

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

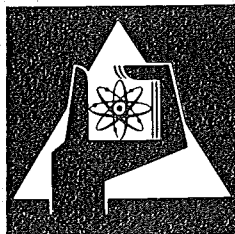
November 1973

KFK 1918

Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit
Projekt Nukleare Sicherheit

**Experimente am Kernforschungszentrum Karlsruhe zur
Bestimmung der atmosphärischen Ausbreitung mit Hilfe
verschiedener Leitsubstanzen**

L.A. König, K. Nester, H. Schüttelkopf, M. Winter



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1918

Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit
Projekt Nukleare Sicherheit

Experimente am Kernforschungszentrum Karlsruhe zur Bestimmung
der atmosphärischen Ausbreitung mit Hilfe verschiedener Leit-
substanzen*

L.A. König, K. Nester, H. Schüttelkopf und M. Winter

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

* Deutsche Fassung des Beitrages IAEA-SM-181/4 zum IAEA-WMO-
Symposium "On the Physical Behaviour of Radioactive
Contaminants in the Atmosphere", Wien, 12.-16. November 1973

Zusammenfassung

Es wird über die am Kernforschungszentrum Karlsruhe laufenden Experimente zur Bestimmung der atmosphärischen Ausbreitung berichtet. Ziel dieser Versuche ist die experimentelle Prüfung der für Sicherheitsbetrachtungen erforderlichen Ausbreitungsrechnungen. Als Leitsubstanzen dienten tritierter Wasserdampf und Tetrachlorkohlenstoff. Sie wurden der Abluft eines 100 m hohen Reaktorkamins gleichzeitig beigemischt. Die Probenahme- und Meßtechnik wird geschildert. Die die Ausbreitung der Leitsubstanzen beschreibenden Parameter werden aus den Meßergebnissen durch graphische und rechnerische Auswertungen bestimmt. Die experimentell ermittelten Parameter wurden mit den entsprechenden Pasquill-Gifford'schen verglichen. Das wesentliche Ergebnis dieses Vergleichs ist die Verschiebung der Lage des radialen Konzentrationsmaximums zur Quelle hin sowie die Zunahme des Betrages dieses Maximums gegenüber den aufgrund der diagnostizierten Pasquill'schen Diffusionskategorien zu erwartenden Werten.

Experiments Conducted at the Karlsruhe Nuclear Research Center to Determine Diffusion in the Atmosphere by means of Various Tracers

Abstract

Experiments on atmospheric diffusion are reported which are currently performed at the Karlsruhe Nuclear Research Center. The objective of these experiments consists in verifying experimentally the diffusion calculations required for safety considerations. Tritiated water vapor and carbon tetrachloride were used as tracers. They were simultaneously mixed to the exhaust air from a 100 m high reactor stack. A description is given of the sampling and measuring technique. The parameters describing the diffusion behavior of the tracers are assessed from the measured results through graphic and computational evaluations. The experimentally determined parameters were compared to the respective Pasquill-Gifford parameters. The significant result of this comparison is the shifting towards the source of the position of the radial concentration maximum as well as the increase in amount of this maximum relative to the values anticipated on the basis of the diagnosed Pasquill diffusion categories.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1.	Einleitung 1
2.	Durchführung der Ausbreitungs- experimente 3
2.1	Emission der Leitsubstanzen 3
2.2	Probenahme- und Meßtechnik zur Bestimmung der Konzentrationen der Leitsubstanzen in der Umgebung 4
2.2.1	Tritiiertes Wasserdampf als Leitsubstanz 4
2.2.2	Tetrachlorkohlenstoff als Leitsubstanz 5
2.3	Aufbau des Versuchsfeldes und or- ganisatorische Durchführung der Ausbreitungsexperimente 6
3.	Ergebnisse der Versuche 8
3.1	Vorbemerkungen zur Auswertung 8
3.2	Graphische Auswertung 9
3.3	Rechnerische Auswertung 13
4.	Diskussion der Versuchsergebnisse 15
5.	Literatur 19
6.	Abbildungen 20

1. Einleitung

Voraussetzung für eine zuverlässige Abschätzung der Umweltbelastung durch Emissionen radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen ist die Kenntnis ihrer Ausbreitung in der Atmosphäre. Zur Beschreibung der atmosphärischen Ausbreitung von Schadstoffen wird häufig der zeit- und ortsabhängige Ausbreitungsfaktor $\chi(\vec{r}, t)$ verwendet. Er ist durch das Verhältnis von Schadstoffkonzentration $C(\vec{r}, t)$ zur konstanten Emissionsrate A definiert:

$$\chi(\vec{r}, t) = \frac{C(\vec{r}, t)}{A} \quad . \quad (1)$$

Da zu erwarten ist, daß die atmosphärische Ausbreitung stark durch standortspezifische topographische Gegebenheiten beeinflusst wird, ist eine experimentelle Überprüfung der Übertragbarkeit der an anderen Standorten gewonnenen Erfahrungen von Interesse. Am Kernforschungszentrum Karlsruhe wird ein Versuchsprogramm durchgeführt, das vier Ziele verfolgt:

1. Die Bestimmung von standortspezifischen Kurzzeit-Ausbreitungsfaktoren durch Messung der bodennahen Konzentration im Ausbreitungsfeld.
2. Die Ermittlung standortspezifischer Diffusionsparameter σ_y und σ_z für Ausbreitungsformeln zur Berechnung von Ausbreitungsfaktoren und davon abhängiger Größen wie z.B. γ -Dosisleistung oder Schadstoffablagerung in der Umgebung des Emittenten.
3. Die Aufstellung möglichst einfacher empirischer Regeln durch einen Vergleich mit den bekannten Pasquill-Gifford'schen

"Normkurven", um bei einer gegebenen meteorologischen Situation möglichst rasch realistische Abschätzungen der zu erwartenden Konzentrationsverteilungen machen zu können [1-4].

4. Das Sammeln von Informationen über solche Ausbreitungsverhältnisse, die von bekannten Ausbreitungsformeln nicht oder nur unzureichend beschrieben werden.

Ausbreitungsexperimente sind nur mit Leitsubstanzen möglich, deren Konzentration in der Umgebung mit vernünftigem Aufwand hinreichend empfindlich gemessen werden kann. Ferner darf eine Vorbelastung der Atmosphäre mit einer solchen Substanz weder aufgrund ihrer Höhe noch ihrer Heterogenität zu einer Verfälschung der Meßergebnisse führen. Schließlich müssen die in der Umgebung auftretenden Konzentrationen der Leitsubstanz unschädlich sein und dürfen zu keiner Belästigung in dem beaufschlagten Gebiet führen.

Bei den am Kernforschungszentrum Karlsruhe durchgeführten Ausbreitungsexperimenten wurde seit 1969 tritierter Wasserdampf verwendet. Über die Ergebnisse der ersten 12 Versuche wurde in [5] berichtet. Aufgrund gelegentlicher, nicht unerheblicher Tritiumableitungen aus dem Kernforschungszentrum, ist das Studium der atmosphärischen Ausbreitung gerade dieser Substanz von besonderem Interesse.

Für die Zukunft ist darüberhinaus die gleichzeitige Emission verschiedener Leitsubstanzen in mehreren Höhen beabsichtigt. Um an einer Stelle im Versuchsfeld mit nur einer Probe auskommen zu können, ist die Trennung der Leitsubstanzen erforderlich. Weil entsprechende meßtechnische Erfahrungen vorlagen, bietet sich für die Trennung die gaschromatographische Analyse an. In Verbindung mit einem Electron-Capture-Detektor eignen sich als Leitsubstanz besonders halogenierte Kohlenwasserstoffe. Seit 1973 wurde als erste Substanz dieser Art CCl_4 für Ausbreitungsexperimente eingesetzt. Zum Zweck des Vergleichs wurden ab

Versuch Nr. 13 zunächst beide Substanzen, HTO und CCl_4 , gleichzeitig verwendet.

Das laufende Versuchsprogramm ist noch weit von einem Abschluß entfernt. Dennoch haben sich bereits Ergebnisse abgezeichnet, die es wert sind, zugänglich gemacht zu werden.

2. Durchführung der Ausbreitungsexperimente

2.1 Emission der Leitsubstanzen

Die Emission erfolgte bei allen Ausbreitungsexperimenten über einen 100 m hohen Abluftkamin mit einer Abluftleistung von rund $10^5 \text{ m}^3/\text{h}$ und einem Mündungsdurchmesser von 3 m. Die beiden Leitsubstanzen, tritiiertes Wasser und Tetrachlorkohlenstoff, wurden in Dampfform der Abluft gleichzeitig beigemischt.

Für HTO ergibt sich die Emissionsrate $\dot{A}(t)$ als Produkt aus der gemessenen Tritiumkonzentration C_K im Verdampfungskessel, der Dichte ρ und der zeitlichen Volumenabnahme $\frac{dV}{dt}$ des tritiierten Wassers:

$$\dot{A}_{\text{HTO}}(t) = C_K \cdot \rho_{\text{H}_2\text{O}} \cdot \frac{dV}{dt} \quad (2)$$

Für die Emissionsrate CCl_4 gilt analog:

$$\dot{A}_{\text{CCl}_4}(t) = \rho_{\text{CCl}_4} \cdot \frac{dV}{dt} \quad (3)$$

Anheizzeit, Verdampfungsbeginn und -ende sowie die Verdampfungsgeschwindigkeit $\rho \cdot \frac{dV}{dt}$ wurden durch Druck- und Temperaturmessungen im Verdampfungskessel und durch Wägungen des Kessels während der Verdampfung bestimmt. Diese Messungen zeigten, daß die Verdampfungsgeschwindigkeiten und damit auch die Emissionsraten während der Ausbreitungsexperimente zeitlich konstant waren. Die Emissionsraten betragen für den tritiierten Wasserdampf rund 4 Ci/h bei einer Verdampfungsgeschwindigkeit von rund 6 kg/h.

Der Anteil der versuchsbedingten Wasserdampfbeimengung beträgt nur etwa 6 ‰ der mit der Abluft ohnehin emittierten Wasserdampfmenge.

Bei CCl_4 lagen die Emissionsraten zwischen 4 und 13 kg/h (siehe Tab. 1). Die Emissionsdauer betrug jeweils knapp 2,5 Stunden.

