

KfK 4182  
BF-R65.523-12  
EIR-592  
GRS-A-1252  
KWU-R-917/86/107  
Dezember 1986

# **DEMONA**

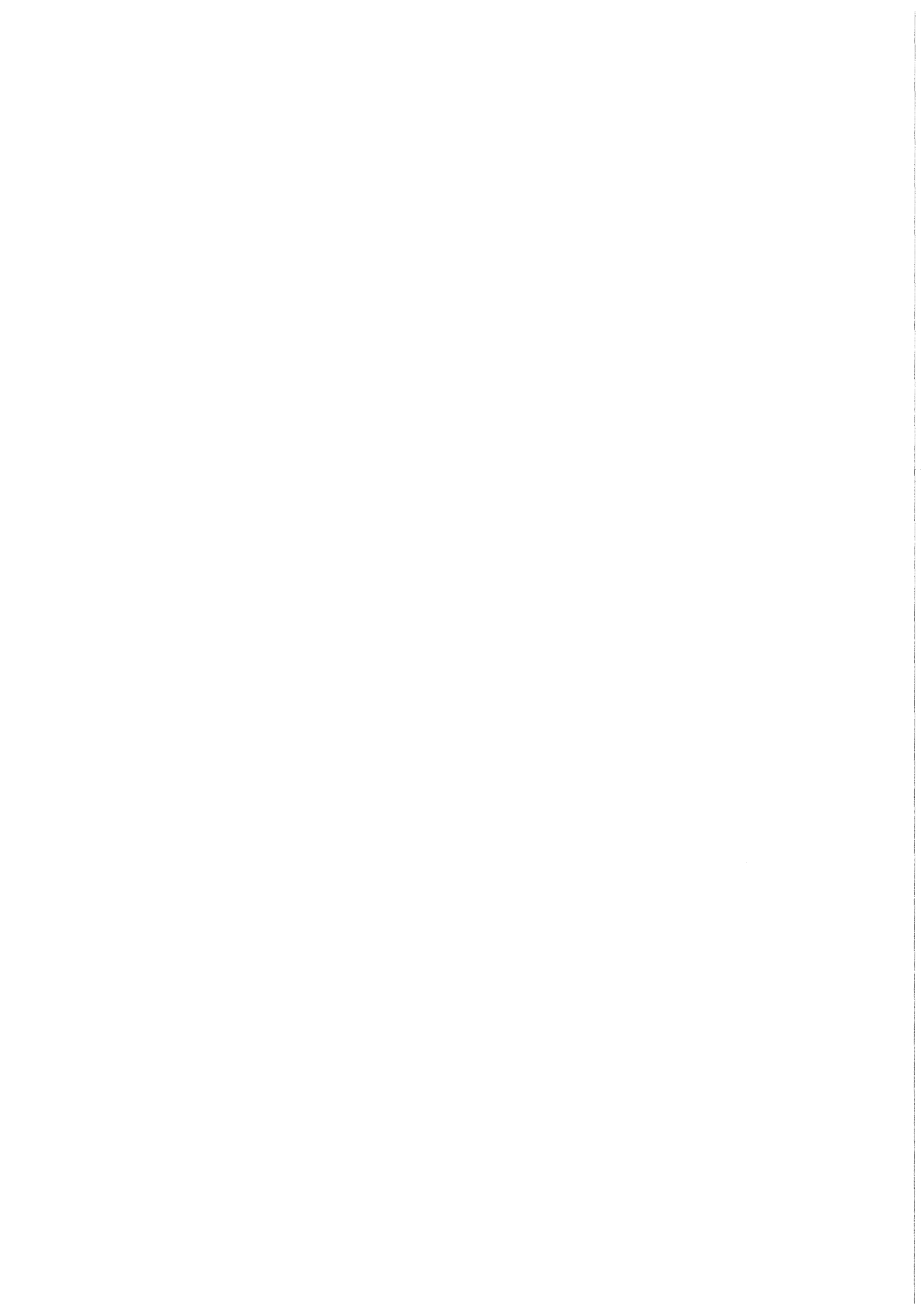
**Jahresbericht 1985**

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik  
Eidgenössisches Institut für Reaktorforschung  
Battelle Institut e. V.  
Kraftwerkunion AG  
Gesellschaft für Reaktorsicherheit mbH

zusammengestellt von W. Schöck

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik  
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KfK 4182  
BF-R65.523-12  
EIR-592  
GRS-A-1252  
KWU-R-917/86/107  
Dezember 1986

# DEMONA

## Jahresbericht 1985

mit Beiträgen von:

H. Bunz, W. Schöck, KfK/LAF  
D. Haschke, A. Fromentin, R. Taubenberger, EIR-EU  
T. Kanzleiter, T. Schröder, Battelle Institut  
M. Peehs, H. Ruhmann, M. Fischer, KWU  
G. Weber, E. Schrödl, GRS

zusammengestellt von:

W. Schöck, KfK/LAF



**Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH**

**Last Annual Reports:**

1984/85: KfK 3969 (Oktober 1985)  
1983/84: KfK 3815 (Oktober 1984)  
1982/83: KfK 3621 (November 1983)  
1981/82: KfK 3427 (November 1982)  
1980/81: KfK 3280 (Februar 1982)

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003  
ISSN 0176-1501

DEMONA ist ein Versuchsprogramm, das gemeinschaftlich durchgeführt wird von:

- Kernforschungszentrum Karlsruhe,  
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik I  
in Zusammenarbeit mit der Projektleitung des Projekts Nukleare Sicherheit
- Battelle-Institut e.V., Frankfurt
- Eidgenössisches Institut für Reaktorforschung, Würenlingen
- Gesellschaft für Reaktorsicherheit, Garching/Köln
- Kraftwerk Union, Erlangen

Finanziell unterstützt wird das DEMONA-Programm durch das Bundesministerium für Forschung und Technologie, das Kernforschungszentrum Karlsruhe, das Eidgenössische Institut für Reaktorforschung und den Schweizerischen Nationalen Energieforschungsfond.

Alle Arbeiten im DEMONA-Forschungsprogramm werden von der DEMONA-Arbeitsgruppe koordiniert. Die DEMONA-AG bewertet auch die erzielten Ergebnisse und führt den Vergleich mit den Voraus- und Nachrechnungen durch. Mitglieder der DEMONA-AG sind:

J.P.Hosemann, KfK/PNS  
H.Bunz, W.Schikarski, W.Schöck, KfK/LAF I  
D.Haschke, A.Fromentin, R.Taubenberger, EIR  
T.Kanzleiter, Th.Schröder, Battelle-Institut  
M.Fischer, M.Peehs, H.Ruhmann, KWU  
H.Erlenwein, G.Weber, E.Schrödl, GRS  
J.A.Gieseke, Battelle Columbus Laboratories

## Zusammenfassung

Das DEMONA-Programm dient der DEMONstration Nuklearen Aerosolverhaltens durch Experimente im großen Maßstab. Es soll zeigen, daß der NAUA-Code als Gesamtmodell in der Lage ist, das typische störfallbedingte Aerosolverhalten im Containment eines Druckwasserreaktors realistisch und genügend genau zu beschreiben. Wegen der engen Kopplung von Thermodynamik und Aerosolverhalten werden im DEMONA-Programm auch Beiträge zur Verifikation von Thermodynamik-Codes (COCMEL, FIPLOC) geleistet.

Die Experimente werden im Modellcontainment des Battelle-Instituts in Frankfurt durchgeführt. Das Modellcontainment ist eine Nachbildung von Biblis A im Maßstab 1:4 und zeichnet sich durch geometrische und thermodynamische Eigenschaften aus, die eine sehr realistische Simulation der Bedingungen beim Kernschmelzunfall ermöglichen.

Im Berichtsjahr 1985 wurden 18 Versuche zur weiteren Entwicklung der Aerosolgeneratoren durchgeführt. Es stehen jetzt Generatoren für Aerosole aus Zinnoxid, Silber und Eisenoxid zur Verfügung. Vier Hauptversuche wurden mit diesen Aerosolen durchgeführt, wobei auch die thermodynamischen Bedingungen variiert wurden. Dieser Bericht faßt die wesentlichen Arbeiten und Ergebnisse zusammen.

## DEMONA Annual Report 1985

### Abstract

The DEMONA program is conducted to DEMONstrate Nuclear Aerosol behavior in large scale experiments. It is to be shown that the NAUA aerosol code is capable of describing sufficiently well the typical aerosol behavior during accidents in pressurized water reactors. DEMONA will also contribute to the validation of the thermodynamics codes COCMEL and FIPLOC.

The experiments are carried out in the model containment facility at Battelle Frankfurt which is a quarter scale model of the Biblis A containment. The geometric and thermodynamic properties of the model containment allow a realistic simulation of the conditions during core melt accidents.

In 1985, 18 tests were done to develop and optimize aerosol generation techniques for tin oxide, silver and iron oxide aerosols. With these aerosols and with mixtures of them 4 main experiments were carried out. The thermodynamic conditions were also varied. In this report the work performed and the main results are summarized.

## Inhalt

	Seite
1. Einleitung	1
2. Überblick DEMONA 1985 (KfK/LAF1)	3
2.1. Durchgeführte Arbeiten	3
2.2. Ergebnisse	4
3. Modellcontainment	15
3.1. Betrieb der Anlage	15
3.2. Thermodynamische Messungen	19
4. Aerosolerzeugung (KWU)	27
4.1. Erzielte Ergebnisse	28
4.2. Aerosolerzeugung	31
5. Aerosolmessungen	39
5.1. Aerosolmeßtechnik (EIR)	39
5.2. Meßergebnisse (EIR)	41
5.3. Sonderinstrumentierung (KfK/LAF1)	88
6. Modelltheorie	91
6.1. Thermodynamische Rechnungen (KWU)	91
6.2. Integrierte Mehrraumrechnungen (GRS)	99
6.3. Aerosolverhaltensrechnungen (KfK/LAF1)	106
7. Veröffentlichungen im Berichtsjahr	109



## 1. Einleitung

Das Verhalten nuklearer Aerosole nach schweren Störfällen in Kernkraftwerken ist seit nahezu zwei Jahrzehnten intensives Forschungsthema in der Bundesrepublik Deutschland, wobei der Schwerpunkt der Arbeiten im Kernforschungszentrum (KfK) liegt. Die Untersuchungen zum nuklearen Aerosolverhalten in schweren Störfällen von LWR-Kernkraftwerken begannen Anfang der 70er Jahre. Der internationale Stand der Kenntnis auf diesem wichtigen Gebiet der Reaktorsicherheit, das insbesondere den radiologischen Quellterm entscheidend beeinflusst, wurde in zwei Berichten des Committee on the Safety of Nuclear Installations (CSNI) der OECD Nuclear Energy Agency (NEA) dargestellt /1/, /2/.

Die bisherigen experimentellen Untersuchungen zum Aerosolverhalten im KfK wurden im Labor- bzw. Technikums-Maßstab durchgeführt. Für den Fall der schweren Störfälle bei LWR-Kernkraftwerken wurde der NAUA-Code entwickelt, der in einem PNS-Forschungsprogramm des Laboratoriums für Aerosolphysik und Filtertechnik I des KfK (NAUA-Programm) auch experimentell abgesichert wurde, wobei insbesondere der Einfluß des kondensierenden Wasserdampfes auf das Aerosolverhalten untersucht wurde. Die Version NAUA-Mod5 berücksichtigt alle wichtigen Aerosolprozesse (Sedimentation, Diffusion, Diffusiophorese, Brown'sche und Gravitationskoagulation, Kondensation).

Das DEMONA-Programm /3,4/ dient der Demonstration nuklearen Aerosolverhaltens durch Experimente im großen Maßstab. Es soll zeigen, daß der NAUA-Code als Gesamtmodell in der Lage ist, das typische störfallbedingte Aerosolverhalten im Containment eines DWR realistisch und genügend genau zu beschreiben. Wegen der engen Kopplung von Thermodynamik und Aerosolverhalten wird das DEMONA-Programm auch zur Verifikation der Thermodynamikcodes COCMEL und FIPLOC einen Beitrag leisten.

Die Experimente werden im Modellcontainment des Battelle Instituts in Frankfurt durchgeführt. Das Modellcontainment ist eine Nachbildung von Biblis A im Maßstab 1:4 und zeichnet sich durch geometrische und thermodynamische Eigenschaften aus, die eine sehr realistische Simulation der Bedingungen beim Kernschmelzunfall ermöglichen.

Folgende Institutionen leisten wissenschaftliche und technische Beiträge:

- Kernforschungszentrum Karlsruhe, Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik I in Zusammenarbeit mit der Projektleitung des Projektes Nukleare Sicherheit
- Battelle-Institut, Frankfurt
- Eidgenössisches Institut für Reaktorforschung, Würenlingen
- Gesellschaft für Reaktorsicherheit, München
- Kraftwerk-Union, Erlangen

Finanziell unterstützt wird das DEMONA-Programm durch das Bundesministerium für Forschung und Technologie, das Kernforschungszentrum Karlsruhe, das Eidgenössische Institut für Reaktorforschung und den Schweizerischen Nationalen Energieforschungsfond.

Die Anlage, der Versuchsaufbau und die Zielsetzungen des DEMONA-Programms sind in /3,4/ beschrieben. Die Arbeiten bis Ende 1984 sind in /5/ zusammenfassend dargestellt. Der vorliegende Bericht enthält eine Zusammenfassung der wesentlichen Arbeiten und Ergebnisse aus dem Jahre 1985. Die Einzelheiten der Versuche der DEMONA-Testmatrix werden jeweils in gesonderten Berichten dokumentiert.

- /1/: Nuclear Aerosols in Reactor Safety  
A State-of-the-Art Report  
OECD/NEA Hrsg., Paris 1979
- /2/: Nuclear Aerosols in Reactor Safety  
Supplementary Report  
OECD/NEA Hrsg., Paris 1985
- /3/: W.O. Schikarski Hrsg.; KfK 3636, EIR 502, 1983  
DEMONA, Forschungsprogramm zur Demonstration nuklearen  
Aerosolsverhaltens
- /4/: J.P. Hosemann, D. Haschke  
DEMONA, Aerosol Removal Experiments  
EIR Bericht 505, 1983
- /5/: W. Schöck, DEMONA Jahresbericht 1984, KfK 3942, BF-R 65.523-30-3,  
EIR 553, GRS-A-1078, KWU-R-917/85/103 (1985)

## 2. Überblick DEMONA 1985

### 2.1. Durchgeführte Arbeiten

Nachdem im Vorjahr mit der Durchführung des Versuchs B3 der Anfang der Versuche in kondensierender Atmosphäre gemacht war konnte im Berichtszeitraum mit der Abarbeitung der Testmatrix begonnen werden. Es wurden vier Hauptversuche durchgeführt (B4, B5, B6 und A7) und von der DEMONA-AG verabschiedet. Daneben fanden noch 18 Tests zur Aerosolgeneratorentwicklung und -optimierung für Silberaerosol- und für Eisenoxidaerosolerzeugung aus Eisenpentacarbonyl statt. Diese Entwicklung wurde im November abgeschlossen und der Versuch A7 als erster Versuch mit reinem Eisenoxidaerosol durchgeführt. Die Meßtechnik wurde im wesentlichen unverändert weiter betrieben, entscheidende Verbesserungen waren bei den Fotometern und den Kalorimetern notwendig.

In diesem Kapitel werden die durchgeführten Arbeiten und die wesentlichen Ergebnisse kurz zusammengefaßt. Die nachfolgenden Kapitel enthalten ausführlichere Darstellungen zu den Einzelaufgaben.

#### Modellcontainment

Mit der vom Battelle-Institut betriebenen thermodynamischen Instrumentierung des Modellcontainments wird der Betrieb überwacht und die ablaufenden thermodynamischen Vorgänge gemessen. Die eingesetzten Sonden und Geräte waren im wesentlichen dieselben wie im Vorjahr, bis auf vereinzelte Ausfälle arbeiteten alle Systeme einwandfrei.

#### Aerosolgenerator

Die Entwicklung und der Betrieb der Aerosolgeneratoren wird von KWU durchgeführt. Die Erzeugung von Zinnoxidaerosol war im Berichtszeitraum problemlos, Konzentrationen von über  $10\text{g}/\text{m}^3$  konnten erreicht werden. Dagegen bereitete die Erzeugung von Eisenoxid- und Silberaerosol zunächst beachtliche Schwierigkeiten. Für die Silberaerosolerzeugung wurde

eine neue Brennkammer entwickelt, die Erzeugungsrate blieb jedoch gering. Die Erzeugung von Eisenoxidaerosol aus Eisenpulver erwies sich als so uneffizient, daß diese Linie endgültig verlassen wurde. Statt dessen wurde ein neues Fördersystem für Eisenpentacarbonyl entwickelt und gebaut und an die vorhandenen Plasmabrenner angeschlossen. Mit dieser Kombination gelang dann die Eisenoxidaerosolerzeugung mit sogar höherer Rate als beim Zinn-oxidaerosol.

### Aerosolmeßtechnik

Die Aerosolmeßtechnik des EIR wurde wie im Vorjahr eingesetzt. Die Aerosolfotometer zeigten zunehmend Ausfälle und Störungen, die durch die Bauart bedingt nicht reparabel waren. Daher wurde eine umfassende Neukonstruktion der Meßköpfe vorgenommen und andere bessere Lichtleiter eingesetzt. Mit diesen Maßnahmen wurde eine drastische Verbesserung der Eigenschaften und der Betriebssicherheit erzielt. Nicht zum Einsatz kam das Tröpfchengrößenspektrometer.

Die Kalorimeter zeigten ebenfalls Verschleißerscheinungen, die während des Versuchs B4 zum Totalausfall führten. Eine Umstellung der Betriebsweise brachte eine wesentliche Verbesserung, außer Korrosion traten dann keine weiteren Probleme auf.

## 2.2. Ergebnisse

Die vier durchgeführten Hauptversuche sind

- B4 (V34) eine Wiederholung des Basisversuchs B3
- B5 (V36) Versuch mit transienter Thermodynamik und hoher Aerosolkonzentration
- B6 (V39) Versuch mit transienter Thermodynamik und Mischerosol geringer Konzentration
- A7 (V53) Versuch mit Eisenoxidaerosol

Der Versuch B4 diente der Überprüfung der Reproduzierbarkeit der Experimente, es ist der einzige Versuch des DEMONA-Programms, der eine identische Wiederholung eines anderen Versuchs ist. Der Versuch B5 war als der 'transiente' Versuch der Testmatrix geplant. Es wurde eine trockene

Phase nach dem Ende der Aerosoleinspeisung eingeschoben, um den Unterschied zwischen den Aerosolabbauraten in überhitzter und in kondensierender Atmosphäre zu messen. Es zeigte sich aber, daß die Unterschiede im Aerosolverhalten im Vergleich zu B3 und B4 gering waren. Daher wurde der Versuch B6 mit längerer Trockenphase und mit geringerer Aerosolkonzentration durchgeführt, um den Unterschied deutlicher messen zu können. Der Versuch A7 war eine Wiederholung von B3, jedoch mit Eisenoxidaerosol, um Einflüsse des Aerosolmaterials zu untersuchen.

#### Versuch B4

Der Versuch B4 war in der Betriebsweise eine Duplikation von B3. Es wurde mit allen drei Brennern Zinnoxidaerosol erzeugt. Die eingesetzte Zinnmenge war 14.2 kg, die maximale Aerosolkonzentration im Containment betrug ca.  $10 \text{ g/m}^3$ . Dieser Wert liegt sehr dicht bei dem des Versuchs B3 ( $8.4 \text{ g/m}^3$ ), so daß auch ein fast identisches Abbauverhalten gemessen wurde. In der Abb.2.2.1 sind die gemessenen Massenkonzentrationswerte aus beiden Versuchen B3 und B4 gemeinsam eingetragen, man erkennt keinen systematischen Unterschied. Die eingezeichnete mit NAUA berechnete Kurve ist die Nachrechnung von B3, die schon im Bericht des letzten Jahres diskutiert wurde.

#### Versuch B5

Der Versuch B5 war als Versuch mit 'transienter' Thermodynamik im Sinne der ursprünglichen DEMONA-Testmatrix geplant. Nach Abwägung der experimentellen Möglichkeiten wurde die 'Transiente' als ein Übergang von deutlich überhitztem zu kondensierendem Atmosphärenzustand mit der maximal möglichen Geschwindigkeit festgelegt. Dazu wurde die Dampfzufuhr ins Containment eine Stunde vor Beginn der Aerosoleinspeisung gestoppt und erst eine Stunde nach deren Ende wieder gestartet (s. Kapitel 3). Als Aerosolmaterial wurde Zinnoxid verwendet, die maximale gemessene Aerosolkonzentration war  $12.4 \text{ g/m}^3$ , das ist der höchste Wert, der in allen Versuchen gemessen wurde. In der Abb.2.2.2 sind die gemessenen Werte der Massenkonzentration gezeigt. Man sieht, daß die Zeitauflösung der Messung nicht hoch genug ist, um einen Unterschied der Abbauraten zwischen überhitztem und kondensierendem Zustand der Atmosphäre erkennen zu lassen.

## Versuch B6

Um den bei B5 nicht beobachteten Effekt zu verdeutlichen, gibt es zwei Möglichkeiten, die Verlängerung der überhitzten Phase und die Verringerung der Aerosolkonzentration. Beide Maßnahmen wurden beim Versuch B6 ergriffen. Die Dauer der überhitzten Phase wurde auf vier Stunden ausgedehnt, und die Aerosolkonzentration auf  $1 \text{ g/m}^3$  festgelegt. Eine so geringe Aerosolkonzentration ließ sich auch mit einem anderen Material als Zinnoxid erreichen, daher wurde Silber als Aerosolmaterial eingesetzt. Beim Betrieb des Aerosolgenerators verdampften dann allerdings beträchtliche Mengen der Brennkammer ( $\text{MgO}$ ), so daß die tatsächliche Konzentration des Mischaerosols aus  $\text{Ag}$  und  $\text{MgO}$   $2.1 \text{ g/m}^3$  betrug. Dennoch ist, wie Abb.2.2.3 zeigt, die Erhöhung der Aerosolabbaurate nach vier Stunden aufgrund der einsetzenden Kondensation nun deutlich sichtbar. Die Nachrechnung des Versuchs mit NAUA ergab bislang nur unbefriedigende Übereinstimmung. Die Diskrepanz kann nur durch ungenügenden Thermodynamikinput verursacht werden, die Rechnungen werden fortgesetzt.

Ein weiteres Problem wurde durch die Auswertung des Versuchs B6 gelöst. In allen Nachrechnungen der vorher durchgeführten Versuche fällt auf, daß die Form der gerechneten Konzentrationskurve nicht mit den Messungen übereinstimmt. Während die gerechnete Kurve konvex ist, und die Abbaurate mit der Zeit zunimmt, zeigen die gemessenen Werte einen konkaven Verlauf. Der konvexe Verlauf ist dabei vernünftig, da die gleiche Menge Dampf an immer weniger Partikeln kondensiert, was zu größeren Tröpfchen und zu verstärktem Ausregnen führt. Deswegen muß in kondensierender Atmosphäre die Kurve konvex sein, anders als in nicht-kondensierender Atmosphäre, wo die Kurve immer konkav ist, vgl. z.B. den Trockenversuch B2 [\*]. Dieses systematisch falsche Verhalten der Meßwerte kann nun anhand der Auswertung des Versuchs B6 wie folgt erklärt werden.

Von allen Aerosolproben wurden chemische Analysen gemacht (s. Kapitel 5). Es wurden die Komponenten  $\text{Ag}$ ,  $\text{Mg}$  und  $\text{Fe}$  gefunden, das Eisen stammt aus dem Dampferzeuger (Rost). Interessant ist nun der Zeitverlauf der luftgetragenen Konzentration dieser Komponenten, der in Abb.2.2.4 gezeigt ist. Man sieht, daß die Eisenkonzentration abweichend von dem synchronen Abbau der beiden anderen Komponenten sehr viel langsamer abnimmt. Nicht etwa, weil

---

[\*] DEMONA Jahresbericht 1984, KfK 3942 (1985)

Eisenoxidaerosol anderen Abbaugesetzen folgt als die anderen Aerosole (s. auch Versuch A7), sondern weil es ständig mit dem Dampf nachgeliefert wird. In der Tat hat nun die Abbaukurve für die Komponenten Ag und MgO die typisch konvexe Form wie die mit NAUA berechneten Konzentrationskurven. Die Komponenten MgO und Ag, die aus den Aerosolgeneratoren stammen, sind nach 7 Stunden verschwunden, während die Rostkomponente zu diesem Zeitpunkt noch deutlich meßbar ist. Die weiteren in Abb.2.2.3 noch enthaltenen Meßpunkte sind wegen der großen Meßfehler im Bereich der Nachweisgrenzen nicht mehr auswertbar. Es ist jedoch eindeutig, daß diese Proben nicht mehr die ursprünglichen Komponenten Ag und MgO enthalten.

Das von den Aerosolgeneratoren erzeugte Aerosol - und nur das wird in den NAUA-Rechnungen brücksichtigt - zeigt also das qualitativ richtige Abbauverhalten, wie es von NAUA berechnet wird. Bei allen früheren Versuchen, bei denen nur die Gesamtkonzentration des Aerosols bestimmt worden war, konnte dieser Sachverhalt nicht bemerkt werden.

#### Versuch A7

Der Versuch A7 ist der erste, bei dem die Aerosolerzeugung mit Eisenpentacarbonyl als Ausgangssubstanz erfolgte. Es wurden zwei Brenner betrieben (s. Kapitel 4), die eingesetzte Carbonylmasse war 9.6kg, das entspricht stöchiometrisch einer Eisenoxidmasse von 4 kg. Die maximal gemessene Aerosolkonzentration war  $3 \text{ g/m}^3$ . In Abb.2.2.5 sind die gemessenen Werte der Konzentration gezeigt. Die Abbaurate ist etwas höher als bei den Versuchen B3 und B4 mit Zinnoxidaerosol.

Die Temperatur des eingespeisten Aerosols war bei diesem Versuch deutlich niedriger als bei den Zinnoxidaerosolversuchen. Das führte dazu, daß die Dichte des Aerosols größer war als die der Containmentatmosphäre. Im Gegensatz zu den Zinnoxidaerosolversuchen traten daher für die Dauer der Aerosoleinspeisung schlechte Durchmischungsverhältnisse auf. Die 'kalte' Aerosolwolke lag in den unteren Räumen des Containments und verteilte sich nur sehr langsam. Erst nach dem Ende der Aerosolerzeugung trat wieder die gewohnte dampfgetriebene Konvektionswalze auf. Diese Phänomene werden auch von FIPLOC richtig berechnet.

Neben der üblichen NAUA-Nachrechnung wurde deswegen auch eine zweistufige Nachrechnung mit NAUA durchgeführt, wobei für die Dauer der Aerosolein-

speisung nur ein reduziertes Volumen angenommen wurde. Beide Rechnungen sind in Abb.2.2.5 eingezeichnet. Die "zweistufige" Kurve ist die Nachrechnung der zweiten Stufe, d.h. nach dem Ende der Aerosoleinspeisung. Man sieht, daß der Maximalwert der Aerosolkonzentration besser getroffen wird als üblicherweise in den Einraumrechnungen. Der Abfall der Kurve ist ebenfalls etwas steiler, erklärt aber noch nicht ganz die im Vergleich zu den Zinnoxidaerosolversuchen leicht erhöhte experimentelle Abbaurrate.



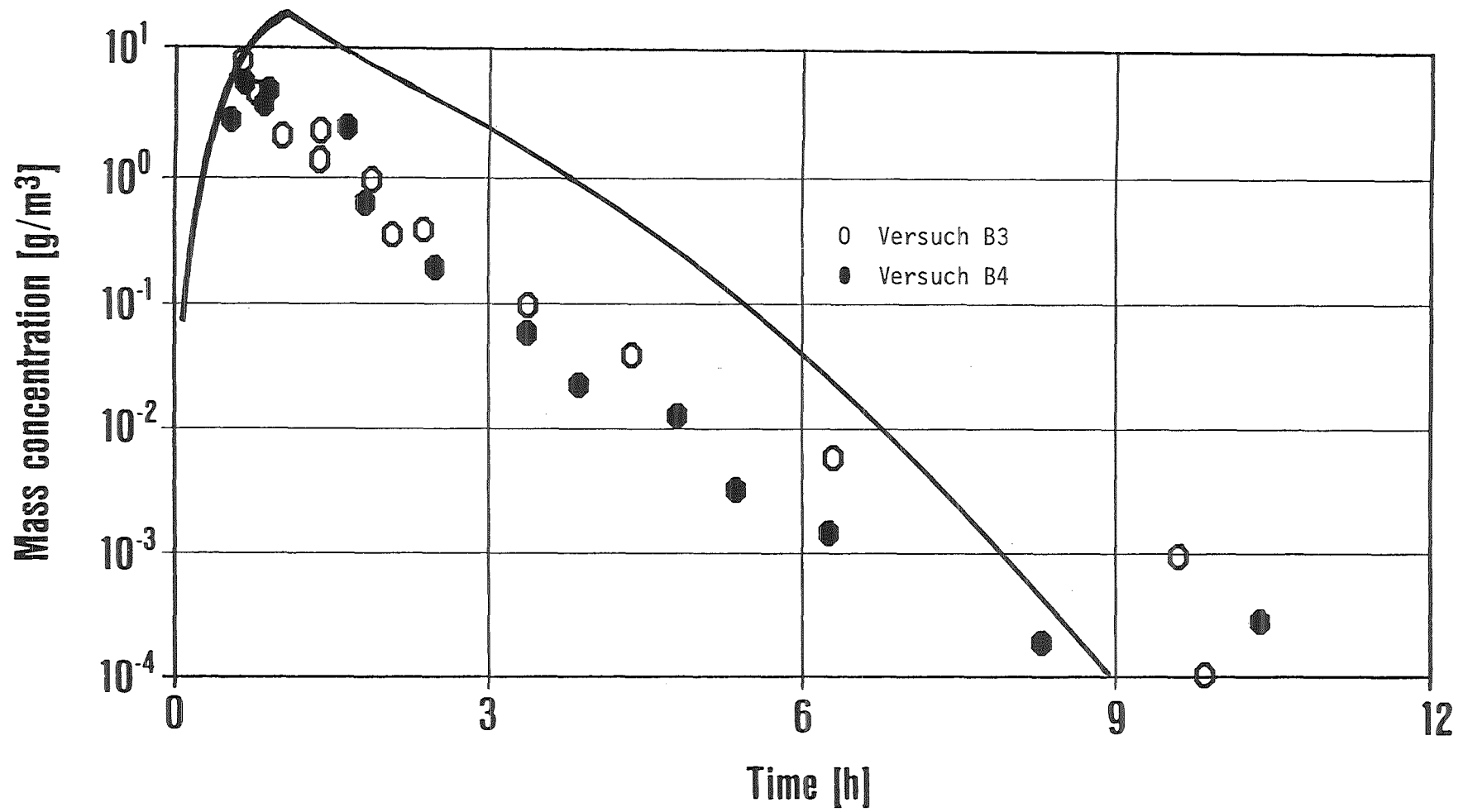


Abb.2.2.1: Messergebnisse der Versuche B3 und B4  
und Nachrechnung mit NAUA

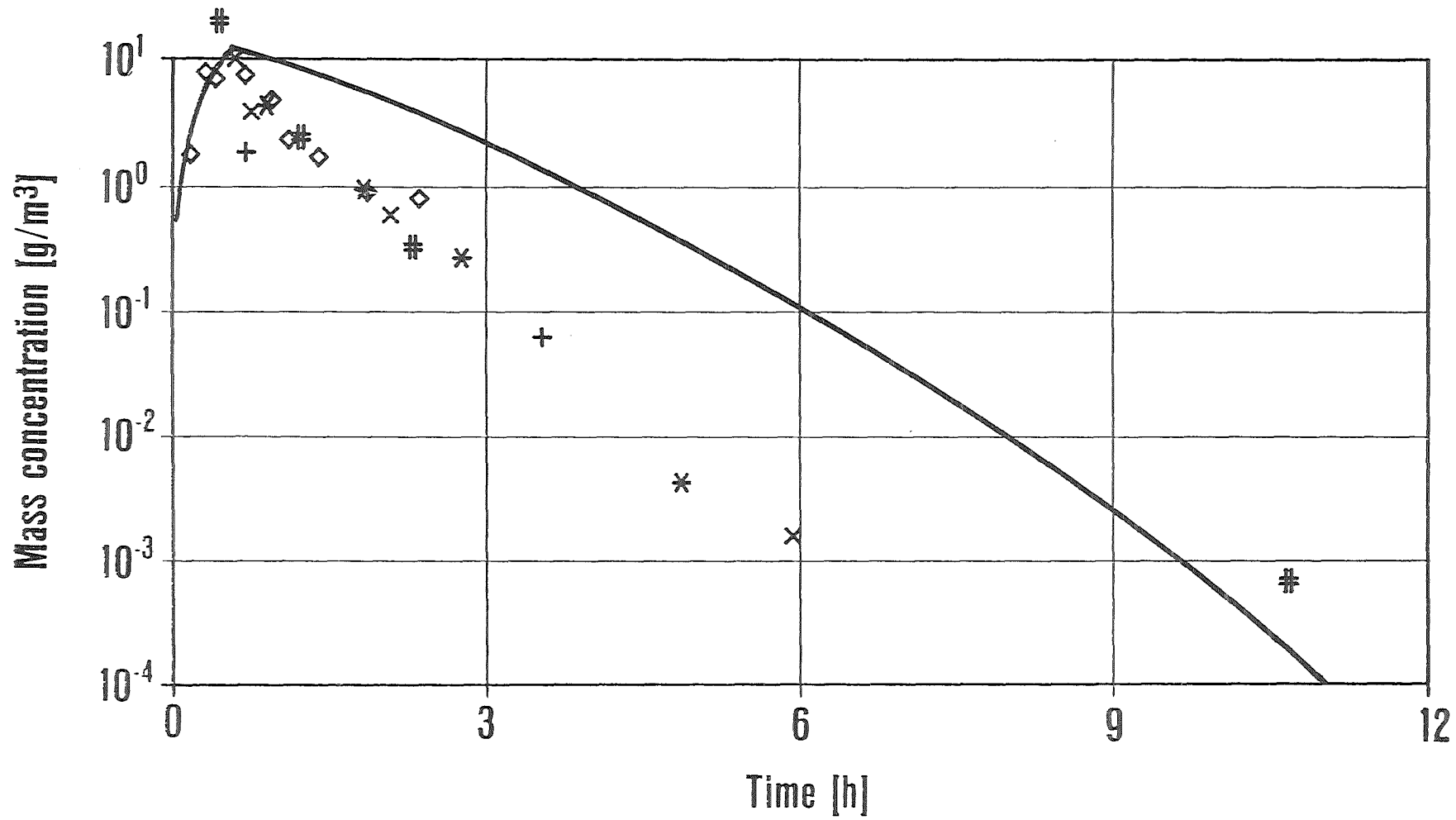


Abb.2.2.2: Messergebnisse des Versuchs B5  
und Nachrechnung mit NAUA

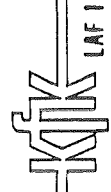
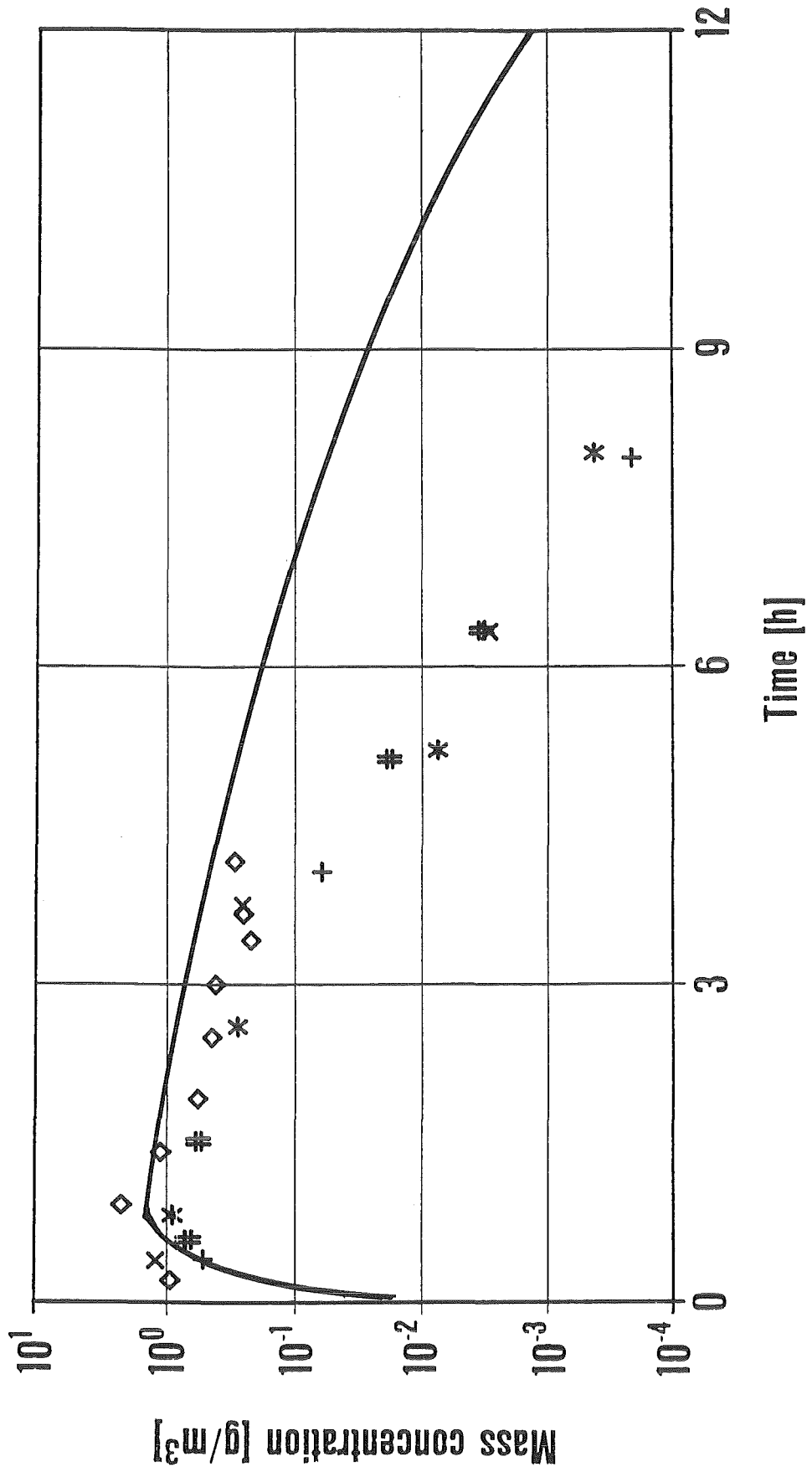


Abb.2.2.3: Messergebnisse des Versuchs B6  
und Nachrechnung mit NAUA

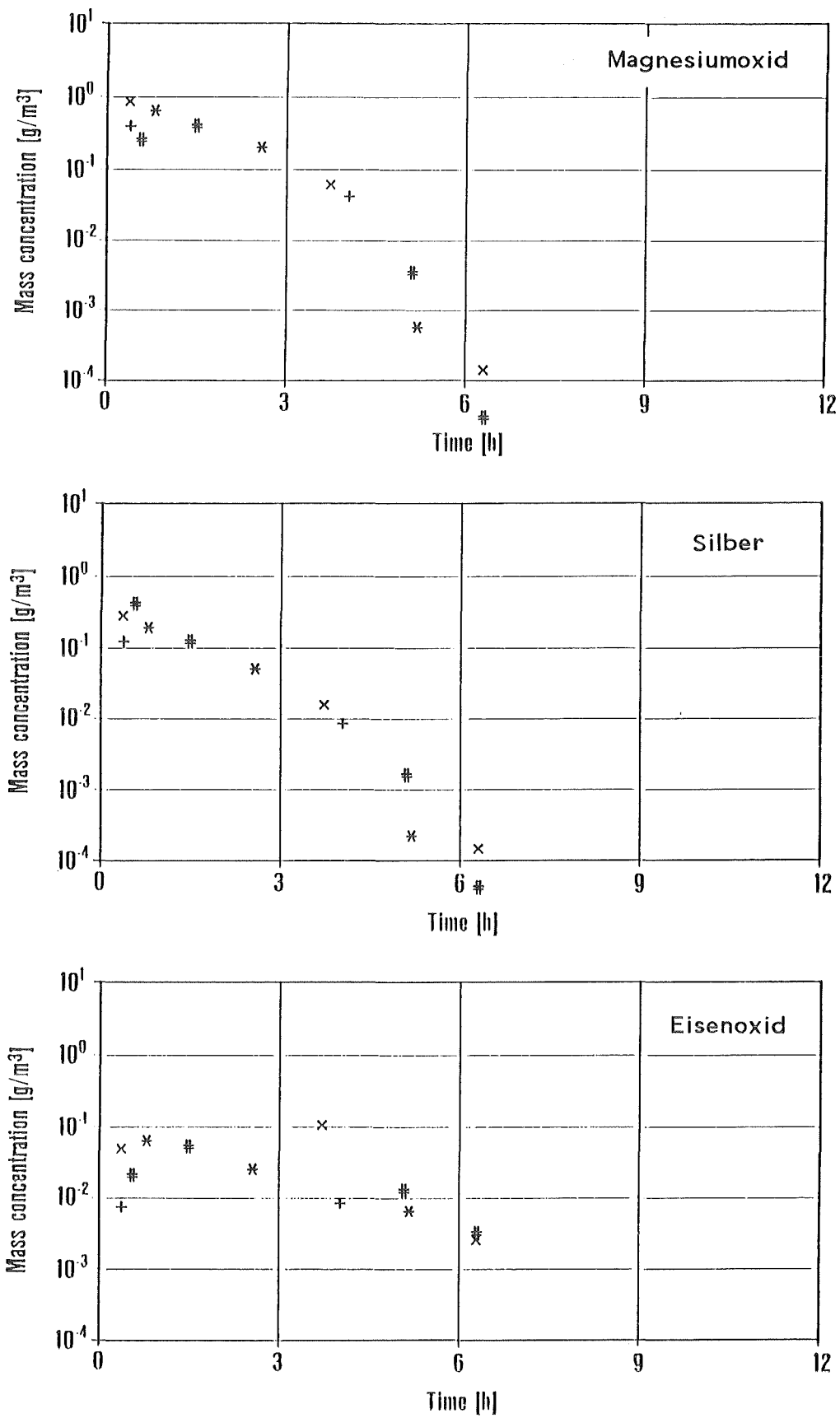


Abb.2.2.4: Aufschlüsselung der Messdaten des Versuchs B6 nach den im Aerosol gefundenen chemischen Komponenten

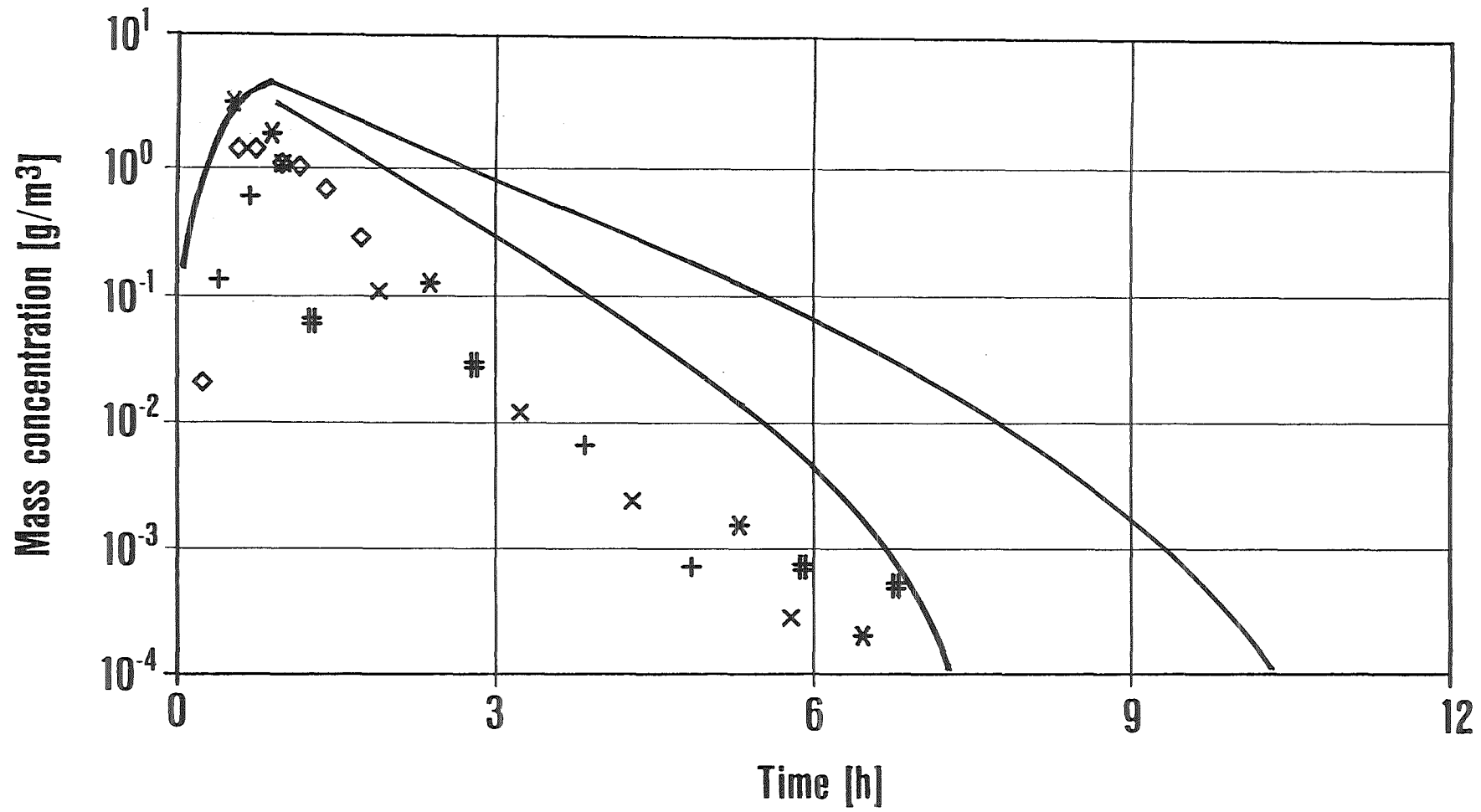
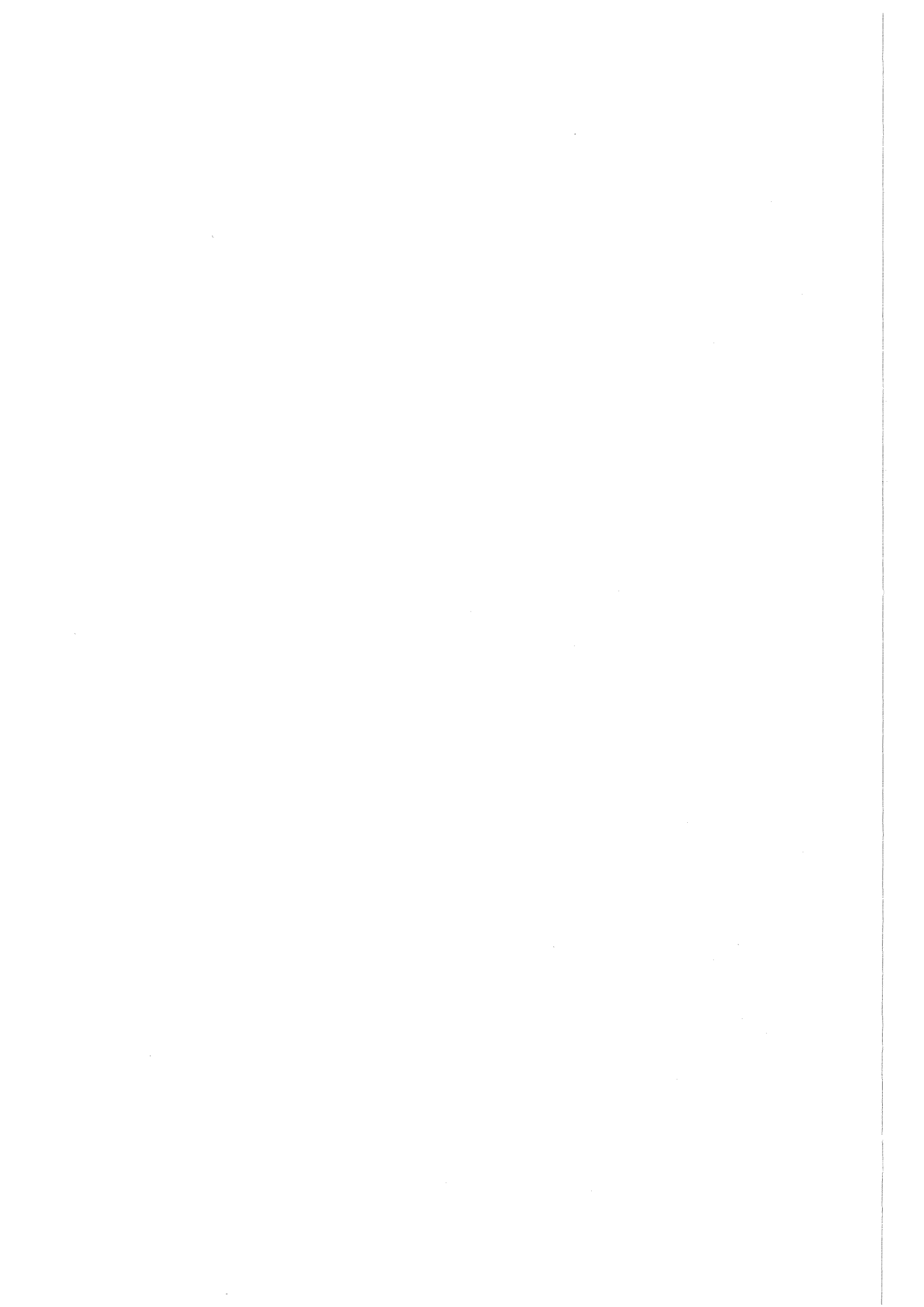


Abb.2.2.5: Messergebnisse des Versuchs A7  
und zwei Nachrechnungen mit NAUA



### 3 Modellcontainment

Das aus konventionellem Stahlbeton gebaute Modellcontainment war ursprünglich in seinem Inneren durch feste und demontierbare Strukturen entsprechend der DWR-Anlage Biblis A im Volumenmaßstab 1:64 in neun Räume unterteilt. Für die DEMONA-Versuche wurde sein Inneres durch Entfernen aller demontierbarer Strukturen und vollständiges Öffnen sämtlicher vorhandener Überströmquerschnitte in den verbleibenden festen Zwischenwänden einer Einraum-Geometrie angenähert, siehe Bild 3.1.1. Eine gleichmäßige Strukturvorheizung durch eine annähernd luftfreie Sattdampfatmosfera und eine die konvektive Umwälzung der Atmosphäre fördernde kontinuierliche Dampfeinspeisung an der tiefsten Stelle des Containments ( $H = +0,1$  m) sorgen für eine ausreichende Homogenität der Atmosphäre während der Aerosolabbauphase.

