

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM**

**KARLSRUHE**

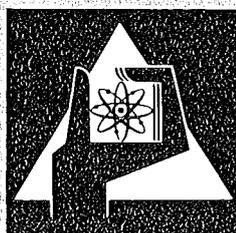
Oktober 1974

KFK 1989

Institut für Angewandte Systemtechnik und Reaktorphysik  
Projekt Schneller Brüter

**Nukleare Aerosole im geschlossenen System**

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 1989

Institut für Angewandte Systemtechnik und Reaktorphysik  
Projekt Schneller Brüter

NUKLEARE AEROSOLE IM GESCHLOSSENEN SYSTEM

von

H. Jordan

W. Schikarski

H. Wild

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe



E r r a t a

Seite 27  $\sqrt{\frac{3m}{4\pi\rho}} \rightarrow \sqrt[3]{\frac{3m}{4\pi\rho}}$

Seite 28  $\frac{d(mv_{sed})}{dr} \rightarrow \frac{d(mv_{sed})}{dt}$

Seite 29  $\frac{2 r_{St}^2}{9\eta} \rightarrow \frac{2 r_{St}^2 \rho}{9\eta}$

Seite 31  $\frac{1}{6\pi\eta r_e} (\dots) \rightarrow \frac{1}{\kappa 6\pi\eta r_e} (\dots)$

Seite 33, Zeile 11

--- v durch  $\frac{n}{\delta_D}$  ---  $\rightarrow$  ---  $\nabla n$  durch  $\frac{n}{\delta_D}$  ---

Seite 34  $v_{\perp}(r_e) E \frac{kTB(r_e)}{\delta_D} \rightarrow v_{\perp}(r_e) = \frac{kTB(r_e)}{\delta_D}$

Seite 36  $\delta(m-(m'-m'')) \rightarrow \delta(m-(m'+m''))$

Seite 37  $-\int_{m^{-1}(0)}^{m^{-1}(\frac{m}{2})} \rightarrow -\int_{m^{-1}(0)}^{m^{-1}(\infty)}$

Seite 42 erste Gl.

$\epsilon K_K \rightarrow K_K$

Gl. (29)

$\frac{2g\rho f^2}{9\eta \kappa} \rightarrow \frac{2\pi g \rho f^2}{9\eta \kappa}$

Gl. (30)

$(2 + \gamma)^2 \rightarrow (1 + \gamma)^2$

Seite 47 Gl. (44)

$\int_{OR}^{\infty} \rightarrow \int_0^{\infty}$



<u>Inhalt</u>	<u>Seite</u>
1. Einleitung	- 4 -
2. Ziele des Aerosolprogramms	- 6 -
3. Experimentelle Ergebnisse	- 7 -
3.1. Methoden, Versuchsstand, Meßtechnik	- 8 -
3.1.1. Auswahl der Methode zur Aerosolerzeugung	- 8 -
3.1.2. Versuchsstand	- 10 -
3.1.3. Meßtechnik	- 11 -
3.2. Bestimmung der Partikelzahlkonzentration	- 12 -
3.2.1. Partikelzahlkonzentration im großen Kesselvolumen	- 12 -
3.2.2. Teilchenkonzentration im kleinen Volumen	- 15 -
3.2.3. Fehlerbetrachtung	- 16 -
3.3. Bestimmung der Massenkonzentration	- 16 -
3.3.1. Massenkonzentration im großen Kesselvolumen	- 16 -
3.3.2. Massenkonzentration im kleinen Volumen	- 17 -
3.3.3. Fehlerbetrachtung zur Massenkonzentrationsbestimmung	- 18 -
3.4. Bestimmung der Größenverteilung	- 19 -
3.5. Andere Einflußgrößen	- 22 -
3.6. Temperaturabhängigkeit	- 23 -
3.6.1. Innenheizung	- 24 -
3.6.2. Außenheizung	- 24 -
4. Modelltheoretische Untersuchungen	- 26 -
4.1. Modellannahmen	- 26 -
4.2. Abscheideprozesse	- 32 -
4.2.1. Diffusion	
4.2.2. Sedimentation	- 34 -
4.2.3. Thermophorese	- 34 -
4.3. Koagulation	- 36 -
4.3.1. Brown'sche Koagulation	- 38 -
4.3.2. Nicht Brown'sche Koagulation	- 40 -
4.3.3. Die Koagulationskonstante	- 43 -

	<u>Seite</u>
4.4. Die vollständige Modellgleichung	- 47 -
4.5. Vergleich von Modellrechnungen mit experimentellen Ergebnissen	- 49 -
4.5.1. Die Meßdaten	- 51 -
4.5.2. Die Modell-Parameter	- 53 -
4.5.3. Anpassung des Modells	- 54 -
4.5.4. Modellrechnungen	- 55 -
4.6. Zusammenfassung zu den Modelluntersuchungen	- 58 -
5. Zusammenfassung und Diskussion	- 60 -
Literatur	- 64 -
Verzeichnis der Abbildungen	- 70 -
Verzeichnis der Tabellen	- 73 -
Nomenklatur	- 74 -

## Zusammenfassung

Dieser Bericht ist der Abschlußbericht im AV (Aerosolverhalten)-Programm, welches in seinem 1. Teil im Jahre 1973 abgeschlossen wurde. Ziel dieses Berichtes ist eine vollständige und detaillierte Erfassung aller wichtigen experimentellen und theoretischen Ergebnisse im Verlauf des Programms.

Das AV-Programm wurde aufgestellt, um das Verhalten von  $UO_2$ -Aerosolen in trockener, inerter und abgeschlossener Atmosphäre zu untersuchen. Dieses System wird mit der Sicherheit eines schnellen Brütters in der Einführung und der Schlußfolgerung dieses Berichtes in Beziehung gesetzt. Hier wird die hauptsächliche Bedeutung des Brennstoffaerosols im Falle eines hypothetischen SNR-Unfalles unterstrichen.

Das Ergebnis des Programms ist ein grundsätzliches Verständnis von aerosol-mechanischen Prozessen, die die Dynamik des Aerosolsystems bestimmen. Diese Prozesse sind mit einem Computerprogramm erfaßt, welches mit genügender Genauigkeit die experimentellen Befunde wiedergibt und welches von diesen auf die tatsächlichen Reaktorbedingungen extrapoliert.

Die Parameter von entscheidendem Einfluß auf die Halbwertszeit luftgetragenen Brennstoffes sind erkannt worden. Diese sind die physikalischen Dimensionen des Systems, seine Temperatur, der Wärmeverlust und der Typ und die Anfangsverteilung der Aerosolteilchen. Die verbleibenden Unsicherheiten bezüglich des Einflusses von Typ und Größenverteilung des Aerosolpartikels werden diskutiert.

## Abstract

### Nuclear aerosols in a closed system

This report is the final report on the AV (aerosol behavior) program that was terminated as a first phase in 1973. Its principal aim is a complete and detailed compilation of all relevant experimental and theoretical results of the program.

The AV program was set up to investigate the behavior of  $UO_2$  aerosols in a dry, inert and enclosed atmosphere. Such a system is brought into the context of Fast Breeder Reactor safety in the introduction and conclusion of this report where the primary role of the fuel aerosol in the event of a hypothetical LMFBR accident is emphasized.

The result of the program is a basic understanding of the aerosol-mechanical processes that determine the dynamics of an aerosol system. These are incorporated in a computer code that satisfactorily duplicates experimental findings and that can be used to extrapolate these to actual reactor containment situations.

Parameters of major influence on the half-life of suspended fuel mass have been identified. These are the physical dimensions of the system, its temperature and rate of heat loss and the type and initial size distribution of the aerosol particles. The remaining uncertainties in the influence of type and size distribution of the aerosol particles are discussed.

## 1. Einleitung

Die Freisetzung radioaktiver Stoffe im Störfall eines Kernkraftwerks ist von entscheidender Bedeutung für die Beurteilung der Sicherheit und möglicher Auswirkungen auf die Umwelt. Beim Schnellen Natriumgekühlten Brutreaktor (SNR) treten dabei die besonderen Probleme der Art und des Verhaltens der (mit Ausnahme der Spaltedelgase) überwiegend als Aerosole freigesetzten Spaltprodukte und Brennstoffnuklide in den Vordergrund.

Voraussetzung für die Freisetzung von nuklearen Aerosolen in schweren Störfällen ist der Eintritt von durch Kühlungsstörungen oder andere Vorfälle ausgelösten Niederschmelzen des Brennstoffs im Reaktorkern bis hin zum Verdampfen eines Teils des Reaktorkerns (Bethe-Tait-Störfälle). Obwohl solche Störfälle heute als hypothetische Störfälle mit sehr kleiner Eintrittswahrscheinlichkeit angesehen werden, werden sie in der Störfallanalyse im einzelnen untersucht. Darüber hinaus wird (zumindest im Falle des SNR-300) die Kernkraftwerksanlage für die Beherrschung dieser Störfälle ausgelegt. In [1] wurde im einzelnen dargestellt, wie sich Aerosolfreisetzung und Aerosolverhalten im SNR-Containment auf die Auslegung des Containments auswirkt.

Um eine vollständige Analyse der Aktivitätsfreisetzung im Störfall durchzuführen, müssen folgende Parameter bekannt sein:

- die Aerosolquelle
- das Aerosolverhalten in der Kernkraftwerksanlage
- die Wechselwirkung zwischen Aerosolverhalten und Containment-System und
- das Aerosolverhalten außerhalb der Anlage (in der Atmosphäre).

Die Wechselwirkung zwischen Aerosolverhalten und Containment-System wurde erstmals in [2] ausführlich diskutiert. Aus den dort vorgestellten Rechnungen ergab sich, daß das Aerosolverhalten im Containment eines SNR, und hier insbesondere die Abnahme der luftgetragenen Massenkonzentration, von entscheidender Bedeutung für die Umgebungsbelastung sind. Insbesondere wurde festgestellt, daß der damals aus allgemeinen aerosol-physikalischen Überlegungen postulierte Abbau der Aerosolmassenkonzentration die Auslegung des Containment-Systems im Hinblick auf Aufwand (Mehrfach-Containments) und zusätzliche technische Maßnahmen (Aerosolabscheider im Containment) beeinflusst. Die bei diesen Rechnungen für den "Aero-

sol-Abbau" entwickelten Vorstellungen wurden in der Folgezeit auch als "Aerosol-Modell" bezeichnet [3]. Berechnungen der Störfall-Dosis in der Umgebung eines Schnellen Natriumgekühlten Reaktors auf der Basis dieses Aerosolmodells wurden mit dem Rechenprogramm MUNDO [4] durchgeführt und zeigten die Bedeutung der Aerosolfreisetzung und des Aerosolverhaltens im Störfall, wenn das Aerosol überwiegend Brennstoff-Nuklide, insbesondere Plutonium, enthält [5] [6].

## 2. Ziele des Aerosolprogramms

Da sich in allen diesen Untersuchungen die genaue Kenntnis des zeitlichen Verhaltens der Aerosolkonzentration in geschlossenen Volumina und deren Abhängigkeit von den verschiedenen Parametern als notwendig herausstellte, wurde 1968 das "Programm zur Untersuchung des Verhaltens nuklearer Aerosole" begonnen. Die wichtigsten Ziele dieses Programms waren (siehe [57]) :

1. Bestimmung der Partikelgröße und der zugehörigen Parameter von nuklearen Brennstoff- und Spaltprodukt-Aerosolen als Funktion der typischen Bedingungen eines großen SNR-Störfalls (z.B. als Funktion der Energiefreisetzung im Störfall). Ermittlung oberer und unterer Grenzen für die Partikelgröße.
2. Bestimmung der Partikelanzahlkonzentration und der Partikelmassenkonzentration, die sich als Folge der Brennstoffverdampfung bei Störfallbeginn einstellt und deren Verlauf mit der Zeit.
3. Bestimmung der chemischen Zusammensetzung und der physikalischen Eigenschaften der nuklearen Aerosole und deren Einfluß auf das Aerosolverhalten.
4. Entwicklung geeigneter Modelltheorien zur Übertragung der im Experiment gewonnenen Ergebnisse auf die realen Verhältnisse in schnellen natriumgekühlten Brüter-Kraftwerken.
5. Experimentelle und theoretische Untersuchung der Aerosolprozesse, die für das Verhalten nuklearer Aerosole in geschlossenen Systemen eine Rolle spielen.

Das Gesamtziel des "Programms zur Untersuchung des Verhaltens nuklearer Aerosole" ist die vollständige Aufklärung und zuverlässige Beschreibung der Aktivitätsfreisetzung im schweren Störfall eines Schnellen Natriumgekühlten Brüter-Kraftwerks.

Über die experimentellen und theoretischen Ergebnisse der ersten Phase des Untersuchungsprogramms, die 1973 im wesentlichen abgeschlossen wurde, wird im folgenden berichtet.

### 3. Experimentelle Ergebnisse

Eines der Ziele des Programms zur Untersuchung des Aerosol-Verhaltens ist die Messung der wichtigsten aerosol-physikalischen Größen. Sowohl vom theoretischen Standpunkt als auch vom radiologischen Gesichtspunkt der Sicherheitsbetrachtung stellen sich als wichtigste Größen dar:

- die Partikelzahlkonzentration  $C_p$ . Das ist die Anzahl der Partikeln, die unabhängig von ihrer Größe in einem bestimmten Volumen - im allgemeinen  $\text{cm}^3$  - als Schwebstoffteilchen vorkommen. Die Teilchenkonzentration wird als Funktion der Zeit experimentell bestimmt.
- die Massenkonzentration  $C_M$ . Das ist die - im allgemeinen in mg - angegebene Masse des Stoffes, die pro Volumeneinheit - im allgemeinen  $\text{m}^3$  - als Schwebstoff vorhanden ist. Die Massenkonzentration wird ebenfalls als Funktion der Zeit bestimmt.
- die Partikelgröße und ihre Verteilung. Sie wird, sofern eine logarithmisch-normale Verteilung vorliegt, durch die Angabe des mittleren geometrischen Durchmessers und der geometrischen Standardabweichung charakterisiert. Die Verteilung  $n(r)$  und diese ihre Parameter sind explizit von der Zeit abhängig.

Neben diesen Größen, die auch zur Beschreibung eines aerodispersen Systems sich als sehr wichtig erweisen, sind für eine vollständige Beschreibung noch eine große Anzahl weiterer Zustandsgrößen und Parameter notwendig, wie z.B. Formfaktoren, chemische Zusammensetzung, Dichte usw. In Abschnitt 4 wird darauf teilweise noch näher eingegangen.

Zunächst sollen im ersten Unterabschnitt Versuchsstand, Methoden und Meßtechnik erläutert werden.

### 3.1. Methoden, Versuchsstand, Meßtechnik

#### 3.1.1. Auswahl der Methode zur Aerosolerzeugung

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

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

Die Stoffe, die in einem Reaktorkern vorliegen und die als feste Schwebstoffpartikeln auftreten können, sofern der Brennstoff bei einem schweren Störfall auf hohe Temperaturen erhitzt wird, setzen sich zusammen aus dem Brennstoff- und Brutstoffmaterial, Kühlmittel, Strukturmaterial und Spaltprodukten. Von allen möglichen dabei auftretenden Radionukliden sind die vom radiobiologischen Standpunkt aus betrachteten wichtigsten die Isotope des Jods und des Plutoniums. Die im Experimentalprogramm zur Untersuchung des Verhaltens nuklearer Aerosole durchgeführten Experimente beziehen sich auf Plutonium. Obwohl das im Brennstoff schneller Reaktoren enthaltene Plutonium das wichtige Element darstellt, ist Urandioxid ( $UO_2$ ) aus zwei Gründen als Ausgangsmaterial für die Aerosolerzeugung ausgewählt worden. Zum einen überwiegt  $UO_2$  im Brennstoff  $PuO_2$  erheblich, so daß beim Verdampfen überwiegend  $UO_2$  im Aerosol auftritt und der Anteil des Plutoniums an dem zu erwartenden Misch aerosol relativ gering ist, zum anderen ist die Handhabung von  $PuO_2$ , insbesondere wenn es zerstäubt wird, aus Strahlenschutzgründen schwierig und aufwendig. Experimente anderer Autoren [7] bestätigen, daß das Aerosolverhalten von  $PuO_2$  und  $UO_2$  ähnlich ist, da auch die theoretischen Dichten beider Stoffe von  $11,46 \text{ g/cm}^3$  für  $PuO_2$  und  $10,96 \text{ g/cm}^3$  für  $UO_2$  sehr wenig voneinander abweichen. Als Probekörper diente eine ca. 40 mm lange Tablettensäule aus sechs gesinterten Urandioxid-Tabletten (Pellets) mit einem Durchmesser von 5,1 mm. Die Dichte beträgt dabei 95 % der theoretischen Dichte von  $10,96 \text{ g/cm}^3$ , also  $10,4 \text{ g/cm}^3$ .

Als Mittel zur Herstellung des  $UO_2$ -Aerosols ist die Stoßstromtechnik ausgewählt worden. Gegenüber den anderen drei Methoden - Verbrennen, Bogenentladung, Ab-

dampfen aus einem elektrisch beheizten Schiffchen - bietet die Stoßstromanlage einen entscheidenden Vorteil. Es ist nämlich möglich, einen dosierten Energiebetrag in einer bestimmten Zeitspanne in die  $UO_2$ -Probe einzubringen. Dabei sind sowohl Energie als auch Einbringzeit als Parameter unabhängig voneinander einstellbar. Diese Daten sind in der Tabelle 1 zusammengefaßt.

Tabelle 1 : Aerosolerzeugungsbedingungen

Probekörper		$UO_2$
		zylindrisch
		Pellet-Säule
		6 gesinterte Pellets
Pellet-Abmessungen		
	Länge	6,7 mm
	Durchmesser	5,1 mm
	Dichte	95 % th. Dichte = $10,4 \text{ g/cm}^3$
Spezifische Einbringenergie		ca. 500 Ws/g
Energieeinbringzeit		0,1 m/sec bis 60 m/sec
Bedingungen im Kessel		
	Druck	1 at
	Temperatur	$18^\circ\text{C}$ bis $175^\circ\text{C}$
	relative Feuchte	5 % bis 93 %
	Gasart	$N_2$ (gefiltert)
Reinheit des $UO_2$ -Aerosols		
	Verunreinigungen gesamt	0,1 %
	mögliche Verunreinigungen	Ta, W, Fe, Ni, Mn

### 3.1.2. Versuchsstand

Die Experimente wurden am Versuchsstand TUNA (Teststand für die Untersuchung nuklearer Aerosole) durchgeführt. Eine detaillierte Beschreibung technischer Einzelheiten findet sich im KFK-Bericht 1032 [8]. Der Versuchsstand (Abb. 1) besteht im wesentlichen aus drei Anlagenkomponenten:

- die Aerosolerzeugungskammer. In der Aerosolerzeugungskammer (Material: Edelstahl, Werkstoff-Nr. 4541) ist die Haltevorrichtung - in Form von zwei Tantalelektroden - für den  $UO_2$ -Probekörper installiert. Ihr Volumen beträgt  $0,022 \text{ m}^3$ , die Höhe  $0,34 \text{ m}$ . Sie ist mit ihrem unteren Flansch am oberen Ende des Versuchskessels angeflanscht.
- der Versuchskessel. Im Versuchskessel, der ebenfalls aus Edelstahl besteht (Werkstoff-Nr. 4541), können die einer Nachunfallsituation entsprechenden Bedingungen, denen das Aerosol ausgesetzt ist, hergestellt werden:

Druck	:	1 at
Temperatur	:	einstellbar zwischen $18^\circ\text{C}$ und $175^\circ\text{C}$
Relative Feuchte	:	einstellbar zwischen 5 % bis 90 %
Atmosphäre	:	Stickstoff, gefiltert

Das Volumen des Kessels beträgt  $2,22 \text{ m}^3$ , die Höhe  $2,90 \text{ m}$ .

In Abb. 2 sind die Aerosolerzeugungskammer und der Versuchskessel in einer Prinzipskizze dargestellt.

- die Stoßstromanlage. Mit Hilfe der Stoßstromanlage werden, je nach eingebrachter Energie, Teile der Probe verdampft und damit über einen Rekondensationsprozeß Aerosole erzeugt. Durch die geeignete Wahl der Parameter der Stoßstromanlage können die für einen Reaktorunfall charakteristischen Aerosolerzeugungsbedingungen simuliert werden:

Spezifische Energie in der $UO_2$ -Probe	:	ca. 500 Wsec/g
Energieeinbringzeit	:	einstellbar zwischen 0,1 msec und 60 msec

Eine genaue Beschreibung der Stoßstromanlage ist im KFK-Bericht 916 [9] gegeben.

### 3.1.3. Meßtechnik

In der Abbildung 3 ist eine Übersicht der am TUNA eingesetzten Meßgeräte dargestellt. Die im Reaktorstörfall zu erwartenden nuklearen Aerosole liegen im submikroskopischen Bereich, d.h. kleiner als  $0,3 \mu\text{m}$ . Die Konzentrationen sind relativ hoch.

Da es ein einziges Meßgerät allein nicht gibt, das alle relevanten Parameter zu messen gestattet, ist man gezwungen, eine den geforderten Zwecken angepasste Kombination von Meßgeräten einzusetzen.

Im allgemeinen kann man die in der Aerosolphysik verwendeten Meßgeräte nach drei verschiedenen Arbeitsprinzipien klassifizieren:

- mechanisch
- elektrisch
- optisch

Zur ersten Rubrik der am TUNA eingesetzten Geräte zählen der Thermalpräzipitator zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung und die Filtermethode zur Bestimmung der Massenkonzentration. Vor und nach der Beaufschlagung wird der Filter auf drei verschiedene Arten untersucht:

gravimetrisch, aktivierungsanalytisch und fluorometrisch.

Aus der Differenz der Meßwerte vor und nach der Beaufschlagung ergibt sich aus den Eichkurven die Massenkonzentration.

Zur zweiten Rubrik zählt der elektrostatische Point-to-Plane Aerosolabscheider [10] zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung. Mit dem Point-to-Plane elektrostatischen Aerosolabscheider werden die Aerosole auf geeigneten Folien niedergeschlagen und dann im Elektronenmikroskop fotografiert und ausgewertet.

Die optischen Meßgeräte sind der Kondensationskernzähler [11] und das Laser-Aerosol-Spektrometer von Battelle [12, 13]. Beide Geräte arbeiten nach der Streulicht-Methode, wobei der Kondensationskernzähler das Nebelkammerprinzip ausnutzt und dadurch auch die sehr kleinen (kleiner als  $0,01 \mu\text{m}$ ) Teilchen erfaßt, ohne sie allerdings nach ihrer Größe zu klassifizieren. Das in diesem Programm

verwendete Laser-Aerosol-Spektrometer mißt Teilchengrößenverteilungen von 0,21  $\mu\text{m}$  bis 0,64  $\mu\text{m}$  bei einer Konzentration von ca.  $2 \cdot 10^4 \text{ P/cm}^3$ .

Die Filtermessung, die elektrostatische Aerosolabscheidung und die Messung mit dem Kondensationskernzähler werden im Loop-Betrieb (Abb. 4) durchgeführt, um den Druck im Versuchskessel nicht zu reduzieren. Die Meßvolumina, die für das Laser-Aerosol-Spektrometer benötigt werden, sind dagegen vernachlässigbar.

### 3.2. Bestimmung der Partikelzahlkonzentration

Die Teilchenkonzentration wurde mit dem Kondensationskernzähler gemessen. Da die primär erzeugte Konzentration über dem Meßbereich des Kondensationskernzählers von  $10^7 \text{ P/cm}^3$  liegt, kann erst nach einer gewissen Zeit (meist nach etwas mehr als 1 Minute) mit den Messungen begonnen werden.

#### 3.2.1. Partikelzahlkonzentration im großen Kesselvolumen

Aus den Abbildungen 5 und 6 ersieht man, daß im großen Kesselvolumen erst nach mehr als 5 Tagen die Teilchenkonzentration in den Untergrundbereich des Kondensationskernzählers von ca.  $100 \text{ P/cm}^3$  absinkt. In einer gefilterten Stickstoffatmosphäre wird mit dem Kondensationskernzähler ebenfalls eine Konzentration von  $100 \text{ P/cm}^3$  gemessen. Man kann daher den Konzentrationsbereich unter  $100 \text{ P/cm}^3$  als Untergrund des Kondensationskernzählers bezeichnen. Daher kann bei  $100 \text{ P/cm}^3$  zwischen Untergrund und den vielleicht noch vorhandenen nuklearen Aerosolpartikeln nicht mehr unterschieden werden.

In der Abbildung 5 ist eine typische Kurve der Abnahme der Partikelzahlkonzentration aufgezeichnet. Insgesamt konnte bei elf Experimenten die Partikelzahlkonzentration als Funktion der Zeit ausgewertet werden. Diese Kurven sind in der Abbildung 6 aufgezeichnet.

Nach ca. 20 Stunden ist die Konzentration unter  $10^4 \text{ P/cm}^3$  abgesunken und mündet hier in einen nahezu exponentiell abklingenden Kurvenbereich ein. Insbesondere läßt sich dies aus der Abbildung 5 erkennen. Die übrigen Experimente (Abb. 6) bestätigen diesen Sachverhalt.

Nach ca. 65 Stunden verläuft der Abnahme-prozeß exponentiell. Für die Halbwertszeit in diesem Kurvenast ergibt sich ein Mittelwert aus den neun Langzeitkurven der Abbildung 6 von 21,2 Stunden.

Grundsätzlich lassen sich folgende drei Zeitbereiche unterscheiden:

- Bereich 1, in dem die Teilchenkonzentration sehr rasch abfällt,
- Bereich 2, in dem die Teilchenkonzentration deutlich langsamer abfällt,
- Bereich 3, in dem die Teilchenkonzentration mit guter Näherung exponentiell abfällt.

Der erste Bereich wird zweifelsfrei durch die Koagulation der primär erzeugten  $UO_2$ -Teilchen bestimmt. Dies läßt sich unter anderem durch eine Darstellung der reziproken Teilchenkonzentration über der Zeit (Abb. 7) zeigen. Nach Smoluchowski [14] lautet die Koagulationsgleichung, die für ein monodisperses Aerosol abgeleitet wurde:

$$\frac{dC_p}{dt} = -K_o C_p$$

Durch Integration folgt

$$\frac{1}{C_p} = \frac{1}{C_{Po}} + K_o t$$

mit  $C_p$  = Teilchenkonzentration zur Zeit  $t$   
 $C_{Po}$  = Teilchenkonzentration zur Zeit  $t = 0$   
 $K_o$  = Koagulationskonstante  $\text{cm}^3/\text{sec}$

Der lineare Zusammenhang zwischen der reziproken Teilchenkonzentration  $1/C_p$  und der Zeit (Abb. 7) weist, unter der Annahme, daß das System durch ein monodisperses Aerosol angenähert werden kann, auf die Dominanz der Koagulation im ersten Bereich hin. Wir nennen diesen Bereich auch den Koagulationsbereich. Die so bestimmte Konstante konnte als Mittelwert aus 13 Messungen zu

$$K_o = 18,9 \cdot 10^{-10} \frac{\text{cm}^3}{\text{sec}}$$

berechnet werden. Der mittlere Fehler beträgt  $\pm 0,8 \cdot 10^{-10} \frac{\text{cm}^3}{\text{sec}}$  entsprechend  $\pm 4 \%$ . Diese Werte sind in der Tabelle 2 zusammengestellt.

**Tabelle 2 : Halbwertszeit und Koagulationskonstante der Experimente  
im TUNA-Kessel**

Versuch	Halbwertszeit (h)	Koagulationskonstante $\frac{\text{cm}^3}{\text{sec}}$
1	-	$17,2 \cdot 10^{-10}$
2	-	$19,3 \cdot 10^{-10}$
3	23,5	$19,6 \cdot 10^{-10}$
4	-	$26,0 \cdot 10^{-10}$
5	23,5	$15,5 \cdot 10^{-10}$
6	21,3	$22,2 \cdot 10^{-10}$
7	19,7	$15,8 \cdot 10^{-10}$
8	17,9	$19,5 \cdot 10^{-10}$
9	19,7	$18,5 \cdot 10^{-10}$
10	20,8	$16,5 \cdot 10^{-10}$
11	23,7	$21,2 \cdot 10^{-10}$
12	-	$15,5 \cdot 10^{-10}$
13	20,0	$18,5 \cdot 10^{-10}$
Mittelwerte	21,1	$18,9 \cdot 10^{-10}$

=====

Im zweiten Bereich werden weitere Aerosolprozesse wirksam. Die Koagulation nimmt hier deutlich ab, während andere Abscheidungsvorgänge, wie Sedimentation und Diffusion, in den Vordergrund treten.

Der dritte Bereich, dessen quasi exponentieller Abfall bemerkenswert ist, kann jedoch mit der Sedimentation und der Diffusion in Verbindung gebracht werden.

Eine detaillierte theoretische Erklärung der experimentellen Kurven und ihr Zusammenhang mit den verschiedenen Aerosolprozessen wird in Abschnitt vier gegeben.

### 3.2.2. Teilchenkonzentration im kleinen Volumen

Um höhere Massenkonzentrationen zu erzielen, wurden auch Experimente in einem kleineren Volumen (Aerosolerzeugungskammer  $V = 0,022 \text{ m}^3$ ) durchgeführt. Das Konzept der Volumenvariation ist gewählt worden, um stets konstante Aerosolerzeugungsbedingungen zu haben. Dabei wurden auch im kleinen Volumen die Teilchenkonzentrationen als Funktion der Zeit bestimmt. Die Ergebnisse sind in den Abbildungen 8 und 9 exemplarisch dargestellt. Auch hier sind, wenn auch nicht so ausgeprägt wie im großen Volumen, die drei Zeitbereiche erkennbar:

- ein erster, sehr rasch abfallender Koagulationsbereich.
- ein zweiter Übergangsbereich, der jedoch kürzer ist als im Falle des großen Volumens, so daß
- der dritte, der Sedimentationsbereich, bereits nach etwa 5 Stunden einsetzt. Mit einer Halbwertszeit von 2,6 Stunden, die einen Mittelwert aus fünf Messungen darstellt, wird der Untergrund des Kondensationskernzählers nach ca. 21 Stunden erreicht.

Aus diesen Ergebnissen läßt sich die Schlußfolgerung ziehen, daß eine einfache Zuordnung aerosol-physikalischer Prozesse zu bestimmten Zeitbereichen der Konzentrationsabnahme in einem kleinen Volumen schwieriger ist. Hier können nur detaillierte theoretische Modelle (Rechenprogramme) weiterführen. Die Ergebnisse dieser Experimente werden im Abschnitt vier interpretiert.

### 3.2.3. Fehlerbetrachtung

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

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

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

In Abbildung 5 und bei einer Kurve in Abbildung 6 sind die Fehlergrenzen eingezeichnet.

### 3.3. Bestimmung der Massenkonzentration

Die Massenkonzentration wurde mit der Filtrations-Methode bestimmt.

Die während der Probenahmezeit auf dem Filter niedergeschlagene Masse wurde auf drei verschiedene Arten bestimmt:

- gravimetrisch
- fluorometrisch
- aktivierungsanalytisch.

#### 3.3.1. Massenkonzentration im großen Kesselvolumen

In der Abbildung 10 sind drei verschiedene Experimente im TUNA-Kessel mit den drei verschiedenen Nachweismethoden vergleichsweise dargestellt. Während die gravimetrische Meßmethode unterhalb einer Beaufschlagungsmasse von ca. 0,5 mg wegen der Hygroskopie der verwendeten Membranfilter nicht mehr empfindlich genug ist, stellen die fluorometrische [15, 16, 17, 18] und die aktivierungs-

analytische Bestimmung überaus empfindliche Nachweismethoden (ca. 3 ng) dar. Daher ist es nicht möglich, mit der gravimetrischen Methode länger als 50 Stunden den Zeitverlauf der Massenkonzentration zu verfolgen (Abb. 10). Hingegen können mittels der beiden anderen Methoden bis 120 Stunden bzw. 175 Stunden nach der Aerosolerzeugung (Abb. 11 und Abb. 12) noch Messungen durchgeführt werden.

Drei Besonderheiten verdienen bei den Abnahmekurven der Massenkonzentration Beachtung:

- Bei allen drei Meßmethoden und Experimenten (Abb. 10, Abb. 11 und Abb. 12) kann zu Beginn ein Anstieg festgestellt werden. Eine einwandfreie Erklärung dafür steht noch aus. Vermutlich hängt dieser Effekt mit dem Ort der Probe-  
nahme zusammen.
- Die im halblogarithmischen Maßstab aufgetragene Kurve weist bei allen drei Methoden eine konkave Krümmung auf. Es wurde jedoch weder mit der fluorometri-  
schen noch mit der aktivierungsanalytischen Meßmethode ein Grenzwert experi-  
mentell nachgewiesen. Theoretisch kann ein solcher Grenzwert auch gar nicht  
existieren. Der Wert von  $0,1 \frac{\text{mg}}{\text{m}^3}$  wird nach ca. 100 Stunden unterschritten. Im  
weiteren Verlauf weist die Kurve immer noch eine fallende Tendenz auf.
- Wegen der stetigen konkaven Krümmung der Massenkonzentrationskurven kann  
keine Halbwertszeit angegeben werden.

### 3.3.2. Massenkonzentration im kleinen Volumen

Im kleinen Volumen der Aerosolerzeugungskammer wurden ebenfalls Experimente zur Abnahme der Massenkonzentration durchgeführt. Der Grund dafür war hier, um bei konstanten Aerosolerzeugungsbedingungen besonders hohe Anfangskonzentrationen zu erhalten. Eine Messung wurde gravimetrisch (Abb. 13), eine weitere Messung fluorometrisch (Abb. 14) ausgewertet. Zum Vergleich wurden beide Kurven in einer Darstellung (Abb. 15) aufgezeichnet.

Die Resultate zeigen erwartungsgemäß einen sehr viel schnelleren Abfall als im großen Volumen.

### 3.3.3. Fehlerbetrachtung zur Massenkonzentrationsbestimmung

Der Fehler einer Meßwertangabe, die mit der fluorometrischen Methode ermittelt wurde, setzt sich aus vier Anteilen zusammen:

- der Fehler der Eichkurve. Dieser Fehler folgt aus der Tatsache, daß die einzelnen Eichpunkte nicht exakt auf einer Geraden liegen (siehe Abb. 16). Aus einer Regressionsanalyse für Eichung und Messung leiten sich die eingezeichneten Konfidenzintervalle mit einer vorgegebenen zweiseitigen 2,5 %-igen Irrtumswahrscheinlichkeit ab. Diese Grenze ist schon ziemlich streng, was sich auch aus der Tatsache ablesen läßt, daß keiner der 9 Eichpunkte, die als Kreuze in Abb. 16 eingetragen sind, aus dem Konfidenzintervall für die Eichung herausfällt. Dieses ist durch die senkrechten Balken gekennzeichnet. Für Eichung und anschließende Messung ergibt sich das durch die waagrechten Schranken gekennzeichnete Konfidenzintervall. Eine Abschätzung am Schwerpunkt der Eichgeraden bei 307 ng U liefert bei 95 %-iger Eintrittswahrscheinlichkeit eine 20 %-ige Unsicherheit für Eichung und Messung.
- der Fehler, der bei einer Probenahme auftritt. Dieser Fehler setzt sich zusammen aus den Fehlern der Zeitmessung und der Messung des Durchflusses. Der Fehler der Zeitmessung kann bei der Angabe des Gesamtfehlers vernachlässigt werden. Der Fehler der Durchflußmessung wird auf maximal 2 % geschätzt.
- der Fehler, der durch die Verdünnung des Aerosols durch die Probenahmen entsteht. Dieser Fehler vergrößert sich von Messung zu Messung und erreicht nach ca. 20 Probenahmen einen Höchstwert von 10 %. Als mittlerer Fehler können 5 % angenommen werden.
- der Fehler, der aufgrund der Tatsache entsteht, daß der Wirkungsgrad eines Filters stets kleiner als 100 % ist. Dieser Fehler liegt jedoch unter 0,1 % und ist daher vernachlässigbar.

Somit ergibt sich eine ungefähre Fehlerangabe von ca. 27 %. Dabei ist zu beachten, daß sich insbesondere wegen der Eichgeraden im doppelt-logarithmischen Maßstab und der weitreichenden Probenahmezeit stark streuende Fehlergrenzen ergeben kön-

nen, die für jeden einzelnen Meßpunkt gesondert berechnet werden müssen.

Nach Angaben des Laboratoriums für Isotopentechnik [19], bei dem die aktivierungsanalytischen Messungen durchgeführt wurden, liegt auch bei dieser Meßmethode im Mikro- und Nanogrammbereich der Fehler bei ca. 30 %.

Wie bereits erwähnt, ist die gravimetrische Methode wegen der Hygroskopie der Membranfilter zwangsläufig mit einem relativ großen systematischen Fehler verbunden. Diese Methode ist daher für Langzeitversuche nicht geeignet, weil der Fehler bei Beaufschlagungsmengen unter 0,5 mg bis über 100 % ansteigen kann. Nach den Ergebnissen mit der aktivierungsanalytischen oder fluorometrischen Bestimmungsmethode ist aber die Konzentration bereits nach ca. 50 Stunden unter  $0,5 \text{ mg/m}^3$  abgesunken. Es erscheint daher bei dieser Methode nicht sinnvoll, einen Fehler anzugeben.

#### 3.4. Bestimmung der Größenverteilung

Zunächst soll hier versucht werden, in einem kurzen Überblick eine Definition des Begriffes "Größe von Aerosolpartikeln" zu geben. Die Größe eines Aerosolpartikels kann unter praktischen Gesichtspunkten der Messung durch Angaben charakterisiert werden:

- der Projektionsdurchmesser. Dieser ist der Durchmesser eines Kreises, der die gleiche Fläche hat wie die Projektion der Partikel auf eine Fläche. Dieser Durchmesser ergibt sich bei mikroskopischen Auswertungen.
- der Streulichtdurchmesser. Dieser ist der Durchmesser einer Kugel, die bei denselben optischen Konstanten die gleiche Intensität der Streulichtausbeute ergibt wie die Partikel. Dieser Durchmesser ergibt sich bei optischen Meßverfahren.
- der Stokes'sche Durchmesser. Dieser ist der Durchmesser einer Kugel, die unter denselben Versuchsbedingungen und bei derselben Dichte die gleiche Sinkgeschwindigkeit hat wie die Partikel. Dieser Durchmesser ergibt sich bei vielen Meßgeräten, die nach dem mechanischen Prinzip arbeiten, wie Diffusionsbatterien, Impaktoren, Konifugen und Zentrifugen.