2.2 Probenahme- und Meßtechnik zur Bestimmung der Konzentrationen der Leitsubstanzen in der Umgebung

2.2.1 Tritiiertes Wasserdampf als Leitsubstanz

Als Probenahmetechnik zur Bestimmung der Tritiumkonzentration im Lee der Quelle bot sich das Ausfrieren der Luftfeuchte an kalten Oberflächen an. Als besonders praktikabel hat sich das Auflegen von Aluminiumplatten auf Trockeneisriegel erwiesen. Die sich an der Oberfläche dieser Platten rasch bildende Schneeschicht kann leicht abgeschabt und in eine Probeflasche überführt werden. Als Luftfeuchte-Sammelperiode wurde ein Zeitraum von 30 min gewählt.

Die Tritiumkonzentration $\overline{C_F(\vec{r})}$ einer auf diese Weise gewonnenen Luftfeuchteprobe wird mit Hilfe eines Flüssigszintillationspektrometers bestimmt. Bei 50 min Meßzeit und einer Meßgutmenge von 4 g Luftfeuchte lassen sich je nach Zählwirkungsgrad, der probenindividuell bestimmt wird, Nachweisgrenzen im Bereich von ca. 1 pCi/g erzielen. Eine ausführlichere Darstellung der angewandten Meß- und Probenahmetechnik wurde bereits in [5] und [6] gegeben.

Für eine Sammelstelle mit dem Ortsvektor \vec{r} und für eine Sammelperiode ergibt sich aus der Tritiumkonzentration $\overline{C_F(\vec{r})}$ der Luftfeuchte und der absoluten Feuchte $\overline{f_{\text{abs}}}$ der Außenluft der halbstündige Mittelwert der Tritiumkonzentration $\overline{C(\vec{r})}$ der Luft aus der Beziehung

$$\overline{C(\vec{r})} = \overline{f_{\text{abs}}} \cdot \overline{C_F(\vec{r})} \quad (4)$$

Der Wert der absoluten Luftfeuchte konnte während der Experimente innerhalb einer Sammelperiode von 30 min Dauer und innerhalb der auf wenige Kilometer begrenzten Ausdehnung des Versuchsfeldes als zeitlich und räumlich nahezu konstant angesehen werden.

Aus den Meßgrößen in den Gleichungen (2) und (4) läßt sich der zeitliche Mittelwert $\chi(\vec{r})$ des Ausbreitungsfaktors entsprechend Gl. (1) für jede Sammelstelle des Versuchsfeldes bestimmen. Die Nachweisgrenze für den experimentell bestimmten Ausbreitungsfaktor $\chi(\vec{r})$ lag, variierend mit der Höhe der absoluten Luftfeuchte während der Experimente, bei einigen 10^{-9} s/m³ und damit rund um den Faktor 10^3 unter den gemessenen Höchstwerten.

2.2.2 Tetrachlorkohlenstoff als Leitsubstanz

Die Probenahme zur Bestimmung der CCl₄-Konzentration im Lee der Quelle erfolgt mit Hilfe von evakuierten Glasgefäßen durch Ansaugen von Luft während einer Sammelperiode von 30 min Dauer. Eine geeignete Kapillare am Probenahmegefäß ermöglicht eine konstante Geschwindigkeit der Probenahme und damit eine zeitlich lineare Mittelung der Konzentration von CCl₄ in der Luftprobe. Der nach der Probenahme im Gefäß noch verbliebene Unterdruck wird im Labor durch Zugabe von Reinststickstoff entspannt. Das CCl₄ wird in Toluol gelöst. Ein Teil dieser Lösung wird zur gaschromatographischen Analyse verwendet. Durch diese wird eine Trennung des CCl₄ von den in den Luftproben enthaltenen anderen Substanzen erreicht. Die CCl₄-Menge wird mit einem Electron-Capture-Detektor gemessen. Nach Abzug des in Blindproben gemessenen CCl₄-Untergrundes ergibt sich hieraus und aus der gesammelten Luftmenge die durch die Emission bedingte CCl₄-Konzentration der Luft $C(\vec{r})$ an der Sammelstelle. Aus $C(\vec{r})$ und der mit der Verdampfungsrate identischen Quellstärke \dot{A} (siehe Gl. (3)) wird der Ausbreitungsfaktor $\chi(\vec{r})$ nach Gl. (1) berechnet.

Bei den Ausbreitungsexperimenten Nr. 18 und 19 konnte durch methodische Verbesserungen die Nachweisgrenze für die CCl_4 -Konzentration in Luft um den Faktor 14 gegenüber jener für das Experiment Nr. 15 gesenkt werden. Sie beträgt nunmehr $0,32 \cdot 10^{-13}$ g CCl_4/cm^3 unter der Voraussetzung, daß eine Analysenzeit von 5 Minuten nicht überschritten werden soll. Die konstante Umgebungsbelastung mit CCl_4 beträgt $5,0 \cdot 10^{-13}$ g CCl_4/cm^3 . Der Einsatz anderer Leitsubstanzen wurde vorbereitet. Die Arbeiten an diesem Verfahren werden bis zur Durchführung von Ausbreitungsexperimenten mit mehreren Tracern fortgesetzt.

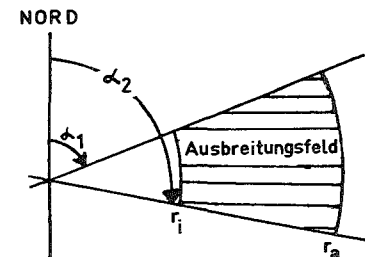
2.3 Aufbau des Versuchsfeldes und organisatorische Durchführung der Ausbreitungsexperimente

Die Ausbreitungsexperimente erfordern einen erheblichen personellen und organisatorischen Aufwand, da jede Sammelstelle im freien Gelände betreut werden muß. Es hat sich daher als notwendig erwiesen, den Zeitpunkt eines beabsichtigten Ausbreitungsexperimentes im voraus festzulegen. Dies hat jedoch den Vorteil, daß über Lage und Öffnungswinkel des Versuchssektors erst kurzfristig vor Versuchsbeginn entschieden werden muß und somit jüngste meteorologische Daten dabei berücksichtigt werden können.

Bei den 7 Ausbreitungsversuchen, über die hier berichtet wird, konnten jeweils 25 Sammelstellen im Versuchsfeld aufgebaut werden. Die 25 Sammelstellen wurden zu je 5 Sammelstellen auf 5 Ringsektorzonen unterschiedlicher Radien verteilt, wie Abb. 1 am Beispiel von Versuch Nr. 15 zeigt. Die Verteilung der Sammelstellen innerhalb einer vorgegebenen Ringsektorzone hatte sich sowohl an der Auffindbarkeit im Gelände einer auf der Karte fixierten Stelle zu orientieren als auch an der Qualität dieser Stelle hinsichtlich der Gewährleistung einer ausreichenden vertikalen Luftdurchmischung. Beide Bedingungen sind im Waldgebiet (s. Abb. 2) oft nur schwer zu erfüllen.

fort- lau- fende Ver- suchs- Nr.	Datum 1973	Zur Wetterlage während des Versuchs						Versuchsfeld					Emissions- rate \dot{A}		Zahl der Proben	
		Diffusions- kategorie		Windgeschw. in 60 m H.		absolute Luftfeuchte		Begrenzungs- radien		Winkel gegen Nord in Grad			HTO	CCl ₄	HTO	CCl ₄
		progn.	diagn.	in m/s		in g/m ³		r_i	r_a	α_1	α_2	$\Delta\alpha$	Ci/h	kg/h		
13	11.1.	D/C	C/D	3,8	5,2	3,3	3,4	0,78	4,30	277	315	38	3,64	5,9	75	75
14	25.1.	C/D	C/D	4,0	5,7	3,6	3,7	0,54	2,21	216	264	48	3,77	6,3	75	50
15	8.2.	C/D	D	4,0	6,3	5,4	5,5	0,47	2,09	24	74	50	3,99	7,1	75	75
16	22.2.	D	D	4,8	7,4	5,0	5,1	0,63	4,02	67	108	41	4,10	3,8	50	50
17	8.3.	D	C/D	5,8	7,8	5,5	5,8	0,10	0,93	150	218	68	4,29	-	75	-
18	20.3.	C	B/C	2,1	3,8	4,2	4,3	0,37	2,03	161	233	72	4,42	7,0	75	75
19	22.5.	B	B	2,0	3,4	9,0	9,3	0,13	1,52	68	162	94	3,76	12,9	75	75

Tab. 1 Versuchsbedingungen



Die Radien der Ringsektorzonen wurden entsprechend der jeweils jüngsten vor dem Start eines Ausbreitungsexperimentes verfügbaren Prognose der Diffusionskategorie festgelegt. Zur Fixierung der azimutalen Lage des Versuchsfeldes diente die Prognose der mittleren Windrichtung für die geplante Versuchsdauer.

Nähere Angaben zu den Experimenten wie Datum der Versuche, meteorologische Daten, Lage und Ausdehnung des Versuchsfeldes, Emissionsraten und die Zahl der pro Experiment gewonnenen Proben wurden in Tab. 1 zusammengestellt.

Erwartungsgemäß stimmten bei den Experimenten die für den Versuchszeitraum vorhergesagten Diffusionskategorien ("Prognose") und die nach dem Versuch anhand der am meteorologischen 200 m-Mast gemessenen tatsächlichen Daten ("Diagnose") nicht genau überein (s. Tab. 1) [3, 7, 8]. Als noch schwieriger erwies sich die ca. 1 Stunde vor Versuchsbeginn zu erstellende Prognose der mittleren Windrichtung für den anderthalbstündigen Versuchszeitraum, so daß die Lage des Versuchsfeldes entsprechend diesen unvermeidbaren Diskrepanzen nicht immer optimal gewählt war.

Abb. 2 zeigt die von den 7 Ausbreitungsexperimenten erfaßten Gebiete in der Umgebung des KFZK, Außer bei den Versuchen Nr. 13 und 17 lagen die Versuchsfelder stets nahezu völlig in bewaldetem Gebiet.

Die bereits beschriebenen Probenahmetechniken erlauben die Probenahme in mehreren, sich aneinander anschließenden Sammelperioden. So konnten an den gleichen Sammelstellen fast immer 3 Sammelperioden hindurch HTO- und CCl_4 -Proben gesammelt werden. Pro Ausbreitungsexperiment konnten deshalb bis zu 75 Einzelmeßwerte gewonnen werden.