#### 3.1 Betrieb der Anlage

Von den vier Hauptversuchen des Jahres 1985 wurde je zwei bei "stationären" und bei "transienten" Versuchsbedingungen durchgeführt. Gemeinsam ist beiden Versuchsarten eine ausreichend lange Strukturaufheizung durch kondensierenden Sattdampf, bis stationäre Temperaturverhältnisse in den Strukturen erreicht sind. Die Innenstrukturen des Modellcontainments befinden sich dann auf dem Temperaturniveau der Containmentatmosphäre, während über die Außenwände ein stationärer Temperaturgradient und ein entsprechender stationärer Wärmestrom, verbunden mit dauernder Wandkondensation, auftreten. Um dies auszugleichen, wird bei den "stationären" Versuchen - auch während der Aerosoleinspeisung und der nachfolgenden Aerosolabbauphase - laufend ein bestimmter Dampfstrom nachgespeist und so der Dampfpartialdruck bzw. die Taupunkttemperatur der Atmosphäre konstant gehalten. Bei den "transienten" Versuchen wird dagegen die Dampfnachspeisung vor der Aerosoleinspeisung gestoppt und erst einige Zeit danach wieder aufgenommen. Dadurch stellt sich in diesem Zeitbereich ein unsteuiger, "transienter", Druckverlauf ein.

### 3.1.1 "Stationäre" Dampfversuche V 34 = B 4 und 53 = A 7

Versuchsablauf:

Phase 1: Ausspülen der Luft:

Durch in der Containment-Mitte ( $H = 3$  m; "obere" Dampfeinspeisestelle) eingespeisten Dampf wird die anfangs im Containment erhaltene Luft über die geöffneten Bodenventile ausgetrieben. Dauer ca. 6-7 Std.

Phase 2: Aufheizen der Containmentstruktur durch eine Sattdampf-atmosphäre ( $1,7$  bar/ $115$  °C konstantgehalten durch laufende Dampfnachspeisung) bis zum Erreichen stationärer Verhältnisse. Dauer ca. 40-44 Std.

Vergleichmäßigung der Atmosphärentemperatur durch Ausspülen von Restluft über ein "künstliches Leck", Umschalten auf "untere" Dampfeinspeisestelle ( $H = 0,1$  m) während Phase 2.

Phase 3: Einspeisen von in heißer Luft suspendiertem Aerosol (bei V 34 = B 4: Zinnoxid-Aerosol, bei V 53 = A 7: Eisenoxid-Aerosol) in Höhe  $H = 1,7$  m. Dabei wird ein zusätzlicher Luftpartialdruck von  $1,3$  bar aufgebaut und der Gesamtdruck steigt von  $1,7$  bar auf ca.  $3,0$  bar. Dauer ca.  $0,9$  Std.

Die Dampfeinspeisung wird während der Phase 3 etwas reduziert, jedoch nicht unterbrochen. Durch die hohe Aerosoleinspeisetemperatur stellt sich in weiten Bereichen des Containments eine überhitzte (ungesättigte) Dampf-Luft-Atmosphäre ein.



Phase 4: Aerosolabbau bei thermodynamisch annähernd stationären Bedingungen (3,0 bar, 115 °C; mit Dampfnachspeisung zur Deckung der stationären Wärmeverluste. Dauer ca. 20-23 Std. Zu Beginn der Phase 4 verschwindet die Überhitzung der Dampf-Luft-Atmosphäre wieder; vorübergehend fallen sogar in größerem Umfang Nebeltröpfchen aus. Wegen der Containmentleckage nimmt der Luftpartialdruck langsam ab, und der Dampfpartialdruck steigt entsprechend an.

### 3.1.2 "Transiente" Dampfversuche V 36 = B 5, V 39 = B 6

Versuchsablauf:

Phase 1: wie Abschnitt 3.1.1.

Phase 2: wie Abschnitt 3.1.1, jedoch kein Ausspülen von Restluft über ein "künstliches Leck".

Phase 3.1: Stopp der Dampfeinspeisung, langsames Absinken des Dampfpartialdrucks und des Gesamtdrucks wegen der Kondensation an den Außenwänden. Sobald die Atmosphärentemperatur absinkt, strömt von den noch unverändert heißen Innenstrukturen "trockene" Wärme zu und führt zu einer leicht überhitzten (ungesättigten, "trockenen") Containmentatmosphäre. Dauer dieser Phase ca. 1,2 Std.

Phase 3.2: Einspeisen von in heißer Luft suspendiertem Aerosol (bei V 36 = B 5: Zinnoxid-Aerosol, bei V 39 = B 6: Silber-Aerosol) in Höhe +1,7 m. Dadurch wird ein zusätzlicher Luftpartialdruck aufgebaut, der den Gesamtdruck um rund 1,5 bar erhöht. Die Dampfzufuhr bleibt gestoppt. Der Zustand der Dampf-Luft-Atmosphäre bleibt weiterhin überhitzt. Dauer ca. 0,8 bis 1 Std.

Phase 3.3: Abgeschlossenes Containment, ohne Luft- oder Dampfzufuhr. Dampfkondensation an den Außenwänden führt zu einem weiteren langsamen Absinken von Dampfpartial- und Gesamtdruck. Die aus den inneren Containmentstrukturen nachströmende "trockene" Wärme sorgt dafür, daß der Zustand der Dampf-Luft-Atmosphäre überhitzt bleibt. Der Aerosolabbau während der Phase 3.3 geschieht also in einer nicht-kondensierenden ("trockenen") Atmosphäre. Dauer 1,2 Std (B 5) bzw. 3,2 Std (B 6).

Phase 3.4: Wiederaufnahme der Dampfzufuhr über die "untere" Dampfeinspeisestelle ( $H = 0,1$  m). Erhöhung des Dampfpartialdrucks bis Gesamtdruck 3,0 bar erreicht wird. Auftreten von Nebeltröpfchen in der Containmentatmosphäre. Aerosolabbau. Dauer dieser Phase 0,9-1,4 Std.

Phase 4: Weiterer Aerosolabbau bei thermodynamisch annähernd stationären Bedingungen (3,0 bar, ca.  $115^{\circ}\text{C}$ ) mit laufender Dampfnachspeisung. Wegen der Containmentleckage nimmt der Luftpartialdruck langsam ab. Dauer 14 bis 20 Std.

### 3.1.3 Zusammenfassende Übersicht

Der Versuchsablauf der "stationären" Versuche V 34 = B 4 und V 53 = A 7 sowie der "transienten" Versuche V 36 = B 5 und V 39 = B 6 ist in Abbildung 3.1.2 schematisch dargestellt; in Tabelle 3.1.3 sind die wichtigsten Zeit- und Druckwerte dazu aufgelistet. Detailliertere Angaben finden sich in den jeweiligen Battelle-Versuchsberichten.

### 3.2 Thermodynamische Messungen

Pro Versuch liegen Meßkurven von rund 80 thermodynamischen Meßsystemen für die Meßgrößen Durchsatz, Druck, Temperatur, rel. Feuchte, Sumpfwasserstand, Leckrate, Wärmestrom und Wärmeübergangszahl) vor. Diese Meßdaten sind im einzelnen in den Battelle-Versuchsberichten in Plotform dargestellt und ausführlich kommentiert. Außerdem sind die Meßdaten auch über das PHDR-ZAW-Datensystem verfügbar. Weitere thermodynamische Daten (insbes. zur Nebelbildung) ergeben sich aus den EIR-Fotometer- und KfK-Kalorimeter-Messungen.

Die daraus gewonnenen Erkenntnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Homogenität der Atmosphäre:  
Für die Modellierung des thermodynamischen Ablaufs und des Aerosolverhaltens wird oft vereinfachend angenommen, daß die Containmentatmosphäre homogen sei. Die Experimente zeigen jedoch, daß diese Annahme nur für grobe, "einhüllende" Abschätzungen, nicht aber für detailliertere Betrachtungen angewandt werden kann:
  - Mischungseffekte, z.B. Naturkonvektion, reichen oft nicht aus, eine aufgetretene Atmosphären-Schichtung zu überwinden
  - Das Einspeisen eines Mediums höherer oder niedrigerer Dichte in eine vorhandene Atmosphäre kann zu einem Auffüllen des Containments von unten oder von oben her führen

- Auch Langzeit-Kondensationseffekte an Strukturen können zu einer lokalen Anreicherung von Luft und damit zu einer Atmosphären-Schichtung führen.
  
- Sättigungszustand der Containmentatmosphäre:  
Über die längste Zeit während des Versuchsablaufs ist die Dampf-Luft-Atmosphäre im Containment angenähert gesättigt. Eine überhitzte (ungesättigte) Containmentatmosphäre wurde beobachtet
  
- lokal in der Nähe der Einspeisestelle bei Zuspeisung von überhitztem Dampf,
  
- während der Einspeisung des in heißer Luft suspendierten Modellaerosols und
  
- während der Phasen ohne Dampfeinspeisung ins geschlossene Containment bei heißen Innenstrukturen.

Übersättigung des Containments und Ausfall von Nebeltröpfchen wurden beobachtet

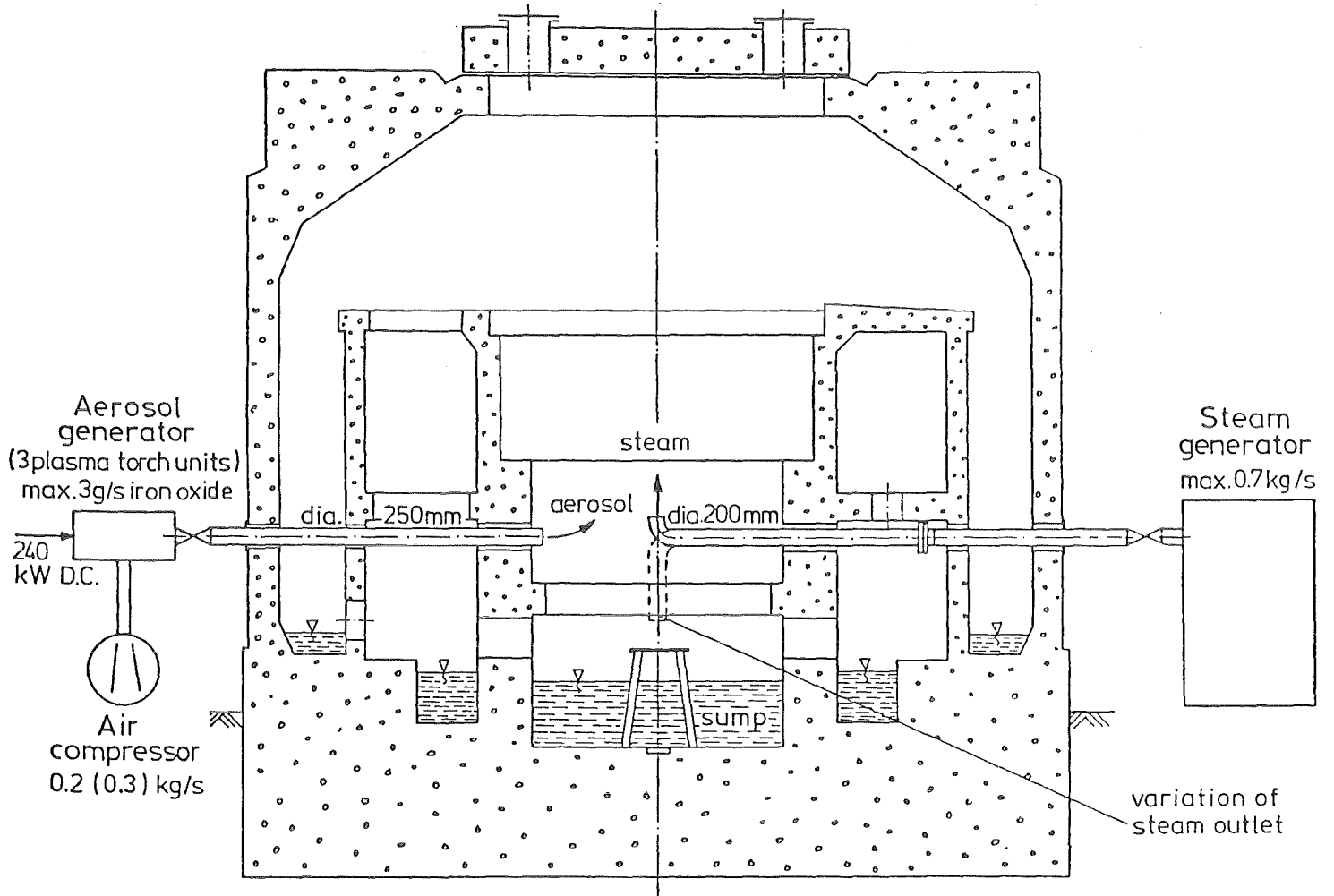
- in geringem Umfang und nur kurzzeitig unmittelbar nach Abstellen der Dampfzufuhr nach vorausgegangenem stationären Betrieb,
  
- bei den "stationären" Versuchen nach Ende der Aerosoleinspeisung bei weiterer Dampfeinspeisung sowie
  
- bei den "transienten" Versuchen nach Wiederaufnahme der Dampfeinspeisung nach einer längeren Pause der natürlichen Abkühlung.

- Wärmeübergang an Strukturen

Für den mit Kondensation verbundenen Wärmeübergang in gesättigter, stagnierender Dampf-Luft-Atmosphäre gilt mit überraschend guter Näherung die "ingenieurmäßige" Uchida-Beziehung

$$\alpha = C \cdot x^{0,8}$$

( $\alpha$  = Wärmeübergangszahl, Konstante  $C = 450 \text{ W/m}^2\text{K}$ ,  
 $x$  = Massenverhältnis Dampf-Luft; siehe Abb. 3.2.1).

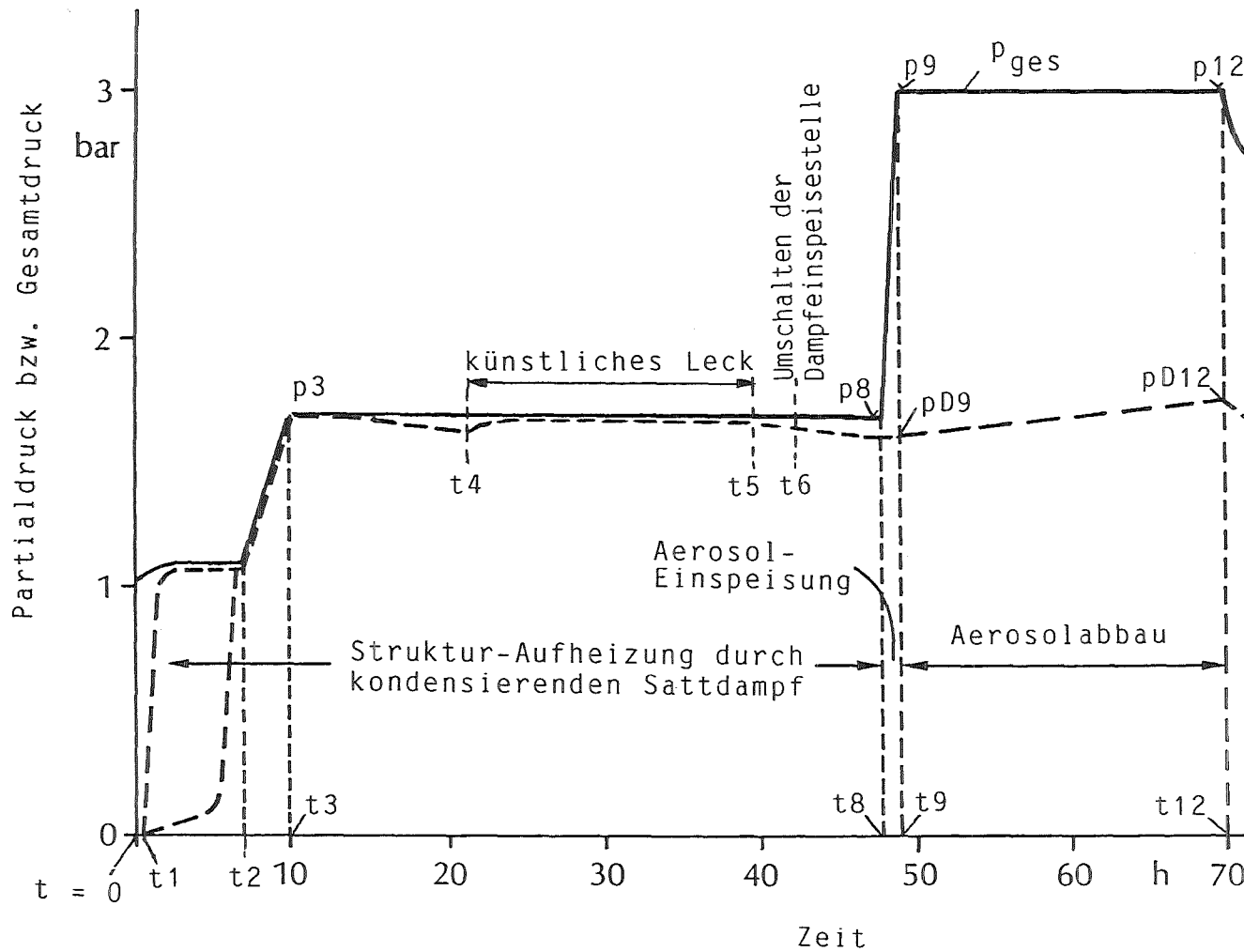


Model containment :

outer diameter		12.1 m
total volume		640 m <sup>3</sup>
pool surface areas	28 m <sup>2</sup>	} total 1056 m <sup>2</sup>
other horiz. ground surface areas	145 m <sup>2</sup>	
ceiling surface areas	165 m <sup>2</sup>	
vertical wall surface areas	718 m	
operational abs. pressure		3 bar
average temperature of cont. atm.		115 °C
maximum aerosol concentration		12 g/m <sup>3</sup>

Abb.3.1.1: DEMONA-Versuchsanlage

"Stationäre" Fahrweise



Variation:  
"Transiente" Fahrweise

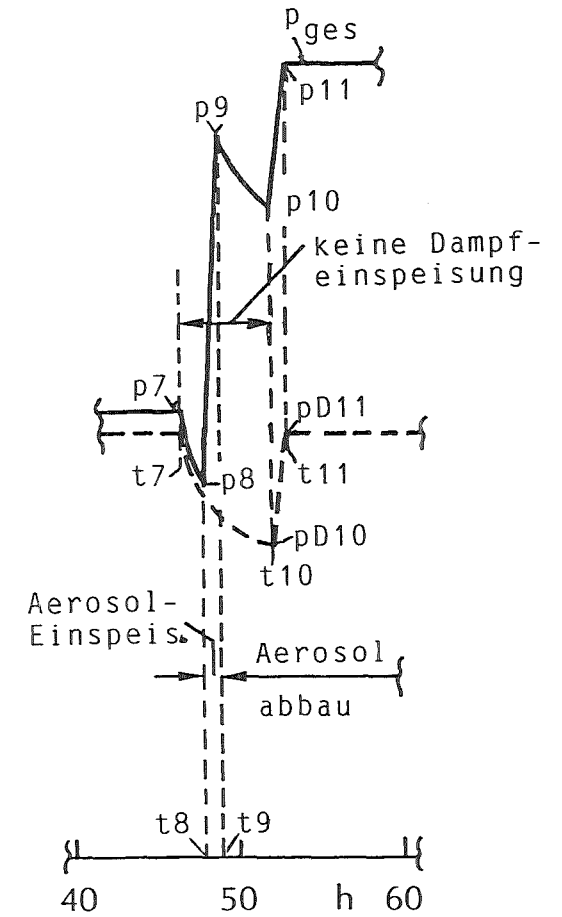


Abb.3.1.2: DEMONA-Versuchsablauf bei "stationärer" und "transienter" Fahrweise der Anlage (Zahlenwerte siehe Tabelle 3.1)

Versuch Nr.	V34 =B4	V36 =B5	V39 =B6	V53 =A7
Versuchsbeginn Datum (t = 0) Uhrzeit	25.03.85 14.30	06.05.85 16.00	10.06.85 15.15	25.11.85 13.00
Phase 1 (Luftausspülen) Beginn t1 h	0,3	0,05	0,5	0,2
Phase 2 (Aufheizen) Beginn t2 h	7,0	5,95	6,2	6,9
t3 h	9,2	8,4	8,3	9,3
p3 bar	1,7	1,69	1,70	1,7
künstl. Leck Beginn t4 h	20,8	-	-	20,1
Ende t5 h	45,3	-	-	47,4
Umschalten D' einsp.o/u t6 h	45,3	26,6	28,0	47,4
Phase 3 (transiente bzw. Aerosoleinsp.-Phase) Stopp Dampfinspeis. t7 h	-	47,5	47,8	-
p7 bar	-	1,69	1,68	-
pD7 bar	-	ca. 1,53	1,52	-
Start Aerosoleinspeis. Datum	27.03.85	08.05.85	12.06.85	27.11.85
Uhrzeit	13.41	16.33	16.19	15.57
t8 h	47,2	48,6	49,1	51,0
p8 bar	1,70	1,41	1,38	1,68
pD8 bar	ca. 1,65	ca. 1,25	ca. 1,22	ca. 1,62
Ende Aerosoleinspeis. t9 h	48,1	49,6	49,9	51,9
p9 bar	3,0	2,73	2,73	2,98 <sup>+</sup>
pD9 bar	ca. 1,7	ca. 1,30	ca. 1,25	1,3-2,6 <sup>+</sup>
Start Dampfinspeis. t10 h	-	50,8	53,1	-
p10 bar	-	2,52	2,37	-
pD10 bar	-	ca. 1,13	ca. 0,94	-
Phase 4 (station. Aerol- abbau) Beginn t11 h	48,1	51,7	54,5	51,9
p11 bar	3,0	3,01	3,02	2,98 <sup>+</sup>
pD11 bar	1,7	1,61	1,57	1,3-2,6 <sup>+</sup>
Ende t12 h	70,8	72,0	68,2	72,2
p12 bar	3,0	2,99	3,0	2,97
pD12 bar	ca. 1,95	2,08	ca. 1,9	ca. 2,1

+ ) inhomogen, Mittel ca. 1,55 bar

Tabelle 3.1.3: Versuchsablauf (s. Abb.3.1.2)



Meßeinrichtung:

Zylindrischer Block aus Chromnickelstahl mit kontinuierlicher innerer Wärmeabfuhr. Kondensierender Wärmeübergang an zylindrischer Außenseite ( $\dot{q}$  = Wärmestrom)

WÜZ:  $\alpha = \frac{\dot{q}}{T_a - T_s}$

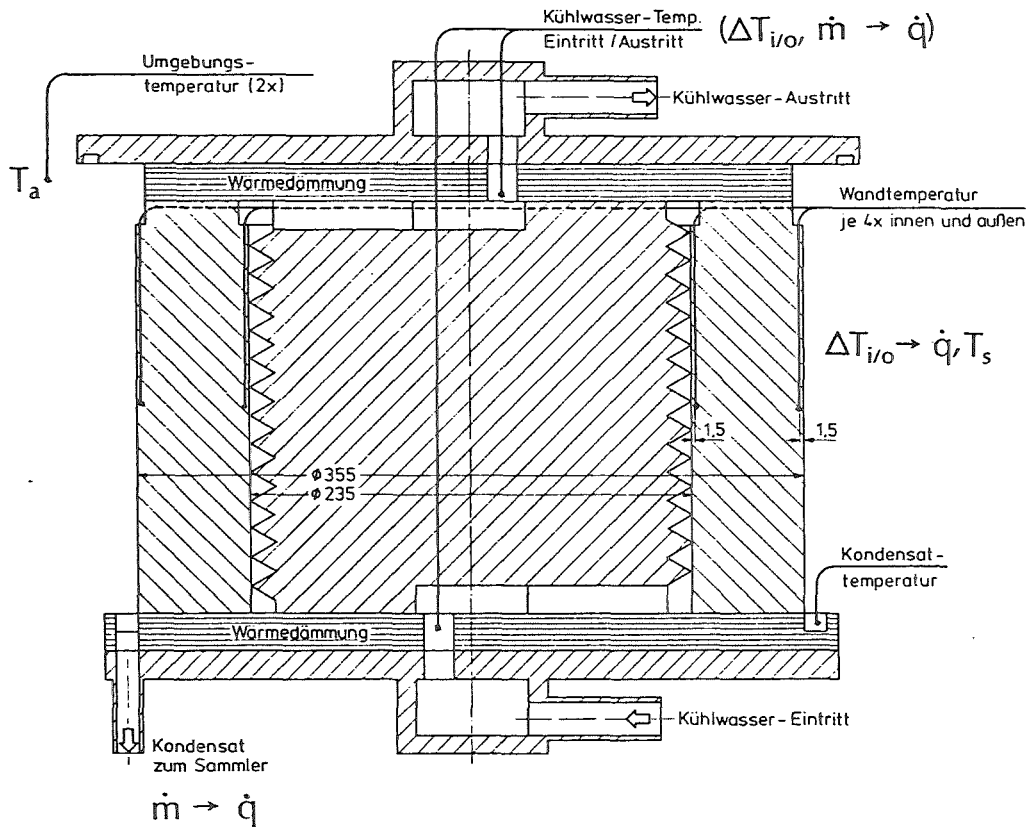
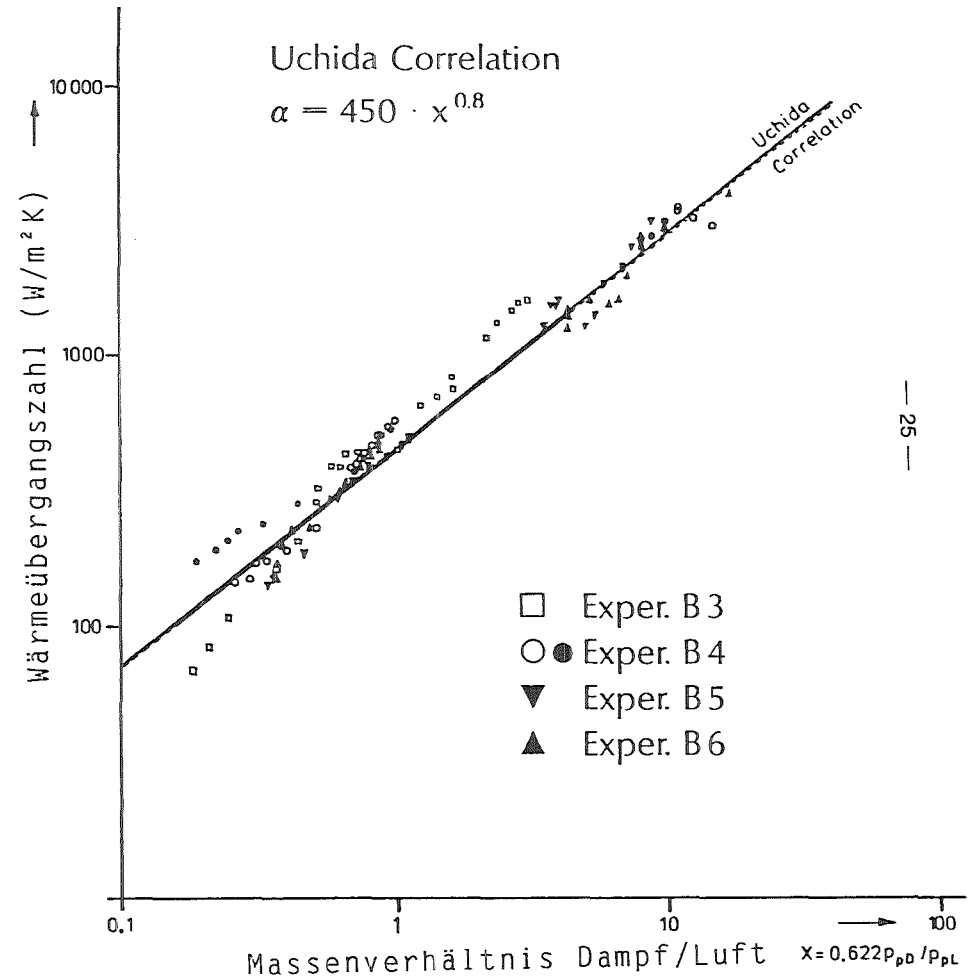


Abb.3.2.1: Wärmeübergangsmessungen

Ergebnisse:





#### 4 Aerosolerzeugung

Wie gezeigt werden konnte /1/ ist es auf Grund der thermochemischen Verhältnisse nicht möglich durch die Einspeisung von Eisenpulver in die Generatoranordnung Plasmafackel/Reaktionskammer für DEMONA-Versuche genügend hohe Eisenoxid-Aerosolkonzentrationen zu erzielen.

Mit Zinn als Einspeisematerial konnte demgegenüber, bedingt durch ein unterschiedliches chemisches Verhalten bei 2 000 K, demonstriert werden, daß Aerosoleinspeiseraten von 300 g/min notwendig sind, um im Modell-Containment Aerosolkonzentrationen von  $12 \text{ g/m}^3$  zu erreichen.

Deshalb war eine Weiterentwicklung der Aerosol-Generatoren zur Erzeugung von Eisenoxidaerosolen notwendig, jedoch auf der Basis eines anderen Erzeugungsprinzipes (homogene Gasphasenreaktion mit Eisenpentacarbonyl und Sauerstoff als Reaktionspartner).

Weiterhin sollte die Erzeugung von Silberaerosolen durch die Verdampfung von Silber-Pulver in der Versuchsanordnung Plasmafackel/Reaktionskammer untersucht werden.

Parallel zu diesen Entwicklungsarbeiten wurden Hauptversuche aus der DEMONA-Versuchsmatrix durchgeführt.

Die Aktivitäten zur Generatorentwicklung sind aus Tabelle 4.1 ersichtlich.

Generator-Tests zur Silber-Aero- sol-Erzeugung	Generator-Tests zur Eisenoxid- Aerosol-Erzeugung aus Eisenpenta- carbonyl	DEMONA-Hauptver- suche der Ver- suchsmatrix
V 32	V 35	V 34 (B 4)
V 33	V 38	V 36 (B 5)
V 37	V 41	V 39 (B 6)
V 40	V 43	V 53 (A 7)
V 42	V 45	
V 44	V 47	
V 46	V 48	
	V 49	
	V 50	
	V 51	
	V 52	

Tab. 4.1 Durchgeführte Versuche zur Generatorentwicklung und aus der DEMONA-Versuchsmatrix

Die Generatoren zur Eisenoxid-Aerosolerzeugung aus Eisenpenta-carbonyl fanden im wesentlichen in der 2. Jahreshälfte nach der Installation einer zur Gewährleistung der Arbeitssicherheit notwendigen Raumüberwachungsanlage statt.

#### 4.1 Erzielte Ergebnisse

##### 4.1.1 Erzeugung von Silberaerosol

Speist man Silberpulver in den heißen Bereich der Plasmafackel ein (vgl. Abb. 4.1), so läßt sich (ähnlich wie im Fall von Eisenpulver) nur ein geringer Anteil des injizierten Materials direkt verdampfen. Der Hauptanteil wird lediglich aufgeschmolzen und schlägt sich an den Wänden der Reaktionskammer nieder.

Gelingt es, die Wände der Reaktionskammer auf Temperaturen über der Verdampfungstemperatur des Silbers (2 212 °C) zu halten, so ist mit einer höheren Silber-Aerosolausbeute zu rechnen. Der Metaldampf wird am Ausgang der Reaktionskammer abgeschreckt (gequencht) und bildet so mit der dazu eingesetzten Luft das gewünschte Kondensationsaerosol.

Die maximale Temperatur der Reaktionskammer wird durch den Schmelzpunkt des verwendeten Materials (Magnesiumoxid, Schmelzpunkt ca. 2 500 °C) begrenzt.

Bei Generator-Tests zeigte sich, daß selbst bei Temperaturen in der Nähe der Schmelztemperatur des Kammermaterials bei maximaler thermischer Leistung des Plasmabrenners, eine Sättigung des verdampfbareren Silberanteils schon bei relativ niedrigen Silber-Einspeiseraten (30 - 40 g/min) erreicht wird. Ein Überschuß an eingespeistem Metall bildet Silbertröpfchen, die an den Strukturen (Rohre, Schieber) als metallisches Silber abgeschieden werden.

Bei maximaler thermischer Leistung wurde bei einer Silbereinspeiserate von 30 - 40 g/min etwa 15 - 20 g/min Silberaerosol mit einer mittleren Primärpartikelgröße von ca. 0,5 µm erzeugt.

Die erreichte Generatorstandzeit betrug 25 - 30 min.

Das Innere der Reaktionskammer war frei von Silberablagerungen.

Damit ist Silber als Additiv zu anderen Aerosolen im DEMONA-Versuch geeignet.

#### 4.1.2 Erzeugung von Eisenoxidaerosolen

Bringt man Eisenpentacarbonyl in fein verteilter Form und Sauerstoff in die durch die Plasmafackel aufgeheizte Reaktionskammer, so erfolgt in einer homogenen Gasphasenreaktion die Bildung von sehr feinen Eisen-III-oxidaerosolen. Die Oxidationsreaktion verläuft, sich selbst erhaltend, exotherm ab. Ein zusätzliches Aufheizen der Reaktionskammer durch die Plasmafackel ist nicht notwendig. Aus Sicherheitsgründen wird der Plasmabrenner jedoch nicht abgeschaltet, sondern mit minimaler Leistung betrieben.

Die Optimierung des Verfahrens erfolgte in den folgenden Schritten:

1. Entwicklung einer wassergekühlten Einspeisesonde zur Verdüsung von Eisenpentacarbonyl im Reaktionsraum.
2. Entwicklung und Erprobung einer geeigneten Carbonylentnahme- und Zufuhrtechnik.
3. Optimierung der Einspeiseposition. Optimierungskriterium war eine hohe Aerosolerzeugungsrate bei maximaler Betriebszeit der Generatoren.

Die maximal zuführbare Carbonylmenge ist durch die maximale Betriebstemperatur an den Rohrstrukturen (400 °C) begrenzt.

Es zeigte sich, daß bei konstantem Carbonylzufluß der chemische Reaktionsumsatz und damit die Temperatur des Aerosol-Luft-Gemisches sehr stark durch die Strömungsverhältnisse in der Reaktionskammer beeinflußt werden. Bei störungsfrei verlaufender Reaktion bilden sich im Reaktionsraum keine Ablagerungen von Eisenoxid. Am Ausgang der Reaktionskammer sind nur geringe  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ -Ablagerungen zu beobachten.

Die erzeugten Eisenoxidaerosole zeichnen sich durch eine sehr geringe Größe der Primärpartikeln aus (kleiner als 0,1 µm).

Bei einer Carbonyleinspeiserate von 240 g/min wurden Aerosoleinspeiseraten von etwa 90 g/min erreicht.

Tabelle 4.2 faßt die erzielten Ergebnisse für einen von drei DEMONA-Aerosolgeneratoren zusammen. In die Tabelle wurden die für den Betrieb mit Zinn erzielten Ergebnisse mit aufgenommen.

Feed material	Feed rate per generator	Aerosol yield	Aerosol injection rate	Size of primary particles
Sn	110 g/min	> 80 %	112 g/min oxide	0.1 - 0.3 µm
Ag	30 - 40 g/min	50 %	15 - 20 g/min Ag	0.5 µm
Fe(CO) <sub>5</sub>	240 g/min	> 95 %	93 g/min oxide	0.1 µm

Tab. 4.2 Aerosolgenerator Basis-Daten

#### 4.2 Aerosolerzeugung

Aerosoleinspeisung Versuch V 34 (B 4).

Es wurden drei Aerosolgeneratoren mit Zinn als Einspeisematerial betrieben. Die Aerosol-Generator-Daten sind in Tab. 4.3 zusammengestellt. Die Aerosoleinspeisung wurde nach 46 min, bei Erreichen des Containmentdruckes von 3 bar beendet. Der zeitliche Verlauf der Einspeisung ist aus Abb. 4.2 ersichtlich.

Die Aerosoleinspeiserate lag somit bei mehr als 300 g/min (80 % Ausbeute).

Aerosoleinspeisung Versuch V 36 (B 5).

Drei Aerosolgeneratoren wurden mit Zinn als Einspeisematerial betrieben. Tab. 4.4 enthält die Aerosol-Generator-Daten dieses Versuches. In Abb. 4.2 ist die Zinn-Einspeiserate als Funktion

der Zeit dargestellt. Die Aerosoleinspeiserate betrug mehr als 300 g/min bei 80 % Ausbeute für einen Zeitraum von 27 min.

#### Aerosoleinspeisung Versuch V 39 (B 6)

Es wurden zwei Aerosolgeneratoren mit Silber als Einspeisematerial betrieben. Die Daten zur Aerosolerzeugung sind aus Tab. 4.5 ersichtlich. Im Verlauf der Einspeisung traten an Brenner 3 hohe Temperaturen am Generatorgehäuse auf, die durch spontane Zusatzkühlung reduziert wurden. Nach der Demontage waren deutliche Spuren einer Verdampfung von Wandmaterial der Reaktionskammer zu beobachten. In der Reaktionskammer, am Brennkammerausgang und an den Rohrwänden wurden keine Silberablagerungen gefunden.

#### Aerosoleinspeisung Versuch V 53 (A 7)

Es wurden zwei Aerosolgeneratoren mit Eisenpentacarbonyl als Einspeisematerial betrieben. Die Aerosol-Generator-Daten dieses Versuches sind in Tab. 4.5 zusammengestellt. Der Temperaturverlauf des Luft-Aerosol-Gemisches an der Einspeisestelle zum Modellcontainment war unregelmäßig und niedriger als bei der Erzeugung von Zinnoxidaerosol. In Brennkammer 2 waren nach der Demontage deutliche Ablagerungen zu erkennen.

