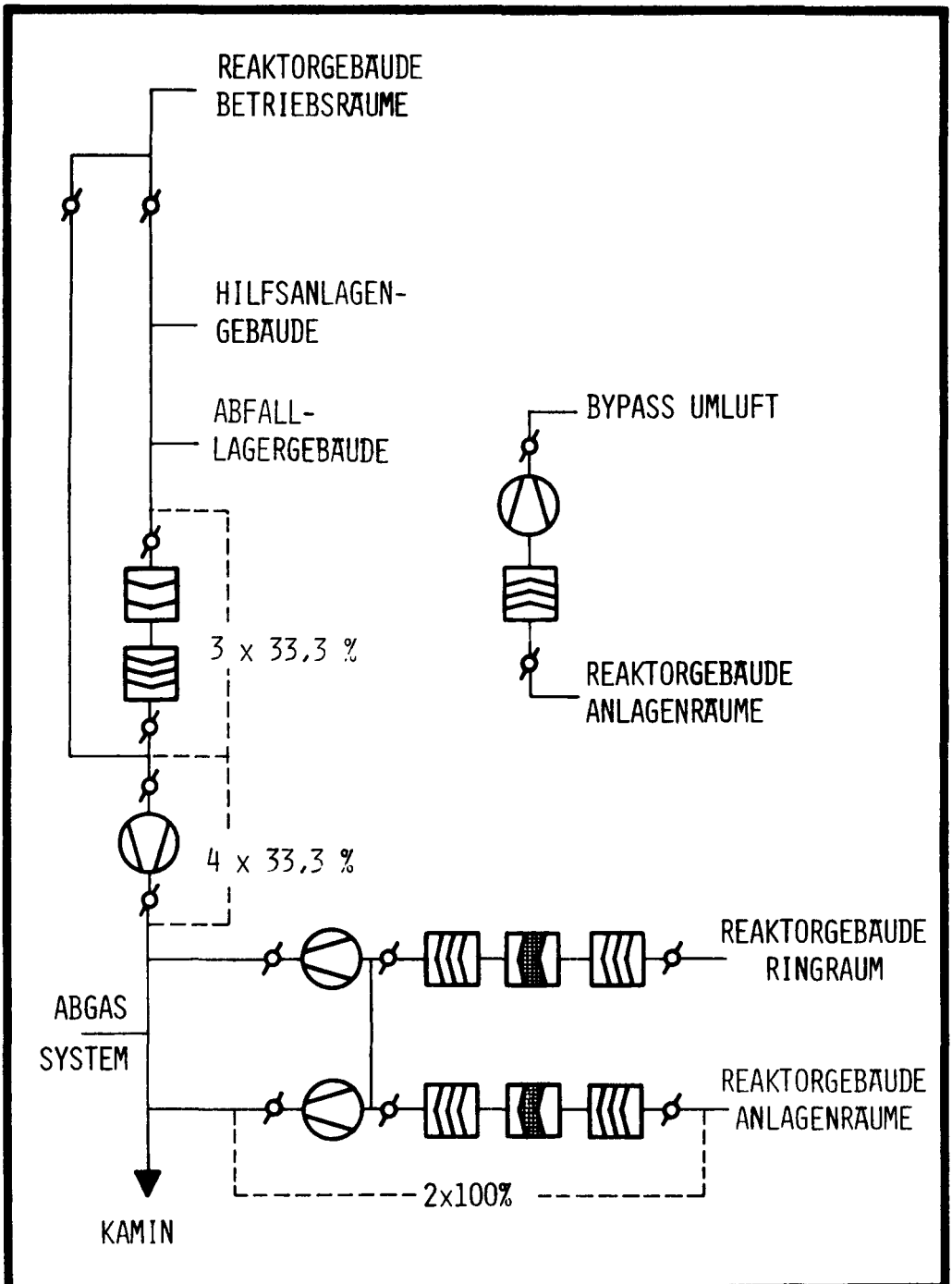
Schema der Abluftfilterung Kernkraftwerk Würgassen

Abb. 7

Schema der Abluftfilterung Kernkraftwerk Brunsbüttel

ABGABEWERTE		GENEHMIGT	1970	1971	1972
KRB	EDELGASE	2 000 000	8 750	1 400	11 027
	JOD-131	22	0,20	0,34	0,19
	AEROSOLE	2 900	0,07	0,05	1,49
KWL	EDELGASE	3 150 000	114 000	8 750	5 100
	JOD-131	-)	0,26	0,38	0,15
	AEROSOLE	(315 000) ?)	250	3,15	1,70
KWO	EDELGASE	80 000	7 500	1 500	3 201
	JOD-131	15/0,13 ?)	0,043	0,015	0,006
	AEROSOLE	-)	0,016	0,054	0,089
KKS	EDELGASE	61 000	-	-	2 500
	JOD-131	0,21	-	-	0,047
	AEROSOLE	18	-	-	0,012
KWW	EDELGASE	32 500	-	-	594
	JOD-131	0,26	-	-	-
	AEROSOLE	10,5	-	-	0,056
IRS	AEROSOL- UND GASFÖRMIGE RADIOAKTIVE ABLEITUNGEN AUS DEUTSCHEN KERNKRAFTWERKEN, IN CI				498