3. Ergebnisse der Versuche

3.1 Vorbemerkungen zur Auswertung

Hier soll über die Versuche Nr. 13 bis 19 berichtet werden, bei denen erstmals 2 Leitsubstanzen gleichzeitig eingesetzt wurden.

Eine Auswertung der Versuche mit den nachfolgend beschriebenen Verfahren ist nur dann sinnvoll, wenn sich die experimentell ermittelten $\chi(\vec{r})$ -Werte wenigstens annähernd durch eine bei Sammelperioden von 30 Minuten Dauer theoretisch zu erwartende Gaußverteilung beschreiben lassen. Dies war nur bei den Versuchen Nr. 13 bis 17 der Fall, die sich den Kategorien D und C/D zuordnen ließen. Als besonders schönes Beispiel enthält Abb. 3 die Ergebnisse des Versuchs Nr. 15, Sammelperiode 2, in Form von Isolinien des Ausbreitungsfaktors $\chi(\vec{r})$. Bei den labileren Ausbreitungsbedingungen während der Versuche Nr. 18 und 19 traten starke Änderungen der Ausbreitungsrichtung auf. Dies hatte zur Folge, daß entweder nur eine Flanke der $\chi(\vec{r})$ -Verteilung erfaßt wurde oder zumindest die $\chi(\vec{r})$ -Verteilung kaum noch einer Gaußverteilung ähnelte. Ein Beispiel für den letzteren Fall ist die $\chi(\vec{r})$ -Verteilung für die 3. Sammelperiode des Versuchs Nr. 18 (s. Abb. 4).

Um die $\chi(\vec{r})$ -Werte verschiedener Sammelperioden oder Versuche direkt vergleichen zu können, wurde der normierte Ausbreitungsfaktor $\bar{\chi}\bar{u}$ in den nachfolgenden Auswertungen eingeführt. Diese Normierung erscheint berechtigt, da ihr die übliche theoretische Annahme zugrundeliegt, daß $\chi(\vec{r})$ und \bar{u} zueinander umgekehrt proportional sind. Dem Betrag nach bedeutet dies eine Normierung auf $\bar{u} = 1$ m/s.

Für die Bestimmung von $\bar{\chi}\bar{u}$ wurde der 30 min-Mittelwert der in 60 m Höhe gemessenen Windgeschwindigkeit verwendet. Dieser Wert entspricht gut der über die Quellhöhe gemittelten Windgeschwindigkeit.

Die graphische Auswertung liefert rasch und ohne großen rechnerischen Aufwand die für praktische Sicherheitsbetrachtungen wesentlichen Ergebnisse der Experimente. Es schien uns deshalb sinnvoll, neben der rechnerischen auch die graphische Auswertungsmethode darzustellen.

3.2 Graphische Auswertung

Jedes Ausbreitungsexperiment lieferte als unmittelbares Versuchsergebnis bei 3 nacheinander durchgeführten Sammelperioden 3 Konzentrationsverteilungen innerhalb des Versuchsfeldes für beide

Leitsubstanzen. Aus den Meßgrößen Konzentration $\overline{C(\vec{r})}$, Quellstärke \dot{A} und Windgeschwindigkeit \bar{u} wurden zunächst für alle 25 Sammelstellen und für jede Sammelperiode die normierten Ausbreitungsfaktoren $\overline{\chi\bar{u}}$ berechnet. Zur graphischen Auswertung wurden für jede Sammelperiode und für jede der konzentrischen Ringsektorzonen (siehe Abb. 1) die normierten Ausbreitungsfaktoren mit den zugehörigen 2σ -Meßfehlern über den Winkelkoordinaten α der Sammelstellen in Diagramme eingetragen. Damit erhält man für jede Ringsektorzone so viele Azimutalverteilungen wie Sammelperioden durchgeführt worden sind. Dabei entspricht jede Zone einer bestimmten mittleren Quelldistanz, deren - im übrigen relativ geringe - Unschärfe darauf zurückzuführen ist, daß sich die Sammelstellen einer Zone im freien Gelände nicht streng äquidistant von der Quelle anordnen lassen.

Die Abbildungen 5 und 6 zeigen zwei Beispiele solcher für beide Leitsubstanzen ermittelten Azimutalverteilungen. Für die zugehörigen Quelldistanzen wurden Azimutalverteilungen für die Diffusionskategorien A, B und C nach Pasquill-Gifford berechnet und zum Vergleich mit in die Diagramme eingezeichnet.

Im Bereich des azimutalen Maximums liefern beide Leitsubstanzen gut übereinstimmende Werte, während an den Flanken deutliche Unterschiede auftreten. Beim Vergleich mit den Pasquillschen Kurven zeigt sich, daß die gemessenen Azimutalverteilungen in beiden Beispielen am ehesten noch durch die Pasquillkurve für die Diffusionskategorie B angenähert werden, obwohl bei beiden Versuchen weniger labile Diffusionskategorien diagnostiziert worden sind (s. Tab. 1).

Die graphische Darstellung der azimutalen Verteilungen von $\overline{\chi\bar{u}}$ hat sich ausschließlich an der Lage der einzelnen Meßpunkte im Diagramm orientiert. Dies bedeutet, daß die azimutale Lage der graphisch ermittelten Maxima nicht für alle Zonen die gleiche ist, was im Hinblick auf die zeitlichen und örtlichen Änderungen der Windrichtung während einer Sammelperiode der Realität durchaus entspricht.

Da sich bei den Ausbreitungsexperimenten innerhalb der Gesamtversuchsdauer von anderthalb Stunden keine wesentlichen Änderungen der meteorologischen Bedingungen feststellen ließen, wurden für jede Ringsektorzone aus den graphisch bestimmten azimuthalen Maxima der 3 Sammelperioden arithmetische Mittelwerte gebildet. Die oben erwähnte Streuung der azimuthalen Lage der Maxima blieb dabei unberücksichtigt.

Aus diesen Mittelwerten der azimuthalen Maxima der den 5 Ringsektorzonen entsprechenden Quelldistanzen ergibt sich ihre radiale Verteilung, die bei Sicherheitsbetrachtungen im Falle störfallbedingter Emissionen angesichts der Unsicherheit der Windrichtungsvorhersage von größerer Bedeutung ist als es die Lateralprofile sind.

Die Abbildungen 7 und 8 zeigen die für die Experimente Nr. 14 und 15 graphisch ermittelten Radialverteilungen von $\bar{\chi\bar{u}}$ für beide Leitsubstanzen. In den miteingezeichneten σ -Fehlern dieser Mittelwerte kommen die z.T. erheblichen Unterschiede zwischen den in den einzelnen Sammelperioden ermittelten Werten zum Ausdruck.

Mit Versuch Nr. 17 wurde zum ersten Mal innerhalb des Versuchsprogramms ein Nahfeld-Versuch durchgeführt, dessen Ziel die Bestimmung der Ausbreitungsfaktoren im Bereich zwischen der Quelle und 1 km Entfernung war. Die Entfernungsabhängigkeit der azimuthalen Maxima von $\bar{\chi\bar{u}}$ zeigt Abb. 9. Für die extrem kleinen Quelldistanzen 100 m und 250 m ergaben sich allerdings keine eindeutigen Maxima. Deshalb wurden die jeweils höchsten Einzelmeßwerte für die Radialverteilung verwendet. Die niedrigen, aber noch gut meßbaren Konzentrationen in unmittelbarer Quellnähe weisen darauf hin, daß das Radialprofil in diesem Bereich anders verläuft als es von der Theorie her zu erwarten ist.

Auch in die Darstellungen der Radialverteilungen wurde die Pasquill'sche Normkurvenschar für $\bar{\chi\bar{u}}$ eingezeichnet (Abb. 7, 8, 9). Am auffälligsten ist die Verschiebung von Betrag und Quelldistanz der graphisch ermittelten absoluten Maxima von $\bar{\chi\bar{u}}$ gegenüber den

Versuchs-Nr.	diagn. Diffus.-kategorie	Maxima der normierten Ausbreitungsfaktoren in 10^{-6} m^{-2}		Zugehörige Quelledistanzen in m		f	ρ
		$(\bar{x}\bar{u})_{\text{graph.}}$	$(\bar{x}\bar{u})_{\text{Pasqu.}}$	$r_{\text{graph.}}$	$r_{\text{Pasqu.}}$		
13	C/D	$\geq 8,4$	11,8	≤ 800	1580	$\geq 0,7$	$\leq 0,51$
14	C/D	21,5 (16,0)	11,8	750 (750)	1580	1,8 (1,4)	0,47 (0,47)
15	D	14,6 (16,0)	8,6	960 (800)	2650	1,7 (1,9)	0,36 (0,30)
16	D	17,0	8,6	1100	2650	2,0	0,42
17	C/D	17,8	11,8	660	1580	1,5	0,42

Tab. 2 Vergleich der graphisch ermittelten Maxima der normierten Ausbreitungsfaktoren $\bar{x}\bar{u}_{\text{max.graph.}}$ und der zugehörigen Quelledistanzen $r_{\text{max.graph.}}$ mit den entsprechenden Werten für die diagnostizierte Diffusionskategorie nach Pasquill (Werte in Klammern gelten für CCl_4)

$$f = \frac{(\bar{x}\bar{u})_{\text{graph.}}}{(\bar{x}\bar{u})_{\text{Pasqu.}}} \quad ; \quad \rho = \frac{r_{\text{graph.}}}{r_{\text{Pasqu.}}}$$

aufgrund der diagnostizierten Diffusionskategorien zu erwartenden Werten. Die aus den miteinander verglichenen Größen bildbaren Verhältnisse f und ρ sind geeignet, diesen Befund quantitativ zu beschreiben. Sie werden für die Ausbreitungsexperimente Nr. 13 bis 17 in Tab. 2 angegeben.

3.3 Rechnerische Auswertung

Zur rechnerischen Auswertung der Ausbreitungsexperimente wurde als theoretischer Ansatz für die Konzentration \bar{C} in Bodennähe im Lee einer Quelle die Gaußverteilung

$$\bar{C} = \frac{\dot{A}}{\pi \cdot \bar{u} \cdot \sigma_y(x) \cdot \sigma_z(x)} \exp \left(- \left(\frac{y^2}{2 \sigma_y^2(x)} + \frac{H^2}{2 \sigma_z^2(x)} \right) \right) \quad (5)$$

verwendet [1-3].