#### Literatur

- /1/ Peehs, M., Ruhmann, H.,  
Development and Performance Testing of an Aerosol-  
Generator-System for DEMONA  
Specialist Meeting on Nuclear Aerosols in Reactor  
Safety, Karlsruhe/FRG, Sept., 1984



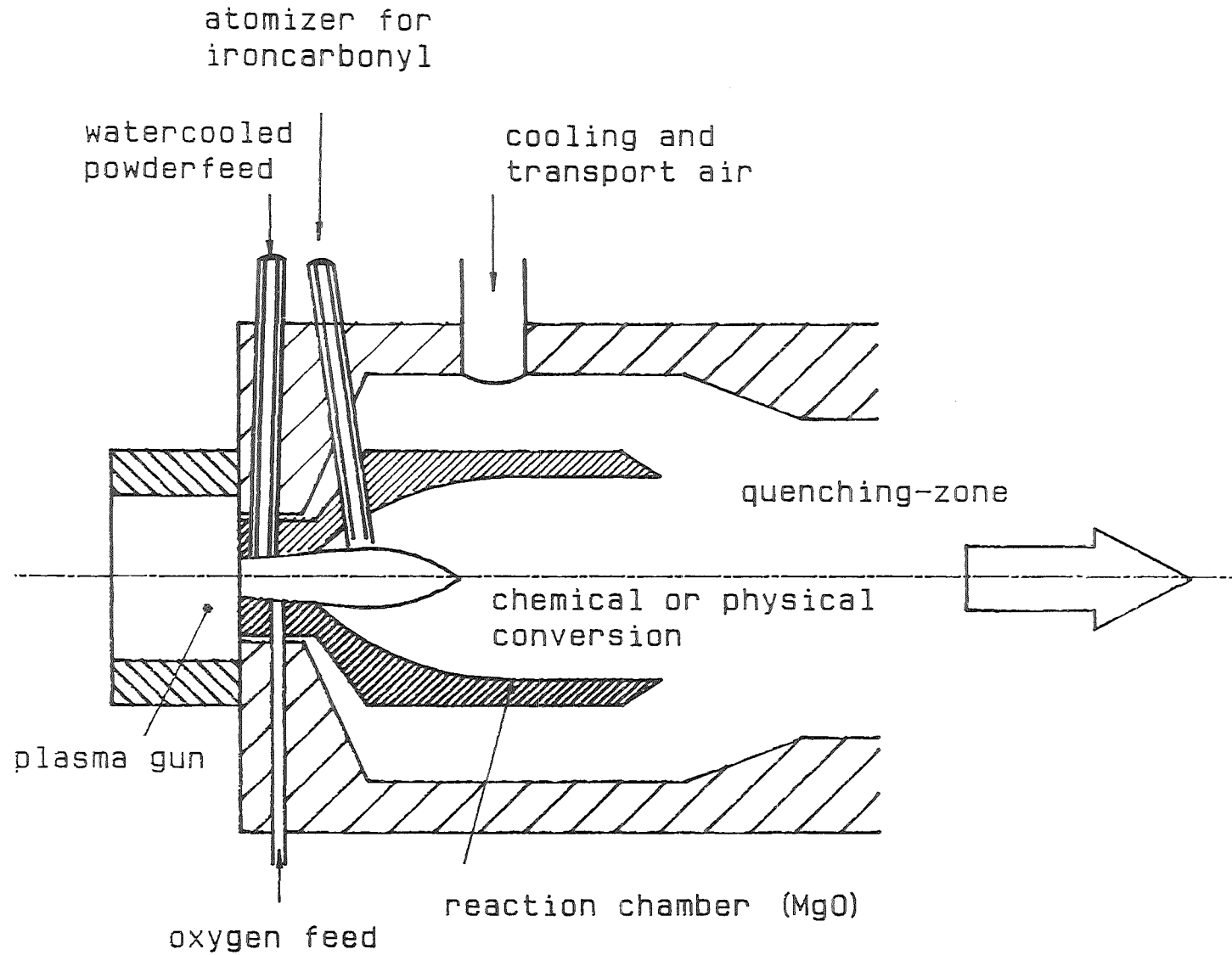


Abb. 4.1 Schematische Darstellung des DEMONA-Aerosolgenerators

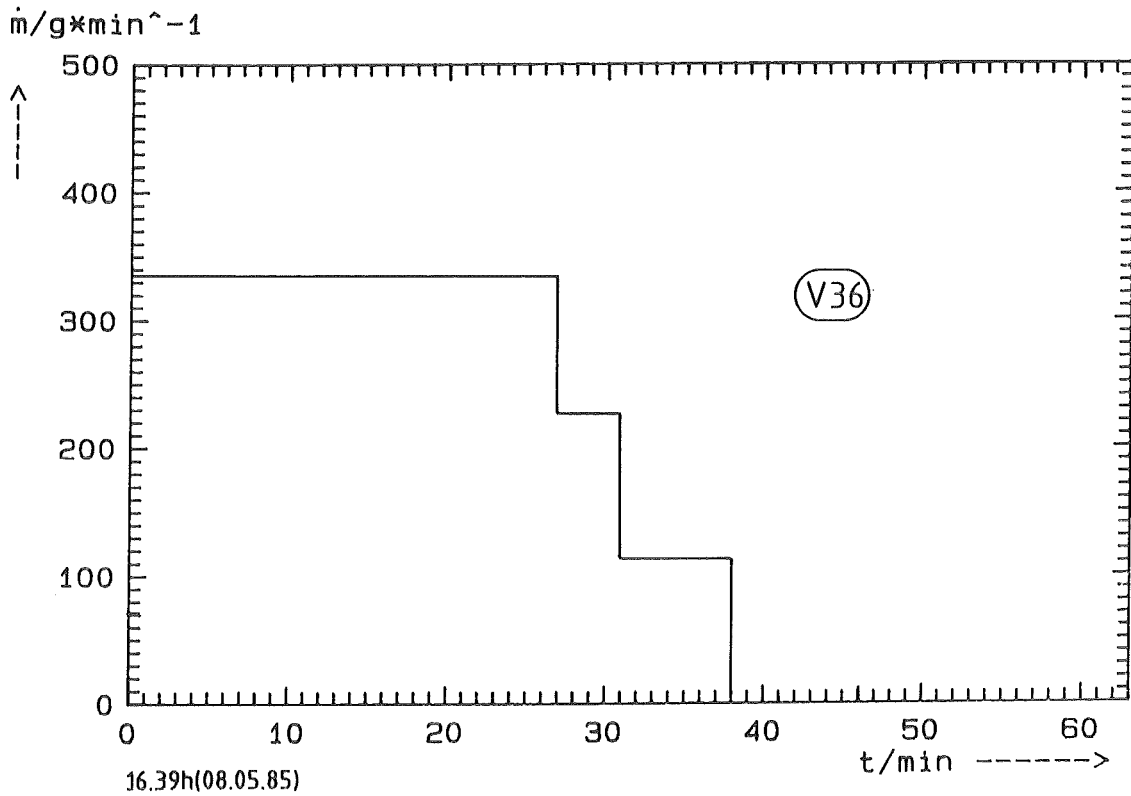
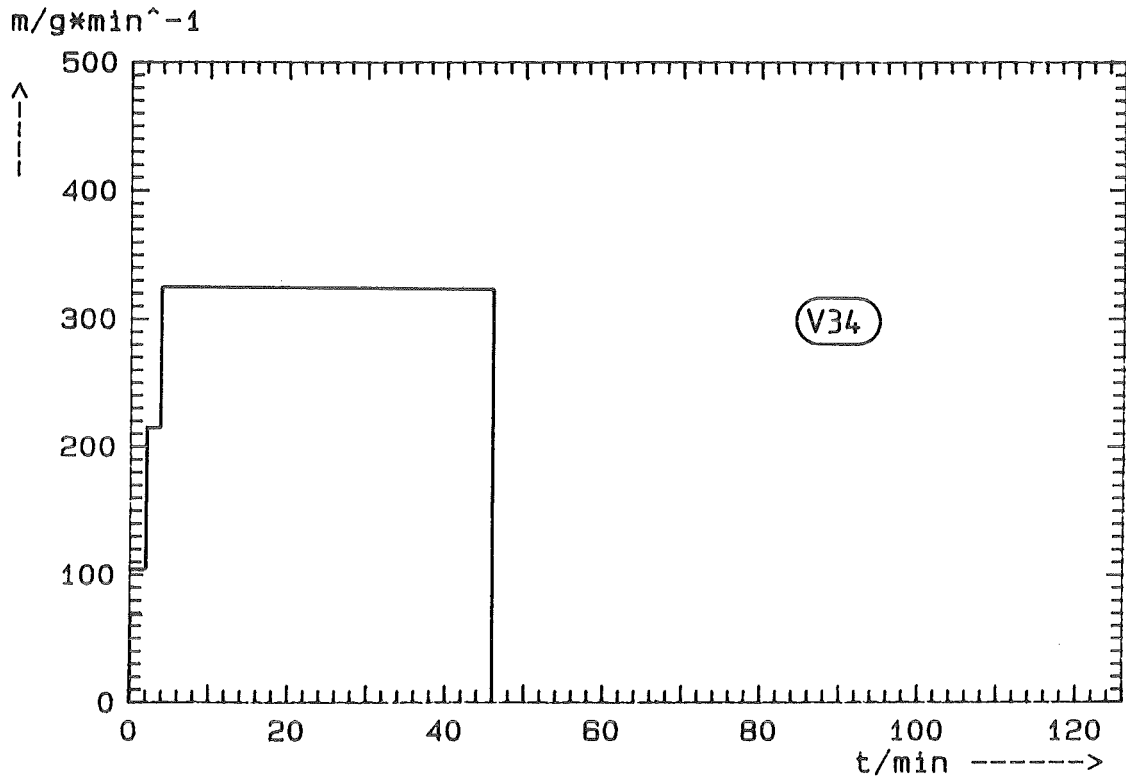


Abb. 4.2 Zinn-Einspeiseraten als Funktion der Zeit bei V 34 und V 36



Aerosol-Generator-Daten

V 34

Einspeisematerial:	Zinn ECKA	AS 51/011	
Einspeisezeiten:	Brenner 1, t	13.42 - 14.28	46 min
	Brenner 2, t	13.44 - 14.28	44 min
	Brenner 3, t	13.46 - 14.28	42 min
in t eingespeiste Masse:	Brenner 1	4725 g	
	Brenner 2	4801 g	
	Brenner 3	4670 g	
Gesamte eingespeiste Masse:	14,20 kg		
Einspeiserate $\dot{m}$ pro Brenner:	Brenner 1	103 g/min	
	Brenner 2	109 g/min	
	Brenner 3	111 g/min	
Zeitlicher Verlauf der Einspeiserate $\dot{m}$ :			
	t	$\dot{m}/g \text{ min}^{-1}$	$k/g \text{ min}^{-1} \text{ m}^{-3}$
	13.42 - 13.44	103	0,16
	13.44 - 13.46	212	0,33
13.46 - 14.28	323	0,51	

Tab. 4.3 Aerosolgenerator Daten V 34



Aerosol - Generator - Daten

V 3 6

Einspeisematerial:	Zinn ECKA	AS 51/011	
Einspeisezeiten: 08.05.85	Brenner 1, $\Delta t$	16.34 - 17.17,	43 min <sup>1)</sup>
	Brenner 2, $\Delta t$	16.35 - 17.06,	31 min
	Brenner 3, $\Delta t$	16.37 - 17.10,	33 min
in $\Delta t$ eingespeiste Masse:			
	Brenner 1	4390 g	
	Brenner 2	2908 g	
	Brenner 3	3486 g	
Gesamte eingespeiste Masse:	10,78 kg		
Einspeiserate $\dot{m}$ pro Brenner:			
	Brenner 1	116 g/min	
	Brenner 2	108 g/min	
	Brenner 3	113 g/min	
Zeitlicher Verlauf der Einspeiserate $\dot{m}$ : $t = 0$ entspr. 16.39 Uhr			
	t/min	$\dot{m}/g \text{ min}^{-1}$	$k/g \text{ min}^{-1} \text{ m}^{-3}$ <sup>2)</sup>
	0 - 27	337	0,54
	27 - 31	229	0,37
	31 - 38	116	0,19

1) Anlaufphase für alle Brenner bis 16.39 Uhr

2)  $V_{\text{cont}} = 620 \text{ m}^3$

Tab. 4.4 Aerosolgenerator Daten V 36



Aerosol-Generator-Daten

V 39

Einspeisematerial : Silber  
Einspeisezeiten : 12.06.85  
Brenner 2 : 16.25 - 16.27 2 min  
Brenner 3 : 16.29 - 16.38 9 min

In  $\Delta t$  eingespeiste Silbermasse:

Brenner 2 : 58 g  
Brenner 3 : 272 g

Gesamte eingespeiste Silbermasse: 330 g

Aerosol-Generator-Daten

V 53

Einspeisematerial : Eisenpentacarbonyl  
Einspeisezeiten : 27.11.85  
Brenner 1 : 16.16 - 16.17 1 min  
Brenner 2 : 16.08 - 16.49 41 min  
Brenner 3 : 16.03 - 16.21 18 min

In  $\Delta t$  eingespeiste Carbonylmasse:

Brenner 1 : 250 g  
Brenner 2 : 4990 g  
Brenner 3 : 4370 g

Gesamte eingespeiste Masse : 9610 g Eisenpentacarbonyl

Einspeiserate :  
Eisenpentacarbonyl                      Aerosol  
Brenner 1 : 250 g/min  
Brenner 2 : 122 g/min                      50 g/min  
Brenner 3 : 243 g/min                      100 g/min

Tab. 4.6 Aerosolgenerator Daten V 53

## 5. Aerosolmessungen

### 5.1. Aerosolmesstechnik EIR

---

Im Berichtsjahr wurden einige wesentliche Verbesserungen bei der Aerosolmesstechnik durchgeführt:

- eine beim ersten Nassversuch (Versuch V31, durchgeführt in der 48. Kalenderwoche 84) festgestellte starke Streuung der mit Filter gemessenen Aerosolkonzentration konnte auf mangelhaftes Funktionieren der den Filtereinlass steuernden pneumatischen Schlauchquetschventile zurückgeführt werden. Zur Abhilfe wurden die Filterstationen sowie die Andersen-Impaktorstation mit pneumatisch betätigten Kugelhahnen bestückt, von denen vorherige Testserien, die im EIR durchgeführt wurden, zeigten, dass sie in der Versuchatmosphäre zumindest für die noch im DEMONA-Programm durchzuführenden Versuche mit grosser Wahrscheinlichkeit überleben werden.
- Die Fotometer wurden in der Versuchspause zwischen Juni und Oktober 1985 grundlegend überarbeitet, nachdem sich im Versuchsbetrieb zunehmende Betriebsschwierigkeiten gezeigt haben, die bis zu Ausfällen von einzelnen Instrumenten geführt haben.
  - Bei den 18/8-Druckschläuchen zeigte sich Spannungsrisskorrosion, die zu Undichtheiten führte und damit zu einer Beschädigung der darin geführten Lichtleiter. Sie wurden durch Molybdän-stabilisierte 18/8-Druckschläuche ersetzt.
  - Der mechanische Aufbau der Fotometer wurde überarbeitet und stabiler sowie justierfreundlicher gestaltet.
  - Die Multifiber-Lichtleiter der ersten Generation wurden, im Interesse einer verbesserten Übertragungsstabilität durch 200  $\mu$  Monofiberlichtleiter ersetzt, die mit einer Kompensatorbox zur sicheren Spannungsentlastung und der Vermeidung von Mikrobending der Fiber im Temperaturbereich 30 °C bis 130 °C ausgerüstet sind.

Die Abbildung 5.1.1. zeigt die Fotometer der zweiten Generation.
- Der Umbau und die Vortests für die Streulichtmesssonde POLYTEC wurden soweit vorangetrieben, dass das Gerät einsatzfähig ist. Wesentliche Probleme traten bei diesem Gerät dadurch auf, dass zwei Gasströme nur hydrodynamisch (d.h. ohne mechanische Separation) im Messvolumen an der Optik vorbeigeführt werden müssen:
  - ein Spülluftstrom, der die optischen Oberflächen frei von Aerosol- bzw. Wasserbeschlag hält.

- sowie der eigentliche Messstrom bestehend aus Containment-atmosphäre mit darin suspendierten Aerosolpartikel bzw. -tröpfchen.

Für das POLYTEC wurde dazu ein spezieller Messkopf entwickelt. Das Gerät wurde zusammen mit den eigens entwickelten Gaskreisläufen im EIR in einen Hilfskessel eingebaut und bei unfalltypischen atmosphärischen Bedingungen ausgetestet. Es wurde bei den letzten Versuchen eingesetzt, doch sind die Messresultate noch stark interpretierbedürftig und können noch nicht als gesichert gelten.

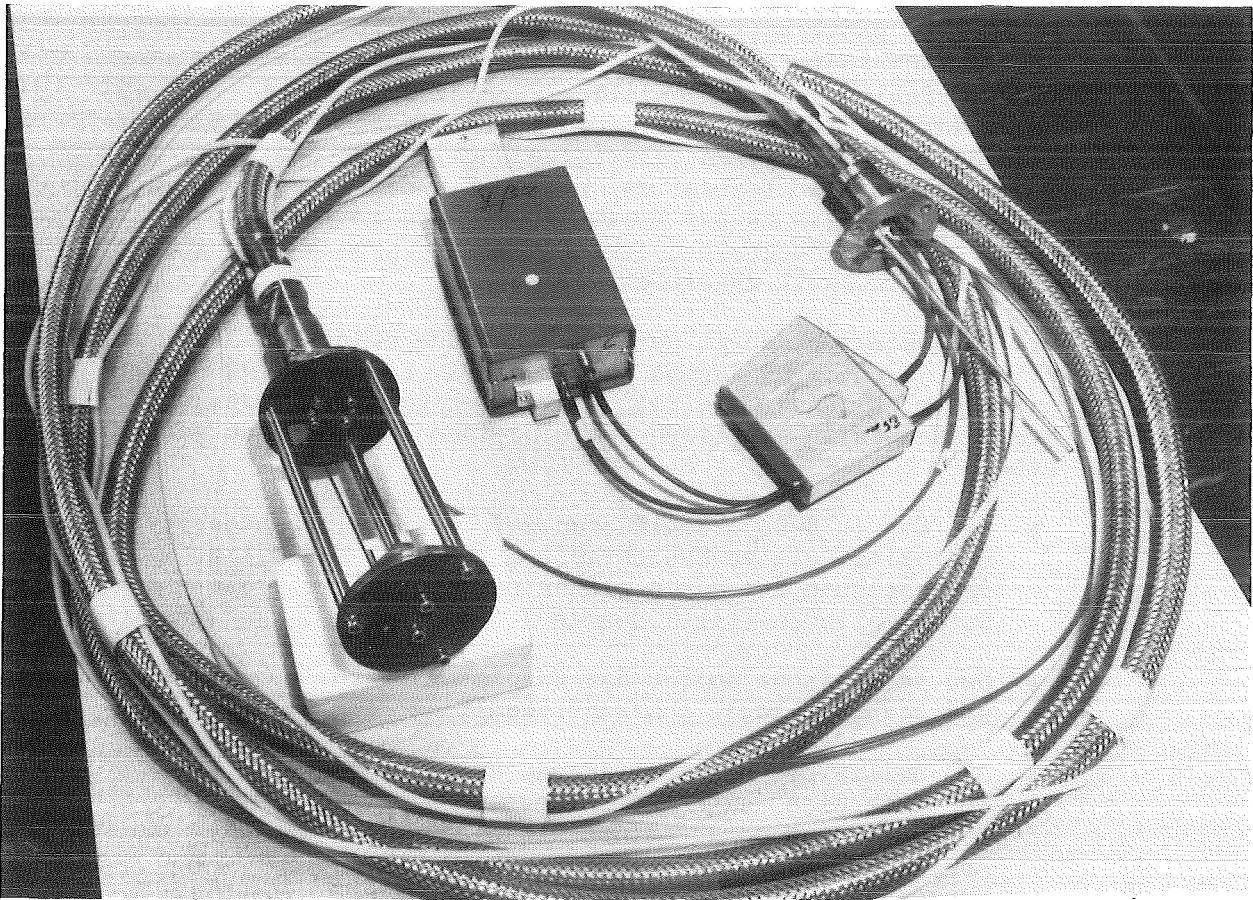


Abbildung 5.1.1.: Fotometer der zweiten Generation. Mechanischer Aufbau mit justierbaren Stangen, Grundplatte und darauf verschraubtem Reflektor. Monofiber-Lichtleiter, die zur Spannungsentlastung durch eine Kompensatorbox (rechts) geführt werden.



## 5.2. Messresultate (EIR)

---

### 5.2.1. Versuch V33:

Dieser Versuch hatte zum Ziel, die in einem Vorversuch und freier Atmosphäre (V32) demonstrierte Erzeugung von Silberaerosol im Containment bei Gegendruck zu demonstrieren. Angestrebte maximale Silberaerosolmassenkonzentration war ca.  $1 - 1,5 \text{ g/m}^3$ . Die Aerosolinstrumentierung war entsprechend dem Demonstrationscharakter des Versuches reduziert und bestand aus:

- einer Filterstation mit 5 Filtern
- dem  $\beta$ -Absorptionsmessgerät
- je 1 Impaktor Andersen und Inspec
- 6 Fotometern

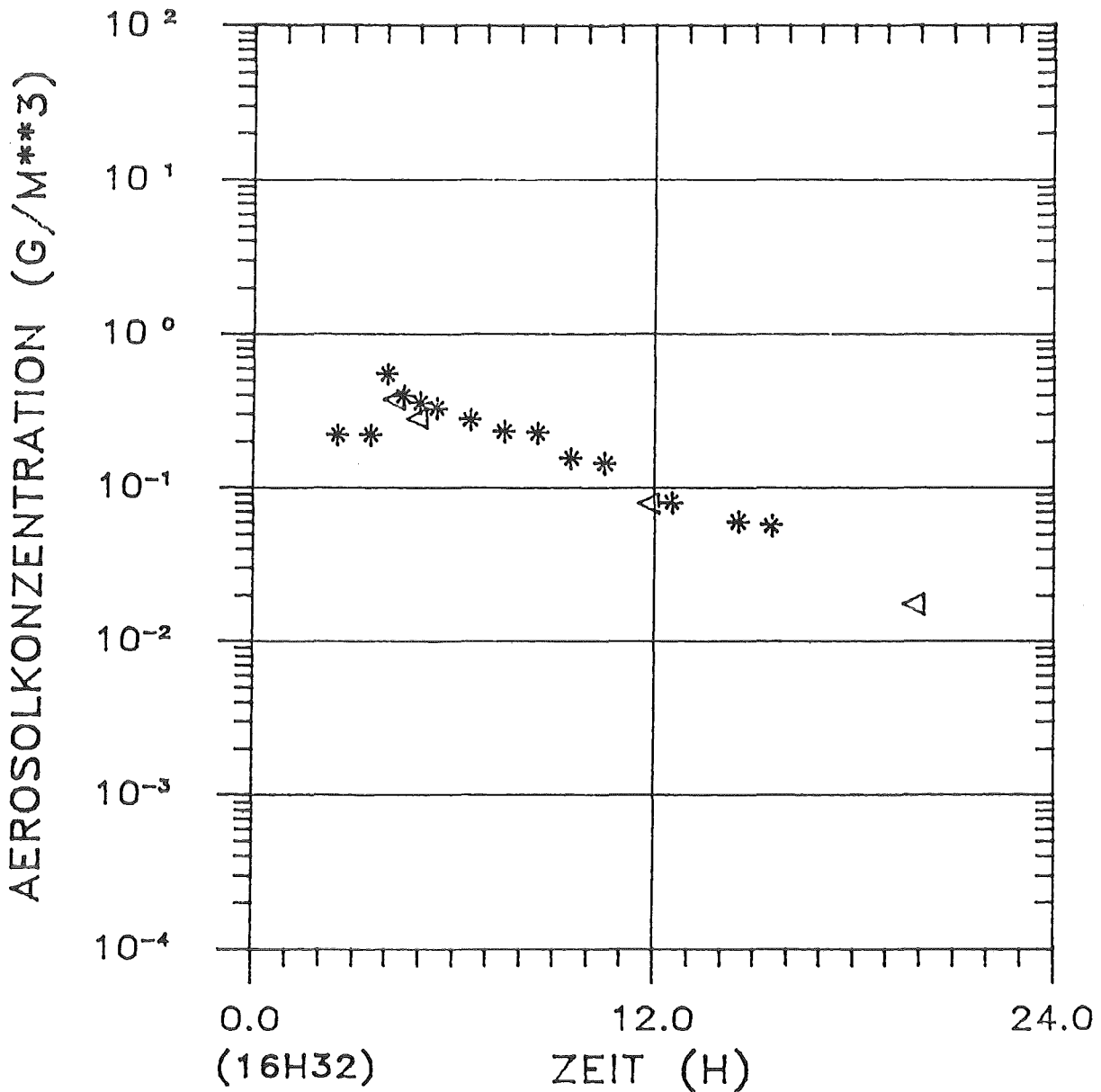
Dem Plasmabrenner wurden insgesamt 920 g Ag-Pulver zugeführt, was zu einer theoretisch maximalen Anfangsmassenkonzentration von ca.  $1,4 \text{ g/m}^3$  gereicht hätte. Die maximal gemessene Anfangskonzentration lag bei  $376 \text{ mg/m}^3$  (Messung mit Filter) bzw.  $385 \text{ mg/m}^3$  (Messung mit  $\beta$ -Absorptionsmessgerät).

Auf Abbildung 5.2.1. wird die gemessene Aerosolkonzentration in Funktion der Zeit während der ersten ca. 21 h dargestellt. Die nach 21 h erreichte Konzentration beträgt ca.  $20 \text{ mg/m}^3$ . Die gemessene Größenverteilung (Anderson B-Impaktor) ist auf Abbildung 5.2.2. aus der ein mittlerer Partikeldurchmesser ("mass mean diameter", MMD) von  $0,45 \mu$  mit einer Standardabweichung  $\sigma = 1,7$  abgeleitet werden kann. Abbildung 5.2.3. zeigt REM-Aufnahmen des erzeugten Ag-Aerosols, einmal noch während des Betriebes der Plasmabrenner und ca. 10 h später. Deutlich erkennbar sind ziemlich sphärische Silber-Partikel. Die Abbildungen 5.2.4. und 5.2.5. zeigen je ein Fotometerabsorptionssignal und die daraus errechneten Extinktionskoeffizienten. Wegen der geringen Anfangskonzentration wird maximal etwa 8 % Absorption erreicht, entsprechend einem Extinktionskoeffizienten von ca.  $0,3 \text{ m}^{-1}$ .

DEMONA - VERSUCH V33

BEGINN PLASMABRENNER: 05.03.85, 16H32

VERSUCHSENDE: 06.03.85, 14H07



\*  $\beta$  - ABSORPTION-INSTRUMENT FH 62IT

$\Delta$  FILTERSTATION 3



Abbildung 5.2.1.

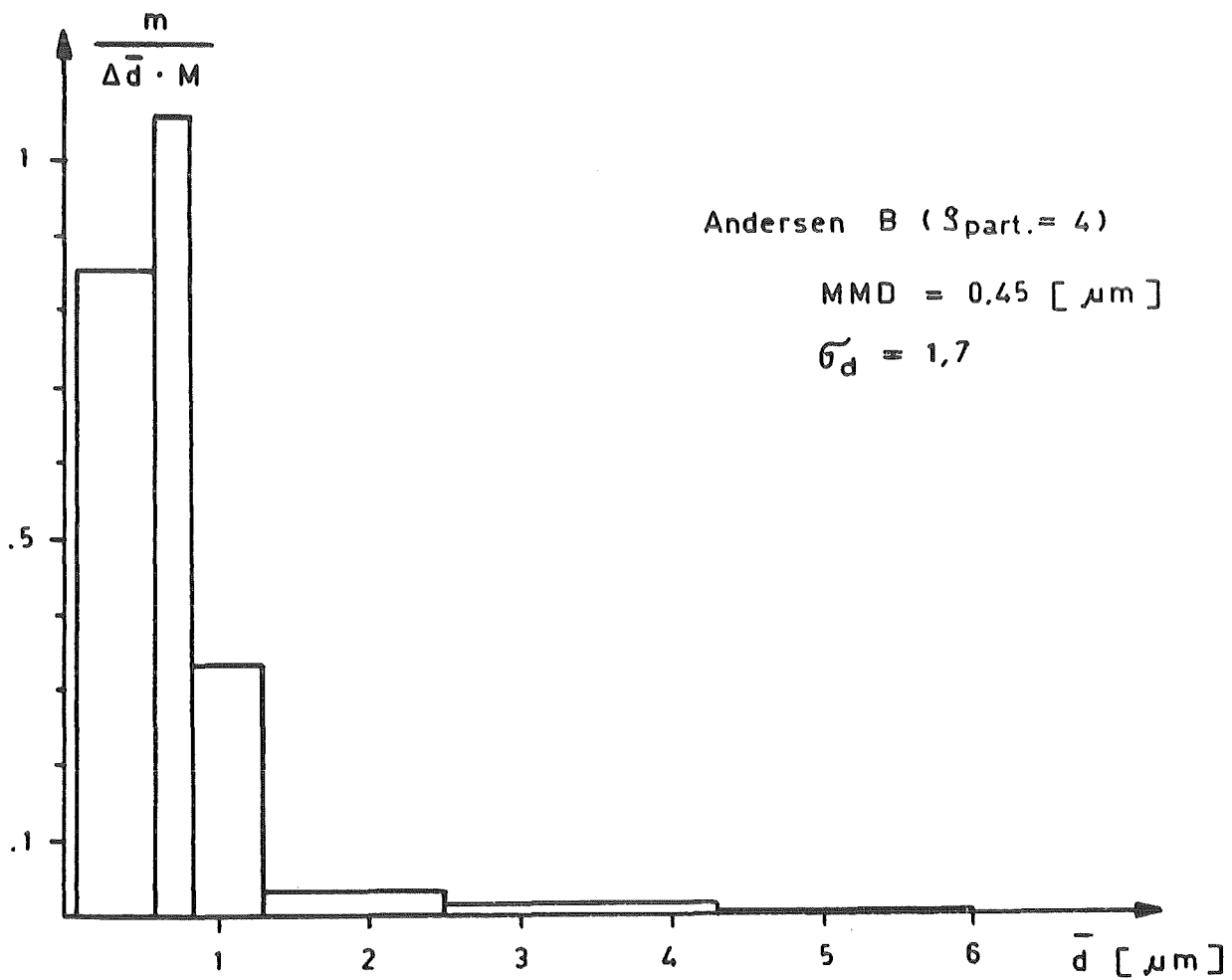


Abbildung 5.2.2.: Mit Andersen B-Impaktor gemessene Massenverteilung.

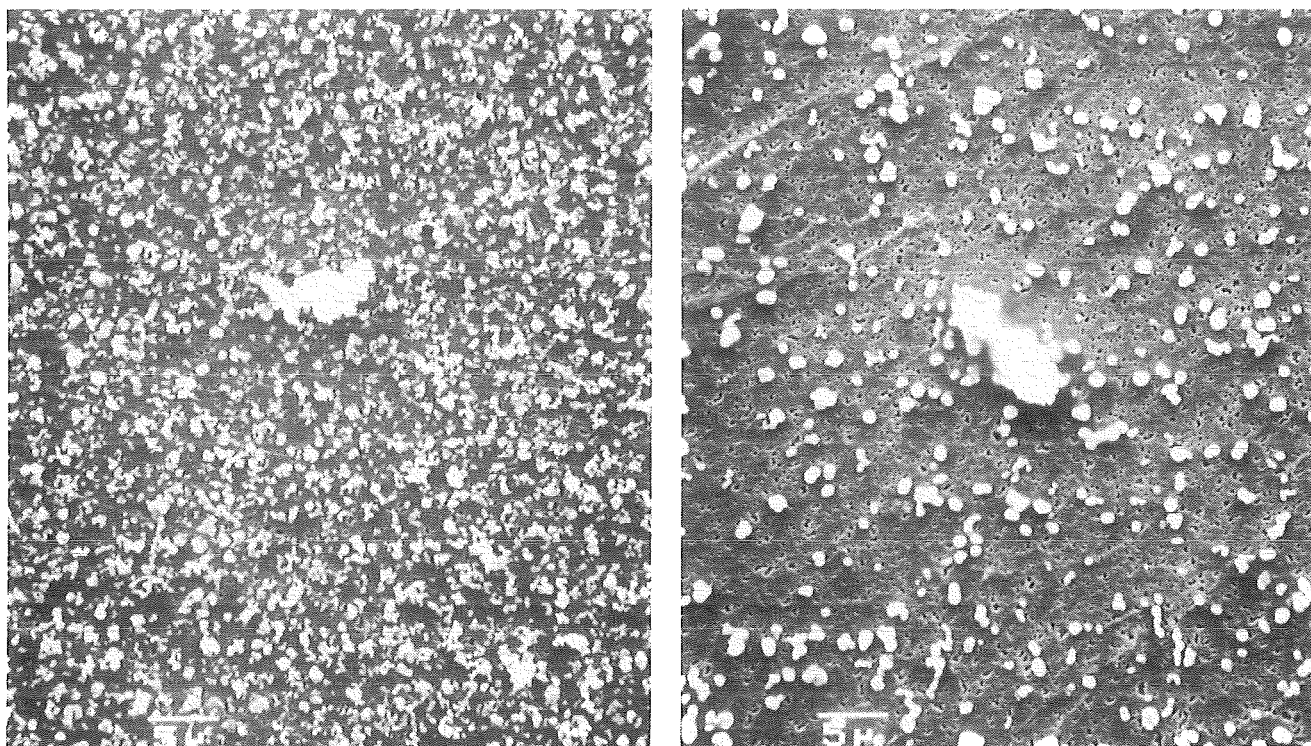
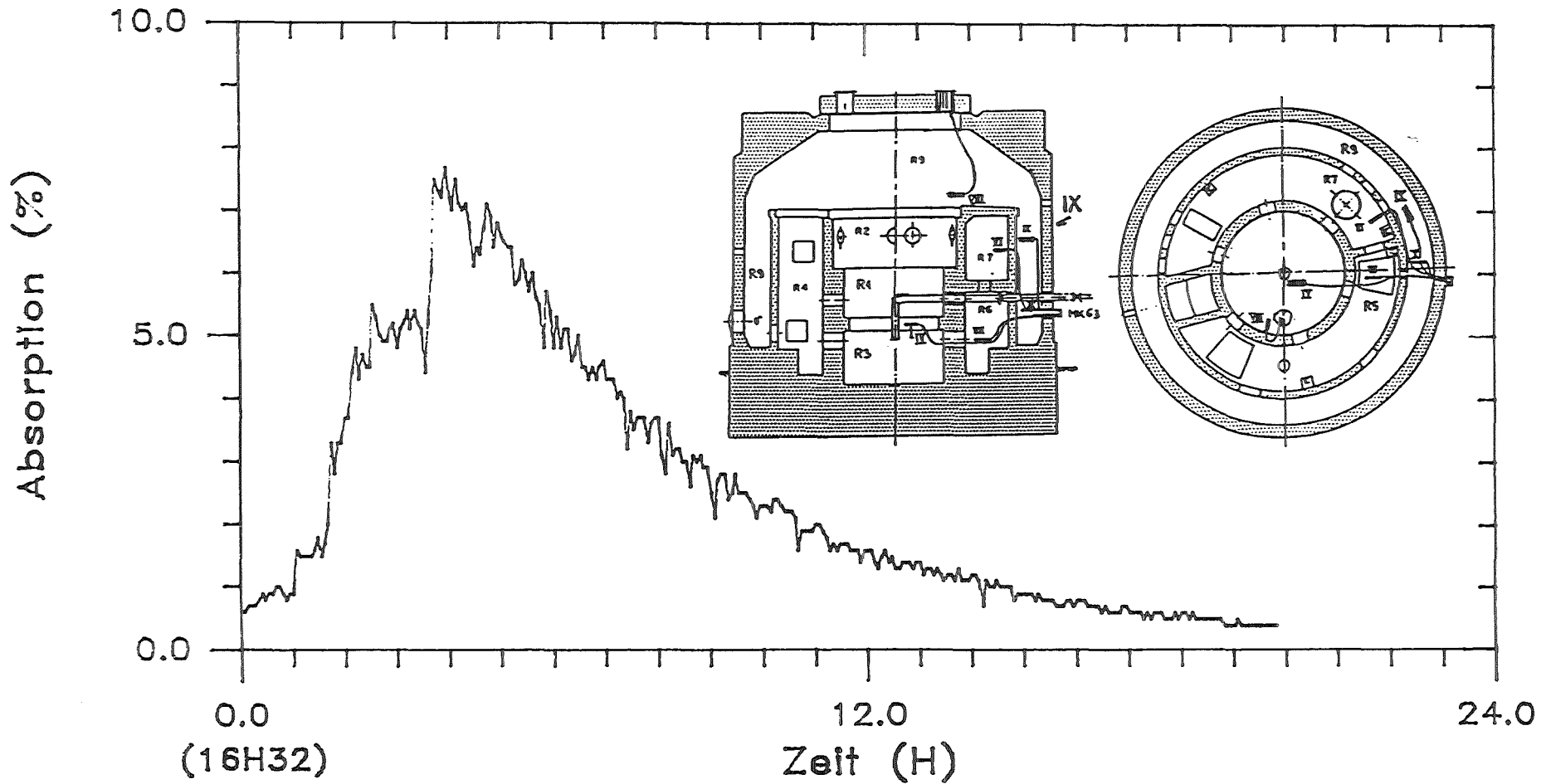


Abbildung 5.2.3.: Silberaerosole auf Filter. Die grossen Partikel sind  $\text{SnO}_2$ -Verunreinigungen von vorherigen Versuchen.

# DEMONA - VERSUCH V33

Start Luftinspelsung: 05.03.85, 16H32



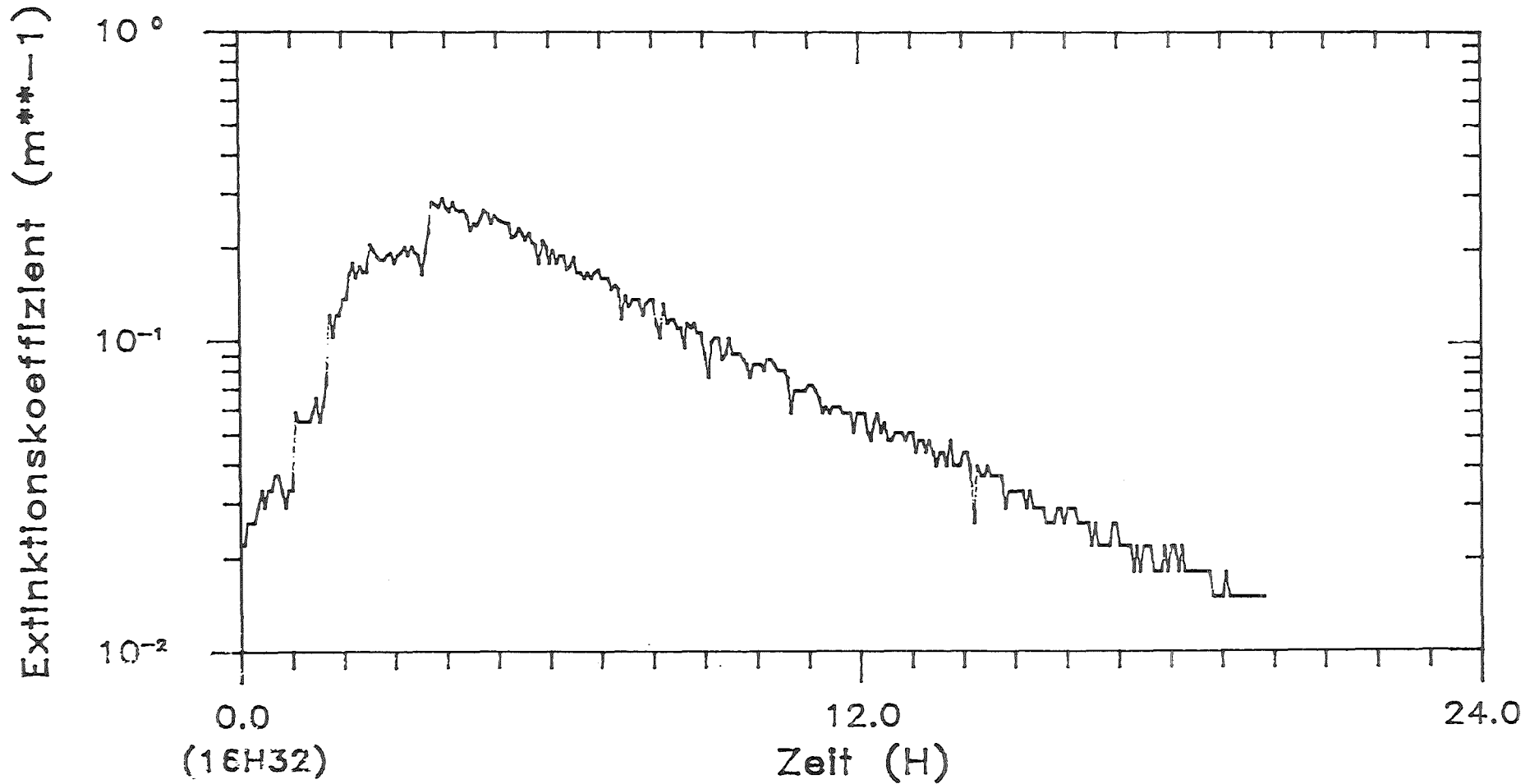
Fotometer Position IX

ETR - EU

Abbildung 5.2.4,

D E M O N A - V E R S U C H V 3 3

Start Luftinspeisung: 05.03.85, 16H32



Fotometer Position IX

EU

Abbildung 5.2.5

### 5.2.2. Versuch V34:

Dieser Versuch wurde als eine Wiederholung von Versuch V31 konzipiert mit dem Ziel, die bei V31 festgelegte Thermodynamik möglichst genau einzuhalten (was bei V31 nicht ganz gelungen ist). Zum Einsatz gelangte praktisch das vollständige Aerosolmesssystem, bestehend aus:

- 4 Filterstationen mit je 5 Filter
- Andersen- und Inspec-Impaktoren (je 2)
- $\beta$ -Absorptionsmessgerät
- 10 Fotometer

Die bei V34 erreichte Aerosolkonzentration ( $\text{SnO}_2$ -Aerosol) ist bei  $10 \text{ g/m}^3$ , basierend auf Auswertung belegter Filter. Die mit dem  $\beta$ -Absorptionsmessgerät erhaltenen maximalen Werte sind damit konsistent, während eine Extrapolation der Fotometersignale, basierend auf den bei V31 erhaltenen Resultaten, maximale Konzentrationen, die leicht oberhalb  $10 \text{ g/m}^3$  liegen, andeuten.

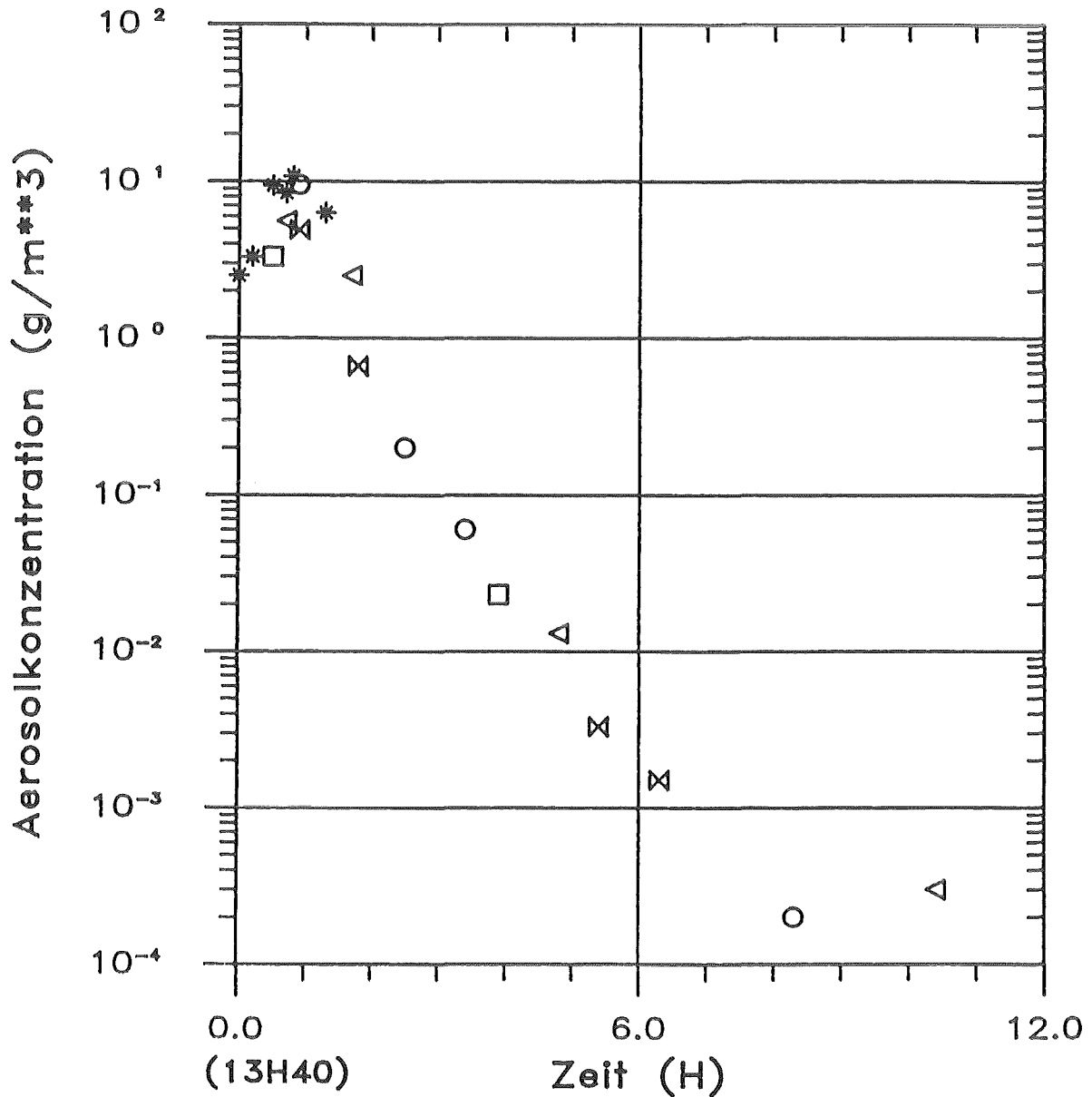
Das Zeitverhalten der luftgetragenen Konzentration, basierend auf den Werten der Filter und des  $\beta$ -Absorptionsmessgerätes sind auf Abbildung 5.2.6. dargestellt. Der Konzentrationsabbau ist praktisch identisch mit dem bei Versuch V31 gemessenen. Die bei V31 noch beobachtete starke Streuung der Messresultate tritt nach den Verbesserungen an der Filtereinlasssteuerung nicht mehr auf. Die Messresultate unterhalb einer Aerosolkonzentration von  $10^{-3} \text{ g/m}^3$  streuen stark und sind unsicher.

Partikelgrößenverteilung durch Auszählung von Filtern sind auf den Abbildungen 5.2.7 und 5.2.8 unmittelbar nach der Aerosolerzeugungsphase und 3 h nachher gezeigt, wobei ein Verteilungsmaximum bei Teilchen in der Größenklasse  $0.8 - 1.5 \mu$  zu erkennen ist ( $d_{50} = 1.2 \mu$ ). Die Fotos auf Abbildung 5.2.9. zeigen Aerosole unmittelbar nach der Aerosolerzeugungsphase und drei Stunden später. Abbildungen 5.2.10 und 5.2.11 zeigen Fotometersignale aus dem zentralen Kuppelraum (Absorption sowie daraus berechnete Extinktion). Abbildung 5.2.12. und 5.2.13. zeigen die entsprechenden Signale aus dem äusseren Ringraum. Beide Fotometer zeigen, ausser einer an sich unwesentlichen zeitlichen Verzögerung des Signalanfangs, bedingt durch die anfängliche Aerosolausbreitung im Containment, praktisch gleiches Verhalten. Insbesondere treten die das Einsetzen von Volumencondensation beschreibenden "Sekundärpeaks" praktisch zeitgleich auf.