- gemittelter Durchmesser. Hier wird unter den Annahmen theoretischer Dichte und Kugelgestalt der Partikel aus den Messungen der Teilchenzahlkonzentration und der Massenkonzentration der Durchmesser der Partikel errechnet.

Diese vier unterschiedlichen Angaben zur Partikelgröße haben ihren Grund in den verschiedenen Meßmethoden, mit denen die Größe der Aerosolpartikel bestimmt wird. Ein theoretisch verstandener Zusammenhang dieser vier Größenangaben ist nicht bekannt. Von diesen vier aus den unterschiedlichen Meßmethoden gewonnenen Definitionen zur Partikelgröße sind eine ganze Reihe weiterer Definitionen des Partikelgrößendurchmessers abgeleitet. Insgesamt sind dies nach den VDI-Richtlinien [20] 19 verschiedene Durchmesserdefinitionen. Als Folgerung daraus ergibt sich, daß es notwendig ist, zur Angabe des Partikeldurchmessers auch die Meßmethode zu beschreiben.

Aerosole treten gewöhnlich in polydispenser Form auf. Zur Beschreibung des Aerosolverhaltens ist es notwendig, die Größenverteilung und deren zeitliches Verhalten zu bestimmen.

Um einen möglichst breiten Fächer zur Charakterisierung der Größenangabe der Aerosolpartikel an die Hand zu bekommen, werden am TUNA zur Bestimmung der Größenverteilung vier unterschiedliche Meßverfahren angewendet. Dabei werden drei der oben angeführten Bestimmungsmethoden für den Partikeldurchmesser benutzt:

Auswertung photographischer Aufnahmen (Projektionsdurchmesser), Streulichtmeßmethode mit dem Laser-Aerosol-Spektrometer (Streulichtdurchmesser), Ermittlung des Durchmessers aus Masse und Anzahl (gemittelter Durchmesser).

Die Größenverteilung der Primärpartikeln wurde mit Hilfe der Methode der Auffangfolien [21] bestimmt. Eine Folie, die in einem Abstand von 10 cm von der Uran-dioxidprobe angebracht ist, wird unmittelbar nach der Aerosolherzeugung, die durch die Stoßstromentladung geschieht, gasdicht abgeschirmt. Die auf die Folie gelangenden Aerosolpartikel werden als Primärpartikel bezeichnet. Die Auswertung erfolgt elektronenmikroskopisch. Die Ergebnisse dazu sind:

- Die Verteilung ist logarithmisch-normal.
- Der mittlere geometrische Durchmesser ist  $d_g = 0,073 \mu\text{m}$ ,  
die geometrische Standardabweichung ist  $\sigma_g = 1,85$ ,  $\sigma = \ln \sigma_g = 0,62$ .

In der Abbildung 17 ist ein Beispiel einer elektronenmikroskopischen Aufnahme des Primäraerosols abgedruckt.

Mit Hilfe des elektrostatischen Aerosolabscheiders Point-to-Plane wurde die Größenverteilung als Funktion der Zeit bestimmt. Mit diesem Meßgerät wird zwar keine quantitative Abscheidung erreicht, es bietet jedoch den Vorteil, daß keine merkliche Größenselektion bei der Abscheidung auftritt.

In Abbildung 18 wird eine Aufnahme von Urandioxid-Aerosolen gegeben, die mit dem elektrostatischen Abscheider zwei Stunden nach der Aerosolerzeugung gewonnen wurde.

In den Abbildungen 19 und 20 sind je ein Kurzzeit- und ein Langzeit-Experiment aufgezeichnet. In jedem Fall konnte eine logarithmische Normalverteilung festgestellt werden. Der mittlere geometrische Durchmesser steigt zu Beginn relativ rasch an (von 0,073  $\mu\text{m}$  bis 0,4  $\mu\text{m}$  innerhalb einer Stunde) und sinkt ebenfalls recht rasch wieder ab (innerhalb etwa 3 Stunden von ca. 0,4  $\mu\text{m}$  auf ca. 0,24  $\mu\text{m}$ ). Im weiteren Verlauf bleibt der Durchmesser nahezu konstant. Eine leicht abnehmende Tendenz ist erkennbar (Abb. 20). Die mittlere geometrische Standardabweichung schwankt zwischen den Werten 1,85 und 2,75. Eine zeitliche Tendenz ist nicht zu erkennen.

Ein Beispiel für die Auswertung einer elektronenmikroskopischen Aufnahme einer elektrostatischen Abscheidung ist in Abbildung 21 dargestellt. Man sieht, daß die Meßpunkte, die im Wahrscheinlichkeitsnetz eingetragen sind, gut auf einer Geraden liegen. Diese Tatsache stellt einen hinreichend guten Beweis für das Vorliegen einer logarithmischen Normalverteilung dar. Die Parameter der Verteilung  $n(r)$ , der Medianwert oder der mittlere geometrische Durchmesser  $d_g$  sowie die Quadratwurzel aus der Varianz oder die mittlere geometrische Standardabweichung  $\sigma_g$  lassen sich der graphischen Darstellung bequem entnehmen:

$$d_g = n(50\%)$$

$$\sigma_g = \sqrt{\frac{d_{84}}{d_{16}}}$$

$d_g$  = Medianwert oder mittlerer geometrischer Durchmesser

$n(d)$  = Verteilung

$\sigma_g$  = geometrische Standardabweichung

$d_{84}$  = Abszissenwert für  $n = 84\%$

$d_{16}$  = Abszissenwert für  $n = 16\%$

In Abbildung 22 ist die Teilchengrößenverteilung aufgezeichnet, wie sie mit dem Laser-Aerosol-Spektrometer ermittelt wurde. Parameter ist dabei die Zeit nach der Aerosolerzeugung. Man erkennt daraus, daß am Anfang das Maximum der Verteilung bei einem Durchmesser liegt, der kleiner ist als  $0,2 \mu\text{m}$ . Der Größenbereich der Aerosolpartikel, die kleiner als  $0,2 \mu\text{m}$  sind, läßt sich mit dem Laser-Aerosol-Spektrometer nicht mehr messen. Nach zwei Stunden baut sich bei  $0,35 \mu\text{m}$  ein Maximum auf, das im weiteren Verlauf wieder zu kleineren Teilchendurchmessern hin wandert. Trägt man die Summenkurve im logarithmisch-normalen Wahrscheinlichkeitsnetz auf, so ergibt sich (Abb. 23) ein mittlerer geometrischer Durchmesser  $d_g$  von  $0,21 \mu\text{m}$ , die geometrische Standardabweichung zu  $1,67$ . Der Wert für den Durchmesser  $d_g$  stimmt für die Zeit von 2 Stunden sehr gut überein mit den Daten, die sich aus den Abbildungen 19 und 20 ablesen lassen.

Trägt man die Masse eines Partikels als Funktion der Zeit (Abb. 24) auf, so ergibt sich unter der Annahme einer theoretischen Dichte für 2 Stunden ein "gemittelter Durchmesser" von  $0,23 \mu\text{m}$ . Dieser Wert stimmt ebenfalls gut mit den übrigen Durchmesserangaben überein.

### 3.5. Andere Einflußgrößen

Neben der Beschreibung des Aerosolverhaltens an sich muß das ganze aerodisperse System bekannt sein, um die Ergebnisse auch auf andere Systeme anwenden zu können. Weiterhin werden von den Gegebenheiten eines Reaktorstörfalles Randbedingungen gesetzt, die ebenfalls in die Untersuchungen mit einbezogen werden müssen. Die wichtigen Faktoren, die dabei von Bedeutung sein können, sind die chemische Zusammensetzung des Trärgases, die relative Feuchte und die Zustandsgrößen Druck und Temperatur.

Diese Parameter wurden variiert. Mit Ausnahme der Temperatur konnte nur ein geringer oder gar kein Einfluß auf das Zeitverhalten der Konzentration festgestellt werden. Da sich der Einfluß der Temperatur sehr stark auf das Aerosolverhalten auswirkt, wurden hier mehrere Versuchsreihen durchgeführt, deren Ergebnisse im nächsten Abschnitt gesondert behandelt werden.

Eine Tendenz über eine Druckabhängigkeit konnte nicht beobachtet werden. Der Druck wurde dabei von 0,98 ata (200 mm Wassersäule Unterdruck) auf 2 ata variiert. Weiterhin wurde der Stickstoff-Atmosphäre 4,9 % Sauerstoff beigemischt. Im Abnahmeverhalten der Teilchenkonzentration konnte kein Unterschied zu den Ergebnissen der anderen Experimente festgestellt werden. Bei einer Strukturuntersuchung stellte sich heraus, daß lediglich das  $UO_2$ -Gitter teilweise zum  $U_3O_8$ -Gitter aufoxidiert war.

Der Einfluß erhöhter relativer Feuchte wurde in zwei Experimenten untersucht. In der Abb. 25 sind die beiden Kurven mit erhöhter relativer Feuchte im Vergleich zu einem typischen "Trocken"-Experiment dargestellt. Die Erhöhung der Halbwertszeit von

$$t_H = 30,3 \text{ h bei } rF = 70 \% \text{ auf}$$

$$t_H = 31,0 \text{ h bei } rF = 90 \%$$

kann nicht als signifikant angesehen werden, da sich die Fehlergrenzen der "Feucht"-Experimente weitgehend überlappen.

Dagegen scheint das Vorhandensein eines bestimmten Feuchtigkeitsgrades tatsächlich eine, wenn auch kleine Auswirkung auf den Sedimentationsanteil des Aerosolverhaltens zu haben. Dieser Effekt wird bei einem anderen Programm theoretisch näher untersucht.

### 3.6. Temperaturabhängigkeit

Wie bereits erwähnt, hat eine Erhöhung der Temperatur, genauer des Temperaturgradienten, sehr starke Auswirkungen auf das Aerosolverhalten. Nach der Theorie ist die thermophoretische Abscheidung dem Temperaturgradienten proportional. Nukleare Aerosole, die bei einem schweren hypothetischen Reaktorstörfall entstehen, sind im Reaktorgebäude starken Temperaturgradienten ausgesetzt. Um den Effekt der thermophoretischen Abscheidung gut studieren und um den natürlichen Abnahmeprozess der Aerosolkonzentration unter möglichst gut angeglichenen Bedingungen experimentell untersuchen zu können, wurde der TUNA-Kessel beheizt.

Dabei wurde eine Versuchsserie mit Innenheizung, eine weitere Versuchsserie mit Außenheizung durchgeführt.

### 3.6.1. Innenheizung

Während der Experimente mit Innenheizung war in der unteren Hälfte in der Kesselmitte eine Heizung angebracht. Diese bestand aus einer Heizwicklung, die in einem gasdichten Edelstahlbehälter eingeschweißt war. Maximal konnte diese Heizwicklung bis 400°C hochgeheizt werden. Als Referenzpunkt der Temperatur wurde in den Abbildungen 27 und 28 diese Temperatur der Heizwicklung gewählt. Das radiale Temperaturfeld im TUNA-Kessel ist in der Abbildung 26 dargestellt. Die Ergebnisse zur Abnahme der Massenkonzentration und der Teilchenkonzentration sind in den Abbildungen 27 und 28 aufgezeichnet. Man erkennt daraus, daß schon bei relativ geringen Temperaturerhöhungen die Partikelzahl- wie auch die Massenkonzentration schneller abnimmt. Zur Verdeutlichung dieses Sachverhaltes ist in der Abbildung 29 die Halbwertszeit des quasiexponentiellen Teiles der Abnahme der Teilchenkonzentration in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen.

### 3.6.2. Außenheizung

Durch eine Heizmatte, die an der Außenwand des TUNA-Versuchsbehälters angebracht ist, konnte die Temperatur an den Innenseiten der Kesselwand bis 175°C hochgeheizt werden. Die radiale Temperaturverteilung, die sich dabei einstellt, ist in der Abbildung 30 dargestellt. Als Referenzwert für die in Abbildung 31 dargestellten Ergebnisse wurde die Temperatur des von der Kesselinnenwand 1 mm entfernten Temperaturmeßpunktes gewählt. In der Abbildung 31 sind die Abnahmekurven der Teilchenkonzentration dargestellt. Parameter der Kurven ist die Temperatur des Referenzwertes. Auch hier zeigt sich qualitativ das gleiche Bild wie bei Innenheizung. Eine relativ geringe Temperaturerhöhung bewirkt bereits, daß die Konzentration, sowohl der Partikelzahl als auch der Masse, rasch abnimmt. Die Abhängigkeit der Halbwertszeit des quasiexponentiellen Teiles von der Referenztemperatur ist in Abbildung 32 dargestellt. Die Kästchen um die einzelnen Meßpunkte zeigen dabei die Fehlergrenzen auf. Die Reproduzierbarkeit kann als sehr gut bezeichnet werden.

Ein weiterer experimenteller Befund für die hohe Wirksamkeit der thermophoretischen Abscheidung ist die pro  $\text{cm}^2$  abgeschiedene Masse des  $\text{UO}_2$ -Aerosols an der Kesselinnenwand. Bei mehreren Experimenten wurden am oberen Kesselflansch im Abstand von 350 mm von der Wand Membran-Filter angebracht, die nach Beendigung

des Experimentes auf ihren  $\text{UO}_2$ -Gehalt untersucht wurden. Es zeigte sich, daß mit zunehmender Temperatur immer mehr Masse an Urandioxid auf den Filtern abgeschieden wird. In der Abbildung 33 sind die pro  $\text{cm}^2$  Filterfläche abgeschiedenen  $\text{UO}_2$ -Mengen als Funktion der Temperatur sowohl bei Innenheizung als auch bei Außenheizung aufgetragen. Die Abscheidung des Urandioxid-Aerosols auf den Filtern dürfte die Abscheidung an der Kesselwand gut wiedergeben, da die Filter während des gesamten Versuches unmittelbar an die Kesselinnenwand angepreßt waren.

Für die theoretische Analyse wird das pro Flächeneinheit ( $\text{cm}^2$ ) zu ermittelnde Verhältnis der diffundierten und der sedimentierten Masse benötigt. Aus der Abbildung 33 entnimmt man die pro Flächeneinheit diffundierte Masse bei  $20^\circ\text{C}$  zu  $0,02 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Aus der Innenfläche (Diffusionsfläche) des Versuchskessels von  $87\,900 \text{ cm}^2$  ergibt sich also die gesamte diffundierte Masse zu  $1,8 \text{ mg}$ . Für einen Mittelwert von  $4,5 \text{ mg}/\text{m}^3$  ergibt sich die Gesamtmasse im Kessel zu  $10 \text{ mg}$ . Auf die Sedimentationsfläche von  $8000 \text{ cm}^2$  sedimentiert also die Masse von  $8,2 \text{ mg}$  oder  $8200 \mu\text{g}$ . Dies ergibt eine auf die Flächeneinheit bezogene Masse von  $1,02 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Es ergibt sich also:

$$\frac{\text{diffundierte Masse pro cm}^2}{\text{sedimentierte Masse pro cm}^2} = \frac{0,02}{1,02} = 0,02$$

Aus der Abbildung 31 erkennt man, daß auch bei Außenheizung mit zunehmender Temperatur die thermophoretische Abscheidung an der Kesselwand immer mehr Bedeutung gewinnt gegenüber der Sedimentationsabscheidung. Die genaue theoretische Erklärung dafür wird im nächsten Abschnitt gegeben.

#### 4. Modelltheoretische Untersuchungen

Wie schon in Abschnitt 2. erwähnt, diente das AV-Programm der Klärung, welche aerosolphysikalischen Prozesse im Falle eines hypothetischen Störfalls eines Reaktors im Containment dieses Reaktors eine Rolle spielen. Man geht dabei davon aus, daß Simulationskessel wie TUNA und die in Petten betriebenen Kessel ENAK und "200-tank" [22] trotz ihrer sehr viel geringeren Ausmaße die Prozesse erfassen, die eine wesentliche Rolle im tatsächlichen Containment spielen. Anhand der in diesen Kesseln gewonnenen Erkenntnisse wurde gleichzeitig ein mathematisches Modell zur Beschreibung des Aerosolverhaltens in einem Reaktorcontainment entwickelt. Die Gleichungen wurden als Rechenprogramm PARDISEKO [23, 24] programmiert. Es sei betont, daß das Ziel des Modells zwar die Beschreibung des Aerosolverhaltens in einem tatsächlichen Containment ist, die Verifikation des Modells sich aber auf die Wiedergabe des gemessenen Verhaltens in den verschiedenen Simulationskesseln beschränken mußte. Es gilt daher die Annahme, daß das Modell es gestattet, die Simulations-Experimente richtig auf tatsächliche Containments zu extrapolieren. Im folgenden soll das Modell beschrieben und dessen Ergebnisse mit den experimentellen Ergebnissen verglichen werden.

##### 4.1. Modellannahmen

Das zu betrachtende Aerosole besteht aus dem Trägergas  $N_2$  und einer dispersen Phase von  $UO_2$ -Partikeln. Das Modell geht davon aus, daß eine vollkommene Beschreibung des Systems zu irgend einem Zeitpunkt nach Ende der Partikelerzeugung vorliegt und rechnet dann den weiteren Verlauf aus. Da eine vollständige Beschreibung für ein solch komplexes System sowohl statisch wie dynamisch unmöglich ist, mußten Modellannahmen gemacht werden.

Die mit Sicherheit auftretende turbulente Konvektion des Trägergases im Kessel kann meßtechnisch wie theoretisch nur ungenau erfaßt werden. Obwohl viele theoretische Ansätze zur Beschreibung der Turbulenz vorliegen, reichen diese nicht aus, ein befriedigendes Modell zu gewährleisten. Es wird vielmehr als fundamentale Voraussetzung die Modellannahme getroffen, daß das System sich durch Konvektion homogen vermischt, und daß die Relaxationszeit für diese Durchmischung kurz ist im Vergleich zu den Relaxationszeiten der einzelnen Prozesse. Wenn man zusätzlich noch annimmt, daß für alle Abscheideprozesse an den Wänden ein sehr viel lang-

samerer Transport als der hydrodynamische zeitbestimmend ist, kann man auf eine genaue Beschreibung der Transportprozesse im Inneren des Kessels verzichten. Andererseits wird für die Prozesse im Inneren des Systems (Koagulation) angenommen, daß das Korrelationsvolumen der konvektiven Bewegung des Gases (die Größe der turbulenten Ballen) so groß bleibt, daß es eine statistisch signifikante Anzahl an Partikeln enthält. Damit wird die turbulente Koagulation im Vergleich zu strömungsabhängiger Koagulation vernachlässigbar.

Mit dem Verzicht auf eine Beschreibung der hydrodynamischen Vorgänge des Systems bleibt als wesentliche Anfangsbedingung für das Modell die Beschreibung der am Anfang vorhandenen dispersen Phase. Dabei ist mit Anfang der Zeitpunkt gemeint, zu dem sich die durch eine örtliche Quelle produzierten Partikeln über den Kessel homogen verteilt haben. Dieses geschieht im TUNA-Kessel ca. 90 Sekunden nach Einschaltung des Stoßstromes.

Für das Modell ist, wie im weiteren klar werden soll, die Bestimmung der Anfangsgrößenverteilung eine ausreichende Beschreibung der am Anfang vorhandenen dispersen Phase. Wie in Abb. 17 ersichtlich, sind zu dieser Zeit die einzelnen Partikeln Agglomerate von Kondensationskügelchen. Ihre Form besitzt keinerlei Regelmäßigkeit und läßt sich auch nicht durch irgendein regelmäßiges geometrisches Gebilde annähern. Dieses bedingt, daß auch die Größenbestimmung willkürlich und äußerst schwierig ist (siehe hierzu auch [25]). Man greift daher häufig auf Partikelgrößenbestimmungen zurück, die von dem Verhalten und nicht direkt von der Struktur der Partikel abhängen. Weil viele Partikelgrößen-Meßgeräte auf dem aerodynamischen Verhalten der Partikeln beruhen, ist es am einfachsten, den "Stokes' schen Durchmesser" als Größenmaß zu nehmen. Dieser ist definiert als der Durchmesser einer Kugel, welche dieselbe Sinkgeschwindigkeit wie die betrachtete Partikel besitzt. Solch ein Maß hat natürlich weiterhin den Vorteil einer eindeutig, unabhängig von der Form der Partikel, bestimmbaren Beweglichkeit.

Im Mittelpunkt des Aerosolverhaltens steht jedoch die Koagulation, bei der die Masse erhalten bleibt (siehe Kap. 4.2.4.). Daher ist es für das mathematische Modell anschaulicher, als Größenmaß der Partikeln den massenäquivalenten Radius  $r_e$  (oder Durchmesser) zu wählen:

$$r_e \equiv \sqrt{\frac{3m}{4\pi\rho}} \quad (1)$$

mit :  $r_e$  : massenäquivalenter Radius  
       $m$  : Masse des Partikels  
       $\rho$  : Dichte des Partikels

Dabei ist zu beachten, wie im weiteren deutlich gemacht wird, daß ein konsistentes Modell nur dann möglich erscheint, wenn der Stokes Durchmesser dem massenäquivalenten Durchmesser proportional ist. Das bedeutet, daß im Prinzip beide Maße für das Modell äquivalent sind.

Eine weitere Klasse von Modellannahmen beruht auf Schwierigkeiten der theoretischen Erfassung der physikalischen Prozesse. Diese sind einmal dadurch bedingt, daß wegen der komplexen Partikelform die Errechnung der hydrodynamischen Strömung um solch eine Partikel nicht möglich ist. Zum anderen aber liegt die Partikelgröße gerade in dem Bereich, wo weder die Hydrodynamik, noch die statistische Mechanik anwendbar ist, dem sogenannten "Slip-Flow"-Bereich. In diesem Bereich ist die Partikelgröße mit der mittleren freien Weglänge des Gases vergleichbar, so daß die Hydrodynamik prinzipiell nicht anwendbar ist. Eine Anwendung der statistischen Mechanik scheitert an der Komplexität des Problems, die durch die Störung der Geschwindigkeitsverteilung der Gasmoleküle durch die betrachtete Partikel verursacht wird. Bei genügend kleinen Partikeln ist diese Störung vernachlässigbar.

Man kann sich leicht überlegen, daß ein für uns interessantes  $UO_2$ -Aerosol aus sehr kleinen Partikeln bestehen muß. Betrachtet man die Sedimentation einer einzelnen Partikel im Schwerfeld, dann gilt in erster Näherung:

$$\frac{d(m v_{sed})}{dt} = mg - 6\pi\eta r_{St} v_{sed} \quad (2)$$

mit  $m$  = Masse der Partikel  
 $v_{sed}$  = Sedimentationsgeschwindigkeit der Partikel  
 $r_{St}$  = Der Stokes'sche Radius der Partikel  
 $\eta$  = Dynamische Zähigkeit des Trägergases  
 $g$  = Gravitationskonstante

Gl. (2) hat die Lösung

$$v_{\text{sed}} = v_0 e^{-t/\tau} + g (1 - e^{-t/\tau}) \quad (3)$$

mit :  $\tau \equiv m/6\pi\eta r_{\text{St}}$   
und  $v_0 = v_{\text{sed}} (t=0)$

Aus Gl. (3) folgt die stationäre Geschwindigkeit  $v = g\tau$  für  $t \gg \tau$ . Ein für uns interessantes Aerosol muß aber Verweilzeiten in der Größenordnung von Stunden in Gefäßen mit Ausmaßen in der Größenordnung von Metern haben. Aus Gl. (3) folgt nun, daß für

$$r_{\text{St}} < 0.4 \mu$$

eine Partikel länger als eine Stunde braucht, um einen Meter zu durchfallen. Es folgt also, daß unser Aerosol prinzipiell aus Partikeln dieser oder kleinerer Größenordnung besteht. Setzt man diesen Wert in den Ausdruck für die Relaxationszeit  $\tau$  ein, so wird

$$\tau \approx \frac{2 r_{\text{St}}^2}{9 \eta} \approx 2 \cdot 10^{-5} \text{ sec}$$

mit  $\rho = 10. \text{ gm/cm}^3$ , die Dichte von  $\text{UO}_2$ . Man kann also von stationären Geschwindigkeiten ausgehen und den Begriff der Beweglichkeit  $B$ , definiert durch

$$B = v/F = \tau/m$$

anwenden. Hier soll  $F$  (z.B. mg) die externe Kraft,  $v$  die durch  $F$  induzierte konstante Geschwindigkeit sein.

Die in Gl. (2) angewandte Stokes'sche Reibungskraft des Trägergases oder die daraus folgende Beweglichkeit, gilt genügend genau für Reynoldszahlen  $Re < 1$ , d.h. für viskose Strömung. Da

$$Re = \frac{2 r_{\text{St}} \rho v_{\text{sed}}}{\eta}$$

folgt, daß für  $Re < 1$

$$r_{\text{St}} < 18 \mu ,$$

so daß die Strömung in der Nähe einer für uns interessanten Partikel als durchweg viskos angesehen werden kann.

Da das Modell ausschließlich mit dem massenäquivalenten Radius  $r_e$  rechnet, wird die hydrodynamische Reibungskraft durch

$$\kappa 6\pi\eta r_e v_{\text{sed}}$$

ersetzt.  $\kappa$  ist der dynamische Formfaktor und trägt, wie der Name andeutet, der nicht kugelförmigen Gestalt der Partikel Rechnung. Daß ein solches Vorgehen erlaubt ist, folgt aus Dimensionsüberlegungen und wird durch Experimente bestätigt [26].  $\kappa$  läßt sich zum Beispiel für Ellipsoide berechnen. Aus der Definition von  $r_{\text{St}}$  und unter der Annahme der Gültigkeit von Gl. (2) folgt

$$\kappa = \frac{r_e^2}{r_{\text{St}}^2} \quad (4)$$

Das Modell nimmt an, daß  $\kappa$  unabhängig von  $r_e$  ist und allein von der Struktur der Partikel abhängt. Solch eine Annahme kann prinzipiell experimentell auf ihre Richtigkeit untersucht werden. Dies konnte bisher nicht durchgeführt werden. Es gibt auch nur wenige Nachweise solcher Untersuchung in der Literatur. Immerhin weist die Arbeit von Kotrappa und Wilkinson [27] darauf hin, daß für Glimmerplättchen in dem Größenbereich  $1 \mu - 7 \mu$  unsere Annahme gut zutrifft. Ihre Messungen lassen sich durch die Gleichung

$$r_e = 0.01 + 1.30 r_{\text{St}}$$

wiedergeben. Aus ihr folgt

$$\kappa \approx 1.7$$

für Glimmer.

Schließlich ist zu bemerken, daß die Hydrodynamik nur für Knudsenzahlen  $K_n \ll 1$  gilt. Nun ist aber die mittlere freie Weglänge  $\lambda$  von  $N_2$  bei Raumtemperatur

$$\lambda \approx 9 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$$

so daß

$$K_n \equiv \frac{\lambda}{r_e} \approx \frac{\lambda}{r_{St}} \approx 0.2 \quad \text{ist.}$$

Die Bedingung  $K_n \ll 1$  ist also nicht erfüllt; man ist vielmehr in dem oben erwähnten "Slip-Flow"-Bereich. Für diesen Bereich wird häufig die von Knudsen und Weber [28] gefundene, empirische Korrektur der Stokes'schen Reibungskraft verwendet:

$$6\pi\eta r_{St} v_{sed} \rightarrow 6\pi\eta r_{St} v_{sed} / (1 + A K_n + Q K_n e^{-b/K_n}) \quad (5)$$

Dieser Ausdruck geht über in den Stokes'schen (mit Cunningham'scher Slipkorrektur) für  $K_n \ll 1$  und in den exakten, aus der statistischen Mechanik gewonnenen:

$$\frac{6\pi\eta r_{St}^2 v_{sed}}{(A+Q) l} \quad (6)$$

für  $K_n \gg 1$ . Die Konstanten A, Q, b spiegeln die Wechselwirkung zwischen Gasmolekül und Aerosolpartikel wieder und hängen daher von der Oberflächenbeschaffenheit der Partikel ab. Sie sind hauptsächlich für kugelförmige Partikeln gemessen, obwohl eine Messung für Zylinder von Fuchs [26] erwähnt wird. Da für solche Korrekturen sowohl Messungen wie auch Theorie auf kugelförmigen Partikeln beruhen, ist es fragwürdig, inwieweit sie sich auf komplexere Formen anwenden lassen. Man kann aber argumentieren, daß zumindest in Gl. (6) für den Bereich  $K_n \gg 1$  die Form der Partikel eine untergeordnete Rolle spielt. Wichtig ist in diesem Bereich nur, daß die Partikel genügend klein ist, um die Energieverteilung der Gasmoleküle nicht zu beeinflussen. Andererseits ist aber die Stokes'sche Formel in dem Bereich  $K_n \ll 1$  aufgrund der Definition von  $r_{St}$  richtig. Somit kann die Knudsen-Weber-Korrektur als Interpolationsformel angesehen werden, die vermutlich auch für nicht kugelförmige Partikeln richtig ist. In dem Modell wird daher die Beweglichkeit der Partikeln mit

$$B(r_e) = \frac{1}{6\pi\eta r_e} (1 + A K_n + Q K_n e^{-b/K_n}) \quad (7)$$

angesetzt. Da es keine gemessenen Werte der Konstanten A, Q, b für  $UO_2$  gibt, mußten die von Millikan [29] für Öltropfen gefundenen, und allgemein verwendeten, Werte genommen werden:

$$A = 1,246$$

$$Q = 0,42$$

$$b = 0,87$$

#### 4.2. Abscheideprozesse

Die fundamentale Modellannahme, daß die Abscheiderate der Partikeln durch einen nicht hydrodynamischen Transport an die Wände bestimmt wird, ist auch dadurch gerechtfertigt, daß für jeden Strömungsvorgang eine laminare Grenzschicht existiert. In dieser wirken allein die Diffusions-, bzw. Sedimentations-Prozesse, die sehr viel langsamer sind als die Transportvorgänge im Inneren des Kessels.

Es sei

$n(r_e, t) dr_e$  : die Konzentration der luftgetragenen Partikeln vom massenäquivalenten Radius  $r_e$  in  $dr_e$  zur Zeit  $t$ .

$A$  : die Abscheidungsfläche

$V$  : das Volumen des Kessels

$v_1(r_e)$  : die Abscheidungsgeschwindigkeit (senkrechte Komponente zur Fläche)

dann folgt sofort

$$\frac{\partial n(r_e, t)}{\partial t} = - v_1(r_e) \frac{A}{V} n(r_e, t) \quad (8)$$

wenn das System homogen durchmischt ist.

Die bei den TUNA-Experimenten als wichtig erkannten Abscheidungsprozesse sind:

- Diffusion
- Sedimentation
- Thermophorese

Sie werden im weiteren kurz beschrieben.

#### 4.2.1. Diffusion

Es wird angenommen, wie auch theoretisch und experimentell bestätigt ist, daß praktisch alle Partikeln, die in Kontakt mit den Wänden kommen, dort haften bleiben. Dieses bedeutet aber, daß an den Wänden ein Konzentrationsgradient existiert, der wiederum einen Diffusionsfluß  $\phi$  an die Wände mit sich bringt:

$$\phi(r_e) = -D(r_e) \nabla n(r_e, t) \quad (9)$$

wobei  $D(r_e)$  die Diffusionskonstante ist. Andererseits ist auch

$$\phi(r_e) = \underline{v}_1(r_e) n(r_e, t) \quad (10)$$

wenn man sich wiederum auf die Homogenität des Systems bezieht.

Aus Gl. (9) und (10) folgt:

$$\underline{v}_1(r_e) = -D \frac{\nabla n(r_e, t)}{n(r_e, t)} \quad (11)$$

In erster Näherung kann man  $v$  durch  $\frac{n}{\delta_D}$  ersetzen, wobei  $\delta_D$  ein Maß für die Dicke  $\delta_o$  der laminaren Unterschicht der turbulenten Grenzschicht ist. Unter verschiedenen Voraussetzungen kann  $\delta_D$  theoretisch bestimmt werden. So Levich [30], der die Relation

$$\delta_D \sim \delta_o \text{Pr}^{-\frac{1}{3}}$$

aufstellt. Pr ist die Prandtlzahl,  $\text{Pr} = \frac{\eta}{\rho g D}$ . Da Pr von der Partikelgröße abhängt, ist auch  $\delta_D$  partikelgrößenabhängig. Es ist schwierig,  $\delta_D$  experimentell zu bestimmen; Schätzwerte in der Literatur liegen zwischen  $10^{-4}$  cm bis über  $10^{-1}$  cm (siehe hierzu zum Beispiel van de Vate [22]). Da auch  $\delta_o$  nicht einwandfrei feststellbar ist, und insbesondere von der nicht bekannten Strömung im Kessel stark abhängt, sieht das Modell  $\delta_D$  als partikelgrößenunabhängigen Anpassungsparameter vor. Um das Modell weiterhin von der Art der Strömung im Inneren des Kessels unabhängig zu machen, wird für  $\delta_D$  ein ortsunabhängiger Durchschnittswert über die Abscheidungsfläche genommen.

Unter Hinzunahme der Einstein'schen Relation

$$D(r_e) = B(r_e) kT$$

ist nun

$$\underline{v}_1(r_e) = E \frac{kT B(r_e)}{\delta_D} \quad (12)$$

für reine Diffusion.  $k$  ist die Boltzmann-Konstante und  $T$  die absolute Temperatur.

#### 4.2.2. Sedimentation

Eine Partikel, welche sich in der laminaren Grenzschicht am Boden des Kessels befindet, erfährt eine Sinkgeschwindigkeit  $\underline{v}_1$ , welche per definitionem der Beweglichkeit gleich  $mg B(r_e)$  ist. Hieraus folgt

$$\underline{v}_1(r_e) = \frac{4\pi}{3} r_e^3 \rho g B(r_e) . \quad (13)$$

Partikeln außerhalb der Grenzschicht erfahren durch ihre Trägheit weit höhere Strömungsgeschwindigkeiten, welche zur Durchmischung des Systems beitragen. Hier ist die Sinkgeschwindigkeit vernachlässigbar im größeren Maßstab, spielt aber eine Rolle im Maßstab der turbulenten Ballen (siehe 4.1.).

#### 4.2.3. Thermophorese

In einem inhomogenen Temperaturfeld erfahren Partikeln eine Diffusionsgeschwindigkeit, die proportional und in gegengesetzter Richtung zu dem Temperaturgradienten ist. Die mit dieser Geschwindigkeit verbundene Kraft heißt die thermophoretische Kraft,  $F_{th}$ .

$F_{th}$  kann für sehr große ( $K_n \ll 1$ ), kugelsymmetrische Partikeln aus der Hydrodynamik errechnet werden. Für  $K_n \gg 1$  liefert, wie für die Beweglichkeit, die statistische Mechanik exakte Formeln [31, 32, 33], die allein von der Wechselwir-

kung zwischen Gasmolekülen und der Partikel abhängen. In dem Bereich  $K_n \approx 1$  ist die Theorie, trotz mehrerer Ansätze, noch nicht zufriedenstellend geklärt. Die am meisten diskutierten Lösungen in diesem Bereich stammen von Brock [34] und Derjaguin [35]. Eine Übersicht über die Problematik dieser Lösungen gibt Waldmann [36].

In erster Näherung kann die Brock'sche Lösung als Interpolationsformel zwischen den Lösungen der Statistischen Mechanik und der Hydrodynamik angesehen werden. Das erste Glied der Reihenentwicklung nach Brock lautet:

$$F_{th}(r) = - \frac{9\pi\eta^2 r}{\rho_g} \left( \frac{1}{1+3C_m K_n} \right) \left( \frac{\frac{k_g}{k_s} + C_t K_n}{1 + \frac{2k_g}{k_s} + 2 C_t K_n} \right) \cdot \frac{\nabla T}{T} \quad (14)$$

mit

- $\rho_g$  : Dichte des Trägergases
- $k_g$  : Wärmeleitfähigkeit des Trägergases
- $k_s$  : Wärmeleitfähigkeit der Partikel
- $C_m, C_t$  : Koeffizienten, welche die Wechselwirkung Gas-Partikel erfassen.
- $T$  : Gastemperatur

Das Modell benutzt die Werte ( $C_m = 1.0, C_t = 2.49$ ), welche die experimentellen Ergebnisse von Schadt und Candle [37] am besten wiedergeben. Andere Ergebnisse werden allerdings zum Teil auch bei maximaler Ausnutzung der Variationsmöglichkeiten in  $C_t, C_m$  bis zu 100 % verfehlt [38]. Wichtig für das Modell ist besonders die qualitativ richtige Aussage von Gl. (14), daß für wachsende Knudsenzahl die thermophoretische Abscheidegeschwindigkeit

$$\underline{v}_1(r_e) = B(r_e) F_{th}(r_e) \quad (15)$$

zunimmt und asymptotisch konstant wird. Ungenauigkeiten im absoluten Betrag von  $F_{th}$  werden überdeckt durch die Ungewißheit des Temperaturgradienten  $\nabla T$ . Wie für die Diffusion, wird

$$\nabla T \sim \frac{T - T_w}{\delta_T} \quad (16)$$

gesetzt, wobei  $T_w$  die Wandtemperatur und  $\delta_T$  ein Maß für die Temperaturgrenzschicht-

dicke ist. Nach Pohlhausen [39] gilt  $\delta_T = \delta_0 \text{Pr}^{-\frac{1}{3}}$  für laminare Strömung. Das Modell sieht  $\delta_T$  wie auch  $\delta_D$  als ortsunabhängigen Anpassungsparameter vor.

#### 4.3. Koagulation

Bei Partikelkonzentrationen von mehr als  $\approx 10^3 \text{ cm}^{-3}$  ist die Wahrscheinlichkeit eines Zusammenstoßes zwischen irgend zwei benachbarten Partikeln allein durch Brown'sche Bewegung so groß, daß dieser Vorgang als Konzentrations-Verminderungsprozeß mit den oben behandelten Abscheideprozessen konkurriert. Dabei wird angenommen, daß bei jedem Zusammenstoß die stoßenden Partikeln aneinander haften bleiben, d.h., daß sie koagulieren. Dieses wird von Experimenten bestätigt.

Es sei  $n(m) \text{ dm}$  die Anzahl, pro  $\text{cm}^3$ , der Partikeln mit Masse  $m$  in  $\text{dm}$ . Dann ist die Zusammenstoßrate,  $R \text{ dm dm}'$ , pro  $\text{cm}^3$  zwischen Partikeln der Masse  $m$  in  $\text{dm}$  und  $m'$  in  $\text{dm}'$  gleich

$$R(m, m') \text{ dm dm}' = K(m, m') n(m) n(m') \text{ dm dm}' \quad (17)$$

wo  $K$  die Stoßratenkonstante oder Koagulationsfunktion ist. Solch ein Proportionalgesetz folgt allein aus der Annahme statistischer Unabhängigkeit der einzelnen Stöße.