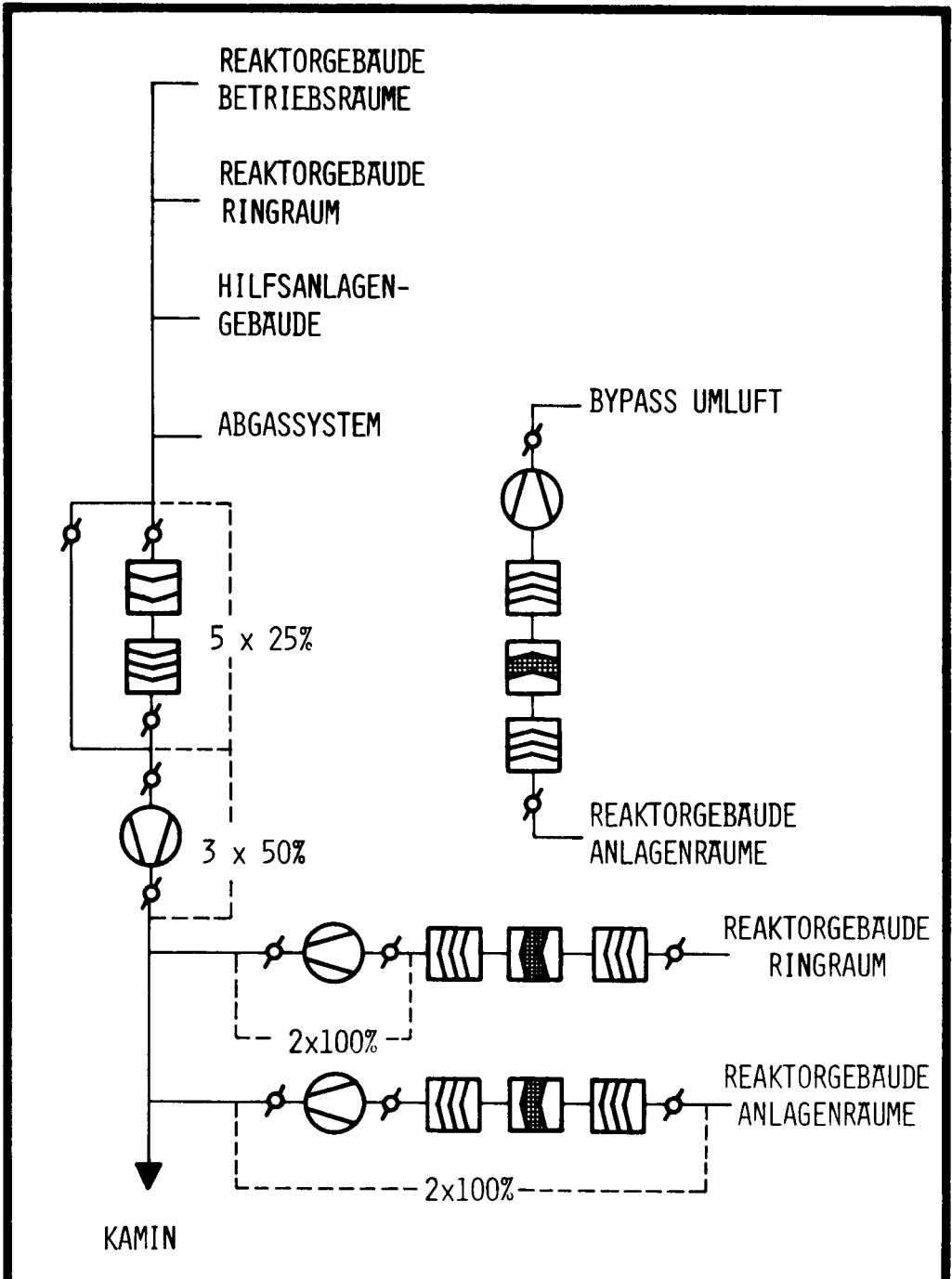


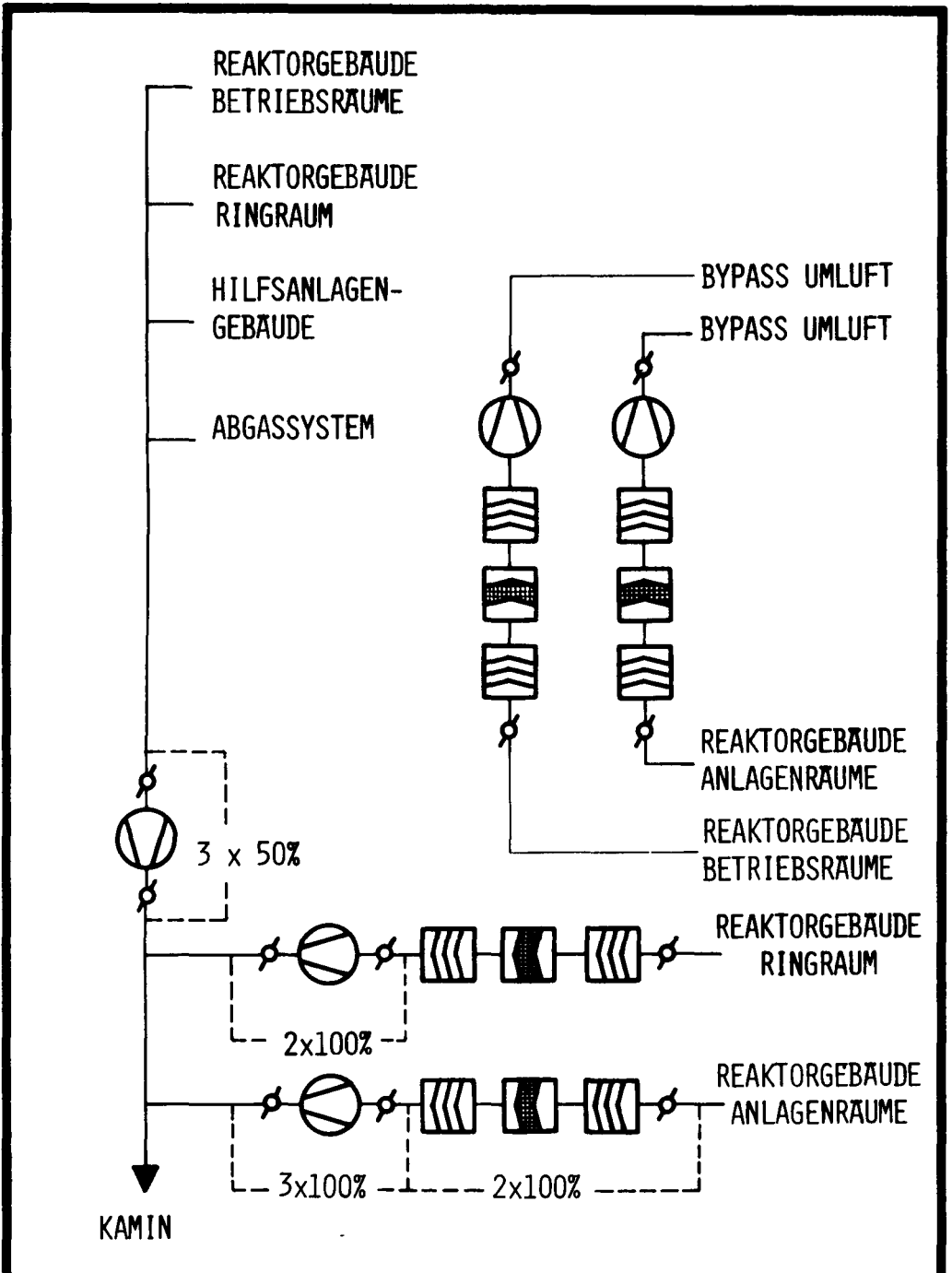


IRS

SCHEMA DER ABLUFTFILTERUNG
DRUCKWASSERREAKTOREN
KERNKRAFTWERK OBRIGHEIM

450

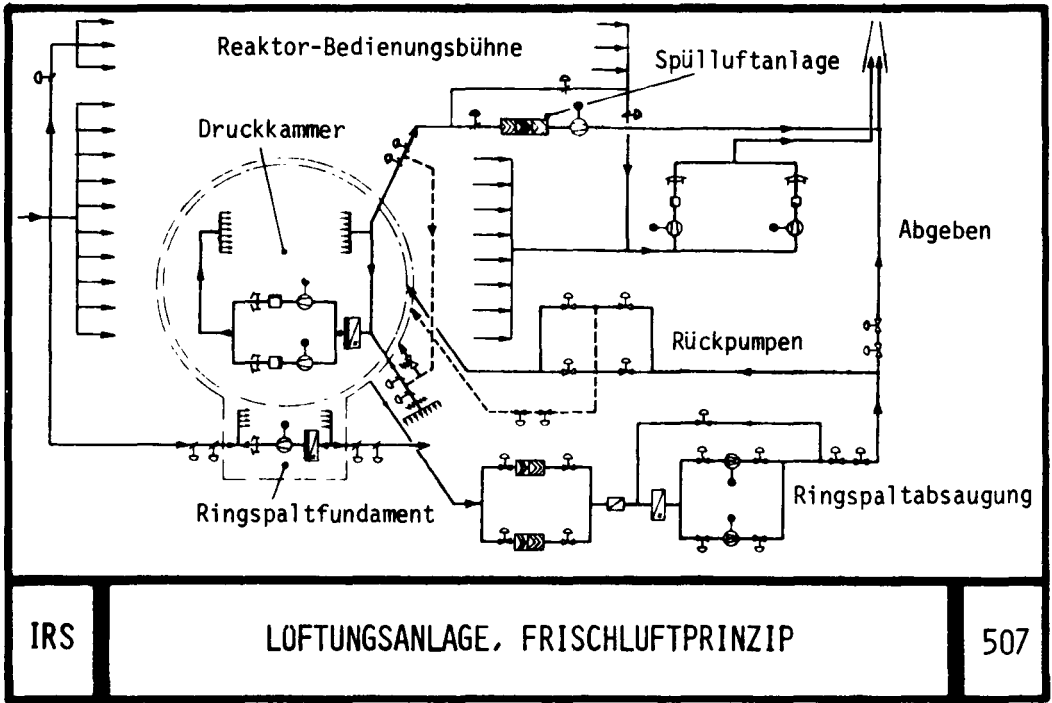


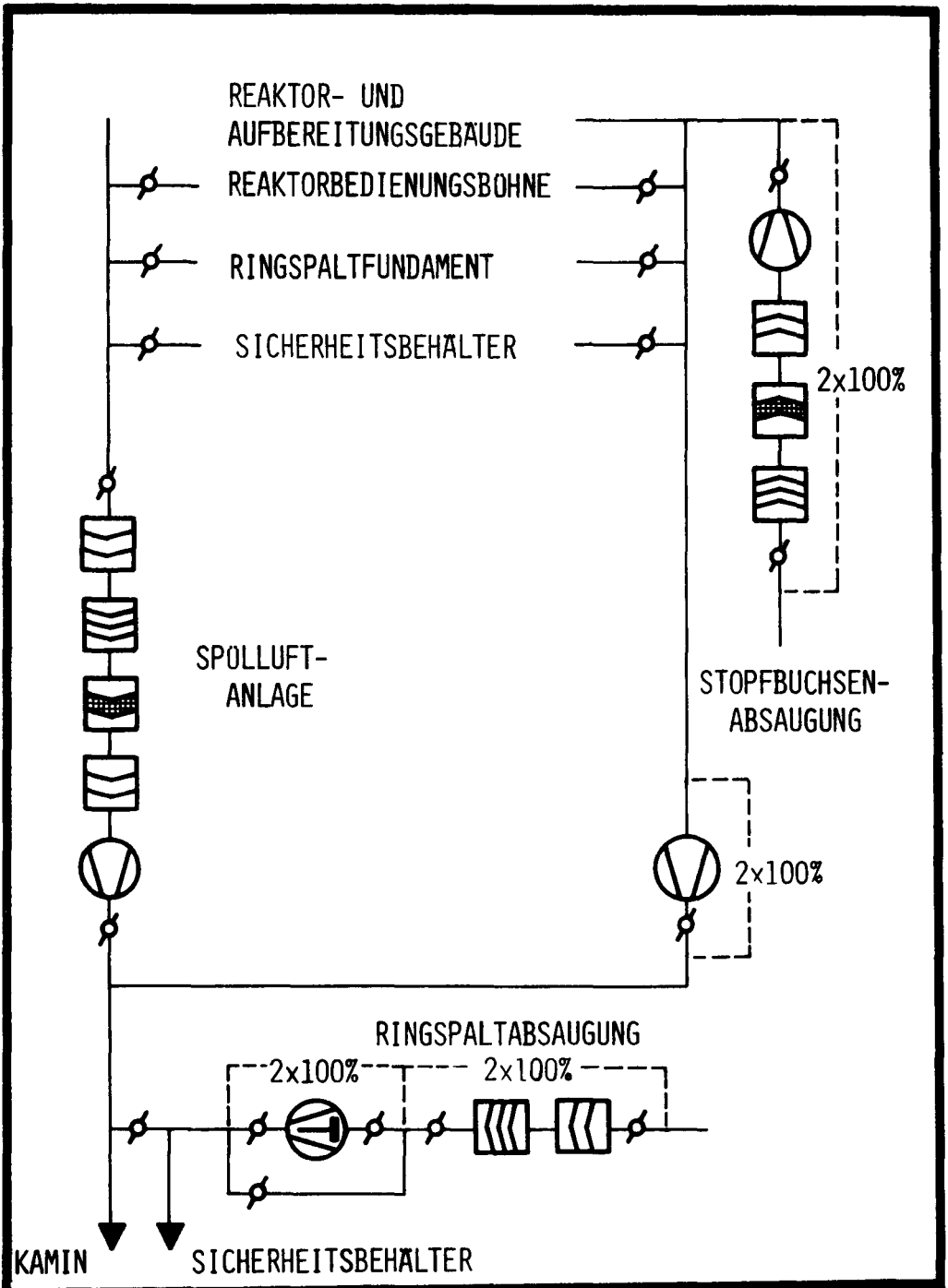


IRS

SCHEMA DER ABLUFTFILTERUNG
DRUCKWASSERREAKTOREN
KERNKRAFTWERK UNTERWESER

506

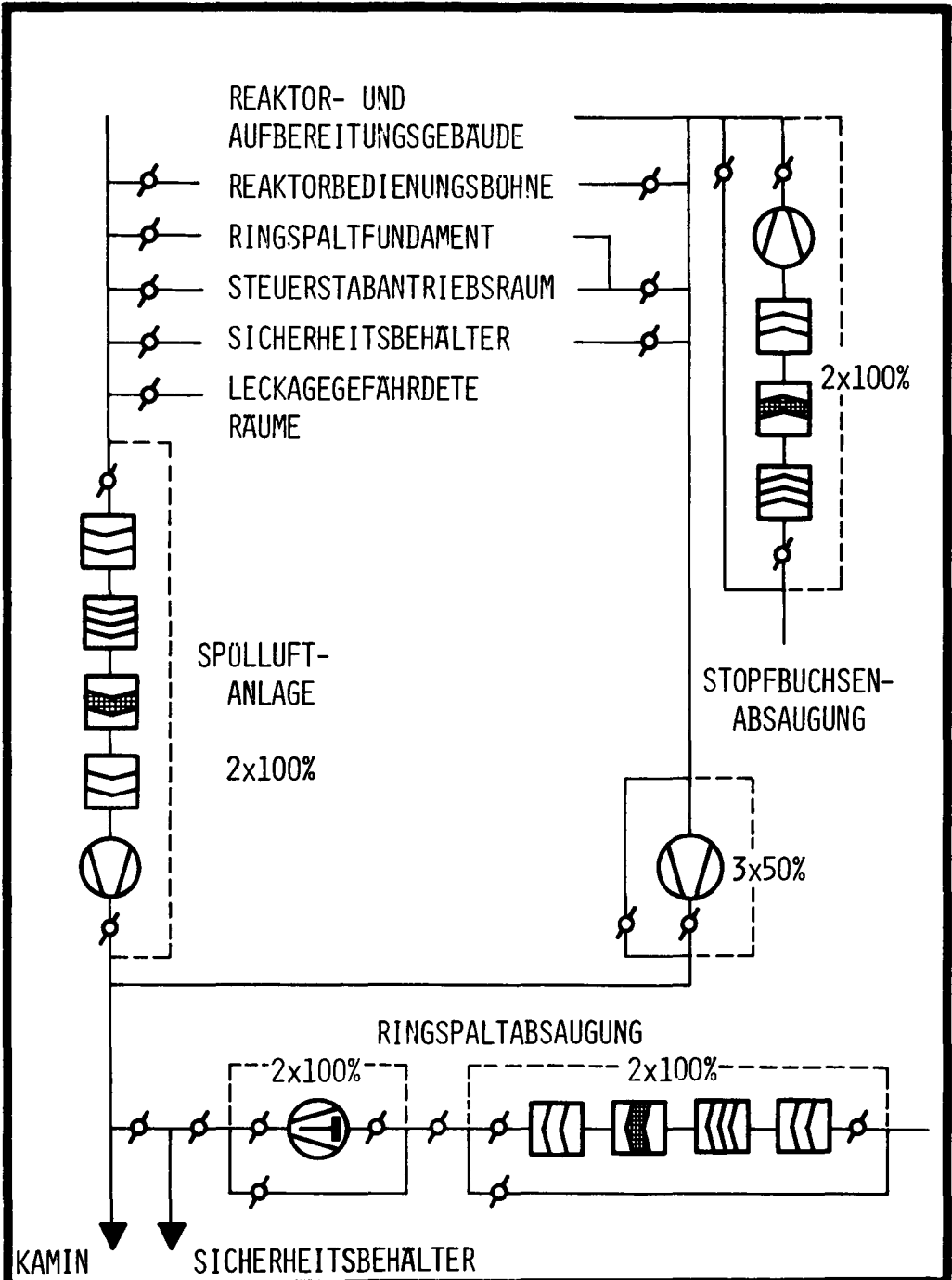




IRS

SCHEMA DER ABLUFTFILTERUNG
SIEDEWASSERREAKTOREN
KERNKRAFTWERK WÜRGASSEN

454



IRS

SCHEMA DER ABLUFTFILTERUNG

SIEDEWASSERREAKTOREN
KERNKRAFTWERK BRUNSBÜTTEL

453

BACKGROUND INFORMATION FOR USAEC REGULATORY GUIDE 1.52

R. Zavadoski

U.S.A.E.C.*

Washington, D.C. - U.S.A.

SUMMARY. The Regulatory Guide 1.52 is the first standardization guide issued by the USAEC. It is the first guide dealing with engineered safety feature filtration systems. The bases for many of the positions in the guide are derived from its dual role of standardization and filtration systems guidance. This paper will present an exposition of the background bases for the positions taken in the guide in terms of its dual role.

RESUME. FONDEMENTS DU "REGULATORY GUIDE" 1.52 DE L'USAEC. Le "Regulatory Guide" 1.52 représente les premières directives relatives à la normalisation qu'a émises l'USAEC. C'est aussi les premières qui traitent des systèmes filtrants en donnant des spécifications techniques relatives à la sécurité. Les bases de bien des positions émises dans ces directives tiennent à son double rôle de normalisation et de guide relatif aux systèmes filtrants. Ce rapport expose, sous l'angle de ce double rôle, sur quelles bases reposent les positions adoptées dans les directives.

KURZFASSUNG. GRUNDLAGEN DES USAEC "REGULATORY GUIDE" 1.52. Der "Regulatory Guide" (Genehmigungsrichtlinie) 1.52 ist die erste von der USAEC erlassene Normungsrichtlinie. Er ist darüber hinaus auch die erste Richtlinie über Filtersysteme mit konstruktionstechnischen Sicherheitsmerkmalen. Die Doppelfunktion der Richtlinie als Normungsgrundlage und als Orientierungsmaßstab für Filtersysteme hat sich in zahlreichen darin enthaltenen Stellungnahmen niedergeschlagen. Das Referat gibt einen Ueberblick über die Grundlagen, von denen die Richtlinie im Hinblick auf ihre Doppelfunktion ausgeht.

* The opinions expressed in this paper are those of the author and do not necessarily represent the views of the Atomic Energy Commission.

The United States Atomic Energy Commission Regulatory Guide 1.52, "Design, Testing and Maintenance Criteria for Atmosphere Cleanup System Air Filtration and Adsorption Units of Light-Water-Cooled Nuclear Power Plants," was the first standardization guide issued by the U.S. Atomic Energy Commission. It is also the first guide issued that is concerned with air cleaning systems on nuclear power plants. This dual purpose of the Guide influenced the content of many of the positions in the Guide. This paper will elaborate the background of the positions found in the Guide.

The U.S. Atomic Energy Commission is encouraging standardization to reduce licensing review time on commercial applications. Standardization of air cleaning systems does not mean duplicate copies for each air cleaning system. Rather it means standardizing the essential features of an air cleaning system. Only those portions of the system which relate to the overall capability of the system have been addressed from the standardization viewpoint in the Regulatory Guide. (Regulatory Guides, as used by the U.S. Atomic Energy Commission, are not fixed requirements. They are recommendations pointing out suggested criteria or design practice, which if followed will be acceptable to the Regulatory staff. Applicants for commercial nuclear power plants are free to choose other criteria or designs. However, such choices require the Regulatory staff to review, in detail, the specific choices made. Such a review is time consuming, both to the staff and the applicant.)

Regulatory Guide 1.52 is primarily concerned with engineered safety feature (ESF) air cleaning systems. These systems are commonly used to mitigate the consequences of postulated design basis accidents (DBA). Some design basis accidents normally postulated in plant safety analyses are the loss of coolant accident (LOCA) and fuel handling accident. Air cleaning systems used for normal operations at a nuclear facility do not directly come under the recommendations of the Guide. However, many of the design considerations in the Guide are applicable to air cleaning systems used during routine plant operation.

Normally, Boiling Water Reactor (BWR) designs incorporate a Standby Gas Treatment System which is used to mitigate the consequences of a LOCA and fuel handling accident. BWR plants also have a control room air cleaning system to meet the requirements of Criterion 19 of Appendix A, 10 CFR 50. Criterion 19 requires, in part, that adequate radiation protection be provided to permit access to and occupancy of the control room for the duration of postulated design basis accidents without station personnel receiving radiation exposures in excess of 5 rem whole body or the equivalent to any part of the body.

Pressurized Water Reactors (PWR) generally employ air cleaning systems in the fuel handling area and in the control room. Incontainment air filtration systems are no longer commonly used for post-accident fission product removal because of the slow rate of removal relative to containment spray systems. Newer PWR design are incorporating dual containments into their design. Annulus and auxiliary building air cleaning systems are found on these designs.

Let us now turn our attention to the positions in the Guide. For convenience, a copy of the Guide has been included at the end of this paper. The format of the following discussion follows the order of the positions in the Guide. Only those positions for which some elucidation has been required from actual experience are addressed in this paper, however.