D E M O N A - V E R S U C H V 3 4

Start Luftfeinspeisung: 27.03.85, 13H40

Versuchsende: 28.03.85, 10H50



- \*  $\beta$  - Absorption-Instrument FH 62IT
- Filterstation 1
- Filterstation 2
- △ Filterstation 3
- ⊗ Filterstation 4



Abbildung 5,2.6,



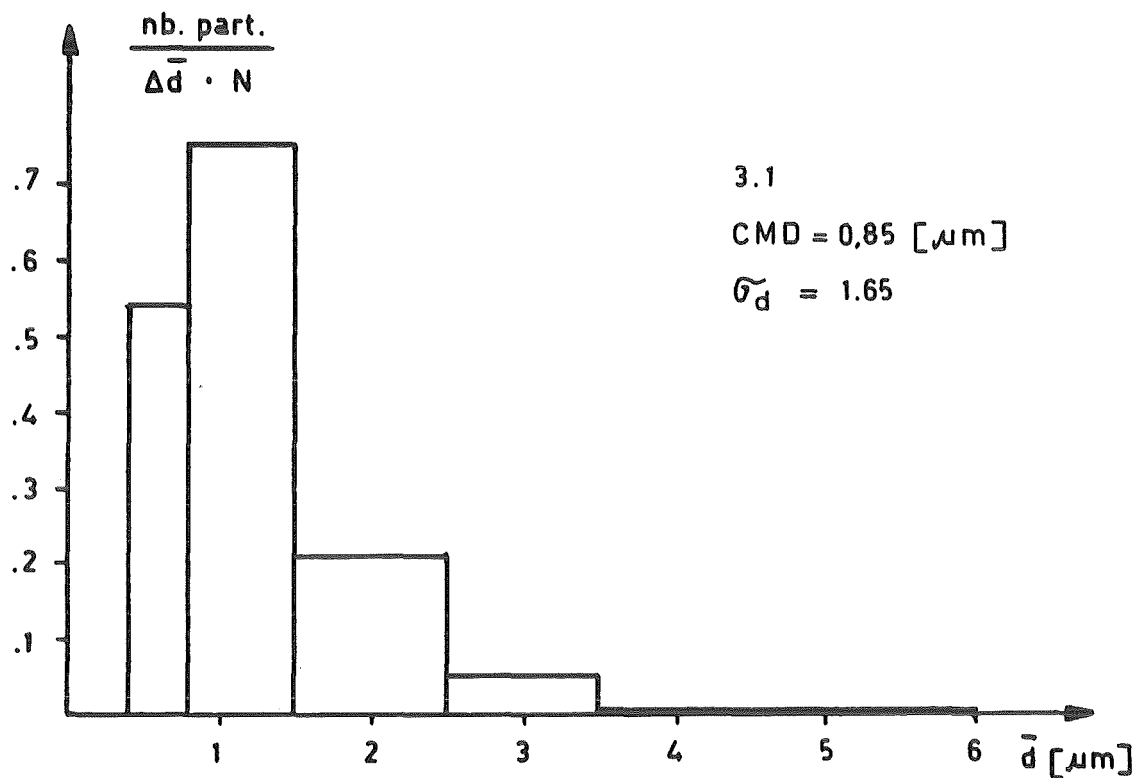


Abbildung 5.2.7.: Teilchengrößenverteilung auf Filter 3.1., 14 h 21.

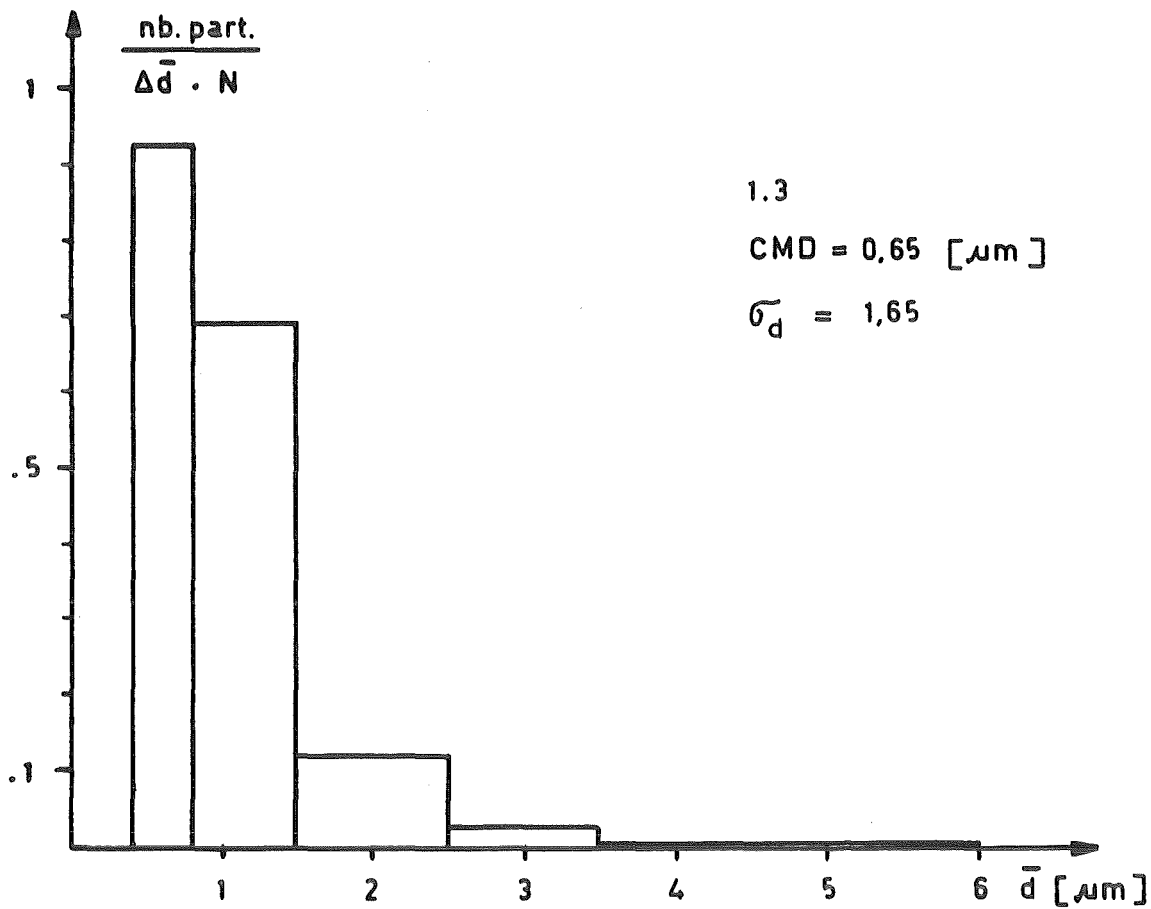


Abbildung 5.2.8.: Größenverteilung auf Filter 1.3., 17 h 33.

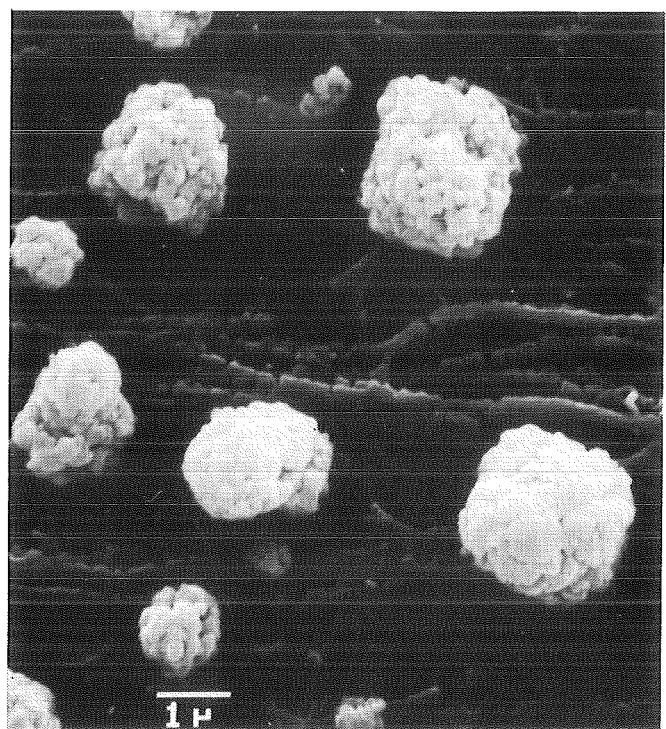
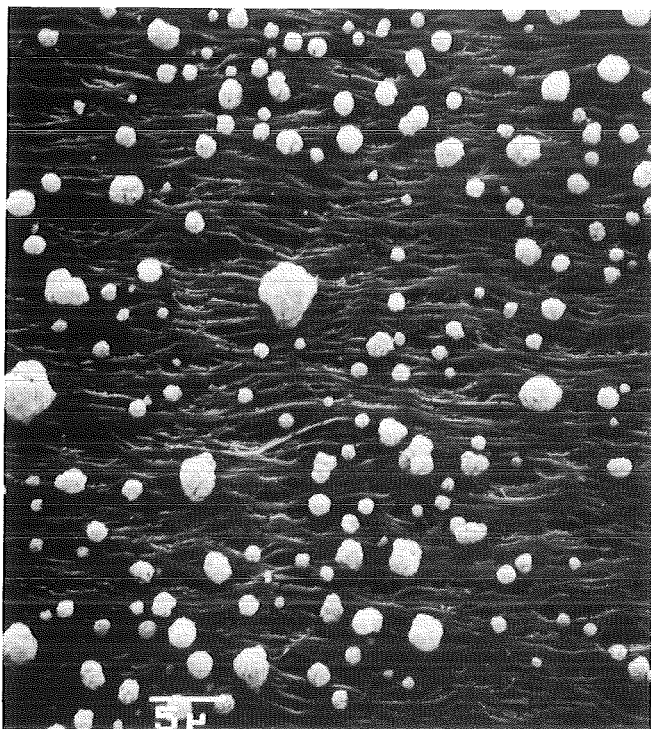
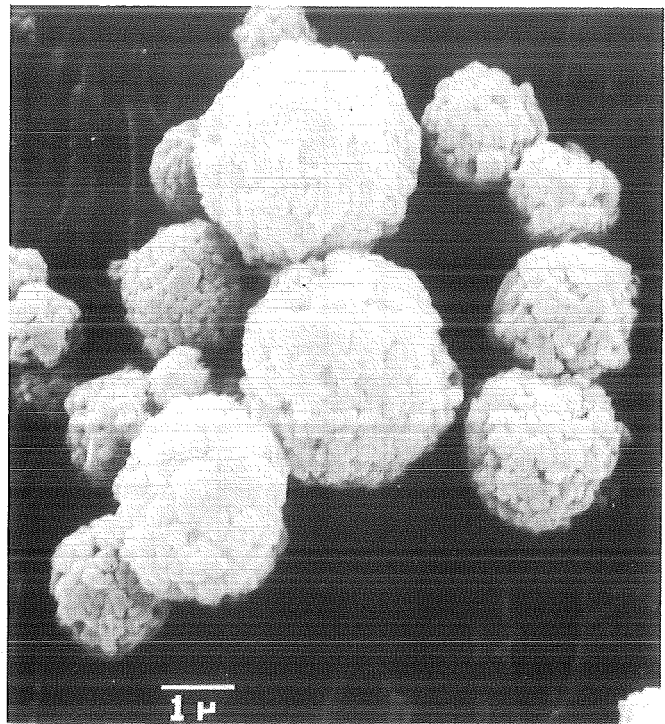
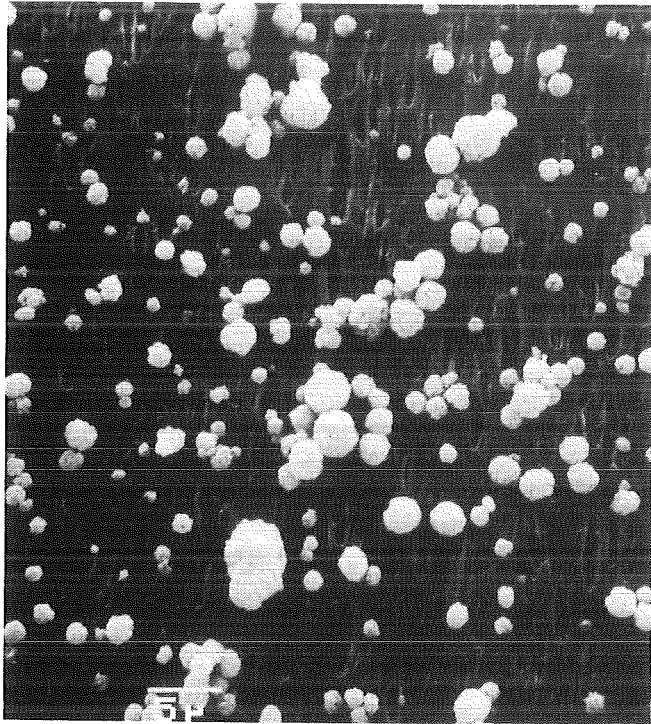
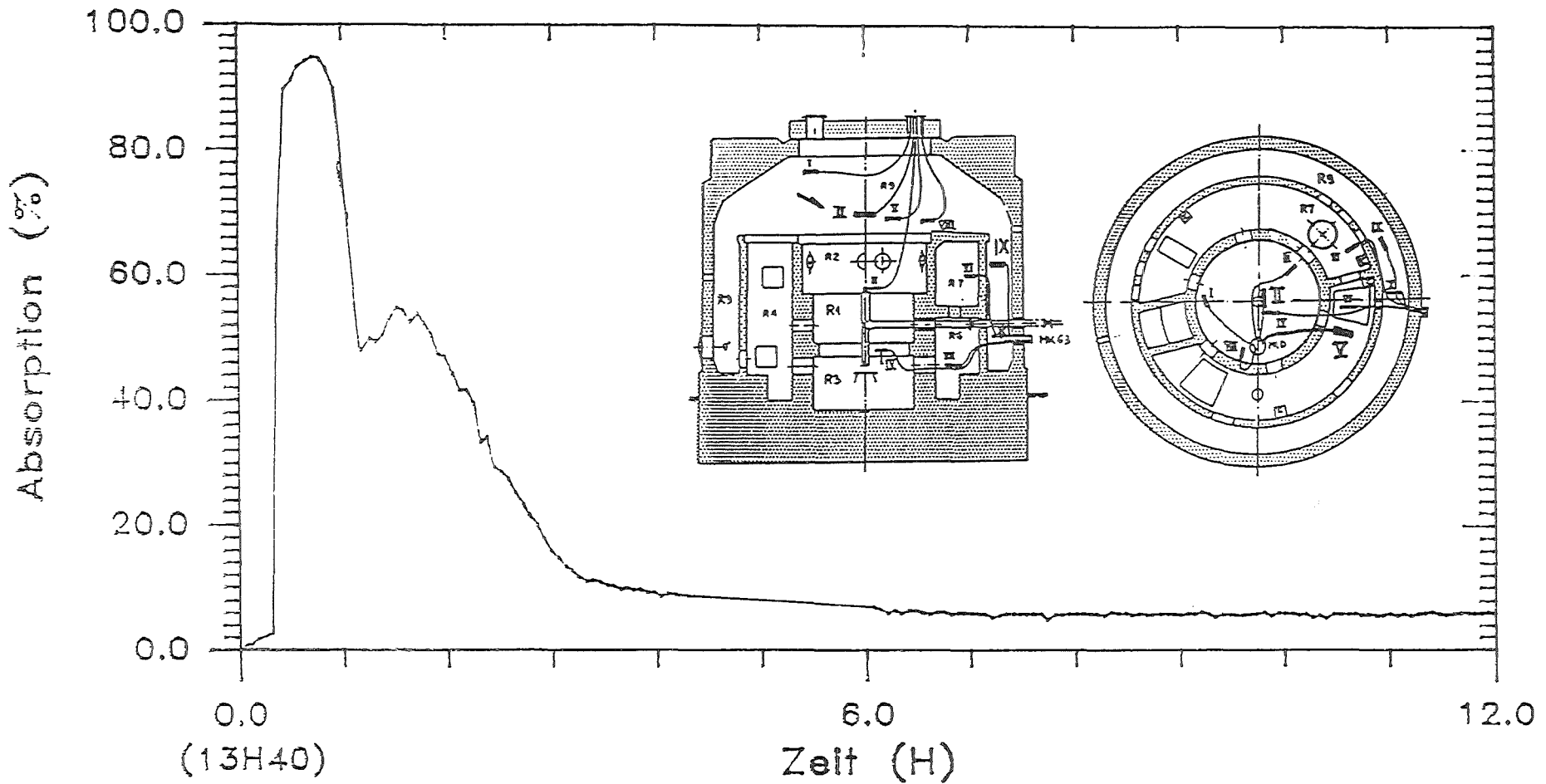


Abbildung 5.2.9.: REM-Fotos von Aerosolen, oben auf Filter 3.1 um 15 h 19, d.h. unmittelbar nach Schluss der Aerosolerzeugungsphase, unten auf Filter 1.3 um 17 h 33.

# DEMONA - VERSUCH V34

Start Luftinspelsung: 27.03.85, 13H40



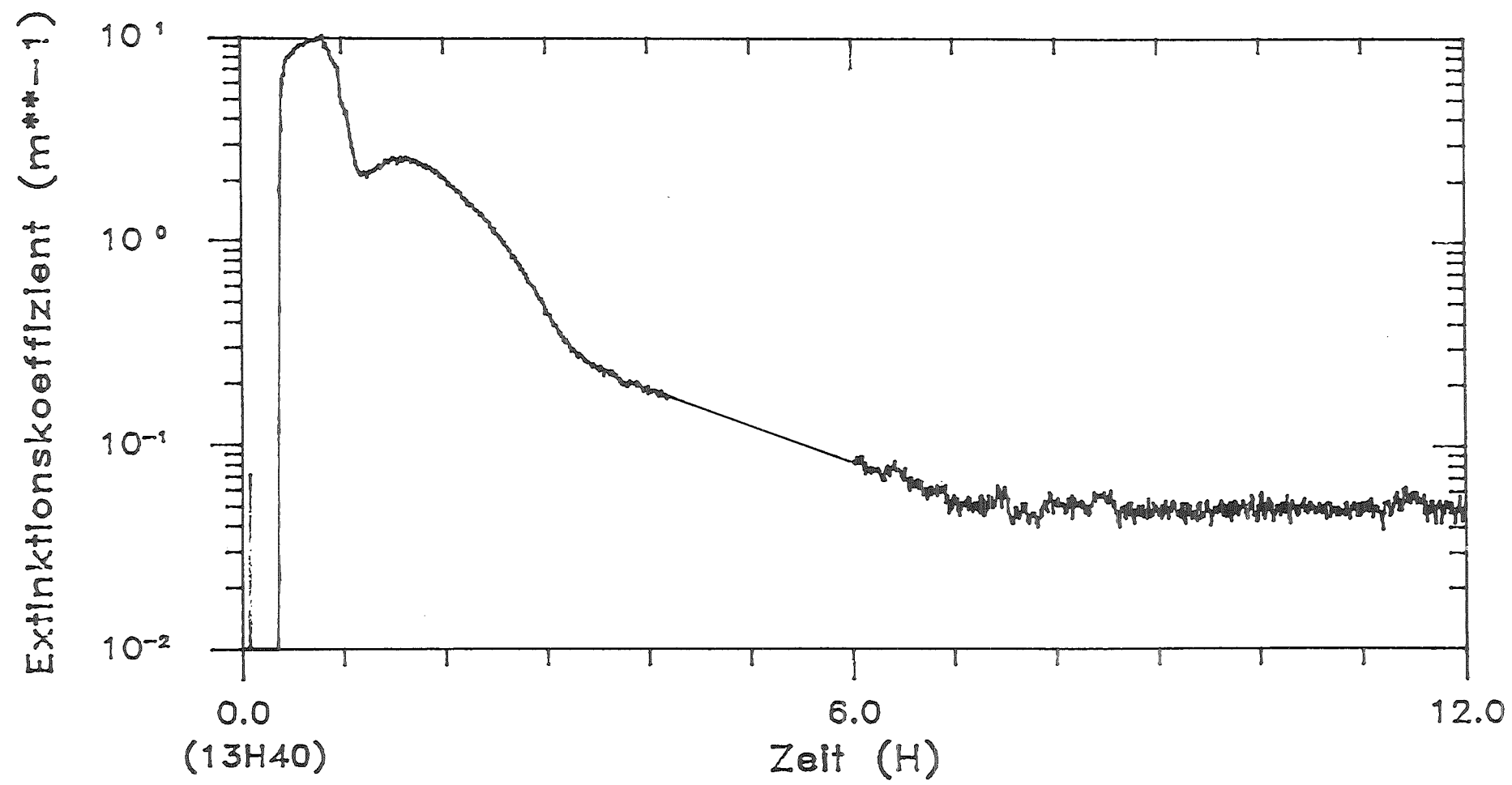
Fotometer Position II



Abbildung 5.2.10.

DEMONA - VERSUCH V34

Start Luftfeinspelsung: 27.03.85, 13H40



Fotometer Position II

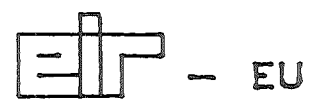
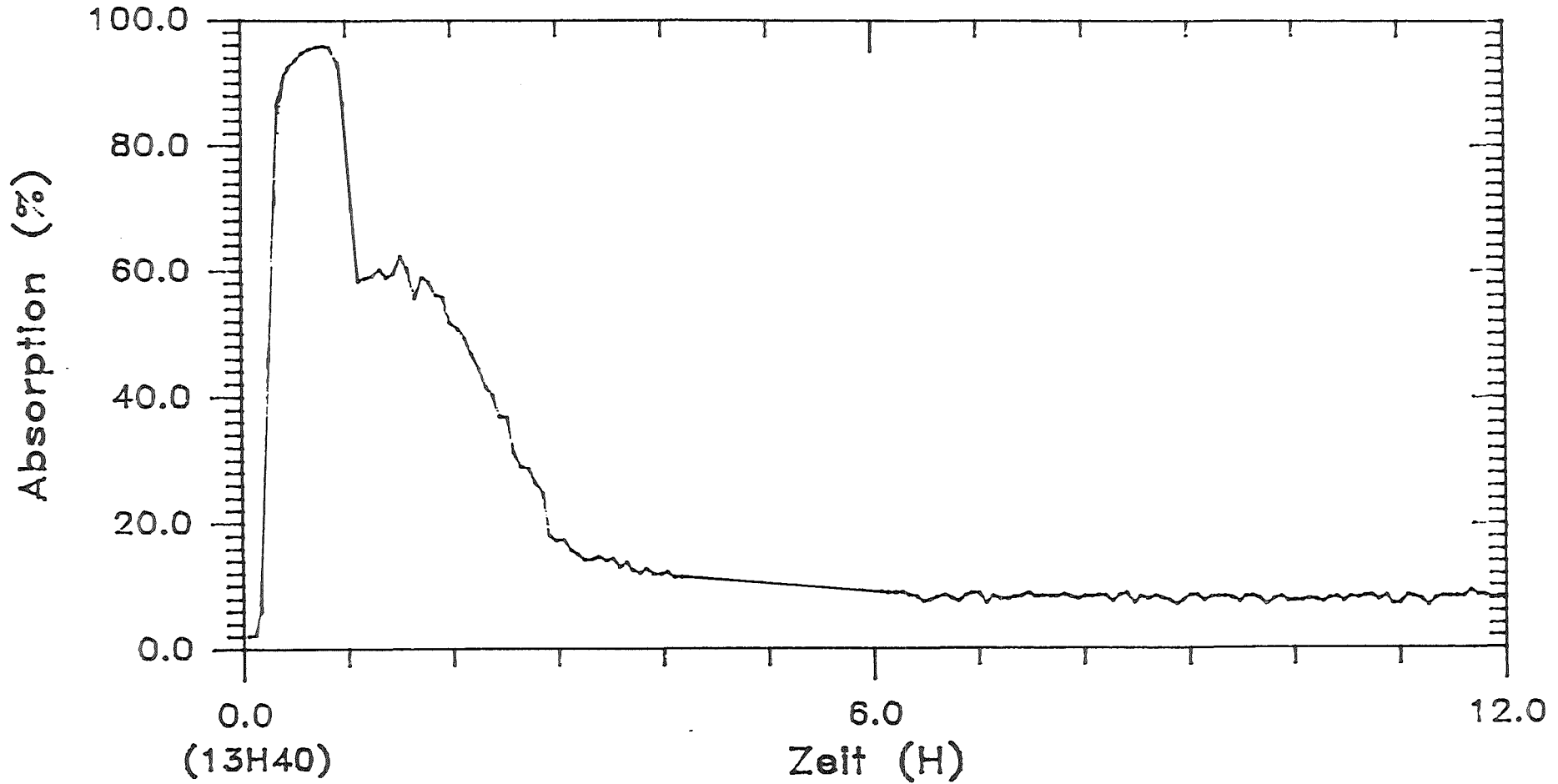


Abbildung 5.2.11.

DEMONA - VERSUCH V34

Start Luftfeinspeisung: 27.03.85, 13H40



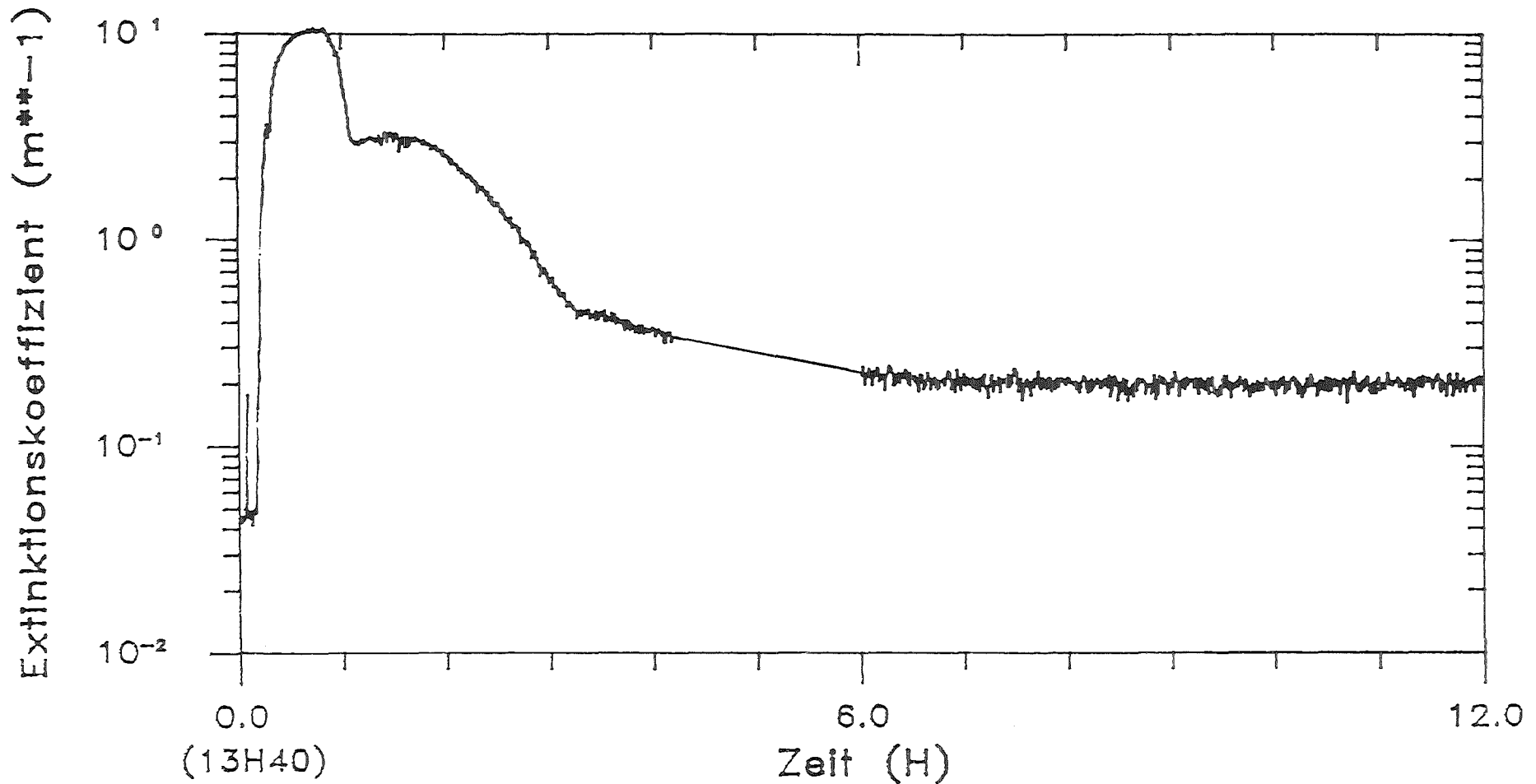
Fotometer Position IX

EU - EU

Abbildung 5.2.12.

DEMONA - VERSUCH V34

Start Luftinspeisung: 27.03.85, 13H40



Fotometer Position IX

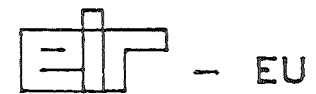


Abbildung 5.2.13.

### 5.2.3. Versuch V36:

Versuchsziel war die Demonstration der unterschiedlichen Aerosolabbauraten in kondensierender Atmosphäre (entsprechend den Versuchen V31 und V34) sowie in ungesättigter Atmosphäre (entsprechend Versuch V30). Die im Containment auf der Höhe der Filterstation 1 gemessene Luftfeuchtigkeit ist dabei auf Abbildung 5.2.14 gezeigt. Sie wurde errechnet aus dem gemessenen Luft-Wasserdampf-Massenverhältnis und der bei Filterstation 1 gemessenen Temperatur. Wie zu erwarten, sinkt die relative Feuchte während der Aerosolerzeugung von ca. 80 % auf ca. 45 %, um auf annähernd diesem Wert während ca. 2 Stunden zu bleiben. Als Modellaerosol wurde SnO<sub>2</sub> verwendet, die maximal erreichte Aerosolkonzentration lag bei 12 g/m<sup>3</sup>. Die Wiederaufnahme der Dampfeinspeisung und damit der Uebergang zu kondensierender Atmosphäre erfolgte nach Abnahme der Aerosolkonzentration auf ca. 1 g/m<sup>3</sup> (gemäss den on-line gemessenen Werten des  $\beta$ -Absorptionsgerätes). Die für V36 gemessenen Aerosolkonzentrationen sind auf Abbildung 5.2.15 dargestellt. Es zeigt sich, dass der Unterschied der Aerosolabbauraten in trockener und kondensierender Containmentatmosphäre in diesem Versuch nicht klar hervortritt. Die Konzentrationsabnahme bei sehr hohen Aerosolkonzentrationen (zwischen 1 g/m<sup>3</sup> und 10 g/m<sup>3</sup>) erfolgt sowohl in trockener als auch in kondensierender Atmosphäre sehr schnell, und etwelche kleine Unterschiede in den Abbauraten können vom Aerosolmesssystem bei hohen Aerosolkonzentrationen nur sehr beschränkt erfasst werden. Die Resultate dieses Versuches legen den Schluss nahe, dass ein Uebergang von nicht kondensierenden zu kondensierender Containmentatmosphäre bei Erreichen einer Aerosolkonzentration von ca. 0.1 g/m<sup>3</sup> vorteilhafter wäre, eine Erkenntnis, die bei Versuch V39 zum Tragen gekommen ist.

Teilchengrößenverteilungen sind vorhanden zum Zeitpunkt 18 h 30 (Abbildung 5.2.16.), 19 h 24 (Abbildung 5.2.17.) und 20 h 10 (Abbildung 5.2.18). Zum ersten Zeitpunkt wurde ein Andersen B-Impaktor beladen (der zweite Andersen Impaktor war nicht auswertbar) und liefert eine Massenverteilung, die unter Annahme eines spezifischen Gewichtes der Aerosolpartikel von  $\rho = 4 \text{ g/cm}^3$  auf Abbildung 5.2.16 dargestellt ist. Zu den beiden anderen Zeitpunkten wurden Filterproben ausgewertet, die wieder als normierte Teilchengrößenverteilungen dargestellt sind. Da beide Verteilungen nur mit ca. 45' Zeitdifferenz aufgenommen wurden, können sie einen Anhaltspunkt bezüglich der Reproduzierbarkeit der durch Auszählung von Filterproben gewonnenen Verteilungen geben.

REM-Fotos von Aerosolpartikel sowohl aus der "trockenen" als auch aus der "kondensierenden" Versuchsphase sind auf Abbildung 5.2.19.

Als repräsentative Auswahl der beim Versuch aufgenommenen Fotometer-signale sind auf den Abbildungen 5.2.20. bis 5.2.23. jeweils die Absorptions- und Extinktionsdaten für die Fotometerpositionen II und IX angegeben. Bei beiden ist die gegenüber V34 spätere, d.h. zum Zeitpunkt der neuerlichen Dampfzufuhr einsetzenden Volumen Kondensation deutlich zu erkennen.

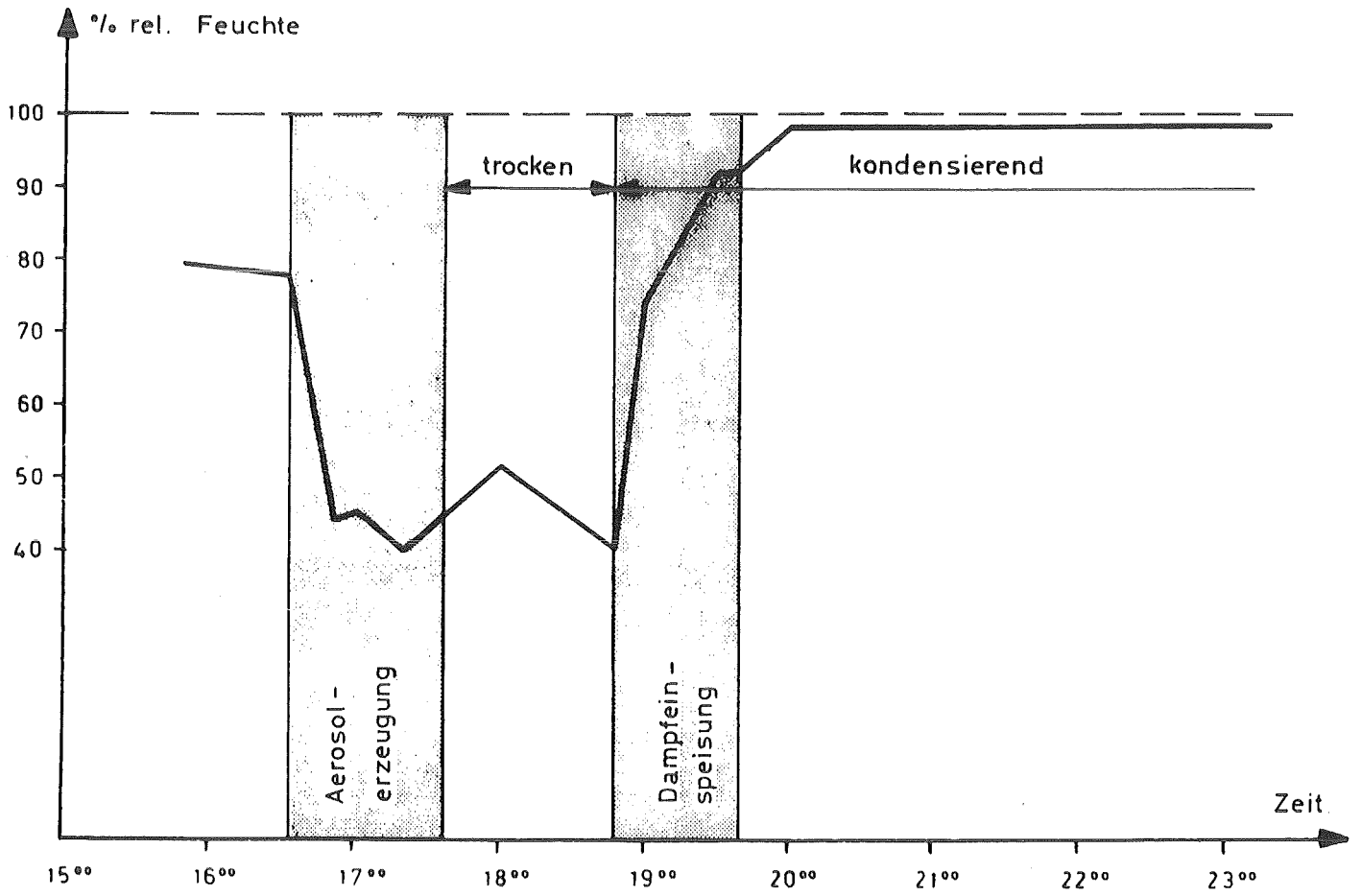


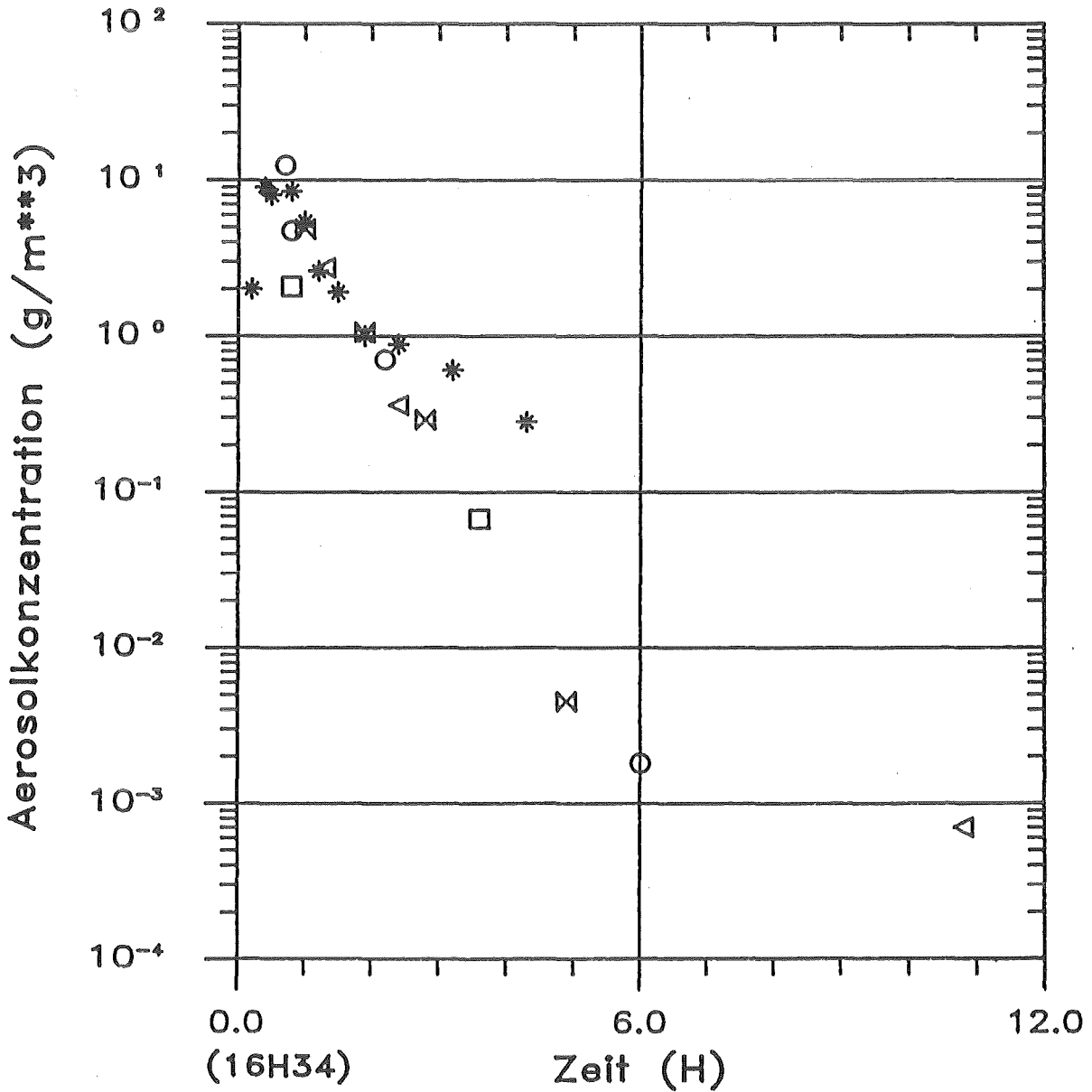
Abbildung 5.2.14.: Relative Feuchte bei Filterstation 1 berechnet aus dem gemessenen Dampf-Luft-Masseverhältnis.



# DEMONA - VERSUCH V36

Start Luftinspeisung: 08.05.85, 16H34

Versuchsende: 10.05.85, 13H48



- \*  $\beta$  - Absorption-Instrument FH 62IT
- Filterstation 1
- O Filterstation 2
- Δ Filterstation 3
- X Filterstation 4



Abbildung 5,2,15

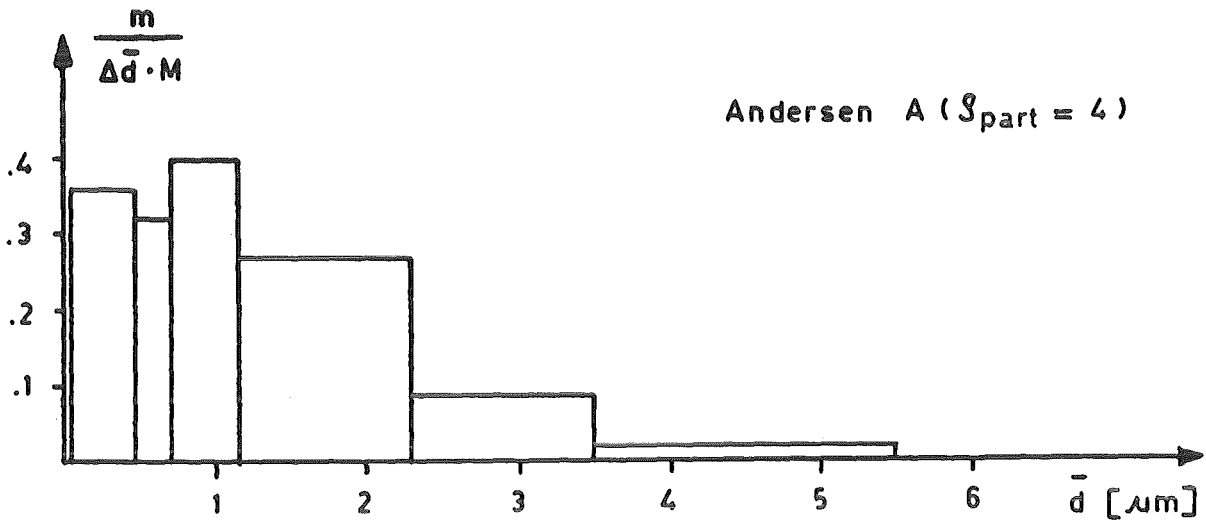


Abbildung 5.2.16.: Versuch V36, Massenverteilung gemessen um 18 h 30, mit Andersen B-Impaktor ("trockene" Versuchsphase).

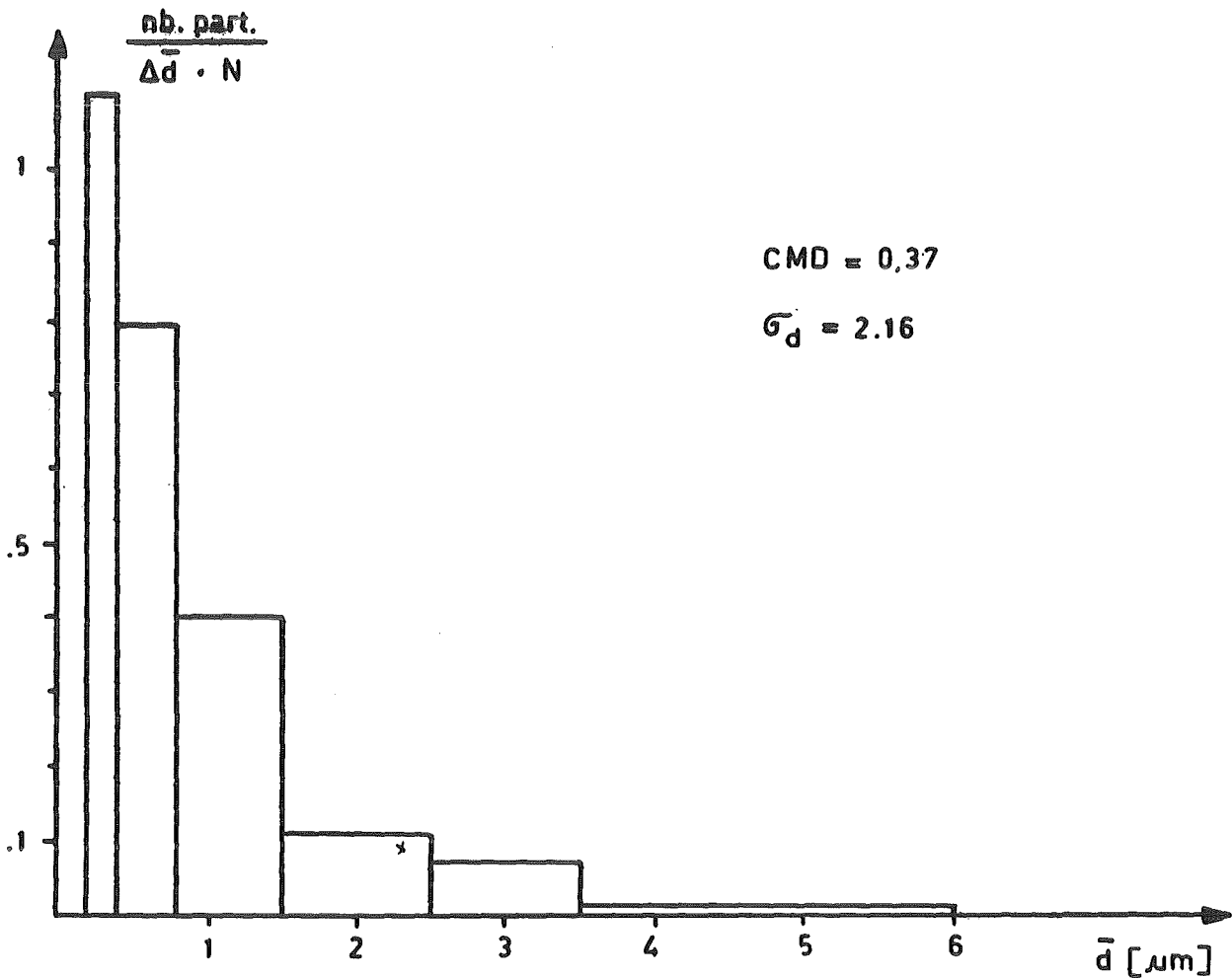


Abbildung 5.2.17.: Teilchengrößenverteilung auf Filter 4.3 um 19 h 24 am 8.5.85 ("kondensierte" Versuchsphase).

