



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21)(22) Заявка: 2014140439/05, 02.04.2013

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
02.04.2013

Приоритет(ы):

(30) Конвенционный приоритет:
02.04.2012 DE 102012006542.6

(43) Дата публикации заявки: 27.05.2016 Бюл. № 15

(45) Опубликовано: 10.10.2016 Бюл. № 28

(56) Список документов, цитированных в отчете о поиске: US 6380428 B1 30.04.2002. US 6506935 B1 14.01.2003. US 5075084 A 24.12.1991. EP 0175435 A1 26.03.1986. J. Stelzer et. All, "Hydrohobic properties of all-silica zeolite beta", Microporous and Mesoporous Materials, 22, 1998, 1-8. R.T. Jubin, "A Literature Survey jf Methods Remove Iodin from Off-Gas Streams Using Solide Sorbents", date issued 10.04.1979, стр. 28-41. RU 2091365 C1 27.09.1987.

(85) Дата начала рассмотрения заявки РСТ на национальной фазе: 05.11.2014

(86) Заявка РСТ:
EP 2013/056941 (02.04.2013)(87) Публикация заявки РСТ:
WO 2013/150029 (10.10.2013)

Адрес для переписки:
190000, Санкт-Петербург, ВОХ-1125,
ПАТЕНТИКА

(72) Автор(ы):

ДОНАБАУЭР Катарина (DE),
ТИССЛЕР Арно (DE),
ЭНДЛЕР Мика (DE),
БЮТТНЕР Олаф (DE)

(73) Патентообладатель(и):

КЛАРИАНТ ИНТЕРНЭШНЛ ЛТД. (CH),
АРЕВА ГМБХ (DE)

(54) АДсорбЕНТ МЕТИЛЙОДИДА, ЕГО ПРИМЕНЕНИЕ И СПОСОБ АДсорБЦИИ МЕТИЛЙОДИДА

(57) Реферат:

Изобретение относится к цеолитным адсорбентам. Адсорбент метилйодида включает цеолит, содержащий по меньшей мере один металл, адсорбирующий йодид, или его соединение. Заявленный цеолит представляет собой гидрофобный цеолит типа ВЕА, имеющий

соотношение $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 > 30$. Предложено применение адсорбента и способ адсорбции метилйодида, в том числе радиоактивного. Заявленный адсорбент характеризуется высокими адсорбционной способностью и стабильностью. 3 н. и 11 з.п. ф-лы, 2 табл.



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY

(19) **RU** (11) **2 599 660** (13) **C2**

(51) Int. Cl.

B01J 20/18 (2006.01)

G21F 9/12 (2006.01)

B01D 53/02 (2006.01)

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(21)(22) Application: **2014140439/05, 02.04.2013**

(24) Effective date for property rights:
02.04.2013

Priority:

(30) Convention priority:
02.04.2012 DE 102012006542.6

(43) Application published: **27.05.2016** Bull. № 15

(45) Date of publication: **10.10.2016** Bull. № 28

(85) Commencement of national phase: **05.11.2014**

(86) PCT application:
EP 2013/056941 (02.04.2013)

(87) PCT publication:
WO 2013/150029 (10.10.2013)

Mail address:
**190000, Sankt-Peterburg, VOKH-1125,
PATENTIKA**

(72) Inventor(s):

**DONABAUER Katarina (DE),
TISSLER Arno (DE),
ENDLER Mika (DE),
BYUTTNER Olaf (DE)**

(73) Proprietor(s):

**KLARIANT INTERNESHNL LTD. (CH),
AREVA GMBKH (DE)**

(54) **METHYL IODIDE ADSORBENT, USE THEREOF AND METHOD FOR ADSORPTION OF METHYL IODIDE**

(57) Abstract:

FIELD: construction.

SUBSTANCE: invention relates to zeolite adsorbents. Methyl iodide adsorbent comprises a zeolite containing at least one iodide-adsorbing metal or a compound thereof. Disclosed zeolite is a hydrophobic BEA zeolite, having ratio $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 > 30$. Disclosed

is use of adsorbent and method for adsorption of methyl iodide, including radioactive.

EFFECT: disclosed adsorbent is characterised by high adsorption capacity and stability.

14 cl, 2 tbl

Настоящее изобретение относится к адсорбенту метилйодида, его применению и способу адсорбции метилйодида.

На атомных электростанциях все компоненты, которые вступают в контакт с радиоактивными веществами, находятся на так называемом «ядерном острове». Он включает защитный корпус (внутреннюю оболочку) с первым контуром, водосборным бассейном и ловушкой радиоактивных материалов. В верхней части защитного корпуса могут быть установлены каталитические рекомбинаторы или рекомбинационные системы, например, содержащие Pd на Al_2O_3 , которые предназначены для снижения доли водорода в атмосфере, чтобы предотвратить взрывы водорода.

При нормальном функционировании ядерных реакторов, а в особенности в случае сбоев, также образуются газообразные радиоактивные соединения в дополнение к твердым изотомам распада урана или дочерним изотомам, возникающим при делении урана и высших изотопов в результате захвата нейтронов, которые ни в коем случае не должны быть выпущены в окружающую среду. Наиболее важными из них, помимо водорода, являются радиоактивный йод и метилйодид.

Водород образуется в небольших количествах при нормальном режиме работы, и в больших количествах - в случае сбоев, которые связаны со значительным повышением температуры за счет реакции воды с металлической оболочкой топливных стержней. В дальнейшем этот водород в случае взрыва детонирующего газа может привести к разрушению защитного корпуса и высвобождению большого количества радиоактивных материалов (например, аварии в Чернобыле и Фукусиме). Для того чтобы избежать таких катастроф, в последнее время атомные электростанции модернизируют или оснащают рекомбинационными системами. Они представляют собой пассивные системы, задачей которых является каталитически повторно окислить водород, образующийся при комнатной температуре в условиях атмосферы, с образованием водяного пара, и таким образом избежать образования взрывоопасной атмосферы. Рекомбинаторы также могут быть применены для бассейнов выдержки отработавшего топлива и топливных блоков, обеспечивая то, что высвобожденный водород может реагировать с образованием воды, прежде чем он достигнет взрывоопасной концентрации.

