



KfK 3153
August 1981

Messungen der Wasserdampfkondensation an Aerosolen unter LWR-unfalltypischen Bedingungen

W. Schöck, H. Bunz, M. Koyro
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik
Projekt Nukleare Sicherheit

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

Projekt Nukleare Sicherheit

KfK 3153

Messungen der Wasserdampfkondensation an Aerosolen

unter LWR-unfalltypischen Bedingungen

W. Schöck

H. Bunz

M. Koyro

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Messungen der Wasserdampfkondensation an Aerosolen unter LWR-unfalltypischen Bedingungen

Autoren: W. Schöck, H. Bunz, M. Koyro

Zusammenfassung

Der Rechencode NAUA wurde entwickelt, um den Abbau radioaktiver Aerosole im Containment eines Leichtwasserreaktors bei Kernschmelzenunfällen zu berechnen. Im Zuge der Codeentwicklung ergab sich ein Bedarf an experimentellen Daten, insbesondere im Zusammenhang mit Wasserdampfkondensationsprozessen in Gegenwart von Aerosolen.

Dieser Bericht faßt die Ergebnisse der Dampfkondensationsversuche an Aerosolen zusammen. Es wurde eine Versuchsanlage gebaut, die die direkte Messung der Kondensationsprozesse am Aerosol unter unfalltypischen thermodynamischen Bedingungen gestattet. Die Versuche wurden mit verschiedenen Aerosolen, z. B. auch mit UO_2 -Aerosol, durchgeführt.

Als gemeinsames Ergebnis aller Versuche wurde gefunden, daß der Kondensationsprozeß in übersättigter Atmosphäre zu einer Formveränderung der Aerosolpartikeln führt. Es entstehen nahezu kugelförmige, dichtgepackte Aggregate. Dies führt zu einer Vereinfachung im NAUA-Modell, da die üblichen Formfaktorprobleme entfallen. Damit wird auch die Zuverlässigkeit der Rechenergebnisse gesteigert.

Measurement of Steam Condensation on Aerosols under LWR Accident Conditions

Authors: W. Schöck, H. Bunz, M. Koyro

Abstract

The NAUA computer code has been developed to calculate the removal of particulate radioactivity from the containment atmosphere in a light water reactor during core melt accidents.

During the development a need for experimental data occurred especially for parameters of processes related to steam condensation in the presence of aerosols.

This report summarizes the results of experiments on steam condensation onto aerosol particles. A facility was constructed which allows the direct measurement of the condensation processes. The thermodynamic boundary conditions were typical for a core melt accident. Different aerosol species were used, especially uranium dioxide which constitutes a large fraction of the core melt aerosol.

As a general result the condensation process in supersaturated atmospheres causes a drastic change in the shape of the aerosol particles. Originally fluffy chain-like aggregates are compressed to nearly spherical dense particles. A significant simplification of the NAUA-model can be used because the commonly encountered shape factor problems become non-existent. This also leads to a greater reliability of computed results.

Inhalt	Seite
Zusammenfassung/Abstract	1
Einleitung	4
1. <u>Das Wasserdampfkondensationsmodell</u>	5
1.1 Festlegung der Randbedingungen	5
1.2 Die Modellgleichung für die Wasserdampf- kondensation	7
1.3 Das Formfaktorkonzept	9
1.4 Das experimentelle Konzept	10
2. <u>Beschreibung der Versuchseinrichtungen</u>	12
2.1 Der Versuchsstand	12
2.2 Konventionelle Meßtechnik	16
2.2.1 Temperatur	18
2.2.2 Druck	18
2.2.3 Wasserdampfgehalt	19
2.2.4 Weitere Meßwerterfassung	19
2.3 Aerosolgeneratoren	20
2.3.1 Natriumnitrataerosol	21
2.3.2 Platinoxidaerosol	21
2.3.3 Urandioxidaerosol	22

2.4	Aerosolmeßtechnik	28
2.4.1	Feststoffpartikeln	28
2.4.2	Tröpfchenmessung	29
2.5	Datenerfassung	29
2.5.1	Übertragung der Versuchsdaten	30
2.5.2	Umwandlung der Meßwerte	30
3.	<u>Versuchsdurchführung</u>	34
3.1	Versuchsserien	34
3.2	Beispiel für einen Kondensationsversuch	37
4.	<u>Auswertung der Aerosolmessungen</u>	38
4.1	Auswertung der Filterproben	38
4.2	Auswertung der Tröpfchenmeßdaten	41
4.3	Vergleich von Messung und Modellrechnung	48
5.	<u>Ergebnisse</u>	49
5.1	Ergebnisse der Versuche mit Platinoxidaerosol	49
5.2	Ergebnisse der Versuche mit UO_2 -Aerosol	54

	Seite	
5.3	Vergleich von UO_2 - mitPlatinoxidaerosol	55
5.4	Dynamik des Kondensationsvorgangs	57
5.5	Kondensation an löslichen Partikeln	59
6.	<u>Konsequenzen für das NAUA Modell</u>	60
	Literaturliste	63
	Anhang: Definitionen benutzter Aerosolparameter	65

Z u s a m m e n f a s s u n g

Bei hypothetischen Kernschmelzenunfällen in Leichtwasserreaktoren werden große Mengen von Spaltprodukten in Partikelform als Aerosol in das Containment freigesetzt. Für Risikoanalysen ist es wichtig, das zeitabhängige Verhalten und den Abbau des Aerosols im Containment sowie die Freisetzung über Leckagen und Containmentversagen zuverlässig berechnen zu können. Zu diesem Zweck wird im Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik im Rahmen der Arbeiten zum Projekt Nukleare Sicherheit der Aerosolverhaltenscode NAUA entwickelt.

Im Zuge der Codeentwicklung wurden Experimente zur Messung von physikalischen Aerosolparametern notwendig. Eine zentrale Rolle spielen dabei die Vorgänge, die im Zusammenhang mit der Wasserdampfkondensation stehen.

Dieser Bericht faßt die Ergebnisse der Versuche zur Wasserdampfkondensation am Aerosol zusammen. Es wurde eine Versuchsanlage gebaut, die die direkte Messung der Kondensationsvorgänge am Aerosol ermöglicht. Dabei werden die thermodynamischen Randbedingungen eingehalten, die für einen Kernschmelzenunfall typisch sind. Die Versuche wurden mit verschiedenen repräsentativen Aerosolspezies durchgeführt, insbesondere auch mit Uran-dioxydaerosol, das einen großen Anteil der beim Kernschmelzen verdampften Materialien ausmacht.

Versuchsinstrumentierung und Aerosolmeßtechnik mußten teilweise neuentwickelt werden, um den extremen Anforderungen im Betrieb zu genügen, sie sind in diesem Bericht beschrieben.

Die Ergebnisse der Messungen, über die hier berichtet wird, lassen sich überraschenderweise sehr einfach interpretieren. Danach verursachen die in der gesättigten Wasserdampf-atmosphäre auftretenden Kondensationsvorgänge eine drastische Veränderung der Form der Aerosolpartikeln. Die in allen Versuchen gefundenen kompakten nahezu kugeligen Aggregatpartikeln sind grundlegend verschieden von der flockigen Form der primär bei der Erzeugung entstandenen Partikeln. Dieser Formveränderungsprozeß kann nur in gesättigter und übersättigter Atmosphäre auftreten und ist damit typisch für Aerosole in LWR-Containments.

Für alle die Fälle, bei denen in kondensierender Atmosphäre eine Kompaktierung der Aerosolpartikeln zu Kugeln stattfindet, kann dann eine Vereinfachung des NAUA-Modells vorgenommen werden. Die üblicherweise vorhandenen Formfaktorprobleme für unregelmäßige Partikeln entfallen, und die Modellgleichungen vereinfachen sich. Der Vorteil besteht allerdings weniger in der Vereinfachung als darin, daß die Modellgleichungen - die ja ursprünglich für kugelförmige Partikeln aufgestellt wurden - jetzt mit größerer Glaubwürdigkeit benutzt werden können.

Abstract

Large quantities of fission products are generated in the containment during a hypothetical core melt down accident in a light water reactor. For risk analyses, it is important to calculate the time dependent behavior and removal of aerosols in the containment as well as their release via leakages and containment failure. To contribute to this problem the NAUA code is being developed at the Laboratory for Aerosol Physics and Filter Technology of KfK. The work is conducted within the Project Nuclear Safety.

During the development of the NAUA-code a need for experimental data occurred, especially for parameters of processes related to steam condensation in the presence of aerosols.

This report summarizes the results of experiments on steam condensation onto aerosol particles. A facility was constructed which allows the direct measurement of the condensation processes. The thermodynamic boundary conditions were typical for a core melt accident. Different aerosol species were used, especially uranium dioxide which constitutes a large fraction of the core melt aerosol.

The instrumentation and the measurement techniques were to be newly developed in order to match the extreme conditions during the experiments, they are described shortly in this report.

The results of the experiments can be explained in a surprisingly easy way. The condensation process in the supersaturated atmosphere

causes a drastic change in the shape of the aerosol particles. Originally fluffy chain-like aggregates are compressed to nearly spherical dense particles. This process is observed only in (super)saturated atmospheres which are, however, typical for LWR-post-accident conditions.

Therefore, a significant simplification of the NAUA-model can be used for all those cases, where a spherification of the particles occurs. The commonly encountered shape factor problems become non-existent and the model equations are simplified.

The main advantage, however, is not the simplification of the equations, but the fact that the modeling - which was originally done for spherical particles - becomes much more reliable.

E i n l e i t u n g

Die Wasserdampfkondensation an Aerosolen, von der dieser Bericht handelt, stellt einen speziellen Ausschnitt aus der Gesamtproblematik des Spaltproduktverhaltens bei Reaktorstörfällen dar. Die Messungen sind Teil der experimentellen Arbeiten im Rahmen der Entwicklung des NAUA-Codes, zur Beschreibung des Aerosolverhaltens bei Kernschmelzenunfällen in LWR.

Beim Kernschmelzen werden große Mengen von Aerosolen durch Verdampfung von Teilen des Reaktorkerns und der angrenzenden Strukturen erzeugt. Die Aerosolpartikeln enthalten die freigesetzten nicht-gasförmigen Spaltprodukte; das sind alle außer den Edelgasen und den gasförmigen Jodverbindungen. Dabei ist zu beachten, daß die Spaltprodukte nur etwa 6% der Aerosolmasse ausmachen, alles andere ist inaktives Material, Spaltprodukte und inaktives Material sind in den Aerosolpartikeln homogen verteilt. Daraus folgt, daß der Transport und die Ablagerung der Spaltprodukte vom Verhalten der Aerosole bestimmt wird.

Aerosole in abgeschlossenen Behältern, z.B. in einem Reaktorcontainment, unterliegen einer Reihe von natürlichen Wechselwirkungs- und Abbauprozessen, die dazu führen, daß die luftgetragene Partikelkonzentration beständig abnimmt. Die Rate des Aerosolabbaus ist allerdings eine komplizierte Funktion vieler Parameter, und erfordert zu ihrer Berechnung einigen Aufwand. Im Zuge der Verbesserung von Risikoanalysen, die über das Maß bisheriger konservativer Abschätzungen [1, 2] hinausgehen, ist dieser Aufwand jedoch durchaus sinnvoll.

Aerosolverhaltensmodelle für abgeschlossene Systeme, speziell für Anwendungen im Bereich nuklearer Sicherheitsfragen, existieren bereits [3]. Die meisten von ihnen wurden für Aerosole bei Störfällen in Brutreaktoren entwickelt. Bei Kernschmelzenunfällen in LWR kommt hinzu, daß das Aerosolsystem gesättigten Wasserdampf enthält, der kondensieren kann. Dadurch wird das Aerosolsystem dreiphasig, d.h. es enthält außer dem Trägergas (Luft und Wasserdampf) und den festen Aerosolpartikeln noch eine Fraktion von Wassertröpfchen, die überwiegend an den Aerosolpartikeln kondensiert sind.

Zur Modellierung des Aerosolverhaltens in kondensierender Atmosphäre muß daher zusätzlich zu den "trockenen" Aerosolprozessen noch die Kondensation und Verdampfung von Wasserdampf an den und von den Aerosolpartikeln berücksichtigt werden. Für LWR-Anwendungen wurde der Rechen-Code NAUA entwickelt [4], der zusätzlich zu den in "trockenen" Programmen wie z.B. PARDISEKO [5] noch die Wasserdampfkondensation berechnet. Die Problematik der Wasserdampfkondensation und experimentelle Arbeiten zur Bestimmung von Parametern für die modelltheoretische Beschreibung des Kondensationsprozesses im NAUA-Code sind Inhalt dieses Berichts.

1. Das Wasserdampfkondensationsmodell

Rechnungen mit dem NAUA-Code zeigten schon sehr früh, daß Kondensation von Wasserdampf an den Aerosolpartikeln zu beachtlicher Beschleunigung des Aerosolabbaus führt [6]. Der zuverlässigen Quantifizierung dieses Effekts stand allerdings im Wege, daß die Kenntnis über den Mechanismus der Wasserdampfkondensation an Aerosolen unter LWR-unfalltypischen Bedingungen praktisch gleich Null war. Dies war der Grund für die Planung und Durchführung von Experimenten zur Bestimmung der Parameter der Kondensationsvorgänge, die vom NAUA-Modell benötigt werden. Diese Experimente waren einerseits physikalischer Art, indem der Kondensationsprozess im Detail aufgeklärt werden sollte; andererseits mußte aber darauf geachtet werden, daß die Randbedingungen so weit wie möglich realistisch gewählt wurden. Letztlich war darauf zu achten, daß der Modellansatz für die Kondensation mit dem Gesamtmodell kompatibel ist.

1.1 Festlegung der Randbedingungen

Als Referenzscenario wurde der Niederdruckkernschmelzfall zugrunde gelegt [7]. Nach einem Kühlmittelverluststörfall mit großem Leck im Primärkreis und nach Versagen der Kernnotkühlung erfolgt ein ungehindertes Schmelzen des Kerns. Dabei werden in relativ kurzer Zeit (≤ 2 h) Aerosolmassen des Kerns. Dabei werden in relativ kurzer Zeit (≤ 2 h) Aerosolmassen von 500 ... 2 500 kg produziert. Bei einer Aerosolmasse von z.B. 1 000 kg, entsprechend 1% der Kernmasse [8], ergibt das in einem DWR-Containment der 1300 MWe-Klasse eine Massenkonzentration von ≈ 15 g/m³.

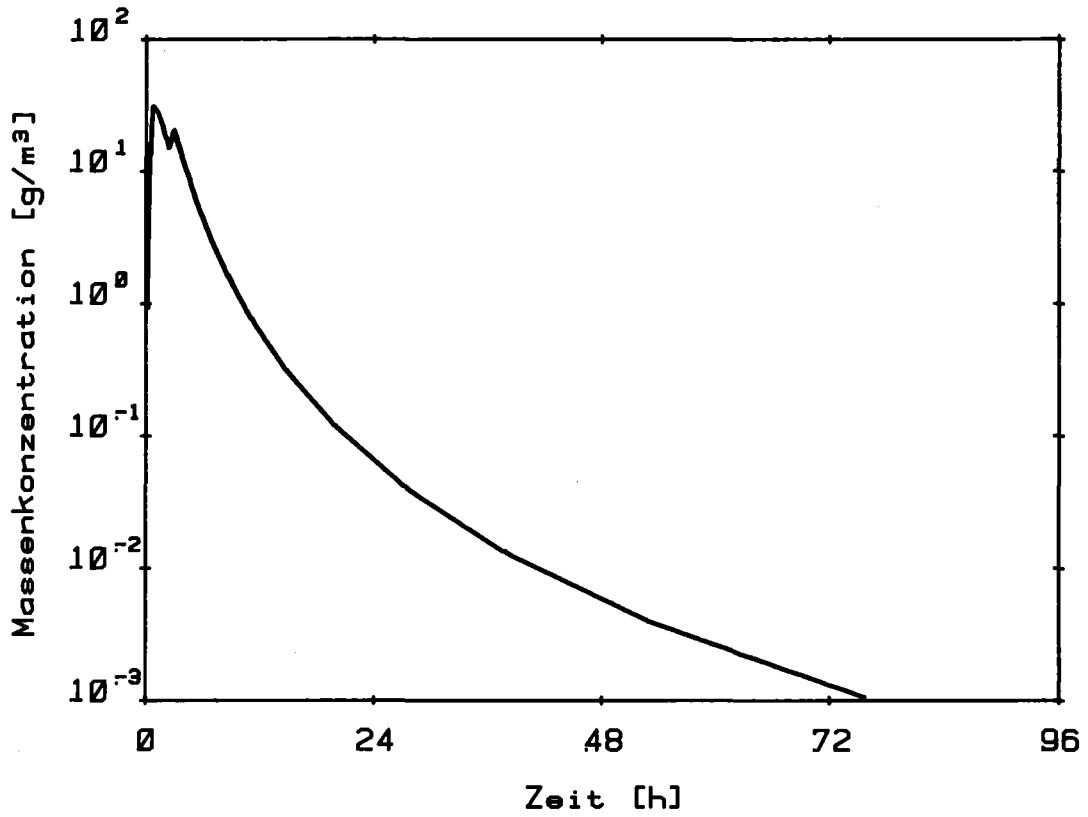


Abb. 1.1: Beispiel für den Abbau der Massenkonzentration des Aerosols im LWR-Containment beim Kernschmelzenunfall

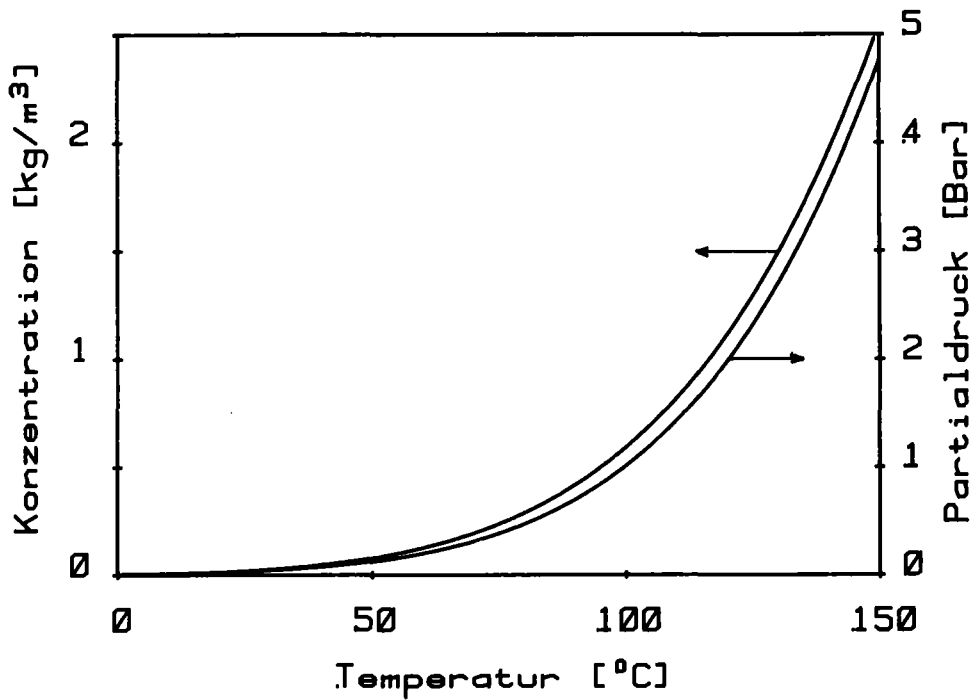


Abb. 1.2: Wasserdampfkonzentration und -partialdruck als Funktion der Temperatur (Sättigungszustand)

Ein Aerosolsystem solch hoher Konzentration ist extrem instabil. Abb. 1.1 zeigt, wie sich die Aerosolmassenkonzentration rasch abbaut; das für Kondensation von Dampf zur Verfügung stehende Aerosolsystem ist somit zeitlich stark veränderlich.

Die Temperaturen im Containment liegen nach Rechnungen mit verschiedenen Kernschmelzrechenodes $\bar{9}$, $10\bar{7}$ im Bereich von 100 ... 150 °C.

Der Wasserdampfgehalt der Atmosphäre ist im Mittel gleich dem Sättigungsgehalt, da stets genügend Wasser vorhanden ist, mit dem der Dampf im Gleichgewicht steht. Dementsprechend bewegt sich der Gesamtdruck der Atmosphäre zwischen 2 und 7 Bar.

Die Wasserdampfkonzentration beträgt 0,5 ... 2,5 kg/m³. Wasserdampfpartialdruck und Wasserdampfkonzentration sind in Abb. 1.2 als Funktion der Temperatur dargestellt $\bar{117}$. Es ist leicht einzusehen, daß in der hohen Wasserdampfsättigungskonzentration und in ihrer starken Temperaturabhängigkeit die Ursache für den starken Einfluß auf das Aerosolsystem liegt. Z.B. führt eine Temperaturänderung von 140 °C auf 139 °C zur Kondensation von 52 g/m³ Wasserdampf, die dann als Tröpfchen in Aerosolform vorliegen. Verglichen mit der Massenkonzentration des trockenen Aerosols, ist das eine erhebliche Veränderung. Mit diesen Angaben sind die Randbedingungen für Aerosol und thermodynamische Zustände abgegrenzt. Auf geometrische Anordnung muß bei den Experimenten keine Rücksicht genommen werden, da deren Auswirkung auf das Aerosolverhalten ausreichend bekannt ist.

1.2 Die Modellgleichung für die Wasserdampfkondensation

Eine Studie $\bar{127}$ über mögliche Formulierungen des Kondensationsprozess^{*)} ergab, daß für die Anwendung im NAUA-Rechenmodell die von Mason angegebene

*) Zur Verkürzung der Schreibweise soll in diesem Bericht unter "Kondensation" immer die heterogene Kondensation von Wasserdampf an Aerosolpartikeln verstanden sein. Davon abweichende Kondensationsvorgänge (z.B. an Wänden) werden jeweils ausdrücklich spezifiziert.

Gleichung [13] am besten geeignet ist, da sie i.W. alle Einflußparameter berücksichtigt und numerisch gerade noch handhabbar ist. Die Gleichung (vgl. z.B. [4]) lautet in vereinfachter Schreibweise

$$dr = \frac{A}{r} \left(S - \exp \frac{B}{r} \right) dt \quad (1.1)$$

Darin ist dr/dt das Größenwachstum eines Tröpfchens mit dem Radius r und S die Wasserdampfsättigung, d.h. der Wasserdampfgehalt normiert auf den jeweiligen Sättigungsgehalt. A und B sind komplizierte thermodynamische Funktionen der Temperatur.

Man kann in Gl. 1.1 drei qualitativ verschiedene Fälle unterscheiden:

- a) $\ln S > B/r \rightarrow dr/dt > 0$
- b) $\ln S = B/r \rightarrow dr/dt = 0$
- c) $\ln S < B/r \rightarrow dr/dt < 0$

In Abhängigkeit von S und r kann also Tröpfchenwachstum (Fall a) und Tröpfchenverdampfung (Fall c) gleichzeitig auftreten. Insbesondere ist durch Fall b der kritische Radius

$$r_c = B/\ln S \quad (1.2)$$

definiert. Alle Tröpfchen mit genügender Größe ($r > r_c$) wachsen auf Kosten der kleineren ($r < r_c$). Für den Fall $S < 1$ verdampfen alle Tröpfchen bis auf ihren "trockenen" Kern. D.h. eine (auch noch so geringe) Übersättigung der Atmosphäre ist in jedem Fall zur Kondensation notwendig.

