

# KERNFORSCHUNGSZENTRUM

# KARLSRUHE

November 1972

KFK 1667

Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit Projekt Nukleare Sicherheit

Graphische Auswertung von Experimenten zur Bestimmung der atmosphärischen Ausbreitung mit tritilertem Wasserdampf als Tracer

L.A. König, M. Winter



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE

#### KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1667

## Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit Projekt Nukleare Sicherheit

Graphische Auswertung von Experimenten zur Bestimmung der atmosphärischen Ausbreitung mit tritiiertem Wasserdampf als Tracer

von

L.A. König und M. Winter

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

 $(1,1,2,\dots,2,n) \in \mathbb{R}^{n}$ 

o Markovicio en en en el secondo en esta en entre e

.

(a) A set of the s

Graphical Evaluation of Experiments to Determine Atmospheric Dispersion with Tritiated Water Vapor as the Tracer

#### Summary

It is reported about dispersion experiments with tritiated water vapor as the tracer conducted so far at the Karlsruhe Nuclear Research Center. The height of the source was 100 m. To evaluate the immission, air humidity samples were freezed on cold surfaces at up to 25 points in the field of dispersion. In nine successful experiments a total of 39 concentration distributions were determined. The tritium concentration was measured with a liquid-scintillation spectrometer. For a constant rate of emission and a known absolute air humidity the dispersion factor averaged over one sampling period can be indicated. For better comparison with theoretically found values of the dispersion factor the values derived from the measurements were normalized to the wind velocity of 1 m/sec through multiplication by the wind velocity averaged over the sampling period and the height of emission. Only graphical evaluation was made in order to represent the dependence on the distance of the azimuthal maximum of the dispersion factor for the diffusion category prevailing during the entire period of each experiment. The results show considerable deviations from theoretical values both with respect to the amounts and the source distances of the absolute maxima of concentration. A remarkable feature is the distribution over time of values for the dispersion factor found within 1 to 2 hours of experiments. Of course, the results available hitherto do not permit any final interpretation. However, they enable a safe-side estimate to be made of the dispersion factor based on measurements.

#### Zusammenfassung

Es wird über Ergebnisse der bisher am Kernforschungszentrum Karlsruhe durchgeführten Ausbreitungsexperimente mit tritiiertem Wasserdampf als Tracer berichtet. Die Quellhöhe betrug 100 m. Zur Bestimmung der Immission wurden im Ausbreitungsfeld an bis zu 25 Stellen Luftfeuchteproben an kalten Oberflächen ausgefroren. In neun erfolgreichen Versuchen wurden insgesamt 39 Konzentrationsverteilungen ermittelt. Die Tritiumkonzentration wurde mit Hilfe eines Flüssigszintillationsspektrometers gemessen. Bei konstanter Emissionsrate und bei bekannter absoluter Luftfeuchte läßt sich der über eine Proben-Sammelperiode gemittelte Ausbreitungsfaktor angeben. Zur besseren Vergleichbarkeit mit theoretisch ermittelten Werten des Ausbreitungsfaktors wurden die aus den Messungen gewonnenen Werte durch Multiplikation mit der über Sammelperiode und Emissionshöhe gemittelten Windgeschwindigkeit auf die Windgeschwindigkeit 1 m/sec normiert. Die Auswertung erfolgte ausschließlich graphisch mit dem Ziel, die Entfernungsabhängigkeit des azimutalen Maximums des Ausbreitungsfaktors für die während der Versuchsdauer herrschende Diffusionskategorie darzustellen. Die Ergebnisse zeigen erhebliche Abweichungen von der Theorie sowohl hinsichtlich der Beträge als auch der Quelldistanzen der absoluten Konzentrationsmaxima. Bemerkenswert ist die zeitliche Streuung der innerhalb der Versuchsdauern von 1 bis 2 Stunden gefundenen Werte des Ausbreitungsfaktors. Die bisher vorliegenden Ergebnisse gestatten zwar keine endgültige Deutung, ermöglichen jedoch für den Standort des Kernforschungszentrums Karlsruhe eine durch Messungen gestützte, auf der sicheren Seite liegende Abschätzung des Ausbreitungsfaktors.

15.9.1972

#### INHALTSVERZEICHNIS

Seite

1.	Einleitung	1
2.	Durchführung der Ausbreitungsexperimente	2
	2.1 Tracerwahl	3
	2.2 Technik der Emission	4
	2.3 Bestimmung der Immission	4
	2.4 Fehlerbetrachtung	12
3.	Graphische Auswertung	13
4.	Ergebnisse und Diskussion	16

#### ANHANG

25

Graphische Darstellungen der für die einzelnen Versuche ermittelten Entfernungsabhängigkeiten der azimutalen Maxima des normierten Ausbreitungsfaktors bei 100 m Quellhöhe.

-

#### 1. Einleitung

Eine der vordringlichsten Aufgaben des Umweltschutzes ist die Reinhaltung der Luft. Eine optimale Lösung der hiermit verbundenen Probleme setzt u. a. möglichst umfassende Kenntnisse über die Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre voraus.

Der Zusammenhang zwischen der Schadstoffemissionsrate  $A(t^+)$ zur Zeit  $t^+$  und der Schadstoffkonzentration  $C(\mathbf{f},t)$  am Ort mit dem Ortsvektor  $\mathbf{f}$  zur Zeit t wird durch den ebenfalls zeit- und ortsabhängigen Ausbreitungsfaktor  $\chi(\mathbf{f},t)$  beschrieben:

$$X(\mathbf{r},t) = \frac{C(\mathbf{r},t)}{\dot{A}(t^{+})}$$
(1)

Die Zeit für den Schadstofftransport vom Emissions- zum Immissionsort ist durch die Differenz t -  $t^+$  gegeben.