σ_y, σ_z = Streuungen der Konzentrationsverteilung senkrecht zur Ausbreitungsrichtung

y = Ortskoordinate senkrecht zur Ausbreitungsrichtung

x = Quelldistanz in Ausbreitungsrichtung

H = Quellhöhe

\bar{u} = über die Quellhöhe gemittelte Windgeschwindigkeit

Eine Kaminüberhöhung sowie eine Anhebung des vertikalen Nullpunkts aufgrund des Waldes und der Gebäude in der Umgebung der Quelle wurden bei der Konzentrationsberechnung nicht in Betracht gezogen, da das Zusammenwirken beider Effekte bei den hiesigen Gegebenheiten die Quellhöhe praktisch nicht verändert.

Die Lage der Sammelstellen in den verschiedenen Zonen konnte im allgemeinen in guter Näherung einer mittleren Quelldistanz x_i zugeordnet werden, wodurch die Verwendung von konstanten σ_y - und σ_z -Werten für eine bestimmte Zone möglich wird. Damit läßt sich die Lateralverteilung in der i -ten Zone $\bar{C}(x_i, y)$ in der Form

$$\bar{C}(x_i, y) = \hat{C}(x_i) \exp\left(\frac{-y^2}{2 \sigma_y^2(x_i)}\right) \quad (6)$$

schreiben. $\hat{C}(x_i)$ ist dabei das Maximum der Lateralverteilung der Konzentration in der i-ten Zone:

$$\hat{C}(x_i) = \frac{\dot{A}}{\pi \cdot u \cdot \sigma_y(x_i) \cdot \sigma_z(x_i)} \exp\left(\frac{-H^2}{2 \sigma_z^2(x_i)}\right) \quad (7)$$

Aus den jeweils fünf Meßwerten einer Zone wurden mit der Methode der kleinsten Fehlerquadrate der σ_y - und der \hat{C} -Wert berechnet. Die der Rechnung zugrundegelegte und im Gegensatz zur graphischen Auswertung für alle Zonen einer Sammelperiode einheitliche Ausbreitungsrichtung wurde dabei anhand aller im Versuchsfeld gemessenen Konzentrationswerte optimal gewählt. Die auf diese Weise bestimmte Ausbreitungsrichtung stimmt im allgemeinen nicht mit der aufgrund der Windrichtungsmessung ermittelten überein. Zur anschließenden Berechnung von $\sigma_z(x_i)$ wurde Gl. (7) mittels eines Iterationsverfahrens gelöst. Unter der Voraussetzung, daß

$$\hat{C}(x_i) \cdot \sigma_y(x_i) < \frac{\dot{A}}{\pi \cdot \sqrt{eH \cdot u}} \quad (8)$$

liefert Gl. (7) zwei reelle Lösungen für $\sigma_z(x_i)$. Da $\sigma_z(x_i)$ mit zunehmender Quelldistanz ansteigt, konnte aus den beiden Lösungen die zutreffende leicht ausgewählt werden. In einigen Fällen ließ sich die Beziehung (8) jedoch nicht erfüllen, so daß für die entsprechenden Zonen die σ_z -Werte fehlen. Der für die Parameter σ_y , σ_z und \hat{C} durchgeführten Fehlerrechnung wurde die mittlere quadratische Abweichung zwischen rechnerischem Wert und Meßwert zugrundegelegt. Der berechnete σ -Fehler liefert eine Aussage über die Güte der theoretischen Anpassung und damit über die Zuverlässigkeit der berechneten Parameter. Der Meßfehler selbst spielt kaum eine Rolle.

Da die Versuche Nr. 13 bis 17 sich entweder der Kategorie D oder der Zwischenkategorie C/D zuordnen ließen und dieser Unterschied

nicht gravierend erscheint, wurden die Auswertungen dieser Versuche zusammengefaßt. Abb. 10 zeigt die σ_y -Werte in Abhängigkeit von der Quelldistanz. Die zugehörigen Fehler wurden in die Abbildung eingetragen. Die unterlegte Kurvenschar gilt für die Pasquill-Gifford'schen Kategorien A bis D. Für Entfernungen $x < 1000$ m von der Quelle entsprechen die berechneten σ_y -Werte der Kategorie B, wohingegen sie für $x > 1000$ m eher der Kategorie C zuzuordnen sind.

Vergleicht man die σ_z -Werte aus den Experimenten beider Leitsubstanzen mit der Pasquill-Gifford'schen Kurvenschar (Abb. 11), so zeigt sich, daß sie im Mittel recht gut durch die Kurve der Kategorie B beschrieben werden.

Bei den Auswertungen der CCl_4 -Experimente konnte die Bedingung (8) in zahlreichen Fällen nicht erfüllt werden, wodurch sich die relativ geringe Anzahl von σ_z -Werten in Abb. 11 erklärt.

Eine Zusammenfassung der für die verschiedenen Sammelperioden berechneten zonalen Maxima kann nicht mit den C-Werten selbst, sondern nur mit den entsprechenden normierten Größen $\frac{C \cdot \bar{U}}{A}$ durchgeführt werden. Das Ergebnis dieser Zusammenfassung ist eine Radialverteilung, zu der alle Versuche Nr. 13 bis 17 beigetragen haben. Sie ist zusammen mit den Pasquill-Gifford'schen Kurven in Abb. 12 dargestellt.

Man erkennt, daß sich die Verteilung der berechneten normierten Ausbreitungsfaktoren offensichtlich am besten durch die für die Diffusionskategorie B gültige Pasquill-Kurve annähern läßt.

4. Diskussion der Versuchsergebnisse

Die bisher am KFZK durchgeführten Ausbreitungsexperimente haben die Schwierigkeit einer zuverlässigen Windrichtungsvorhersage deutlich gemacht, die für das Gelingen von Ausbreitungsexperimenten von grundsätzlicher Bedeutung ist. Bei starker Änderung der Hauptwindrichtung gegenüber der Prognose kann nämlich das Konzentrationsmaximum aus dem Versuchsfeld herauswandern, was die Aus-

wertbarkeit der Meßergebnisse beeinträchtigt. Besonders bei labilen Diffusionskategorien konnte die Ausbreitungsrichtung nicht genügend treffsicher prognostiziert werden.

Die Ausbreitungsexperimente fanden vorwiegend bei Wetterlagen statt, die sich durch die Pasquill'schen Diffusionskategorien B bis D kennzeichnen lassen. Alle im folgenden gemachten Angaben gelten deshalb zunächst nur für diese Diffusionskategorien. Da diese neutralen bis labilen Stabilitätsklassen am Standort des KFZK laut Statistik jedoch während ca. 2/3 der Zeit ange-
troffen werden, sind sie von besonderem Interesse [8].

Zwei Aussagen lassen sich aus den bisherigen Versuchsergebnissen eindeutig ableiten:

1. Die Lage des Maximums der Bodenkonzentration ist gegenüber der Erwartung, die sich aus der diagnostizierten Kategorie ergibt, deutlich zur Quelle hin verschoben.
2. Die gemessenen maximalen Bodenkonzentrationen liegen höher, als es der diagnostizierten Diffusionskategorie entspricht.

Diese Verschiebungstendenz entspricht sowohl den Ergebnissen von Ausbreitungsexperimenten über städtischem Gelände [9, 10] als auch den an der KFA Jülich gewonnenen Versuchsergebnissen für ein dem hiesigen vergleichbares Gelände [11].

Für die Versuche Nr. 13 bis 17, die ausnahmslos bei Diffusionskategorien C/D oder D stattfanden, lassen sich die zuvor getroffenen Feststellungen präzisieren: Die bei diesen Versuchen ermittelten lateralen und radialen Verteilungen des normierten Ausbreitungsfaktors $\bar{\chi}\bar{u}$ lassen sich offensichtlich am besten durch eine Diffusionskategorie beschreiben, die gegenüber der diagnostizierten um ca. anderthalb Kategorienstufen zur labilen Seite hin, also nach B bzw. B/C, verschoben ist. Quantitativ bedeutet dies für die Quelldistanzen der Maxima der Radialverteilungen von $\bar{\chi}\bar{u}$ im Mittel eine Verkürzung um rund 60 % gegenüber der

Diagnose. Der Betrag dieser Maxima von $\bar{\chi}\bar{u}$ liegt gegenüber der Diagnose im Mittel um den Faktor 1,7 höher. Die hier geschilderten Ergebnisse gelten für einen Kamin, dessen Oberhöhung durch Impuls und Auftrieb der Abluft praktisch vernachlässigbar ist.

Neben der drastischen Verschiebung der Radialverteilungen der normierten Ausbreitungsfaktoren gegenüber der Diagnose fällt die in ihrer Gesamtheit nicht unerhebliche Unschärfe der aus den Meßdaten ermittelten Parameter $\bar{\chi}\bar{u}$, σ_y und σ_z auf.

Während die Unschärfe der Größen $\bar{\chi}\bar{u}$ und σ_z etwa einer halben Diffusionskategorie entspricht, macht sie bei der Größe σ_y etwa eine volle Kategorie aus. Da die Diffusionskategorien nach Pasquill ohnehin nicht diskrete Zustände der Atmosphäre, sondern jeweils Zustandsbereiche repräsentieren, mithin also bereits der Definition der Kategorien eine gewisse Unschärfe anhaftet, kann es nicht überraschen, daß die experimentellen Ergebnisse eine entsprechende Unschärfe aufweisen. Diese von der Kategoriendefinition herrührende Unschärfe wird sicherlich noch durch topographische, d.h. standortspezifische Gegebenheiten und durch Windrichtungsschwankungen während der Versuche verstärkt. Neben dem grundsätzlichen Einfluß der Topographie bei jedem einzelnen Versuch, wirkt sich beim Zusammenfassen der Ergebnisse mehrerer Versuche, für die nahezu gleiche Diffusionskategorien diagnostiziert wurden, die Unterschiedlichkeit in der Topographie der verschiedenen Versuchsfelder (siehe Abb. 2) zusätzlich aus. Der Einfluß der Windrichtungsschwankungen kommt z.B. in der zeitlichen Streuung der an gleichen Sammelstellen während der aufeinanderfolgenden Sammelperioden eines Versuches experimentell ermittelten $\bar{\chi}\bar{u}$ -Werte zum Ausdruck. Bei starken Schwankungen während einer Sammelperiode lassen sich die Lateralverteilungen der experimentell gefundenen $\bar{\chi}\bar{u}$ -Werte nicht mehr durch eine Gauß-Verteilung darstellen (siehe Abb. 4).