Für das Verständnis der Messungen ist es wichtig, zu betonen, daß das Größenwachstum, selbst bei gleichbleibendem S , mit der Tröpfchengröße zunimmt. In einem idealisierten Schema würde sich folgender Ablauf eines Kondensationsvorgangs ergeben:

Ausgehend von einer Sättigung $S \leq 1$ soll dem System Wasserdampf zugeführt werden. S nimmt zu, sobald $S > 1$ geworden ist und weiter zunimmt, verringert sich der Wert des kritischen Radius r_c von $+\infty$ kommend immer weiter, bis er in den Bereich der Partikelgrößen des Aerosols kommt. Dann kondensiert Dampf an den Partikeln, für die $r > r_c$ ist. Die Kondensation wirkt der Dampfzufuhr entgegen, und mit zunehmender Zahl der

erfaßten Partikeln und mit deren durch die Kondensation zunehmender Größe immer stärker. Schließlich wird die Kondensation die Dampfzufuhr überwiegen und r_c nimmt nach Durchlaufen eines Minimums wieder zu. Alle Partikeln, die kleiner sind als dieser Minimalwert von r_c nehmen nicht am Kondensationsprozeß teil. Nähere Einzelheiten zur Dynamik dieses Vorgangs finden sich in [12] und [14].

Die Aufteilung des Aerosols in eine Tröpfchenfraktion und in einen verbleibenden trockenen Rest ist sowohl bei den NAUA-Rechnungen als auch bei den Experimenten ein sehr wichtiger Vorgang. Die Aufteilung hängt sehr empfindlich von der Partikelgrößenverteilung des Aerosols, von der Zunahmerate der Sättigung und von der Temperatur ab. Die Brauchbarkeit von Gl. 1.1 für unsere Zwecke kann durch die Messung der Verhältnisse von Ausgangskonzentration des Aerosols zu erreichter Tröpfchenkonzentration geprüft werden. Bei unseren Experimenten war dies die vorwiegend benutzte Methode.

1.3 Das Formfaktorkonzept

Die Gl. 1.1 ist durch zwei Randbedingungen eingeschränkt:

- a) Sie wurde für wolkenphysikalische Probleme formuliert.
- b) Sie gilt nur für Kondensation von Wasserdampf an Wassertröpfchen.

Bedingung a erfordert die Nachprüfung der Gleichung unter den extrem anderen Temperaturen und Wasserdampfkonzentrationen beim Reaktorunfall. Die Bedingung b ist noch gravierender, da sie Zweifel an der Beschreibbarkeit des Tröpfchenbildungsprozesses aufkommen läßt. Die Kondensation an einem Tröpfchen ist sicher verschieden von der an einer Festkörperoberfläche. Schließlich ist die Oberfläche der Aerosolpartikeln auch uneinheitlich strukturiert (vgl. Abb.2.9.).

Es ist somit sicher notwendig, Gl. 1.1 für die Tröpfchenbildungsphase zu modifizieren. Ein in der Aerosolphysik übliches Verfahren, um Abweichungen realer Aerosole vom idealisierten Verhalten zu berücksichtigen, ist die Einführung von Formfaktoren. Gl. 1.1 wird damit zu

$$dr = \frac{A}{r} \cdot \left(S - F_m \frac{B}{r} \right) dt \quad (1.3)$$

abgewandelt.

Da die Korrektur nur für die Tröpfchenbildung, nicht aber für das Wachstum bereits entstandener Tröpfchen gelten soll, muß zusätzlich gefordert werden

$$\begin{aligned} F_m &= f_m \quad \text{für} \quad r = r_o \\ F_m &= 1 \quad \text{für} \quad r \gg r_o \end{aligned} \tag{1.4}$$

Darin ist r_o der Radius des trockenen Kondensations"kerns". Die Art des Übergangs von F_m vom Startwert f_m zum Endwert 1 ist relativ unkritisch. In den Nachrechnungen wurde eine e-Funktion der Form

$$F_m = 1 + (f_m - 1) \cdot \exp\left(-2\left(\frac{r}{r_o} - 1\right)\right) \tag{1.5}$$

gewählt. D.h. der Formfaktor verschwindet, sobald der trockene Kern vollständig im kondensierten Tröpfchen "untergegangen" ist. Ziel der Experimente war somit, den Formfaktor f_m für LWR-unfalltypische Aerosolspezies zu messen, und die allgemeine Gültigkeit der Mason-Gleichung in der Form von Gl. 1.1 oder Gl. 1.3 zu prüfen.

1.4 Das experimentelle Konzept

Das Ziel der Experimente zur Kondensation war somit zweifach:

- Prüfung der Gültigkeit der Mason-Gleichung unter Kernschmelzenbedingungen,
- Messung der Formfaktoren für Kondensation an verschiedenen typischen Aerosolen.

Diese Ziele verlangen die direkte Untersuchung des isolierten Kondensationsprozesses und seiner Dynamik. Das erfordert gewisse Kompromisse hinsichtlich der Wahl der Versuchsbedingungen. Ein total "realistisches" Aerosolsystem von $> 10 \text{ g/m}^3$ Massenkonzentration und einem vielfachen davon an Tröpfchen läßt sich nicht auf mikroskopische Einzelprozesse hin untersuchen, da die Meßtechnik fehlt. Wir haben die Einschränkung so vorgenommen, daß die Aerosolkonzentration sehr stark bis auf mit den Meßgeräten verträgliche Werte herabgesetzt wurde. Alle thermodynamischen Daten werden dagegen realistisch eingehalten.

Dieses Vorgehen ist insofern notwendig, als es so allein ein Verständnis der physikalischen Prozesse ermöglicht. Danach kann die Extrapolation auf realistische Verhältnisse leicht mit dem (dann verstandenen) Modell vorgenommen werden. Auch können danach Integralexperimente durchgeführt werden, bei denen sich zwar keine Einzelprozesse mehr isolieren lassen, die aber zur Verifikation des Gesamtmodells nützlich sind. Solche Integralexperimente werden dann ohne Einschränkungen realistisch durchzuführen sein.

Die im folgenden Kapitel beschriebene Versuchsanlage wurde für beide Phasen der Experimente konzipiert. Die Anlage ist ausreichend groß konstruiert, um die Integralversuche im Kubikmetermaßstab durchführen zu können. Darüber hinaus wurde aber durch spezielle konstruktive Details dafür gesorgt, daß auch die physikalischen Einzelprozessuntersuchungen in derselben Anlage durchgeführt werden können.

2. Beschreibung der Versuchseinrichtungen

Aerosolverhaltensexperimente können entweder im geschlossenen Behälter oder in Strömungsapparaturen durchgeführt werden. Die Strömungstechnik ist dann von Vorteil, wenn schnell ablaufende Vorgänge untersucht werden sollen. Zwar ist die Wasserdampfkondensation ein solcher schneller Vorgang, jedoch sollen in der Versuchsanlage später auch Langzeituntersuchungen durchgeführt werden. Daher ist die Auslegung als abgeschlossener Behälter zusammen mit einer genügend schnellen Meßtechnik vorzuziehen.

Als zweites Kriterium ist die Größe des Behältervolumens festzulegen. Hierfür gilt, daß die bei Aerosolexperimenten unvermeidbare Probenahme das Aerosolsystem nicht stören darf. Wenn man Probemengen von ca. 30 Litern vorsehen will, so ist der einhundertfache Wert von 3 m^3 als Richtwert für das Behältervolumen ein Minimum. Die Oberfläche des Behälters sollte so klein wie möglich sein, um Wandeinflüsse gering zu halten. Statt der naheliegenden Kugelform wurde jedoch aus praktischen Gründen ein Zylinder gewählt. Damit ist die Geometrie im Prinzip festgelegt.

Von den Betriebsbedingungen wurde Thermostatisierung im Bereich von Raumtemperatur bis 150°C verlangt. Der Dampfgehalt der Atmosphäre im Behälter sollte kontrollierbar sein.

2.1. Der Versuchsstand

Der Behälter (Abb. 2.1) besteht aus Edelstahl. Der zylindrische Teil mißt $1500 \text{ } \varnothing \times 1500$ und ist oben und unten mit Klöpperböden abgeschlossen. Beide Klöpperböden sind mit Klammerflanschen am zylindrischen Mittelteil befestigt. Insbesondere der obere Deckel muß für Wartungszwecke gelegentlich abgehoben werden.

Auf dem Mittelteil sind sieben Blockflansche aufgeschweißt, die die Instrumentierung aufnehmen. Diese Flansche sind in der Abb.2.1 numeriert, um sie weiter unten im Text identifizieren zu können. Die drei Flansche am unteren Boden und die vier Flansche am Deckel werden für Versorgung des Behälters benutzt.

Abb.2.2 zeigt ein Schema der Versorgungseinheiten. Der Behälter ist auf seiner Außenseite mit Kupferrohren bewickelt, die aus dem Hauptthermostaten

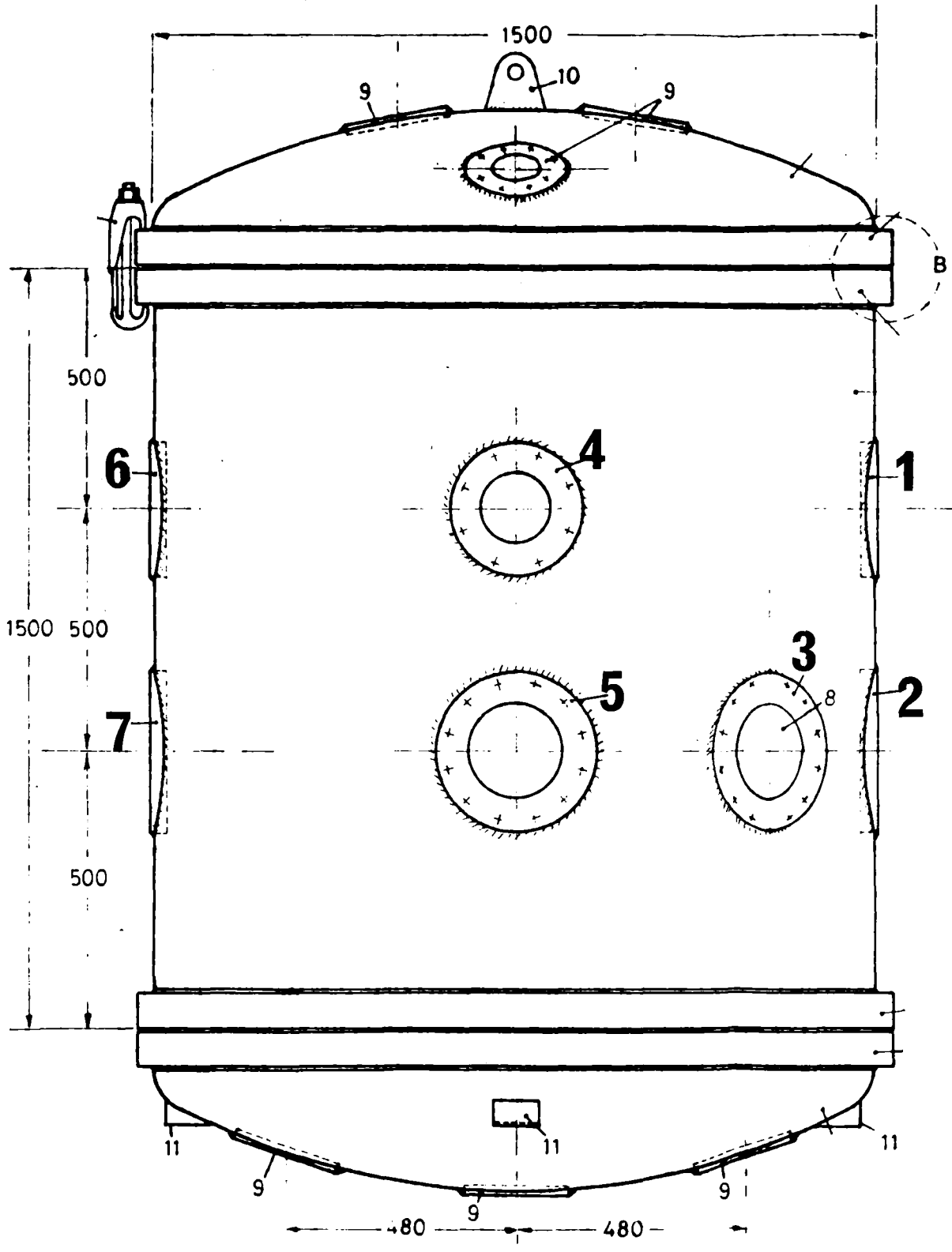


Abb. 2.1: Konstruktionszeichnung des Versuchskessels

versorgt werden. Ebenso speist ein Hilfsthermostat kleinere Rohrschlangen an den Flanschen. Beide Thermostate sind elektrisch beheizte Badthermostate von 150 bzw. 70 Litern Inhalt. Das Medium, ein Spezialmineralöl, wird mit Tauchpumpen umgewälzt. Zu jedem Thermostatkreis ist außerdem ein wassergekühlter Wärmetauscher zuschaltbar, um im Bedarfsfall eine schnelle Abkühlung des ganzen Systems zu ermöglichen.

Der Hauptthermostat wird auf Rücklaufsolltemperatur geregelt. Der Hilfsthermostat ist so geschaltet, daß er eine einstellbare (positive) Temperaturdifferenz gegen den Hauptthermostaten aufrecht erhält. Diese im Betrieb empirisch ermittelte Temperaturüberhöhung gleicht die an den Flanschen erhöhten Wärmeverluste aus. Durch die Thermostatisierung mit Wärmeträgeröl läßt sich eine sehr gute Temperaturhomogenität über den ganzen Behälter erzielen. Die größten gemessenen Temperaturdifferenzen an vier repräsentativen Stellen auf der Innenseite der Behälterwandung waren ≤ 2 K.

Gegen die Umgebung ist der Behälter durch eine Steinwollpackung isoliert, die zwischen dem runden Behälter und dem rechteckigen Gehäuse an den schwächsten Stellen 250 mm stark ist. Abb.2.3 zeigt das Gehäuse und davor die beiden Thermostate. Den für die Versuche notwendigen Dampf liefert ein Elektrodampfkessel. Der Dampfkessel ist eine Sonderanfertigung, insofern als alle mit dem Wasser und dem Dampf in Berührung kommenden Teile aus Edelstahl gefertigt sind. Die Überströmleitung vom Dampfkessel in den Versuchsbehälter ist ebenfalls thermostatisiert, um den Dampf beim Eintritt in den Versuchsbehälter auf Sättigungsbedingungen zu bringen.

Für physikalische Messungen schnell ablaufender Kondensationsvorgänge ist allerdings die räumlich inhomogene Dampfverteilung beim Einspeisen aus dem Dampfkessel hinderlich; auch ist dieser Vorgang nicht mit der erforderlichen Genauigkeit einstellbar und/oder reproduzierbar. Als definierte und reproduzierbare Methode zur Erzeugung einer homogenen Übersättigung im ganzen Volumen kommt nur adiabatische Expansion in Frage. Das Verfahren hat den zusätzlichen Vorteil, daß dabei die Wände wärmer sind als die Atmosphäre, wodurch Wandkondensation als Störfaktor ausgeschlossen wird.

Die Volumenexpansion wird mit dem in Abb.2.2 eingezeichneten Kompensa-

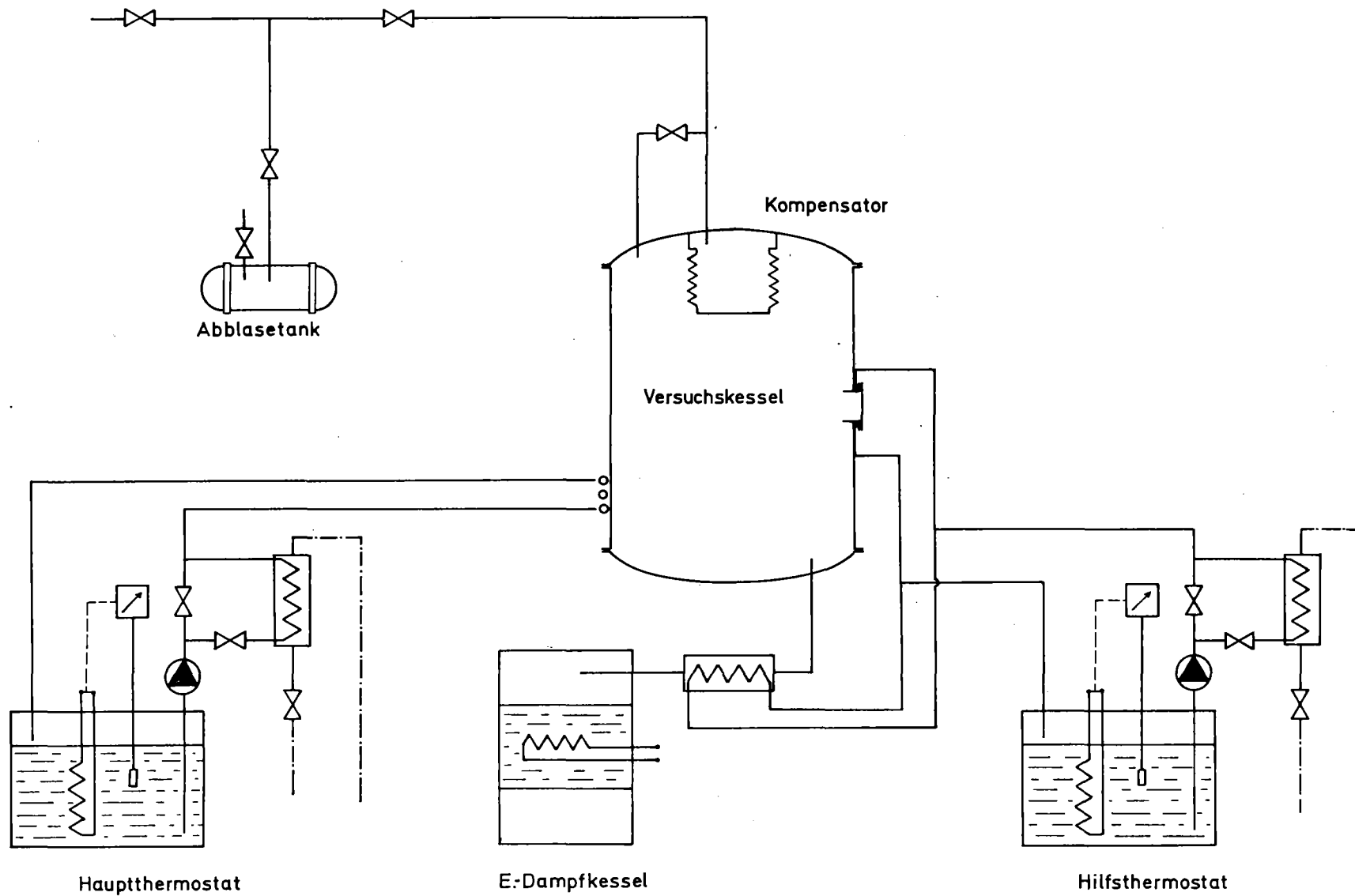


Abb. 2.2: Schema der Versorgungseinheiten

tor durchgeführt. Es handelt sich um einen Edelstahlfederbalg von ca. 1 m Durchmesser und 700 mm mittlerer Länge, der unter den Deckel des Behälters geschweißt und am anderen Ende mit einer Platte verschlossen ist. Ein Bild des Kompensators zeigt Abb. 2.4. Durch Änderung des Drucks im Kompensator kann dieser einen Hub von maximal 200 mm ausführen. Dadurch ändert sich das Volumen des Versuchsbehälters um ca. 6%. Die Stellung des Kompensators wird mit einem induktiven Weggeber gemessen. Die Stellungsanzeige ist gegen die Volumenänderung in Litern kalibriert.

Durch die Methode der Volumenänderung mit dem Kompensator wird der permanente Abschluß des Versuchsbehälters garantiert, was insbesondere beim Arbeiten mit UO_2 -Aerosol wichtig ist. Als redundante Reserve - die allerdings bisher nie benutzt werden mußte - ist der Abblasetank von 200 l Inhalt vorgesehen. Dieser Tank kann bei Defekten am Kompensator eventuelle Leckagen auffangen, oder auch als Puffervolumen bei der Expansion aktiv benutzt werden.

Die beiden direkt am Kompensator angeschlossenen Ventile werden elektropneumatisch betätigt. Das "Ausgleichsventil" sitzt zwischen Hauptvolumen und Kompensator. Das "Expansionsventil" verbindet den Kompensator über handbetätigte Kugelhähne mit dem Abblasetank, mit einer Vakuumleitung zum Auspumpen des Behälters und mit der Druckgasversorgung. Ein weiteres elektropneumatisches Ventil sitzt zwischen dem Dampfkessel und dem Hauptvolumen.

Die Bedienung aller bis hier angeführten Aggregate und Ventile erfolgt ferngesteuert von einer Schalttafel aus, die im Steuerpult der Anlage untergebracht ist (vgl. Abb. 2.5). Eine Ausnahme bildet nur der Dampfkessel, der von Hand bedient werden muß.

2.2. Konventionelle Meßtechnik

Unter konventioneller Meßtechnik werden in diesem Bericht alle Meßgeräte verstanden, die zur Überwachung des Zustands der Anlage und zur Messung der thermodynamischen Daten beim Experiment eingesetzt werden. Die Instrumentierung zur Messung der Aerosolkenngrößen wird im nächsten Abschnitt beschrieben.

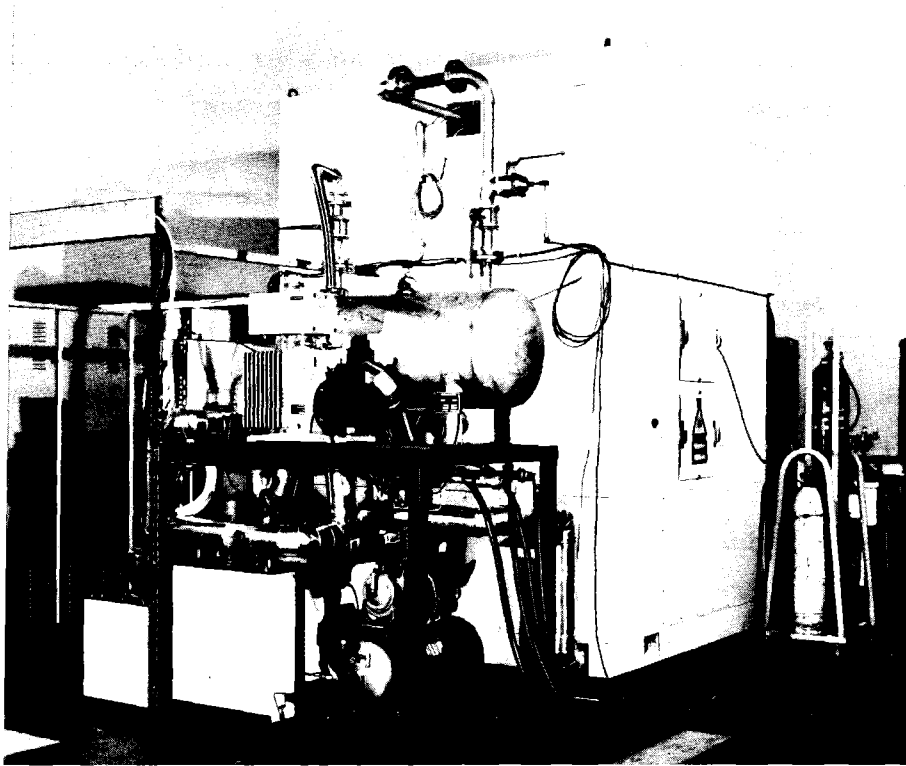


Abb. 2.3: Ansicht der Versuchsanlage



Abb. 2.4: Ansicht des Kompensators

2.2.1. Temperatur

Die Temperatur der Behälterinnenwand wird an vier repräsentativen Stellen mit Thermoelementen (Kupfer-Konstantan) gemessen:

an der Wand, am Meßflansch Nr. 5, am unteren Klammerflansch und am unteren Klöpperboden. Die Thermoelemente sind am Meßflansch Nr. 5 durchgeführt.