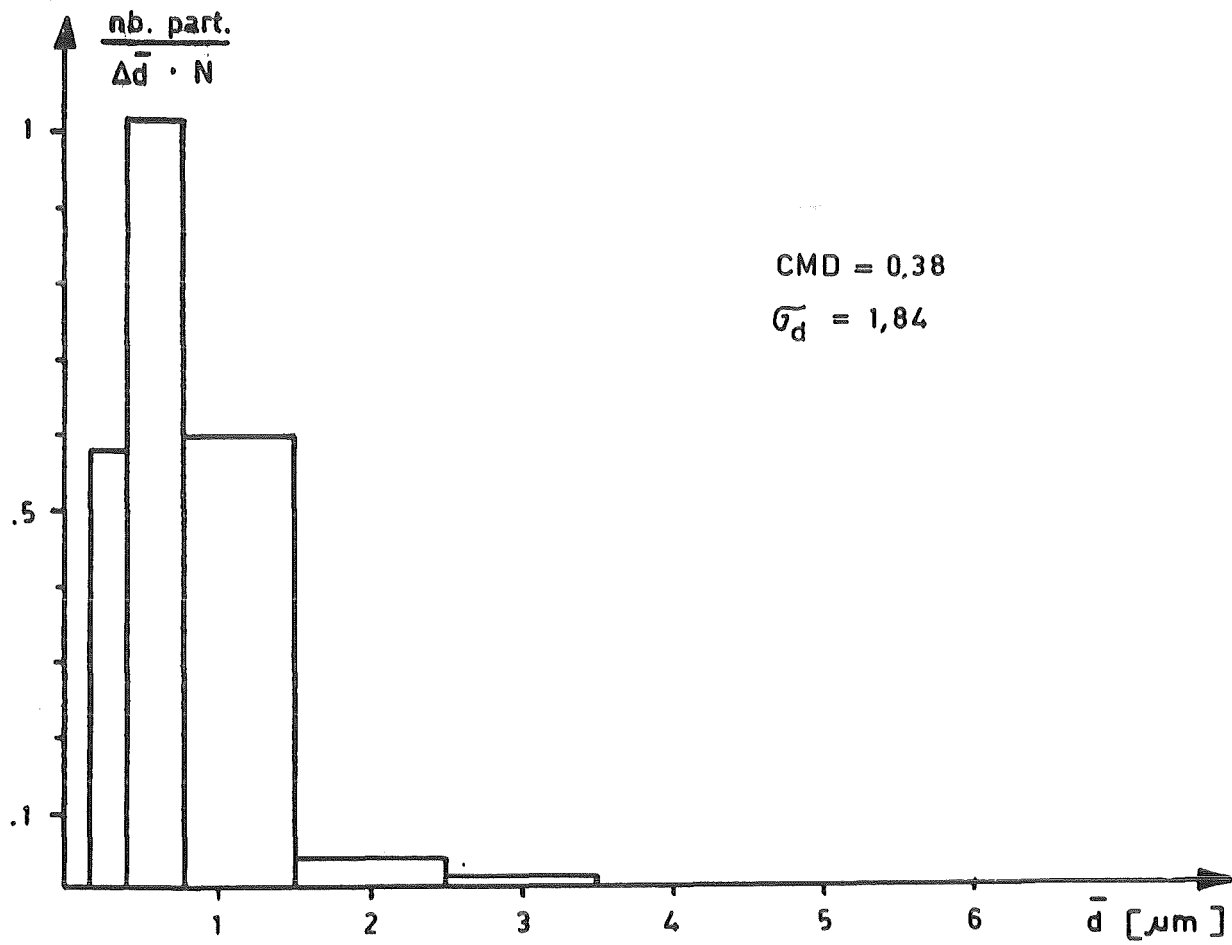


Abbildung 5.2.18.: Teilchengrößenverteilung auf Filter 1.3 um 20 h 10 am 8.5.85 ("kondensierende" Versuchsphase).

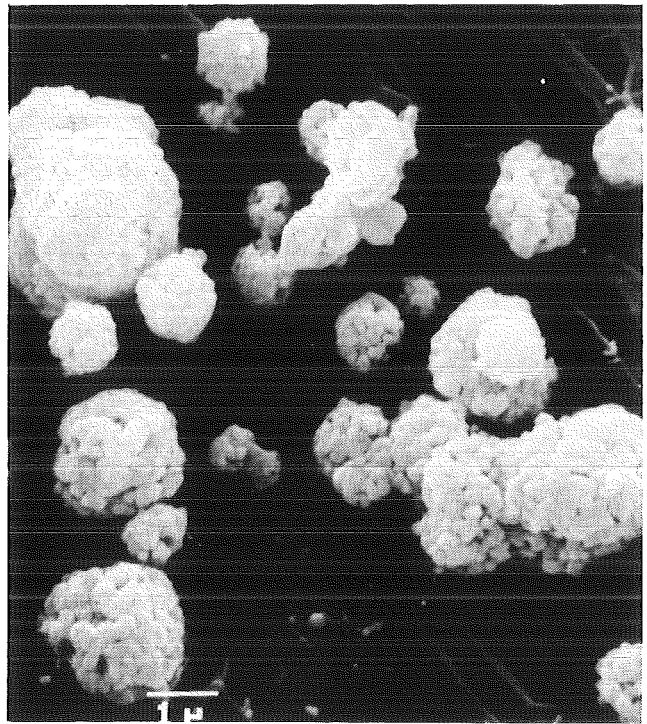
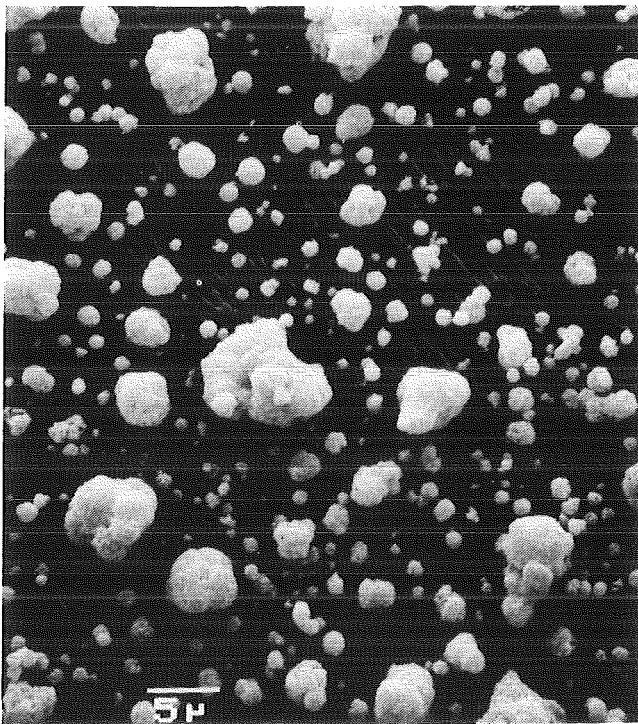
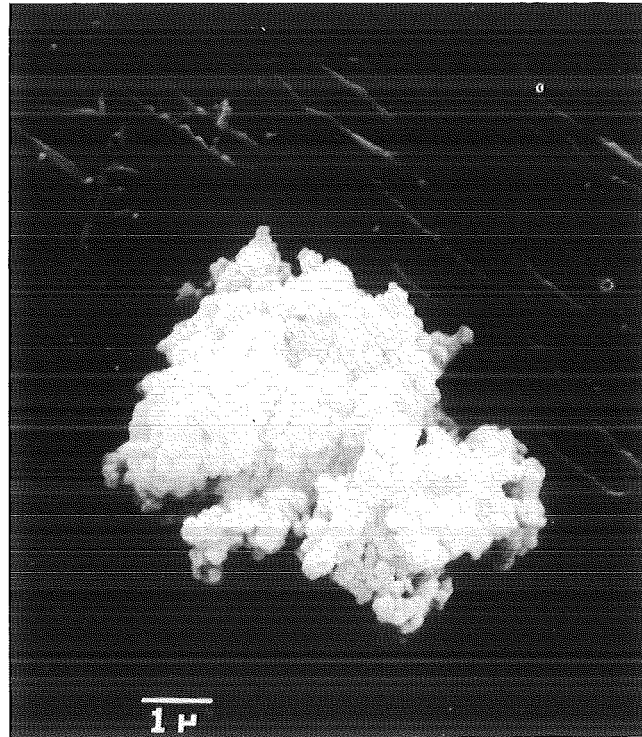
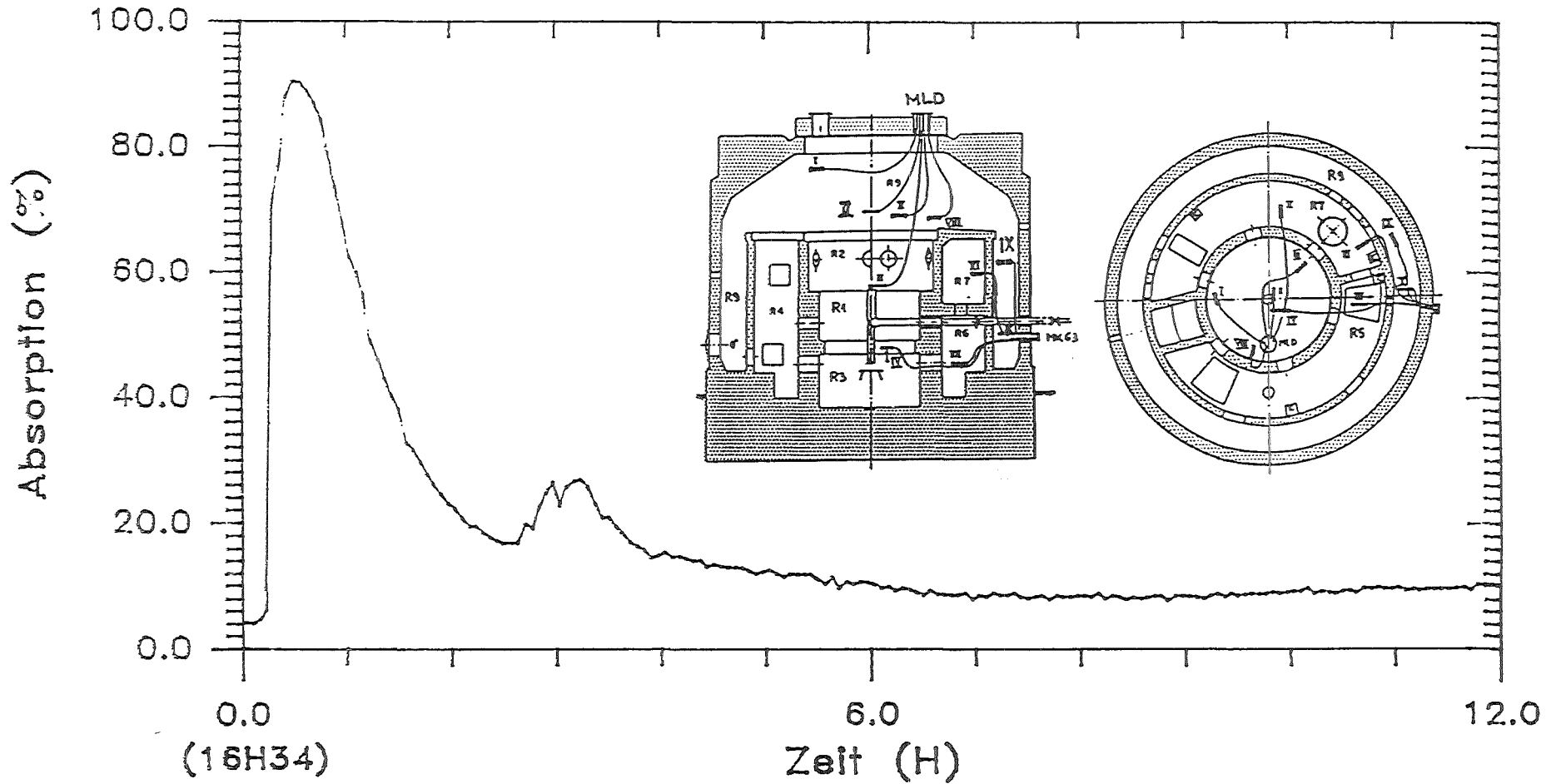


Abbildung 5.2.19.: Foto oben: Filter 1.2 um 17 h 40 während der "trockenen" Versuchsphase; unten: Filter 4.3 um 19 h 24 während der "kondensierenden" Versuchsphase.

DEMONA - VERSUCH V36

Start Luftinspelsung: 08.05.85, 16H34



Fotometer Position II

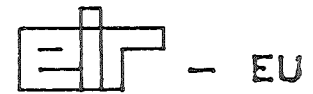
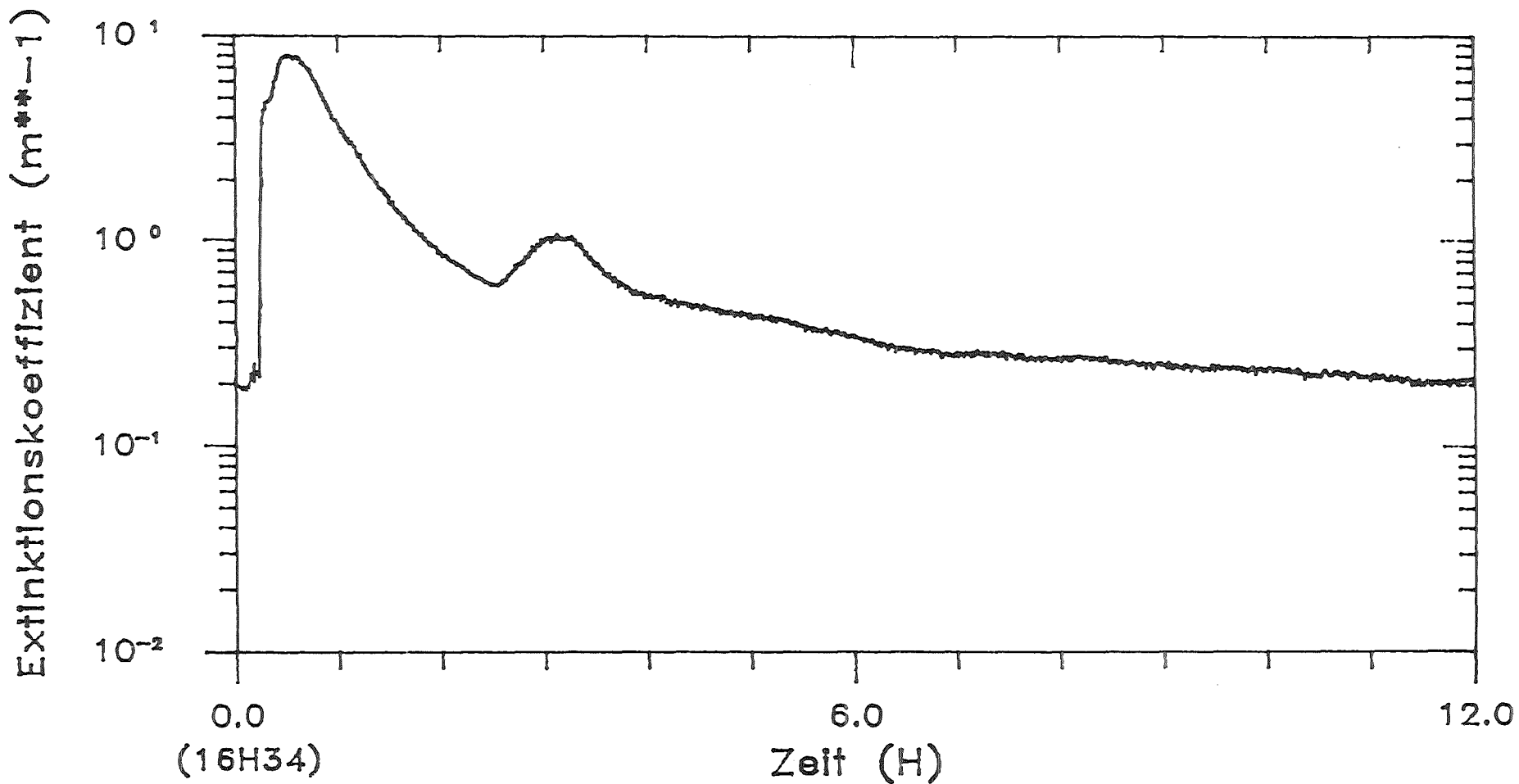


Abbildung 5.2.20

DEMONA - VERSUCH V36

Start Luftinspeisung: 08.05.85, 16H34



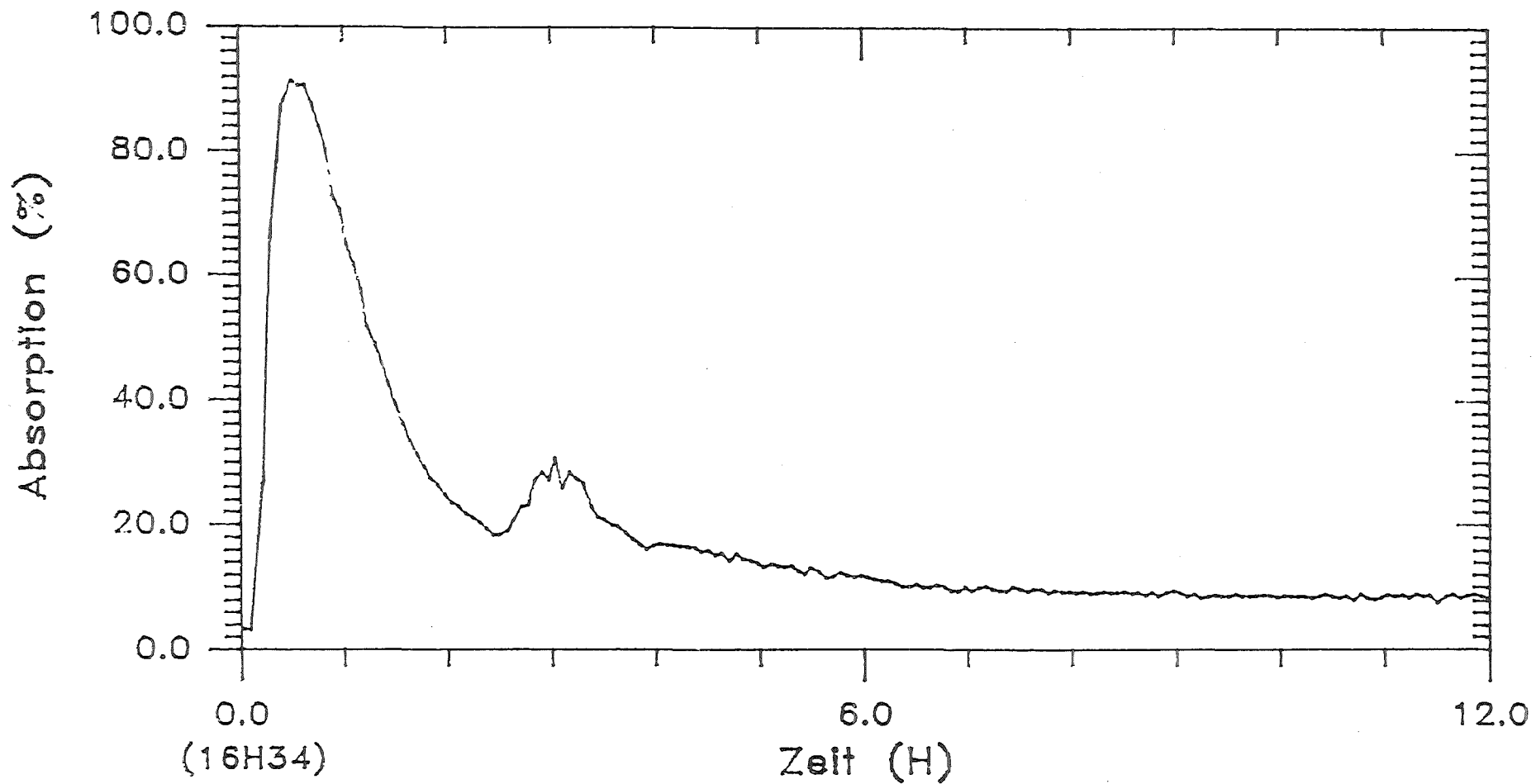
Fotometer Position II

ET - EU

Abbildung 5.2.21.

DEMONA - VERSUCH V36

Start Luftinspelsung: 08.05.85, 16H34



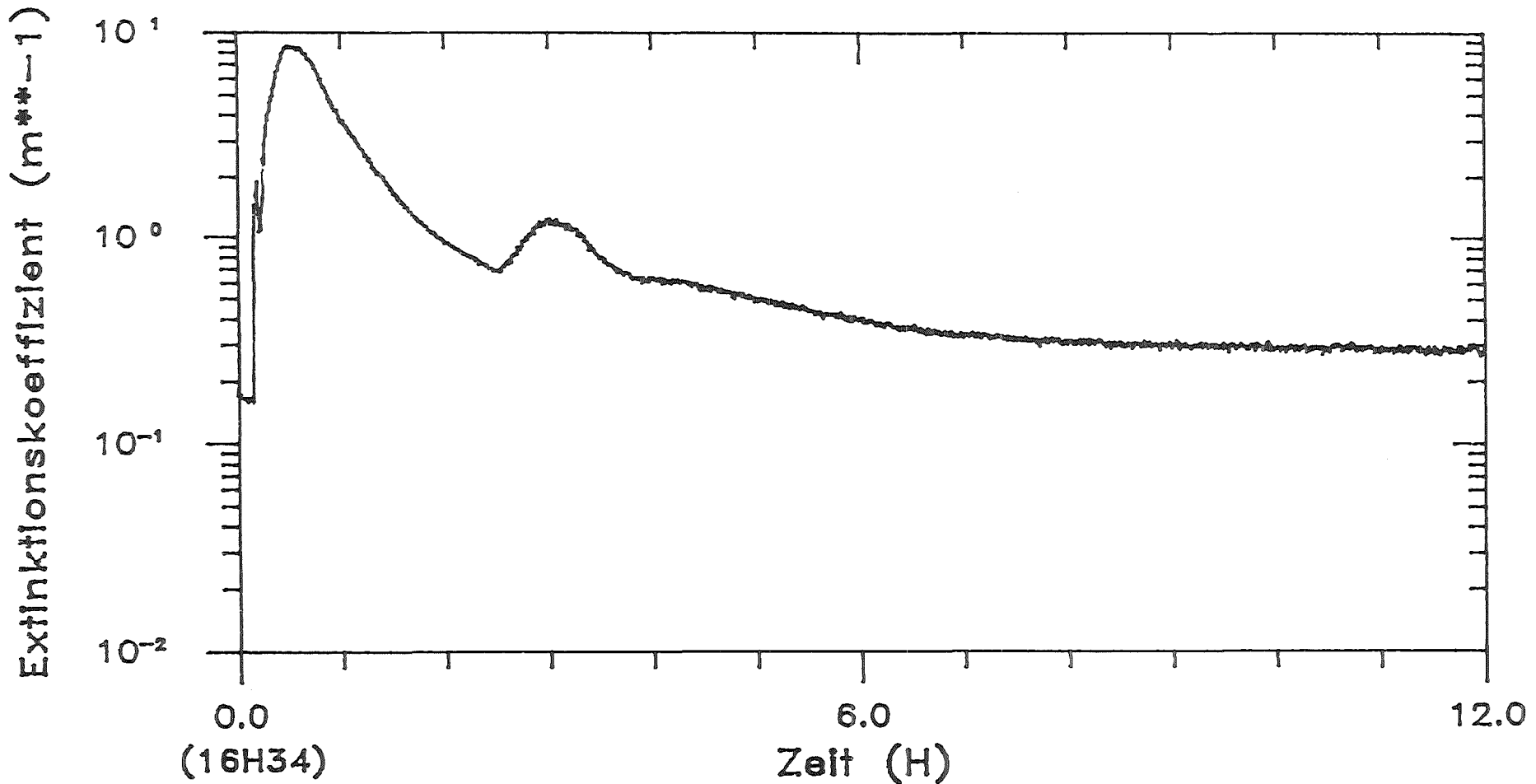
Fotometer Position IX

ET - EU

Abbildung 5.2.22.

DEMONA - VERSUCH V36

Start Luftfeinspeisung: 08.05.85, 16H34



Fotometer Position IX

EUR - EU

Abbildung 5.2.23.



#### 5.2.4. Versuch V39:

Dieser Versuch war als Niedrigkonzentrationsversuch geplant. Anfangskonzentration im Containment sollte bei 0.1 bis 0.2 g/m<sup>3</sup> betragen, als Modellaerosol war Silber vorgesehen.

Während der Aerosolerzeugungsphase verdampfte ein Plasmabrenner unbeabsichtigt Teile der aus MgO<sub>2</sub> bestehenden Oxidationskammer. Die Aerosolkonzentration des dabei entstandenen Misch-aerosols im Containment erreichte daraufhin etwa 2 g/m<sup>3</sup>. Daher wurde beschlossen, den bei Versuch V36 geplanten Uebergang von Aerosolabbau in nicht kondensierender Atmosphäre zu kondensierender Atmosphäre nochmals zu wiederholen. Der Uebergang wurde diesmal, basierend auf den Erfahrungen mit V36 bei einer Aerosolkonzentration von ca. 0.1 g/m<sup>3</sup> vollzogen (on-line Messung mit  $\beta$ -Absorptionsmessgerät). Die während der ersten Versuchsphase herrschenden atmosphärischen Bedingungen sind auf Abbildung 5.2.24 dargestellt. Die relative Feuchte im Containment fällt während der Aerosolerzeugungsphase von ca. 90 % auf ca. 75 % und verbleibt dann während ca. 3 Stunden auf diesem Wert, um nach Wiederaufnahme der Dampfeinspeisung Sättigung zu erreichen.

Die gemessenen Aerosolkonzentrationen in Funktion der Zeit sind auf Abbildung 5.2.25 dargestellt. Trotz der unvermeidlichen Streuung der Messpunkte ist klar der Unterschied in den Aerosolabbauraten in nichtkondensierender und in kondensierender Containmentatmosphäre zu erkennen. Nach Wiederaufnahme der Dampfzufuhr fällt die Aerosolkonzentration innerhalb von maximal 3 Stunden von ca. 100 mg/m<sup>3</sup> unter die sichere Nachweisgrenze des Aerosolmesssystems von ca. 1 mg/m<sup>3</sup>, während in der vorhergehenden "trockenen" Versuchsphase ein Abbau von ca. 2 g/m<sup>3</sup> auf 0.1 g/m<sup>3</sup> ebenfalls in ca. 3 - 3 1/2 Stunden erfolgt.

Da bei diesem Versuch - unfreiwillig - ein Misch-aerosol, bestehend aus MgO<sub>2</sub>, Ag und Resten von SnO<sub>2</sub> bzw. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (herrührend aus Kontamination von vorhergehenden Versuchen) vorgelegen ist, ist auf Tabelle 5.2.1. die für einzelne Filter durchgeführte Analyse nach Einzelkomponenten angegeben.

Teilchengrößen- bzw. Massenverteilungen sind für beide Versuchsphasen auf den Abbildungen 5.2.26, 5.2.27 und 5.2.28 gezeigt. Abbildung 5.2.26 zeigt die Teilchengrößenverteilung auf Filter 3.1., der um ca. 17 h 50 während der "trockenen" Versuchsphase exponiert wurde. Auf Abbildung 5.2.27 ist die ebenfalls in der trockenen Versuchsphase um 20 h 08 mit einem Andersen Impaktor gewonnene Massenverteilung. Die auf Abbildung 5.2.28 dargestellte Teilchengrößenverteilung wurde von Filter 1.2 erhalten, der um ca. 20 h 24 exponiert wurde, d.h. ca. 20 Minuten nach Wiederaufnahme der Dampfeinspeisung. Der in der "nassen" Versuchsphase ebenfalls belegte zweite Andersen-B-Impaktor war nicht auswertbar.

Nach Behebung einer Serie unvorhergesehener gerätetechnischer Probleme hat das über den Hilfskessel betriebene elektronische Teilchengrößen-analysator (APAC) bei V39 auswertbare Resultate ergeben, die auf Abbildung 5.2.29 zusammengefasst sind.

Fotometersignale (sowohl Absorption als auch Extinktion) sind auf den folgenden Abbildungen (5.2.30 bis 5.2.33) wieder für die Position II und IX gezeigt. Auch hier, wie auch schon bei V36 deutlich erkennbar

das Einsetzen von Volumen Kondensation bei Wiederaufnahme der Dampfeinspeisung.

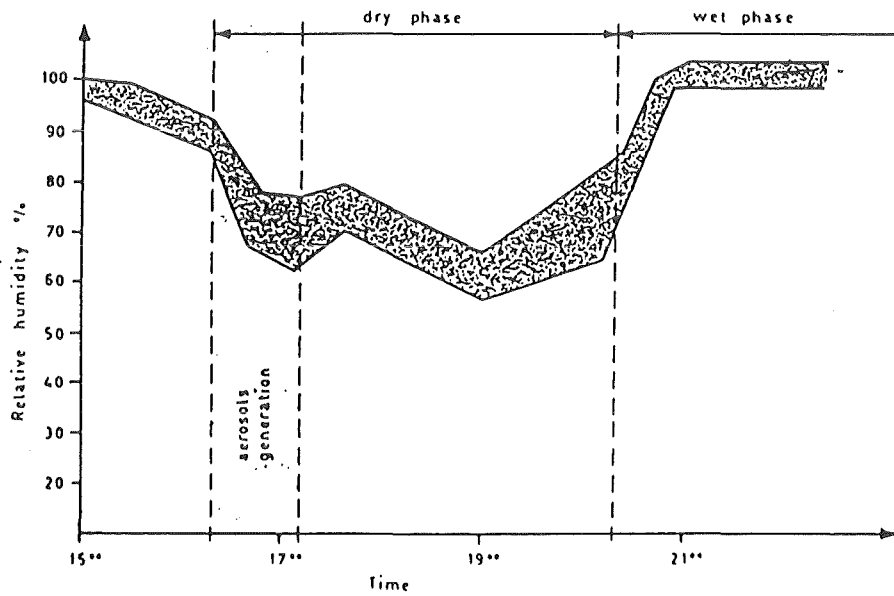


Abbildung 5.2.24.: Relative Feuchte während Versuch V39, berechnet aus direkten Messungen des Luft/Wasserdampfverhältnisses, mit geschätztem Fehlerband.

DEMONA - VERSUCH V39

Start Luftfeinspeisung: 12.06.85, 16H20

Versuchsende: 18.06.85, 08H12

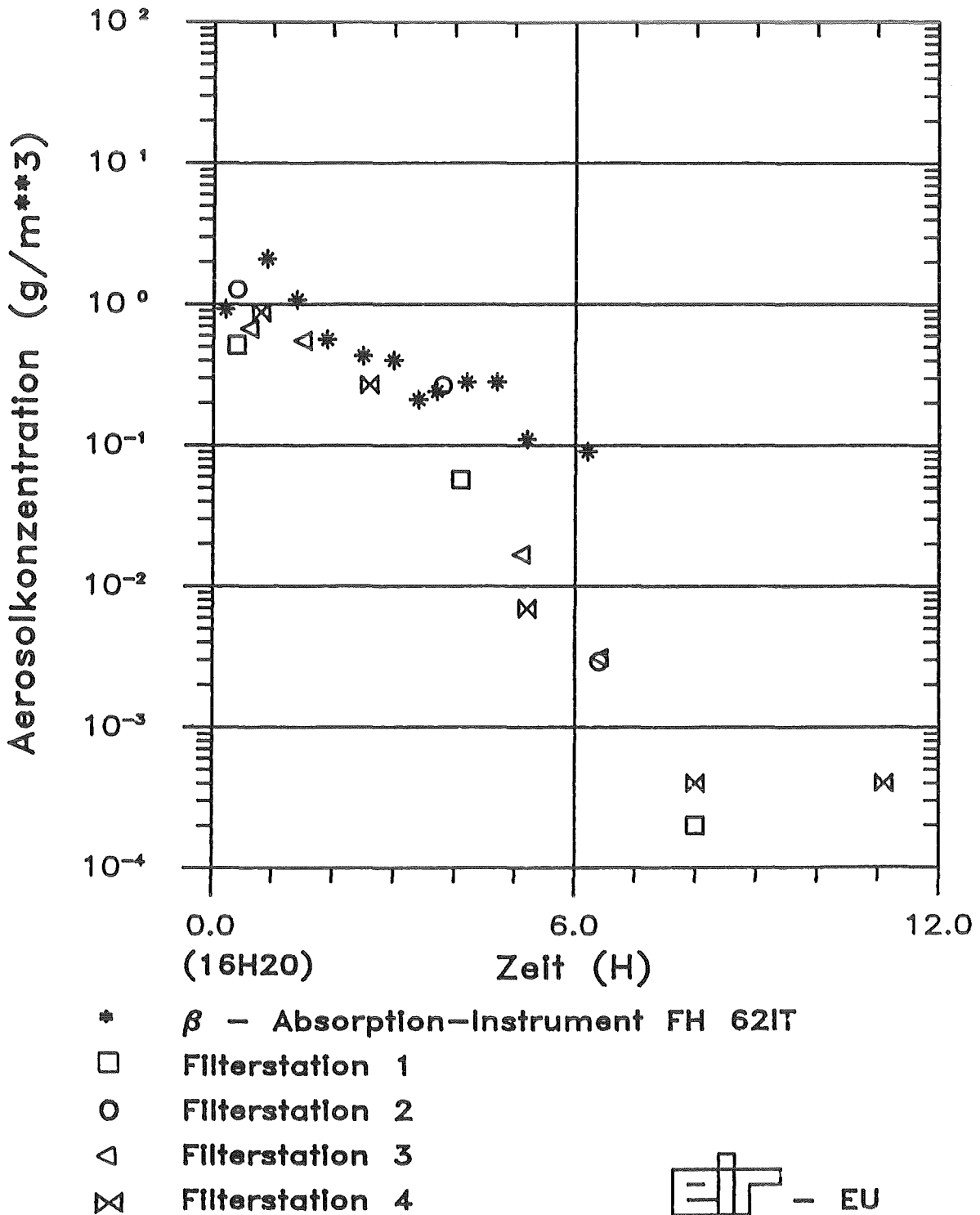


Abbildung 5.2.25.

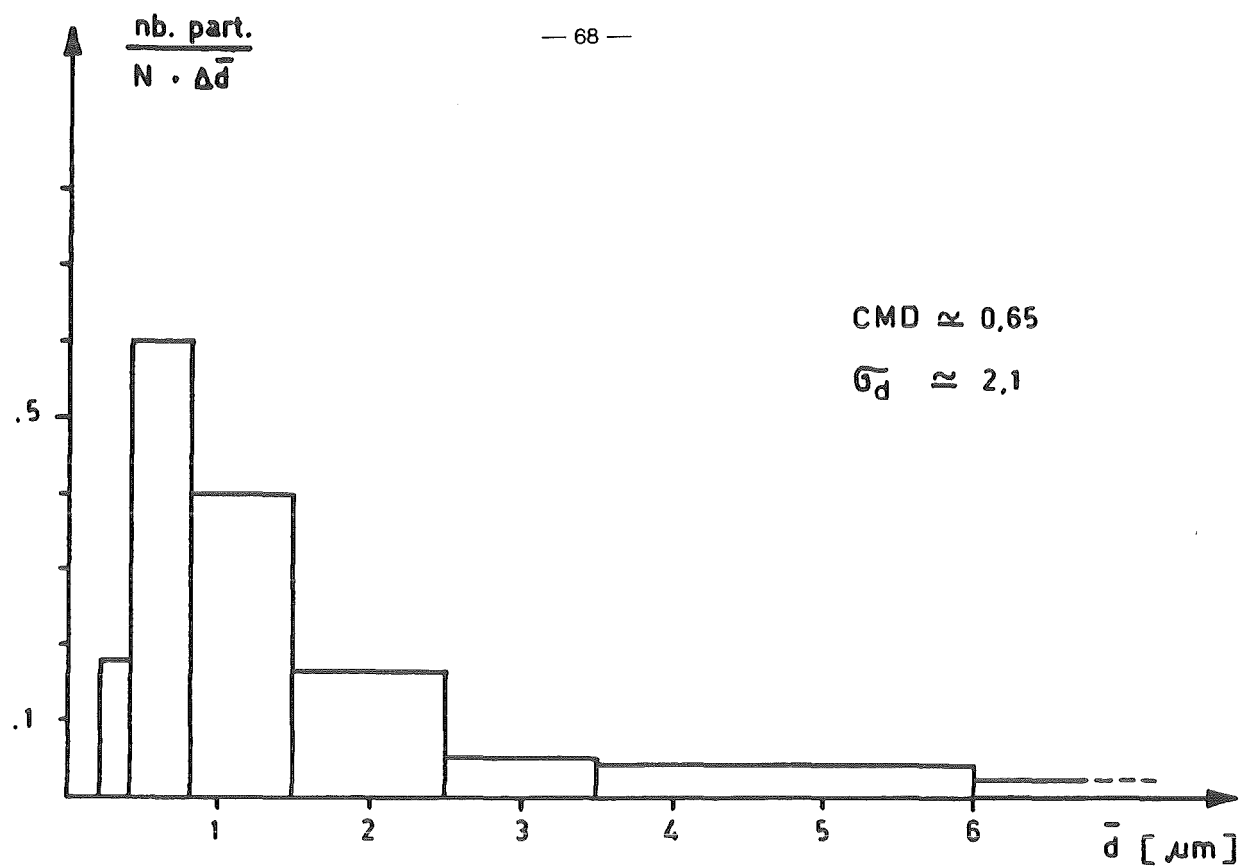


Abbildung 5.2.26.: Teilchengrößenverteilung auf Filter 3.1 um ca. 17 h 50 (12.6.85) während der "trockenen" Versuchsphase.

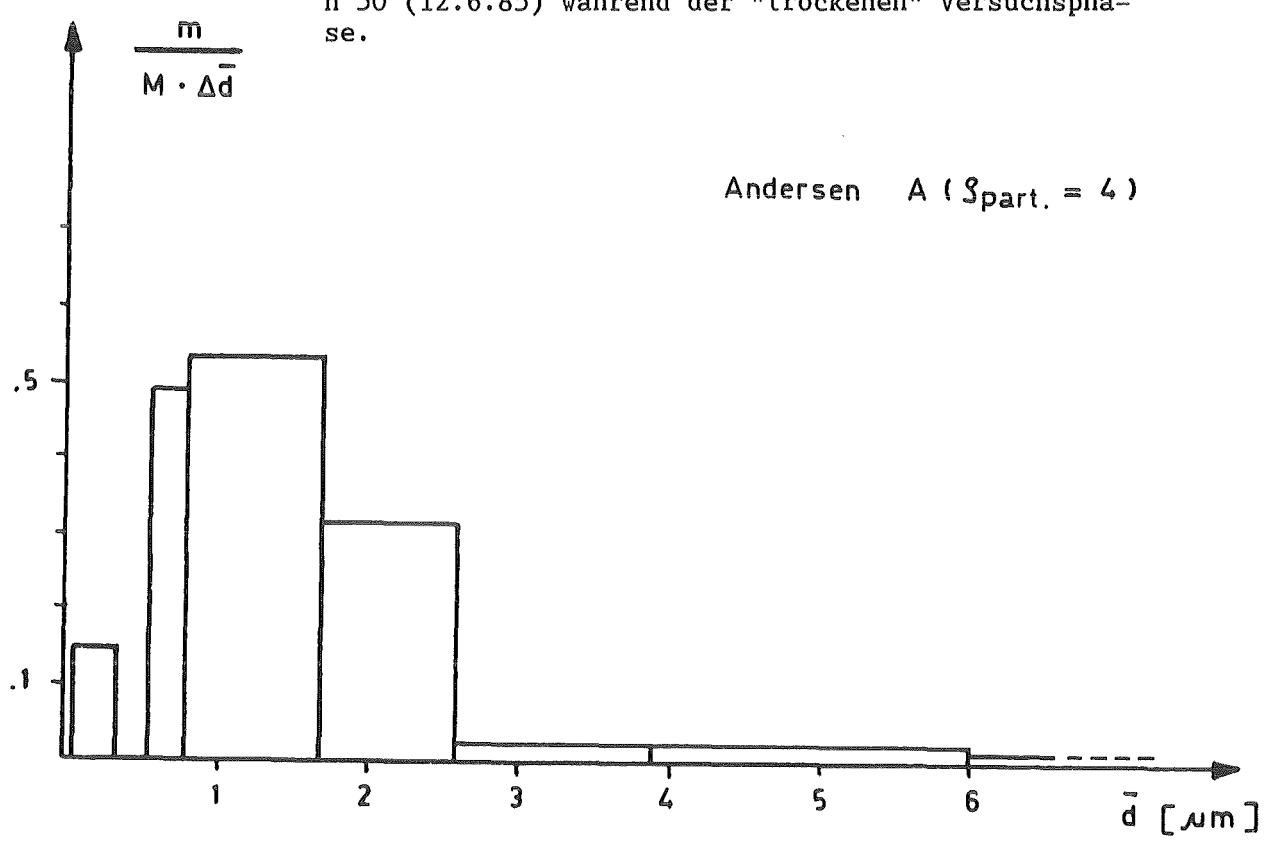


Abbildung 5.2.27.: Teilchenmassenverteilung gemessen mit Andersen-Impaktor um 20 h 08 (12.6.85) kurz vor Ende der "trockenen" Versuchsphase.

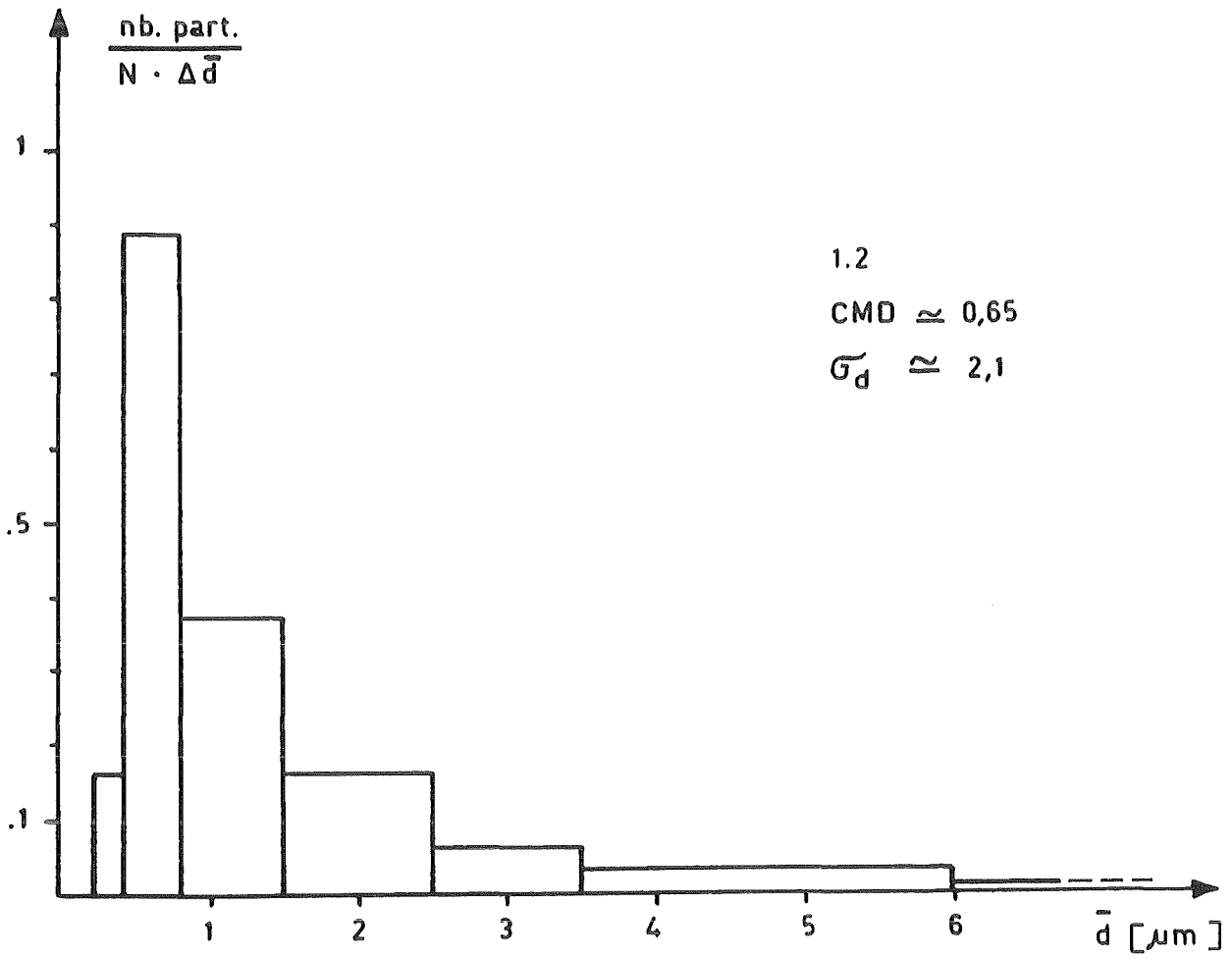


Abbildung 5.2.28.: Teilchengrößenverteilung auf Filter 1.2 um 20 h 24 (12.6.85) während der "kondensierenden" Versuchsphase.

