

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

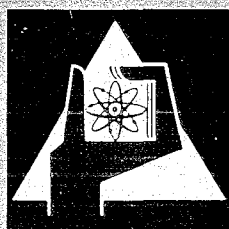
Dezember 1969

KFK 1032  
EUR 4306 d

Institut für Angewandte Reaktorphysik

Das Verhalten von  $\text{UO}_2$ -Aerosolen in geschlossenen Systemen

W. Schikarski, H. Wild



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Dezember 1969

KFK 1032  
EUR 4306 d

Institut für Angewandte Reaktorphysik

DAS VERHALTEN VON  $UO_2$ -AEROSOLEN IN GESCHLOSSENEN SYSTEMEN<sup>+</sup>)

von

W. Schikarski und H. Wild

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

---

<sup>+</sup>) Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe, auf dem Gebiet der Schnellen Reaktoren durchgeführt.



## Zusammenfassung

Im Aerosolprogramm wird das Ziel verfolgt, das Verhalten nuklearer Aerosole, wie sie bei schweren Störfällen in schnellen Reaktoren auftreten können, in Abhängigkeit von Aerosol-Prozessen und anderen Parametern zu beschreiben. Die vorliegende Arbeit gibt einen Überblick über die erste Phase des Aerosolprogramms. Ziel der Untersuchungen in dieser Phase war es, das Verhalten reiner  $UO_2$ -Aerosole, die unter simulierten Störfallbedingungen erzeugt wurden, experimentell zu bestimmen.

Die  $UO_2$ -Aerosole wurden mit Hilfe der Stoßstromtechnik in zwei verschiedenen Volumina von  $2,2 \text{ m}^3$  und  $0,02 \text{ m}^3$  erzeugt. Die Abnahme der Teilchen- und Massenkonzentration mit der Zeit wurde über mehrere Tage gemessen. Es wurden Bestimmungen der Teilchengrößenverteilung durchgeführt. Die gemessenen primären Teilchenkonzentrationen lagen im Bereich um  $10^7$  Teilchen/cm<sup>3</sup>, die gemessenen primären Massenkonzentrationen im Bereich um  $100 \text{ mg/m}^3$ . Die vom Versuchsvolumen abhängige Abnahme der Konzentrationen betrug im Falle der Teilchenkonzentration mehrere Größenordnungen, im Falle der Massenkonzentration etwa eine Größenordnung.

Die Zeitfunktionen der Teilchenkonzentrationen können verschiedenen Aerosolprozessen, nämlich der Koagulation für den Anfangsbereich und der Sedimentation für den Endbereich, zugeordnet werden. Eine analytische Funktion, die sich aus diesen Aerosolprozessen ableitet, wurde entwickelt. Bei Anwendung eines empirischen Korrekturgliedes stimmt dieser analytische Ausdruck mit den gemessenen Teilchenkonzentrationskurven sehr gut überein. Es ist damit eine Möglichkeit gegeben, im Rahmen der experimentellen Genauigkeit und unter der Voraussetzung, daß nach größeren Volumina extrapoliert werden darf, Abschätzungen über die Abnahme von Konzentrationen nuklearer Aerosole in Reaktorgebäuden nach Störfällen vorzunehmen.

Der bei den bisherigen Experimenten noch nicht berücksichtigte Einfluß auf die Ergebnisse, der sich aus einer sehr hohen Anfangskonzentration, aus einer erhöhten Gastemperatur und aus der Bildung von Mischaerosolen ergeben könnte, soll im weiteren Verlauf des Aerosolprogramms untersucht werden.

## Summary

In the Karlsruhe Research Program on Nuclear Aerosols the behaviour of aerosols is investigated which can be formed during large accidents of fast nuclear reactors. The program is aimed at the development and at experimental verification of the so-called aerosol model which describes activity release via the transport characteristics of nuclear aerosols.

This report covers the first phase of the program in which the behaviour of  $UO_2$  aerosols in an inert atmosphere was investigated. The  $UO_2$  aerosols were created by the exploding wire technique in two different stainless steel vessels of  $2,2 \text{ m}^3$  and  $0,02 \text{ m}^3$  volume. The decrease of the particle number concentration and of the mass concentration with time was measured for various time intervals up to one week. The measured initial particle number concentrations of about  $10^7$  particles/ $\text{cm}^3$  decreased several decades whereas the measured initial mass concentration decreased ca. one decade during the experiments.

The shape of the time functions of particle number concentrations allows to distinguish between three ranges. The primary range can be attributed to the coagulation process, the final range can be attributed to the sedimentation process. An analytical expression was developed which gives by means of an empirical term good agreement between experiment and theory. This correlation gives the possibility, in the range of experimental errors and with the condition that extrapolation to larger volumes is allowed, to estimate the decrease of aerosol concentrations in nuclear reactor buildings as function of time.

The possible influence of extremely high initial concentrations, of elevated temperatures in the vessel atmosphere, and of the possible formation of mixed aerosols on the experimental results will be investigated further in the course of the research program on nuclear aerosols.

## Inhalt

1. Einleitung	- 1 -
2. Ziel der Untersuchungen	- 2 -
3. Durchführung der Experimente	
3. 1. Aerosolerzeugung	- 3 -
3. 2. Versuchsstand	- 4 -
3. 2. 1. Aerosolerzeugungskammer	- 5 -
3. 2. 2. Stoßstromanlage	- 5 -
3. 2. 3. Versuchskessel	- 6 -
3. 2. 4. Hilfsgeräte	- 6 -
3. 3. Aerosolmessung	- 6 -
3. 4. Probenahme	- 8 -
4. Ergebnisse	- 8 -
4. 1. Größenverteilung	- 9 -
4. 2. Massenkonzentration	- 11 -
4. 3. Teilchenkonzentration	- 12 -
4. 4. Fehlerbetrachtung	- 14 -
4. 5. Chemische Zusammensetzung des $\text{UO}_2$ -Aerosols	- 14 -
5. Diskussion	- 15 -
5. 1. Aerosolphysikalische Prozesse	- 16 -
5. 1. 1. Die Bedeutung der Koagulation	- 16 -
5. 1. 2. Die Bedeutung der Sedimentation	- 21 -
5. 2. Versuch einer analytischen Beschreibung der Abnahme der Teilchenkonzentration durch eine halbempirische Funktion	- 24 -
6. Zusammenfassung	- 25 -
Literatur	- 27 -
Verzeichnis der Tabellen	- 29 -
Verzeichnis der Abbildungen	- 30 -





## 1. Einleitung

In der Störfallanalyse von schnellen Reaktoren wird der Fall untersucht, daß durch Kühlungsstörungen oder Reaktivitätsstörungen Leistungsexkursionen ausgelöst werden, die zu starken Schäden am Reaktorkern, im Extremfall zum Niederschmelzen und Verdampfen eines Teils des Reaktorkerns führen. Obwohl derartige schwere Reaktorstörfälle heute als hypothetische Störfälle mit sehr kleiner Eintrittswahrscheinlichkeit eingestuft werden, müssen sie nach Ablauf und Folgen genau analysiert werden, um auch für den extrem unwahrscheinlichen Fall ihres Eintretens Gegenmaßnahmen vorbereiten zu können.

Derartige Störfälle können zu einer hohen primären Freisetzung von radioaktiven Stoffen in das Reaktorgebäude und im weiteren Verlauf des Störfalls zu einer erhöhten Aktivitätsfreisetzung in die Umgebung führen. Zur Bestimmung der Strahlenbelastung in der Umgebung muß die Aktivitätsfreisetzung als Funktion der Zeit genau bekannt sein. Während man früher die primäre Freisetzung durch die Annahme pauschaler Freisetzungsfaktoren zu beschreiben versuchte, wurde im Rahmen der vorliegenden Untersuchungen das sogenannte Aerosol-Modell entwickelt, das nicht von der primären Freisetzung ausgeht, sondern die zeitabhängige Freisetzung aufgrund längerfristig luftgetragener bleibender Schwebstoffe (Aerosole) behandelt [1], [2]. Das Aerosol-Modell ist insbesondere durch folgende Punkte gekennzeichnet:

- Die im schweren Unfall durch Verdampfen von Core-Material freigesetzten Feststoffe können nur als Aerosole luftgetragen bleiben.
- Wenn als Folge einer Core-Zerstörung (Verdampfen) große Mengen Aerosole von anfänglich hoher Massenkonzentration auftreten, so werden sich die sonst "flüchtigen" und ähnlichen Stoffe durch Wechselwirkung (Anlagerung etc.) mit diesen Aerosolen nicht mehr unabhängig verhalten. Die gebildeten Misch-Aerosole werden die Gesamtfreisetzung kontrollieren. Lediglich für die Spaltdelgase ist es offen, inwieweit eine Anlagerung stattfindet.
- Die Aktivitätsfreisetzung ist damit weitgehend unabhängig von irgendwelchen

primären Freisetzungsfaktoren. Sie hängt hauptsächlich von den zu erwartenden Massenkonzentrationen der die Aktivität tragenden Aerosole (Misch-aerosole) und deren zeitlichem Verlauf ab.

- Sofern der Reaktorstörfall mit der Verdampfung von Teilen des Reaktorkerns verbunden ist, sind die Einzelereignisse dieses Unfalls und ihr Ablauf weitgehend entkoppelt von der Aktivitätsfreisetzung durch Aerosole und damit von der Aktivitätsfreisetzung überhaupt.

Da die Massenkonzentrationen von nuklearen Aerosolen wegen der Unsicherheit in den abhängigen Parametern theoretisch nicht oder nur sehr ungenau abgeschätzt werden können [ 3 ], wurden experimentelle und theoretische Untersuchungen zum Aerosolverhalten begonnen. Das Forschungsprogramm zum Verhalten nuklearer Aerosole wurde in [ 2 ] beschrieben. Der Zusammenhang mit der Sicherheitsanalyse schneller Reaktoren wurde in [ 10 ] ausführlich diskutiert.

Im Mittelpunkt des Forschungsprogramms stehen Experimente, die die Reaktorstörfallverhältnisse in einem Versuchsbehälter nachbilden, wobei Aerosolerzeugung und Nachunfallatmosphäre entsprechend simuliert werden. Die im folgenden dargestellten Untersuchungsergebnisse beziehen sich auf die erste Phase des Aerosolprogramms.

## 2. Ziel der Untersuchungen

Ziel der Untersuchungen des Aerosolprogramms ist die Bestimmung derjenigen aerosolphysikalischen Parameter, die anhand des Aerosolmodells die Aktivitätsfreisetzung vollständig beschreiben. Die wichtigsten Größen sind

- die Massenkonzentration  $c_M$ . Das ist die - im allgemeinen in mg - angegebene Masse des Stoffes, der in  $1 \text{ m}^3$  als Schwebstoff vorhanden ist. Da die Aerosole stets Kräften (z. B. der Schwerkraft) unterworfen sind, ist die Massenkonzentration  $c_M$  eine Funktion der Zeit.
- die Partikelgröße und ihre Verteilung. Sie wird über die gemessene Summenkurve des Gauß'schen Fehlerintegrals erhalten und ist, sofern eine normale

oder logarithmisch-normale Verteilung vorliegt, durch die Angabe des mittleren Durchmessers und der entsprechenden Standardabweichung charakterisiert. Da der Partikeldurchmesser zeitabhängig ist, geht auch in die Verteilungsfunktion die Zeit als Parameter ein.

- die Teilchenkonzentration  $c_T$ . Das ist die Anzahl der Partikel, die unabhängig von ihrer Größe in einem bestimmten Volumen - im allgemeinen  $\text{cm}^3$  - als Schwebstoffteilchen vorkommen. Auch hier liegt eine Zeitabhängigkeit vor.

Zur vollständigen Beschreibung eines aerodispersen Systems gehören weitere Größen wie:

Ladungszustand  
chemische Natur  
Dichte  
Sedimentationsrate  
Koagulationsrate  
Diffusionskoeffizient

Es hat sich jedoch gezeigt, daß der Einfluß der Coulomb'schen Kraft für den vorliegenden Fall vernachlässigbar klein gegenüber anderen Kräften (z. B. der Gravitation) ist, da keine äußeren elektrischen Felder vorhanden sind und bei den relevanten Partikelgrößen nur wenige Elementarladungen je Partikel zu erwarten sind. Die chemische Natur des vorliegenden Aerosols kann im allgemeinen ohne Schwierigkeiten ermittelt werden. Sie kann von Bedeutung für eine Reihe von Aerosolprozessen sein.

Die übrigen Größen, die wir als sekundäre Aerosolkenngrößen bezeichnen, sind einer direkten Messung nicht zugänglich und müssen berechnet werden.

### 3. Durchführung der Experimente

#### 3. 1. Aerosolerzeugung

Da die Experimente die Störfallverhältnisse möglichst gut simulieren sollen, waren zunächst zwei Fragen zu beantworten:

- Welches ist das geeignete Material, aus dem das Aerosol erzeugt wird und
- welche ist die geeignete Technik, mit deren Hilfe das Aerosol hergestellt wird.

Die Stoffe, die in einem Reaktorkern vorliegen und die als feste Schwebstoffpartikel auftreten können, sofern der Brennstoff bei einem schweren Störfall auf hohe Temperaturen erhitzt wird, setzen sich zusammen aus dem Brennstoff- und Brutstoffmaterial, Kühlmittel, Strukturmaterial und Spaltprodukten. Obwohl das im Brennstoff schneller Reaktoren enthaltene Plutonium wegen seiner strahlenbiologischen Gefährlichkeit vom Aspekt der Sicherheit aus das wichtige Element darstellt, ist Urandioxid ( $\text{UO}_2$ ) aus zwei Gründen als Ausgangsmaterial für die Aerosolerzeugung ausgewählt worden. Zum einen überwiegt  $\text{UO}_2$  im Brennstoff  $\text{PuO}_2$  erheblich, so daß beim Verdampfen überwiegend  $\text{UO}_2$  im Aerosol auftritt und der Anteil des Plutonium an dem zu erwartenden Mischaerosol relativ gering ist, zum anderen ist die Handhabung von  $\text{PuO}_2$  insbesondere, wenn es zerstäubt wird, aus Strahlenschutzgründen schwierig und aufwendig.

Als Probekörper wird ein 40 mm langer stranggepreßter Urandioxid Zylinder mit 4 mm Durchmesser verwendet. Die durchschnittliche Dichte beträgt 95,5 % der theoretischen Dichte von  $10,96 \text{ g/cm}^3$ .

Als Mittel zur Herstellung des  $\text{UO}_2$ -Aerosols ist die Stoßstromtechnik ausgewählt worden. Gegenüber den anderen drei Methoden - Verbrennen, Bogenentladung, Abdampfen aus einem elektrisch beheizten Schiffchen - bietet die Stoßstromanlage einen entscheidenden Vorteil. Es ist nämlich möglich, einen dosierten Energiebeitrag in einer bestimmten Zeitspanne in die  $\text{UO}_2$ -Probe einzubringen. Dabei sind sowohl Energie als auch Einbringzeit als Parameter unabhängig voneinander einstellbar.

### 3. 2. Versuchsstand

Die Experimente werden am Versuchsstand TUNA (Teststand für die Untersuchung nuklearer Aerosole) durchgeführt. Dieser besteht im wesentlichen aus vier Anlagen-

komponenten (Abb. 1),

- der Aerosolerzeugungskammer
- der Stoßstromanlage
- dem Versuchskessel und
- den Hilfsanlagen.

### 3. 2. 1. Aerosolerzeugungskammer

In der Aerosolerzeugungskammer aus Edelstahl (Werkstoffnummer 4541) ist die Haltevorrichtung - in Form von zwei Tantalelektroden - für den  $UO_2$ -Probekörper installiert. Die Elektroden sind über zwei massive Kollektoren mit den Stromzuführungskabeln verbunden.

Die Durchführungen für die Stromversorgungskabel zur Vorheiztechnik sind am Deckel-  
flansch angebracht. Die - "Glocke" genannte - Aerosolerzeugungskammer ist mit ihrem unteren Flansch am oberen Ende des Versuchskessels angeflanscht. Ihr Volumen beträgt  $0,02 \text{ m}^3$ , die Höhe  $0,34 \text{ m}$ .

### 3. 2. 2. Stoßstromanlage

Mit Hilfe der Stoßstromanlage werden nach einem Vorheizvorgang, um die  $UO_2$ -Probe elektrisch leitfähig zu machen, je nach eingebrachter Energie Teile der Probe verdampft und damit über einen Rekondensationsprozess Aerosole erzeugt.

Die maximale Ladespannung der Kondensatorbatterie beträgt  $18 \text{ KV}$ , das entspricht bei  $352 \mu\text{F}$   $57 \text{ kW}$ s. Die Einbringzeit hängt in der Hauptsache von der im Entladekreis vorhandenen Induktivität ab. Dies sind maximal  $12 \text{ mH}$ , das entspricht ca.  $3 \text{ msec}$ . Die untere Schranke ist durch die Mindestinduktivität von ca.  $10 \mu\text{H}$ , entsprechend ca.  $0,1 \text{ msec}$  Entladezeit, gegeben.

Durch die Wahl der geeigneten Parameter der Stoßstromanlage können die für einen

Reaktorunfall charakteristischen Aerosolerzeugungsbedingungen simuliert werden:

Spezifische Energie in der  $UO_2$ -Probe: ca. 500 Wsec/g  
Energieeinbringzeit : 0,1 msec, bzw. 3 msec

### 3. 2. 3. Versuchskessel

Im Versuchskessel, der ebenfalls aus Edelstahl besteht (Werkstoffnummer 4541), können die einer Nachunfallsituation entsprechenden Bedingungen, denen das Aerosol ausgesetzt ist, hergestellt werden. Für die bisher durchgeführten Experimente sind folgende Bedingungen eingestellt worden:

Druck	: 1 at
Temperatur	: 20°C
Relative Feuchte	: 10 %
Atmosphäre	: Stickstoff, gefiltert

Das Volumen des Kessels beträgt 2,22 m<sup>3</sup>, die Höhe 2,90 m.

### 3. 2. 4. Hilfsgeräte

Hierzu gehören Pumpen, Sicherheitsventile, Filter- und Temperaturregelungsanlagen.

Die wichtigsten Daten sind in den Tabellen 1 bis 4 zusammengestellt.

### 3. 3. Aerosol-Messung

Mit den verschiedenen zur Verfügung stehenden Aerosol-Meßgeräten (Abb.2) wird das gesamte Teilchengrößenspektrum der Aerosolphysik (0,001 µm bis 100 µm) überdeckt.

Im allgemeinen kann man die in der Aerosolphysik verwendeten Meßgeräte nach drei

verschiedenen Arbeitsprinzipien klassifizieren:

- mechanisch
- elektrisch
- optisch

Zur ersten Rubrik der am TUNA eingesetzten Geräte zählen der Thermalpräzipitator zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung, der Sedimentationsprobensammler zur Bestimmung des Stoke'schen Äquivalenz- oder Sedimentationsdurchmessers und die Filtermethode zur Bestimmung der Massenkonzentration. Durch Wägung vor und nach der Beaufschlagung wird die Massenkonzentration gravimetrisch ermittelt.

Zur zweiten Rubrik zählt der elektrostatische Point-to-Plane-Abscheider [4] zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung. Während dieses Gerät für geplante Experimente bei erhöhter Temperatur und bei erhöhtem Druck ebenfalls verwendet werden kann, müssen dann der Thermalpräzipitator und die optischen Meßgeräte ausfallen. Mit dem Thermalpräzipitator, dem Sedimentationsprobensammler und dem Point-to-Plane-Abscheider werden die Aerosole auf geeignete Folien niedergeschlagen und dann im Elektronen- und/oder Lichtmikroskop fotografiert.