Из продуктов деления, таких как цезий и йод, в топливных стержнях также образуется йодид цезия, который, если не удерживается в топливных стержнях, собирается в приемке ядерного реактора. Элементарный йод образуется из йодида цезия в приемке ядерного реактора посредством радиолиза или в горячих областях (например, в горячих областях в водородных рекомбинаторах), и может высвободиться из приемки ядерного реактора из-за его летучести даже при нормальной работе атомной электростанции. Благодаря его реакционной способности по отношению к органическим веществам из окружающей среды реактора (например, краскам), свободный йод впоследствии может вступать в реакции с образованием метилйодида. Эти летучие радиоактивные вещества накапливаются в газосборнике внутри корпуса реактора и должны быть адсорбированы из него. Многие из образующихся соединений также связываются с аэрозолями и высвобождаются в случае сбоев.

Большинство образующихся радиоактивных изотопов йода имеют короткий период полураспада и, таким образом, из-за высокой радиационной активности в случаях сбоев, существенно увеличивают опасность для жизни. Йод поглощается щитовидной железой и при высоких концентрациях вызывает рак щитовидной железы. В частности, здесь можно упомянуть йод ^{131}I с периодом полураспада 8 дней.

Следовательно, существует потребность в адсорбентах радиоактивного метилйодида, которые являются стабильными даже при высокой влажности, для оснащения или

модернизации ядерных реакторов при безотказной работе или для обеспечения безопасности реактора в закрытом состоянии или во время или после вывода из эксплуатации. Как показывают результаты недавних исследований, а также в соответствии с новыми требованиями безопасности, улавливание органического метилйодида, представляет сейчас серьезную проблему, особенно в связи с уроком, вынесенным из инцидента на Фукусиме в 2011 году. До настоящего момента технического решения не было. Однако были предложены различные подходы. Известны адсорбирующие материалы для осаждения элементарного йода, такие, как, например, оксиды алюминия, содержащие серебро. Однако, в связи с возможным ингибированием, они не очень подходят для применения в условиях водяного пара.

До настоящего момента не существовало ни одной действующей технически современной меры для осаждения метилйодида. Известно, что адсорбирующие материалы, содержащие серебро, пригодны для адсорбции метилйодида. Образующийся йодид серебра имеет температуру плавления примерно 600°C и температуру кипения примерно 1500°C , и, таким образом, в значительной степени стабилен при нормальных условиях. Однако, в случае известных адсорбирующих материалов при высоких концентрациях водяного пара, существует вероятность того, что вода будет заполнять пористую структуру адсорбента и, таким образом, ингибировать адсорбцию метилйодида. Одним из возможных путей предотвращения этого ингибирования является силанизация внешней поверхности адсорбента с помощью органических соединений силана. Этот метод является дорогостоящим и представляет серьезные технические проблемы. Силановый слой распадается при температуре от примерно 180°C , генерируя значительное количество тепла. Это означает, что, начиная с этой температуры, не может происходить никакой дальнейшей адсорбции метилйодида, и более того, любой водород, который может присутствовать, возможно, будет воспламеняться, благодаря высоко экзотермическим условиям, что может привести к нежелательному сопутствующему явлению - взрыву.

Таким образом, задачей является обеспечение адсорбирующего материала, в котором были бы устранены вышеуказанные недостатки, и который, кроме того, характеризовался бы высокой стабильностью и высокой адсорбционной способностью по отношению к йодиду.

Эта задача решена с помощью адсорбента метилйодида согласно п. 1, его применения согласно п. 12 и способа адсорбции метилйодида согласно п. 14.

В одном варианте реализации настоящего изобретения предложен адсорбент метилйодида, содержащий цеолит, который содержит по меньшей мере один металл, адсорбирующий йодид, или его соединение, причем цеолит представляет собой гидрофобный цеолит.

Другой вариант реализации настоящего изобретения относится к применению адсорбента метилйодида, содержащего цеолит, который содержит по меньшей мере один металл, адсорбирующий йодид, или его соединение, причем цеолит представляет собой гидрофобный цеолит, для адсорбции метилйодида, радиоактивного метилйодида, йода и/или радиоактивного йода.

Согласно другому варианту реализации настоящего изобретения, в способе адсорбции метилйодида, метилйодид приводят в контакт с адсорбентом, содержащим цеолит, который содержит по меньшей мере один металл, адсорбирующий йодид, или его соединение, причем цеолит представляет собой гидрофобный цеолит.

Неожиданно было обнаружено, что адсорбент согласно вариантам реализации настоящего изобретения является высоко гидрофобным, обладает высокой

адсорбционной способностью по отношению к йодиду и является устойчивым в отношении этих свойств в широком диапазоне концентраций паров воды и температуры. Более того, риск экзотермического воспламенения любого водорода, который может присутствовать, заметно снижен благодаря гидрофобным свойствам и отсутствию

Дополнительные признаки и функциональные возможности могут быть найдены в последующем описании вариантов реализации, фигурах и зависимых пунктах формулы изобретения.

Все признаки вариантов реализации настоящего изобретения, которые описаны здесь и не являются взаимоисключающими, могут быть скомбинированы друг с другом. Элементы одного варианта реализации могут быть использованы в других вариантах реализации без дополнительных оговорок. Варианты реализации настоящего изобретения описаны теперь более подробно с помощью следующих примеров, не ограничивая их таким образом.

В дальнейшем описании вариантов реализации настоящего изобретения адсорбент метилйодида также называют просто адсорбент. Кроме того, в дальнейшем описании термины цеолит и цеолитный материал используются как синонимы. Термин "металл или его соединение" можно понимать как предшественник металла или соединение предшественника металла или соединение, содержащее такой предшественник. Кроме того металл может присутствовать в ионной форме. Более того, термин «промотор» можно понимать как предшественник промотора, как соединение промотора или как соединение предшественника промотора или соединение, содержащее такой предшественник.

Выражение "металл, адсорбирующий йодид" включает или представляет собой металл, который адсорбирует йодид, и в вариантах реализации настоящего изобретения также йод, физически и/или химически. Например, если в вариантах реализации настоящего изобретения серебро используют в качестве металла, адсорбирующего йодид, оно реагирует с метилйодидом с образованием йодида серебра и таким образом связывается с метилйодидом в адсорбенте посредством химической адсорбции.

Более того, варианты реализации настоящего изобретения, описанные ниже со ссылкой на гидрофобный цеолит, содержащий серебро, не ограничивают настоящее изобретение этим благородным металлом.

Термин "содержащий" в вариантах реализации настоящего изобретения включает "главным образом состоящий из" и "состоящий из" и может быть заменен этими терминами. Это, соответственно, относится к грамматическим вариациям слова "содержащий". Более того, для описания диапазонов значений в данном случае верно, что описание широкого диапазона значений с более узкими альтернативами или предпочтительных диапазонов значений также раскрывает диапазоны значений, которые могут быть образованы путем любой комбинации заданных нижних пределов диапазона значений с заданными верхними пределами.

