

KfK 3560
Dezember 1983
(1. Ex.)

Direkte Messung von Aerosolformfaktoren

W. Zeller
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik
Projekt Schneller Brüter

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Zentralbücherei

76.499

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

Projekt Schneller Brüter

KfK 3560

Direkte Messung von Aerosolformfaktoren

W. Zeller



Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Zentralbücherei

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Der dynamische Formfaktor κ und der Koagulationsformfaktor f zweier Metalloxidaerosole (Platinoxid, Urandioxid) wurden experimentell bestimmt. Hierzu wurden spezielle Meß- und Auswerteverfahren entwickelt, die von der äußeren Form der untersuchten Partikeln unabhängig sind. Der dynamische Formfaktor wurde für verschiedene Größenfraktionen getrennt bestimmt, während der Koagulationsformfaktor einen Mittelwert über das gesamte untersuchte Größenspektrum darstellt.

Die Untersuchungen haben gezeigt, daß Ergebnisse eines bestimmten Aerosol-systems nicht ohne weiteres auf andere Aerosol-systeme übertragen werden können. Die äußere Form von Partikeln bestimmter Größe hängt sowohl von stoffspezifischen Eigenschaften als auch von den Versuchsbedingungen bei der Aerosolerzeugung ab. Der über das gesamte untersuchte Größenspektrum gemittelte dynamische Formfaktor stimmt bei beiden untersuchten Aerosol-systemen grob mit dem Koagulationsformfaktor überein.

Abstract

Direct measurement of aerosol shape factors

The dynamic shape factor κ and the coagulation shape factor f of two metal oxide aerosols (platinum oxide, uranium dioxide) were determined by means of experiments. For this reason special measuring and evaluating methods were developed which are independent of the outer shape of the examined particles. The dynamic shape factor was determined separately for the different size fractions whereas the coagulation shape factor is an average over the total examined size range.

The experiments have shown that the results of experiments with a certain aerosol system cannot be transferred to other aerosol systems without further consideration. The outer shape of particles of a certain size depends on the specific properties of the material as well as on the experimental conditions during the aerosol generation. For both aerosol systems examined the mean dynamic shape factor, averaged over the total examined size range, agrees roughly with the coagulation shape factor.

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
Verzeichnis der Abbildungen	III
Verzeichnis der Tabellen	VI
1. <u>Einleitung</u>	1
2. <u>Theorie der Formfaktoren</u>	3
2.1 Der dynamische Formfaktor κ	3
2.2 Der Koagulationsformfaktor f	7
3. <u>Beschreibung der Versuchseinrichtungen</u>	9
3.1 Aerosolgeneratoren	9
3.1.1 Platinoxidaerosol	9
3.1.2 Urandioxidaerosol	11
3.2 Geräte zur Aerosolgrößenfraktionierung	12
3.2.1 <u>Differentieller Mobilitäts-Analysator (DMA)</u> 'TSI 3071'	12
3.2.2 Aerosolzentrifuge 'Heraeus Christ Labofuge III'	15
3.3 Koagulationsrohr	19
4. <u>Versuchsdurchführung</u>	21
4.1 Messungen zur Bestimmung des dynamischen Formfaktors κ	21
4.1.1 Platinoxidaerosol	21
4.1.2 Urandioxidaerosol	24
4.2 Messungen zur Bestimmung des Koagulations- formfaktors f	26
4.2.1 Platinoxidaerosol	27
4.2.2 Urandioxidaerosol	28

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
5. <u>Auswertung der Messungen</u>	31
5.1 Verfahren zur Berechnung des dynamischen Formfaktors κ	31
5.1.1 Platinoxidaerosol	31
5.1.2 Urandioxidaerosol	36
5.2 Verfahren zur Berechnung des Koagulationsform- faktors f	37
5.2.1 Platinoxidaerosol	39
5.2.2 Urandioxidaerosol	41
6. <u>Ergebnisse und Diskussion</u>	43
6.1 Ergebnisse der Versuche mit Platinoxidaerosol	43
6.2 Ergebnisse der Versuche mit Urandioxidaerosol	50
7. <u>Schlußbetrachtungen</u>	60
<u>Literatur</u>	63
<u>Anhang</u>	65

<u>Verzeichnis der Abbildungen</u>	<u>Seite</u>
Abb. 1 Platinoxid-Aerosolgenerator	10
Abb. 2 UO ₂ -Aerosolgenerator	10
Abb. 3 Elektr. Beweglichkeit einfach geladener Partikeln als Funktion des Partikeldurchmessers	14
Abb. 4 Flußschema des Differentiellen Mobilitäts- Analysators "TSI 3071"	14
Abb. 5 Aerosol-Spiralrotor (Heraeus-Christ Labofuge III)	16
Abb. 6 Eichkurve der Aerosolzentrifuge	18
Abb. 7 Koagulationsrohr	20
Abb. 8 Experimentelle Apparatur zur Bestimmung des dynamischen Formfaktors eines Platinoxidaerosols	22
Abb. 9 Platinoxidaerosol am Ausgang des Puffers (50.000fache Vergrößerung, — 0,5 µm)	22
Abb. 10 Größenverteilung des Platinoxidaerosols am Ausgang des Puffers	23
Abb. 11 Experimentelle Apparatur zur Bestimmung des dyna- mischen Formfaktors eines UO ₂ -Aerosols	25
Abb. 12 Experimentelle Apparatur zur Bestimmung des Koagulationsformfaktors eines Platinoxidaerosols	27
Abb. 13 Experimentelle Apparatur zur Bestimmung des Koagulationsformfaktors eines UO ₂ -Aerosols	29

	<u>Seite</u>
Abb. 14 γ -Strahlungsaktivität (Au 199) als Funktion von M(Platin)	33
Abb. 15 γ -Strahlungsaktivität (Np 239) als Funktion von M(UO ₂)	37
Abb. 16 Bestimmung des Koagulationsformfaktors	38
Abb. 17 Häufigkeitsverteilung eines Platinoxidaerosols am unteren Sammelpunkt (x) bzw. oberen Sammelpunkt (o)	40
Abb. 18 Häufigkeitsverteilung eines UO ₂ -Aerosols am unteren Sammelpunkt (x) bzw. oberen Sammelpunkt (o)	42
Abb. 19 Platinoxidaerosol (100.000fache Vergrößerung, — 0,5 μ m)	45
Abb. 20 Platinoxidaerosol (50.000fache Vergrößerung, — 0,5 μ m) am unteren Sammelpunkt (t = 0 sec)	46
Abb. 21 Platinoxidaerosol (50.000fache Vergrößerung, — 0,5 μ m) am oberen Sammelpunkt (t = 176 sec)	46
Abb. 22 Gemessene Größenverteilungen (Platinoxid)	48
Abb. 23 κ als Funktion von D_M (Platinoxid)	48
Abb. 24 Berechnete Größenverteilungen (t = 176 sec)	49
Abb. 25 UO ₂ -Aerosol (10.000fache Vergrößerung)	52
Abb. 26 UO ₂ -Aerosol (10.000fache Vergrößerung bzw. 3.300fache Vergrößerung)	53

	<u>Seite</u>
Abb. 27 UO ₂ -Aerosol (10.000fache Vergrößerung)	54
Abb. 28 κ als Funktion von D _M (UO ₂)	56
Abb. 29 UO ₂ -Aerosol (5.000fache Vergrößerung) am unteren Sammelpunkt (t = 0 sec)	57
Abb. 30 UO ₂ -Aerosol (5.000fache Vergrößerung) am oberen Sammelpunkt (t = 88 sec)	57
Abb. 31 Gemessene Größenverteilungen (UO ₂)	58
Abb. 32 Berechnete Größenverteilungen (t = 88 sec)	58

<u>Verzeichnis der Tabellen</u>	<u>Seite</u>
Tab. 1 Boltzmann-Ladungsverteilung auf Aerosolpartikeln [7] /13/	13
Tab. 2 Beweglichkeitsäquivalenter Durchmesser D_p bei verschiedenen Hochspannungen U	24
Tab. 3 Gemessene Partikeldurchmesser verschiedener Größenfraktionen (Platinoxid)	43
Tab. 4 Der dynamische Formfaktor κ als Funktion der Partikelgröße (Platinoxid)	44
Tab. 5 Der dynamische Formfaktor κ als Funktion der Partikelgröße (UO_2)	50

1. Einleitung

Zur Beschreibung des Aerosolverhaltens (Stokes'sche Reibung, Beweglichkeit, Koagulation etc.) werden mathematische Ansätze verwendet, in denen den Partikeln ein Kugelradius als Größenparameter zugeordnet wird. Reale Partikeln können jedoch - abhängig von der Art der Bildung und der Dynamik des Aerosolsystems - unterschiedliche, von einer Kugelgestalt stark abweichende Formen annehmen.