Aus Gl. (17) folgt wiederum sofort für die zeitliche Ableitung von  $n(m)$  mit

$$\frac{\partial n(m) \text{ dm}}{\partial t} = \frac{1}{2} \int_0^m \int_0^m R(m', m'') \delta(m - (m' + m'')) \text{ dm}' \text{ dm}'' \text{ dm} - \int_0^\infty R(m, m') \text{ dm}' \text{ dm}$$

daß

$$\frac{\partial n(m)}{\partial t} = \int_0^{m/2} K(m - m', m') n(m - m') n(m') \text{ dm}' - n(m) \int_0^\infty K(m, m') n(m') \text{ dm}' \quad (18)$$

Hier zählt das erste Glied auf der rechten Seite die Anzahl der Zusammenstöße pro  $\text{cm}^3$ , welche eine Partikel der Masse  $m$  ergeben, das zweite die Anzahl der Stöße, bei denen einer der Partner die Masse  $m$  hat.

Man möge beachten, daß in Gl. (18) implizit die Masse bei einem Zweierstoß erhalten bleibt. Gl. (18) läßt sich auch umschreiben für den massenäquivalenten Radius als Verteilungsparameter. Allgemein existiert eine solche Umformung auch für jede differentierbare und umkehrbare Funktion von  $m$ , was im folgenden gezeigt wird.

Es sei

$$m = m(x), \quad x = m^{-1}(m) \quad (19)$$

Dann folgt aus  $n(m) dm = n(x) dx$  und Gl. (18), daß

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(x) dx}{\partial t} &= \int_{m^{-1}(0)}^{m^{-1}(\frac{m}{2})} K(m'', m') n(x') dx' n(x'') \frac{dx''}{dm''} dm \\ &- \int_{m^{-1}(0)}^{m^{-1}(\frac{m}{2})} K(m, m') n(x) dx n(x') dx' \end{aligned} \quad (20)$$

oder

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(x)}{\partial t} &= \int_{m^{-1}(0)}^{m^{-1}(\frac{m}{2})} K(m'', m') n(x'') n(x') \frac{dx''}{dm''} \frac{dm}{dx} dx' \\ &- n(x) \int_{m^{-1}(0)}^{m^{-1}(\infty)} K(m, m') n(x') dx' \end{aligned} \quad (21)$$

wo

$$\begin{aligned} x'' &= m^{-1}(m-m') \\ m'' &= m(x'') \end{aligned}$$

Insbesondere interessiert hier der definierende Zusammenhang zwischen  $m$  und  $r_e$ :

$$m = \frac{4\pi}{3} r_e^3 \rho .$$

Hiermit wird Gleichung (21)

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(r_e)}{\partial t} = & \int_0^{\frac{r_e}{\sqrt{2}}} K(r_e'', r_e') n(r_e'') n(r_e') \frac{r_e^2}{r_e''^2} d r_e' \\ & - n(r_e) \int_0^{\infty} K(r_e, r_e') n(r_e') d r_e' \end{aligned} \quad (22)$$

wo  $r_e''^3 = r_e^3 - r_e'^3$  und wir  $K(r_e'', r_e')$

für  $K(m(r_e''), m(r_e'))$  geschrieben haben.

Gl. (22) ist unabhängig von der Form der Partikeln. Sie stimmt mit der differentiellen Form der Smoluchowski'schen Gleichung [14] für kugelförmige Partikeln mit dem Radius  $r_e$  überein.

#### 4.3.1. Brown'sche Koagulation

Für die durch Brown'sche Bewegung verursachten Stöße zwischen kugelförmigen Partikeln mit Radius  $r$  und  $r'$  rechnet Smoluchowski die Frequenz

$$R(m, m') dm dm' = 4\pi (D+D') (r+r') n(r) n(r') dr dr' \quad (23)$$

aus. Das heißt,

$$K(m, m') = 4\pi (D+D') (r+r')$$

oder mit Hilfe der Einstein'schen Relation,

$$K(m, m') = 4\pi kT (B+B') (r+r') . \quad (24)$$

Aus der Ableitung von Gl. (23) geht hervor, daß  $r+r'$  die Rolle eines, allerdings orientierungsunabhängigen, Stoßabstandes spielt. Dieser ist für nicht kugelförmige Partikeln sicherlich größer als  $(r_e+r_e')$ . Das Modell macht die Annahme, daß ein durchschnittlicher Stoßradius,  $r_s$ , für jede Partikel definierbar ist, und daß dieser proportional zu  $r_e$  ist:

$$r_s = f r_e \quad (25)$$

Dann wird sofort

$$K(m,m') = 4\pi kT f (B+B') (r_e+r_e') \quad (26)$$

wenn man in  $(r_s+r_s')$  einen im statistischen Sinne durchschnittlichen Stoßabstand sehen kann.  $f$  kann als Kollisions-Formfaktor bezeichnet werden.

Man kann diesen Kollisions-Formfaktor auch aus anderen Überlegungen begründen. Einmal verursacht die Brown'sche Rotation eine gewisse "Verschmierung" der Form des Kollektor Partikels und damit einen Stoßradius der größer als  $r_e$  ist. Zum anderen kann man aber für Ellipsoide unter gewissen Voraussetzungen die Stoßfrequenz direkt errechnen. Solch eine Rechnung gibt wiederum einen Proportionalitätsfaktor gegenüber der Stoßfrequenz für Kugeln gleicher Masse.

So würde  $2 r_s$  den größten Ausmaßen der Partikel entsprechen, wenn z.B. die Brown'sche Rotation der Partikel eine sehr viel kürzere Periode als die Dauer eines typischen Diffusionsvorgangs hätte. Dann würde nämlich eine auf die Kollektorpartikel diffundierende zweite Partikel praktisch eine Kugel mit Radius  $r_s$  "sehen".

Nun läßt sich aber für Ellipsoide die Brown'sche Rotation berechnen. Man betrachte ein eiförmiges Ellipsoid mit Achsenverhältnis 6. Dann ist die Zeit, die es braucht, sich um seine Nebenachse um  $180^\circ$  zu drehen

$$t_r = \frac{\pi^2}{2kT B_w}$$

wo nach Fuchs  $\sqrt[26]{B_w} = \frac{1}{6} B_{w0}$  und  $B_{w0} = \frac{1}{8\pi \eta r^3}$  die Rotationsbeweglichkeit einer Kugel mit gleichem Volumen ist.

Andererseits braucht diese Kugel, um eine Strecke von  $2 r$  zurückzulegen, die Zeit,

$$t_D = \frac{(2r)^2}{2kTB}$$

wo der Einfachheit halber,  $B = \frac{1}{6\pi\eta r}$  genommen werden kann. Also ist

$$\frac{t_r}{t_D} = 2 \pi^2 \approx 20$$

Es ist fraglich, ob komplexere Gebilde als Ellipsoide ein wesentlich anderes Ergebnis bringen. Immerhin scheint dieses Ergebnis daraufhin zu deuten, daß der Diffusionsprozeß zu einem gewissen Grad durch die Rotation des Kollektors beeinflusst wird.

Vernachlässigt man die Rotation des Kollektors, ist es möglich, ähnlich wie für Kugeln, die Stoßfrequenz zwischen Ellipsoiden zu berechnen. Für Ellipsoide mit Achsenverhältnis 10 und für einen Stoßvorgang, bei dem die diffundierenden Ellipsoide sich nur in Richtung der Längsachse bewegen, rechnet Müller [40] eine Erhöhung der Stoßfrequenz um den Faktor 3 relativ zu Kugeln aus. Hierbei werden alle Partikeln als gleich groß angenommen.

Für dieselben Ellipsoide, auf die nur kugelförmige Partikeln diffundieren, gibt Fuchs [26] eine Erhöhung der Stoßfrequenz um den Faktor 1,1 an. Es läßt sich also mit Berechtigung ein Kollisions-Formfaktor  $f$  ansetzen, der viel größer als 1 ist. Für die Modellrechnungen der Ergebnisse der TUNA-Experimente wurde gefunden, daß

$$f = 8.2$$

einen guten Wert darstellt.

#### 4.3.2. Nicht Brown'sche Koagulation

Neben der Brown'schen Koagulation kommen für nicht wechselwirkende Partikeln, wie es hier der Fall ist, nur noch die kinematische oder Gravitations-Koagulation und die turbulente Koagulation in Frage. Die turbulente Koagulation ist, wie in Abschnitt 4.2. erklärt wurde, unter den Annahmen des Modells vernachlässigbar.

Die kinematische Koagulation kommt dadurch zustande, daß Partikeln verschiedener Durchmesser in ruhendem Gas verschiedene Sinkgeschwindigkeiten haben. Die dadurch entstehende relative Geschwindigkeit  $\Delta v$  zwischen Partikeln kann Zusammenstöße verursachen. Die Stoßfrequenz zwischen Partikeln mit Stoßradius  $r_s$  und  $r_s'$  ist dann:

$$R_K(r_s, r_s') = \epsilon(r_s, r_s') \pi \Delta v (r_s + r_s')^2 n(r_s) n(r_s') dr_s dr_s' \quad (27)$$

wo  $\epsilon$  die Einfangwirksamkeit ist. Unter der Annahme, daß Partikeln gradlinig sinken, ist  $\epsilon = 1$ .

Betrachtet man ein System von zwei Partikeln mit relativer Sinkgeschwindigkeit  $\Delta v$  aus dem Ruhesystem des schnelleren (im folgenden mit einem Strich bezeichnet), dann folgt die langsamere Partikel mehr oder weniger der nun relativen Strömung des Trägergases um die ruhende Partikel. Allgemein kann man sagen, daß die Stromlinien sich um die ruhende Partikel biegen, so daß die Wahrscheinlichkeit eines Zusammenstoßes mit der der Strömung folgenden Partikel kleiner als bei gradliniger Strömung ist. Das heißt  $\epsilon < 1$ .

Für  $Kn \ll 1$  und  $Re < 1$  ist die Strömung in der Nähe einer Partikel viskos und kann für kugelförmige Partikeln ausgerechnet werden. In weiterer Entfernung gilt viskose Strömung nicht mehr. Allgemein wird aber in der Literatur angenommen, daß der Fehler klein ist, wenn man auch für größere Entfernung viskose Strömung annimmt, da die wichtigen Prozesse der Impaktion und Interzeption hauptsächlich durch das Strömungsbild in unmittelbarer Nähe der Partikel beeinflußt werden.

Für  $Kn \approx 1$  bedürften solche Rechnungen einer Slip-Flow-Korrektur. Sieht man aber von dieser ab, so ist für kugelförmige Partikeln in diesem Bereich  $\epsilon$  verschwindend klein [41]. Dieses Ergebnis kann sich nicht wesentlich durch die Hinzufügung der Slip-Flow-Korrektur ändern.

Die hier betrachteten Partikeln sind nicht kugelförmig, sondern vielmehr sehr poröse, verzweigte Kettengebilde. Da nun die Leerstellen des Partikels von der Größenordnung der mittleren freien Weglänge des Trägergases sind, kann man nicht von Strömung durch die Leerstellen sprechen. Trotzdem wird durch diese Leerstellen wahrscheinlich die Strömung um die Partikel so beeinträchtigt, daß sie wesentlich von der Strömung um eine Kugel abweicht. Weitere Abweichungen werden durch die

Brown'sche Rotation verursacht. Es ist aber zu erwarten, daß jegliche Abweichung von einer Kugelströmung  $\epsilon$  erhöht. Da  $r_s$  im Sinne eines mittleren Stoßradius definiert ist, und dieser nicht unbedingt das Kollisionsverhalten bei gerichteter Strömung erfaßt, ist sogar ein Verhältnis  $\epsilon > 1$  nicht ausgeschlossen. Auf jeden Fall sind keine gemessenen Werte für  $\epsilon$  bekannt.

Man kann aber argumentieren, daß für unser System die kinematische Koagulation der Brown'schen Koagulation gegenüber eine untergeordnete Rolle spielt. Definiert man  $K_K(r, r')$  so, daß mit Gl. (27) die Stoßfrequenz für kinematische Koagulation

$$R_K(r_s, r_s') dr_s dr_s' = \epsilon K_K(r_s, r_s') n(r_s) n(r_s') dr_s dr_s'$$

ist, dann ist

$$R_K(r_e, r_e') = f^2 K_K(r_e, r_e') n(r_e) n(r_e') dr_e dr_e'$$

und es genügt,  $f^2 K_K(r_e, r_e')$  mit  $K(r_e, r_e')$ , der Stoßratenkonstante für Brown'sche Koagulation zu vergleichen.

Aus den Gl. (26) und (7) folgt, unter Vernachlässigung der Knudsen-Weber-Korrektur,

$$K(r_e, r_e') = \frac{2kT}{3\eta} \frac{f}{\kappa} \left( \frac{1}{r_e} + \frac{1}{r_e'} \right) (r_e + r_e') \quad (28)$$

$$f^2 K_K(r_e, r_e') = \epsilon \frac{2g_0 f^2}{9\eta\kappa} |r_e^2 - r_e'^2| (r_e + r_e')^2 \quad (29)$$

Es sei  $r_e = \gamma r_e'$ , der Radius der kleineren Partikel. Dann folgt

$$K(r_e, r_e') = \frac{2kT}{3\eta} \frac{f}{\kappa} \frac{(2+\gamma)^2}{\gamma} \quad (30)$$

$$f^2 K_K(r_e, r_e') = \epsilon \frac{2\pi g_0 f^2}{9\eta\kappa} (1+\gamma)^2 (1-\gamma^2) r_e'^4 \quad (31)$$

und für  $UO_2$ -Partikeln bei Raumtemperatur

$$K(r_e, r_e') \geq 6.0 \cdot 10^{-10} \frac{f}{\kappa} \text{ cm}^3/\text{sec} \quad (32)$$

$$f^2 K_K(r_e, r_e') \leq 6.2 \cdot 10^7 \frac{\epsilon f^2}{\kappa} r_e'^4 \text{ cm}^3/\text{sec} \quad (33)$$

ist  $\epsilon \cdot f = 1$ , dann folgt, daß

$r_2' \geq 0.56 \mu$  sein muß, damit die maximale kinematische Koagulationsrate mindestens so groß ist, wie die minimale Brown'sche Koagulationsrate.

Läßt man  $\epsilon = 1$  und nimmt den für TUNA anwendbaren Wert  $f = 8,2$ , dann ist der Radius, bei dem kinematische Koagulation anfängt, eine Rolle zu spielen:

$$r_e' \geq 0.33 \mu\text{m}$$

Es ist zu beachten, daß die Brown'sche Koagulationsrate bei Vernachlässigung der Knudsen-Weber-Korrektur partikelgrößenunabhängig ist, minimal für gleichgroße Partikeln ( $\gamma = 1$ ) ist und rasch zunimmt, wenn  $\gamma \rightarrow 0$  geht. Die kinematische Koagulationsrate ist dahingegen von der vierten Potenz des Radius der größeren Partikel abhängig und ist maximal für Partikeln, von denen eine den doppelten Radius der anderen hat. Da sie rasch mit wachsendem Radius  $r_e'$  zunimmt, spielt die kinematische Koagulation für  $\text{UO}_2$ -Partikeln mit  $r_e' > 1 \mu$  die überwiegende Rolle, solange  $\epsilon = 1$  angenommen werden kann. Da die gemessenen Radien der TUNA-Versuche unter diesem Wert liegen, wird für das Modell die kinematische Koagulation nicht berücksichtigt.

#### 4.3.3. Die Koagulationskonstante

Schließlich sei noch der Zusammenhang zwischen der oben verwendeten Stoßratenkonstante  $K(m, m')$  und der sogenannten Koagulationskonstante hergestellt.

Es sei  $C_p(t)$  die Partikelzahlkonzentration als Funktion der Zeit. Dann ist

$$C_p(t) = \int_0^{\infty} n(m) dm$$

und aus Gl. (18) folgt

$$\begin{aligned} \frac{d C_p(t)}{dt} &= \int_0^{\infty} \int_0^{m/2} K(m-m', m') n(m-m') n(m') dm' dm \\ &\quad - \int_0^{\infty} n(m) dm \int_0^{\infty} K(m, m') n(m') dm' \end{aligned} \quad (34)$$

Läßt man im ersten Glied auf der rechten Seite  $m'$  von 0 bis  $m$  durchlaufen, dann wird jeder Zusammenstoß zweimal gezählt. Man kann also die obere Grenze von  $m/2$  auf  $m$  erhöhen, wenn man das Integral durch zwei dividiert. Dann kann man aber auch gleich diese obere Grenze durch  $\infty$  ersetzen, wenn man für  $m' > m$   $n(m-m') = 0$  definiert.

Gl. (34) lautet nun

$$\begin{aligned} \frac{d C_p(t)}{dt} &= \frac{1}{2} \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} K(m-m', m') n(m-m') n(m') dm' dm \\ &\quad - \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} K(m, m') n(m) n(m') dm' dm \\ &= - \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} K(m, m') n(m) n(m') dm' dm \end{aligned} \quad (35)$$

oder

$$\frac{d C_p(t)}{dt} = - \frac{1}{2} \bar{K} C_p^2(t) \quad (36)$$

wobei

$$\bar{K} = \frac{1}{C_p} \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} K(m, m') n(m) n(m') dm' dm \quad \text{ist.} \quad (37)$$

$\bar{K}$  ist durch die zeitliche Änderung von  $n(m)$  zeitabhängig. Unter bestimmten Voraussetzungen kann aber  $\bar{K}$ , trotz der zeitlichen Entwicklung von  $n(m)$ , zeitunabhängig sein.

Es sei z.B.  $n(m)$  "self-preserving" im Sinne von Friedlander [42]. Wählt man die dimensionslos gemachten Variablen

$$\tau \equiv \left( \frac{C_p(t)}{C_p(0)} \right)^2$$

$$\zeta = \frac{C_p(t) m}{M}$$

mit

$$M \equiv \frac{1}{\rho} \int_0^m m n(m) dm$$

anstelle von  $t$  und  $m$ , dann kann man aus dimensionsanalytischen Gründen immer

$$n(m,t) = \frac{C_p^2}{M} \Phi(\zeta, \tau) \quad (38)$$

schreiben.  $n(m,t)$  ist "self-preserving", wenn

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \Phi(\zeta, \tau) = \Psi(\zeta) \quad ,$$

d.h., wenn die zeitliche Veränderung von der Form von  $n(m,t)$  nur implizit über die Zeitabhängigkeit von  $\rho$  gegeben ist. Gl. (38) ist dann

$$n(m,t) = \frac{C_p^2}{M} \Psi(\zeta) \quad (39)$$

Setzt man diese in Gl. (37) ein und vernachlässigt man die Knudsen-Weber-Korrektur, so wird

$$\begin{aligned} \bar{K} &= \frac{1}{C_p^2} \frac{2kT}{3\eta} \frac{f}{\kappa} \int_0^\infty \int_0^\infty \left( \frac{1}{\zeta^{1/3}} + \frac{1}{\zeta'^{1/3}} \right) (\zeta^{1/3} + \zeta'^{1/3}) \\ &\cdot \frac{C_p^2}{M} \Psi(\zeta) \frac{C_p^2}{M} \Psi(\zeta') \frac{M}{C_p} \frac{M}{C_p} d\zeta d\zeta' \end{aligned}$$

oder

$$\bar{K} = \frac{2kT}{3\eta} \frac{f}{\kappa} \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \left( \frac{1}{\zeta^{1/3}} + \frac{1}{\zeta'^{1/3}} \right) (\zeta^{1/3} + \zeta'^{1/3}) \Psi(\zeta) \Psi(\zeta') d\zeta d\zeta' \quad (40)$$

= konstant,

Es gibt einige Hinweise in der Literatur, daß Aerosol-Systeme mit der Zeit eine "self-preserving" Größenverteilung der Partikel annähernd aufweisen. Die erste Arbeit ist hier die von Swift und Friedlander [43], die solch eine Verteilung für ein Hydrosol nachweisen.

Wieder unter der Vernachlässigung der Knudsen-Weber-Korrektur und unter der weiteren Voraussetzung, daß  $n(m,t)$  log-normal verteilt ist und bleibt, kann man  $\bar{K}$  als Funktion der Varianz  $\sigma$  der Verteilung ausrechnen.

Es sei

$$n(m) dm = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{(\ln r_e - \ln r_g)^2}{2\sigma}} d \ln r_e \quad (41)$$

wo  $r_g$  der Medianwert von  $r_e$  ist.

Dann ist

$$\bar{K} = \frac{4kT}{3\eta} \frac{f}{\kappa} (1 + e^{\sigma^2}) \quad (42)$$

und die Brown'sche Koagulation wird beschrieben durch

$$\frac{dc_p}{dt} = - \frac{2kT}{3\eta} \frac{f}{\kappa} (1 + e^{\sigma^2}) c_p^2 \quad (43)$$

Diese Gleichung ist aber noch nicht integrierbar, weil  $\sigma$  eine unbekannte Funktion der Zeit ist. Ist allerdings  $\sigma$  sehr klein (näherungsweise monodisperse Verteilung), so ist  $e^{\sigma^2}$  vernachlässigbar gegenüber 1 und Gl. (43) stellt die Smoluchowski'sche Gleichung für monodisperse Aerosole dar, wie sie in Kapitel 3.2. verwendet worden ist.

#### 4.4. Die vollständige Modellgleichung

Die vollständige Modellgleichung gibt den Einfluß der einzelnen oben behandelten Prozesse auf die Zeitabhängigkeit der Partikelgrößenverteilung wieder. Sie lautet:

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(r_e, t)}{\partial t} = & - (\alpha_D(r_e) + \alpha_s(r_e) + \alpha_T(r_e)) n(r_e, t) \\ & + \int_0^{\frac{r_e}{\sqrt[3]{2}}} K(\sqrt[3]{r_e^3 - r_e'^3}, r_e') n(\sqrt[3]{r_e^3 - r_e'^3}, t) n(r_e', t) \\ & \frac{r_e^2}{(r_e^3 - r_e'^3)^{\frac{2}{3}}} dr_e' \\ & - n(r_e, t) \int_{\text{OR}}^{\infty} K(r_e, r_e') n(r_e', t) dr_e' \end{aligned} \quad (44)$$

mit

$$\begin{aligned} \alpha_D(r_e) &= \frac{kT B(r_e)}{\delta_D} \frac{A_D}{V} \\ \alpha_s(r_e) &= \frac{4\pi}{3} r_e^3 \rho g B(r_e) \frac{A_s}{V} \\ \alpha_T(r_e) &= \frac{9\pi\eta^2 r_e}{\rho g} \left( \frac{1}{1+3K_n} \right) \left( \frac{\frac{kg}{ks} + 2.48 K_n}{1+2 \frac{kg}{ks} + 4.96 K_n} \right) \\ &\quad \cdot \frac{T-T_w}{T} \frac{1}{\delta_T} B(r_e) \frac{A_T}{V} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} K(\sqrt[3]{r_e^3 - r_e'^3}, r_e') &= 4\pi kT f (B(\sqrt[3]{r_e^3 - r_e'^3}) + B(r_e')) \\ &\quad \cdot (\sqrt[3]{r_e^3 - r_e'^3} + r_e') \end{aligned}$$

$$B(r_e') = \frac{1}{\kappa 6\pi \eta r_e} (1 + A K_n + Q K_n e^{-b/K_n})$$

Hier sind

$A_D$ ,  $A_S$ ,  $A_T$  die jeweiligen Abscheideflächen, die für die Diffusion, Sedimentation und Thermophorese in Frage kommen.

Mit Gl. (44) ist die Partikelzahlkonzentration

$$C_p(t) = \int_0^{\infty} n(r_e, t) dr_e$$

und die Partikelmassenkonzentration

$$C_M(t) = \int_0^{\infty} \frac{4\pi}{3} \rho r_e^3 n(r_e, t) dr_e$$

Gl. (44) ist als das Rechenprogramm PARDISEKO III [24] programmiert. Vergleiche von Rechnungen mit Versuchsergebnissen werden in Abschnitt 4.5. wiedergegeben. Die Gleichung braucht folgende, in drei Rubriken untergliedbare Eingabedaten:

- Geometrische Parameter

- V - Volumen des Kessels
- $A_D$  - Diffusionsabscheidefläche
- $A_S$  - Sedimentationsabscheidefläche
- $A_T$  - Thermophoreseabscheidefläche

- Meßdaten

- $C_p(0)$  - Partikelzahlkonzentration zum Zeitpunkt  $t = 0$
- $\sigma$  - Varianz der Partikelgrößenverteilung zum Zeitpunkt  $t = 0$  (falls lognormal)
- $r_g$  - Medianwert der Partikelgrößenverteilung zum Zeitpunkt  $t = 0$  (falls lognormal)
- T - Temperatur des Trägergases
- $T_w$  - Temperatur der Wand

- Modellparameter

- f - Kollisions-Formfaktor
- $\kappa$  - dynamischer Formfaktor
- $\delta_D$  - mittlere Diffusionsgrenzschichtdicke
- $\delta_T$  - mittlere thermische Grenzschichtdicke

#### 4.5. Vergleich von Modellrechnungen mit experimentellen Ergebnissen

Abb. 6 gibt den gemessenen Zeitverlauf der Partikelkonzentration bei Raumtemperatur für 11 verschiedene Versuche wieder. Bemerkenswert sind insbesondere zwei Tatsachen:

1. Die Streuung der Kurven ist recht gering. Hieraus kann man auf ein stabiles Aerosolsystem schließen, das gut reproduziert werden kann. Obwohl die Streuung der durch den Stoßstrom erzeugten Anfangs-Partikelgrößenverteilungen wahrscheinlich signifikant ist, weichen die einzelnen Abnahmekurven der Konzentration wenig voneinander ab.
2. Die Kurven haben bis auf den sehr scharfen Knick in dem Bereich zwischen ein bis zwölf Stunden wenig Struktur. Der Knick aber läßt sich leicht qualitativ erklären.

Integriert man Gl. (44) über  $r_e$ , dann folgt:

$$\frac{dC_p}{dt} = - (\bar{\alpha}_D + \bar{\alpha}_s) C_p - \frac{1}{2} \bar{K} C_p^2 \quad (45)$$

wo

$$\bar{\alpha}_D \equiv \int_0^{\infty} \alpha_D(r_e) n(r_e) dr_e / \int_0^{\infty} n(r_e) dr_e$$

$$\bar{\alpha}_s \equiv \int_0^{\infty} \alpha_s(r_e) n(r_e) dr_e / \int_0^{\infty} n(r_e) dr_e$$

Für längere Zeiten ist der Durchschnittsradius bei den TUNA-Versuchen ungefähr 0.2  $\mu\text{m}$ . Für Partikeln dieser Größe spielt aber die Diffusion keine Rolle mehr. Andererseits läßt sich  $\bar{\alpha}_s$  dann ungefähr, unter Vernachlässigung der Schiefheit der Verteilung, bestimmen.

$$\bar{\alpha}_s \approx \frac{2}{9} \frac{\bar{r}_e^2 \rho g}{\eta \kappa} \frac{A_s}{V}$$

$$= 5 \cdot 10^{-6} \text{ sec}^{-1} .$$

Aus Gl. (42) folgt, daß wenigstens zum Zeitpunkt  $t = 0$

$$\begin{aligned}\bar{\kappa} &= \frac{4kT}{3\eta} \frac{f}{\kappa} (1 + e^{\sigma^2}) \\ &= 5. \cdot 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{sec}\end{aligned}$$

( $\kappa$  wird im weiteren noch ausführlich behandelt. Hier wurde angenommen, daß  $f = 8.2$ ,  $\kappa = 3.5$ ,  $\sigma = 0.4$  - die für die TUNA-Versuche gefundenen Werte.)

Die Neigung der Kurven in Abb. 6 ist daher qualitativ durch

$$\frac{1}{C_p} \frac{dC_p}{dt} \approx - 5. \cdot 10^{-6} - 5. \cdot 10^{-9} C_p \quad (46)$$

gegeben.

Bei Anfangskonzentrationen von  $10^6 \text{ cm}^{-3}$  überwiegt das zweite Glied auf der rechten Seite von Gl. (46) und

$$\frac{1}{C_p} \frac{dC_p}{dt} \approx - 5. \cdot 10^{-3} \text{ sec}^{-1} \quad (47)$$

Nach 60 Stunden ist die Konzentration im TUNA ungefähr  $10^3 \text{ P/cm}^3$ . Für diesen Wert sind die beiden rechten Glieder von Gl. (46) gleich groß und

$$\frac{1}{C_p} \frac{dC_p}{dt} \approx -10^{-5} \text{ sec}^{-1} \quad (48)$$

Aus Gl. (46,47,48) wird also deutlich, daß sich für anfangs hohe Partikelkonzentrationen diese Partikelkonzentration schnell mit der Zeit verringert und sich bei ungefähr 60 Stunden asymptotisch einer sehr viel geringeren konstanten Abnahmerate angenähert hat. Dabei ist das Anfangsverhalten hauptsächlich durch die Koagulation bestimmt, das asymptotische Verhalten durch die Sedimentation. Diese beiden Abnahmeprozesse konkurrieren bei einer Partikelkonzentration von ungefähr  $10^3 \text{ cm}^{-3}$ .

Man möge beachten, daß der quantitative Verlauf von  $C_p(t)$  nicht durch Gl. (46) gegeben ist. Gl. (46) vernachlässigt das bedeutende Wachstum der Partikel in dem Bereich zwischen 10 und 60 Stunden, wo die partikelgrößenabhängige Sedimentation

eine Rolle spielt. Ferner wird a priori eine Langzeit-Partikelgröße von 0.2  $\mu\text{m}$  angenommen. Tatsächlich wird aber ein vollständiges Rechenprogramm gerade deswegen benötigt, um diese Partikelgröße zu bestimmen.

Abb. 10 gibt den gemessenen Zeitverlauf der Massenkonzentration im TUNA wieder. Abgesehen von der anfänglichen Steigung aller drei Kurven, die möglicherweise auf meßtechnischen Gründen beruht, zeigen diese Kurven keine Struktur. Sie lassen sich, ähnlich wie die Partikelkonzentrationskurven, qualitativ leicht erklären. Integriert man Gl. (44) über  $m(r_e)dr_e$ , dann folgt

$$\frac{dC_M}{dt} = - (\bar{\alpha}_D^m + \bar{\alpha}_2^m) C_M$$

wo  $\bar{\alpha}^m$  der Durchschnitt von  $\alpha$  über der Massenverteilung ist.

Für kleine Partikeln überwiegt  $\bar{\alpha}_D^m$ , für größere  $\bar{\alpha}_s^m$ , so daß sich  $\bar{\alpha}_D^m + \bar{\alpha}_s^m$  annähernd mit der Zeit konstant verhält.

Der Vergleich des mathematischen Modells mit Versuchsergebnissen ist natürlich um so kritischer, je strukturreicher die experimentelle Kurve ist. Aus diesem Grunde wurde so vorgegangen, daß eine Anpassung der Modell-Parameter anhand der Partikelkonzentrationskurven (Abb. 6) vorgenommen wurde. Obwohl, wie oben gezeigt, allein die qualitative Dynamik des Systems schon ausreicht, um die Struktur dieser Kurven zu erklären, wurden sie als Grundlage für die Anpassung der Parameter gewählt. Hierbei stellt sich heraus, daß die Variation einiger Parameter zu denselben Anpassungen führen kann, so daß eine Unsicherheit in der Wahl der Parameter bleibt. Ein Vertrauen in die so festgelegten Parameter muß sich daher auf die Fähigkeit des Modells, andere Versuchsergebnisse wiederzugeben, stützen.

Im folgenden soll die Wahl der von den Messungen nicht eindeutig festgelegten Parametern,  $C_p(o)$ ,  $\sigma$ ,  $r_g$ ,  $f$ ,  $\kappa$ ,  $\delta_D$ ,  $\delta_T$ , besprochen werden. Ferner werden die Ergebnisse der Rechnung mit diesen Parametern diskutiert.

#### 4.5.1. Die Meßdaten

Direkt nach Explosion des  $\text{UO}_2$ -Stabes ist die Partikelkonzentration im TUNA-Kessel

so hoch, daß die zur Verfügung stehenden Meßgeräte nicht ausreichen, um diese zu messen. Bereits nach 90 sec ist die Konzentration  $< 10^7 \text{ cm}^{-3}$  und wird damit meßbar. Da auch nach dieser Zeit das System sich homogenisiert hat, wurde diese Zeit als der Anfangspunkt ( $t = 0$ ) für die Modellrechnungen genommen. Messungen von  $C_{po}$  für die elf abgebildeten Versuche (Abb. 6) wurden nicht genau zum selben Zeitpunkt gemacht, sondern der Meßzeitpunkt streute zwischen 0,5 und 1,5 Minuten. In diesem Bereich schwanken die Werte für  $C_{po}$  zwischen  $10^6 \text{ cm}^{-3}$  und  $10^7 \text{ cm}^{-3}$  mit einem Durchschnittswert von ungefähr  $3.5 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$  für eine Durchschnittszeit von 0.8 min. Zwei Messungen gaben einen Wert um  $10^7 \text{ cm}^{-3}$  nach 1 und 1,5 Minuten.

Messungen der Größenverteilungsparameter  $r_g$  und  $\sigma$  weisen ähnliche Streuungen auf. Diese sind in Abb. 19 illustriert, in der Messungen von  $2r_g$  über die ersten 5 Stunden aufgetragen sind. Da man aber von der Physik glatte Kurven erwarten darf, kann man allein aus dieser Kurve eine Ungenauigkeit der  $r_g$  Messungen von  $\pm 0.1 \mu\text{m}$  ablesen. Der Anfangsmeßwert für  $r_g$  kann daher in dem Bereich

$$0,05 \mu\text{m} \leq r_g \leq 0,15 \text{ m}$$

liegen.

Ähnliche Überlegungen zu dem Anfangswert für  $\sigma$  ergeben den Bereich

$$0,43 \leq \sigma \leq 0,76.$$

Man beachte, daß diese Verteilungsparameter nicht die des in Abschnitt 3.4. als primär bezeichneten Aerosols sind.

In diesen Überlegungen ist noch nicht berücksichtigt, daß die elektronenmikroskopische Auswertung (Abschnitt 3.4.) eigentlich nicht den, von dem Modell benötigten massenäquivalenten Radius  $r_e$  bestimmt, sondern den Radius einer äquivalenten Projektionsfläche. Eine eindeutige Beziehung ist zwischen diesen beiden Größen nicht gegeben. Da sich längere Ketten aber wahrscheinlich eher längs als senkrecht auf der Folie abscheiden, ist anzunehmen, daß der gemessene Wert für  $r_e$  größer als der tatsächliche ist.

#### 4.5.2. Die Modell-Parameter

Die Dicke  $\delta_D$  der Diffusionsgrenzschicht wurde nicht gemessen. Da auch die theoretischen Abschätzungen für  $\delta_D$  sehr schwanken, wurde  $\delta_D$  so bestimmt, daß das gemessene Abscheideverhältnis zwischen der abgeschiedenen Masse an den Wänden und der auf dem Boden von dem Modell wiedergegeben wird. Dieses Verhältnis ist ungefähr

$$\frac{\text{Diffundierte Masse pro Flächeneinheit}}{\text{Sedimentierte Masse pro Flächeneinheit}} = 0,02$$

und bedingt den Wert  $\delta_D = 0,01$  cm.

Die Dicke  $\delta_T$  der thermischen Grenzschicht wurde auch nicht gemessen, kann aber auf folgende Art eindeutig festgelegt werden. Da sie keine Rolle bei Raumtemperatur-Versuchen spielt, wurden alle übrigen Parameter für diese Versuche festgelegt.  $\delta_T$  wurde dann durch Anpassung des Modells an einem Versuch bei Innenheizung bestimmt und durch Modellrechnungen für verschiedene Temperaturen der Innenheizung bestätigt. Als Anpassungskurve wurde die für eine Innenheizungstemperatur von  $60^\circ\text{C}$  gewählt. Bei dieser Temperatur ist die durchschnittliche Gastemperatur im TUNA-Kessel  $21^\circ\text{C}$ . Der Anpassungswert der thermischen Grenzschicht ergab sich als

$$\delta_T = 0,32 \text{ cm .}$$

Weniger eindeutig ist die Bestimmung von  $f$  und  $\kappa$ . Aus elektronenmikroskopischen Abbildungen der Aerosolpartikeln lassen sich Werte bis  $f = 10$  schätzen. Unter der Annahme, daß die geometrische Deutung von  $f$  (Abschnitt 4.3.1.) zutrifft, könnte  $f$  meßtechnisch, unter allerdings erheblichem Aufwand ermittelt werden.

Wie bereits in Abschnitt 4.1. erwähnt, ist auch  $\kappa$  meßbar. Insbesondere weisen die Arbeiten von Stöber et al. [44] und Wajsfelner et al. [45] darauf hin, daß  $\kappa$  erheblich von 1 abweichen kann. So stellt Stöber an Ketten von  $0,5 \mu\text{m}$  Durchmesser Latexkugeln das Verhältnis

$$\kappa = 0,862 \cdot z^{\frac{1}{3}}$$

$z$  = Anzahl der Latexkugeln

fest. Gemessen wurde für  $2 \leq z \leq 8$ . Läßt sich diese Formel auf größere Werte von  $z$  extrapolieren, dann ist für  $z = 20$ ,  $\kappa = 2.34$ . Für eiförmige Ellipsoide mit Axenverhältnis 20 (unter Vernachlässigung der Knudsen-Weber-Korrektur) ist der theoretische Wert für Querströmung  $\sqrt{26} \kappa = 2.13$ . Eine Übertragung dieser Meßergebnisse auf die viel komplizierteren  $UO_2$ -Aggregate scheint aber nicht möglich. Für  $UO_2$  selbst sind keine Messungen bekannt.  $f$  und  $\kappa$  wurden daher benutzt, die Rechnungen an die gemessenen Kurven für  $C_p(t)$  anzupassen. Dabei ergaben sich die Werte

$$f = 8.2$$

$$\kappa = 3.5$$

wie im nächsten Abschnitt erläutert wird.

#### 4.5.3. Anpassung des Modells

Die Empfindlichkeit des Modells auf Variation der oben behandelten Parameter ist so groß, daß allein die Ungenauigkeit der Meßdaten eine zu breite Streuung des errechneten Verlaufs von  $C_p(t)$  hervorruft, um eine eindeutige Bestätigung des Modells zu erlauben. Es trifft sich daher besonders günstig, daß für  $f = \kappa = 1$ , also das Kugelmodell, auch die günstigste, innerhalb der Meßgenauigkeit erlaubte, Wahl der Werte für  $C_p(o)$ ,  $\sigma$ ,  $r_g$  eine gerechnete Kurve für  $C_p(t)$  bedingt, deren asymptotischer Verlauf unter dem der experimentellen Kurven liegt.