В одном варианте реализации настоящего изобретения описан адсорбент метилйодида, содержащий цеолит, который содержит по меньшей мере один металл, адсорбирующий йодид или его соединение, причем цеолит представляет собой гидрофобный цеолит. Металл, адсорбирующий йодид, представляет собой металл, также адсорбирующий йод в вариантах реализации настоящего изобретения. Адсорбент может также адсорбировать элементарный йод, например, со степенью адсорбции более 99%.

Металл, адсорбирующий йодид, может быть выбран, например, из серебра (Ag),

иттрия, церия, магния, натрия, олова и свинца. В вариантах реализации настоящего изобретения также возможно использование нескольких из этих металлов, адсорбирующих йодид. Более того, один или более металлов, адсорбирующих йодид, могут содержаться в катионной форме. В качестве металла, адсорбирующего йодид, предпочтительно применяют серебро. При применении серебра в качестве металла, адсорбирующего йодид, давление паров полученного йодида серебра с температурой кипения 1500°C очень низко, и радиоактивный йодид таким образом надежно связан в адсорбенте.

Если во время расплавления ядра реактора температура достигает значения выше примерно 1200°C, радиоактивный йодид не высвобождается из адсорбента согласно вариантам реализации настоящего изобретения, но переходит в состояние стекла в истинном смысле этого слова, благодаря преобразованию цеолита в термодинамически более стабильную структуру (кристобалит или кварц), и таким образом надежно хранится в кварце или в кристобалите до плавления, соответственно, до температуры примерно 1700°C.

Как описано выше, адсорбент метилйодида согласно вариантам реализации настоящего изобретения является гидрофобным и, кроме того, неожиданно обладает выраженной способностью к адсорбции йодида. В вариантах реализации настоящего изобретения это может привести к осаждению более чем 99% йодида. Более того, адсорбент метилйодида является устойчивым в отношении этих свойств в широком диапазоне концентраций паров воды и температуры. В отношении гидрофобности, то есть степени водоотталкивания, является стабильным даже при высоких температурах. Более того, риск экзотермического воспламенения любого водорода, который может присутствовать, явно снижается за счет гидрофобных свойств. Эти эффекты наблюдаются, например, если использованный в производстве цеолит, не содержащий металла, адсорбирующего йодид, или в нейтральной форме, является гидрофобным сам по себе, т.е. если он обладает высокой "собственной" гидрофобностью. В некоторых примерах реализации гидрофобность цеолита и/или адсорбента может, может также сохраняться при высоких температурах выше 1000°C вплоть до разрушения структуры цеолита.

Более того, благодаря гидрофобным свойствам цеолита, используемого в вариантах реализации настоящего изобретения, не требуется нанесения покрытия из кремнийорганических соединений или принятия других мер для придания гидрофобных свойств цеолиту, насыщенному металлом, адсорбирующим йодид, или адсорбенту. В результате, стала возможной регенерация адсорбента нагреванием. Высокие температуры не влияют на гидрофобные свойства цеолита согласно вариантам реализации настоящего изобретения. Более того, количество полученных продуктов разложения заметно снижается по сравнению с адсорбентами, которые имеют гидрофобные покрытия.

В контексте настоящего изобретения, под цеолитом или цеолитным материалом, в соответствии с определением, данным Международной минералогической ассоциацией (D.S. Coombs и др., Can. Mineralogist, 35, 1997, 1571), подразумевают кристаллическое вещество со структурой, характеризующейся каркасом из взаимосвязанных тетраэдров. Каждый тетраэдр состоит из четырех атомов кислорода, окружающих один центральный атом, причем каркас содержит открытые полости в форме каналов и клеток, которые обычно заняты молекулами воды, и внекаркасные катионы, которые могут быть заменены. Каналы материала достаточно велики, чтобы обеспечить доступ другим соединениям. В случае гидратированных материалов, дегидратация, как правило,

происходит при температурах ниже приблизительно 400°C и, по большей части, является обратимой.

Цеолитный материал, который может быть применен в вариантах реализации настоящего изобретения, может представлять собой, например, силикат, алюмосиликат, фосфат кремния алюминия, фосфосиликат металла алюминия, силикат галлия алюминия, силикат бороалюминия или силикоалюминофосфат титана (TAPSO), причем особенно предпочтительными являются алюмосиликаты, также упоминаемые как алюмосиликатные цеолиты. Цеолит, используемый в вариантах реализации настоящего изобретения, кроме того, может характеризоваться высоким содержанием SiO₂, который, например, превышает 85 масс. %, предпочтительно 98 масс. %.

Под термином "алюмосиликат" в соответствии с определением, данным Международной минералогической ассоциацией (D.S. Coombs и др., Can. Mineralogist, 35, 1997, 1571), подразумевают кристаллическое вещество с трехмерной сетчатой структурой с общей формулой $M^{n+}[(AlO_2)_x(SiO_2)_y] \times nH_2O$, которая состоит из тетраэдров SiO_{4/2} и AlO_{4/2}, которые соединены общими атомами кислорода, образуя регулярную трехмерную сеть. Соотношение атомов Si/Al=y/x всегда более/равно 1 в соответствии с так называемым "правилом Левенштейна", в результате чего два смежных отрицательно заряженных тетраэдра AlO_{4/2} не могут оказаться смежными. Соотношение SiO₂/Al₂O₃ в алюмосиликатном цеолите также упоминают как модуль.

В другом варианте реализации адсорбента цеолит представляет собой цеолит, имеющий собственную гидрофобность, то есть цеолит без добавления металла, адсорбирующего йодид, уже является гидрофобным. Было неожиданно обнаружено, что цеолит, содержащий металл, адсорбирующий йодид, и, следовательно, также адсорбент согласно вариантам реализации настоящего изобретения, также является гидрофобным без дополнительных наполнителей или мер. В контексте настоящего изобретения было показано именно то, что добавление металла, адсорбирующего йодид, лишь незначительно изменяет гидрофобность/гидрофильность цеолита. Благодаря собственной гидрофобности, дальнейшая обработка цеолита для того, чтобы получить или усилить его гидрофобные свойства, становится излишней. Более того, благодаря собственной гидрофобности, свежий адсорбент, также как и адсорбент, который хранили в течение длительного периода, или использованный адсорбент, готов к использованию без дополнительной регенерации, такой как, например, сушка.