Alle diese Aussagen stützen sich auf Versuchsergebnisse, die sowohl mit HTO als auch mit CCl_4 als Leitsubstanz gewonnen

wurden. Daneben lassen sich jedoch zahlreiche Unterschiede in den Versuchsergebnissen nicht übersehen.

Die mit CCl_4 gemessenen Lateralverteilungen weisen an den Flanken deutlich höhere Werte auf als die mit HTO gewonnenen Verteilungen. Die Abbildungen 7 und 8 sind typische Beispiele für diesen aus allen Einzelergebnissen der Versuche statistisch ermittelten Befund. Diese statistische Untersuchung ergab für Sammelstellen in der Nähe der Ausbreitungsachse, also für hohe Ausbreitungsfaktoren, im Mittel gute Übereinstimmung der mit den beiden Leitsubstanzen gemessenen \bar{x}_u -Werte. In einzelnen Sammelperioden ergaben sich jedoch beträchtliche Unterschiede, wie sie z.B. in den Isoliniendarstellungen des Versuchs Nr. 18 sichtbar werden (siehe Abb. 4).

Da sich die mit CCl_4 gewonnenen Ergebnisse im Ganzen weniger gut durch Gauß-Verteilungen beschreiben lassen als die mit HTO erzielten Werte, sind die Standardabweichungen der rechnerisch bestimmten Ausbreitungsparameter mit CCl_4 im Mittel größer als mit HTO (siehe Abbildungen 10 und 12).

Da noch nicht geklärt ist, inwieweit die aufgetretenen Abweichungen durch unterschiedliches Ausbreitungsverhalten der beiden Substanzen bedingt sind, bedarf es zur Klärung noch weiterer Parallelversuche.

Bei der Durchführung der Ausbreitungsexperimente haben zahlreiche Mitarbeiter der ASS mitgewirkt. Ihnen allen möchten die Autoren an dieser Stelle für ihren Einsatz danken. Besonderer Dank gebührt Frau D. Nagel, Frä. D. Schwenke, Herrn J. Hiller und Herrn cand.min. E. Linz, die an der Auswertung der Experimente einen wesentlichen Anteil hatten.

5. Literatur

- [1] Pasquill, F.: Atmospheric Diffusion, D. van Nostrand Company, London (1962)
- [2] Hilsmeier, W.F., Gifford, L.A., Jr.: Graphs for Estimating Atmospheric Dispersion, ORO-545 (1962)
- [3] Slade, D.H. ed.: Meteorology and Atomic Energy, USAEC-Report, TID-24190 (1968)
- [4] --, Application of Meteorology to Safety at Nuclear Plants, IAEA Safety Series No. 29, Vienna (1968)
- [5] König, L.A., Winter, M.: Graphische Auswertung von Experimenten zur Bestimmung der atmosphärischen Ausbreitung mit tritiiertem Wasserdampf, KFK 1667 (1972)
- [6] Kiefer, H., König, L.A., Winter, M.: Study of propagation of atmospheric pollutants with aid of tritium, Kerntechnik, 12, 5/6, 212 (1970)
- [7] Polster, G.: Erfahrungen mit Strahlungs-Temperaturgradient- und Windmessungen als Bestimmungsgrößen der Diffusionskategorien, Meteorolog. Rundschau, 22, 6, 170 (1969)
- [8] Nester, K.: Statistische Auswertungen der Windmessungen im Kernforschungszentrum Karlsruhe aus den Jahren 1968/69, KFK 1606 (1972)
- [9] McElroy, J.L.: A comparative study of urban and rural dispersion, J. Appl. Met., 8, 1, 19 (1969)
- [10] Gifford, F.A., Jr.: Atmospheric transport and dispersion over cities, Nucl. Safety, 13, 5, 391 (1972)
- [11] Vogt, K.J. et al.: Ausbreitung und Ablagerung, JÜL-807-ST (1971)

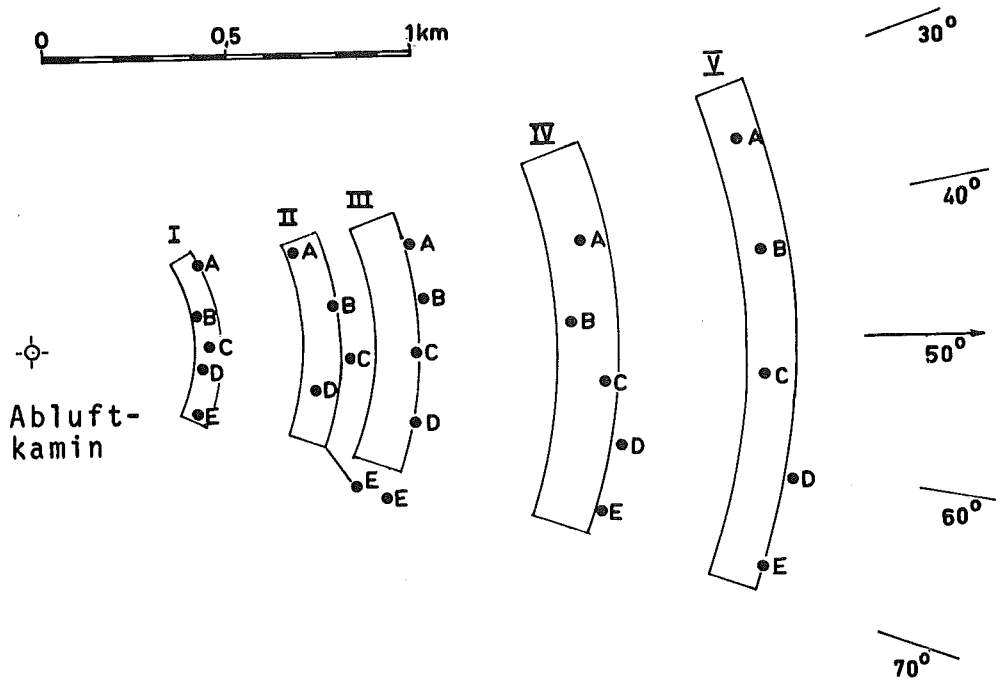


Abb. 1 Beispiel einer Verteilung der Probenahmestellen im Versuchsfeld (Versuch Nr. 15)

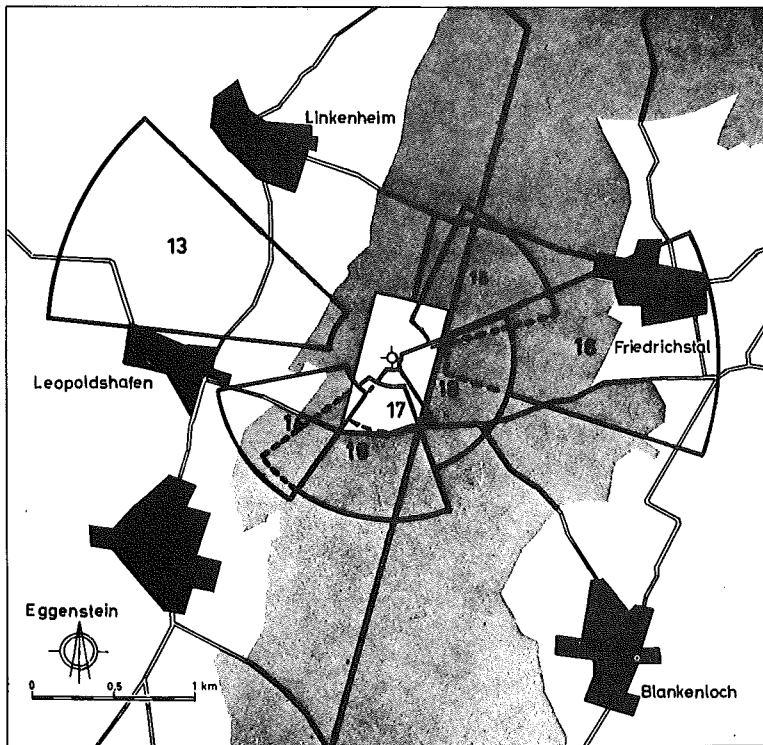


Abb. 2 Lage des KFZK und der Versuchsfelder bei den Ausbreitungsexperimenten Nr. 13 bis 19