First, the environmental design criteria deal with the environmental conditions under which an air cleaning system is designed to operate. In view of the fact that in-containment air cleaning systems are generally not employed today to mitigate the consequences of a LOCA, temperature and external pressure considerations are not usually the most restrictive design requirements from an air cleaning system design point of view so temperature and external pressure will not be further discussed except to note that pressure or vacuum caused by inadvertent closing of a valve or damper should be considered in the design.

Radiation considerations do impose limitations on the choice of materials which will be used in an air cleaning system. Radiation doses of 10^8 to 10^9 Rads can be calculated under DBA conditions in the vicinity of some air cleaning systems. Such radiation stresses generally rule out the use of poly-halogenated hydrocarbons and some silicon sealants. Also, radiation decomposition of organic materials may lead to formation of high amounts of methyl iodide in other portions of the air cleaning system. Unfortunately, a few of the past iodine efficiency tests run in the U.S. had significant radiation levels. Today, we are receiving results of tests in high radiation fields and we know that many of the basic elements in an air cleaning system will withstand the high radiation stresses. Environmental design considerations are a function of the total plant design. As such, they are not amenable to standardization unless the total plant is standardized or unless very conservative design values are chosen which encompass a variety of plant designs. The system design criteria, however, are amenable to standardization. The primary components utilized in an air cleaning system should consist of demisters, prefilters, HEPA filters before the adsorber, adsorber, and HEPA filters after the adsorber. Heaters are required when the humidity is to be controlled before filtration. Demisters should be used unless it can be shown that there is no potential source of water or steam which might interact with the air cleaning system. Typically, the Regulatory staff considers all non-seismically designed water or steam lines as a potential source of water. Prefilters are called for to prevent excessive loading of the HEPA filters. However, demisters which meet all the requirements of prefilters and demisters may serve the dual function. When humidity is to be controlled (such a scheme is beyond the realm of practicality for in-containment systems), heaters are provided to serve this function.

The humidity controls of other systems, for example control room ventilation system, may be used for this purpose if the system meets the same design criteria as the air cleaning system. For heater calculations, an input of 100% relative humidity air is assumed.

HEPA filters before the adsorber are recommended to prevent particulate matter from reaching the adsorber. Activated carbon adsorbers are not efficient gatherers of particulate matter. Particulate matter passing through the adsorber may cause the iodine to be carried to the final HEPA filter, where a vapor equilibrium relationship would be established (as opposed to a mass balance relationship), thus partially defeating the purpose of the adsorber.

The adsorber may be any material which will adsorb iodine or methyl iodine. Since activated carbon is commonly used, its use is stressed in the Guide. Recommended physical properties of the adsorber will be discussed later.

The final HEPA filter is used to collect fines from the adsorber. Although only a small fraction of the activated carbon adsorber may leave the bed, the non-uniform distribution of iodine on the bed makes even this small fraction important. The use of both upstream and downstream HEPA's may seem excessive but each has its purpose.

Redundancy of the entire filter train is recommended to accommodate single failure criteria and because testing and maintenance requirements will result in a single unit out of service for a significant period of time. A day to a week of maintenance time per unit per year is expected. Significantly higher outage times may result if the system is to be used during routine plant operation.

The effect of radiation is an important point in the design of individual components such as filters. It is unavoidable that such materials as the gaskets and adhesives used in filter construction will deteriorate under radiation; however, if such materials perform their intended function under the postulated radiation levels in their service configuration, they are acceptable. Neoprene will deteriorate when irradiated in the "free state;" however, tests at Argonne and Savannah River have shown that neoprene gaskets, when compressed as they would be in service, will perform their function reliably under high radiation levels. Radiation effects on insulation (i.e., wiring and motors) also need to be considered.

The limitation of volumetric air flow to 30,000 cfm is recommended to provide for ease of testing and maintenance, limiting dose to personnel during service of the system, dividing the risk in the event of an accident, and ensuring a more uniform airflow across the filter banks. It is stressed that there is much more concern about a probable minor accident from the standpoint of service and replacement, than there is with the unlikely DBA. "Ease of testing" cannot be mathematically interpreted. Hence, the 30,000 cfm limit is a judgement based on practical experience. It is agreed that larger systems can be built, tested, and maintained. One advantage of providing several "units" of 30,000 cfm or less capacity is that redundancy may be provided in the system without providing 200% capacity.