Entsprechend dem gegenüber kugelförmigen Partikeln abweichenden Verhalten dieser nicht-kugelförmigen Partikeln werden den realen Partikeln sogenannte Äquivalentradien zugeordnet, deren Größe von dem zu untersuchenden aerosolphysikalischen Prozeß abhängt (Die Definitionen der wichtigsten Aerosol-Äquivalentradien sind im Anhang zusammengefaßt). Einige dieser Äquivalentradien sind über Proportionalitätsfaktoren miteinander verknüpft. Hängen diese Proportionalitätsfaktoren von der äußeren Form der Partikeln ab, werden sie Formfaktoren genannt.

In Rechencodes zur Beschreibung des Aerosolverhaltens - z. B. PARDISEKO /1/ - sind zwei Formfaktoren von besonderer Bedeutung: a) der dynamische Formfaktor κ und b) der Koagulationsformfaktor f . Der dynamische Formfaktor beschreibt das abweichende aerodynamische Verhalten nicht-kugelförmiger Partikeln gegenüber dem aerodynamischen Verhalten massengleicher, kugelförmiger Partikeln. Der Koagulationsformfaktor berücksichtigt die Nicht-Kugelförmigkeit der Partikeln in den Berechnungen der Koagulationsraten.

Diese Formfaktoren, die die Vorhersagegenauigkeit der Rechencodes beträchtlich erhöhen können, wurden früher indirekt durch Parameterfitting bestimmt /2/. Da bei diesem Verfahren Meßfehler aller benutzten Meßgrößen in die Werte der Formfaktoren eingingen, erschien es sinnvoll und notwendig, experimentelle Untersuchungen zur direkten Bestimmung dieser Formfaktoren durchzuführen.

...

Der dynamische Formfaktor wurde bereits außer für Modellpartikeln (Drähte, Stäbchen) auch für Partikeln zahlreicher chemischer Verbindungen größenabhängig bestimmt /3 - 6/. Zur direkten Bestimmung des Koagulationsformfaktors liegen bisher praktisch keine Messungen vor. Eine frühere Arbeit /7/ benutzt zur Berechnung des Koagulationsformfaktors einen konstanten dynamischen Formfaktor. Weiterhin ist die bei diesen Messungen benutzte Meßtechnik (EAA) zur exakten Messung einer Größenverteilung nicht-kugelförmiger Partikeln nicht geeignet.

Aus diesen Gründen wurde mit einem neuen Meßverfahren ein größenabhängiger dynamischer Formfaktor und - unter Verwendung dieses größenabhängigen dynamischen Formfaktors - der Koagulationsformfaktor von Platinoxid- und Urandioxidaerosolen experimentell bestimmt.

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sollen neben einer Erweiterung aerosolphysikalischer Kenntnisse die Vorhersagegenauigkeit von Rechenmodellen erhöhen, die das Aerosolverhalten im Containment eines Schnellen Brutreaktors nach einem Störfall beschreiben.

2. Theorie der Formfaktoren

2.1. Der dynamische Formfaktor κ

Der dynamische Formfaktor κ ist nach Fuchs /8/ definiert als "das Verhältnis des tatsächlichen Strömungswiderstandes auf eine Partikel zu dem Strömungswiderstand auf eine massenäquivalente Kugel, die sich mit derselben Geschwindigkeit bewegt", d. h.

$$\kappa = \frac{W}{W_k} \quad (1)$$

κ - dynamischer Formfaktor

W_p - Strömungswiderstand Partikel

W_k - Strömungswiderstand massenäquivalente Kugel

Über den Zusammenhang zwischen Beweglichkeit und äußere Kraft
- hier Strömungswiderstand -

$$B = \frac{v}{W} \quad (2)$$

B - Beweglichkeit

v - Strömungsgeschwindigkeit

W - Strömungswiderstand

ergibt sich κ zu

$$\kappa = \frac{B_K}{B_P} \quad (3)$$

B_P - Beweglichkeit Partikel

B_K - Beweglichkeit massenäquivalente Kugel

Die Beweglichkeit einer nicht-kugelförmigen Partikel ist definiert als

$$B_P = \frac{C(D_P)}{3 \cdot \pi \cdot \eta \cdot D_P} \quad (4)$$

η - Zähigkeit des Mediums

D_P - beweglichkeitsäquivalenter Durchmesser

$C(D_P)$ - Cunningham-Korrektur

Die Beweglichkeit einer massenäquivalenten Kugel ergibt sich zu

$$B_K = \frac{C(D_M)}{3 \cdot \pi \cdot \eta \cdot D_M} \quad (5)$$

D_M - massenäquivalenter Durchmesser

Mit obiger κ -Definition (Gl. 3) ergibt sich der auf den massenäquivalenten Durchmesser bezogene dynamische Formfaktor κ unter Verwendung von Gl. 4 und Gl. 5 zu

$$\kappa = \frac{D_P \cdot C(D_M)}{D_M \cdot C(D_P)} \quad (6)$$

Mit dieser Formel läßt sich der dynamische Formfaktor κ berechnen, wenn der beweglichkeitsäquivalente - und der massenäquivalente Durchmesser bekannt sind.

Neben dieser allgemeinen Ableitung über den Formalismus der Partikelbeweglichkeit bietet der spezielle Prozeß der Sedimentation eine weitere Möglichkeit zur Ableitung von κ . Betrachtet man beim Prozeß der Sedimentation eine sich frei bewegende Partikel mit konstanter End-Fallgeschwindigkeit v_p , d. h. Strömungswiderstand = Gravitationskraft, so gilt:

$$W_p = \frac{v_p}{B_p} = M_p \cdot g = \frac{\pi}{6} \cdot D_M^3 \cdot \rho_g \cdot g \quad (7)$$

M_p - Partikelmasse

g - Erdbeschleunigung

ρ_p - Partikeldichte

Diese Gleichung läßt sich unter Benutzung von Gl. 3 und 5 nach v_p auflösen

$$\begin{aligned} v_p &= \frac{C(D_M)}{3 \cdot \pi \cdot \eta \cdot \kappa \cdot D_M} \cdot \frac{\pi}{6} \cdot D_M^3 \cdot \rho_p \cdot g \\ &= \frac{\rho_p \cdot g}{18 \cdot \eta} \cdot D_M^2 \cdot \frac{C(D_M)}{\kappa} \end{aligned} \quad (8)$$

Die konstante Fallgeschwindigkeit v_p der Partikeln läßt sich indirekt mit einem Meßgerät (z. B. Aerosolzentrifuge) bestimmen, das mit kugelförmigen Partikeln bekannter Dichte und Durchmesser kalibriert werden kann. Für Latexpartikeln der Dichte $\rho_o = 1 \text{ g/cm}^3$ ergibt sich nach Gl. 8:

$$v_o = \frac{\rho_o \cdot g}{18 \cdot \eta} \cdot D_o^2 \cdot C(D_o) \quad (9)$$

Besitzen diese Latexkugeln der Dichte ρ_o die gleiche Sedimentationsgeschwindigkeit v_p wie die zu untersuchenden, nicht-kugelförmigen Partikeln, bezeichnet man ihren Durchmesser als aerodynamischen Durchmesser D_{ae} :

$$v_p = \frac{\rho_o \cdot g}{18 \cdot \eta} \cdot D_{ae}^2 \cdot C(D_{ae}) \quad (10)$$

Der dynamische Formfaktor κ ergibt sich mit Gl. 8 und Gl. 10 zu

$$\kappa = \frac{D_M^2 \cdot C(D_M)}{D_{ae}^2 \cdot C(D_{ae})} \cdot \frac{\rho_p}{\rho_o} \quad (11)$$

Ist der massenäquivalente Durchmesser D_M der Partikeln bekannt, läßt sich also κ z.B. mit Aerosolzentrifugenmessungen bestimmen.