Parameter-Variationsrechnungen von Keller  $\sqrt{46}$  mit PARDISEKO I zeigten folgende Abhängigkeit:

Eine Erhöhung von	bedingt für die Neigung der asymptotischen $C_p$ -Kurve eine
$C_p(o)$	Erhöhung
$r_g$	Erhöhung
$\sigma$	Erhöhung

Die innerhalb der Meßgenauigkeit erlaubten kleinsten Werte für  $C_p(o)$ ,  $r_g$  und  $\sigma$  ergeben also eine  $C_p$ -Kurve, die für lange Zeit zu steil abfällt.

Unter diesen Umständen scheint es vertretbar, die kleinsten noch denkbar erlaubten Werte der Meßdaten zu nehmen, auch wenn diese außerhalb der oben geschätzten Meßgrenzen liegen. Die genaue Anpassung des Modells geschieht dann über die noch zur Verfügung stehenden Modellparameter  $f$  und  $\kappa$ . Die Gültigkeit des so festgelegten Modells muß durch den Vergleich mit anderen Experimenten geprüft werden.

Für  $C_p(o)$  wurde der Wert  $5 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$  gewählt. Diese Wahl ist etwas willkürlich, dadurch, daß die Meßwerte für  $C_p(o)$ , wie in Abschnitt 4.5.1. angedeutet, erheblich variieren. Man kann aber erwarten, daß diese Willkür zum Teil dadurch wieder aufgehoben wird, daß eine Verschiebung des Wertes von  $C_p(o)$  eine entgegengesetzte Verschiebung der Werte für  $r_g$  und  $\sigma$  mit sich bringt, da alle drei Parameter über den Zwang, die gemessene Anfangsmassenkonzentration (Abb. 10) wiederzugeben, gekoppelt sind.

Für  $\sigma$  wurde der Wert 0,4 als äußerster Grenzwert für ein noch polydisperses Aerosol angenommen. Um dann auf die richtige Anfangsmassenkonzentration zu kommen, mußte  $r_g = 0,02 \mu\text{m}$  gewählt werden, ein Wert, der außerhalb der Schwankungsbreite für  $r_g$  liegt. Siehe aber hierzu das Argument am Ende von Abschnitt 4.5.1.

Mit den so festgelegten Werten für  $C_p(o)$ ,  $r_g$  und  $\sigma$  und mit  $f = \kappa = 1$ , liegt die gerechnete Kurve für  $C_p(t)$  so, daß der Kurzzeitabfall zu langsam, der Langzeitabfall zu steil im Vergleich zu der gemessenen Kurve ist (Abb. 34, Kurve II). Es stellt sich heraus, daß Veränderungen von  $f$  den asymptotischen Verlauf der  $C_p$ -Kurve nur geringfügig verändern, so daß man  $\kappa$  und  $f$  als quasi unabhängige Parameter betrachten kann. Eine Erhöhung von  $\kappa$  führt dann zu einer Verlangsamung des asymptotischen Abfalls der  $C_p$ -Kurve, eine Erhöhung von  $f$  zu einem erhöhten Kurzzeitabfall dieser Kurve. Durch eine Anpassung erst von  $\kappa$ , dann von  $f$ , konnte eine Übereinstimmung der gerechneten und gemessenen  $C_p$ -Kurven erreicht werden.

#### 4.5.4. Modellrechnungen

Die aus den so festgelegten Werten der Meßdaten und Modellparameter errechnete Partikelzahl-Konzentrationskurve für den TUNA-Kessel ist in Abb. 34, Kurve I, wiedergegeben. Sie wird im weiteren als das optimierte Modell bezeichnet. Kurve II

gibt den Verlauf für das Kugelmodell ( $f = \kappa = 1$ ) wieder. Um die Abhängigkeit des Modells von  $f$  und  $\kappa$  noch deutlicher zu machen, sind die Kurven für  $f = 1$  und  $\kappa = 3.5$  (Kurve III) und  $f = 8.2$  und  $\kappa = 1$  (Kurve IV) auch aufgetragen. Die beiden durchgezogenen Kurven geben die Begrenzung der experimentellen Kurvenschar von Abb. 10 wieder.

Abb. 35 zeigt den Einfluß der Breite der Anfangsgrößenverteilung auf den Verlauf der Partikelkonzentration mit der Zeit. Hier sollen die durchgezogenen Kurven wiederum die Begrenzung der experimentellen Kurvenschar wiedergeben. Kurve I ist identisch mit Kurve I, Abb. 34, und gibt die auf die TUNA-Experimente optimierte Modellrechnung wieder.

Kurve V gibt das Resultat derselben Rechnung, aber mit einer Anfangsgrößenverteilungsbreite von  $\sigma = 0.8$ , das andere Extrem der Streuung von  $\sigma$  wieder.

Abb. 36 zeigt die gerechnete Massenkonzentration im TUNA-Kessel. Kurve I gibt die Rechnung des optimierten Modells, Kurve V die für das Modell mit  $\sigma = 0.8$ . Die durchgezogene Kurve gibt ein experimentelles Ergebnis der fluorometrischen Meßmethode wieder. Die "Fehlerbalken" deuten den Verlauf von zwei Meßkurven an, die mit der Aktivierungsanalyse gemessen wurden.

Abb. 37 gibt die Resultate der Messungen (durchgezogen) und Rechnungen (gestrichelt) für verschiedene Gastemperaturen wieder. Die angegebenen Temperaturen entsprechen der Gastemperatur, während die in Abbildung 27 angegebenen Temperaturen den Referenzwerten der Temperatur der Innenheizung (siehe Kap. 3.6.1.) entsprechen. Die einander entsprechenden Temperaturen sind noch einmal in folgender Tabelle zusammengestellt.

Tabelle 3 Vergleich von Referenztemperatur und Gastemperatur

Temperatur der Innenheizung	Gastemperatur
400°C	79°C
200°C	39°C
100°C	25°C
60°C	21°C

Der Wert  $\delta_T = 0,32$  cm wurde an der Kurve für  $21^\circ\text{C}$  angepaßt. Alle weiteren Kurven wurden mit diesem Wert und dem optimierten Modell gerechnet.

Dabei wurde die Wandtemperatur jeweils als die Raumtemperatur ( $18^\circ\text{C}$ ) angenommen. Die in der Abb. 37 mit I und II bezeichneten, gestrichelt eingetragenen, gerechneten Kurven geben eine Variation der Wandtemperatur wieder. Für Kurve I wurde die Wandtemperatur mit  $18^\circ\text{C}$ , für Kurve II mit  $19^\circ\text{C}$  angenommen.

Abb. 38 gibt den Massenkonzentrationsverlauf derselben Versuche wieder.

Abb. 39 und 40 geben Messungen und Rechnungen der Teilchenzahl- und Massenkonzentrationen als Funktion der Zeit für die Aerosolerzeugungskammer wieder. Für die Rechnungen wurde das optimierte Modell mit entsprechenden geometrischen Parametern benutzt. Die Anfangskonzentration wurde um das Volumenverhältnis TUNA-Kessel/Aerosolerzeugungskammer erhöht. Dabei wird davon ausgegangen, daß die Anfangsverteilungsparameter für TUNA und Aerosolerzeugungskammer die gleichen sind. Dies ist nicht generell der Fall, da der Anfangszeitpunkt per definitionem auf den Zeitpunkt gelegt wird, zu dem das System homogen verteilt ist, dieser Zeitpunkt aber wiederum von den Dimensionen des Systems abhängt.

Um unser Vorgehen zu rechtfertigen, wird folgende Überlegung angestellt:

Die Konstruktion von TUNA plus Aerosolerzeugungskammer ist so, daß für TUNA-Versuche das Aerosol sich erst in der Kammer homogenisiert, dann den großen TUNA-Kessel durchwältzt. Die Verdünnung des Aerosols durch Eintritt in den Hauptkessel bewirkt eine Verlangsamung der Koagulation und damit eine Verlangsamung der Verteilungsänderung. Ferner folgt aus Gl. (46), daß  $\frac{1}{C_p} - \frac{1}{C_{po}} \approx \frac{1}{2} \bar{K} t$  zum Anfangszeitpunkt ist.

Hieraus folgt, daß die Halbwertszeit zu diesem Zeitpunkt

$$t \frac{1}{2} = \frac{2}{\bar{K} C_{po}} \approx 10 \text{ sec} \quad \text{ist.}$$

Diese Zeit ist aber lang im Vergleich zu der abgeschätzten Umwälzzeit im TUNA-Hauptkessel.

In Abb. 41 sind die für TUNA gerechneten Verteilungsparameter  $r_g$  und  $\sigma$  und der Durchschnittsradius  $\bar{r}_e$  aufgetragen. Sie sind definiert durch

$$\ln r_g = \int_0^\infty \ln r_e n(r_e) dr_e / \int_0^\infty n(r_e) dr_e$$

$$\sigma^2 = \int_0^{\infty} \ln^2(r_e/r_g) n(r_e) dr_e / \int_0^{\infty} n(r_e) dr_e$$

$$\bar{r}_e = \int_0^{\infty} r_e n(r_e) dr_e / \int_0^{\infty} n(r_e) dr_e$$

Schließlich zeigt Abb. 42 den Zeitverlauf der für TUNA gerechneten Koagulationskonstante,  $\bar{K}$ . Sie fällt von einem Anfangswert von  $54.7 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}$  in einer halben Stunde auf den gemessenen, in Abschnitt 3.2.1. behandelten Wert  $18.9 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}$  und sinkt dann sehr langsam auf den Wert  $11.4 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}$  nach 120 Stunden ab. Dieses bedeutet, daß für die Koagulation alleine (also den bei weitem dominierenden Prozeß im Anfangsbereich) das Aerosol sich nach einer halben Stunde wie ein monodisperses Aerosol verhält.

Damit wird auch der Verlauf von  $C_p^{-1}$  erklärt, der in Abb. 7 gezeigt ist. Für Zeiten größer als 1 Stunde weicht die gemessene Kurve von einer Geraden ab, weil Abscheideprozesse zu diesem Zeitpunkt anfangen, eine Rolle zu spielen. Der gerade Verlauf für Zeiten geringer als 0.5 Stunden ist vermutlich auf meßtechnische Unsicherheiten zurückzuführen.

#### 4.6. Zusammenfassung zu den Modelluntersuchungen

Geht man davon aus, daß das in Abschnitt 4.1. bis 4.5. dargestellte Modell die physikalischen Prozesse im Simulationskessel genügend genau erfaßt, so bedarf eine Voraussage des Aerosolverhaltens in solch einem Kessel der eindeutigen Festlegung der in Abschnitt 4.4. aufgereihten Eingabedaten. Unter diesen sind die Parameter  $C_p(o)$ ,  $\sigma$ ,  $r_g$ ,  $\delta_D$ ,  $\delta_T$ ,  $f$ ,  $K$  mit bestimmten Unsicherheiten behaftet.

Die Anfangsgrößenverteilung, die durch die Größen  $C_p(o)$ ,  $\sigma$ ,  $r_g$  der logarithmischen Normalverteilung

$$n(r_e) dr_e = \frac{C_p(o)}{\sqrt{2\pi} \sigma} e^{-\frac{\ln^2(r_e/r_g)}{2\sigma}} d \ln r_e$$

festgelegt ist, geht mit großer Empfindlichkeit in das Modell ein [46].

Ihre Parameter leiten sich jedoch primär aus der Störfallanalyse ab. Die bei den TUNA-Experimenten verwendete Stoßstromtechnik kann nur näherungsweise die störfallabhängigen Aerosolerzeugungsparameter simulieren.

Da als Anfangszeitpunkt die Zeit zugrundegelegt ist, zu der das System homogen vermischt ist, hängen die Anfangsverteilungsparameter unter Umständen auch noch von den Ausmaßen des Containments ab. Hierzu steht noch eine Klärung aus. Da jedoch das Modell sowohl die Ergebnisse in TUNA wie auch die der sehr viel kleineren Aerosolerzeugungskammer richtig wiedergibt, kann hier eine nur geringfügige Abhängigkeit vermutet werden.

In der Behandlung der Modellannahmen (Abschnitt 4.1.) wurde plausibel gemacht, daß man auf eine genaue Kenntnis der Strömungsverhältnisse im Innern des Kessels verzichten kann, obwohl die Parameter  $\delta_D$  und  $\delta_T$  doch in gewisser Weise von diesen abhängen. Nun konnte aber  $\delta_D$  genügend genau am TUNA-Kessel angepaßt werden, um auch das Aerosolverhalten in der Aerosolerzeugungskammer wiederzugeben. Das deutet auf Unempfindlichkeit gegenüber Strömungsverhältnissen hin. In gleicher Weise genügte ein konstantes  $\delta_T$ , um sämtliche Temperaturversuche mit sicherlich unterschiedlichen Strömungsverhältnissen genügend genau wiederzugeben. Zu beachten sei, daß sowohl  $\delta_D$  wie  $\delta_T$  über sämtliche Abscheideflächen gemittelt sind. Inwieweit sich die hier festgelegten Werte für  $\delta_D$  und  $\delta_T$  auf reelle Containments übertragen lassen, ist eine offene Frage und hängt von den dort herrschenden Strömungsverhältnissen ab.

Außer den containmentabhängigen Strömungsparametern  $\delta_D$  und  $\delta_T$  gehen die von der Partikelstruktur abhängigen Parameter  $f$  und  $\kappa$  empfindlich in das Modell ein.  $f$  und  $\kappa$  wurden für reine  $UO_2$ -Partikel durch Vergleich mit den Versuchsergebnissen in TUNA und in der Aerosolerzeugungskammer modelltheoretisch festgelegt. Inwieweit für die im Störfall zu erwartenden Mischerosole (Brennstoff, Spaltprodukt, Natrium) andere Werte für  $f$  und  $\kappa$  gelten, ist offen. Eine konservative Abschätzung, wie sie in Kurve III der Abb. 34 vorgestellt wurde, ist physikalisch unwahrscheinlich.

## 5. Zusammenfassung und Diskussion

Die in diesem Bericht dargestellten Ergebnisse des "Aerosolprogramms" beziehen sich auf die bis Ende 1973 durchgeführten experimentellen und modelltheoretischen Untersuchungen zum Aerosolverhalten in Containments von schnellen natriumgekühlten Reaktoren (SNR). Von den in [47] näher erläuterten möglichen Aerosolquellen im hypothetischen Störfall des SNR stand dabei das primär als Folge eines Bethe-Tait-Störfalls (oder eines vergleichbaren mit Kernbrennstoff-Verdampfung verbundenen Störfalls) erzeugte und zunächst in das innere Containment des SNR freigesetzte Aerosol im Vordergrund der Untersuchungen. Um die Ergebnisse bewerten und damit eine Aussage zum Stand der Kenntnis über die Aktivitätsfreisetzung im Störfall des SNR machen zu können, müssen zwei Probleme unterschieden werden, nämlich

- die modelltheoretische Deutung der experimentellen Ergebnisse und der Grad der Übereinstimmung zwischen Modellrechnung und Experiment sowie
- die Anwendung der gewonnenen Ergebnisse auf reale SNR-Containments mit der damit verbundenen Extrapolation auf größere Volumina und andere Randbedingungen.

Über den ersten Punkt ist in Abschnitt 4 ausführlich berichtet worden. Während 1969 beim ersten internationalen Seminar über das Aerosolverhalten in geschlossenen Systemen [48] noch sehr qualitative Aussagen über die relevanten Aerosolprozesse gemacht wurden, kann heute festgestellt werden, daß die wesentlichen Aerosolprozesse, die die Abnahme der Aerosolkonzentration mit der Zeit bedingen, identifiziert worden sind. Es sind dies die Koagulation, die Sedimentation, die Diffusion und die Thermophorese. Um diese Prozesse modelltheoretisch beschreiben und ihren Einfluß auf das Aerosolsystem quantitativ angeben zu können, ist die Kenntnis einer Reihe von Aerosolparametern notwendig, die überwiegend der Messung zugänglich sind oder aus aerosolphysikalischen Überlegungen abgeleitet werden können. Wie diese Aerosolparameter gewonnen bzw. theoretisch oder experimentell verifiziert wurden, ist im einzelnen in Abschnitt 3. (Experimente) bzw. Abschnitt 4. (Modelltheorie) angegeben. Im Rahmen der Genauigkeit der bei den TUNA-Experimenten verfügbaren Meßverfahren und der Exaktheit der in der Modelltheorie verwendeten mathematischen Beziehungen für die beteiligten Aerosolprozesse konnte eine befriedigende Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment erzielt werden. Insbesondere konnten nicht nur obere Grenzen für die zu erwartenden Aerosolkonzentrationen angegeben, sondern auch der zeitliche Verlauf in allen Zeitbereichen

mit ausreichender Genauigkeit berechnet werden.

Die Frage der Übertragbarkeit der gewonnenen Ergebnisse, d.h. insbesondere die Anwendung der entwickelten Modelltheorie auf SNR-Containments stand von Anfang an mit im Blickfeld des Aerosolprogramms. Aus diesem Grunde wurde der Schwerpunkt der Untersuchungen auf die Aufklärung der beteiligten Aerosolprozesse und ihrer Abhängigkeit von bestimmten Parametern gelegt, da nicht anzunehmen war, daß das Aerosolverhalten in kleineren Volumina durch Annahme einfacher Ähnlichkeitsgesetze auf große Volumina extrapoliert werden konnte. Es wurde ferner darauf verzichtet, Nachbildungen realer SNR-Containments zu verwenden, da hier durch die komplexe Geometrie und die dadurch bewirkte Unübersichtlichkeit der Verhältnisse nur integrale Aussagen zum Aerosolverhalten möglich gewesen wären, die für eine Extrapolation auf andere Geometrien oder andere Volumina nicht geeignet sind. Durch die Zurückführung des Verhaltens der Aerosole in geschlossenen Systemen auf die wesentlichen wirksamen Aerosolprozesse und die Aufklärung der Abhängigkeit dieser Aerosolprozesse von den verschiedenen Parametern des Aerosols und des einschließenden Gefäßes ergab sich die Möglichkeit zur Entwicklung einer konsistenten Modelltheorie des Aerosolverhaltens, die im Rechenprogramm PARDISEKO ihren Ausdruck fand. Die Überprüfung dieser Modelltheorie an Experimenten in Gefäßen einfacher Geometrie (Zylinder), wie sie im TUNA in zwei verschiedenen Volumina von  $0,022 \text{ m}^3$  und  $2,2 \text{ m}^3$  durchgeführt wurde, war somit die beste Basis, die gewonnenen Ergebnisse auf reale SNR-Containments zu übertragen.

Trotzdem müssen für die Anwendung der Ergebnisse des Aerosolprogramms auf große SNR-Containments einige einschränkende Aussagen gemacht werden:

- a) Wie in Abschnitt 4. gezeigt wurde, ist die Zeitfunktion der Aerosolkonzentration von der Anfangsverteilung der Partikelgrößen entscheidend abhängig. Die entwickelte Modelltheorie geht von der im TUNA unter bestmöglichen Simulationsbedingungen gemessenen Anfangsverteilung aus. Diese Anfangspartikelgrößenverteilung wird jedoch im Störfall verschiedene Werte annehmen, je nachdem, welcher Störfallablauf zugrunde gelegt wird. Insbesondere kann der median Partikelradius bei Störfallbeginn  $r_g$  und die die Breite der Verteilung bestimmende Größe  $\sigma$  von den Störfallannahmen abhängig sein. Weiterhin ist die Anfangs-Partikelzahl-Konzentration  $C_{Po}$  vom Ausmaß der im Störfall erzeugten Beschädigung am Reaktorkern (Kernschmelzen bzw. -verdampfen)

abhängig. Hier liegt somit die Nahtstelle zwischen der Aktivitätsfreisetzung durch die Bildung, den Transport und die Abscheidung von Aerosolen einerseits und dem diese Auswirkungen auslösenden Reaktorstörfall andererseits. Um die noch bestehenden Unsicherheiten bei den genannten Parametern zu vermindern, sind daher Parameter-Variationsrechnungen mit den vorhandenen Rechenprogrammen notwendig. Daneben sollten gezielte Experimente zur Verifikation dieser Parameter-Variationsrechnungen durchgeführt werden.

- b) Durch die Berücksichtigung der Größen  $\kappa$  (dynamischer Formfaktor) und  $f$  (Kollisionsformfaktor) in der Modelltheorie konnte im Vergleich zu anderen Autoren [49] eine Verbesserung der Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment erzielt werden (Abschnitt 4.). Diese Größen wurden jedoch im "Aerosolprogramm" bisher nicht experimentell bestimmt. Es ist anzunehmen, daß diese Parameter von der chemischen Zusammensetzung und damit von der Struktur der Partikel abhängen. Damit wäre ein Zusammenhang zwischen der Zusammensetzung des primären Aerosols und der Zeitfunktion der Aerosolkonzentration gegeben, der einer genaueren Analyse bedarf. Da der dynamische Formfaktor und der Kollisionsformfaktor (mit unterschiedlichem Aufwand) experimentell bestimmt werden können, erscheint es sinnvoll, diese Parameter, besonders für ein von der Störfallanalyse her zu definierendes Anfangssystem von Misch-Aerosolen (bestehend aus den wichtigsten Brennstoff-Nukliden, Natrium und eventuell Spaltprodukten), experimentell zu ermitteln.
- c) Bei den Abscheideprozessen sind sowohl die Diffusion als auch die Thermophorese als wesentliche Effekte identifiziert worden. Die mathematische Behandlung dieser Prozesse verlangt die Festlegung einer mittleren Diffusionsgrenzschichtdicke  $\delta_D$  sowie einer mittleren thermischen Grenzschichtdicke  $\delta_T$ . In der Modelltheorie wurden beide Parameter als ortsunabhängige Größen eingeführt und entsprechend den Experimenten in TUNA angepaßt. Da beide Größen von den Strömungsverhältnissen im Versuchsgefäß bzw. im Containment abhängen, ist die Übertragung der aus den Experimenten in TUNA abgeleiteten  $\delta_D$ - und  $\delta_T$ -Werte auf große Containments vom Unterschied der Strömungsparameter in beiden Volumina abhängig. Obwohl anzunehmen ist, daß die Änderungen in  $\delta_D$  und  $\delta_T$  gering sind, wenn man auf reale Containments übergeht, sollte das Problem einer genaueren Analyse unterzogen werden.

Obwohl die genannten Einschränkungen weitere Arbeiten zum Verhalten von Aerosolen in geschlossenen Systemen erforderlich machen, kann die Anwendbarkeit der bisherigen Ergebnisse auf die Situation in großen SNR-Containments dahingehend präzisiert werden, daß eine für die sicherheitstechnische Beurteilung heutiger Containment-Konzepte ausreichende obere Grenze der zu erwartenden Aerosolkonzentrationen für typische SNR-Störfälle angegeben werden kann. Wegen der genannten Probleme enthält die Abschätzung dieser oberen Grenze naturgemäß eine Reihe konservativer Sicherheitsfaktoren, die den Aufwand bei der Auslegung des Containment-Systems beeinflussen.

Abschließend ist festzuhalten, daß die in diesem Bericht diskutierten Ergebnisse sich nur auf die bisher durchgeführten grundlegenden Arbeiten zum Verhalten des im Störfall freigesetzten primären Aerosols [47] beziehen. Die in Abhängigkeit vom Störfallablauf auftretenden weiteren Aerosolquellen waren nicht Gegenstand der hier berichteten Untersuchungsergebnisse. Diese Aerosolquellen sind die Natriumbrand-Aerosole, die wegen des unvermeidlichen Restsauerstoffs im inneren Containment entstehen und neben Natriumoxiden auch Brennstoffnuklide und Spaltprodukte enthalten können, und die Natriumlachen-Aerosole, die sich wegen der Verdampfung von Natrium aus dem Kernfänger nach einem Niederschmelzunfall bilden können und die ebenfalls Brennstoffnuklide und Spaltprodukte enthalten können. Die Erzeugung und das Verhalten dieser Aerosole werden in weiteren noch nicht abgeschlossenen Arbeitsprogrammen untersucht.

Literatur

- [1] K. Keller, W. Schikarski, H. Wild, W. Mühlhoff, H. Oeynhausien,  
J. Schenkel, U. Scholle, J.F. van de Vate  
Aerosolverhalten und radiologische Auswirkungen der Aktivitätsfrei-  
setzung im Störfall des SNR  
International Conference on Engineering of Fast Reactors for Safe  
and Reliable Operation, Karlsruhe, 9-13 October (1972)
- [2] W. Häfele, F. Heller, W. Schikarski  
The Principle of Double Containment and the Behaviour of Aerosols  
in its Relation to the Safety of Reactors with a High Plutonium  
Inventory  
KFK-Bericht 669 (1967)
- [3] B.R. Fish, G.W. Keilholtz, W.S. Snyder, S.D. Swisher  
Calculation of Doses Due to Accidentally Released Plutonium from  
an LMFBR  
ORNL-NSIC-74 (1972)
- [4] F. Heller, W. Schikarski, A. Wickenhäuser  
MUNDO-Digital-Programm zur Berechnung von Unfalldosen in der Umge-  
bung einer Reaktoranlage  
KFK-Bericht 653 (1967)
- [5] W. Schikarski  
The Karlsruhe Research Program on Nuclear Aerosols and its Relation  
to the Plutonium Hazard of Fast Sodium Reactors  
KFK-Bericht 798 (1968)
- [6] K. Gast, W. Schikarski  
Containment of a Large Sodium-Cooled Fast Breeder Reactor  
KFK-Bericht 547 (1967)
- [7] A.W. Castleman, F.L. Horn, G.C. Lindauer  
On the behavior of aerosols under fast reactor accident conditions  
Actes du Congrès, Saclay 4-6 Nov. 1969, Diffusion des Produits de  
Fission

- [ 8 ] W. Schikarski, H. Wild  
Das Verhalten von  $UO_2$ -Aerosolen in geschlossenen Systemen  
KFK-Bericht 1032 (1969)
- [ 9 ] S. Jacobi, R. Schneider, F. Will  
Eine Stoßstromanlage mit 57 KWs  
KFK-Bericht 916 (1971)
- [ 10 ] P.E. Morrow, T.T. Mercer  
A Point-to-Plane Electrostatic Precipitator for Particle Size  
Sampling  
American Ind. Hyg. Assoc. J. 25 (1964) 8-14
- [ 11 ] G.F. Skala  
A New Instrument for the Continuous Measurement of Condensation  
Nuclei  
Analytical Chemistry 35/702 (1963)
- [ 12 ] J. Gebhardt, C. Roth  
Zum Auflösungsvermögen von optischen Teilchengrößenspektrometern  
Arbeitstagung Schwebstofftechnik, 14.-16.10.1970/Battelle-Institut  
Frankfurt
- [ 13 ] J. Gebhardt, J. Bol, W. Heinze, W. Letschert  
Ein Teilchengrößenspektrometer für Aerosole unter Ausnutzung der  
Kleinwinkelstreuung der Teilchen in einem Laser-Strahl  
Staub-Reinhaltung der Luft/30 (1970) 238
- [ 14 ] M. v. Smoluchowski  
Theorie der Koagulation  
Physikal. Zeitschr. 17, Seite 539 (1916)
- [ 15 ] F.A. Centanni, A.M. Ross, M.A. Desesa  
Fluorometric Determination of Uranium  
Analytical Chemistry/28/1651 (1956)

- [16] F.S. Grimaldi, F.N. Ward, R.K. Fuyat  
Direct Fluorometric Method for the Determination of Small Amounts  
of Uranium in the Field and Laboratory  
Collected Papers on Methods of Analysis for Uranium and Thorium,  
Geological Survey Bulletin 1006 (1954)
- [17] F.S. Grimaldi, J. May, M.H. Fletcher, J. Titcomb  
Summary of Methods of Analysis for the Determination of Uranium  
and Thorium  
Geological Survey Bulletin 1006 (1954)
- [18] E.L. Nicols, M.K. Slattery  
Uranium as an Activator  
Journal of the Optical Society of America 12/449 (1926)
- [19] H. Vogg  
Private Mitteilung
- [20] VDI-Richtlinie 3491  
Entwurf (1973)
- [21] H. Wild  
Some recent results on the behaviour of nuclear aerosols observed  
in TUNA  
Beitrag zum KFK-Bericht 1206 (Juni 1970)
- [22] J.F. van de Vate  
RCN Report 174, Petten, Holland, 1972, Seite 36
- [23] K. Keller  
Das Aerosolverhalten in geschlossenen Behältern (PARDISEKO 2)  
KFK-Bericht 1758 (1973)
- [24] H. Jordan  
PARDISEKO III, to be published

- [25] L. Baumash, C.T. Nelson, R.L. Koontz  
The Characterization of UO<sub>2</sub> Aerosols by Aerodynamic Parameters  
Proceedings of the IAEA Symposium on Treatment of Airborne  
Radioactive Wastes, New York, 26-30 August 1968
- [26] N.A. Fuchs  
The Mechanics of Aerosols  
Pergamon Press, Oxford, 1964
- [27] P. Kotrappa, C.J. Wilkinson  
Amer. Ind. Hyg. Assoc. J. 33 (1972) 7, 449
- [28] M. Knudsen, J. Weber  
Ann. Physik 36 , 982 (1911)
- [29] R. Millikan  
Phys. Rev. 22, 1 (1923), quoted in [26]
- [30] V.G. Levich  
Physicochemical Hydrodynamics  
Seite 151, Prentice-Hall, Inc. Englewood Cliffs, N.J. (1962)
- [31] B.V. Derjaguin, S.P. Bakanov  
Kolloidn. Zh. 21, 377 (1959)
- [32] E. Mason, S. Chapman  
J. Chem. Phys. 36, 627 (1962)
- [33] L. Waldmann  
Z. Naturforsch. 14 a, 589 (1959)
- [34] J.R. Brock  
J. Colloid Science 17, 768 (1962)
- [35] B.V. Derjaguin, Yn. Yalamov  
J. Colloid Science 20, 555 (1965)

- [36] L. Waldmann  
in Davies, C.N., Aerosol Science, Academic Press, London (1966)
- [37] C.F. Schadt, R.D. Cadle  
J. Phys. Chem. 65, 1694 (1961), quoted in [34]
- [38] P. Goldsmith, F.G. May  
reference [36], S. 180
- [39] E. Polhausen  
ZAMM 1 (1921) 115
- [40] H. Müller  
Kolloidchem. Beih. 27, 223 III (1928), quoted in [26]
- [41] J.P. Hosemann, H. Jordan  
Beitrag zum 1. Halbjahresbericht des PNS, KFK-1859 (1973)
- [42] C.S. Wang, S.K. Friedlander  
J. Colloid and Interface Sci. 24 (1967) 170
- [43] D.L. Swift, S.K. Friedlander  
J. Colloid Sci. 19 (1964) 621
- [44] W. Stöber, H. Flachsbart, D. Hochrainer  
Staub-Reinhaltung der Luft 30, 277 (Juli 1970)
- [45] R. Wajsfelner et al.  
Aerosol Science 1, 309 (1970)
- [46] K. Keller  
Arbeitstagung Schwebstofftechnik, 14.-16.10.1970,  
Battelle-Institut Frankfurt, Brosch 2717 D

- [47] W. Schikarski  
Aerosolverhalten und Sicherheit von schnellen Natriumgekühlten  
Reaktoren  
Vortrag Sitzung der Fast Reactor Safety Working Group,  
Brüssel, 14.-15.2.1974
- [48] W. Schikarski (compil.)  
The Behaviour of nuclear aerosols in closed systems  
Int. Specialist meeting, Karlsruhe, Nov. 1969, KFK-1206 (1970)
- [49] R.L. Koontz, L. Baumash, M.A. Greenfield, C.T. Nelson,  
D.F. Hausknecht, E.U. Vaughan, M. Silberberg, H.A. Morewitz  
Aerosol Modeling of Hypothetical LMFBR Accidents  
AI-AEC-12977 (1970)

Verzeichnis der Abbildungen

- Abb. 1            Versuchsstand TUNA
- Abb. 2            Prinzipskizze TUNA
- Abb. 3            Übersicht über Aerosole und Meßtechnik
- Abb. 4            Schema eines Meßloops
- Abb. 5            Partikelzahlkonzentration im TUNA-Kessel
- Abb. 6            Sämtliche Experimente zur Partikelzahlkonzentration im TUNA-Kessel
- Abb. 7            Reziproke Partikelzahlkonzentration im TUNA-Kessel
- Abb. 8            Partikelzahlkonzentration in der Aerosolerzeugungskammer
- Abb. 9            Partikelzahlkonzentration im TUNA-Kessel in der Aerosolerzeugungskammer
- Abb. 10           Vergleich der Massenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols im TUNA-Kessel von drei Experimenten mit drei verschiedenen Meßmethoden
- Abb. 11           Massenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols im TUNA-Kessel (fluorometrisch)
- Abb. 12           Massenkonzentration (Aktivierungsanalyse) des  $UO_2$ -Aerosols
- Abb. 13           Massenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols in der Aerosolerzeugungskammer (gravimetrisch)
- Abb. 14           Massenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols in der Aerosolerzeugungskammer (fluorometrisch)
- Abb. 15           Vergleich der Massenkonzentration in der Aerosolerzeugungskammer von zwei verschiedenen Meßmethoden
- Abb. 16           Eichgerade für die fluorometrische Massenkonzentrationsbestimmung mit Konfidenzintervallen
- Abb. 17           Primär-Partikel mit der Methode der Auffangtheorie
- Abb. 18            $UO_2$ -Aerosol, abgeschieden mit dem elektrostatischen Aerosolabscheider, 2 h nach der Aerosolerzeugung
- Abb. 19           Mittlerer geometrischer Durchmesser als Funktion der Zeit (im TUNA-Kessel mit PtP)
- Abb. 20           Mittlerer geometrischer Durchmesser des  $UO_2$ -Aerosols (im TUNA-Kessel mit PtP)

- Abb. 21 Summenhäufigkeit des  $UO_2$ -Aerosols im log. normal Wahrscheinlichkeitsnetz
- Abb. 22 Partikelgrößenverteilung, gemessen mit dem Laser-Aerosol-Spektrometer
- Abb. 23 Teilchengrößenspektrum des  $UO_2$ -Aerosols nach 2 Stunden (gemessen mit dem Kondensationskernzähler und mit dem Laser-Aerosol-Spektrometer)
- Abb. 24 Masse eines Partikels als Funktion der Zeit
- Abb. 25 Partikelkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols im TUNA-Kessel bei verschiedenen relativen Feuchten
- Abb. 26 Radiale Temperaturverteilung im TUNA-Kessel bei Innenheizung in Kesselmitte
- Abb. 27 Teilchenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols bei Innenheizung (im TUNA-Kessel)
- Abb. 28 Massenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols bei Innenheizung (im TUNA-Kessel)
- Abb. 29 Halbwertszeit der Konzentrationsabnahme über der Kesseltemperatur bei Innenheizung im TUNA-Kessel
- Abb. 30 Radiale Temperaturverteilung im TUNA-Kessel bei Außenheizung in Kesselmitte
- Abb. 31 Teilchenkonzentration des  $UO_2$ -Aerosols bei Außenheizung (im TUNA-Kessel)
- Abb. 32 Halbwertszeit der Konzentrationsabnahme über der Kesseltemperatur bei Außenheizung
- Abb. 33  $UO_2$ -Masse pro  $cm^2$  Kesselwand bei Außenheizung und bei Innenheizung
- Abb. 34 Vergleich Experiment:Theorie.  $UO_2$ -Teilchenkonzentration bei Raumtemperatur; Modellvariationen
- Abb. 35 Vergleich Experiment:Theorie.  $UO_2$ -Teilchenkonzentration bei Raumtemperatur; Meßparameter-Variation
- Abb. 36 Vergleich Experiment:Theorie.  $UO_2$ -Massenkonzentration bei Raumtemperatur
- Abb. 37 Vergleich Experiment:Theorie.  $UO_2$ -Teilchenkonzentration bei verschiedenen Gastemperaturen (Innenheizung)
- Abb. 38 Vergleich Experiment:Theorie.  $UO_2$ -Massenkonzentration bei verschiedenen Gastemperaturen (Innenheizung)

- Abb. 39 Vergleich Experiment:Theorie.  $\text{UO}_2$ -Teilchenkonzentration bei Raumtemperatur (Explosionskammer)
- Abb. 40 Vergleich Experiment:Theorie.  $\text{UO}_2$ -Massenkonzentration bei Raumtemperatur (Explosionskammer)
- Abb. 41 Die gerechneten Größenverteilungs-Parameter  $\bar{r}_e$ ,  $r_g$ ,  $\delta$  für TUNA bei Raumtemperatur
- Abb. 42 Die Koagulationskonstante  $\bar{K}$  für TUNA bei Raumtemperatur

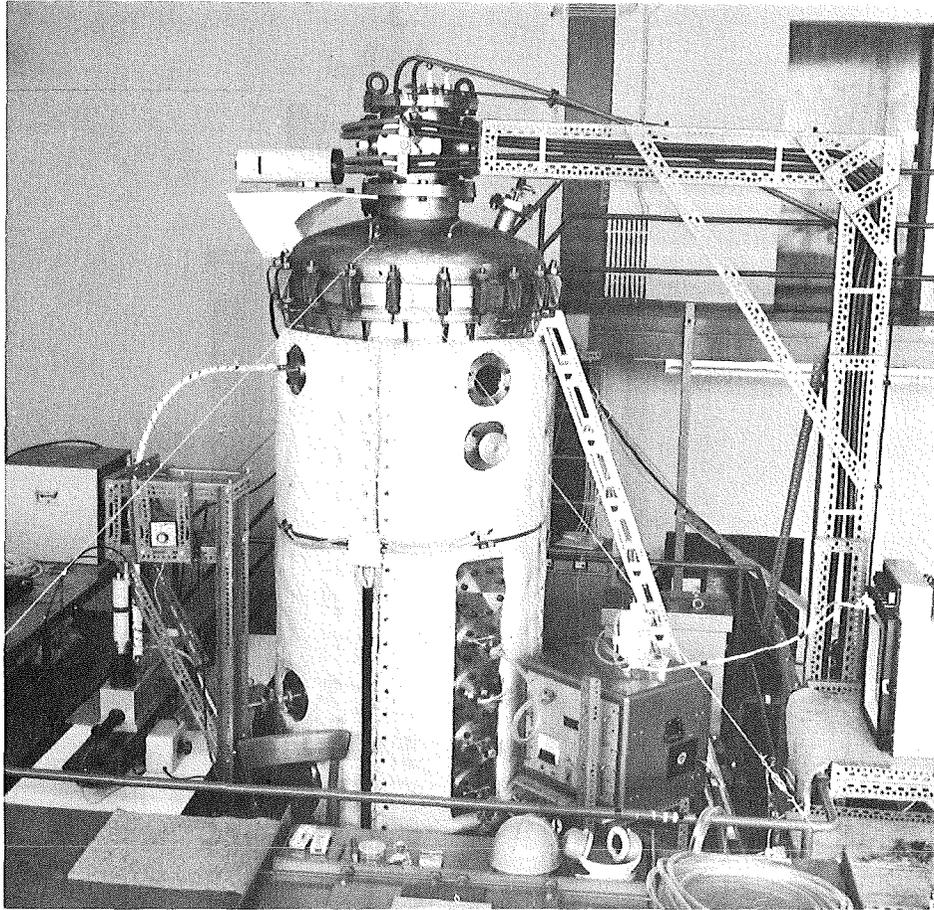
Verzeichnis der Tabellen

		Seite
Tabelle 1	Aerosolerzeugungsbedingungen	- 9 -
Tabelle 2	Halbwertszeit und Koagulationskonstante der Experimente im TUNA-Kessel	- 14 -
Tabelle 3	Vergleich von Referenztemperatur und Gas- temperatur	- 56 -