⊙ Emissionsort: Abluftkamin des FR 2

Quellehöhe: 100 m



Waldgebiet

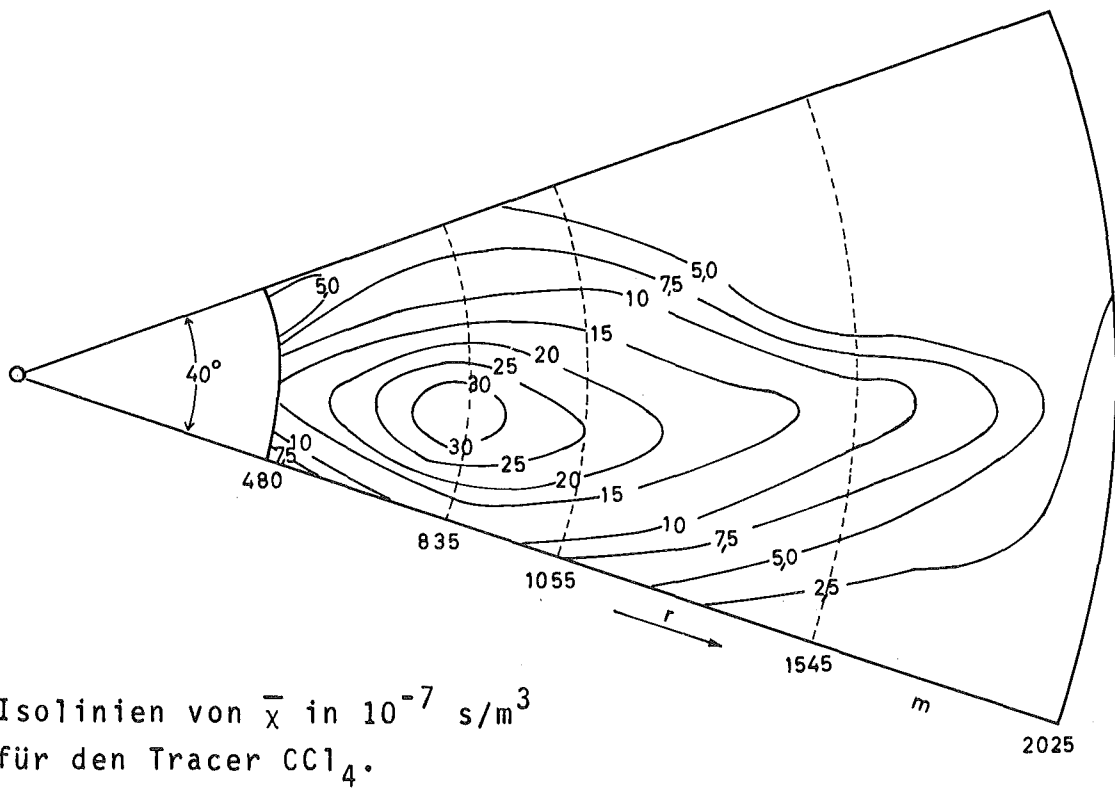
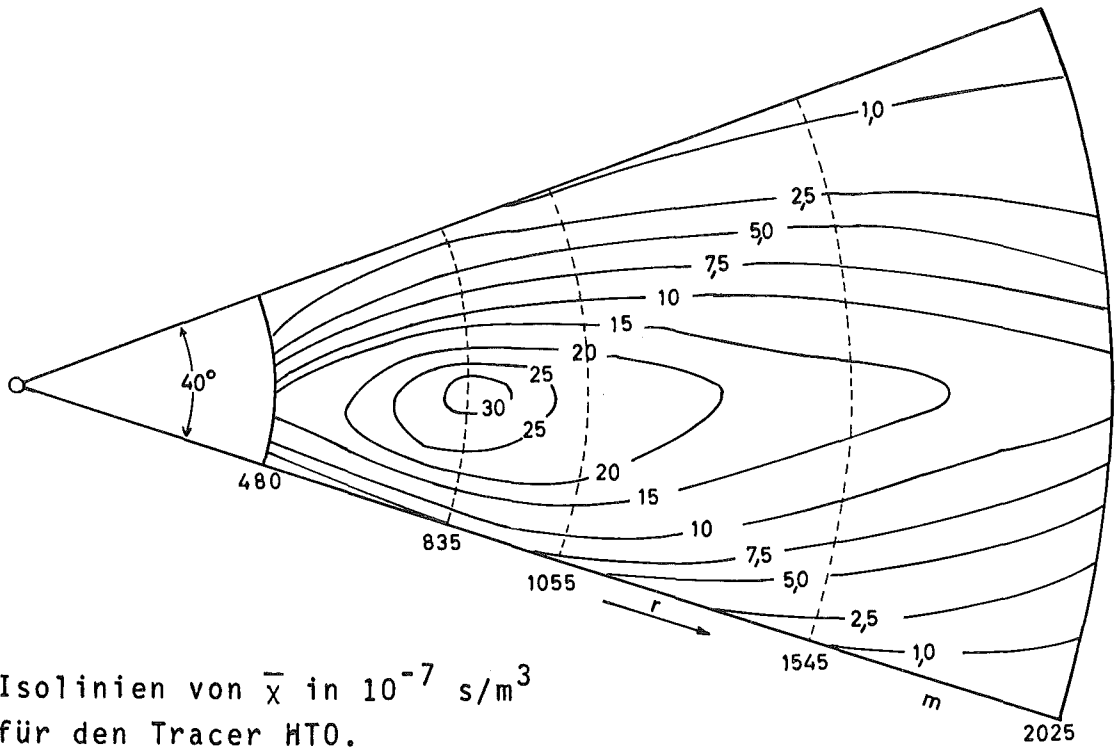


Abb. 3 Isolinien der gemessenen Ausbreitungsfaktoren χ bei Versuch Nr. 15, diagn. Diffusionskategorie D

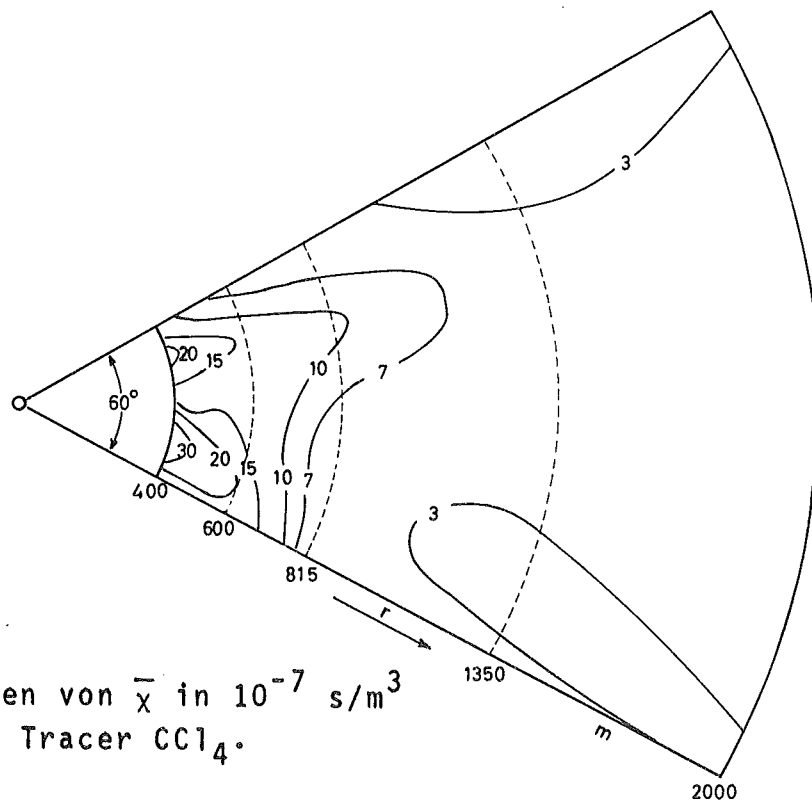
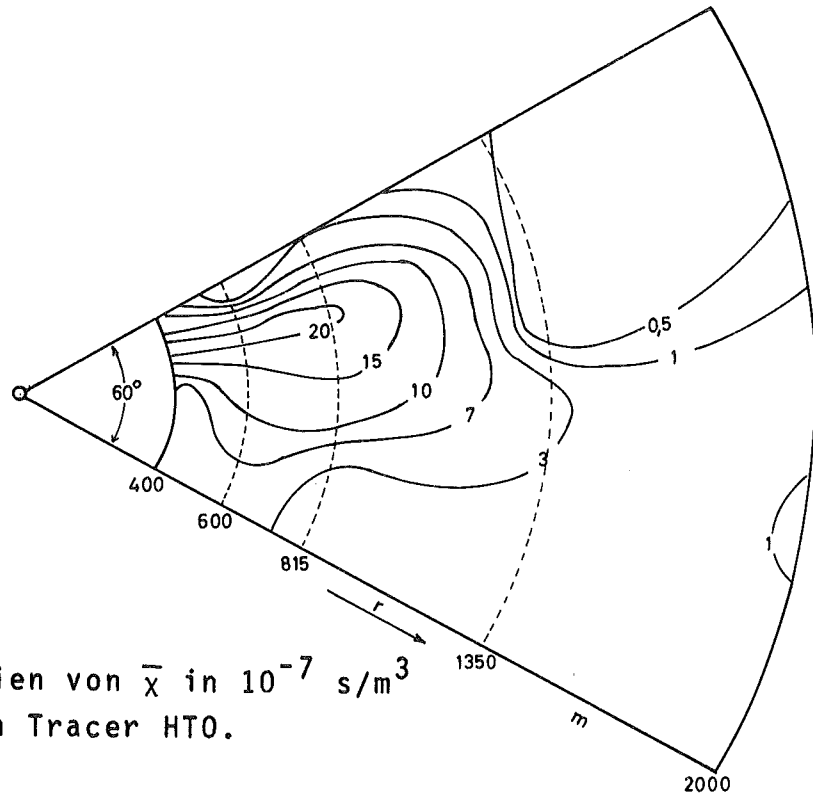


Abb. 4 Isolinien der gemessenen Ausbreitungsfaktoren \bar{x} bei Versuch Nr. 18, diagn. Diffusionskategorie C/D

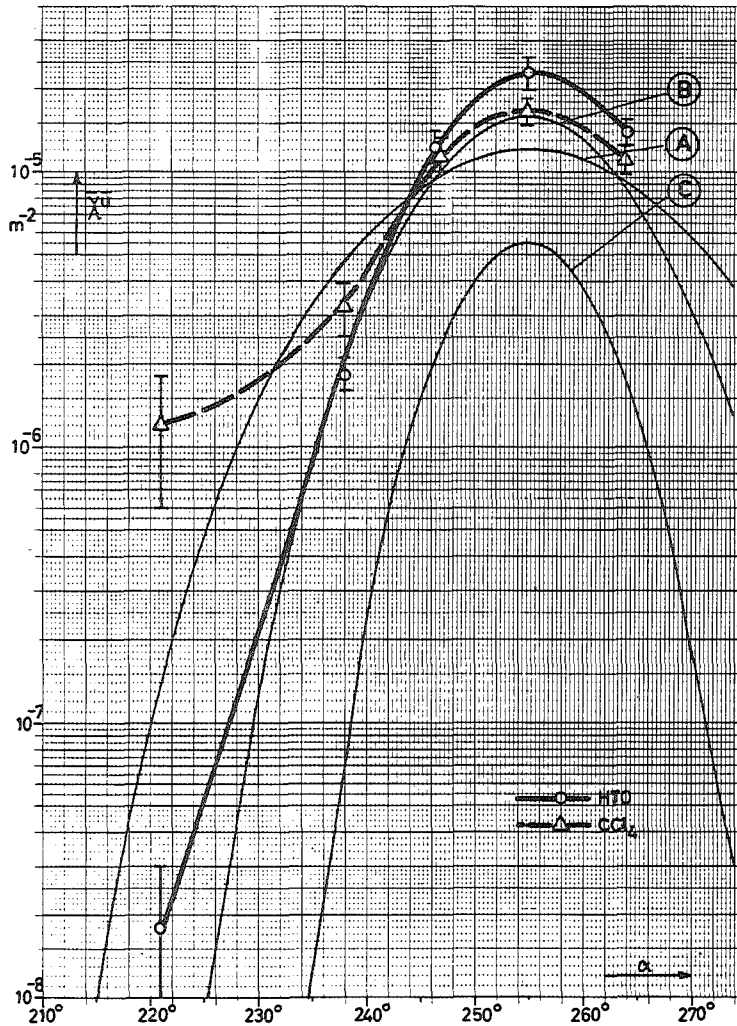


Abb. 5 Beispiel einer experimentell bestimmten azimuthalen Verteilung des normierten Ausbreitungsfaktors $\bar{\chi}_u$, Versuch Nr. 14, Zone I (Quelldistanz 575 m), 2. Sammelperiode, Quellhöhe: 100 m, diagn. Diffusionskategorie: C/D