The pertinent pressure drops that should be instrumented to signal, alarm, and record in the control room are the pressure drops across the HEPA and adsorber cells. Recording is advisable so that the status of the filter unit is known at a glance. Of course, recording should only be done when the system is in operation. The flow rate measurement should also indicate the proper functioning of the fan.

The intent of allowing a bypass around the adsorber stage or HEPA filters is to prevent the deposition of DOP on the adsorbers. The organic DOP deposited in adsorbers could cause conversion of elemental radioiodine to organic radioiodides under accident conditions. Any bypass would have to be designed so that it would not be operative when the system is in service. This requirement presents very real problems in design, especially if DOP tests are made at full-rated system flow. Of course the majority of the DOP would remain on the HEPA filters at the end of a test and would be free to vaporize at a later time. To investigate any problem of possible interaction of DOP, iodine and radiation, tests are presently being conducted at Savannah River.

In the event of a minor accident, the air cleaning system could become contaminated. To reduce potential radiation exposures to workers, the possibility of removing the filter housing intact should be considered since burial in situ would probably not be allowed. Actual provisions for removal need not be made, but the potential should not be precluded in the design. For instance, the housing could be skid mounted and located near an outside wall at ground level to facilitate removal. It is inevitable that some housings will be very long and will require some separation before removal. Such a design is permissible if the number of required separations are small.

The housing leak rates which are quoted in the Guide are derived from a consideration of the overall system's iodine removal efficiency. They represent gross leakage for many of the present-day filter systems.

Numbers one-tenth these values are easily attainable and should be achieved if possible.

To assure that non-engineered safety feature air cleaning systems are not operable during a DBA, they should have the capability to be valved out. The reason for this is that non-ESF systems may become generators of airborne fission products which they collect. Decay heat ignition of the adsorber without provisions for sprays or low flow devices could produce problems at some later time during an accident sequence.

Particular attention should be given to the materials which are used in demisters. Organic materials which have been commonly used for the windings on demisters generally cannot perform their intended function under high radiation fields. Some binding materials found in glass fiber demisters have been found incapable of withstanding high radiation fields.

Steel casing on HEPA filters are recommended because plywood is susceptible to radiation damage. The mounting frames should be constructed of corrosion-resistant steel because corrosion of the seating surface may eventually present a bypass problem and organic paints, even nuclear grade paints, tend to blister and decompose in a radiation field. The decomposition products can potentially lead to a methyl iodide source. Inorganic nuclear grade paints, however, can effectively be used for painting frames. If welds are painted with organic paints, the potential exists for the paint to blister and possibly open some leak paths that the paint was concealing. Again, inorganic paints may be used.

Drains should receive attention during installation. Individual drains from each compartment with loop seals are recommended. Common drains for several compartments introduce leak paths that may go unnoticed during routine testing.

The adsorber section may contain any adsorbent material which has been shown to remove gaseous iodine from air at the required efficiency. Since activated carbon is commonly used, this adsorbent is specifically addressed in the Guide. The mass transfer operation of adsorption of iodine is strongly dependent upon (1) contact time; (2) surface area available; (3) temperature, and (4) relative humidity. The purpose of the heating demister section is to control the amount of moisture

which reaches the adsorber. If this section fails to perform its intended function, the adsorber will not operate efficiently. The surface area available for mass transfer is dependent upon the mesh size of the activated carbon and the iodine adsorption capability of the carbon. Because most tests in the U.S. were performed on one-inch or two-inch beds of 8 by 16 Tyler mesh (nominal) impregnated activated carbon, this distribution was chosen as a reference to which other size distributions and depths should be compared.

The maximum adsorber loading recommended in the Guide is 2.5 mg of iodine (both stable and radioactive) per gram of activated carbon averaged over the bed depth. It has been pointed out that activated carbon can efficiently hold elemental iodine for loadings of up to at least 60 mg/gr. The loading limitation in the Guide is based on the maximum amount of impregnant that can be added to the activated carbon without substantially lowering the ignition temperature. This in turn is related to the quantity of methyl iodide which can be reliably removed. Since the amounts of impregnant and methyl iodide are fixed, the loading for elemental iodine is also fixed.

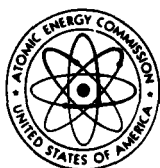
It has already been shown that water sprays cannot extinguish an adsorber fire once it is started. The purpose of water sprays is to inhibit adsorber fires, i.e., to prevent them from happening by cooling the adsorber mass before ignition begins. The source of ignition, the iodine, will tend to go with the water into an appropriate receptacle. Low flow schemes are acceptable for controlling the temperature rise in the adsorber if oxidation effects are adequately taken into account. Present computer codes in use for predicting temperatures rises in adsorbers do not take oxidation into account.

Maintenance considerations appear to have been given little attention in actual practice. Space requirements and accessibility found in the field sometimes defy the human form. Care must be given to maintenance and testing requirements early in the design if sufficient space is to be provided.

One prerequisite for testing of adsorbers is that the characteristic properties be established before the activated carbon is used. Because the variance among individual batches of freshly prepared activated carbon is significant, each batch should be qualified. HEPA filters are qualified by DOP tests at several testing locations in the U.S. before they are put into service. Once the adsorber material and HEPA filters are qualified, they should be stored in a controlled environment before use.

In-place testing of filter units should be conducted as frequently as necessary to show that the air cleaning system will perform its intended function. In order to make the tests meaningful, a reference data base should have previously been established on the unused materials. The purpose of the tests outlined is to ensure efficient operability of the system and to provide a standardized test scheme for all plants. Air flow uniformity should be measured to show that no one group of filters will receive an inordinate amount of the loading which may lead to other complications. HEPA filter tests should be conducted with DOP. The use of silicone sealants to fix determined leaks found on HEPA filters or frames is not recommended, as silicone sealants are susceptible to radiation damage. The U.S. standard Freon tests are used merely to test the leak tightness of the adsorber unit. Laboratory tests on representative samples will test the iodine removal efficiency of the activated carbon. The representative samples mentioned in the Guide are samples of activated carbon which has seen the same service conditions, including air flow, as the activated carbon in the system. Because the environmental conditions around each site differ, frequent testing is recommended. Testing in two-inch increments is recommended so that the result of laboratory tests can be compared with the established data base. The test frequencies given in the Guide relate only to systems which are on standby service. For those systems which must operate frequently, testing should be conducted after every 720 hours of operation.

In summary, the bases for the positions in Regulatory Guide 1.52 are based on both theoretical and practical considerations with the objectives of (1) obtaining a filter system which will reliably perform its function under accident conditions, and (2) establishing design requirements in adequate detail to encourage the standardization of engineered safety feature filtration units. It is hoped that the explanations given in this paper will help clarify the meaning of some of the positions in Regulatory Guide 1.52.



U.S. ATOMIC ENERGY COMMISSION

June 1973

REGULATORY GUIDE

DIRECTORATE OF REGULATORY STANDARDS

REGULATORY GUIDE 1.52

DESIGN, TESTING, AND MAINTENANCE CRITERIA FOR ATMOSPHERE CLEANUP SYSTEM AIR FILTRATION AND ADSORPTION UNITS OF LIGHT-WATER-COOLED NUCLEAR POWER PLANTS

A. INTRODUCTION

General Design Criteria 41, 42, and 43 on containment atmosphere cleanup systems in Appendix A to 10 CFR Part 50, "General Design Criteria for Nuclear Power Plants," require, in part, that these systems be provided as necessary to reduce the amount of radioactive material released to the environment following a postulated design basis accident (DBA) and that these systems be designed to permit appropriate periodic inspection and testing to assure their integrity, capability, and operability. General Design Criterion 61 requires, in part, that fuel storage and handling, radioactive waste, and other systems which may contain radioactivity be designed to assure adequate safety under normal and postulated accident conditions and be designed with appropriate containment, confinement, and filtering systems. Furthermore, General Design Criterion 19 requires, in part, that adequate radiation protection be provided to permit access to and occupancy of the control room under accident conditions and for the duration of the accident without the personnel receiving radiation exposures in excess of 5 rem whole body. This guide presents methods acceptable to the Regulatory staff for implementing the Commission's regulations in Appendix A to 10 CFR Part 50 with regard to air filtration and adsorption units used as atmosphere cleanup systems in light-water-cooled nuclear power plants for the purpose of mitigating the consequences of postulated accidents. This guide addresses the entire atmosphere cleanup system, including the various components and ductwork and postulated DBA environmental considerations.

It is the policy of the U.S. Atomic Energy Commission to encourage, support, and give priority consideration to activities leading to greater standardization of nuclear power plants. The basic objective of greater standardization is to secure added

assurance of the safety of nuclear power plants. Regulatory Guides which provide detailed information concerning design, construction, testing, operation, and inspection of specific systems provide important mechanisms to establish technical bases for standardized plants. This guide provides detailed information on design, testing, and maintenance for air filtration and adsorption units of atmosphere cleanup systems in light-water-cooled nuclear power plants.

B. DISCUSSION

Atmosphere cleanup systems are included as engineered safety features in the design of light-water-cooled nuclear power plants to mitigate the consequences of postulated accidents by removing from the building or containment atmosphere radioactive material that may be released in the accident. All such cleanup systems must be designed to operate under the environmental conditions resulting from the accident. In this guide, atmosphere cleanup systems that must operate under postulated DBA conditions inside the primary containment (recirculating systems), are designated as primary systems. Systems required to operate under conditions that are generally less severe are designated as secondary systems (recirculating or once-through systems). Secondary systems typically include the standby gas treatment system and the emergency air cleaning systems for the fuel handling building, control room, and shield building. The DBA environmental conditions for a given system must be determined for each plant. DBA environmental conditions for typical primary and secondary systems are tabulated below. In addition to those conditions listed, primary systems must be designed to withstand the radiation dose from water and plateout sources in the containment and the corrosive effects of chemical sprays, if such sprays are included in the plant design.

USAEC REGULATORY GUIDES

Regulatory Guides are issued to describe and make available to the public methods acceptable to the AEC Regulatory staff of implementing specific parts of the Commission's regulations, to delineate techniques used by the staff in evaluating specific problems or postulated accidents, or to provide guidance to applicants. Regulatory Guides are not substitutes for regulations and compliance with them is not required. Methods and solutions different from those set out in the guides will be acceptable if they provide a basis for the findings requisite to the issuance or continuance of a permit or license by the Commission.

Published guides will be revised periodically, as appropriate, to accommodate comments and to reflect new information or experience.

Copies of published guides may be obtained by request indicating the divisions desired to the U.S. Atomic Energy Commission, Washington, D.C. 20545, Attention: Director of Regulatory Standards. Comments and suggestions for improvements in these guides are encouraged and should be sent to the Secretary of the Commission, U.S. Atomic Energy Commission, Washington, D.C. 20545, Attention: Chief, Public Proceedings Staff.