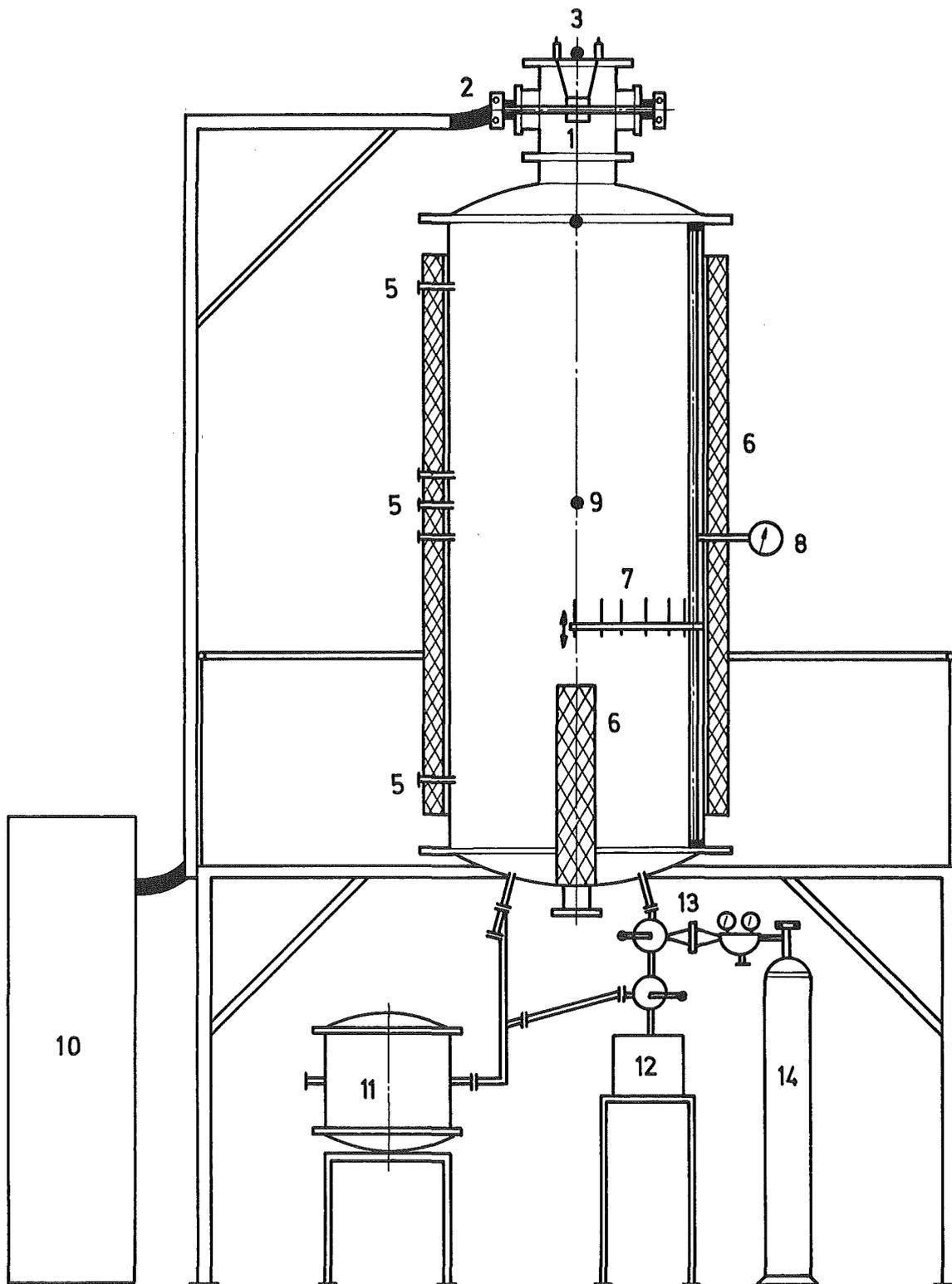
Nomenklatur

A	Abscheidefläche
A	Empirische Konstante der Knudsen-Weber-Korrektur
$A_D$	Diffusions-Abscheidefläche
$A_S$	Sedimentationsabscheidefläche
$A_T$	Thermophorese-Abscheidefläche
B	Beweglichkeit
$B_w$	Rotationsbeweglichkeit
$B_{wo}$	Rotationsbeweglichkeit einer volumenäquivalenten Kugel
b	Empirische Konstante der Knudsen-Weber-Korrektur
$C_m, C_t$	Gas-Partikel-Wechselwirkungskonstanten
$C_M$	Partikelmassenkonzentration
$C_P$	Partikelzahlkonzentration
$C_{Po}$	Anfangspartikelzahlkonzentration
D	Diffusionskonstante der Partikel
$d_g$	Mediandurchmesser
$F_{th}$	Thermophoretische Kraft an einem Partikel
f	Kollisionsformfaktor
g	Erdbeschleunigung
K	Koagulationsfunktion (Brown'sche Bewegung)
$\bar{K}$	Durchschnitt über der Partikelgrößenverteilung der Koagulationsfunktion (Brown'sche Bewegung)
$K_o$	Koagulationskonstante (Brown'sche Bewegung)
$K_K$	Koagulationsfunktion (kinematische)
$K_n$	Knudsenzahl
$k_g$	Wärmeleitfähigkeit des Trägergases
$k_s$	Wärmeleitfähigkeit des Partikels
$l$	Mittlere freie Weglänge des Trägergases
m	Masse des Partikels
$n(r)$	Partikelzahl-Verteilung über dem Radius
$P_r$	Prandlzahl
Q	Empirische Konstante der Knudsen-Weber-Korrektur
R	Zusammenstoßrate (Brown'sche Bewegung)
$R_e$	Reynoldszahl
$R_K$	Zusammenstoßrate (kinematische)
$r_e$	Massenäquivalenter Radius
$\bar{r}_e$	Mittlerer massenäquivalenter Radius

$r_s$	Stoßradius
$r_{St}$	Stokesradius
$T$	Absolute Temperatur
$V$	Volumen
$v_{\perp}$	Abscheidegeschwindigkeit senkrecht zur Wand
$v_{sed}$	Sedimentationsgeschwindigkeit
$\alpha_D$	Abscheidekoeffizient für Diffusion
$\alpha_S$	Abscheidekoeffizient für Sedimentation
$\alpha_T$	Abscheidekoeffizient für Thermophorese
$\alpha_D$	Durchschnitt über die Partikelgrößenverteilung von $\alpha_D$
$\alpha_S$	Durchschnitt über die Partikelgrößenverteilung von $\alpha_S$
$\alpha_T$	Durchschnitt über die Partikelgrößenverteilung von $\alpha_T$
$\alpha_D^m$	Durchschnitt über die Partikelmassenverteilung von $\alpha_D$
$\alpha_S^m$	Durchschnitt über die Partikelmassenverteilung von $\alpha_S$
$\gamma$	Relation zwischen den Radien zweier Partikeln
$\delta_D$	Dicke der Diffusionsgrenzschicht
$\delta_T$	Dicke der thermischen Grenzschicht
$\delta_o$	Dicke der laminaren Grenzschicht
$\epsilon$	Einfangwahrscheinlichkeit
$\eta$	Zähigkeit des Trägergases
$\kappa$	Dynamischer Formfaktor
$\rho$	Dichte des Partikels
$\rho_g$	Dichte des Trägergases
$\sigma_g$	Geometrische Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung
$\sigma$	$\ln g$
$\tau$	Relaxationszeit für Partikel-Beschleunigungen
$\tau$	Dimensionsloses Zeitmaß
$\Phi$	Dimensionslose Form der Verteilung $n(r)$
$\Psi$	Zeit asymptotische Form von
$\zeta$	Dimensionsloses Größenmaß der Partikel



**Abb.1 Versuchsstand TUNA**  
( Teststand zur Untersuchung  
nuklearer Aerosole )



- |                                  |   |
|----------------------------------|---|
| 1 Aerosolerzeugungskammer        | 8 Manometer                             |
| 2 Koaxialkabel                   | 9 Druckaufnehmer                        |
| 3 Heizstromdurchführung          | 10 Stoßstromanlage + Instrum.- Schränke |
| 4 Kessel                         | 11 Auslaßfilter                         |
| 5 Aerosol- Entnahmestellen       | 12 Pumpstand                            |
| 6 Kesselheizung außen, innen     | 13 Einlaßfilter                         |
| 7 Temperaturfeld- Meßvorrichtung | 14 Gasflasche                           |

Abb. 2 Prinzipskizze TUNA

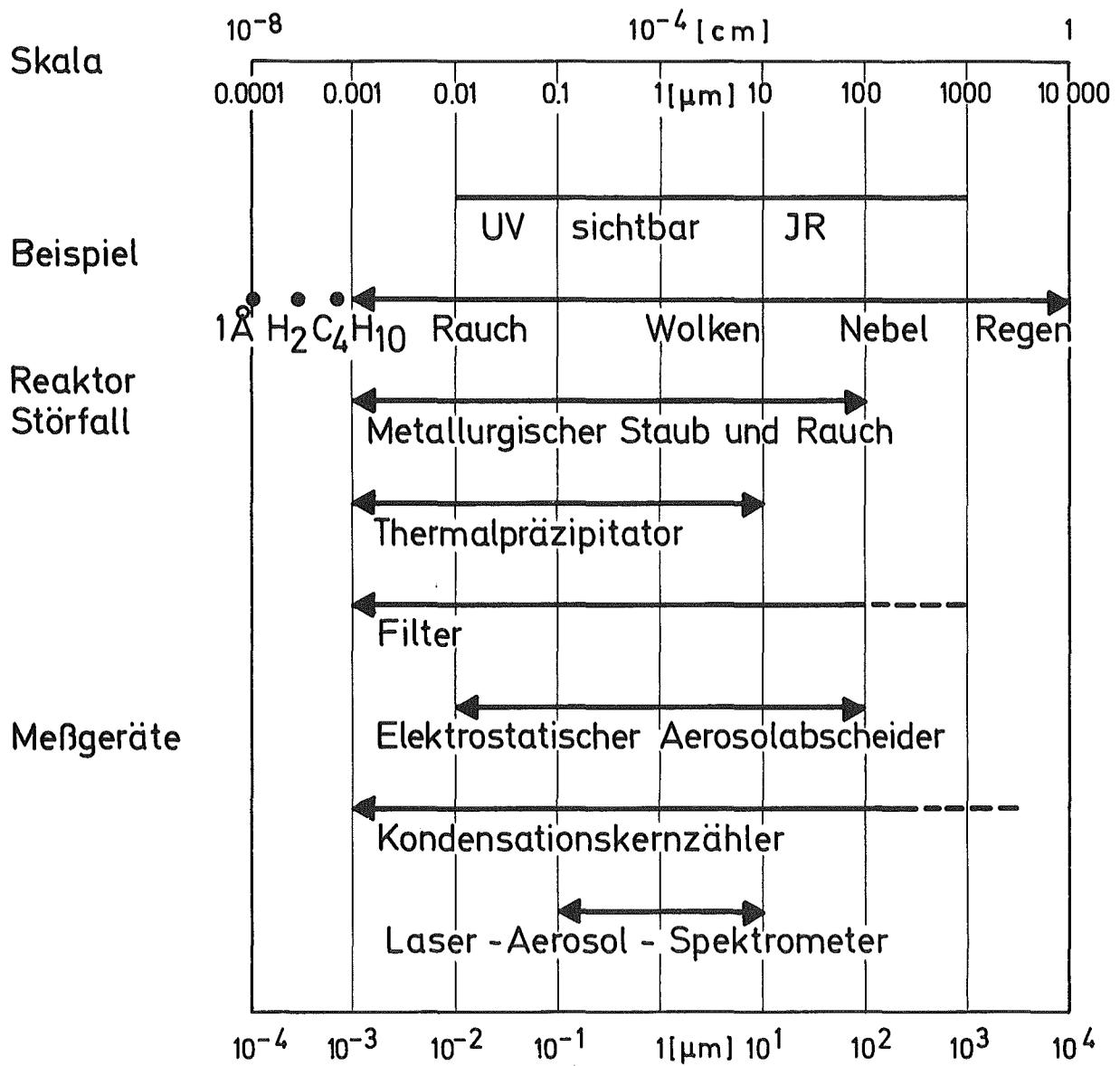


Abb. 3 Übersicht über Aerosole und Meßtechnik

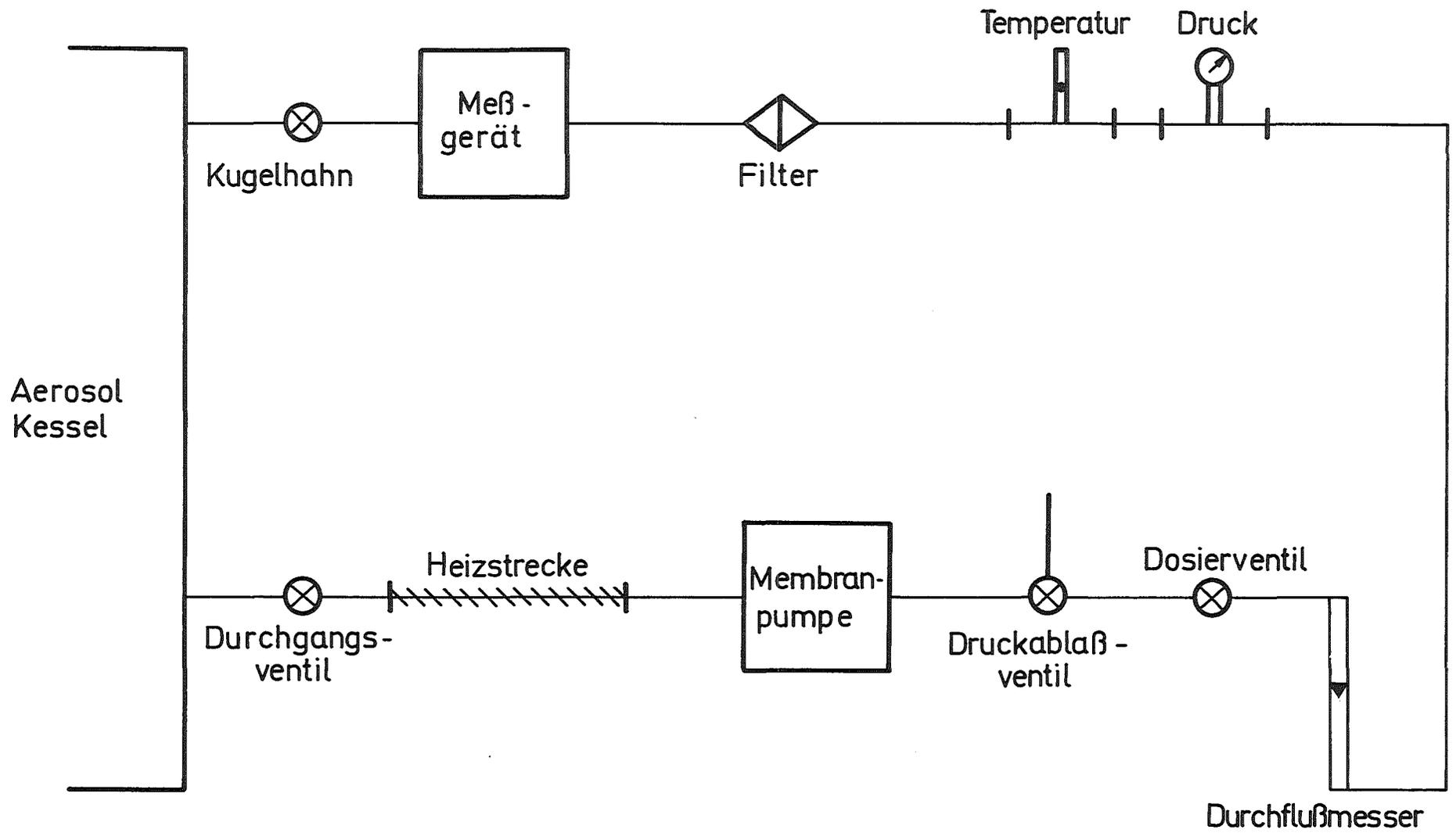
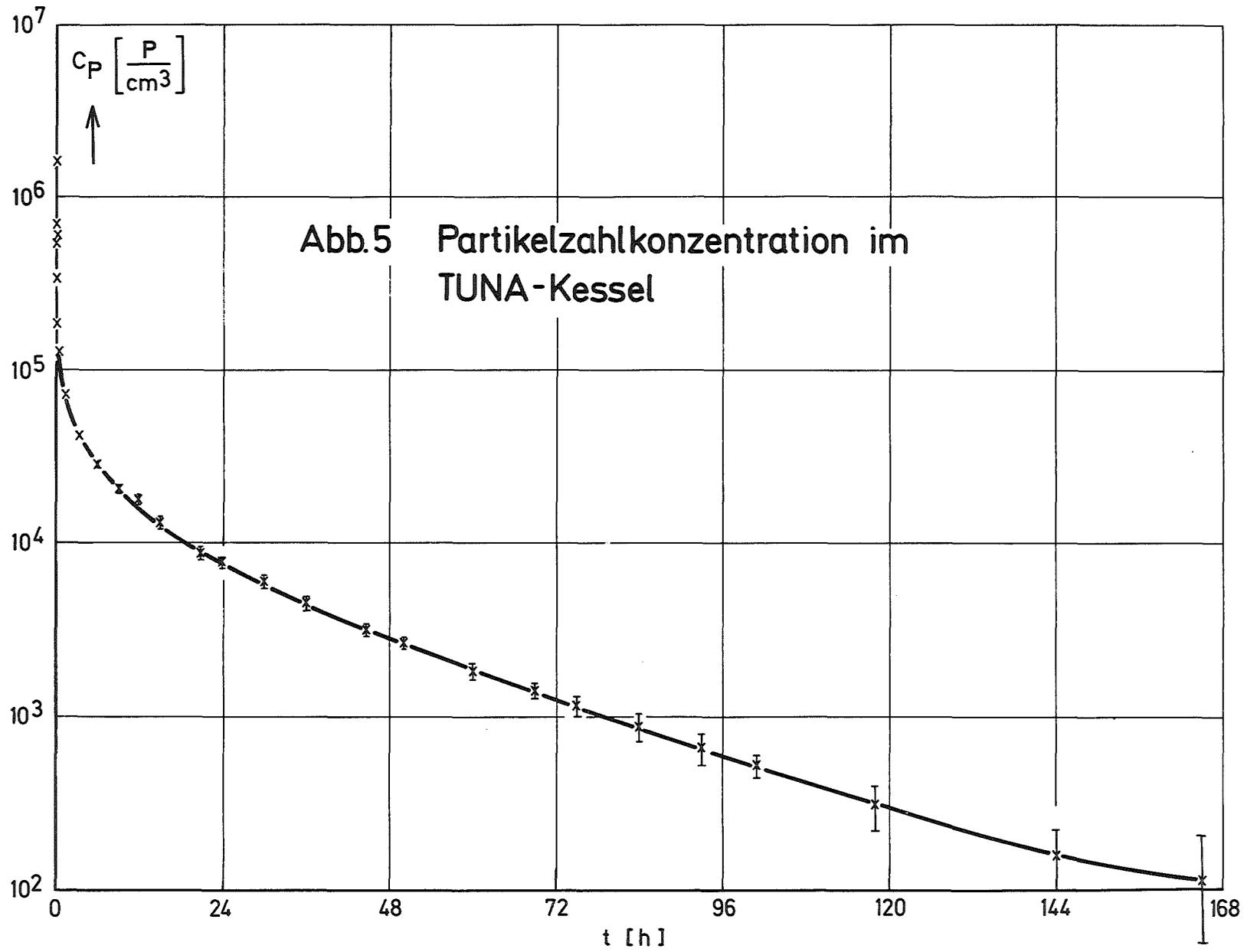
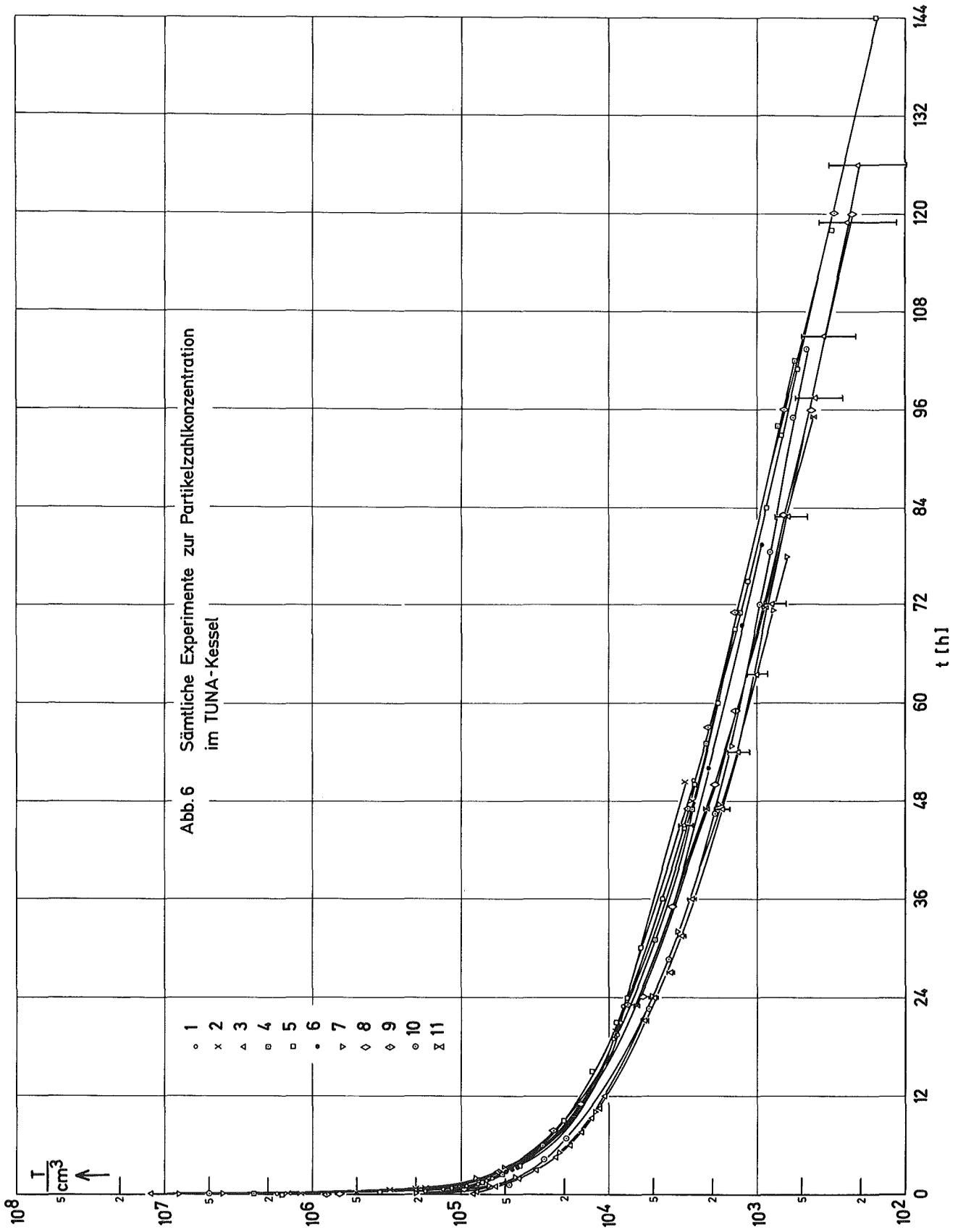


Abb. 4 Schema eines Meßloops





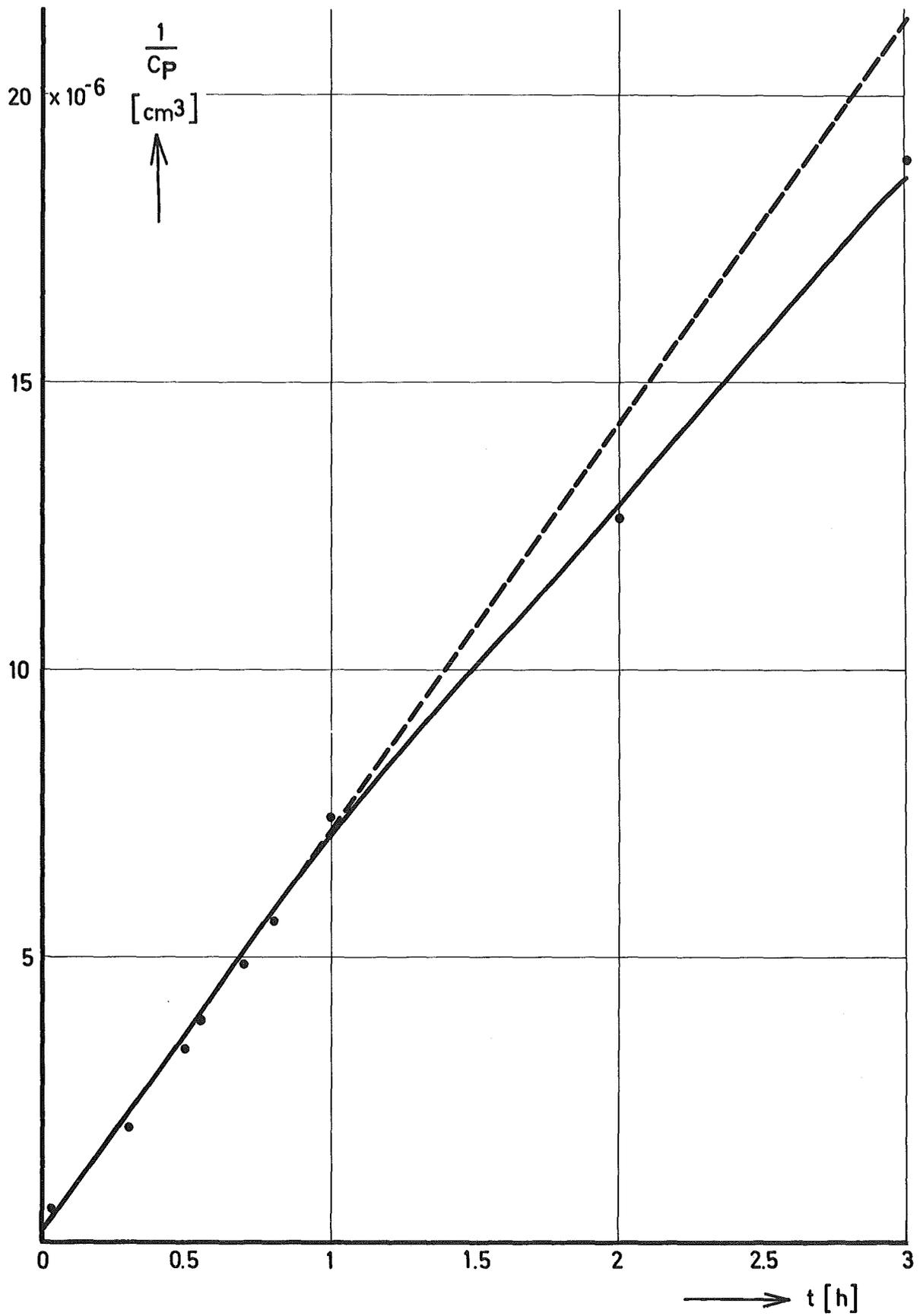


Abb. 7 Reziproke Partikelzahlkonzentration im TUNA-Kessel

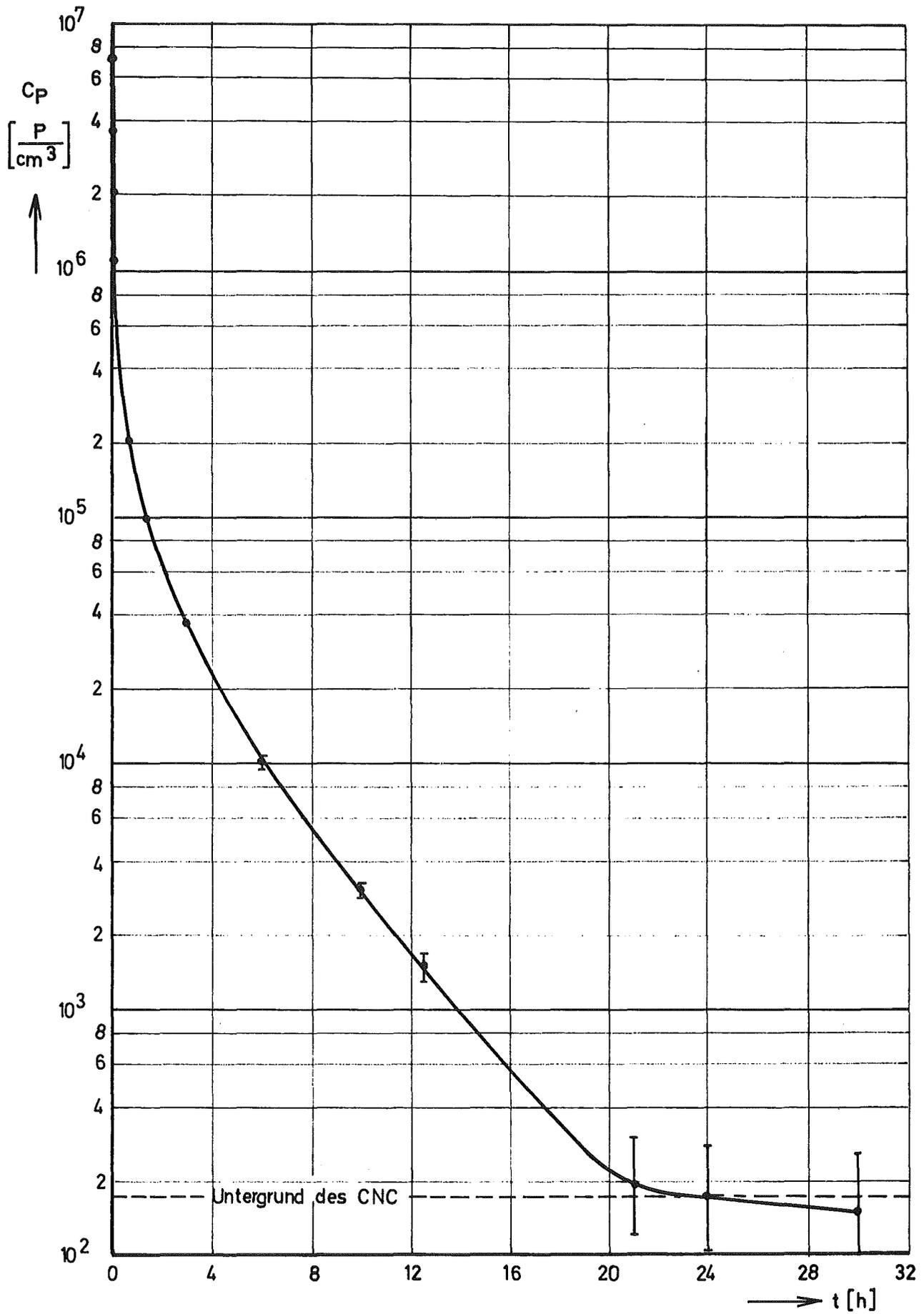


Abb. 8 Partikelzahlkonzentration in der Aerosolerzeugungskammer

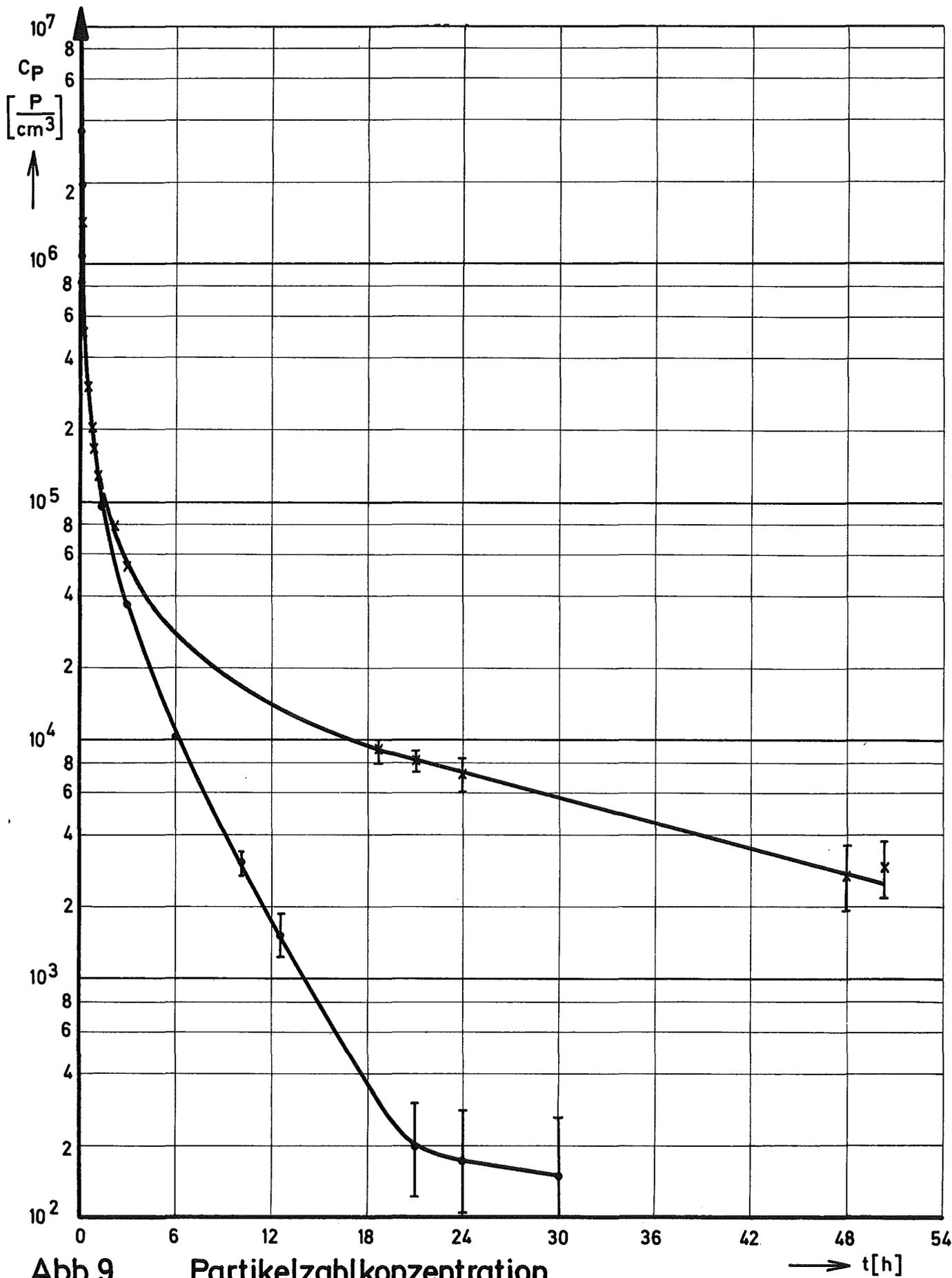


Abb.9

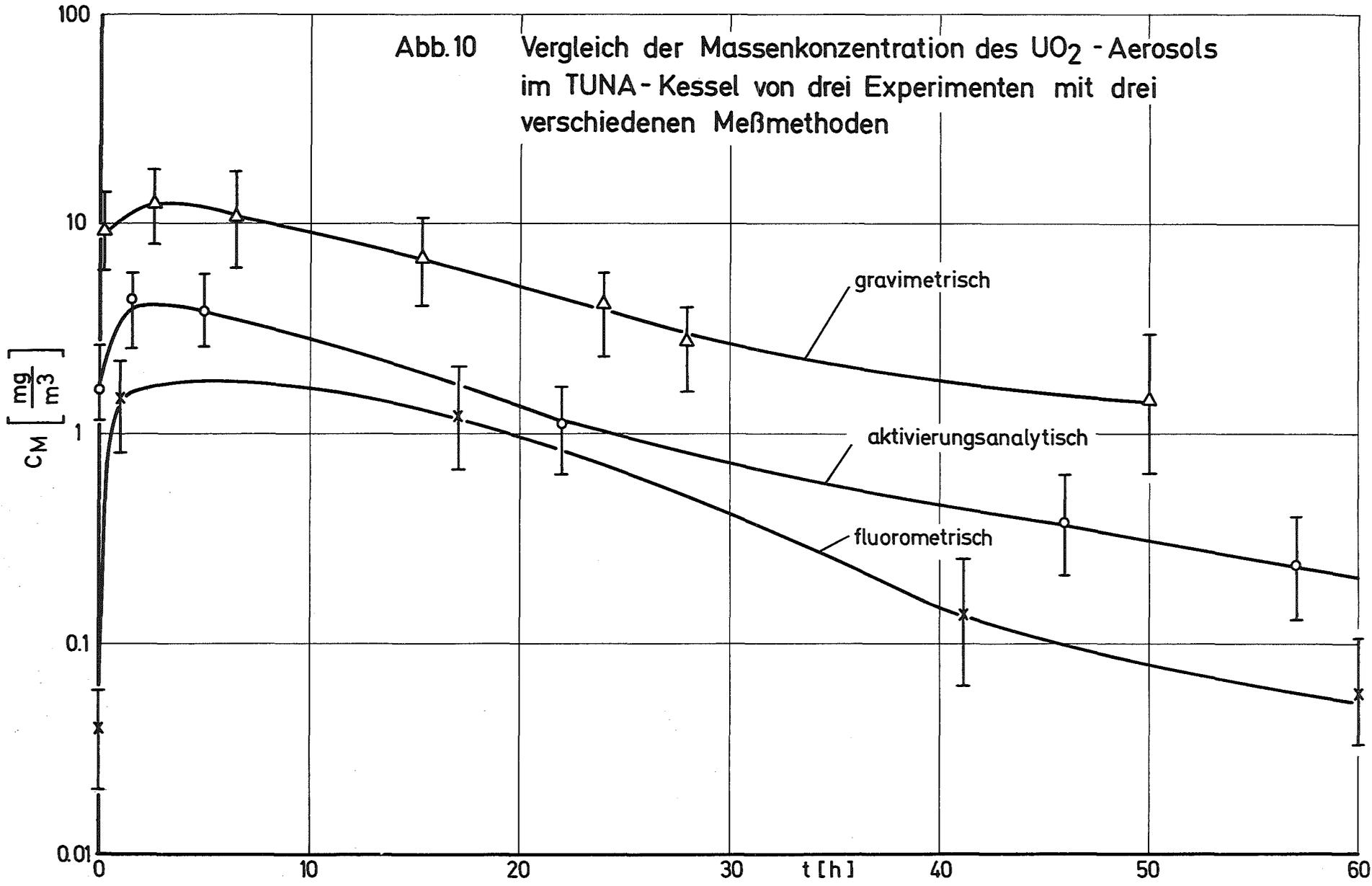
Partikelzahlkonzentration  
im TUNA-Kessel  
in der Aerosolerzeugungskammer