Benutzt man zur Eichung des Meßgerätes Kugeln der Partikeldichte ρ_p , erhält man:

$$\kappa = \frac{D_M^2 \cdot C(D_M)}{D_{St}^2 \cdot C(D_{St})} \quad (12)$$

D_{St} - Stokes'scher Durchmesser

Wird der dynamische Formfaktor κ nach Gl. 6 bzw. Gl. 11 definiert, sind folgende Überlegungen zu berücksichtigen:

a) In den Ableitungen werden die Cunningham-Korrekturen nach der Formel für Kugeln berechnet:

$$C(D) = 1 + 2,492 \frac{\lambda}{D} + 0,84 \frac{\lambda}{D} \cdot e^{-0,43 D/\lambda} \quad (13)$$

D - Partikeldurchmesser

λ - mittlere freie Weglänge

Abweichende Korrekturwerte für nicht-kugelförmige Partikeln gehen in den Wert von κ ein.

b) Die in den Gleichungen benutzten Partikeldurchmesser stellen je nach Meßgerät einen Mittelwert über verschiedene Partikelgeometrien, Partikelorientierungen oder Partikelmassen der Probe dar.

c) Setzt man in obigen Gleichungen für ρ_p den Tabellenwert ein, geht eine Porosität und Nicht-Kompaktheit der Partikeln in κ ein.

2.2 Der Koagulationsformfaktor f

Die Koagulationsfunktion $K_o(M, M')$ für Brown'sche Koagulation zwischen kugelförmigen Partikeln mit Masse M bzw. M' und Radius R_M bzw. $R_{M'}$, berechnete Smoluchowski /9/ zu

$$K_o(M, M') = 4 \cdot \pi \cdot (D + D') \cdot (R_M + R_{M'}) \quad (14)$$

bzw. mit Hilfe der Einstein'schen Relation ($D = BkT$)

$$K_o(M, M') = 4 \cdot \pi \cdot k \cdot T \cdot (B + B') \cdot (R_M + R_{M'}) \quad (15)$$

- D - Diffusionskoeffizient
- B - Beweglichkeit
- k - Boltzmann-Konstante
- T - absolute Temperatur

In Gl. 15 stellt die Summe der Kugelradien - $(R_M + R_{M'})$ - einen orientierungsunabhängigen Stoßabstand dar. Dieser Stoßabstand ist für nicht-kugelförmige Partikeln sicherlich größer als $(R_M + R_{M'})$ und zusätzlich von der Orientierung der Partikeln abhängig. Dem größeren Stoßabstand wird durch Einführung des Koagulationsformfaktors f Rechnung getragen, so daß der über alle Orientierungen gemittelte Stoßabstand zweier nicht-kugelförmiger Partikeln durch $f(R_M + R_{M'})$ definiert werden kann.

Mit dieser Definition und unter Verwendung von Gl. 3 und 5 lautet die Koagulationsfunktion:

$$K_o(M, M') = \frac{2 \cdot k \cdot T}{3 \cdot \eta} \cdot \left(\frac{C(R_M)}{\kappa(R_M) \cdot R_M} + \frac{C(R_{M'})}{\kappa(R_{M'}) \cdot R_{M'}} \right) \cdot f \cdot (R_M + R_{M'}) \quad (16)$$

Für kleine Partikeln ($R \cong \lambda$) wird diese Funktion durch die Fuchs'sche Korrektur $G_0(M, M')$ ergänzt, deren Begründung in der theoretischen Ableitung der Koagulationsfunktion liegt:

$$G_0(M, M') = \frac{2 \cdot k \cdot T \cdot \left(\frac{C(R_M)}{\kappa(R_M) \cdot R_M} + \frac{C(R_{M'})}{\kappa(R_{M'}) \cdot R_{M'}} \right)}{3 \cdot \pi \cdot \eta \cdot f \cdot (R_M + R_{M'})} \cdot \sqrt{\frac{M \cdot M'}{M + M'} \cdot \frac{\pi}{8 \cdot k \cdot T}}$$

(17)

$$K(M, M') = K_0(M, M') \cdot \frac{1}{1 + G_0}$$

(18)

Betrachtet man das Koagulationsverhalten eines gesamten Aerosolsystems, wird über die Koagulationswahrscheinlichkeiten aller Partikeln summiert. Dieses Verfahren wird in Aerosolcodes - z. B. PARDISEKO /1/ - angewendet. Experimentell läßt sich kein größenabhängiger Koagulationsformfaktor messen, so daß auch in den Berechnungen ein über das gesamte Aerosolspektrum gemittelter konstanter f-Wert verwendet wird.

3. Beschreibung der Versuchseinrichtungen

Versuchsstände zur Untersuchung des Aerosolverhaltens lassen sich grob in drei Bereiche einteilen. Nach der Erzeugung der Partikeln in einem Aerosolgenerator wird das Aerosol in eine, entsprechend den gewünschten Untersuchungen konstruierte, Apparatur geleitet. Abschließend wird das Aerosol zur Auswertung bezüglich Größenverteilung, Massenverteilung o.ä. der Meßtechnik bzw. den Probefiltern zugeführt.

3.1 Aerosolgeneratoren

Die in den nachfolgend beschriebenen Versuchen verwendeten Aerosole (Platinoxid, Urandioxid) werden auf unterschiedliche Art erzeugt. Die einzige Parallele in der Erzeugung der Aerosole liegt in einer anfänglichen Verdampfung festen Materials und anschließender Kondensation des Dampfes in kälterer Umgebung. Aus diesem Grund weisen beide Aerosole eine ähnliche äußere Partikelstruktur auf. UO_2 -Partikeln werden untersucht, da sie Bestandteil eines SNR-Störfallaerosols sind. Die kleineren, äußerlich ähnlichen Platinoxidpartikeln dienen als einfach zu handhabendes Simulationsaerosol, um Meßapparatur und Meßverfahren zu testen.

3.1.1 Platinoxidaerosol

Die Platinoxidpartikeln werden durch elektrisches Heizen eines Platindrahtes in einem 2,5 l - Edelstahlbehälter (Abb. 1) erzeugt. Bei genügend hoher Temperatur, d. h. bei genügend hohem Heizstrom, wird der Platindraht von der durch den Generator strömenden synthetischen Luft an der Oberfläche oxidiert. Da der Dampfdruck des Oxids höher als der des reinen Platins ist, dampft Platinoxid ab und rekondensiert in der kälteren Luft zu Platinoxidpartikeln /10, 11/.