В других вариантах реализации адсорбента цеолит представляет собой алюмосиликат и/или имеет долю SiO₂>94 масс. %, предпочтительно >98 масс. %. Предпочтительными являются варианты реализации, в которых используются алюмосиликатные цеолиты с долей SiO₂>94 масс. %, предпочтительно >98 масс. %. Приблизительная доля SiO₂ в зависимости от модуля SiO₂/Al₂O₃ представляет собой:

$\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$	масс. % SiO_2
10	85
20	92
30	94
50	97
100	98
150	99

В вариантах реализации настоящего изобретения применяемый цеолит, даже без добавления металла, адсорбирующего йодид, имеет соотношение $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 > 5$, предпочтительно > 20 , более предпочтительно > 30 , еще более предпочтительно > 50 , в частности > 100 . Неожиданно было обнаружено, что только такое высокое соотношение $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ обеспечивает достаточно гидрофобные свойства цеолита без добавления металла, адсорбирующего йодид, и/или содержащего металл, адсорбирующий йодид, так же как и адсорбента в целом. В соответствии с некоторыми вариантами реализации настоящего изобретения соотношение $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ применяемого цеолита лежит в диапазоне > 100 или > 140 , например, от 100 до 250 или от 130 до 170.

Цеолитный материал, применяемый в вариантах реализации настоящего изобретения, может предпочтительно соответствовать одному из следующих типов структур:

ABW, ACO, AEI, AEL, AEN, AET, AFG, AFI, AFN, AFO, AFR, AFS, AFT, AFX, AFY, AHT, ANA, APC, APD, AST, ASV, ATN, ATO, ATS, ATT, ATV, AWO, AWW, BCT, BEA, BEC, BIK, BOG, BPH, BRE, CAN, CAS, CDO, CFI, CGF, CGS, CHA, CHI, CLO; CON, CZP, DAC, DDR, DFO, DFT, DOH, DON, EAB, EDI, EMT, EON, EPI, ERI, ESV, ETR, EUO, EZT, FAR, FAU, FER, FRA, GIS, GIU, GME, GON, GOO, HEU, IFR, IHW, ISV, ITE, ITH, ITW, IWR, IWV, IWW, JBW, KFI, LAU, LEV, LIO, LIT, LOS, LOV, LTA, LTL, LTN, MAR, MAZ, MEI, MEL, MEP, MER, MFI, MFS, MON, MOR, MOZ, MSE, MSO, MTF, MTN, MTT, MTW, MWW, NAB, NAT, NES, NON, NPO, NSI, OBW, OFF, OSI, OSO, OWE, PAR, PAU, PHI, PON, RHO, RON, RRO, RSN, RTE, RTH, RUT, RWR, RWY, SAO, SAS, SAT, SAV, SBE, SBS, SBT, SFE, SFF, SFG, SFH, SFN, SFO, SGT, SIV, SOD, SOS, SSY, STF, STI, STT, SZR, TER, THO, TON, TSC, TUN, UEI, UFI, UOZ, USI, UTL, VET, VFI, VNI, VSV, WEI, WEN, YUG и ZON, причем цеолитные материалы предпочтительно имеют 12-кольцевую систему пор (BEA, FAU), и особенно предпочтительно структурный тип Бета (BEA).

Вышеприведенный трехбуквенный код соответствует "Комиссии ИЮПАК по номенклатуре цеолитов". Кроме того, согласно вариантам реализации настоящего изобретения, цеолит может быть выбран из группы, состоящей из AFI, AEL, BEA, CHA, EUO, FAU, FER, KFI, LTL, MAZ, MOR, MEL, MTW, OFF, TON и MFI. Обозначенные типы структуры цеолита пригодны для целей настоящего изобретения, так как с ними необходимые гидрофобные свойства и/или необходимая активность могут быть реализованы особенно предпочтительно при наличии небольшого количества металла в адсорбенте.

Согласно другим вариантам реализации изобретения цеолит может быть

микропористым. Более того, цеолит или адсорбент, а именно в случае адсорбента, который содержит цеолит и выполнен в виде формованных изделий, или в случае покрытия, которое содержит цеолит и расположено на носителе, могут иметь долю микропор более 70%, предпочтительно более 80% по отношению к общему объему пор

5 цеолита или адсорбента. В контексте настоящего изобретения, под терминами микропоры, мезопоры и макропоры подразумевают поры, которые имеют диаметр <1 нанометра (микропоры), диаметр от 1 до 50 нанометров (мезопоры) или диаметр >50 нанометров (макропоры), соответственно.

Микропористость цеолита согласно вариантам реализации настоящего изобретения

10 приводит к сильной и стабильной дисперсности металла, адсорбирующего йодид, в цеолите, так как, благодаря микропористой структуре цеолита с однородной структурой пор, металл оказывается существенно диспергирован, и, таким образом, равномерно распределен во всем объеме цеолита. Кроме того, это способствует адсорбции йодида цеолитом, так как, в сравнении с другими структурами, аналогичным образом

15 содержащими добавки, такими как, например, оксид алюминия, цеолит согласно вариантам реализации настоящего изобретения проявляет увеличенную адсорбционную способность по отношению к йодиду. Кроме того, согласно вариантам реализации настоящего изобретения, давление паров металла, который адсорбировал йодид, снижено благодаря микропористой структуре. Например, когда серебро используют

20 в качестве металла, адсорбирующего йодид, давление паров полученного йодида серебра является очень низким, с температурой кипения 1500°C. Кроме того, если температура достигает значения более примерно 1200°C в случае расплавления ядра реактора, радиоактивный йодид не высвобождается, но, благодаря трансформации цеолита в термодинамически более стабильную структуру (кristобалит или кварц),

25 переходит в состояние стекла в истинном смысле этого слова, и таким образом надежно хранится в кварце или в кристобалите до плавления, соответственно, до температуры примерно 1700°C.

В предпочтительном варианте реализации адсорбента металл, адсорбирующий йодид, может фактически быть расположен в порах цеолита. Это также приводит к сильной

30 и стабильной дисперсности металла, адсорбирующего йодид, в цеолите, так как металл, таким образом, прочно соединен в дисперсии, и, таким образом, равномерно распределен по всей поверхности цеолита. Кроме того, это способствует адсорбции йодида в цеолите. Более того, агломерация металла, адсорбирующего йодид, с образованием более крупных частиц при высоких температурах, которая может привести к потере

35 эффективной площади поверхности, а следовательно, и потере производительности, тем самым явно замедляется или предотвращается.