Im Fall einer zeitlich konstanten Emissionsrate kann die Unterscheidung zwischen  $t^+$  und t in Gl. (1) entfallen. Unter dieser Voraussetzung ergibt sich für den zeitlichen Mittelwert des Ausbreitungsfaktors aus Gl. (1)

$$\frac{\int_{1}^{t_2} C(\mathbf{f}, t) dt}{\chi(\mathbf{f}, t_1, t_2)} = \frac{t_1}{\dot{A}(t_2 - t_1)}$$
(2)

Das am Kernforschungszentrum Karlsruhe laufende Versuchsprogramm zur Bestimmung der atmosphärischen Ausbreitung verfolgt zwei Ziele:

1. Die Bestimmung von standortspezifischen Kurzzeit-Ausbreitungsfaktoren  $\chi$  durch Direktmessung der bodennahen Konzentration im Ausbreitungsfeld zum Vergleich mit theoretischen "Norm-Werten" von Ausbreitungsfaktoren und 2. die Ermittlung standortspezifischer Parameter in Ausbreitungsformeln für die Berechnung von  $\chi$  zur Anwendung auf den Standort des Kernforschungszentrums Karlsruhe.

Dies erscheint notwendig, um Informationen über solche Wetterlagen zu erhalten, die von bekannten Ausbreitungsformeln nicht oder nur unzureichend erfaßt werden und um den Einfluß spezieller Geländebeschaffenheiten (Hügel, Wald, Bebauung) auf die Konzentrationsverteilung in der Umgebung des Emittenten kennenzulernen.

Der folgende Bericht beschränkt sich auf die Mitteilung der Ergebnisse einer graphischen Auswertung im Zusammenhang mit der Lösung der erstgenannten Aufgabe. Hierbei wird die experimentell ermittelte Entfernungsabhängigkeit der azimutalen Maxima der Ausbreitungsfaktoren veröffentlichten "Norm-Kurven" [1] (siehe auch [2]) gegenübergestellt.

Die radiale Abhängigkeit des azimutalen Maximums des Ausbreitungsfaktors ist bei Vorhersagen bedeutsamer als die azimutale Abhängigkeit des Ausbreitungsfaktors. Erstere Größe gibt das Maximum der Immission in einer gegebenen Entfernung an und ist von der Windrichtung unabhängig. Die Ausnutzung der azimutalen Abhängigkeit zur Beurteilung von Immissionen ist dagegen nur bei konstanter Windrichtung zulässig, wenn man Unterschätzungen der Belastung infolge von Windrichtungsänderungen vermeiden will.

#### 2. Durchführung der Ausbreitungsexperimente

Über die Durchführung der Ausbreitungsexperimente wurde bereits in [3] berichtet. Hier sollen die für das Verständnis des Folgenden notwendigen Fakten wiederholt und durch einige Einzelheiten ergänzt werden.

- 2 -

### 2.1 <u>Tracerwahl</u>

Ausbreitungsexperimente können nur mit Testsubstanzen durchgeführt werden, von denen sowohl die Emissionsrate als auch die Immission mit vernünftigem Aufwand hinreichend genau gemessen werden können. Ferner darf keine Vorbelastung der Atmosphäre mit einer solchen Substanz vorliegen, die zu einer Verfälschung der beabsichtigten Messungen führen könnte. Schließlich müssen die auftretenden Immissionskonzentrationen der Testsubstanz unschädlich sein und dürfen zu keiner Belästigung im beaufschlagten Gebiet führen.

Als Tracer für die bisher am Kernforschungszentrum Karlsruhe durchgeführten Ausbreitungsexperimente diente ausschließlich tritiiertes Wasser in Dampfform. Die Wahl fiel nicht zuletzt deshalb auf diesen Tracer, weil die Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe wegen ständiger Tritiumemissionen aus verschiedenen Anlagen routinemäßig auf Tritium überwacht wird. Hierbei können ohne besonderen Aufwand Tritiumkonzentrationen in Wasser unterhalb von 2 pCi/ml nachgewiesen werden, was bei einer absoluten Luftfeuchte von 10 g/m<sup>3</sup> einer Tritiumkonzentration der Luft von 2.10<sup>-11</sup> Ci/m<sup>3</sup> (≙ 0,1 %o des nach der Strahlenschutzverordnung [4] zulässigen Wertes für Tritium in der Atmosphäre) entspricht. Es kann daher mit so niedrigen Aktivitätskonzentrationen gearbeitet werden, daß selbst am Ort höchster Immission eventuelle Tritiuminkorporationen nicht die Grö-Benordnung nCi übersteigen, wobei die Inkorporation von 1 nCi einer Strahlenbelastung des Standardmenschen von 0,2 µrem entspricht. Demgegenüber beträgt die jährliche Strahlenbelastung durch Tritium aus dem Trinkwasser 0,1 -0,2 mrem.

Tritiiertes Wasser als Tracer ermöglicht außerdem eine einfache Emissions- und Probenahmetechnik.

#### 2.2 Technik der Emission

Die Aktivitätsfreisetzung erfolgte bei allen Versuchen über einen 100 m hohen Abluftkamin, dessen Abluft tritiierter Wasserdampf beigemischt wurde. Als optimal hat sich eine Verdampfungsanlage, bestehend aus einer 5 kW-Kochplatte und einem 30 l fassenden Topf, erwiesen. Der Dampfaustritt erfolgt durch ein in den Topfdeckel eingesetztes Rohrstück. Anheizzeit, Verdampfungsbeginn und -ende sowie Verdampfungsgeschwindigkeit können durch Druck- und Temperaturmessungen im Topf und durch Wägung des Topfes bestimmt werden.

Die Aktivitätsemissionsrate A(t) ergibt sich als Produkt aus der Aktivitätskonzentration  $C_K$  im Vorratsgefäß und der Verdampfungsgeschwindigkeit v:

$$A(t) = C_{K} \cdot v \tag{3}$$

A(t) läßt sich außerdem als Produkt aus Aktivitätskonzentration  $C_A$  in der Abluft und der Abluftleistung s darstellen:

 $\dot{A}(t) = C_{A} \cdot s \tag{4}$ 

Die pro Versuch freigesetzte Tritiumaktivität lag jeweils bei 10 bis 12 Ci. Bei einer konstanten Verdampfungsgeschwindigkeit von ca. 6 l/h ergaben sich, je nach Ausgangskonzentration, Emissionsraten von 4 - 5 Ci/h. Die Abluftleistung lag stets in der Größenordnung von  $10^5 \text{ m}^3$ /h. Bei einem durchschnittlichen Feuchtegehalt der Abluft von 10 g/m<sup>3</sup> werden folglich ca. 1000 l Wasser pro Stunde ausgestoßen, so daß die Beimengung von 6 l tritiiertem Wasser pro Stunde keinen meßbaren Einfluß auf den Feuchtegehalt der Abluft haben kann.