Die Gastemperatur im Behälter wird an drei Stellen mit Thermoelementen (Kupfer-Konstantan, später ersetzt durch Chromel-Alumel) gemessen. Die Meßstellen sind in gleicher Höhe aber verschiedenem radialem Abstand von der Behälterachse angeordnet.

Alle Thermoelemente sind ohne Mantel ausgeführt. Sie sind mit selbstgefertigten Spezialdurchführungen durch die Flansche geführt und am Meßort geschweißt. Das Verschweißen der beiden Drähte garantiert hohe elektrische und mechanische Zuverlässigkeit. In der Tat gab es im bisherigen Betrieb keinen einzigen Ausfall.

Als Referenzelement für die Thermoelemente wird eine kommerzielle Thermoelementreferenzeinheit verwendet, die ein auf 0 °C geregeltes Bad enthält.

Die Thermoelemente können den schnellen Temperaturänderungen bei der adiabatischen Expansion nur mit Verzögerungen von ≈ 1 s folgen. Zur schnellen Gastemperaturmessung werden drei NTC-Widerstände in Subminiaturausführung verwendet (Typ K 19, Siemens), die wesentlich kürzere Ansprechzeiten und auch höheres Auflösungsvermögen haben. Diese NTC-Fühler wurden einzeln kalibriert. Sie müssen gelegentlich ausgewechselt werden, da die hohe Feuchte und die Beaufschlagung mit Aerosol zu Nebenschlüssen führen. Als Kriterium für den Zustand kann der Vergleich der NTC-Temperatur mit der Thermoelementtemperatur herangezogen werden. Alle Gastemperaturfühler sind im Meßflansch Nr. 4 durchgeführt.

2.2.2. Druck

Druckaufnehmer mit Dehnungsmießstreifen erwiesen sich als unbrauchbar. Die Aufnehmer, die bis 150 °C einsetzbar sind, haben einen so hohen Temperaturkoeffizienten, daß eine Druckmessung nicht möglich ist.

Als einziges Gerät, das unter den herrschenden Bedingungen noch brauchbar-

re Meßwerte liefert, blieb ein Kapazitätsmanometer übrig. Es besitzt einen geregelt geheizten Differenzdruckmeßkopf. Dadurch wird der Einfluß von Temperaturänderungen während des Experiments ausgeschaltet. Der Meßbereich ist 0 bis 13 Bar bei einer Auflösung von 10^{-4} und einer Ansprechzeit von 0.2 s.

Das Gerät ist damit in der Lage, auch den schnellen Druckänderungen bei der Expansion zu folgen. Das Gerät wurde gegen einen Aneroid-Absolutdruckmesser kalibriert.

2.2.3. Wasserdampfgehalt

Der Wasserdampfgehalt der Atmosphäre ist eine der wichtigsten thermodynamischen Meßgrößen bei den Experimenten. Meßgeräte dafür (Taupunktmesung bis 170°C) sind erst seit kurzem auf dem Markt, aber sie sind außerordentlich träge. Bei den hier beschriebenen Messungen wurde der Wasserdampfgehalt indirekt ermittelt.

Das Kapazitätsmanometer liefert sehr genau den Wert des Gesamtdrucks im Behälter und während eines Experiments dessen Änderung. Während des Experiments läßt sich der Zeitpunkt, zu dem die Atmosphäre gerade gesättigt ist, gut bestimmen (vgl. Abschnitt 3.2). Gesamtdruck, die zugehörige Temperatur und die Information, daß die Atmosphäre gesättigt ist, reichen aus, um die Partialdrücke von Luft und Wasserdampf zu berechnen. Mit der so erhaltenen Zusammensetzung der Atmosphäre kann dann auch zu anderen Zeitpunkten aus Gesamtdruck und Temperatur der Wasserdampfgehalt bestimmt werden.

2.2.4. Weitere Meßwerterfassung

Das Volumen des Behälters bei voll zusammengedrücktem Kompensator wurde zu 3170 m^3 bestimmt. Die Messung der Kompensatorstellung wurde in Abschnitt 2.1. beschrieben. Der maximal nutzbare Volumenhub beträgt 160 l.

Alle bis hier angeführten Meßwerte werden auf der Datenerfassungsanlage zusammengeführt (s. Abschnitt 2.5.). Weitere off line Informationen dienen nur der Überwachung und werden am Steuerpult angezeigt, wie z.B. Temperatur der Thermostaten, Ventilstellungen, Raumtemperatur, Zustand

der Hilfsaggregate usw. Diese Informationen werden nur, soweit wie erforderlich, in den Versuchsprotokollen notiert.

Die gesamte Meßinstrumentierung ist gemeinsam mit dem Bedienungsteil des Versuchsstands und der Datenerfassung in einem zentralen Schaltpult zusammengefaßt. Eine Ansicht zeigt Abb. 2.5; das gesamte Pult kann von einem Mann bedient werden.

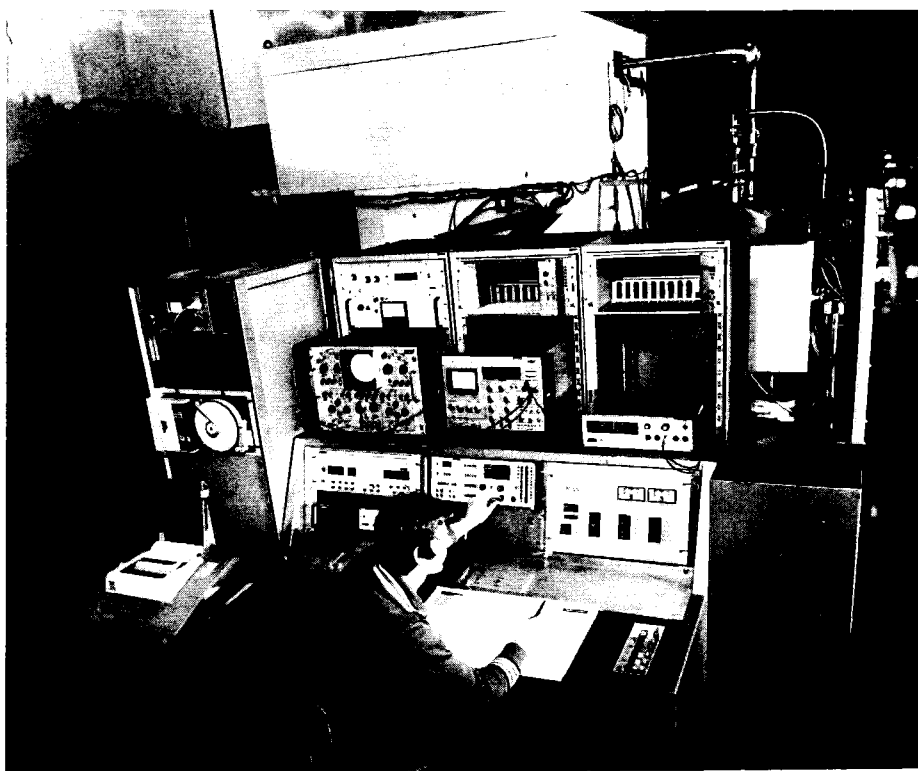


Abb. 2.5: Ansicht des Schaltpults der Versuchsanlage

2.3 Aerosolgeneratoren

Bei den Versuchen zur Wasserdampfkondensation am Aerosol wurden drei verschiedene Aerosolmaterialien verwendet: Platinoxid, UO_2 und Na NO_3 . Natriumnitrat wurde als lösliche Substanz im Gegensatz zu den unlöslichen Metalloxiden eingesetzt. Die drei sehr unterschiedlichen Sub-

stanzen erfordern jeweils andere Aerosolerzeugungsmethoden und Generatoren.

2.3.1. Natriumnitrataerosol

Die Erzeugung von löslichen Aerosolen für die Versuche ist relativ einfach. Eine Lösung von NaNO_3 wird mit einem handelsüblichen Zweistoffzerstäuber (koaxiale Venturidüse) zerstäubt. In unserem Fall kann die Eintrocknung der Tröpfchen entfallen, da das Aerosol im Versuchsbehälter einer ohnehin sehr feuchten Umgebung ausgesetzt ist. Daher werden lediglich die großen Tröpfchen mit einer Prallplatte abgeschieden und der Lösungsnebel direkt in den Versuchsbehälter eingespeist. Unter typischen Versuchsbedingungen beträgt der mittlere Tröpfchendurchmesser am Generator $1,4\ \mu\text{m}$. Er ist weitgehend unabhängig vom NaNO_3 -Gehalt der Lösung, so daß die NaNO_3 -Masse in den Tröpfchen in weiten Grenzen variiert werden konnte.

2.3.2. Platinoxidaerosol

Platinoxidaerosol wurde in den meisten Experimenten als Simulationsaerosol verwendet, da es die gleiche Struktur besitzt wie alle anderen Aerosole, die durch Verdampfen schwerflüchtiger Materialien entstehen, also auch Kernschmelzenaerosole (vgl. Abb.2.9.). Der Vorteil von Platinoxid-aerosol ist, daß die Erzeugung äußerst einfach ist. Ein Platindraht wird im Luftstrom elektrisch zum Glühen gebracht, das abdampfende Platinoxid kondensiert dann zu Aerosolpartikeln.

Eine ausführliche Beschreibung des verwendeten Platinoxidaerosolgenerators findet sich in der VDI-Richtlinie 3491, Blatt 6 [15]. Diese Richtlinie wurde aufgrund neuerer Erfahrungen aufgestellt, das dort beschriebene Gerät ist identisch mit dem bei unseren Versuchen verwendeten.

Bemerkenswert ist noch, daß der Generator innen im Versuchsbehälter untergebracht ist. Das trägt dazu bei, daß das Aerosol sofort verdünnt wird und die Partikeln nur langsam durch Koagulation wachsen.

2.3.3. Urandioxydaerosol

Es gibt im wesentlichen zwei Gründe dafür, die Kondensationsversuche auch mit UO_2 -Aerosol durchzuführen. Der erste ist, daß Messungen an UO_2 -Aerosol, das einen Hauptbestandteil des Kernschmelzenaerosols ausmacht, wesentlich "realistischer" sind als Messungen an dem exotischen Platinoxydaerosol. D.h. Versuche mit UO_2 -Aerosol haben bereits einen gewissen Verifikationsaspekt.

Der zweite, physikalisch besser definierte Grund ist, daß das Platinoxydaerosol nur sehr geringe Massenkonzentration und geringe Partikeldurchmesser besitzt. Es mußten daher auch Versuche mit Aerosolen höherer Konzentration und mit größeren Partikeln durchgeführt werden, um die mit dem Platinoxydaerosol erhaltenen Ergebnisse zu überprüfen.

Die bekannte Erzeugungsmethode der Verdampfung von UO_2 im Lichtbogen [16], wurde zu einem Verfahren weiterentwickelt, das für unsere Zwecke ausreichend zuverlässig arbeitete. Es hatte sich herausgestellt, daß in N_2 -Atmosphäre ein stabiler Lichtbogen zwischen Elektroden brennen kann, von denen eine aus UO_2 besteht. Dabei werden hohe Mengen an UO_2 verdampft, die dann zu Aerosolpartikeln kondensieren. Nachdem die Methode auch in Stickstoffatmosphäre bestätigt wurde - zwar mit geringerem, jedoch ausreichendem Wirkungsgrad - , wurde ein UO_2 -Aerosolgenerator nach dem Lichtbogenprinzip entwickelt.

Die Abb.2.6 zeigt ein Schema des Generators. In einem kugelförmigen Behälter von 147 l Volumen befindet sich im Mittelpunkt die Lichtbogenstrecke. Die untere Elektrode (Anode) besteht aus einem UO_2 -Pellet in einer Edelfstahlfassung. Das Pellet ist ein abgereichertes gesintertes Pellet von 12,7 mm Durchmesser und 11,3 mm Höhe, die Masse beträgt ca. 18.6 g. Die Form und Größe des Pellets ist kritisch für ein stabiles Verhalten des Lichtbogens; zu kleine Pellets brechen unter der thermischen Belastung leicht auseinander.

Die Katode besteht aus Tantal und kann mit einem Gewindeantrieb in ihrer Position verstellt werden. Dadurch wird das Einhalten einer gleichmäßigen Bogenlänge auch beim Abbrennen der UO_2 -Elektrode ermöglicht. Die Einstellung erfolgt manuell; sie ist auch relativ kritisch und erfordert einige Erfahrung. Eine Standardisierung oder gar Automatisierung dieses Vorgangs war bei der geringen Zahl der UO_2 -Experimente bislang nicht notwendig.

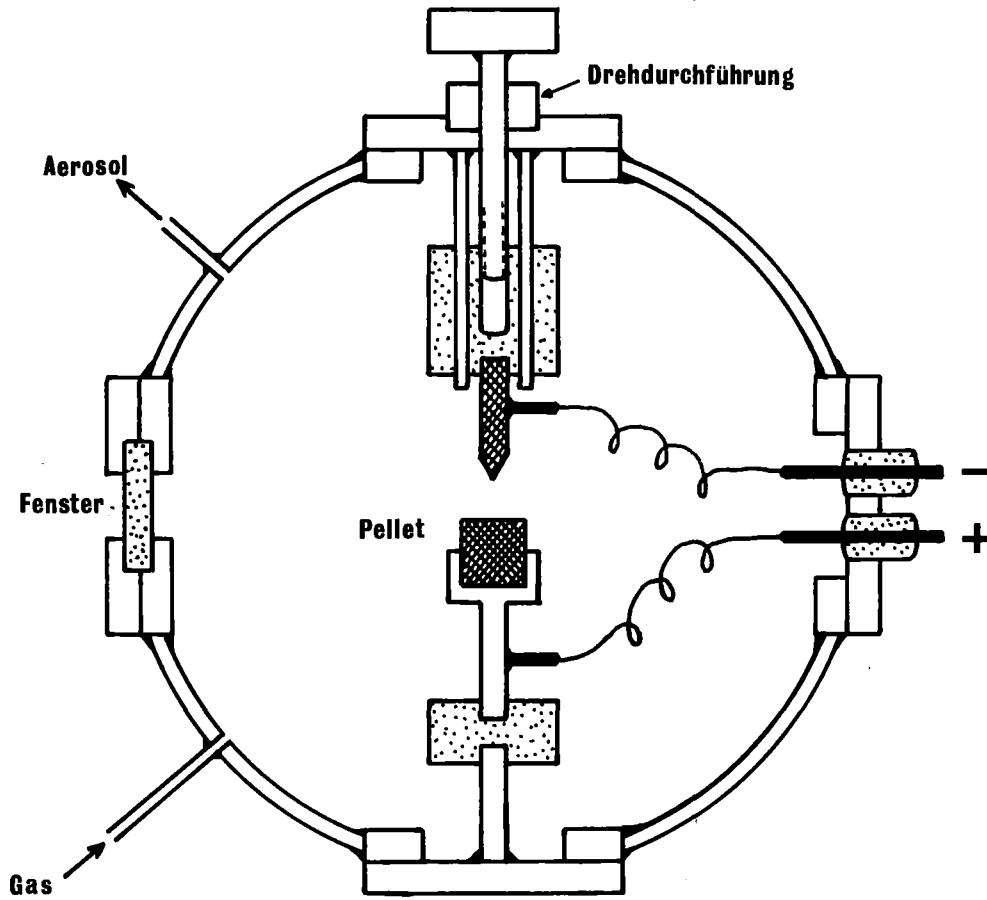


Abb. 2.6: Schema des UO_2 -Aerosolgenerators

Die Stromversorgung des Lichtbogens muß dem stark negativen Temperaturkoeffizienten des Widerstands des UO_2 angepaßt werden. Abb. 2.7 zeigt den spezifischen Widerstand von UO_2 nach [17]. Man erkennt das typische Halbleiterverhalten, allein im Bereich zwischen Raumtemperatur zu Beginn des Versuchs und der Temperatur beim Zünden des Lichtbogens von ca. 1100 °C ändert sich der Widerstand um ca. fünf Größenordnungen. Das Netzgerät ist daher leistungsgeregelt und besitzt eine Vorheiz- und eine Leistungsstufe. Im kalten Zustand werden anfänglich 200 V benötigt, um den hohen Pelletwiderstand zu überwinden. Die Vorheizleistung kann dann langsam bis auf 150 W (ca. 30 V, 5 A) gesteigert werden. Nach dem Zünden des Lichtbogens kann die elektrische Leistung der gesamten Bogenstrecke zwischen 1 kW und 5 kW betragen. Bei den Versuchen wurde meist mit 2 ... 3 kW gearbeitet. Dabei sind Ströme von 100 A bis 140 A erforderlich.

Der Lichtbogen wird in Stickstoff betrieben, da dieser ein Bestandteil der Atmosphäre im Versuchsbehälter (Luft) ist. Es ist darauf zu achten, daß kein Sauerstoff in den Generator gelangt. Schon einige Prozent Sauerstoff führen dazu, daß das UO_2 heftig unter Leuchterscheinungen zu U_3O_8 oxidiert; auch ohne daß ein Lichtbogen gezündet wurde. Die Aerosol-erzeugung ist dann nicht mehr kontrolliert, außerdem ist U_3O_8 nicht typisch für Kernschmelzenaerosol.

Insgesamt wurden bis zum Abschluß der Expansionsversuche 19 mal UO_2 -Aerosole durch Lichtbogenverdampfung erzeugt. Dabei war eine fortschreitende Verbesserung der Methode bis zum Lichtbogen Nr. 11 zu verzeichnen; ab dann waren die Ergebnisse etwa gleichbleibend. Als Beispiel für die Leistungsfähigkeit des Generators sollen daher die Daten aus dem Lichtbogen Nr. 15 herangezogen werden.

In Abb.2.8 sind die gemessenen Strom- und Spannungskurven während des Versuchs gezeigt. Die jeweils eingestellte Leistung ist zusätzlich angegeben.

Die Kurven beginnen eine Minute vor der Zündung des Lichtbogens. Der eigentliche Vorheizprozeß dauert wesentlich länger und ist hier nicht im einzelnen gezeigt. Das wesentliche dabei ist, das UO_2 -Pellet gleichmäßig und langsam zu erwärmen, ohne daß es springt oder geschmolzene Stellen entwickelt. Der Widerstand des Pellets muß soweit abgesunken sein, daß mit der verfügbaren Spannung von 75 V die zur Zündung nötige

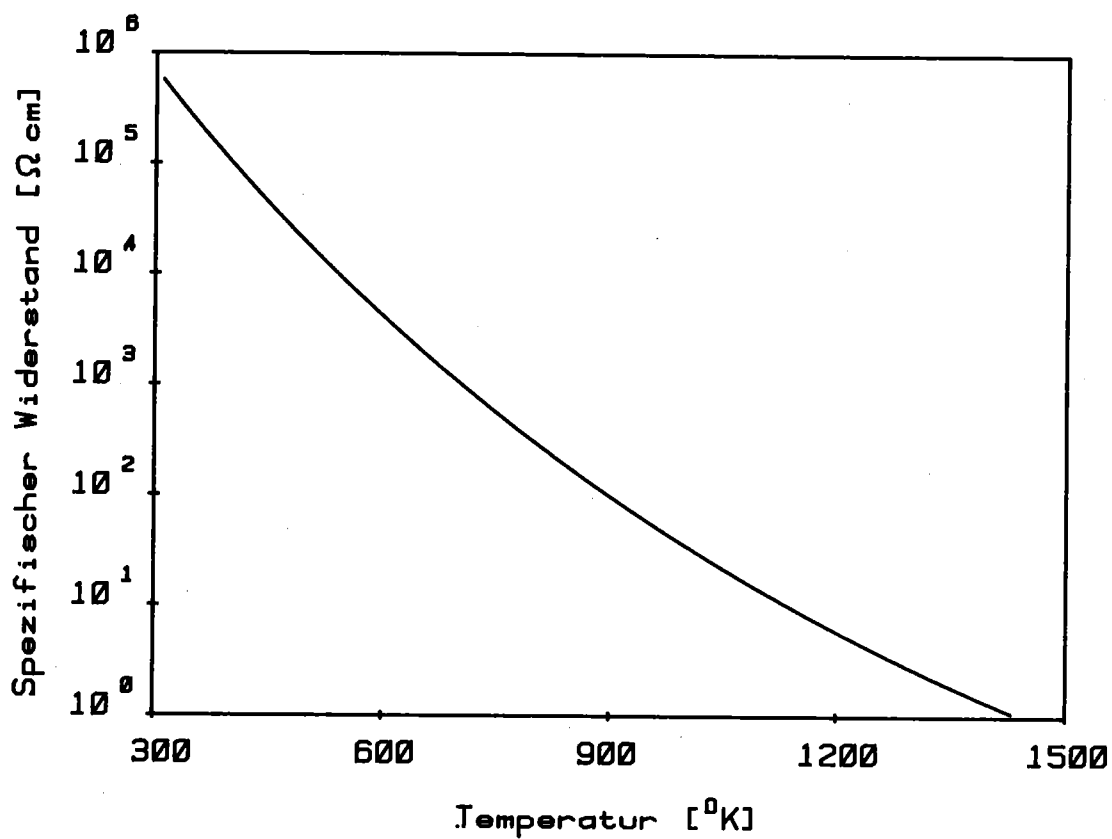


Abb. 2.7: Spezifischer Widerstand von UO_2 als Funktion der Temperatur

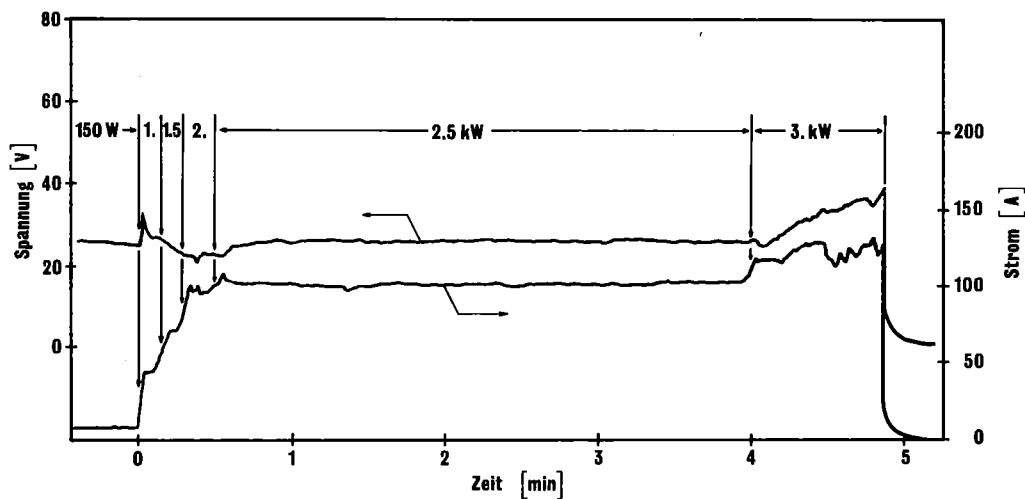


Abb. 2.8: Beispiel für Strom- und Spannungsverlauf am UO_2 -Generator bei der Aerosolerzeugung

Leistung von 1 kW erreicht werden kann.

Anmerkung: Aus Abb.2.8 kann der Pelletwiderstand nicht entnommen werden, da die Spannungswerte am Netzgerät gemessen sind und alle Abfälle an Kabeln und Kontakten beinhalten. Als Erfahrungswert gilt, daß bei 150 W Vorheizleistung die Spannung unter 30 V gesunken sein muß, um mit 1 kW zünden zu können.

Beim Zünden wird die Leistung auf 1 kW erhöht und die Katode ca. 2 mm abgehoben. Nachdem der Bogen brennt, kann die Leistung erhöht werden; in der Abbildung wurde in Stufen von 0,5 kW bis auf 2,5 kW gefahren. Während der ersten vier Minuten der Brenndauer war die Spannung im wesentlichen gleichbleibend, nur der Strom änderte sich entsprechend zur eingestellten Leistung. Daraus folgt, daß man den Lichtbogen im Prinzip auch aus einer Konstantstromquelle versorgen könnte, ohne daß er elektrisch instabil wird. Für genaue Regelung und bequemere Einstellung ist jedoch die hier verwendete Leistungsregelung zu empfehlen.