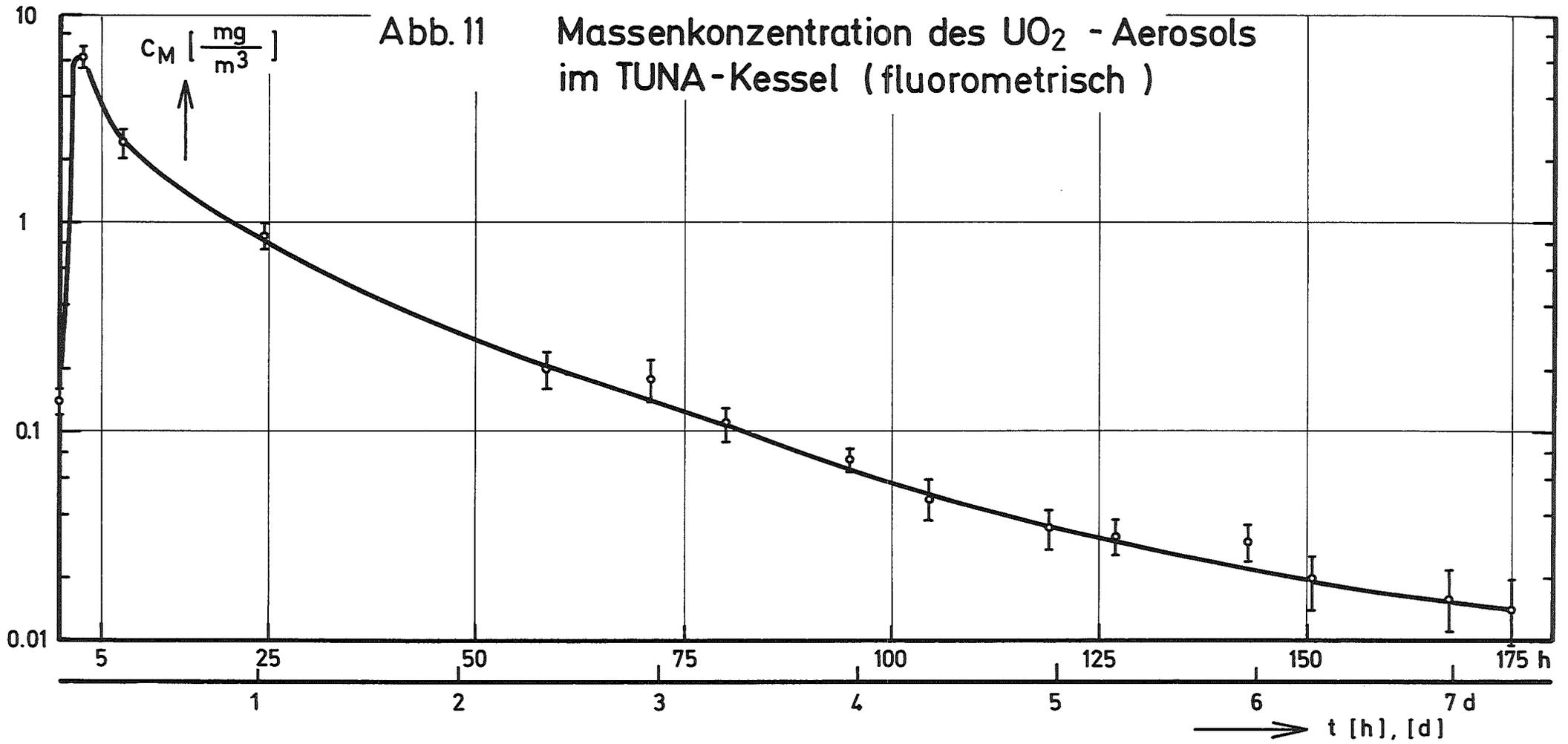
→  $t$ [h]

x

•

Abb.10 Vergleich der Massenkonzentration des UO<sub>2</sub> -Aerosols im TUNA-Kessel von drei Experimenten mit drei verschiedenen Meßmethoden





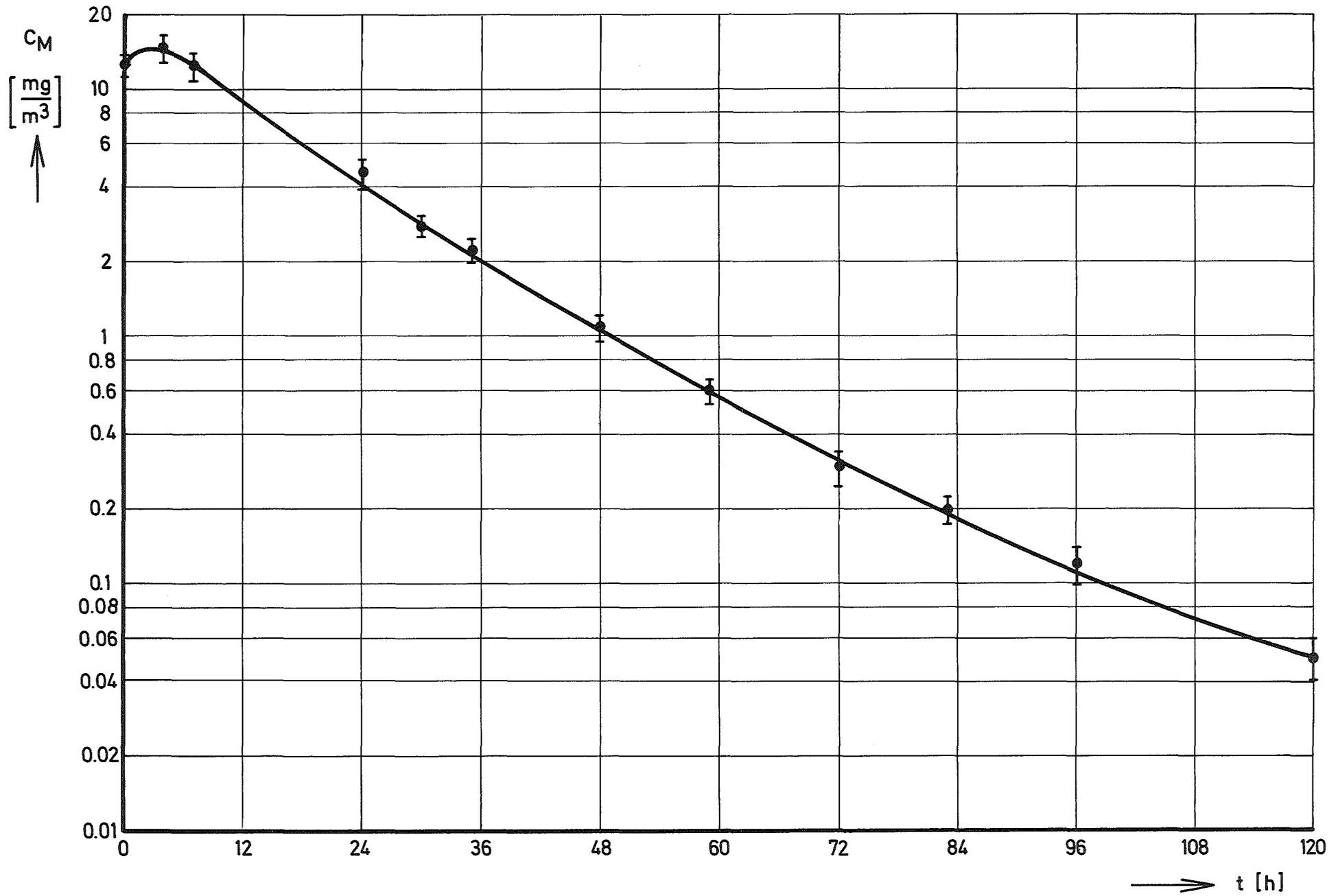


Abb.12 Massenkonzentration (Aktivierungsanalyse) des  $UO_2$  - Aerosols

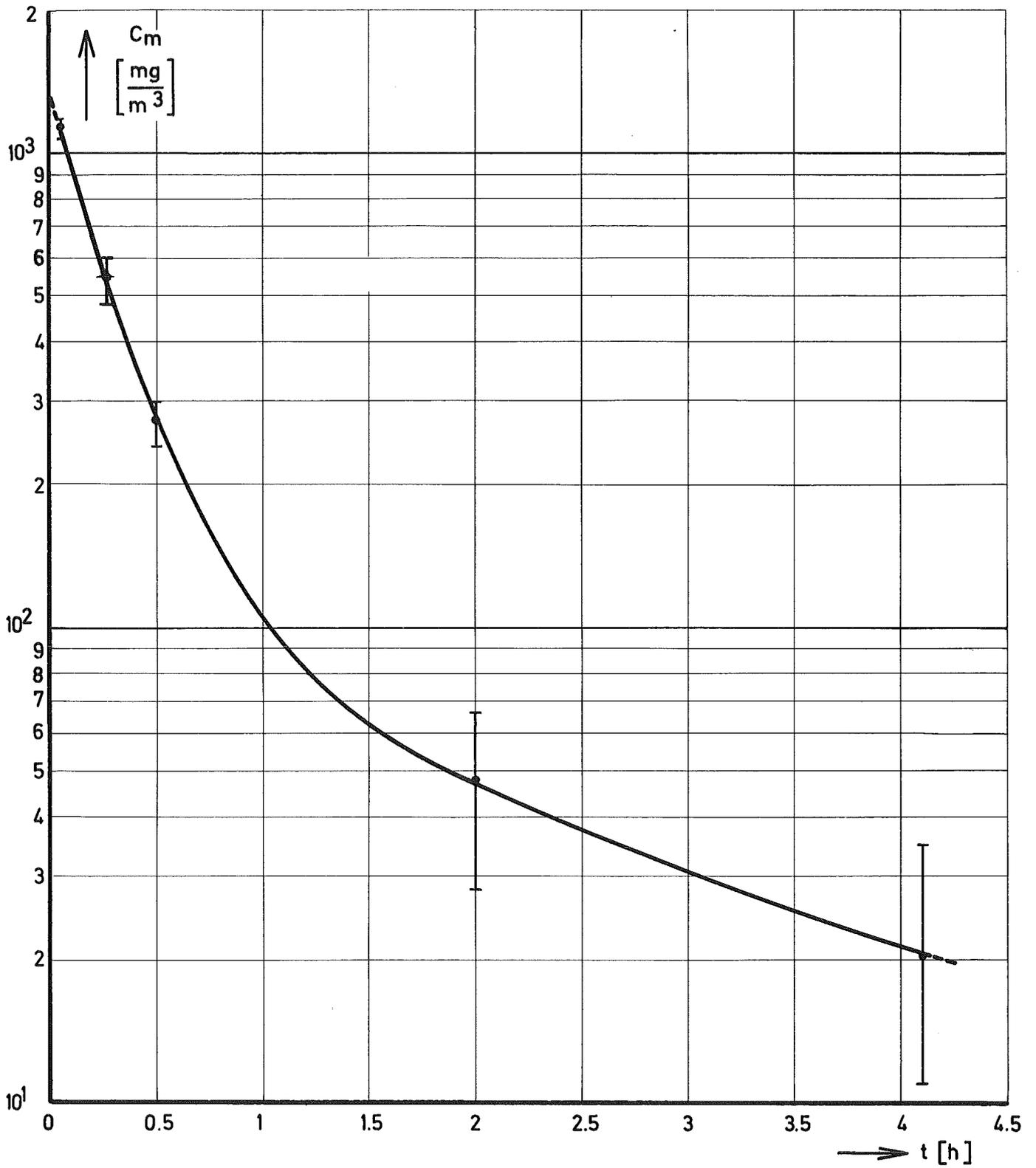
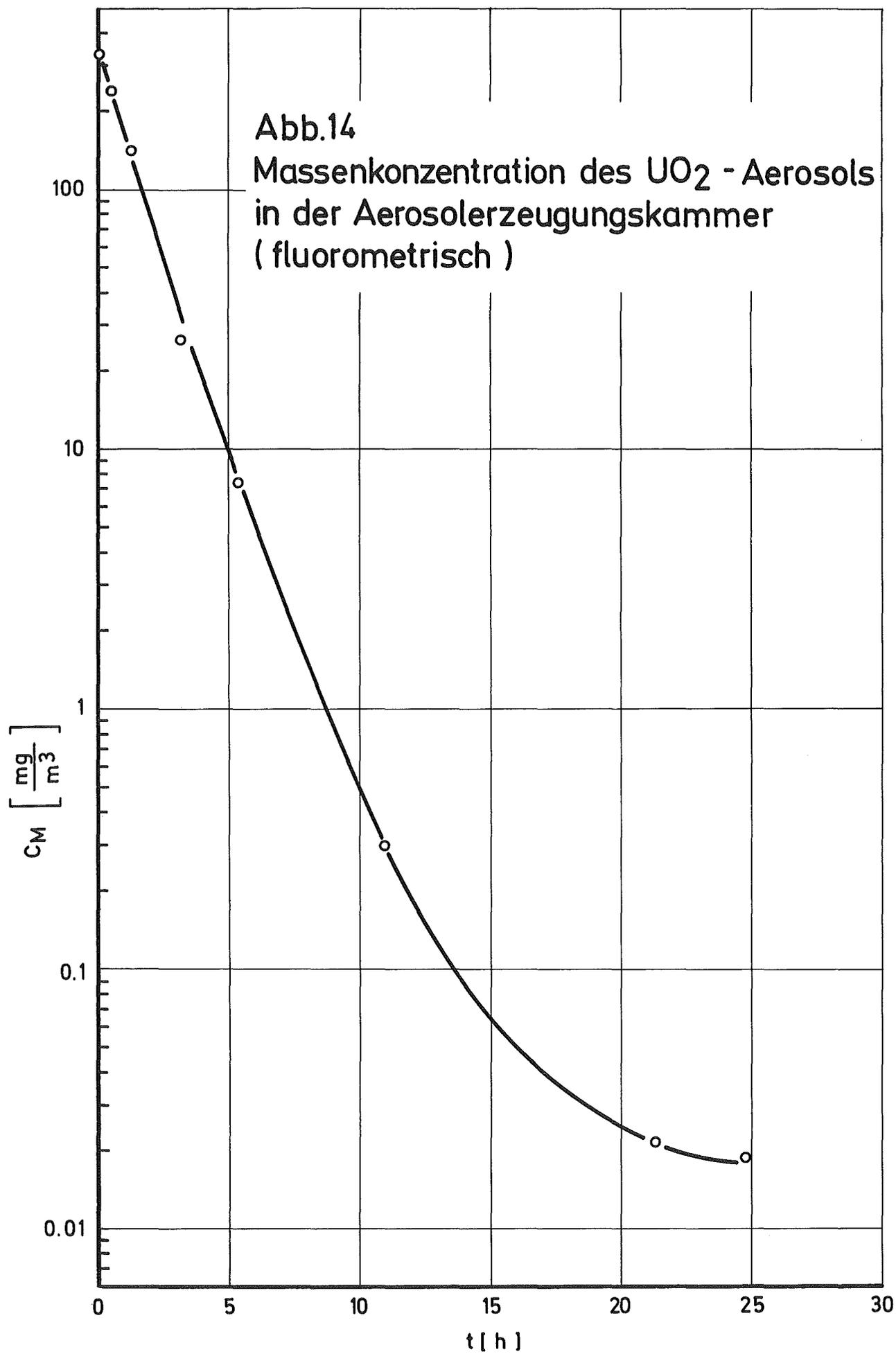
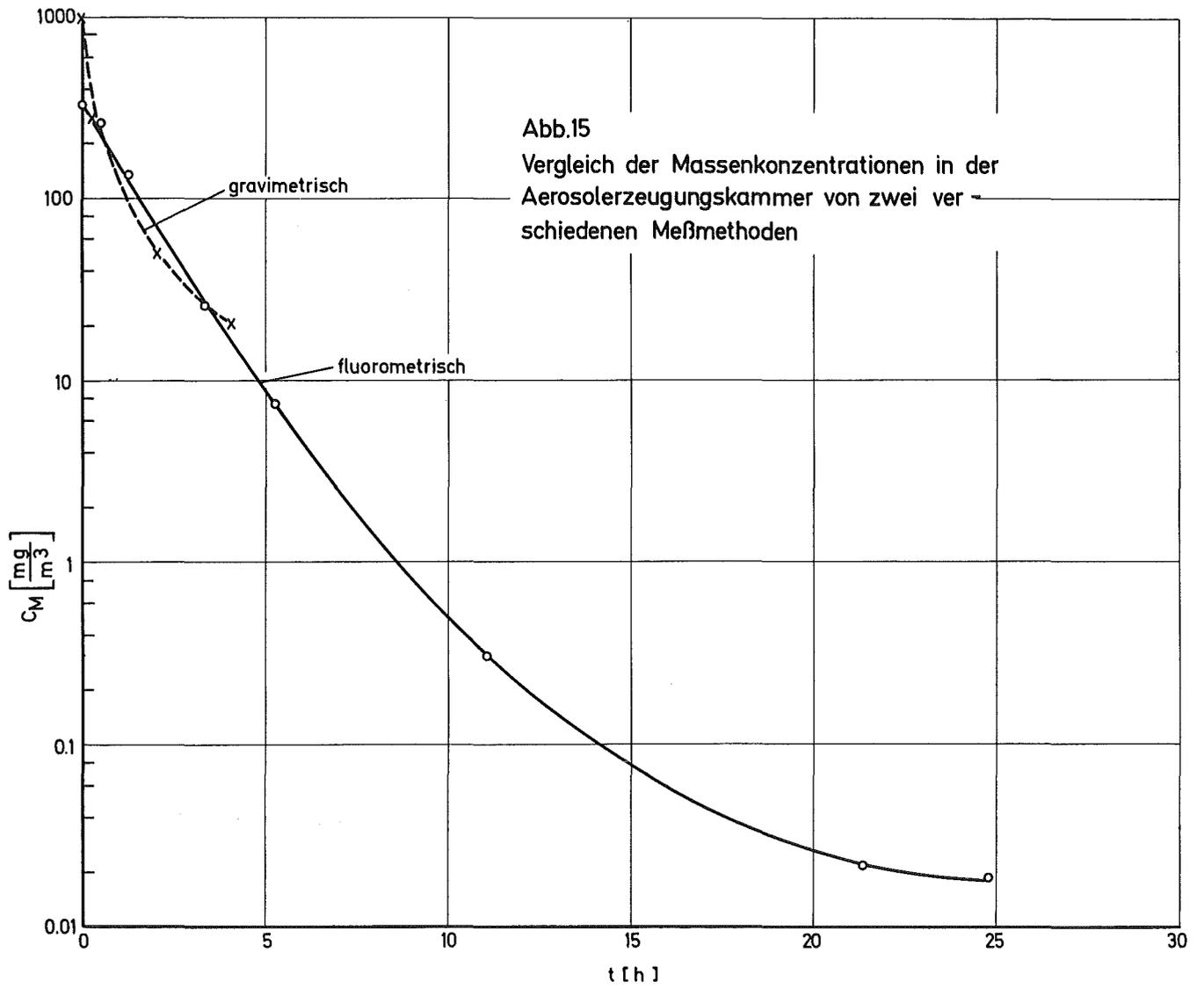


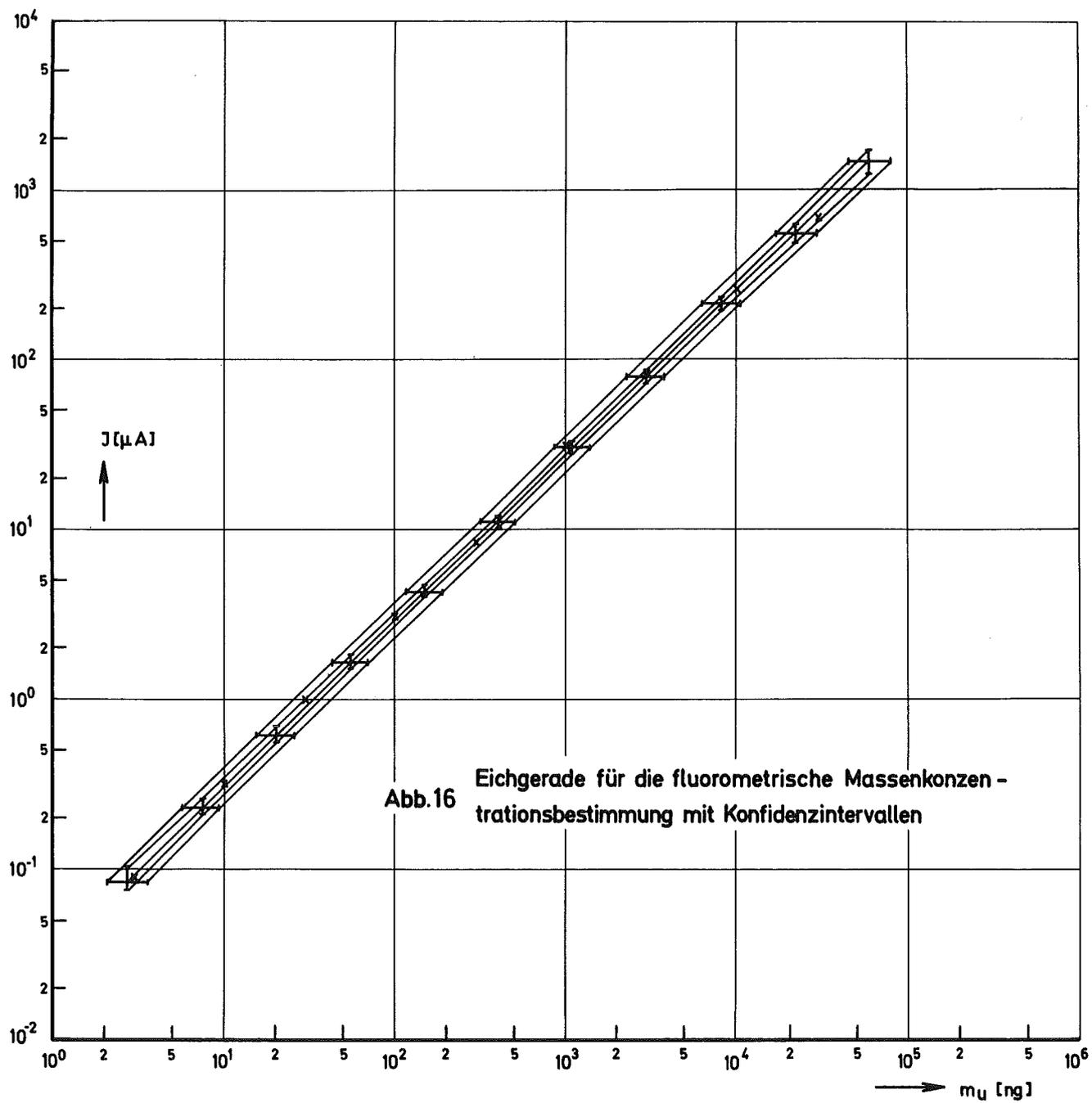
Abb. 13 Massenkonzentration des  $\text{UO}_2$ -Aerosols in der Aerosolerzeugungskammer (gravimetrisch)

Abb.14

Massenkonzentration des  $\text{UO}_2$  - Aerosols  
in der Aerosolerzeugungskammer  
( fluorometrisch )







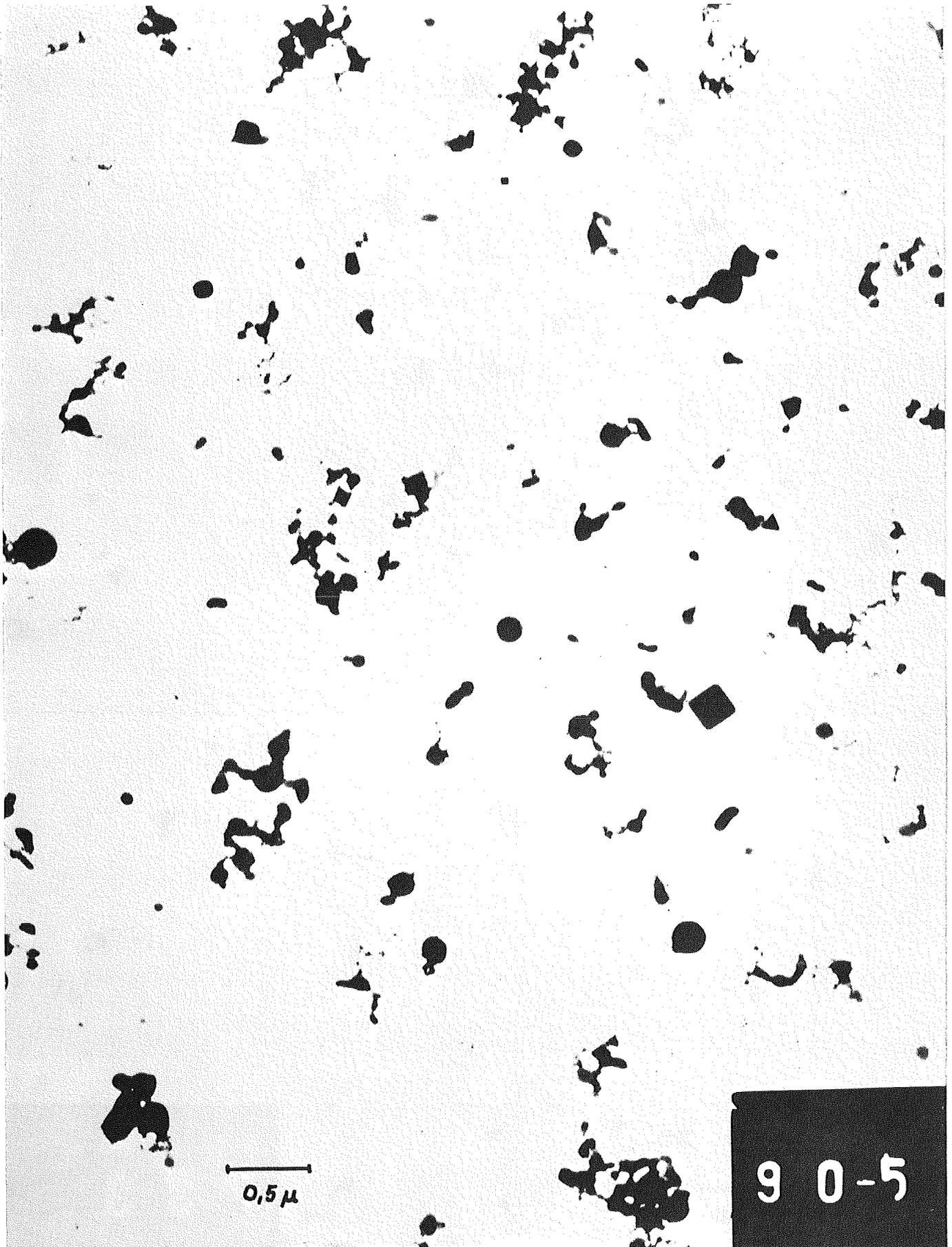


Abb.17 Primär - Partikel mit der Methode der Auffangfolie



Abb. 18 UO<sub>2</sub> - Aerosol , abgeschieden mit dem elektrostatischen Aerosolabscheider , 2h nach der Aerosolerzeugung

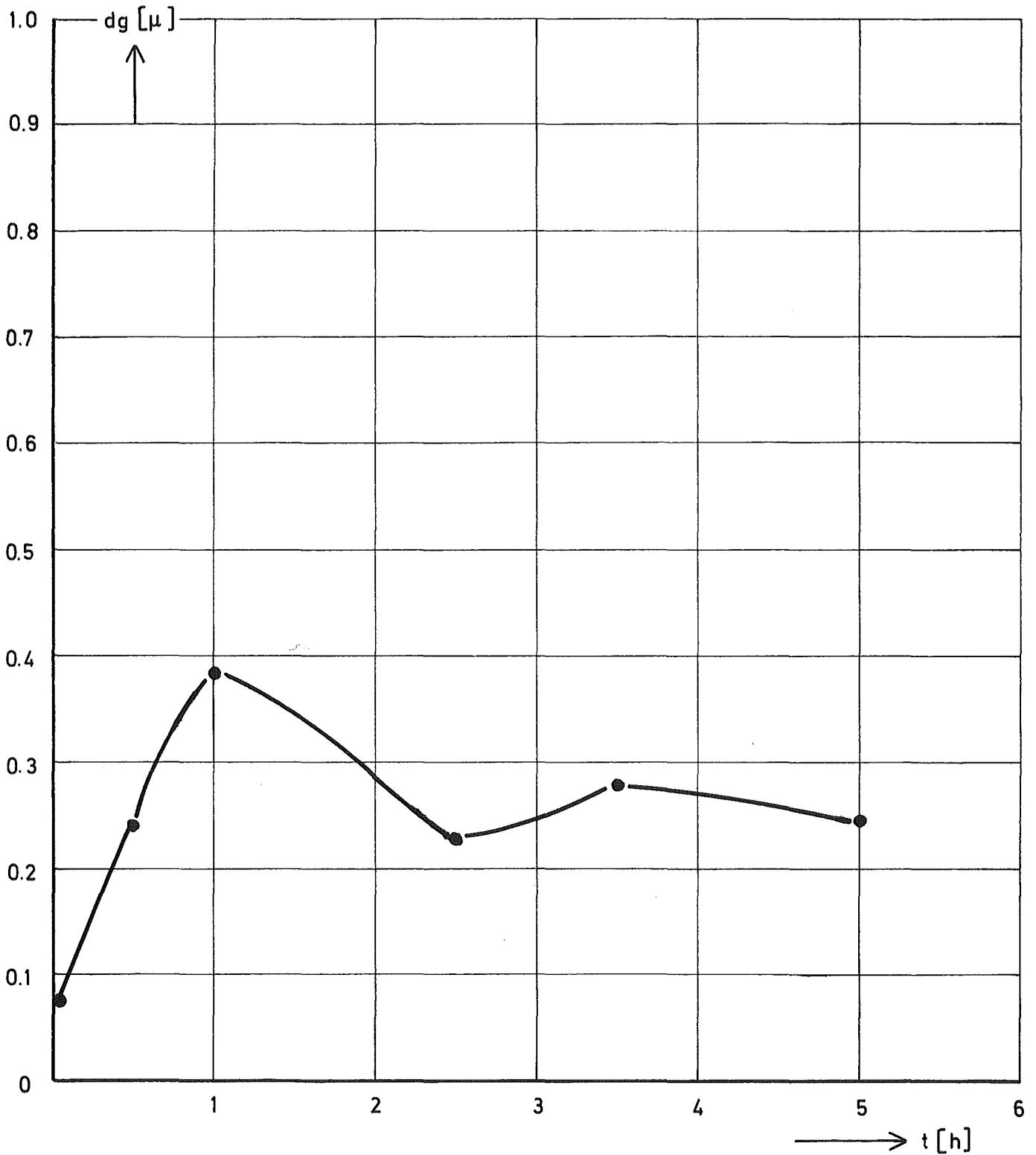


Abb. 19 Mittlerer geometrischer Durchmesser als Funktion der Zeit  
(im TUNA - Kessel mit PtP)

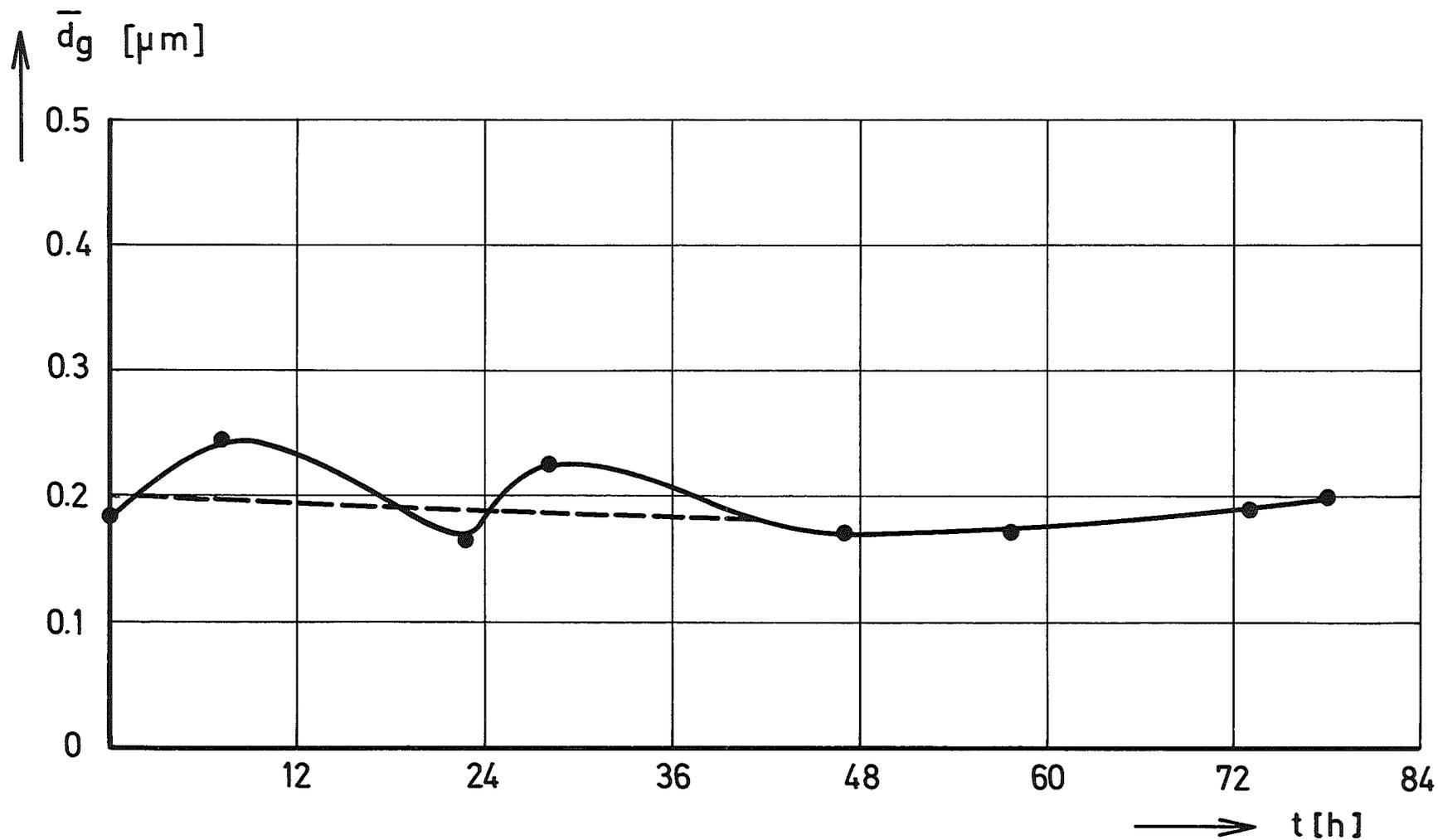
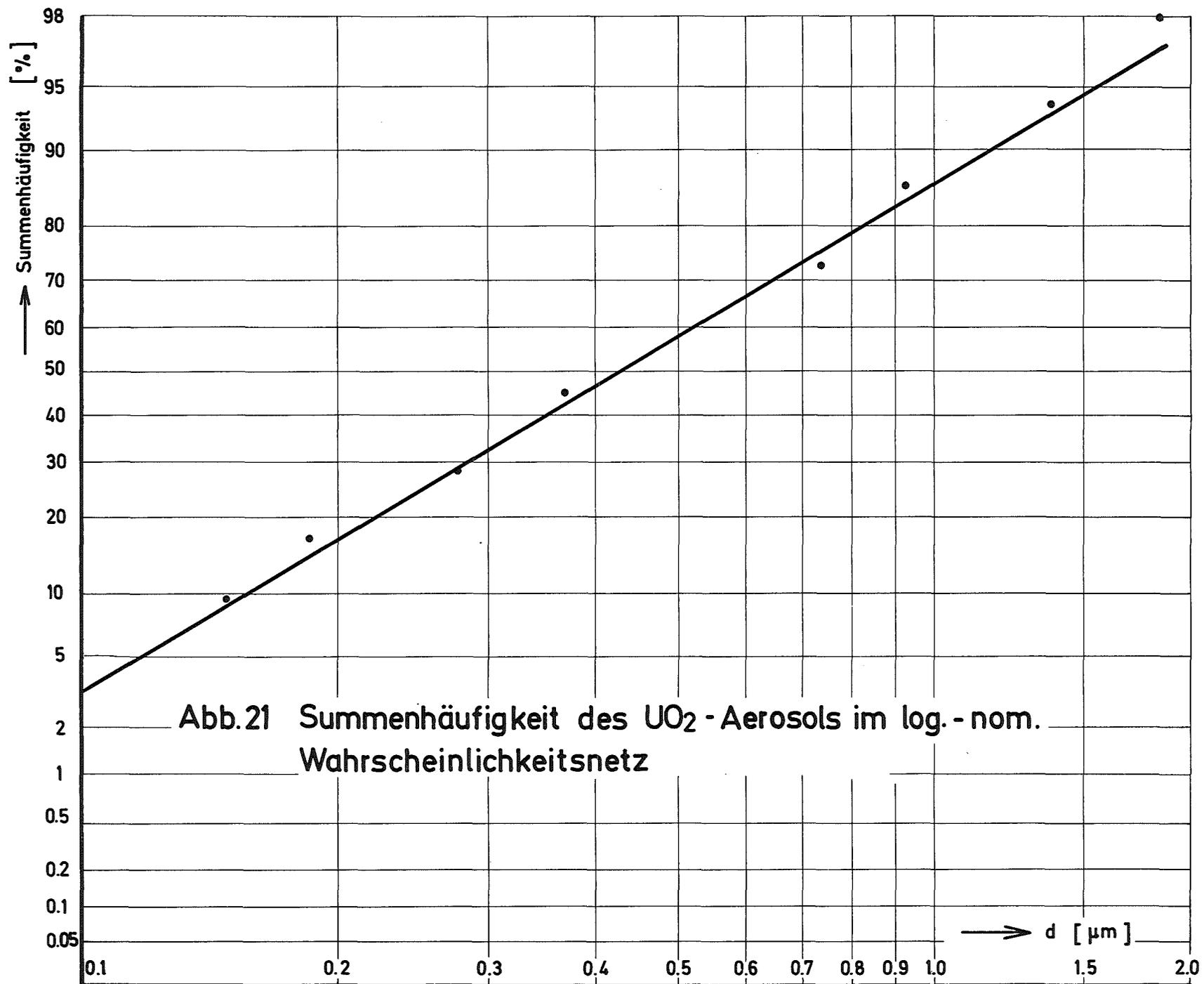