Der in den Versuchen verwendete Platindraht hatte eine Länge von 25 cm und einen Durchmesser von 0.5 mm. Bei einem Heizstrom von 13 A und einem Trägergasfluß von 14,5 l/min erhält man eine Anzahlkonzentration von mehr als 10^6 Partikeln/cm³. Diese Anzahlkonzentration wurde nicht direkt am

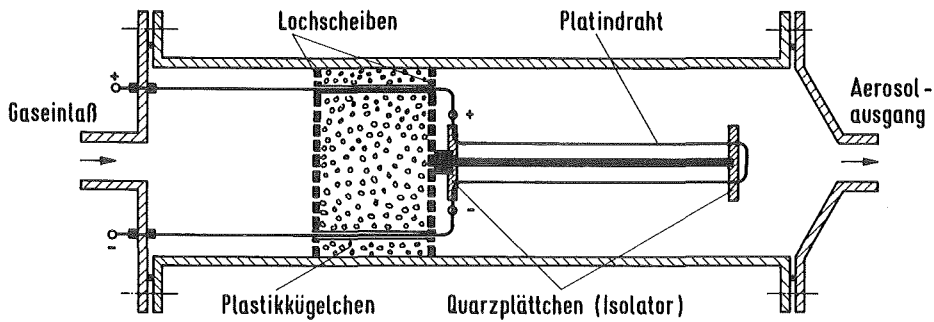


Abb. 1: Platinoxid-Aerosolgenerator

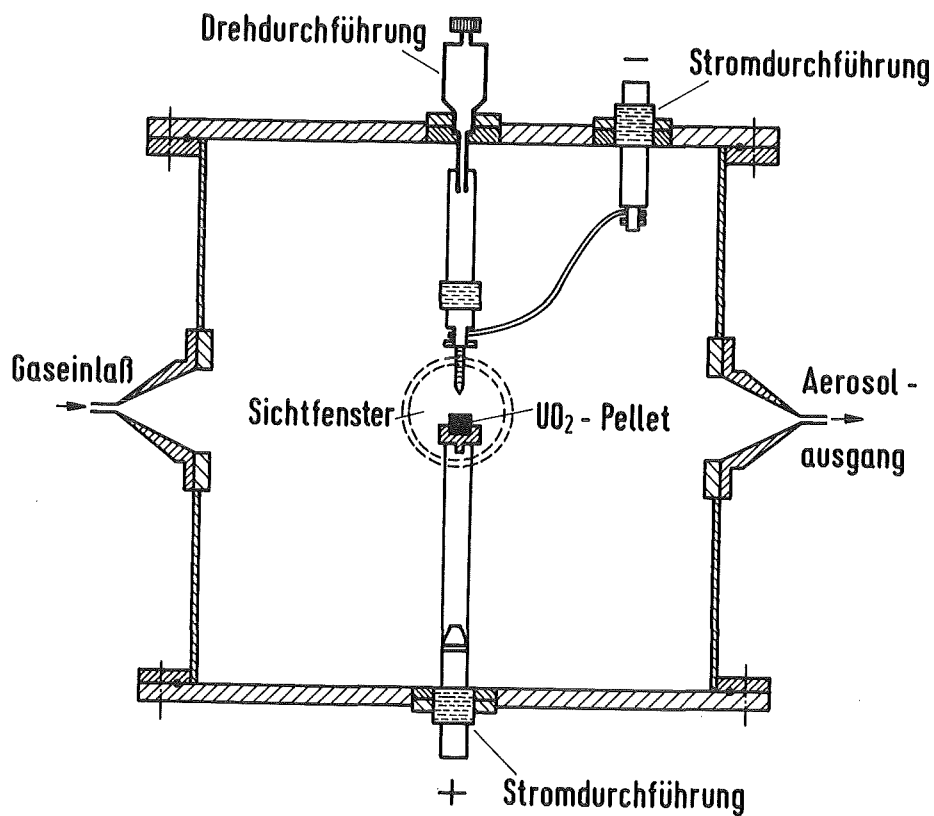


Abb. 2: UO_2 -Aerosolgenerator

Generatorausgang gemessen sondern nach einem zusätzlichen 75 l - Puffergefäß, in dem die sehr kleinen Primärpartikeln ($D < 0.01 \mu\text{m}$) ca. 5 Minuten zur Stabilisierung des Gesamtaerosols koagulieren konnten. Eine Verwendung des Aerosols direkt nach dem Generatorausgang hätte unkontrollierbare Schwankungen in der Anzahlkonzentration und der Größenverteilung des Aerosols zur Folge.

Eine höhere Anzahlkonzentration ließ sich weder durch einen längeren Generatordraht noch durch eine Erhöhung des Heizstroms erreichen. Bei Heizstromstärken über 10 A schmolz der Platindraht innerhalb weniger Minuten durch. Unter Einhaltung der beschriebenen Generatorparameter konnte ein nahezu konstanter Aerosolfluß über mehrere Stunden erreicht werden.

3.1.2 Urandioxidaerosol

Bei der Konstruktion des UO_2 -Aerosolgenerators (Abb. 2) wurden Erfahrungen im Umgang mit ähnlichen Generatoren /12/ berücksichtigt. Das Aerosol wird in einem zylinderförmigen Edelstahlbehälter ($V \approx 100 \text{ l}$) durch Verdampfung eines UO_2 -Pellets im Lichtbogen erzeugt. Die positive Elektrode setzt sich zusammen aus einer Kupfer-Stromdurchführung mit Keramikisolator und einer aufgesetzten Edelstahlverlängerung, die im Mittelpunkt des Generators endet. In diese Verlängerung wird ein in eine Edstahlhalterung gefaßtes UO_2 -Pellet eingeschraubt. Das Pellet besteht aus ca. 18 g natürlichem UO_2 . Ein kurzes Edstahlvollrohr mit eingeschraubter Tantalspitze dient als Kathode. Über ein flexibles Kabel wird die elektrische Verbindung zu einer zweiten Stromdurchführung hergestellt. Die gesamte Kathode kann über einen von außen zu bedienenden Gewindeantrieb in der Vertikalen verschoben werden. Dadurch läßt sich der Abstand zwischen negativer Tantalspitze und positivem UO_2 -Pellet beliebig variieren. Diese Tatsache ist bei der von dem Zünden des Lichtbogens notwendigen Vorheizung des UO_2 -Pellets ebenso von großer Bedeutung wie bei der Erhaltung des Lichtbogens /12/.

Bereits vor der Zündung wird der Generator mit Stickstoff (14,5 l/min) gespült. Zwei kleinere Ventilatoren sorgen für eine gleichmäßige Durchmischung des gesamten Generatorvolumens. Unter Ausschluß von Luftsauerstoff besteht das Aerosol aus UO_2 -Partikeln, deren Konzentration sich durch Änderung der Lichtbogenleistung variieren läßt. Eine Heizleistung von

1 - 1.5 kW entspricht unter den beschriebenen Versuchsbedingungen einer UO_2 -Partikelanzahlkonzentration von ca. 2×10^6 P/cm³ und einer Massenkonzentration von ca. 1 g UO_2 /m³.

3.2 Geräte zur Aerosolgrößenfraktionierung

Bei den meisten aerosolphysikalischen Untersuchungen interessiert nicht nur das Verhalten eines gesamten Aerosolsystems sondern vielmehr das unterschiedliche Verhalten der Partikeln als Funktion ihrer Größe. Um das größenabhängige Verhalten untersuchen zu können, müssen verschiedene Größenfraktionen vom restlichen Aerosolsystem getrennt werden. Hierzu können das unterschiedliche aerodynamische Verhalten (Aerosolzentrifuge), eine unterschiedliche elektrische Beweglichkeit (Differentieller Mobilitäts-Analysator) oder verschieden große Diffusionskoeffizienten (Diffusionsbatterie) der Partikeln herangezogen werden. Äußerlich verschieden große Partikeln können unter Verwendung mehrerer Filter mit unterschiedlicher Porengröße (Nuclepore-Filter) voneinander getrennt werden. Im folgenden werden der Differentielle Mobilitäts-Analysator (DMA) und die Aerosolzentrifuge ausführlich beschrieben, da mit diesen Geräten die benötigten Größenfraktionierungen durchgeführt werden konnten.