4 min nach Zündung wurde zu Testzwecken die Leistung auf 3 kW erhöht und außerdem die Bogenlänge stetig so lange vergrößert, bis der Bogen schließlich abriß. Dieses Stück der Kurven ist für das oben Gesagte nicht repräsentativ. Man erkennt, daß durch die Änderung der Bogenlänge die elektrischen Werte sehr stark beeinflusst werden und daß insgesamt der Widerstand des Lichtbogens zunimmt.

Die Gewichtsbilanz der UO_2 -Anode ergab einen Gewichtsverlust von 2,4 g. Davon waren 3 min nach Brennschluß noch 0,41 g luftgetragen vorhanden, entsprechend einer Massenkonzentration von $2,8 \text{ g/m}^3$. Wesentlich höhere Werte sind in dem kleinen Volumen des Generators nicht erreichbar, der höchste jemals gemessene Wert war $12,8 \text{ g/m}^3$.

Unmittelbar nach Schluß der Erzeugung ist der Zustand des Aerosols folglich schon stark "gealtert", d.h. hoch koaguliert, und damit für die Kondensationsversuche direkt verwendbar. Abb. 2.9 zeigt die raster-elektronenmikroskopische Aufnahme einer Filterprobe des Aerosols, der hohe Koagulationsgrad ist deutlich zu erkennen, ebenso wie die sehr unterschiedliche Größe der Primärpartikeln, die durch homogene Kondensation des verdampften UO_2 entstanden sind.

Nachdem die Filterprobe am Generator genommen ist, wird ein definiertes Volumen aus dem Generator in den Versuchskessel übergeleitet. Dort wird das Aerosol den Kondensationsversuchen unterworfen.

Diese Methode der Erzeugung geringer Mengen von UO_2 -Aerosol hat sich außerordentlich bewährt. Eine Weiterentwicklung des Generators in der Zielrichtung längere Brenndauer zur kontinuierlichen Aerosolherzeugung ist in Arbeit. Eine eingehendere Beschreibung der Generator- und Aerosoleigenschaften wird später in einem gesonderten Bericht gegeben.

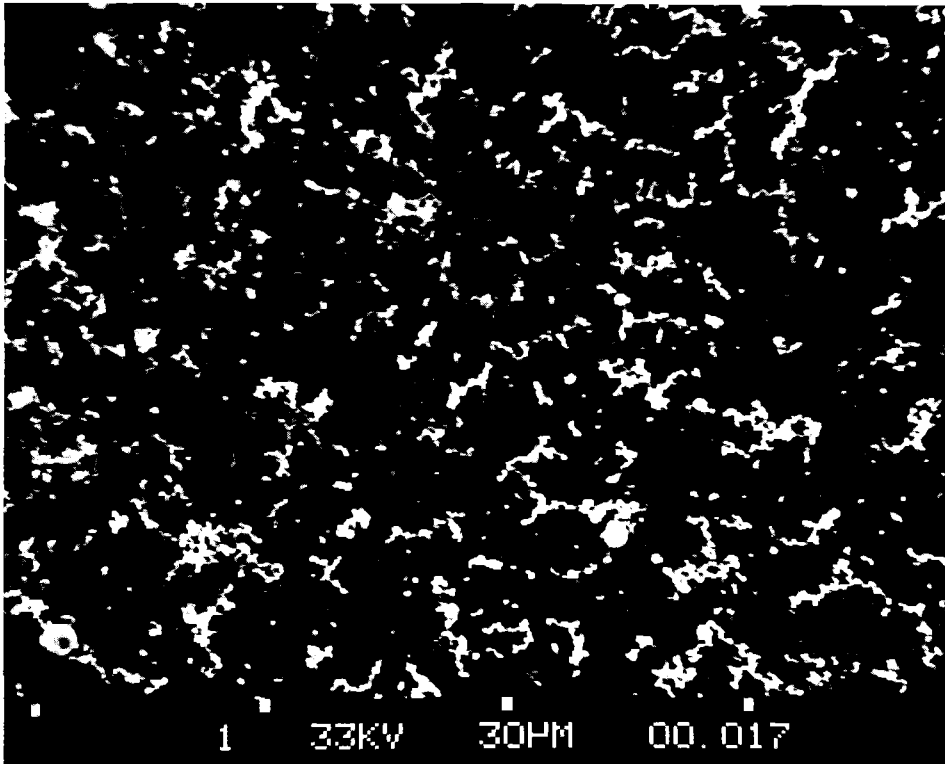


Abb. 2.9: UO_2 -Aerosolprobe aus dem Aerosolgenerator, Vergrößerung 1100.

2.4. Aerosolmeßtechnik

Bei unseren Aerosolmessungen muß grundsätzlich zwischen der Messung von Feststoffpartikeln und von Tröpfchen unterschieden werden. Die Feststoffpartikeln sind die von den Generatoren erzeugten Partikeln (Platinoxid und UO_2), die bei der Wasserdampfkondensation als Kondensationskern zur Bildung von Wassertröpfchen wirken. Tröpfchen sind die bei der Kondensation gebildeten Tröpfchen, aber auch das $NaNO_3$ -Aerosol, das in der wasserdampfhaltigen Atmosphäre des Versuchsbehälters stets als Lösungströpfchen vorliegt. Für beide Aerosolspesies müssen verschiedene Meßmethoden eingesetzt werden, die im folgenden getrennt behandelt werden.

2.4.1. Feststoffpartikeln

Die gemessenen Parameter des Platinoxidaerosols sind:

Anzahlkonzentration, Massenkonzentration und Größenverteilung.

Hierzu wurden kommerzielle Kondensationskernzähler, Massenwaage und Diffusionsbatterie verwendet. Der Einsatz dieser Geräte ist nur möglich unter normalen Umgebungsbedingungen (Raumtemperatur und Normaldruck).

Die Messung konnte deshalb nicht während der eigentlichen Kondensationsversuche durchgeführt werden. Statt dessen wurde das vom Generator erzeugte Aerosol mit den genannten Methoden bei Normalbedingungen untersucht. Die Messungen wurden am Versuchsbehälter durchgeführt, wobei auch die Alterungsprozesse miterfaßt wurden. Die Konstanz des Generators erlaubt, die so gewonnenen Daten als auch bei den eigentlichen Versuchen gültig voranzusetzen.

Der zusätzliche Einfluß des Wasserdampfes ist vernachlässigbar, da er nicht an den glühenden Platindraht gelangt. Ebenso spielt die Umgebungstemperatur (20 ... 150 °C) eine geringe Rolle, da die Drahttemperatur bei ≈ 1300 °C liegt.

Die Partikelparameter des Platinoxidaerosol beim Kondensationsversuch konnten also aus einer vorher erstellten Tabelle entnommen werden.

Ein gegensätzliches Verfahren mußte (und konnte) zur Messung der UO_2 -Aerosolparameter angewendet werden. Die Erzeugung war nicht reproduzierbar, so daß sich eine Parametertabelle nicht aufstellen ließ. Die Größe der UO_2 -Partikeln erlaubt jedoch ihre quantitative Abscheidung auf Nucleopore-Filtern. Die Filterstrecke ist geheizt, um Wasserdampfkondensation auf dem Filter zu verhindern. Es zeigte sich, daß die verwendeten

Filter (Nuclepore 0.2 μm , 47 mm \emptyset) der Temperatur und dem Wasserdampf standhalten.

Die so gewonnenen Filterproben werden im Rasterelektronenmikroskop fotografiert, um Partikelgrößenverteilung und Partikelkonzentration zu bestimmen. Gravimetrische und fluoreszenzanalytische Auswertungen werden zur Massenkonzentrationsbestimmung benutzt. Aus diesen Daten läßt sich die effektive Dichte der Partikeln ausrechnen(s. Abschnitt 4.1.)

2.4.2. Tröpfchenmessung

Prinzipiell ist zur Tröpfchenmessung zu sagen, daß bei dem herrschenden hohen Wasserdampfgehalt des Aerosolsystems jede Meßmethode unbrauchbar ist, die in das System eingreift. D.h. es ist nicht möglich, Tröpfchenproben aus dem Behälter zu entnehmen, ohne daß durch Kondensation oder Verdampfung die Tröpfchengrößen drastisch verändert werden.

Die einzig möglichen Verfahren sind berührungslose, in situ arbeitende optische Messungen. Zur Verwendung in der Versuchsanlage kommen ein speziell dafür entwickeltes Streulichtspektrometer [18], sowie Streulicht- und Extinktionsfotometrie, alle unter Verwendung von Lasern als Lichtquelle.

Bei den in diesem Bericht beschriebenen Kondensationsexperimenten konnte durchweg das einfachste Verfahren, die Extinktionsfotometrie, eingesetzt werden. Es lieferte gleichzeitig die Tröpfchengröße und die Tröpfchenkonzentration. Die Bedingungen für die Einsetzbarkeit und das Auswerteschema werden in Abschnitt 4.2. erläutert. Die fotometrischen Messungen wurden on line mit hoher Zeitauflösung durchgeführt und gestatteten somit, das Wachstum der Tröpfchen infolge Kondensation zu messen.

2.5 Datenerfassung

Alle Meßgeräte, die in Abschnitt 2.2 beschrieben wurden, besitzen Analogausgänge. Die Signale werden auf einer gemeinsamen Datenerfassungsanlage zusammengeführt, die die Abfrage der Kanäle und eine gewisse Vorverarbeitung automatisch vornimmt. Für die in diesem Bericht beschriebenen Ver-

suche waren 20 bis 30 Meßsignale zu erfassen, wobei die Abfrageintervalle unterschiedlich zwischen 1 s und 2 h lagen.

Die Meßwerte werden in zwei Gruppen eingeteilt und getrennt auf Lochstreifen ausgegeben. Dabei handelt es sich einerseits um die Daten, die zur Überwachung des Zustandes der Anlage dienen, sie werden auch zur Kalibrierung der Meßinstrumente benutzt (im folgenden CTR-Dateien genannt), andererseits werden die optischen und thermodynamischen Meßgrößen während der Experimente ausgegeben (im folgenden EX-Dateien genannt).

2.5.1 Übertragung der Versuchsdaten

Aus mehreren Gründen wird die Auswertung der Daten vom Versuchsstand getrennt auf der Rechenanlage der HDI durchgeführt:

- Während eines Versuches fallen ca. 8 k-bytes Meßdaten an, die zum Teil schwierig und zeitaufwendig zu physikalisch sinnvollen Meßgrößen umgerechnet werden müssen. Die Datenerfassungsanlage ist, obwohl im Prinzip zur Umrechnung fähig, jedoch mit der reinen Aufzeichnung der Daten voll ausgelastet.
- Die Daten sollen nach einem übersichtlichen System archiviert werden, um in Zukunft Auswertungen nach eventuell neuen Gesichtspunkten zuzulassen. Demzufolge muß ein direkter Zugriff auf das Datenarchiv jederzeit möglich sein.

Der Aufbau der Datenbank und der dazugehörige Arbeitsablauf sind zusammengefaßt Abb. 2.10 zu entnehmen.

Ein Teil der Daten, es sind die Thermoelementtemperaturen und die Betriebsspannungen der schnellen Temperatur, fallen direkt als physikalisch sinnvolle Meßgrößen an, die anderen Werte werden erst auf der Rechenanlage ermittelt. Nachdem der Lochstreifen auf der Rechenanlage eingelesen und vom ASCII- in den EBCDIC-Code übersetzt wurde, wird die Datei am Bildschirm kontrolliert, und Übertragungsfehler werden beseitigt.

CTR- und EX-Dateien werden getrennt behandelt und abgespeichert.

2.5.2. Umwandlung der Meßwerte

Die CTR-Dateien stehen nun jederzeit bereit, um neue Kalibrierfunktionen

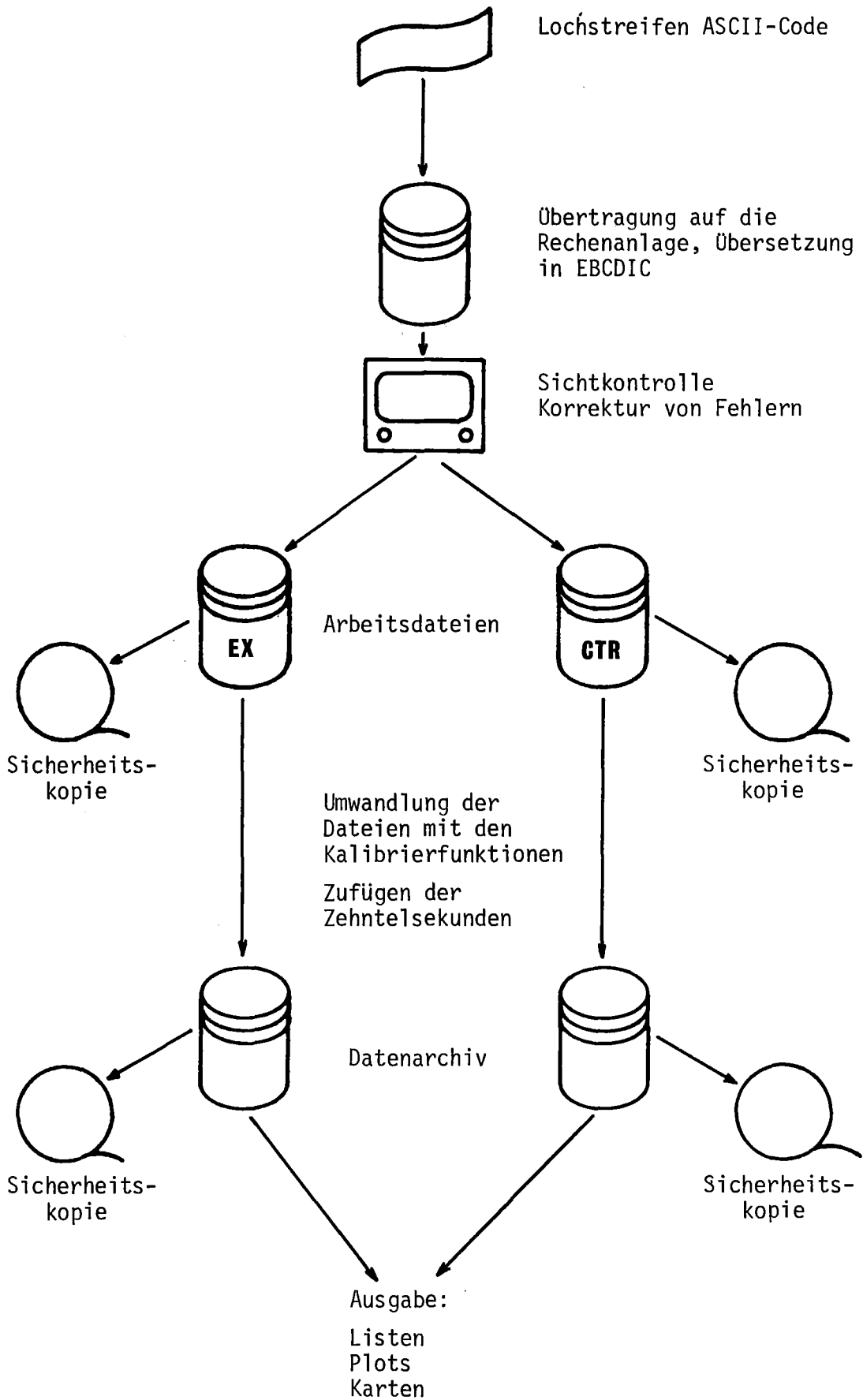


Abb.2.10: Schema der Datenerfassung und -verarbeitung

aufzustellen. Wie diese aussehen und dann angewendet werden, sei am Beispiel der Temperaturmessung am Kanal 12 erläutert. Kanal 12 enthält die Widerstandswerte eines der schnellen Temperaturfühler. Der Widerstand R des NTC-Fühlers hängt von der Temperatur T ab nach

$$R = R_0 \cdot \exp B \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right)$$

R_0 ist der Widerstand bei einer Referenztemperatur T_0 . Der B-Wert ist eine Materialkonstante. B und R_0 werden bei der Kalibrierung ermittelt. Die Schwierigkeit besteht darin, daß für den großen Temperaturbereich bei unseren Messungen der B-Wert nicht konstant ist, sondern

$$B(T) = B (1 + \beta (T - 373))$$

mit

$$\beta = 2.5 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1} \quad \text{für } T > 373 \text{ K}$$

$$\beta = 5 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1} \quad \text{für } T \leq 373 \text{ K}$$

Die Auflösung dieser Gleichungen nach T gelingt nur iterativ numerisch in folgendem Unterprogramm :

```
FUNCTION CAL12 (R, ICAL)
C
C ANALYSENFUNKTION T(R) FUER NTC M85.01
C UND NTC K19.03
C
IF (R.LE.100.) GOTO 40
IF (R.GE.50000.) GOTO 20
TN = 293.15
R20 = 12350.
B = 3547.
IF (ICAL.LE.802720000) GOTO 10
R20 = 12032.
B = 3187.
10 A = R20/EXP(B/TN)
T = B/ALOG(R/A)
BETA = 2.5E-4
IF (T.LT.373.15) BETA = 5.E-4
BT = B*(1.+BETA*(T-373.15))
A = R20/EXP(BT/TN)
T = BT/ALOG(R/A)
BT = B*(1.+BETA*(T-373.15))
A = R20/EXP(BT/TN)
T = BT/ALOG(R/A)
CAL12 = T-273.15
RETURN
20 CAL12 = 0.
RETURN
40 CAL12 = 222.222222
RETURN
E N D
```

Eingabewerte sind das Meßsignal R und das Datum der Messung ICAL (Jahr, Tag, Stunde, Minute), wobei durch die Datumsabfrage Änderungen am Meßinstrument und damit der Kalibrierfunktion automatisch berücksichtigt werden können. Meßsignale, die aufgrund irgendwelcher Fehler außerhalb des Meßbereiches liegen, machen durch außergewöhnliches Aussehen auf sich aufmerksam. Bei einem Teil der Versuche fielen jede Zehntelsekunde Meßdaten an. Eine Aufzeichnung dieser Zehntelsekunde war einerseits nicht möglich, andererseits für die Versuchsauswertung unbedingt notwendig. Da die Datenerfassung und -aufzeichnung nicht zur vollen Sekunde vom Sekunden- in den Zehntelsekundenrhythmus übergeht, muß die Zuordnung dieser Zehntelsekunde in einem Unterprogramm erfolgen.

Die so ermittelten Meßdaten stehen nun zur weiteren Auswertungen zur Verfügung. Erstellung von Listen, Plots oder auch Lochkarten zur Weiterverarbeitung auf einem Tischrechner ist jederzeit leicht möglich.

3. Versuchsdurchführung

Die Art der Versuchsdurchführung wird im wesentlichen durch die thermische Trägheit des Versuchsstands bedingt. Das Anfahren vom kalten Zustand bis zu einer optimalen Gleichmäßigkeit der Thermostatisierung erfordert ca. zwei Tage. Dieser Aufwand ist unverzichtbar, da wegen der starken Abhängigkeit des Wasserdampfsättigungsgehalts von der Temperatur (s. Abb. 1.2) keine Kaltstellen im Behälter zugelassen werden dürfen. Die Verringerung des nutzbaren Arbeitsbereichs der Expansion durch Kaltstellen ist in dem gleich folgenden Beispiel deutlich sichtbar.

Um trotz solch langer Anlaufzeiten zu einer effizienten Zeitausnutzung zu kommen, sind die Versuche in Serien gebündelt. Eine Serie (Bezeichnung Lxx) umfaßt dabei mehrere der nur kurz dauernden Expansionsversuche (Bezeichnung EXPxxx), die alle bei derselben Arbeitstemperatur durchgeführt werden.

3.1 Versuchsserien

Der Ablauf einer Versuchsserie ist wie folgt:

Der Versuchsstand wird auf die vorgesehene Temperatur aufgeheizt. Dabei wird von Anfang an eine überschüssige Menge Wasser eingebracht; der dadurch gebildete Sumpf am Behälterboden erreicht nach einiger Zeit ein Temperaturgleichgewicht mit der Gasphase. Die erreichbare Wasserdampfsättigung beträgt zwischen 95% und 98%.

Nach Erreichen des Temperaturgleichgewichts wird das Aerosol eingespeist. Beim Platinoxid- und Natriumnitrataerosol werden die Generatordaten aufgezeichnet. Bei den Versuchen mit UO_2 -Aerosol wird vor jedem Kondensationsversuch eine Filterprobe genommen.

Der erste Kondensationsversuch erfolgt jeweils unmittelbar (≤ 10 min) nach der Einspeisung des Aerosols. Dazu wird durch Abblasen des Drucks im Kompensator über eine Drossel (teilweise geöffnetes Handventil) eine definierte Expansionsrate des Hauptvolumens eingestellt. Während der Expansion werden folgende vier Größen gemessen: Volumenexpansion über Kompensatorstellung, Druck und Temperatur der Gasphase sowie die optischen Tröpfchendaten. Die Dauer der Expansion beträgt je nach Bedingungen zwischen 10 und 25 s. Die minimal mögliche Expansionsdauer

von 4 s wurde nie benutzt, da dazu die fest eingestellte Meßfrequenz des Datenerfassungssystems (10 Hz) erhöht werden müßte. Es wurde auch keine starke Abhängigkeit der Ergebnisse von der Expansionsrate beobachtet.

Bei den Versuchen mit UO_2 -Aerosol wird direkt nach der Expansion eine weitere Filterprobe des Aerosols genommen, um einen direkten Vergleich der Partikeldaten vor und nach der Kondensation zu ermöglichen.

Die Vorbereitung des Versuchsstands für ein weiteres Experiment erfordert mindestens eine Stunde. In dieser Zeit ist das Aerosol so weit gealtert, daß seine Parameter sich von denen beim vorangegangenen Versuch unterscheiden. Diese Dynamik des Aerosolsystems wird genutzt, um bei einer Temperatureinstellung und mit einem einmal erzeugten Aerosol mehrere Versuche durchzuführen, die sich dennoch in den Eigenschaften des Aerosols zum Zeitpunkt des Kondensationsversuchs unterscheiden.

Es war möglich, mit einem Aerosol bis zu acht Kondensationsexperimente mit UO_2 -Aerosol durchzuführen. Die Zeitabstände nehmen dabei stetig zu, sodaß eine solche Meßserie bis zu 30 Stunden Gesamtdauer erreichen kann. Bei NaNO_3 -Aerosol umfaßten die Serien bis zu 14 Versuche in 80 h.

Nach dem Ende einer solchen Serie ist jeweils sicherzustellen, daß das Aerosol vollständig aus dem Versuchsbehälter entfernt ist, damit Reste nicht die nächste Versuchsserie stören. Das kann entweder durch Abwarten des natürlichen Aerosolabbaus erfolgen (Wochenende) oder durch Auspumpen des Behälters.

Die nächste Versuchsserie wird dann entweder bei anderer Temperatur und/oder mit einem anderen Aerosol gestartet.

Als ein Zahlenbeispiel mag die Serie L 14 dienen: Der 14. Lichtbogen zur UO_2 -Aerosolerzeugung lieferte eine Massenkonzentration im Generator von $12,8 \text{ g/m}^3$. Das ist eine außerordentlich hohe Konzentration für das kleine Generatorvolumen. Davon wurde eine kleine Menge in den Versuchsbehälter geblasen, wo dann nach erfolgter Vermischung die Massenkonzentration noch $15,8 \text{ mg/m}^3$ betrug. Die zugehörige Anzahlkonzentration war 13 000/cm^3 und der mittlere geometrische Partikeldurchmesser $0,76 \text{ }\mu\text{m}$, also ziemlich groß als Folge der hohen Anfangskonzentration im Generator.

