

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

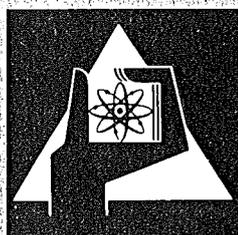
Juni 1973

KFK 1800

Institut für Angewandte Systemtechnik und Reaktorphysik
Projekt Nukleare Sicherheit

**Nukleare Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre
eines Leichtwasser-Reaktor (LWR)-Containments
(Übersicht und Stand der Kenntnis)**

J.P. Hosemann, H. Jordan, W. Schikarski, H. Wild



**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 1800

Institut für Angewandte Systemtechnik und Reaktorphysik
Projekt Nukleare Sicherheit

NUKLEARE SCHADSTOFFE IN DER NACHUNFALLATMOSPHERE
EINES LEICHTWASSER-REAKTOR (LWR)-CONTAINMENTS

(Übersicht und Stand der Kenntnis)

von

J.P. Hosemann

H. Jordan

W. Schikarski

H. Wild

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe



<u>Inhalt</u>	Seite
1. Einleitung	- 5 -
2. Aktivitätsinventar großer LWR-Kernkraftwerke	- 6 -
2.1. Zusammenstellung der Aktivitätsträger	- 6 -
2.1.1. Brennstoff	- 7 -
2.1.2. Erbrütete Brennstoffe	- 8 -
2.1.3. Spaltprodukte	- 9 -
2.1.4. Aktivierte Strukturmaterialien	- 11 -
2.1.5. Kühlmittel	- 14 -
2.2. Einordnung der Radionuklide nach radiotoxikologischer Bedeutung	- 16 -
3. Physikalische und chemische Form der nuklearen Schadstoffe	- 21 -
4. Wechselwirkung und Abbau nuklearer Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre eines LWR-Containments	- 24 -
4.1. Überblick über die wichtigsten Abbauprozesse von Partikeln, Tröpfchen und Gasen	- 24 -
4.2. Experimentelle Ergebnisse über Abbauprozesse in LWR-Containments	- 34 -
4.3. Experimentelle Ergebnisse zum integralen Abbau von Schadstoffsystemen in LWR-Containments	- 42 -
4.4. Modelltheorie des Abbaus nuklearer Schadstoffe in LWR-Containments	- 56 -
5. Diskussion und Zusammenfassung	- 64 -
Literatur	- 67 -
Verzeichnis der Abbildungen	- 85 -
Verzeichnis der Tabellen	- 86 -
Nomenklatur	- 87 -
Anhang	- 88 -

Bei der Abfassung dieser Studie hat Herr Dr. Albrecht wertvolle Anregungen gegeben. Ihm und Frl. Chr. Winzer, die bei den Programmierarbeiten mitwirkte, sei an dieser Stelle gedankt.

Zusammenfassung

Kühlmittelverlust-Störfälle in großen Kernkraftwerken können eine Reihe von Folgen nach sich ziehen, die letztlich zum Niederschmelzen von Teilen des Kernbrennstoffs führen. Die damit gekoppelte Freisetzung von Spaltprodukten und Konversionsprodukten in die Anlagenräume kann auf dem Wege von Leckagen in die Umgebung zu einer Strahlenbelastung von Personal und Bevölkerung führen. Das im Störfall vorhandene Aktivitätsinventar wird jedoch auf seinem Wege in die Umgebung durch eine Reihe von Prozessen erheblich reduziert.

In der vorliegenden Studie wird zunächst das vorhandene Aktivitätsinventar eines 1000 MWe-Leichtwasser-Reaktors berechnet. Sodann werden die möglichen Abbauprozesse nuklearer Schadstoffe behandelt, die nach einem Unfall im LWR-Containment auftreten können. Bei der Berechnung der Aktivität wurde unterschieden zwischen Brennstoff, erbrüteten Brennstoffen, Spaltprodukten, aktivierten Strukturmaterialien und aktiviertem Kühlmittel. Es wurde eine ausführliche Zusammenstellung der in Frage kommenden Radionuklide erarbeitet. Schließlich wurden diese nach ihrer radiotoxikologischen Bedeutung geordnet.

Bei der Behandlung der wichtigsten Mechanismen, die zum Abbau der Schadstoffe in der LWR-Nachunfallatmosphäre beitragen können, stellt sich heraus, daß die Theorie fast aller Einzelprozesse noch ungelöste Probleme enthält. Daher kommt den experimentellen Ergebnissen, über die berichtet wird, im Hinblick auf einzelne Abbauprozesse eine besondere Bedeutung zu. Es werden außerdem die wichtigsten integralen Experimente zum Abbau von Schadstoffsystemen in LWR-Containments und die zugehörigen Modelltheorien behandelt. Besonders die Abscheidung von Jod nimmt in bisher bekannten Veröffentlichungen einen breiten Raum ein. Es wird über integrale Modelle berichtet, die bis auf einen Faktor 2 Übereinstimmung mit den Experimenten brachten, obwohl eine Reihe von Einzelprozessen der Gas-Tropfen-Wechselwirkungen bis heute noch nicht vollständig verstanden sind.

Nur in geringem Maße wurde bisher die Abscheidung von Partikeln unter den Bedingungen der Nachunfallatmosphäre in LWR-Containments untersucht. Da viele Elemente mit einigen ihrer Isotope, die im vorliegenden Bericht als radiologisch bedeutsam bezeichnet sind, als Partikeln auftreten können, sind weitere Untersuchungen notwendig.

Abstract

A possible consequence of a loss-of-coolant accident at a large nuclear power station is the total or partial melting of the core. This in turn entails release of fission and conversion products into the reactor containments and via leaks to the atmosphere where they pose a radiation hazard. There exist, however, a number of attenuation processes that prevent all of the activity inventory from reaching the atmosphere.

In the present study we calculate the activity inventory of a 1000 megawatt light water reactor (l.w.r.). We then review the known attenuation processes that contribute to a reduction of airborne activity in the reactor containment after a hypothetical accident.

The calculation of the activity present at the time of the accident differentiates between fuel, bred fuel, fission products, activated structural material and activated coolant. Extensive lists of radionuclides, ordered according to a measure of their radiotoxicological importance, are set up.

This review of the literature on attenuation processes reveals that the theoretical understanding of nearly all relevant elementary processes is incomplete. Particular importance is therefore attached to experimental findings. Nevertheless, a number of models that encompass several elementary processes judged most important have been developed and compared to large scale experiments that simulate post accident containment behavior. We report on both the models and characteristics experiments.

Most extensive work, both experimental and theoretical, appears to have been done on the reduction of airborne iodine and its compounds and here model theory comes within a factor of two of duplicating experimental results. In contrast, little evidence of work on the behavior of aerosols in the presence of the condensing water phase expected as a constituent of the post accident l.w.r. atmosphere could be found. In light of the number of elements that according to the calculations of this report have radiotoxicologically important isotopes and appear as aerosols, this void needs to be filled for trustworthy accident analysis.

1. Einleitung

Kühlmittelverlust-Störfälle in großen Kernkraftwerken können eine Reihe von Folgen nach sich ziehen, die letztlich zum Niederschmelzen von Teilen des Kernbrennstoffs führen. Die damit gekoppelte Freisetzung von Spaltprodukten und Konversionsprodukten in die Anlagenräume kann auf dem Wege von Leckagen in die Umgebung zu einer Strahlenbelastung von Personal und Bevölkerung führen. Auch die Aktivierung durch Neutronen kann zu Aktivitäten führen, die einen Beitrag zur Strahlenbelastung liefern.

Das im Störfall vorhandene Aktivitätsinventar wird jedoch auf seinem Wege in die Umgebung durch eine Reihe von Prozessen erheblich reduziert. Das führt dazu, daß nur sehr kleine Bruchteile des anfänglich vorhandenen Aktivitätsinventars wirklich in die Umgebung gelangen. Die wichtigsten Effekte, die dies bewirken, sind

- die begrenzte primäre Freisetzung verschiedener Radionuklide
- der natürliche radioaktive Zerfall
- die Verminderung der nach Freisetzung luftgetragenen Aktivität durch Abbauprozesse in der Nachunfallatmosphäre.

Neben dem natürlichen radioaktiven Zerfall ist besonders der letzte Effekt bedeutsam für die Auswirkung der Aktivitätsfreisetzung auf die Umgebung. Aus diesem Grund wurden auch Einrichtungen entwickelt, die diese Abbauprozesse bzw. den Schadstoffabbau beschleunigen. Diese technischen Sicherheitseinrichtungen (engineered safeguards) beruhen in erster Linie auf der Auswaschung (wash-out und rain-out) und der Filterung luftgetragener Schadstoffe.

Die vorliegende Studie gibt einen Überblick über den Stand der Kenntnis auf dem Gebiet des Verhaltens nuklearer Schadstoffe in LWR-Containments und nimmt insbesondere Bezug auf die ungeklärten Fragen des natürlichen und des durch technische Sicherheitseinrichtungen künstlich herbeigeführten Schadstoffabbaus.

Die folgende Zusammenstellung nimmt zunächst nicht Bezug auf die in deutschen Kernkraftwerken vorhandenen Einrichtungen der Kernnotkühlung, deren Funktion die Verhinderung der Zerstörung von Brennelementen ist. Sie geht vielmehr von dem hypothetischen Fall aus, daß durch Versagen der Notkühlung eine Aktivitätsfrei-

setzung aus dem Reaktorkern und Primärsystem in das Reaktorgebäude auftritt.

2. Aktivitätsinventar großer LWR-Kernkraftwerke

Nach schweren hypothetischen Reaktorstörfällen muß mit einer Aktivitätsfreisetzung über die beiden ersten Barrieren hinaus (Brennstabhülle, Reaktordruckgefäß) in das Reaktorgebäude gerechnet werden. Um das Aktivitätsverhalten untersuchen zu können, muß zuerst die Ausgangssituation geklärt werden, das heißt, es muß das Aktivitätsinventar und die Bedeutung bekannt sein, die den einzelnen Radionukliden nach einer entsprechenden radiotoxikologischen Klassifikation zukommt. Dabei taucht die Frage auf, welche Radionuklide als Träger der Aktivität in Frage kommen. Sie lassen sich sinnvoll in das folgende Schema einordnen:

- Brennstoff
- erbrütete Brennstoffe
- Spaltprodukte
- aktivierte Strukturmaterialien
- aktiviertes Kühlmittel

Die für alle weiteren Rechnungen wichtigen reaktorphysikalischen Ausgangsbedingungen sind in der Tabelle 1 zusammengestellt. Verständlicherweise stellen diese Bedingungen Annahmen dar, die für einen bestimmten Reaktor nicht zuzutreffen brauchen. In Zweifelsfällen wurde immer der für Sicherheitsbetrachtungen pessimistische Fall ausgewählt. Die Daten der Tabelle 1 werden im folgenden Abschnitt erläutert.

2.1. Zusammenstellung der Aktivitätsträger

In diesem Kapitel sollen nach dem vorgeschlagenen Schema die Aktivitätsträger zusammengestellt und diskutiert werden.

Reaktortyp	Leichtwasser-Reaktor (LWR)
Leistung L_e	1000 MWe
Wirkungsgrad η	32 %
Standzeit	3,92 a
Fluß	$3 \cdot 10^{13} \frac{n}{\text{cm}^2 \text{ sec}}$
Gesamtmasse U	115 t
Anreicherung U 235	3 %
Leistungsanteil des schnellen Flusses	1,2 %
Gesamtmasse PU	987 kg
PU-Entnahmevektor: 239	57 %
240	28 %
241	12 %
242	3 %

Tabelle 1 : Ausgangsbedingungen für die Aktivitätsberechnungen

2.1.1. Brennstoff

Der in Leichtwasser-Reaktoren verwendete Brennstoff ist leicht angereichertes Uran. Da die Anreicherung für jeden Reaktor spezifisch optimiert wird, sollen die weiteren Rechnungen mit einer mittleren Anreicherung des U 235 von 3 % ausgeführt werden.

Als Mittelwert der mittleren spezifischen Leistung r wird mit $0,0271 \frac{\text{MW}_{\text{th}}}{\text{kg U}}$ gerechnet. Dieser Wert ergibt sich als Mittelwert über alle seit 1965 in Deutschland errichteten Kernkraftwerke $\overline{[1]}$ vom Leichtwasser-Reaktortyp. Ausgenommen sind demzufolge (vor 1965) lediglich die Siedewasserreaktoren in Kahl (VAK), in Gundremmingen (KRB), in Lingen (KWL) und Großwelzheim (HDR) wegen ihrer heute nicht mehr repräsentativen, zu niedrigen mittleren spezifischen Leistung. Mit diesem Mittelwert ergibt sich eine Uranmasse M_U im Core von:

$$M_U = \frac{L_{\text{th}}}{r} = \frac{L_e}{\eta \cdot r} = \frac{1000 \text{ MWe}}{0,32 \cdot 0,0271 \frac{\text{MW}_{\text{th}}}{\text{kg}}}$$

$$M_U = 115 \text{ t}$$

Mit den spezifischen Aktivitäten für die beiden Uranisotope U 235 und U 238:

$$A_{\text{spez}} (\text{U 235}) = 0,214 \cdot 10^{-5} \frac{\text{Ci}}{\text{g}}$$

$$A_{\text{spez}} (\text{U 238}) = 0,333 \cdot 10^{-6} \frac{\text{Ci}}{\text{g}}$$

ergibt sich:

$$A_{\text{U235}} = 7,4 \text{ Ci}$$

$$A_{\text{U238}} = 37 \text{ Ci}$$

2.1.2. Erbrütete Brennstoffe

Als erbrütete Brennstoffe kommen die im schnellen Reaktor Verwendung findenden Plutoniumisotope PU 239 und PU 241 in Frage. Daneben sollen jedoch hier auch noch die beiden Isotope PU 240 und PU 242 unter den Begriff "Erbrütete Brennstoffe" fallen. Außerdem sollen auch die beiden Isotope U 239 und NP 239 in diesem Kapitel behandelt werden. Höhere Transurane werden nicht berücksichtigt. Als Ausgangsdaten zur Berechnung des Wirkungsgrades, der Standzeit, der gesamten Plutoniummasse am Ende der Standzeit und des Plutonium-Entnahmevektors dien-

ten die Daten des KFK-Berichts 466 [2]. Es wurden die Mittelwerte aus den in diesem Bericht angeführten fünf Leichtwasserreaktoren gebildet. In jüngster Zeit publizierte russische Daten zeigen mit diesen Mittelwerten sehr gute Übereinstimmung [3]. Die Werte sind in Tabelle 1 angegeben. Mit den spezifischen Aktivitäten für die einzelnen Plutoniumisotope:

$$\begin{aligned} A_{\text{spez}} \text{ (PU 239)} &= 0,0613 \frac{\text{Ci}}{\text{g}} \\ A_{\text{spez}} \text{ (PU 240)} &= 0,226 \frac{\text{Ci}}{\text{g}} \\ A_{\text{spez}} \text{ (PU 241)} &= 0,106 \cdot 10^3 \frac{\text{Ci}}{\text{g}} \\ A_{\text{spez}} \text{ (PU 242)} &= 0,00389 \frac{\text{Ci}}{\text{g}} \end{aligned}$$

ergeben sich für den 1000 MWe LWR die Werte:

$$\begin{aligned} A_{\text{PU239}} &= 0,34 \cdot 10^5 \text{ Ci} \\ A_{\text{PU240}} &= 0,62 \cdot 10^5 \text{ Ci} \\ A_{\text{PU241}} &= 0,13 \cdot 10^8 \text{ Ci} \\ A_{\text{PU242}} &= 0,12 \cdot 10^3 \text{ Ci} \end{aligned}$$

Zur Berechnung der Aktivitäten der beiden Isotope U 239 und NP 239 werden die Daten der Tabelle 1 verwendet. Als Wirkungsquerschnitt für die Reaktion U 238 (n,γ) U 239 werden 2,8 barnes angenommen. Damit ergibt sich nach der Standzeit von 3,92 Jahren:

$$\begin{aligned} A \text{ (U 239)} &= 0,65 \cdot 10^9 \text{ Ci} \\ A \text{ (NP 239)} &= 0,65 \cdot 10^9 \text{ Ci} \end{aligned}$$

2.1.3. Spaltprodukte

Die Aktivität der Spaltprodukte wurde mit einem Rechenprogramm ermittelt. Dabei wurde die gesamte Isobarenkette einer bestimmten Masse berücksichtigt. Die Maximalzahl der Kettenglieder beträgt sieben. Als Grundlage zur Erstellung des Rechenprogramms hat das Rechenprogramm "Invent" [4] gedient. Die Daten entstammen der Nuklidkarte [5], einer Publikation von Katcoff [6] und der Da-

tensammlung von Meek und Rider [7]. Es wurden insgesamt 293 Spaltprodukte, zusätzlich 39 angeregte Zustände erfaßt, die in Tabelle A 1 im Anhang aufgeführt sind. Von den fünf wichtigen Prozessen, die zum Aufbau der Spaltproduktaktivität eines Reaktors beitragen, wurden die drei wichtigsten erfaßt:

- Entstehung aus der Spaltung
- Entstehung durch den β - oder γ -Zerfall innerhalb einer Isobarenkette
- Abnahme durch den β -Zerfall

Nicht erfaßt wurden hingegen:

- Entstehung durch Neutronenabsorption
- Abnahme durch Neutronenabsorption

Weiterhin wurden folgende Punkte nicht berücksichtigt:

- der Lastfaktor, der üblicherweise zu 0,7 angegeben wird,
- der Umladezyklus während der Standzeit,
- verzögerte Neutronenstrahlung von 8 Nukliden.

Außerdem konnten in der Literatur die notwendigen Daten für

- 27 Isomere verschiedener Radionuklide nicht ermittelt werden.

Die beiden letzten Auslassungen sind in den Tabellen A 2 und A 3 im Anhang aufgeführt.

Ohne diese sechs Vernachlässigungen ergäbe sich keine Erhöhung der Spaltproduktaktivität, da allein die Berücksichtigung des Lastfaktors (z.B. 0,7) und des Umladezyklusses eine Erniedrigung der Aktivität um je ca. 20 % zur Folge haben würde.

Die Diskussion und Auflistung der wichtigsten Spaltprodukte folgt in Kapitel 2.2. In der Tabelle 2 sind diejenigen zehn Spaltprodukte zusammengestellt, die am Ende der Standzeit die höchste Aktivität aufweisen. Zusätzlich sind noch SR 90, I 131 und CS 137 aufgeführt.

Nuklid	Aktivität [$\bar{\text{Ci}}$]	Halbwertszeit
Y 96	0,22 10^9	2,3 min
LA 140	0,22 10^9	1,68 d
BA 140	0,22 10^9	12,8 d
CS 140	0,21 10^9	1,1 min
J 134	0,21 10^9	52 min
TE 134	0,18 10^9	43 min
XE 133	0,18 10^9	5,65 d
Y 91 M	0,18 10^9	50 min
CS 138	0,18 10^9	32,3 min
J 133	0,18 10^9	20,8 h
SR 90	0,14 10^8	28,1 a
J 131	0,77 10^8	8,05 d
CS 137	0,14 10^8	30 a

Tabelle 2 : Die 10 Nuklide mit höchster Aktivität nach 3,92 a Standzeit, verglichen mit SR 90, J 131, CS 137

Die gesamte Spaltproduktaktivität aller 332 erfaßten Radionuklide beträgt:

$$A_{\text{SPP}} = 0,15 \cdot 10^{11} \text{ Ci}$$

2.1.4. Aktivierte Strukturmaterialien

Von allen möglichen, denkbaren Radioisotopen, die als aktivierte Produkte der Strukturmaterialien auftreten können, wurden diejenigen ausgewählt, die in der Literatur [8,9,10,11,12,13,14,15] am häufigsten zitiert werden. Sie sind in der Tabelle 4 aufgeführt. Die angeregten Zustände von CO 58 und CO 60 werden nicht berücksichtigt. In der Tabelle 3 werden die Kernreaktionen aufgeführt, die zu den betrachteten Radioisotopen führen. Dabei werden verschiedene Vereinfachungen und Annahmen zugrunde gelegt:

Kernreaktion	Wirkungsquerschnitt $\int \sigma \text{ barn}$
CR 50 (n,γ) CR 51	100
FE 54 (n,p) MN 54	25
FE 56 (n,p) MN 56	80
MN 55 (n,γ) MN 56	13 300
FE 54 (n,γ) FE 55	2 500
FE 58 (n,γ) FE 59	1 200
NI 58 (n,pn) CO 57	100
NI 58 (n,p) CO 58	30
NI 61 (n,pn) CO 60	3,8
NI 60 (n,p) CO 60	125
NI 64 (n,γ) NI 65	10
ZR 94 (n,γ) ZR 95	75

Tabelle 3 : Kernreaktionen zur Berechnung der Aktivierungsprodukte

Nuklid	Aktivität $\int \text{Ci}$	Halbwertszeit
CR 51	$0,25 \cdot 10^7$	27,8 d
MN 54	$0,26 \cdot 10^7$	303 d
MN 56	$0,12 \cdot 10^{10}$	2,57 h
FE 55	$0,26 \cdot 10^9$	2,6 a
FE 59	$0,62 \cdot 10^7$	45 d
CO 57	$0,70 \cdot 10^8$	270 d
CO 58	$0,57 \cdot 10^7$	71 d
CO 60	$0,34 \cdot 10^8$	5,26 a
NI 65	$0,29 \cdot 10^5$	2,56 h
ZR 95	$0,17 \cdot 10^8$	65,5 d
Total	$0,16 \cdot 10^{10}$	

Tabelle 4 : Einige Aktivierungsprodukte im LWR 1000 MWe

- Der Neutronenfluß wird sowohl energie- als auch ortsunabhängig zu $3 \cdot 10^{13} \frac{n}{cm^2 \text{ sec}}$ angenommen.
- Der mikroskopische Wirkungsquerschnitt $\overline{\sigma_{16}}$ wird energieunabhängig angenommen.
- Wirkungsquerschnitte, die kleiner als ein Millibarn sind, werden nicht berücksichtigt.
- Als Materialien werden angenommen:

die Einbauten im Reaktordruckgefäß zu 260 t $\overline{\sigma_{17}}$ mit der Elementzusammensetzung:

MN 2 %
CR 18 %
NI 10 %
FE 65 %
Rest 5 % (C, SI, NB und andere)

Diese Zusammensetzung entspricht einem Mittelwert von X 2 CR NI 18 9 - Stahl und Werkstoff 4550-Stahl.

die Brennstabhüllen -Werkstoffe aus Zirkaloy 4 zu 150 t mit der Elementzusammensetzung $\overline{\sigma_{18}}$:

SN 1,5 %
FE 0,12 %
CR 0,1 %
NI 0,007 %
ZR 98,273 %

Für die in Tabelle 4 aufgeführten Aktivierungsprodukte der Strukturmaterialien wurde die Standzeit von 3,92 a nicht berücksichtigt. Vielmehr wurde immer die Grenzaktivität berechnet.

Daraus ergibt sich eine Gesamtaktivität der aktivierten Strukturmaterialien zu:

$$A_{SM} = 0,16 \cdot 10^{10} \text{ Ci}$$

2.1.5. Kühlmittel

Als aktiviertes Radioisotop des Kühlmittels wird lediglich Tritium berücksichtigt. Stickstoff- und Sauerstoffisotope spielen eine untergeordnete Rolle wegen der sehr geringen Wirkungsquerschnitte und kurzen Halbwertszeiten. Auch hier wurde, wie für die Strukturmaterialien, stets die Grenzaktivität berechnet. Die bei der Aktivitätsberechnung betrachteten Kernreaktionen sind in der Tabelle 5 zusammengestellt. Es sind dies:

- Ternäre Spaltung. Die Spaltausbeute wurde zu $0,95 \cdot 10^{-2} \%$ $\overline{7, 19}$ angenommen.

Damit ergibt sich eine Aktivität von:

$$A_{TTS} = 0,54 \cdot 10^5 \text{ Ci}$$

- Entstehung aus Deuterium mit einem Wirkungsquerschnitt von $0,5 \cdot 10^{-3}$ barn $\overline{16}$. Das Primärkühlmittelvolumen wird zu 300 m^3 angenommen. (Das Systemvolumen des Primärkreises im Kernkraftwerk Stade $\overline{20}$ beträgt 260 m^3 .) Damit ergibt sich:

$$A_{TD} = 0,34 \cdot 10^3 \text{ Ci}$$

- Entstehung aus LI 6. Die Verunreinigung an LI wird zu $0,2 \text{ ppm}$ $\overline{21}$ angenommen. Damit ergibt sich:

$$A_{TLI6} = 0,22 \cdot 10^3 \text{ Ci}$$

- Entstehung aus LI 7. Der Wirkungsquerschnitt wird zu $85,6 \cdot 10^{-3}$ barn angenommen; dieser Wert gilt für den Energiebereich zwischen $3 \leq E \leq 6 \text{ MeV}$. Damit ergibt sich:

$$A_{TLI7} = 0,11 \cdot 10^3 \text{ Ci}$$

- Entstehung aus B 10. Die Reaktion B 11 ($n, n2\alpha$) T liefert gegenüber der B 10 Reaktion eine vernachlässigbar kleine Ausbeute. Die Konzentration an Bor im Kühlwasser eines Druckwasserreaktors wird über die Standzeit von 3,92 Jahren gemittelt zu 750 ppm angenommen. (Die Anfangskonzentration an Bor im Kernkraftwerk Stade $\overline{20}$ beträgt 2200 ppm .) Damit ergibt sich die Aktivität zu:

$$A_{TB} = 0,22 \cdot 10^5 \text{ Ci}$$

Kernreaktion	Ausbeute bzw. Wirkungsquerschnitt	Aktivität [Ci]
U 235 (n,f) T	$0,95 \cdot 10^{-2}$ [%]	$0,54 \cdot 10^5$
D 2 (n,γ) T	$0,5 \cdot 10^{-3}$ [barn]	$0,34 \cdot 10^3$
LI 6 (n,α) T	3 [barn]	$0,22 \cdot 10^3$
LI 7 (n, nα) T	85,6 [barn]	$0,11 \cdot 10^3$
B 10 (n,2α) T	$50 \cdot 10^{-3}$ [barn]	$0,22 \cdot 10^5$
Total		$0,78 \cdot 10^5$

Tabelle 5 : Kernreaktionen zur Bildung von Tritium

Wir erhalten somit eine Gesamt-Tritium-Aktivität von:

$$A_T = 0,78 \cdot 10^5 \text{ Ci}$$

In jüngster Zeit wurden einige Publikationen zur Tritium-Produktion in Leichtwasserreaktoren [22,23,24,25,26,27] veröffentlicht. In einer Zusammenstellung werden diese Daten in der Tabelle 6 verglichen. Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die Unterschiede innerhalb der verschiedenen Reaktortypen in derselben Größenordnung liegen dürften, wie die in der Tabelle 6 angeführten Werte und insgesamt ein konsistentes Bild vermitteln.

Aktivität	Autor	Zitat
$0,7 \cdot 10^5 \text{ Ci}$	Bonka	[25]
$0,6 \cdot 10^5 \text{ Ci}$	Grathwohl	[26]
$(0,7 - 1,2) \cdot 10^5 \text{ Ci}$	König	[27]
$0,78 \cdot 10^5 \text{ Ci}$	eigene Angaben	

Tabelle 6 : Zusammenstellung der Tritium-Produktion in einem LWR nach verschiedenen Autoren

2.2. Einordnung der Radionuklide nach radiotoxikologischer Bedeutung

Um eine Einordnung der im vorausgehenden Kapitel aufgelisteten Radionuklide nach ihrer radiotoxikologischen Bedeutung zu erreichen, muß zunächst der Begriff "Radiotoxizität" festgelegt werden. Einer Empfehlung der IAEA (International Atomic Energy Agency) [28] folgend wird der Kehrwert der maximal zulässigen Konzentration in Luft dafür angesetzt. Dabei wird von den maximal zulässigen Konzentrationswerten der 168 Stundenwoche ausgegangen, die niedriger sind als die der 40 Stundenwoche [29]. Diese für Kontrollbereiche in der BRD gesetzlich [30] festgelegten Werte wurden dem Bundesgesetzblatt entnommen.