Die optischen Meßgeräte sind der Bausch und Lomb Dust-Counter und der Kondensationskernzähler von General Electric. Beide Geräte arbeiten nach der Streulicht-Methode. Der Dust-Counter erfaßt die Aerosolpartikel unbeeinflusst im luftgetragenen Zustand bis herunter zu 0,3 µm Partikeldurchmesser. Der Kondensationskernzähler arbeitet nach dem Nebelkammerprinzip und erfaßt damit besonders die sehr kleinen Teilchen, ohne sie allerdings nach ihrer Größe zu klassifizieren.

Zum Vergleich ist in Tabelle 5 noch zusätzlich das Laser-Aerosol-Spektrometer aufgeführt, das beim Battelle-Institut in Frankfurt entwickelt worden ist. Dieses Gerät wird im weiteren Verlauf des experimentellen Programms am Versuchsstand TUNA eingesetzt.

### 3. 4. Probenahme

Zur Messung der Teilchenkonzentration und der Massenkonzentration sind verschiedene Experimente in Kurzzeit- und Langzeitversuchen durchgeführt worden. Diese Aufteilung ergibt sich aus der Notwendigkeit einer relativ häufigen Probenahme im ersten Zeitbereich des Experimentablaufs, da hier die Konzentration sehr rasch abfällt.

Da die Probenahme im Loopbetrieb (Abb. 3) ausgeführt werden muß, sind der zweite und alle folgenden Meßwerte zu korrigieren, d. h. es muß berücksichtigt werden, daß ein bestimmtes mit Aerosol beladenes Gasvolumen nach der Filtration wieder in den Kessel zurückströmt. Um bei einem Langzeitversuch den Fehler der letzten Meßpunkte auf Grund des Fehlerfortpflanzungsgesetzes nicht zu groß werden zu lassen, werden hier zu Beginn nur wenige Proben genommen.

Als Korrekturterm wird das Verhältnis von abgesaugter zu gesamt vorhandener Aerosolmenge angesetzt. Weiter werden für die Korrektur die Annahmen zugrunde gelegt,

1. daß jede Probenahme zeitlich als differentiell aufgefaßt werden kann,
2. daß die abgesaugte Aerosol-Konzentration repräsentativ ist für die noch im Versuchsvolumen vorhandene Aerosolkonzentration.

Daß die beiden Annahmen berechtigt sind, ist durch Tests mit zeitlich verschiedener Probenahme nachgewiesen worden.

### 4. Ergebnisse

Die Ergebnisse der bisherigen Experimente können in zwei Gruppen (Tabelle 6) eingeteilt werden. Sie unterscheiden sich dadurch, daß das Zeitverhalten des Aerosols einmal im Kessel (großes Volumen:  $2,225 \text{ m}^3$ ) bei verhältnismäßig niedrigen, zum anderen in der Glocke (kleines Volumen:  $0,022 \text{ m}^3$ ) bei relativ hohen Massenkonzentrationen untersucht worden ist. Das Konzept der Volumenvariation ist gewählt worden, um konstante Aerosolerzeugungsbedingungen zu erreichen. Bei einigen Versuchen ist die Energieeinbringzeit variiert worden.



#### 4. 1. Größenverteilung

Die Teilchengrößenverteilung ist durch eine statistische Auswertung von licht- und elektronenmikroskopischen Aerosolfotogrammen bestimmt worden. Die gemessene Größenverteilung folgt sehr gut einer logarithmischen Normalverteilung.

Der mittlere geometrische Durchmesser und die geometrische Standardabweichung werden dabei dem Graphen der Summenkurve entnommen.

Wie bereits erwähnt, ist der Partikeldurchmesser auf Grund verschiedener aerosolphysikalischer Prozesse (z. B. Koagulation) zeitabhängig. Gerade wegen der Koagulation vergrößern sich die primär erzeugten Partikel innerhalb sehr kurzer Zeit, so daß mit konventioneller aerosolphysikalischer Meßtechnik eine Messung dieser primären Partikelgrößen unmöglich wird. Daher wird zur Bestimmung der Primärpartikelgrößen und ihrer Verteilung ein eigenes Versuchsprogramm durchgeführt.

Erste Ergebnisse daraus sind [5] :

- Die Größenverteilung der Primärpartikel ist logarithmisch normal.
- Der mittlere geometrische Durchmesser wurde zu  $d_g = 0,073 \mu\text{m}$  mit einer geometrischen Standardabweichung von  $\sigma_g = 1,85$  bestimmt.

Die primären  $\text{UO}_2$ -Aerosolpartikel lagern sich auf Grund des Koagulationsprozesses im weiteren Verlauf des Aerosolverhaltens zu langen (Größenordnung:  $5 \mu\text{m}$ ) Ketten aneinander; diese bilden ihrerseits sehr unterschiedliche, irreguläre Agglomerate (Abb. 9).

Auf Grund dieser Tatsache ist eine exakte statistische Auswertung durch Größenklassifikation der Partikel auf elektronenmikroskopischen Aufnahmen nur schwer möglich. Hier dient zur Charakterisierung die Angabe des aus dem Stoke'schen Gesetz abgeleiteten aerodynamischen Durchmessers. Dieser Wert gibt den Durchmesser einer Kugel an, die die gleiche Dichte und die gleiche Sedimentationsgeschwindigkeit wie das Teilchen hat [6]. Berechnet man nach der durch die Cunningham'sche Korrektur modifizierten Stoke'schen Formel den Sedimentationsdurchmesser für den Zeitbereich von 3 Stunden nach der  $\text{UO}_2$ -Probenexplosion, so ergibt sich:

$$d_S = \sqrt{\frac{18\eta v_S}{g \rho} + A^2 l^2} - A l \quad (1)$$

$\eta$  = Viskosität von Stickstoff:  $1,7 \cdot 10^{-4}$  Poise

$v_S$  = Sedimentationsgeschwindigkeit:

$$v_S = \frac{H}{t} = \frac{\text{Höhe: } 250 \text{ cm}}{\text{Zeit: } 3 \text{ h}}$$

$g$  = Erdbeschleunigung:  $981 \text{ cm/sec}^2$

$\rho$  = theoretische Dichte von  $UO_2$  :  $10,96 \text{ g/cm}^3$

$A$  = Cunningham'scher Korrekturfaktor:  $0,864 \sqrt[6]{}$

$l$  = mittlere freie Weglänge der Gasmoleküle:  $0,6 \cdot 10^{-4} \text{ cm}$

Mit diesen Werten ergibt sich:

$$d_S = 0,46 \mu\text{m} \pm 0,07 \mu\text{m}$$

Die Fehlerunsicherheit ergibt sich aus der Expositionsdauer des Sedimentationsprobensammlers von 60 Minuten.

Während man die obengenannte Primärpartikelgröße von ca.  $0,07 \mu\text{m}$  einem Anfangsstadium (Bereich null - siehe Kapitel 5 - ) zuordnen kann, läßt sich mit der Größenangabe  $d_S = 0,46 \mu\text{m}$  der darauf folgende Bereich eins (siehe Kapitel 5) charakterisieren.

Für diese Annahme spricht auch die Tatsache, daß drei weitere, unabhängige Angaben über den Partikeldurchmesser in diesen Größenbereich fallen:

- Mit dem elektrostatischen Point-to-Plane Staubabscheider sind nach 2,2 Stunden Aerosolproben auf elektronenmikroskopische Objektträger (Abb. 10) abgeschieden worden, deren Auswertung eine logarithmische Normalverteilung mit einem mittleren geometrischen Durchmesser von  $0,43 \mu\text{m}$  ergibt. Die geometrische Standardabweichung ergibt sich zu  $\sigma_g = 2,18$  (Abb. 11).

Diese Werte werden der mit einem Rechenprogramm  $\sqrt[7]{}$  ermittelten Bestgeraden entnommen.

- Aus den Meßergebnissen zur Massen- und Teilchenkonzentration läßt sich unter der Annahme kugelförmiger Partikel mit theoretischer Dichte der folgende Durchmesser berechnen:

$$c_T \cdot V \cdot \rho = c_M \quad (2)$$

$$d = \sqrt[3]{\frac{c_M \cdot 6}{c_T \cdot \pi \cdot \rho}} \quad (3)$$

Mit den Werten:

$$c_M = 11,4 \text{ mg/m}^3 \approx 11,4 \cdot 10^{-9} \text{ g/cm}^3 \quad (\text{Massenkonzentration (Abb. 5)})$$

zum Zeitpunkt  $t = 3$  Stunden)

$$c_T = 4,5 \cdot 10^4 \text{ T/cm}^3 \quad (\text{Teilchenkonzentration zum Zeitpunkt } t = 3 \text{ Stunden})$$

$$\rho = 10,96 \text{ g/cm}^3 \quad (\text{theoretische Dichte von } \text{UO}_2)$$

ergibt sich

$$d = 0,36 \text{ } \mu\text{m}$$

- Mit dem Bausch und Lomb Dust-Counter kann die häufigste Teilchengröße zu

$$d < 1 \text{ } \mu\text{m}$$

ermittelt werden. Ein genauerer Wert läßt sich wegen der für dieses Gerät zu hohen Teilchenkonzentration nicht angeben.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß in diesem Zeitbereich die häufigst vorkommende Teilchengröße unter  $1 \text{ } \mu\text{m}$  liegt, jedoch größer als  $0,3 \text{ } \mu\text{m}$  ist.

#### 4. 2. Massenkonzentration

Die Experimente zur Massenkonzentration sind in Kurzzeit- (Abb. 4, 5) und Langzeit-Versuchen (Abb. 6) ausgeführt worden.

Abb. 7 (Versuch 152) stellt den Kurvenverlauf dar, der in der Glocke gemessen worden ist. In dieser Abbildung ist der einzig ausgeführte Meßwert bei Versuch 151 als Stern eingezeichnet. Aus der Tatsache, daß der Meßwert in den ersten Bereich dieser Kurve fällt, schließen wir, daß die Anfangsmassenkonzentration - wie in Versuch 152 tatsächlich gemessen - ebenfalls über  $1000 \text{ mg/m}^3$  gelegen hat.

Massenkonzentrationen, die niedriger als  $20 \text{ mg/m}^3$  sind, können bei dem kleinen Versuchsvolumen wegen der dann unter die Empfindlichkeit der gravimetrischen Methode absinkenden Massenkonzentration nicht mehr nachgewiesen werden. Die beaufschlagte Aerosolmenge unterschreitet dann die Nachweisgrenze der Filter-Methode, die durch die Schwankungen des Filtergewichts auf Grund von Feuchtigkeitsaufnahme gegeben ist. Zum Vergleich sind die beiden Massenkonzentrationsabnahmekurven in Glocke und Kessel in einer Darstellung (Abb. 8) aufgezeichnet.

Der Kurvenverlauf zeigt, daß nach einer anfänglichen, sehr raschen Abnahme nach etwa 1 Tag (maximal 26 h) ein Zustand erreicht wird, (zwischen  $4 \text{ mg/m}^3$  und  $5 \text{ mg/m}^3$ ) von dem aus die Konzentration nur noch sehr langsam (mit Halbwertszeiten größer als 100 h) abnimmt. Eine Massenkonzentration zwischen  $3 \text{ mg/m}^3$  und  $4 \text{ mg/m}^3$  ist noch nach vier Tagen (Abb. 6) luftgetragen. Diese Tatsache ist besonders für Dosisberechnungen nach schweren Unfällen bedeutsam.

Im ersten Bereich ( $\leq 1 \text{ d}$ ) tritt eine gesetzmäßige Kopplung der ursprünglich erzeugten Konzentration und der Halbwertszeit der Abnahme zutage.

Bildet man das Produkt aus der auf den Zeitpunkt null hin extrapolierten Massenkonzentration ( $c_{Mo}$ ) und der dazugehörigen Halbwertszeit ( $t_{HM}$ ), so stellt man fest, daß die Schwankung nur maximal 14 % beträgt, während sich die Ausgangsgrößen ( $c_{Mo}$  und  $t_{HM}$ ) um einen Faktor von maximal 85 unterscheiden. Tabelle 7 verdeutlicht diesen Sachverhalt.

#### 4. 3. Teilchenkonzentration

Da zur Messung der Teilchenkonzentration nur eine sehr kleine Aerosolmenge (ca. 1 ltr.) benötigt wird, ist bei dem großen Kesselvolumen eine besondere Messung für

den Kurzzeitbereich nicht notwendig. Die Abbildungen 12 und 13 zeigen den zeitlichen Verlauf der Konzentrationsabnahme von zwei Experimenten. Ein Zwischenbereich in Abbildung 12 ist gestrichelt gezeichnet, weil der wahre Verlauf hier nicht bekannt ist.

Da die primär erzeugte Konzentration über dem Meßbereich des Kondensationskernzählers von  $10^7$  T/cm<sup>3</sup> liegt (siehe auch Abb. 14 und 15), kann erst nach einer gewissen Zeit (meist nach etwas mehr als 1 Minute) mit den Messungen begonnen werden. Nach etwa 24 Stunden ist die Konzentration unter  $10^4$  T/cm<sup>3</sup> abgesunken und mündet hier in einen nahezu exponentiell abklingenden Kurvenbereich ein. Nach 65 Stunden verläuft der Abnahmeprozess exakt exponentiell. Für die Halbwertszeit in diesem Kurvenast ergibt sich ein Wert von 23,5 Stunden (Abb. 13).

Aus Abbildung 13 ersieht man, daß erst nach mehr als 5 Tagen die Teilchenkonzentration in den Untergrundbereich des Kondensationskernzählers von ca.  $100$  T/cm<sup>3</sup> absinkt. Diese Konzentration wird auch in einer gefiltert in das Meßvolumen eingebrachten Gasatmosphäre gemessen, so daß zwischen Untergrund und nuklearen Aerosolpartikeln nicht mehr eindeutig unterschieden werden kann.

Die Abnahmekurven (Abb. 14 und 15) der Teilchenkonzentration im Explosionskammervolumen zeigen zwei auffällige Unterschiede zu denen im Kessel:

- Der zweite - halblogarithmisch aufgetragen - geradlinig verlaufende Kurvenast beginnt sehr früh: nach ca. 5 Stunden.
- Die Halbwertszeit dieses zweiten Teiles ist relativ kurz: 2,0 Stunden (Abb. 14) bzw. 2,3 Stunden (Abb. 15).

Der Untergrundbereich wird demnach bereits nach ca. 21 Stunden (Abb. 15) erreicht.

In Abbildung 16 sind zum Vergleich die Abnahmekurven der Teilchenkonzentration im Kessel- bzw. im Explosionskammervolumen in eine Darstellung eingezeichnet.

#### 4. 4. Fehlerbetrachtung

Der Fehler bei den Massenkonzentrationsmessungen setzt sich aus vier Anteilen zusammen.

- Den größten Anteil von maximal 12 % nimmt dabei die Wägeunsicherheit ein, welche durch die Gewichtsschwankungen der Filter auf Grund von Feuchtaufnahme verursacht wird.
- Einen Anteil von maximal 2 % macht der durch den Korrekturterm bedingte Fehler auf Grund des Fehlerfortpflanzungsgesetzes aus.
- Die Volumenmessung und
- die Zeitmessung verursachen einen Fehler von zusammen 0,5 %.

Es ergibt sich damit ein maximaler Gesamtfehler von 14,5 %, der durch hohe Beaufschlagungsmengen auf dem Filter reduziert werden kann.

Der Fehler bei den Teilchenkonzentrationsmessungen setzt sich aus drei Anteilen zusammen:

- Ableseungenauigkeit am Meßgerät von 1 %.
- Statistischer Fehler
- Die Meßunsicherheit am Gerät, die durch das nicht kernfrei in das Versuchsvolumen einbringbare Gas verursacht wird, d. h. der Untergrund am Kondensationskernzähler. Dieser Fehler wirkt sich verständlicherweise bei kleinen Konzentrationen am weitaus stärksten aus.

Es ergibt sich damit ein Gesamtfehler von etwa 1 % am Anfang, der bei den letzten Meßwerten bis auf 60 % anwächst.

#### 4. 5. Chemische Zusammensetzung des $UO_2$ -Aerosols

Das auf einem Filter abgeschiedene  $UO_2$ -Aerosol ist auf möglicherweise auftreten-

de Verunreinigungen hin emissionsspektroskopisch untersucht worden. Aus dem Ergebnis läßt sich ein Gesamtverunreinigungsgrad von kleiner als 0,1 % feststellen.

Folgende Verunreinigungen können auftreten und sind in der Tat gefunden worden:

- Tantal, weil die Halterungselektroden für die  $UO_2$ -Probe aus Tantal bestehen.
- Wolfram, weil das Reflektorblech des Vorheizofens aus Wolfram besteht.
- Eisen, Nickel, Mangan, weil die Ofenhalterung aus Stahl besteht.

Die Struktur des abgeschiedenen  $UO_2$ -Aerosols ist ebenfalls untersucht worden. Für die Versuche, die in Stickstoffatmosphäre durchgeführt worden sind, ergibt sich ein  $UO_2$ -Gitter. Bei einem Versuch (137) ist als Trägergas Luft verwendet worden. Hier ergibt sich eine aufgeweitete  $U_3O_8$ -Struktur. Das bedeutet, daß sich das  $UO_2$  während des Herstellungsvorganges bei Vorhandensein von Sauerstoff höher aufoxidiert.

## 5. Diskussion

Für eine erste theoretische Modellvorstellung lassen sich die Ergebnisse der Konzentrationsmessungen vereinfachend zusammenfassen, wenn man die Kurven in drei Zeitbereiche einteilt (Tabelle 6):

- Bereich null, der sich zeitlich über Minuten erstreckt, und in dem die Teilchenkonzentration sehr rasch abfällt,
- Bereich eins, ein Zwischenbereich, in dem die Kurven (sowohl der Massenkonzentration, als auch der Teilchenkonzentration, zeitlich jedoch unterschiedlich) in einen Endbereich einmünden,
- Bereich zwei, Endbereich, in dem die Massen- und Teilchenkonzentrationsabnahmen relativ große Halbwertszeiten aufweisen, besonders im großen Versuchsvolumen.

## 5. 1. Aerosolphysikalische Prozesse

Die Kräfte, die in unserem Falle am intensivsten auf das Aerosol einwirken, sind die van der Waal'sche Kraft und die Gravitation. Unter dem Einfluß der van der Waal'schen Kraft bleiben Partikel, die wegen Diffusion zusammenstoßen, aneinanderhaften. Die auf diese Weise - durch Koagulation - entstehenden Agglomerate vergrößern ihr Volumen und ihr Gewicht und sedimentieren unter dem Einfluß der Gravitation aus.

Einen nicht unbedeutenden Beitrag zu Transportphänomenen und damit zur Vermischung des Aerosols und zur Homogenisierung der Konzentration dürften die auf Grund von Temperaturgradienten auftretenden Konvektionsströmungen leisten.

Somit können als die wichtigsten aerosolphysikalischen Prozesse angesehen werden:

- Koagulation
- Sedimentation
- Diffusion
- konvektiver Transport

Es ist jedoch zu beachten, daß für die Abscheidung von Aerosolpartikeln und für die damit verbundene "Dekontamination" nur die Sedimentation und die Diffusionsverluste an Boden, Decke und Wänden wirksam sind. Die Diffusion liefert dabei einen wesentlich geringeren Beitrag zur Gesamtabscheidung.