3.2.1 Differentieller Mobilitäts-Analysator (DMA) 'TSI 3071'

Das Prinzip des DMA basiert auf einer einfachen Beziehung zwischen elektrischer Beweglichkeit Z_p und Partikelgröße D_p , wenn die Partikeln einfach geladen sind:

$$Z_p = \frac{e \cdot C \cdot 10^7}{3 \cdot \pi \cdot \eta \cdot D_p} \quad (19)$$

e - Elementarladung ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C)

η - Viskosität des Gases /Poise/

C - Cunningham-Korrektur

Entsprechend Gl. 19 nimmt die elektrische Beweglichkeit einfach geladener Partikeln mit zunehmendem Partikeldurchmesser D_p ab (Abb. 3).

In DMA werden die zu untersuchenden Partikeln mit Hilfe bipolarer Beladung elektrisch aufgeladen und anschließend in einem elektrischen Feld entsprechend ihrer elektrischen Beweglichkeit an verschiedenen Stellen einer mit einem Sammelspalt versehenen Elektrode abgeschieden (Abb. 4). Bei konstanten Gasflüssen innerhalb des Gerätes gelangt jeweils eine monodisperse Partikelfraktion mit einem bestimmten beweglichkeitsäquivalenten Durchmesser D_p als Funktion des elektrischen Feldes, d. h. als Funktion der angelegten Hochspannung U in den Sammelspalt der Elektrode (Abb. 4, Mitte) und wird dem Probenausgang des DMA zugeführt. Mit Erhöhung der angelegten Spannung nimmt der beweglichkeitsäquivalente Durchmesser der in den Sammelspalt gelangten einfach geladenen Partikeln D_p zu.

Entsprechend dem Prinzip der bipolaren Beladung werden jedoch die Partikeln in Abhängigkeit von ihrer Größe nach dem Boltzmann-Gesetz zu einem gewissen Prozentsatz mehrfach geladen (Tab. 1).

D_p [μm]	$n_p =$								
	- 4	- 3	- 2	- 1	0	+ 1	+ 2	+ 3	+ 4
0.01				0.34	99.32	0.34			
0.02				5.23	89.53	5.23			
0.04			0.23	16.22	67.10	16.22	0.23		
0.06		0.01	1.25	21.30	54.88	21.30	1.25	0.01	
0.08		0.08	2.78	23.37	47.53	23.37	2.78	0.08	
0.10		0.26	4.39	24.09	45.52	24.09	4.39	0.26	
0.20	0.32	2.33	9.66	22.63	30.06	22.63	9.66	2.33	0.32
0.40	2.19	5.92	12.05	18.44	21.26	18.44	12.05	5.92	2.19
0.60	3.82	7.41	11.89	15.79	17.36	15.79	11.89	7.41	3.82
0.80	4.83	7.94	11.32	14.00	15.03	14.00	11.32	7.94	4.83
1.00	5.42	8.06	10.71	12.70	13.45	12.70	10.71	8.06	5.42

Tab. 1: Boltzmann-Ladungsverteilung auf Aerosolpartikeln [%] / 13 /

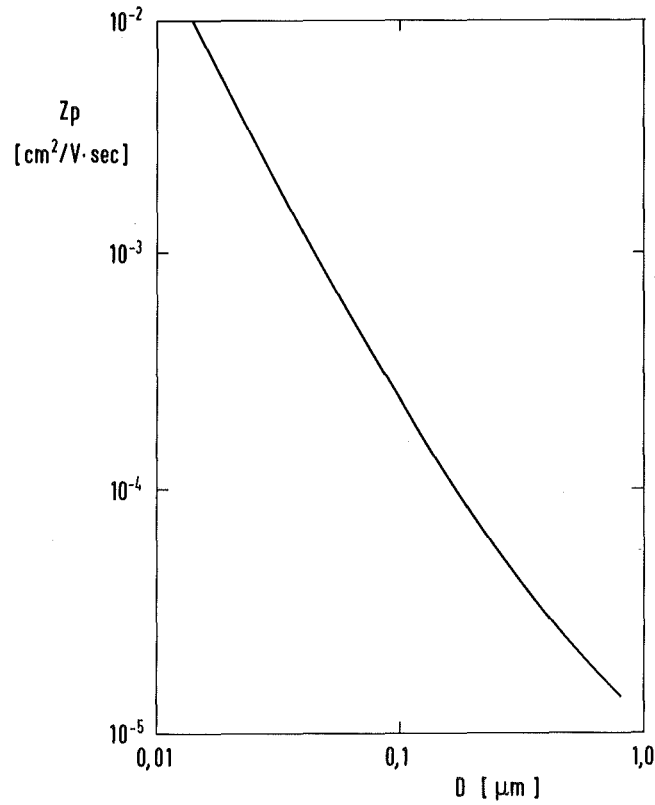


Abb. 3: Elektr. Beweglichkeit einfach geladener Partikeln als Funktion des Partikeldurchmessers

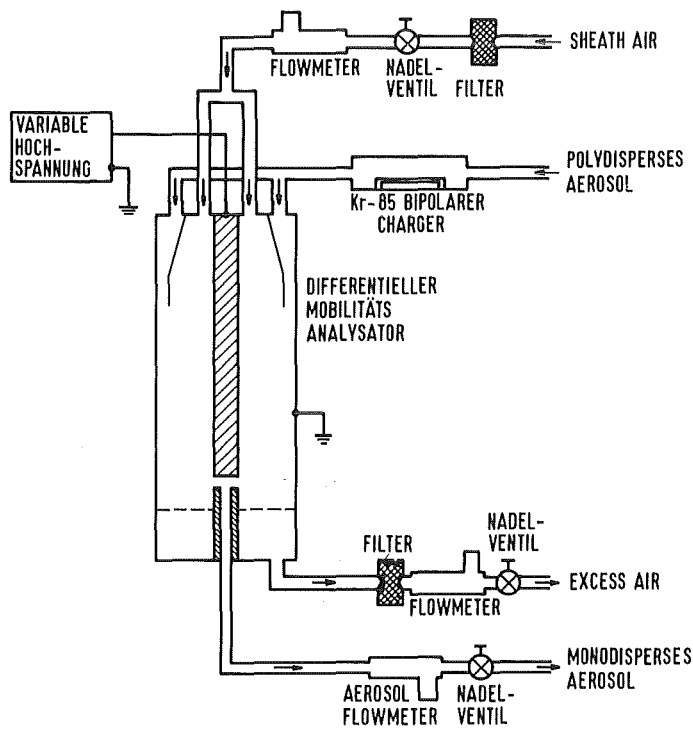


Abb. 4: Flußschema des Differentiellen Mobilitäts-Analysator TSI 3071

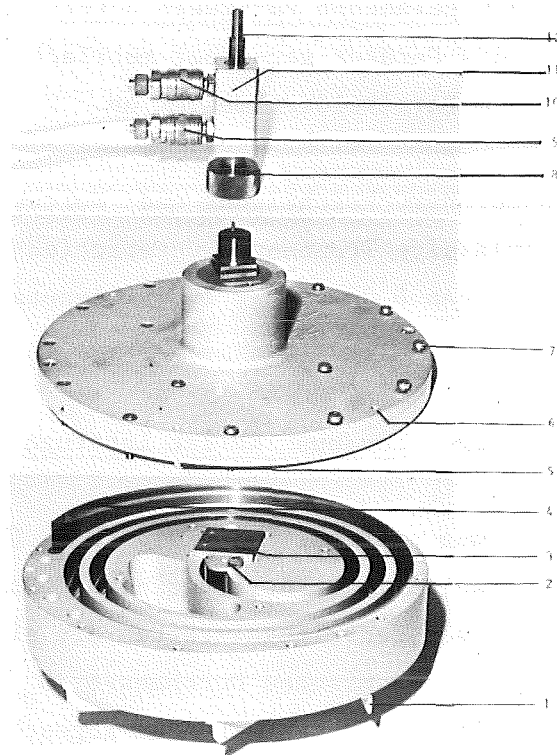
Demzufolge werden bei jeder angelegten Hochspannung U neben einfach geladenen Partikeln mit dem beweglichkeitsäquivalenten Durchmesser D_p auch mehrfach geladene, größere Partikeln im Sammelspalt abgeschieden. Je nach der weiteren Verwendung der am Probenausgang angelangten Partikelfraktion kann dieser Quereffekt korrigiert werden. Werden die Partikeln am Probenausgang auf Filtern abgeschieden, können durch elektronenmikroskopische Aufnahmen des Filters kleinere, einfach geladene Partikeln von größeren, mehrfach geladenen Partikeln unterschieden werden. Die Querempfindlichkeit des Gerätes gegenüber mehrfach geladenen Partikeln steigt mit zunehmendem Partikeldurchmesser an.