Für die beiden Isomere Xe 133 M und Xe 135 M sind keine maximal zulässigen Konzentrationen explizit gesetzlich festgelegt. Es erscheint aber nicht sinnvoll, hier den Wert von $1 \cdot 10^{-9} \text{ Ci/m}^3$ zu wählen, der für Nuklide festgelegt ist, die nicht explizit aufgeführt sind und beliebige Gemische radioaktiver Stoffe sind, entsprechend dem letzten Absatz der Anlage II des Bundesgesetzblattes [30]. Vielmehr wurden hier die gleichen Werte der maximal zulässigen Konzentrationen gewählt, wie sie für die entsprechenden Isotope Xe 133 und Xe 135 festgelegt sind. Dieses Vorgehen ist berechtigt aufgrund der Tatsache, daß sowohl die effektiven Energien und demzufolge auch die radiologischen Gewichtsfaktoren [158], als auch die Halbwertszeiten für die angeregten Zustände beider Nuklide jeweils kleiner sind als für die Grundzustände. Ebenso wurde für RB 87 auch der für RB 86 gesetzlich festgelegte Wert von $2 \cdot 10^{-8} \mu\text{Ci/cm}^3$ gewählt.

Mit dem Kehrwert der maximal zulässigen Konzentration werden die Aktivitätswerte multipliziert und der Größe nach geordnet. (Diese Größe wird in [159] mit "specific health hazard" bezeichnet, was mit "Gefährdungspotential" oder gelegentlich auch mit "Risikofaktor" übersetzt wird.) Dies wird für verschiedene Zeiten t_n nach dem Unfallzeitpunkt t_0 durchgeführt. Während dieser "Zerfallszeit" t_n werden neue radioaktive Isotope per se nicht mehr durch Spaltung, sondern nur noch als Folgeprodukte des Zerfalls innerhalb einer Isobarenkette erzeugt.

Um eine Auswahl der wichtigsten der aufgelisteten 332 Radionuklide treffen zu können, werden zwei Wege eingeschlagen.

- Es werden alle diejenigen Radionuklide ausgewählt, die zum Zeitpunkt $t_0 = 0$ und nach den Zerfallszeiten $t_n = 10^n$ sec, mit $n = 1$ bis 9 , unter den ersten 50, der Größe nach geordneten Radionukliden vorkommen. Die Ordnungsgröße ist, wie bereits angeführt, das Produkt aus Aktivität mal Radiotoxizität. Dabei ergibt sich die in Tabelle 7 aufgeführte Liste aus 153 Nukliden. Bei den Abklingzeiten oder Zerfallszeiten $t_n = 10^n$ sec sind jeweils die zum Zeitpunkt $t_n = 0$ oder $t = 10^{n-1}$ sec, $2 \leq n \leq 9$ bereits vorkommenden Nuklide nicht mehr wieder mitaufgeführt. Die Liste enthält daher alle Nuklide, die zu den betrachteten Zeiten mindestens einmal unter den ersten 50 Nukliden vorkommen. Die entsprechenden Elemente und die Einordnung in das Periodische System sind in den Tabellen 8 und 9 aufgeführt. In beiden Tabellen sind auch einige ihrer Bedeutung entsprechende Radionuklide mitaufgenommen, die nicht Spaltprodukte sind: CO, U, NP, PU.
- Ein zweiter Weg führt über die Einführung von Prioritätsklassen, da die Liste von 153 Nukliden der Tabelle 7 noch sehr umfangreich ist und eine engere Auswahl getroffen werden soll. Prioritätsklasse 1 umfaßt dabei alle diejenigen Radionuklide, die zum Zeitpunkt $t_0 = 0$ und zu allen Zeiten $t_n = 10^n$ sec, $n = 1$ bis 9 , unter den ersten 50 der Ordnungsgröße nach aufgelisteten Radionukliden vorkommen. Prioritätsklasse 2 enthält alle Radionuklide, die in 9 Zeitbereichen auftauchen usw. bis Prioritätsklasse 10. Dabei ergeben sich für die ersten fünf Prioritätsklassen die in Tabelle 10 aufgeführten Radionuklide. Von den übrigen Radionukliden fallen in dieser Tabelle besonders die 3 Plutoniumisotope PU 239, PU 240 und PU 241 und das Aktivierungsprodukt CO 60 in relativ hohe Prioritätsklassen. U 239 erscheint wegen der kurzen Halbwertszeit in Prioritätsklasse 5, während NP 239 wegen der relativ hohen maximal zulässigen Konzentration von $2 \cdot 10^{-7}$ Ci/m³ trotz der hohen Aktivität in dieser Tabelle nicht erscheint (es kommt erst in PK 7 vor). Von zentraler Bedeutung sind insbesondere die ersten 5 Prioritätsklassen. Lediglich diese sind in Tabelle 10 aufgeführt.

$t_0 = 0 \text{ sec}$	$t_1 = 10^1 \text{ sec}$	RU 103	$t_7 = 10^7 \text{ sec}$
CS 140	RB 88	PR 143	PM 146
TE 134	KR 88	MO 99	EU 154
CS 138	SB 133	CE 143	KR 85
BA 139	SB 132	ZR 97	CD 115
CS 139	TE 133	PM 147	TC 99
NB 100	TC 103	SR 91	SE 79
LA 141		SN 128	SB 126M
BA 141		SB 128	SN 126
Y 95	$t_2 = 10^2 \text{ sec}$		EU 152
XE 137	PR 146	$t_5 = 10^5 \text{ sec}$	RH 102M
XE 138	CE 146	TE 129M	SB 124
SR 93	CE 144	ND 147	
LA 143	SB 131	Y 90	$t_8 = 10^8 \text{ sec}$
LA 142	PR 147	SN 123	J 129
RB 90	TC 104	PM 149	ZR 93
NB 99	SB 130	SN 119M	CS 135
BA 142		EU 156	PD 107
XE 140	$t_3 = 10^3 \text{ sec}$	AG 109M	NB 93M
NB 97M	J 131	SN 121	NB 94
ZR 98	SB 129	TE 127M	SM 147
RB 91	BA 140	TE 131M	TB 158
XE 139	TE 131	AG 112	RB 87
Y 94	BR 84	PD 112	TB 160
SR 90	J 133		
PR 144	ZR 95	$t_6 = 10^6 \text{ sec}$	$t_9 = 10^9 \text{ sec}$
BA 143	Y 91	CD 113M	TC 98
LA 144	KR 83M	EU 150	ND 144
TC 101	BR 83	SB 125	LA 138
MO 101	BA 137M	EU 155	IN 115
ZR 99	SR 89	XE 133	
RB 89	PM 151	SM 151	
J 136	RH 106	SB 126	
KR 90	SB 128M	TE 125M	
CS 141		Y 98 M	
SR 94	$t_4 = 10^4 \text{ sec}$	SN 125	
J 137	NB 95M	TE 129	
NB 101	NB 95	TE 127	
Y 97	LA 140	CD 115M	
RB 92	RU 106	RH 103M	
KR 89	SB 127	AG 111	
BA 144	RH 105M	CS 134	
TC 102	CE 141	TC 99M	
MO 102	J 135		
SR 95	CS 137		
PR 145	TE 132		
CE 145	Y 93		
TE 133M			
RB 93			
BR 90			

Tabelle 7 : Wichtige Spaltprodukte (Erklärung siehe Text) ohne Berücksichtigung ihres Freisetzungs- und Ausbreitungsverhaltens

27 CO	45 RH	57 LA
34 SE	46 PD	58 CE
35 BR	47 AG	59 PR
36 KR	48 CD	60 ND
37 RB	49 IN	61 PM
38 SR	50 SN	62 SM
39 Y	51 SB	63 EU
40 ZR	52 TE	65 TB
41 NB	53 J	92 U
42 MO	54 XE	93 NP
43 TC	55 CS	94 PU
44 RU	56 BA	

Tabelle 8 : Elemente mit Ordnungszahl der Nuklide in Tabelle 7 sowie CO, U, NP und PU

	1. Gruppe Alkali- Metalle	2. Gruppe Erdalka- li-Metal- le	3. Gruppe	4. Gruppe	5. Gruppe	6. Gruppe	7. Gruppe Halogene	8. Gruppe Edelgase
Haupt- grup- pen:	37 RB	38 SR				34 SE	35 BR	36 KR
	55 CS	56 BA	49 IN	50 SN	51 SB	52 TE	53 J	54 XE
Über- gangs- elemen- te:	47 AG	48 CD	39 Y 57 LA	40 ZR	41 NB	42 MO	43 TC	27 CO 44 RU 45 RH 46 PD
Lanthaniden:	58 CE 59 PR 60 ND 61 PM 62 SM 63 EU 65 TB							
Aktiniden:	92 U 93 NP 94 PU							

Tabelle 9 : Einteilung der Elemente aus Tabelle 8 sowie 27 CO, 92 U, 93 NP und 94 PU in die Gruppen des periodischen Systems

PK 1	SR 90 PR 144 PU 240 PU 241	28 a 17,3 min ₃ 6,6 · 10 ³ a 14 a
PK 2	CE 144 PU 239	284 d 2,44 · 10 ⁴ a
PK33	CO 60 SR 89 Y 91 ZR 95 RH 106 BA 137 M	5,26 a 50,5 d 58,8 d 65,5 d 30 s 2,55 min
PK 4	NB 95 NB 95 M NB 97 M RU 106 CS 137 LA 141 PR 145 PM 147	35 d 3,75 d 1 min 1 a 30 a 3,9 h 5,98 h 2,62 a
PK 5	KR 88 RB 88 Y 90 RU 103 SN 119 M SN 123 TE 127 M J 131 TE 133 M TE 134 CS 138 BA 139 BA 140 CE 141 LA 142 U 239	2,8 h 17,8 min 2,67 d 39,5 d 245 d 129 d 109 d 8,05 d 54 min 43 min 32,3 min 1,38 h 12,8 d 32,5 d 1,54 h 23,5 min

Tabelle 10 : Ordnung wichtiger Radionuklide in LWR-Kraftwerken nach Prioritätsklassen (PK) (berechnet aus dem Aktivitätsinventar nach einer mittleren Standzeit von 3,92 Jahren und ohne Berücksichtigung von Freisetzungsraten im Störfall)

3. Physikalische und chemische Form der nuklearen Schadstoffe

In der Containmentatmosphäre eines Leichtwasser-Reaktors können nach einem Unfall nukleare Schadstoffe grundsätzlich nur als

- Gas oder als
- Aerosol auftreten.

Stoffe, die während des Unfallablaufes und damit während eines bestimmten zeitlichen Temperaturverlaufes ihren Aggregatzustand ein- oder möglicherweise zweimal ändern, können aufgrund dieser Tatsache auch dampfförmig auftreten. Dieser Aggregatzustand zu der dann gerade herrschenden Temperatur fällt so unter den Begriff gasförmig. Darüber hinaus kann das Aerosol in flüssiger oder fester Form vorliegen.

Diese Vorstellungen basieren auf der Annahme, daß die Höchsttemperaturen während des Unfallablaufes über der Temperatur des Schmelzpunktes von Urantrioxid (ca. 3000 K) liegen. Bei dieser Temperatur ist der größere Teil der vorhandenen Materialien gasförmig. In der vergleichsweise kalten (ca. 150°C) Atmosphäre des Containments setzen dann sofort Kondensations- und Kristallisationsprozesse ein, die so zu einem Aerosol führen. Alle weiteren Untersuchungen dieser Studie befassen sich daher mit Gasen, Aerosolen, deren Wechselwirkungen und deren Abscheidemechanismen.

In der Literatur spielt bei der Analyse der Freisetzung nuklearer Schadstoffe der Begriff der Flüchtigkeit eine sehr große Rolle. Die Spaltprodukte werden danach eingeteilt in schwerflüchtige, flüchtige und leichtflüchtige [31,32,33,34,35] Stoffe. Verschiedentlich wird diese Klassifikation weiter unterteilt [33]. Der Begriff der Flüchtigkeit läßt sich jedoch nur durch Angabe des Dampfdruckes als Funktion der Temperatur quantitativ festlegen. Dazu muß das Element oder die chemische Verbindung, in der das betrachtete Element vorkommt, festliegen. Eine Elementenliste aller erfaßten Spaltprodukte ist in den Tabellen A 4 und A 5 im Anhang aufgeführt.

Bei dem Versuch einer Bestimmung der chemischen und physikalischen Form der einzelnen Radionuklide treten zwei besondere Schwierigkeiten zutage:

- Die chemische Form, in der ein bestimmtes Radionuklid auftritt, kann nicht eindeutig festgelegt werden.
- Die meisten der benötigten Dampfdruckdaten sind nicht bekannt.

Nach Angaben von N. Henzel in [33] werden ca. 90 % des bei der Spaltung von Urandioxid freiwerdenden Sauerstoffes zur Bildung von Spaltproduktoxiden verbraucht. (Der Rest wird zur Bildung von überstöchiometrischem Urandioxid in das Urandioxidgitter eingebaut.) Es liegen also vor dem Unfall neben der elementaren Form der Spaltprodukte schon eine Reihe von Spaltproduktoxiden vor. Während des Unfalles und in der Nachunfallatmosphäre hängt die chemische Form, in der das betrachtete Radionuklid vorkommt, ab von

- der Temperatur des Brennstoffes
- dem Zeitverlauf des Unfalles
- der Oberflächenbeschaffenheit des Brennstoffes
- der physikalischen und chemischen Umgebungsatmosphäre

Darüber hinaus kann sich beim Durchlaufen der möglichen Temperaturskala die chemische Form aufgrund chemischer Reaktionen ändern. Diese hängen zusätzlich noch von der physikalischen Form (z.B. Aggregatzustand, geometrische Form der Aerosolpartikeln) der Reaktanten ab.

Aus dem Gesagten ist ersichtlich, daß bei der Bestimmung der chemischen Form Unsicherheiten auftreten.

Als mögliche chemische Formen können in Frage kommen [33,36,37]:

- Elemente
- Oxide
- Hydroxide
- Alkalihalogenide
- Uranhalogenide
- organische Verbindungen

In der Tabelle 11 werden die möglichen chemischen Formen einiger Aktivitätsträger nach [33,36,37, 160] aufgelistet.

In der Literatur konnten keine Angaben gefunden werden über

Element

27 CO	Oxid
34 SE	Element, Oxid
35 BR	Alkalihalogenid, Uranhalogenid
36 KR	Edelgas
37 RB	Element, Hydroxid, Alkalihalogenid
38 SR	Element, Hydroxid, Oxid
39 Y	Oxid
40 ZR	Element, Oxid
41 NB	Oxid
42 MO	Element, Oxid
43 TC	Element, Oxid
44 TU	Element, Oxid
45 RH	Element
46 PD	Element
47 AG	Element, Oxid
50 SN	Element, Oxid
51 SB	Element, Oxid
52 TE	Element, Oxid
53 J	Element, Alkalihalogenid, Uranhalogenid, HJ, CH ₃ J
54 XE	Edelgas
55 CS	Element, Hydroxid, Alkalihalogenid
56 BA	Element, Oxid, Hydroxid
57 LA	Oxid
58 CE	Oxid
59 PR	Oxid
60 ND	Oxid
61 PM	Oxid
62 SM	Oxid
63 EU	Oxid
64 GD	Oxid
92 U	Element, Oxid, Uranhalogenid
94 PU	Element, Oxid

Tabelle 11 : Mögliche chemische Formen einiger Aktivitätsträger

30 ZN
31 GA
32 GE
33 AS
48 CD
49 IN
65 TB

Da die Aktivität der in Frage kommenden Radioisotope dieser Elemente relativ gering ist im Vergleich zu den übrigen Radionukliden, scheint hier eine genaue Untersuchung nicht so vordringlich zu sein.

In der Abbildung 1 sind die aus der Literatur bekannten Dampfdruckkurven einiger Aktivitätsträger nach [38,39,40,41,42,43] aufgezeichnet. Man ersieht daraus sofort, daß eine Unterteilung in die Begriffe "schwerflüchtige" und "leichtflüchtige" Stoffe nicht ohne Berechtigung getroffen wird. Trotzdem sollte der Versuch unternommen werden, den sehr schwer quantifizierbaren Begriff der Flüchtigkeit durch eine exakte Beschreibung der physikalischen Form der Aktivitätsträger als Gas oder als Aerosol in Abhängigkeit vom zeitlichen Verlauf der Temperatur zu ersetzen. Daneben kann sich die physikalische Form aufgrund chemischer Reaktionen während des Unfalles und in der Nachunfallatmosphäre ändern. Bei Kenntnis der Reaktionen und der entsprechenden Reaktionsgleichgewichte in Abhängigkeit von der Temperatur ließen sich dann auch über den physikalischen Zustand des betreffenden Elementes genaue Aussagen machen.

Erläuterungen zu Abb. 1:

- strichliert gezeichnete Linien stellen Extrapolationen dar
- x sind gemessene Werte
- sind berechnete Werte nach der Clausius-Clapeyron'schen Gleichung

4. Wechselwirkung und Abbau nuklearer Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre eines LWR-Containments

4.1. Überblick über die wichtigsten Abbauprozesse von Partikeln, Tröpfchen und Gasen

Bei der Entstehung der Nachunfall-Atmosphäre in LWR-Containments spielen Vorgänge eine Rolle, die, je nachdem von welchen Annahmen man ausgeht, sehr unterschiedlich

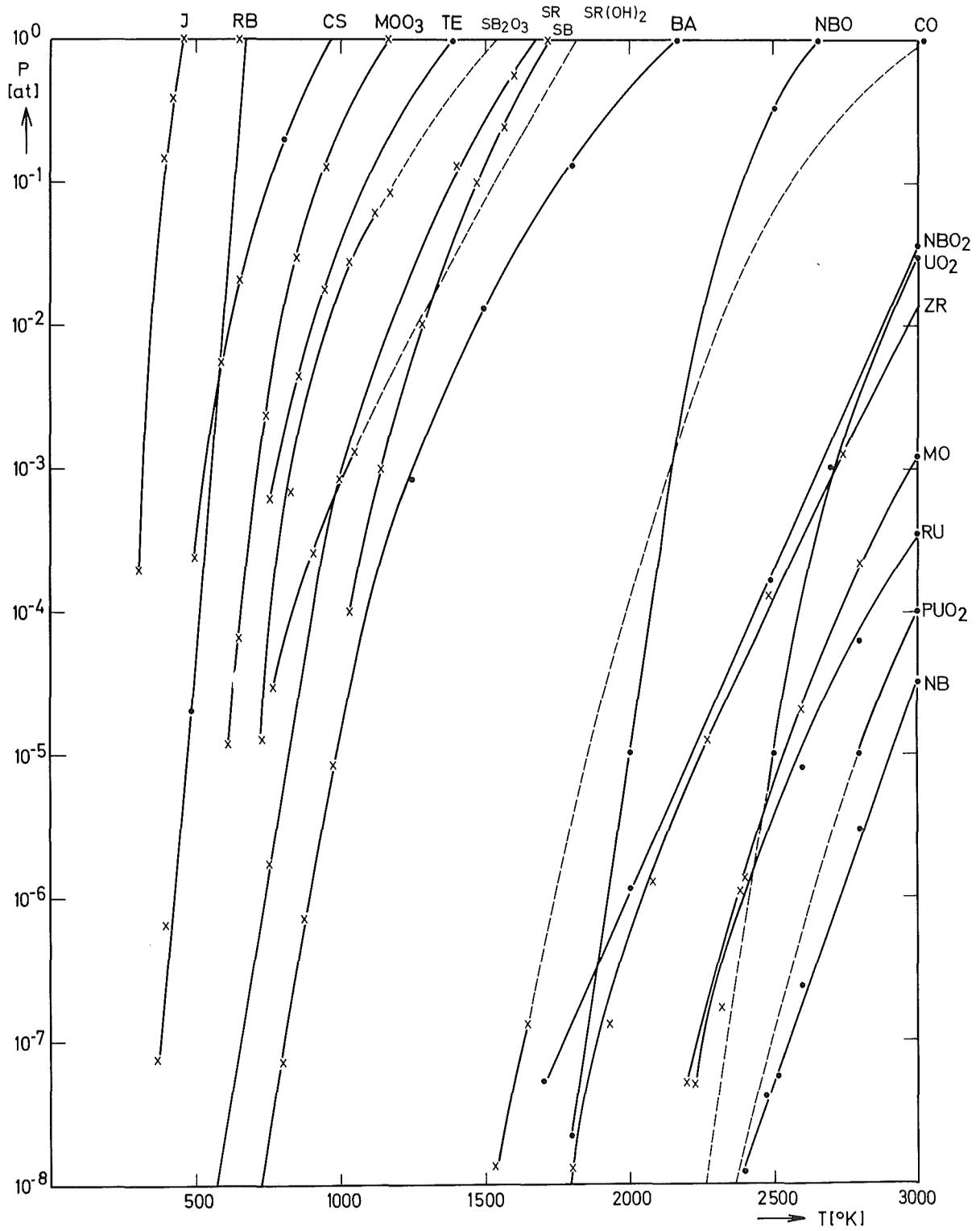


Abb.1 Dampfdruck - Kurven einiger Aktivitätsträger

ablaufen können (Core-Schmelzen, blow-down, usw.). Im hier betrachteten Zusammenhang scheint aber nicht umstritten zu sein, daß die Entstehung im Vergleich zu dem sehr viel langsameren Abbau als instantan angesehen werden kann. Im einzelnen muß man davon ausgehen, daß beim Niederschmelzen des Reaktorkerns Spaltgase entweichen, die zusammen mit der Luft und dem Wasserdampf den gasförmigen Anteil der Atmosphäre bilden. Ihre Temperatur liegt im Bereich zwischen 100°C - 200°C . Aus der Schmelze verdampfen weitere Produkte, die sich im dampfförmigen Zustand turbulent vermischen, dann aber rasch rekondensieren und damit die verschiedensten Aerosole mit festen Partikeln bilden können.

Über die Entstehung von Kondensationsaerosolen aus der Dampfphase weiß man heute noch recht wenig. Es erscheint daher als ziemlich schwierige Aufgabe, im Fall eines LWR-Unfalls mit Core-Schmelzen aufgrund theoretischer Überlegungen vorauszusagen, mit welchen Spaltprodukt- oder Brennstoff-Aerosolen man zu rechnen hat. Hier sind noch experimentelle Untersuchungen notwendig. Theorien und Berechnungsmethoden zur Aerosolbildung durch spontane Kondensation und Kondensation an Fremdkernen wurden z.B. von Oswatitsch (1942) [53], Buykov und Bakhanov (1967) [54] und auch Griffin und Sherman (1963) [55] angegeben. Die von diesen Autoren entwickelten Modelle enthalten Ausdrücke für die Kernbildungsrate bei konstanter Temperatur und konstanter Dampfkonzentration, die von Frenkel (1949) [56], Barnard (1953) [57] sowie Becker und Döring (1935) [58] mitgeteilt wurden. In jüngster Zeit entwickelten Sutugin und Fuchs (1970) [51] eine Theorie der Kondensationsaerosole, die auch für den Fall sich schnell ändernder Umgebungsbedingungen gilt. Sie zeigen, daß die Aerosolbildung aus der Dampfphase von Stoffen mit hohem Siedepunkt im wesentlichen ein Koagulationsprozeß ist und daß es eine kritische Dampfkonzentration gibt, unterhalb der kein Aerosol gebildet wird. In einer nachfolgenden Arbeit (1971) zeigen Sutugin, Fuchs und Kotsev [52] am Beispiel von Silberdampf, daß die Ausbildung von Aerosol in manchen Fällen mit heterogener Kondensation an immer zusätzlich vorhandenen Fremdkernen erklärt werden kann.

Als Ausgangspunkt für weitere Betrachtungen hat man also im Containment mit Folgendem zu rechnen:

1. Mit einer sehr schnell erzeugten Atmosphäre aus Spaltgasen, flüchtigen Spaltprodukten, Luft und Wasserdampf.

2. In dieser Atmosphäre als Dispersionsmedium mit einer dispersen Phase aus festen Partikeln.
3. Mit einer Schmelze, die als kontinuierliche Gas- und Aerosolquelle betrachtet werden kann.

Das Verhalten der dispersen Phase in trockener Atmosphäre kann sehr gut beschrieben werden. In diesem Fall wird die Abscheidung von Aerosolpartikeln durch Sedimentation, Koagulation und Diffusion bewirkt. Eine wesentliche Rolle spielt auch die Abscheidung durch Thermophorese an den Wänden des Containments.

Das Rechenprogramm PARDISEKO II [96], das im Kernforschungszentrum Karlsruhe entwickelt wurde, gestattet die Berechnung des zeitlichen Verlaufs der Partikelkonzentration in abgeschlossenen Räumen. Die gute Übereinstimmung mit experimentellen Meßergebnissen aus zahlreichen Versuchen erlaubt eine Extrapolation des Aerosolverhaltens in trockener Atmosphäre auf beliebige Containmentdimensionen. PARDISEKO II berücksichtigt die wichtigsten oben erwähnten aerosolphysikalischen Prozesse einschließlich der thermophoretischen Abscheidung von Partikeln an kälteren Containmentwänden.

Da also umfassende Modelltheorien zum Aerosolverhalten in geschlossenen Systemen bei trockener Atmosphäre vorliegen und auch in genügendem Umfang getestet worden sind, braucht im Folgenden darauf nicht weiter eingegangen zu werden. Vielmehr soll ein Überblick über den Stand der Kenntnisse hinsichtlich der Prozesse vermittelt werden, die zusätzlich zu den oben erwähnten beim Schadstoffabbau im Fall des LWR-Containments nach einem Unfall eine Rolle spielen. Es handelt sich dabei vornehmlich um die Kondensation von Wasserdampf und um Wechselwirkungen zwischen Partikeln und Tropfen, zwischen Partikeln und Gasen sowie zwischen Gasen und Tropfen.

Durch Abkühlung des Dispersionsmittels (Spaltdelgase, gasförmige Spaltprodukte, Luft, Wasserdampf) kommt es zu einer Wasserdampfübersättigung und damit zu einer spontanen und sprunghaft einsetzenden Bildung von Wassertröpfchen. Dabei können einerseits Aerosolpartikeln, andererseits aber auch bereits gebildete Tröpfchen als Kondensationskerne dienen. Eine Abkühlung findet von selbst statt, sie kann aber auch mit Hilfe von Sprühmitteln künstlich erzeugt werden. Auf die Wirkung von Sprühmitteln soll später eingegangen werden.

Eine geschlossene Theorie für die Tröpfchenbildung und das Tröpfchenwachstum durch Kondensation von Wasserdampf existiert nicht, wenn auch gerade in jüngster Zeit erhebliche Fortschritte erzielt worden sind.

N. Nix (1972) [44] gelang es, quantitative Angaben über den Wachstumsvorgang von H_2O -Tropfen bis in den submikroskopischen Bereich zu machen, wobei er sich einer Mikrokondensationskammer und eines empfindlichen Streulicht-Fotometers bediente. Theoretische Grundlagen und experimentelle Daten für Tröpfchen in der Größenordnung von $1 \mu m$ oder weniger gab es bisher praktisch nicht.

Von Ilga R. Paluch (1971) [45] stammt ein Modell über das Wachstum von Tropfen durch Kondensation in einem inhomogenen Medium, wobei sich die Inhomogenität auf die relative Feuchte, das Spektrum der Kondensationskerne und auf die Temperatur beziehen kann. L.R. König (1968) [46] entwickelte eines der wenigen verfügbaren numerischen Kondensationsmodelle.

Viel zitiert und für viele Fälle befriedigend ist die Übersättigungstheorie von Mason (letzte Fassung 1971) [47]. Es ist ungeklärt, ob sie sich im Hinblick auf die Kondensationsvorgänge in LWR-Containments mit hinreichender Genauigkeit anwenden läßt. Die Theorie gibt keine klare Auskunft über den Beginn einer Tröpfchenbildung, sondern beschreibt das Wachstum von Tröpfchen durch Kondensation.