### 5. 1. 1. Die Bedeutung der Koagulation

Obwohl die genannten Prozesse in einer komplexen Weise stets und gleichzeitig zusammenwirken, lassen sie sich mit unterschiedlichem Gewicht einzelnen der oben definierten Zeitbereiche zuordnen. So sprechen mehrere Gründe dafür, daß im Bereich null der Vorgang der Koagulation als der vorherrschende Prozess wirksam ist. Diese Gründe sollen im folgenden näher erläutert werden.



- a) Da die Koagulation nicht unmittelbar einen Beitrag zur Verringerung der Massenkonzentration leistet, ist diese Abnahme zeitlich verzögert gegenüber der Abnahme der Teilchenkonzentration. Dies kann durch die Meßkurven belegt werden. Vergleicht man die Zeit, die benötigt wird, bis die Massen- bzw. die Teilchenkonzentration auf ca. den 10. Teil ihres Anfangswertes absinkt, so erhält man die Ergebnisse, die in Tabelle 8 wiedergegeben sind. Danach treten die veränderten Werte im Falle der Massenkonzentrationsabnahme um den Faktor 20 später auf als bei der Teilchenkonzentrationsabnahme. Die Verzögerung erklärt sich dadurch, daß die Partikel zuerst zu Agglomeraten koagulieren und dann erst einem schnelleren Sedimentationsprozess unterworfen sind auf Grund der quadratischen Abhängigkeit der Sedimentationsgeschwindigkeit vom Partikelradius.
- b) Der zweite Grund für die Dominanz der Koagulation im Bereich null ergibt sich aus der Anwendung der Koagulationsgleichung, die v. Smoluchowski [8] unter den Annahmen Monodispersität, keine äußeren Kräfte und kugelförmige Partikel abgeleitet hat.

Sie lautet:

$$\frac{d c_T}{dt} = -K c_T^2 \quad (4)$$

Durch Integration folgt:

$$\frac{1}{c_T} - \frac{1}{c_{T0}} = Kt \quad (5)$$

- $c_T$  = Teilchenkonzentration zur Zeit  $t$   
 $c_{T0}$  = Teilchenkonzentration zur Zeit  $t = 0$   
 $K$  = Koagulationskonstante  
 $t$  = Zeit

Trägt man die Teilchenkonzentration reziprok als Funktion der Zeit auf, so liegt der erste Teil der Meßkurven tatsächlich sehr gut auf einer Geraden (Abb. 17 und Abb. 18).

In Abb. 17 ist der erste Teil gestrichelt gezeichnet, weil hier der Kurvenverlauf nicht bekannt ist; die Kurve kann aber nicht negativ werden, andererseits aber auch kein Minimum durchlaufen.

Aus der Steigung der Geraden ergibt sich die Koagulationskonstante bei Abbildung 17 (Glocke:  $0,02 \text{ m}^3$ ):

$$K = 63,5 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}$$

und bei Abbildung 18 (Kessel:  $2,2 \text{ m}^3$ ):

$$K = 19,3 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}$$

Dieser Unterschied ist ohne weiteres nicht verständlich, wenn man annimmt, daß die Teilchenkonzentration lediglich durch Koagulation abnimmt. Im Hinblick auf die unterschiedlichen Volumina ist jedoch ein größerer Einfluß von Sedimentation und Diffusion im kleinen Volumen denkbar, so daß sich damit Unterschiede in den Koagulationskonstanten erklären lassen. Ein weiterer Hinweis darauf ist die Tatsache, daß nach Abb. 8 in dem durch Koagulation kontrollierten Anfangsbereich die Massenkonzentrationen unterschiedlich abnehmen.

- c) Der dritte Grund für die Bedeutung der Koagulation im Bereich null ergibt sich aus einer Abschätzung über die Größe der Sedimentation in diesem Bereich.

Für die Abnahme der Massenkonzentration als Funktion der Zeit für den Fall des sogenannten "stirred settling" geben Fuchs [6] und Sinclair [9] die Formeln an:

$$-\frac{d}{dt} \log c_M = \gamma' \frac{\rho}{h} d^2_8 \quad (6)$$

Dimensionen im CGS-System

$h$  = Höhe des Versuchsvolumens

$\rho$  = Dichte

$$\log d_g^2 = 2 \log \bar{d}_g + 18,424 \log^2 \sigma_g \quad (7)$$

$\bar{d}_g$  = mittlerer geometrischer Durchmesser (CMD = Count mean diameter)

$\sigma_g$  = geometrische Standardabweichung

Der Faktor  $\gamma'$  hat die Dimension  $\text{cm}^2/\text{g sec}$  und ergibt sich zu:

$$\gamma' = \frac{v_S}{d^2 \rho} \cdot \log e \quad (8)$$

$v_S$  = Stoke'sche Sedimentationsgeschwindigkeit

Mit  $v_s = \frac{1}{18} \frac{d^2 \rho g}{\eta}$  folgt

$$\gamma' = \frac{1}{18} \cdot \frac{g}{\eta} \cdot \log e \quad (9)$$

Nun wird eingeführt:

$$\gamma = \gamma' \ln 10 \quad (10)$$

Damit ergibt sich nach Integration von Gleichung (6) der Bruchteil, der luftgetragen bleibt, zu:

$$\frac{c_M}{c_{Mo}} = e^{-\gamma \rho \frac{d^2 g}{h} \cdot t} \quad (11)$$

Setzt man den aus den Auswertungen der elektronenmikroskopischen Fotogramme gewonnenen Durchmesser der mit dem elektrostatischen Aerosolabscheider abgeschiedenen Partikel in die Formel (7) ein, so ergibt sich (Experiment 161):

$$\bar{d}_g = 0,47 \mu\text{m} \quad \text{für } t = 60 \text{ min} = 3600 \text{ sec}$$

$$\sigma_g = 1,91$$

und somit nach Gleichung (7):

$$d_g = 2,51 \mu\text{m}$$

Aus Abbildung 7 läßt sich der für die Glocke mit der Höhe  $h = 34 \text{ cm}$  und für den Zeitpunkt  $t = 60 \text{ min}$  gültige Bruchteil  $\frac{c_M}{c_{Mo}}$  experimentell bestimmen zu:

$$\frac{c_M}{c_{Mo}} = 10,8 \%$$

Formel (11) läßt sich an diese experimentellen Daten durch den "Porenfaktor"  $p_f$  angleichen, der den Bruchteil der Agglomeratendichte in Relation zur theoretischen Dichte angibt:

$$\rho_A = p_f \cdot \rho_{th} \quad (12)$$

$\rho_A$  = Dichte der Agglomerate

$\rho_{th}$  = theoretische Dichte

$p_f$  = Porenfaktor

Es ergibt sich somit:

$$0,108 = e^{-\gamma} \cdot \frac{10,96 \cdot p_f \cdot 6,3 \cdot 10^{-8} \cdot 3,6 \cdot 10^3}{34}$$

Mit  $\gamma = 3 \cdot 10^5 \frac{\text{cm}^2}{\text{g} \cdot \text{sec}}$  ergibt sich

$$p_f = 0,1 \quad (13)$$

Berechnet man mit diesen Daten den Anteil des Schwebstoffes bei wesentlich geringeren Konzentrationen, so ergeben sich die Werte, die in Tabelle 9 zusammengestellt sind. Diese Experimente wurden im TUNA-Kessel durchgeführt, so daß

jetzt für die Höhe  $h$  der Wert 324 cm eingesetzt werden muß.

Man erkennt, daß die gemessenen Massenkonzentrationen durchweg höher liegen als der berechnete Wert. Das bedeutet, daß die Gleichung (8), die nur Sedimentation berücksichtigt, den Konzentrationsabnahmeprozess für die ersten 60 Minuten nicht exakt beschreibt, sofern man den Porenfaktor als konstant voraussetzt, was hier jedoch als sehr wahrscheinlich angesehen werden kann. Daraus läßt sich folgern, daß die Sedimentation im Anfangsbereich nicht vorherrschend ist.

### 5. 1. 2. Die Bedeutung der Sedimentation

Nachdem im vorhergehenden Kapitel aus drei Gründen die Koagulation überwiegend dem Bereich null zugeschrieben worden ist, werden im folgenden die Bereiche eins und zwei diskutiert. Dabei erkennt man, daß der Bereich eins sehr stark den Charakter einer Übergangsphase trägt, und daß er sich daher einer eindeutigen Zuordnung zu einem Aerosolprozess entzieht. Dagegen lassen sich für Bereich zwei deutliche Aussagen machen, wenn man die Sedimentation als den vorherrschenden Prozess ansieht.

Hierfür lassen sich mehrere Gründe anführen:

a) Im Bereich zwei nimmt die Teilchenkonzentration im Explosionskammervolumen wesentlich schneller ab als im Kesselvolumen (Abb. 16). Wie bereits erwähnt, beträgt die Höhe, die den Sedimentationsvorgang bestimmt,

- für den Kessel 324 cm
- für die Glocke 34 cm

Aus der Gleichung für die Sedimentation (stirred settling) läßt sich dieser Zusammenhang sofort erkennen:

$$d c_T = - \frac{1}{h} c_T \cdot v_S dt \quad (14)$$

b) Für die Abnahme der Teilchenkonzentration als Funktion der Zeit verwenden wir die Formel (stirred settling):

$$-\frac{d}{dt} \log c_T = 1,3 \cdot 10^5 \frac{\rho}{h} d_6^2 \quad (15)$$

$d_6$  ist der mittlere geometrische Gewichtsduchmesser einer logarithmischen Normalverteilung.  $d_6^2$  berechnet sich aus dem mittleren geometrischen Durchmesser  $\bar{d}_g$  nach der Formel:

$$\log d_6^2 = 2 \log \bar{d}_g + 13,818 \log^2 \sigma_g \quad (16)$$

Aus (15) folgt somit:

$$\frac{c_T}{c_{T_0}} = e^{-\gamma \frac{\rho d_6^2}{h} t} \quad (17)$$

Diese einem Exponentialgesetz folgende Abnahme der Teilchenkonzentration kann für den Bereich zwei (Abb. 13 und Abb. 15) tatsächlich nahezu exakt bestätigt werden.

Da  $c_{T_0}$  eine nur für den Sedimentationsvorgang gültige Anfangsbedingung darstellt, welche in Wirklichkeit nicht vorkommt, ist es sinnvoll, Gleichung (17) physikalisch verständlicher umzuschreiben in die Form:

$$\frac{c_T}{c_{T_S}} = e^{-\gamma \cdot \frac{\rho d_6^2}{h} (t-t_S)} \quad (18)$$

Hier bedeuten  $t_S$  den Zeitpunkt, von dem an der Sedimentationsprozess wirksam wird,  $c_{T_S}$  aber die dafür gültige Ausgangskonzentration.

In Abbildung 19 ist diese theoretische Gerade (18) durch die als Sterne einge-

tragenen Meßpunkte (aus Abb. 13 übernommen) hindurchgezeichnet. Man erkennt für den Zeitbereich nach ca. 48 Stunden eine gute Übereinstimmung. Nach dem Zeitpunkt  $t_S = 65$  h liegen die Abweichungen von der Geraden innerhalb der Meßfehler.

Dasselbe läßt sich auch für ein Glockenexperiment, Beispiel 163 (Abb. 20), durchführen. Hier liegt  $t_S$  bei 5 Stunden.

- c) Bildet man das Verhältnis der Halbwertszeiten der Konzentrationsabnahmekurven für ein Kessel- und ein Glockenexperiment im Bereich zwei, so erhält man:

$$\frac{t_{HK}}{t_{HG}} = \frac{h_K}{h_G} \frac{(\rho d_6^2)_G}{(\rho d_6^2)_K} \quad (19)$$

Die Indizes "G" und "K" bedeuten "Glocke" und "Kessel".

Setzt man die entsprechenden Werte dafür ein:

$$\begin{aligned} T_{HK} &= 23,5 \text{ h} \\ T_{HG} &= 2,3 \text{ h} \\ h_K &= 324 \text{ cm} \\ h_G &= 34 \text{ cm} \end{aligned}$$

so ergibt sich:

$$\frac{(\rho d_6^2)_G}{(\rho d_6^2)_K} = 1,07 \approx 1$$

Dieses Ergebnis bedeutet, daß im Rahmen der experimentellen Fehler

- $\rho d_6^2$  ein invarianter Parameter ist für  $UO_2$ -Aerosole, die in geschlossenen Behältern von verschiedener Höhe erzeugt worden sind,

- die Abnahme der Teilchenkonzentration im Bereich zwei tatsächlich durch den Sedimentationsprozess kontrolliert wird.

## 5. 2. Versuch einer analytischen Beschreibung der Abnahme der Teilchenkonzentration durch eine halbempirische Funktion

Bei dem Versuch, die Abnahme der Teilchenkonzentration analytisch zu beschreiben, kann man pragmatisch vorgehen und den Koagulationsterm, dessen Gewicht durch mehrere Gründe belegt worden ist, als additiven Korrekturterm ansetzen. Dies ist aus folgenden Gründen im vorliegenden Falle vernünftig:

- Der Vorgang der Koagulation und der Vorgang der Sedimentation liegen in ihren wirksamen Bereichen zeitlich weit auseinander.
- Die Beiträge, die die Sedimentation zu Beginn und die Koagulation am Ende liefern, sind vernachlässigbar klein, sofern man eine über den gesamten Teilchengrößenbereich gemittelte zeitabhängige "Koagulationskonstante" zugesteht.

Aus den experimentellen Daten ergibt sich, daß dies am besten durch einen Exponentialansatz erreicht werden kann:

$$K = K_0 e^{\alpha t} \quad (20)$$

Dieser Ansatz ist zunächst auch vernünftig, da mit zunehmender Zeit die Partikelgröße wächst, mit wachsender Partikelgröße aber die "Koagulationskonstante" größer [6] wird.

Wird jedoch die Zeit sehr groß, so bedeutet die Formel:

$$c_T = \frac{1}{\frac{1}{c_{T0}} + K_0 t e^{\alpha t}} \quad (21)$$



nichts anderes, als daß die Teilchenkonzentration dann so gering wird, daß die Koagulation keine Rolle mehr spielt.

Es ergibt sich somit zusammen mit Formel (18):

$$c_T = \frac{1}{\frac{1}{c_{To}} + K_o t e^{\alpha t}} + c_{TS} e^{-\gamma \frac{\rho d_6^2}{h} (t-t_S)} \quad (22)$$

Die zu dieser Funktion zugehörigen Kurven stimmen mit den Meßwerten sehr gut überein (Abb. 21 und Abb. 22), sofern man für  $\alpha$  einen empirisch ermittelten Wert einsetzt. Dieser Wert variiert mit dem Versuchsvolumen, und er beträgt:

$$\text{für den Kessel: } \alpha = 0,13 \cdot 10^{-4} \frac{1}{\text{sec}}$$

$$\text{für die Glocke: } \alpha = 0,91 \cdot 10^{-4} \frac{1}{\text{sec}} .$$

Obwohl die zeitabhängige Partikelgrößenverteilung in diesem theoretischen Ansatz (Gleichung 22) nicht berücksichtigt ist, kann man eine bemerkenswerte Übereinstimmung der theoretischen Kurve mit den experimentellen Meßpunkten feststellen. Die Bedeutung des  $\alpha$ -Wertes, der wahrscheinlich mit der Partikelgrößenverteilung zusammenhängt, soll in weiteren Untersuchungen geklärt werden.

## 6. Zusammenfassung

Im Aerosolprogramm wird das Ziel verfolgt, das Verhalten nuklearer Aerosole, wie sie bei schweren Störfällen in schnellen Reaktoren auftreten können, in Abhängigkeit von Aerosol-Prozessen und anderen Parametern zu beschreiben. Die vorliegende Arbeit gibt einen Überblick über die erste Phase des Aerosolprogramms. Ziel der Untersuchungen in dieser Phase war es, das Verhalten reiner  $UO_2$ -Aerosole, die unter simulierten Störfallbedingungen erzeugt wurden, experimentell zu bestimmen.

Die  $UO_2$ -Aerosole wurden mit Hilfe der Stoßstromtechnik in zwei verschiedenen Vo-

lumina von  $2,2 \text{ m}^3$  und  $0,02 \text{ m}^3$  erzeugt. Die Abnahme der Teilchen- und Massenkonzentration mit der Zeit wurde über mehrere Tage gemessen. Es wurden Bestimmungen der Teilchengrößenverteilung durchgeführt. Die gemessenen primären Teilchenkonzentrationen lagen im Bereich um  $10^7$  Teilchen/cm<sup>3</sup>, die gemessenen primären Massenkonzentrationen im Bereich um  $100 \text{ mg/m}^3$ . Die vom Versuchsvolumen abhängige Abnahme der Konzentrationen betrug im Falle der Teilchenkonzentration mehrere Größenordnungen, im Falle der Massenkonzentration etwa eine Größenordnung.

Die Zeitfunktionen der Teilchenkonzentrationen können verschiedenen Aerosolprozessen, nämlich der Koagulation für den Anfangsbereich und der Sedimentation für den Endbereich, zugeordnet werden. Eine analytische Funktion, die sich aus diesen Aerosolprozessen ableitet, wurde entwickelt. Bei Anwendung eines empirischen Korrekturgliedes stimmt dieser analytische Ausdruck mit den gemessenen Teilchenkonzentrationskurven sehr gut überein. Es ist damit eine Möglichkeit gegeben, im Rahmen der experimentellen Genauigkeit und unter der Voraussetzung, daß nach größeren Volumina extrapoliert werden darf, Abschätzungen über die Abnahme von Konzentrationen nuklearer Aerosole in Reaktorgebäuden nach Störfällen vorzunehmen.

Der bei den bisherigen Experimenten noch nicht berücksichtigte Einfluß auf die Ergebnisse, der sich aus einer sehr hohen Anfangskonzentration, aus einer erhöhten Gastemperatur und aus der Bildung von Misch aerosolen ergeben könnte, soll im weiteren Verlauf des Aerosolprogramms untersucht werden.