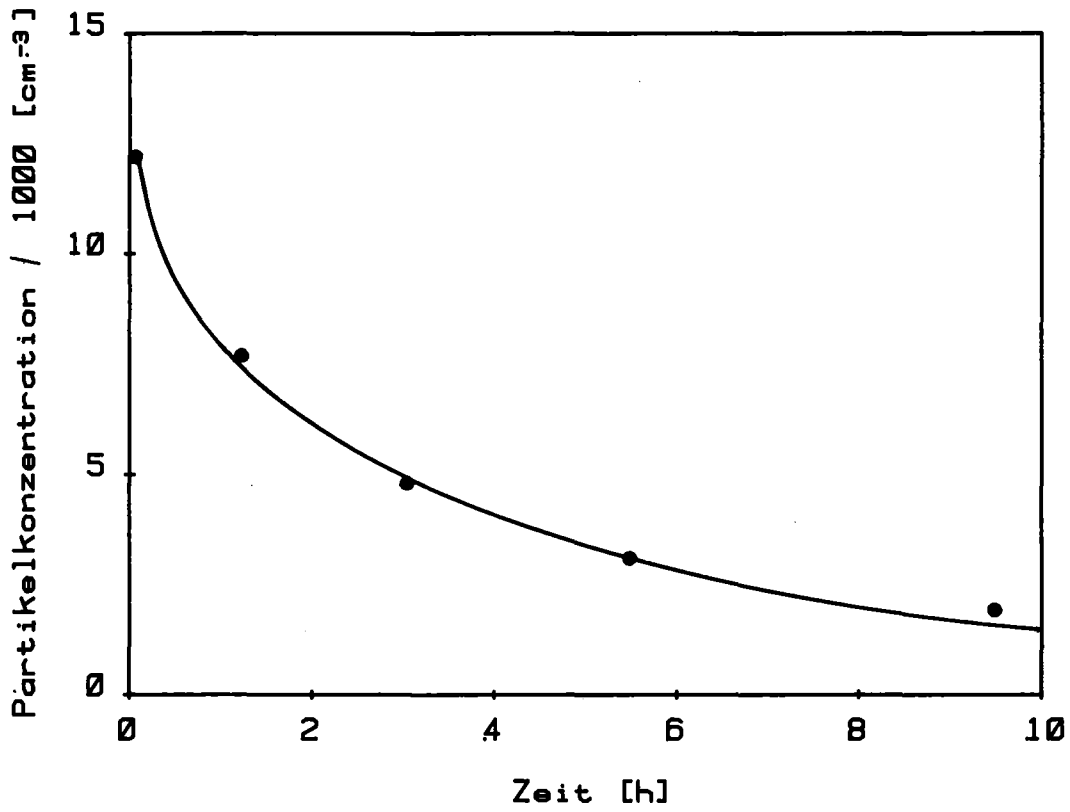


Abb. 3.1: Partikelkonzentration von UO₂-Aerosol im Versuchsstand über mehrere Kondensationsversuche.

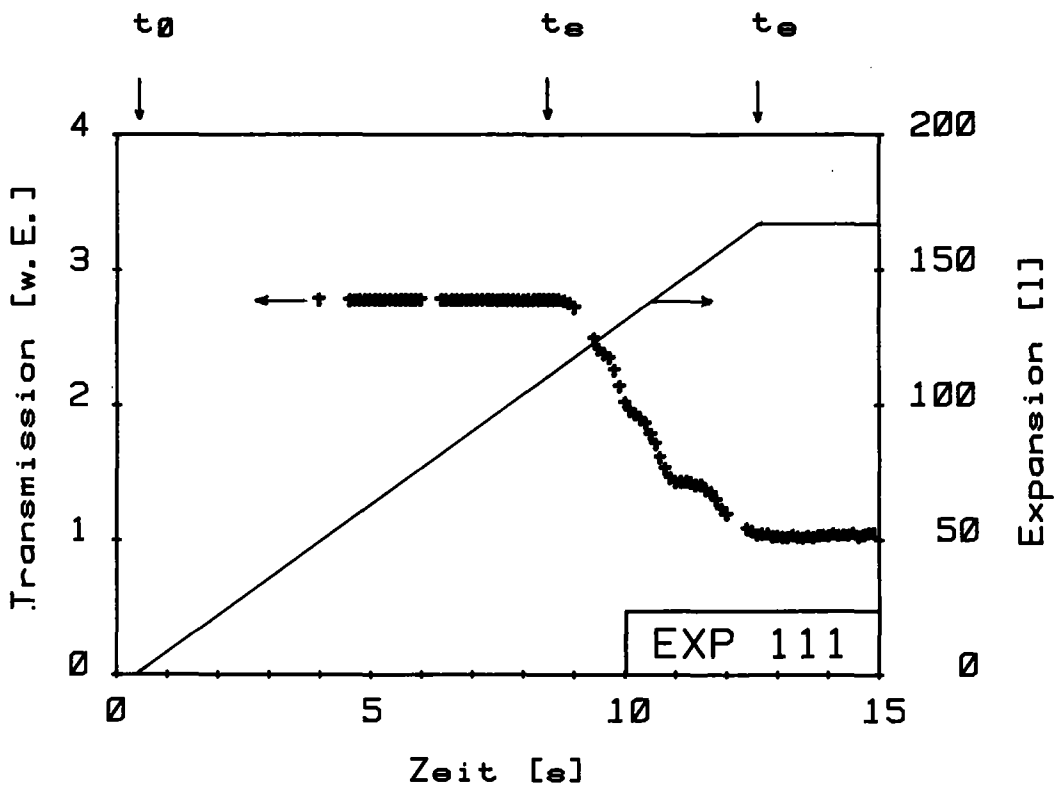


Abb. 3.2: Expansion und Transmissionsdaten während des Versuchs EXP 111.

Zu dieser Serie L 14 gehören die sechs Kondensationsversuche EXP 108 bis EXP 113, die alle mit einer Anfangstemperatur von 120 °C durchgeführt wurden. Die ersten fünf davon fallen in die ersten zehn Stunden der Serie. In Abb. 3.1 sind die Partikelkonzentrationen des UO_2 -Aerosols zu den Zeitpunkten der ersten fünf Kondensationsmessungen eingetragen. Wegen der großen Partikeldurchmesser ist der Abbau zwischen den Versuchen ziemlich stark. Die ebenfalls eingezeichnete Kurve stellt eine Nachrechnung des Aerosolabbaus mit dem NAUA-Modell dar. Beim letzten Versuch EXP 113, genau 24 h nach Beginn der Serie L 14, waren nur noch weniger als 500 P/cm³ luftgetragen. Die Serie wurde anschließend beendet.

3.2 Ein Beispiel für einen Kondensationsversuch

Der Versuch EXP 111 aus der eben beschriebenen Serie L 14 soll als Beispiel für die Vorgänge während eines Expansionsversuchs herangezogen werden. Abb. 3.2 zeigt den Expansionshub als Funktion der Meßzeit (durchgezogene Kurve). Zum Zeitpunkt $t = 0$ wird das Expansionsventil betätigt; mit einer kurzen Öffnungsverzögerung von $t_0 = 0.5$ s beginnt die Expansion, die von Anfang bis Ende linear mit der Zeit verläuft. Aus dem Expansionshub von 160 l und der dazu benötigten Zeit von 12,1 s errechnet sich die Expansionsrate zu 13,2 l/s.

Die Expansion führt zu einer zunächst trockenadiabatischen Abkühlung der Atmosphäre, meßbar über Druck- und Temperaturabfall. Nach Erreichen der Sättigung beginnt der Dampf zu kondensieren, Druck- und Temperaturabfall verlangsamen sich [19]. Obwohl die schnelle Druckmessung (s. Abschnitt 2.2) den Knick in der Druckkurve erfaßt, ist dieser jedoch zu schwach ausgeprägt, um zur genauen Bestimmung des Zeitpunkts benutzt zu werden, an dem das System gerade gesättigt ist. Mit dem Beginn der Kondensation wird aber die Transmission der Lasermeßstrecke verringert. Die Meßpunkte in Abb. 3.2 sind diese Transmissionsdaten, der Beginn der Tröpfchenbildung ist sehr deutlich bei $t_s = 8,6$ s lokalisiert.

Diese Zeit, bzw. die zugehörige Expansion um 114 l wird benötigt, um die Wasserdampfsättigung im Behälter auf 100% zu bringen. Erst danach werden Tröpfchen gebildet und die Transmission des Laserstrahls nimmt ab. Der trockenadiabatische Vorlauf bei den Versuchen EXP 108 bis 113 war jedesmal ungewöhnlich lang, was auf eine Kaltstelle im Behälter

schließen läßt. Im allgemeinen genügen 50 ... 80 l zum Erreichen des Sättigungszustands (siehe z.B. Abb. 5.1.).

Das Ende des Experiments wird erreicht, wenn nach $t_e = 12,6$ s der Kompensator gegen seinen Endanschlag fährt.

Es ist bemerkenswert, daß der Expansionshub linear über der Zeit verläuft. Damit ist es möglich, die Expansion als unabhängige Variable für alle gemessenen Funktionen durch einfache Skalierung aus den Meßzeiten zu gewinnen. Während die Expansionsdauer von Zufälligkeiten der Versuchsdurchführung abhängt, ist der Gesamthub bei allen Experimenten ungefähr gleich. Die Expansion ist somit als Abszisse für alle Darstellungen wesentlich besser geeignet als die Meßzeit. Die Abb. 4.4 im nächsten Kapitel zeigt dieselben Transmissionsdaten wie in Abb. 3.2, nur normiert auf die Anfangsintensität I_0 und als Funktion der Expansion.

Es bleibt zu erwähnen, daß Gastemperatur und Druck auch während der Expansion gemessen werden. Das geschieht in dem Beispiel alle 3 s und führt zu den Lücken in den Transmissionsmeßdaten, da das Datenerfassungsgerät immer nur einen Meßwert alle 0.1 s abfragt. Die Druck- und Temperaturwerte werden nicht mit größerer Zeitauflösung benötigt, da sie sehr gut mit dem Rechenmodell interpoliert werden können (s. Abschnitt 4.3).

4. Auswertung der Aerosolmessungen

Die Verarbeitung und Archivierung der thermodynamischen Meßdaten wurde in Abschnitt 2.5 beschrieben. In diesem Kapitel soll nur die Auswertung der Aerosolmeßdaten beschrieben werden, die sich aus Feststoffpartikelproben, Tröpfchenmeßdaten und Nachrechnungen mit dem Modell zusammensetzt.

4.1 Auswertung der Filterproben

Filterproben wurden, wie bereits erläutert, nur bei den UO_2 -Versuchen genommen. Abb. 4.1 zeigt die Oberfläche eines Filters bei schwacher Vergrößerung. Diese Aufnahme wird nur gezeigt, um darauf hinzuweisen, daß die Filter ungleichmäßig belegt sind. Die Partikeln liegen haupt-

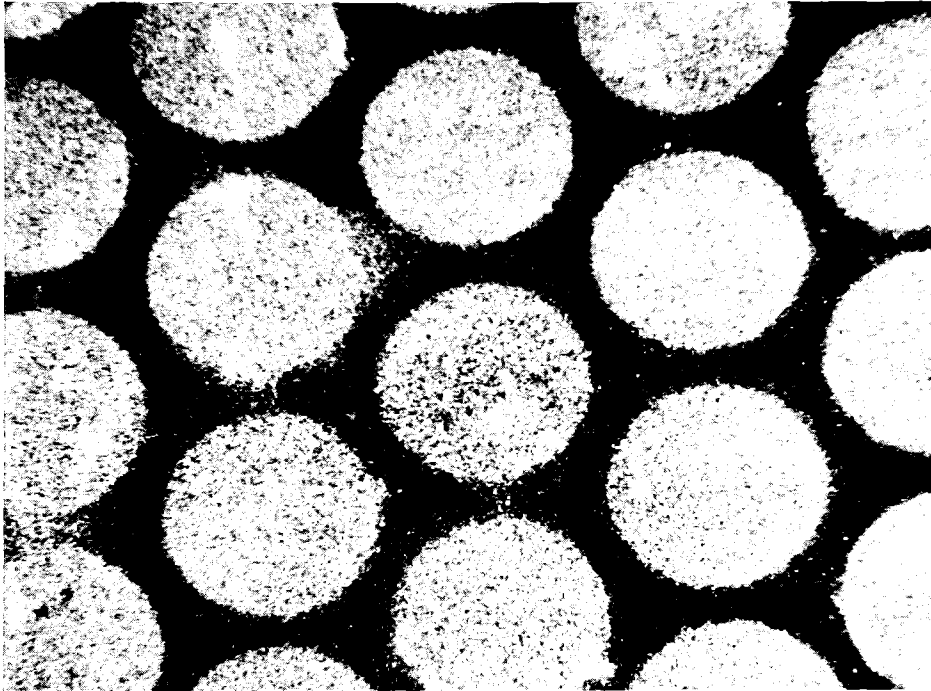


Abb. 4.1: Oberfläche eines Filters mit UO_2 -Aerosol
Vergrößerung 53

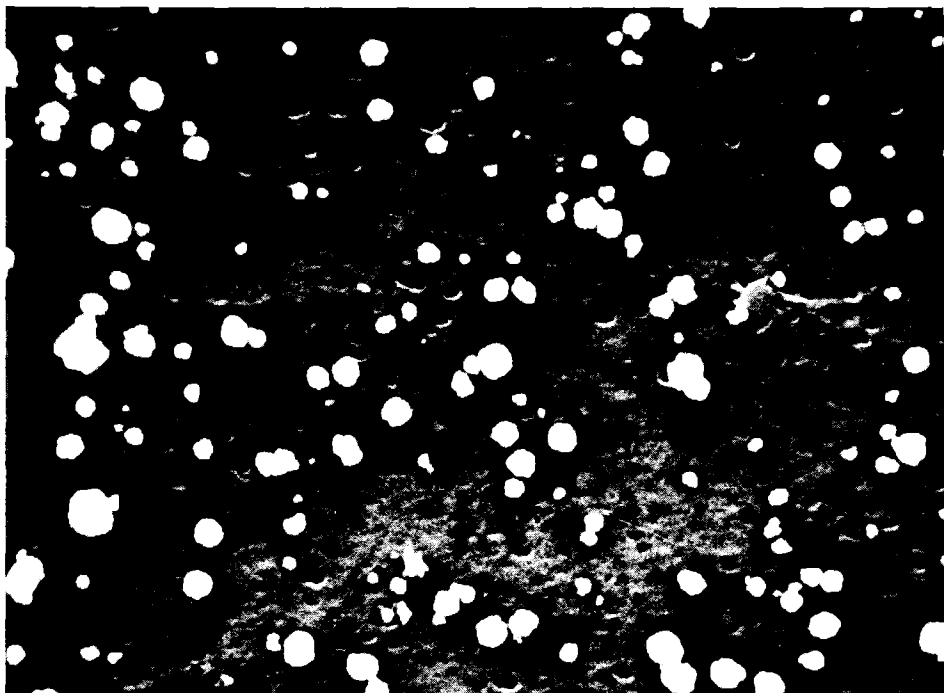


Abb. 4.2: UO_2 -Aerosol aus dem Versuchsstand
Vergrößerung 3300

sächlich im Bereich der Löcher der Filtertragplatte, jedoch werden sehr große Partikeln auch zwischen den Löchern gefunden. Bei der Auszählung der Partikeln ist auf diese ungleichmäßige Belegung zu achten.

Abb. 4.2. zeigt ein rasterelektronenmikroskopisches Foto der Probe, die vor dem Versuch EXP 111 genommen wurde. Auf die Form der Partikeln im Unterschied zu Abb. 2.9. wird im nächsten Kapitel eingegangen. Die Partikeln auf dem Foto werden nach Durchmessern sortiert und gezählt und daraus eine Größenverteilung erstellt. Abb. 4.3. zeigt die zugehörige Größenverteilung im Wahrscheinlichkeitsnetz, aufgetragen über dem Krumbeindurchmesser *). Es ergibt sich ein mittlerer geometrischer Durchmesser von $d_g = 0.61 \mu\text{m}$ und eine geometrische Standardabweichung von $\sigma = 1.55$.

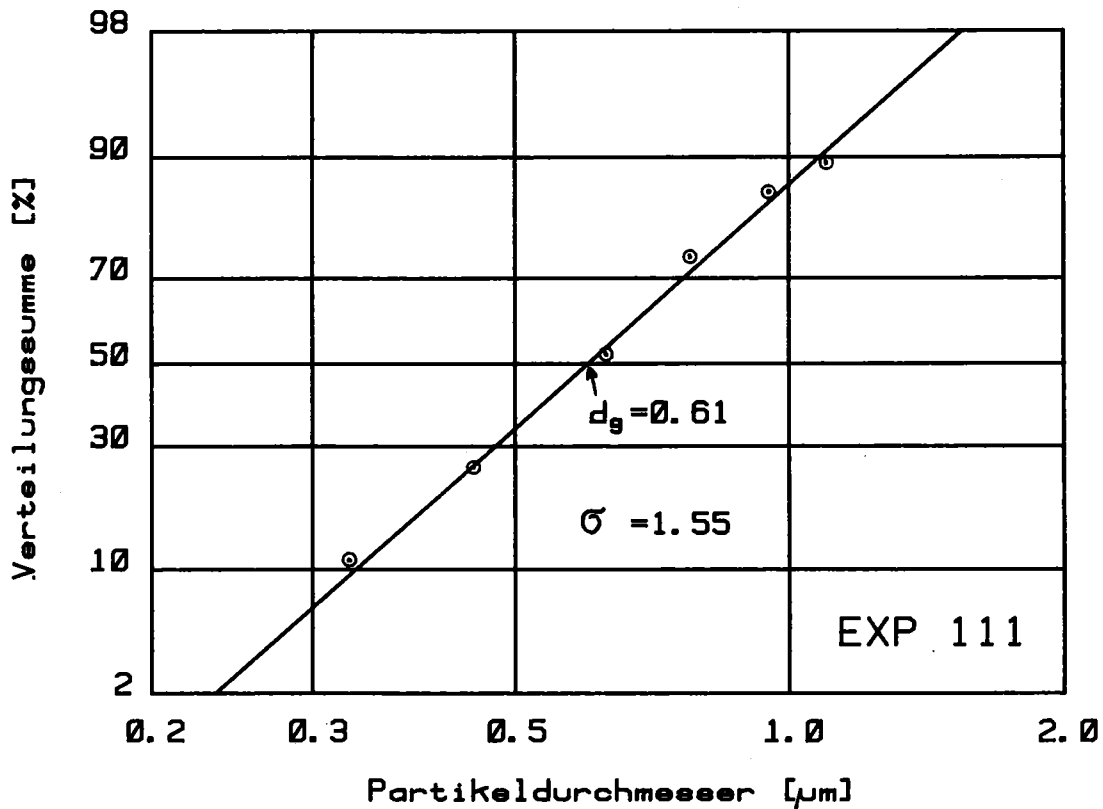


Abb. 4.3.: Partikelgrößenverteilung des UO_2 -Aerosols bei EXP 111 dargestellt im Wahrscheinlichkeitsnetz

*) Zum Krumbeindurchmesser und zu allen anderen Definitionen von Aerosolparametern siehe Anhang.

Durch Auszählen der Probe und Normierung auf die Probenfläche und das Probenahmevolumen errechnet sich ferner die Anzahlkonzentration des Aerosols zu $C_n = 3200/\text{cm}^3$. Zur Bestimmung der Dichte der Partikeln ist eine zusätzliche Massenangabe notwendig. Die Masse der Probe kann gravimetrisch bestimmt werden, wenn genügend Aerosol gesammelt wurde. Eine empfindlichere und vor allem spezifischere Methode ist die Fluoreszenzanalyse, die mit kleinen Stückchen der Filterprobe auskommt. Die Fluoreszenzanalyse liefert allerdings für UO_2 systematisch zu kleine Werte; es ist daher eine Korrektur erforderlich, die anhand der stärker belegten Proben durch Vergleich mit Wägungen erfolgt. Es ergab sich als Mittelwert aus allen Proben für die effektive Dichte der UO_2 -Partikeln

$$\rho_{\text{eff}} = 4.7 \text{ g/cm}^3 \quad (4.1.)$$

Dieser Wert ist für die Anwendung im NAUA-Modell sehr wichtig (s. Kapitel 6). Die effektive Dichte ist

$$\rho_{\text{eff}} = \frac{6 m}{\pi} \cdot \frac{1}{d^3}, \quad (4.2.)$$

wo m die Partikelmasse und d der für die Bestimmung zugrundegelegte Partikeldurchmesser ist, im eben diskutierten Beispiel also der Krumbeindurchmesser der Aggregatpartikeln.

Partikelgrößenverteilung, effektive Dichte, Partikelkonzentration und Massenkonzentration des Aerosols bilden einen vollständigen Satz von Parametern für das beim Beginn des Kondensationsversuchs vorliegende System.

4.2. Auswertung der Tröpfchenmeßdaten

Die Transmission sowie ihr Komplement, die Extinktion, sind integrierende Meßgrößen, d.h. die Lasermessung durch den Tröpfchennebel hindurch liefert ein durchschnittliches Signal von sehr vielen Tröpfchen, das sowohl von den Tröpfchengrößen als auch von der Tröpfchenkonzentration abhängt.

Die Auswertung der Daten gelingt nur, weil zwei wesentliche Vereinfachungen vorliegen: Die Zahl der Tröpfchen, nachdem sie einmal gebildet sind, ist während des ganzen Versuchs konstant, und die Tröpfchengrößenverteilung ist monodispers.

Diese beiden Behauptungen sollen erst später bewiesen werden, nachdem das Auswerteverfahren erläutert worden ist; der Beweis ist dann viel einfacher.

In Abb. 4.4. sind die Transmissionsmeßdaten von EXP 111 auf die Eingangintensität I_0 normiert und über dem Expansionshub aufgetragen. Es läßt sich zeigen, daß im Bereich geringer Volumenexpansion, wie sie hier gegeben ist, die kondensierte Masse dem Expansionshub direkt proportional ist, d.h. in Abb. 4.4. ist die Abszisse ab dem Beginn der Kondensation bei 114 l der Tröpfchenmasse proportional und damit auch der (dritten Potenz der) Tröpfchengröße. In Abb. 4.4. ist jeder Transmissionsmeßwert - wegen der Monodispersität - direkt einer Tröpfchengröße zugeordnet, die allerdings noch bestimmt werden muß. Dazu verhilft folgende theoretische Überlegung:

Die Transmission des Laserstrahls durch das Tröpfchenaerosol kann in Analogie zum Lambert-Beer'schen Gesetz formuliert werden:

$$I = I_0 \cdot \exp - (\alpha \cdot C_n \cdot b') \quad (4.3.)$$

oder

$$\ln (I_0/I) = \alpha \cdot C_n \cdot b' \quad (4.4.)$$

C_n ist die Tröpfchen(anzahl)konzentration und b' eine Konstante, die u.a. die Weglänge des Strahls im Aerosol enthält. α ist der Extinktionsquerschnitt der Partikeln. Für ein einzelnes Wassertröpfchen kann der Extinktionsquerschnitt nach der Mie-Theorie sehr genau berechnet werden [20] er hängt von der Wellenlänge des extingierten Lichts und von der Tröpfchengröße ab. Abb. 4.6. zeigt die Tröpfchengrößenabhängigkeit bei der Laser-Wellenlänge $\lambda = 633$ nm. In der Abbildung ist die Ordinate in Einheiten von α^2 geteilt.