Металл, адсорбирующий йодид, например, серебро, может быть введен в цеолит, например, посредством ионного обмена или пропитки. Металл, адсорбирующий йодид, может присутствовать в цеолите в виде частиц. Более того, частицы могут иметь средний

40 диаметр от 0,5 до 5 нм, предпочтительно 0,5-1,5 нм и, таким образом, предпочтительно являются аморфными согласно дифракции рентгеновских лучей.

Адсорбент согласно вариантам реализации настоящего изобретения может содержать по меньшей мере один промотор для снижения разложения воды металлом, адсорбирующим йодид. Так как металлом, адсорбирующим йодид, может быть,

45 например, благородный металл, каталитическое разложение воды с образованием водорода и кислорода может происходить при повышенных температурах и концентрации водяного пара. Эта проблема решена в соответствии с вариантами реализации настоящего изобретения благодаря добавлению промотора к адсорбенту

метилйодида.

Промотор может, например, содержать свинец (Pb). Адсорбционную способность по отношению к йодиду не снижают добавлением промотора, а наоборот, снижают тенденцию к разложению воды металлом, адсорбирующим йодид, и, таким образом, избегают образования газа водорода.

В других вариантах реализации настоящего изобретения содержание металла, адсорбирующего йодид, в цеолите или в адсорбенте составляет от 0,1 до 50 масс. %, более предпочтительно от 5 до 30 масс. % и наиболее предпочтительно от 10 до 20 масс. %. Более того, содержание промотора или свинца в цеолите или в адсорбенте может составлять от 1 до 30 масс. %, более предпочтительно от 5 до 30 масс. %, более предпочтительно от 10 до 20 масс. % и наиболее предпочтительно от 3 до 6 масс. %.

Удельная поверхность цеолита или адсорбента согласно примерам вариантов реализации настоящего изобретения может составлять от 10 до 1000 м²/г,

предпочтительно от 300 до 900 м²/г, особенно предпочтительно от 500 до 700 м²/г, и/или суммарный объем пор цеолита или адсорбента согласно примерам вариантов реализации настоящего изобретения может составлять более 100 мм³/г, предпочтительно более 200 мм³/г. Благодаря этим свойствам по отдельности или в комбинации, можно по необходимости влиять на адсорбирующую способность адсорбента.

Адсорбент согласно примерам вариантов реализации настоящего изобретения может быть изготовлен в виде сыпучего материала. Более того, адсорбент может быть изготовлен, например, как экструдат, в виде формованных частиц или в виде частиц, покрытых цеолитом. Например, сыпучий материал может содержать формованные частицы или pellets, которые были получены посредством прессования или экструзии керамической массы цеолита, содержащего металл, адсорбирующий йодид.

Сферы, кольца, цилиндры, полые цилиндры, трехлопастные или конические фигуры могут быть перечислены в качестве примеров геометрических фигур адсорбента или формованных частиц, причем монолит, например монолитное тело в виде пчелиных сот, является особенно предпочтительным.

Более того, адсорбент может включать носитель, на котором закреплен цеолит или покрытие, содержащее цеолит. Покрытием служит суспензия или взвесь цеолита в суспендирующем агенте, например, в воде, при необходимости с добавлением предпочтительно силикатного связующего агента. Цеолит может быть закреплен на носителе, например, посредством нанесения суспензии или покрытия или посредством выращивания из раствора.

Адсорбент и/или носитель может иметь форму пчелиных сот или в форму диска, например, изготовленного в виде листов. Вариант в форме пластины позволяет осуществлять параллельную установку нескольких адсорбентов в верхней части защитного корпуса АЭС, в результате чего можно достичь хорошего потока газа, содержащего метилйодид, через адсорбенты.

Кроме того, в отношении покрытия предпочтительно, если адсорбент, имеющий форму пчелиных сот, содержит металл, адсорбирующий йодид, до содержания от 0,1 до 4,0 г/л, более предпочтительно от 0,4 до 1,5 г/л и наиболее предпочтительно от 0,4 до 1,0 г/л по отношению к объему тела, имеющего форму пчелиных сот.

В вариантах реализации настоящего изобретения, носитель может включать оксид металла в качестве материала носителя, предпочтительно оксид титана, оксид церия, оксид алюминия, оксид олова, оксид циркония, оксид кремния, оксид цинка, оксид алюминия-оксид кремния или силикат магнезия или смесь двух или более из

вышеперечисленных оксидов. Могут быть использованы носители или несущие тела, изготовленные из керамического материала. Керамический материал часто представляет собой инертный материал с низкой площадью поверхности, такой как кордиерит, муллит, альфа-оксид алюминия, карбид кремния или титанат алюминия. Однако применяемый материал носителя также может состоять из материала с большой площадью поверхности, такого как гамма-оксид алюминия или TiO_2 . Металлы также могут быть применены в качестве вспомогательного материала. Предпочтительные носители или несущие тела, следовательно, также изготавливают, например, из листа, выполненного из любого металла или сплава металлов, имеющего металлическую фольгу или спеченную металлическую фольгу или металлическую ткань, и производят, например, посредством экструзии, намотки или укладки.

Более того, адсорбент согласно вариантам реализации настоящего изобретения может быть применен для адсорбции метилйодида, радиоактивного метилйодида, йода и/или радиоактивного йода. Адсорбент, в частности, может быть применен на атомных электростанциях или вблизи атомных электростанций, на заводах по регенерации ядерного топлива или в сооружениях для хранения топливных элементов, например, в защитном корпусе ядерного реактора или бассейнах выдержки отработавшего топлива атомных электростанций или в блоках для радиационных элементов или отработанных тепловыделяющих элементов.

Более того, адсорбент может быть использован совместно с катализатором рекомбинации водорода, также известным как рекомбинатор. Он может быть использован вместо или в дополнение к промотору, содержащемуся в адсорбенте. Таким образом, можно избежать или предотвратить разложение воды на водород и кислород, катализируемое металлом, адсорбирующим йодид, при повышенных температурах и/или при повышенной концентрации.

Другой вариант реализации настоящего изобретения относится к способу адсорбции метилйодида, в котором метилйодид приводят в контакт с адсорбентом согласно вышеуказанным вариантам реализации. В дополнение к метилйодиду, йод также может быть приведен в контакт с адсорбентом согласно вышеуказанным вариантам реализации настоящего изобретения и быть адсорбированным последним. Метилйодид и/или йод могут быть радиоактивными, в частности, если способ применяют на атомных электростанциях, на заводах по переработке или в сооружениях для хранения топливных элементов.

