

①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑪ **DE 3100112 A1**

⑤1 Int. Cl. 3:
G21 F9/06
B 01 D 35/00

⑳ Aktenzeichen: P 31 00 112.2
㉔ Anmeldetag: 5. 1. 81
㉕ Offenlegungstag: 30. 9. 82

㉑ Anmelder:
Hoffmann, Willi, 6729 Leimersheim, DE

㉒ Erfinder:
gleich Anmelder

Behördeneigentum

DE 3100112 A1

⑤4 **Filter zur Zurückhaltung von radioaktivem Jod in Wässern von Kernkraftwerken**

Gegenstand der Erfindung ist ein selektiv elementares Jod aufnehmendes Filtermaterial. Als Jod adsorbierendes Material wird Stärke verwendet. In die spiralförmigen Hohlräume der Stärke wird das elementare Jod eingelagert. Van der Waal'sche Kräfte bedingen den Einlagerungsmechanismus. Die Filterwirkung wird weder durch Salzbeladung noch durch extreme pH-Werte des zu reinigenden Wassers beeinflusst.

(31 00 112)

DE 3100112 A1

Patentansprüche

1. Verfahren zur Abscheidung von inaktivem, als auch radioaktivem Jod in kerntechnischen als nuklearmedizinischen Anlagen, dadurch gekennzeichnet daß man die zu behandelnden Wässer über Filterschichten schickt, die auf Kerzenfiltern, Plattenfiltern oder auch in Papierfiltern eingelagert Kartoffelstärke enthalten.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet daß die Filterschicht Maisstärke enthält.
3. Verfahren nach Anspruch 1 - 2, dadurch gekennzeichnet daß die Filterschicht Getreidestärke enthält.
4. Verfahren nach Anspruch 1 - 3, dadurch gekennzeichnet daß die Filterschicht Tapioka- oder Sagostärke enthält.
5. Verfahren nach Anspruch 1 - 4, dadurch gekennzeichnet daß die Filterschicht Cyclodextrine enthält.
6. Verfahren nach Anspruch 1 - 5, dadurch gekennzeichnet daß die Filterschicht Amylose enthält.
7. Verfahren nach Anspruch 1 - 6, dadurch gekennzeichnet daß die Filterschicht Amylopektin enthält.
8. Verfahren nach Anspruch 1 - 7, dadurch gekennzeichnet daß die Filterschicht Substanzen enthält, die blaue Jodaddukte und somit Einschlußverbindungen von Jodketten in Kanälen bilden.
9. Verfahren zur Abscheidung von Jod in kerntechnischen als auch nuklearmedizinischen Anlagen, dadurch gekennzeichnet daß die in Anspruch 1 - 8 aufgeführten Substanzen in dem zu reinigenden Wasser aufgeschlämmt sind, und durch Dekan-

tieren oder Zentrifugieren von ihm getrennt werden.

10. Verfahren zur Abscheidung von inaktivem als auch radioaktivem Jod in kerntechnischen als auch nuklearmedizinischen Anlagen, dadurch gekennzeichnet daß die in Anspruch 1 - 8 aufgeführten Substanzen sich in Filterschichten aus Papier oder Glasfaser befinden, die es erlauben in Aerosolen vorliegendes Jod abzuscheiden.

Willi Hoffmann

Woogstraße 2

6729 Leimersheim

3

31. Dezember 1980

Filter zur Zurückhaltung von radioaktivem Jod in Wässern
von Kernkraftwerken

Gegenstand der Erfindung ist ein Filtermaterial zur Zurückhaltung von radioaktivem Jod in Wässern von Kernkraftwerken.

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 ungünstigen radiologischen Eigenschaften des Isotops Jod 131 die Einrichtung von Jodfilteranlagen im Vordergrund.

Ein Teil der aus dem Spaltprozeß des Kernbrennstoffes stammenden Jodisotope können beim Betrieb mit schadhafte Brennelementen in das Reaktorkühlmittel gelangen und werden bei Normalbetrieb durch kleine Leckagen oder bei einem angenommenen Kühlmittelverlustunfall 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.

Infolge der schlechten Rückhalteeigenschaften für elementares Jod der derzeit eingesetzten Filtermaterialien, stellen sich mit zunehmenden BE - Leckagen im Reaktorwasser Jodaktivitäten bis zu $1 \cdot 10^{-1} \text{ Ci/m}^3$ ein.

Die derzeit benutzten Filtermaterialien sind pulverisierte Anionen - und Kationenaustauscher zur Zurückhaltung ional vorliegender Wasserinhaltsstoffe. Ferner werden mechanisch wirkende

Stoffe auf Kieselgurbasis zur Zurückhaltung von Korrosionsprodukten angeschwemmt.

Es ist bekannt, daß 80 - 90 % des im Primärkreis eines Kernkraftwerkes enthaltenen Jods, elementar vorliegt. Dies bewirkt daß bei winzigen Leckagen Räume - der hohen Jodaktivität wegen - aus Strahlungsgründen unbegebar werden.