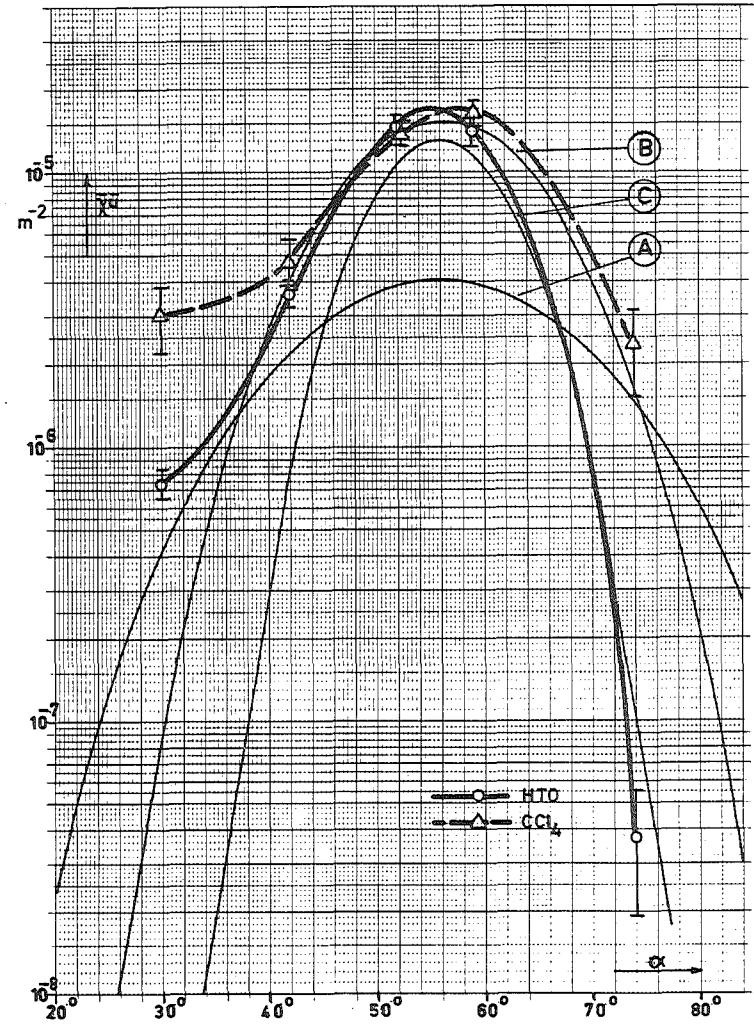


Abb. 6 Beispiel einer experimentell bestimmten azimuthalen Verteilung des normierten Ausbreitungsfaktors $\bar{\chi}_u$, Versuch Nr. 15, Zone II (Quelldistanz 834 m), 2. Sammelperiode, Quellhöhe: 100 m, diagn. Diffusionskategorie: D

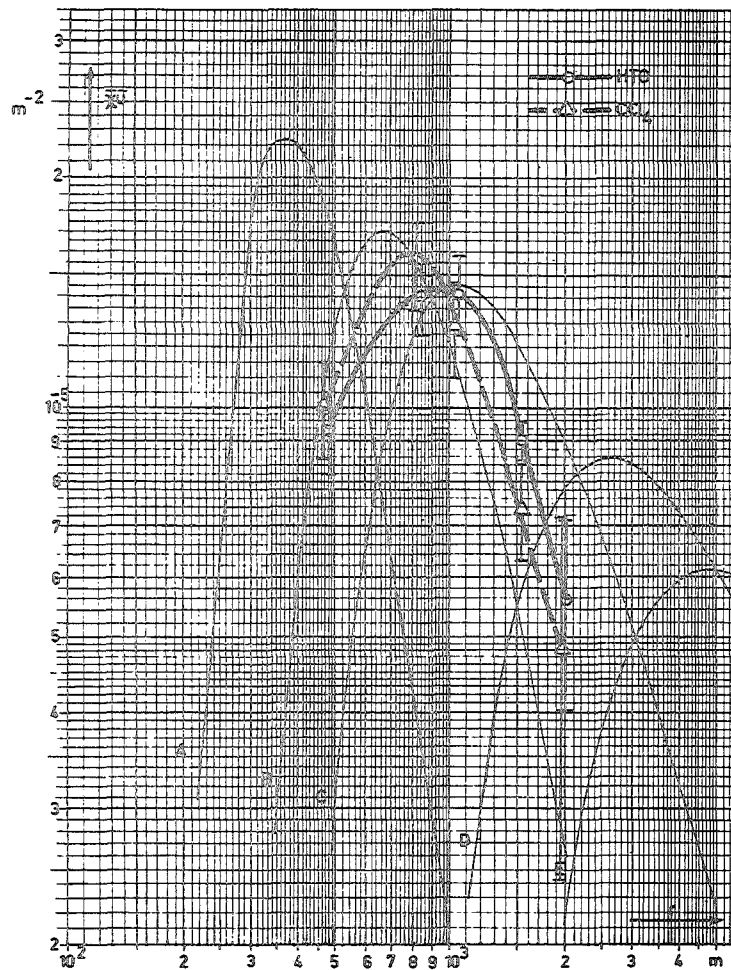


Abb. 7 Abhängigkeit des experimentell bestimmten Ausbreitungsfaktors \bar{x}_u von der Quelledistanz r in Ausbreitungsrichtung, Versuch Nr. 14, diagn. Diffusionskategorie: C/D, Quellhöhe: 100 m

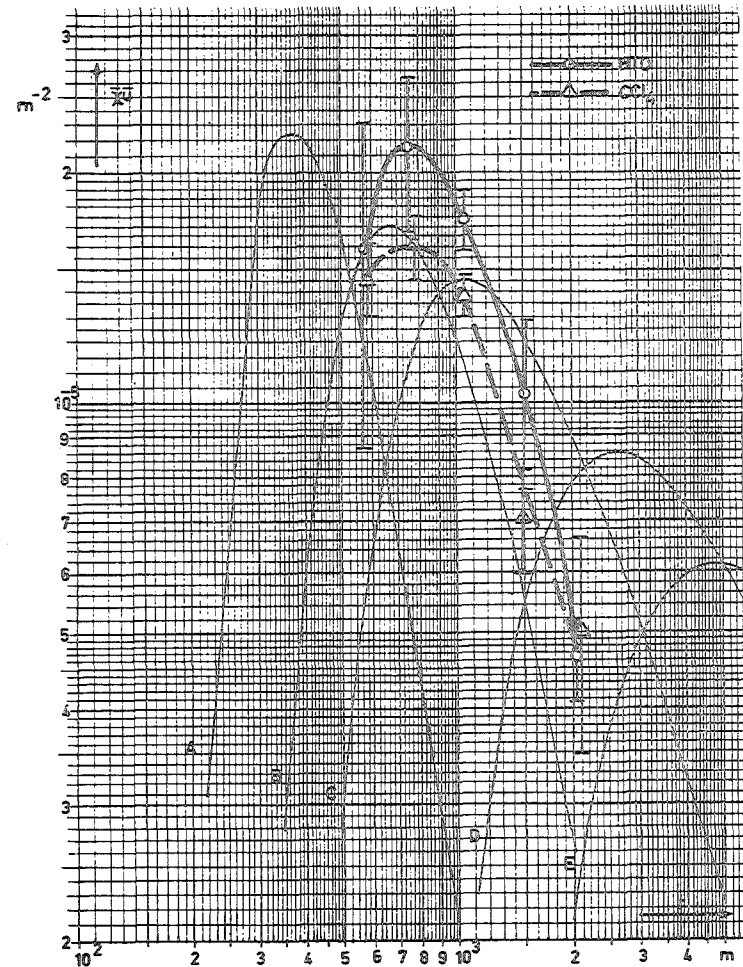


Abb. 8 Abhängigkeit des experimentell bestimmten Ausbreitungsfaktors \bar{x}_u von der Quelledistanz r in Ausbreitungsrichtung, Versuch Nr. 15, diagn. Diffusionskategorie: D, Quellhöhe: 100 m