Адсорбент согласно примерам вариантов реализации может быть получен способами, в которых металл, адсорбирующий йодид, вводят в гидрофобный цеолитный материал. Как уже было описано, гидрофобный по своей природе цеолит, как описано выше, может быть использован в качестве цеолитного материала. Адсорбент предпочтительно получают путем добавления металла, например, путем пропитки готового формованного изделия, выполненного из цеолитного материала или с покрытием из него.

Еще один пример способа получения адсорбента включает: а) введение соединения металла, адсорбирующего йодид, далее также называемого соединением металла, в цеолитный материал; б) мокрое измельчение цеолитного материала, содержащего в качестве добавки соединение металла, с материалом носителя, который может быть пористым; с) высушивание смеси, содержащей цеолитный материал с добавкой и материал носителя. После этапа а) и перед этапом б) можно произвести этап фиксации, в котором соединение металла фиксируют на цеолитном материале. Более того, может иметь место стабилизирующий этап для стабилизации адсорбента. Коллоидный раствор

кремневой кислоты, такой как Bindzil, который является жидким и становится пористым после высыхания, часто используют как материал носителя. Таким образом, можно получить адсорбент, содержащий пористый материал носителя, наряду с цеолитным материалом, внутренняя поверхность которого содержит в качестве добавки металл, адсорбирующий йодид.

Например, мокрая смесь, полученная на этапе b) или высушенная смесь, полученная на этапе c) могут быть нанесены на носитель в виде взвеси или покрытия. В контексте настоящего изобретения, таким образом, под адсорбентами можно подразумевать адсорбенты, полученные посредством покрытия носителя обычно пористым слоем, содержащим по меньшей мере один металл, адсорбирующий йодид.

Введение соединения металла, адсорбирующего йодид, также упоминаемого здесь как соединение металла, в цеолитный материал или в цеолит может быть осуществлено в целях получения вариантов реализации настоящего изобретения посредством твердофазного обмена или твердофазного ионного обмена. Например, введение происходит посредством перемешивания цеолитного материала с соединением металла в сухом состоянии в шаровой мельнице и посредством последующего отпуска при более высоких температурах, предпочтительно при температуре от 450 до 650°C.

Альтернативно, соединения металла вводят посредством пропитки цеолитного материала раствором соединения металла, например, путем распыления раствора на цеолитный материал. Пропитку также можно осуществлять в камере, в которой турбулентный поток вызван применением аспирации к камере и в которой преобладает давление ниже атмосферного. Согласно другому способу получения варианта реализации настоящего изобретения, соединения металла вводят посредством пропитки цеолитного материала раствором соединения металла посредством способа заполнения пор. При этом цеолитный материал приводят в контакт с количеством раствора, объем которого соответствует объему пор применяемого цеолитного материала.

В другом примере, во-первых, например, на носитель в форме пчелиных сот наносили покрытие, содержащее цеолитный материал и пористый материал носителя, например, пористый кремний. Покрытый носитель затем прокачивали. Впоследствии покрытый носитель пропитывали, например, раствором нитрата металла, адсорбирующего йодид. Пропитанный покрытый носитель затем высушивали.

В способе получения адсорбента в качестве соединений металла, адсорбирующего йодид, или промотора могут быть применены соответствующие нитраты, ацетаты, оксалаты, тартраты, формиаты, амины, сульфиты, карбонаты, галогениды или гидроксиды.

При получении адсорбента согласно вариантам реализации, более того, цеолитный материал может быть микропористым или мезопористым, например структуры ВЕА-типа или семейства MCM.

Адсорбент согласно вариантам реализации настоящего изобретения, кроме того, может представлять собой адсорбент с полимодальным распределением пор, т.е. он содержит микропоры и мезопоры, а также макропоры. В контексте настоящего изобретения, под терминами микропоры, мезопоры и макропоры подразумевают поры, которые имеют диаметр <1 нанометра (микропоры), диаметр от 1 до 50 нанометров (мезопоры) или диаметр >50 нанометров (макропоры), соответственно. Долю микро и мезо/макропор определяют посредством так называемого метода T-plot согласно ASTM D-4365-85.

Адсорбент согласно вариантам реализации настоящего изобретения, например, содержит микропористый цеолитный материал, который содержит по меньшей мере

один металл, адсорбирующий йодид, и пористое SiO_2 -содержащее связующее вещество, причем адсорбент может иметь долю микропор, например, с диаметром <1 нм, более 70% относительно общего объема пор адсорбента. Более того, цеолитный материал может иметь долю алюминия менее 2 мол. %. Соотношение цеолитный материал/ связующее вещество по массе (по отношению к массам соответствующих сухих веществ) может составлять от 99:1 до 1:99. Чистое SiO_2 -связующее вещество, которое содержит немного мезо и макропор, например, суспензия Bindzil 2034 (Eka Chemicals AB, Бохус/ Швеция) может быть использовано в качестве SiO_2 -содержащего связующего вещества.

Установлено, что адсорбенты, которые содержат микропористый цеолитный материал, содержащий металл, адсорбирующий йодид, и чистое SiO_2 -связующее вещество, имеющие немного мезо и макропор, имеют значительно более высокую адсорбционную способность по отношению к йодиду.

Такие адсорбенты согласно вариантам реализации настоящего изобретения могут быть получены посредством а) введения соединения металла, адсорбирующего йодид, в микропористый цеолитный материал; б) смешивания полученного таким образом цеолитного материала, содержащего соединение металла, с пористым SiO_2 -содержащим связующим веществом и растворителем; и с) сушки смеси, содержащей цеолитный материал, содержащего соединение металла, и связующее вещество. Смесь, полученная на этапе б) может быть нанесена на носитель, также на несущее тело.

В другом способе получения адсорбента согласно вариантам реализации, получают адсорбент, который кроме металла, адсорбирующего йодид, содержит металлосодержащий промотор, также названный здесь как биметаллический адсорбент. Этот пример описан со ссылкой на получение Ag и Pb-содержащего адсорбента, который может быть получен посредством пропитки материала носителя, изготовленного из гидрофобного цеолита и соединений Ag и Pb, не содержащих серы, и воздушной сушки пропитанного цеолитного материала носителя. В качестве соединений Ag и Pb могут быть использованы, например, растворы нитратов. Сушку пропитанного цеолитного материала носителя можно проводить предпочтительно ниже точки разложения соединений Ag и Pb. Этот способ может, более того, включать следующие этапы: получение покрытия из пропитанного цеолитного материала носителя, нанесение покрытия на несущее тело и воздушную сушку покрытого несущего тела.