Vorausgesetzt, es hat auf irgendeine Weise an Partikeln oder immer vorhandenen Kernen eine Anfangskondensation stattgefunden, so daß diese Kondensationskerne mit einer beliebig dünnen Wasserhaut umgeben sind, dann findet nach der Übersättigungstheorie ein Wachstum durch Kondensation statt, wenn der Dampfdruck der Atmosphäre größer ist, als der Dampfdruck über dem Tröpfchen bzw. der Partikeln mit dünner Wasserhaut. Qualitativ nimmt der Tröpfchendampfdruck zu, wenn der Tröpfchendurchmesser abnimmt, und der Dampfdruck des Tröpfchens wird kleiner, wenn die Konzentration der im Tröpfchen gelösten Substanzen zunimmt. Es gibt daher für einen gegebenen Übersättigungsgrad stets eine minimale Tröpfchengröße, die selbst als Kondensationskern dienen kann. Ist seine kritische minimale Größe überschritten, dann wächst das Tröpfchen solange, bis - bei ständig geringer werdendem Dampfdruck über der Tröpfchenoberfläche - durch Herabsetzung des Wasserdampfpartialdrucks der Atmosphäre der Gleichgewichtszustand erreicht wird. Gehen Teile des festen Kerns im Tröpfchen in Lösung, dann wird der Gleichgewichtszustand

später erreicht. Das Tröpfchen kann dann relativ größer werden. Wie bereits erwähnt, ist eine Dampfdruckübersättigung Bedingung für den Beginn des Tröpfchenwachstums. Für den Fall der Verhältnisse im LWR-Containment in der Nachunfallatmosphäre berechnet L.F. Parsly (1971) [48] das folgende Beispiel: Bei einer Temperatur des Dispersionsmittels von 130°C und Wasserdampfpartialdruck verursacht eine Abkühlung um $0,1^{\circ}\text{C}$ eine Übersättigung von 0,3 %. Daraus findet man einen kritischen minimalen Tröpfchendurchmesser von $d = 0,8 \mu\text{m}$ (reines Wasser ohne gelöste Substanzen), von dem an Wachstum durch Kondensation stattfinden kann. An Partikeln mit Durchmessern kleiner als $0,8 \mu\text{m}$ findet keine Kondensation statt. Da der Wasserdampfpartialdruck der Atmosphäre bei der Kondensation nur abnehmen kann, findet Kondensation an Tröpfchen bzw. Partikeln mit Durchmessern kleiner als $0,8 \mu\text{m}$ erst statt, wenn die Temperatur noch weiter abgenommen hat.

Zusätzlich zu den Abscheidemechanismen von Aerosolpartikeln im konstanten Dispersionsmittel treten im Fall der Tröpfchenbildung weitere sehr effektive Abscheidenvorgänge auf, die häufig mit "wash-out" und "rain-out" bezeichnet werden.

Vereinfacht ausgedrückt ist "wash-out" die Einwirkung eines fallenden Tropfens auf Gase oder Partikeln mit dem Resultat, daß diese mit der Fallgeschwindigkeit des Tropfens sedimentieren, während "rain-out" die ursprüngliche Bildung eines Tropfens an den Partikeln bedeutet, die dann ebenfalls durch Zunahme der Masse schneller abgeschieden werden können. Beide Prozesse wirken meist zusammen. Sie sind oft nicht eindeutig voneinander unterscheidbar.

Einer der dabei auftretenden Mechanismen, der von Mason [47] näher untersucht wurde, ist die Trägheitsimpaktion. Aerosolpartikeln können infolge einer Kollision mit schneller sinkenden Tröpfchen von diesen eingefangen werden. Es ist keine Gleichung bekannt, die die relative Strömung um eine Kugel (Tröpfchen) beschreibt, in der sowohl Trägheitsterme als auch Zähigkeitsterme berücksichtigt werden. Die Kinematik von großen Tropfen oder Partikeln kann näherungsweise mit Hilfe von Trägheitskräften beschrieben werden, während man für kleine Massen häufig nur Zähigkeitskräfte annimmt [48]. Demnach würde jedoch eine Kollision von großen Tropfen mit sehr kleinen Partikeln nie stattfinden, da die Trajektorien von trägheitslosen Partikeln immer an großen Tropfen vorbeiführen würden. Nur wenn die kleinen Partikeln auch träge sind, können Kollisionen stattfinden. Eine näherungsweise Beschreibung der Trägheitsimpaktion stammt von I. Langmuir (1948)

[49]. Er definiert einen "Kollisions-Wirkungsfaktor" als das Verhältnis von tatsächlichem Kollisionsquerschnitt zum geometrischen Querschnitt des großen Tropfens, der mit einer kleinen Partikel kollidiert. Das Strömungsverhalten um den großen Tropfen wird unter Vernachlässigung der Zähigkeit als Lösung der Strömungspotentialgleichung beschrieben, während die Bewegung der kleinen Partikeln allein von Zähigkeitskräften kontrolliert wird. Der oben erwähnte Widerspruch bleibt unbeachtet. Der Kollisions-Wirkungsfaktor hängt nach Langmuir von einem dimensionslosen Term ab, in dem die Viskosität des Dispersionsmediums, die Dichte der kleinen Tröpfchen, die Radien des großen und der kleinen Tropfen (Partikeln) und die Relativgeschwindigkeit zwischen beiden eingehen. Dieser Term ist identisch mit der bei N.A. Fuchs (1964) [50] definierten "Stokes-Zahl".

Nach der Langmuir'schen Theorie gibt es einen kritischen Wert dieses Terms und damit einen kritischen Partikelradius, unterhalb dem ein Einfangen durch Trägheitsimpaktion nicht mehr möglich ist. Nach Parsly [48] beträgt dieser kritische Radius in einer Luft-Dampf-Atmosphäre von 130°C etwa 3 µm bei einem Radius der großen Tropfen von 500µm. Das bedeutet, daß die Trägheitsimpaktion beim wash-out von Spaltprodukt-Aerosolen vermutlich keine wesentliche Rolle spielt, weil der Medianwert der statistischen Radienverteilung von solchen Aerosolpartikeln wesentlich kleiner als 3 µm sein dürfte. Allerdings muß noch folgendes bemerkt werden: ein Tropfenradius von 500 µm, wie bei Parsly [48] angenommen, entspricht eher dem Fall, daß es sich um einen durch Sprühmittel oder blow-down-Effekte erzeugten Tropfen handelt.

Infolge der oben beschriebenen Kondensation an Kernen oder Partikeln wird jedoch auch ein Tröpfchengrößenspektrum erzeugt, dessen größtes Quantil im Bereich viel kleinerer Radien als 500 µm liegt. Es kann daher auch zu Kollisionen zwischen Tröpfchen kommen, deren Radien in der gleichen Größenordnung liegen. Hier allerdings werden die Langmuir'schen Voraussetzungen ungültig, denn auch das Verhalten des größeren Tröpfchens kann dann nicht aus dem Strömungspotential abgeleitet werden. Wenn beide miteinander kollidierenden Tropfen in den Gültigkeitsbereich des Stokes'schen Gesetzes fallen, kann der Kollisionswirkungs-faktor aus der Viskositätsgleichung ermittelt werden. In diesem Fall kann die Trägheitsimpaktion praktisch durch eine der Koagulationstheorien erklärt und berechnet werden [50; 59 - 70].

Im Hinblick auf die nach einem Unfall im LWR-Containment zu erwartenden Tröpfchen- und Partikelgrößen dürfte es aber wahrscheinlich sein, daß sich weder das

Potentialströmungsmodell noch das Zähigkeitsmodell auf die Berechnung des wash-out durch Trägheitsimpaktion anwenden läßt. Für Tröpfchengrößen, die im Bereich zwischen dem der Gültigkeit des Stokes'schen Gesetzes und dem des Potentialströmungsgesetzes liegen, bestehen heute nur halbempirische Ansätze.

Eine andere Art des Einfangens von kleineren Tröpfchen bzw. Partikeln durch größere Tropfen ist die Interzeption. Dabei nimmt der größere Tropfen den kleineren auf, ohne daß der Schwerpunkt des kleinen Tropfens die Strömungslinie um den großen Tropfen herum verläßt. Es handelt sich also um eine "Berührungskollision". Entsprechende theoretische Abhandlungen stammen z.B. von Hilliard (1970) [71], von Ranz und Wong (1952) [72] und von Hidy [93]. Parsly [48] berechnet als Beispiel, daß die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein Tropfen mit einem Durchmesser von 1 mm eine Partikel von 1 µm Durchmesser durch Interzeption einfängt, etwa 0,3 % beträgt. Es kann gefolgert werden, daß wash-out von Partikeln durch Interzeption mit Sprühmittel-Tropfen im LWR-Containment eine untergeordnete Rolle spielt, mit kleinen Tröpfchen aber wirksam werden könnte, da die Wahrscheinlichkeit für Interzeption ohne Bahnablenkung mit geringer werdender Tröpfchengröße zunimmt.

Das möglichst schnelle Auswaschen von kleinen Spaltprodukt- oder Brennstoff-Partikeln im LWR-Containment könnte theoretisch durch Thermophorese behindert werden. Sie spielt z.B. eine Rolle, wenn am Boden des Containments eine Schmelze vorhanden ist, die wesentlich heißer als die Atmosphäre darüber ist. Die dabei wirksam werdenden thermischen Kräfte nehmen mit wachsender Knudsen-Zahl (mittlere freie Weglänge der Gasmoleküle/Partikelradius) zu und nehmen dann bei Knudsen-Zahlen größer als etwa 0,2 immer stärker ab. Das bedeutet zunächst, daß sehr kleine Partikeln nur wenig an der Sedimentation gehindert werden. Sehr kleine Partikeln wachsen aber - wie oben erläutert - mit geringerer Wahrscheinlichkeit durch Kondensation von Wasserdampf an, so daß die Knudsen-Zahl meist größer als 0,2 bleibt. Größere Partikeln dagegen nehmen durch Kondensation im Durchmesser zu, so daß bald die Knudsen-Zahl sehr klein wird. Daraus kann gefolgert werden, daß die Behinderung der Sedimentation durch Thermophorese speziell bei den Verhältnissen in LWR-Containments eine untergeordnete Rolle spielt.

Die Theorie der Thermophorese ist nicht einheitlich. Fuchs [50] gibt einen Bereich für Partikeldurchmesser von 0,025 µm bis 1 µm an, für den es keine brauchbare Theorie gibt. Im Fall der Nachunfall-Atmosphäre in LWR-Containments ist aber

gerade dieser Bereich der interessanteste [748]. Eine neuere Arbeit über die Partikel-Abscheidung aus turbulenten Strömungen durch thermische Kräfte stammt von Byers und Calvert (1969) [773]. Dort findet sich auch eine Darstellung mit vielen Literaturhinweisen von Theorien anderer Autoren, die jeweils für bestimmte Intervalle von Knudsen-Zahlen gültig sein sollen und voneinander erheblich abweichen können (Cawood (1936), Waldmann (1959), Dergaguin (1965), Bakanov (1962), Epstein (1929), Brock (1962, 1967, 1969), Yalamov (1965)).

Thermophorese tritt auch auf, wenn ein Gradient des Wasserdampfpartialdrucks vorliegt (was bei inhomogener Kondensation sicher der Fall ist), da der Druckgradient auch einen Temperaturgradienten zur Folge hat. T.W. Horst (1968) [774] berechnete jedoch, daß thermophoretische Kräfte, die auf Partikeln in einer Umgebung mit kondensierendem Wasserdampf wirken, sehr viel kleiner sind als die Kräfte, die von Diffusiophorese infolge des Druckgradienten herrühren. Thermophorese ist deshalb im Zusammenhang mit dem wash-out ein unbedeutender Effekt.

Anders verhält es sich mit der bereits erwähnten Diffusiophorese. Die aus ihr verursachte Kraft auf eine Partikel ist die Summe der Kräfte aufgrund der Stephan-Strömung und der durch Prozesse des Gas-Impuls-Austausches hervorgerufenen Kraft. Die Stephan-Strömung ist eine hydrodynamische Strömung, die auftreten muß, um in einem Gassystem mit Diffusion einen Ausgleich des Gesamtdruckes herbeizuführen. Sie ist von einer Oberfläche, auf der Flüssigkeit verdampft, weg und auf eine Oberfläche, auf der Dampf kondensiert, hin gerichtet und wurde von Stephan (1882) [775] postuliert und 1957 erstmals von L. Facy [776] experimentell bestätigt. Wenn die Molekulargewichte von diffundierenden Gasen (Luft, Wasserdampf, Spaltgase) verschieden sind, dann wird die Bewegung von kleinen Partikeln mit Knudsen-Zahlen $Kn > 1$ beeinflusst durch Gas-Impulsaustausch-Effekte. In diesem Fall ist die Strömungsgeschwindigkeit der Partikeln nicht mehr die der Stephan-Strömung. Mit Hilfe der Gastheorie von Chapman-Enskog leiteten Bakanov und Dergaguin (1957, 1960) [777,78] sowie Waldmann (1959) [779] eine Gleichung für die Partikelgeschwindigkeit ab, die praktisch alle Effekte von diffundierenden Gasmolekülen auf die Partikelbewegung berücksichtigt. Eine sehr ähnliche Gleichung, die gelten soll, wenn der Dampfpartialdruck sehr viel geringer ist als der Partialdruck der übrigen Gaskomponenten (ebenfalls $Kn > 1$), geben Goldsmith und May (1966) [781] und Goldsmith et al. (1963) [782] an. Entsprechende Formeln bei Knudsen-Zahlen $Kn < 1$ stammen von Schmidt und Waldmann (1960) [783] und Dergaguin (1966) [784], wobei letzterer noch zwischen $Kn \leq 0,5$ und $0,7 \leq Kn < 1$ unterscheidet.

Wenn damit auch Theorien zur Diffusiophorese vorhanden sind, ist dennoch kaum ein Rückschluß auf den Beitrag zum Kollisionswirkungsfaktor und damit den zusätzlichen Effekt bei wash-out durch Diffusiophorese möglich. Prokhorov (1954) [85] berichtet über geringer werdende Wirkungsfaktoren bei "negativer Diffusiophorese" (Verdampfung), womit unter Umständen in LWR-Containments auch gerechnet werden muß. Schließlich gibt noch Tovbin (1965) [86] an, daß Diffusiophorese keinen Einfluß mehr hat, wenn die auftretenden Reynold-Zahlen sehr groß sind.

Eine umfassende Darstellung der verschiedenen Theorien zur Diffusiophorese und zur Stephan-Strömung geben Sparks und Pilat (1970) [80]. Die Autoren berechnen Einfangwirkungsfaktoren von einzelnen Tröpfchen und Partikeln durch gleichzeitiges Auftreten von Trägheitsimpaktion und Diffusiophorese.

So wenig bisher rain-out und wash-out von Partikeln durch Tröpfchen im einzelnen verstanden sind, so wenig ist auch über die Gas-Abscheidung durch Tröpfchen (Scavenging) bekannt. Gerade die Reinigung der LWR-Containment-Atmosphäre nach einem Unfall von Spaltedelgasen, gasförmigen Spaltprodukten und Dämpfen durch Scavenging ist aber ein bedeutender Effekt, der sich natürlich günstig auswirkt und der experimentell leicht nachweisbar ist (s.u.).

Eine umfangreiche Analyse des wash-out von SO_2 stammt von Hales et al. (1971) [87]. Eine Verallgemeinerung dieser Analyse als erste Grundlage einer umfassenden Theorie aller Gas-wash-out-Prozesse wurde erst kürzlich ebenfalls von Hales (1972) [88] veröffentlicht. Hales postuliert für das Scavenging zwei Stufen: Erstens die Gasphasenstufe und zweitens die Stufe der flüssigen Phase, die er beide mathematisch getrennt behandelt. Die Wechselwirkung Gas-Tröpfchen kann nämlich sehr vereinfacht wie folgt beschrieben werden:

Damit Gas-Moleküle von einem Tropfen eingefangen werden können, müssen sie zunächst auf seine flüssige Oberfläche gelangen und dabei die Zone zwischen Dampf und Flüssigkeit durchdringen. Danach können sie in die Flüssigkeit hineinwandern, in der sie chemisch reagieren oder als verteilte Gasmoleküle ohne Reaktion verbleiben. Allerdings ist zu bemerken, daß es nicht in jedem Fall notwendig ist, daß die Zone Dampf-Flüssigkeit durchdrungen wird. Scavenging tritt auch bei bestimmten unlöslichen Gasen (z.B. Kohlenwasserstoffe) dadurch auf, daß sie eine Schicht auf der Tröpfchenoberfläche bilden. Unter Umständen können sie sich dann aber auch wieder verflüchtigen. Ebenso können die ungelösten Gasmoleküle im Innern

des Tropfens einen Dampfdruck erzeugen, der dazu führt, daß die Moleküle wieder desorbiert werden und damit zurück in die Atmosphäre gelangen. Man erkennt daraus, daß die Wirksamkeit von Gas-wash-out sehr wesentlich von den erwähnten reversiblen Prozessen abhängt.

Fast das gleiche gilt auch für Wechselwirkungen zwischen Gas und Aerosolpartikeln. Auch hier sind die Kenntnisse noch sehr unvollkommen. Schließlich sei noch erwähnt, daß rain-out und wash-out von Gasen über Gas-Aerosol-Wechselwirkungen wieder mit den Auswaschvorgängen von Partikeln durch Tröpfchen verknüpft sind.

4.2 Experimentelle Ergebnisse über Abbauprozesse in LWR-Containments

Keilholtz et al. [97] gliedern die Spaltprodukte in der Nachunfallatmosphäre in drei Gruppen: Aerosole, reaktive Gase, Dämpfe und Edelgase. Unter diesen lassen sich Edelgase nur durch Filter, welche in dieser Studie nicht behandelt werden, aus der Atmosphäre beseitigen. Aerosole werden hauptsächlich durch natürliche Prozesse abgeschieden, wobei in einer wasserdampfübersättigten Atmosphäre die Kondensation eine mehr oder weniger große Rolle spielt, je nachdem ob das Aerosol löslich oder nicht löslich ist. Reaktive Gase hingegen werden durch ihre hohe Mobilität sehr stark zusammen mit Wassertropfen abgeschieden.

Nach Keilholtz et al. [97] sind die wichtigsten Gase J_2 , HJ und CH_3J . Die relative Entstehung dieser drei Gase bei einem Unfall läßt sich heute noch nicht voraussagen. Doch treten in einer oxidierenden Atmosphäre hauptsächlich J_2 , in einer reduzierenden Atmosphäre hauptsächlich HJ oder Festkörperverbindungen wie C_sJ auf. CH_3J wird nicht beim Niederschmelzen, sondern erst in darauffolgenden chemischen Reaktionen erzeugt und macht wahrscheinlich nur ein paar Prozent des ganzen J-Inventars aus.

Die Wirksamkeit eines Sprühsystems hängt weitgehend von der Löslichkeit dieser Gase in der Sprühlösung ab. Nach Parsly et al. [98] ist die Aufnahme des J_2 von reaktiven Lösungstropfen maßgeblich durch Gasfilm-Absorption bestimmt. Da CH_3J nur schwach löslich in Wasser oder Sprühlösungen ist, ist hier der Aufnahme-prozeß vielmehr durch Flüssigkeitsfilm-Absorption zusammen mit einer chemischen Reaktion von annähernd erster Ordnung bestimmt. Beide Prozesse können durch irreversibles Fixieren (etwa durch $Na_2S_2H_3$) des Gases in dem Tröpfchen verstärkt werden.

Da nun die verschiedenen J-Verbindungen in dem gesamten Spaltproduktinventar der Nachunfallatmosphäre wegen ihrer hohen Gefährdungspotentiale eine sehr wichtige Rolle spielen, ihre Verweildauer in dieser Atmosphäre aber sehr stark durch geeignete Sprühlösungen verringert werden kann, hat man sich im Oak Ridge National Laboratory (ORNL) seit mehreren Jahren intensiv mit diesem Problem beschäftigt. Das Hauptgewicht lag hierbei in der Prüfung verschiedener Lösungen in Integral-Experimenten in Containment-Simulationskesseln (NSPP), der Untersuchung der Lösungsstabilität unter Einfluß von Gammastrahlen und der Produktion von H_2 durch Radiolyse.

Um den Massentransport von CH_3J an Wassertröpfchen genau untersuchen zu können, wurde bei ORNL [97,99,100] ein vertikaler Windtunnel konstruiert, in dem über längere Zeit einzelne Tröpfchen stationär suspendiert werden können. Dem Trägergas wird die gewünschte CH_3J (oder J_2)-Konzentration beigemischt. Nach der gewünschten Expositionszeit wird der Trägergasstrom abgeschaltet und das Tröpfchen in einem Becher aufgefangen, in dem es durch ein inertes Gas von weiterem Kontakt mit den Tunnelgasen geschützt wird.

Garner und Lane [101] zeigten, daß der Verlauf der Sättigung des Tröpfchens mit Gas mit der Zeit durch eine Gleichung beschrieben werden kann, die den Diffusionskoeffizienten enthält. Wenn nun die Marshall-Ranz [102]-Korrelation anwendbar ist, zeigt Griffith [103], daß die Massenübergangszahl und der Diffusionskoeffizient linear voneinander abhängig sind. Somit gelangen Soldano und Ward [104] zu einer Gleichung für die Sättigung, welche linear in der Zeit und in der Massenübergangszahl ist. Dieses Verhalten wird durch Experimente im Tunnel qualitativ bestätigt. Die Ergebnisse zeigten ferner, daß der Proportionalitätsfaktor zwischen Übersättigung und Zeit, also nach der Theorie die Massenübergangszahl, aus zwei Termen besteht, wobei der eine von der Oberfläche des Tröpfchens abhängt, der andere unabhängig von der Tröpfchengröße ist. Soldano und Ward nehmen an, daß der größenunabhängige Term interne Tröpfchenparameter wie die Flüssigkeitszirkulation wiedergibt. Die Annahme, daß der Proportionalitätsfaktor zwischen Übersättigung und Zeit die Massenübergangszahl ist, wurde von Parker et al. [105] in einem Sprüh-Experiment bei ORNL insoweit bestätigt, als deren Messung der Massenübergangszahl für Tröpfchen von 10^{-2} cm Durchmesser mit Extrapolationen von Tunnelergebnissen übereinstimmt.

Weitere Experimente am Tunnel befaßten sich mit dem Einfluß der relativen Feuchte des Trägergases auf den Massentransport von CH_3J . Als Tröpfchenflüssigkeit wurde eine Lösung von 1 % $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ mit pH 7,4 benutzt, da frühere Experimente gezeigt hatten, daß diese Lösung den Massentransport von CH_3J gegenüber reinem Wasser um das Zehnfache steigert. Es zeigte sich, daß die Massenübergangszahl und der Verteilungskoeffizient stark vom Feuchtigkeitsgrad abhängen. Bei der niedrigsten Feuchte (40 %) wurde festgestellt, daß die treibende Kraft der relativ hohen Verdunstungsrate die der Thermophorese am kalten Tropfen überwiegt. Diese Verdunstungsrate könnte weiterhin die Bildung einer aktivierten Oberfläche, eine notwendige Voraussetzung für CH_3J -Absorption, verhindern. Bei hoher relativer Feuchte (> 93 %) benimmt sich das CH_3J so, als ob es nicht zwischen der Feuchte des umgebenden Gases und der des Tröpfchens unterscheiden könnte, und die Massenübergangszahl nimmt entsprechend wieder ab. Andererseits zeigen Experimente in Containments mit Sprühsystemen, daß der mitreißende Effekt der Kondensation in einer übersättigten Atmosphäre tatsächlich zu einer Erhöhung der Massenübergangszahl führt, ein Ergebnis, welches nicht im Tunnel erzeugt werden kann.

Bei niedrigen Konzentrationen ($\sim 0,2$ %) zeigten verschiedene reduzierte Lösungszusätze die gleiche erhöhende Wirkung auf die Massenübergangszahl. Bei höheren Konzentrationen zeigten sich erhebliche Unterschiede. Bei einem pH-Wert von 7 oder höher sind die Transportkoeffizienten praktisch unabhängig von der Temperatur [97].

Eine Reihe von Experimenten im Tunnel deuten darauf hin, daß die katalytische Wirkung von Zusätzen mit hoher Elektronenaffinität zu einer basischen Borat-Lösung mit 1 % $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ auf die Absorption von CH_3J vermutlich von der Fähigkeit der Metalionen, den angeregten Zustand von CH_3J zu stabilisieren, herrührt. Dieser Effekt ist temperaturunabhängig. Ferner wurde beobachtet, daß Licht und radioaktive Strahlung die Absorption von CH_3J erhöhen, wiederum über den angeregten Zustand.

Da die Abscheidungs-Wirksamkeit eines Sprühsystems sehr stark von der Löslichkeit des auszuwaschenden Schwebstoffes in der Sprühlösung abhängt, wurde bei ORNL [97] eine große Anzahl von Lösungszusätzen in Laborversuchen untersucht. Diese und deren Verteilungskoeffizienten bei 25°C werden in [97] aufgeführt. Die experimentelle Methode bestand darin, daß ein Trägergas (N_2) mit verschiedenen Konzentrationen von J_2 oder CH_3J durch eine Waschflasche mit der entsprechenden Lösung strömte. Gemessen wurden die Verteilungskoeffizienten von J_2 und CH_3J im Gleichgewichtszustand und die Zeit zur Erreichung dieses Zustandes. Bei 25°C steigt der Verteilungskoeffizient von J_2 von einem Minimum von 83 bei hoher J_2 -Kon-

zentration und niedriger pH-Lösung zu Werten über 10^4 bei niedriger J_2 -Konzentration und hoher pH-Lösung. Bei 100°C ist das Verhalten qualitativ dasselbe, nur sind die Werte noch extremer.

In einem anderen Laborexperiment zeigten Schwendiman et al. [106], daß die Reaktionsrate zwischen Hydroxylionen und CH_3J bei Raumtemperatur sehr klein ist, besonders dann, wenn die Hydroxylionen durch Borsäure unterdrückt werden. Andererseits zeigen Soldano und Ward [107], daß die Reaktionsrate einer basischen Bor-Thiosulfat-Lösung, für die die Reaktionsrate mit CH_3J ohnehin schon sehr viel höher ist, durch den Zusatz von 10^{-5} Mol/Liter eines Oberflächenaktivstoffes deutlich erhöht wird.

Um die Abscheide-Wirksamkeit von Sprühlösungen für CH_3J und J_2 auf Einzelprozesse untersuchen zu können, führten Parker, Creek und Horton [105] Experimente mit Sprühlösungen im Labormaßstab aus. Als Versuchsgefäß wurde ein 11 Liter-Glas-Zylinder verwendet, der mit einem Auffangtank für die Sprühlösung ($0,1 \text{ m Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$) versehen war. Die Tröpfchengröße wurde zwischen $50 - 100 \mu\text{m}$ variiert; der Fluß war $45 \text{ cm}^3/\text{min}$. Die Menge des in der Lösung absorbierten CH_3J konnte durch Reaktion mit CCl_4 festgestellt werden. Erste Versuche zeigten, daß die Auswaschung von J_2 in wenigen Sekunden, die von CH_3J nur unvollständig in mehreren Minuten stattfindet. Es wurden daher weitere Experimente unternommen, um zu klären, ob die relativ langsame Auswaschung von CH_3J nur von dessen Verteilungskoeffizienten abhängig ist, oder von einer chemischen Reaktion (Hydrolyse) bestimmt wird. Bei 20°C konnte gezeigt werden, daß die Verteilungskoeffizienten von CH_3J in $0,1 \text{ m Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ und von CH_3J in Wasser etwa gleich sind. Bei 48°C hatte für CH_3J nach einer Minute 50 % Hydrolyse, nach 20 Minuten etwa 100 % Hydrolyse stattgefunden. In reinem Wasser wurde auch nach Stunden keine Hydrolyse von CH_3J festgestellt.