In dieser Darstellung ist deutlich zu erkennen, daß die Funktion sich aus folgenden Anteilen zusammensetzt:

$$\sqrt{\alpha(d)} = G(d) + F_1(d) + F_2 \quad (4.5.)$$

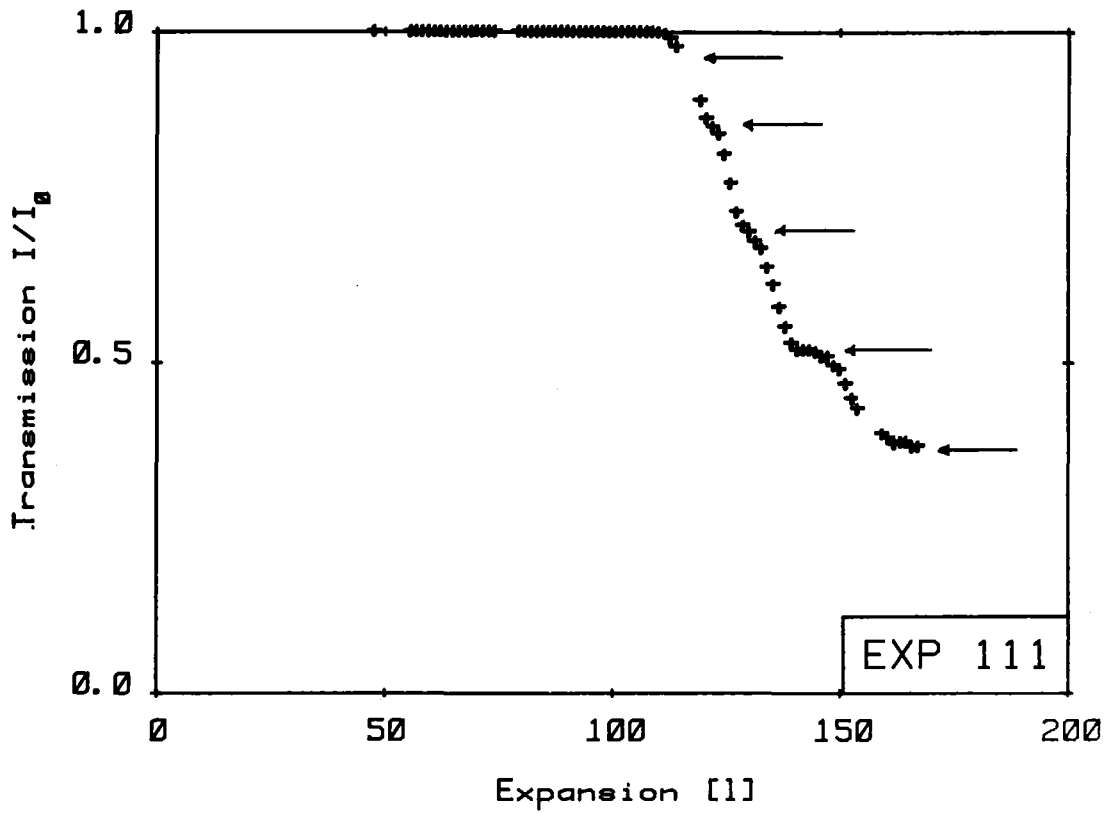


Abb. 4.4: Normierte Transmissionsdaten beim Versuch EXP 111

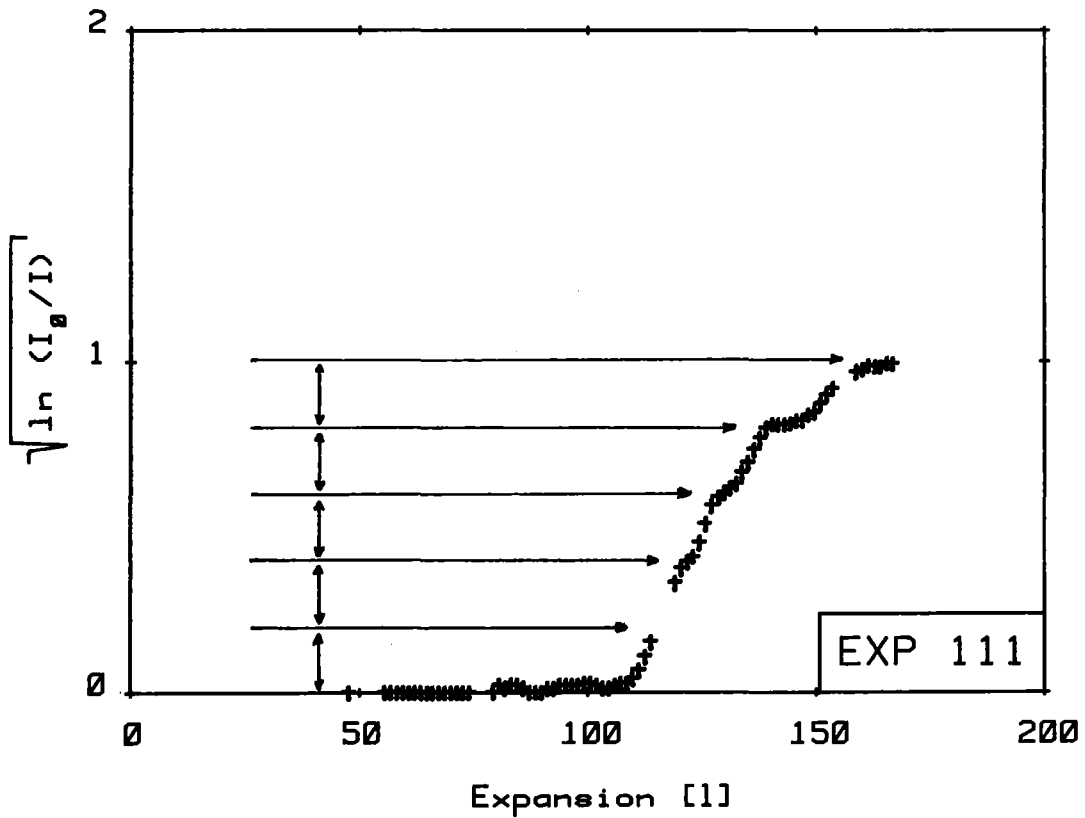


Abb. 4.5: Umformung der Meßdaten des Versuchs EXP 111

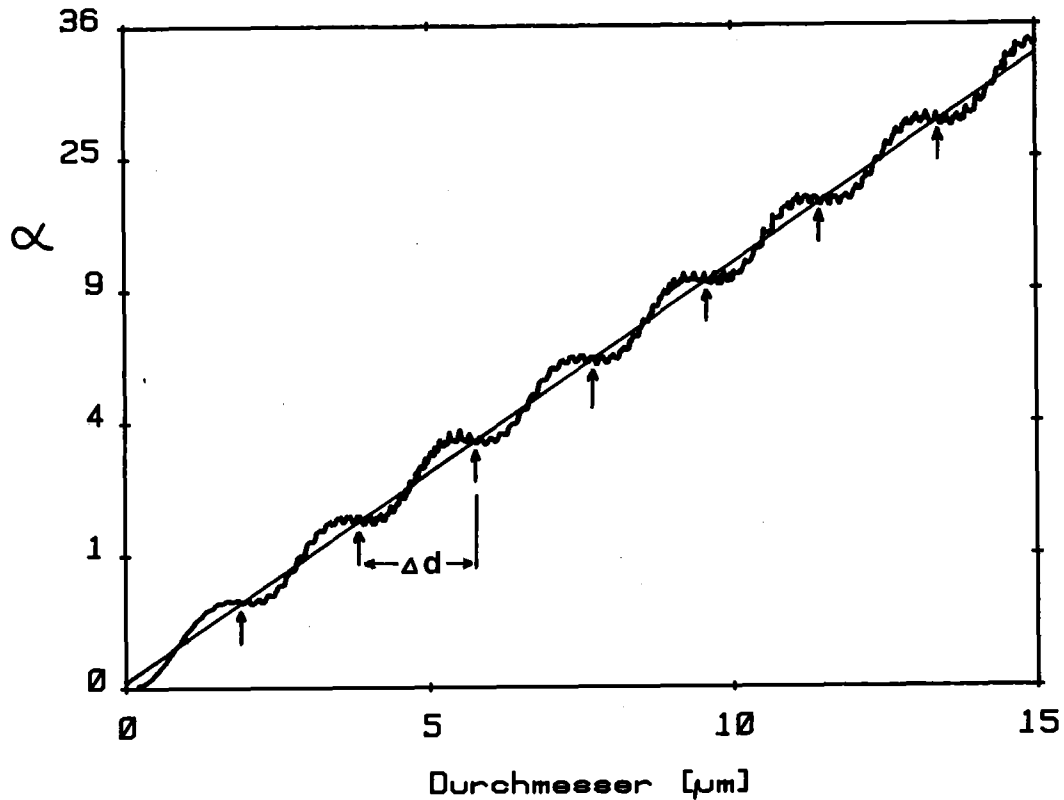


Abb. 4.6: Berechneter Extinktionsquerschnitt α als Funktion der Tröpfchengrösse, Wellenlänge 633 nm

$G(d)$ ist linear (gerade Linie in Abb. 4.6.) und drückt die Abschattung des Lichts aus, die der projizierten Fläche des Tröpfchens proportional ist ($G(d) \sim d^2$).

$F_1(d)$ ist ein Interferenzterm erster Ordnung, der die Interferenz des durch die Partikel hindurchgehenden mit dem an der Partikel vorbeigehenden Licht ausdrückt. Es ist

$$F_1(d) = -a \cdot \sin \frac{2\pi d}{\Delta d} \quad (4.6.)$$

Dieser Term erzeugt die grobe Wellenstruktur in der Kurve; im vorliegenden Fall ist $\Delta d = 1.908 \mu\text{m}$.

F_2 ist ein Interferenzterm höherer Ordnung, der die feinen Strukturen und die Verschiebung in α -Richtung verursacht. Die feine Struktur kann bei den Messungen nicht aufgelöst werden, sie ist sogar feiner als es die Abb. 4.6. wiedergeben kann. Für die folgende Diskussion soll dieser Beitrag vernachlässigt werden.

Die Brechungsoszillationen um den $G(d)$ -Term sind für die Auswertung der Messungen sehr wichtig. Setzt man Gl. 4.5. in Gl. 4.3. ein, so erhält man eine "in Stufen" abfallende e -Funktion, die in der Form den Meßdaten in Abb. 4.4. entspricht. Wesentlich deutlicher wird der Zusammenhang, wenn man die Ordinate von Abb. 4.4. umformt und die Meßdaten als $\sqrt{\ln(I_0/I)}$ aufträgt, wie in Abb. 4.5. Wegen Gln. 4.3. und 4.5. müssen die Ordinaten der berechneten Kurve in Abb. 4.6. und der Meßkurve in Abb. 4.5. nun proportional sein. In der Tat erkennt man die äquidistanten Stufen der Kurven in beiden Abbildungen. Sogar die erste Stufe in der Meßkurve, die in Abb. 4.4. noch nicht erkennbar ist, wird nun nach der Umformung in Abb. 4.5. zwingend lokalisiert. Nach Abb. 4.6. sind die Stufen festen Werten der Tröpfchengröße zugeordnet, die auch für die Messung gelten. Damit ist die Identifizierung der Stufen und die Zuordnung der Tröpfchendurchmesser zu den Meßdaten eindeutig durchführbar.

Aus Gl. 4.4. und 4.5. folgt ferner

$$\sqrt{\ln(I_0/I)} \approx G(d) + F_1(d) = b \cdot d + F_1(d) \quad (4.7.)$$

Der Proportionalitätsfaktor b enthält neben der Wurzel aus der Tröpfchenkonzentration nur noch Konstanten, die für alle Experimente gleich sind. Nach einmaliger Kalibrierung kann daher aus dem Stufenabstand die jeweilige Tröpfchenkonzentration berechnet werden. Die Auswertung der Meßdaten nach diesem Schema liefert damit sowohl die (monodispersen) Tröpfchengrößen als Funktion des Expansionshubs als auch die (während der Expansion konstante) Tröpfchenkonzentration. Damit sind alle Parameter des Tröpfchenaerosols bekannt. Es bleibt nun nur noch die Voraussetzung zu beweisen, daß während des Expansionsvorgangs die Tröpfchenkonzentration konstant ist, und daß die Tröpfchengrößenverteilung monodispers ist.

Die Konstanz der Tröpfchenkonzentration nach Beginn der Kondensation folgt logisch aus dem in Abschnitt 1.2. diskutierten Verhalten des kritischen Radius. Nach vollständigem Einsetzen des Kondensationsprozesses kondensiert der Dampf nur noch an den gebildeten Tröpfchen. Abbaumechanismen der Tröpfchen können für die wenigen Sekunden des Versuchs vollständig vernachlässigt werden. Es bleibt nur die Verdünnung des Aero-

sols durch die Expansion des Volumens. Der maximale Expansionshub beträgt 6 %, davon wird nur ein Teil für die Kondensation genutzt, eine Abweichung von der Annahme konstanter Tröpfchenkonzentration ist somit für diese Diskussion vernachlässigbar. In der Nachrechnung der Versuche (s. Abschnitt 4.3.) wird der Verdünnungseffekt jedoch berücksichtigt.

Zur Monodispersität der Tröpfchen ist zu sagen, daß im Sinne der Definition die Tröpfchen nicht jederzeit monodispers sind. Es soll vielmehr gezeigt werden, daß die Meßsignale von den Tröpfchen derart sind, daß sie sich von der monodispers berechneten Kurve in Abb. 4.6. nicht signifikant unterscheiden.

Dazu ist in den Gleichungen der Wert $\alpha(d)$ zu ersetzen durch den Ausdruck

$$\int \alpha(d) \cdot n(d) dd \quad (4.8)$$

wobei $n(d)$ die normierte Tröpfchengrößenverteilung ist.

Hierbei ist $n(d)$ während des Kondensationsvorgangs nicht konstant. Denn im Mittel kondensiert an allen in den Prozeß involvierten Partikeln die gleiche Dampfmenge. Unterschiede in den anfänglichen Partikelgrößen werden daher umso unbedeutender, je länger die Kondensation andauert. D.h. selbst ein anfänglich polydisperses Aerosol wird durch Kondensation ausreichender Dampfmen gen immer mehr zu einem monodispersen Tröpfchenaerosol. Dies wird in Abb. 4.7. veranschaulicht. Es sind Tröpfchengrößenverteilungen dargestellt, die sich aus einer relativ breiten Anfangsverteilung durch gleichmäßige Addition von Masse zu allen Tröpfchen ergeben. Der Parameter ist das Vielfache der Ausgangsmasse, und die Größenverteilungen sind jedesmal auf den gleichen Maximalwert normiert. Man sieht, wie die Größenverteilung, die anfangs im Vergleich zu unseren Experimenten übertrieben polydispers gewählt wurde, schon sehr schnell schmal wird.

Setzt man diese Verteilungen in Gl. 4.8. ein, so ergeben sich die in Abb. 4.8. punktiert eingezeichneten Werte. Zum Vergleich sind die Werte aus Abb. 4.6. als durchgezogene Linie ebenfalls dargestellt. Der Abbildungsmaßstab mußte vergrößert werden, um die Abweichungen überhaupt sichtbar zu machen.

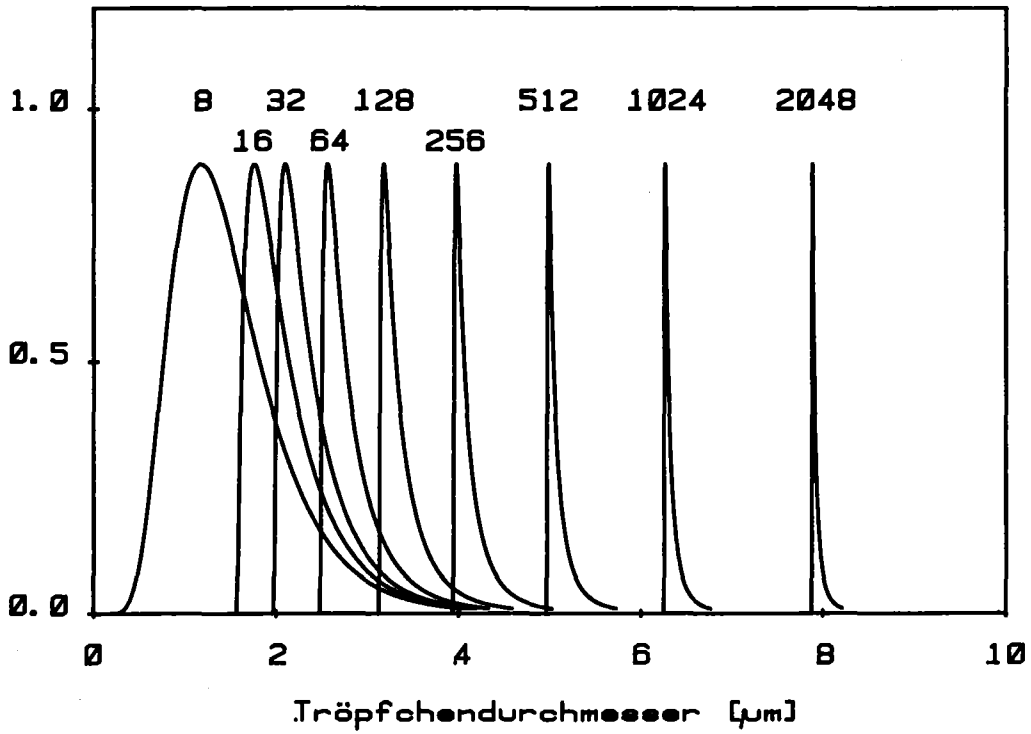


Abb. 4.7: Änderung der Verteilungsbreite der Tröpfchengrößenverteilung beim Kondensationsprozeß (schematisiert).

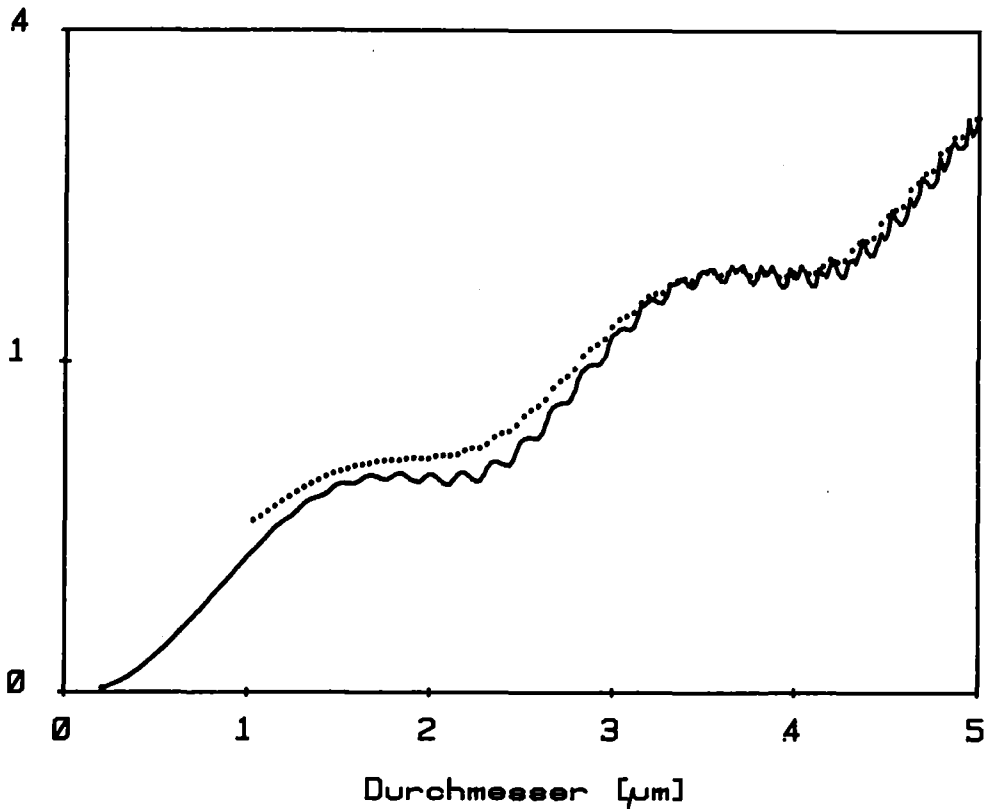


Abb. 4.8: Extinktion von Einzeltröpfchen und Extinktion eines Tröpfchenkollektivs beim Kondensationsprozeß unter Verwendung der Verteilungen aus Abb. 4.7.

Man sieht, daß sich der Extinktionsquerschnitt des Tröpfchensystems bei den Versuchen von dem monodispersen Tröpfchen nur am Beginn der Kurve etwas unterscheidet. Bereits nach einer Periode des Brechungsterms (Gl. 4.6.) sind die beiden Kurven für die Messung ununterscheidbar. Insbesondere ist die Stufenstruktur voll erhalten, so daß man die Stufen ihren monodispersen Tröpfchendurchmessern zuordnen, und aus dem Stufenabstand die Tröpfchenkonzentration nach Gl. 4.4. und 4.7. berechnen kann.

4.3. Vergleich von Messung und Modellrechnung

Die aus den Versuchen ermittelten Parameter des Aerosols von dem Beginn der Kondensation, sowie die zeitabhängigen Durchmesser und die Konzentration der Tröpfchen stellen einen vollständigen Datensatz zur Prüfung der Modellgleichung 1.3. dar. Das praktizierte Verfahren besteht darin, die Anfangs-Aerosolparameter zusammen mit den thermodynamischen Anfangswerten in das Rechenmodell einzulesen, das dann die Entwicklung des Tröpfchensystems berechnet. Danach wird das so berechnete mit dem gemessenen Tröpfchensystem verglichen. Als einziger Fitparameter dient der Formfaktor f_m aus Gl. 1.3. Das hierfür verwendete Rechenprogramm NAUEX [21] ist eine vereinfachte Version des NAUA-Codes. Sie entsteht durch Weglassen der Koagulation und der Abscheideprozesse, die während der kurzen Dauer eines Expansionsexperiments vernachlässigt werden können. NAUEX ist der Geometrie des Versuchsstands angepaßt und berechnet insbesondere auch die Veränderung von Volumen, Temperatur, Druck und Sättigung als Funktion der Expansion. Die Berechnung des Kondensationsvorgangs erfolgt jedoch genau wie im NAUA-Code nach Gl. 1.3.

Das Ergebnis der Rechnung sind außer den mit dem Experiment vergleichbaren thermodynamischen Änderungen die Tröpfchengrößenverteilung und Tröpfchenkonzentration als Funktion der Expansion, sowie die Daten des vom Kondensationsprozeß nicht erfaßten Aerosolanteils.

Wie bereits in Kapitel 1 erwähnt, reagiert das Verhältnis von Tröpfchenzahl zur Zahl der anfangs vorhandenen Partikeln, die "Ausbeute des Kondensationsprozesses", sehr empfindlich auf Änderungen von f_m . Die

Iteration der Anpassungsrechnungen wird dadurch sehr vereinfacht, da man nur die berechnete Tröpfchenzahl mit der gemessenen vergleichen muß. Dieses Verfahren führte nach anfänglichem Einüben sehr schnell - mit durchschnittlich drei Iterationsschritten - zum Ziel. Nach Anpassung der "Ausbeute" können dann alle anderen Meßdaten mit den berechneten Werten verglichen werden. Es ergaben sich in keinem Fall unerklärliche Besonderheiten, so daß die Ergebnisse der Nachrechnungen durchweg als gültig angesehen werden können.

5. Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Messungen zusammengefaßt. Dies geschieht generell im Hinblick auf die Prüfung der Gl. 1.3. und auf deren Verwendung im NAUA-Modell. Es ergibt sich sehr schnell ein einfaches Bild, so daß sich eine lange Diskussion erübrigt. Insbesondere brauchen dann auch die Versuche mit Natriumnitrat nicht ausführlich behandelt zu werden.

5.1. Ergebnisse der Versuche mit Plationoxidaerosol

Mit Plationoxidaerosol wurden insgesamt 49 Kondensationsversuche durchgeführt. Davon entfallen die ersten 31 auf Vorversuche, die zur Erprobung und Verbesserung der Experimentiertechnik notwendig waren. Ab EXP 032 sind die Versuche nach dem gleichen Schema durchgeführt und voll auswertbar.