#### 2.3 Bestimmung der Immission

Als Probenahmetechnik zur Bestimmung der Immission bietet sich das Ausfrieren der Luftfeuchte an kalten Oberflächen an. Als besonders praktikabel hat sich das Auflegen von Aluminiumplatten auf Trockeneisriegel erwiesen, wobei pro Sammelstelle ca. 10 kg Trockeneis auf einer Campingtischplatte zum Ausgleich von Formunregelmäßigkeiten der Riegel in Sand eingebettet werden, um einen möglichst guten Kontakt zwischen Metallplatte und Trockeneis herzustellen. Die sich an der Oberfläche der Aluminiumplatte rasch bildende, schneeig-kristalline Schicht kann leicht abgeschabt und in eine Probenflasche eingebracht werden. Die Erfahrung hat gezeigt, daß - unabhängig von der herrschenden Luftfeuchtigkeit - mit dieser Methode bereits nach 10 bis 15 Minuten eine für die Messung ausreichende Probengutmenge gewonnen werden kann. Durch Doppelbesetzung einer Sammelstelle konnte bestätigt werden, daß der zeitliche Mittelwert der Tritiumkonzentration  $C_F$  einer Sammelperiode von der Dauer  $\Delta t$  mit dem arithmetischen Mittelwert aus zwei Konzentrationswerten  $\frac{F_1}{2}$ zweier aufeinanderfolgender Sammelperioden von der Dauer  $\Delta t_1 = \Delta t_2 = \Delta t/2$  innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmt.

Die Tritiumkonzentration C<sub>F</sub> in der Luftfeuchte wird mit einem Flüssigszintillationsspektrometer bestimmt. Sie errechnet sich aus der Bruttorate R<sub>M</sub>, der Nullrate R<sub>o</sub>, dem Wirkungsgrad n und der Meßgutmenge m in Gramm nach der Beziehung

$$C_{F} = \frac{R_{M} - R_{o}}{2,22 \frac{z pm}{pCi} \cdot \eta \cdot m}$$
(5)

Aus der Tritiumkonzentration in der Luftfeuchte,  $C_F$ , und der absoluten Feuchte f<sub>abs</sub>(**r**), die man innerhalb einer Sammelperiode von 20 min Dauer als zeitlich konstant ansehen darf, ergibt sich die Tritiumkonzentration in der Luft, C, aus der Beziehung

$$C(\mathbf{r},t) = f_{abs}(\mathbf{r}) \cdot C_{F}(\mathbf{r},t)$$
(6)

)

Aus den Gln. (2), (3) und (6) erhält man schließlich für den zeitlichen Mittelwert des Ausbreitungsfaktors

$$\overline{\chi(\mathbf{r},t_1,t_2)} = \frac{f_{abs}(\mathbf{r}) \overline{C_F(\mathbf{r},t_1,t_2)}}{C_K v}$$
(7)

Da es sich bei dem Zeitintervall  $(t_1, t_2)$  um einen relativ kleinen Zeitraum handelt, ist der nach Gl. (7) berechnete Ausbreitungsfaktor als Kurzzeit-Ausbreitungsfaktor aufzufassen.

Die Ausbreitungsexperimente erfordern einen erheblichen organisatorischen Aufwand, da praktisch jede Sammelstelle von einem Mitarbeiter betreut werden muß. Es hat sich daher als notwendig erwiesen, den Zeitpunkt eines beabsichtigten Ausbreitungsversuches im voraus festzulegen. Dies bedeutet allerdings, daß der Probenahmesektor und die Sammelstellen innerhalb des Sektors kurzfristig vor Versuchsbeginn unter Berücksichtigung der meteorologischen und der topographischen Gegebenheiten festgelegt werden müssen.

Nähere Angaben wie Zeit, Wetterdaten\*, Lage und Zahl der Sammelstellen im Versuchsfeld und die Emissionsraten zu den einzelnen Versuchen sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

Während bei den Versuchen Nr. 1 bis 7 nie mehr als 11 Sammelstellen aufgebaut werden konnten, standen ab Versuch Nr. 8 stets 25 Sammelstellen zur Verfügung. Die Verteilung der Sammelstellen hat sich sowohl an der Auffindbarkeit im Gelände einer auf der Karte fixierten Stelle zu orientieren als auch an der Qualität dieser Stelle hinsichtlich der Gewährleistung einer ausreichenden vertikalen Luftdurchmischung. Beide Bedingungen sind im Waldgebiet oft nur schwer zu erfüllen.

\*Alle zur Durchführung der Ausbreitungsexperimente erforderlichen meteorologischen Daten sind von Mitarbeitern der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit/Theorie und Meteorologie ermittelt und zur Verfügung gestellt worden.