Soldano und Ward [108] untersuchten die Reaktionsrate von CH_3J mit $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ in Laborversuchen mittels gaschromatographischer Methoden. Dabei stellte sich paradoxerweise heraus, daß sich die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante in Anwesenheit von J_2 mit der Konzentration von J_2 erhöht. Da J_2 fast instantan mit $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ reagiert, wurde erwartet, daß das Gegenteil der Fall sein würde. Daher wurde ein Versuch gemacht, um festzustellen, ob ein Produkt der Reaktion $J_2 - \text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ entsteht, dessen Reaktionsgeschwindigkeit die von CH_3J mit $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ übertrifft. Es konnte keines gefunden werden. So wurde zum Beispiel bei Natriumtetrathionat festgestellt, daß dessen Reaktionsrate mit J_2 viel höher als die mit CH_3J ist. Variieren der J_2 -Konzentration zeigte keinen Einfluß. Soldano und Ward schlagen vor, die im Sinne der Reaktorsicherheit pessimistische Annahme zugrunde zu legen, daß J_2 bei der Reaktion von CH_3J mit $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ nicht beteiligt ist.

Nach [109,110,111] würde die Abbauhalbwertszeit für CH_3J mit Sprühsystemen den Sicherheitsüberlegungen genügen, wenn die Reaktionsrate von CH_3J mit $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ um mindestens einen Faktor zwei erhöht werden könnte. Untersuchungen mit lösungs-kinetischen Verfahren zeigten, daß Spuren Mengen (10^{-5}M) von bivalenten Ionen - so zum Beispiel $\text{NiSO}_4(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ oder $\text{CoSO}_4(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ - die Reaktionsrate von CH_3J mit 0,13 m $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ in basischer Boratlösung wesentlich (um den Faktor zwei) erhöhen. Es wird dabei vermutet, daß es sich bei dieser Erhöhung um eine photochemische Reaktion handelt, bei der ein Übergang von dem Singulett zu dem langlebigen Triplet-Zustand von CH_3J stattfindet.

Die oben behandelten Untersuchungen über die Löslichkeit von gasförmigem Jod lassen das Vorhandensein einer hohen Strahlenbelastung in der Nachunfall-Atmosphäre außer acht. Tatsächlich ist aber die chemische Stabilität jeglicher Sprühlösungen bei dieser Strahlenbelastung in Frage gestellt. Es wurden daher bei ORNL [112,113,114] eine Reihe von Experimenten durchgeführt, die verschiedene Lösungen auf ihre Gammastrahlen-Stabilität prüften. Dieses geschah sowohl für statische wie auch dynamische (Dynamic Loop Facility) Bedingungen. In beiden Fällen wurde mit ^{60}Co bestrahlt ($5 \cdot 10^5 - 5 \cdot 10^7$ rad). Die Parameter des Dynamic Loops sind Durchflußrate, Temperatur und Verhältnis von Gas zu Flüssigkeit. Bei reinem Wasser zeigte sich eine Änderung der radiolytischen H_2 -Produktion nur durch eine Temperaturänderung. Bei einer Änderung von 65°C auf 95°C wurde um den Faktor zwei weniger H_2 produziert. Bei weiteren Erhöhungen der Temperatur verringerte sich dieser Effekt, wahrscheinlich unter dem Einfluß des Siedens. Alle Lösungen zeigten einen Abfall des pH-Wertes als Funktion der Strahlendosis. Der Abbau von $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$, gemessen an der Reaktion mit J_2 , ist weit stärker bei sauren als bei basischen Lösungen. Hier ist zu beachten, daß CH_3J nur in basischen Lösungen löslich ist. Im Gegensatz zu basischen Lösungen von $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ wurden in sauren $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ -Lösungen beträchtliche Mengen von Feststoff-Ausflockungen beobachtet.

Um die radiolytische Stabilität von CH_3J selbst zu untersuchen, nahm Zittel [114] vier 500 cm^3 Glaskugeln, die geschwärzt waren, um Lichteinwirkungen zu vermeiden. Diese wurden mit einer Mischung aus feuchter Luft und CH_3J gefüllt und zwei davon mit Gammastrahlen bestrahlt. Danach wurden alle vier auf ihren CH_3J -Inhalt geprüft. Das Resultat war, daß ungefähr 10 Moleküle CH_3J für je 100 rad absorbierter Strahlung zerstört wurden. Nach Zittel würde dieses bedeuten, daß 10^4 rad alles CH_3J eines typischen Störfalles zerstören würden, wenn man die Erzeugungsrate von CH_3J ignoriert. Auch muß berücksichtigt werden, daß bei abnehmender Strahlung eine Rekombination von CH_3 und J stattfinden kann.

Außer der Gefahr, daß die Wirksamkeit der Sprühlösungen durch starke Gammastrahlung beeinträchtigt wird, besteht die Gefahr der Knallgasbildung durch freigesetzten Wasserstoff. Es besteht daher Interesse, die möglichen Quellen von radiolytischem Wasserstoff zu identifizieren und zu quantifizieren. So wurde bei ORNL [97] gezeigt, daß die radiolytische Wasserstoffproduktion bei Sprühlösungen proportional der Gammadosis ist. Hierbei hemmt der anwesende Sauerstoff die Freisetzung wahrscheinlich durch Reaktion mit den radiolytischen Wasserprodukten oder den radiolytischen Produkten von $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$, um so den Radiolyse-Reaktionsweg oder dessen Rate zu ändern. Zittel [15,116,117] untersuchte mehrere Katalysatoren, um die H_2 -Produktion zu dämpfen. Dabei zeigte sich NaVO_3 als günstig. In einem statischen Experiment bei Raumtemperatur bewirkte die Zugabe von $2 \cdot 10^{-3}$ m NaVO_3 zu einer Sprühlösung von 0,15 n NaOH eine zehnfache Verminderung der H_2 -Produktion. Hingegen konnte mit NaVO_3 und auch anderen Katalysatoren kein Effekt bei Anwendung von $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ -Lösungen, die sich besonders günstig für die Abscheidung von CH_3J erwiesen, gefunden werden. Eine Untersuchung über den Einfluß des pH-Wertes ergab geringste H_2 -Produktion bei pH-Werten zwischen 6 und 10. Diese Ergebnisse wurden in der Dynamic Loop Facility bestätigt. Zittel [118] zeigt, daß die Anwesenheit von CH_3J keinen Einfluß auf die radiolytische H_2 -Produktion von Sprühlösungen hat.

Soldano und Ward [119] berichten über Absorptionsversuche von J_2 und CH_3J an Eis, da dieses als Kühlung in Containments in Erwägung gezogen worden war. Sie konstruierten einen Zylinder, der mit Eiswürfeln gefüllt wurde und die Überwachung von J_2 , Dampf und Luftdurchfluß erlaubte. Ein Mantel von Eis-Salz-Gemisch hielt die Temperatur der Eiswürfel bei ungefähr 0°C . Die Dimensionen des Zylinders betragen 7,5 cm Durchmesser und 30 cm Höhe, die der Eiswürfel 1,5 cm. In die Reihe mit dem Zylinder wurde eine Waschflasche mit 1 % $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ -Lösung und ein Aktivkohlefilter geschaltet, um eine Massenbilanz der Gase zu ermöglichen. Um die Tatsachen der Nachunfallatmosphäre zu simulieren, wurde erst ein Luftstrom mit J_2 für eine Stunde durch den Zylinder gepumpt. Anschließend wurde Luft bzw. ein Luft-Dampf-Gemisch für Zeiten bis 10 min nachgepumpt, wobei eine J_2 -Desorption zu erwarten ist (Stripping). Vor Beginn des Stripping waren 82 % des J_2 vom Eis absorbiert. Bei Stripping mit trockener Luft wurde dieser Anteil je nach Strippingdauer auf bis zu 26 % wieder reduziert. Der Prozeß läuft ähnlich einer Langmuir-Desorptionskurve. Bei Zugabe von Dampf zur Strippingluft zeigte sich kein wesentlicher Unterschied, woraus zu schließen ist, daß der Dampf sehr schnell am Eis kondensiert. Für CH_3J ist der Absorptionswert sehr niedrig und die Stripping-Wirk-

samkeit sehr gering. Eiswürfel aus einer Lösung von 0,3 % Bor-Natriumtetrabor reduzieren die Strippingwirksamkeit. Von der vorher absorbierten Gasmenge wird jetzt nur noch ein Drittel durch Stripping desorbiert.

Im Gegensatz zu der Vielzahl von Experimenten zur Klärung verschiedener Einzelprozesse bei dem Verhalten von Gasen in einer Dampf- und Sprühmittelatmosphäre sind in der Literatur nur wenige Experimente beschrieben, die sich mit Aerosolen unter ähnlichen Bedingungen befassen. Da Partikeln eine viel geringere Beweglichkeit als Moleküle besitzen, ist ihr Transport in einem Containment maßgeblich von den Strömungsverhältnissen abhängig. Diese wurden von Parsly et al. [120] an einem Modell untersucht. Zu diesem Zweck wurde das NSPP Containment durch einen Pyrex-Zylinder von 14 cm Durchmesser modelliert. Er wurde bis zu einer Höhe von 20 cm mit Wasser gefüllt. Um konstante Außentemperatur zu erzeugen, wurde der Zylinder in ein Wasserbad bei konstanter Temperatur gesetzt. Eine Wärmequelle am Boden des Zylinders erlaubte Erzeugung von freier Konvektion. Die zu untersuchende Strömung konnte durch Spuren eines Farbstoffes (India ink) sichtbar gemacht werden. Die Strömungsgeschwindigkeit war so optisch meßbar. Bei einer Außentemperatur von 27°C und einer Temperaturerhöhung des Bodens um 1/2°C zeigte das Geschwindigkeitsprofil angenähert eine Gaußverteilung mit leichter Turbulenz im oberen Drittel des Zylinders. Unabhängig von der Höhe betrug die Höchstgeschwindigkeit in den inneren 74 % des Zylinders 2 cm/sec. Die Sinkgeschwindigkeiten im Äußeren des Zylinders waren so klein, daß sie meßtechnisch nicht mehr erfaßt werden konnten.

Bei Untersuchungen des Einflusses der Luftfeuchte auf das Verhalten von Aerosolen fanden Yuill und Adams [121], daß hohe relative Feuchte die Größe von Uran- und Edelstahloxid-Aerosolen um mindestens eine Größenordnung reduziert. Die Messungen an den Aerosolen, die durch einen Thermalpräzipitator abgeschieden waren, wurden mit einem Elektronenmikroskop ausgeführt. Yuill und Adams erklären sich dieses Ergebnis dadurch, daß möglicherweise Wasser an den Partikeln adsorbiert, deren Oberflächenspannung verändert und ein Zusammenschrumpfen der Ketten herbeiführt.

Andererseits kamen Adams et al. [122] zu dem Ergebnis, daß Aerosole in einer Dampfatmosfera wachsen. Hierzu wurden kontinuierlich in einem Lichtbogen erzeugte Aerosole mit einem Durchfluß von 8 Liter/min zusammen mit 3 g/min Wasserdampf durch einen zylindrischen Glaskondensator von 10 cm Durchmesser gepumpt. Das vom Kondensator entweichende Aerosol wurde mittels eines Kondensationskernzählers und

eines Streulichtphotometers (Royco) auf Größenverteilung und Konzentration untersucht. Die Ergebnisse zeigen eine Verschiebung des Größenverteilungsmaximums zu größeren Teilchen.

Goldsmith und Stinchcombe [123] und Goldsmith und May [81] untersuchten die gleichzeitige Wirkung von Thermophorese und Diffusiophorese an Aerosolpartikeln. Sie verwendeten hierzu eine Kammer, in der an zwei sich gegenüberstehenden Wänden NaCl-Lösung von unterschiedlicher Konzentration und Temperatur angebracht war. Hierdurch entstanden gleichzeitige Temperatur- und Konzentrationsgradienten. Die Experimente ergaben, daß die thermophoretische und die diffusiophoretische Abscheidegeschwindigkeit sich addieren, solange der Temperaturgradient unter einem kritischen Wert liegt. Liegt er darüber, so zeigte sich eine Abscheidegeschwindigkeit, die das Vielfache der einzelnen ist. Da die Abscheidungs geschwindigkeit proportional der Kondensationsrate ist, schließen Goldsmith und Stinchcombe, daß die nicht lineare Erhöhung mit Verstärkung der Sedimentation durch Kondensation erklärt werden kann.

Truitt und Davis [95] beschreiben ein Laborexperiment, in dem sie die relative Wirksamkeit von Diffusiophorese und Thermophorese bei gleichzeitiger Wasserkondensation an 0,2 bis 2 μ Teilchen untersuchen. Sie benutzen einen vertikalen Glaszylinder von 10 cm Durchmesser, an dessen unterem Ende drei Flansche zur Zufuhr von Aerosolen, Aerosolverdünnungsluft und Dampf angebracht sind. Erzeugt wird ein laminarer, gut vermischter Strom von 8 l/min und 0 - 10 g/min Wasserdampf. Eine Heizung am unteren Ende verhindert Kondensation vor Beginn der laminaren Strömung. Am oberen Ende wird durch Wasserkühlung der Zylinderwand der Wasserdampf herauskondensiert, so daß die Dampfzufuhr rate gleich der Kondensationsrate ist. Aerosole werden kontinuierlich durch Lichtbogen an verschiedenen Metallen erzeugt. Die Vorstellung ist nun diese, daß die Abscheidung von Partikeln an der Wand entweder durch Thermophorese oder durch Diffusiophorese stattfindet. Findet Kondensation hauptsächlich an der Wand statt, dann überwiegt die Diffusiophorese. Findet Kondensation hauptsächlich an den Partikeln statt, dann nehmen diese die latente Wärme des Dampfes auf und es findet ein Wärmefluß zu der Wand und infolgedessen thermophoretische Abscheidung statt.

Durch eine Teilchenbilanz unter den drei Voraussetzungen, daß entweder nur Kondensation an der Wand oder nur gleichmäßige Kondensation an allen Partikeln oder

aber Kondensation an wenigen Partikeln, die daraufhin herausfallen, stattfindet, rechnen die Autoren den Aerosolabscheidegrad als Funktion der Kondensationsrate aus und vergleichen das Resultat mit Ergebnissen der Experimente. Messungen der Teilchengrößenverteilung zeigen eine deutliche Verschiebung zu größeren Teilchen als Funktion der Kondensationsrate. Gleichermaßen nimmt die Teilchenkonzentration mit der Kondensationsrate ab. Über diese Abnahme konnte aber keine eindeutige Aussage gemacht werden. Nach Rechnungen spielt Thermophorese eine größere Rolle als Diffusiophorese, und bei hochkonzentrierten, kleinen Edelstahlpartikeln konnte Thermophorese die Abnahme gut erklären. Bei größeren Eisenoxidaerosolen war die gemessene Abnahme wesentlich größer als durch Thermophorese allein erklärt werden kann.

Die Abscheidung von Partikeln durch Impaktion an Wänden aus turbulenten Strömungen ist ein Prozeß, über dessen Wirksamkeit in Reaktorcontainments wenig bekannt ist. Dabei ist aber aus der Behandlung der Entstehung der Nachunfallatmosphäre in den Abschnitten 3. und 4.1. zu erkennen, daß mindestens in der ersten Phase dieser Entstehung erhebliche Turbulenzen auftreten können. Andererseits ist die Impaktionsabscheidung in sehr dünnen Rohren ausgiebig untersucht worden (siehe z.B. Fitzpatrick [124], der auch eine Reihe von Literaturzitate [125,126,127] angibt). Inwieweit die hier gefundenen Ergebnisse auf Reaktorcontainments übertragbar sind, ist aber offen.

4.3. Experimentelle Ergebnisse zum integralen Abbau von Schadstoffsystemen in LWR-Containments

Große integrale Experimente zum Abbau von nuklearen Schadstoffen, insbesondere Spaltprodukten, wurden hauptsächlich im Rahmen des CSE-Programms im Battelle Pacific Northwest Laboratory (BNWL) durchgeführt. Daneben wurden im NSPP-Programm im ORNL Experimente zum Schadstoffabbau vornehmlich von Sprühsystemen durchgeführt.

Bezüglich des Verhaltens von nuklearen Schadstoffen in der Nachunfall-Atmosphäre eines LWR-Containments wurden im CSE-Programm vor allem folgende Fragen untersucht:

- Einfluß der natürlichen Prozesse von Agglomeration, Ablagerung und Kondensation von Wasserdampf auf den Schadstoffabbau im LWR-Containment.

- Wirksamkeit von aktiven und passiven Sicherheitseinrichtungen (engineered safeguards) für den Schadstoffabbau im LWR-Containment.
- Zusammenhang von Leckraten-Tests von Containments und der Freisetzung von Spaltprodukten unter Unfallbedingungen.

Die ursprünglich im CSE-Programm zusätzlich vorgesehenen kombinierten System-Experimente, die Kühlmittelverlust (blow down), Spaltprodukt-Verhalten und Leckage aus dem Containment-Behälter zusammenfassend untersuchen sollten, wurden nicht mehr durchgeführt, da das CSE-Programm nach rund 6 Jahren Laufzeit 1970 auslief. In diesem letzten Teil der Experimente sollten folgende Vorgänge simuliert werden

- Plötzlicher Druckverlust im Dampfsystem
- Ejektion eines Wasser-Dampf-Gemisches bei hoher Temperatur
- Simulation der Nachzerfallswärme im Reaktorkern
- Chemische Reaktionen im Reaktorkern und Spaltproduktfreisetzung aus dem Brennstoff, simuliert durch Injektion von Aerosolen
- Verhalten der freigesetzten Aerosole (Wechselwirkung mit Gasen und Wasserdampf, Ablagerung usw.)
- Druck, Temperatur und mechanische Belastung des Containment-Systems.

Die Ergebnisse sollten mit mathematischen Modellen verglichen werden, um auf andere Containment-Systeme und Unfallabläufe extrapolieren zu können.

Da dieser letzte Teil des CSE-Programms nicht mehr zur Durchführung kam, stehen als Ergebnisse der Versuche [128] Antworten auf bestimmte Einzelfragen des Schadstoffabbaus im Vordergrund, die im folgenden zusammengefaßt beschrieben werden sollen.

- 1) Die durchgeführten Leckraten-Tests zeigten, daß Leckraten unter 0,1 %/Tag nicht sicher nachweisbar sind. Die gegenwärtig verwendeten Methoden, die sich auf Luft-Leckage beziehen, können Luft-Wasser-Dampf-Leckraten nicht erfassen.
- 2) Bei der Leckage des Schadstoffsystems tritt zusätzlich eine beträchtliche Reduktion der nuklearen Schadstoffe im luftgetragenen Zustand (Gase und Aerosole, speziell Jod) auf, da auf dem Leckage-Weg eine Abscheidung durch

Kondensation und Ablagerung wirksam ist.

- 3) Die Abscheidung von anorganischem Jod durch natürliche Konvektion wurde durch ein einfaches Modell (s. Abschnitt 4.4.) beschrieben, das auf dem Massentransport durch natürliche Konvektion beruht. Die Experimente ergaben, daß die Abbaurate konstant war bis zur Abnahme auf 1 % der Anfangskonzentration. Die Abnahme von anorganischem Jod im CSE-Containment hat einen typischen Verlauf, wie er in Abb. 2 dargestellt ist. Die bei diesem Versuch vorgenommene Dampf-Injektion wurde 2 Minuten nach der Jod-Injektion beendet. Die Anfangshalbwertszeit der anorganischen Jod-Konzentration betrug für die ersten 2 Stunden etwa 21 Minuten. Für die nächsten 20 Stunden betrug die Halbwertszeit 5,2 Stunden. Andere Tests zeigten, daß eine weitere Dampf-Zugabe den starken Abfall am Anfang verlängerte, so daß der langsamere Abbau erst bei niedrigeren Konzentrationen einsetzte. Unter der Annahme, daß das oben genannte Modell (Abscheidung durch natürliche Konvektion) richtig ist, kann für ein typisches großes Druckwasser-Reaktor-Containment ein Reduktionsfaktor von 2,6 für die 2-Stunden-Umgebungs-dosis als Folge der Freisetzung von anorganischem Jod angegeben werden. Methyl-Jodid wurde wesentlich langsamer abgeschieden. Hier ergab sich ein Gesamtdeskontaminationsfaktor von 1,7 nach einem Tag.

- 4) Von der Abscheidung von Cäsium und Uran in Aerosolform wird angenommen, daß sie im wesentlichen durch Sedimentation erfolgt. Dies wurde aus Massenbilanzen gefolgert (Verhältnis der abgeschiedenen Mengen am Boden zu der an den Wänden). Ein typischer Verlauf der Cäsium-Konzentration im CSE-Containment zeigt Abb. 3 mit Anfangs-Halbwertszeiten für die Konzentration von etwa 30 Minuten. Aus der Konzentrationsabnahme kann unter der Annahme, daß nur Sedimentation vorliegt, mit Hilfe des Stokes'schen Gesetzes ein mittlerer aerodynamischer Aerosolpartikel-Durchmesser berechnet werden. Dabei ergab sich der bekannte Effekt, daß die anfangs sehr kleinen Teilchen (Kondensationsaerosole) wachsen, was wegen der Koagulation und der Kondensation von Wasserdampf zu erwarten ist. Überraschend ist der Befund, daß später der Teilchendurchmesser wieder abnimmt, ein Effekt, der darauf schließen läßt, daß die Annahme einer Schwerkraft-Abscheidung (Sedimentation) allein eine zu einfache Modellvorstellung ist. Die längerfristige Halbwertszeit (20 Stunden-Bereich) lag bei etwa 100 Minuten. Das Teilchenwachstum wurde als wesentlicher Abscheidefaktor ein-

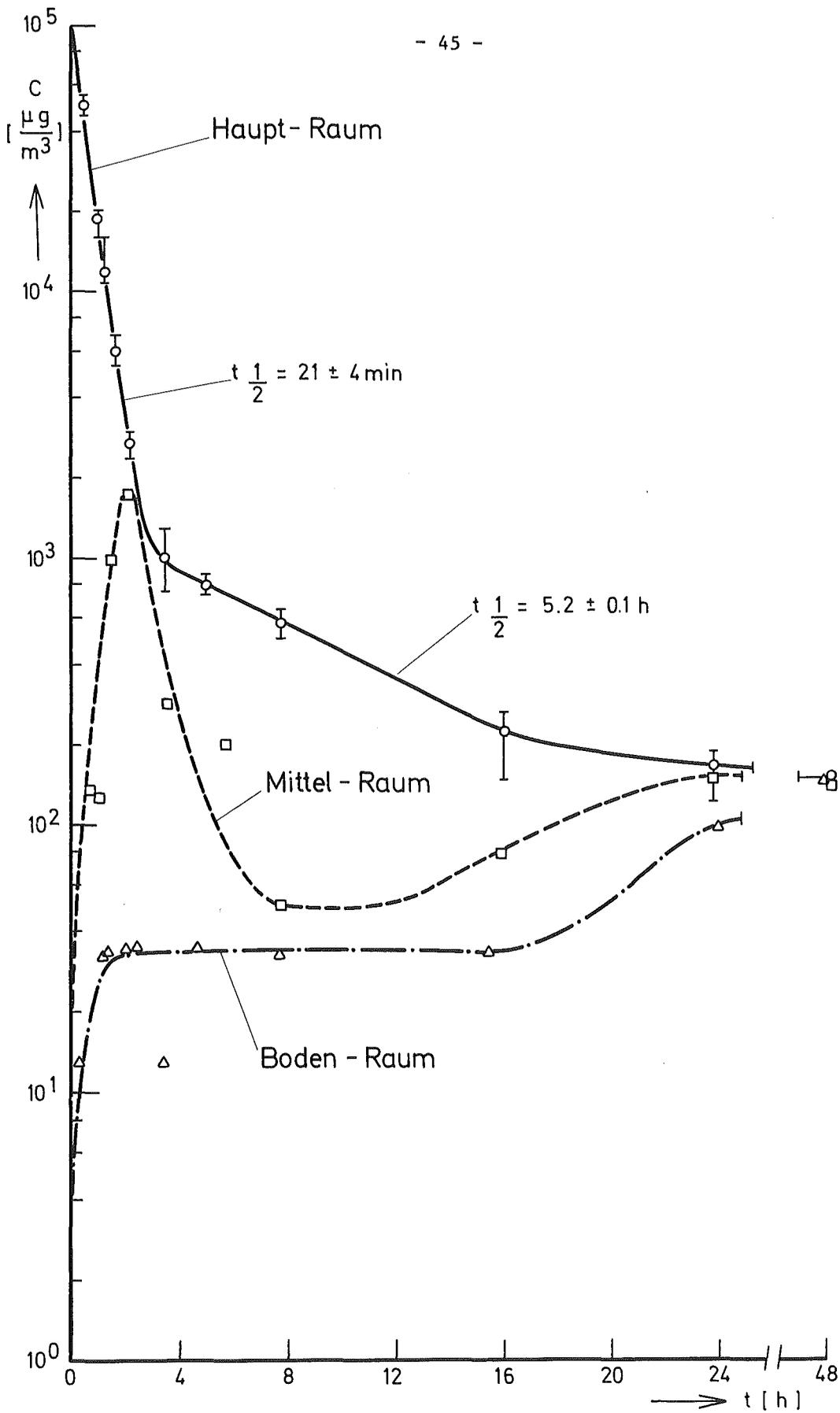


Abb.2 Konzentration C des gesamten anorganischen Jods in einem typischen CSE - Experiment

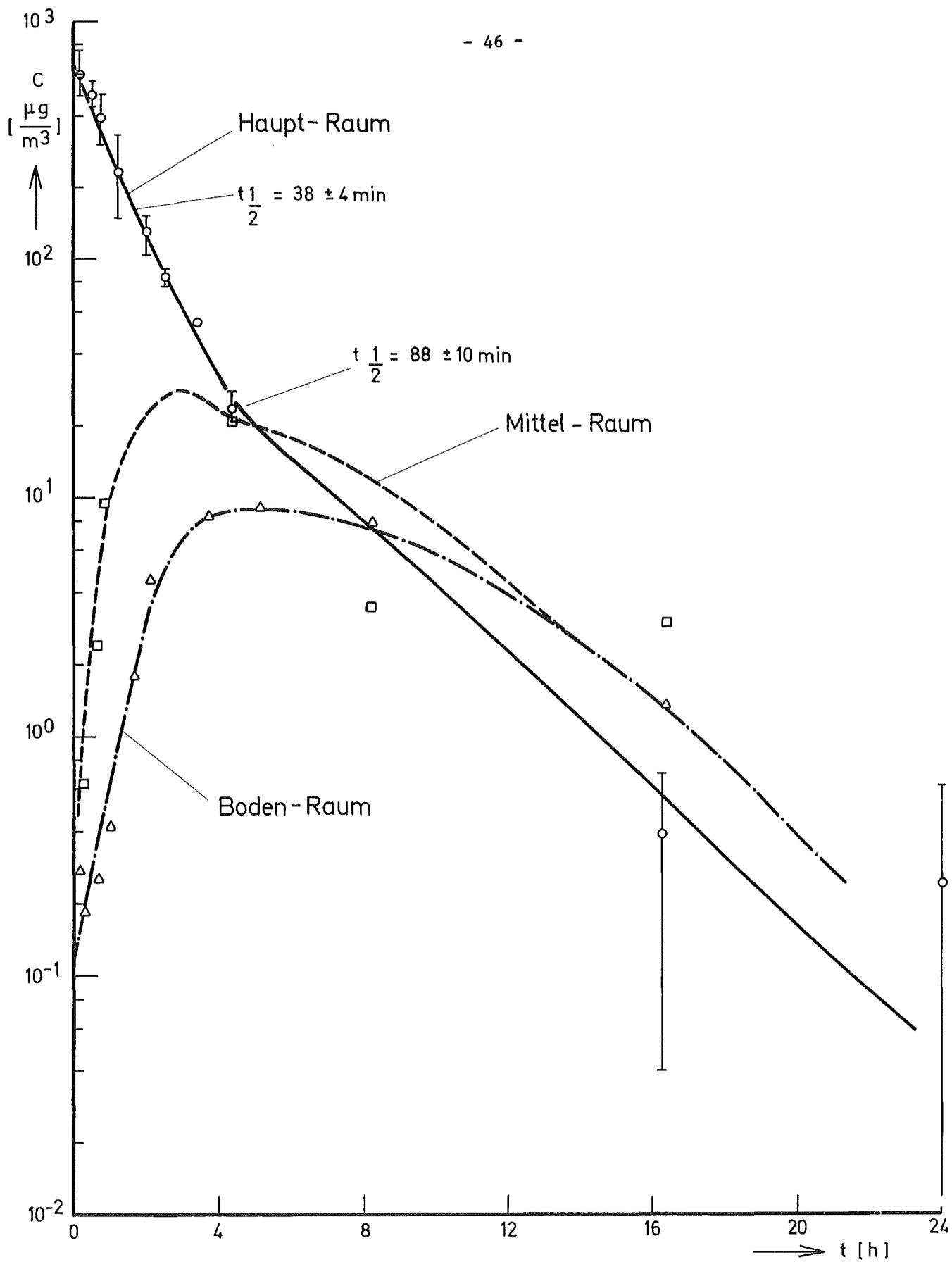


Abb. 3 Caesium - Konzentration C in einem typischen CSE - Experiment

geordnet. Die 2-Stunden-Umgebungs-dosis als Folge aller aerosolförmigen nuklearen Schadstoffe wurde für ein typisches großes Druckwasserreaktor-Containment aufgrund dieser Ergebnisse abgeschätzt. Der Reduktionsfaktor durch die betrachtete natürliche Abscheidung betrug 1,5 für die 2-Stunden-Umgebungs-dosis und etwa 3 für die 1-Tag-Umgebungs-dosis.