In der Tabelle 5.1. sind die wesentlichen Daten aller Versuche zusammengestellt. Es sind dies neben der Identifikationsnummer des Experiments die Taupunkttemperatur T_s , die mittleren Massendurchmesser \overline{d}_m und Anzahlkonzentration C_n^* des Aerosols vor der Kondensation sowie die Anzahlkonzentration der Tröpfchen C_n und die Tröpfchenmassenkonzentration C_m am Ende der Expansion. Die Standardabweichung der Verteilungen liegen übereinstimmend aus Messung und Nachrechnung des Aerosolverhaltens im Bereich $1,3 < \sigma < 1,8$. Unter Berücksichtigung der kleinen Werte von \overline{d}_m folgt aus den Überlegungen in Abschnitt 4.2. (Abb. 4.8.), daß die Tröpfchengrößen und -konzentrationen sehr genau bestimmt werden können.

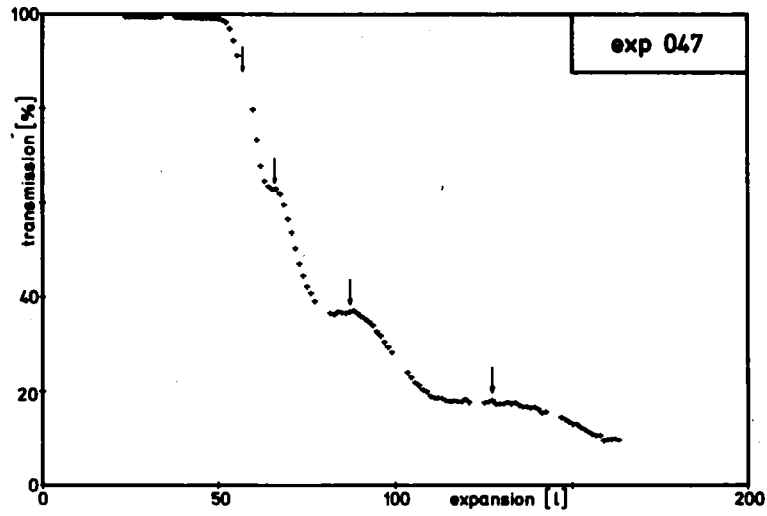


Abb. 5.1: Normierte Transmissionsdaten beim Versuch EXP 047

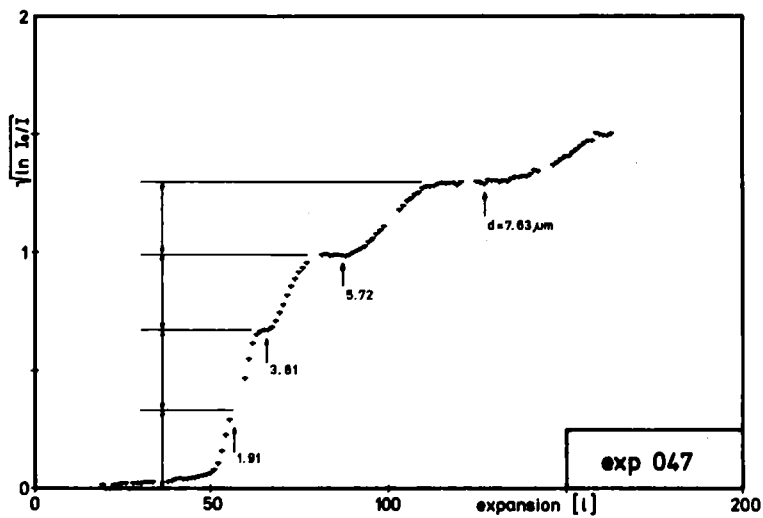


Abb. 5.2: Umformung der Meßdaten des Versuchs EXP 047

Versuch		Aerosol		Tröpfchen		f_m
Nr.	T_s °C	\bar{d}_m nm	C_n^* 10 ³ P/cm ³	C_n 10 ³ T/cm ³	C_m g/m ³	
32	94.0	53	24	7	2.35	0.51
33	94.0	66	9.5	2.5	2.3	0.62
34	94.0	76	7	2	2.3	-
35	95.2	100	1.6	1.5	2.5	0.60
36	95.3	49	31	4	2.4	0.70
37	94.3	98	2	2.5	2.4	-
39	94.1	52	100	8	2.4	0.67
40	94.0	72	32	6	2.4	0.66
41	103.4	130	4.4	2.3	2.5	-
42	103.5	-	60	6.5	2.65	-
43	103.6	70	8	6	2.63	-
46	125.4	-	> 200	40	4.4	-
47	123.1	-	~ 28	13	3.7	-
48	122.5	48	37	8	3.4	0.45

Tabelle 5.1: Ergebnisse der Versuche mit Platinoxidaerosol

ohne daß sie durch die Breite der Anfangsverteilung gestört werden. Als Beispiel sollen die Abb. 5.1. und 5.2. dienen. Diese Abbildungen sind analog zu den Abb. 4.4. und 4.5., jedoch ist die Struktur der Meßkurven hier noch deutlicher als bei den Messungen mit UO_2 -Aerosol.

Der Vergleich der Tröpfchenkonzentration C_n mit der Ausgangskonzentration C_n^* zeigt, daß die "Ausbeute" C_n / C_n^* sehr verschieden sein kann. Sie reicht von weniger als 10 % (EXP 039) bis zu fast 100 % (EXP 035).

Die Massenkonzentration C_m am Ende der Expansion ist im wesentlichen nur von der Temperatur abhängig, da der Expansionshub immer gleich war.

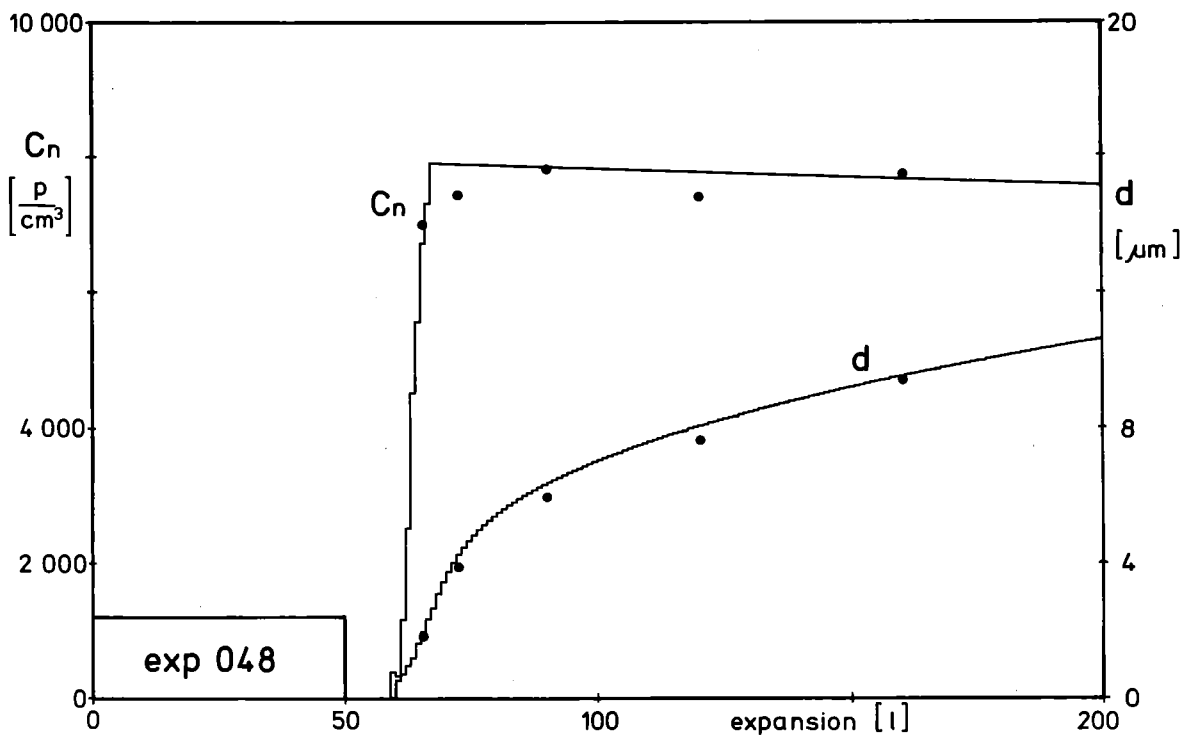


Abb. 5.3.: Vergleich von gemessenen mit berechneten Tröpfchenkonzentrationen und Tröpfchendurchmessern

Als Beispiel für die Nachrechnung mit NAUEX sind in Abb. 5.3 Tröpfchenkonzentration C_n und Tröpfchendurchmesser d als Funktion der Expansion für den Versuch EXP 048 gezeigt. Die ausgezogenen Kurven sind die berechneten Funktionen. Die Punkte sind die Meßwerte an den Stufen der Transmissionskurve. Man sieht, daß die einzelnen Punkte ausreichen, um die Rechnung zu prüfen. Es ist nicht notwendig, alle Transmissionsdaten auszuwerten.

Die leichte Abnahme von C_n ist durch die Vergrößerung des Volumens bei der Expansion bedingt.

Die Abb. 5.3. zeigt den Vergleich zwischen Messung und Rechnung, nachdem die Anpassung mit dem Formfaktor f_m nach Gl. 1.3 und 1.5 beendet ist. Die Formfaktoren sind in Tabelle 5.1 in der letzten Spalte eingetragen, soweit sie bestimmt werden konnten. EXP 041 bis EXP 047 entfallen wegen Verunreinigungen des Aerosols; die Formfaktoren wurden nicht berechnet. In EXP 034 und EXP 037 waren die Transmissionsdaten zu ungenau. Die verbleibenden sieben Messungen lieferten genaue Daten; der Vergleich war von derselben Qualität wie in Abb. 5.3.

Das Kriterium ist nun weniger die einzelne Anpassung für ein einzelnes Experiment, sondern der Vergleich der bestimmten Formfaktoren untereinander. Mit Ausnahme von EXP 032 und EXP 048 liegen sie im Bereich $0.6 \leq f_m \leq 0.7$. Unter Berücksichtigung der jedesmal verschiedenen Ausgangsparameter ist das ein sehr erwünschtes Ergebnis. Ein Formfaktor soll ja nur von der Form der Partikeln abhängen und nicht von Konzentration und Größe.

Demnach müßte bei EXP 032 und EXP 048 die Form der Partikeln verschieden von der in den anderen Versuchen sein.

Im nächsten Abschnitt wird gezeigt, daß das tatsächlich der Fall ist. Hier soll nur festgehalten werden, daß EXP 032 und EXP 048 mit ganz frisch erzeugtem Aerosol durchgeführt wurden, alle anderen Versuche aber mit schon gealtertem Aerosol.

Ein Formfaktor kleiner als 1 bedeutet nach Gl. 1.3, ein schnelleres Wachstum als nach dem zugrundeliegenden Partikeldurchmesser zu erwarten. Als Erklärungen kommen in Frage:

- Durch Kapillarkondensation beschleunigtes Wachstum

- "Falsche" Werte der benutzten Partikeldurchmesser

Die Entscheidung zwischen diesen beiden Alternativen konnte mit den Platinoxidaerosolversuchen allein nicht getroffen werden. Erst die Ergebnisse der UO_2 -Aerosolversuche ermöglichen die Aussage, daß hier eine inadäquate Definition der Partikeldurchmesser vorliegt.

5.2 Ergebnisse der Versuche mit UO_2 -Aerosol

Die Auswertung der UO_2 -Versuche beginnt mit der Auszählung der Fotos der vor jedem Versuch genommenen Filterprobe (Abb. 4.2). Die großen UO_2 -Partikeln zusammen mit ihrer annähernd kugeligen Form erlauben eine gute Bestimmung der Partikelgrößenverteilung des Aerosols, wobei als Größenparameter naheliegend der geometrische Durchmesser verwendet wird.

Mit demselben Auswerteschema wie bei den Platinoxidaerosolversuchen ergaben sich sofort bei den ersten UO_2 -Versuchen Werte von $f_m \approx 1$. Es zeigte sich dann im Zuge der Auswertung aller Versuche, daß $f_m = 1$ für UO_2 -Aerosol in allen Fällen ein brauchbarer Wert ist.

Dieser Befund macht dann allerdings die Formfaktorkorrektur überflüssig, da Gl. 1.3 in Gl. 1.1 übergeht. So einfach ein solches Ergebnis auch wäre, muß es doch im einzelnen überprüft und erklärt werden.

Die in Abb. 4.2 erkennbare Form der Partikeln wurde auf allen Proben gefunden, die vor den Versuchen aus dem Behälter gezogen wurden. Im krassen Gegensatz dazu steht die Form der Partikeln, die im Aerosolgenerator gefunden werden (Abb. 2.9). Die Aggregatstruktur der Partikeln im Generator entspricht der allgemein zu beobachtenden Form aller Aerosole, die durch Kondensation aus der Dampfphase entstehen. Flockige Aggregate wurden auch am Ausgang des Platinoxidaerosolgenerators gefunden, wenn er unter trockenen Normalbedingungen betrieben wird (vgl. [15], Blatt 6).

Die kugelförmigen komprimierten Partikeln werden dagegen nur (und dann immer) gefunden, wenn die Atmosphäre kondensierend ist. Befindet sich ein Aggregat im Innern eines Tröpfchens, das verdampft, so wird es durch die (im μm -Bereich außerordentlich starken) Oberflächenkräfte zu einer dichten Packung zusammengedrückt. Die kompaktierten Partikeln entstehen also aus den ursprünglich erzeugten lockeren Aggregaten in der Versuchstandsatmosphäre durch kurzzeitige lokale Kondensationsprozesse infolge Temperaturinhomogenitäten.

Um dies nachzuprüfen, haben wir einmal (L 15) äußerste Sorgfalt darauf verwendet, jede mögliche Übersättigung im Versuchsstand zu vermeiden. In der Tat wurden die ursprünglichen Aggregate dann auch im Versuchsstand wiedergefunden. Nach zwei Expansionsversuchen waren sie alle zur Kugelform kompaktiert. Daraus folgt, daß zur Kompaktierung Übersättigung nötig ist, aber nur kurzzeitig und in geringem Ausmaß. Wenn schon in unserem thermostatisierten Versuchsstand sich der Kompaktierungsprozeß nur mit Mühe vermeiden läßt, dann kann man davon ausgehen, daß er im LWR-Containment unter Unfallbedingungen mit Sicherheit quantitativ abläuft.

Es ist also der Kondensationsvorgang an solchen kompaktierten Aggregaten, der für das NAUA-Modell interessiert, und der in den UO_2 -Versuchen gemessen wurde. Es ist plausibel, daß dafür der Formfaktor $f_m = 1$ sein muß. Denn die Partikeln sind zwar kompakt, aber dennoch porös. Die Porosität erzeugt innere negativ gekrümmte Oberflächen, für die sich nach Gl. 1.1 schon im Bereich untersättigter Atmosphäre Kondensation ergibt. D.h. Partikeln wie in Abb. 4.2. sind mit Wasser vollgesaugt wie ein Schwamm. Im Moment, da die Sättigung den Wert $S = 1$ erreicht, existiert für den Kondensationsprozeß kein Unterschied zwischen einer solchen nassen Partikel und einem idealen Tröpfchen.

Damit gilt die Mason-Gleichung ohne Korrektur, wie in allen UO_2 -Aerosolversuchen beobachtet wurde.

5.3 Vergleich von UO_2 - mit Platinoxidaerosol

Für kompaktierte UO_2 -Aerosole folgte $f_m = 1$, wenn man den geometrischen Durchmesser der Partikeln in Gl. 1.3 einsetzt. Dies ist auf anschauliche Weise überzeugend. Es bleibt die Frage zu beantworten, ob die Platin-oxidaerosolversuche ähnlich erklärt werden können.

In Abschnitt 5.1 wurden bereits zwei mögliche Erklärungen für den dort gefundenen Wert $f_m < 1$ vorgeschlagen: "aktive" Partikeln oder zu kleine Werte der Partikelgröße.

Beide Erklärungen sind gewissermaßen äquivalent. Denn der für die Platinoxidversuche benutzte Massendurchmesser

$$d_m = \sqrt[3]{\frac{6 m}{\pi \rho}} \quad (5.1)$$

ist kleiner als der geometrische

$$d = \sqrt[3]{\frac{6v}{\pi}} \quad (5.2)$$

da das äußere Volumen v der Partikeln wegen der Porosität größer ist als der Quotient m/ρ aus Masse und Materialdichte. Und die porösen Partikeln sind kapillaraktiv, zumindest so lange bis sie mit Wasser vollgesaugt sind. Die abweichenden Werte der Versuche EXPO32 und EXPO48 lassen sich so zwanglos erklären. Da das Aerosol ganz frisch und noch nicht kompaktiert war, wirkt beim ersten Kondensationsprozeß noch das lockere und viel größere Aggregat als Kondensationskern.

In den Gln. 5.1 und 5.2 ist die Materialdichte ρ größer als der Quotient m/v aus Masse und äußerem Volumen, wenn die Partikel porös ist. Definiert man eine effektive Dichte der Partikeln

$$\rho_{\text{eff}} = \frac{m}{v}$$

oder

$$\rho_{\text{eff}} = \rho \cdot \frac{d^3}{d^3} \quad (5.3)$$

soläßt sich das Aerosol mit d und ρ_{eff} beschreiben, immer kugelige Aggregate vorausgesetzt.

Auf dieser Grundlage wurden die Versuche mit Platinoxidaerosol neu ausgewertet. Es wurde $f_m = 1$ verlangt und als freier Parameter die effektive Dichte ρ_{eff} ausgerechnet. Es ergaben sich Werte zwischen 4 und 7 g/cm³, also etwa höher als beim UO₂ (Gl. 4.1). Das ist verständlich, da wegen der kleineren Partikeln höhere Kapillarkräfte beim Kompaktieren wirken. Wichtig ist auch, daß die Werte von ρ_{eff} für alle Versuche einer Serie gleich sind, die mit derselben Charge Aerosol durchgeführt wurden. So ergab sich z.B. für EXPO33 bis EXPO35 ein Wert von $\rho_{\text{eff}} \approx 3.9$ g/cm³ und für EXPO39 und EXPO40 $\rho_{\text{eff}} \approx 6.8$ g/cm³.

Es ist damit gezeigt, daß das Bild der kompaktierten Aggregate und seine Konsequenz, nämlich die Einführung des geometrischen Durchmessers und der effektiven Dichte in die Modellrechnungen, die UO₂-Aerosolversuche gut erklärt und nicht im Widerspruch zu den Ergebnissen

der Platinoxidaerosolversuche steht. Es erscheint uns somit nicht notwendig, die Platinoxidversuche zu wiederholen, diesmal mit anderen Meßparametern. Ohnehin sind die UO_2 -Versuche näher an der realistischen Situation, die Platinoxidaerosole runden das Bild nur im Bereich kleiner Partikelgrößen ab.

5.4 Dynamik des Kondensationsvorgangs

Die bis hierhingemachte Aussage, daß die Mason-Gleichung unkorrigiert benutzt werden kann, wurde allein aus der Messung der Tröpfchenzahl gewonnen. Die Startphase des Kondensationsprozesses - die Tröpfchenbildung - wird also von der Gleichung richtig beschrieben. Diese Aussage genügt im Prinzip schon für die Anwendung im NAUA-Modell.

Darüberhinaus ist noch zu prüfen, ob auch die darauf folgende Dynamik des Tröpfchenwachstums richtig berechnet wird. Immerhin sind die thermodynamischen Bedingungen sehr verschieden von denen der Wolkenphysik, für die die Mason-Gleichung ursprünglich entwickelt wurde.

Die optisch gemessenen Tröpfchendurchmesser sind sehr genau; ebenso ist die Konstanz der Tröpfchenzahl während des Kondensationsvorgangs in allen Versuchen nachgewiesen worden. Daraus kann die Massenkonzentration der Tröpfchen ermittelt werden, und es bietet sich an, diese experimentellen Daten mit den Rechnungen zu vergleichen. In Abb. 5.4 sind an einem Beispiel die mit NAUEX berechneten und die gemessenen Massenkonzentrationen der Tröpfchen während der Kondensation gezeigt. Die gerade Linie stellt die Dampfmasse dar, die unter Berücksichtigung der Kondensationswärme und der Wärmekapazität des Systems (Luft + Wasserdampf + trockenes Aerosol + Tröpfchen) maximal kondensieren könnte. Demgegenüber ist die tatsächlich kondensierte Tröpfchenmasse etwas verzögert, besonders in der Anfangsphase der Tröpfchenbildung, zu der die notwendige Übersättigung erst aufgebaut werden muß. Mit fortschreitender Kondensation nähert sich die kondensierte Masse der maximal möglichen immer mehr an, da die Kondensationsrate an größeren Tröpfchen zunimmt. Dies wird durch die ausgezogene Kurve wiedergegeben. Die in Abb. 5.4 ebenfalls eingezeichneten Meßwerte stimmen mit der berechneten Kurve im Zeitverlauf sehr gut überein. Störend sind nur die relativ großen Fehlergrenzen in der Zeitrichtung. Das kommt von Ungenauigkeiten in der Bestimmung des Zeit-

nullpunkts, wo die Wasserdampfsättigung den Wert $S = 1$ überschreitet. Die relative zeitliche Lage der Meßwerte ist andererseits sehr gut bestimmbar, was sich darin ausdrückt, daß die Meßwerte alle den gleichen zeitlichen Abstand von der berechneten Kurve haben. (Man kann daher nachträglich den Nullpunkt korrigieren und damit die Meßwerte mit der berechneten Kurve zur Deckung bringen). Der relative berechnete Zeitverlauf ist in allen Fällen dem berechneten gleich. D.h. daß die Mason-Gleichung auch für das Tröpfchenwachstum die richtigen Ergebnisse liefert.

Diese beiden Aussagen, daß sowohl Tröpfchenbildung als auch Tröpfchenwachstum der Mason-Gleichung folgen, sind die wichtigen experimentellen Ergebnisse unserer Messungen. Sie ermöglichen die uneingeschränkte Anwendung der Gleichung unter den extremen Bedingungen hoher Temperaturen und hoher Drücke.

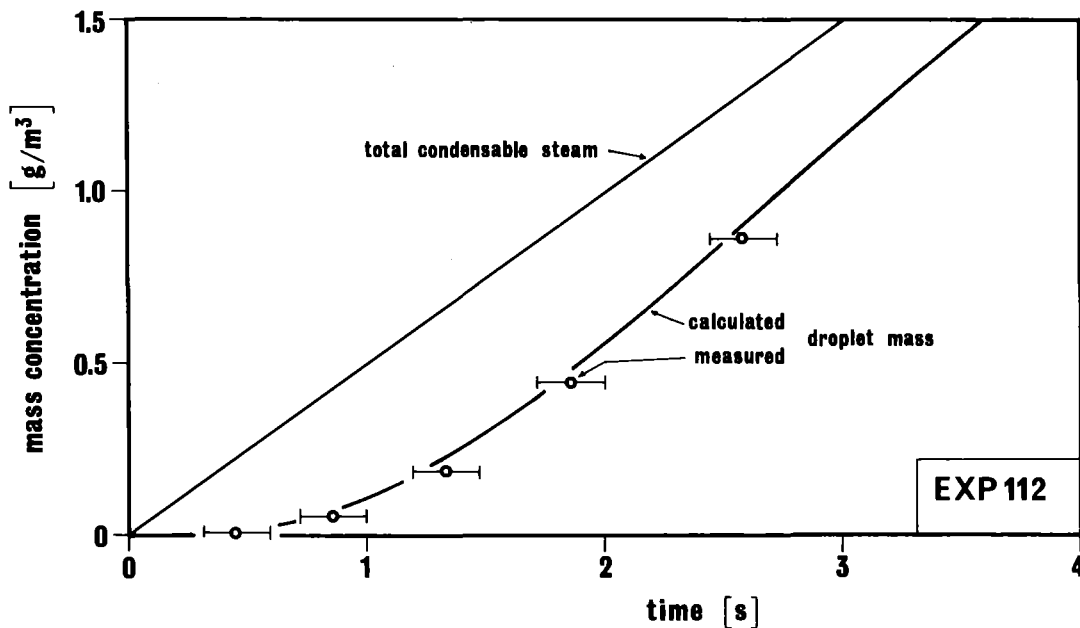


Abb. 5.4.: Tröpfchenmassenkonzentration während eines Versuchs.