fort-	Zeitangaben			Zahl der	Zur Wetterlage w. d. Versuchs					Versuchsfeld						Emissions-	
laufende Versuchs- Nr.	Datum	Uhrzeit tum von bis		Sammel- perioden	diagnost. Kategorie n. Pasquill	u 6C in m / s min   max		f <sub>absj</sub> in g/m <sup>3</sup> min   max		Radien <sup>r</sup> i <sup>r</sup> a km   km		Winkel ge Nord in G <sup>a</sup> 1 <sup>a</sup> 2		sen rad <b>Δ</b> α	Zahl der Sammel- stellen	rate Á in Ci/h	Zahl der Proben
1	23. 1.69	14 <sup>37</sup>	1559	1	D	5,0	6,4	7,4	7,5	0,810	5 <b>,0</b> 0	40	71	31	16	4	16
2	30. 6.69	2100	22 <sup>50</sup>	3	C/D		-	11,7	12,1	1,50	3,10	280	314	34	6	≠ const.	18
3	16.10.69	10 <sup>30</sup>	12 <sup>00</sup>	3	<u>C</u> /D	3,0	4,6	8,0	9,0	0,93	3,56	238	264	26	8	4,8	23
4	16.10.69	15 <sup>10</sup>	16 <sup>10</sup>	3	D≁C	-	-	10,0	10,0	0,93	2,42	239	263	24	5	4,8	3
5	17.10.69	1100	1140	2	C- <b>&gt;<u>B</u></b>	4,5	4,6	8,0	8,0	0,93	2,86	238	257	19	5	4,8	10
6	29.10,69	1100	1250	6	C	4,7	6,5	8,0	8,0	1,50	4,50	27	71	44	8	4,8	48
7	31.10.69	1400	15 <sup>40</sup>	5 <u>5</u>	∞ C <u>∕</u> D	5,4	6,6	7,0	7,0	0,98	2,91	37	61	24	11	4,8	55
8	23. 3.71	10 <sup>00</sup>	12 <sup>00</sup>	6	<u>B</u> /C	3,1	4,5	3,0	3,7	0,60	2,58	154	214	60	25	4,76	134
9	18. 5.71	10 <sup>40</sup>	12 <sup>40</sup>	6	A/ <u>B</u>	1,5	3,0	8,8	11,0	0,27	1,48	16	141	125	25	3,82	144
10	20. 7.71	1100	12 <sup>40</sup>	5	С	4,9	.6,8	9,7	10,1	0,60	2,90	192	230	38	25	4,27	125
11	4.11.71	13 <sup>40</sup>	15 <sup>20</sup>	5	C/D	4,2	5,9	6,3	6,3	0,27	2,10	359	62	63	25	4,04	125
12	8. 2.72	13 <sup>30</sup>	15 <sup>20</sup>	5	$C \rightarrow A/B$	0,9	2,9	5,9	5,9	0,40	2,43	223	106	243	20	3,96	106

Tab. 1 Versuchsbedingungen

Nord



.



Die 25 Sammelstellen wurden auf 5 Ringzonen unterschiedlicher Radien verteilt, wie Abb. 1 an einem Beispiel zeigt. Die Radien dieser Ringzonen wurden entsprechend der jeweils letzten vor dem Start eines Versuches verfügbaren Prognose der Diffusionskategorie festgelegt. Zur Fixierung der azimutalen Lage des Versuchsfeldes diente die Prognose der mittleren Windrichtung für die geplante Versuchsdauer.

Erwartungsgemäß stimmen bei der Mehrzahl der Versuche die vorhergesagten Wetterbedingungen ("Prognose") und die nach dem Versuch ermittelten tatsächlichen Bedingungen ("Diagnose") nicht völlig überein, so daß die Lage des Versuchsfeldes entsprechend diesen Diskrepanzen nicht immer optimal gewählt war.

Der Einsatz von Speziallinealen erleichterte das schnelle Übertragen der vorgewählten Zonen auf Landkarten, die den Truppführern der Sammeltrupps, die jeweils für eine Ringzone zuständig waren, mitgegeben wurden. Die Abbildungen 2 und 3 zeigen die bei den verschiedenen Ausbreitungsexperimenten erfaßten Gebiete in der Umgebung des Kernforschungszentrums. Bei den Ausbreitungsversuchen Nr. 1 bis 7 diente der MZFR-Abluftkamin als Emittent, ab Versuch Nr. 8 jener des FR 2.

Die Verwendung von tritiiertem Wasser als Tracer und die dadurch bedingte Sammeltechnik erwiesen sich hinsichtlich der Probengewinnung als besonders vorteilhaft. Wegen der relativen Kürze einer Sammelperiode können, falls sich die mittlere Windrichtung nicht wesentlich ändert, mehrere Perioden direkt aneinander angeschlossen werden. Auf diese Weise konnte an den gleichen Sammelstellen oft bis zu 5 Sammelperioden hindurch Luftfeuchte gesammelt werden. Dies bedeutet, daß bei dem einzelnen Ausbreitungsexperiment 125 Konzentrationswerte gewonnen werden konnten.

- 9 -





#### 2.4 Fehlerbetrachtung

Anwendung des Fehlerfortpflanzungsgesetzes auf Gl. (7) führt zu der Beziehung

$$\left(\frac{\Delta\chi}{\chi}\right)^{2} = \left(\frac{\Delta C_{F}}{C_{F}}\right)^{2} + \left(\frac{\Delta f_{abs}}{f_{abs}}\right)^{2} + \left(\frac{\Delta v}{v}\right)^{2}$$
(8)

Unter Verwendung von Gl. (5) ergibt sich der relative Fehler von  $C_F$  zu

$$\left(\frac{\Delta C_F}{C_F}\right)^2 = \frac{4(\lambda+1)}{R_0 T_M(\lambda-1)^2} + 0,0007$$
(9)

mit  $\lambda = \frac{R_M}{R_o}$ .

T<sub>M</sub> bedeutet die Meßzeit. Die additive Konstante berücksichtigt die Fehler bei der Bestimmung des Zählwirkungsgrades η (herrührend vom Fehler des Eichstandards) und der verwendeten Meßgutmenge m.

Der relative Fehler von  $f_{abs}$  beträgt ca. 5 % und jener der Verdampfungsgeschwindigkeit v ca. 8 %. Unter Verwendung dieser Werte sowie für  $\lambda > 10$  und  $R_0 T_M \approx 200$  erhält man für das Quadrat des relativen Fehlers von X einen Wert von < 0,02, was einem prozentualen Fehler von weniger als 14 % entspricht. Für den auf die Windgeschwindigkeit u = 1 m/sec normierten Wert des Ausbreitungsfaktors folgt hieraus

$$\left[\frac{\Delta(\chi u)}{\chi u}\right]^2 \leq \left(\frac{\Delta u}{u}\right)^2 + 0,02$$
(10)

Der absolute Fehler bei der Messung der Windgeschwindigkeit beträgt etwa 0,5 m/sec. Bei einer Windgeschwindigkeit von z. B. 2 m/sec beläuft sich also der relative Fehler der Größe (Xu) bereits auf 28 %, wozu allein der Fehler der Windgeschwindigkeit 25 % beiträgt.