Entsprechend technisch und finanziell aufwendig ist die jährliche Öffnung des Reaktordruckgefäßes und Brennelementinspektion.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zu finden, das speziell elementares Jod zurückhält.

Diese Aufgabe wird erfindungsmäßig dadurch gelöst, daß elementares Jod mit Stärke eine blaue "Jodreaktion" zeigt. Die Kenntnis der Blaufärbung von Stärke mit elementarem Jod ist ebenso alt wie die Kenntnis vom Jod selbst. Die blaue Jodfarbe der Stärke ist möglich, weil auch in molekulardispersen Zustand kanalartige Hohlräume vorhanden sind.

Gegenstand der Erfindung ist, in Wasser unlösliche Stärke als Filtermaterial zur Zurückhaltung von elementarem Jod einzusetzen.

Der Einsatz von Stärke ist gerade in Kernkraftwerken ein geeignetes und sehr preiswertes Verfahren. Bei Anschwemmung in der Reaktorwasserreinigung kann es die Jodaktivität auf ein Zehntel verringern.

Das Ziel aller Kernkraftwerke, Personal und Umwelt weitgehend vor radioaktiver Strahlung zu schützen, wird somit erfindungsgemäß dadurch erreicht, daß die radioaktiven Jodisotope an einem sicheren Ort abgeschieden werden.

Die Erfindung wird anhand der nachstehenden Beispiele erläutert, ohne auf diese Beispiele zu beschränken.

Beispiel 1

Auf ein Schwarzbandfilter mit 12 cm^2 Filterfläche wurden 2 gr Maisstärke angeschwemmt. Anschließend wurde Reaktorwasser das eine Jodaktivität von $1.1 \cdot 10^{-1} \text{ Ci/m}^3$ besaß über das Filter gesaugt. Das Reaktorwasser wurde vorher weder geträgert noch anderweitig vorbehandelt. Die nachfolgende gammaspektrometrische Auswertung ergab daß mehr als 80 % der Jodaktivität an der Stärke zurückgehalten wurde. Die Zurückhaltung betrug für:

Jod 131	:	81 %
Jod 132	:	82 %
Jod 133	:	82 %
Jod 134	:	84 %
Jod 135	:	81 %

Beispiel 2

Ein Filter vorbereitet wie in Beispiel 1 wurde mit einer Lösung beaufschlagt, die $100 \text{ ug J}_2/\text{l}$ enthielt. Nach Durchsatz von 10 l dieser Lösung zeigt die Filteroberfläche eine zart-rosa Färbung. Nach Durchsatz von 50 l war die Oberfläche violett. Der ca. 2 mm dicke Filterkuchen zeigte von der Seite betrachtet eine Verfärbung von wenigen Zehntel Millimetern. Die darunter liegende Stärkeschicht war rein weiß. In der zum Teil mit Jod beladenen Stärke wurde titrimetrisch mit Natriumthiosulfat das enthaltene Jod bestimmt. Die in den 50 Litern enthaltenen 5mg Jod wurden bei der Titration wieder gefunden.

Beispiel 3

Ein Filter vorbereitet wie in Beispiel 1 wurde mit einer 0.01 n Jodlösung beaufschlagt. Zum Nachweis durchbrechenden Jods wurde wasserlösliche Stärke in die Saugflasche hinter dem Filter gegeben. Nach Durchsatz von 35 ml, entsprechend 44.4 mg Jod ist ein erster Joddurchbruch bemerkbar. Das auf dem Filter festgehaltene Jod wurde titrimetrisch mit Na-thiosulfat bestimmt. Sämtliches aufgebrauchte Jod wurde gefunden.

Beispiel 4

In einer Kreislaufapparatur wurden an eine CHRIST - Filterkerze mit 500 cm² Oberfläche 50 gr Stärke und 50 gr Filterhilfsmittel angeschwemmt. Dem kreislaufwasser wurde 1 Liter 0.1 n Jodlösung zugegeben. Ausgangskonzentration 1.3 gr Jod/l.

Filtriergeschwindigkeit : 1l/min

Nach 30 min war im Kreislaufwasser Jod nicht mehr nachweisbar.

Die aufgeschnittene Filterschicht war bis zum Stützgewebe schwarz.

Beispiel 5

Aus 10 gr Stärke und 20 gr Cellulose wurde auf einer Nutsche ein Filterkuchen hergestellt.

Durchmesser des Filterkuchens : 180 mm

Der getrocknete Filterkuchen wurde in den Filterhalter eines dem Staubsauger verwandten Gerätes zur Sammlung von Aerosolaktivität gespannt.

Während des Betriebes dieser Apparatur wurde, -durch Einblasen von Luft in Jodlösung- Jod freigesetzt.

An den Stellen an denen die Joddämpfe das Filter trafen, zeigten sich spontan rosa-violette Verfärbungen.

Das heißt, daß sich mit Stärke enthaltendem Filterpapier auch J₂-Aerosolaktivität abzuscheiden ist.