Literatur

- [1] W. Häfele, F. Heller, W. Schikarski  
The principle of double containment and the behaviour of aerosols in its relation to the safety of reactors with a high plutonium inventory  
KFK - 669 / 1967
- [2] W. Schikarski  
The Karlsruhe Research Program on Nuclear Aerosols and its Relation to the Plutonium Hazard of Fast Sodium Reactors  
KFK-Bericht 798, Juli 1968
- [3] W. Schikarski  
Aerosolphysikalische Fragestellungen bei der Unfallanalyse von Kernreaktoren  
Arbeitstagung Schwebstofftechnik, Universität Mainz, Sept. 1966
- [4] P.E. Morrow, T.T. Mercer  
A Point-to-Plane Electrostatic Precipitator for Particle Size Sampling  
American Ind. Hyg. Assoc. J. 25 / 1964 / 8-14
- [5] W. Schikarski, D. Freund, H. Wild  
Untersuchungen an durch Stoßströme erzeugten Metall- und Metalloxid-Aerosolen  
Arbeitstagung Schwebstofftechnik, 23. - 25.10.1968, Universität Mainz
- [6] N.A. Fuchs  
The Mechanics of Aerosols  
Pergamon Press, Oxford, 1964
- [7] D. Freund  
private Mitteilung
- [8] M. v. Smoluchowski  
Theorie der Koagulation  
Physik. Z. 17 / 1916 / 539

[9]

D. Sinclair

Stability of Aerosols and Behaviour of Aerosol Particles

Handbook on Aerosols

USAEC Washington, D. C. 1950

[10]

K. Gast, K. Keller, W. Pepler, W. Schikarski, E.G. Schlechtendahl,  
G.F. Schultheiß, H. Wild

Beiträge zur Sicherheitsanalyse des schnellen natriumgekühlten Reaktors  
(SNR), KFZ-Karlsruhe Externer Bericht 2/69-1, 1969

Verzeichnis der Tabellen

Tab. 1	Explosionskammer
Tab. 2	Stoßstromanlage
Tab. 3	Kessel
Tab. 4	Aerosolerzeugungsbedingungen
Tab. 5	Optische Aerosolmeßgeräte
Tab. 6	Übersicht über die Resultate
Tab. 7	Vergleich: Massenkonzentration - Halbwertszeit
Tab. 8	Vergleich der Abnahme: Massenkonzentration - Teilchenkonzentration
Tab. 9	Vergleich der Massenkonzentrationsabnahme im Kessel mit dem berechneten Wert

Verzeichnis der Abbildungen

- Abb. 1 TUNA
- Abb. 2 Übersicht über Aerosole und Meßtechnik
- Abb. 3 Schema eines Meßloops
- Abb. 4 Massenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols (143) im TUNA-Kessel
- Abb. 5 Massenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols (148) im TUNA-Kessel
- Abb. 6 Massenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols (147) im TUNA-Kessel
- Abb. 7 Massenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols (152) in der Explosionskammer
- Abb. 8 Vergleich der Massenkonzentrationen im Kessel, in der Glocke
- Abb. 9 Elektronenmikroskopische Aufnahme eines  $UO_2$ -Aerosols nach 3,5 h (Kessel/PtP-2/147)
- Abb. 10 Elektronenmikroskopische Aufnahme eines  $UO_2$ -Aerosols nach 2 h (Glocke/PtP-3/161)
- Abb. 11 Summenhäufigkeit des  $UO_2$ -Aerosols im log.-norm. Wahrscheinlichkeitsnetz (PtP-3/161)
- Abb. 12 Teilchenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols (149) im TUNA-Kessel
- Abb. 13 Teilchenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols (166) im TUNA-Kessel
- Abb. 14 Teilchenkonzentration (150) in der Explosionskammer
- Abb. 15 Teilchenkonzentration (163) in der Explosionskammer
- Abb. 16 Vergleich der Teilchenkonzentrationen im Kessel, in der Glocke
- Abb. 17 Reziproke Teilchenkonzentration (163) (Explosionskammer)
- Abb. 18 Reziproke Teilchenkonzentration (149) (TUNA-Kessel)
- Abb. 19 Vergleich: Meßwerte, berechnete e-Funktion im TUNA-Kessel
- Abb. 20 Vergleich: Meßwerte, berechnete e-Funktion in der Glocke
- Abb. 21 Theoretische Kurve mit Meßwerten (166) TUNA-Kessel
- Abb. 22 Theoretische Kurve mit Meßwerten (163) Glocke