Erklärung s. Text.

5.5 Kondensation an löslichen Partikeln

Der Vollständigkeit halber sind noch die Ergebnisse der Versuche mit den löslichen Aerosolen zu diskutieren. 43 Kondensationsexperimente wurden mit NaNO_3 -Aerosol durchgeführt, die sich auf vier Serien verteilen. In jeder Serie wurde die Konzentration der Salzlösung variiert, mit der die Größenverteilung des erzeugten Aerosols beeinflusst werden kann.

Die Versuche wurden durchgeführt um festzustellen, ob für die modellmäßige Beschreibung der Kondensationsvorgänge im Containment die löslichen Spaltprodukte besonders berücksichtigt werden müssen. Der wesentliche Unterschied zu den unlöslichen Platinoxid- und UO_2 -Partikeln besteht darin, daß auch im untersättigten Bereich die löslichen Partikeln in der Form von (Lösungs-)tröpfchen vorliegen. Die Größe dieser Tröpfchen wird durch das Dampfdruckgleichgewicht bestimmt, ihr Wachstum wird durch eine von Gl. 1.1 verschiedene Gleichung beschrieben, die in [13] abgeleitet wird. Der Nettoeffekt ist, daß - wie leicht einzusehen - die Kondensation an Lösungströpfchen stärker ist als an Partikeln, die dem Salzkern des Tröpfchens größenmäßig entsprechen.

Diese Aussage ist trivial und wird dadurch dokumentiert, daß bei den Versuchen die Ausbeute der Kondensation (vgl. Abschnitt 5.1) 100% war. Die Frage ist nur, ob diese an löslichen Partikeln verstärkte Kondensation eine Änderung des oben beschriebenen Modellansatzes für Kondensation an komprimierten Aggregaten erfordert. Für Anwendung auf das Kernschmelzenszenario ist die Frage aus folgenden Gründen zu verneinen:

Das Kernschmelzenaerosol besteht zu 94% aus Brennstoff und aus Strukturmaterialoxiden. Von den verbleibenden 6% Spaltprodukten ist auch nur ein sehr geringer Teil in Form von löslichen Verbindungen. Nimmt man homogene innere Mischung der Materialien in den Partikeln als gegeben an, so können die extrem kleinen Anteile an löslichen Substanzen in den Partikeln nicht so viel Wasser binden, daß die Partikeln über ihren geometrischen Aggregatdurchmesser hinaus anwachsen, der für die Kondensationsrechnungen benutzt wird.

Lösliche Substanzen müssen daher für den Kondensationsprozeß beim Kernschmelzen nicht besonders berücksichtigt werden.

6. Konsequenzen für das NAUA-Modell

Als direktes Ergebnis der Messungen zur Kondensation von Wasserdampf an Aerosolen unter Kernschmelzenbedingungen gilt:

Als Modellgleichung für den Kondensationsprozeß kann die Mason-Gleichung (1.1) ohne Korrektur dann benutzt werden, wenn als Größenparameter der geometrische Durchmesser der Partikeln benutzt wird. Das ist deswegen richtig, weil in der gesättigten Atmosphäre durch zufällige lokale Kondensationsvorgänge die Partikeln zu Kugelform kompaktiert werden.

Mit dieser Aussage ist das Ergebnis der Kondensationsmessungen zusammengefaßt. Darüberhinaus hat dieses Ergebnis, insbesondere die Bestätigung des Kompaktierungsvorgangs, aber weitere Konsequenzen auf das NAUA-Modell.

Das NAUA-Modell Version Mod 3 enthält bisher, wie alle Aerosolverhaltensmodelle, nicht nur einen Formfaktor, der Abweichungen vom idealisierten Verhalten kugelförmiger Partikeln korrigiert, sondern mehrere. Im Prinzip müßte für jeden Aerosolprozeß ein eigener Formfaktor definiert und gemessen (!) werden, wenn die Partikeln nicht kugelförmig sind. Insofern ist der Nachweis angenähert kugelförmiger Partikeln für Kernschmelzenverhältnisse ein einschneidender Vorgang, als er das gesamte Formfaktorproblem wesentlich vereinfacht. Es gilt nämlich, daß für Kugeln für alle Aerosolprozesse, die im NAUA-Modell berücksichtigt sind, die Formfaktoren den Wert eins annehmen; mit einer Ausnahme, nämlich dem Sedimentationsprozeß. Die Sedimentationsgeschwindigkeit ist (vgl. [4])

$$V_{\text{sed}} = \text{const} \cdot D^2 \cdot \rho / \alpha \quad (6.1)$$

und damit nicht nur von der Partikelgröße D und dem Formfaktor α abhängig, sondern auch von der zu D zugeordneten Dichte ρ der Partikeln. Das ist der Grund dafür, daß in der vorangegangenen Diskussion die "effektive Dichte" ρ_{eff} öfter erwähnt wird. Gl. 6.1 gilt auch in der Form

$$V_{\text{sed}} = \text{const} \cdot d^2 \cdot \rho_{\text{eff}} \quad (6.2)$$

mit dem geometrischen Durchmesser d und der effektiven Dichte ρ_{eff} , wobei $\alpha = 1$ ist.

Nachdem derart auch der Sedimentationsprozeß mit dem geometrischen Kugeldurchmesser beschrieben werden kann, gilt:

Im NAUA-Modell entfallen alle Formfaktoren, wenn als Größenparameter der geometrische Durchmesser benutzt wird. Für die Sedimentation ist zusätzlich die Kenntnis der effektiven Dichte erforderlich.

Die Vereinfachung ist gravierend. Statt eines Korrekturfaktors für jeden Prozeß wird nun nur noch einer benötigt, der außerdem vergleichsweise einfach zu messen ist.

Auf dieser Grundlage wird zur Zeit eine neue Version Mod 4 des NAUA-Codes erstellt. Diese Arbeiten sind etwas umfänglicher als zunächst zu vermuten, da es nicht nur um das Weglassen der Formfaktoren geht. Die gesamte Massenbilanzierung ändert sich, die bisher auf dem massenäquivalenten Durchmesser beruhte. Es sind alle Unterprogramme, die Massen handhaben, abzuändern. Das betrifft z.B. Quellterme, Leckagen und die Massenbilanzen im Containment zwischen luftgetragener Masse und den an verschiedenen Orten abgeschiedenen Massen. Insofern wird der Code nicht einfacher als vorher, der Gewinn besteht in einer größeren inhaltlichen Überschaubarkeit und in der besseren experimentellen Zugänglichkeit der benötigten Parameter, Größe und Dichte der Aggregatpartikeln.

Als ein vorläufiges Ergebnis eines Mod 3/Mod 4 - Vergleichs soll Abb. 6.1 dienen. Die Abbildung zeigt die Abnahme der Massenkonzentration des Aerosols im Containment, berechnet mit beiden Modellversionen. (Die Mod 4 - Kurve ist identisch mit Abb. 1.1). Dieser Vergleich ist als vorläufig und damit eher als qualitativ anzusehen. Dennoch ist der positive Trend in Richtung schnelleren Aerosolabbaus für dieses Beispiel erklärbar, da durch die kompaktere Form der Partikeln (im Vergleich zu den in Mod 3 berücksichtigten lockeren Aggregaten) die Partikelbeweglichkeit größer ist und alle Abbauprozesse verstärkt sind. Dabei darf nicht vergessen werden, daß gleichzeitig die Koagulationsrate kleiner wird. Das kommt zwar in dem Beispiel in Abb. 6.1 nicht zum Tragen, jedoch sind Szenarios denkbar, wo der Effekt insgesamt in der Gegenrichtung wirkt. Eine ausführliche Parameterstudie mit NAUA-Mod 4 ist in Arbeit.

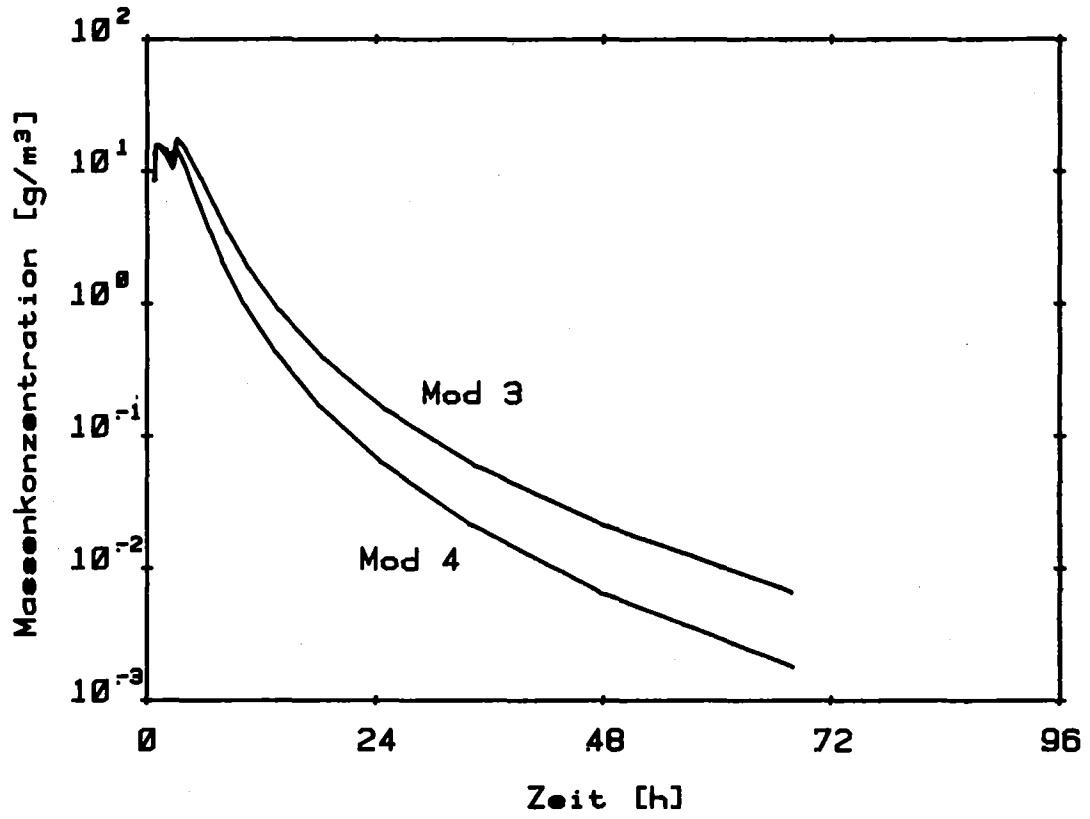


Abb. 6.1: Vergleich des Abbaus der Massenkonzentration nach Rechnungen mit NAUA-Mod 3 und Mod 4

Literatur

- 1 The Reactor Safety Study, WASH-1400, NUREG-75/014, USAEC, October 1975
- 2 BMFT Hrsg., Deutsche Risikostudie Kernkraftwerke, Verlag TÜV Rheinland (1980)
- 3 OECD Hrsg., Nuclear Aerosols in Reactor Safety, CSNI/SOAR No. 1, OECD-NEA, Paris 1979
- 4 H. Bunz, M. Koyro, W. Schöck: "NAUA-Mod3, Ein Computerprogramm zur Beschreibung des Aerosolverhaltens in kondensierender Atmosphäre", KfK-3154 (1981), (im Druck)
- 5 H. Bunz: "PARDISEKO IIIb, ein Computerprogramm zur Berechnung des Aerosolverhaltens in geschlossenen Behältern" KfK-2903 (1980)
- 6 G. Haury, W. Schöck: "The Removal of Radioactive Aerosols from the Post Accident Atmosphere of an LWR-Containment" 14th ERDA Air Cleaning Conference, August 2-4, 1976, Sun Valley, Idaho
- 7 H.-H. Hennies, J. P. Hosemann, F. Mayinger, Ablauf und Konsequenzen eines DWR-Kernschmelzenunfalls, Atomwirtschaft 26, 168 (1981)
- 8 H. Bunz, W. Schöck: "The Natural Removal of Particulate Radioactivity in an LWR-Containment during Core Meltdown Accidents"; ANS/ENS Topical Meeting, Thermal Reactor Safety, April 7 - 11, 1980, Knoxville, Tennessee
- 9 K. Hassmann et al., "Das Kernschmelzgesamtsystem KESS, Tagungsbericht der Jahrestagung Kerntechnik 1981, Düsseldorf 24. - 26.03.1981, S. 155 - 158

- 10 R. O. Wooton, H. I. Avci: "March - Code Description and User's Manual", NUREG/CR 1711, BMI-2064 (1980)
- 11 E. Schmidt: VDI-Wasserdampfatafeln, Berlin (1968)
- 12 G. Haury, H. Jordan: "Beschreibung von Modellen der Nachunfall-Atmosphäre eines LWR-Containments", in PNS-Halbjahresbericht 1974/2, S. 276-299, KfK-2130 (1975)
- 13 B. I. Mason: "The Physics of Clouds", 2nd edition, Clarendon Press, Oxford, 1971
- 14 G. Haury, H. Jordan, C. Sack, W. Schöck: "Entwurf des NAUA-Codes zur Berechnung des Aerosolverhaltens im Containment", in PNS-Halbjahresbericht 1975/1, S. 355 - 365, KfK-2195 (1975)
- 15 VDI-Richtlinien, hier VDI 3491, Blätter 1ff.
- 16 H. Bunz, C. Sack, W. Schöck in PNS-Halbjahresbericht 1977/2, S. 519 f., KfK-2600 (1978)
- 17 A. Alexas: "Remarks on the Electrical Resistivity of Solid UO_2 between 1 000 and 3 100 K", Journal of Nuclear Materials 96, S. 369 - 371 (1981)
- 18 W. Schöck: "Messung von Tröpfchengrößenspektren in übersättigter Wasserdampfatamosphäre mit einem Laserstreulichtspektrometer", Jahrestagung der Gesellschaft für Aerosolforschung, Bad-Soden, 3. - 4.11.1976
- 19 H. Bunz, C. Sack, W. Schöck, in PNS-Halbjahresbericht 1977/2, S. 514 - 525, KfK-2600 (1978)
- 20 G. Mie, Ann. Phys. 25, IV Folge, Nr. 3, S. 377 ff. (1908)
- 21 H. Bunz, C. Sack, W. Schöck, in PNS-Halbjahresbericht 1978/1, S. 4300 - 1ff., KfK-2700 (1978)

Anhang: Definitionen benutzter Aerosolparameter

Es ist festzustellen, daß über Definitionen von Größen in der Aerosolphysik noch beachtliche Meinungsverschiedenheiten existieren. Eine Arbeitsgruppe "Teststäube und Prüfnormale" im Ausschuß "Messen von Partikeln" der VDI-Kommission Reinhaltung der Luft hat in der Richtlinie VDI 3491, Blatt 1 den Versuch unternommen, für den offiziellen Sprachgebrauch ein einheitliches Vokabular zu definieren. Andererseits sind im wissenschaftlichen Bereich, der ja an solche Richtlinien nicht gebunden ist, weiterhin abweichende Begriffe im Gebrauch. Es erschien daher nicht sinnvoll, in diesem Bericht durchweg die der Richtlinie entnommenen Begriffe zu verwenden, da sie wegen noch mangelnder Einführung nicht allgemein verständlich sind.

In diesem Anhang werden alle im Bericht verwendeten Begriffe definiert; die der Richtlinie entnommenen Definitionen sind durch das Schriftbild hervorgehoben.

Definitionen von Partikelgrößen

Die Partikelgröße ist eine numerisch gekennzeichnete Eigenschaft, die aus den Partikeldimensionen und der Partikelgestalt gewonnen wird und die sich nur in einfachen Fällen durch eine einzige Maßzahl wiedergeben läßt. In der Regel benötigt man irgendeine definierte lineare Dimension (z.B. den Durchmesser) der Partikel und dazu einen oder mehrere entsprechend definierte Kennwerte für die Partikelgestalt (Formfaktoren).

Die Richtlinie unterscheidet konsequenterweise nicht zwischen Partikeln und Tröpfchen. Wir haben dies zur Verkürzung der Schreibweise getan und benutzen somit neben dem Begriff Partikelgröße auch den der Tröpfchengröße.

Es folgen in der Richtlinie Definitionen von 18 Durchmessern von Einzelpartikeln und 22 Durchmessern von Partikelkollektiven. Im vorliegenden Bericht wurden folgende verwendet:

Einzelpartikeln:

Durchmesser aus geometrischen Messungen, z.B. bei der Auswertung elektronenmikroskopischer Aufnahmen:

Der Krumbeinsche Durchmesser d_{kb} einer Partikel ist die längste Sehne durch die Projektionsfläche einer Partikel, die parallel zu einer vorgegebenen Richtung verläuft.

Nach diesem Verfahren wurden alle Filterproben ausgewertet. Geometrische Auswerteverfahren existieren in großer Zahl und führen im statistischen Mittel auf annähernd gleiche Zahlenwerte. Im vorliegenden Bericht wird generell vom "geometrischen Durchmesser" d - oder einfach vom Durchmesser - gesprochen, um das geometrische Bestimmungsverfahren anzudeuten.

Durchmesser aus optischen Meßverfahren:

Der Extinktionsquerschnitt C_{ext} einer Partikel ist der dem Beleuchtungsstrahl durch Absorption und Streuung entzogene Lichtstrom, bezogen auf die Beleuchtungsstärke (Lichtstrom pro Flächeneinheit), der die Partikel ausgesetzt ist. Für kugelförmige Partikeln ist der Extinktionsquerschnitt eine Funktion des geometrischen Durchmessers, der Beleuchtungsart und der optischen Konstanten des Partikelmaterials.

Die Definition wird im Bericht beibehalten, jedoch wird statt C_{ext} das Symbol α benutzt (s. Abb. 4.6 und 4.8), weil der Buchstabe C für die Konzentrationsangaben benötigt wird.

Letztlich muß der in fast allen Aerosolcodes vorkommende "massenäquivalente Durchmesser" - oder vereinfacht "Massendurchmesser" - d_m definiert werden. Er ist in der Richtlinie nicht enthalten; seine Definition lautet

Der Massendurchmesser d_m einer Partikel entspricht dem Durchmesser einer Kugel, die die gleiche Masse wie die untersuchte Partikel hat (vgl. Gl. 5.1).

Partikelkollektive:

Viele Meßverfahren (Messung plus Auswertung) bestimmen nicht Eigenschaften von Einzelpartikeln sondern Eigenschaften von Partikelkollektiven. Dabei kann entweder die Kollektiveigenschaft erst durch das Auswerteverfahren ermittelt werden (statistisches Verfahren) oder es kann schon die Messung eine Kollektiveigenschaft liefern (integrierendes Meßverfahren).

Durchmesser aus statistischen Verfahren:

Hier ist zuerst der Begriff der "Größenverteilung" zu definieren.

Die Verteilungssumme eines Partikelkollektivs gibt den normierten, d.h. den auf die Gesamtmenge bezogenen Mengenanteil von Partikeln an, die kleiner als die betrachtete Partikelgröße sind (vgl. Abb. 4.3).

Liegt die Verteilungssumme als differenzierbare Funktion der Partikelgröße vor, so nennt man ihre erste Ableitung Verteilungsdichte.

Die Verteilungsdichte eines Partikelkollektivs gibt das Verhältnis der relativen Menge von Partikeln, deren Größe in einem gegebenen Intervall liegt, zur Breite dieses Intervalls an. Sie wird als Funktion der Intervallmitte angegeben.

Durch die Meßtechnik bedingt, hat man es in der Praxis jedoch stets mit diskreten Verteilungen von Partikelgrößen zu tun, die bei abnehmender Intervallbreite in die Verteilungsdichtefunktion übergehen.

Für die Verteilungsdichte werden in diesem Bericht die gebräuchlicheren Begriffe (normierte) "Partikelgrößenverteilung" und "Tröpfchengrößenver-

teilung" verwendet und ausschließlich auf die Anzahlverteilungen angewendet:

Die Anzahlverteilungssumme bzw. -dichte erhält man bei Verwendung der Anzahl der Partikeln als Mengenmaß; sie wird oft als Häufigkeitsverteilung der Partikelgrößen bezeichnet.

Aus den Größenverteilungen können charakteristische Durchmesser abgeleitet werden, z.B.

Der mittlere Durchmesser eines Partikelkollektivs ist der mit den zugehörigen Mengenmaßen gewogene arithmetische Mittelwert der Durchmesser (Moment 1. Ordnung).

Der mediane Durchmesser eines Partikelkollektivs ist der Durchmesser, bei dem die Verteilungssumme 50% beträgt.

Der modale Durchmesser eines Partikelkollektivs ist der Durchmesser, bei dem die Verteilungsdichtefunktion ihr absolutes Maximum erreicht.

Wir verwenden in unserem Bericht den mittleren Massendurchmesser

Der mittlere Massendurchmesser \bar{d}_m eines Partikelkollektivs ist der Durchmesser, bei dem die Massenverteilungsdichtefunktion ihr absolutes Maximum erreicht.

und den "mittleren geometrischen Durchmesser". Dieser ist in der Richtlinie nicht definiert, aber im allgemeinen Sprachgebrauch sehr verbreitet. Der mittlere geometrische Durchmesser d_g ist gleich dem medianen Durchmesser, gewonnen aus der Anzahlverteilungssumme (vgl. Abb. 4.3).

Durchmesser am integrierenden Meßverfahren:

Bei unseren Messungen kam als integrierendes Meßverfahren die Extinktions-

messung vor. Die zugehörige Meßgröße

Der durchschnittliche Extinktionsdurchmesser $\overline{d}_{\text{ext}}$ der Partikeln eines Kollektivs ist der Durchmesser einer Kugel, die aus dem gleichen Material besteht und bei gleicher Partikelanzahl bzw. Massenkonzentration für ein und dieselbe elektromagnetische Strahlung die gleiche spezifische Extinktionskonstante liefert wie das untersuchte Partikelkollektiv.

ist jedoch, wie in Abschnitt 4.2 gezeigt wurde, so eng mit dem Extinktionsquerschnitt α korreliert, daß der Begriff des durchschnittlichen Extinktionsdurchmessers nicht gesondert benutzt wird.

Konzentrationsangaben:

- 1.4.1. Die Anzahlkonzentration ist die Gesamtzahl aller dispergierten Partikeln pro Volumeneinheit.
- 1.4.3. Die Massenkonzentration ist die Gesamtmasse aller dispergierten Partikeln pro Volumeneinheit.

Dichteangaben:

Die (Material)dichte ρ ist mit dem Massendurchmesser d_m nach Gl. 5.1 korreliert.

Die effektive Dichte ρ_{eff} einer Aggregatpartikel mit einem "äußeren" - meist geometrischen - Durchmesser d ist nach Gl. 4.2 definiert.

ρ und ρ_{eff} sind über Gl. 5.3 verknüpft.

Dispersitätsgrad und Standardabweichung:

Dispersitätsgrad und Standardabweichung sind Maßzahlen für die Breite einer Partikelgrößenverteilung. Wir verwenden in diesem Bericht die geometrische Standardabweichung

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

wobei d_{84} und d_{16} die zu den 84%- und 16%-Werten der Verteilungssumme gehörenden Durchmesser sind.

In diesem Sinne gilt

monodispers heißt ein Partikelkollektiv, wenn $\sigma < 1,15$

polydispers heißt ein Partikelkollektiv, wenn $\sigma > 1,5$

Der Zwischenbereich wird in der Richtlinie quasimonodispers genannt ($1,15 < \sigma < 1,5$).