RESULTATE DES VERSUCHS V39

Filter Station 1			Filter Station 2		
Datum	Zeit	c (mg/m <sup>3</sup> )	Datum	Zeit	c (mg/m <sup>3</sup> )
12.06.85	16:44	515.0	12.06.85	16:44	1270.0
		75* 23 1			72* 23 4
	57.0	20:06		264.0	
13.06.85	20:24	71 14 15	13.06.85	22:41	41 +SnO <sub>2</sub> 5 5 90
		00:19			.2
	08:15	.1		7 3 90	

Filter Station 3			Filter Station 4		
Datum	Zeit	c (mg/m <sup>3</sup> )	Datum	Zeit	c (mg/m <sup>3</sup> )
12.06.85	16:55	672.0	12.06.85	17:09	876.0
		37* 59 3			72* 21 7
	550.0	18:56		268.0	
	70 21 9	72 18 9			
21:28	16.7	70 21 9	21:33	6.9	8 3 89
		22:41			3.1
13.06.85	00:22	.4			
			03:25	.4	

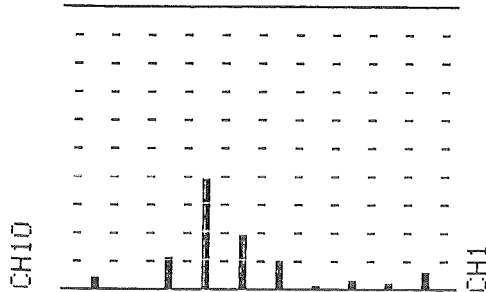
Tabelle 5.2.1.: Einzelanalyse nach Aerosolkomponenten:

\* xx = % MgO  
 YY = % Ag<sub>2</sub>  
 zz = % Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

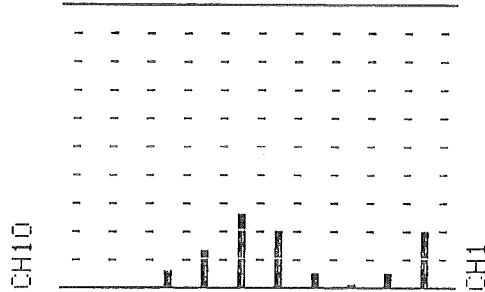
Zeitpunkt der  
Messung

Seite 33  
Zeitpunkt der  
Messung

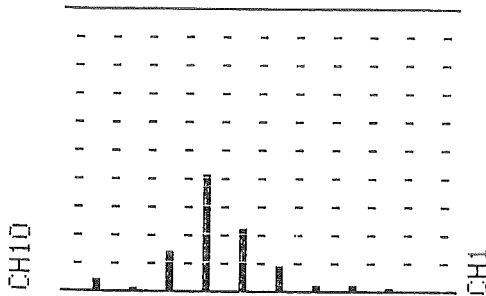
20 h 15  
(12.6.85)



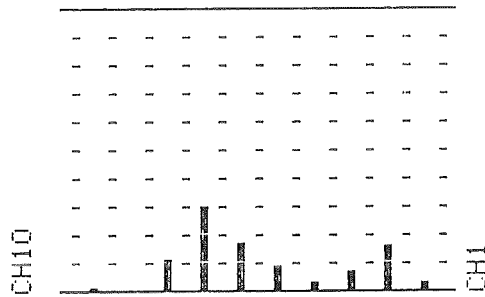
9 h 30  
(13.6.85)



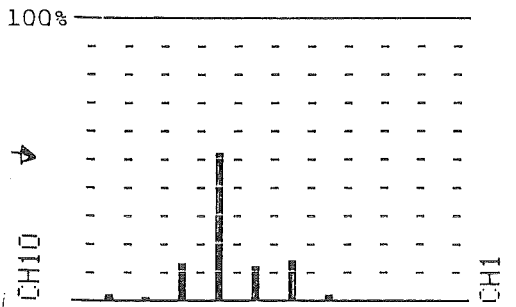
18 h 30  
(12.6.85)



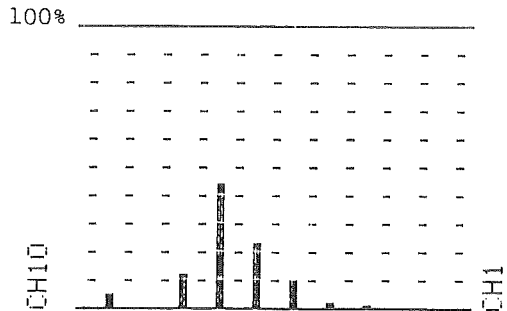
23 h 00  
(12.6.85)



17 h 20  
(12.6.85)



21 h 00  
(12.6.85)



Kanal 10

Kanal 1

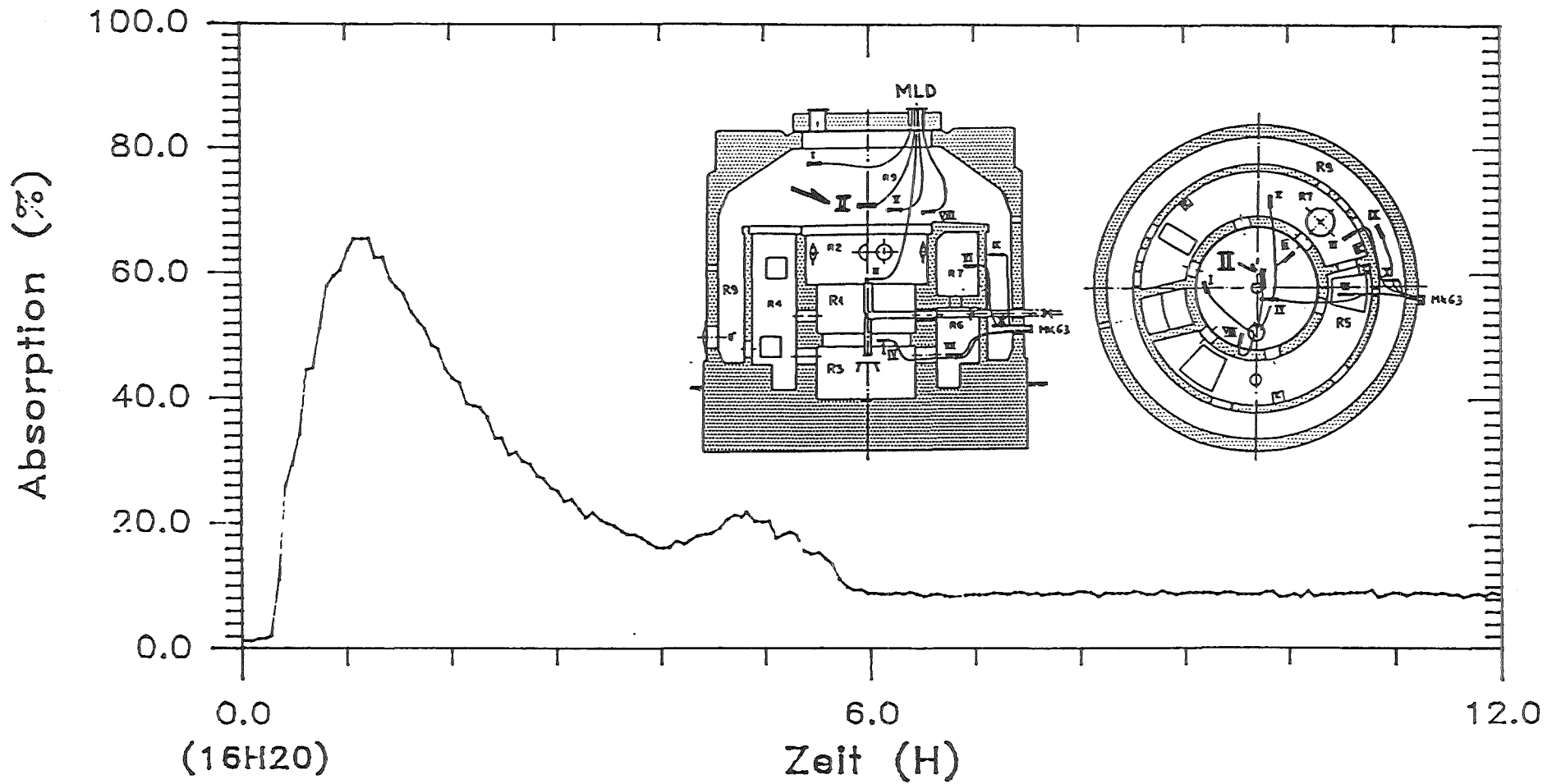
$D_{p,50}$  (μm)  
0.08  
0.15  
0.3  
0.6  
1.2  
2.3  
4.6  
9.2  
17.8  
25

$D_{p,50}$  (μm)  
0.08  
0.15  
0.3  
0.6  
1.2  
2.3  
4.6  
9.2  
17.8  
25

Abbildung 5.2.29.: Teilchenspektren, gemessen in Hilfskessel mit elektronischem Teilchengrößenanalysator APAC. Links gemessene Spektren während der "trockenen" Testphase, rechts während der nassen Testphase.

DEMONA - VERSUCH V39

Start Luftinspeisung: 12.06.85, 16H20



Fotometer Position II

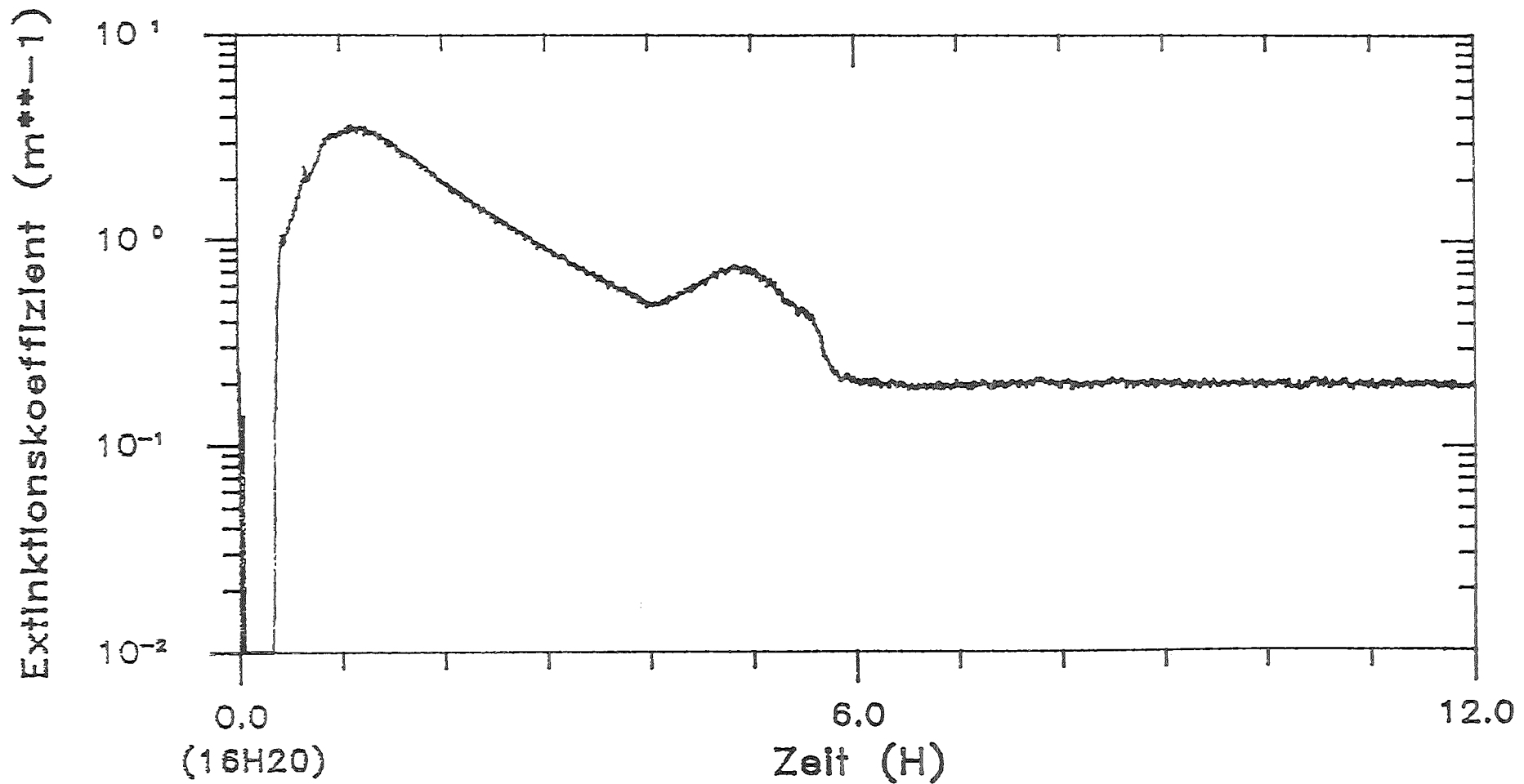


Abbildung 5.2.30.



DEMONA - VERSUCH V39

Start Luftinspeisung: 12.06.85, 16H20



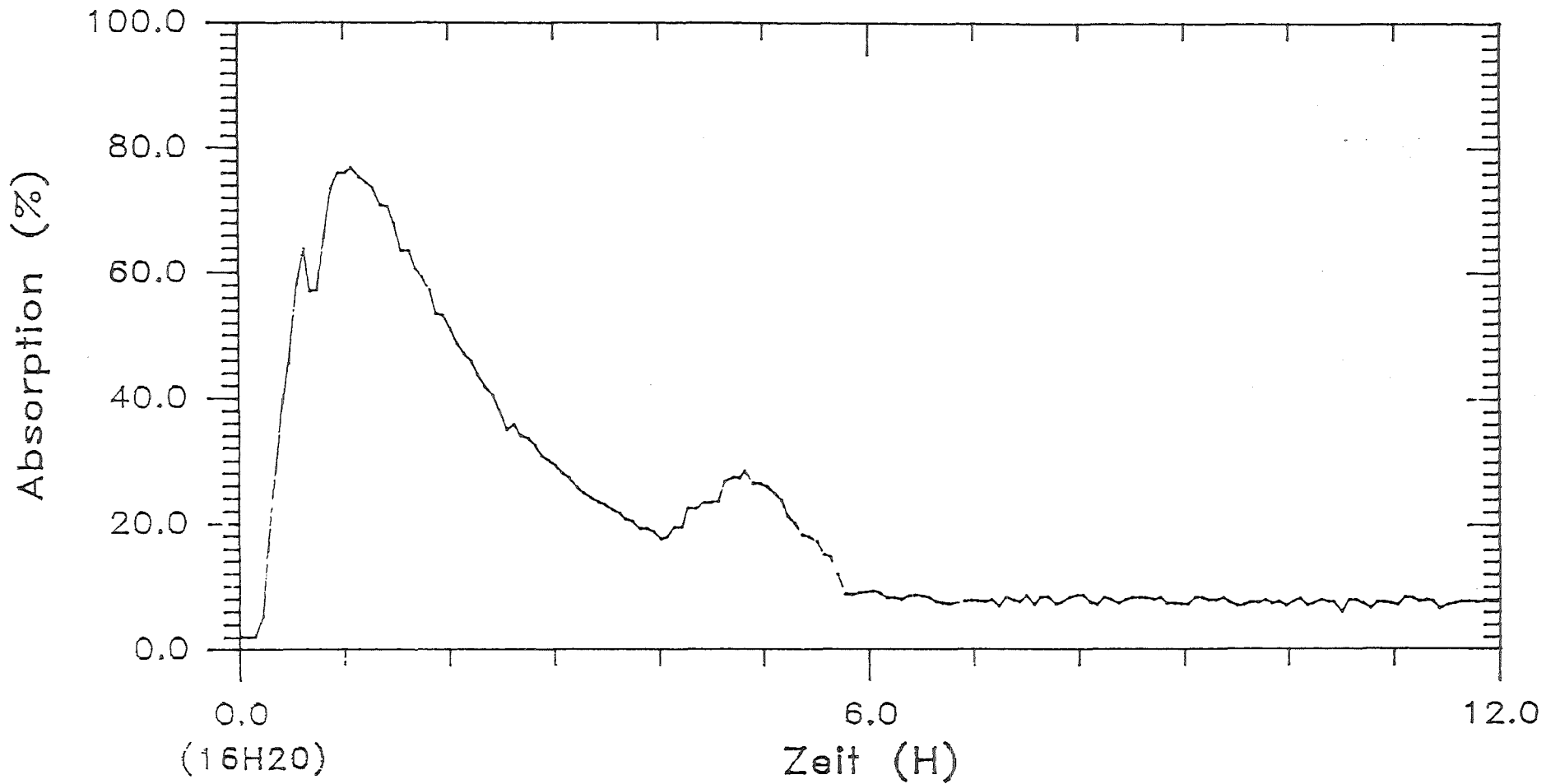
Fotometer Position II

EUR - EU

Abbildung 5.2.31.

D E M O N A - V E R S U C H V 3 9

Start Luftfeinspeisung: 12.06.85, 16H20



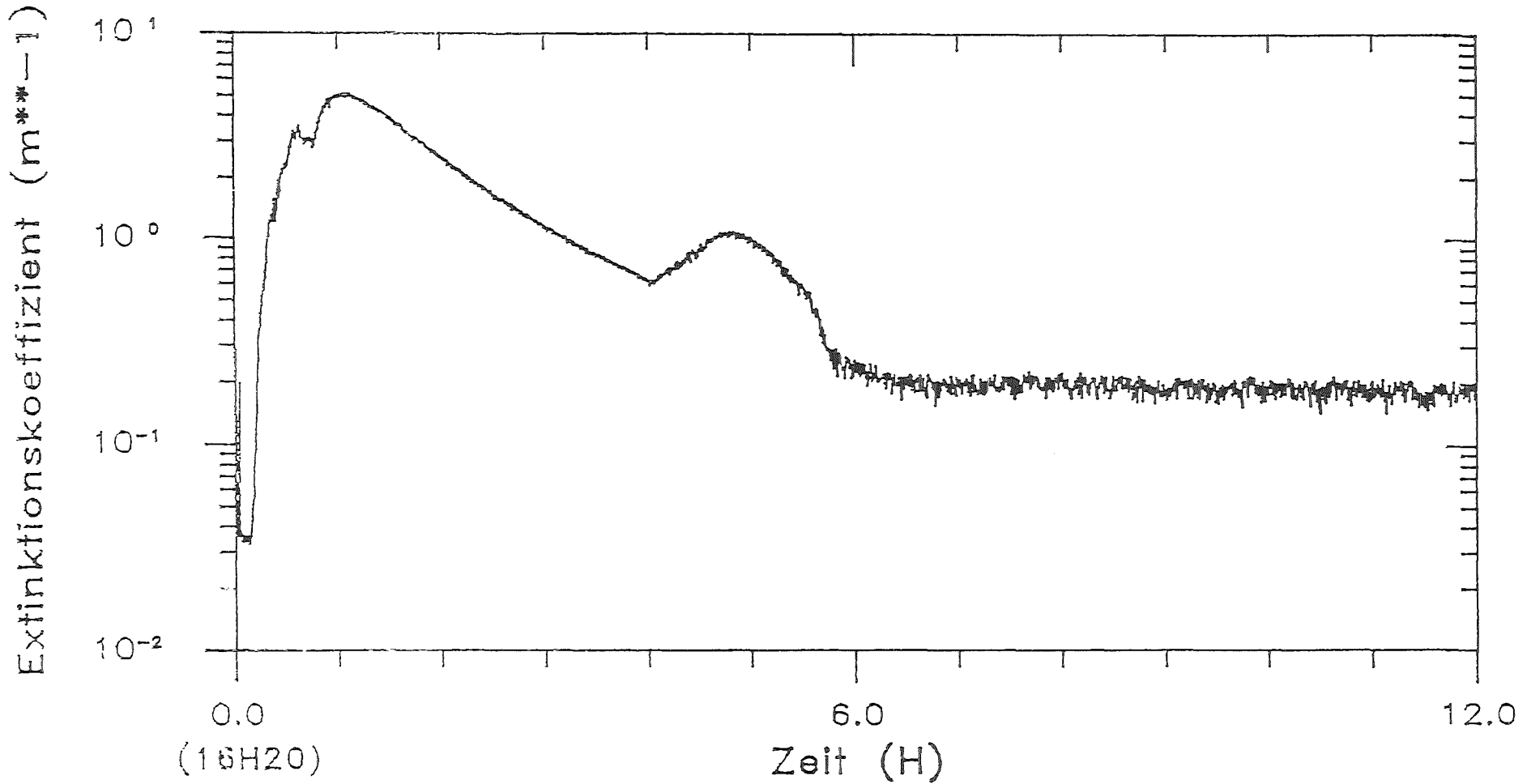
Fotometer Position IX



Abbildung 5.2.32.

DEMONA - VERSUCH V39

Start Luftinspeisung: 12.06.85, 16H20



Fotometer Position IX

EIR - EU

Abbildung 5.2.33.

### 5.2.5. Versuch V53

Bei diesem Versuch wurde erstmalig Eisenoxidaerosol aus Eisenpentacarbonyl erzeugt, und dessen Abbau im Containment in kondensierender Atmosphäre unter thermodynamischen Bedingungen analog wie V34 verfolgt. In erster Annäherung würde ein Aerosolverhalten entsprechend V34 zu erwarten sein, was eine Homologisierung im Sinne der ursprünglichen Testmatrix der mit Zinnoxidaerosol gefahrenen Versuche gestatten würde. Bedingt durch die gegenüber V34 niedrigeren Temperaturen des Transportgases bildeten sich in den ersten 1.5 bis 2 Stunden des Versuchs starke Aerosolkonzentrationsunterschiede aus, die an Hand der Fotometersignale noch detaillierter erläutert werden. Im unteren Bereich des zentralen Raumes R2 bestand während des Betriebes der Plasmabrenner und noch kurz nachher sehr dichte Aerosolwolken mit entsprechend grossen Abbauraten. Die darauf folgende Konzentrationsabnahme war etwas rascher als bei V34. Die bei V53 maximale gemessene Aerosolkonzentration war ca.  $3 \text{ g/m}^3$ . Der gemessene Aerosolabbau ist auf Abbildung 5.2.34 gezeigt.

Grössenverteilungen sind auf Abbildungen 5.2.35, 5.2.36 und 5.2.37 gezeigt. Abbildung 5.2.35 enthält die aus dem Andersen-Impaktor gewonnene Massenverteilungskurve, die beiden anderen Abbildungen Teilchengrössenverteilungen durch Auswertung von Filterproben zu zwei verschiedenen Zeitpunkten. Ueber dem Hilfskessel mit dem APAC gemessene Teilchenspektren sind auf Abbildung 5.2.38 zusammengefasst.

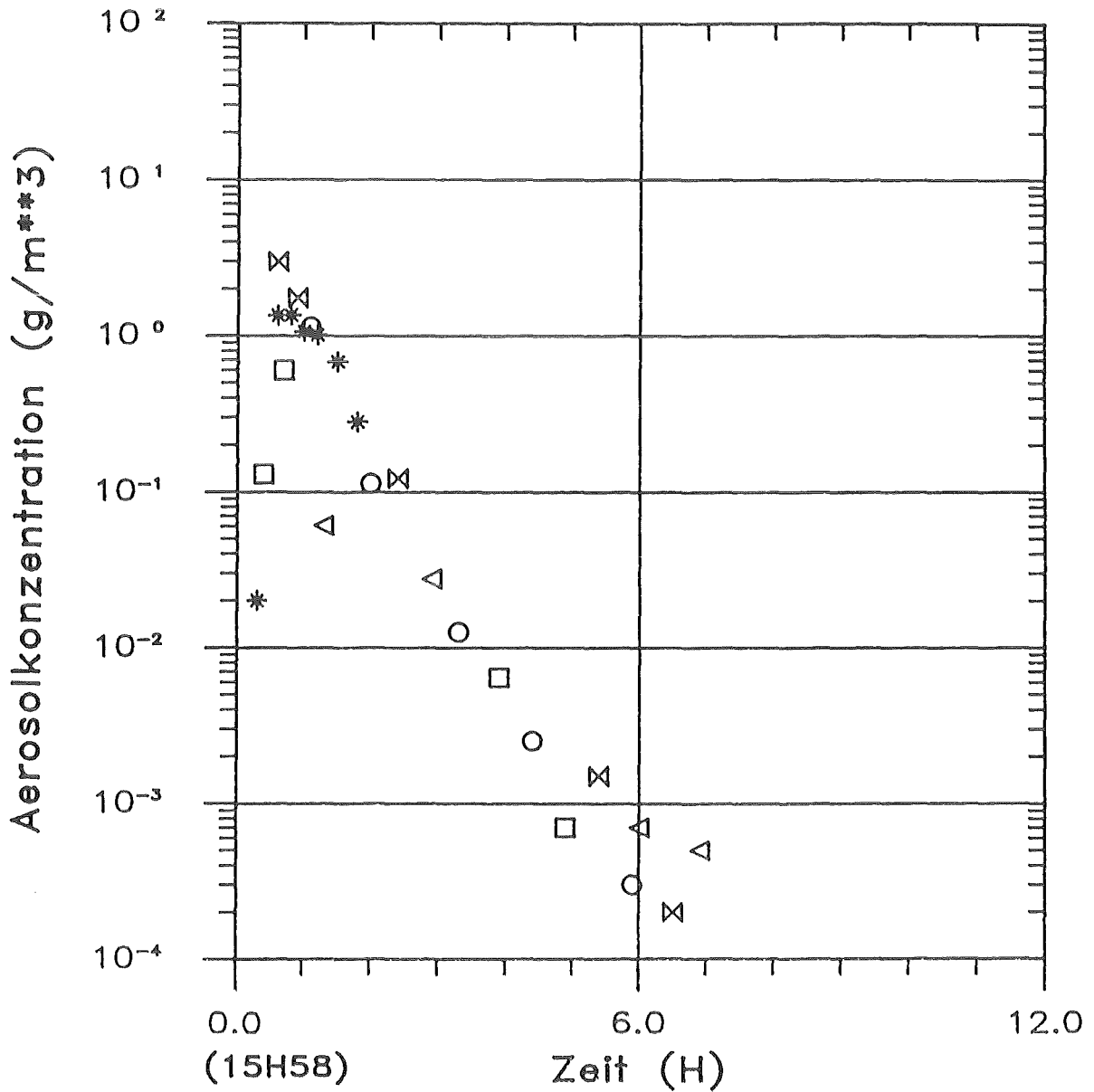
Die während der Aerosoleinspeisephase und noch ca. 15 bis 20 Minuten darüber hinaus mit den Fotometern beobachteten Inhomogenitäten sind durch Vergleich der Signale der Fotometer auf Position IV (in unmittelbarer Nachbarschaft und unterhalb des Aerosoleinspeiserohres) und auf Position V (im unteren Bereich des oberen Kuppelraumes) dargestellt, siehe Abbildung 5.2.39 bis 5.2.42. Während auf Position IV ein Absorptionssignal von ca. 90 % unmittelbar nach Betriebsaufnahme des ersten Aerosolgenerators registriert wird und den erwarteten weiteren Verlauf während und nach der Aerosoleinspeisephase zeigt, reagiert Fotometer V erst ca. 35 Minuten später, um dann vergleichsweise langsam auf einen Wert von ca. 40 % anzusteigen, der erst ca. 10 Minuten vor Abstellen der Generatoren erreicht wird und konstant bleibt. Die nachher einsetzende Volumen Kondensation gibt ein höheres Absorptionssignal als die Aerosolerzeugung. Nach ca. 75 - 90 Minuten gleichen sich die Absorptionssignale der Fotometer weitgehend an und auch später sind keine Hinweise auf inhomogene Aerosolverteilung mehr erkennbar.

REM-Aufnahmen, jeweils in zwei verschiedenen Vergrösserungen sind zu drei verschiedenen Zeitpunkten auf den Abbildungen 5.2.43, 5.2.44 und 5.2.45 gezeigt. Auf Abbildung 5.2.43 gezeigte Aerosole wurden während der Aerosolerzeugung aufgenommen. Erkennbar sind ausgedehnte kettenförmige Strukturen, die aus Primärpartikel mit Durchmesser  $0.1 \mu$  aufgebaut sind. Spätere Aufnahmen (Abbildung 5.2.43 und 5.2.44) zeigen Agglomerate, wie sie von früheren Versuchen her bekannt sind, auch wenn ein höherer Feinanteil beobachtet werden kann und die Agglomerate stärker von einer kugelförmigen Gestalt abweichen als z.B. bei Versuch V34.

DEMONA - VERSUCH V53

Start Luftfeinspeisung: 27.11.85, 15H58

Versuchsende: 03.12.85, 08H58



- \* β - Absorption-Instrument FH 62IT
- Filterstation 1
- Filterstation 2
- ▷ Filterstation 3
- ⊗ Filterstation 4



Abbildung 5.2,34.

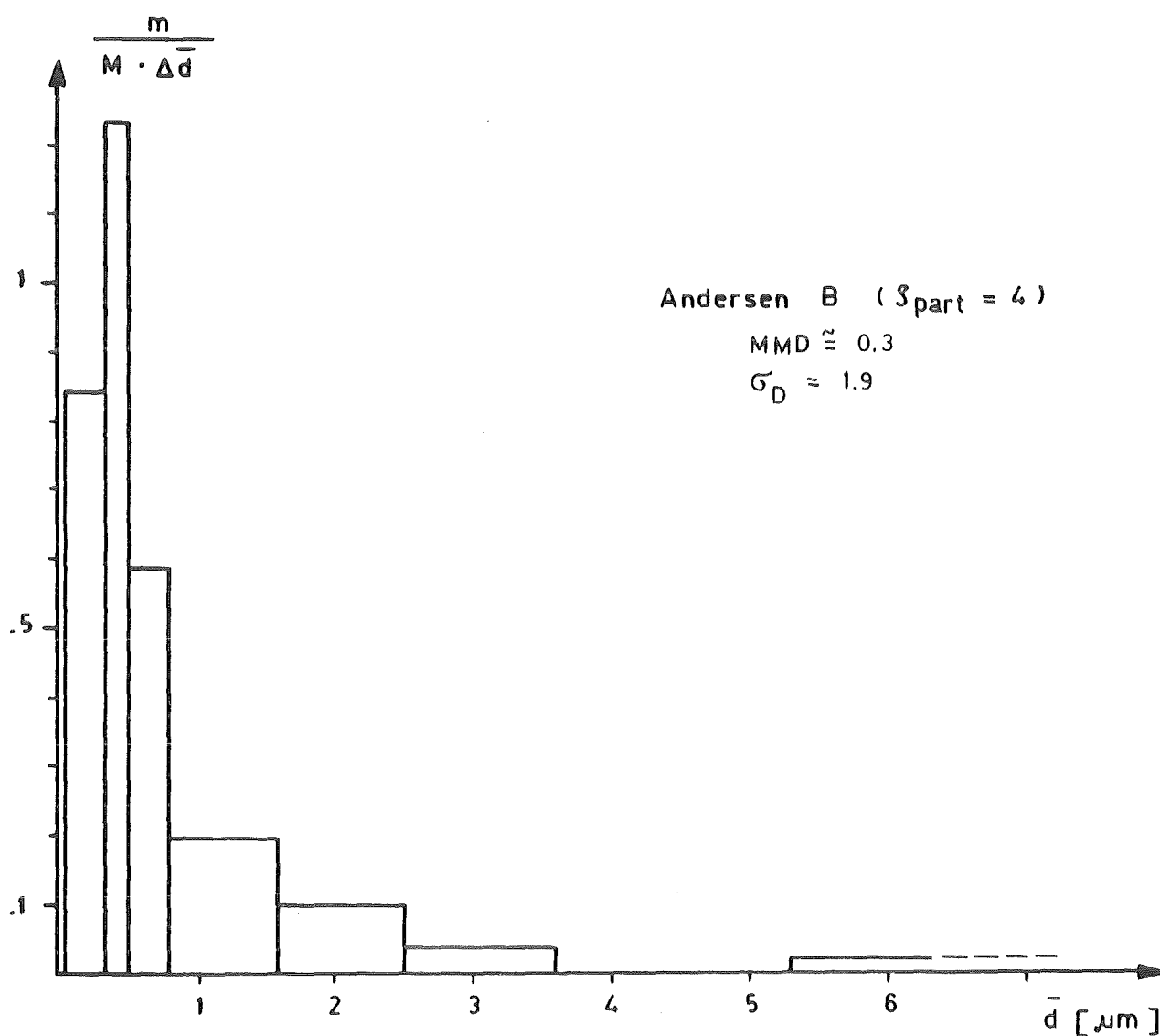


Abbildung 5.2.35.: Mit Andersen-Impaktor gemessene Teilchenmassenverteilung um 18 h 50 (27.11.85).

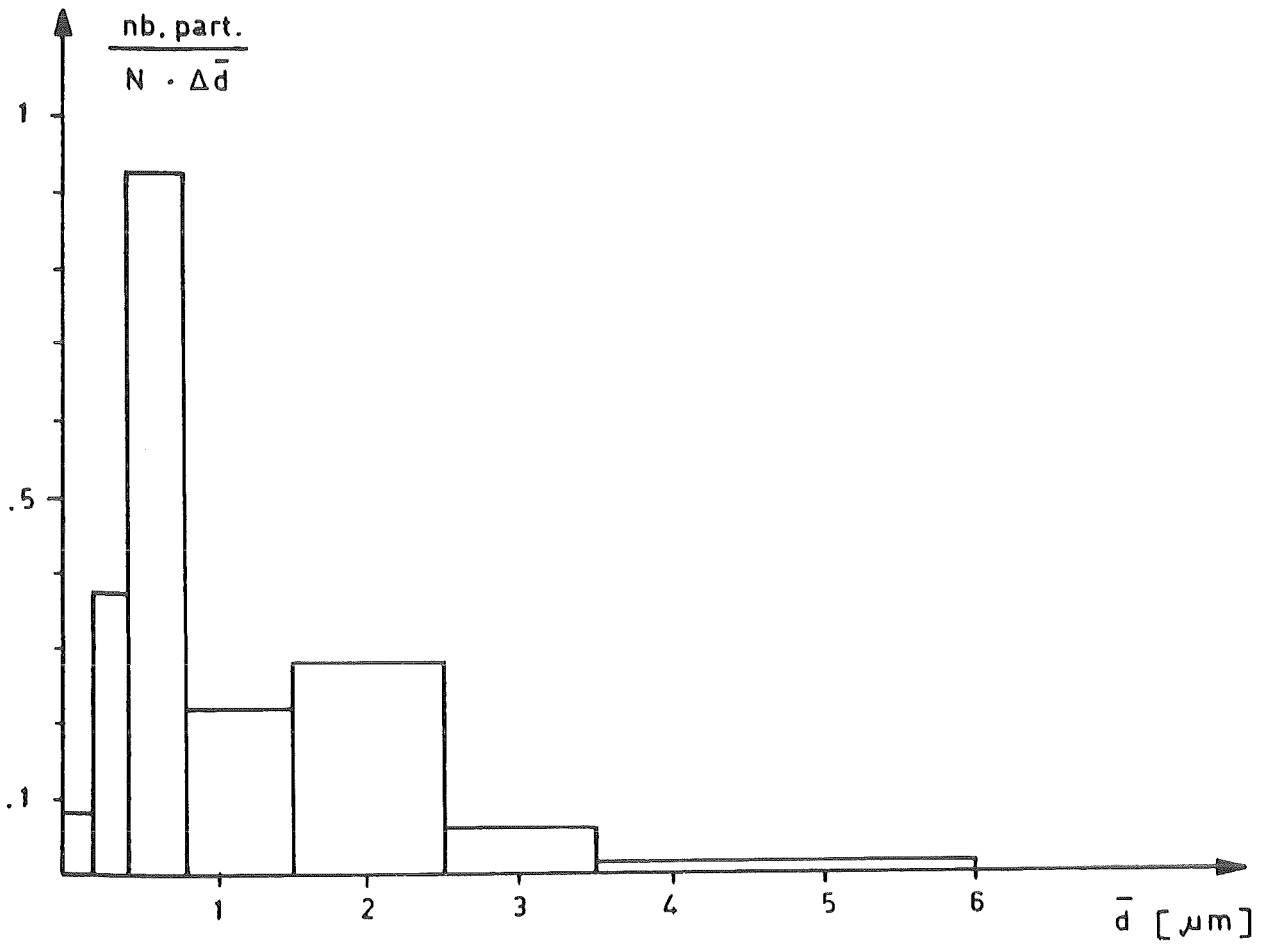


Abbildung 5.2.36.: Grössenverteilung auf Filter 1.3 um 19 h 52 (27.11.85). Da Verteilung bimodalen Charakter hat, wurde kein CMD bzw D bestimmt.

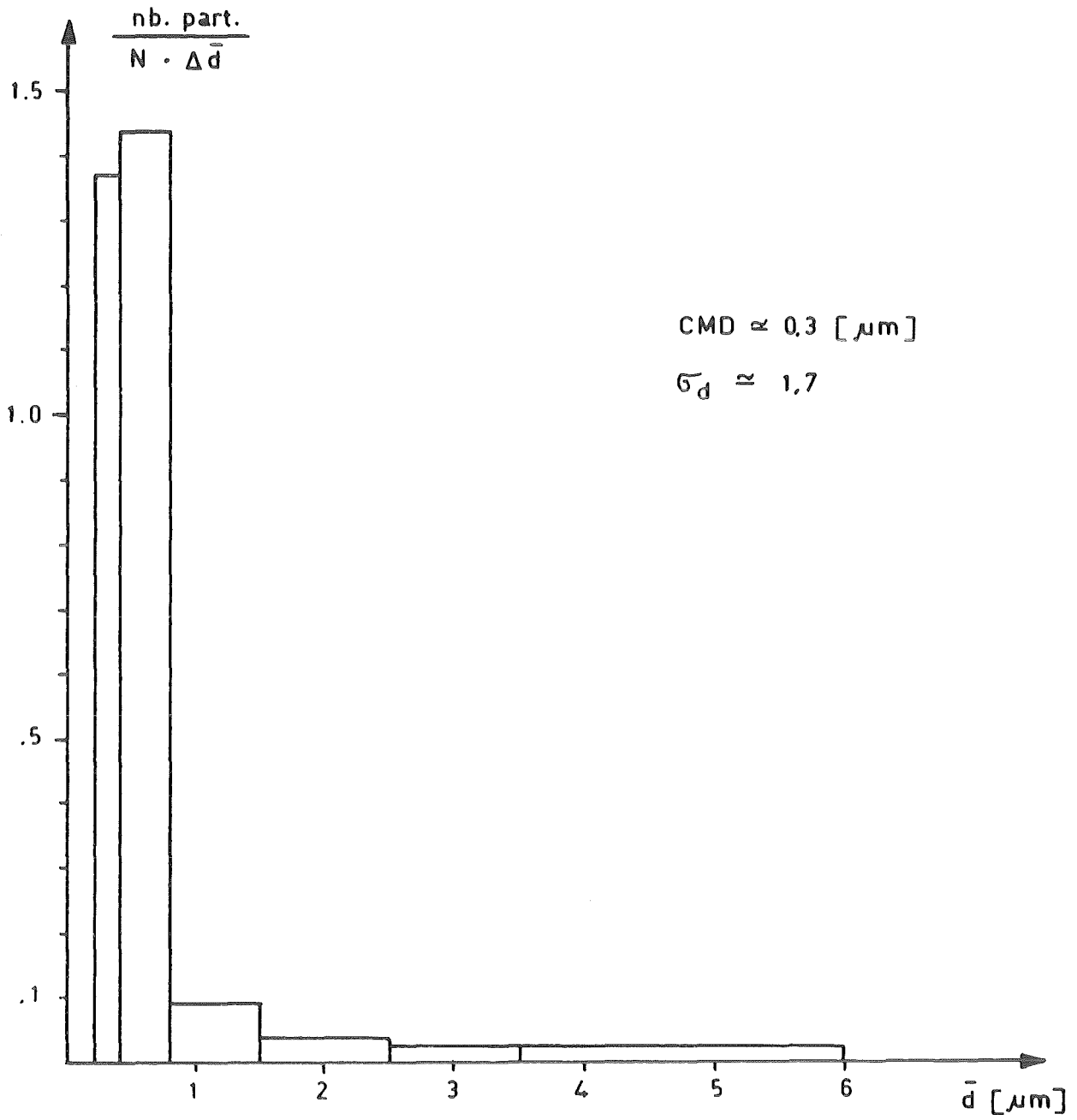


Abbildung 5.2.37.: Grössenverteilung auf Filter 2.5, um 21 h 50 (27.11.85).



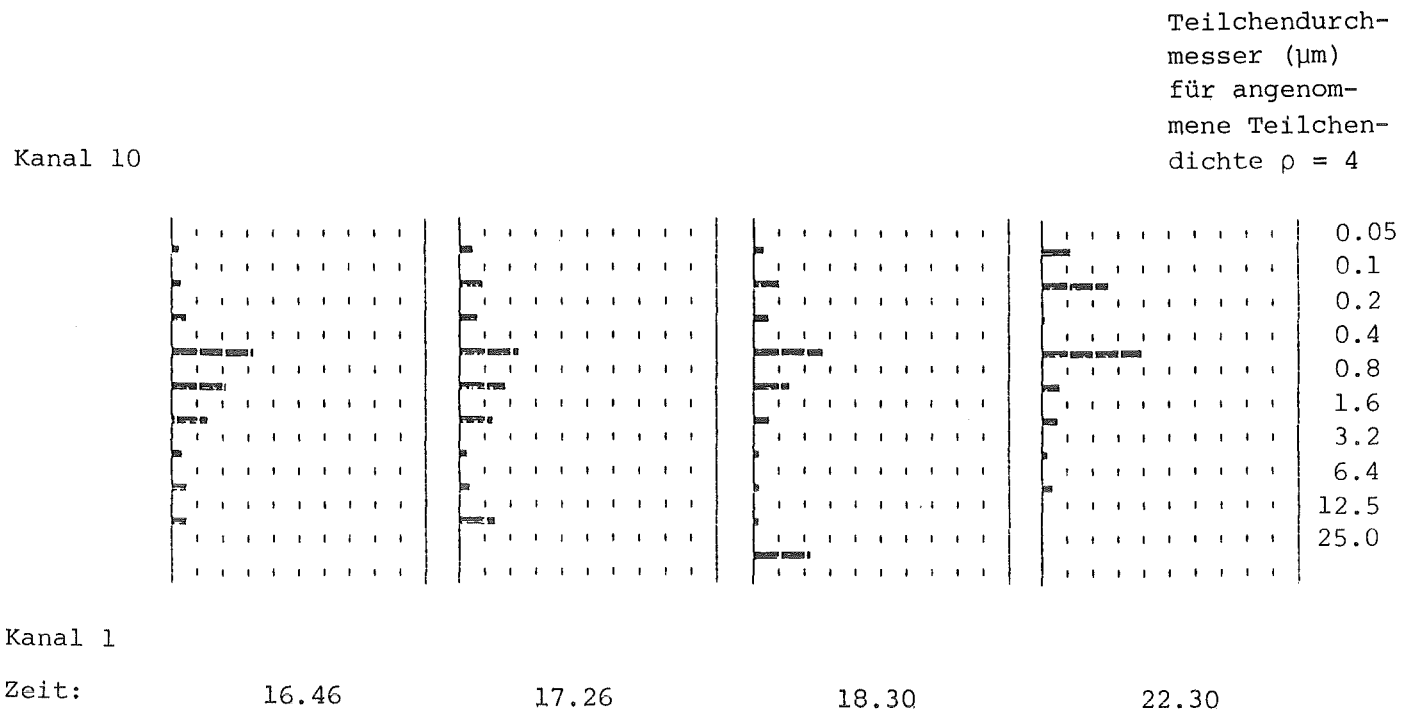
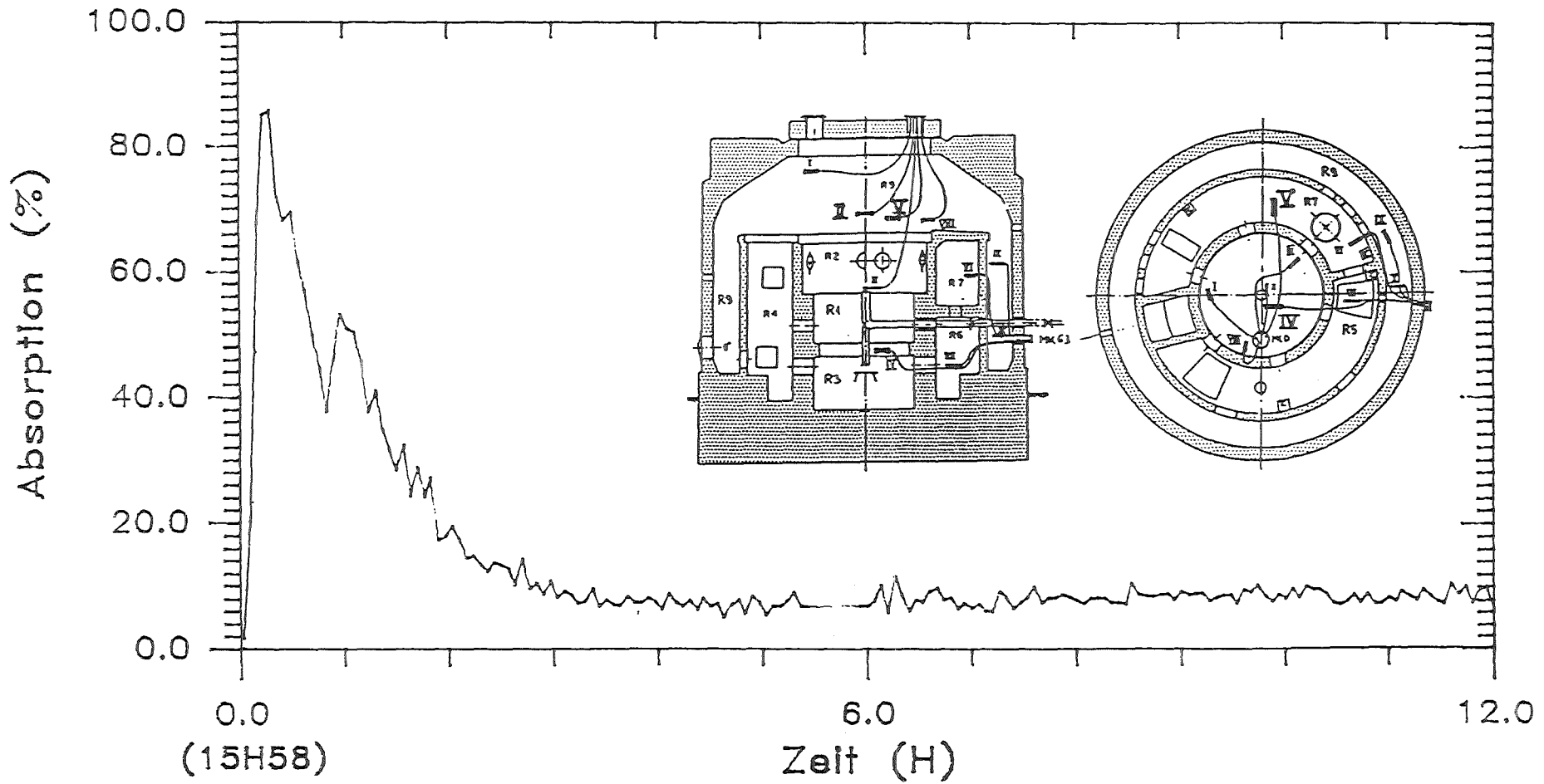


Abbildung 5.2.38.: Teilchengrößenverteilung für vier Zeitpunkte mit APAC im Hilfskessel gemessen.