Abb.20 Mittlerer geometrischer Durchmesser des  $\text{UO}_2$  - Aerosols  
( im TUNA-Kessel mit PtP )



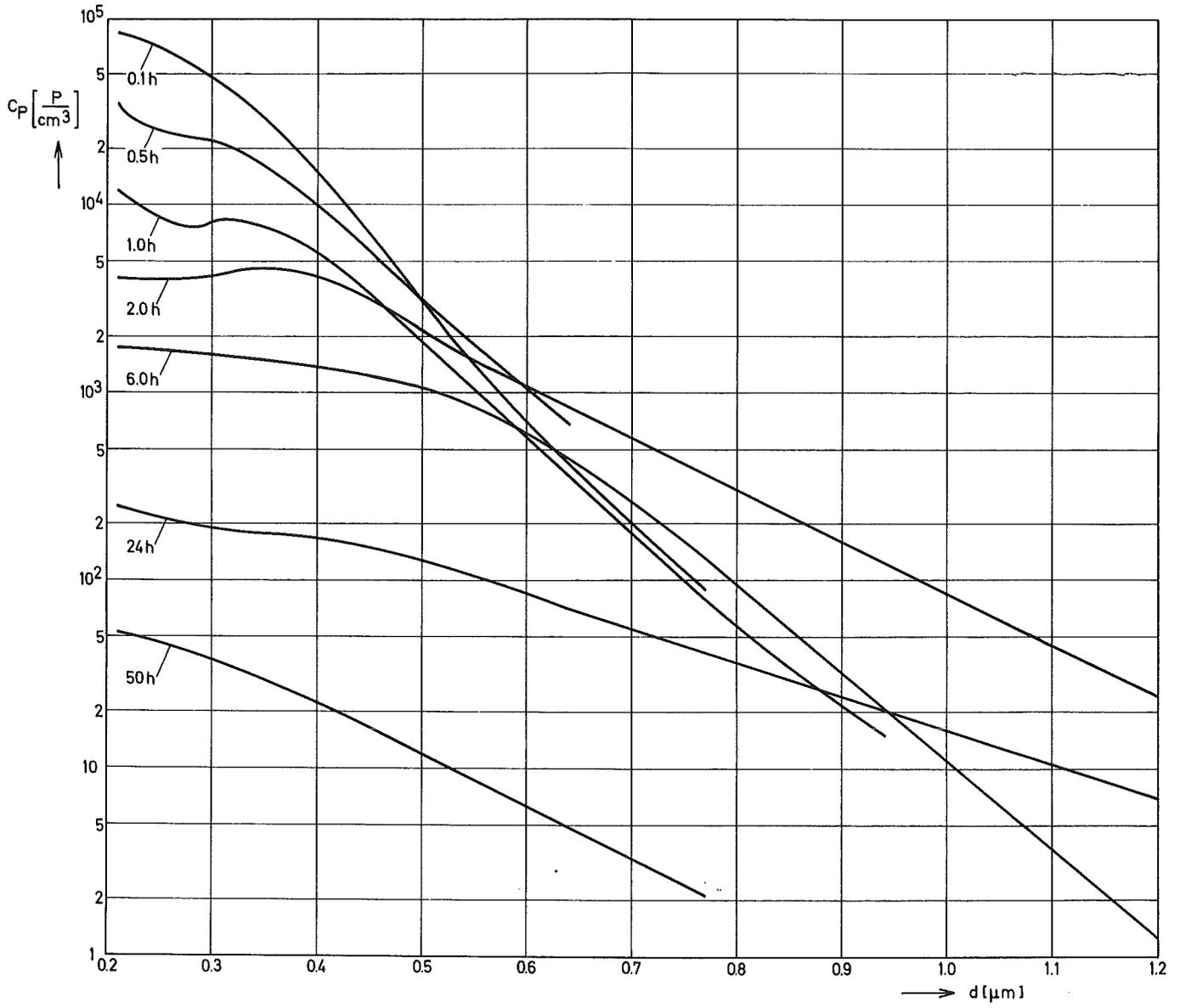


Abb. 22 Partikelgrößenverteilung gemessen mit dem Laser - Aerosol - Spektrometer

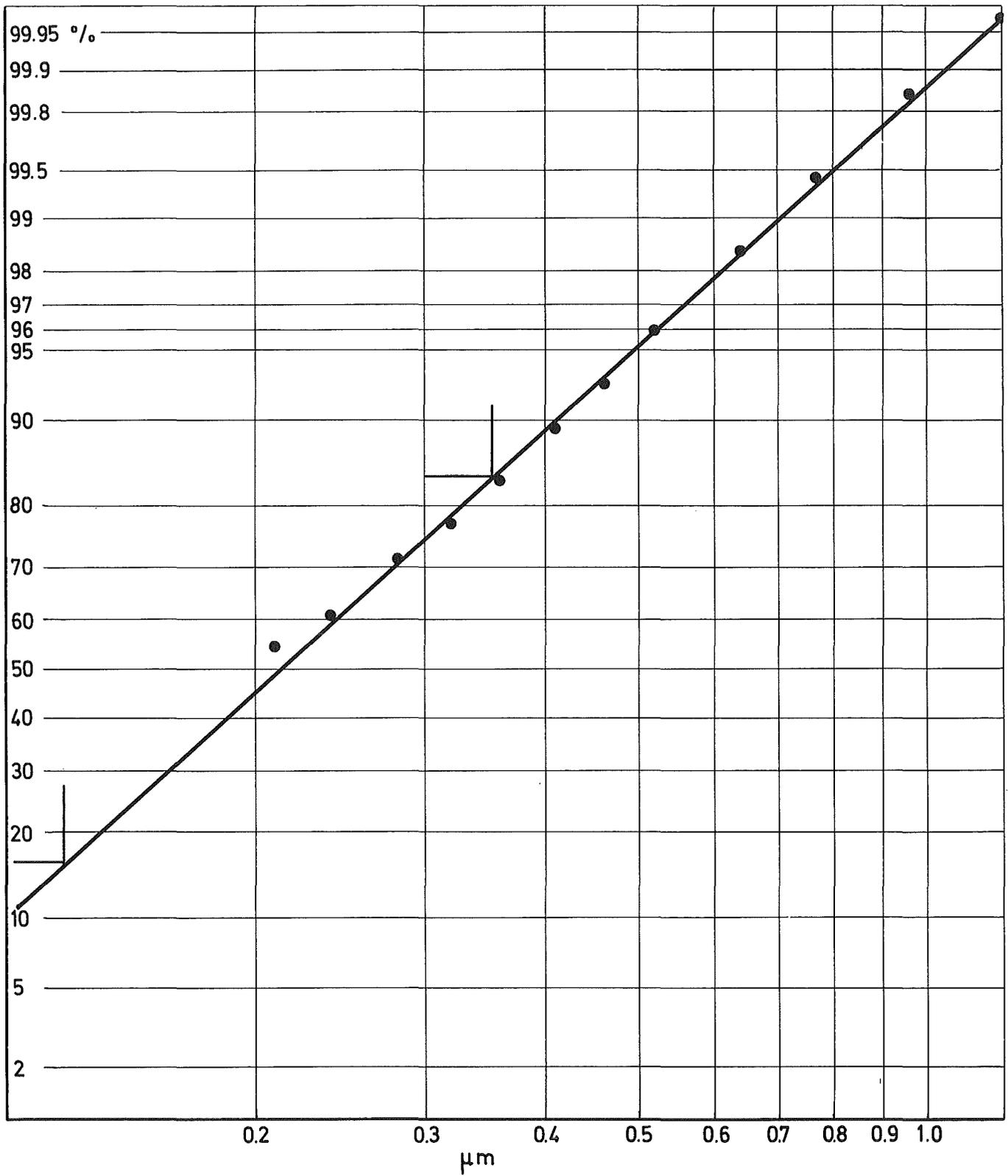


Abb. 23 Teilchengrößenspektrum des  $\text{UO}_2$  -Aerosols nach 2 Stunden  
 (gemessen mit dem Kondensationskennzähler und mit dem  
 Laser - Aerosol - Spektrometer )

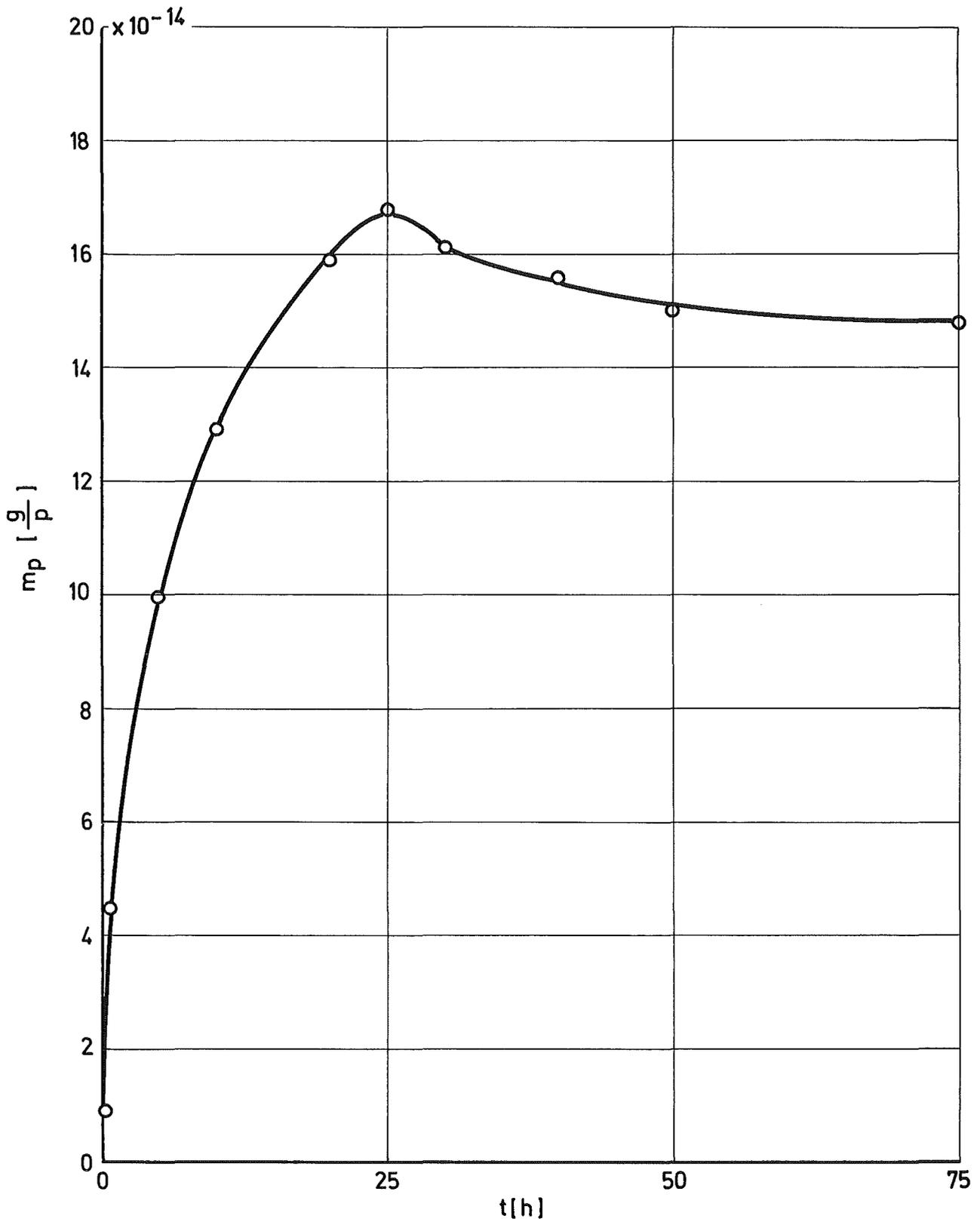


Abb.24 Masse eines Partikels als Funktion der Zeit

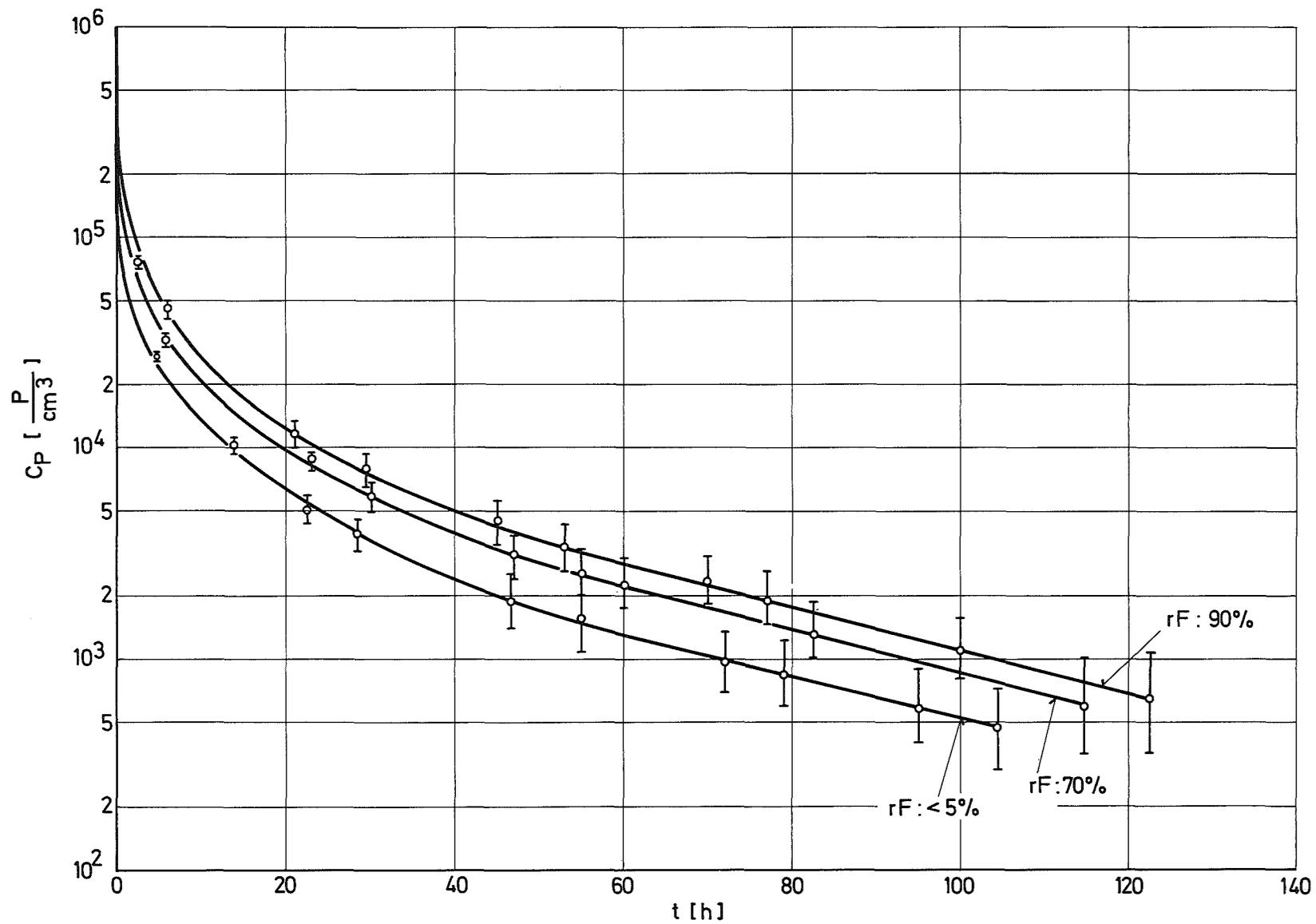


Abb.25 Partikelkonzentration des  $UO_2$  - Aerosols im TUNA-Kessel bei verschiedenen relativen Feuchten

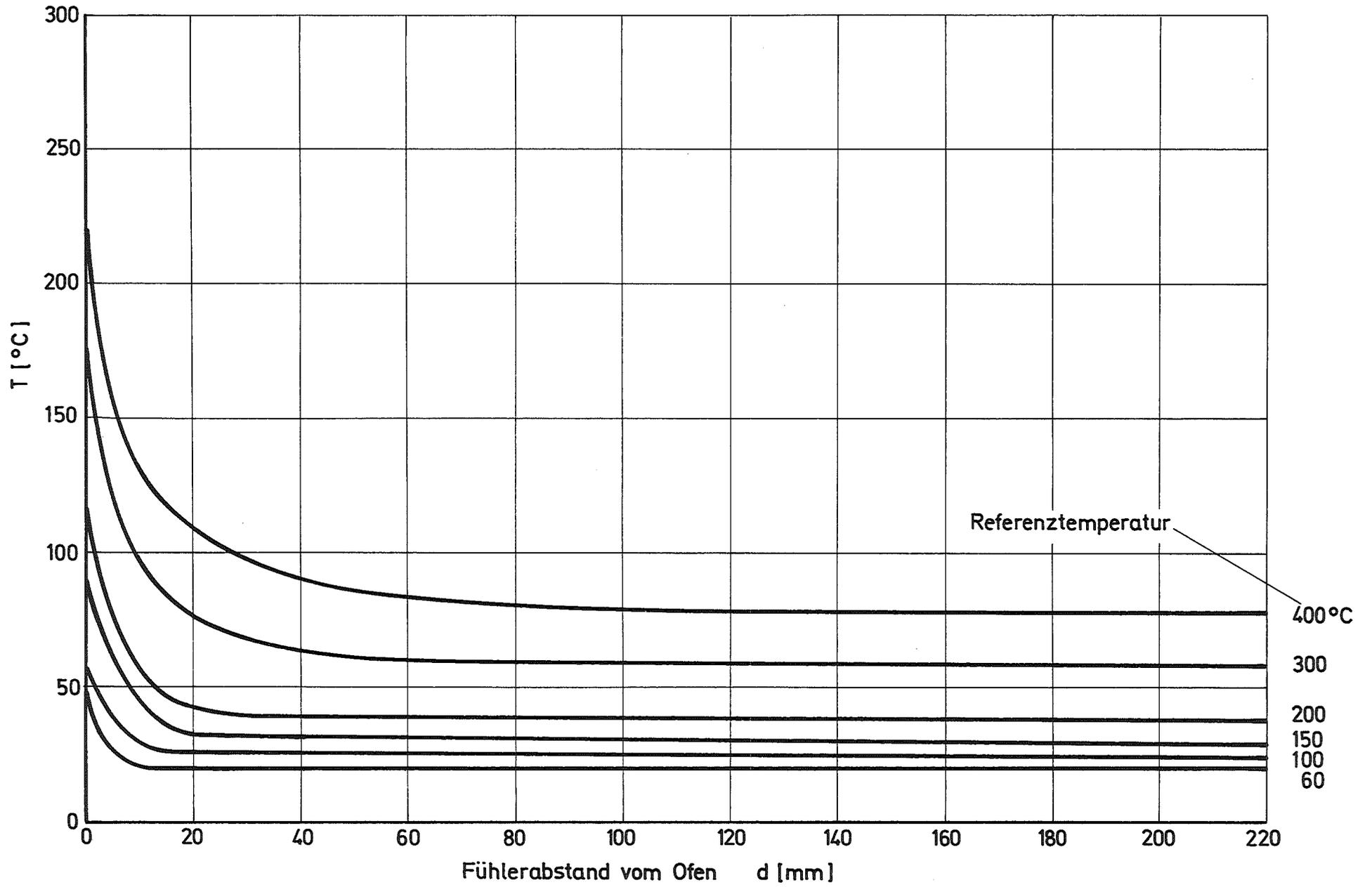
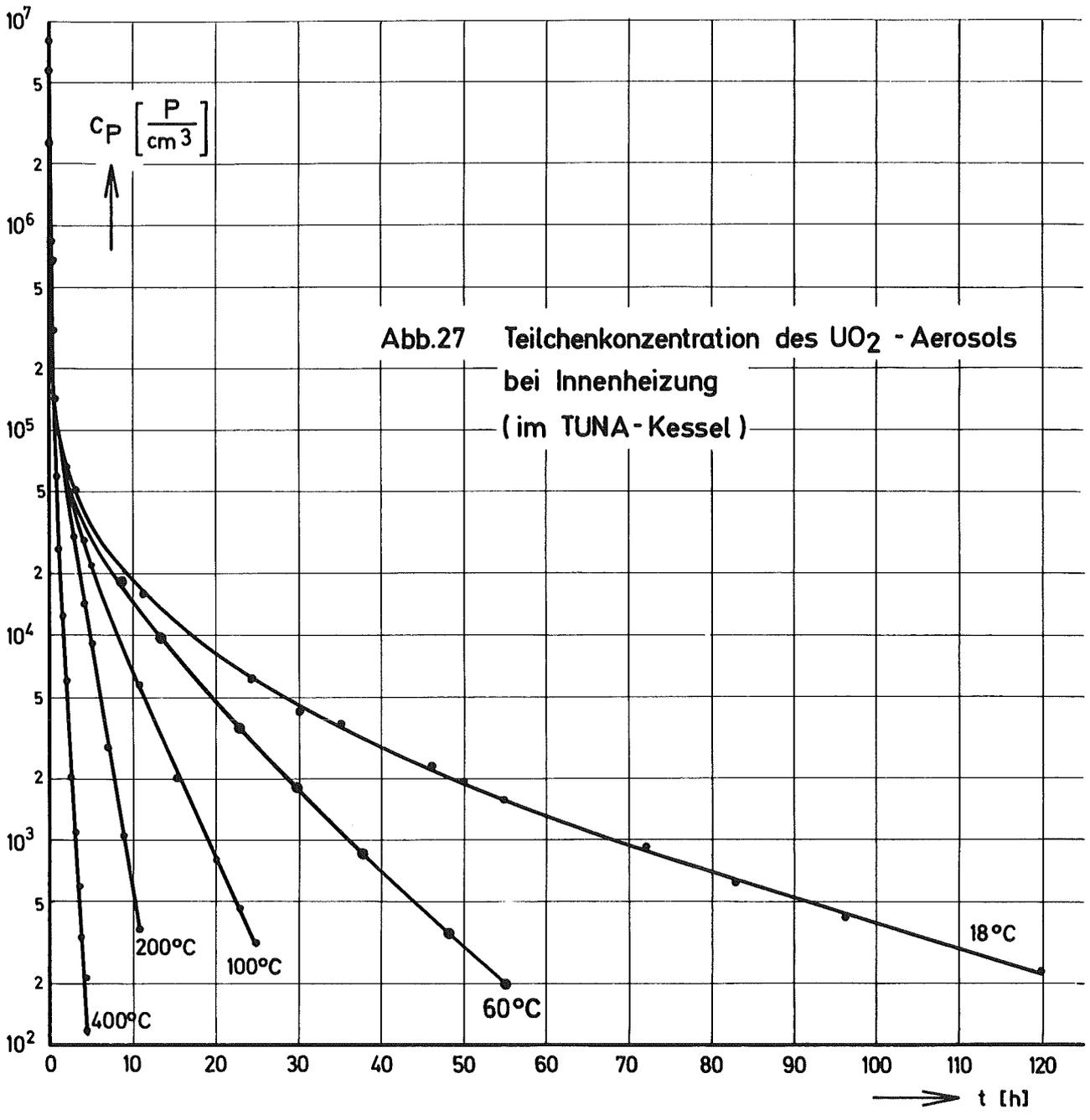


Abb.26 Radiale Temperaturverteilung im TUNA-Kessel bei Innenheizung in Kesselmitte



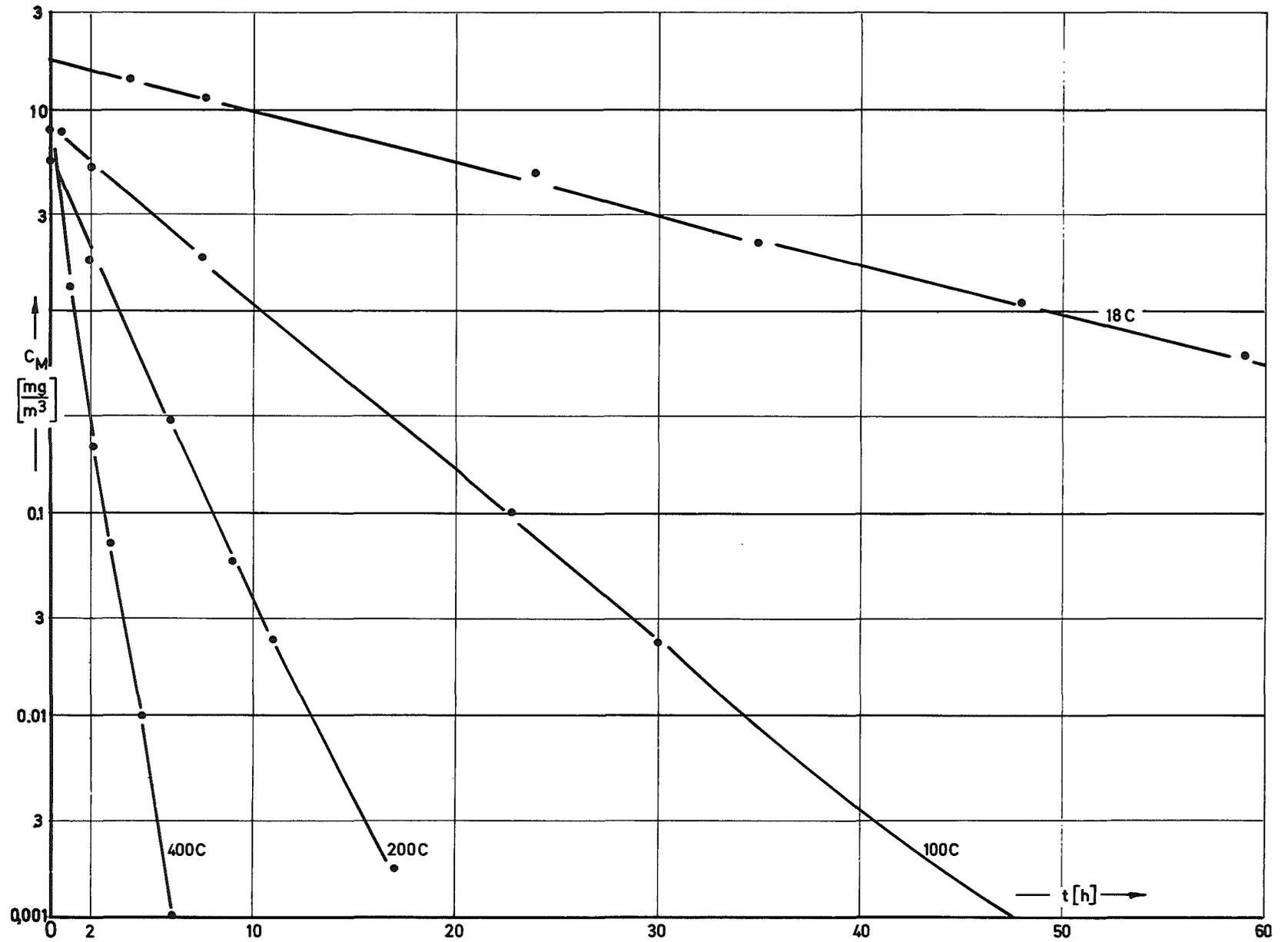


Abb. 28 Massenkonzentration des UO<sub>2</sub>-Aerosols bei Innenheizung (im TUNA Kessel)

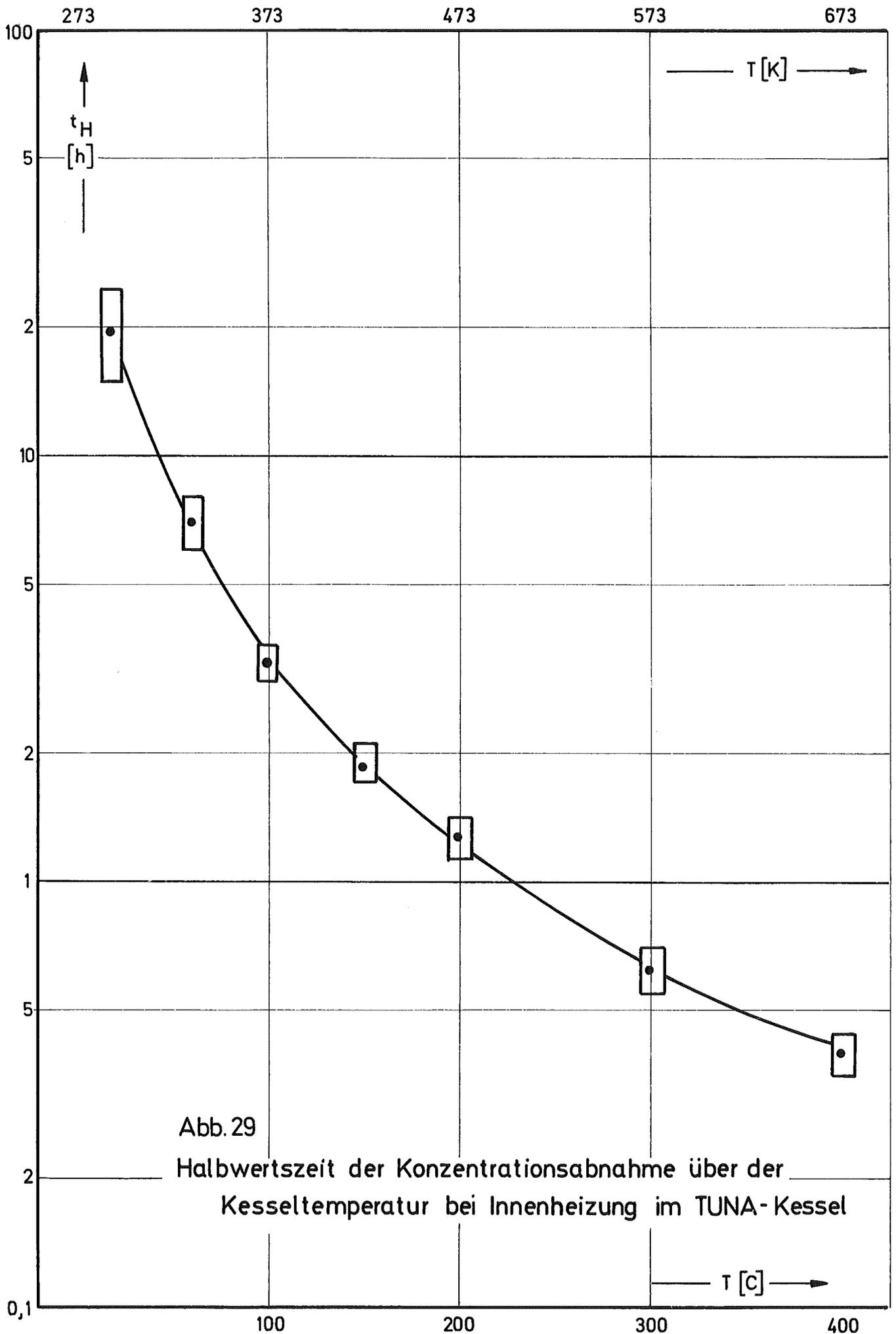


Abb.29

Halbwertszeit der Konzentrationsabnahme über der Kesseltemperatur bei Innenheizung im TUNA-Kessel

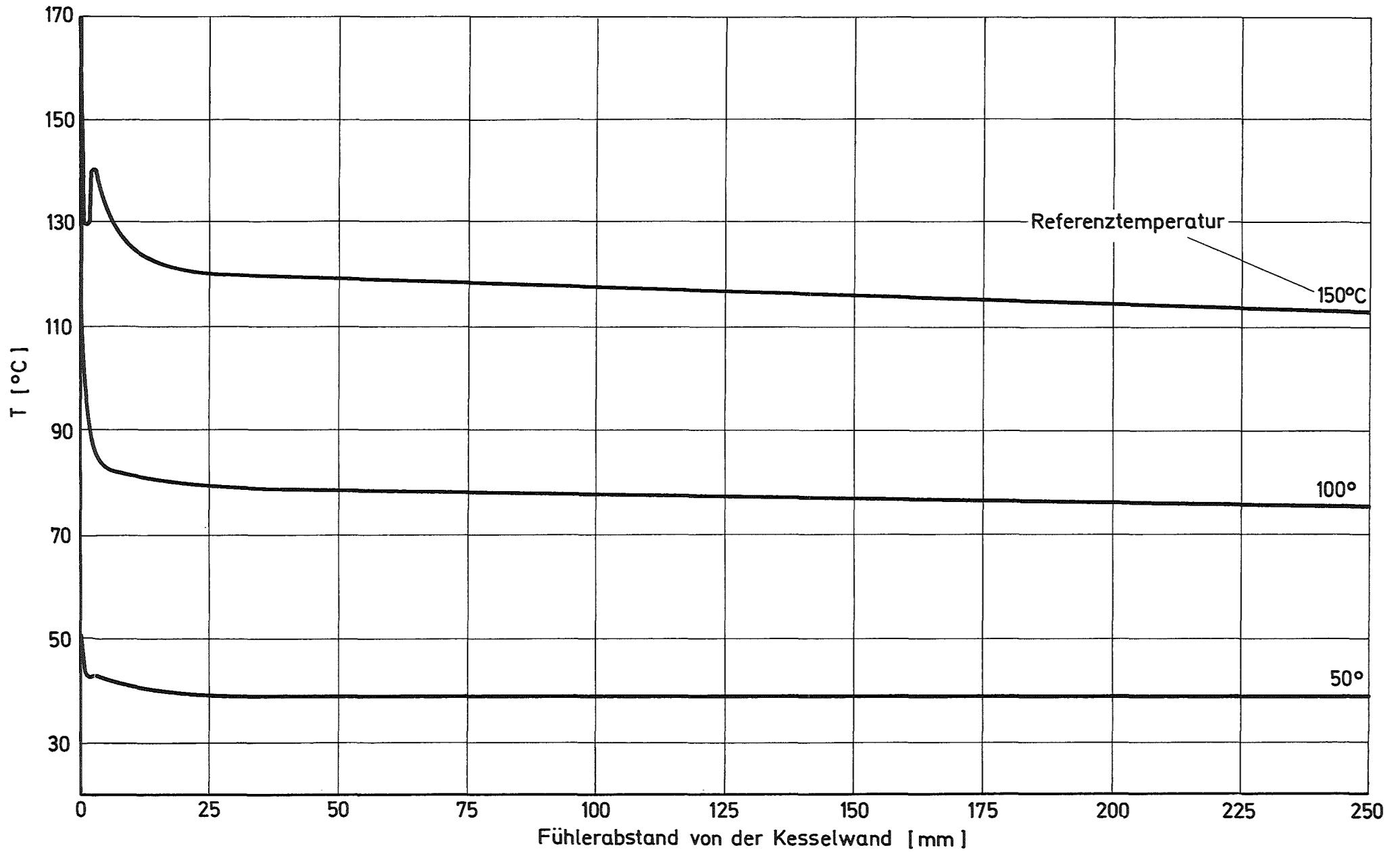


Abb.30 Radiale Temperaturverteilung im TUNA-Kessel bei Außenheizung in Kesselmitte

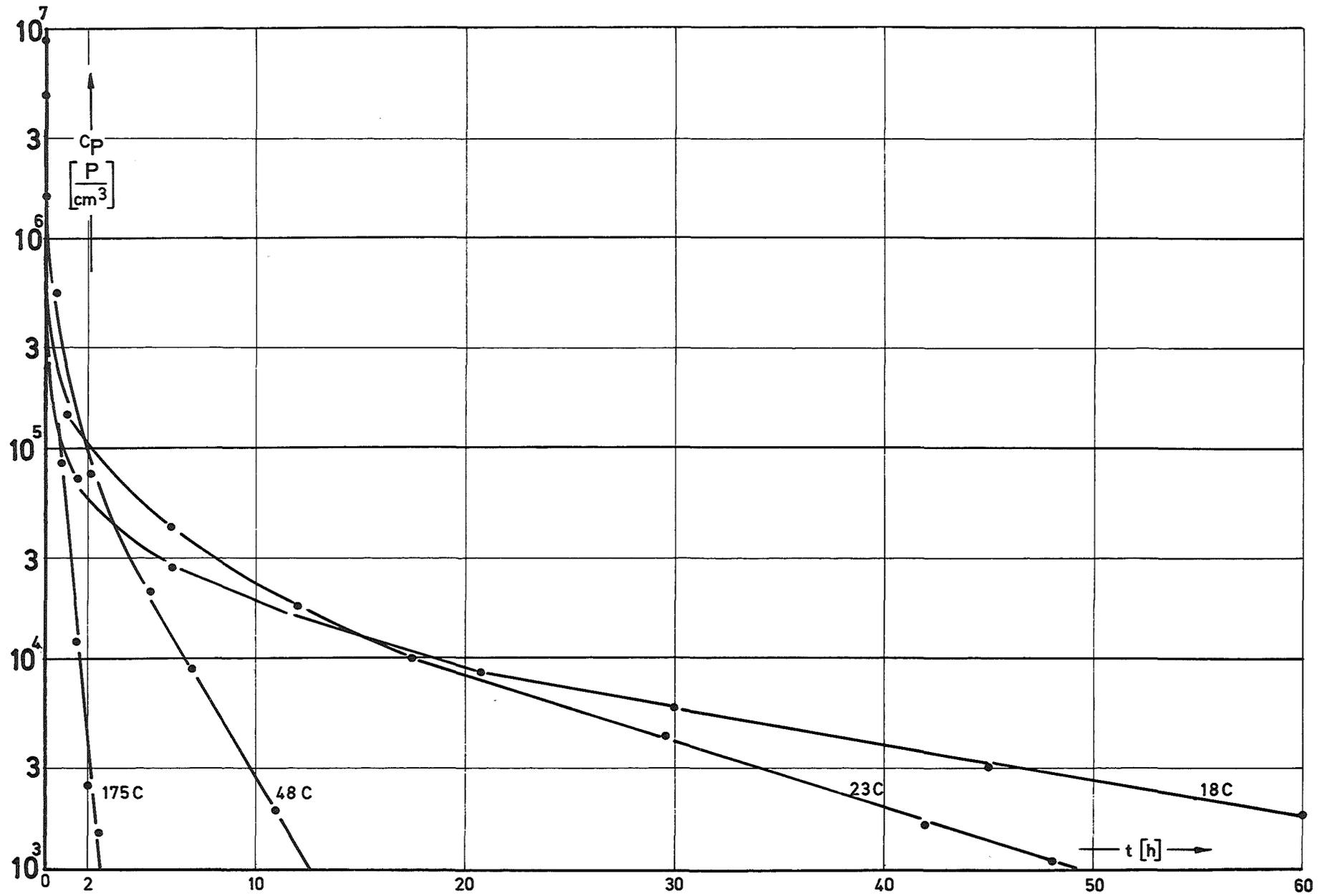


Abb.31 Teilchenkonzentration des  $UO_2$  - Aerosols bei Außenheizung (im TUNA Kessel)