Die Nachweisgrenze für die Tritiumkonzentration in der Luftfeuchte variierte je nach verfügbarer Meßgutmenge zwischen 0,5 und 2 pCi/ml. Je nach absoluter Feuchte entsprach dem bei einer Emissionsrate von 4 Ci/h eine Nachweisgrenze für den Ausbreitungsfaktor  $\chi$  von 4 · 10<sup>-9</sup> bis 4 · 10<sup>-8</sup> s/m<sup>3</sup>.

#### 3. Graphische Auswertung

Das unmittelbare Ergebnis eines Ausbreitungsexperiments sind Konzentrationsverteilungen im Ausbreitungsfeld für jede Sammelperiode. Abb. 1 zeigt als Beispiel eine solche Konzentrationsverteilung für eine Sammelperiode von Versuch Nr. 11. Man erkennt dort die radiale und azimutale Verteilung der 25 Sammelstellen. Die Ringzonen sind mit römischen Ziffern versehen. Innerhalb einer jeden Ringzone wurden die jeweils 5 Sammelstellen im Uhrzeigersinn mit Großbuchstaben gekennzeichnet. In das dargestellte Versuchsfeld wurde außerdem die unmittelbar vor dem Versuch prognostizierte Hauptwindrichtung eingezeichnet. Die in der Abbildung neben den Sammelstellen notierten Zahlenwerte bedeuten die in dieser Sammelperiode an der betreffenden Stelle gefundenen Aktivitätskonzentrationen C in pCi/m<sup>3</sup> Luft (vergl. Gl. (6)). Aus diesen Werten ergibt sich nach Gl. (7) die entsprechende räumliche Verteilung des Ausbreitungsfaktors X für diese Sammelperiode.

Zunächst wurden nun auf graphische Weise die einer bestimmten Sammelperiode zugeordneten maximalen  $\chi$ -Werte der azimutalen Verteilungen der 5 Ringzonen ermittelt. Hierbei wurden die Fehler, mit denen die einzelnen  $\chi$ -Werte behaftet waren (s. Kap. 2.4), berücksichtigt.

Führt man dies für alle Sammelperioden eines Versuchs aus, so erhält man für jede einer Ringzone entsprechenden Quelldistanz genau so viele  $\chi_{max}$ -Werte, wie Sammelperioden durchgeführt wurden.

Zum Übergang auf normierte Ausbreitungsfaktoren wurden die erwähnten  $\chi_{max}$ -Werte mit dem zur jeweiligen Sammelperiode gehörenden Mittelwert der Windgeschwindigkeit multipliziert. Die Mittelung erfolgte dabei sowohl über die Sammelzeit als auch über die Emissionshöhe von 100 m. Nach Nester [5] kann bei den hiesigen Gegebenheiten, unabhängig von der herrschenden Diffusionskategorie (!), in guter Näherung als Mittelwert für die über die Quellhöhe zu mittelnden Windgeschwindigkeitswerte der in 60 m Höhe gemessene Wert u<sub>60</sub> verwendet werden.

Die auf die geschilderte Weise für jede Sammelperiode und eine bestimmte Quelldistanz ermittelten Maxima der azimutalen Verteilungen der normierten Ausbreitungsfaktoren streuen beträchtlich, und zwar erheblich stärker als die nach Gl. (10) bestimmten Meßfehler zulassen würden. Da sich diese starke zeitliche Streuung nicht aus entsprechenden zeitlichen Schwankungen der gemessenen meteorologischen Daten erklären läßt - es mithin keinen Grund gab, dem maximalen Ausbreitungsfaktor einer bestimmten Sammelperiode innerhalb des Gesamtversuchs den Vorzug zu geben – wurden die Einzelwerte  $(\chi u_{60})_{max}$  der Sammelperioden inclus. ihrer Fehler zu einem zeitlichen Streumittelwert  $(\chi u_{60})_{max}$  über die Gesamtversuchsdauer mit entsprechender Streubreite zusammengefaßt. In Abb. 4 wurden als Beispiel für eine Ringzone die azimutalen Verteilungen des normierten Ausbreitungsfaktors  $(\chi u_{60})$  für die einzelnen Sammelperioden des Versuchs Nr. 11 dargestellt.

Für jeden Ausbreitungsversuch wurde als Endergebnis der graphischen Auswertung die Abhängigkeit der azimutalen Maxima des normierten Ausbreitungsfaktors von der Quelldistanz (mittlere Radien der Ringzonen) dargestellt. Diese

- 14 -



Darstellungen sind im Anhang enthalten. In die Diagramme wurden die zeitlichen Streumittelwerte der azimutalen Maxima der normierten Ausbreitungsfaktoren selbst und die zugehörigen Streubreiten eingezeichnet. Ihre Entfernungsabhängigkeit wird dadurch veranschaulicht, daß den Streubreiten graugetönte Bänder unterlegt wurden, deren Begrenzungskurven selbstverständlich nicht ganz frei von Willkür gezeichnet werden konnten. Zum Vergleich wurden in jedes Diagramm die aus [1] entnommenen "Normkurven" für die Pasquill'schen Diffusionskategorien eingetragen.

Bei 4 der auswertbaren Experimente waren die Sammelstellen nicht auf Ringzonen verteilt. Es konnten daher zur graphischen Auswertung nur Schnitte durch möglichst viele Sammelstellen gelegt und die zugehörigen maximalen  $(Xu_{60})$ -Werte und Quelldistanzen ermittelt werden. Selbstverständlich haben diese Versuchsergebnisse weniger Gewicht, da weniger Meßwerte zur Verfügung standen.