Таким образом, может быть получен адсорбент согласно вариантам реализации настоящего изобретения, причем адсорбент содержит биметаллическую композицию, содержащую Ag и Pb на цеолитном материале носителя. Биметаллическая композиция может иметь общую поверхность пор площадью более $400 \text{ м}^2/\text{г}$. В частности, биметаллическая композиция может иметь содержание Ag от 1 до 50 масс. % относительно массы композиции и/или содержание Pb от 1 до 30 масс. % относительно массы композиции. Более того, композицию можно наносить на несущее тело в виде покрытия, причем адсорбент имеет от 0,5 до 12 масс. % Ag и/или от 1 до 6 масс. % Pb относительно массы покрытия. В частности, биметаллическая композиция или покрытие может иметь массовое соотношение Ag/Pb от 6:1 до 1:1. Более того, в адсорбенте согласно данному примеру, Ag и Pb могут быть расположены преимущественно в порах цеолитного материала носителя и присутствовать в виде агрегатов <5 нм.

Методики измерения

Элементный анализ с помощью ИСП:

ИСП-АЭС (атомно-эмиссионную спектроскопию с индуктивно связанной плазмой) проводят на ИСП-спектрометре Arcos для определения элементного состава или

соотношения $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$. Используют следующие реагенты: серная кислота 98% ч.д.а., плавиковая кислота 37% ч.д.а., соляная кислота 37% ч.д.а. Образец тонко измельчают.

Для определения Si и Al, 100 мг образца взвешивают в 100 мл пластиковом стакане и добавляют 1 мл серной кислоты и 4 мл плавиковой кислоты. Растворение проводят на водяной бане в течение 5 минут при 85°C до получения прозрачного раствора. Далее проводят термостатирование, заполнение и встряхивание. Все элементы, а также соответствующие стандарты, измеряют с помощью ИСП. Si измеряют, применяя следующие параметры: длина волны: 288, 158 нм. Al измеряют, применяя следующие параметры: длина волны: 396, 152 нм.

Для определения Ag и/или Pb взвешиваемый образец берут в таком количестве, чтобы в нем содержалось приблизительно 3 мг Ag и Pb соответственно. Затем добавляют по 6 мл плавиковой и соляной кислоты. Далее нагревают до 180°C в течение 30 минут при перемешивании до получения прозрачного раствора. Далее проводят термостатирование, заполнение и встряхивание. Все элементы, а также соответствующие стандарты, измеряют с помощью ИСП. Ag измеряют, применяя следующие параметры: длина волны: 214, 423 нм. Для Pb длина волны составляет 168 нм.

Все стандарты доводят HF и HCl или H_2SO_4 . Определение проводят с помощью следующего вычисления: $w(E^* \text{ в процентах}) = \beta(E^* \text{ измеренное значение в мг/л}) \times V$ (мерной колбы в л) $\times 100/m$ (масса навески в мг) (E^* =соответствующий элемент).

Общая поверхность пор:

Общую поверхность пор определяют по методу БЭТ (Брунауэра-Эммета-Тейлора) в соответствии с DIN 66131; публикацию метода БЭТ также можно найти в J. Am. Chem. Soc. 60309 (1938). Определяемый образец сушат в U-образном кварцевом реакторе при температуре 200°C в атмосфере аргона ($F=50$ мл(мин) в течение 1,5 ч). Затем реактор охлаждают до комнатной температуры, вынимают и погружают в сосуд Дьюара с жидким азотом. Адсорбцию азота проводят при 77 K в сорбционной системе RXM 100 (Advanced Scientific Design, Inc.).

Объем пор и размер пор:

Суммарный объем пор определяют в соответствии с DIN 66134, определение распределения пор по размеру и удельной поверхности мезопористых твердых веществ путем сорбции азота по ВЈН (способ по Barrett, Joyner и Halenda). Доля микро и мезо/макропор определяют посредством так называемого T-plot метода согласно ASTM D-4365-85.

Варианты реализации и примеры для сравнения

Коммерчески доступному цеолиту BEA от Süd-Chemie AG (H-BEA-150), который обладает высокими гидрофобными свойствами благодаря высокому $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ модулю, составляющему 150, придавали форму сфер с диаметром 3 мм. В качестве связующего вещества применяли SiO_2 в количестве 10 масс. %.

Полученное таким образом формованное изделие пропитывали нитратом серебра в соответствии со способом начальной влажности и установили содержание элементарного серебра 12 масс. % (адсорбент А).

К адсорбенту А дополнительно добавляли разные количества нитрата свинца в соответствии со способом начальной влажности (1 масс. % Pb = адсорбент В; 3 масс. % Pb = адсорбент С; 6 масс. % Pb = адсорбент D; 12 масс. % Pb = адсорбент Е).

Примерами для сравнения являлись 13 X цеолиты (производитель Süd-Chemie AG) с модулем 1,5, которым придавали форму сфер того же размера, как в примерах варианта реализации, и добавляли 12 масс. % серебра (Адсорбент F) и 12% серебра и 12% свинца

(Адсорбент G), применяя соответствующие нитраты в соответствии со способом начальной влажности.

Кроме того, в качестве другого примера для сравнения испытывали обычный адсорбент в форме сфер из оксида алюминия того же размера, как в примерах варианта реализации, с 12 масс. % Ag и силанизированный пропилтриэтоксисиланом (Dynasylan® PTEO от EVONIK) (адсорбент H).

Измеряли удерживание метилйодида и образование/высвобождение водорода в потоке через пластину адсорбента согласно примерам варианта реализации и примерам для сравнения.

Удерживание метилйодида измеряли в нагреваемом аппарате со сквозным потоком. Устанавливали поток 100 л/ч. В качестве тестового газа, к соответствующей смеси воздуха и водяного пара, указанной в таблице 1, добавляли 200 ppmv метилйодида. Для каждого измерения в аппарат помещали 5 г материалов для исследования. Начальные и конечные концентрации метилйодида измеряли с помощью пламенно-ионизационного детектора. Отношение конечной концентрации к начальной концентрации после сквозного потока в течение 5 минут является значением удерживания.