The guides are issued in the following ten broad divisions:

- | | |
|-----------------------------------|------------------------|
| 1. Power Reactors | 6. Products |
| 2. Research and Test Reactors | 7. Transportation |
| 3. Fuels and Materials Facilities | 8. Occupational Health |
| 4. Environmental and Siting | 9. Antitrust Review |
| 5. Materials and Plant Protection | 10. General |

**Typical Accident Conditions
for Atmosphere Cleanup System**

Environmental Condition	Atmosphere Cleanup System	
	Primary	Secondary
Pressure surge	Result of initial blowdown	Generally less than primary
Maximum pressure . . .	60 psi	~ 1 atm
Maximum temperature of influent	280°F	180°F
Relative humidity of influent	100% plus condensing moisture	100%
Average radiation levels		
Airborne radioactive materials	10 ⁶ rads/hr ^(a)	10 ⁵ rads/hr ^(a)
Iodine buildup on adsorber	10 ⁹ rads ^(a)	10 ⁹ rads ^(a)
Average airborne iodine concentrations		
Elemental iodine	100 mg/m ³	10 mg/m ³
Methyl iodide and particulate iodine	10 mg/m ³	1 mg/m ³

(a) This value is based on the source term specified in Regulatory Guide 1.3¹ or 1.4,² as applicable

An atmosphere cleanup system consists of some or all of the following components: demisters, heaters, prefilters, high-efficiency particulate air (HEPA) filters, adsorption units, fans, and associated ductwork, valving, and instrumentation. The purpose of the demister is to remove entrained water droplets from the inlet stream, thereby protecting prefilters, HEPA filters, and adsorbers from water damage and plugging. Heaters, when used on secondary systems, normally follow the demisters in the cleanup train and are designed to mix and heat the incoming stream to reduce its relative humidity before it reaches the filters and adsorbers. Prefilters and HEPA filters are installed to remove particulate solid matter, which may be radioactive. Prefilters remove the larger particles and prevent excessive loading of HEPA filters; demisters may also perform this function. The HEPA filters remove the fine discrete particulate matter and pass the air stream to the adsorber. The adsorber removes gaseous iodine (elemental iodine and organic iodides) from the air stream. Additional HEPA filters collect carbon fines exhausted from the adsorber which may contain radioactivity. The fan is normally the final item in an atmosphere cleanup train.

In addition to the possible combination of environmental factors existing during a postulated DBA, the environmental history preceding such an accident may affect the performance of the atmosphere cleanup system. Industrial contaminants, pollutants, temperature, and relative humidity contribute to the aging of filters and adsorbents and reduce their effectiveness. Therefore, aging and weathering of these components, which vary from site to site, must be considered during design and operation. Average temperature and relative humidity also vary from site to site, and the potential buildup of moisture in the adsorber warrants equal design consideration. The effects of these factors on the atmosphere cleanup system should be determined by scheduled testing during operation.

All components of atmosphere cleanup systems should be designed for reliable performance under accident conditions. Initial testing and proper maintenance are primary factors in assuring the reliability of the system. Careful attention during the design phase to problems of maintaining the system should contribute significantly to the reliability of the system by providing ease of maintenance. Of particular importance in the design is a layout that provides accessibility and sufficient working space to safely perform the required functions. Periodic testing during operation to verify the efficiency of the components is another important means of assuring reliability. Built-in features that will facilitate convenient in-place testing are important in system design.

At present there is no comprehensive standard for the design and testing of atmosphere cleanup systems. However, isolated standards are available for the construction and testing of certain components of systems. Where such standards are acceptable to the Regulatory staff, they are utilized in this guide. Where no suitable standard exists, acceptable approaches are presented in this guide. ORNL-NSIC-65, "Design, Construction and Testing of High-Efficiency Air Filtration Systems for Nuclear Application,"³ offers a comprehensive review of air filtration systems. It is not a standard but a guide which suggests several design alternatives.

C. REGULATORY POSITION

1. Environmental Design Criteria

a. The design of each engineered-safety-feature atmosphere cleanup system should be based on the maximum pressure and pressure differential, radiation dose rate, relative humidity, maximum and minimum temperature, and other conditions resulting from the postulated DBA and on their duration.

b. The design of each system should be based on a 30-day integrated radiation dose, following the postulated DBA, to essential services in the vicinity of

the adsorber section. The radiation source term should be consistent with the assumptions found in Regulatory Guides 1.3,¹ 1.4,² and 1.25.⁴ Other engineered safety features, including pertinent components of essential services such as power, air, and control cables, should be adequately shielded from the atmosphere cleanup systems.

c. The design of each adsorber should be based on the concentration and relative abundance of the iodine species (elemental, particulate, and organic), which should be consistent with the assumptions found in Regulatory Guides 1.3,¹ 1.4,² and 1.25.⁴

d. The atmosphere cleanup system should be compatible with other engineered safety features such as a containment spray system.

e. Components of systems connected to compartments that are unheated during a postulated accident should be designed for post-accident effect of both the lowest and highest outdoor temperatures used in the plant design.

2. System Design Criteria

a. Atmosphere cleanup systems designed and installed for the purpose of mitigating accident doses should be redundant. The systems should consist of the following sequential components: (1) demisters, (2) prefilters (demisters may serve this function), (3) HEPA filters before the adsorbers, (4) iodine adsorbers (impregnated activated carbon or equivalent adsorbent such as metal zeolites), (5) HEPA filters after the adsorbers, (6) ducts and valves, (7) fans, and (8) related instrumentation. Heaters are required when the humidity is to be controlled before filtration.

b. The redundant atmosphere cleanup systems should be physically separated so that damage to one system does not also cause damage to a second system. The generation of missiles from high-pressure equipment rupture, rotating machinery failure, or natural phenomena should be considered in the design for separation and protection.

c. All components of an engineered-safety-feature atmosphere cleanup system should be designated as seismic Category I (see Regulatory Guide 1.29⁵) if failure of a component would lead to the release of significant quantities of fission products to the working or outdoor environments.

d. The atmosphere cleanup system should be protected from pressure surges resulting from the postulated accident. Each component should be protected with devices, such as pressure relief valves, so that the overall system will perform its intended function during and after the passage of the pressure surge.

e. In the mechanical design of the system, the high radiation levels that may be associated with buildup of radioactive materials on the system components should be given particular consideration. System construction materials should effectively perform their intended function under the postulated radiation levels.

The effects of radiation should be considered not only for the demisters, fans, HEPA filters, adsorbers, and heaters, but also for any electrical insulation, controls, joining compounds, dampers, gaskets, and other organic-containing materials which are necessary for operation during a postulated DBA.

f. The volumetric air flow rate of a single cleanup train should be limited to approximately 30,000 cfm. If total system air flow in excess of this rate is required, multiple trains should be used. For ease of maintenance, a filter layout consisting of three 1000 cfm HEPA filters high and ten wide is preferred.

g. The atmosphere cleanup system should be instrumented to signal, alarm, and record pertinent pressure drops and flow rates at the control room.

h. The power supply and electrical distribution system for the atmosphere cleanup system described in section C.2.a. above should be designed in accordance with IEEE-308.⁶ All instrumentation and equipment controls should be designed to IEEE-279.⁷ The system should be qualified and tested under IEEE-323.⁸ To the extent applicable, IEEE Standards 334,⁹ 336,¹⁰ 338,¹¹ and 344¹² should be considered in the design.

i. Permanently installed arrangements which allow unfiltered air to bypass the system should be avoided. A temporary bypass of the adsorber or HEPA filters for testing purposes, such as blanking off downstream units from the test agent, is acceptable if operation of the bypass is indicated by alarms or signals both locally and in the control room.

j. For protection of workers from radiation exposure resulting from a DBA, the atmosphere cleanup train should be totally enclosed and installed in a manner which permits replacement of the train as an intact unit without removal of components i.e., demisters, prefilters, heaters, HEPA filters, adsorbers, and fan.

k. Outdoor air intake openings should be equipped with louvers, grills, screens, or similar protective devices to minimize the effects of high winds, rain, snow, ice, trash, and other contaminants on the operation of the system.

l. Recirculating primary atmosphere cleanup system housings and ductwork should be designed to exhibit on test a maximum total leakage rate of 10 cfm per 1000 cfm of system flow. Recirculating or once-through secondary system housings and discharge ductwork located in a high radiation zone should be designed to exhibit on test a maximum total leakage rate of 0.5 cfm per 1000 cfm of system flow. Filter mounting frames and ducts should be designed to withstand DBA pressure surges without permanent distortion or breach of integrity.

m. Any atmosphere cleanup system which is not classified as, and is not given credit as, an engineered safety feature but is expected to collect airborne radioactive material should be designed to retain collected radioactive materials during and after a postulated DBA. The atmosphere cleanup system should not deleteriously affect the operation of

engineered-safety-feature systems. Appropriately designed arrangements which isolate non-engineered-safety-feature filtration systems from the environment in a postulated design basis accident are acceptable.

3. Component Design Criteria and Qualification Testing

a. The demisters installed in engineered-safety-feature atmosphere cleanup systems should meet qualification requirements similar to those found in MSAR 71-45, "Entrained Moisture Separators for Fine (1-10μ) Water-Air-Steam Service: Their Performance, Development and Status."^{1,3} Demisters should meet Underwriters' Laboratories (UL) Class 1¹⁴ requirements.

b. Adsorption units function efficiently at a relative humidity of 70%. If heaters are used on secondary systems, the heating section should reduce the relative humidity of the incoming atmosphere from 100% to 70% during postulated DBA conditions. A prototype heating element should be qualified under postulated DBA conditions. Consideration should be given in system design to minimizing heater control malfunction. The heater should not be a potential adsorbent ignition source.

c. Materials used in the prefilters should withstand the radiation levels and environmental conditions prevalent during the postulated DBA. Prefilters should meet UL Class 1¹⁴ requirements and be listed in the current UL Building Materials List.¹⁵ The prefilters should have not less than a 40% atmospheric dust spot efficiency rating (Section 9 of the ASHRAE Standard 52, "Method of Testing Air Cleaning Devices Used in General Ventilation for Removing Particulate Matter").¹⁶

d. The HEPA filters should be steel cased and designed to military specifications MIL-F-51068C and MIL-F-51079A. The HEPA filters should satisfy the requirements of UL-586.¹⁷ The HEPA filter separators should be capable of withstanding iodine removal sprays. HEPA filters should be tested individually by the appropriate Filter Test Facility listed in the current USAEC Health and Safety Bulletin for Filter Unit Inspection and Testing Service.¹⁸ The Filter Test Facility should test each filter at 100% and 20% of rated flow, with the filter encapsulated to disclose frame and gasket leaks.