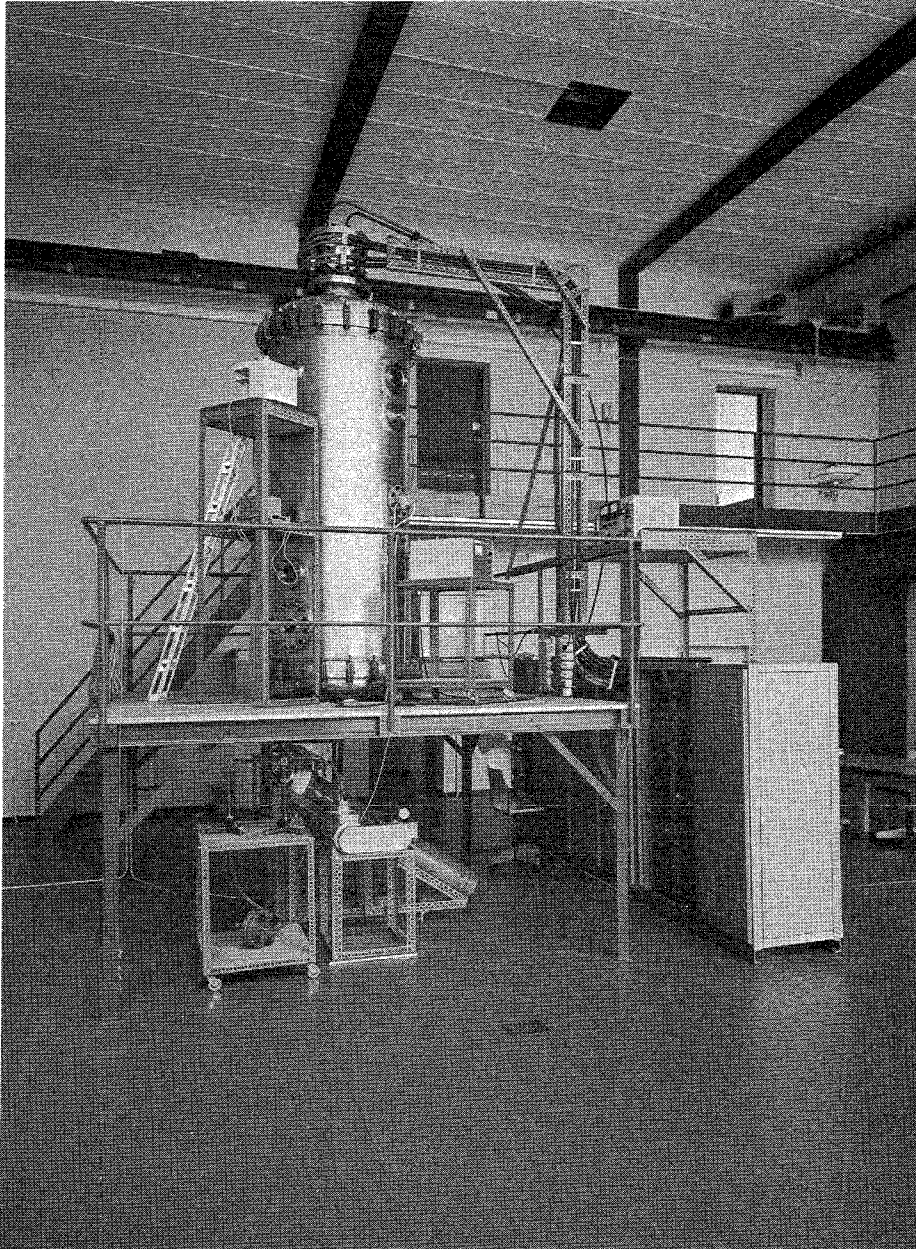


Abb.1 TUNA

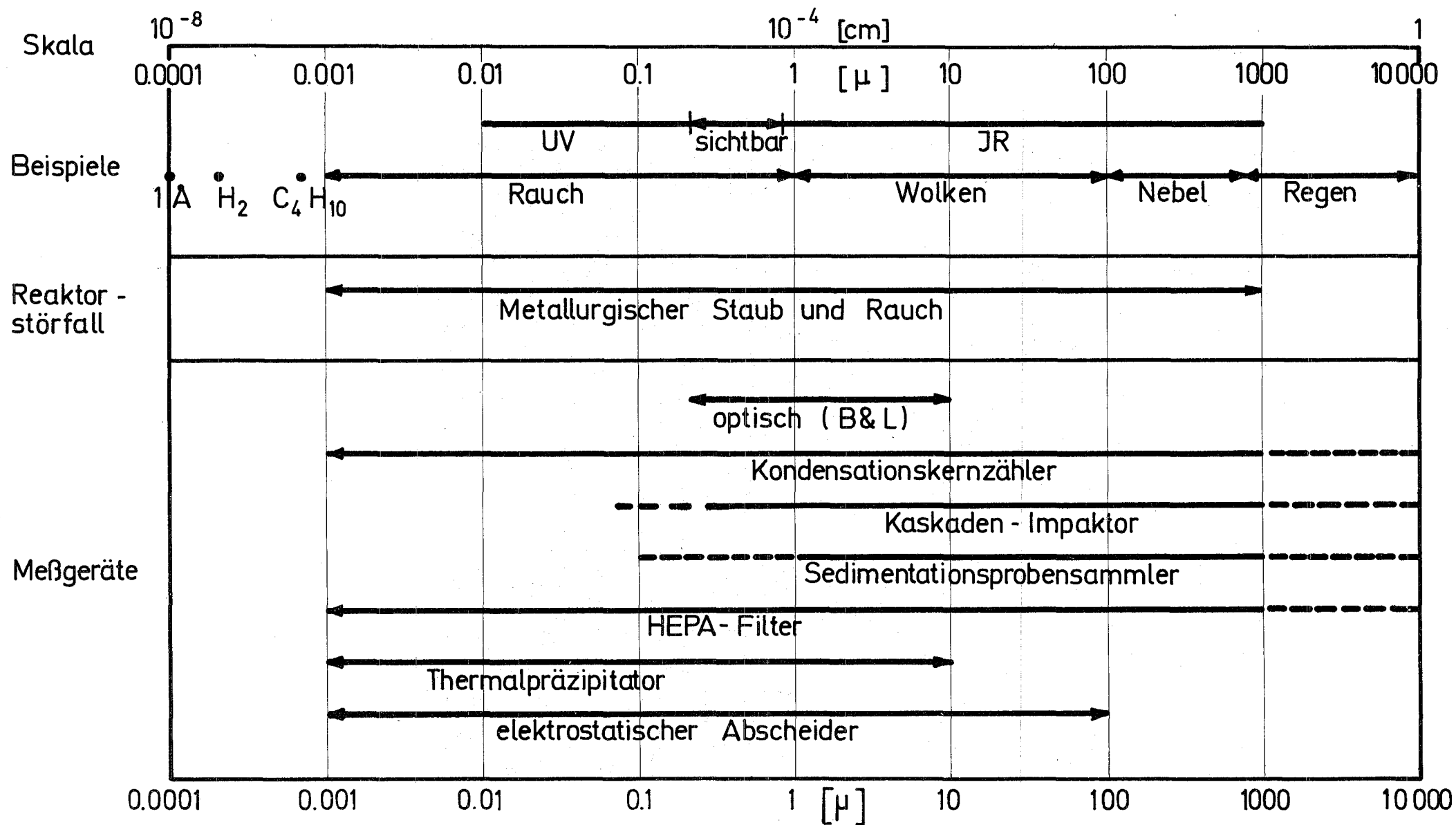


Abb. 2 Übersicht über Aerosole und Meßtechnik



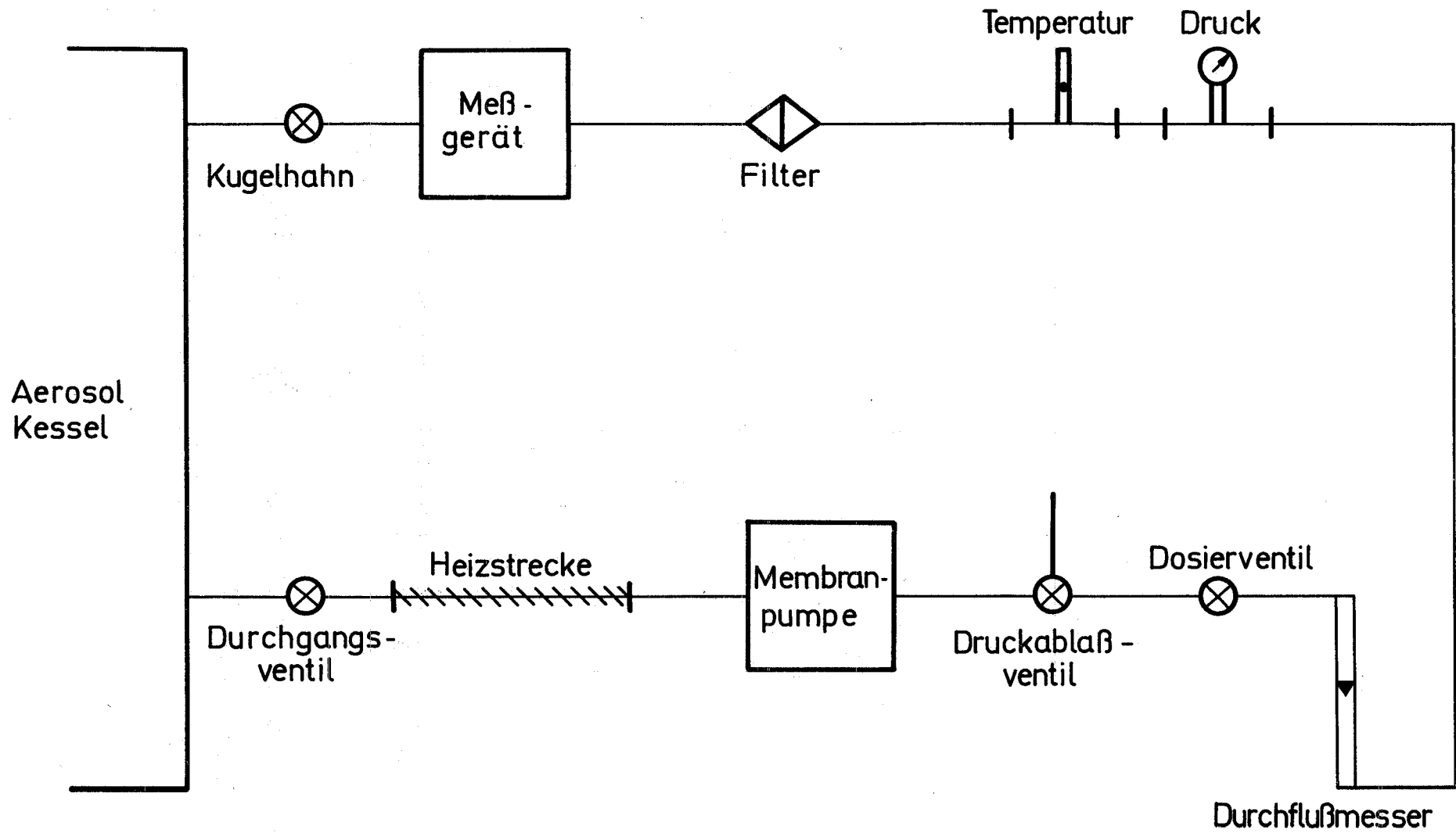


Abb. 3 Schema eines Meßloops

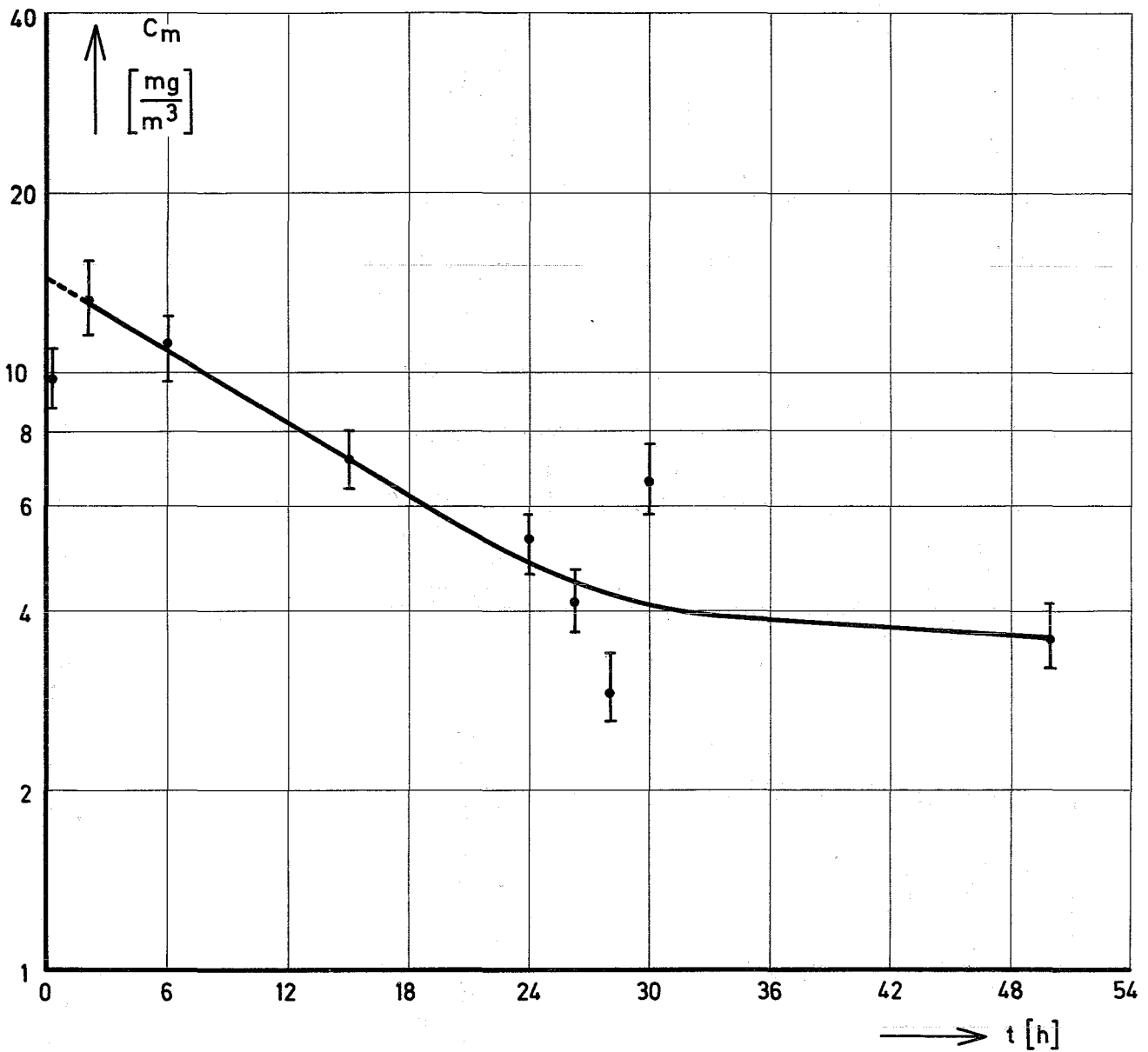


Abb. 4 Massenkonzentration des  $UO_2$  - Aerosols (143) im TUNA Kessel

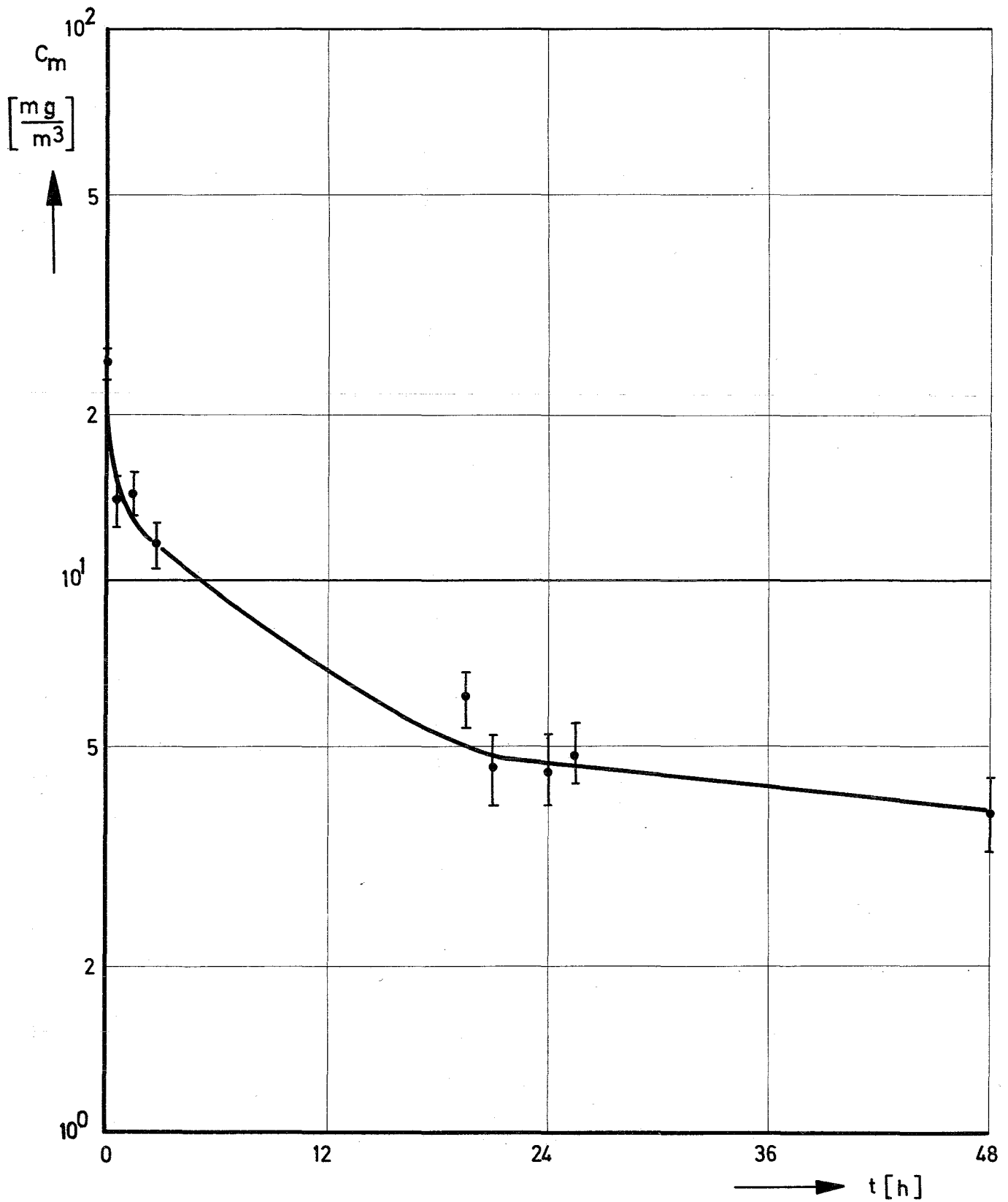


Abb. 5 Massenkonzentration des  $UO_2$  - Aerosols (148) im TUNA Kessel

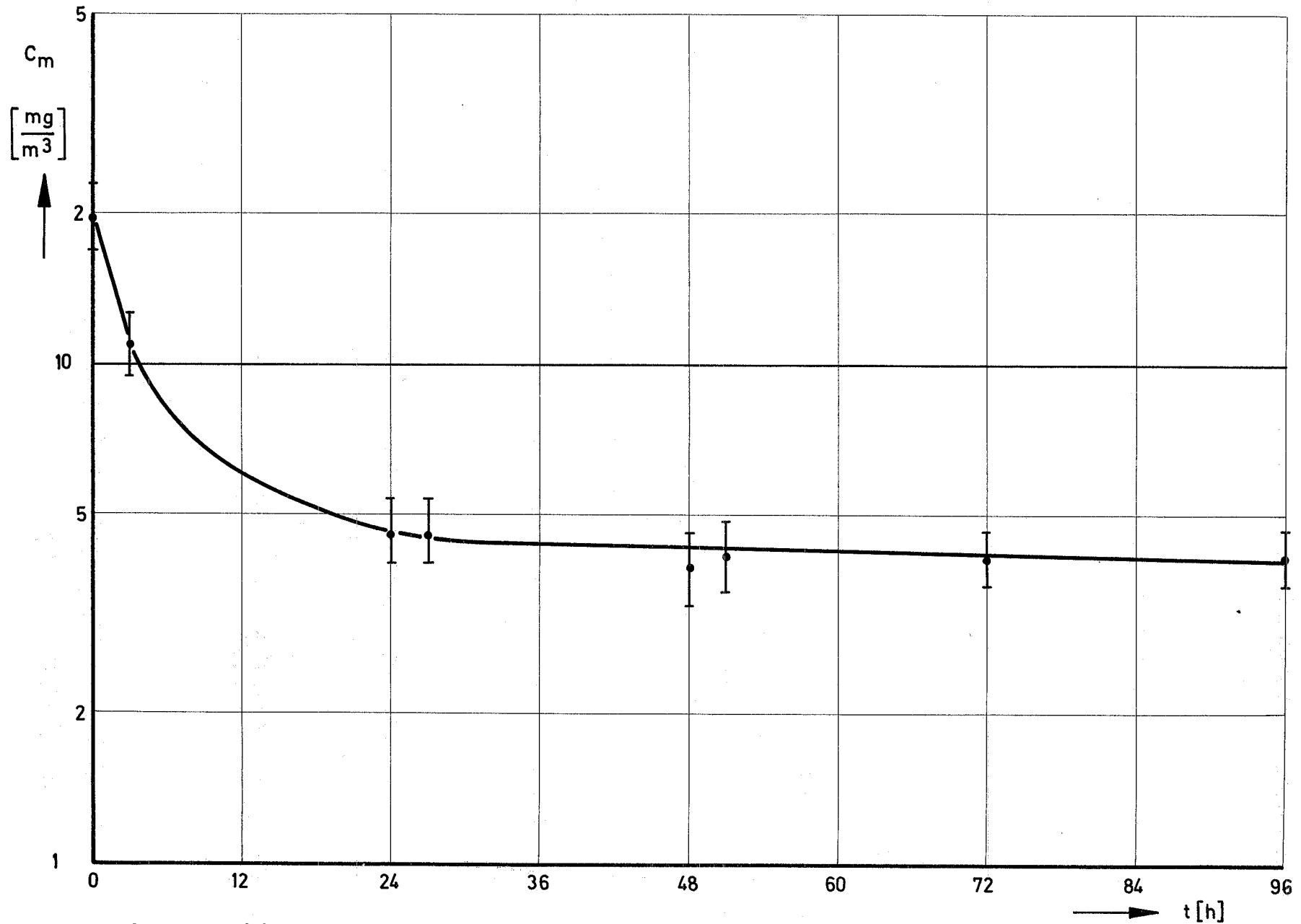


Abb. 6 Massenkonzentration des  $\text{UO}_2$  - Aerosols ( 147 ) im TUNA Kessel

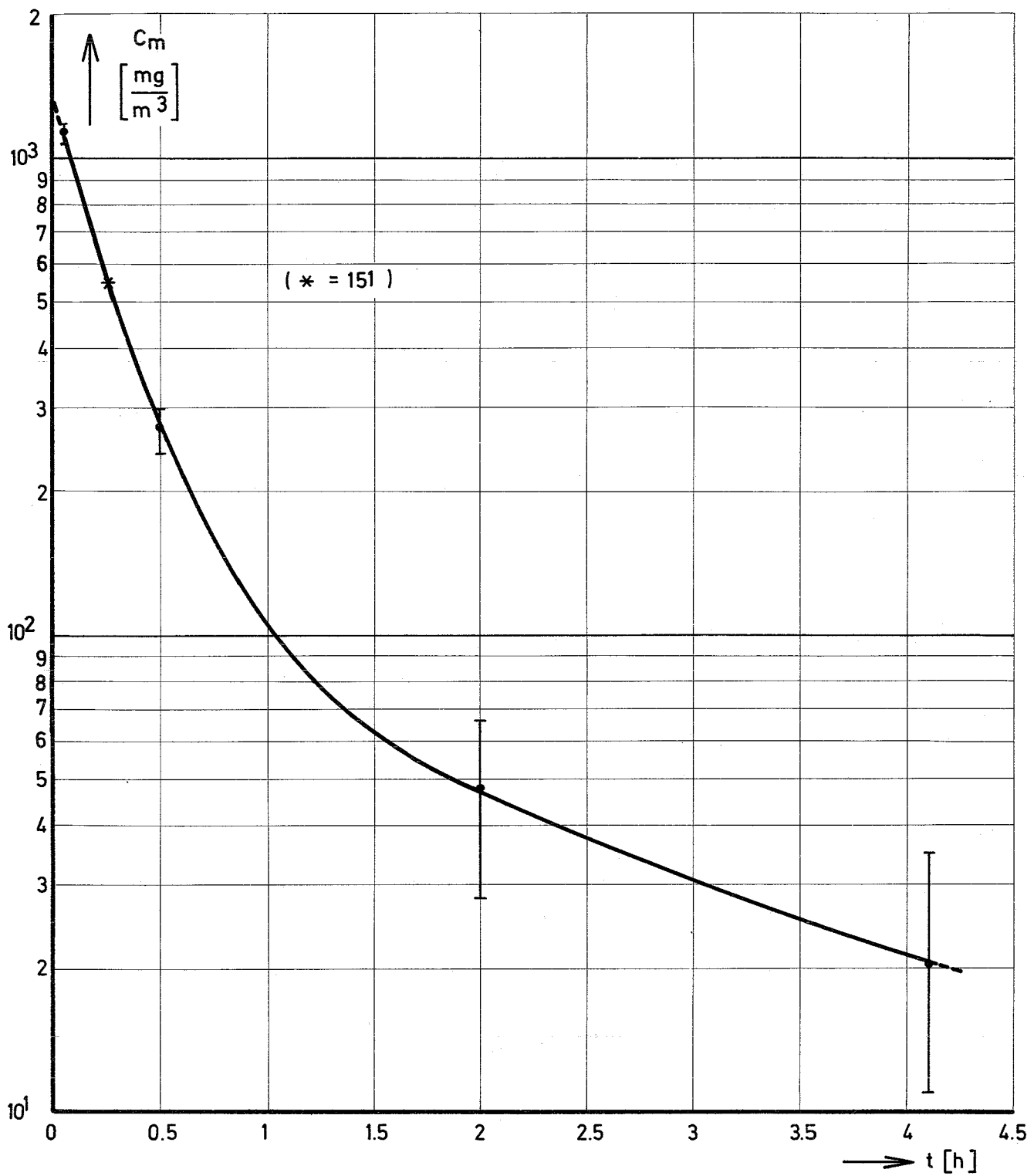


Abb. 7 Massenkonzentration des  $\text{UO}_2$ -Aerosols (152) in der Explosionskammer

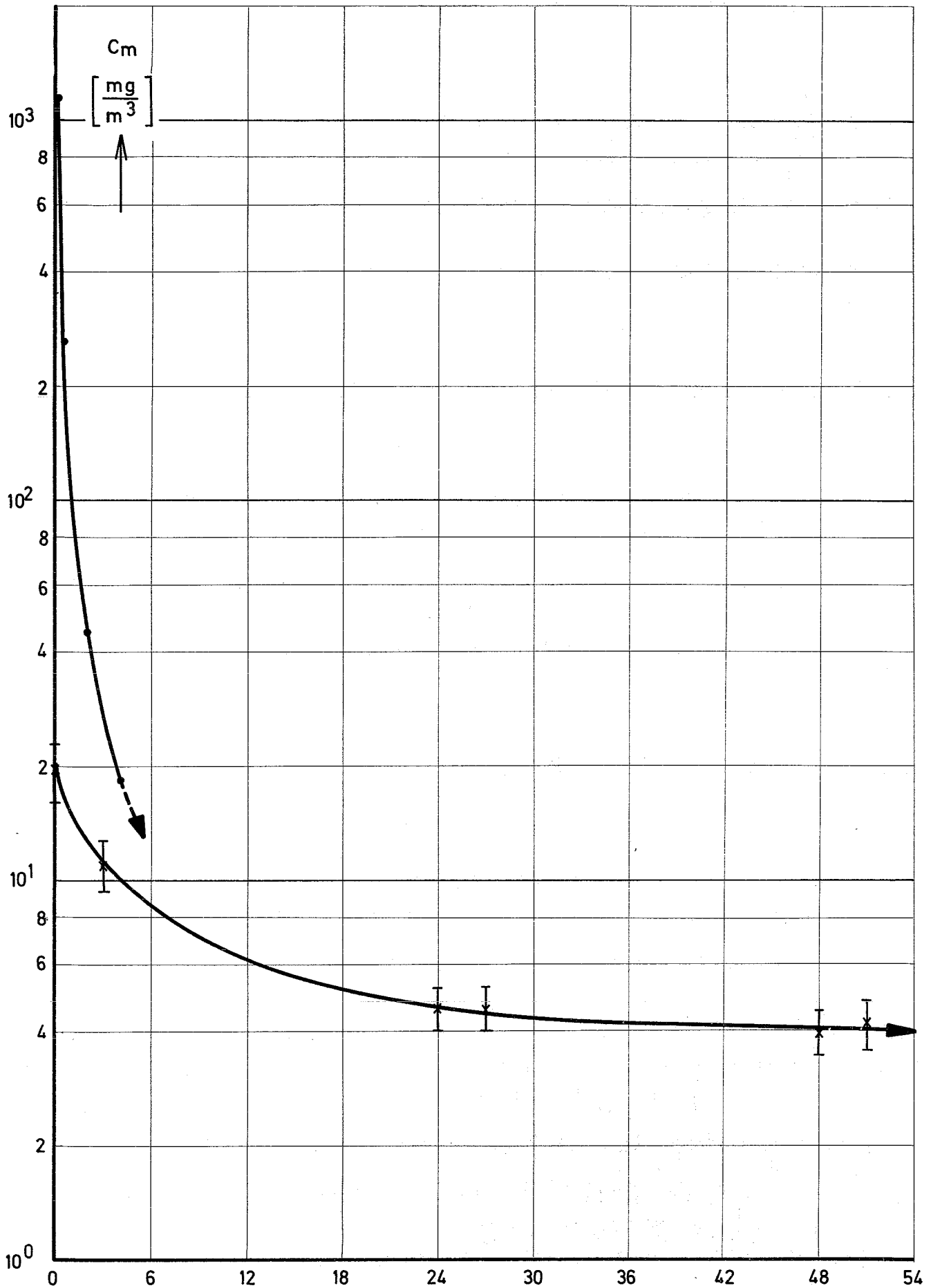
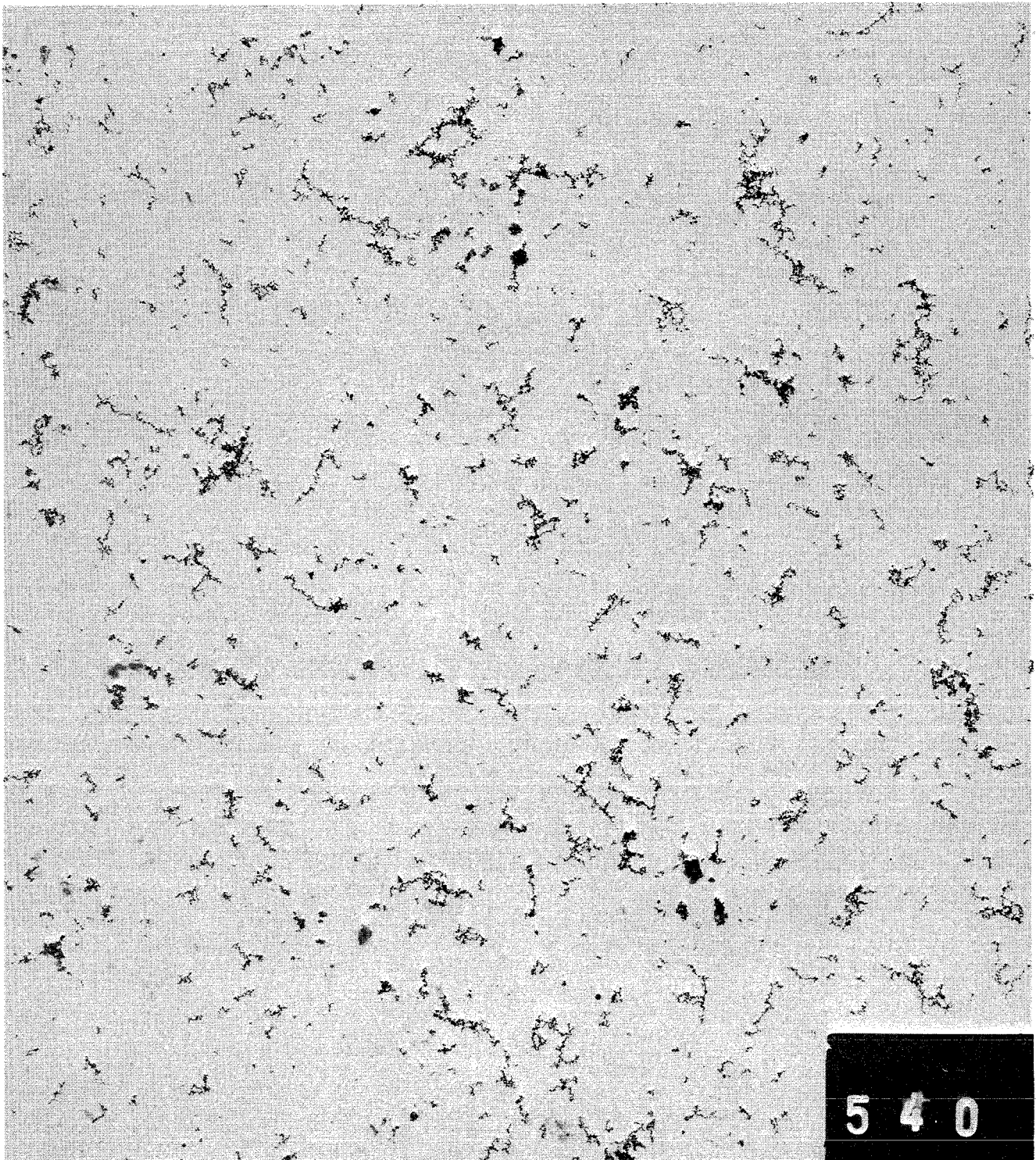
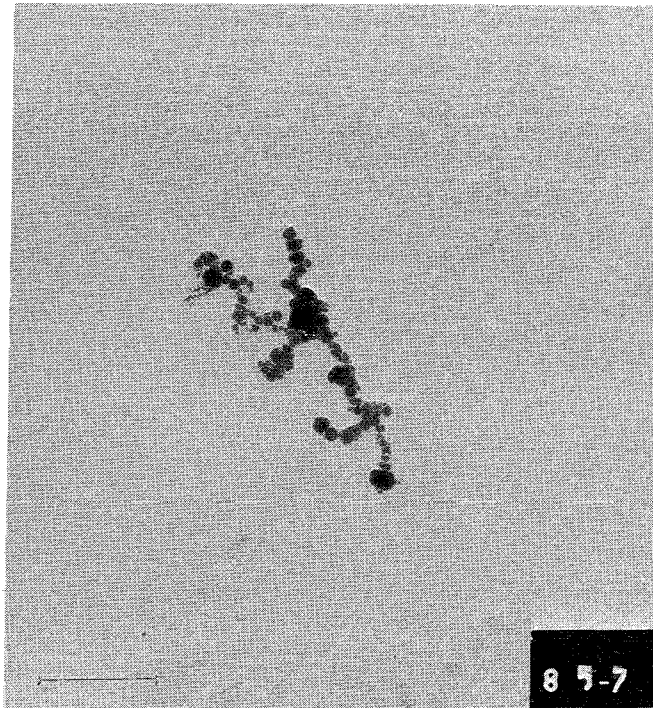


Abb. 8 Vergleich der Massenkonzentrationen  $\longrightarrow t$  [h]  
im Kessel x(147), in der Glocke • (152)