Das Gerät kann - unter Berücksichtigung und Korrektur der Querempfindlichkeit - für zuverlässige Trennungen unterschiedlicher Partikeln mit einem Durchmesser von $0.005 \mu\text{m} - 1.0 \mu\text{m}$ benutzt werden.

3.2.2 Aerosolzentrifuge 'Heraeus Christ Labofuge III'

Zur Größenfraktionierung größerer Partikeln ($D_{ae} \approx 0.08 \mu\text{m} - 5 \mu\text{m}$) eignet sich eine Aerosol-Spiralzentrifuge nach Stöber /14/. In diesem Gerät werden aufgrund von Zentrifugalkräften die eingegebenen Partikeln entsprechend ihrem aerodynamischen Durchmesser D_{ae} an verschiedenen Stellen eines 180 cm langen Aluminiumbandes abgeschieden. Dieses Band befindet sich in einem Spiralkanal, der in einen Zentrifugenrotor eingearbeitet ist. Im Rotorzentrum werden in zwei verschiedenen Strömungen das zu untersuchende Aerosol und gereinigte und getrocknete Trägergasluft eingespeist (Abb. 5). Die Drehzahl, der Aerosolfluß und die Trägergasmenge können zur Optimierung des Trennungsprozesses und zur Anpassung an das gesamte Meßsystem variiert werden.

Es gibt bisher keinen zufriedenstellenden mathematischen Zusammenhang zwischen der Partikelgröße und der Abscheidelänge auf dem Folienband. Man verwendet deshalb empirisch ermittelte Eichkurven, die für bestimmte Zentrifugen-Betriebsparameter mit Hilfe eines kugelförmigen Latex-Aerosols der Dichte $\rho_o = 1 \text{ g/cm}^3$ gewonnen werden.



- | | |
|-------------------------------|---------------------------|
| 1 Ventilationsbleche | 7 Innensechskantschrauben |
| 2 Aerosol-Eintrittsdüse | 8 Rändelmutter |
| 3 Laminator | 9 Anschluß Trägergas |
| 4 Folienband | 10 Anschluß Gesamtgas |
| 5 Paßstife | 11 Kupplung |
| 6 Gewinde für Abziehschrauben | 12 Anschluß Probegas |

Abb. 5: Aerosol Spiralrotor (Heraeus-Christ Labofuge III)

Die Betriebsdaten zur Eichung der Zentrifuge wurden entsprechend den zukünftigen Aufgaben wie folgt gewählt:

Trägergasvolumen: 18 l/min $\hat{=}$ 1080 l/h
Aerosolfluß: 2 l/min $\hat{=}$ 120 l/h
Drehzahl des Rotors: 3000 U/min

Die benötigten Latex-Aerosole wurden durch Zerstäuben einer Mischung verschiedener Latex-Suspensionen in einem geeigneten Aerosolgenerator /15, 16/ erzeugt. Die Misch-Suspension bestand aus verdünnten Latex-Suspensionen mit den Partikelgrößen 0,085 μm ; 0,312 μm ; 0,460 μm ; 0,527 μm ; 0,620 μm ; 0,945 μm ; 2,02 μm und 5,7 μm .

Eine gleichmäßige Beladung des Eichbandes konnte durch folgende Konzentrationen der einzelnen Suspensionen erreicht werden:

Partikeldurchmesser [μm]	Partikelkonzentration [\bar{p}/cm^3]
0.085	1×10^9
0.312	8×10^8
0.460	8×10^8
0.527	8×10^8
0.620	6×10^8
0.945	6×10^8
2.02	6×10^8
5.7	4×10^8

Innerhalb von 15 Stunden wurden 1000 ml der Misch-Suspension zerstäubt und als Aerosol in die Zentrifuge eingebracht. Vor dem Versuch wurden im Abstand von 5 cm Grids auf das Folienband geklebt, auf denen sich - ebenso wie auf dem restlichen Band - die Aerosole entsprechend ihrem aerodynamischen Durchmesser D_{ae} niederschlugen. Eine Auswertung dieser Grids mit dem Transmissions-Elektromikroskop lieferte die Eichkurve (Abb. 6), die jeder Folienlänge 1 Partikeln eines bestimmten aerodynamischen Durchmesser D_{ae} zuordnet.

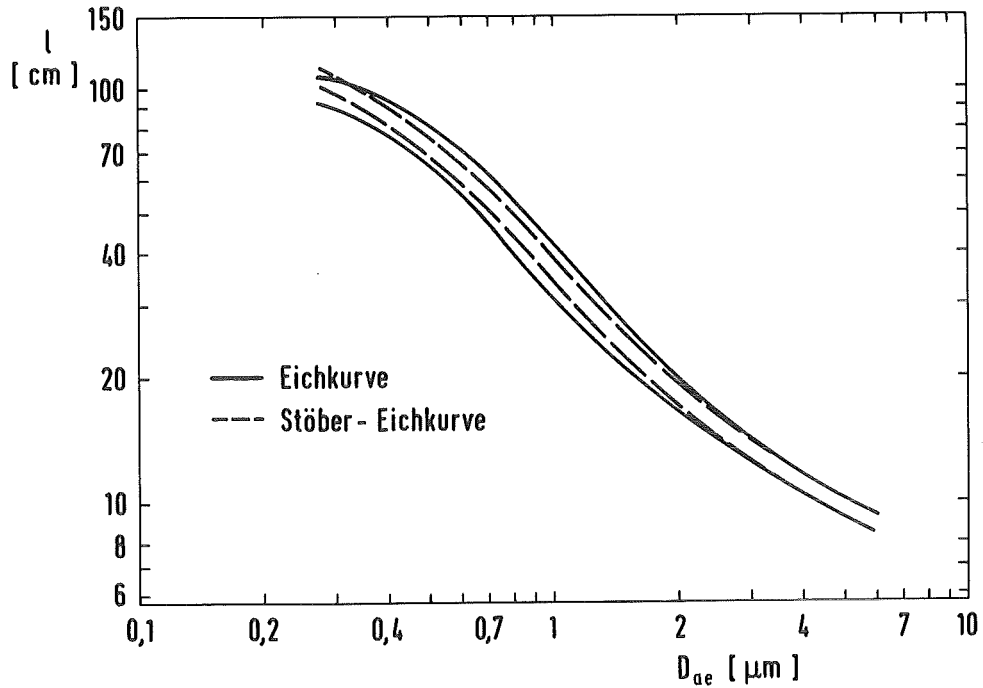


Abb. 6: Eichkurve der Aerosolzentrifuge

Im Vergleich zu der hier gewonnenen Eichkurve ist die Eichkurve der Original-Zentrifuge nach Stöber eingezeichnet. Ein Vergleich zeigt zwei deutliche Abweichungen. Die Bandbreite der Eichkurve über die Abszisse, d. h. die Größentrennung der Zentrifuge ist über dem gesamten Bereich schlechter als in der Originalarbeit. Für Partikeln mit $D_{ae} < 0,4 \mu\text{m}$ findet unter den gewählten Flußbedingungen keine auswertbare Größentrennung mehr statt. Beide Effekte lassen sich auf den gegenüber der Originalarbeit höheren Aerosolfluß zurückführen. Während bei Stöber der Aerosolfluß 4 % des Gesamtflusses betrug, lag er bei den hier durchgeführten Messungen bei 10 %. Dieser höhere Aerosolfluß trägt zu einer Verschlechterung der Auflösung, insbesondere bei kleineren Partikeln, bei. Der relativ hohe Aerosolfluß von 2 l/min wurde jedoch gewählt, um bei den späteren Messungen in relativ kurzer Zeit eine auswertbare Beladung des Folienbandes zu erreichen.