e. Filter and adsorber mounting frames should be constructed of corrosion-resistant unpainted steel, designed for horizontal air flow, and designed in accordance with the recommendations of Section 4.3 of ORNL-NSIC-65.³ For ease of maintenance, mounting frames should limit installation of HEPA filters and adsorbers to a maximum height of seven feet above the walking surface. Each filter should be independently clamped in place at a minimum of four pressure points. Common bolting of filters or adsorbers should not be allowed. Mounting of filters on the downstream side of mounting frames is recommended.

f. System filter housings should be of all-steel construction and designed in accordance with the

ORNL-NSIC-65³ recommendations on steel floors, housing doors, and other filter housing requirements contained in Sections 4.5.5, 4.5.7, and 4.5.9, respectively.

g. Water drains should be designed in accordance with the recommendations of Section 4.5.6 of ORNL-NSIC-65.³

h. Because of radiation effects, mounting frames and internal welds should not be painted. Material selected for ducts should be compatible with the cooling and containment spray solutions. The use of aluminum and zinc are discouraged.

i. The adsorber may contain any adsorbent material demonstrated to remove gaseous iodine (elemental iodine and organic iodides) from air at the required efficiency. Since impregnated activated carbon is commonly used, only this adsorbent will be discussed in this guide. If activated carbon is the adsorbent, the adsorber should be designed for an average atmosphere residence time of 0.25 sec per two inches of adsorbent bed. The adsorbent bed should consist of at least two inches of 8 by 16 Tyler mesh (nominal) impregnated activated carbon with an apparent bulk density of 0.5 ±0.05g/cc and a size distribution by weight-percent as follows:

Retained on #6 ASTM E11 ¹⁹ Sieve	0.0%
Retained on #8 ASTM E11 ¹⁹ Sieve.	5.0% maximum
Through #8, retained on #12 Sieve.	40% to 60%
Through #12, retained on #16 Sieve	40% to 60%
Through #16 ASTM E11 ¹⁹ Sieve	5.0% maximum
Through #16 ASTM E323 ²⁰ Sieve	1.0% maximum

If other size distributions and greater residence times are used, the system design should provide for methyl iodide and elemental iodine removal from the atmosphere equivalent to that provided by the minimum bed thickness and recommended size distribution.

The design of two-inch-deep tray-type and one-inch-deep pleated-bed adsorbent canisters should be as stated in CS-8T, "Tentative Standard for High Efficiency Gas-Phase Adsorber Cells."²¹ The activated carbon should be totally restrained in the adsorber. A qualification test on a prototype adsorber should be performed in accordance with paragraph 7.4.1 of CS-8T²¹ except that the design basis earthquake parameters particular to the site should be used. The adsorber should be tested³⁰ with a gaseous halogenated hydrocarbon refrigerant both before and after the qualification test and should show no significant increased penetration. Each original or replacement batch of activated carbon used in the adsorber section should meet the qualification and batch test results summarized in Table 1 of this guide. A batch of activated carbon is defined in RDT Standard M-16-1T, "Gas-Phase Adsorbents for Trapping Radioactive Iodine and Iodide Compounds."²²

To assure that the adsorber section will contain carbon of a uniform packing density, written procedures for filling should be prepared and followed by the user.

The adsorber should be designed for a maximum loading of 2.5 mg of iodine per gram of activated carbon. No more than 5% of impregnant (50 mg of impregnant/gram of carbon) should be used. The radiation stability of the type of carbon specified should be demonstrated and certified. (See regulatory position C.1.b. for the design source term.)

j. The design of the adsorber section should consider possible iodine desorption and adsorbent autoignition that may result from radioactivity induced heat in the adsorbent and concomitant temperature rise. The system design should provide for water sprays to inhibit adsorber fires. Combustible gas generated by an adsorbent fire should be considered in the design.

k. The system fan should have sufficient capacity to pull the rated air flow through the entire system and maintain the specified negative pressure at the maximum pressure drop for which the system has been designed.

l. The fan or blower used on the cleanup system should be capable of operating under the environmental conditions postulated, including radiation.

m. Ductwork should be designed in accordance with the recommendations of Section 2.8 of ORNL-NSIC-65.³

n. Ducts and housings should be laid out with a minimum of ledges, protrusions, and crevices that can collect dust and moisture and can impede personnel or create a hazard in performance of their work. Straightening vanes should be installed to assure representative air flow measurement and uniform flow distribution through cleanup components.

4. Maintenance

a. Cleanable or replaceable elements of the atmosphere cleanup system should be designed for ready removal and minimal radiation exposure of personnel.

b. The system layout should be designed to minimize reaching, stooping, and the use of ladders or temporary scaffolding for gaining access to filters for testing and maintenance. Designs requiring physical contortions or the climbing of ladders to remove and replace filters should be avoided.

c. The system design should provide rigid, hinged doors on filter housings with dimensions that will permit a man walking erect and carrying a loaded filter carton (26 x 26 x 12 inch x 40 lb) to pass through without stooping or twisting, and should include vacuum breakers to aid in opening a door with the fan in operation.

d. For ease of maintenance, the system design should provide for a minimum of five linear feet from mounting frame to mounting frame between banks of components. If components are larger than two and a half feet by two and a half feet, more than five linear feet should be provided: the dimension to be provided should be the maximum length of the component plus approximately three feet.

e. The system design should provide for aligning and supporting filter elements during filter change in

accordance with Section 4.3.5 of ORNL-NSIC-65.³

f. For manual handling the system design should provide at least 2 inches of clearance between filter elements in the same bank.

g. Use of materials-handling facilities, including dollies for moving new and used filters to and from the installation site and elevators for moving loaded dollies up and down within the building, should be provided for in the design and layout.

h. The system design should provide for permanent test probes with external connections. Preferably, the test probes should be manifolded at a single convenient location with due consideration given to balancing of line lengths and diameter to produce reliable test results for refrigerant gas, resistance, flow rate, and dioctyl phthalate (DOP) testing.

i. The entire standby atmosphere cleanup train should be operated at least 10 hours per month, with the heaters on (if so equipped), in order to reduce the buildup of moisture on the adsorbers and HEPA filters.

j. The cleanup components (e.g., HEPA filters, prefilters, adsorbents) should not be installed while active construction is still in progress.

k. Adequate vapor-tight lighting should be provided in the filter housing.

l. Electrical (115-V, 15-Amp convenience outlets), water, and compressed air services should be nearby but not inside the filter housing.

m. Ledges and sharp corners should be avoided in design and construction.

5. In-Place Testing Criteria

a. The air flow distribution to the HEPA filters and adsorbers should be tested for uniformity and should be within $\pm 20\%$ of averaged flow per unit.

b. The in-place HEPA DOP test should conform to ANSI N101.1-1972, "Efficiency Testing of Air Cleaning Systems Containing Devices for Removal of Particles."²⁹ HEPA filter sections should be tested in place initially, and semiannually thereafter, to confirm a penetration of less than 0.05% at rated flow. An engineered-safety-feature air filtration system satisfying this requirement can be considered to warrant a 99% removal efficiency for particulates in accident dose evaluations. HEPA filters that fail to satisfy this requirement should be replaced. If for any reason, the HEPA bank is entirely or only partially replaced, an in-place DOP test should be conducted. During the DOP testing, the adsorber units should be temporarily bypassed. The use of silicone sealants or any other temporary patching material on filters, housing, mounting frames, or ducts should be prohibited. If necessary, welding repairs should be performed on the housing or mounting frame prior to periodic testing, filter inspection, and in-place testing.

c. The activated carbon adsorber section should be leak tested with a gaseous halogenated hydrocarbon refrigerant in accordance with USAEC Report DP-1082, "Standardized Nondestructive Test of Carbon Beds for

Reactor Confinement Application."³⁰ to ensure that bypass leakage through the adsorber section is less than 0.05% for units with an assigned adsorption efficiency (see Table 2 of this guide) of greater than 95%, and 0.1% for systems with an assigned efficiency of 95% or less. During the test the upstream concentration of refrigerant gas should be no greater than 20 ppm. After the test is completed, air flow through the unit should be maintained until the residual refrigerant gas in the effluent is less than 0.01 ppm. Adsorber leak testing should be conducted whenever DOP testing is done.

6. Laboratory Testing Criteria for Activated Carbon

a. If the activated carbon adsorber section meets the requirements given in regulatory position C.5.c. and the adsorbent meets the test requirements of Tables 1 and 2 of this guide, the adsorber section should be assigned the decontamination efficiencies for a DBA analysis as given in Table 2 for elemental iodine and organic iodides. If for any reason the carbon fails to meet the test requirements in Table 2, it should not be used in engineered-safety-feature adsorbers.

b. The efficiency of the activated carbon adsorber section should be determined by laboratory testing of representative samples of the activated carbon exposed simultaneously to the same service conditions as the adsorber section. Each representative sample should be not less than two inches in both length and diameter and should have the same qualification and batch test characteristics as the system adsorbent. There should be a sufficient number of representative samples located in parallel with the adsorber section for estimating the

amount of penetration of the system adsorbent throughout its service life. Where the system activated carbon is greater than two inches deep, each representative sampling station should consist of multiple two-inch samples in series whose aggregate length equals the thickness of the system adsorbent. Once representative samples are removed for laboratory test, their positions in the sampling array should be blocked off. Laboratory tests of representative samples should be conducted, as indicated in Table 2 of this guide, with the test gas flow in the same direction as flow during service conditions. The activated carbon adsorber section should be replaced after the last representative sample has been removed and tested or if any preceding representative sample has failed to meet the testing requirements of Table 2.

c. The user should prepare detailed procedures for each required field and laboratory test suggested by this guide. The test procedures typically should identify:

- (1) The specific item to be tested.
- (2) Its location.
- (3) Any arrangements that should be made and equipment provided prior to the test.
- (4) Physical conditions to be met.
- (5) Any equipment lockouts or other precautions necessary for safety of personnel or adjacent equipment.
- (6) The persons who should be notified prior to the test.
- (7) The acceptance criteria.
- (8) The corrective action that should be taken in the event of nonconformance to the acceptance requirements, and
- (9) Addressees to receive copies of test reports.