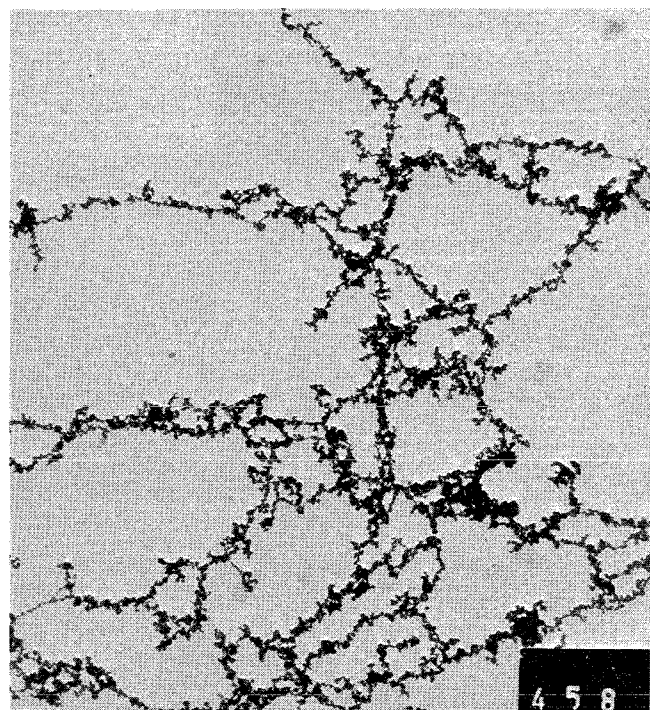
2µm

Abb.9 Elektronenmikroskopische Aufnahmen des  
UO<sub>2</sub> - Aerosols  
9a Primärpartikel im Kessel Versuch 184  
Methode: Auffang - Folien



0.25  $\mu\text{m}$

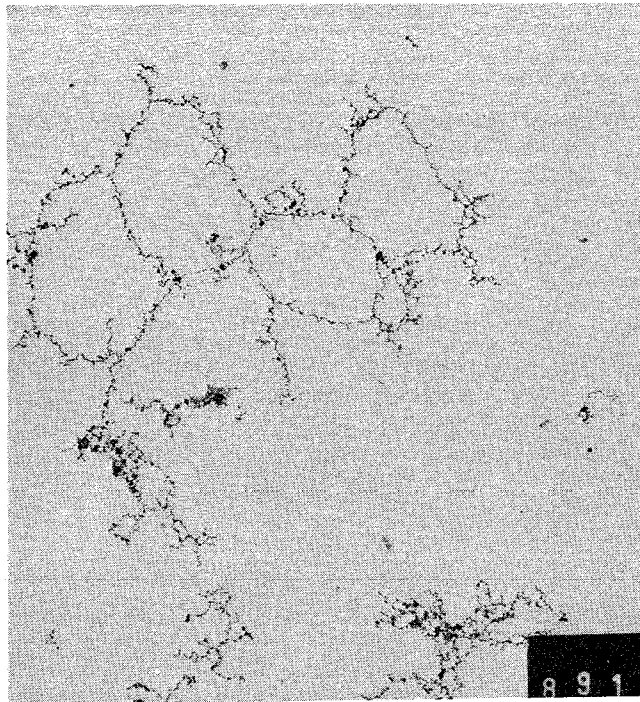
9b Nach 2 min im Kessel Versuch 46  
Methode: Sedimentationsprobensamml



1  $\mu\text{m}$

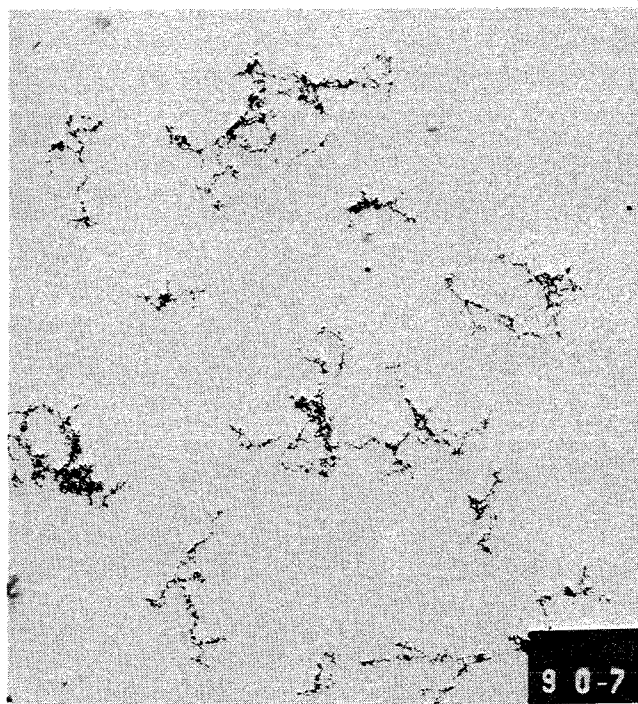
9c Nach 20 min im Kessel Versuch  
Methode: Point-to-Plane Abscheider





4 μm

9d Nach 3.5h im Kessel Versuch 147  
Methode: Point-to-Plane Abscheider



4 μm

9e Nach 3h in der Glocke Versuch 152  
Methode: Thermalpräzipitator

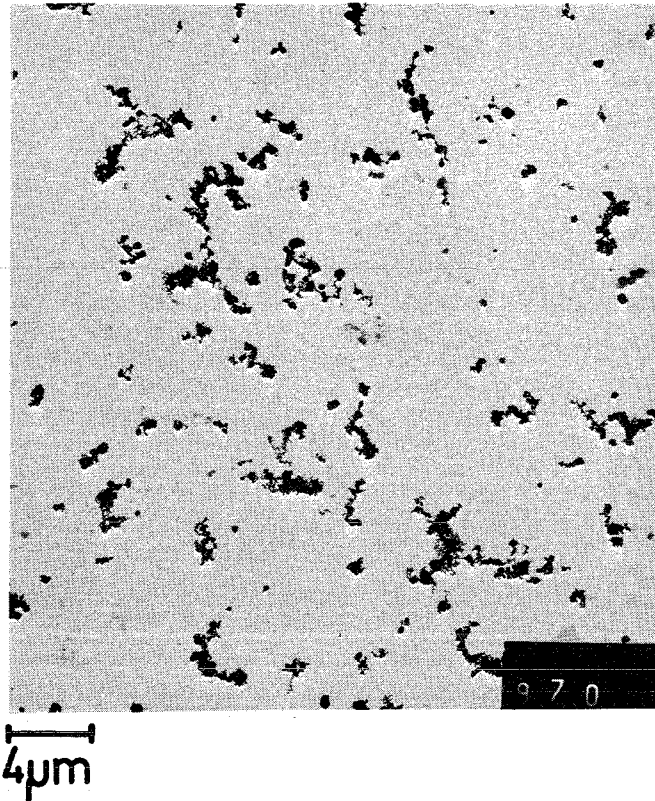


Abb.10 Elektronenmikroskopische Aufnahme  
eines  $\text{UO}_2$  -Aerosols nach 2 h  
(Glocke / PtP-3 / 161)

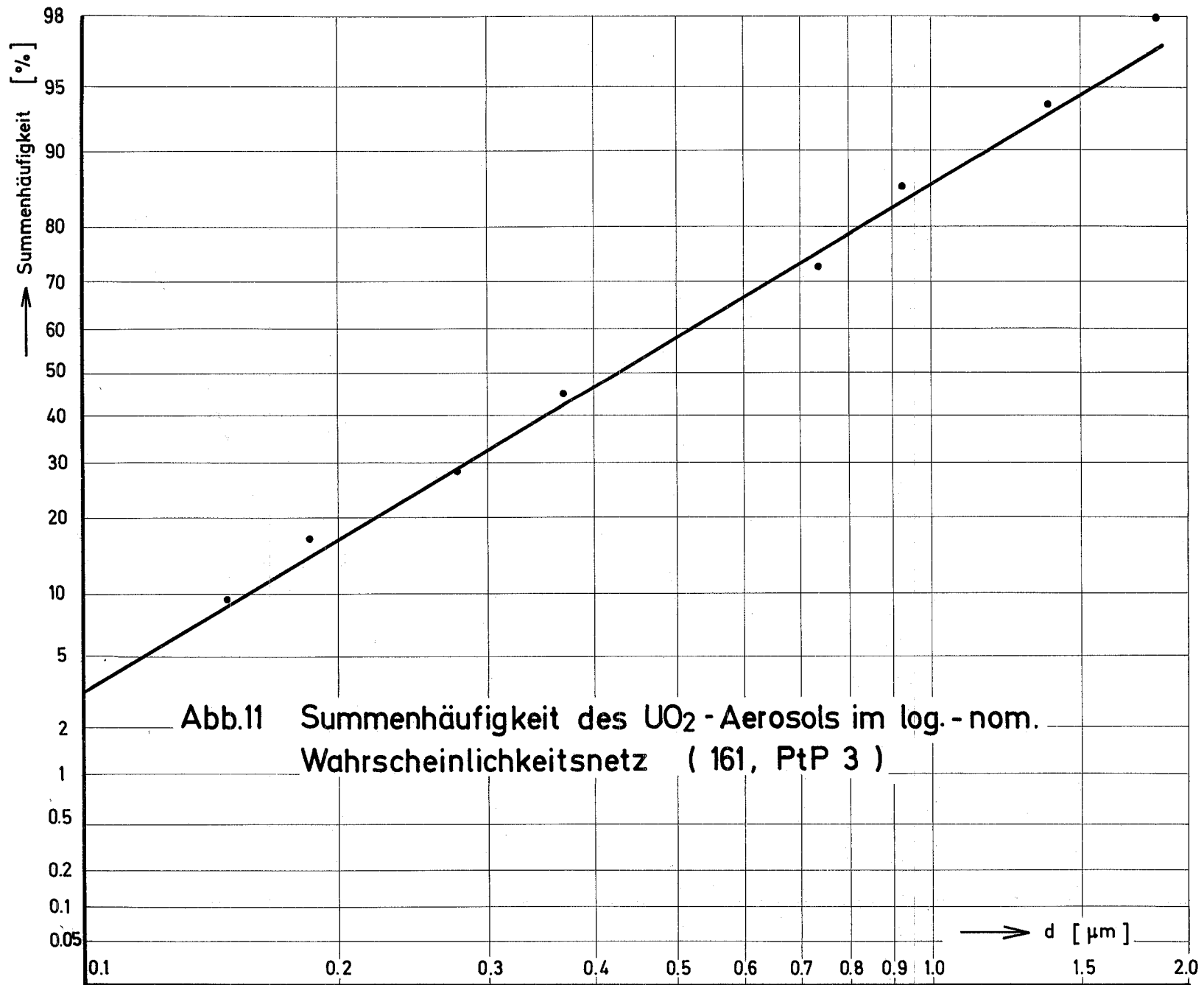


Abb.11 Summenhäufigkeit des UO<sub>2</sub>-Aerosols im log.-nom. Wahrscheinlichkeitsnetz ( 161, PtP 3 )

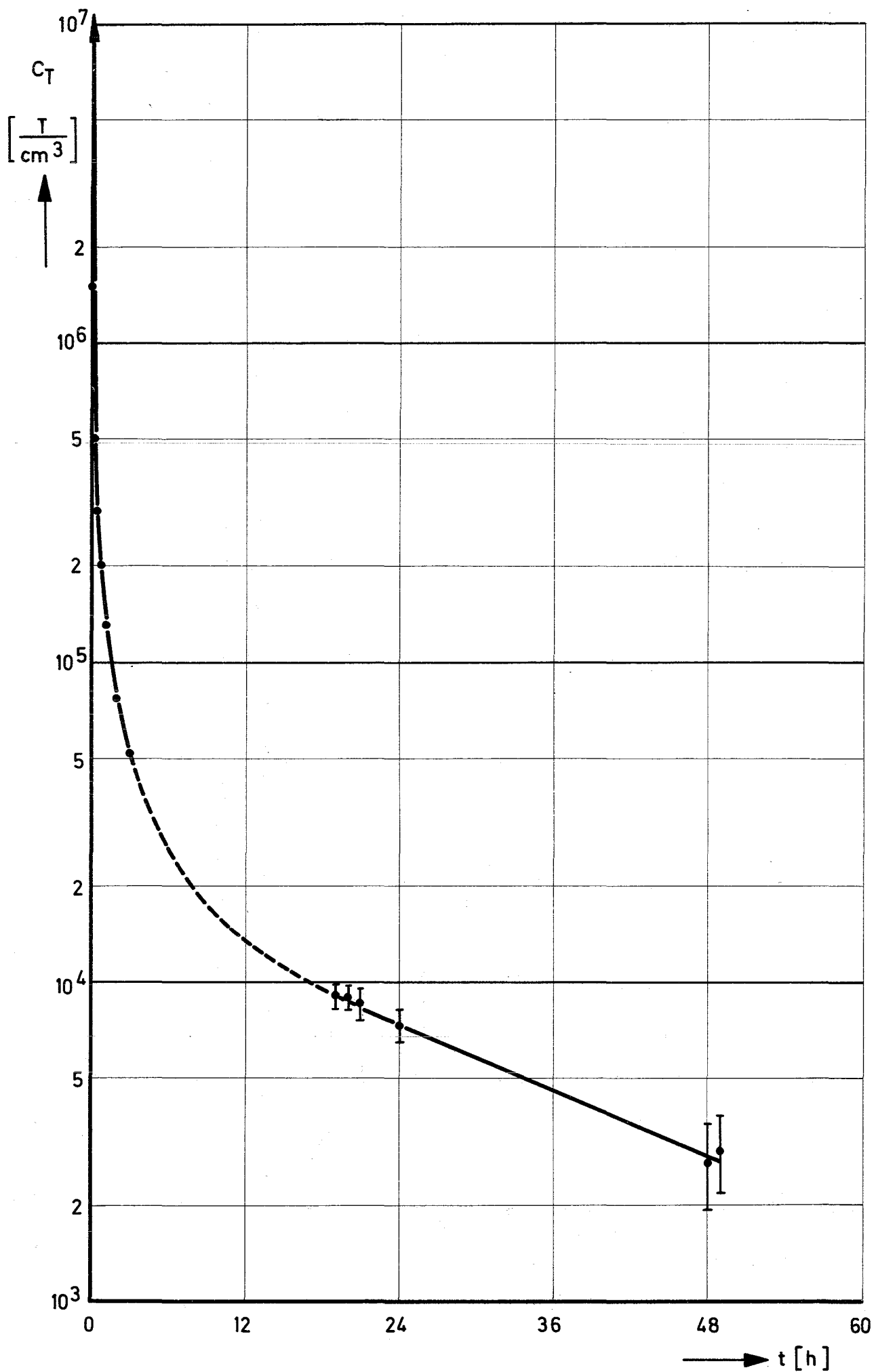


Abb.12 Teilchenkonzentration des  $\text{UO}_2$  - Aerosols (149) im TUNA Kessel

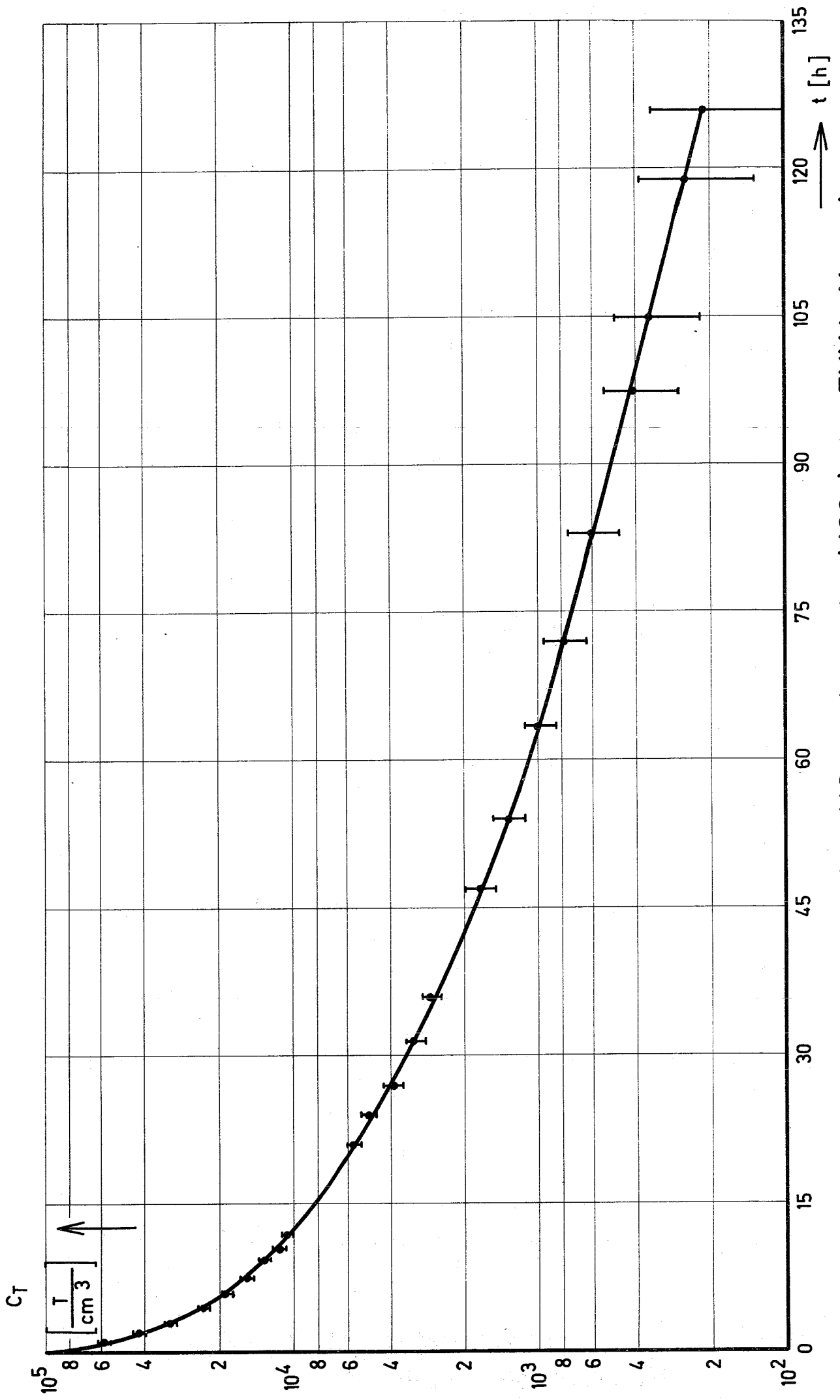


Abb. 13 Teilchenkonzentration des  $\text{UO}_2$  - Aerosols (166) im TUNA Kessel