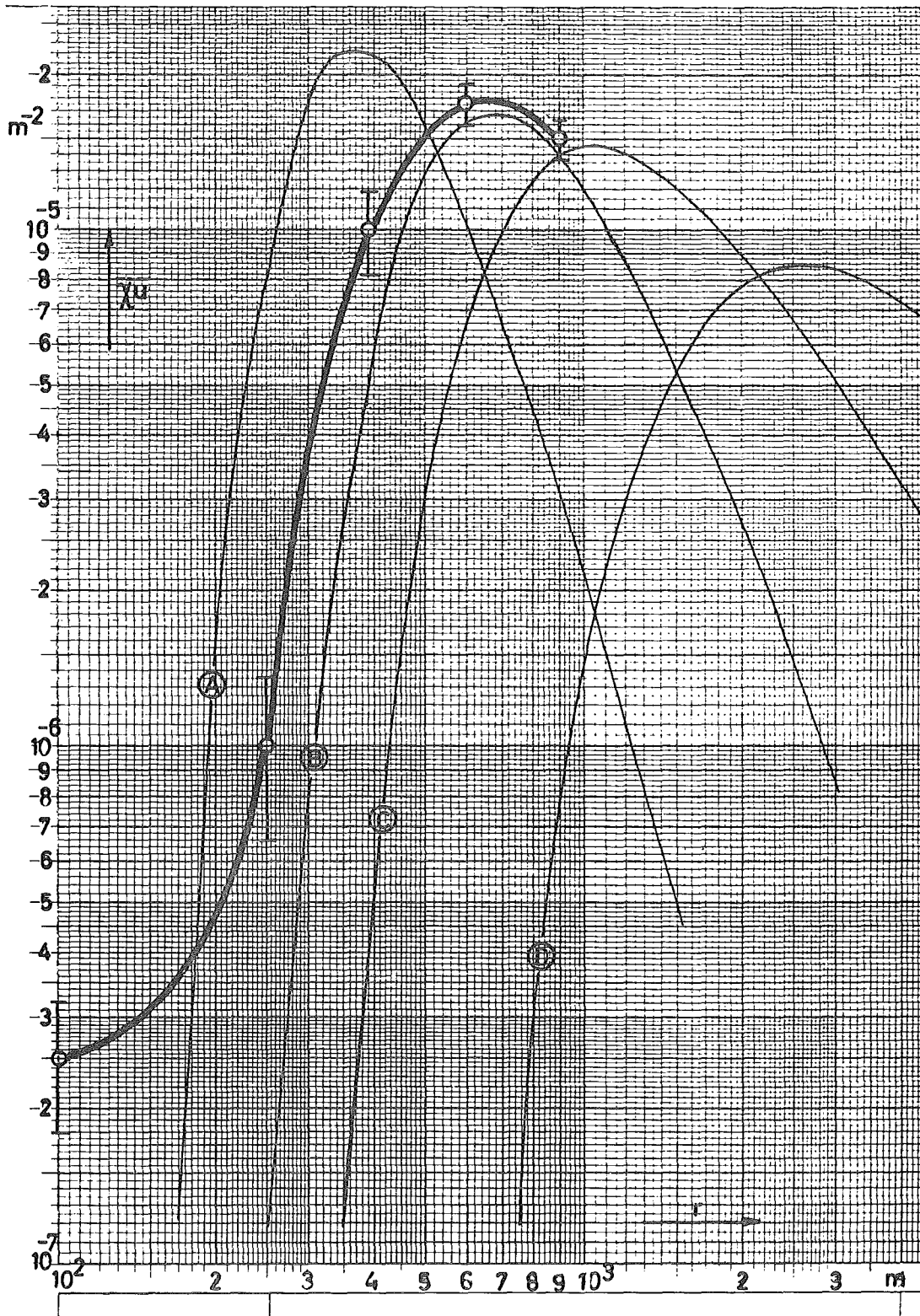


Abb. 9 Abhängigkeit des experimentell bestimmten Ausbreitungsfaktors $\bar{\chi}_u$ von der Quelldistanz r in Ausbreitungsrichtung, Versuch Nr. 17, diagn. Diffusionskategorie: C/D, Quellhöhe: 100 m, nur HTO als Tracer

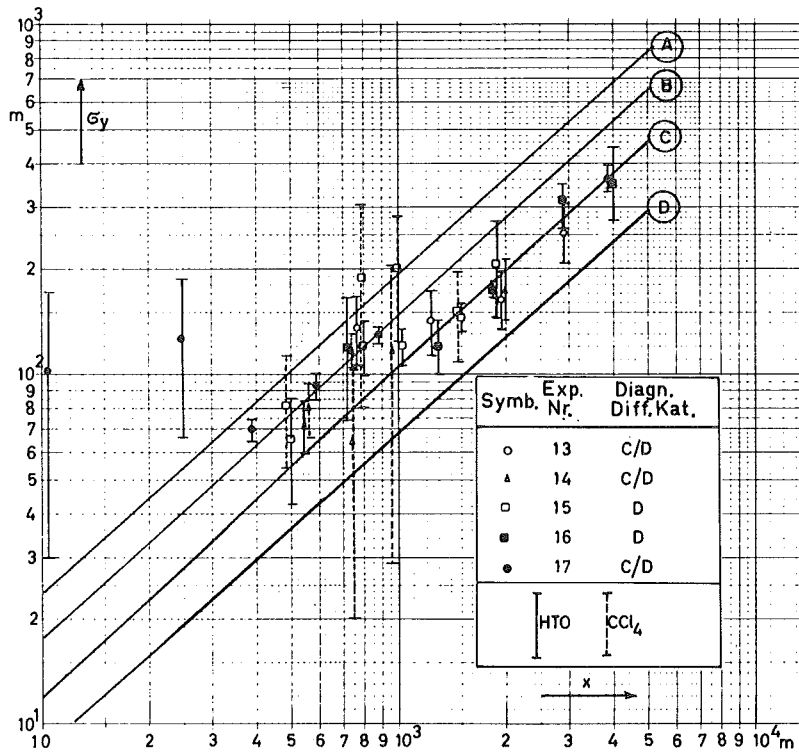


Abb. 10 Aus den Meßergebnissen der Ausbreitungsexperimente Nr. 13 bis 17 berechnete Streuungen σ_y in Abhängigkeit von der Quelldistanz x

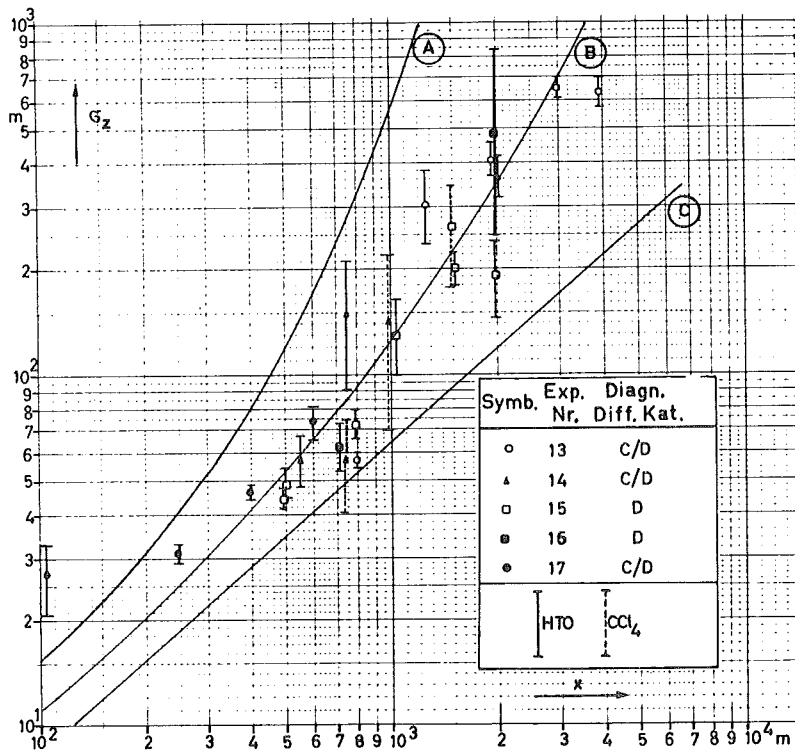


Abb. 11 Aus den Meßergebnissen der Ausbreitungsexperimente Nr. 15 bis 17 berechnete Streuungen σ_z in Abhängigkeit von der Quelldistanz x

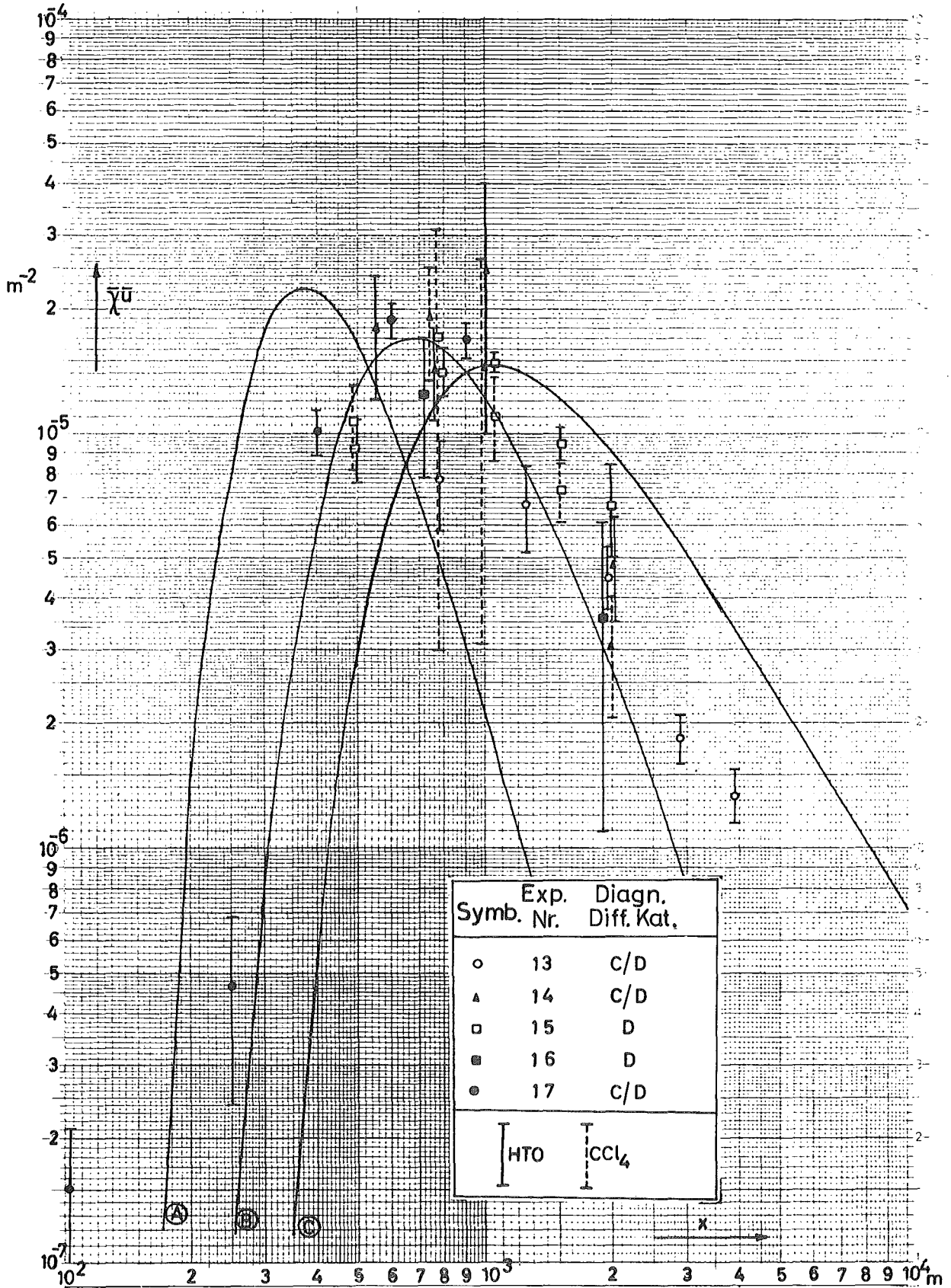


Abb. 12 Aus den Meßergebnissen der Ausbreitungsexperimente Nr. 13 bis 17 berechnete Ausbreitungsfaktoren $\bar{\chi}\bar{u}$ in Abhängigkeit von der Quelldistanz x