REFERENCES

1. Regulatory Guide 1.3, "Assumptions Used for Evaluating the Potential Radiological Consequences of a Loss of Coolant Accident for Boiling Water Reactors," Directorate of Regulatory Standards, USAEC.
2. Regulatory Guide 1.4, "Assumptions Used for Evaluating the Potential Radiological Consequences of a Loss of Coolant Accident for Pressurized Water Reactors," Directorate of Regulatory Standards, USAEC.
3. C. A. Burchsted & A. B. Fuller, "Design, Construction, and Testing of High-Efficiency Air Filtration Systems for Nuclear Application," ORNL-NSIC-65, Oak Ridge National Laboratory, January 1970.
4. Regulatory Guide 1.25, "Assumptions Used for Evaluating the Potential Radiological Consequences of a Fuel Handling Accident in the Fuel Handling and Storage Facility for Boiling and Pressurized Water Reactors," Directorate of Regulatory Standards, USAEC.
5. Regulatory Guide 1.29, "Seismic Design Classification," Directorate of Regulatory Standards, USAEC.
6. IEEE Std 308-1971, "Criteria for Class IE Electric Systems for Nuclear Power Generating Stations," Institute of Electrical and Electronics Engineers.
7. IEEE Std 279-1971, "Criteria for Protection Systems for Nuclear Power Generating Stations."
8. IEEE Std 323-1971, "General Trial-Use Guide for Qualifying Class I Electric Equipment for Nuclear Power Generating Stations."
9. IEEE Std 334-1971, "Trial-Use Guide for Type Tests of Continuous-Duty Class I Motors Installed Inside the Containment of Nuclear Power Generating Stations."
10. IEEE Std 336-1971, "Installation, Inspection and Testing Requirements for Instrumentation and Electric Equipment During the Construction of Nuclear Power Generating Stations."
11. IEEE Std 338-1971, "Trial-Use Criteria for the Periodic Testing of Nuclear Power Generating Station Protection Systems."
12. IEEE Std 344-1971, "Trial-Use Guide for Seismic Qualification of Class I Electric Equipment for Nuclear Generating Stations."
13. MSAR 71-45, "Entrained Moisture Separators for Fine (1-10 μ) Water-Air-Steam Service: Their Performance, Development and Status," Mine Safety Appliance Research Corporation, March 1971.
14. Underwriters' Laboratories (UL) Standard UL-900, "Air Filter Units," (also designated ANSI B124.1-1971).
15. Underwriters' Laboratories Building Materials List.
16. ASHRAE (American Society of Heating, Refrigerating and Air Conditioning Engineers) Standard 52-68, "Method of Testing Air Cleaning Devices Used in General Ventilation for Removing Particulate Matter, Section 9."
17. Underwriters' Laboratories Standard UL-586, "High Efficiency Air Filter Units," (also designated ANSI B132.1-1971).
18. USAEC Health and Safety Bulletin, "Filter Unit Inspection and Testing Service."
19. ASTM E11-70, "Specifications for Wire Cloth Sieves for Testing Purposes," American Society for Testing and Materials.
20. ASTM E323-70, "Specifications for Perforated-Plate Sieves for Testing Purposes."
21. AACC CS-8T, "Tentative Standard for High-Efficiency Gas-Phase Adsorber Cells," American Association for Contamination Control, July 1972.
22. RDT Standard M-16-1T, "Gas-Phase Adsorbents for Trapping Radioactive Iodine and Iodine Compounds," USAEC Division of Reactor Development and Technology, June 1972.
23. ASTM D2862-70, "Test for Particle Size Distribution of Granulated Activated Carbon."
24. MIL-C-17605B, "Charcoal, Activated, Technical, Unimpregnated," Military Specification.
25. Brunauer, S., Emmett, P. H. and Teller, E. J., J. Am. Chem. Soc. 60,309 (1938).
26. ASTM D2867-70, "Test for Moisture in Activated Carbon."
27. ASTM D2866-70, "Test for Total Ash Content of Activated Carbon."
28. ASTM D2854-70, "Test for Apparent Density of Activated Carbon."
29. ANSI N101.1-1972, "Efficiency Testing of Air Cleaning Systems Containing Devices for Removal of Particles," American National Standards Institute.
30. D.R. Muhlbaier, "Standardized Nondestructive Test of Carbon Beds for Reactor Confinement Application," USAEC Report DP-1082, Savannah River Laboratory, July 1967.

TABLE 1

SUMMARY TABLE OF NEW ACTIVATED CARBON PHYSICAL PROPERTIES

TEST	ACCEPTABLE TEST METHOD	ACCEPTABLE RESULTS	TEST SCHEDULE		
			ON BASE MATERIAL	ON FINISHED ADSORBENT	
1 Particle Size Distribution	ASTM D 2862 ¹	Retained on #6 ASTM E111 ⁹ Sieve Retained on #8 ASTM E111 ⁹ Sieve Through #8, retained on #12 Sieve Through #12, retained on #16 Sieve Through #16 ASTM E111 ⁹ Sieve Through #16 ASTM E323 ²⁰ Sieve	0.0% 5.0% maximum 40% to 60% 40% to 60% 5.0% to maximum 1.0% to maximum	-	Batch ^c
2 Hardness Number	MIL-C17605B para 4.6.4 ⁴			Batch	-
3 Ignition Temperature	RDT M16-1T, Appendix C ²²	340°C minimum at 100 fpm		-	Batch
4 Surface Area	BET Surface Area ²⁵	1000 m ² /gr minimum		Batch	-
5 Radioiodine Removal Efficiency					
a Elemental Iodine, DBA Temperature and Pressure	RDT M16-1T ²² para 4.5.2 except DBA Temperature and pressure are used ^d	99.9%		-	Qualification ^b
b Methyl Iodide, DBA Temperature and Pressure	RDT M16-1T ²² , para. 4.5.4 except DBA Temperature and pressure are used ^d	95% for 95% relative humidity 99.5% for 70% relative humidity		-	Batch
c Retention	RDT M16-1T ²² , para. 4.5.5	99%		-	Qualification
6 Moisture Content Efficiency	ASTM D2867, Xylene Method ²⁶	3% maximum		-	Batch
7 Ash Content	ASTM D2866 ²⁷	6% maximum		Qualification	-
8 Bulk Density	ASTM D2854 ²⁸	Report value		-	Batch
9 Impregnant Content	State Procedure	State type (not to exceed 5% by weight)		-	Batch
10 Impregnant Leachout	State Procedure	Report value		-	Qualification

^d DBA Maximum Temperature (rounded to the next highest decade in °F, i.e. 252°F is 260°F) and Maximum Pressure (rounded to the next highest decade in psig, i.e. 51 psig is 60 psig)

^b Qualification test - Test which establishes the suitability of a product for a general application, normally a one-time test reflecting historical typical performance of material.

^c Batch test - Test made on a production batch of product to establish suitability for a specific application

TABLE 2

LABORATORY TEST REQUIREMENTS FOR ACTIVATED CARBON

Activated Carbon ^a Bed Depth ^d	Assigned Activated Carbon Decontamination Efficiencies	Laboratory Test Requirements for a Representative Sample ^b
2 inches. Air filtration system designed to operate inside primary containment.	Elemental Iodine 90% Organic Iodide 30%	Test initially, and yearly thereafter, under 95% relative humidity, maximum design temperature ^c and design face velocity for an elemental iodine penetration of <1.0% and <10% for methyl iodide.
2 inches. Air filtration system designed to operate outside the primary containment and relative humidity is controlled to 70%.	Elemental Iodine 95% Organic Iodide 95%	Test with methyl iodide initially, and yearly thereafter, under 70% relative humidity, maximum design temperature ^c and design face velocity for a penetration of <1.0%.
4 inches. 6 inches. 8 inches. 15 inches. Air filtration system designed to operate outside the primary containment and relative humidity is controlled to 70%.	Elemental Iodine 99% Organic Iodide 99%	Test with methyl iodide in two-inch increments initially and semi-annually thereafter for the 4-inch bed, every eight months for the 6-inch bed, and annually for the 8- and 15-inch beds under 70% relative humidity, maximum design temperature, and design face velocity for a penetration of <0.175%.

^aThe activated carbon, when new, should meet the requirements stated in this guide.

^bSee regulatory position C.6.b. for definition of Representative Sample.

^cA maximum postulated DBA temperature (°F) rounded to the next highest decade (e.g, 181°F should be rounded to 190°F).

^dMultiple beds, e.g. two 2-inch beds in series, should be treated as single bed of aggregate depth.



LIST OF PARTICIPANTS

ABBEY F. Safety and Reliability Directorate
U.K. Atomic Energy Authority
Wigshaw Lane
GB - Culcheth Warrington, Lancs. WA3 4NE

ARGILLIER B. E.D.F. - SEPTEN
Cédex N° 8
F - 92080 PARIS LA DEFENSE

BARBIER J. E.D.F.
Département de Radioprotection
6, rue Ampère - B.P. 120
F - 93203 SAINT-DENIS

BARTH H. Fa. CAMPIL
St. Wendelinstrasse 21
D - 8068 PFAFFENHOFEN/ILM

BECKER D. TÜV Bayern
Rudesheimerstrasse 11
D - 8000 MUENCHEN

BENCO A. C.C.R. Ispra
Euratom
I - 21020 ISPRA (Va)

BERGS Farbwerke Hoechst
Radiochem. Labor.
D - 6230 FRANKFURT/HOECHST

BILLARD F. AIR INDUSTRIE
Division Ultrafiltres
21, Av. Dubonnet
F - 92401 COURBEVOIE

BINDEWALD H. Kernkraftwerk Würgassen
Postfach 1220
D - 3472 BEVERUNGEN 1

BOCOLA W. Laboratorio Ingegneria Sanitaria
Centro Studi Nucleari della Casaccia
S.P. Anguillarese Km. 1+300
I - ANGUILLARA (Roma)

BOEDEGE R. Kernkraftwerk Lingen GmbH
Postfach 1640
D - 4450 LINGEN

BOETTGER P. LAK
Griesbachstrasse 3
D - 75 KARLSRUHE

BONNEVIE-SVENDSEN M. Institutt for Atomenergi
(Mrs.) P.O. Box 40
N - 2007 KJELLER

BOULENGER R. Centre d'Etudes de l'Energie
Nucléaire
"Contrôle-Radioprotection"
Boeretang 200
B - 2400 MOL

BUDKE-DAEG M.
(Frau) TÜV Baden
Richard-Wagner-Strasse 2
D - 68 MANNHEIM

CADET B. E.D.F.
Centre de Production Thermique de
Chinon
B.P. N° 23
F - 37420 AVOINE

CLIFTON J.J. U.K.A.E.A.
Room 29, Bldg D61, AEE Winfrith
GB - Nr Dorchester, Dorset (England)

CONTI M. CNEN
Divisione Protezione Sanitaria e
Controlli
Via Regina Margherita 125
I - 00198 ROMA

CUNNINGHAM J.D. Nuclear Group
Project Department
Electricity Supply Board
18-21, St. Stephens Green
EIR - DUBLIN 2

DECKERS B. Centre d'Etude de l'Energie
Nucléaire
Centrale nucléaire BR-3
Boeretang 200
B - 2400 MOL

DEVELL L. Aktiebolaget Atomenergi
Studsvik
S - 611 01 NYKÖPING

de VOOYS Fl. Norit n.v.
Research Laboratorium
Textielweg 15
NL - AMERSFOORT

DIERKES TÜV Baden
Richard-Wagner Strasse 2
D - 68 MANNHEIM

DILLMAN H.G. Gesellschaft für Kernforschung mbH
Abteilung Strahlenschutz und
Sicherheit
Postfach 3640
D - 7500 KARLSRUHE