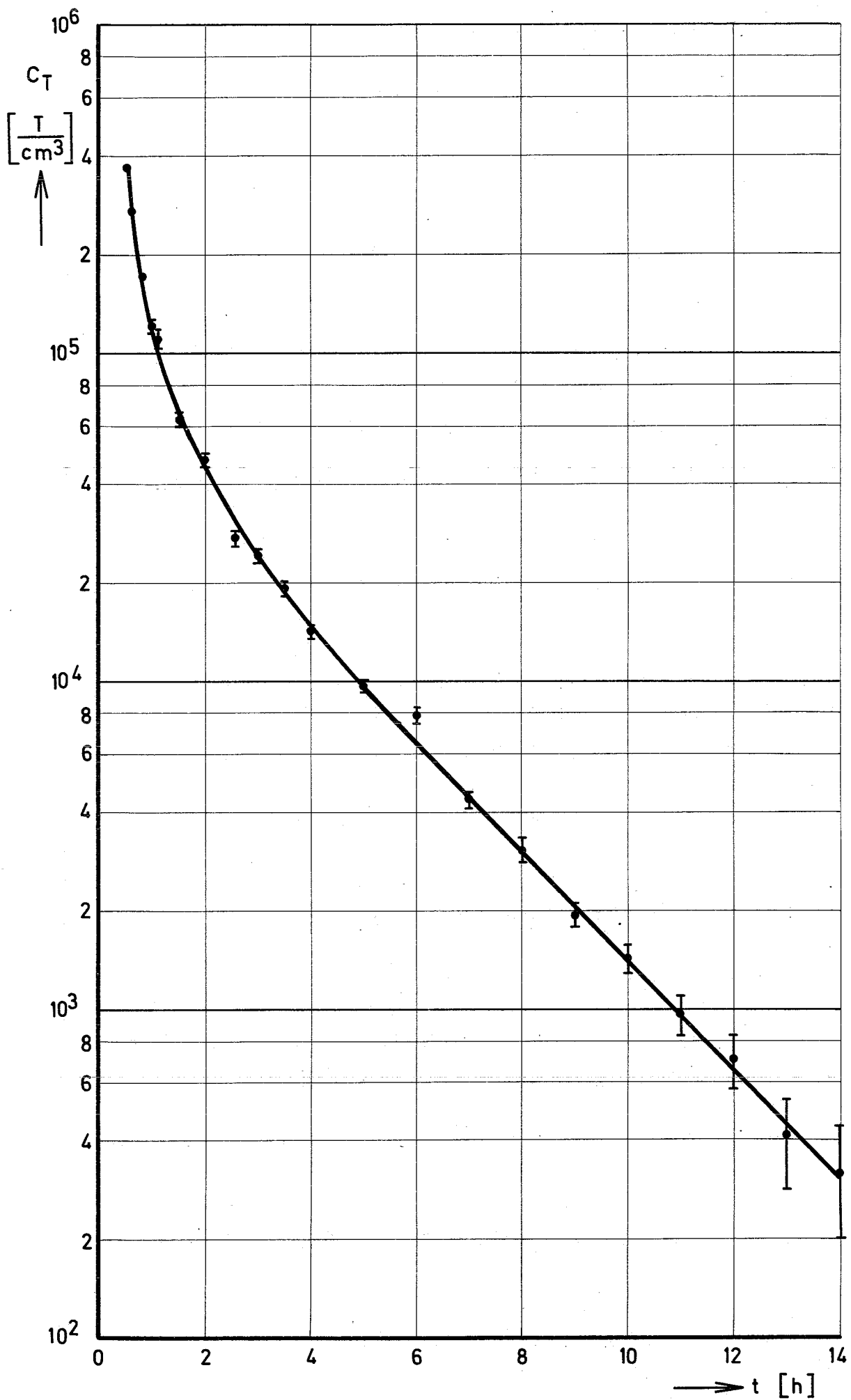


Abb.14 Teilchenkonzentration (150) in der Explosionskammer

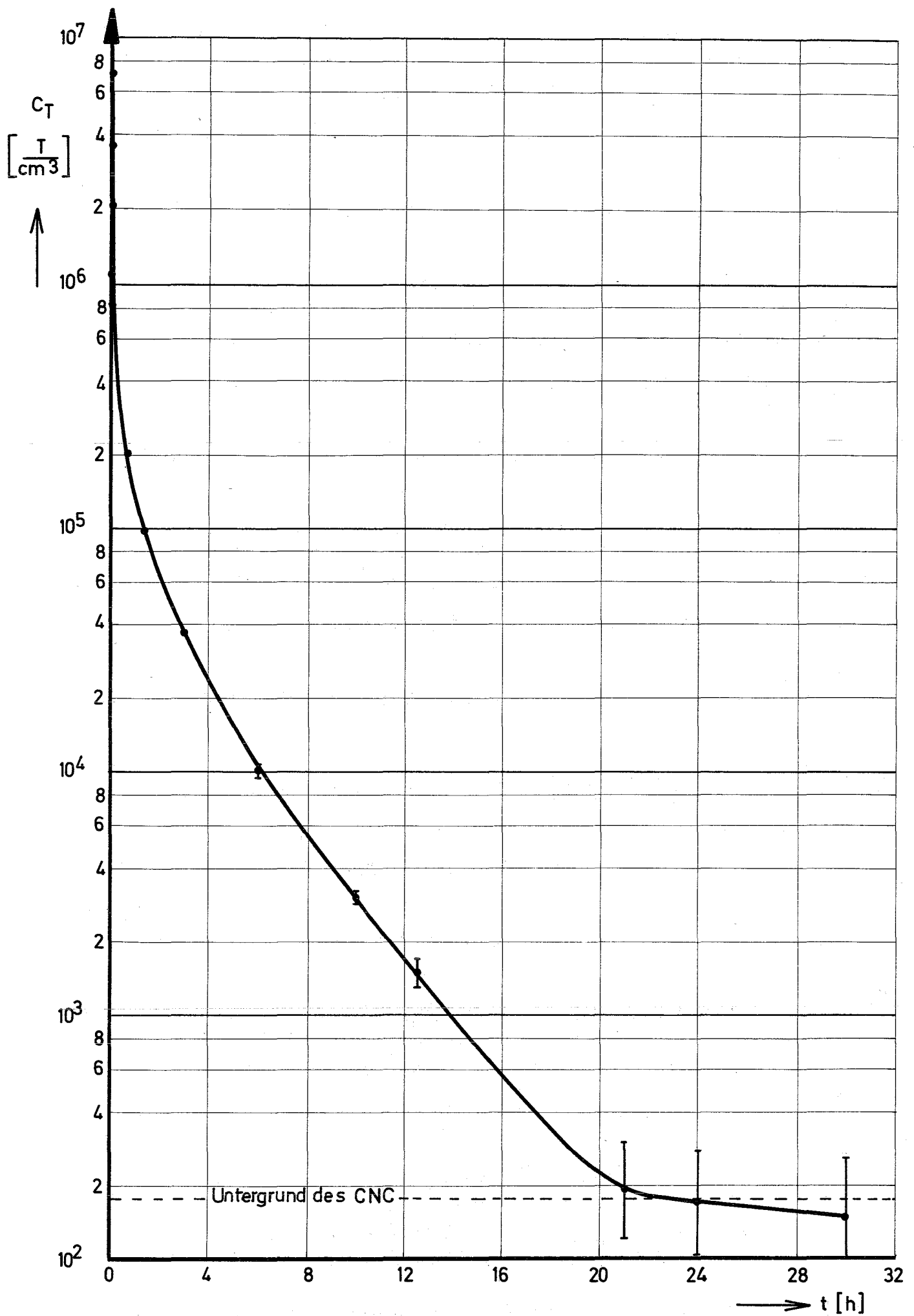


Abb. 15 Teilchenkonzentration (163) in der Explosionskammer

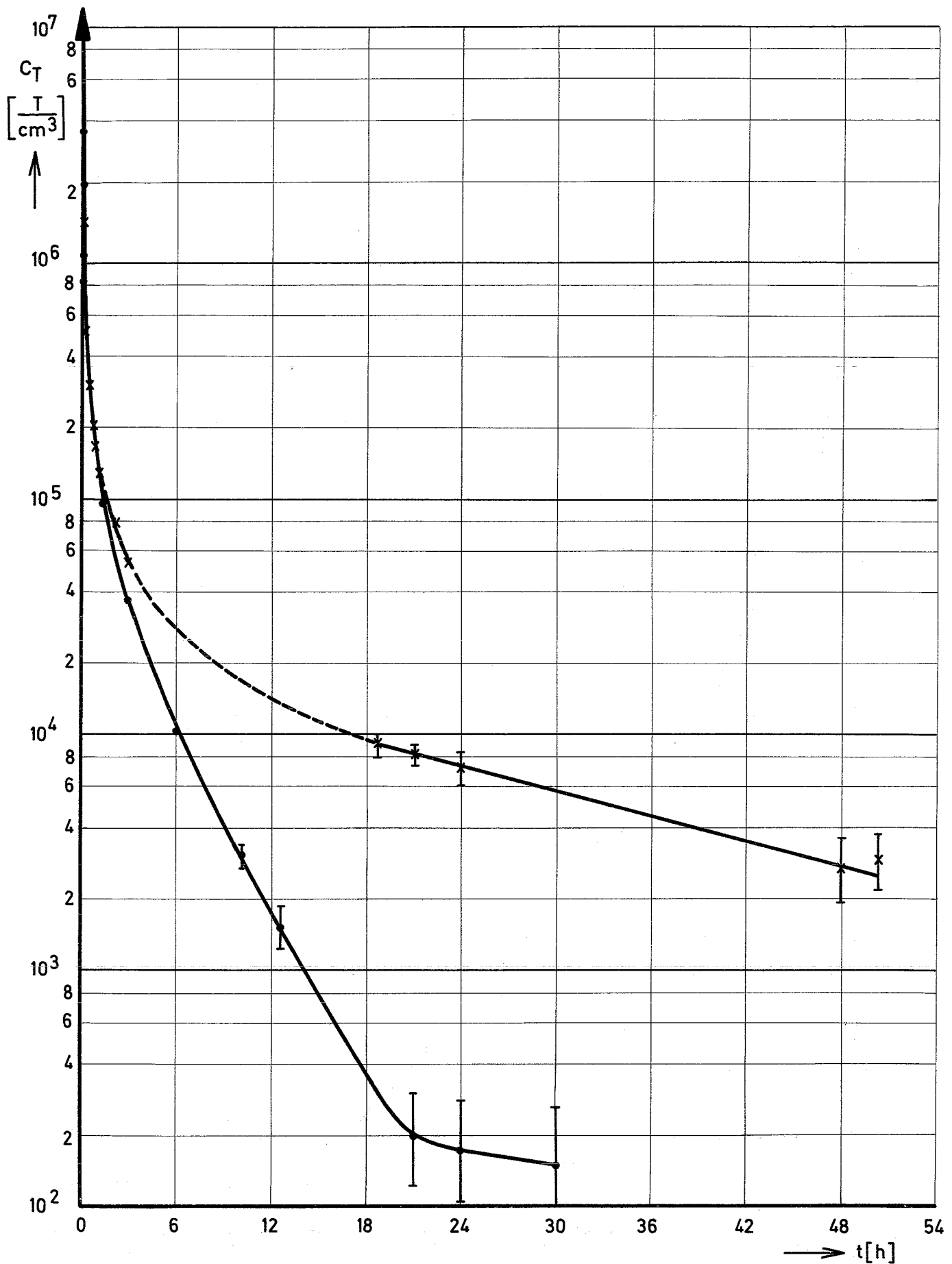


Abb.16 Vergleich der Teilchenkonzentrationen im Kessel x (149)  
in der Glocke • (163)



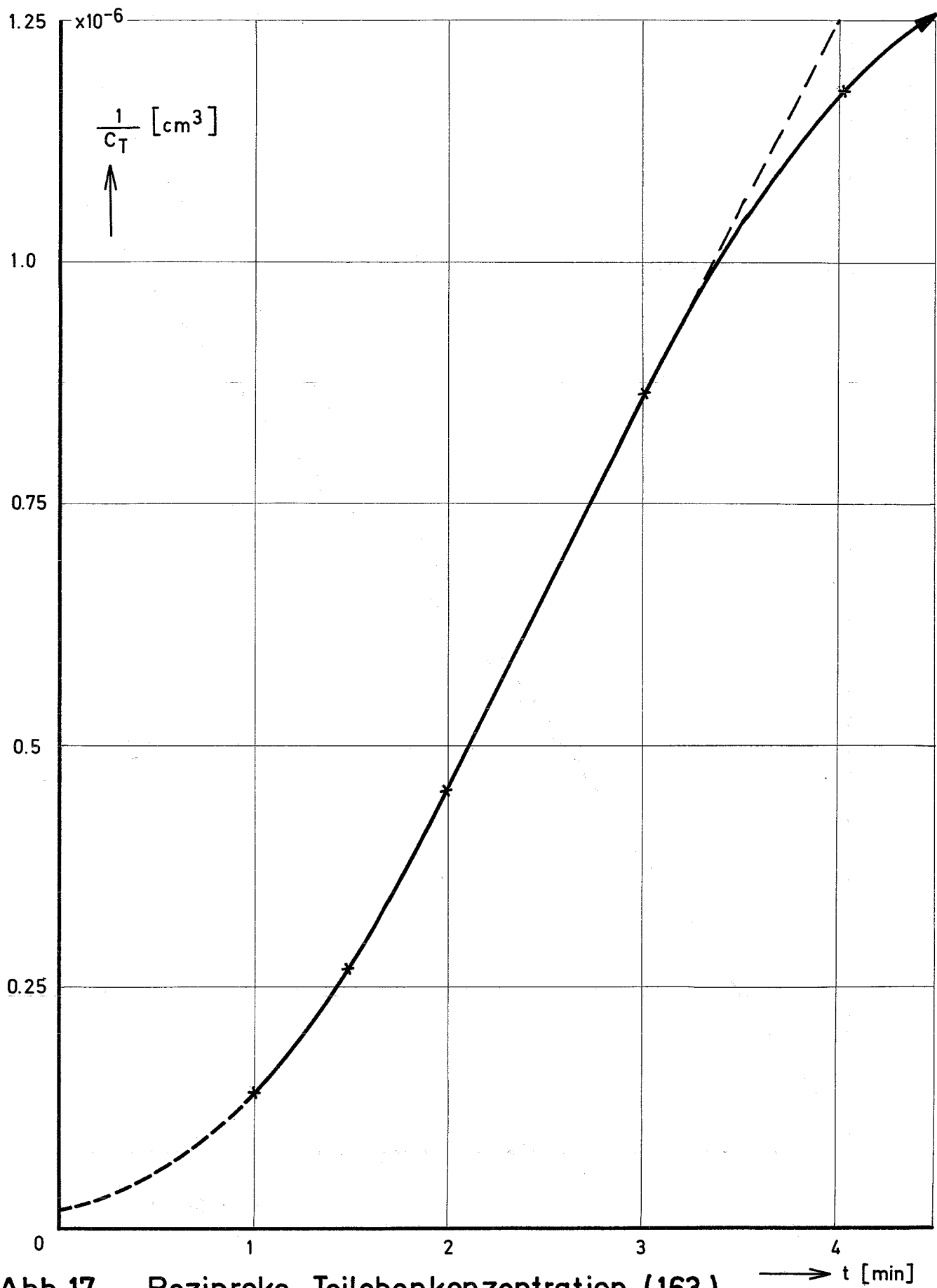


Abb. 17 Reziproke Teilchenkonzentration (163)  
(Explosionskammer)

→ t [min]

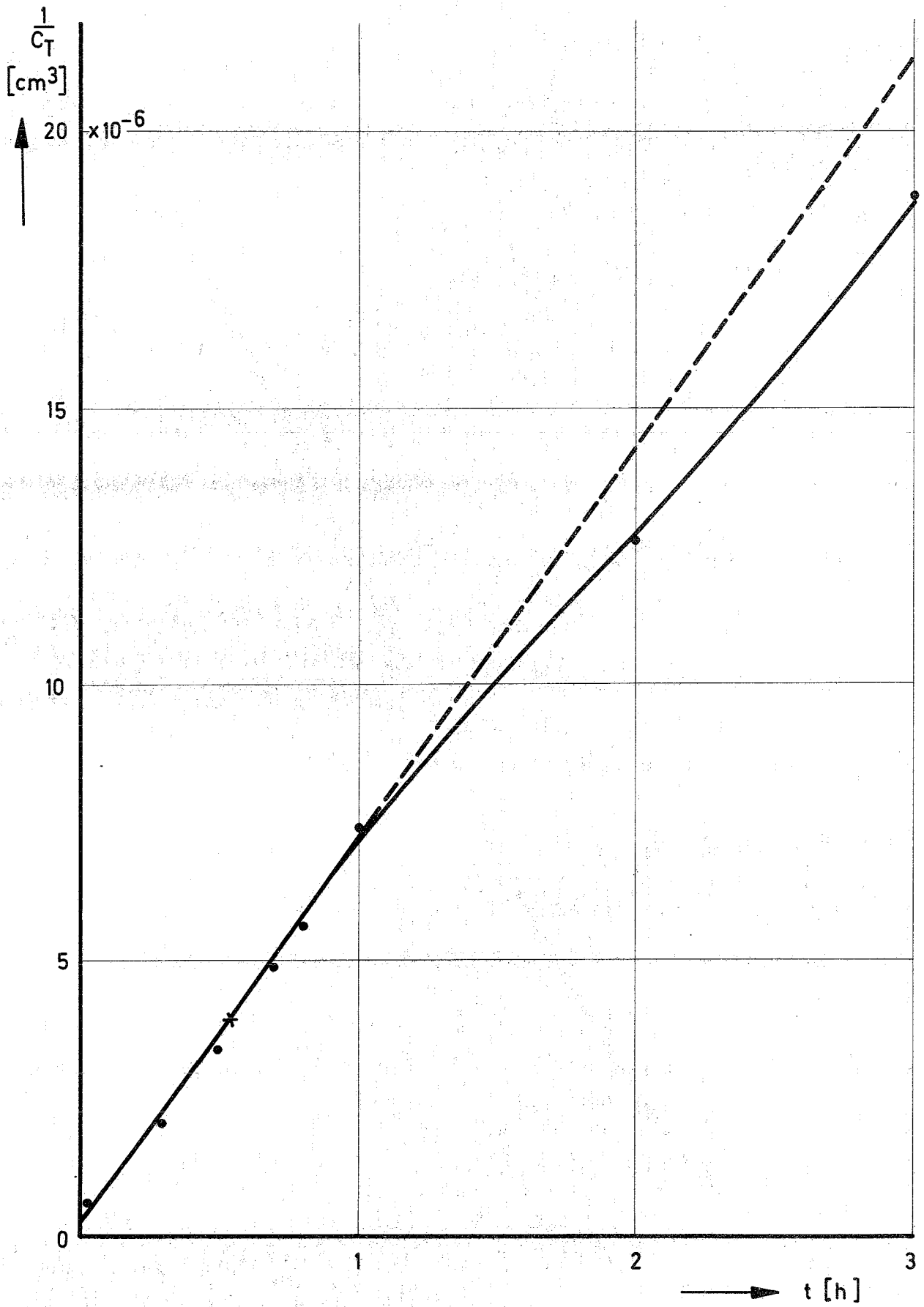


Abb.18 Reziproke Teilchenkonzentration (149)  
( TUNA Kessel )