#### 4. Ergebnisse und Diskussion

Die wesentlichen Ergebnisse dieser Untersuchung sind in Tabelle 2, in Abb. 5 und in den 9 Diagrammen des Anhangs enthalten.

In Spalte 1 der Tabelle 2 ist die fortlaufende Versuchs-Nr. angegeben. Die Versuche Nr. 2, 4 und 12 waren nicht auswertbar und wurden deshalb nicht in Tabelle 2 aufgenommen. Bei Versuch Nr. 2 wurde im Gegensatz zu allen anderen Ausbreitungsversuchen die betriebliche Tritiumemission des MZFR genutzt. Durch die starken zeitlichen Schwankungen der Emissionsrate ergaben sich jedoch für eine Auswertung erhebliche zusätzliche Schwierigkeiten sowohl durch die nicht verzögerungsfreie Messung der Emissionskonzentration als auch bei der Zuordnung von Emissions- zu Immissionszeitintervallen (siehe Einleitung, Gl. (1)). Während bei Versuch Nr. 4 infolge Windrichtungsänderung überhaupt nur ein Meßwert oberhalb der Nachweisgrenze gewonnen werden konnte, lieferte Versuch Nr. 12 zwar über 100 Immissions-Meßwerte, die für eine Auswertung der vorliegenden Art dennoch untauglich sind, da wegen umlaufender Winde während des Versuchs (s. Tab. 1) ständige Verlagerungen der Sammelstellen vorgenommen werden mußten.

Spalte 2 von Tabelle 2 enthält die für den jeweiligen Versuchszeitraum diagnostizierte Diffusionskategorie nach Pasquill. In der Mehrzahl der Fälle ließ sich die herrschende Wetterlage nicht eindeutig für die gesamte Versuchsdauer einer bestimmten Diffusionskategorie nach Pasquill zuordnen. Während eines Versuchs wurden sowohl in einer Richtung verlaufende Übergänge von einer Kategorie zu einer "benachbarten" beobachtet, als auch ein statistisch verteiltes Auftreten von zwei Kategorien. Mit der in Spalte 2 verwendeten Symbolik wird versucht, diesen Sachverhalt wiederzugeben. Im ersten Fall wurde zwischen die Großbuchstaben der Kategorien ein Pfeil gesetzt, im zweiten Fall ein Schrägstrich. Unterstreichungen kennzeichnen das zeitlich überwiegende Auftreten einer Kategorie.

Zur Veranschaulichung der bei den Versuchen von den Meßwerten überstrichenen Bereiche des Ausbreitungsfaktors X wurden in zwei weiteren Spalten die Nachweisgrenzen den jeweils größten gefundenen Einzelmeßwerten gegenübergestellt. Die maximalen Einzelwerte liegen bis zu einem Faktor 1000 über der Nachweisgrenze.

Ferner wurden in Tabelle 2 absolute (als solche durch \* gekennzeichnete) Maximalwerte normierter Ausbreitungsfaktoren (Xu)<sup>\*</sup><sub>max</sub> und die zugehörigen Radien bzw. Quelldistanzen r<sub>max</sub> angegeben. Dabei wurden jeweils drei auf unterschiedliche Weise ermittelte absolute Maximalwerte nebeneinandergestellt, die untereinander verglichen werden sollen.

an di sa

Fortlfd. Vers	Diagn. Diff	Ausbreitung in 10 <sup>-6</sup> se Nachweis-	sfaktor χ c,m <sup>-3</sup>   max.Einzel-	Höchstwerte normierter Ausbrei- tungsfaktoren in $10^{-6}m^{-2}$ ( $\chi U_{60}$ ) <sup>*</sup> ( $\chi U_{60}$ ) <sup>*</sup> ( $\chi U_{01}$ ) <sup>*</sup>			Radien maxi tion Sammelst.	maler Bodenk r <sub>max</sub> in km	onzentra-	$f \equiv \frac{1}{(\chi u_{50})^{*}}$	ρ≡ r <sub>max,graph.</sub>
111.	NaveB.	grenze	meßwert	gemessen	graphisch	theoret.	max. Konz.	graphisch	theoret.	(XU/max,th_	[ max, theor.
1	D	0,04	2,6	15,0 <u>+</u> 2,1	14,7 <u>+</u> 4,1	8,6	3,55 ± 0,1	2,40 <u>+</u> 0,03	2,65	1,7 <u>+</u> 0,5	0,91
3	<u>Ç</u> ∕D	0,04	3,0	11,4 <u>+</u> 1,8	18 <u>+</u> 6	11,8	1,52 <u>+</u> 0,03	1,65 ±0,03	1,58	1,5 <u>+</u> 0,5	1,04
5	C⇒ <u>B</u>	0,036	2,2	9,9 ± 1,1	≥9,3 <u>+</u> 1,8	16,5	0,93 <u>+</u> 0,03	<b>≤0,9</b> 4 ±0,03	0,82	≥0,6 <u>+</u> 0,1	£1,14
6	C	0,024	5,6	27 <u>+</u> 4	≥21 <u>+</u> 11	14,6	1,50 <u>+</u> 0,03	<b>≟1,50 <u>+</u>0,</b> 03	1,05	≥1,4 <u>+</u> 0,7	<b>≤</b> 1,43
7	C∕ <u>D</u>	0,032	2,7	15,5 <u>+</u> 2,0	13 <u>+</u> 5	11,8	1,72 ± 0,03	1,75 <u>+</u> 0.03	1,58	1,1 <u>+</u> 0,4	1,11
8	<u>B</u> ∕C	0,0036	3,8	16,6 <u>+</u> 2,6	≥12 <u>+</u> 7	16,5	0,62 <u>+</u> 0,03	<b>≤0,6</b> 3 <u>+</u> 0,03	0,82	≥0,7 <u>+</u> 0,4	<b>≤</b> 0,77
9	A/B	0,014	17,7	34 <u>+</u> 7	≥24 <u>+</u> 17	20,8	0,27 <u>+</u> 0,03	<b>≤0,</b> 29 <u>+</u> 0,01	0,48	≥1,1 <u>+</u> 0,8	<b>≄ 0,6</b> 1
10	C	0,014	3,0	16,0 <u>+</u> 2,2	≥10 <u>+</u> 9	14,6	0,61 ± 0,01	<b>≤0,6</b> 1 <u>+</u> 0,03	1,05	≥0,7 <u>+</u> 0,6	<b>≤ 0,5</b> 8
11.	C/D	0,007	5,3	26 <u>+</u> 4	22 <u>+</u> 10	11,8	0,60 ± 0,03	0,74 ±0,02	1,58	1,9 <u>+</u> 0,8	0,47