# DEMONA - VERSUCH V53

Start Luftinspelsung: 27.11.85, 15H58



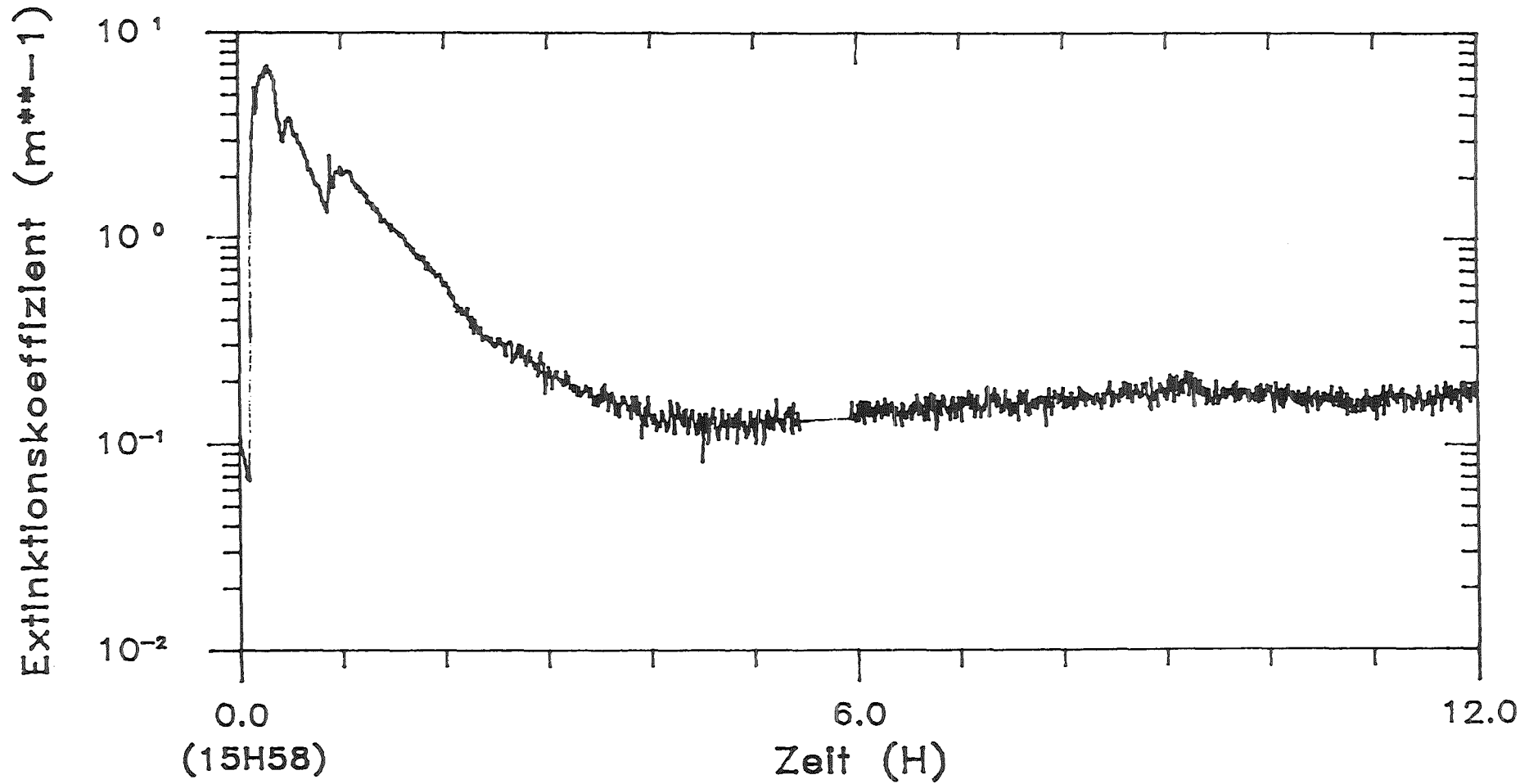
Fotometer Position IV

EIR - EU

Abbildung 5.2.39.

DEMONA - VERSUCH V53

Start Luftinspelsung: 27.11.85, 15H58



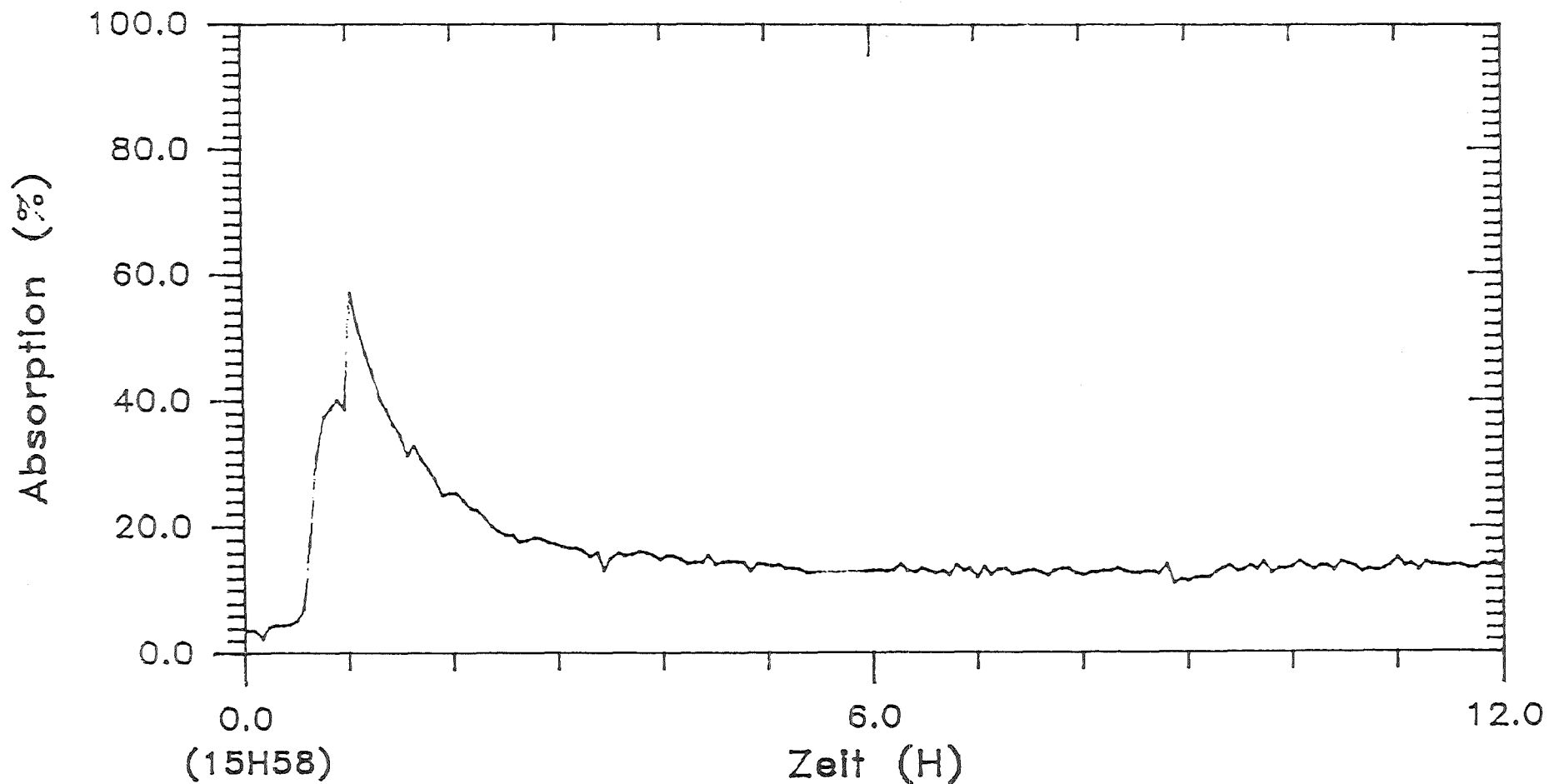
Fotometer Position IV



Abbildung 5.2.40.

DEMONA - VERSUCH V53

Start Luftinspeisung: 27.11.85, 15H58



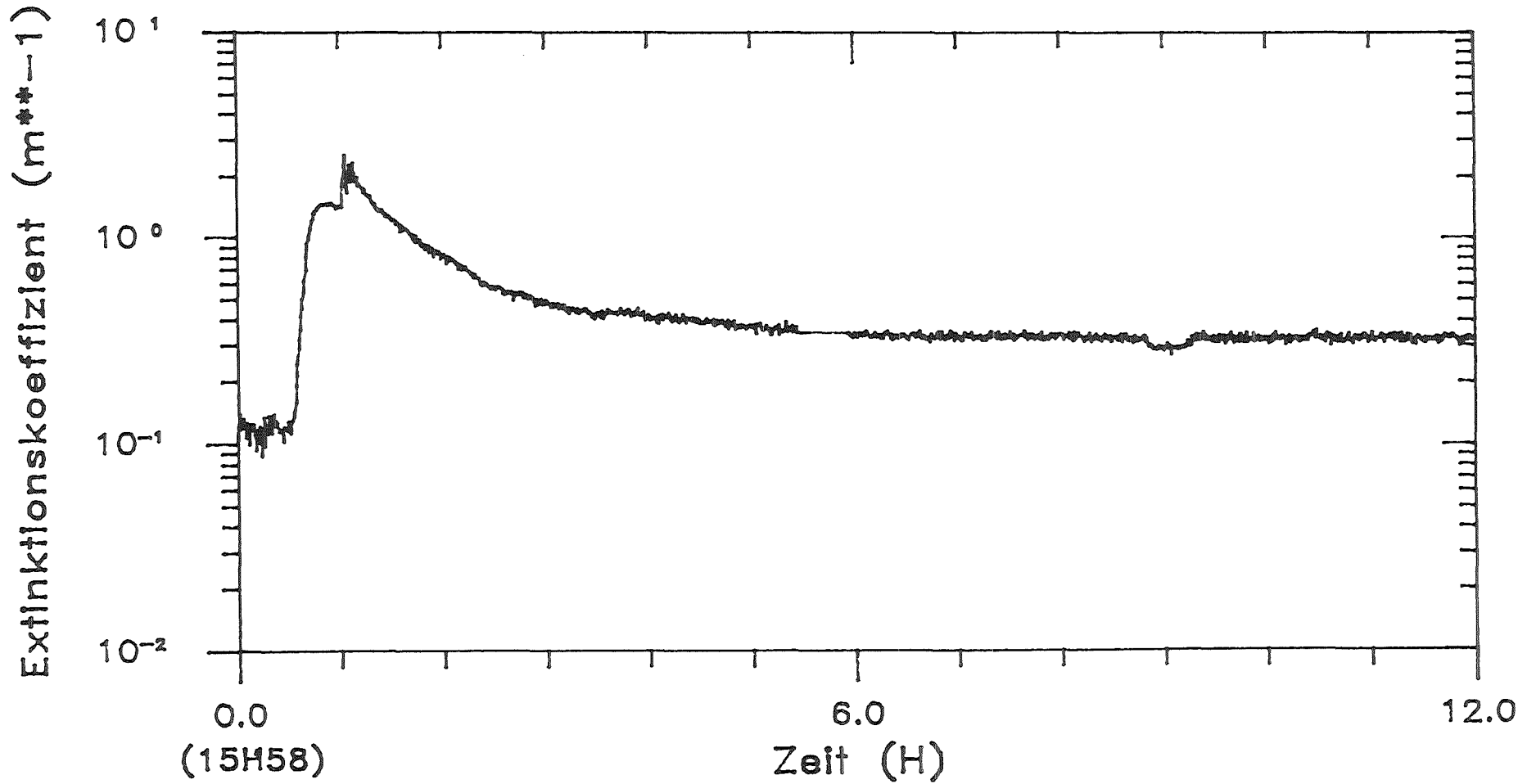
Fotometer Position V



Abbildung 5.2.41.

DEMONA - VERSUCH V53

Start Luftinspeisung: 27.11.85, 15H58



Fotometer Position V



Abbildung 5.2.42

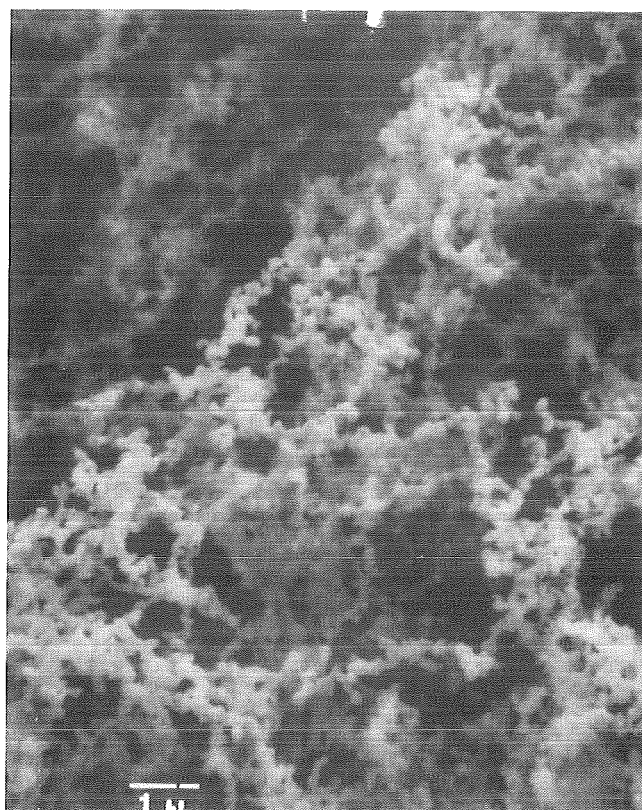
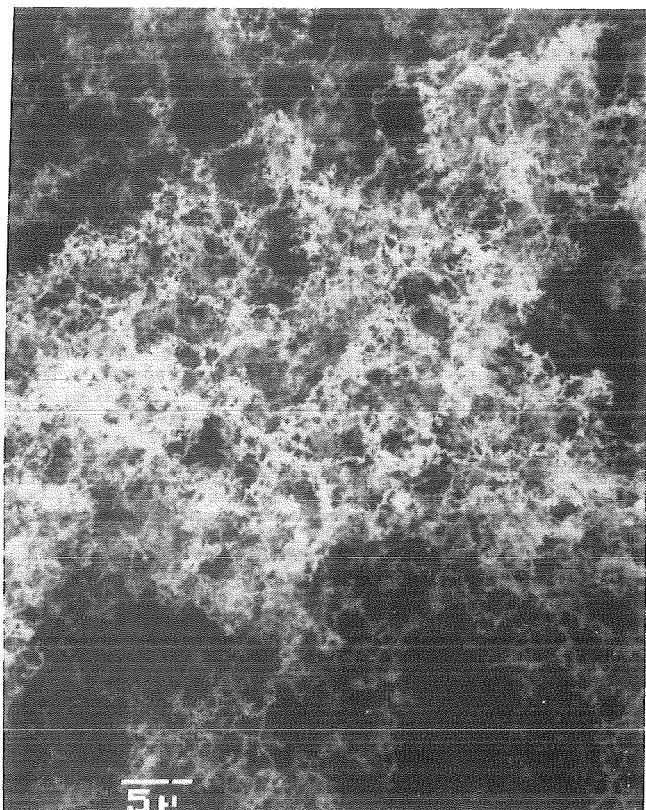


Abbildung 5.2.43.: Filter 3.1, beladen am 27.11.85, um 16 h 27, während der Aerosolerzeugung.

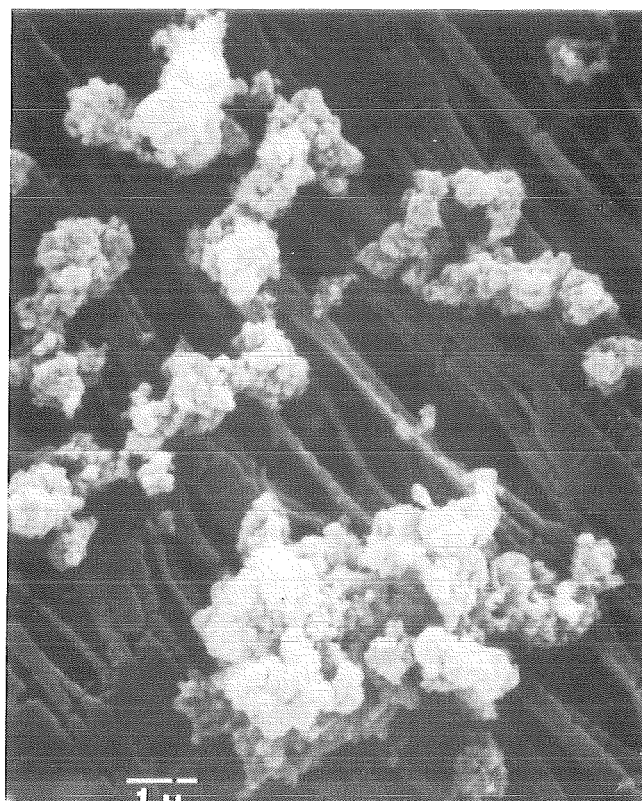
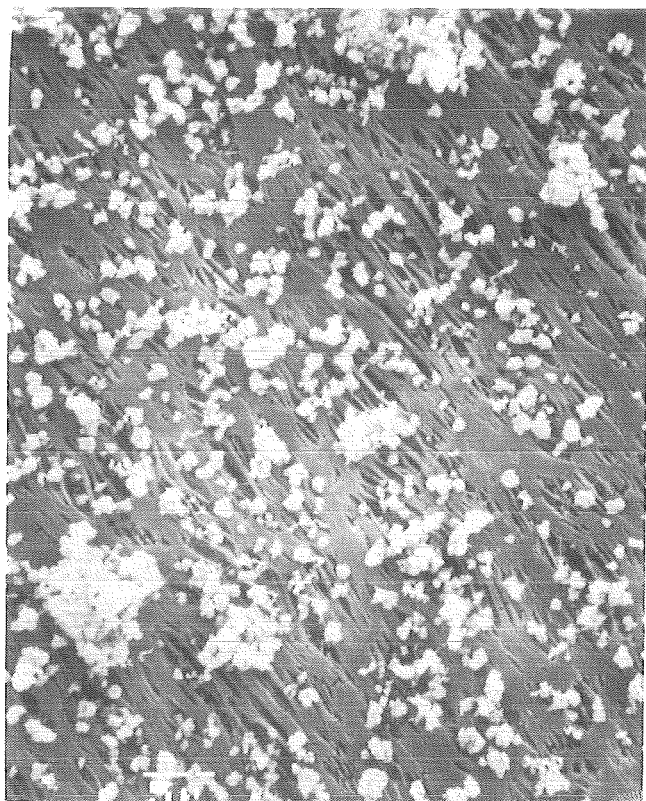


Abbildung 5.2.44.: Filter 1.3., beladen am 27.11.85, um 19 h 52.

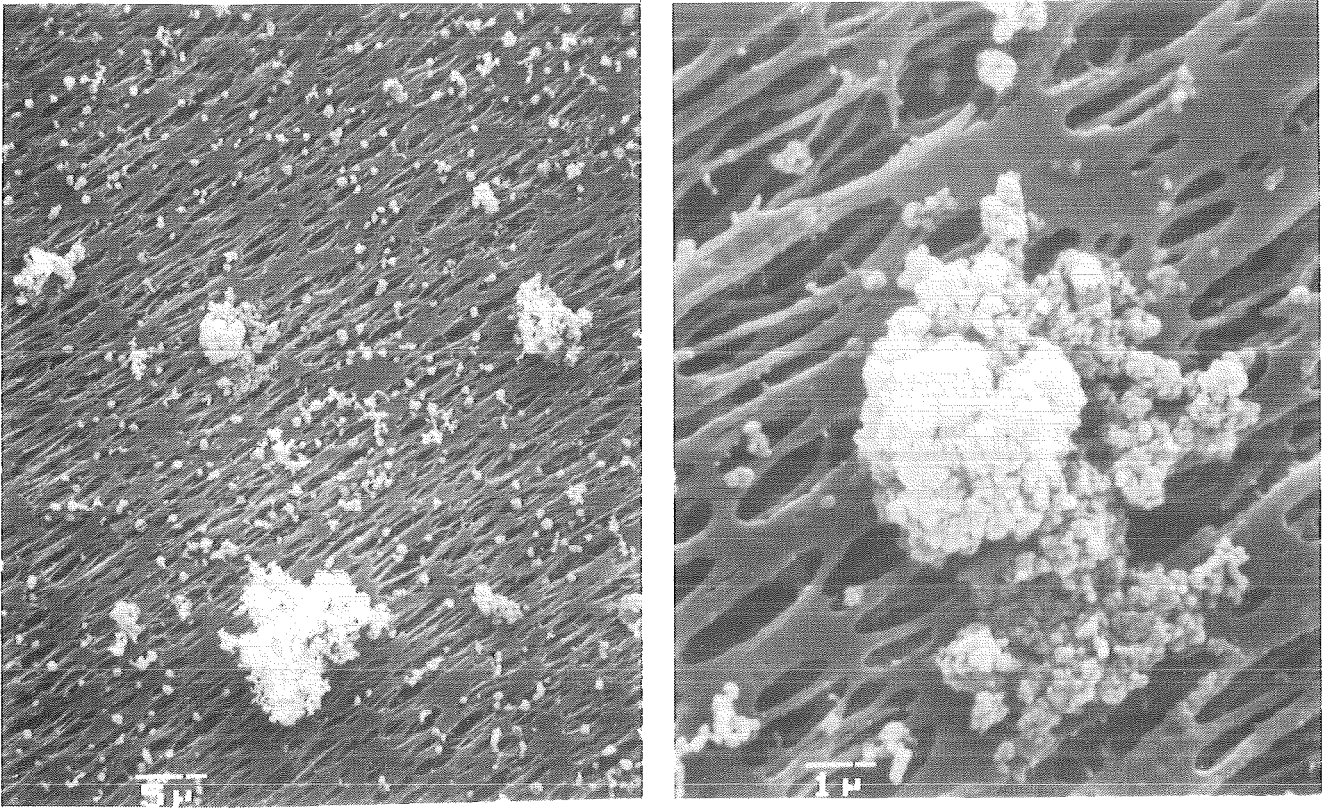


Abbildung 5.2.45.: Filter 2.5, beladen am 27.11.85, um 21 h 50.

### 5.3. Sonderinstrumentierung

Von KfK/LAF 1 wurden die Generatorfotometer (nur Versuch B4), das Laserfotometer und die Tröpfchenkalorimeter betrieben.

Die Generatorfotometer, die den Ausstoß der Aerosolgeneratoren einzeln überwachen, wurden nach dem Versuch B4 außer Betrieb genommen, da es sich zeigte, daß der prinzipiell zwar mögliche Regelkreis dennoch deshalb nicht funktionierte, weil zwei Schritte mündlicher Kommunikation zwischen Bedienungsmannschaften zwischengeschaltet waren.

Das Laserfotometer konnte in allen Naßversuchen nur mit der 2m Weglänge betrieben werden, funktionierte ansonsten störungsfrei.

Beim Betrieb der Tröpfchenkalorimeter traten beim Versuch B4 gehäuft Probleme auf. Zuerst fiel die Datenerfassung aus, wie sich anschließend zeigte durch mechanischen Bruch von Leitern auf gedruckten Schaltungen. Von diesem Versuch wurden dann Handprotokolle der wichtigsten Kalorimetermeßdaten geführt. Das Problem wurde anschließend durch den Einsatz eines neuen Prozessors beseitigt. Zweitens ergaben sich massive Probleme mit Aerosolablagerungen im Innern der Kalorimeter. Die Kalorimeter benötigen einen Probevolumenstrom von bis zu einem Liter pro Sekunde. Der naheliegende Gedanke, die Probe durch Abblasen ins Freie durch die Kalorimeter zu fördern, war anfänglich verworfen worden, um nicht eine zu hohe Leckage in Kauf nehmen zu müssen. Statt dessen war ein geschlossener Kreis realisiert worden, der durch eine Turbine angetrieben wurde. Die Turbine ihrerseits wurde von einem zweiten Turbinenkreis mit Preßluft getrieben. Die Flußrichtung dieser Anordnung war nur einseitig. Das hatte zur Folge, daß zu jeder Zeit das volle Probevolumen durch das Kalorimeter und die Arbeitsstufe des Turbinensatzes strömte. Während und kurz nach der Aerosol erzeugungsphase kam es dann zu sehr starken Aerosolablagerungen in den Kalorimetern und insbesondere in den Turbinen, die beim Versuch B4, bei dem die Aerosolkonzentration sehr hoch war, zu einem Blockieren der Turbinen in beiden Kalorimetern führten. Das Kalorimeter 1 ließ sich noch teilweise weiterbetreiben, während das Kalorimeter 2 im Raum R6 ausgefallen blieb.

Eine Reparatur der Turbinen erwies sich als nicht lohnend, außerdem wäre dadurch das Problem nicht gelöst worden. Daher wurden ab Versuch B5 die Turbinen entfernt, beide Kalorimeter mit einer Abblaseleitung ins Freie versehen, und die dadurch verursachte Leckage von maximal 1%/h in Kauf



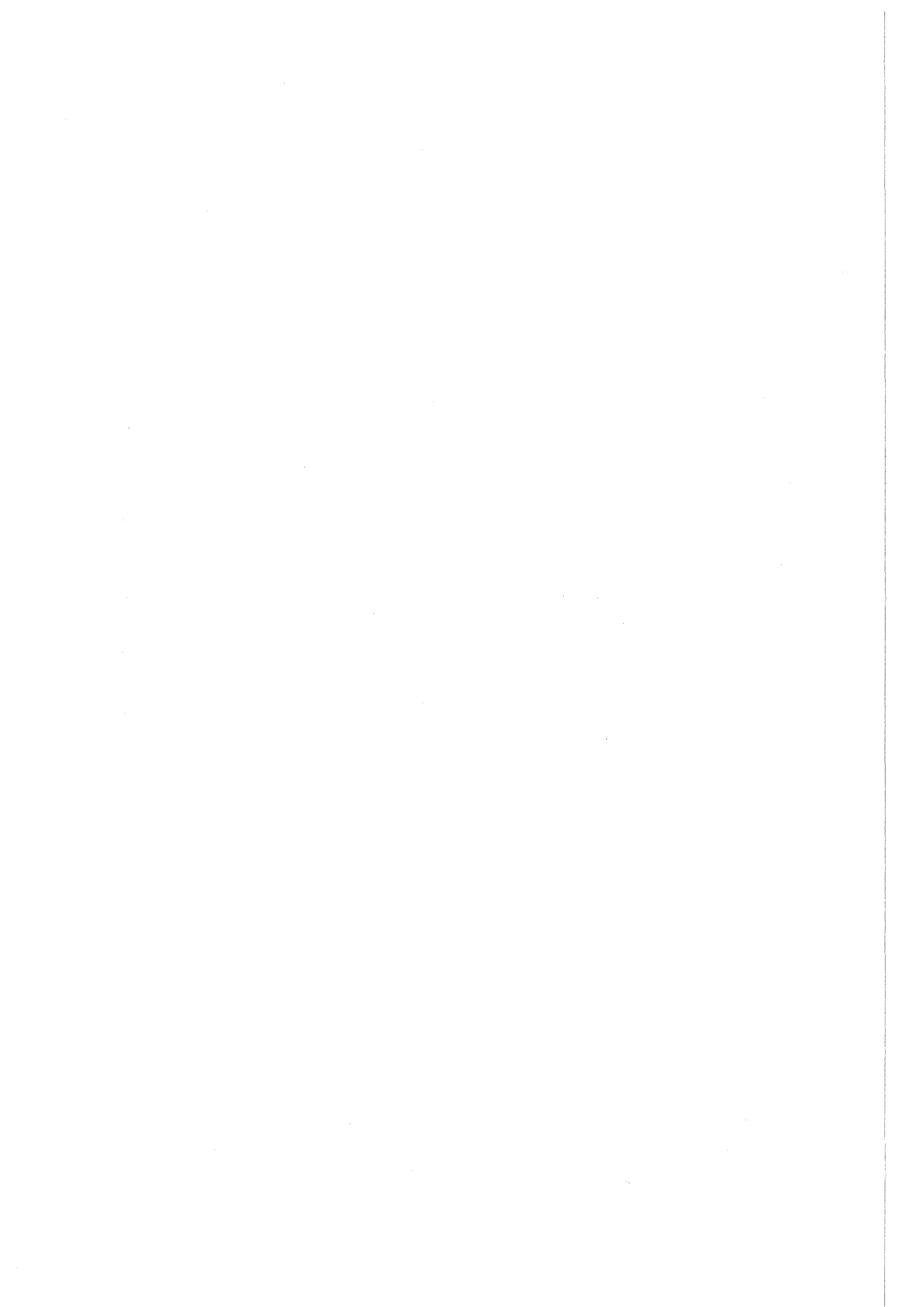
genommen. Nun kann auch durch die fest angeschlossene Abblaseleitung zurückgespült werden. Dadurch kann in Zeiten, wo keine Messung möglich ist, das Kalorimeter vor der Containmentatmosphäre und den darin enthaltenen störenden Beimengungen geschützt werden. Die Lebensdauer wurde durch diese Maßnahme erheblich gesteigert. In allen folgenden Versuchen traten keine Betriebsstörungen mehr auf.

Die Auswertung der Meßdaten ergab, wie schon bei den früheren Versuchen, eine nahezu konstante Tröpfchenmassenkonzentration in der Aerosolabbau-phase. Die Werte liegen um  $2 \text{ g/m}^3$  bei den Versuchen B4, B5 und B6 und bei  $1 \text{ g/m}^3$  beim Versuch A7.

Die Kalibrierung der Kalorimeter wurde ebenfalls im Berichtszeitraum durchgeführt, nachdem sich gezeigt hatte, daß dies tatsächlich notwendig war [\*]. Es ergab sich jedoch zunächst kein plausibler Zusammenhang zwischen den Betriebsbedingungen und den Kalibrierdaten. Deswegen wurden immer soweit wie möglich bei den Versuchen die Nullpunkte der Kalorimeter mitgemessen, um nachträgliche Justierungen durchführen zu können. Zum Zeitpunkt der Abfassung dieses Berichts ist eine neue Kalibrierserie in Arbeit, die nun zur Aufklärung der Zusammenhänge zu führen verspricht. Die Meßdaten von allen Versuchen können anschließend neu aufgearbeitet werden.

---

[\*] W. Schöck und V. Vrangos, Calorimetric Measurement of Water Fog Concentration, Jahrestagung 1985 der Gesellschaft für Aerosolforschung, Garmisch-Partenkirchen, 25.-27.09.1985



## 6. Modelltheorie

### 6.1 Thermodynamische Rechnungen (KWU)

Wegen des zu erwartenden Einflusses der thermodynamischen Zustandsgrößen (Temperatur, Feuchte, Kondensationsrate) sowohl auf die Geschwindigkeit als auch die Art des Aerosolabbaus, erfordert die Simulation dieses Verhaltens mit Hilfe des NAUA die Bereitstellung entsprechender Daten aus Thermodynamik-Rechenprogrammen. Hierfür stehen im Rahmen des DEMONA-Projektes von Seiten der KWU die Codes COCMEL (Ein-Raum) und WAVCO (Mehr-Raum) zur Verfügung. Wegen der, hypothetischen Kernschmelzunfällen inhärent anhaftenden Unsicherheit in Bezug auf ihren exakten Verlauf ist es für die angestrebten Aussagen zur Größenordnung der Abbaugeschwindigkeit des Aerosols nicht erforderlich, die Strömungszustände im Inneren des Containments detailliert zu berechnen. Im entgegengesetzten Fall wäre die Gültigkeit der Ergebnisse zwangsläufig nur auf einen sehr speziellen Unfallablauf beschränkt.

Wesentliches Ziel der DEMONA-Versuche ist es deshalb, zu zeigen, daß schon durch eine, diese Unsicherheiten des Unfallablaufs integral abdeckende Ein-Raum-Abbildung sowohl der Thermodynamik als auch des Aerosolverhaltens, eine hinreichend genaue und dabei konservative Abschätzung des Zeitverlaufs der luftgetragenen Aerosolmenge möglich ist. Aus diesem Grunde wurde in den bisherigen Rechnungen zur Simulation der Thermodynamik nur auf den Ein-Raum-Code COCMEL zurückgegriffen.

#### 6.1.1 Modellverbesserungen im COCMEL

Anhand der Diskrepanzen der Ergebnisse von COCMEL-Nachrechnungen aktueller Versuche zu denen des Basis-Versuches B3 war der Verdacht entstanden, daß zwischenzeitlich zusätzliche Wärmesenken ins Containment eingebracht wurden. Bei einer Überprüfung durch Battelle konnte als Ursache für diese Abweichungen die Installation von Videokamera und Scheinwerfer ermittelt werden. Diese stellen zwar geometrisch relativ kleine Objekte dar; sie sind jedoch durch die auf ca. 30 °C gekühlten, nur teilweise isolierten Stahlgehäuse bei fast reiner Dampf-atmosphäre in der Lage, große Wärmemengen nach außen abzuführen.

In den Nachrechnungen der entsprechenden Versuche wurden diese zusätzlichen Einbauten im COCMEL als Wandflächen modelliert, wobei als zweite (äußere) Oberfläche ein Wärmereservoir mit einer der mittleren Kühlwassertemperatur entsprechenden konstanten Temperatur von ca.  $10^{\circ}$  zugeordnet wurde. Bei den auf dieser Grundlage durchgeführten Rechnungen zeigte sich eine starke Abnahme der errechneten Volumen Kondensationsrate. Eine Überprüfung des Modells ergab, daß aufgrund der Tatsache, daß an derart kalten Wandflächen der Dampfpartialdruck um mehr als eine Größenordnung kleiner ist als im übrigen Volumen in den Wärmeübergangsmodellen enthaltene Näherungen nicht mehr gültig sind. Die erforderlichen Änderungen wirken sich als annähernd proportionale Erhöhung sowohl der Stoff- als auch der Wärmeübergangszahlen aus. Dadurch nähern sich die Summenwerte aus Kondensation und Konvektion den aus der Uchida-Beziehung ableitbaren Werten. Deren Gültigkeit (für eine ebenfalls gekühlte Testanordnung) wurde experimentell durch Messungen des Battelle-Institutes während der DEMONA-Experimente bestätigt.

Als Resultat ergibt sich im Vergleich zu früheren Rechnungen vom thermodynamischen Standpunkt eine sichtliche Verbesserung der Abbildung des Gesamtverhaltens auch während der Aerosoleinspeisephase. Wegen der in der Umgebung der Kühlflächen sehr hohen diffundierenden Dampfmassenströme stellt jedoch die dem benutzten Wärmeübergangsmodell zugrunde liegende Annahme laminaren Verhaltens in der Grenzschicht möglicherweise eine unzulässige Vereinfachung der realen Zustände dar. Dies kann sich speziell auf den Übergang fühlbarer Wärme an der Oberfläche auswirken. Da an den Kühlflächen immerhin ca. 50 % der gesamten eingebrachten Leistung abgeführt werden, erhöht sich zudem u. U. der Grad, der durch das Ein-Raum-Modell des COCMEL nicht abbildbaren thermodynamischen Inhomogenität im Volumen.

Eine zusätzliche Modelländerung betrifft die Abbildung des Wärmeübergangs an den Sumpf. Während vorher der Sumpf, auch für die Ermittlung der Wärmeströme aus der Atmosphäre, als Bereich homogener Temperatur angesehen wurde, was sowohl die abgeführte Leistung als auch die errechnete Temperatur des Sumpfes künstlich erhöht hat, wird jetzt der durch die endliche Wärmeleitfähigkeit des Wassers entstehende Temperaturgradient berücksichtigt. Dadurch ergibt sich ein sehr realistischer Verlauf der Sumpftemperatur und eine dem Aufbau einer Temperaturschichtung analoge zeitlich zunehmende Dämpfung des eintretenden Wärmestroms.

### 6.1.2 Modellierung von Geometrie und Versuchsablauf

Gegenüber den Ausführungen in / \* / ergeben sich nur an zwei Punkten geringfügige Änderungen:

- Abbildung der zusätzlichen Kühlflächen,
- Verzicht auf die Nachrechnung der einleitenden Aufheizphase (ab A7), statt dessen Übernahme des experimentell ermittelten Zustandes. Hierbei sind als einzig variable Werte die Atmosphärentemperatur und damit der Partialdruck nichtkondensierbarer Gasanteile sowie die Temperatur außerhalb des Containments zu beachten. Das anfänglich lineare Temperaturprofil in den Außenwänden wird vom COCMEL automatisch berechnet.

Zu beachten ist, daß neben den in / \* / erwähnten vier Phasen der Versuchsdurchführung zusätzliche Abkühlzeiten (ohne Dampfzufuhr) im Versuchsablauf enthalten sind. Durch diese sollte, speziell nach Ende der Aerosolzufuhr, ein frühzeitiges Einsetzen der Nebelbildung vermieden und damit dessen Einfluß auf den Aerosolabbau verringert bzw. besser quantifizierbar gemacht werden.

In Abbildung 6.1 ist schematisch das für die COCMEL-Rechnung verwendete Modell des Battelle-Containments dargestellt.

### 6.1.3 Ergebnisse der Versuchsnachrechnung

Das in Kap. 6.1.1 beschriebene verbesserte Wärmeübergangsmodell konnte erstmals zur Nachrechnung des Versuches A7 eingesetzt werden. Für die zeitlich früheren Rechnungen zu B5 und B6 kam deshalb letztlich ein physikalisch weniger realistisches Modell zur Anwendung. Dies äußert sich jedoch lediglich in dem errechneten Verhältnis zwischen den Kondensationsraten im Volumen und an den Wänden. Der Druck- und Temperaturaufbau sowie überhaupt sämtliche, anhand experimenteller Daten verifizierbaren Ergebnisse sind auch in diesen Fällen in guter Übereinstimmung mit der Realität. In Abb. 6.1.2 bis 6.1.4 sind einige Resultate der B5-Nachrechnungen dargestellt. Wegen der Ähnlichkeit der Fahrweise repräsentieren diese auch die Ergebnisse des Versuches B6 (Abb. 6.1.5).

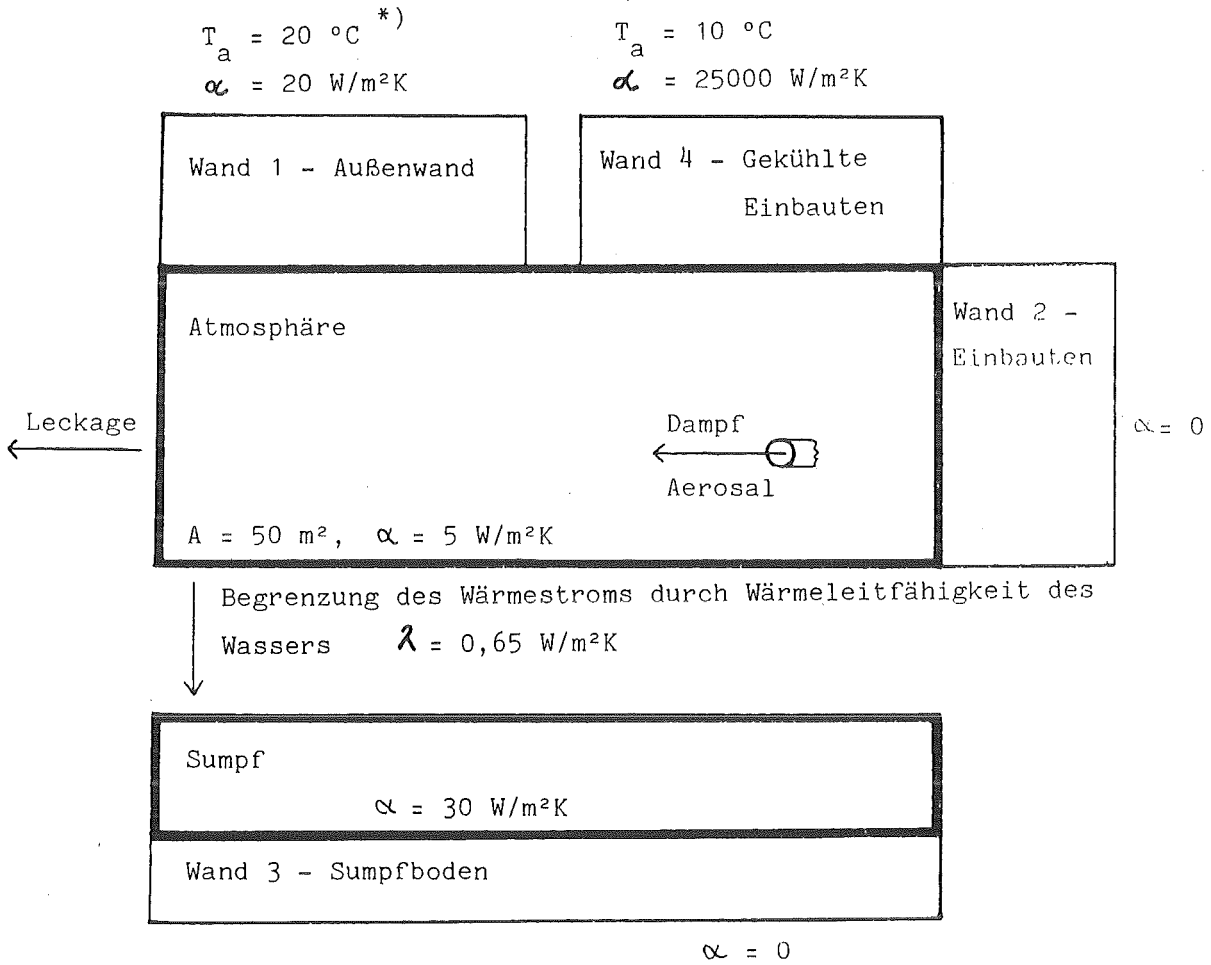
Die deutliche Reduktion der Volumen- und Kondensationsrate gegenüber früheren Rechnungen (Abfall von ca. 4 g/s auf ca. 0,8 g/s) ist bei diesen zwei Nachrechnungen eindeutig auf die Anwendung des bisher benutzten Wärmeübergangsmo- dell auch auf die kalte Oberfläche des Kühlers bedingt. In dem ansonsten thermo- dynamisch adäquaten Versuch A7 (Abb. 6.1.6) wurde nur aufgrund der Verbesse- rungen dieses Modells wiederum ein deutlich höherer Wert von ca. 2 g/s errech- net. Da die Wärmeübergangszahlen an den gekühlten Flächen aus den Zuständen in der Zone berechnet wurden, stellten die von Battelle veröffentlichten Werte für die vom Kühlmittel abgeführte Leistung eine Möglichkeit zur Verifikation des errechneten Wärmestroms dar (Abb. 6.1.7). Die erzielte, sehr gute Überein- stimmung liefert ein Indiz zumindest für die Richtigkeit des den Wärmeübergang dominierenden Kondensationsanteils.

An dieser Stelle sei noch einmal darauf hingewiesen, daß vom COCMEL eine in der Nähe der Dampfeinspeisung zu erwartende lokale Nebelbildung (die sich im Verlauf ihrer Ausbreitung im Raum wieder auflösen kann) wegen der Ein-Raum-Be- trachtung nicht abgebildet wird. Dies bedeutet, daß trotz des in Realität u. U. signifikanten Einflusses einer solchen lokalen Nebelkonzentration auf den Aerosolabbau, diese nicht erfaßbar ist.

Die Ergebnisse der bisherigen Rechnungen haben bestätigt, daß wegen der Kom- plexität des Phänomens der Nebelbildung bei dessen Simulation u. U. eine grö- ßere Ungenauigkeit in Kauf genommen werden muß. Dagegen wurde der Zeitpunkt des erstmaligen Einsetzens der Volumen Kondensation nach Ende der Aerosolein- speisung, wie anhand der Photometerkurven überprüft werden kann, stets mit gu- ter Genauigkeit wiedergegeben.

#### 6.1.4 Fazit

Das COCMEL erlaubt eine hinreichend exakte Abbildung der wesentlichen thermo- dynamischen Zustandsgrößen, insbesondere des Druck- und Temperatureaufbaus wäh- rend der DEMONA-Versuche. Auch die Kondensationsphänomene an Wänden und den als Kühlflächen wirkenden Einbauten lassen sich gut wiedergeben. Gewisse Un- sicherheiten zeigten sich jedoch bei der Berechnung der Volumen Kondensations- rate. Die hierbei aufgetretenen Abweichungen wirkten sich jedoch, was das Aerosolverhalten betrifft, stets in Richtung konservativer Ergebnisse aus. Deshalb ist die Beschränkung auf eine Ein-Raum-Modellierung mit Hilfe des COC- MEL im Hinblick auf die Versuchsziele des DEMONA-Programms gerechtfertigt.