DUSONG M. Electrobél
Place du Trône, 1
B - 1000 BRUXELLES

EDELHÄUSER H. Bundesministerium des Innern
Rheinendorfer Strasse 198
D - 53 BONN

EMDE N. PALL GmbH
D - 6072 DREIEICHENHAIN

ESSLINGER D. Delbag-Luftfilter GmbH
Schweidnitzer Strasse 11-16
D - 1 BERLIN 31

FALCK K. Gesellschaft für Kernenergieverwertung
in Schiffbau u. Schifffahrt mbH
Bauabteilung
Reaktorstrasse
D - 2054 GEESTHACHT

FESTAG J.G. Gesellschaft für Schwerionen-
forschung mbH
Postfach 541
D - 61 DARMSTADT

FIEUW G. Studiecetrum voor Kernenergie
Boeretang 200
B - 2400 MOL

FLICK R. Postfach
D - 7522 PHILIPPSBURG

FRANZEN L.F. Institut für Reaktorsicherheit der TÜV
Glockengasse 2
D - KOELN 1

FRASER G. Ministry of Agriculture, Fisheries
and Food
Food Science Division
Great Westminster House
Horseferry Road
GB - LONDON, SW1

FURRER J. Gesellschaft für Kernforschung mbH
Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit
Postfach 3640
D - 7500 KARLSRUHE

GAMMEL R. Badenwerk AG Abt. MK
Postfach 1680
D - 7500 KARLSRUHE

GANCILLE B. SOFILTRA
22, Bd Georges Clémenceau
F - 92400 COURBEVOIE

GENCE M. E.D.F.
Département de Radioprotection
6, rue Ampère, B.P. 120
F - 93203 SAINT-DENIS

GERICKE H. Kernkraftwerk Lingen
Schütttdorferstrasse 100
D - 4445 LINGEN

GERLACH K. GfK Abt. ASS/CH
Postfach 3640
D - 7500 KARLSRUHE

GUEBEN M. Intercom - SEMO - Exploitation
1, Rue de l'Industrie
B - 5201 TIHANGE

GÜNTHER H. Europäisches Institut für Transurane
Postfach 2266
D - 7500 KARLSRUHE

GUSTAVSSON B. AB ASEA-ATOM
Chemical Process Systems
Box 53
S - 721 04 VÄSTERÅS 1

HERRE F. Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung
von Kernbrennstoffen mbH
Postfach
D - 7501 LEOPOLDSHAFEN

HERRMANN G. TÜV Hannover
Postfach 260
D - 3 HANNOVER

HESBÖL R. Aktiebolaget Atomenergi
Studsvik
S - 611 01 NYKÖPING

HILLARY J.J. UKAEA, Reactor Development Labs.
Windscale Works
GB - SELLAFIELD, Seascale, Cumberland
CA20 1PF
GfK - Abt. ASS/CH
Weberstrasse 5
D - 7500 KARLSRUHE

KAEMPFER R. Drägerwerk AG
Moislinger Allee
D - LÜBECK

LAUDENKLOS W. Kernkraftwerk Philippsburg
D - 7522 PHILIPPSBURG

MAIER P. TÜV Baden
Richard-Wagner Strasse 2
D - 68 MANNHEIM

MAIR G. Kraftwerk Union - Abt. R 31
Postfach 3220
D - 8520 ERLANGEN

MALOSSI S. Centrale Nucleare di Latina
I - Bgo SABOTINA (Latina)

MARTIN J.J. E.D.F.
Département de Radioprotection
6, Rue Ampère, B.P. 120
F - 93203 SAINT-DENIS

MATTHES W. KFA - ZAC
Hambacher Forst
D - 517 JÜLICH

MATTING A. Institut für Reaktorsicherheit der
TÜV
Glockengasse 2
D - 5 KOELN 1

MAZZINI M. Istituto di Impianti Nucleari
Università di Pisa
Via Diotisalvi, 2
I - 56100 PISA

MIRIBEL J. Centre d'Etudes Nucléaires de
Cadarache
DSN/SESR/SESRCI
B.P. N° 1
F - 13115 St-PAUL-lez-DURANCE

MOLNAR B. TÜV Bayern Abt. IV-KSJ
Elchstätterstrasse 5
D - 8 MUENCHEN 21

NEESKENS E.C. Studiecentrum voor Kernenergie
Boeretang 200
B - 2400 MOL

NOWLAN N.V. Nuclear Inspectorate
Department of Trade and Industry
Thames House, Mill Bank
GB - LONDON SW1P 4QJ

OSIPETICO A. EUROCHEMIC
B - 2400 MOL

PARKER H.F. International Atomic Energy Agency
Kärntnerring 11
P.O. Box 590
A - 1011 VIENNA

PASSANT F.H. Central Electricity Generating Board
Generation Development & Construc-
tion Division
Chelham House, Bath Rd.
GB - CHELTENHAM, Gloucestershire

PECORNIK D. BBC Mannheim - Abt. GEA/FKB
Kallstatter Strasse 1
D - 6800 MANNHEIM

PENCE D. Allied Chemical Corporation
USA - IDAHO-FALLS

PFEIFFER K. KWU E 3/R 2 ACS
Gartenstrasse 138-140
D - 6000 FRANKFURT/M 70

PORCHERON J. Centre d'Etudes Nucléaires de
Cadarache
DSN/SESR/SESRCI
B.P. N° 1
F - 13115 St-PAUL-lez-DURANCE

POESCHL A. Kernkraftwerk RWE-Bayernwerk GmbH
D - 8871 GUNDREMMINGEN

PRECKER U. Paul-Gerhardt-Strasse 27
D - 6952 NECKARELZ

RIERREL B. Agence de Strasbourg. SCFTUTRA
16, Rue des Pigeons
F - STRASBOURG

RIEDEL H. Bundesgesundheitsamt
Abt. für Strahlenhygiene
Ingolstädter Landstrasse 1
D - 8042 NEUERBERG

RODIER J. Ministère de la Santé Publique
Service Central de Protection contre
les Rayonnements Ionisants
Division Régionale du Sud-Est
58, Rue Thiers
F - 94 AVIGNON

SANDRELLI G. ENEL - Centro Ricerca Termica e Nucleare
Bastioni Porta Volta, 10
I - 20121 MILANO

SCHREDER M. Gesellschaft für Kernforschung mbH
Abt. Heisse Zellen
Postfach 3640
D - 7500 KARLSRUHE

SCHINDWOLF J. Goerdelerstrasse 12
D - 7500 KARLSRUHE 21

SCHULZE-PILOT G. Farbwerke Hoechst AG
Radiochemisches Labor.
D - 632 FRANKFURT/M - HOFCHST

SEGGEWIES H. Kraftwerk Union AG
Abt. V191
Postfach 600
D - 8520 ERLANGEN

SEGUY M.R. Commissariat à l'Energie Atomique
CFM SACLAY - Service de Protection
contre les Rayonnements
B.P. 2
F - 91190 GIF-SUR-YVETTE

SELLESIACH E. Kerncentrale Doel (expl. EBES)
Molenstraat
B - 2791 DOEL

SIGLI P. C.E.A./CEMFA
B.P. N° 6
F - 92260 FONTEMAY-AUX-ROSES

SINHUBER D. Delbag-Luftfilter GmbH
Schweidnitzer Strasse 11-16
D - 1 BERLIN 31

STALLAERT P. Ministère de l'Emploi et du Travail
Administration de la Sécurité du
Travail
Rue Belliard, 53
B - 1040 BRUXELLES

STEAD M. Central Electricity Generating Board
Nuclear Health and Safety Dept.
Room 1021, Courtenay House
18, Warwick Lane
GB - LONDON EC4

STEINBERGER H. Versuchsatomkraftwerk Kahl GmbH
Grosswelzheim
Postfach 6
D - 8756 KAHL (Main)

STICKELMANN Dankerstrasse 43 c
D - STADE

STOUTE J.R.D. Reactor Centrum Nederland
Westerduinweg 4
NL - PETTEN

STRAUSS H.J. Ceagfilter u. Entstaubungstechnik GmbH
Münsterstrasse 231
Postfach 310
D - 4600 DORTMUND

TAYLOR L.R. UKAEA, Reactor Development Labs.
Windscale Works
Seascale
GB - SELLAFIELD, Cumberland CA20 IPF

TEATINI A. Istituto di Ingegneria Nucleare -
CESNEF
Politecnico di Milano
Via Ponzio 34/3
I - 20133 MILANO

TRAXLER A.M. Groupement Atomique Alsacienne
(Mme) Atlantique
20, Av. Edouard Herriot
F - 92350 LE PLESSIS ROBINSON

TRENTA G. CNEN
Divisione Protezione Sanitaria e
Controlli
c/o Fabbianelli
Via Gino Coppedè, 25a
I - ROMA

TROESCH G. C.E.A. - C.E.N.
Service de Protection contre les
Rayonnements
B.P. N° 6
F - 92260 FONTENAY-AUX-ROSES

TURRICCHIA A. Ente Nazionale per l'Energia Elettrica
Direzione Costruzioni
Via G.B. Martini 3
I - 00100 ROMA

VAN CAENEGHEM J. Commission des Communautés Européennes
D.G. III/B/3
Avenue de la Joyeuse Entrée
B - 1040 BRUXELLES

van der LUGT G. N.V. Kema
Utrechtseweg 310
NL - ARNHEM

VAN DE WERF B. Kernfysische Dienst
Ministerie van Sociale Zaken
Balen van Andelplein 2
NL - VOORBURG

WAGNER F. Kernkraftwerk Obrigheim GmbH
Postfach 100
D - 6951 OBRIGHEIM a.N.

WILHELM J.G. Gesellschaft für Kernforschung mbH
Abt. Strahlenschutz und Sicherheit
Postfach 3640
D - 7500 KARLSRUHE

WINTER K. Ceagfilter u. Entstaubungstechnik GmbH
Münsterstrasse 231
Postfach 310
D - 4600 DORTMUND

WRIGHT H.A. Nuclear Installations Inspectorate
Dept. of Trade & Industry
Thames House South
Millbank
GB - LONDON SW1P 4QJ

ZAVADOSKI R. Accident Analysis Branch
Directorate of Licensing
U.S. Atomic Energy Commission
USA - WASHINGTON, D.C. 20545

ZETTWOOG P. C.E.A. - C.E.N.
B.P. N° 6
F - 92260 FONTENAY-AUX-ROSES

ORGANIZING COMMITTEE

J.J. HILLARY	UKAEA, Windscale	E.A. HAMPE	C.C.E.
P. SIGLI	CEA, Fontenay-aux-Roses	F. LUYKX	C.C.E.
J.G. WILHELM	GfK, Karlsruhe		

SECRETARIAT

L. DUTAILLY	C.C.E.
C. JANSE (Mlle)	C.C.E.
K. KUHN (Mme)	C.C.E.
M. MILLER (Mme)	C.C.E.
G. VAN BOCKSTAEL	C.C.E.