Tab. 2 Höchstwerte der normierten Ausbreitungsfaktoren und zugehörige Radien maximaler Bodenkonzentration bei den ausgewerteten Ausbreitungsversuchen. Gegenüberstellung gemessener, graphisch ermittelter und theoretisch bestimmter Werte. In der Spalte "gemessen" wurde für jeden ausgewerteten Versuch der größte während eines Versuchs in irgendeiner Sammelperiode an irgendeiner Sammelstelle aufgetretene Wert  $(\chi u_{60})^*_{max}$  mit dem zugehörigen Meßfehler notiert.

In die Spalte "graphisch" wurde hingegen für jeden Versuch der sich aus der graphischen Auswertung in radialer Richtung ergebende Maximalwert  $(\overline{Xu_{60}})^*_{max}$  der Streumittelwerte  $(\overline{Xu_{60}})_{max}$ , die für jede Ringzone zu ermitteln waren, zusammen mit seiner Streubreite eingetragen. Die Werte dieser Spalte ergeben sich als Mitten von gedanklich durch die Maxima der in den Diagrammen des Anhangs dargestellten "Bänder" gelegten vertikalen Schnitte.

Die Spalte "theoretisch" enthält schließlich die radialen Maxima (Xu)\*<sub>max</sub> der "Normkurven" nach [1] für 100 m Quellhöhe entsprechend der diagnostizierten Kategorie in Spalte 2.

Die drei nächsten Spalten enthalten die hierzu gehörigen Radien maximaler Bodenkonzentration r<sub>max</sub>.

Die in den beiden letzten Spalten der Tabelle 2 eingeführten Größen f und ogeben das Verhältnis der graphisch ermittelten zu den sich aus der Theorie ergebenden Werten wieder. Es bedeuten

$$f = \frac{\overline{(\chi u_{60})}^* \max, \operatorname{graph.}}{(\chi u)^* \max, \operatorname{theor.}}$$
(11)

und

$$\rho = \frac{r_{max,graph.}}{r_{max,theor.}}$$
(12)

Aufgrund der zeitlichen Streuung der graphisch ermittelten  $(\chi u_{60})*_{max}$ -Werte ergeben sich für die Quotienten f entsprechende Streubreiten. Die für f und  $\rho$  gefundenen Werte machen

nicht nur die Unterschiede zwischen experimentellem Befund und theoretischer Vorhersage deutlich, sie spiegeln auch, soweit sie mit Ungleichheitszeichen versehen werden mußten, Schwierigkeiten der Versuchsdurchführung wieder. Wie bereits erwähnt, wurden die Sammelstellen entsprechend der vom Meteorologen prognostizierten Wetterkategorie ausgewählt. Die Erfahrung hat gezeigt, daß sich die Konzentrationsverteilung im Ausbreitungsfeld während eines Experiments nicht mit ausreichender Sicherheit vorhersagen läßt, so daß unter Umständen nach dem Versuch festgestellt werden muß, daß die Sammelstellen nicht optimal gewählt worden waren. Dies kann zur Folge haben, daß das Konzentrationsmaximum radial oder/ und azimutal nicht erfaßt wird. Bei den Ausbreitungsexperimenten Nr. 5, 6, 8, 9 und 10 wurden die absoluten radialen Konzentrationsmaxima nicht erfaßt. Bei diesen Experimenten kann lediglich ausgesagt werden, daß das wahre Konzentrationsmaximum noch größer ist und noch näher an der Quelle liegt als die Zahlenwerte für f und  $\rho$  angeben.

Bemerkenswert ist, daß bei den Ausbreitungsexperimenten nur 2 eindeutige Fälle mit  $\rho > 1$  aufgetreten sind. In dem einen Fall (Versuch Nr. 7) übersteigt die Quelldistanz des absoluten Konzentrationsmaximums die theoretische Erwartung um 11 %, im anderen Fall (Versuch Nr. 3) nur um 4 %. In allen übrigen Fällen ist  $\rho$  entweder tatsächlich oder aber – wie aus dem Kurvenverlauf geschlossen werden kann – mit an Sicherheit grenzender Wahrscheinlichkeit < 1. Die Tendenz der Verschiebung des absoluten Konzentrationsmaximums hin zur Quelle ist also unverkennbar. Im Extremfall betrug die bestimmte Quelldistanz nur knapp die Hälfte des theoretischen Wertes! Noch wesentlich kleinere Werte für  $\rho$  sind allerdings kaum zu erwarten, da die Immissionskonzentrationen zwischen Maximum und Quelle sicher nicht beliebig steil abfallen dürften.

Ebenso unverkennbar wie die Tendenz der Verkürzung der Quelldistanzen der Konzentrationsmaxima (Quotienten  $\rho$ ) ist die Tendenz zu größeren Höchstwerten der normierten Ausbreitungsfaktoren (Quotienten f). Bei 6 von 9 Versuchen ergaben sich für f Werte größer als 1. Die Streumittelwerte  $\overline{(\chi u_{60})} *_{max}$  übersteigen jedoch selbst im ungünstigsten Fall die Maxima der "Normkurven" um nicht mehr als einen Faktor 2. Betrachtet man nicht nur die zeitlichen Streumittelwerte der Versuche, sondern auch die während der Versuche innerhalb jeweils nur einer Sammelperiode tatsächlich aufgetretenen Höchstwerte des Ausbreitungsfaktors, so ergibt sich im Extremfall (bei Versuch Nr. 11) ein Faktor 2,7 für die Überhöhung.