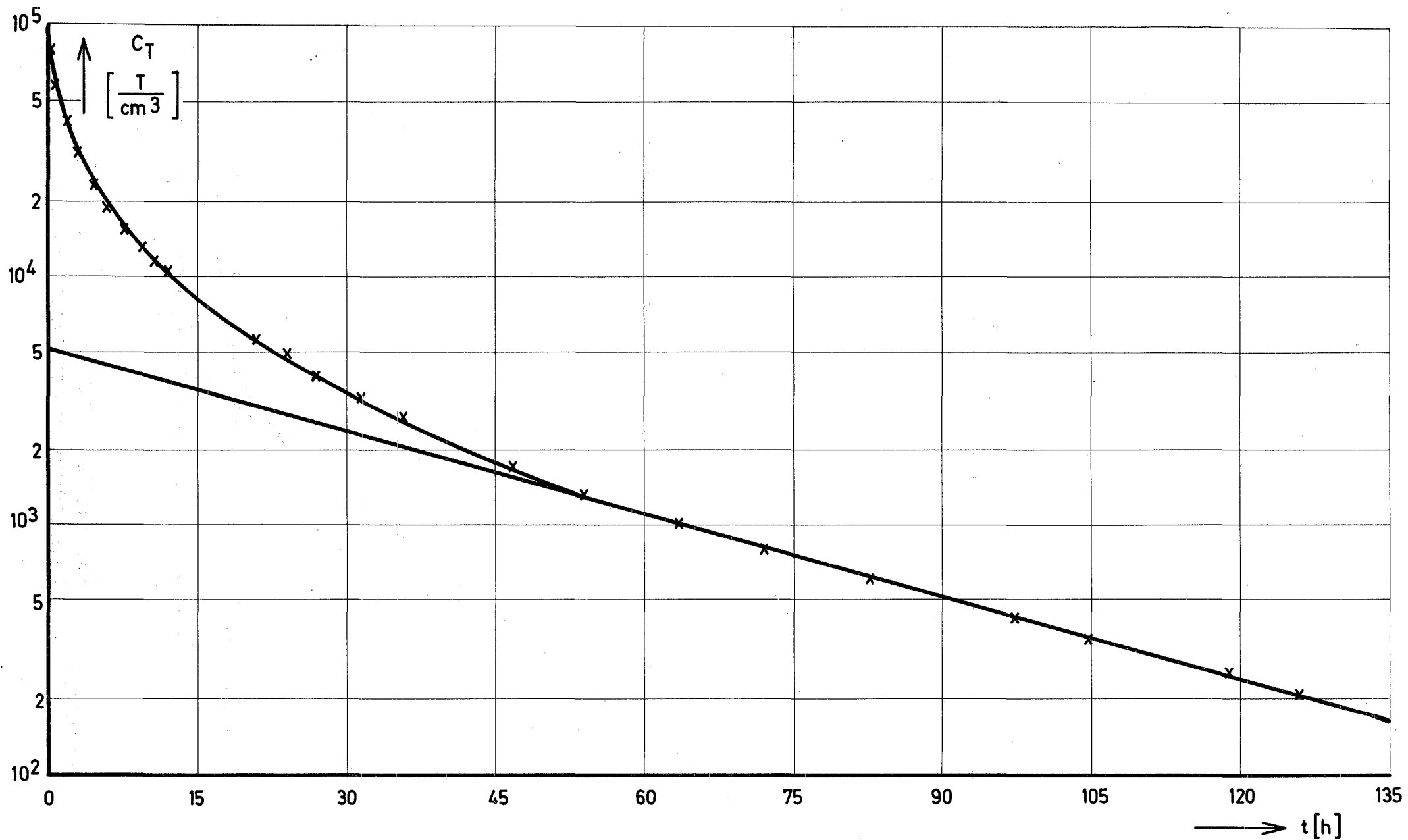


Abb. 19 Vergleich  $\times$  Meßwerte ( 166 )  
 — berechnete e-Funktion im TUNA Kessel

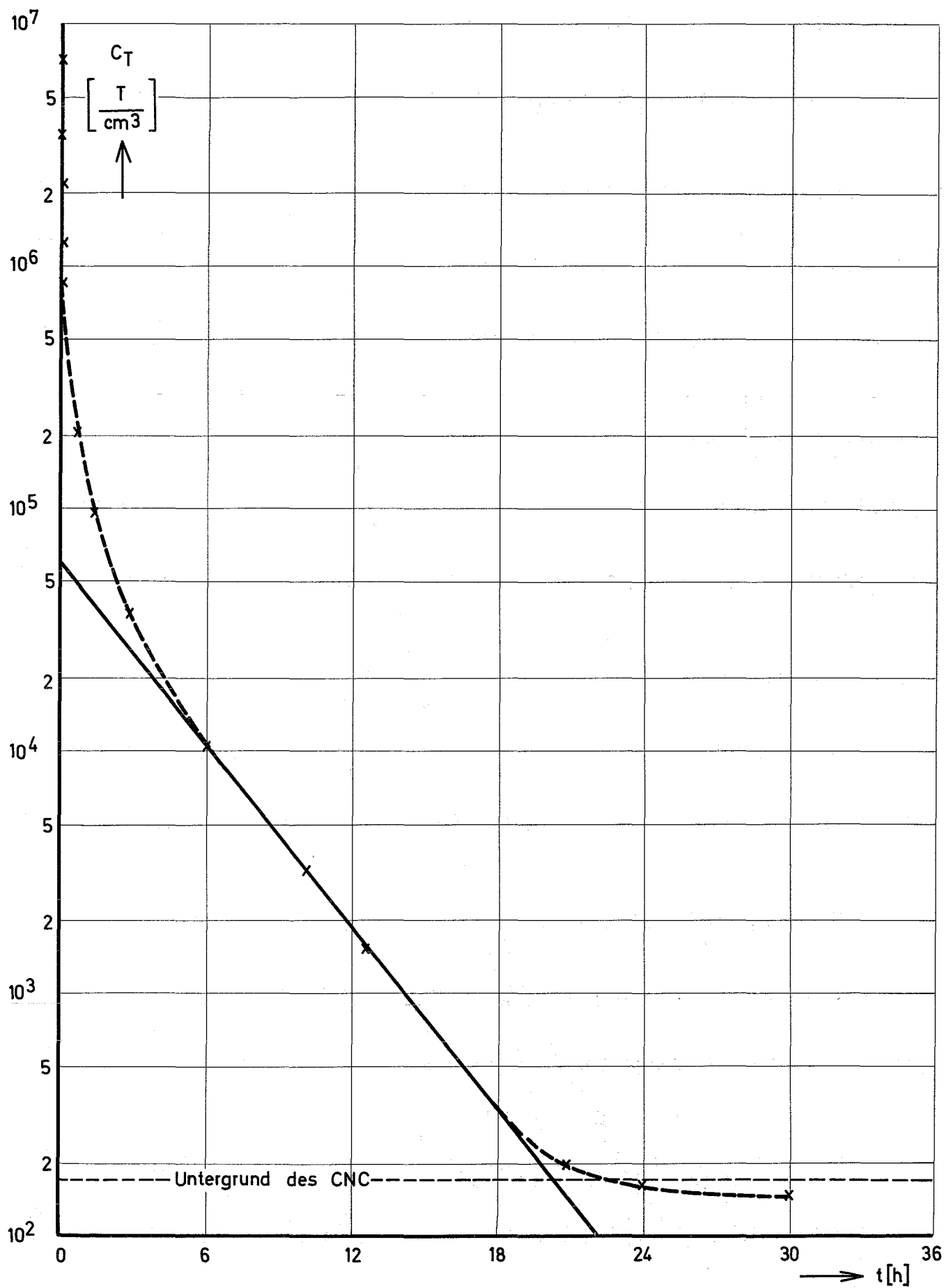


Abb. 20 Vergleich  $\times$  Meßwerte ( 163 )  
 — berechnete e - Funktion in der Glocke

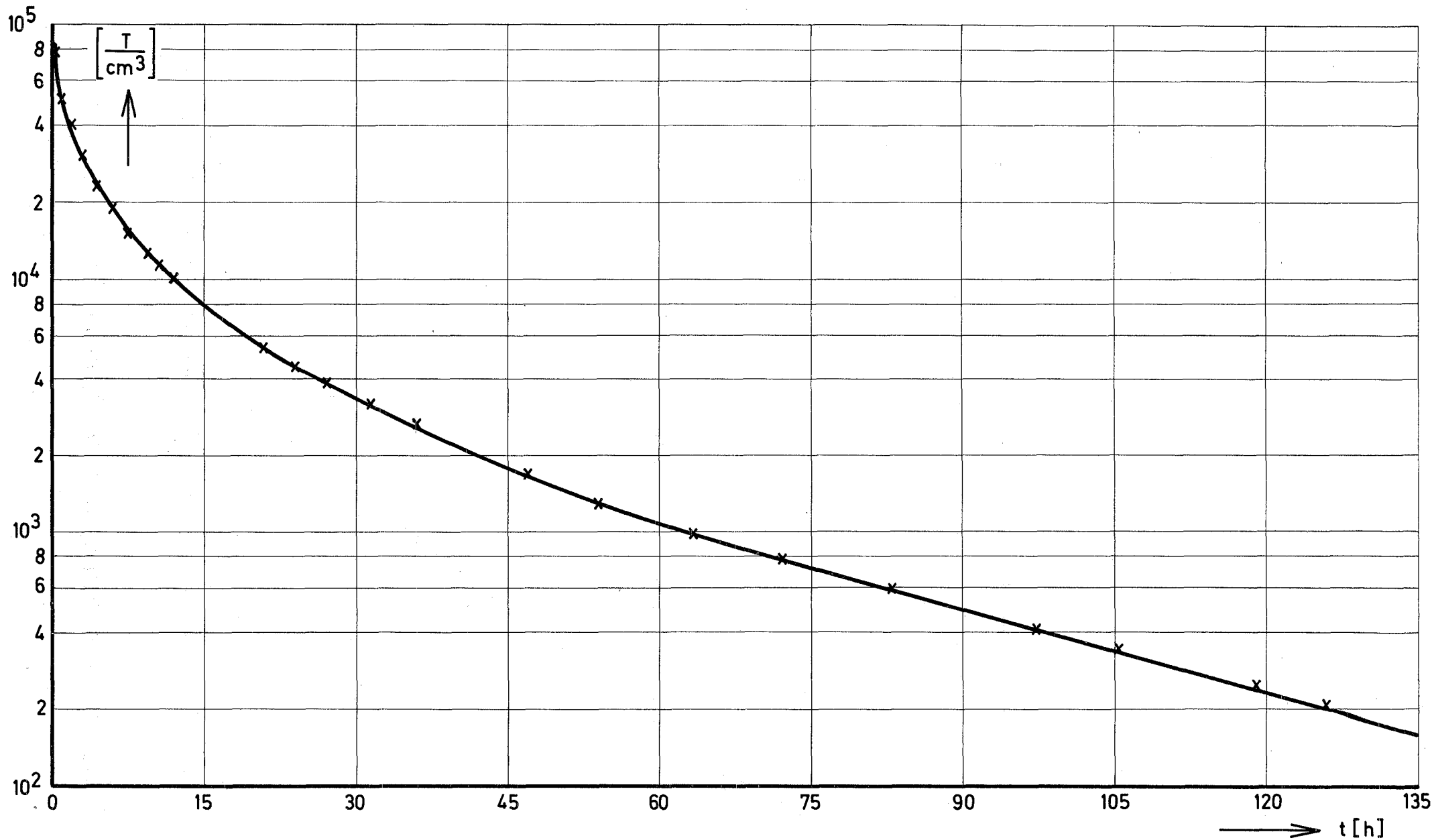


Abb.21 Theoretische Kurve mit Meßwerten ( 166 ) TUNA Kessel

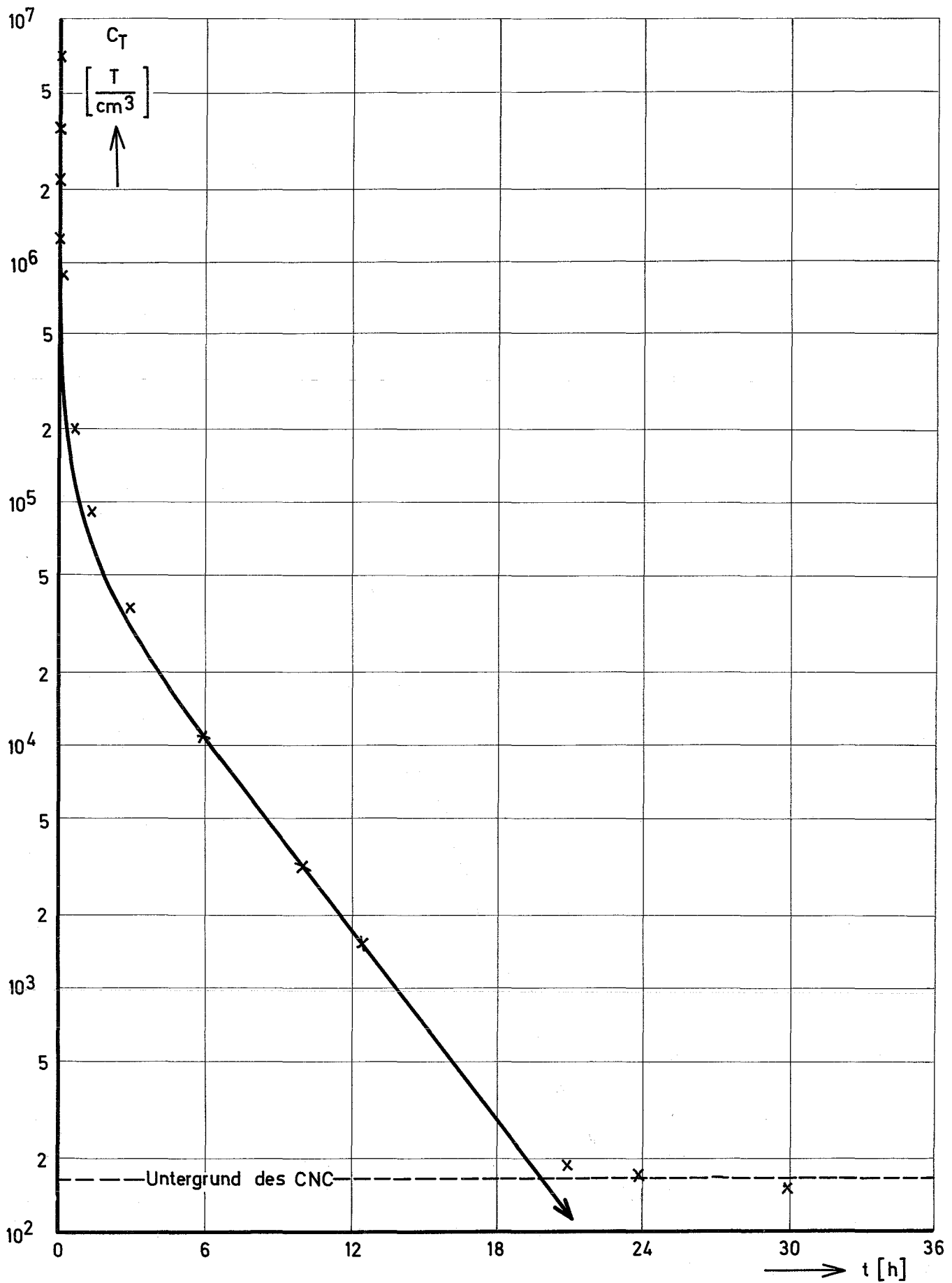


Abb.22 Theoretische Kurve mit Meßwerten (163) Glocke

Tab. 1

Explosionskammer

Material	Edelstahl ( 4541 )
Volumen	0.02 m <sup>3</sup>
Oberfläche	0.50 m <sup>2</sup>
Höhe	0.34 m
Durchmesser	0.30 m
Entfernung Probe - Boden	0.17 m

Tab. 2

Stoßstromanlage

maximale Energie	57 kWs
Entladezeit ( Energieeinbringzeit )	100 $\mu$ sec, 3m sec
Induktivität	12 $\mu$ H, 10mH
Gesamtkapazität	352 $\mu$ F
maximale Ladespannung	18 KV
Innenwiderstand	ca 5m $\Omega$



Tab. 3

Kessel

Material	Edelstahl ( 4541 )
Volumen	2.22 m <sup>3</sup>
Oberfläche	8.80 m <sup>2</sup>
Höhe	2.90 m
Durchmesser	1.00 m
Entfernung Probe - Boden	3.17 m

**Tab. 4****Aerosolerzeugungsbedingungen**

Probe (zylindrisch)	UO <sub>2</sub> stranggepreßt	
Abmessungen	Länge	40 mm
	Durchmesser	4 mm
Spezifische Einbringenergie	ca 500 Wsec / g	
Energieeinbringzeit	0.1 msec    3 msec	
Kesselbedingungen	Druck	1 at
	Temperatur	20°C
	relative Feuchte	10 %
	Gasart	N <sub>2</sub> (gefiltert)
Reinheit des UO <sub>2</sub> - Aerosols		
Verunreinigungen (gesamt)	< 0.1%	
mögliche Verunreinigungen	Ta, W, Fe, Ni, Mn	

Tab. 5

Optische Aerosolmeßgeräte

	maximale Konzentration	Größen Spektrum	minimale Größe
	$\frac{T}{\text{cm}^3}$	—	$\mu\text{m}$
Dust Counter	$10^2$	ja	0.3
Kondensationskernzähler	$10^7$	nein	0.001
Laser Aerosol Spektrometer	$10^4$	ja	0.12

Tab. 6

Übersicht über die Resultate

	TUNA-Kessel	TUNA-Glocke
$C_{M0}$	$50 \frac{\text{mg}}{\text{m}^3}$	$> 1000 \frac{\text{mg}}{\text{m}^3}$
$\varphi_0$	$\bar{d}_g = 0.073 \mu\text{m} \quad \sigma_g = 1.85$	—
$C_{T0}$	$> 10^7 \frac{\text{T}}{\text{cm}^3}$	$> 10^7 \frac{\text{T}}{\text{cm}^3}$
Nach ca 60 Minuten :		
$C_{M1}$	langsamer Abfall $6 \text{ h} \leq t_{HM1} \leq 15 \text{ h}$	$< 100 \frac{\text{mg}}{\text{m}^3}$ $t_{HM1} = 0.2 \text{ h}$
$\varphi_1$	$0.3 \mu\text{m} \leq d \leq 0.8 \mu\text{m}$	$0.3 \mu\text{m} \leq d \leq 0.8 \mu\text{m}$
$C_{T1}$	$< 10^5 \frac{\text{T}}{\text{cm}^3}$	$< 10^5 \frac{\text{T}}{\text{cm}^3}$
Nach ca 24 Stunden :		
$C_{M2}$	ca $5 \frac{\text{mg}}{\text{m}^3}$ $t_{HM2} > 100 \text{ h}$	nicht meßbar
$\varphi_2$	—	—
$C_{T2}$	$< 10^4 \frac{\text{T}}{\text{cm}^3}$ $t_{HT2} = 23.5 \text{ h}$	nach 21 h : Untergrund $t_{HT2} = 2.3 \text{ h}$

Die Daten geben Anhaltspunkte wieder.

Die genauen Werte sind aus den Abbildungen ersichtlich.

Tab.7

Vergleich Massenkonzentration -  
Halbwertszeit

Versuchsnummer	$C_{MO}$ $\frac{mg}{m^3}$	$t_{HM}$ h	Produkt $\frac{mg \cdot h}{m^3}$
143	15.4	14.3	220
147	19.5	10.5	205
148	14.5	15.2	220
152	1240	0.2	248

Tab. 8 Vergleich der Abnahme  
Massenkonzentration - Teilchenkonzentration

	$C_M$	$C_T$
	$\frac{mg}{m^3}$	$\frac{T}{cm^3}$
Anfangswert	1240	$>10^7$
10% des Anfangswertes	100	$10^6$
Zeit (min)	63	3.5
Abbildung	7	15
Versuchsnummer	152	163

Tab. 9 Vergleich der Massenkonzentrations -  
abnahme im Kessel mit dem berech-  
neten Wert

Versuchs - nummer	Abb.	$\frac{C_M}{C_{M0}}$ gemessen für t = 60 min	$\frac{C_M}{C_{M0}}$ berechnet für t = 60 min
143	4	93 %	74 %
147	6	84 %	
148	5	81 %	