Aufbau der Wände

Wand-Nr.	Fläche	Dicke	
1	300 m <sup>2</sup>	0,5 m	} $\lambda = 2 \text{ W/mK}$ $\rho = 2400 \text{ kg/m}^3$ $c_p = 880 \text{ J/kgK}$ $\lambda = 50 \text{ W/mK}$
2	650 m <sup>2</sup>	0,2 m	
3	100 m <sup>2</sup>	2,5 m	
4	1 m <sup>2</sup>	3 mm	

Abb. 6.1.1

Modellierung der geometrischen Struktur des Battelle-Containments für die Rechnung mit dem Ein-Raum Code COCMEL

\*) abhängig von der gemessenen Außentemperatur

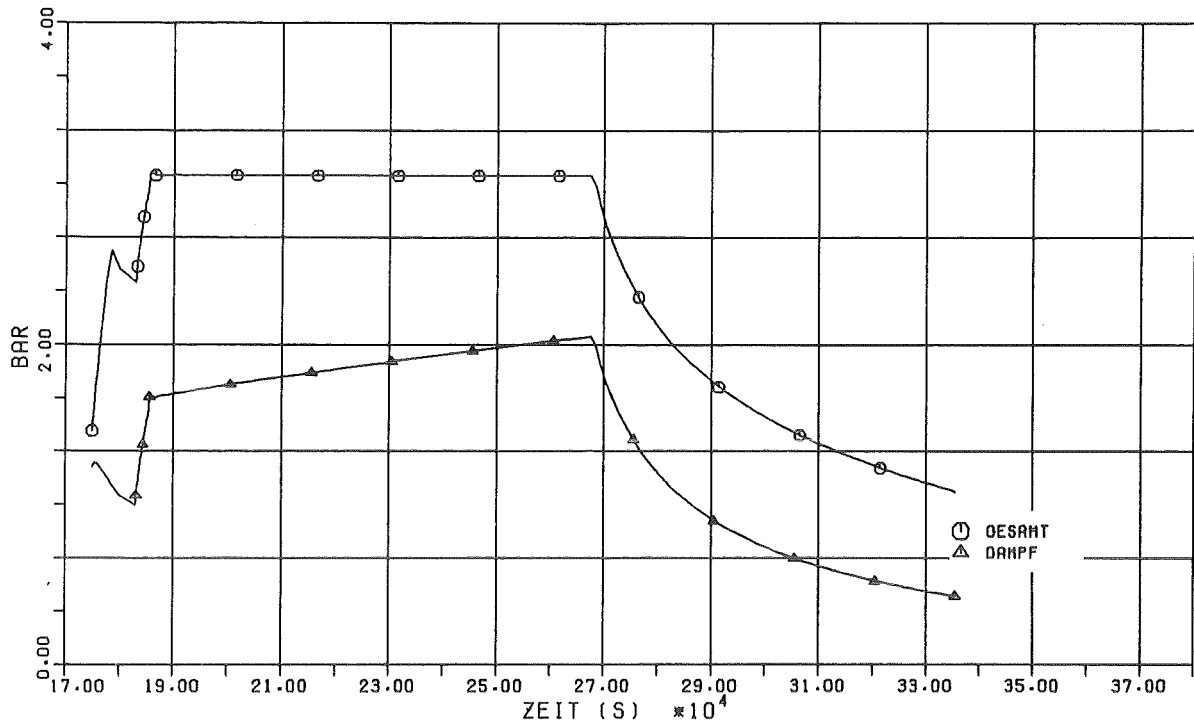


Abb. 6.1.2 Berechneter Druckverlauf während Versuch B5

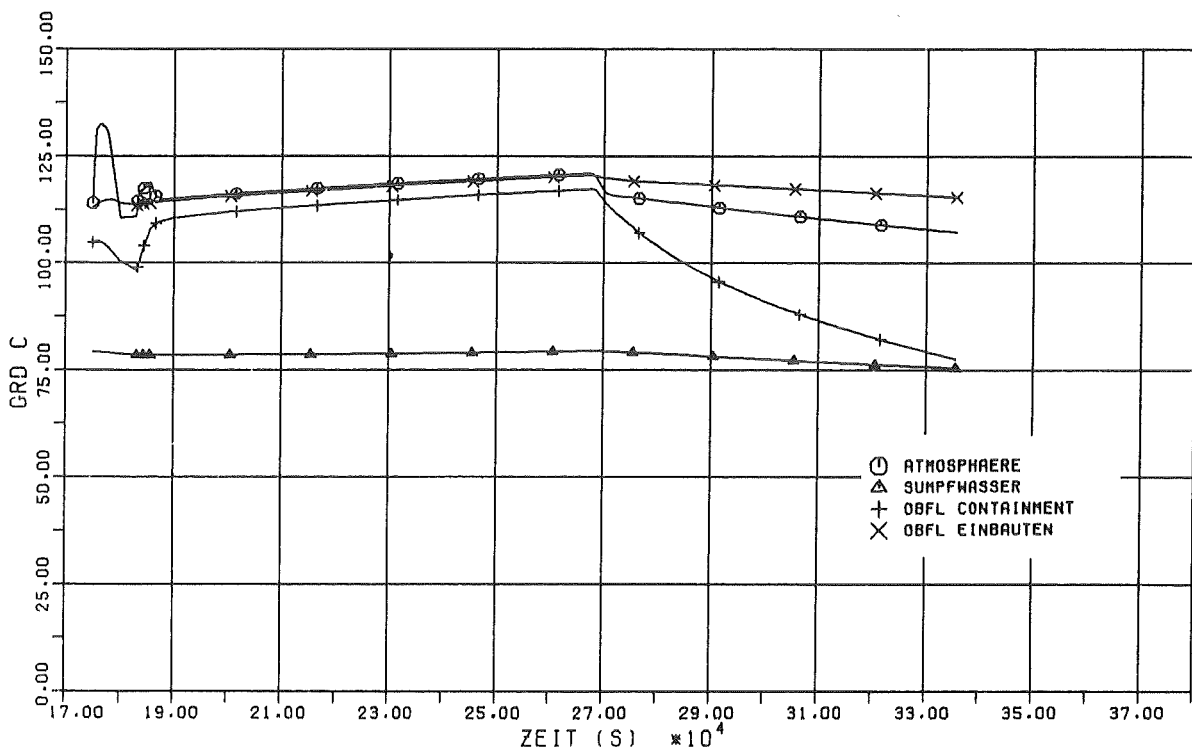


Abb. 6.1.3 Berechnete Temperaturverläufe im Containment während Versuch B5



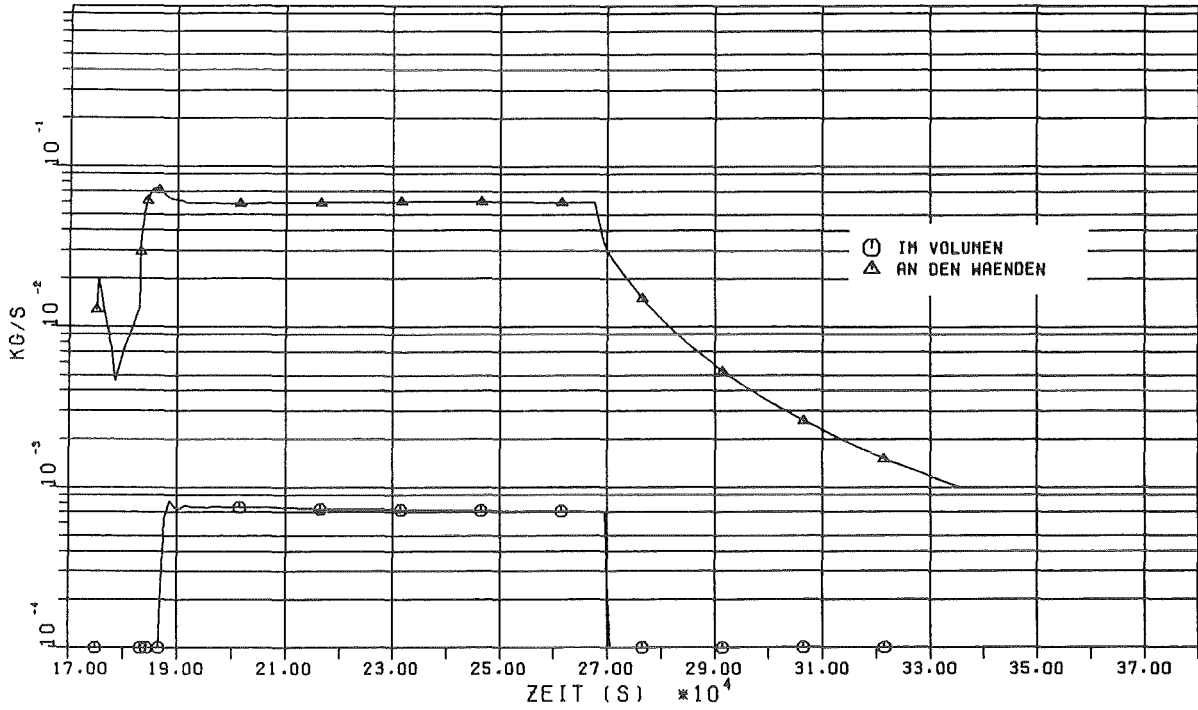


Abb. 6.1.4 Berechnete Werte für die Kondensationsrate an Wänden und im Volumen während Versuch B5

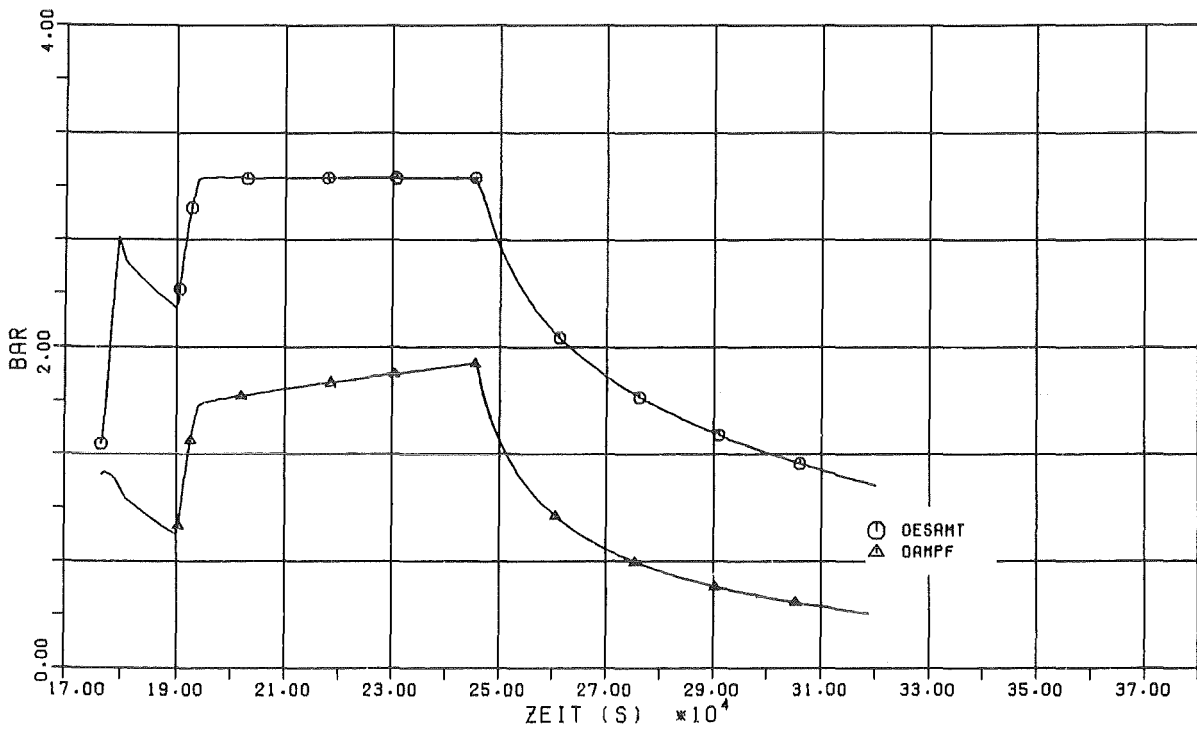


Abb. 6.1.5 Berechneter Druckverlauf während Versuch B6

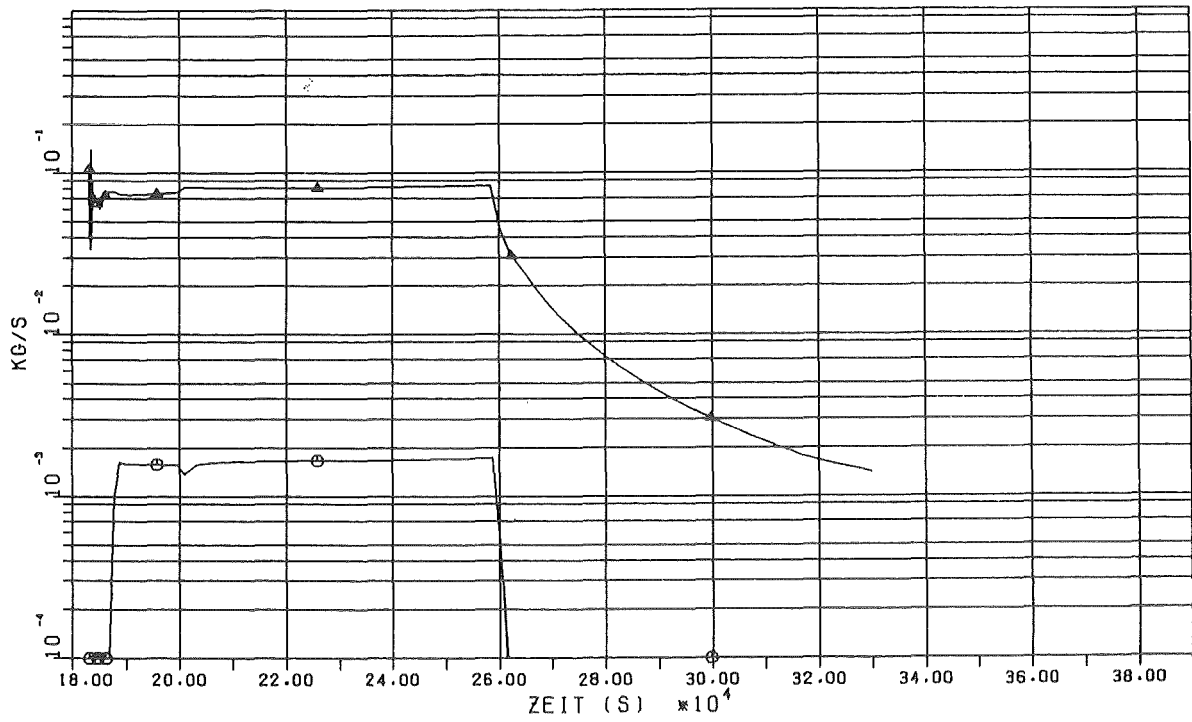


Abb. 6.1.6 Berechnete Werte für die Kondensationsrate an Wänden und im Volumen während Versuch A7

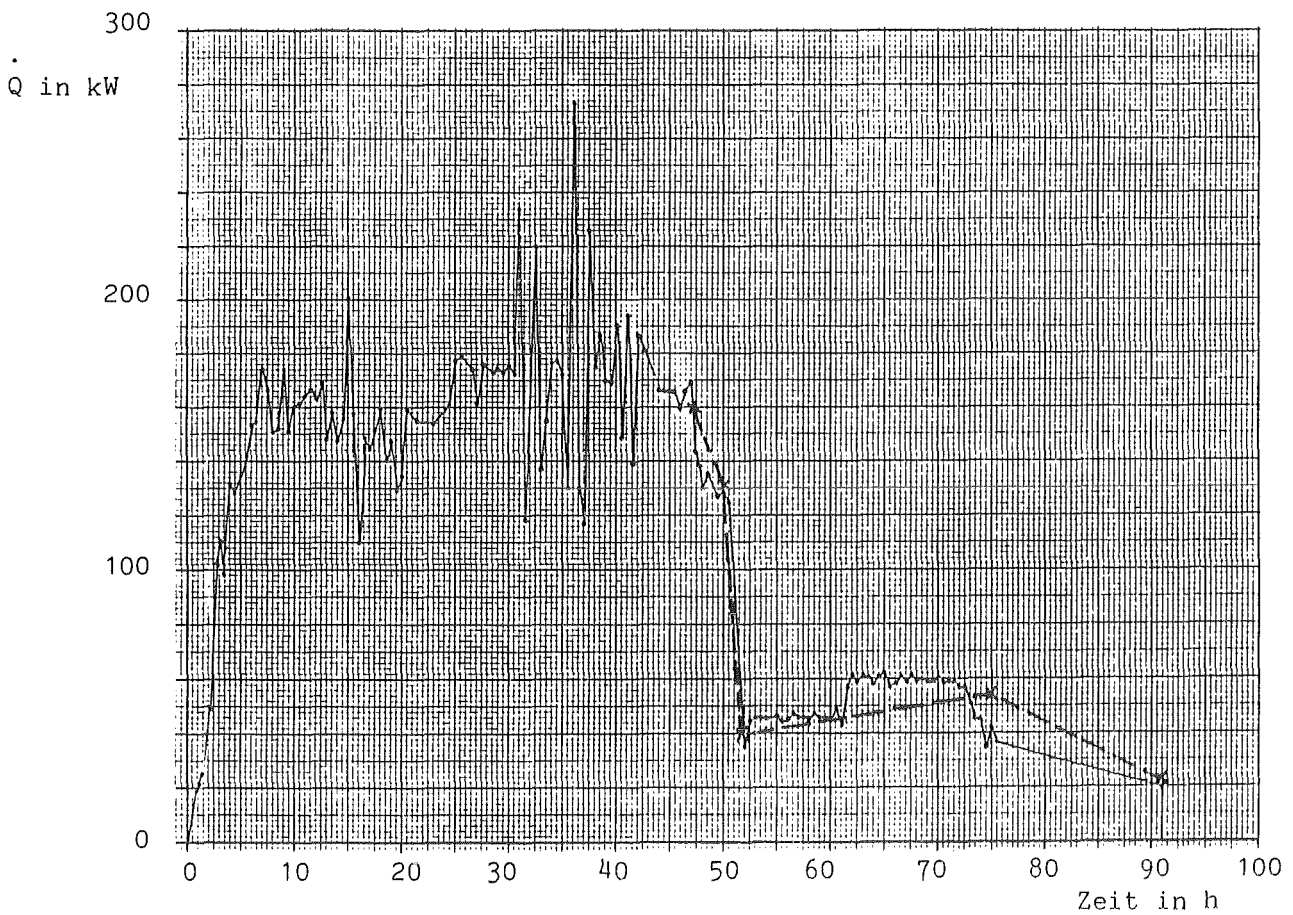


Abb. 6.1.7 Vergleich von gemessenen und errechneten (x---x) Werten für die über die Videokamera abgeführte Leistung während Versuch A7

## 6.2 Integrierte Mehrraumrechnungen (GRS)

Begleitend zu den DEMONA-Versuchen werden Mehrraumrechnungen mit dem integrierten Containmentcode FIPLOC durchgeführt.

Die bisher gefahrenen DEMONA-Versuche wurden als Quasi-Einraumversuche konzipiert. Dennoch zeigen alle Versuche mehr oder weniger ausgeprägte Inhomogenitäten der Containmentatmosphäre während der Phase der Aerosoleinspeisung. Eine detaillierte Kenntnis der thermohydraulischen Vorgänge zu dieser Zeit ist auch im Hinblick auf die Modellierung des Aerosolverhaltens von Bedeutung.

### 6.2.1 Containment-Code FIPLOC

Es wurde die neue FIPLOC-Version Mod2/85 eingesetzt. Mit ihr lassen sich gesättigte, überhitzte und übersättigte Dampfzustände, die in verschiedenen Zonen gleichzeitig auftreten können, simulieren. Als Transportvorgänge für die gasförmigen Komponenten und das Aerosol werden Druckausgleichsströmung, freie und erzwungene Konvektion, Diffusion und der Transport von gelösten Komponenten mit dem Kondensat betrachtet. Weiter verfügt FIPLOC über ein integriertes monodisperses Aerosolmodell, das die Vorgabe einer mittleren Partikelgröße erfordert. Damit lassen sich eine Reihe von thermohydraulischen Einflüssen auf das Aerosolverhalten unmittelbar analysieren.

Für eine detailliertere Betrachtung wurden mit den thermohydraulischen FIPLOC-Ergebnissen auch nachgezogenen Rechnungen mit einer Multicompartiment-Version des Aerosolcodes NAUA durchgeführt.

### 6.2.2 Nachrechnungen der Versuche B3 und B4

Zu der Nachrechnung der Thermohydraulik des Basisversuches B3 wurde eine Diskretisierung mit insgesamt 8 Zonen, 12 Verbindungen und 10 Heat-Slabs gewählt (Abb.6.2.1). Die Zonen 5, 6 und 7 repräsentieren die Sümpfe im Modellcontainment und Zone 8 die Umgebung. Ein Hauptaugenmerk bei dieser Rechnung galt dem lokalen Auftreten von überhitzten Dampfzuständen während der Aerosoleinspeisung mit heißer Luft. Die Nachrechnung zeigt, daß im Zentralraum aber auch in der Kuppel und in

den Bananenräumen vorübergehend überhitzte Dampfzustände auftraten (Abb.6.2.2). In diesen Räumen stiegen die Temperaturen bis maximal 135 ° an, was in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Werten ist.

Zum DEMONA Hauptversuch B4 mit Zinnaerosol in einer wasserdampfhaltigen Atmosphäre wurden Nachrechnungen des Aerosolverhaltens mit zwei unterschiedlichen Diskretisierungen: (1) mit 6 inneren Zonen (Mehrraumrechnung, Abb.6.2.1) und (2) mit einer einzigen inneren Zone (Einraumrechnung) durchgeführt. Zum Einsatz kam eine weiterentwickelte Version des NAUA-Mehrcompartmentmodells, bei der ein Aerosoltransport mit den Konvektionsströmen in der Containmentatmosphäre berechnet werden kann. Die gewählte Diskretisierung kann dabei auch virtuelle Grenzflächen zwischen übereinander angeordneten Zonen haben.

Als thermodynamische Eingabedaten wurden die Ergebnisse der FIPLOC-Nachrechnung zum DEMONA-Versuch B3 verwendet, bei dem annähernd gleiche thermodynamische Versuchsbedingungen vorlagen.

Als Aerosolabscheideprozesse im Versuch B4 werden im NAUA-Modell Sedimentation und Diffusiophorese wirksam. Kondensation an Aerosolpartikel im Volumen wird nicht berücksichtigt.

Abb.6.2.3 zeigt die experimentellen Werte der luftgetragenen Aerosolmassenkonzentration und die berechneten Konzentrationsverläufe aus der Einzonenrechnung (gestrichelt) und der 6-Zonen-Diskretisierung (durchgezogen). Bei der Mehrzonenrechnung treten nur im Zeitbereich der Aerosolfreisetzung räumlich unterschiedliche Konzentrationen auf, danach führen atmosphärische Konvektionsströme rasch zu einer homogenen Durchmischung des Aerosols.

### 6.2.3 Vorausrechnung des Versuches B5

Im sog. transienten Versuch B5 wurde eine Stunde vor Beginn der Aerosoleinspeisung die Dampfzufuhr für insgesamt ca. 3,8 Stunden unterbrochen. Ziel der Vorausrechnung war es, Aussagen über den zu erwartenden Atmosphärenzustand während der transienten Phase zu gewinnen. Die Rechnung wurde mit einer detaillierten Diskretisierung 32-Zonen, 69 Verbindungen und 61 Heat-Slabs durchgeführt. Als wesentlich erwies sich einmal mehr, auch die Vorgeschichte des

Experiments, mit dem Ausspülen der Luft und dem Aufheizen der Strukturen zu simulieren. Einige Sorgfalt wurde auch auf die adäquate Modellierung der Sümpfe, in die das anfallende Kondensat ablief, aufgewendet.

Die Vorausrechnung zeigte, daß zwar der Zentralraum und angrenzende Bereiche bei der Aerosoleinspeisung in Überhitzung gehen, daß aber gleichzeitig andere Räume wie z.B. der Ringraum, in Sättigung bleiben würden. Dies wurde indirekt von den Meßergebnissen bestätigt.

#### 6.2.4 Auslegungsrechnung zum geplanten Mehrraumversuch

Die Geometrie des geplanten Mehrraumversuches wurde unter Anlehnung an die Verhältnisse in einem realen DWR-Containment erarbeitet. Als Entscheidungshilfe für die Fahrweise dieses Experiments wurden zwei FIPLOC-Rechnungen durchgeführt: (1) für eine kontinuierliche Dampfeinspeisung und (2) für eine transiente Fahrweise mit unterbrochener Dampfeinspeisung.

Wie die FIPLOC-Rechnungen zeigen, sind keine großräumigen Konvektionsschleifen, die mehrere Einzelräume umfassen, zu erwarten. Dadurch laufen die Verteilungs- und Durchmischungsvorgänge in der Containmentatmosphäre anders und insgesamt langsamer ab, als in den Quasi-Einraumversuchen. Dies bedingt deutliche lokale Partialdruckunterschiede für Dampf und Luft. Die vorausberechneten Unterschiede in den Aerosolkonzentrationen für verschiedene Räume des Containments betragen mehr als eine Größenordnung (Abb.6.2.4).

#### 6.2.5 Interpretation der FIPLOC-Ergebnisse

Wie die Meßergebnisse zeigen, ist bereits die Einspeisephase sehr entscheidend für das weitere Verhalten des Aerosols. Von den thermohydrualischen Zuständen hängt es ab, ob das eingespeiste Aerosol schnell über große Bereiche des Containments verteilt wird, oder über längere Zeit auf bestimmte Bereiche beschränkt bleibt. Trotz entsprechender Gegenmaßnahmen konnten stabile atmosphärische Schichtungen im Containment beobachtet werden, die sich nur zögernd von unten nach oben bewegen.

Die Rechnungen mit FIPLOC bzw. FIPLOC/NAUA sind bislang die einzigen Mehrraumrechnungen zu den DEMONA-Versuchen. Sie stellen einen wesentlichen Beitrag zum Verständnis der beobachteten Phänomene dar.

Anhand der FIPLOC-Rechnungen konnte gezeigt werden, daß die atmosphärischen Transportvorgänge durchaus nicht immer ausreichen, in den Quasi-Einraumversuchen zu jedem Zeitpunkt im Containment homogene Verhältnisse zu gewährleisten. Darüberhinaus ergab sich, daß Kondensation im Volumen oft nur in lokal beschränkten Bereichen auftritt. Die Rechnungen erklären weiter, daß gesättigte, überhitzte und übersättigte Dampfzustände gleichzeitig in verschiedenen Teilen des Containments auftreten können.

Die FIPLOC-Rechnungen stellen nicht nur einen wesentlichen Beitrag zur Interpretation der Meßergebnisse dar, sondern liefern auch eine wertvolle Unterstützung bei der Versuchsplanung. Die kombinierten FIPLOC/NAUA Mehrraumrechnungen sind schließlich ein wesentlicher Beitrag zum Verständnis der Wechselwirkung von Thermohydraulik und Aerosolverhalten in diesen Integralversuchen.

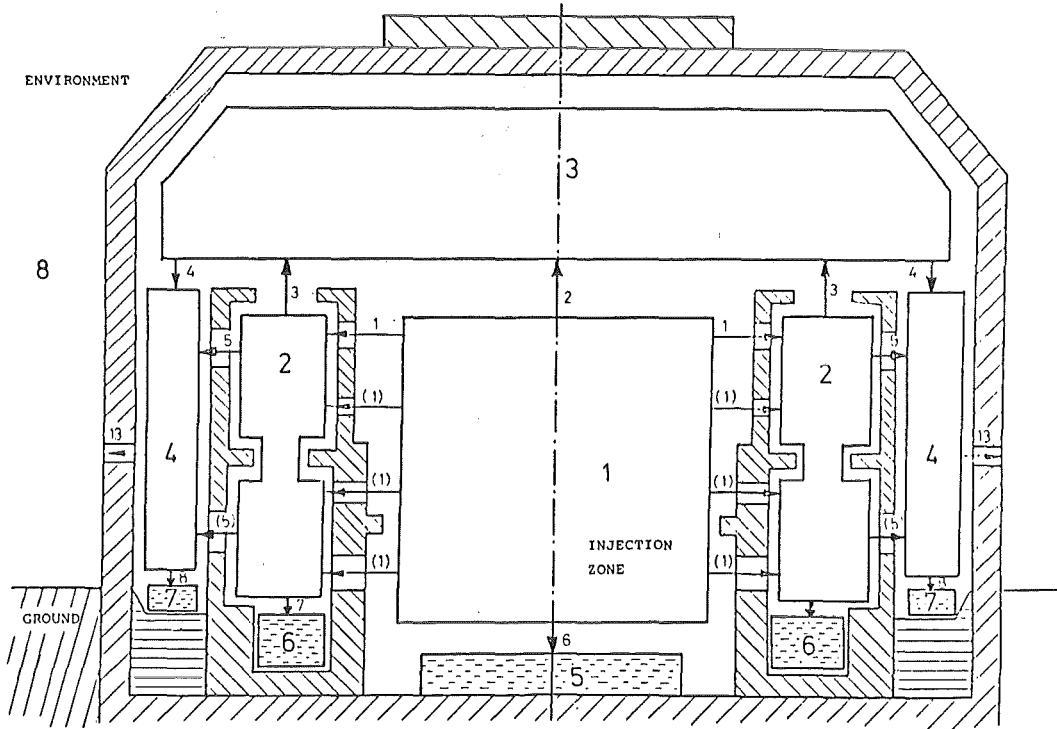


Abb.6.2.1: Diskretisierung des Battelle-Modellcontainments für FIPLOC und FIPLOC/NAUA-Rechnung

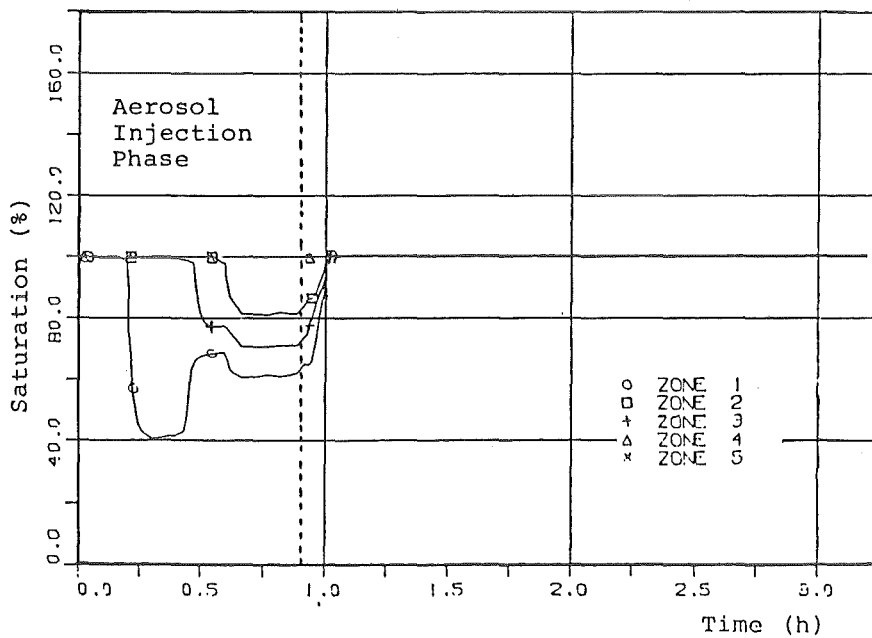


Abb.6.2.2: Versuch B3, FIPLOC-Nachrechnung, Dampfsättigung

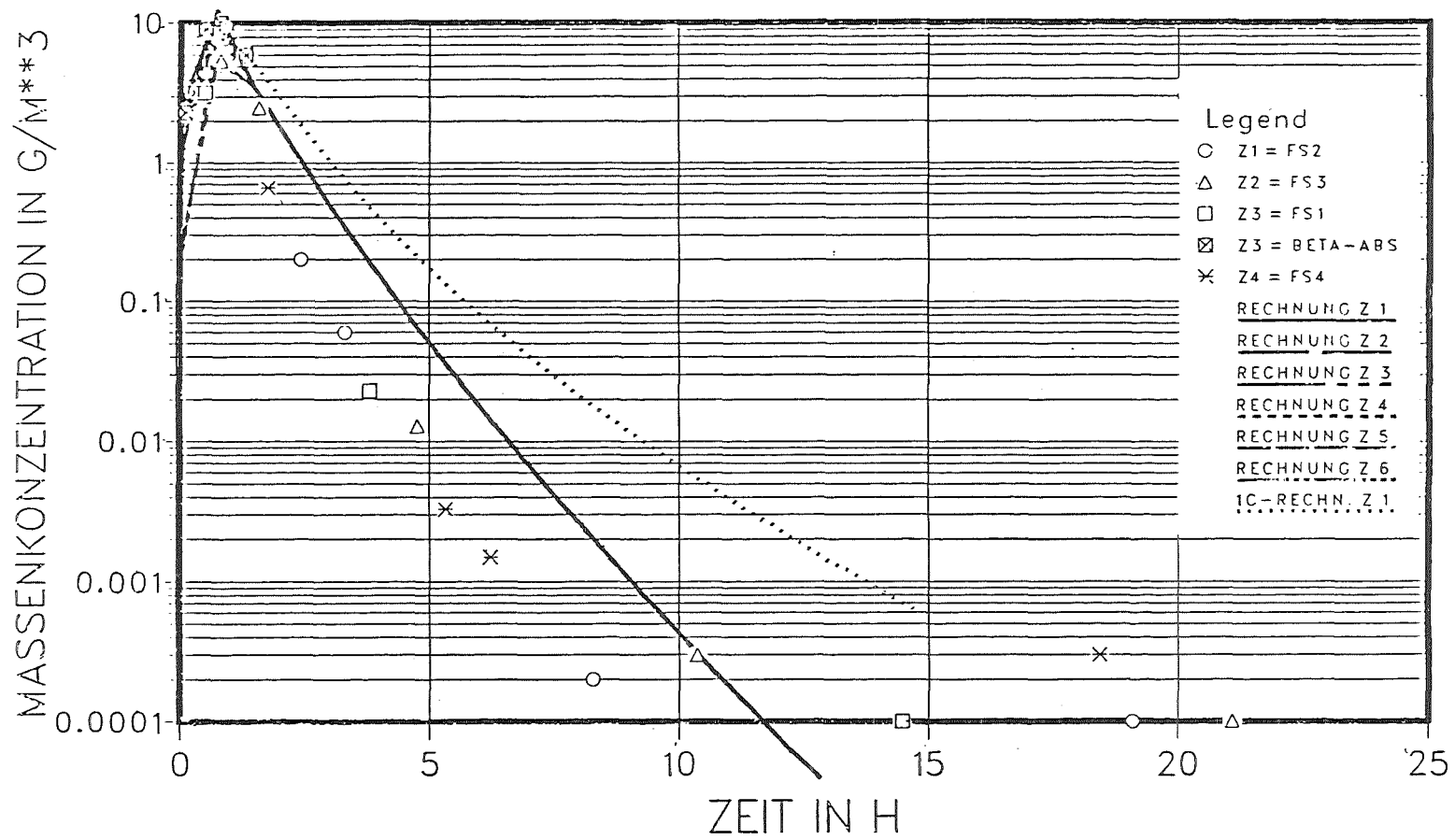


Abb.6.2.3:

Versuch B4, FIPLOC/NAUA-Nachrechnung, Aerosolkonzentration (.....1 Zonen-, — 6 Zonen-Modell)



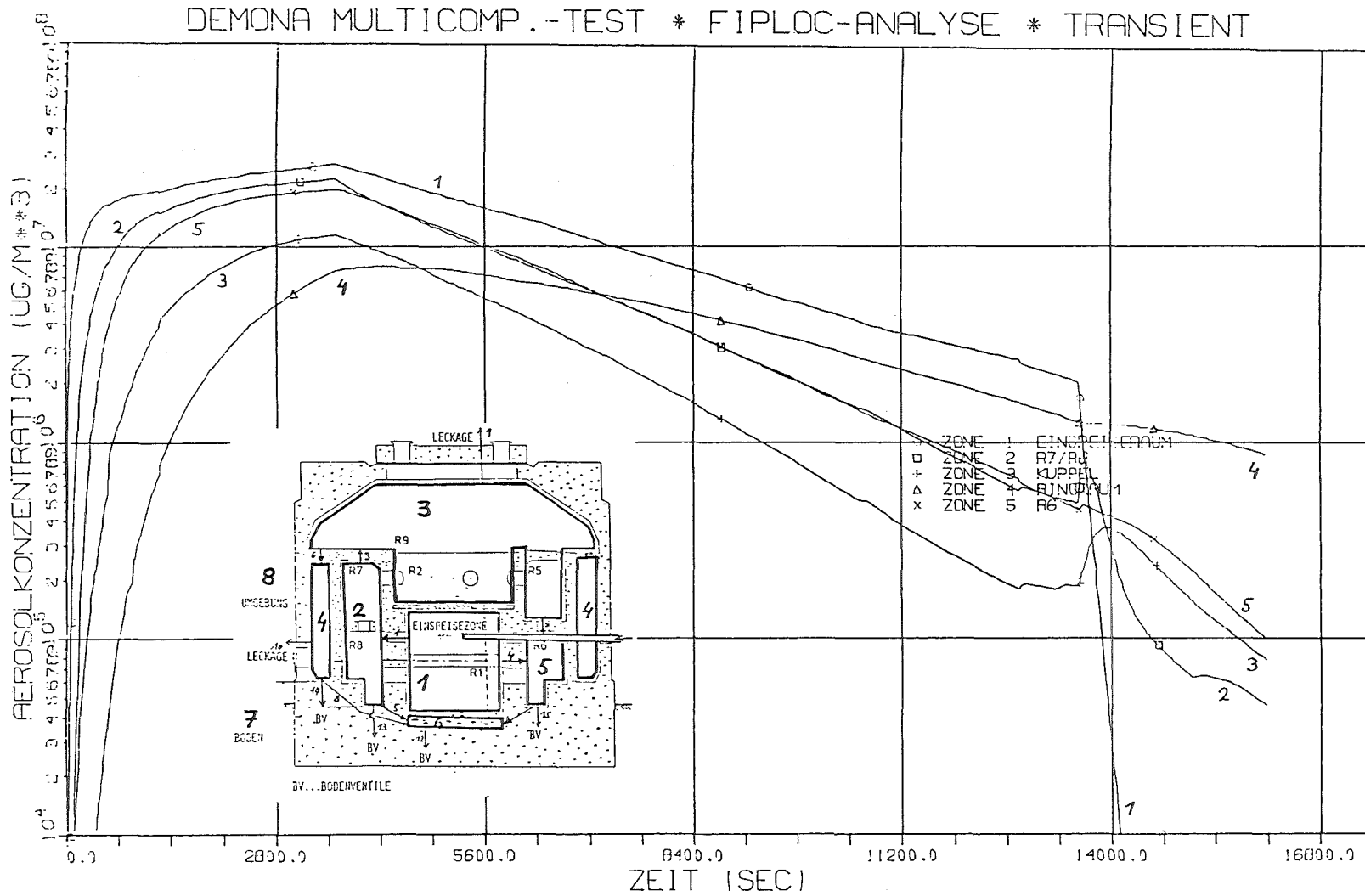


Abb.6.2.4:

FIPLOC-Auslegungsrechnung zum Mehrraumversuch mit transienter Fahrweise, Aerosolkonzentrationen

### 6.3. Aerosolverhaltensrechnungen

Die im Berichtszeitraum durchgeführten Versuche waren ausnahmslos Naßversuche, d. h. die Kondensation des Wasserdampfes ist ein das Aerosolverhalten dominierender Effekt. Dies spiegelt sich sowohl in den gemessenen als auch den gerechneten Aerosolabbaukurven wieder, die erheblich schneller abfallen als bei den trockenen Experimenten. Damit ist allerdings dann die Abhängigkeit der aerosolphysikalischen Rechnungen von den thermodynamischen Rechnungen erheblich größer als früher. Dies bedingt naturgemäß eine schlechtere Übereinstimmung zwischen Experiment und Rechnung, da sich nun die Auswirkungen der notwendigen Vereinfachungen beider Modelltheorien addieren. Der wesentliche Schwerpunkt der Nachrechnungen wird deshalb darauf liegen, zu zeigen, daß die mittels der Modellrechnungen gewonnenen Ergebnisse bezüglich einer Risikoabschätzung auf der sicheren Seite liegen.

Wie die Abb. 2.2.1, 2.2.2, 2.2.3 und 2.2.5 zeigen, ist dies bei den Experimenten der Fall, obwohl sowohl die Aerosolerzeugung, als auch die thermodynamische Fahrweise der Experimente stark variiert wurde. Der Versuch V 34 (= B 4) war eine Wiederholung des Versuches V 31 (= B 3) mit Zinndioxid als Aerosolmaterial. Deshalb sind sowohl Voraus- als auch Nachrechnung für V 31 auch für V 34 anwendbar.

Bei V 39 (= B 6) wurde erstmals Silber als Aerosolmaterial eingesetzt, da dieses in den Kontrollstäben eines Reaktors vorkommt und deshalb im Störfall auch mit Silberaerosol zu rechnen ist. Durch Überhitzung der Brennkammer des Plasmagenerators wurde allerdings auch ein Teil der Brennkammerauskleidung bestehend aus Magnesiumoxid verdampft, so daß das Experiment in Wahrheit mit einem Silber/Magnesiumoxid-Misch-aerosol durchgeführt wurde. Die Abweichungen zwischen Messung und Rechnung sind deutlich größer als bei V 31/V 34, d.h., der Abbau des Aerosols wird durch die Rechnung erheblich unterschätzt. Dasselbe gilt für den Versuch V 53 (= A7), bei dem erstmals Eisenoxidaerosol, welches durch Oxidation von Eisenpentacarbonyl erzeugt wurde, eingesetzt wurde. Diese Abweichungen der Rechnungen, auch in Vergleich zu den früheren Rechnungen zu V 31/V 34, erklären sich durch die erheblich kleinere berechnete Volumenkondensationsrate bei diesen Experimenten im Vergleich zu früher. Der Grund hierfür, eine zusätzliche Wärmesenke in Form einer wassergekühlten Fernsehkamera, wurde bereits in Abschnitt 6.1 diskutiert.

Im Gegensatz dazu ist das prinzipielle Verhalten der experimentellen Kurven bei allen Naßversuchen gleich. Die Gründe dafür sind noch weitgehend unbekannt. Mögliche Erklärungen sind verstärkte Partikelabscheidung in der transienten Anfangsphase des Experimentes, wenn einerseits die Partikeln noch nicht gleichmäßig im Containment verteilt sind und andererseits hohe Wärmeinträge zu starker lokaler turbulenter Konvektion führen. Wichtig aber ist, daß alle diese Effekte, die in den NAUA-Rechnungen nicht berücksichtigt wurden, zu verstärkter Abscheidung führen, die Rechnungen deshalb auf der sicheren Seite liegen. Dagegen konnte bis heute bei den Experimenten noch kein Effekt gefunden werden, der die Abscheidung im Vergleich zu den Rechnungen vermindert.

Die im Berichtszeitraum durchgeführten Aerosolexperimente unter dem Einfluß von kondensierendem Wasserdampf zeigen zwar eine generell schlechtere Übereinstimmung zwischen Meßergebnissen und Rechnungen, als bei den früheren Trockenversuchen, damit war prinzipiell von Anfang an zu rechnen. Da aber gezeigt werden konnte, daß die Rechnungen ausnahmslos auf der sicheren Seite liegen, kann das Versuchsziel der DEMONA-Experimente als erfüllt angesehen werden, da es nämlich mit dem NAUA-Code möglich ist, den Quellterm für die Umgebungsbelastung nach einem Kernschmelzunfall abzuschätzen.



## 7. Veröffentlichungen im Berichtsjahr

W.Schöck et al.

DEMONA Jahresbericht 1984

KfK 3942, (1985)

W.Schöck, H.Bunz, J.P.Hosemann

Status of the DEMONA Experiments

A Comparison with NAUA Calculations

13th Water Reactor Safety Information Meeting

NBS, October 22-25, 1985, NUREG/CP-0071

T.F.Kanzleiter et al.

DEMONA experiments to investigate aerosol behavior within a containment,

Source Term Evaluation for Accident Conditions, Proceedings of an

International Symposium, Columbus OH, Oct. 28 - Nov. 1, 1985

IAEA Vienna 1986, pp 461 - 478

G.Weber, H.Jahn

Calculations on DEMONA experiments with the integrated  
multi-compartment code FIPLOC.

ebd., pp 549 - 558

G.Weber, H.Jahn, M.Fischer

Thermodynamic calculations of DEMONA experiments,

Annual USNRC-BMFT Information Exchange Meeting on Core Meltdown Research,

Shelter Island NY, Oct. 1985

Th.Schröder

DEMONA-Versuche, Ergebnisse des Trockenversuchs B2,  
Technischer Fachbericht B1eV-R65.523-30-2,  
Battelle-Institut Frankfurt, November 1985

T.Kanzleiter

DEMONA-Versuche, Ergebnisse des Basisversuchs B3,  
Technischer Fachbericht B1eV-R65.523-30-3,  
Battelle-Institut Frankfurt, April 1985

T.Kanzleiter, B.Fischer

DEMONA-Versuche, Ergebnisse des Basisversuchs B4,  
Technischer Fachbericht B1eV-R65.523-30-4,  
Battelle-Institut Frankfurt, März 1985

W.Schöck, V.Vrangos

Calorimetric Measurement of Water Fog Concentration  
Annual meeting 1985 of the Gesellschaft für Aerosolforschung  
Garmisch-Partenkirchen, September 25 - 27, 1985