- 5) Die Durchmischung der luftgetragenen Stoffe innerhalb des Containments nach einem Unfall dürfte für alle Spaltprodukte im Hinblick auf die experimentellen Ergebnisse als gleichmäßig anzunehmen sein, sofern einzelne Zellen innerhalb des Containments betrachtet werden. Größere Konzentrationsunterschiede zwischen verschiedenen Zellen können jedoch über mehrere Stunden aufrecht erhalten bleiben, sofern keine Zwangskonvektion vorliegt.
- 6) Die Abscheidung von Spaltprodukten durch Sprühsysteme hängt vom Durchfluß des Sprühmittels (Ejektionsrate) und von der Wirksamkeit ab, mit der jeder einzelne Tropfen die luftgetragenen Stoffe einfängt. Die Einfangwirksamkeit des Tropfens hängt ihrerseits von der Tropfengröße, von der Löslichkeit des Gases, von der Frage, wie weit entfernt die Sättigungsbedingungen sind sowie von physikalischen Eigenschaften der Gasphase ab. Für Aerosole ist die Partikelgröße der wichtigste Faktor für die Abscheidung durch Sprühmittel.

Die im CSE-Programm durchgeführten Experimente bezogen sich in erster Linie auf elementares Jod. Es wurde ein mathematisches Modell entwickelt, das als begrenzende Größe für den Massentransport Gas-Tropfen den Gasfilm annimmt, der den Tropfen umgibt. Jod dürfte in nichtflüchtiger Form im Wassertropfen enthalten sein, so daß eine Rückemission in die Containment-Atmosphäre nicht angenommen werden muß, auch wenn das Sprühwasser 20 Stunden bei 110°C re-zirkuliert wird. Die Anfangshalbwertszeiten der Konzentration für elementares Jod lagen zwischen 0,6 bis 2,0 Minuten. Für längerfristigen Sprühbetrieb zeigte sich eine Abnahme der Abscheidewirkung bis zu der Grenze einer quasi-stationären Rest-Konzentration im Bereich von 0,3 mg/m³. Der Reduktionsfaktor für die 2-Stunden-Umgebungs-dosis als Folge der Freisetzung von elementarem Jod für ein großes DWR-Containment betrug etwa 50 für Sprühmittel, die mit Boraten ange-reichert sind. Für die Abscheidung von Methyl-Jodid wurden Sprühmittel mit Borat und Thiosulfat eingesetzt. Es wurde gefunden, daß die Abscheidung von der Temperatur abhängt. Der Sprühmittel-Film an den Wänden scheint im Hinblick auf die Abscheidung von Methyl-Jodid wirksamer zu sein als die Tropfen des Sprüh-

systems. Mit Borat-Lösungen betrug die Halbwertszeit der Konzentrationsabnahme von Methyl-Jodid etwa 12 Stunden, während sie mit Thiosulfat-Lösungen bei etwa 1 - 2 Stunden lag. Der Reduktionsfaktor für die 2-Stunden-Umgebungs-dosis als Folge der Freisetzung von Methyljodid errechnet sich daraus zu 1,5 für ein großes DWR-Containment. Bei allen Versuchen lag der mittlere Massendurchmesser der Tropfen bei $1200 \mu\text{m} = 0,12 \text{ cm}$.

- 7) Die Abscheidung von Aerosolen durch Sprühsysteme in DWR-Containments wird zufolge der CSE-Experimente deutlich verstärkt. Dies wird qualitativ erklärt durch die Koagulation und die Wasserdampfkondensation, die zu relativ großen Partikeln führen. Typische Halbwertszeiten für anfängliche Cäsium-Konzentrationen von etwa $10^3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ lagen unter 10 Minuten. Eine Zuordnung zwischen der die Abscheidung bestimmenden Partikelgröße und den beobachteten Effekten war nur zum Teil möglich. Unter Verwendung pessimistischer Modellparameter wurde ein Reduktionsfaktor für die 2-Stunden-Umgebungs-dosis von 12,2 - bezogen auf ein großes DWR-Containment - abgeschätzt.

- 8) Einige wenige Experimente im CSE-Programm befaßten sich mit dem Abbau luftgetragener Schadstoffe durch Umluftfilter. Die wesentlichen Ergebnisse sind in Abb. 4 dargestellt. Alle Arten von Jod werden durch eine Umluftfilteranlage, bestehend aus Schwebstoff- und Gassorptions-Filtern gut abgeschieden. Der Konzentrationsverlauf kann gut durch den Zusammenhang $C = C_0 \exp(-F\eta t/V)$ dargestellt werden, wobei F die Durchflußrate, η der Filter-Abscheidegrad und V das Volumen des Containments ist. Nach längerer Zeit stellt sich eine Restkonzentration ein, die nicht mehr vermindert wird. Vermutlich beruht dieser Effekt auf der Desorption von Schadstoffen aus Lachen und Oberflächen im Containment-Behälter. In Abb. 4 ist ein Versuch dargestellt, bei dem ein zweites Mal Methyljodid in das Containment injiziert wurde, um den Einfluß der Wasserbeladung der Gassorptionsfilter (Aktivkohlefilter) zu untersuchen. Es ergab sich, daß der Gassorptionsfilter nicht sehr in seiner Wirkung beeinträchtigt wurde, was auf den Einfluß der Adsorptionswärme zurückgeführt wird. Erst nach längerem Betrieb war das Adsorberbett mit Wasser gesättigt, so daß die Lufttemperatur beim Durchgang durch das Adsorberbett nicht mehr geändert wurde. Für sehr lange Zeiten nach Beginn des Umluftbetriebes, wenn die Konzentrationen sehr niedrig geworden sind, wird die Abscheidung durch restliche Quellen (Desorption) und Sättigungsvorgänge begrenzt.

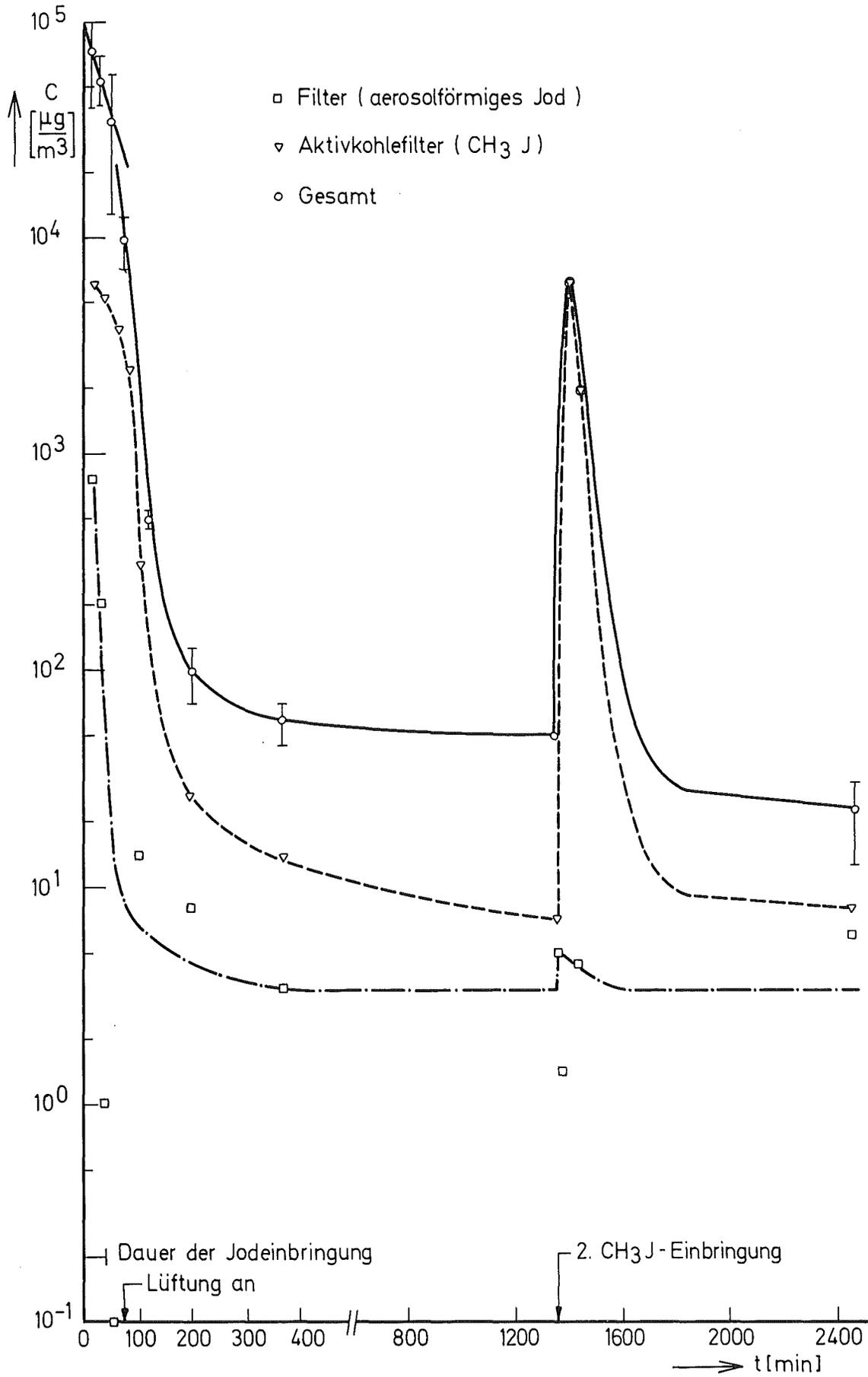


Abb.4 Jodkonzentration bei Umluftfilterbetrieb im CSE -Containment

In der NSPP-Anlage im ORNL wurden eine Reihe von Versuchen durchgeführt, die die Untersuchung des Verhaltens von Spaltprodukten in einem LWR-Containment zum Ziele hatten. Im Gegensatz zum CSE-Programm, wo hauptsächlich mit simulierten Spaltprodukten und Aerosolen gearbeitet wurde, wurden bei den integralen Tests im NSPP-Programm nach Vorversuchen mit inaktivem Material, das mit Spuren von J-131 bzw. anderen Isotopen versetzt war, auch abgebrannte UO_2 -Stäbe eingesetzt und durch einen Plasma-Brenner zum Schmelzen gebracht. Die wesentlichen Ergebnisse dieser Versuche in der NSPP-Anlage, soweit sie sich auf den natürlichen Abbau der nuklearen Schadstoffe ohne Wasserdampf beziehen, können folgendermaßen zusammengefaßt werden [129,130,131,132,133] :

- 1) Die Anfangshalbwertszeit des Abbaus von J-131 in Luft (ohne Zugabe von Wasserdampf) lag bei etwa 0,6 h für die ersten beiden Stunden nach Freisetzung, während sie in den folgenden 20 Stunden bei 10 h und darüber lag.
- 2) Das als J_2 freigesetzte Jod bildet während seines Aufenthaltes im Containment-Behälter eine nicht durch Schwebstofffilter abscheidbare Verbindung, die wahrscheinlich Methyl-Jodid (CH_3J) oder eine ähnliche organische Jod-Verbindung ist.
- 3) Einige wenige Versuche in Luft mit bestrahltem UO_2 -Brennstoff (20 000 MWd/t) zeigten für den zeitlichen Verlauf der J-131-Konzentration kein qualitativ verschiedenes Verhalten. Auch hier wurde ein rascher Abfall der Anfangs-Jod-Konzentration auf 1 - 2 % der ursprünglich freigesetzten Menge beobachtet. Die Freisetzungsraten für J-131 lagen bei 2 % des Inventars. Die langfristige Halbwertszeit über die ersten 10 Stunden lag bei 4 Stunden.
- 4) Die Anfangshalbwertszeit von inaktiven, durch einen Plasma-Brenner erzeugten Uran-Aerosolen zeigte kein einheitliches Bild. Nach anfänglichem starken Abfall der Aerosolkonzentration, die auf Koagulation zurückzuführen ist, folgte bei den meisten Experimenten ein exponentiell abfallender Teil, dessen Halbwertszeit zwischen 2 und 15 Stunden schwankte.
- 5) In den Versuchen mit bestrahltem UO_2 zeigten Messungen des Abfalls der Konzentrationen von Cs 137, BA 140 und CE144 ebenfalls (wie unter Punkt 4.) einen verstärkten Abfall in den ersten 2 Stunden, um dann in einen praktisch exponentiellen Abfall überzugehen. Dieser längerfristige Abfall hatte Halbwertszeiten zwischen 5 und 12 Stunden.

Eine weitere Reihe von Experimenten in der NSPP-Anlage bezog sich auf Versuche in Wasserdampf-Atmosphäre, wobei UO_2 mit Spaltprodukt-Simulantien und bestrahltes UO_2 (20 000 MWd/t) zum Schmelzen gebracht wurden. Mit Hilfe eines Plasma-Brenners wurde die Probe jeweils über mehrere Minuten erhitzt, wobei meist nur ein Teil geschmolzen wurde. Die freigesetzten Spaltprodukte wurden in den Modell-Containment-Behälter geblasen, wobei die Behälteratmosphäre aus einem Dampf-Luft-Gemisch von etwa $110^{\circ}C$ und 1,7 at bestand. Die Abnahme der nuklearen Schadstoffe wurde über 1 bis 2 Tage verfolgt. Die wesentlichen Ergebnisse sind [130,131,133]

- 1) Die luftgetragene Konzentration von Jod nahm in den ersten 48 Stunden um die Faktoren 5 bis 15 ab, je nach dem Ort der Messung innerhalb der Anlage. Anfangskonzentrationen lagen im Bereich um 2,5 bis $10 \mu Ci/m^3$. Als Abscheideeffekt wurde vornehmlich die Wandablagerung im Oberflächenfilm des Wasserdampfkondensats identifiziert.
- 2) Die Anfangskonzentration nahm zunächst rasch innerhalb von Minuten ab (Halbwertszeit etwa 0,25 Stunden), um dann langsamer abzunehmen (Halbwertszeit etwa 5 bis 10 Stunden).
- 3) Die Abscheidung von $CS134$ erfolgte mit einer Halbwertszeit von etwa 0,7 Stunden.
- 4) Ein Umluftfilter-Kreislauf mit Tropfenabscheider, Schwebstofffilter und Aktivkohlefilter zeigte gute Abscheidewirksamkeit. Der Kreislauf wurde mit einer Durchflußrate betrieben, die einem einmaligen Luftwechsel pro Stunde entsprach. Dabei ergab sich eine Halbwertszeit von etwa 0,5 Stunden für Jod und Cäsium, was auf vollständige Vermischung der Spaltprodukte im Containment schließen läßt. Auch bei Betrieb mit hohem Dampfgehalt im Containment zeigte der Umluftfilterkreislauf gute Abscheidewirksamkeit.
- 5) Die chemische Form und die Freisetzung der Spaltprodukte wurde deutlich davon beeinflußt, ob oxidierende oder reduzierende Bedingungen vorlagen. In Gegenwart von Zirkaloy ist damit zu rechnen, daß die Jodfreisetzung langsamer vor sich geht und daß die gebildete Jodverbindung rasch abgeschieden wird.
- 6) Die in einigen Versuchen erfolgte rasche Abscheidung von gasförmigen und

aerosolförmigen Spaltprodukten kann auf turbulente Abscheidung ($Re > 10^4$) zurückgeführt werden.

- 7) In einigen Versuchen zeigte sich, daß die untersuchten Spaltprodukte überwiegend aerosolförmig vorlagen. Unter der Annahme von Schwerkraftabscheidung (Sedimentation) wurde ein Partikel-Durchmesser von 3μ postuliert.
- 8) Wesentliche Unterschiede im Verhalten der Spaltprodukte aus abgebranntem Brennstoff und aus mit Simulantien versetztem Brennstoff wurden nicht gefunden.

In der NSPP-Anlage wurden darüber hinaus auch Experimente mit Sprühsystemen zur Abscheidung von Jod und Aerosolen durchgeführt. Dabei zeigte sich, daß die Jod-Abscheidung deutlich von der Zusammensetzung des Sprühmittels abhängt. Nach [134] wurden unter den Sprühbedingungen der Anlage fünf verschiedene Düsen verwendet, deren Tröpfchenspektrum allerdings nicht gemessen wurde. Die wesentlichen Versuchsbedingungen sind in Tabelle 12 angegeben. Es ergaben sich durchweg Anfangshalbwertszeiten von 0,3 bis 1 Minute für die ersten 2 Minuten. Dem folgte ein langsamer abfallender Konzentrationsbereich für J_2 von etwa 1 Stunde. Danach stellte sich eine praktisch stationäre J_2 -Konzentration im NSPP-Containment ein, die bei 3 mg/m^3 lag und auf die Rezirkulation der Sprühlösung mit ihren Bestandteilen an Jod zurückgeführt wird. Die Dekontaminationsfaktoren für Jod wurden auf etwa 1000 für Borax-Thiosulfat-Lösungen, auf 100 für Borax-Lösungen und auf 25 für Borsäure-Lösungen abgeschätzt.

Die Versuche zur Abscheidung von Methyl-Jodid zeigten deutlich eine verbesserte Abscheidung mit Natrium-Thiosulfat-Lösung. Die wesentlichen Versuchsbedingungen zeigt Tabelle 13. Danach lagen die Anfangshalbwertszeiten für CH_3I zwischen 20 und 180 Minuten und die mittlere Halbwertszeit zwischen 50 und 250 Minuten (mit einer Ausnahme von 1000 Minuten). Der Reduktionsfaktor für die 2-Stunden-Umgebungs-dosis von Methyl-Jodid wurde zu etwa 1,1 abgeschätzt. Durch Optimierung des Sprühsystems und des Sprühmittels wird eine weitere Verbesserung der Abscheidung für möglich gehalten.

In [135] wurde über Experimente zur Abscheidung von Jod in einem kleineren zylindrischen Gefäß (1,5 m Durchmesser und 3 m Höhe) berichtet. Die Versuche be-

Gruppe 1 : Borax-Lösungen

Versuchs-Nummer	27	28	30	31	32
Sprühlösungsbedingungen					
pH	7	9,4	9,1	9,1	9,0
Temperatur °C	30	120	30	30	30
Sprühdüse	1713 ^a	1713	1713	1713	1713
Mittlerer Massendurchmesser μ	1800	1750	1080	1100	1630
Durchfluß l/min	37,5	38,2	58,7	58,3	39,0
Containmentbedingungen					
Anfangstemperatur °C	130	130	130	30	130
Anfangsdruck atü	3,1	3,1	3,1	0,2	3,1
Experimentelle Ergebnisse					
Anfangshalbwertszeit sec	48	48	24	38	41
Gemittelter Dekontaminationsfaktor	1620	1240	2470	3950	3320
Halbwertszeit sec (aus dem Dekontaminationsfaktor berechnet)	34	35	32	30	31

Gruppe 2 : Natrium-Thiosulfat-Lösungen

Versuchsnummer	21	22	26	33	38	42	45	50	51
Sprühlösungsbedingungen									
pH	7	9,3	9,1	9,1	9,3	9,3	9,3	9,3	9,2
Temperatur °C	30	30	30	30	100	30	30	120	120
Sprühdüse	J-140D ^b	J-140D	1713 ^c	1713	7G3 ^d	7G3	7G3	7G3 ^e	N5-303 ^f
Mittlerer Massendurchmesser μ	200	200	1660	1550	1290	1290	1290	1290	-
Durchfluß ltr/min	2,2	2,0	39,0	40,1	41,6	41,6	41,6	55,6	60,2
Containmentbedingungen									
Anfangstemperatur °C	30	30	130	130	70	130	30	130	130
Anfangsdruck atü	0,2	0,2	3,1	3,1	0,7	3,1	0,3	3,1	3,1
Experimentelle Ergebnisse									
Anfangshalbwertszeiten	37	38	31	21	11	12	14	14	35
Gemittelter Dekontaminationsfaktor	-	6500	2730	2040	416	10000	3600	28000	39000
Halbwertszeit sec (aus dem Dekontaminationsfaktor berechnet)	-	38	32	33	60	27	30	26	22

Düsenspezifikationen:

- a : eine Sprühdüse Firmentyp 317
- b : zwölf Sprüh-Mischdüsen Firmentyp J-140 D
- c : eine Hohlkegel-Sprühdüse Firmentyp 1713
- d : drei Sprühsysteme Firmentyp 7G3 (Anordnung von sieben G-3 Vollkegel-Düsen)
- e : vier 7G3-Anordnungen
- f : eine Bete-Fog-Düse, Firmentyp N-5-303

Tabelle 12 : Experimentelle Ergebnisse zur Jodabscheidung in Nuclear Safety Pilot Plant (NSPP)

Versuchsnummer	36	35	36	43	44	46	47	48	49	53	54	58	65	66	69
Zahl der Düsen	1	1	1	3	3	3	3	3	3	3	3	3	6	6	12
Düsentyp	1713 a	1713	1713	7G3 b	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	7G3	A-8 c	A-8	A-8
Zusammensetzung der Sprühlösung															
0,28 m H ₃ BO ₃	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
0,17 m NaOH	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
0,063 m Na ₂ S ₂ O ₃	x	x	x	x	x	x	x	x	x		x	x	x	x	x
Anfangsdruck atü	0,2	3,2	3,2	0,2	3,2	3,2	3,2	3,2	0,3	3,2	3,2	3,2	3,2	3,2	3,2
Anfangstemperatur °C (Kessel)	30	130	130	30	130	130	130	130	30	130	130	130	130	130	130
Durchfluß ltr/min	57	45	45	42	42	42	42	42	42	42	42	42	27	27	54
Sprühdauer min	158	120	180	180	180	180	180	180	180	180	180	180	180	180	171
Temperatur der Sprühlösung °C	30	120	120	30	120	120	120	120	30	120	120	120	120	120	120
Ergebnisse:															
Halbwertszeit min	78	17	25	-	35	45	42	180	-	-	-	44	44	54	34
Gemittelter Dekontaminationsfaktor	2,78	3,77	4,25	1,03	10,4	8,95	7,61	1,13	2,00	1,61	110	13,0	13,1	14,8	97,4
Mittlere Halb- wertszeit min	107	63	106	-	53	57	61	1004	180	260	27	49	48	46	26

Düsenspezifikationen:

a : Hohlkegeldüse Firmentyp 1713, 1 cm Öffnungsdurchmesser

b : Sprühsystem Firmentyp 7G3, Anordnung von sieben Vollkegeldüsen, 0,16 cm Öffnungsdurchmesser

c : Sprühsystem Firmentyp A-8 Whirljet, Hohlkegeldüse, 0,4 cm Öffnungsdurchmesser

Tabelle 13 : Experimentelle Ergebnisse zur Methyljodidabscheidung
in Nuclear Safety Pilot Plant (NSPP)

zogen sich auf die Wirksamkeit von Sprühsystemen. Es wurden einige Ergebnisse erzielt, die die CSE- und NSPP-Ergebnisse ergänzen. So wurde gefunden, daß der Sprühmitteldurchsatz, die Sprühmittel-Temperatur, die Luftfeuchte und die Anfangskonzentration im Behälter das Abscheideverhalten deutlich beeinflussen. Die Abscheidung durch eine reaktive Sprühlösung war sehr viel stärker als durch Leitungswasser.

Die Versuche zur Abscheidung von UO_2 und Cs_2CO_3 als Aerosol konnten noch keine klare Aussage zum Verhalten der Konzentration mit der Zeit erbringen. Beobachtet wurden nach Sprühbeginn ein rascher Abfall, der dann, solange gesprüht wird, in einen gemäßigten Abfall übergeht. Eine Zuordnung der Konzentrations-Zeitfunktion zu Aerosolprozessen oder tropfenphysikalischen Vorgängen, um eine Extrapolation auf größere Containments zu ermöglichen, konnte für die NSPP-Experimente noch nicht erzielt werden.

Integrale Experimente zum Abbau von Aerosolen in Modell-Containments ohne Wasserdampf wurden ferner im Kernforschungszentrum Karlsruhe (TUNA-Programm), im Reactor Centrum Nederland und bei Atomic International durchgeführt [136,137,138]. Die Versuche bezogen sich auf die Abscheidung von inerten Aerosolen in Luft oder Stickstoff, wobei im Hinblick auf die Situation in SNR-Containments kein Wasserdampf (außer Restfeuchte) anwesend war. Es konnte gezeigt werden, daß die Aerosolabscheidung im wesentlichen durch die Prozesse Koagulation, Sedimentation, Thermophorese und Diffusion bewirkt wird. Die im Rahmen des TUNA-Programms entwickelte Modelltheorie (PARDISEKO) wurde an verschiedenen Experimenten getestet [139]. Es ergab sich, daß die Theorie auch für unterschiedliche Containment-Bedingungen (Volumen, Oberfläche, Material) gut mit den Experimenten übereinstimmt, so daß eine Extrapolation auf große reale SNR-Containments möglich ist. Wesentlich ist dabei die Kenntnis einer Reihe von Partikeleigenschaften. Es kann vermutet werden, daß die PARDISEKO-Theorie einen brauchbaren Ansatz bietet, auch die in LWR-Containments zusätzlich ablaufenden Prozesse der Aerosol-Wasserdampf-Wechselwirkung und der Tropfenphysik sowie die physikalisch-chemischen Vorgänge zu erfassen und modelltheoretisch zu beschreiben.

4.4. Modelltheorie des Abbaus nuklearer Schadstoffe in LWR-Containments

Um tiefere Einsicht in die Ergebnisse von Labor- sowie Modellcontainment-Versuchen zu gewinnen, wird seit mehreren Jahren an verschiedenen Stellen versucht, diese mathematisch zu beschreiben. Das heißt, es wird versucht, eine möglichst umfassende Kombination der in 4.1. besprochenen Einzelprozesse zu berücksichtigen, um aussagen zu können, welche von ihnen eine wichtige Rolle bei LWR-Containments spielen und um Ergebnisse von Experimenten auf angenommene Reaktorstörfallsituationen übertragen zu können.