Betrachtet man den Mittelwert des Durchmessers über die Bandbreite der Eichkurve bei einer bestimmten Abscheidelänge l , so ergeben sich folgende Zahlenpaare:

Folienlänge l [cm]	Partikeldurchmesser D_{ae} [μ m]	Bandbreite [%]
78	0,47	
68	0,55	+ 12
58	0,66	-
19	1,90	

3.3 Koagulationsrohr

Eine Apparatur zur Untersuchung des Koagulationsverhaltens eines Aerosolsystems muß derart konstruiert sein, daß andere aerosolphysikalische Effekte wie Diffusion, Sedimentation usw. vernachlässigt werden können. Weiterhin muß die Möglichkeit bestehen, die Größenverteilung des Aerosols zu Beginn der Untersuchungen und nach einer definierten Koagulationszeit zu bestimmen.

Diese Bedingungen werden durch ein senkrecht angeordnetes Rohr mit entsprechend angeordneten Sammelpunkten erfüllt. Das verwendete Rohr ist aus Edelstahl gearbeitet und hat eine maximale Gesamtlänge von 5,9 m (Abb. 7). Durch Entnahme verflanschter 1 m-Rohrsegmente kann die Länge auf minimal 0,9 m gekürzt werden. Der Innendurchmesser des Rohres beträgt 10,2 cm. Am oberen und unteren Ende des Rohres befinden sich seitlich in das Rohr eingearbeitete, gebogene Edelstahlrohre mit einem Innendurchmesser von 10 mm, die der Probeentnahme aus dem Rohr dienen. Der Abstand zwischen diesen Probenahmestellen kann zwischen 0,2 und 5,2 m meterweise variiert werden. Direkt über dem Bodenbehälter und kurz unterhalb des oberen Rohrendes befinden sich Metallgitter, die als Laminatoren turbulente Strömung im Rohr verhindern.

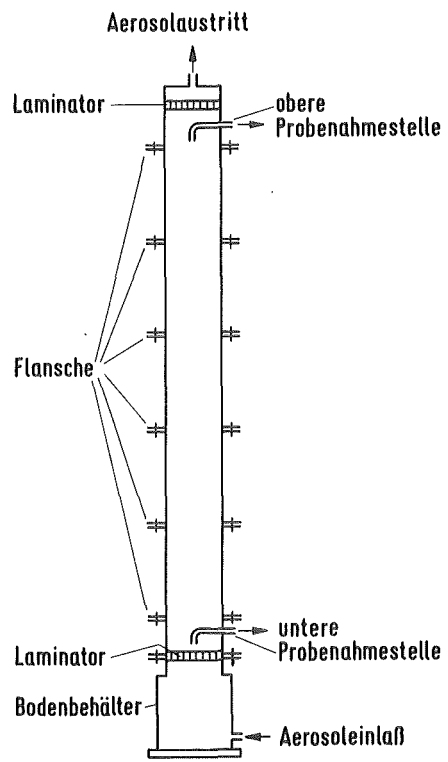


Abb. 7: Koagulationsrohr

4. Versuchsdurchführung

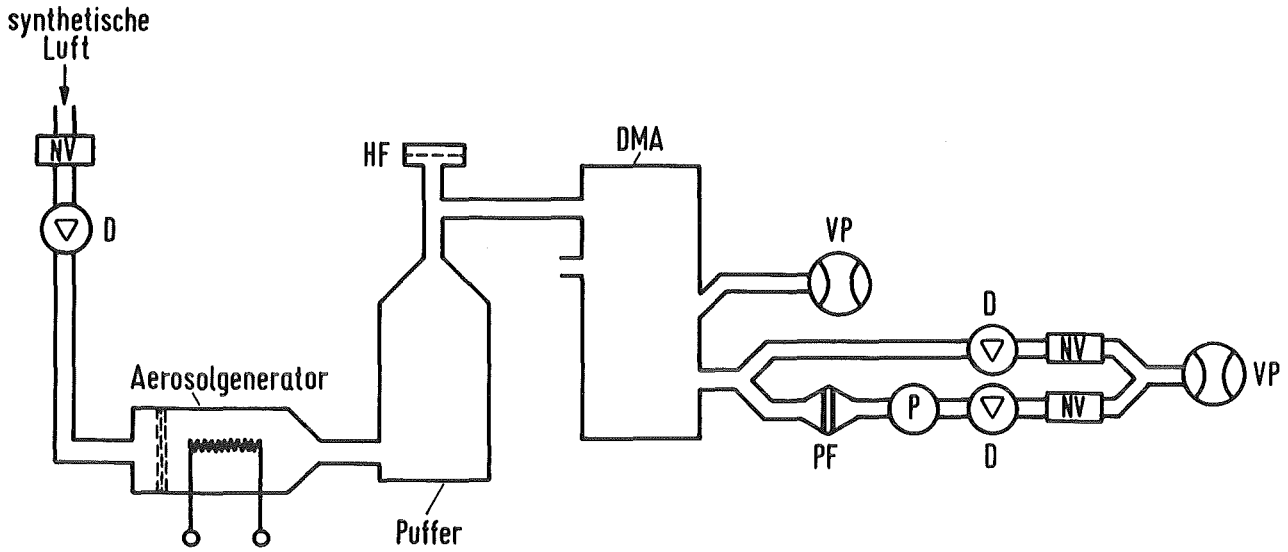
Versuche mit nicht-kugelförmigen Partikeln können nur unter bestimmten Voraussetzungen mit kommerziell erhältlichen Geräten durchgeführt werden. Ein Großteil der Geräte wird mit kugelförmigen Partikeln kalibriert, so daß deren Eichwerte und Eichkurven nur bedingt auf nicht-kugelförmige Aerosolpartikeln übertragen werden können. Bei der Bestimmung von Formfaktoren, die ja gerade das abweichende Verhalten nicht-kugelförmiger Partikeln gegenüber Kugeln beschreiben, können Geräte, die mit kugelförmigen Partikeln kalibriert werden, sehr hohe Meßfehler verursachen. Diese Überlegungen wurden bei der Auswahl des Versuchsaufbaus und der Versuchsdurchführung ebenso wie bei den späteren Auswerteverfahren berücksichtigt.

4.1 Messungen zur Bestimmung des dynamischen Formfaktors κ

Der dynamische Formfaktor κ läßt sich nach Gl. 6 bzw. Gl. 11 berechnen, wenn der massenäquivalente Durchmesser und der beweglichkeitsäquivalente - bzw. der aerodynamische Durchmesser der Partikeln bekannt sind. Trennt man die interessierenden Partikelfraktionen vom restlichen Aerosol, läßt sich der dynamische Formfaktor als Funktion der Partikelgröße bestimmen.

4.1.1 Platinoxidaerosol

Die experimentelle Apparatur zur Bestimmung der für die Berechnung von κ benötigten Durchmesser D_M und D_p ist in Abb. 8 dargestellt. Das Platinoxidaerosol wird im Aerosolgenerator (s. 3.1.1) erzeugt und mit einem Gasstrom von 14,5 l/min synthetischer Luft in das Puffergefäß ($V = 75$ l) transportiert. Am Ausgang des Puffers liegt ein aus sehr kleinen Primärpartikeln koaguliertes Aerosol vor (Abb. 9), dessen Größenverteilung n^* (R_M) (s. 5.2.1) Abb. 10 zu entnehmen ist. Der Großteil dieser Partikeln hat einen Durchmesser $D_M < 0.15 \mu\text{m}$.