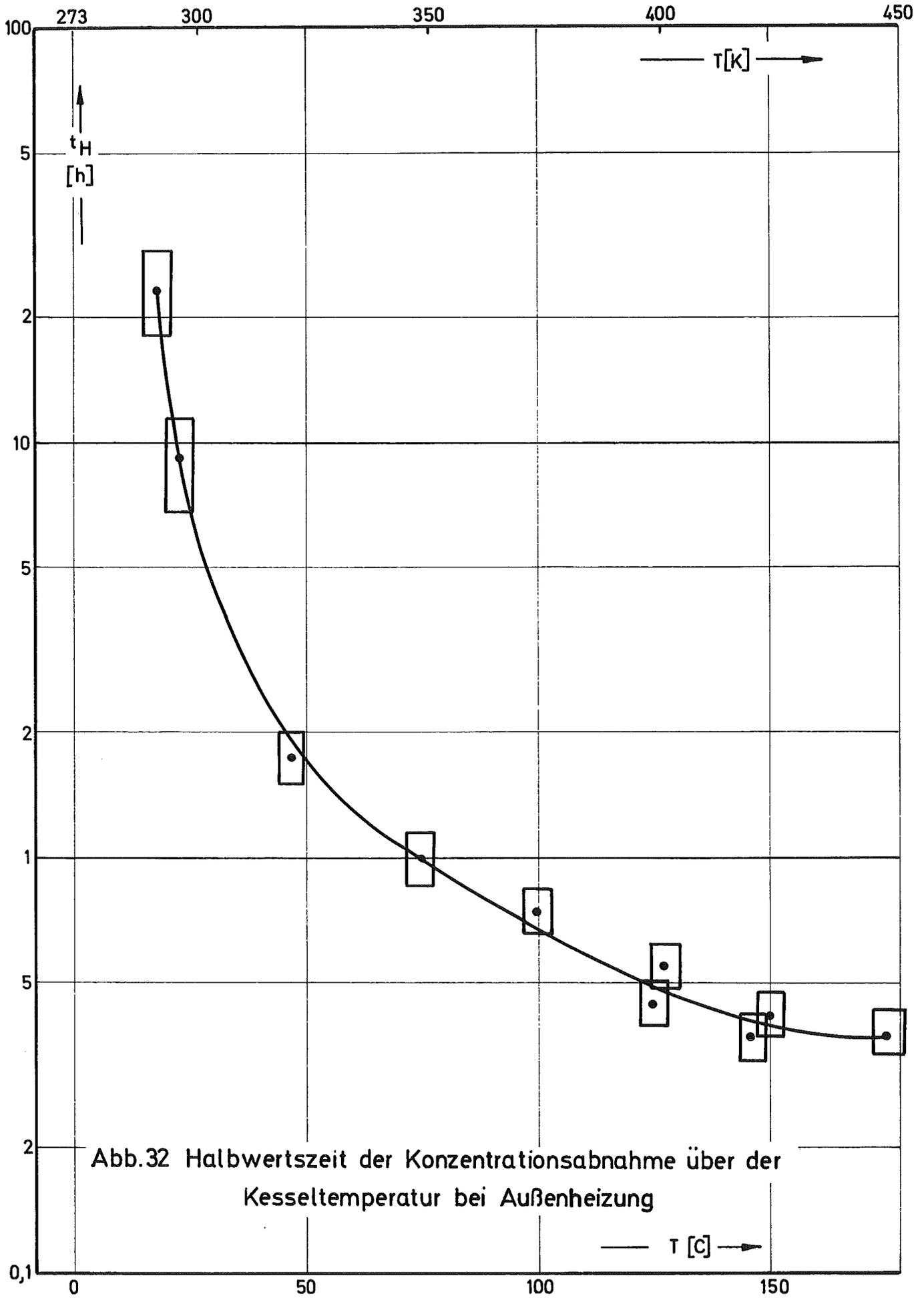


Abb.32 Halbwertszeit der Konzentrationsabnahme über der Kesseltemperatur bei Außenheizung

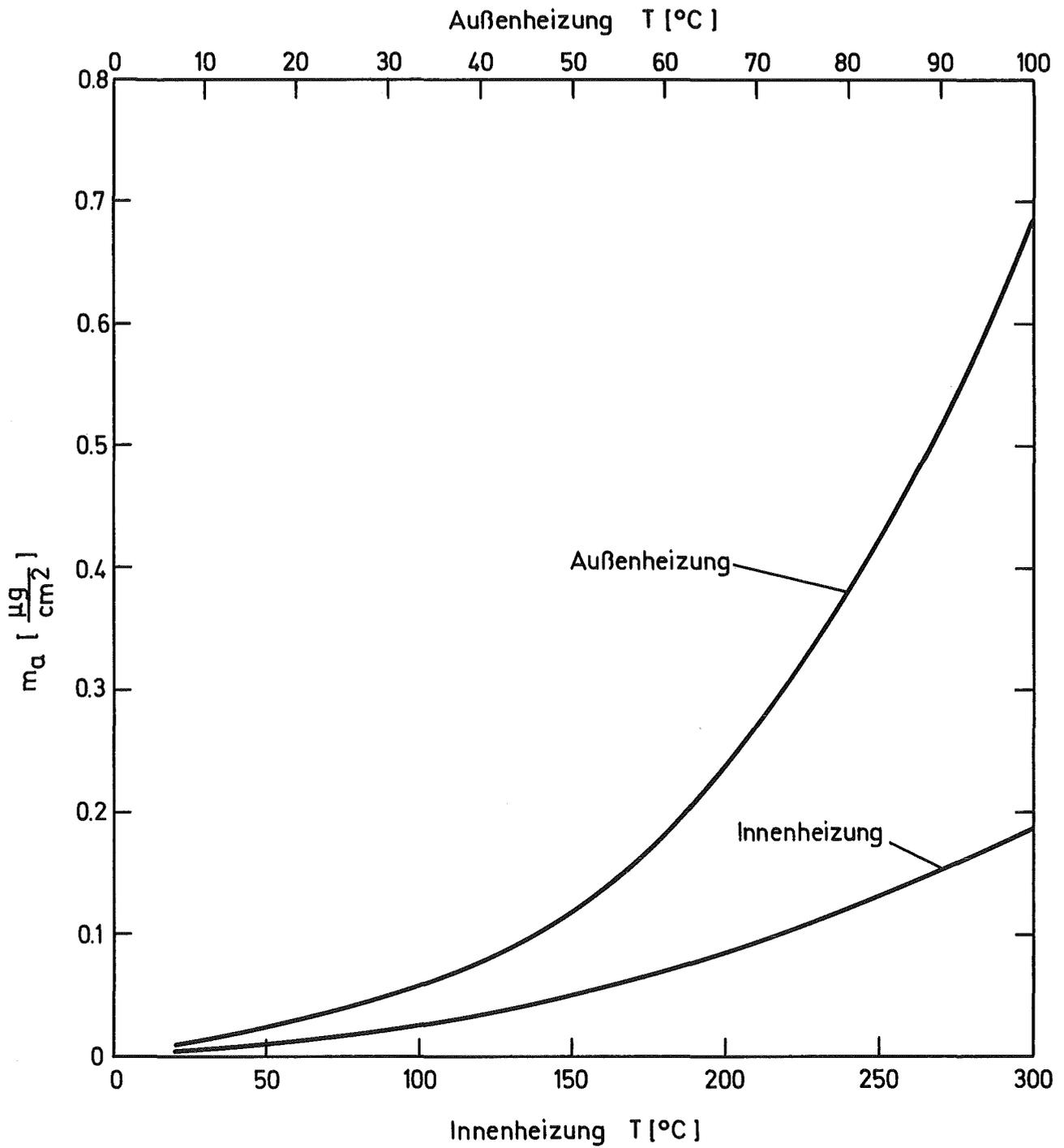


Abb.33  $UO_2$  - Masse pro  $cm^2$  Kesselwand bei Außenheizung und bei Innenheizung

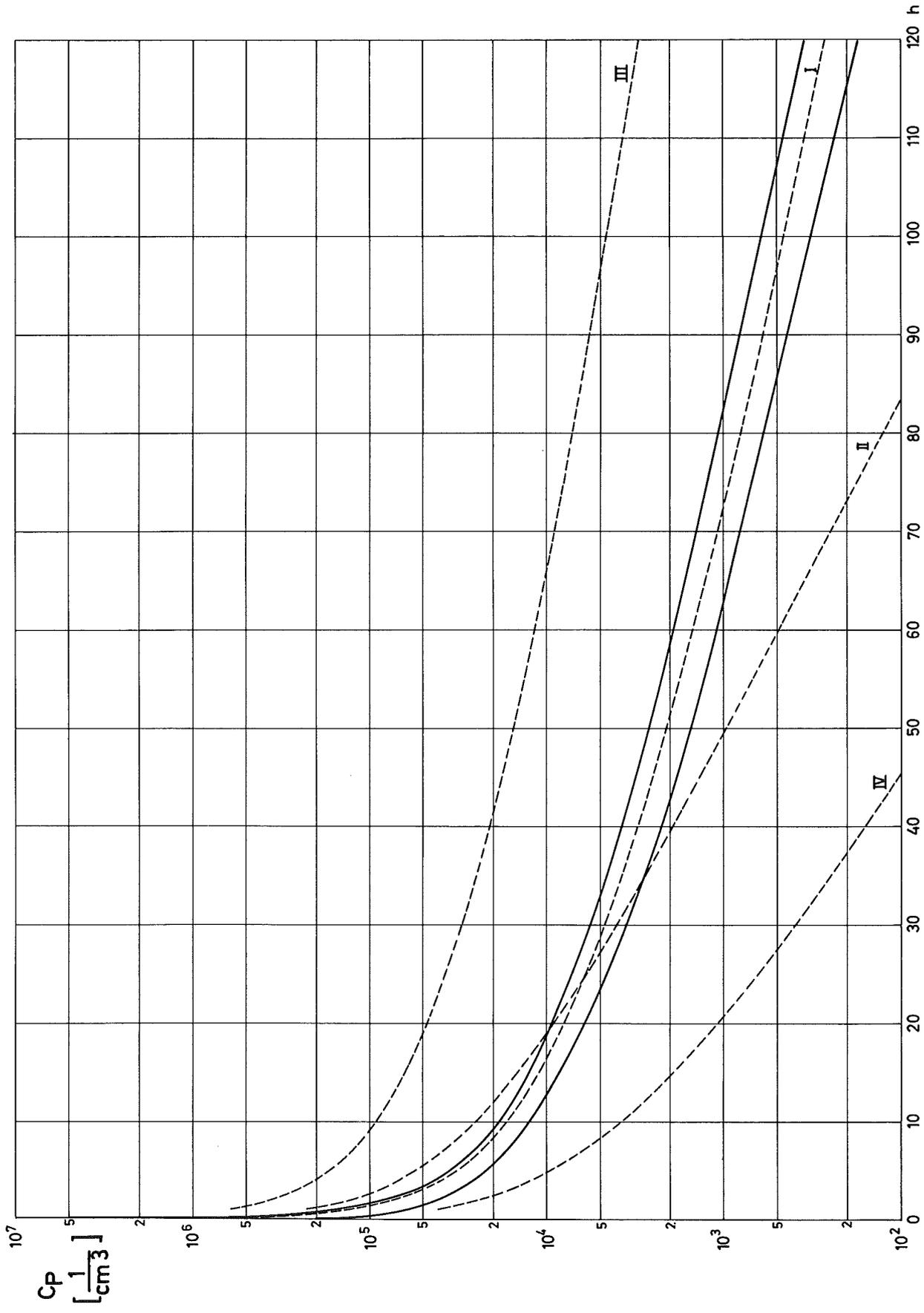


Abb. 34 Vergleich Experiment: Theorie.  $\text{UO}_2$ -Teilchenkonzentration bei Raumtemperatur; Modellvariationen

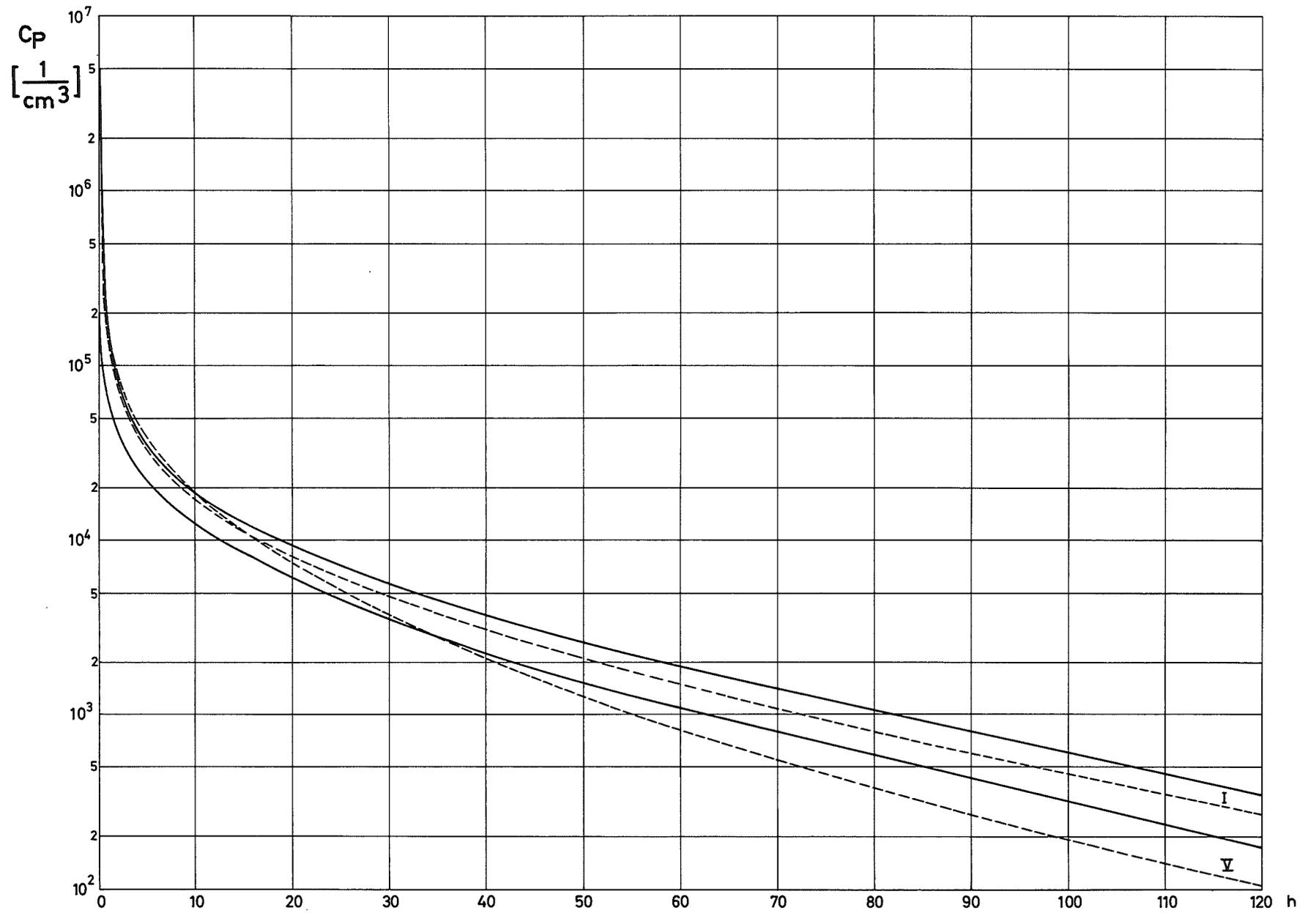


Abb. 35 Vergleich Experiment: Theorie.  $UO_2$ -Teilchenkonzentration bei Raumtemperatur; Meßparametervariation.

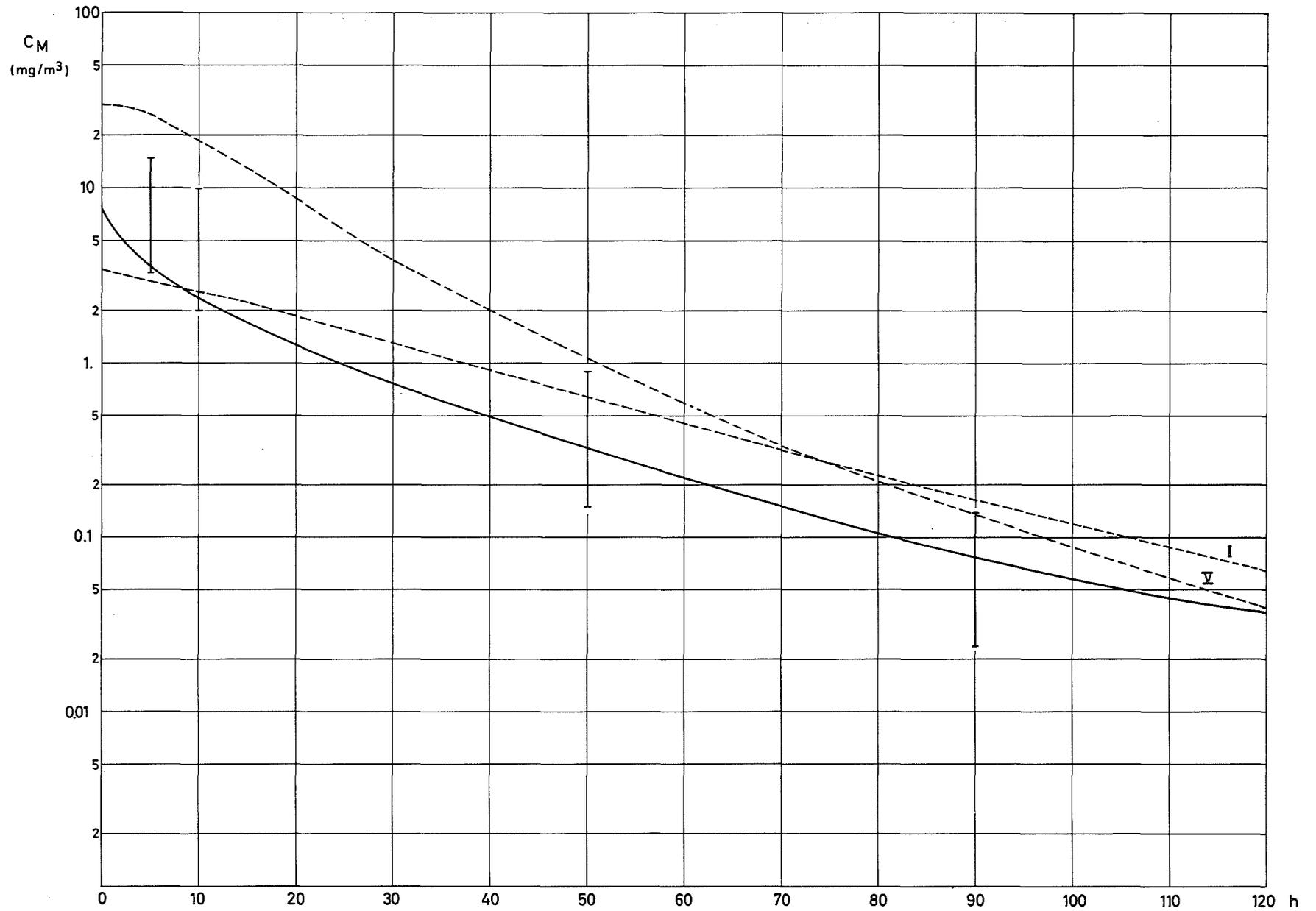


Abb. 36 Vergleich Experiment: Theorie.  $\text{UO}_2$  - Massenkonzentration bei Raumtemperatur

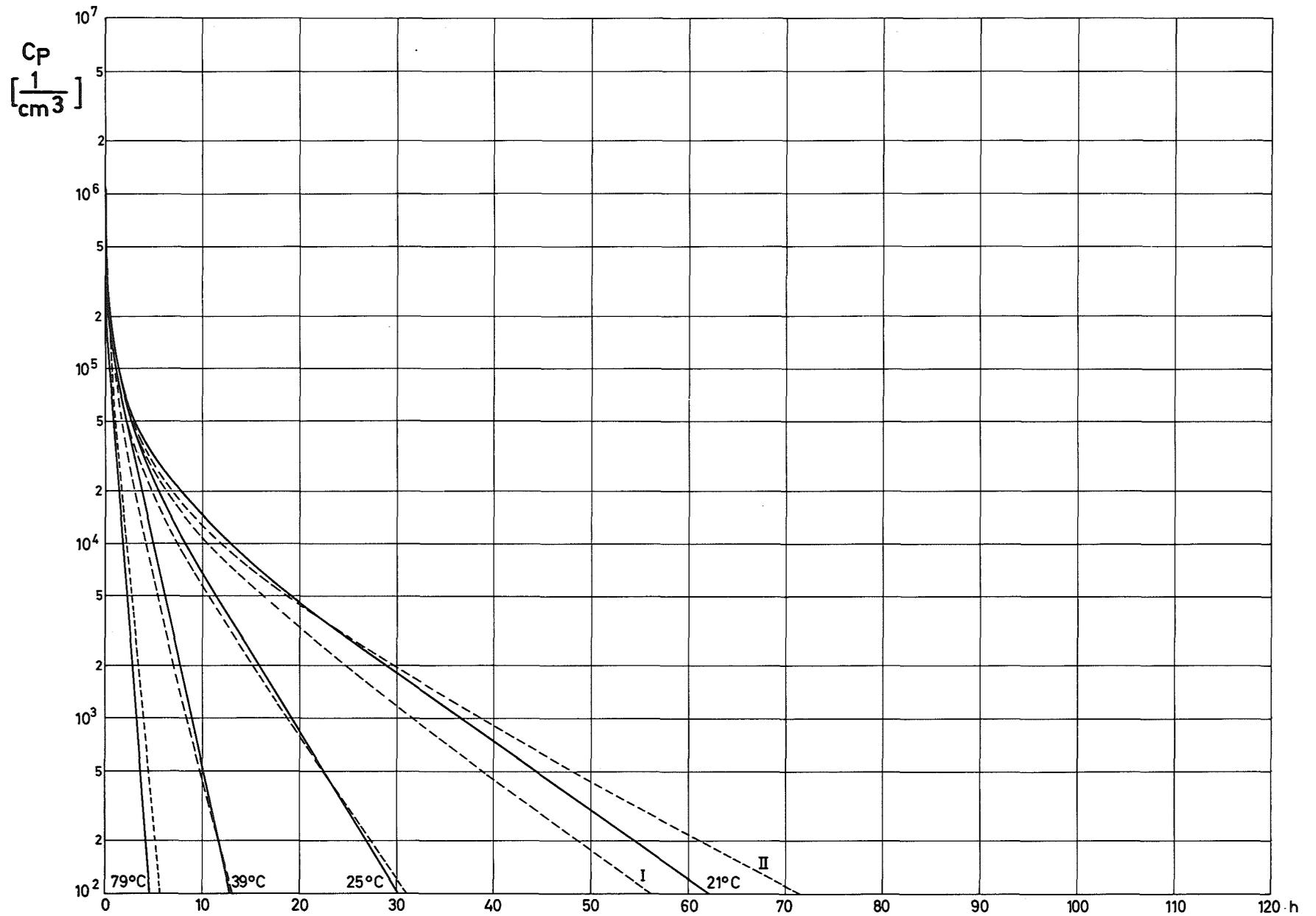


Abb. 37 Vergleich Experiment: Theorie.  $UO_2$ -Teilchenkonzentration bei verschiedenen Gastemperaturen (Innenheizung)

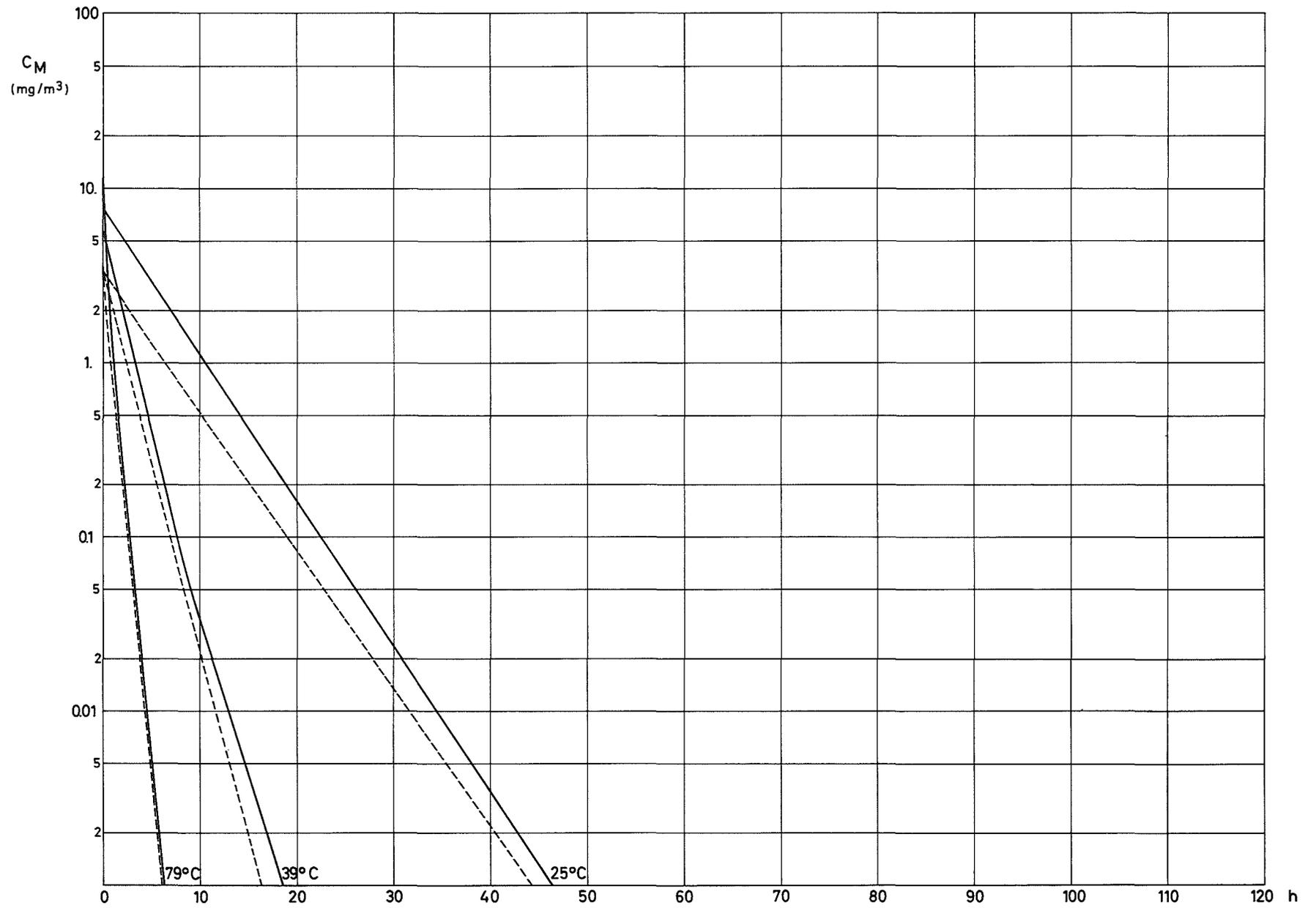


Abb. 38 Vergleich Experiment: Theorie.  $\text{UO}_2$  - Massenkonzentration bei verschiedenen Gastemperaturen (Innenheizung)

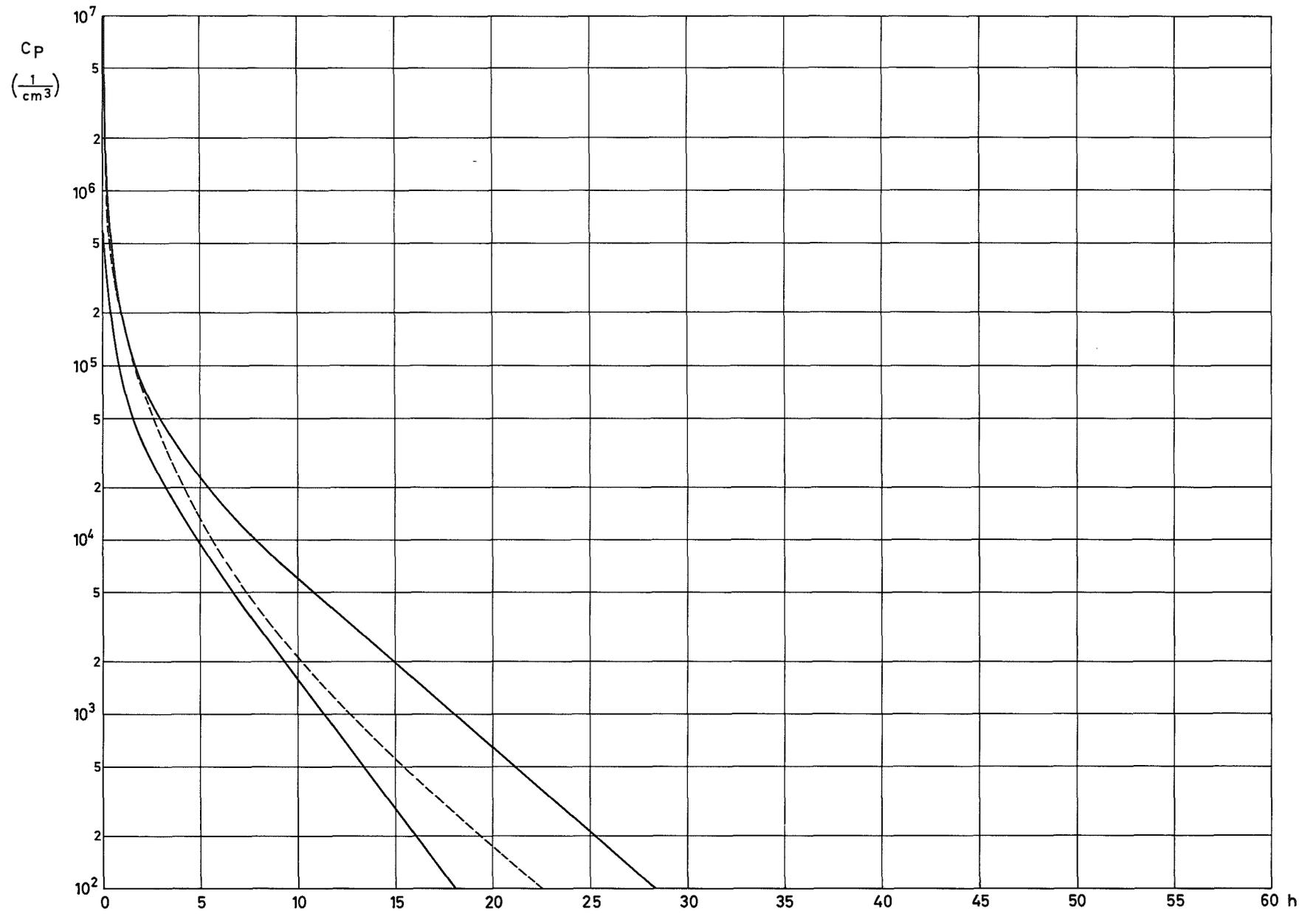


Abb. 39 Vergleich Experiment: Theorie.  $\text{UO}_2$ -Teilchenkonzentration bei Raumtemperatur (Explosionskammer)

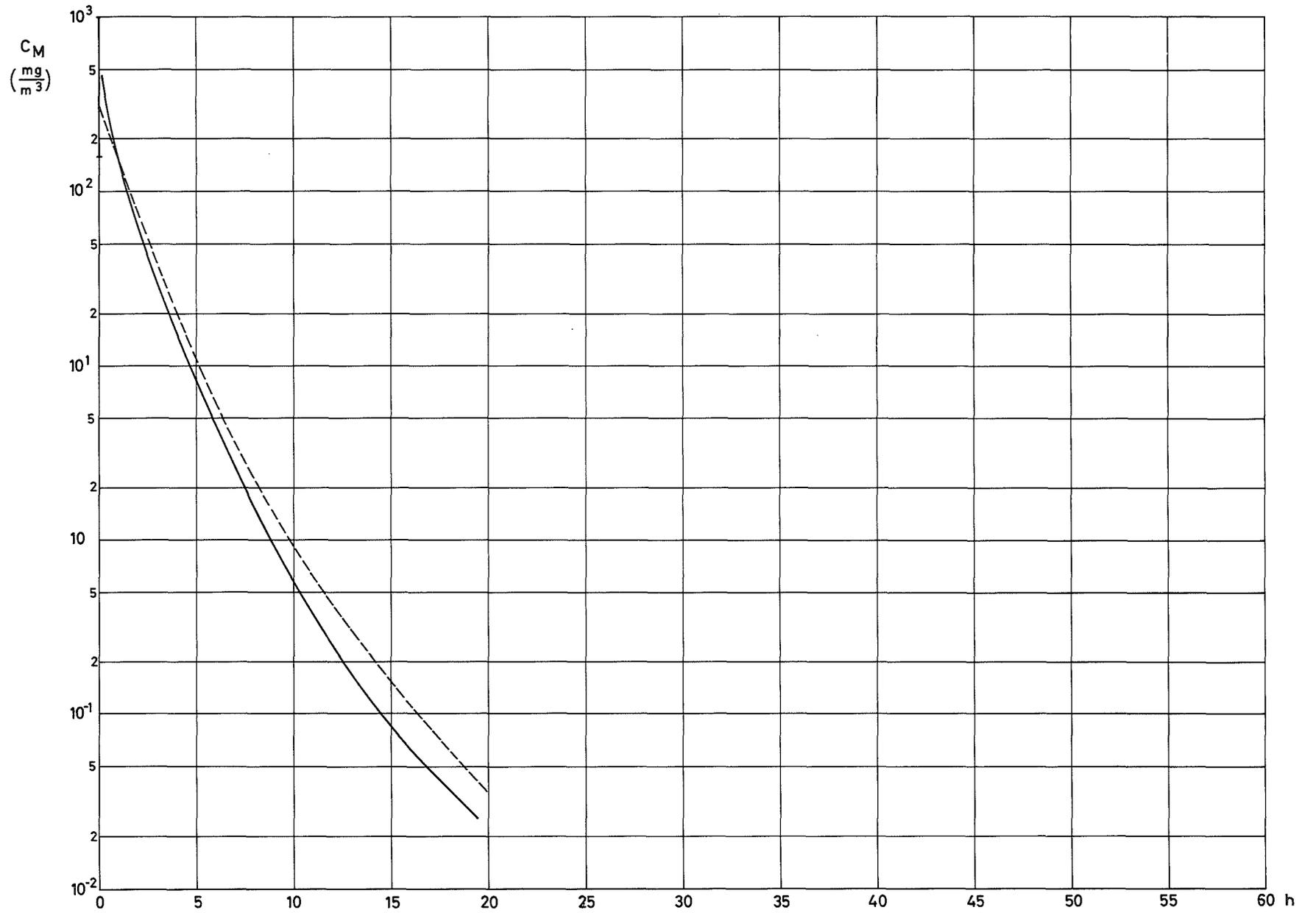
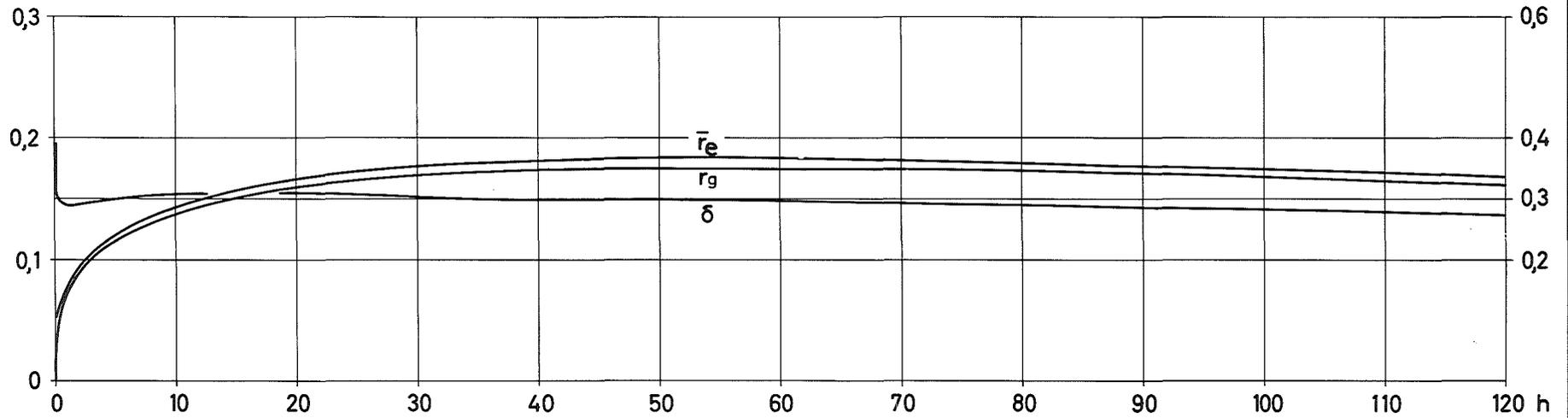


Abb. 40 Vergleich Experiment: Theorie.  $\text{UO}_2$  - Massenkonzentration bei Raumtemperatur (Explosionskammer)

$\bar{r}_e, r_g$   
[ $\mu\text{m}$ ]

Abb. 41 Die gerechneten Größenverteilungs-Parameter  
 $\bar{r}_e, r_g, \delta$  für TUNA bei Raumtemperatur



$\bar{K}$   
[ $\text{cm}^3/\text{sec}$ ]

Abb. 42 Die Koagulationskonstante  $\bar{K}$  für TUNA bei Raumtemperatur