Pasedag und Gallagher [140] entwickelten ein Modell, welches die Veränderung der Sprühtröpfchengrößen-Verteilung infolge von Tröpfchenwachstum durch Koagulation (Koaleszenz) und Dampfkondensation beschreibt. Um die Anfangsgrößenverteilung zu bestimmen, wurden Hochgeschwindigkeitsaufnahmen von Tröpfchen, die von einer SPRACO 1713-Düse bei verschiedenen Durchflußraten erzeugt wurden, gemacht. Die so erzeugten Größenverteilungen konnten gut mit einer modifizierten Lognormalverteilung, die eine Maximaltröpfchengröße von 2500 μ berücksichtigt, beschrieben werden. Es wurde angenommen, daß jegliches Tröpfchenwachstum durch Kondensation gleich nach Austritt aus der Düse stattfindet, da detaillierte Rechnungen [141] gezeigt haben, daß sogar die größten Tröpfchen ein thermisches Gleichgewicht erreichen, ehe sie zur Hälfte in einem typischen Containment heruntergefallen sind. Die Vergrößerung eines Tröpfchens durch Kondensation wurde durch eine Massen-Enthalpiebilanz im Gleichgewichtszustand errechnet. Um auch die horizontale Geschwindigkeitskomponente der Tröpfchen zu berücksichtigen, wurden die Flugbahnen der Tröpfchen einer gegebenen Düse berechnet. Die gesamte Koaleszenz ist nun eine Folge der differentiellen horizontalen und vertikalen Geschwindigkeiten der verschiedenen Größengruppen. Das schwierige Problem, auf welche Weise die Tröpfchen zusammenkommen, wurde von den Autoren umgangen, indem sie nur Interzeption mit 100 % Haftung berücksichtigen. Nach Abschnitt 4.1. ist aber die Koaleszenz durch mehrere Prozesse möglich. Ergebnisse der Rechnungen zeigen, daß der Beitrag zur Koaleszenz durch horizontale Geschwindigkeitsunterschiede gering ist. Tröpfchen mit Größen in der Nähe des modalen Durchmessers der Verteilung verschwinden am schnellsten. Ferner wurde für ein 30 m hohes Containment eine Reduktion der gesamten Tröpfchenoberfläche während ihres Transports von nur 10 % errechnet. Es wird behauptet, daß frühere Annahmen, man brauche nur mit mittleren Tröpfchengrößen zu rechnen, in dieser Hinsicht gerechtfertigt sind. Diese Aussage vernachlässigt allerdings die Tatsache, daß in LWR-Containments tröpfchengrößenabhängige

Prozesse eine Rolle spielen.

Die Frage der Wassertröpfchenkoaleszenz ist in der Meteorologie von großem Interesse und wird dort von mehreren Autoren intensiv behandelt. Hierzu zitiert eine neuere Arbeit von Abraham et al. [142] etwa 20 Veröffentlichungen. Abraham et al. entwickeln ein Modell der zeitabhängigen Regentröpfchengrößenverteilung und wenden dieses auf Teilchen-Washout an. Vorgegeben wird eine eindimensionale, vertikale Temperatur- und relative Feuchteverteilung. Es wird angenommen, daß eine Anfangströpfchengrößenverteilung am unteren Rande einer Wolke existiert und daß die herunterfallenden Tröpfchen-Partikeln durch Interzeption mit Langmuir-Wirksamkeit [49] auswaschen. Die Tröpfchen fallen mit ihrer Endgeschwindigkeit und jede eingefangene Partikel bleibt in dem Tröpfchen, bis dieses den Boden erreicht oder verdampft. Koagulation mehrerer Partikeln in demselben Tröpfchen findet nicht statt. Ferner wird angenommen, daß das Einfangen einer Partikel keinen Einfluß auf die Größe, die Geschwindigkeit oder die Verdampfungsrate des Tröpfchens hat. Die Verdampfung der Tröpfchen wird über Gleichungen des Wärme- und Dampftransports nach Best [143] berechnet. Sie berücksichtigen molekulare Diffusion und Wärmetransport durch Leitung, Verdampfung und Strahlung bei ruhender Luft. Strömende Luft und die daraus folgende Veränderung des Wärme- und Massentransports wird durch empirisch gefundene Koeffizienten von Kinzer und Gunn [144] berücksichtigt. Koaleszenz der Regentröpfchen wird durch die unterschiedlichen Fallgeschwindigkeiten der verschieden großen Tröpfchen bewirkt und wird durch die Koagulationsgleichung von Smoluchowski [62] beschrieben. Das Modell rechnet die Partikelkonzentration als Funktion der Zeit und Eingangsparameter und die Tröpfchengrößenverteilung und Temperatur als Funktion der Tröpfchengröße, Höhe über dem Boden und der Zeit aus.

Diese Modelltheorie erfaßt offensichtlich nicht alle Prozesse, die in einem LWR-Containment auftreten. Inwieweit sie daher anwendbar ist, muß noch geklärt werden.

Die Frage, ob fallende Tröpfchen eines Containment-Sprühsystems während ihrer Fallzeit zu einem Temperaturgleichgewicht kommen, ist maßgeblich für eventuelle Vereinfachungen des Massen- und Wärmetransportproblems von Abscheidemodellen. Diese wurden von Parsly und Wantland [98] mit einem Rechenprogramm behandelt. Sie machen dabei die folgenden Annahmen:

- Keine interne Rotation der Tröpfchenflüssigkeit.
- Nur durchschnittliche Werte der physikalischen Eigenschaften

werden verwendet.

- Die Temperatur des Trägergases ist konstant während der Lebenszeit des Tröpfchens.
- Das Wachstum der Tröpfchen durch Kondensation kann vernachlässigt werden (experimentell ist dieser Effekt nicht größer als 6 %).
- Die Tröpfchen fallen mit Endgeschwindigkeiten.

Das Programm löst die Wärmetransportgleichung, für welche die Massen- und Wärmeübergangszahl für Druckkonvektion aus der Ranz-Marshall-Gleichung (siehe unten) errechnet werden. Als Randbedingung dient eine Wärmebilanz an der Tröpfchenoberfläche. Rechnungen für eine Eingangs-Tröpfchentemperatur von 30°C , eine Trägergastemperatur von 130°C und Tröpfchenradien von 500, 1000 und 1500 μm zeigten, daß reichlich Zeit in einem typischen Reaktorcontainment vorhanden ist, daß alle Tröpfchen bis auf 1 % der Gleichgewichtstemperatur kommen können. Andererseits sind Fallzeiten für die größten Tröpfchen bei Modellcontainments von der Größe des NSPP so kurz, daß diese nicht mehr den Gleichgewichtszustand erreichen.

Die oben erwähnte und häufig angewandte Ranz-Marshall-Gleichung stammt aus einer Arbeit [102], in der die Autoren die Thermodynamik und Aerodynamik eines fallenden Flüssigkeitstropfens betrachten. Sie berücksichtigen dabei den Wärmetransport für die Verdampfung des Tropfens durch Leitung und Konvektion von dem warmen Trägergas zu der Tröpfchenoberfläche, und durch Verdampfung, durch Diffusion und Konvektion. Die Verdampfungsrate ist dabei eine Funktion der Oberflächengröße, Temperatur und relativen Geschwindigkeit des Tropfens und der relativen Feuchte, Temperatur und der Transporteigenschaften des Gases. Gelöst werden die Gleichungen für Wärme- und Massentransport zusammen mit der Navier-Stokes-Gleichung. Für den Wärmeübergang an der Grenzschicht wird nach Froesling die Wärmeübergangsrate an einem Tropfen als Funktion der Winkelkoordinaten berechnet. Nicht berücksichtigt sind Tropfen-Rotation, Vibration und nicht stationäre Phänomene. Das Resultat, also Massen- und Wärmeübergangszahlen, gilt theoretisch für Reynoldszahlen zwischen 0 und 200, doch zeigt die Übereinstimmung mit Experimenten, daß man es auch bis $Re = 1000$ extrapolieren darf.

Um ein Kriterium zu schaffen, wann bei Diffusionsprozessen entweder die Gasschicht oder die Flüssigkeitsschicht maßgebend für den Massentransport ist, lösen Parsly und Wantland [98] die Diffusionsgleichung für Kugelkoordinaten und Oberflächenwiderstand und erhalten die Sättigung als Funktion der Zeit. Eingangparameter sind die Sherwoodzahl, Gasschicht-Massenübergangszahl für den Tropfen, dessen

Radius, der Verteilungskoeffizient beim Gleichgewichtszustand und die Diffusivität in der Flüssigkeit. Ergebnisse von Rechnungen zeigen, daß die Sherwoodzahl das gesuchte Kriterium liefert. Bei einer Sherwoodzahl von 30 bewirkt 90 % des Massentransport-Widerstandes die Flüssigkeitsschicht, bei einer Sherwoodzahl von 0,4 bewirkt 40 % des Widerstandes die Gasschicht.

Das Verhalten von Druck, Temperatur und Feuchtigkeit und deren Gradienten in einem Containment während eines Loss-of-Coolant-Störfalls ist für die Abbauprozesse für Schadstoffe wichtig, wie aus der Beschreibung der möglichen Einzelprozesse in Abschnitt 4.1. deutlich hervorgeht. Das Verhalten von Druck und Temperatur im Containment ist aber auch für Überlegungen für dessen strukturelle Integrität von Bedeutung und wird für diesen Zweck von mehreren Rechenprogrammen beschrieben, so zum Beispiel von CONTEMPT-PS [145], BRUCH-D [156], ZOCO-V [157]. Als typisches Beispiel berücksichtigt CONTEMPT-PS das mögliche Vorhandensein von mehreren Containmenträumen, die durch gegebene Leckraten miteinander verbunden sind. Wärme wird durch Leitung der Wände und durch Kondensation des Dampfes an den Wänden abgegeben. Gradienten werden nicht berechnet, es wird im Gegenteil eine vollständige Vermischung der Atmosphäre angenommen. Sprühsysteme werden berücksichtigt.

Parsly et al. [120] lösen die Navier-Stokes-Gleichung für den Fall eines zylindrischen Containments mit Bodenheizung mittels der in Los Alamos entwickelten numerischen Marker und Cell-Methode [146]. Bei diesem Modell wird angenommen

- Gasdichte ist konstant außer für Berechnung der Auftriebskräfte
- Alle physikalischen Größen sind konstant.
- Axialsymmetrie und keine Geschwindigkeitskomponente in Azimutrichtung, d.h. ein zwei-dimensionales Problem.
- Alle Geschwindigkeitskomponenten verschwinden an den Oberflächen.
- Wände sind adiabatisch, die radiale Bodentemperatur ist zeitlich konstant.
- Wände außer des Bodens sind am Anfang von der gleichen Temperatur wie das Gas, und diese ist willkürlich aber gleichförmig.
- Das Gas ist am Anfang bewegungslos.

Die Autoren geben keine Ergebnisse von Rechnungen mit diesem Modell an, obwohl experimentelle Versuche für diesen Fall vorliegen. Ergebnisse dieser Art sind wesentlich für die Bestimmung von Grenzschichtgrößen und die daraus folgenden Schichtabscheide-Phänomene.

Özisik und Mitarbeiter [147,148,149] beschäftigen sich in einer Reihe von Arbeiten mit dem Diffusionstransport von Molekülen aus trockenen und feuchten Gasen an Wände. In [148] wird die Abscheidung von Molekülen aus einer laminaren, isothermen Strömung eines Gases durch ein Rohr im Detail untersucht. Dafür werden die Übergangszahlen für den Transport vom Gas an die Wand mittels der kinetischen Theorie der Gase errechnet und die de Boer -Charakterisierung [150] des Desorptionsvorganges als Funktion der Adsorptionsenergie benutzt. Eine Massenbilanz zwischen Molekülkonzentration im Gas und an der Wandoberfläche gibt zwei gekoppelte Differentialgleichungen. Die aus der Lösung gewonnenen Koeffizienten für Massentransport von und zur Wand gehen in [147] als Randbedingungen ein. Hier wird ein zweidimensionales Containmentmodell behandelt, für welches die folgenden Bedingungen gelten:

- Am Anfang ein gut durchmischtes, ruhendes Gas
- Eindimensionale, isotherme Diffusion zwischen zwei großen, parallelen Wänden.
- Die Ablagerungsschicht ist viel dünner als eine Monomolekülschicht.
- Keine Quellen.

Die Massenbilanzgleichungen zusammen mit den Randbedingungen geben ein System von 6 Gleichungen, welche durch Integral-Transformation in eine Integralgleichung umgewandelt werden können. Diese wird numerisch gelöst. Ein Vergleich mit Resultaten von J_2 -Abscheideexperimenten im NSPP gibt gute Übereinstimmung.

In [149] untersuchten Özisik und Hughes die Wirkung der Kondensation auf den Transport von Materie aus Gas-Dampf-Mischungen. Das resultierende Modell gibt die Massenübergangsrate wieder für den zweidimensionalen Fall unter den folgenden Voraussetzungen:

- Die Konzentration von Materie in nicht unmittelbarer Nähe der Wände ist gleichförmig.
- Es genügt eine Grenzschichtanalyse an einer ebenen Wand.
- Die Wandtemperatur ist gleichförmig und niedriger als die des Gases.
- Dampf kondensiert an den Wänden als dünner Wasserfilm, der nach unten abfließt.
- Die Kondensatströmung ist laminar und die Nusselt-Kondensationstheorie zur Berechnung des Wärmeflusses durch den Kondensatfilm ist anwendbar.

- Strömungseigenschaften sind überall konstant, bis auf den Fall der Auftriebskraft.

Berücksichtigt werden:

- Wärme- und Massentransport durch den Kondensatfilm und eine Gleichung für die Dicke der Filmschicht, welche aus Betrachtungen der Energie und Massenbilanz an einem Elementarvolumen des Kondensats folgt.
- Erhaltung des nicht kondensierenden Gases.
- Erhaltung von Masse, Impuls und Energie.

Das analytische Verfahren ist ähnlich dem oben für [147] beschriebenen und führt zu Integralgleichungen, welche numerisch lösbar sind. Rechenergebnisse zeigen, daß die Abbauhalbwertszeit nicht wesentlich von der Wandtemperatur abhängt, solange diese genügend weit unter der Sättigungstemperatur von Dampf liegt. Ein Vergleich der Ergebnisse mit J₂-Abbauexperimenten bei BNWL, bei welchen das Modellcontainment isoliert war und die Dampf-Luft-Atmosphäre eine Temperatur von 83°C hatte, ergab eine Abbauhalbwertszeit für das Experiment von 10 min und für die Modellrechnung von 9,7 min.

Das Verhalten von Aerosolen in trockener Atmosphäre wird von den Rechenprogrammen PARADISEKO II [96] und HAA-3 [151] beschrieben. Beide gehen davon aus, daß die Atmosphäre des Containments gleichförmig durchmischt ist und daß die Ablagerungsprozesse gasschicht-bestimmt sind. Berücksichtigt werden die Koagulation durch Brownsche-Bewegung (bei HAA-3 auch durch unterschiedliche Sedimentationsgeschwindigkeiten), die Diffusion an die Wände, die Sedimentation zum Boden und eventuelle Aerosolquellen. PARADISEKO II berücksichtigt außerdem Temperaturgradienten zwischen der gleichförmig warmen Atmosphäre des Containments und dessen Wänden, durch einen vereinfachten partikelgrößenunabhängigen Thermophorese-Term. Beide Programme geben zufriedenstellende Übereinstimmung mit Experimenten.

Adams et al. entwickelten ein Computerprogramm SMOKLEAR [122], um das Verhalten von Aerosolen in einem Containment unter Anwendung von Sprühsystemen zu bestimmen. Um die langwierigen Rechnungen des vollständigen Smoluchowski-Koagulationsvorganges zu umgehen, nehmen die Autoren an, daß sich die Größenverteilung der Partikeln durch eine stationäre "self preserving size distribution" im Sinne von Friedlander [66] beschreiben läßt. Man kommt dann nach Whitby [152] auf eine sehr ein-

fache Form der Verteilung und der Koagulationsgleichung. Für diese wird die Brownsche-Koagulation angenommen. Weiter wird berücksichtigt: das direkte Sedimentieren von sehr großen Partikeln, das gasschicht-bestimmte Sedimentieren der anderen Partikeln, eine Quelle und die Diffusiophorese und Thermophorese der Partikeln an die Sprühtröpfchen. Hierbei werden Diffusiophorese und Thermophorese durch mittlere, partikel-unabhängige Ausdrücke beschrieben, welche von dem Wärmetransport zwischen Tröpfchen und Atmosphäre abhängen. Es wird angenommen, daß der gemeinsame Effekt dieser beiden Prozesse zwischen dem von jedem allein liegt. Während die Kondensation von Wasserdampf an die kalten Sprühtröpfchen berücksichtigt wird, wird die Kondensation an Aerosolpartikeln der Einfachheit halber nicht berücksichtigt, obwohl den Autoren bewußt ist, daß dieses ein wichtiger, über die Sedimentation wirkender, Ausscheidungsprozess sein kann.

Yuill und Baston [153] beschreiben ein Modell, welches das Verhalten von Aerosolpartikeln und J_2 unter "natural response conditions", d.h. Dampfatmosfera, aber keine Sprühsysteme oder Filter, beschreibt. Es wird angenommen, daß das abzuscheidende Material durch Konvektion von dem Inneren des Containments in die Nähe der Wände transportiert wird, wo es durch Diffusion im Falle von J_2 oder Diffusiophorese und Thermophorese im Falle von Partikeln, abgeschieden wird. Die Konvektionsgeschwindigkeit des Gases in einem zylindrischen Containment wird aus der Prandtlischen Formel für Strömung längs einer geheizten, ebenen Platte errechnet. Die hierfür benötigten Temperaturgradienten werden aus der dem Containment zugeführten Wärme über Wärmetransportgleichungen ermittelt, welche die Kondensation des Wasserdampfes an den Wänden berücksichtigen. Für die Thermophorese und Diffusiophorese werden wiederum mittlere, teilchengrößenunabhängige Ausdrücke verwendet. Die Diffusion von Partikeln an die Wände ist vernachlässigbar im Vergleich zu diesen beiden Prozessen. Nicht berücksichtigt wird die Koagulation der Partikeln, die Sedimentation und eventuelle Kondensation von Wasserdampf an den Partikeln im Falle einer übersättigten Atmosphäre. Vergleiche der Rechnungen mit Ergebnissen einiger CSE-Versuche ergeben eine Abweichung von nur 10 % für die Halbwertszeit des J_2 -Abbaus. Trotz der Vernachlässigung soll die Abweichung für Aerosole nur 20 % betragen. Allerdings ist zu bemerken, daß gerade hier die CSE-Versuche (siehe Abschnitt 4.3.) wenig reproduzierbar waren.

Parsly [154] entwickelte ein Computerprogramm, welches den Auswaschprozess von J_2 durch Sprühsysteme für den besonderen Fall des NSPP-Kessels beschreibt. Die

Rechnung beginnt mit dem gesamten luftgetragenen J_2 und der Temperatur der Containmentatmosphäre nahe dem Maximalwert. Dieser wird über die Way-Wigner-Gleichung der Zerfallswärme unter Berücksichtigung der gespeicherten Wärme in Atmosphäre und Containmentbauteilen berechnet. Eine willkürliche "shut-down"-Zeit vor Beginn des Sprühens wird berücksichtigt. Der Wärmeabtransport geschieht nur durch Core und Containmentsprühsysteme, welche im thermischen Gleichgewicht mit der Containmentatmosphäre sind. Die Temperatur der Atmosphäre wird zu jedem Zeitschritt durch eine Wärmebilanzgleichung errechnet. Trotz der oben zitierten Aussage von Pasedag und Gallagher, daß die Tröpfchengrößenverteilung durch eine mittlere Tröpfchengröße, soweit es Flächenphänomene betrifft, ersetzt werden kann, benutzt Parsly eine Tröpfchengrößenverteilung. Diese wird als lognormal angenommen. Die Tröpfchenbahnen und Gasschichtübergangszahlen werden der Ranz-Marshall-Gleichung [102] entnommen. Koaleszenz der Tröpfchen wird berücksichtigt. Für jede Tröpfchengrößengruppe wird die Fallzeit, die durchschnittliche Massenübergangszahl, und der Prozentsatz der Tröpfchen, die den Boden erreichen, errechnet. Für jeden Zeitabschnitt wird der Verteilungskoeffizient für J_2 , die Temperatur und der pH-Wert der Lösung über Eggeltons Hydrolysemodell [155] errechnet. Das schon gelöste J_2 wird beim Rezyklieren berücksichtigt. Wenn die Sherwoodzahl größer als 0,1 ist, wird die Menge des absorbierten J_2 an einem Tröpfchen durch die vollständige Lösung der Diffusionsgleichung ohne Oberflächenwiderstand berechnet. Hierdurch wird der Gasschicht- und Flüssigkeitsschichtwiderstand automatisch berücksichtigt. Wenn die Sherwoodzahl kleiner ist, wird nur Gasfilmwiderstand berücksichtigt. Das Resultat wird über alle Tröpfchengrößengruppen summiert und Gasphase- und Flüssigkeitsphase-Konzentration von J_2 für jeden Zeitabschnitt berechnet.

Dieses Modell wurde mit einem Versuch im NSPP verglichen und zeigte gute Übereinstimmung im Temperaturverlauf. Der errechnete Wert der J_2 -Konzentration wich hingegen um einen Faktor 2 - 4 ab. Es wird vermutet, daß das Eggeltonsche-Hydrolyse-Modell nicht ausreichend ist und daß andere flüchtige Formen von J_2 bei dem Experiment anwesend waren. Weitere Vergleiche von Modell und Experimenten erwiesen durchweg Überschätzung des Dekontaminationsfaktors um einen Faktor 2.

5. Diskussion und Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht vermittelt einen Überblick über den derzeitigen Stand der Kenntnisse in bezug auf die Mechanismen, die bei der Reinigung einer radio-toxischen Nachunfallatmosphäre in LWR-Containments wirksam werden, oder wirk-sam sein könnten. Es ist selbstverständlich, daß die Studie nicht den Anspruch erheben kann, vollständig zu sein, obwohl wir uns bemüht haben, die wichtigsten Veröffentlichungen, die sich mit dem hier angesprochenen Problem beschäftigen, zu berücksichtigen. Besonderer Wert wurde auch darauf gelegt, theoretische Ar-beiten von Autoren zu zitieren, die sich mit atmosphärischen Abbauprozessen be-schäftigen, dies aber nicht unbedingt unter dem Gesichtswinkel der Reaktorsicher-heit tun. Wir erwähnen diese Tatsache hier ausdrücklich, weil die für den Ab-bau nuklearer Schadstoffe bedeutsamen Fragestellungen in verschiedensten Be-reichen der Wissenschaft (z.B. Verfahrenstechnik, Physik der Atmosphäre, Meteor-ologie, Medizin usw.) eine Rolle spielen und bearbeitet werden. Der Überblick wird dadurch erschwert.

Besondere Aufmerksamkeit haben wir im vorliegenden Bericht dem Aktivitätsinven-tar großer LWR-Kernkraftwerke (Abschn. 2.) gewidmet. Dabei wurde unterschieden zwischen Brennstoff, erbrüteten Brennstoffen, Spaltprodukten, aktivierten Struk-turmaterialien und aktiviertem Kühlmittel. Es wurden umfangreiche Listen der in Frage kommenden Radionuklide zusammengestellt. Schließlich wurden diese nach ihrer radiotoxikologischen Bedeutung geordnet. Wenn auch versucht wurde, mög-lichst alle radiologisch wichtigen Nuklide zu erfassen, so muß doch vermerkt werden, daß eine Reihe von Daten zur Berechnung der Aktivitäten von Spalt- und Aktivierungsprodukten nicht verfügbar waren.

In den CSE- und NSPP-Experimenten, über die ausführlich berichtet wird, wurden die Elemente Cs, U, J und Xe als repräsentativ für folgende Gruppen von nuklearen Schadstoffen angesehen:

Cs_2 CO_3	→	lösliche Partikeln
UO_2	→	nicht lösliche Partikeln
J_2 , CH_3J	→	reaktive Gase
Xe	→	Edelgase

Es bestehen Zweifel daran, ob diese Einteilung für alle denkbaren Formen der nuklearen Schadstoffe in LWR-Containments sinnvoll und ausreichend ist. Darüber hinaus bedarf es der Klärung, ob die in dieser Studie als radiologisch bedeutsam erkannten Nuklide alle durch die oben genannten Verbindungen hinsichtlich ihres Verhaltens repräsentiert werden können.

Ein besonderes Problem ist die Frage nach der "Anfangsatmosphäre" im LWR-Containment nach einem Unfall. Sie hängt entscheidend davon ab, wie der Unfall im einzelnen abläuft. Der vorliegende Bericht beschäftigt sich mit dieser Frage nicht. Aber auch unabhängig davon ist noch manches im Hinblick auf die Freisetzung der Schadstoffe ungeklärt. Zunächst muß bekannt sein, in welcher physikalischen oder chemischen Form die Schadstoffe vermutlich auftreten werden (Abschn. 3).

Über die Freisetzung von Radionukliden aus Kernbrennstoffen bei hohen Temperaturen liegen nur begrenzte Informationen vor. Insbesondere sind die dabei auftretenden physikalischen und chemischen Einzelvorgänge weder experimentell noch theoretisch geklärt. Der häufig gebrauchte Begriff der "Flüchtigkeit" mit seinen Abstufungen ist z.B. für die Bestimmung der Freisetzungsrates nuklearer Schadstoffe unbrauchbar, weil es kein quantitatives Maß für die Flüchtigkeit gibt. Auch die bei der Partikelbildung auftretenden Mechanismen sind heute im einzelnen noch nicht geklärt. Der unter Störfallbedingungen in LWR-Containments in hohem Maß zu erwartende Prozeß der Bildung von Kondensationsaerosolen ist noch weitgehend unbekannt. Auch existieren praktisch keine Angaben darüber, ob und inwieweit die strahlenchemische Bildung von Aerosolpartikeln eine Rolle spielt.

Einen Überblick über die wichtigsten Mechanismen, die zum Abbau der Schadstoffe in der LWR-Nachunfallatmosphäre beitragen können, gibt Abschn. 4.1. Hier läßt sich generell sagen, daß die Theorie fast aller Einzelprozesse noch ungelöste Probleme enthält. Daher kommt den experimentellen Ergebnissen im Hinblick auf einzelne Abbauprozesse eine besondere Bedeutung zu. Über sie wird im Abschn. 4.2. berichtet.

Die Abschnitte 4.3. und 4.4. sind schließlich den wichtigsten integralen Experimenten zum Abbau von Schadstoffsystemen in LWR-Containments und zugehörigen Modelltheorien gewidmet. Besonders die Abscheidung von Jod nimmt in bisher bekannten Veröffentlichungen einen breiten Raum ein. Die Jodabscheidung wurde unter verschiedensten Versuchsbedingungen, wozu auch die Simulation einer LWR-Nachunfall-

atmosphäre gehört, praktisch erschöpfend experimentell untersucht. Es konnten auch integrale Modelle entwickelt werden, die bis auf einen Faktor 2 Übereinstimmung mit den Experimenten brachten, obwohl eine Reihe von Einzelprozessen der Gas-Tropfen-Wechselwirkungen bis heute noch nicht vollständig verstanden sind. Es bleiben daher auch noch einige Fragen über die Relevanz bestimmter Parameter und über die Verlässlichkeit von frühen experimentellen Ergebnissen bestehen, insbesondere wenn auf reale LWR-Containments extrapoliert werden soll.

Im Hinblick auf Sprühsysteme sei bemerkt, daß auch hier umfangreiche Experimente durchgeführt worden sind, über die in der vorliegenden Studie berichtet wird. Die beim wash-out und rain-out beteiligten Einzelprozesse haben ihre maximale Wirksamkeit bei unterschiedlichen Tropfengrößen. Die Frage, welches Tropfengrößenspektrum eines Sprühmittels in LWR-Containments die optimale Abscheidung von Gasen und Partikeln bewirkt und welche Sprühdüsenauslegung sich daraus ableitet, ist zur Zeit noch offen.