Untersucht wurde auch die Frage, ob sich ein Gang der Größen f und  $\rho$  mit der Stabilitätsklasse feststellen läßt. In der Tat ist an den Quotienten f ein Anstieg mit wachsender Stabilität zu erkennen. Es erscheint jedoch verfrüht, hieraus jetzt schon Schlüsse ziehen zu wollen, bevor dieser Befund nicht durch weitere Experimente erhärtet ist. Für  $\rho$ gibt es keine entsprechende Tendenz.

Für den Fall, daß kein Fachmann zur Verfügung steht, um in einer konkreten Situation eine rasche und zugleich zuverlässige Aussage über Diffusionskategorie und Ausbreitungsfaktor zu machen, ist es nützlich, dann wenigstens ungünstigste Werte der Ausbreitungsfaktoren unabhängig von Diffusionskategorien zu kennen. Ungünstigste Werte in diesem Sinne liefert die Theorie in Form der Einhüllenden zur Normkurvenschar nach [1], die in Abb. 5 dargestellt ist. Die Streumitten und Streubreiten der sich aus den bisher durchgeführten Ausbreitungsexperimenten ergebenden höchsten Ausbreitungsfaktoren wurden zum Vergleich mit dieser Hüllkurve ebenfalls in Abb. 5 eingezeichnet. Die zugehörigen Versuchsnummern und diagnostizierten Diffusionskategorien sind in der Abbildung angegeben. Durch verschiedene Strichstärken werden die Fälle, in denen das Konzentrationsmaximum vom Versuchsfeld erfaßt wurde (starke Striche), von jenen unterschieden, in denen es näher an der Quelle lag als die quellnächsten Sammelstellen (schwache Striche). In letzteren



Fällen entsprechen die eingetragenen Werte den höchsten beim jeweiligen Versuch gemessenen. Das tatsächliche, unbekannte Konzentrationsmaximum liegt auf jeden Fall oberhalb dieser Werte und außerdem bei kleinerer Quelldistanz. Nach Abb. 5 scheint die Einhüllende der "Normkurven" nach El] eine im Mittel brauchbare Abschätzung ungünstigster Ausbreitungsfaktoren für den hiesigen Standort darzustellen.

Neben den Abweichungen der Quotienten f und p von 1 erscheint die erhebliche zeitliche Streuung, wie sie in den Diagrammen des Anhangs deutlich zum Ausdruck kommt und die groß gegenüber dem Gesamtmeßfehler ist, selbst als bemerkenswertes Ergebnis der vorliegenden Untersuchung. Deshalb kann keineswegs erwartet werden, daß sich bei künftigen Versuchen auch mit einer verbesserten Versuchstechnik diese Unschärfe wesentlich verringern wird. Dies ist jedoch bereits vom Prinzip her verständlich, da die "Normkurven" bestimmten Stabilitätsklassen zugeordent sind, die ihrerseits aber nicht diskrete, sondern kontinuierlich verteilte Zustände der Atmosphäre repräsentieren.

Bei der Definition von Diffusionskategorien wird nämlich ein Satz innerhalb willkürlich festgelegter Intervallgrenzen variierender, meteorologischer Parameter durch einen Satz konstanter Werte ersetzt. Nur dadurch ergibt sich für jede Diffusionskategorie eine scharfe Kurve für die Entfernungsabhängigkeit der  $(\chi u)_{max}$ -Werte anstatt einer oberen und einer unteren Grenzkurve für die jeweilige Kategorie.

Neben dieser von der Definition der Diffusionskategorien herrührenden und mithin unvermeidbaren Unschärfe haben sicherlich topographische, d.h. standortspezifische Gegebenheiten in Verbindung mit Windrichtungsschwankungen während der Versuche einen zusätzlichen Beitrag zum Betrag der Streubreite geliefert. Dies kommt auch darin zum Ausdruck, daß sich bei fast keiner Sammelperiode der Versuche in irgendeiner Ringzone je die Konzentrationswerte durch eine Gauß-Verteilung darstellen ließen.

Die bei den Versuchen aufgetretenen Abweichungen der Meßergebnisse von den theoretisch ermittelten "Normkurven" nach [1] machen weitere Versuche erforderlich, zumal sich z.Z. zahlreiche Einzelheiten der Versuchsergebnisse nicht zufriedenstellend deuten lassen. Da Ausbreitungsexperimente in jeder Hinsicht sehr aufwendig sind und zahlreiche Fragen bisher noch nicht untersucht werden konnten, wird ein abschließender Bericht vermutlich erst in einigen Jahren erstellt werden können. Wegen der Aktualität der Thematik erschien uns jedoch dieser Zwischenbericht gerechtfertigt, obwohl seine Aussagen wegen der begrenzten Versuchszahl nur vorläufigen Charakter haben können.

Herrn cand. min. E. Linz danken wir für seine Mitarbeit bei der Auswertung der Versuchsergebnisse.

#### Literatur

[ <b>1</b> ]	Hilsmeier, W.L., Gifford, R.:									
	Graphs for Estimating Atmospheric Dispersion,									
	Report ORO 545 (1962)									
כ2 כ	IAEA, Application of Meteorology to Safety at									
	Nuclear Plants, Safety Series No. 29, Wien 1968									
c <b>3</b> ]	Kiefer, H., König, L.A., Winter, M.:									
	Kerntechnik <u>12</u> , 212 (1970)									
c <b>4</b> ]	Erste Strahlenschutzverordnung in der Fassung vom									
	15. Okt. 1965, Bundesgesetzblatt, Teil I, 1654 (1965)									
[5]	Nester, K.: persönliche Mitteilung									

#### ANHANG

Graphische Darstellungen der für die einzelnen Versuche ermittelten Entfernungsabhängigkeiten der azimutalen Maxima des normierten Ausbreitungsfaktors bei 100 m Quellhöhe.

 $(x_{i},y_{i}) \in \mathbb{R}^{n}$ 















....