Образование/высвобождение водорода снова измеряли в аппарате со сквозным потоком. В данном случае, в аппарате устанавливали расход воздуха, насыщенного водяным паром, 100 л/ч (3,2 об.% H_2O) при комнатной температуре. Прибор состоит из двух сегментов с термопарой в каждом, на входе и на выходе. Первый сегмент содержал 5,0 г соответствующего образца для тестирования. Второй сегмент содержал катализатор окисления с добавлением платины, которая вновь окисляла водород с образованием воды. Тепло, высвобожденное в процессе реакции, которое может быть измерено как разность температур на входе и выходе второго сегмента использовали для измерения количества образованного водорода, так как в данном случае в тестовом газе не присутствовало других компонентов, которые могли бы окисляться при комнатной температуре. Повышение температуры на 1 К приблизительно соответствует образованию 0,014 об.% H_2 .

Измеренные значения удерживания метилйодида и количества образованного водорода сравнивали со значениями примеров для сравнения, что можно увидеть в следующих таблицах 1 и 2.

Таблица 1

Адсорбент	Согласно изобретению	Удерживание CH_3I							
		При RT и АН 70%		При RT и 50% H_2O пара		При RT и 90% H_2O пара		При 200°C и 90% H_2O пара	
A	да	> 99%		> 99%		> 99%		> 99%	
B	да	> 99%		> 99%		> 99%		> 99%	
C	да	> 99%		> 99%		> 99%		> 99%	
D	да	> 99%		> 99%		> 99%		> 99%	
E	да	> 99%		> 99%		> 99%		> 99%	
F	нет	85%		ca.80%		ca.70%		ca.60%	
G	нет	85%		ca.80%		ca.70%		ca.60%	
H	нет	98%		ca.90%		ca.85%		ca.30%	

Таблица 2

	Согласно изобретению	Высвобождение водорода		Стабильность гидрофобности	
			Разница температуры в сегменте реактора 2 в К		
5					
10	A да	следы	3	до > 1000°C	
	B да	следы	3	до > 1000°C	
15	C да	Невозможно измерить	<1	до > 1000°C	
	D да	Невозможно измерить	<1	до > 1000°C	
20	E да	Невозможно измерить	<1	до > 1000°C	
	F нет	следы	2	Отсутствие гидрофобности	
25	G нет	Невозможно измерить	<1	Отсутствие гидрофобности	
30	H нет	Невозможно измерить	<1	до 180°C	

RT = комнатная температура = 25°C

АН = влажность воздуха

Из таблицы 1 видно, что примеры вариантов реализации при различных температурах и влажности воздуха или концентрации водяного пара в атмосфере показали удержание CH_3I более чем на 99%, в то время как образцы примеров для сравнения показали менее 99% удержания CH_3I . Адсорбционная способность к йодиду примеров вариантов реализации, таким образом, заметно лучше, чем, примеров для сравнения.

Таблица 2 также показывает, что все примеры вариантов реализации и примеры для сравнения показали низкое или неизмеримое высвобождение водорода.

Цеолиты BEA-150, содержащие серебро, применяемые в примерах вариантов реализации, и соответствующие адсорбенты дополнительно характеризуется высокой устойчивостью гидрофобности к температуре до более 1000°C. Это справедливо, в частности, по отношению к примеру для сравнения H, гидрофобные свойства которого обеспечиваются за счет силанизации, силановый слой которого, однако, термически

неустойчив уже при 180°C.

Формула изобретения

1. Адсорбент метилйодида, который включает цеолит, содержащий по меньшей мере один металл, адсорбирующий йодид, или его соединение, причем цеолит представляет собой гидрофобный цеолит типа BEA, имеющий соотношение $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 > 30$.

2. Адсорбент по п. 1, в котором металл, адсорбирующий йодид, представляет собой также металл, адсорбирующий йод.

3. Адсорбент по п. 1, в котором цеолит является микропористым, и/или в котором металл, адсорбирующий йодид, выбран из серебра, иттрия, церия, магния, натрия, олова и свинца.

4. Адсорбент по п. 1, в котором цеолит или адсорбент имеет долю микропор более 70%, предпочтительно более 80%, по отношению к общему объему пор цеолита или адсорбента, и/или в котором металл, адсорбирующий йодид, расположен в порах цеолита.

5. Адсорбент по п. 1, в котором цеолит представляет собой алюмосиликат, и/или в котором цеолит имеет соотношение $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 > 100$, и/или в котором цеолит имеет долю $\text{SiO}_2 > 94$ масс. %, предпочтительно > 98 масс. %.

6. Адсорбент по любому из пп. 1-5, который содержит по меньшей мере один промотор для уменьшения разложения воды металлом, адсорбирующим йодид.

7. Адсорбент по любому из пп. 1-5, в котором промотор содержит свинец, и/или в котором содержание металла, адсорбирующего йодид, в цеолите или в адсорбенте составляет от 0,1 до 50 масс. %, более предпочтительно от 5 до 30 масс. % и наиболее предпочтительно от 10 до 20 масс. %, и/или в котором содержание промотора или свинца в цеолите или в адсорбенте составляет от 1 до 30 масс. %, более предпочтительно от 5 до 30 масс. %, еще более предпочтительно от 10 до 20 масс. % и наиболее предпочтительно от 3 до 6 масс. %.

8. Адсорбент по любому из пп. 1-5, в котором площадь поверхности цеолита или адсорбента, определенная по методу Брунауэра-Эммета-Теллера (БЭТ), составляет от 10 до 1000 м²/г, предпочтительно от 300 до 900 м²/г, особенно предпочтительно от 500 до 700 м²/г и/или суммарный объем пор цеолита или адсорбента составляет более 100 мм³/г.

9. Адсорбент по любому из пп. 1-5, в котором адсорбент изготовлен в виде сыпучего материала, и/или в котором адсорбент содержит носитель, на который нанесен цеолит или покрытие на основе пористого оксида, содержащее цеолит.

10. Адсорбент по п. 9, в котором адсорбент изготовлен в виде экструдата, в виде формованных частиц или в виде частиц, покрытых цеолитом, и/или в котором адсорбент и/или носитель изготовлен в форме пчелиных сот или в форме пластины.

11. Применение адсорбента метилйодида по любому из пп. 1-10 для адсорбции метилйодида, радиоактивного метилйодида, йода и/или радиоактивного йода.

12. Применение по п. 11, в котором адсорбент применяют на атомных электростанциях или вблизи атомных электростанций, на заводах по переработке или в сооружениях для хранения топливных элементов, и/или в котором адсорбент применяют совместно с катализатором рекомбинации водорода.

13. Способ адсорбции метилйодида, в котором метилйодид приводят в контакт с адсорбентом по любому из пп. 1-10.

14. Способ по п. 13, в котором метилйодид является радиоактивным, и/или в котором

йод и/или радиоактивный йод дополнительно адсорбированы адсорбентом.

5

10

15

20

25

30

35

40

45