Nur in geringem Maße wurde bisher die Abscheidung von Partikeln unter den Bedingungen der Nachunfallatmosphäre in LWR-Containments experimentell untersucht. Auch hier werden in Zukunft noch einige Anstrengungen unternommen werden müssen, insbesondere wenn man beachtet, daß sehr viele Elemente mit einigen ihrer Isotope, die im vorliegenden Bericht als radiologisch bedeutsam bezeichnet sind, als Partikeln auftreten werden.

Vorliegende Modelle zur Abscheidung von Partikeln (z.B. PARDISEKO II und HAA-3) berücksichtigen die wichtigsten aerosolphysikalischen Prozesse in trockener Atmosphäre und stimmen mit experimentellen Ergebnissen gut überein. Modelle, die zusätzlich Kondensation von Wasserdampf an Partikeln und Wechselwirkungen zwischen Gasen und Partikeln, Partikeln und Tropfen, sowie zwischen Gasen und Tropfen mit einbeziehen, liegen nicht vor. Somit existiert zur Zeit keine konsistente Modelltheorie für die Abscheidung von Aerosolen in LWR-Containments, die neben den genannten Mechanismen auch die spezielle Wirkung von Sprühmitteln zu berücksichtigen hätte.

Literatur

- [1] Nuclear Power Stations-Reference List
KWU 135 - 101 / 1972
- [2] H. Grumm, D. Gupta, W. Häfele, P. Jansen, M. Recker, W. Schmidt
J. Seetzen
Ergänzendes Material zum Bericht "Kernbrennstoffbedarf und Kosten
verschiedener Reaktortypen in Deutschland" (KFK 366)
KFK 466, 1966
- [3] S.A. Skvorcov
Plutoniumgewinnung in Druckwasserreaktoren
Kernenergie/15/8/249/1972
- [4] E. Waibel
INVENT
KFK-Ext.-Bericht 8/68-3/1967
- [5] W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel
Nuklidkarte
1968
- [6] S. Katcoff
Fission-Product Yields from Neutron-Induced Fission
Nucleonics, Vol. 18/11/1960/201
- [7] M.E. Meek, B.F. Rider
Summary of fission product yields for U 235, U 238, PU 239, PU 241
at thermal, fission spectrum and 14 MeV neutron energies
APED-5398-A/3137-NL-67/1968
- [8] K. Aurand, M. Ruf, W. Schikarski, J. Schwibach
Umweltbelastung durch Radionuklide in Abluft und Abwasser aus
Kernkraftwerken in der Bundesrepublik Deutschland
KFK-Bericht 1515/1972

- [9] B. Kahn et al.
Radiological Surveillance Studies at a Pressurized Water Nuclear
Power Reactor
USEPA, August 1971
- [10] B. Kahn et al.
Radiological Surveillance Studies at a Boiling Water Nuclear
Power Reactor
BRH/DER 70-1 / March 1970
- [11] K. Haberer
Radionuklide im Wasser
K. Thiemig-Verlag München, 1969
- [12] N. Harley et al.
Fission Yield and Fission Product Decay
HASL-164/1965
- [13] N.A. Hallden et al.
Radioactive Decay of Weapons Debris
HASL-117/1961
- [14] H.F. Hunter, N.E. Ballou
Fission-Product Decay Rates
Nucleonics, 9/5/1951/C 2
- [15] K.H. Neeb, H. Neidl, H. Stöckert
Radiochemische Analyse des Primärkühlmittels wassergekühlter Kern-
reaktoren mit Hilfe eines GE(LI)-Detektors
Siemens-Forschungs- und Entwicklungsberichte Bd 1, NR 4/1972/350
- [16] BNL 325, Supplement 2
Neutron Cross Sections, 1966
- [17] W. Repke
Private Mitteilung

- [18] D. Smidt
Reaktortechnik BDI
Braunverlag 1971
- [19] N.D. Dudey
Review of low-mass atom production in fast reactors
ANL-7434/1968
- [20] H. Müller, H. Stahlschmidt
Die Gesamtanlage des Kernkraftwerks Stade
atw 11/1971/586
- [21] P. Rübenberg
KKW-Stade, Private Mitteilung
- [22] J.M. Smith, R.S. Gilbert
Tritium Experience in Boiling Water Reactors
Tritium-Symposium, Las Vegas, 30.8.-2.9.1971
- [23] J. Locante, D.D. Malinowski
Tritium in Pressurized Water Reactors
Tritium-Symposium, Las Vegas, 30.8.-2.9.1971
- [24] D.G. Jacobs
Sources of Tritium and its Behavior upon Release to the Environment
AEC Critical Review Series/TID-24635/1968
- [25] H. Bonka
Die globale Umweltverschmutzung durch in Kernreaktoren erzeugtes
Tritium und Kr 85 in der Zukunft
ISO-Mitteilungen, RWTH-Aachen/1972
- [26] G. Grathwohl
Erzeugung und Freisetzung von Tritium durch Reaktoren und Wiederauf-
arbeitungsanlagen und die voraussichtliche Belastung der Hydrosphäre
bis zum Jahre 2000
Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, 1972

- [27] L.A. König
Umweltbelastung durch Tritium
KFK-Bericht 1560/1972
- [28] A Basic Toxicity Classification of Radionuclides
Technical Report Series No. 15, IAEA/Vienna 1963
- [29] Report of Committee II on Permissible Dose for Internal
Radiation
Recommendations of the International Commission on
Radiological Protection ICRP-Publication 2/1959
- [30] Bekanntmachung der Neufassung der Ersten Strahlenschutz-
verordnung vom 15. Oktober 1965
Bundesgesetzblatt Teil I/61/1653/1965
- [31] O.G. Raabe
Estimation of the relative inhalation hazard of reactor
inventory radionuclides, Fission Product Inhalation Program
Annual Report 1969-1970/LF-43/UC-48/1970
- [32] W. Jacobi, N. Stolterfoth
Freisetzung von Spaltprodukten bei extremen Unfällen an Kern-
reaktoren
HMI-B-85/1969
- [33] E. Waibel
Berechnung der zeitabhängigen Spaltprodukt-Wärmequellstärken
in zwei gekoppelten Systemen unter Berücksichtigung von Spalt-
produktentweichen
KFK-Bericht 1580/1972
- [34] D.L. Morrison et al.
An evaluation of the applicability of existing data to the
analytical description of a nuclear reactor accident
BMI-1910/1971

- [35] J. Simon-Weidner
Zusammenstellung der experimentell ermittelten Freisetzungser-
scheinungen von Spaltprodukten aus Reaktorbrennstoffen in Ab-
hängigkeit von der Temperatur
MRR-94/1971
- [36] K. Feuerstein
Private Mitteilung
- [37] H.H. Stamm
Private Mitteilung
- [38] Landolt-Boernstein
Zahlenwerte und Funktionen
Springer-Verlag 1951
- [39] Gmelin
Handbuch der anorganischen Chemie
Verlag Chemie 1970
- [40] Y.S. Touloukian
Thermophysical Properties of High Temperature Solide Materials
The Mc Millan Comp., New York, 1967
- [41] R.G. Bedford, D.D. Jackson
Volatilities of the Fission Product and Uranium Oxides
UCRL-12314/1965
- [42] J. Belle
UO₂-Uranium Dioxide
Properties and Nuclear Applications /1961
- [43] R.N.R. Mulford, L.E. Lamar
The volatility of Plutonium oxid
The proceedings of the second international Conference on Plutonium
Metallurgy, Grenoble, France, 19.-22. April 1960/
Cleaver-Hume Press, London 1961/411

- [44] N. Nix
Tropfenkondensation und Verdampfung im submikroskopischen Bereich
Staub-Reinh. Luft 32 (1972) Nr. 10 (Oktober), S. 412/415
- [45] Ilga, R. Paluch
A model for cloud droplet growth by condensation in an
inhomogeneous medium
J.of Atm.Sc., Vol. 28, No. 4, May 1971, pp. 629/639
- [46] L.R. Koenig
Numerical modelling of condensation
Memo. RM-5553-NSF, The Rand Corp., Santa Monica, Calif., 1968, 53 pp
- [47] B.J. Mason
The physics of clouds
Oxford Press 1971
- [48] L.F. Parsly
Removal of radioactive particles by sprays
Oak Ridge National Lab., Oak Ridge, Tennessee, ORNL-4671,
UC-80, 1971, November
- [49] J. Langmuir
The production of rain by a chain-reaction in cumulus clouds
at temperatures above freezing
J. Meteorol. 5 : 175 (1948)
- [50] N.A. Fuchs
The mechanics of aerosols
Macmillan, New York, 1964
- [51] A.G. Sutugin, N.A. Fuchs
Formation of condensation aerosols under rapidly changing
environmental conditions - Theory and method of calculation
Aerosol Science, 1970, Vol. 1, pp. 287/293, Pergamon Press

- 52 A.G. Sutugin, N.A. Fuchs, E.I. Kotsev
Formation of condensation aerosols under rapidly changing
environmental conditions - Non-coagulated, high-dispersed aerosols
Aerosol Science, 1971, Vol. 2, pp. 361/368, Pergamon Press
- 53 K. Oswatitsch
Z. angew. Math. Mech. 22, 1 (1942)
(Nachzitat aus 51)
- 54 M. Buykov, V. Bakhanov
Kolloid. Zh. 29, 779 (1967)
(Nachzitat aus 51)
- 55 J. Griffin, P. Sherman
AIAA Jul. 3, 1813 (1963)
(Nachzitat aus 51)
- 56 Y.A. Frenkel
Kinetic theory of liquids
Clarendon, Oxford (1949)
(Nachzitat aus 51)
- 57 A. Barnard
Proc. R. Soc. A220, 132 (1953)
(Nachzitat aus 51)
- 58 R. Becker, W. Döring
Ann. Physik 24, 719 (1935)
(Nachzitat aus 51)
- 59 H.L. Green, W.R. Lane
Particulate clouds: dusts, smokes and mists
2nd. ed., E. and F.N. Spon, Ltd., London (1964)
- 60 G. Zebel
The coagulation of aerosols
Aerosol Science, Academic Press, New York (1966)

- [61] G. Zebel
Theory of coagulation of electrically uncharged aerosols
Kolloid. Z., 156 (1957)
- [62] M. von Smoluchowski
Three lectures on diffusion, brownian movement and the
coagulation of colloidal particles
Phys. Z. 17 (1917)
- [63] M. von Smoluchowski
Mathematical theory of the coagulation of colloid solutions
Z. Phys. Chem., 91 (1917)
- [64] S.K. Friedlander, C.S. Wang
Self-preserving particle size distribution for coagulation
by brownian motion
J. Colloid Interface Sci., 22 (1966)
- [65] S.K. Friedlander
Theoretical considerations for the particle size spectrum
of the stratospheric aerosol
J. Meteorolog. 18 (1961)
- [66] S.K. Friedlander
Similarity considerations for the particle-size spectrum
of a coagulating sedimenting aerosol
J. Meteorolog. 17 (1960)
- [67] A.W. Castleman, Jr., F.L. Horn, G.C. Lindauer, Jr.
On the behavior of aerosols under fast reactor accident
conditions
Int. Congress on the Diff. of Fiss. Prod., Saclay, France,
Nov. 1969
- [68] G.M. Hidy
The theory of the coagulations of non-interacting particles
in brownian motion
J. Colloid. Sci., 20 (1965)

- [69] H. Müller
General theories of rapid coagulation ...
Kolloid chem. Beih. 27 (1928)
- [70] D.L. Swift, S.K. Friedlander
The coagulation of hydrosols by brownian motion and
laminar shear flow
J. Colloid. Sci., 19 (1964)
- [71] R.K. Hilliard
Removal of iodine and particles from containment atmospheres
by sprays
Containment Systems Experiment Interim Report, USAEC Report
BNWL-1244, Battelle-Northwest, Feb. 1970
- [72] W.E. Ranz, J.B. Wong
Impaction of dust and smoke particles
Ind. Eng. Chem. 44 (1952)
- [73] R.L. Byers, S. Calvert
Particle deposition from turbulent streams by means of
thermal force
I & EC Fundamentals, Vol. 8, Nov. 1969, p. 646 (Am.Chem.Soc.)
- [74] T.W. Horst
A review of particle transport in a condensing steam environment
BNWL-848, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Wash. (1968)
- [75] Stephan
Ann. Phys. 17, 550 (1882)
- [76] L. Facy
Les processus de congelation en atmosphere libre par capture
des noyaux glacogenes
Geofis. pura appl. 46, 201 (1957)

- [77] S.P. Bakanov, B.V. Dergaguin
A theory of the interaction between evaporating or growing droplets at large distances
Sov. Phys. Dok. 2, 41 (1957), Englisch
- [78] S.P. Bakanov, B.V. Dergaguin
The motion of a small particle in a non-uniform gas mixture
Discuss. Faraday Soc. 30, 130 (1960)
- [79] L. Waldmann
Z. Naturf. 14 a, 589 (1959)
(Nachzitat aus [80])
- [80] L.E. Sparks, M.J. Pilat
Effect of diffusiophoresis on particle collection by wet scrubbers
Atm. Env., Pergamon Press, Vol. 4, pp. 651/660 (1970)
- [81] P. Goldsmith, F.G. May
Diffusiophoresis and thermophoresis in water vapor systems
Aerosol Science, pp. 163/194, Academic Press, New York (1966)
- [82] P. Goldsmith, H.J. Delafield, L.C. Cox
The role of diffusiophoresis in the scavenging of radioactive particles from the atmosphere
Q. Jl. R. met. Soc. 89, 43 (1963)
- [83] K.H. Schmitt, L. Waldmann
Z. Naturf. 15 a, 843 (1960)
(Nachzitat aus [80])
- [84] B.V. Dergaguin, Y.I. Yalamov, Storozhilova
Diffusiophoresis of large particles
J. Colloid Sci., 22, 117 (1966)
(Nachzitat aus [80])

- [85] P.S. Prokhorov
The effects of humidity deficit on coagulation processes and
the coalescence at liquid droplets
Discuss. Faraday Soc. 18, 41 (1954)
- [86] M.V. Tovbin, D.F. Datsenko, L.V. Kratsova
Mertial capture of aqueous aerosol particles by drop surfaces
Colloid. J.N.Y. 27, 753 (1965), Englisch
- [87] J.M. Hales, J.M. Thorp, M.A. Wolf
Field investigation of sulfur dioxide washout from the plume
of a large coal-fired power plant by natural precipitation
Final Rep. to Env. Prot. Agency, No. CPA-22-69-150 (1971)
- [88] J.M. Hales
Fundamentals of the theory of gas scavenging by rain
Atm. Env., Pergamon Press, Vol. 6, pp. 635/659 (1972)
- [89] M. Smutek
On the separation of air-borne particles by diffusion
Aerosol Science, Vol. 3, 1972, pp. 337/343, Pergamon Press
- [90] W.G.N. Slinn, J.M. Hales
A reevaluation of thermophoresis as a mechanism of in- and
below-cloud scavenging
J. of Atm. Sci. Nov. 1971, p. 1465
- [91] W.G.N. Slinn
Aerosol particle size dependence of the "rainout rate"
BNWL-1551, Part 1
- [92] J. Pich
Theory of gravitational deposition of particles from laminar
flows in channels
Aerosol Science, 1972, Vol. 3, pp. 351/361, Pergamon Press

- [93] G.M. Hidy
Theory of diffusive and impactive scavenging
AEC-Smp. Sev.
- [94] R.J. Davis
A simple model for the estimation of aerosol concentration
in a closed vessel
Am.Ind.Hyg.Ass. J. Vol. 32, No. 9, Sept. 1971
- [95] J. Truitt, R.J. Davis
The function of condensing steam in aerosol scrubbers
Am.Ind. Hyg. Ass. J., Vol. 32, No. 9, Sept. 1971
- [96] K. Keller
Das Aerosolverhalten in geschlossenen Behältern (PARDISEKO)
KFK-1758, Februar 1973
- [97] G.W. Keilholtz, C.E. Guthrie, G.C. Battle, Jr.
ORNL-NSIC-25 UC-80 (1968)
- [98] L.F. Parsly, J.L. Watland
ORNL-TM-2588 (1969)
- [99] B.A. Soldano
ORNL-TM 2984 (1970)
- [100] B.A. Soldano, W.T. Ward
Nuclear Technology 10, 460 (1971)
- [101] F.H. Garner, J.J. Lane
Trans. Inst. Chem. Engrs. 37, 162 (1959)
- [102] W.E. Ranz, W.R. Marshall, Jr.
Chem. Eng. Progress 48, 141 (1952)
- [103] V. Griffith
British Report Arts B (s) - R 45 (1963)

[104] B.A. Soldano, W.T. Ward
ORNL-4228, UC-80 (1967)

[105] Parker, Creek, Horton
ORNL-TM-2053 (1968)

[106] L.C. Schwendiman et al.
USAEC-Report BNWL-530

[107] B.A. Soldano, W.T. Ward
ORNL-TM-2095 (1968)

[108] B.A. Soldano, W.T. Ward
ORNL-TM-2718 (1967)

[109] B.A. Soldano, W.T. Ward
ORNL-TM-2588 (1969)

[110] B.A. Soldano
ORNL-TM-3212 (1970)

[111] B.A. Soldano
ORNL-TM-3061 (1970)

[112] H.E. Zittel
ORNL-TM-2663 (1969)

[113] H.E. Zittel
ORNL-4228 (1967)

[114] H.E. Zittel
ORNL-TM-2777 (1969)

[115] H.E. Zittel
ORNL-TM-3411 (1971)

[116] H.E. Zittel
ORNL-TM-3212 (1970)

- [117] H.E. Zittel
ORNL-TM-3061 (1970)
- [118] H.E. Zittel
ORNL-TM-2718 (1967)
- [119] B.A. Soldano, W.T. Ward
ORNL-TM-2777 (1969)
- [120] L.F. Parsly, J.K. Franzreb, J.L. Wantland, N. Ozisik, D. Hughes
ORNL-4228, UC-80 (1967)
- [121] W.D. Yuille, R.E. Adams
ORNL-4198 (1968)
- [122] R.E. Adams, R.J. Davis, J.J. Gill, J. Truitt
ORNL Nuclear Safete Program Annual Progress Report
for Period Ending Dec. 31, 1968
- [123] P. Goldsmith, R.A. Stinchcombe
AERE-M-1214
- [124] V.F. Fitzpatrick, S.A. Nielson, L.C. Schwendiman
HW-73404 (1962)
- [125] A.K. Postma, L.C. Schwendiman
HW-65308 (1960)
- [126] S.K. Friedlander, H.F. Johnston
Ind. Eng. Chem. 49 (1957) 1151
- [127] L.G. Alexander, C.L. Coldren
Ind. Eng. Chem. 43 (1951) 1325
- [128] A.K. Postma B.M. Johnson
Containment Systems Experiment Final Program Summary
BNWL-1592/1971

- [129] J.L. Wantland, T.H. Row
Behavior of Iodine in Air - a Résumé of the First Seven Runs
Conducted at the Nuclear Safety Pilot Plant
ORNL-4050/UC-80/1967
- [130] L.F. Parsly, T.H. Row
Behavior of Fission Products Released into a Steam-Air Atmosphere
From Overheated UO₂ Previously
ORNL-TM-1908/1967
- [131] L.F. Parsly, J.L. Wantland, T.H. Row, J.K. Franzreb
Release and Transport of Fission Products released from Fuel
Pins Irradiated to 20,000 MWD/Ton
ORNL-TM-3533/1972
- [132] L.F. Parsly, T.H. Row
Behavior of Fission Products Released from Synthetic High-
Burnup UO₂ in Steam Atmospheres
ORNL-TM-1698/1967
- [133] L.F. Parsly, T.H. Row
Study of Fission Products Released from Trace-Irradiated
UO₂ into Steam-Air Atmospheres
ORNL-TM-1588 /1966
- [134] L.F. Parsly
Spray Program at the Nuclear Safety Pilot Plant
Nuclear Technology 10/1971/472
- [135] Y. Nishizawa, S. Oshima, T. Maekawa
Removal of Iodine From Atmosphere by Sprays
Nuclear Technology 110/1971/486
- [136] W. Schikarski
The Karlsruhe Research Program on Nuclear Aerosols and its
Relation to the Plutonium Hazard of Fast Sodium Reactors
Proceedings of "Treatment of Airborne Radioactive Wastes"
New York, 26.-30.8.1968/IAEA/1968

- [137] J.R.D. Stoute, J.F. van de Vate
The Behavior of Fission Product Aerosols in Relation to the
Safety of Sodium Cooled Fast Breeder Reactors
Congres international sur la diffusion des produits de fission
Saclay, 4-6, 11/1969/SFRP/1970
- [138] Koontz, et al.
Modelling characteristics of aerosols generated during LMFBR
accidents
Ref. 42 of Proceedings of "Treatment of Airborne Radioactive
Wastes"
New York, 26.-30.8.1968/IAEA/1968
- [139] K. Keller
Theoretische Behandlung des Aerosolverhaltens im geschlossenen
zylindrischen Behälter (PARDISEKO 1)
KFK-Bericht 1490, November 1971
- [140] W.F. Paseday, J.L. Gallagher
Nuclear Technology 10 (1971) 412
- [141] L.F. Parsly, J.L. Wantland
ORNL-TM-2663 (1969)
- [142] F.F. Abraham, S.K. Jordan, R.N. Kortzeborn, H.G. Kolsky
IBM J. of Research and Development 16, 2 (1972)
- [143] Best
J. Meteorology 5 (1948) 175
- [144] G.D. Kinzer, R. Gunn
J. Meteorology 8 (1951) 71
- [145] J.C. Haire, G.F. Brockett
IN-1382 Reactor Technology TID-4500 (1970)
- [146] J.E. Welch et al.
Los Alamos Sci. Lab., USAEC Report LA-3425

- [147] M.N. Özisik, P.C.Y. Chen
Trans. of the ANS 9, 2 (1966) 557
- [148] E.R. Venerus, M.N. Özisik
Trans of the ANS 8, 2 (1965) 337
- [149] M.N. Özisik, D. Hughes
Nuclear Science and Engineering 35 (1969) 384
- [150] de Boer
The Dynamics of Adsorption
Claredon Press, Oxford, 1953
- [151] M. Greenfield, R. Koontz, R. Johnson, H. Morewitz
Proceedings 11th Air Cleaning Conf. AEC Conf. 700816, Vol. 1 (1970)
- [152] K.T. Whitby
J. of Colloid and Interface Science 26 (1968) 161
- [153] W.A. Yuill, Jr., V.F. Baston
Nuclear Safety 10, 6 (1969) 492
- [154] L.F. Parsly
ORNL-TM-2919 (1970)
- [155] Eggelton
AERE-R-4887 (1967)
- [156] J. Vojtek
MRR 102 (1972) TH München
- [157] D. Brosche
MRR 104 (1972) TH München
- [158] W. Comper
Berechnung der Dosisfaktoren radiologisch wichtiger Nuklide
KFK-Bericht 1615/1972

[159]

D.L. Morrison, W.A. Carbiener, R.L. Ritzman

An Evaluation of the Applicability of Existing Data to the
Analytical Description of a Nuclear Reactor Accident

BMI-1861/1969

[160]

H. Unger

Wärmefreisetzung im Brennstoff nach Abschalten des Reaktors
Atomkernenergie 19/1972/283

Verzeichnis der Abbildungen

		Seite
Abb. 1	Dampfdruck - Kurven einiger Aktivitätsträger	- 25 -
Abb. 2	Konzentration C des gesamten anorganischen Jods in einem typischen CSE-Experiment	- 45 -
Abb. 3	Cäsium-Konzentration C in einem typischen CSE-Experiment	- 46 -
Abb. 4	Jodkonzentration bei Umluftfilterbetrieb im CSE-Containment	- 49 -

Verzeichnis der Tabellen

		Seite
Tabelle 1	Ausgangsbedingungen für die Aktivitätsberechnungen	- 7 -
Tabelle 2	Die 10 Nuklide mit höchster Aktivität nach 3,92 a Standzeit, verglichen mit SR 90, J 131, CS 137	- 11 -
Tabelle 3	Kernreaktionen zur Berechnung der Aktivierungsprodukte	- 12 -
Tabelle 4	Einige Aktivierungsprodukte im LWR 1000 MWe	- 12 -
Tabelle 5	Kernreaktionen zur Bildung von Tritium	- 15 -
Tabelle 6	Zusammenstellung der Tritium-Produktion in einem LWR nach verschiedenen Autoren	- 15 -
Tabelle 7	Wichtige Spaltprodukte (Erklärung siehe Text) ohne Berücksichtigung ihres Freisetzungs- und Ausbreitungsverhaltens	- 18 -
Tabelle 8	Elemente mit Ordnungszahl der Nuklide in Tabelle 7 sowie CO, U, NP und PU	- 19 -
Tabelle 9	Einteilung der Elemente aus Tabelle 8 sowie 27 CO, 92 U, 93 NP und 94 PU in die Gruppen des periodischen Systems	- 19 -
Tabelle 10	Ordnung wichtiger Radionuklide in LWR-Kraftwerken nach Prioritätsklassen (PK) (berechnet aus dem Aktivitätsinventar nach einer mittleren Standzeit von 3,92 Jahren und ohne Berücksichtigung von Freisetzungsraten im Störfall)	- 20 -
Tabelle 11	Mögliche chemische Formen einiger Aktivitätsträger	- 23 -
Tabelle 12	Experimentelle Ergebnisse zur Jodabscheidung in Nuclear Safety Pilot Plant (NSPP)	- 53 -
Tabelle 13	Experimentelle Ergebnisse zur Methyljodidabscheidung in Nuclear Safety Pilot Plant (NSPP)	- 54 -
Tabelle A 1	Auflistung der Spaltnuklide	- 89 -
Tabelle A 2	Nicht berücksichtigte Verzweigungsfaktoren wegen verzögerter Neutronenstrahlung	- 99 -
Tabelle A 3	Nicht berücksichtigte angeregte Zustände	- 100 -
Tabelle A 4	Liste der betrachteten Elemente	- 101 -
Tabelle A 5	Einordnung der Elemente in das periodische System	- 102 -

Nomenklatur

A	Aktivität
A _{spez}	spezifische Aktivität
A _{spp}	Aktivität der Spaltprodukte
A _{SM}	Aktivität der Strukturmaterialien
A _{TTS}	Aktivität des Tritium aus terrärer Spaltung
A _{TD}	Aktivität des Tritium aus der Deuterium-Reaktion
A _{TLI6}	Aktivität des Tritium aus der LI6-Reaktion
A _{TLI7}	Aktivität des Tritium aus der LI7-Reaktion
A _{TB}	Aktivität des Tritium aus der B10-Reaktion
A _T	Gesamtaktivität des Tritium
C	Konzentration
η	Wirkungsgrad
LWR	Leicht-Wasser-Reaktor
L _e	Leistung, elektrisch
L _{th}	Leistung, thermisch
MW _e	Mega-Watt-elektrisch
M _U	Gesamtmasse Uran
P	Druck
r	mittlere spezifische Leistung $\left[\frac{\text{MW}_{\text{th}}}{\text{kgU}} \right]$
T	Temperatur
t ₀	Unfallzeitpunkt (nach 3,92 a Standzeit)
t _n	Zerfallszeiten oder Abklingzeiten
t _s	Standzeit (3,92 a)

T a b e l l e n a n h a n g

Tabelle A 1 Auflistung der Spaltnuklide (Ex bedeutet 10^x , Aktivität bedeutet die Aktivität nach 3,92 Jahren Standzeit)

Nuklid	Halbwertszeit	Spaltausbeute		Aktivität [Ci]
		unabhängig [%]	kumulativ [%]	
ZN 72	1,9 d	0,16 E-4	0,16 E-4	0,42 E 3
GA	14,1 h		0,16 E-4	0,42 E 3
ZN 73	3,0 m	0,11 E-3	0,11 E-3	0,29 E 4
GA 73	4,8 h		0,11 E-3	0,29 E 4
GA 74	7,9 m	0,35 E-3	0,35 E-3	0,92 E 4
AS 74	17,7 d	0,28 E-3	0,28 E-3	0,74 E 4
GA 75	1,9 m	0,12 E-2	0,12 E-2	0,32 E 5
GE 75 M	48 s		0,12 E-2	0,13 E 5
GE 75	1,4 m		0,12 E-2	0,32 E 5
GA 76	32 s	0,35 E-2	0,35 E-2	0,92 E 5
GA 77	17,1 s	0,48 E-2	0,48 E-2	0,13 E 6
GE 77 M	54 s		0,48 E-2	0,11 E 6
GE 77	11,3 h	0,35 E-2	0,83 E-2	0,13 E 6
AS 77	1,6 d	0,35 E-2	0,12 E-1	0,31 E 6
SE 77 M	17,5 s		0,83 E-2	0,22 E 6
GA 78	4 s	0,20 E-1	0,20 E-2	0,53 E 6
GE 78	1,5 h		0,20 E-2	0,53 E 6
AS 78	1,5 h		0,20 E-1	0,53 E 6
AS 79	9 m	0,56 E-1	0,56 E-1	0,15 E 7
SE 79 M	3,9 m		0,56 E-1	0,15 E 7
SE 79	$6,5 \cdot 10^4$ a		0,56 E-1	0,62 E 2
AS 80	15 s	0,94 E-1	0,94 E-1	0,25 E 7
BR 80	17,6 m	0,90 E-6	0,90 E-6	0,24 E 2
AS 81	33 s	0,18	0,18	0,48 E 7
SE 83 M				
SE 81	18 m		0,18	0,48 E 7
BR 82	1,5 d	0,40 E-4	0,40 E-4	0,11 E 4
AS 83	9 s	0,11 E-1	0,11 E-1	0,14 E 7
SE 83	23 m	0,22	0,531	0,69 E 7
BR 83	2,4 h	0,23 E-2	0,5333	0,14 E 8
KR 83 M	1,9 h		0,5333	0,14 E 8
SE 84	3,3 m	0,93	0,93	0,25 E 8
BR 84 M				

Nuklid	Halbwertszeit	Spaltausbeute		Aktivität [Ci]
		unabhängig [%]	kumulativ [%]	
BR 84	32 m		0,93	0,25 E 8
RB 84	33 d	0,51 E-5	0,51 E-5	0,13 E 3
AS 85	2,2 s	0,48	0,48	0,13 E 8
SE 85	39 s	0,62	1,1	0,29 E 8
BR 85	3 m	0,2	1,3	0,34 E 8
KR 85 M	4,4 h		1,3	0,34 E 8
KR 85	10,76 a		1,3	0,16 E 7
SE 86	16 s	0,20 E-2	0,20 E-2	0,53 E 5
BR 86	54 s	0,204	0,206	0,53 E 7
RB 86	18,7 d	0,26 E-4	0,26 E-4	0,69 E 3
SE 87	10 s	2,0	2,0	0,53 E 8
BR 87	55,4 s	0,5	2,5	0,66 E 8
KR 87	1,3 m	0,30 E-1	2,53	0,65 E 8
RB 87	4,7 · 10 ¹⁰ a		2,53	0,38 E-2
BR 88	16 s	2,9	2,9	0,77 E 8
KR 88	2,8 h	0,66	3,56	0,89 E 8
RB 88	17,8 m	0,20 E-1	3,58	0,94 E 8
BR 89	4,5 s	2,8	2,8	0,74 E 8
KR 89	3,1 m	1,79	4,59	0,12 E 9
RB 89	15 m	0,17	4,76	0,13 E 9
SR 89	50,5 d		4,76	0,13 E 9
Y 89 M	16 s		4,76	0,11 E 5
BR 90	1,6 s	3,6	3,6	0,95 E 8
KR 90	32 s	1,4	5,0	0,12 E 9
RB 90	4,3 m	0,81	5,81	0,15 E 9
SR 90	28,1 a	0,20 E-1	5,83	0,14 E 8
Y 90	2,67 d		5,83	0,14 E 8
KR 91	8,4 s	3,45	3,45	0,91 E 8
RB 91	57,4 s	1,98	5,43	0,14 E 9
SR 91	9,7 h	0,38	5,81	0,15 E 9
Y 91 M	50 m		5,81	0,18 E 9
Y 91	58,8 d	0,9 E-1	5,9	0,16 E 9
KR 92	1,9 s	1,87	1,87	0,49 E 8
RB 92	4,4 s	2,63	4,5	0,12 E 9
SR 92	2,71 h	0,8	5,3	0,14 E 9

Nuklid	Halbwertszeit	Spaltausbeute		Aktivität [Ci]
		unabhängig [%]	kumulativ [%]	
Y 92	3,5 h	0,6	5,9	0,16 E 9
KR 93	1,2 s	0,48	0,48	0,13 E 8
RB 93	5,9 s	3,12	3,6	0,95 E 8
SR 93	8 m	2,3	5,9	0,16 E 9
Y 93	10,2 h	0,2	6,1	0,16 E 9
ZR 93	$1,5 \cdot 10^6$ a	0,29	6,39	0,31 E 3
NB 93 M	13,6 a		6,39	0,18 E 2
KR 94	1 s	0,1	0,1	0,26 E 7
RB 94	2,7 s	1,9	2,0	0,53 E 8
SR 94	1,8 m	2,6	4,6	0,12 E 9
Y 94	20 m	0,8	5,4	0,14 E 9
NB 94	$2 \cdot 10^4$ a	0,13 E-5	0,13 E-5	0,47 E 0
KR 95	0,8 s	0,70 E-2	0,70 E-2	0,18 E 6
RB 95	0,36 s	0,673	0,68	0,18 E 8
SR 95	26 s	3,32	4,0	0,11 E 9
Y 95	10,9 m	2,1	6,1	0,16 E 9
ZR 95	65,5 d	0,1	6,2	0,16 E 9
NB 95 M	3,75 d	0,12	6,32	0,64 E 7
NB 95	35 d	0,21	6,53	0,17 E 9
RB 96	0,23 s	0,64 E-3	0,64 E-3	0,17 E 5
SR 96	4 s	0,7	0,7	0,75 E 8
Y 96	2,3 m	5,7	6,4	0,23 E 9
NB 96	23,4 h	0,59 E-3	0,59 E-3	0,16 E 5
KR 97	1 s	0,60 E-4	0,60 E-4	0,16 E 4
RB 97	2 s	0,94 E-3	0,10 E-2	0,26 E 5
SR 97	3 s	0,609	0,61	0,16 E 8
Y 97	6 s	3,89	4,5	0,12 E 9
ZR 97	16,8 h	1,4	5,9	0,63 E 8
NB 97 M	1 m		5,9	0,15 E 9
NB 97	1,23 h	0,3	6,2	0,16 E 9
ZR 98	30,7 s	5,5	5,5	0,15 E 9
NB 98	51 m	0,64 E-1	5,864	0,17 E 7
TC 98	$1,5 \cdot 10^6$ a	0,18 E-6	0,18 E-6	0,86 E-5
ZR 99	1,6 s	4,8	4,8	0,13 E 9
NB 99	2,4 m	1,0	5,8	0,15 E 9

Nuklid	Halbwertszeit	Spaltausbeute		Aktivität [Ci]
		unabhängig [%]	kumulativ [%]	
MO 99	2,78 d	0,36	6,16	0,16 E 9
TC 99 M	6 h		6,16	0,14 E 9
TC 99	$2,1 \cdot 10^5$ a		6,16	0,21 E 4
NB 100	2,8 m	6,2	6,2	0,16 E 9
TC 100	17 s	0,19 E-2	0,19 E-2	0,50 E 5
NB 101	1 m	4,5	4,5	0,12 E 9
MO 101	14,6 m	0,5	5,0	0,13 E 9
TC 101	14 m	0,20 E-1	5,02	0,13 E 9
MO 102	11,5 m	4,17	4,17	0,11 E 9
TC 102	5,3 s		4,17	0,11 E 9
RH 102 M	202 d	0,80 E-6	0,80 E-6	0,21 E 2
MO 103	1,05 m	3,0	3,0	0,79 E 8
TC 103	50 s		3,0	0,79 E 8
RU 103	39,5 d		3,0	0,79 E 8
RH 103 M	57 m		3,0	0,78 E 8
MO 104	1,1 m	1,68	1,68	0,44 E 8
TC 104	18 m	0,13	1,81	0,47 E 8
RH 104	42 s	0,90 E-4	0,90 E-4	0,24 E 4
MO 105	42 s	0,9	0,9	0,24 E 8
TC 105	7,7 m		0,9	0,24 E 8
RU 105	4,4 h		0,9	0,24 E 8
RH 105 M	45 s		0,9	0,49 E 7
RH 105	1,48 d		0,9	0,24 E 8
TC 106	37 s	0,39	0,39	0,10 E 8
RU 106	1,0 a	0,90 E-2	0,399	0,98 E 7
RH 106	30 s		0,399	0,11 E 8
TC 107	29 s	0,18	0,18	0,48 E 7
RU 107	4,2 m	0,10 E-1	0,19	0,50 E 7
RH 107	22 m		0,19	0,50 E 7
PD 107	$7 \cdot 10^6$ a		0,19	0,19 E 1
TC 108	10s	0,56 E-1	0,56 E-1	0,15 E 7
RU 108	4,5 m	0,14 E-1	0,70 E-1	0,18 E 7
RH 108	17 s		0,70 E-1	0,18 E 7
TC 109	10 s	0,24 E-3	0,24 E-3	0,63 E 4
RU 109	34,5 s	0,15 E-1	0,15 E-1	0,40 E 6

Nuklid	Halbwertszeit	Spaltausbeute		Aktivität [Ci]
		unabhängig [%]	kumulativ [%]	
RH 109	30 s	0,30 E-1	0,45 E-1	0,12 E 7
PD 109	13,5 h		0,45 E-1	0,12 E 7
AG 109 M	40 s		0,45 E-1	0,12 E 7
RH 110	5 s	0,18 E-1	0,18 E-1	0,48 E 6
RH 111	1 s	0,19 E-1	0,19 E-1	0,50 E 6
PD 111 M	5,5 h	0,19 E-3	0,19 E-1	0,10 E 5
PD 111	22 m		0,19 E-1	0,50 E 6
AG 111 M	1,2 m		0,19 E-1	0,50 E 6
AG 111	7,5 d		0,19 E-1	0,48 E 6
PD 112	21 h	0,10 E-1	0,10 E-1	0,26 E 6
AG 112	3,2 h		0,10 E-1	0,26 E 6
PD 113	1,5 m	0,16 E-1	0,16 E-1	0,42 E 6
AG 113 M	1,2 m		0,16 E-1	0,42 E 6
AG 113	5,3 h		0,16 E-1	0,21 E 6
CD 113 M	13,6 a	0,12 E-1	0,12 E-1	0,57 E 5
PD 114	2,4 m	0,14 E-1	0,14 E-1	0,37 E 6
AG 114	5,2 s		0,14 E-1	0,37 E 6
PD 115	38 s	0,93 E-2	0,93 E-2	0,25 E 6
AG 115 M	49 s	0,27 E-2	0,12 E-1	0,14 E 6
AG 115	20 m	0,11 E-2	0,13 E-1	0,35 E 6
CD 115 M	43 d	0,70 E-3	0,14 E-1	0,49 E 5
CD 115	2,23 d		0,14 E-1	0,36 E 6
IN 115 M	4,5 h		0,14 E-1	0,36 E 6
IN 115	$6 \cdot 10^{14}$ a		0,14 E-1	0,16 E-8
PD 116	30 s	0,16 E-1	0,16 E-1	0,42 E 6
AG 116	2,5 m	0,120 E-2	0,18 E-1	0,47 E 6
PD 117	5 s	0,76 E-2	0,76 E-2	0,20 E 6
AG 117	42 s	0,34 E-2	0,11 E-1	0,29 E 6
CD 117 M	3,1 h		0,11 E-1	0,15 E 6
CD 117	2,5 h		0,11 E-1	0,23 E 6
IN 117 M	1,95 h		0,11 E-1	0,29 E 6
IN 117	38 m		0,11 E-1	0,13 E 6
AG 118	5,3 s	0,14 E-1	0,14 E-1	0,37 E 6
CD 118	49 m		0,14 E-1	0,37 E 6
IN 118	5 s		0,14 E-1	0,37 E 6

Nuklid	Halbwertszeit	Spaltausbeute		Aktivität [Ci]
		unabhängig [%]	kumulativ [%]	
CD 119	3,4 m	0,14 E-1	0,14 E-1	0,37 E 6
IN 119 M	18 m		0,14 E-1	0,37 E 6
IN 119	2,3 m		0,14 E-1	0,18 E 5
SN 119 M	245 d		0,14 E-1	0,35 E 6
CD 120	1 m	0,13 E-1	0,13 E-1	0,34 E 6
IN 120	3,2 s	0,10 E-2	0,14 E-1	0,37 E 6
CD 121	12,8 s	0,13 E-1	0,13 E-1	0,34 E 6
IN 121 M	3,1 m	0,32 E-2	0,16 E-1	0,26 E 6
IN 121	30 s	0,99 E-3	0,17 E-1	0,19 E 6
SN 121	1,125 d	0,10 E-4	0,17 E-1	0,45 E 6
IN 122	8 s	0,13 E-1	0,13 E-1	0,34 E 6
SB 122	2,68 d	0,65 E-2	0,65 E-2	0,17 E 6
IN 123	6 s	0,16 E-1	0,16 E-1	0,42 E 6
SN 123	129 d		0,16 E-1	0,42 E 6
IN 124	4 s	0,17 E-1	0,17 E-1	0,45 E 6
SB 124	60,3 d	0,14 E-4	0,14 E-4	0,37 E 3
IN 125	17,8 s	0,65 E-2	0,65 E-2	0,17 E 6
SN 125 M	9,7 m	0,67 E-2	0,13 E-1	0,18 E 6
SN 125	9,6 d	0,13 E-1	0,26 E-1	0,51 E 6
SB 125	2,7 a	0,10 E-3	0,26 E-1	0,28 E 6
TE 125 M	58 d	0,63 E-2	0,33 E-1	0,48 E 6
SN 126	10 ⁵ a	0,31 E-1	0,31 E-1	0,22 E 2
SB 126 M	19 m		0,31 E-1	0,22 E 2
SB 126	2,4 d	0,10 E-2	0,32 E-1	0,26 E 5
J 126	12,8 d	0,50 E-5	0,50 E-5	0,13 E 3
SN 127	2,1 h	0,11	0,11	0,29 E 7
SB 127	3,8 d	0,27 E-1	0,14	0,36 E 7
TE 127	109 d	0,35 E-1	0,17	0,17 E 7
TE 127	9,4 h		0,17	0,45 E 7
SN 128	59 m	0,37	0,37	0,98 E 7
SB 128 M	10 m	0,40 E-1	0,41	0,95 E 7
SB 128	9,3 h	0,50 E-1	0,46	0,16 E 7
J 128	25 m	0,38 E-4	0,38 E-4	0,10 E 4
SN 129	8,8 m	0,45	0,45	0,12 E 8
SB 129	4,3 h	0,55	1,0	0,26 E 8

Nuklid	Halbwertszeit	Spaltausbeute		Aktivität [Ci]
		unabhängig [%]	kumulativ [%]	
TE 129 M	34,1 d	0,35	1,35	0,13 E 8
TE 129	1,15 h	0,25 E-1	1,38	0,32 E 8
J 129	$1,7 \cdot 10^7$ a	0,20 E-3	1,38	0,57 E 1
SN 130	2,6 m	1,1	1,1	0,29 E 8
SB 130 M	6 m		1,1	0,15 E 8
SB 130	37 m	0,9	2,0	0,38 E 8
J 130	12,3 h	0,12 E-2	0,12 E-2	0,31 E 5
CS 130	29,1 m	0,10 E-4	0,10 E-4	0,26 E 3
SN 131	1,3 m	1,28	1,28	0,34 E 8
SB 131	23 m	1,42	2,7	0,71 E 8
TE 131 M	1,25 d	0,44	3,14	0,16 E 8
TE 131	25 m	0,1	2,8	0,70 E 8
J 131	8,05 d	0,11	2,91	0,77 E 8
XE 131 M	11,8 d	0,17 E-1	2,927	0,91 E 6
CS 131	9,7 d	0,15 E-4	0,15 E-4	0,39 E 3
SN 132	1 m	0,59	0,59	0,16 E 8
SB 132	3,13 m	2,76	3,35	0,88 E 8
TE 132	3,25	0,91	4,16	0,11 E 9
J 132	2,4 h		4,16	0,11 E 9
CS 132	6,5 d	0,22 E-4	0,22 E-4	0,58 E 3
SN 133	55 s	0,15 E-1	0,15 E-1	0,39 E 6
SB 133	2,7 m	3,385	3,4	0,89 E 8
TE 133 M	54 m	1,3	4,7	0,98 E 8
TE 133	12,5 m	1,658	6,358	0,82 E 8
J 133	20,8 h	0,332	6,69	0,18 E 9
XE 133 M	2,2 d	0,16	6,69	0,8 E 7
XE 133	5,65 d		6,69	0,18 E 9
SB 134	1,5 s	0,32	0,32	0,84 E 7
TE 134	43 m	6,58	6,9	0,18 E 9
J 134	52 m	0,9	7,8	0,21 E 9
CS 134	2,05 a	0,40 E-3	0,40 E-3	0,78 E 4
SB 135	1,6 s	0,75	0,75	0,19 E 8
TE 135	29 s	2,65	3,4	0,90 E 8
J 135	6,7 h	2,77	6,17	0,16 E 9
XE 135 M	15,6 m	1,8	6,17	0,91 E 8

Nuklid	Halbwertszeit	Spaltausbeute		Aktivität [Ci]
		unabhängig [%]	kumulativ [%]	
XE 135	9,15 h	0,13	6,3	0,16 E 9
CS 135	$2 \cdot 10^6$ a	0,13	6,43	0,17 E 3
TE 136	33 s	1,65	1,65	0,44 E 8
J 136	1,38 m	3,1	4,75	0,13 E 9
CS 136	12,9 d	0,60 E-2	0,60 E-2	0,16 E 6
J 137	24 s	4,5	4,5	0,12 E 9
XE 137	3,9 m	1,5	6,0	0,16 E 9
CS 137	30 a	0,2	6,2	0,14 E 8
BA 137 M	2,55 m		0,2	0,13 E 8
J 138	6 s	3,1	3,1	0,82 E 8
XE 138	14,1 m	2,8	5,9	0,16 E 9
CS 138	32,3 m	0,806	6,706	0,18 E 9
LA 138	$1,1 \cdot 10^{11}$ a	0,33 E-3	0,33 E-3	0,22 E-6
J 139	2,7 s	1,5	1,5	0,39 E 8
XE 139	41 s	3,9	5,4	0,14 E 9
CS 139	9 m	1,07	6,47	0,17 E 9
BA 139	1,38 h	0,10 E-1	6,48	0,17 E 9
J 140	0,8 s	1,9	1,9	0,50 E 8
XE 140	13,5 s	1,9	3,8	0,15 E 9
CS 140	1,05 m	2,1	5,9	0,21 E 9
BA 140	12,8 d	0,4	6,3	0,22 E 9
LA 140	1,675 d	0,40 E-1	6,34	0,22 E 9
XE 141	1,7 s	1,33	1,33	0,35 E 8
CS 141	24 s	3,27	4,6	0,12 E 9
BA 141	18 m	1,5	6,1	0,16 E 9
LA 141	3,9 h		6,1	0,16 E 9
CE 141	32,5 d		6,1	0,16 E 9
XE 142	1,2 s	0,35	0,35	0,92 E 7
CS 142	2,3 s	2,95	3,3	0,87 E 8
BA 142	11 m	2,49	5,79	0,15 E 9
LA 142	1,54 h	0,50 E-1	5,84	0,15 E 9
PR 142	19,2 h	0,29 E-3	0,29 E-3	0,76 E 4
XE 143	1 s	0,51 E-1	0,51 E-1	0,13 E 7
CS 143	1,6 s	1,549	1,6	0,42 E 8
BA 143	13,2 s	3,6	5,2	0,14 E 9

Nuklid	Halbwertszeit	Spaltausbeute		Aktivität [Ci]
		unabhängig [%]	kumulativ [%]	
LA 143	14 m	0,68	5,88	0,16 E 9
CE 143	1,39 d	0,30 E-1	5,91	0,16 E 9
PR 143	13,6 d		5,91	0,16 E 9
XE 144	1 s	0,60 E-2	0,60 E-2	0,16 E 6
CS 144	1,1 s	0,494	0,5	0,13 E 8
BA 144	11,9 s	3,7	4,2	0,11 E 9
LA 144	41 s	1,0	5,2	0,14 E 9
CE 144	284 d	0,2	5,4	0,14 E 9
PR 144	17,3 m		5,4	0,14 E 9
ND 144	$2,1 \cdot 10^{15} \text{ a}$		5,4	0,14 E-6
CE 145	3 m	3,88	3,88	0,10 E 9
PR 145	5,98 h	0,2	4,08	0,10 E 9
CE 146	13,9 m	2,88	2,88	0,76 E 8
PR 146	24 m	0,70 E-1	2,95	0,78 E 8
PM 146	5,53 a	0,14 E-3	0,14 E-3	0,15 E 4
CE 147	1,2 m	2,0	2,0	0,53 E 8
PR 147	12 m	0,19	2,19	0,58 E 8
ND 147	11,1 d		2,19	0,58 E 8
PM 147	2,62 a		2,19	0,37 E 8
SM 147	$1,08 \cdot 10^{11} \text{ a}$		2,19	0,54 E-3
CE 148	43 s	1,3	1,3	0,34 E 8
PR 148	1,98 m	0,35	1,65	0,44 E 8
PM 148	5,4 d	0,20 E-3	0,20 E-3	0,53 E 4
PR 149	2,3 m	0,52	0,52	0,14 E 8
ND 149	1,73 h	0,52	1,04	0,41 E 8
PM 149	2,2 d		1,04	0,41 E 8
PM 150	2,7 h	0,14 E-2	0,14 E-2	0,37 E 5
EU 150	6,2 a	0,50 E-2	0,50 E-2	0,47 E 5
ND 151	12 m	0,42	0,42	0,11 E 8
PM 151	1,2 d	0,10 E-1	0,43	0,11 E 8
SM 151	87 a		0,43	0,35 E 6
PM 152	6 m	0,24	0,24	0,63 E 7
EU 152	12,4 a	0,13 E-4	0,13 E-4	0,68 E 2
PM 153	5,5 m	0,148	0,148	0,39 E 7
SM 153	1,95 d	0,10 E-1	0,158	0,42 E 7

Nuklid	Halbwertszeit	Spaltausbeute		Aktivität [Ci]
		unabhängig [%]	kumulativ [%]	
PM 154	1,6 m	0,60 E-1	0,60 E-1	0,16 E 7
EU 154	16 a	0,60 E-4	0,60 E-4	0,13 E 4
SM 155	22,4 m	0,31 E-1	0,31 E-1	0,82 E 6
EU 155	1,81 a		0,31 E-1	0,64 E 6
SM 156	9,4 h	0,13 E-1	0,13 E-1	0,34 E 6
EU 156	15,1 d	0,40 E-3	0,13 E-1	0,35 E 6
SM 157	30 s	0,57 E-2	0,57 E-2	0,15 E 6
EU 157	15,1 h	0,90 E-3	0,66 E-2	0,17 E 6
EU 158	46 m	0,37 E-2	0,37 E-2	0,98 E 5
TB 158	150 a	0,10 E-7	0,10 E-7	0,47 E-1
EU 159	18 m	0,11 E-2	0,11 E-2	0,28 E 5
GD 159	18,56 h		0,11 E-2	0,28 E 5
EU 160	40 s	0,25 E-3	0,25 E-3	0,66 E 4
TB 160	72,1 d	0,30 E-5	0,30 E-5	0,79 E 2
GD 161	3,6 m	0,78 E-4	0,78 E-4	0,20 E 4
TB 161	6,9 d	0,40 E-5	0,82 E-4	0,21 E 4

Tabelle A 2 Nicht berücksichtigte Verzweigungsfaktoren wegen verzögerter Neutronenstrahlung

Nuklid	T_H	Reaktion und Verzweigungsfaktor (falls bekannt)	Produkt	T_H
AS 85	2,2 sec	$\xrightarrow{n \beta}$	SE 84	3,3 min
BR 87	55,4 sec	$\xrightarrow{n \beta}$	KR 86	stabil
BR 88	16 sec	3,1 % $\xrightarrow{n \beta}$	KR 87	1,3 min
BR 89	4,5 sec	6 % $\xrightarrow{n \beta}$	KR 88	2,8 h
BR 90	1,6 sec	7 % $\xrightarrow{n \beta}$	KR 89	3,1 min
J 137	24 sec	$\xrightarrow{n \beta}$	XE 136	stabil
J 138	6 sec	3 % $\xrightarrow{n \beta}$	Xe 137	3,9 min
J 139	2,7 sec	2 % $\xrightarrow{n \beta}$	Xe 138	14,1 min
		10 %		

Tabelle A 3 Nicht berücksichtigte angeregte Zustände

n bedeutet: Die Spaltausbeute konnte in der Literatur nicht ermittelt werden.

f bedeutet: Der Verzweigungsfaktor konnte in der Literatur nicht ermittelt werden.

Nuklid	Halbwertszeit	Verzweigungsfaktor	Spaltausbeute
BR 79 M	4,9 sec	bekannt	η
BR 80 M	4,5 h	bekannt	η
SE 81 M	57 min	f	bekannt
BR 82 M	6,1 min	bekannt	η
RB 86 M	1 min	bekannt	η
RB 90 M	4,3 min	f	η
Y 90 M	3,2 h	bekannt	η
RB 91 M	14 min	f	η
NB 99 M	10 sec	bekannt	η
TC 102 M	4,5 min	bekannt	η
RH 102 M	2,9 a	bekannt	η
RH 104 M	4,4 min	bekannt	η
RH 109 M	50 sec	f	η
PD 109 M	4,7 min	bekannt	η
CD 113 M	13,6 a	bekannt	η
IN 118 M	4,4 min	f	η
CD 119 M	2,7 min	f	η
IN 120 M	3,2 sec	f	η
SN 121 M	76 a	f	η
IN 123 M	36 sec	f	η
SN 123 M	40 min	f	η
SB 124 M1	21 min	f	η
SB 124 M2	1,5 min	f	η
SN 127 M	4,1 min	bekannt	η
SN 129 M	1 min	bekannt	η
J 130 M	9,2 min	f	η
PM 148 M	42 d	bekannt	η

Tabelle A 4 Liste der betrachteten Elemente

Kühlmittel:	1 H (T)	50 SN
		51 SB
Aktivierungs-		52 TE
produkte:	24 CR	53 J
	25 MN	54 XE
	26 FE	55 CS
	27 CO	56 BA
	28 NI	57 LA
		58 CE
Spaltprodukte:	30 ZN	59 PR
	31 GA	60 ND
	32 GE	61 PM
	33 AS	62 SM
	34 SE	63 EU
	35 BR	64 GD
	36 KR	65 TB
	37 RB	
	38 SR	Brennstoff: 92 U
	39 Y	
	40 ZR	93 NP
	41 NB	Brutstoff: 94 PU
	42 MO	
	43 TC	
	44 RU	
	45 RH	
	46 PD	
	47 AG	
	48 CD	
	49 IN	

Tabelle A 5 Einordnung der Elemente in das Periodische System

1. Gruppe	2. Gruppe	3. Gruppe	4. Gruppe	5. Gruppe	6. Gruppe	7. Gruppe	8. Gruppe
1 H		31 GA	32 GE	33 AS	34 SE	35 BR	36 KR
37 RB	38 SR	49 IN	50 SN	51 SB	52 TE	53 J	54 XE
55 CS	56 BA				24 CR	25 MN	26FE 27CO 28NI
	30 ZN	39 Y	40 ZR	41 NB	42 MO	43 TC	44RU 45RH 46PD
47 AG	48 CD	57 LA					

Lanthaniden:	58 CE	59 PR	60 ND	61 PM	62 SM	63 EU	64 GD
	65 TB						
Aktiniden:	92 U	93 NP	94 PU				