NV - Nadelventil

D - Durchflußmesser

HF - Hauptfilter

VP - Vakuumpumpe

PF - Probenfilter

P - Manometer

Abb. 8 : Experimentelle Apparatur zur Bestimmung des dynamischen Formfaktors eines Platinoxidaerosols

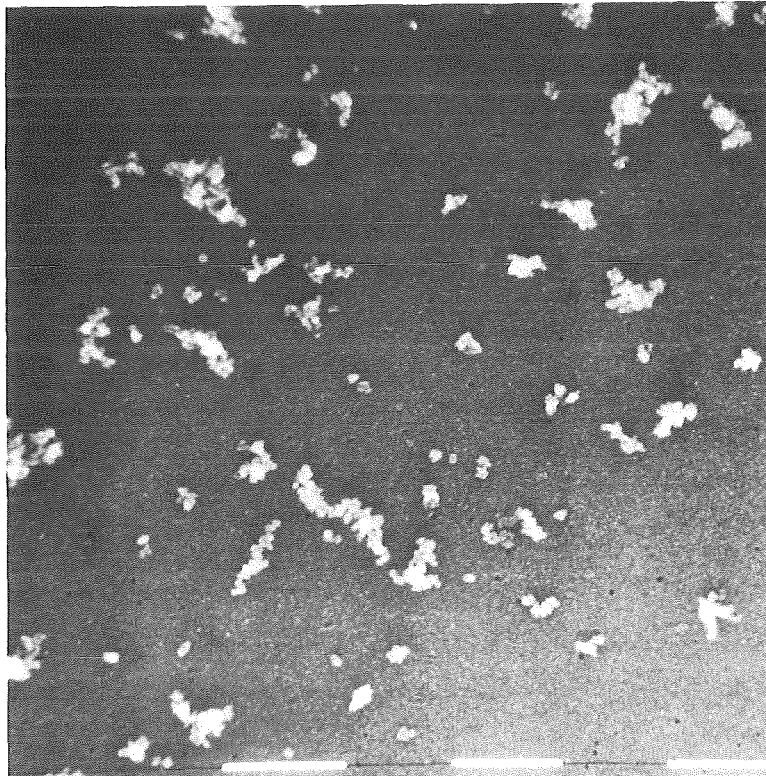


Abb. 9: Platinoxidaerosol am Ausgang des Puffers
(50.000fache Vergrößerung, — 0,5 μm)

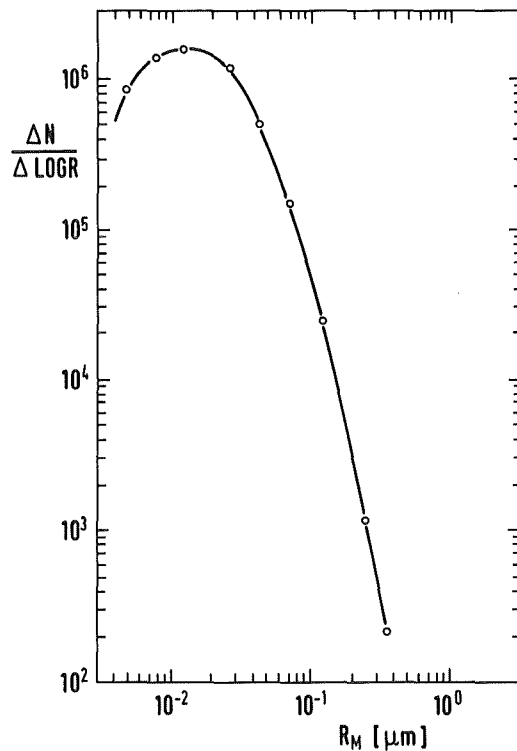


Abb. 10: Größenverteilung des Platinoxidaerosols am Ausgang des Puffers

Zur Größenfraktionierung von Partikeln dieser Größe eignet sich der Differentielle Mobilitäts-Analysator (DMA) TSI 3071 (s. 3.2.1). Ein Aerosolstrom von 2 l/min wird deshalb aus dem Puffer in den DMA geleitet. Das restliche Aerosol (12,5 l/min) wird über einen Filter abgegeben. Zusätzlich zu dem Aerosolfluß von 2 l/min wird gereinigte Außenluft als Trägergas mit einem Durchsatz von 20 l/min durch den DMA gesaugt. Am Probenausgang des DMA tritt mit einem Fluß von 2 l/min ein monodisperses Aerosol aus. Der beweglichkeitsäquivalente Durchmesser D_p dieser Partikeln läßt sich über eine Änderung der angelegten Hochspannung U variieren. Die verwendeten Hochspannungen U und die daraus resultierenden Durchmesser D_p der monodispersen Partikelfractionen sind in Tab. 2 zusammengefaßt.

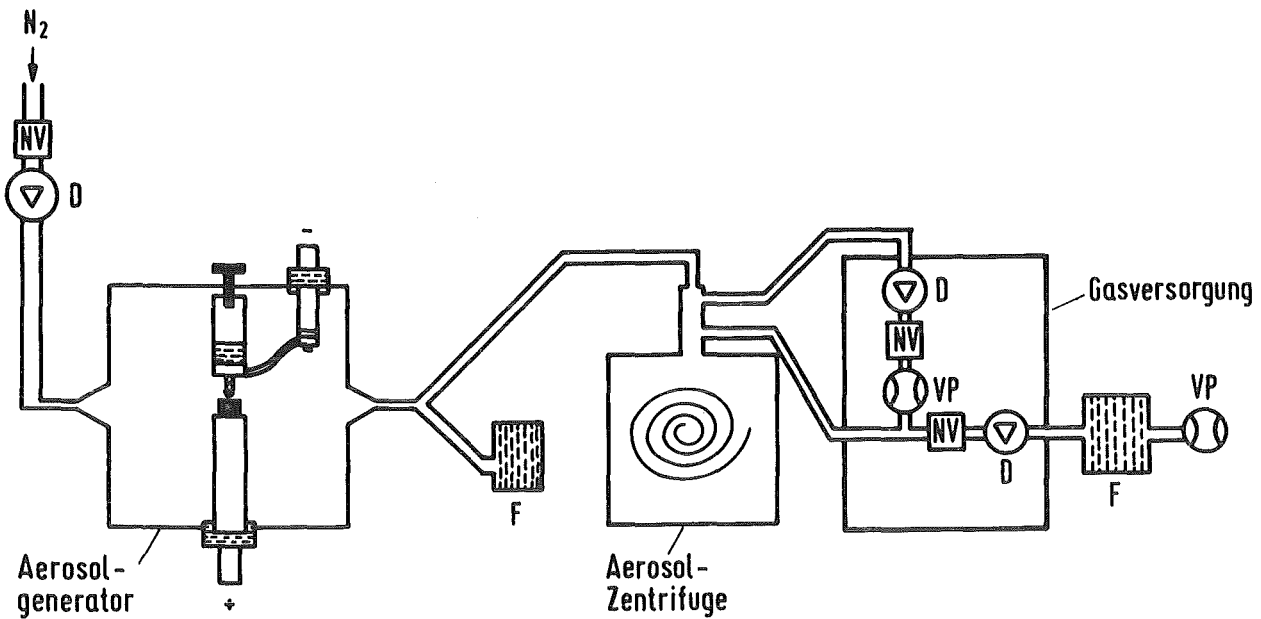
Hochspannung U [\bar{V}]	Beweglichkeitsäquivalenter Durchmesser D_p [$\bar{\mu m}$]
620	0,04
1316	0,06
3261	0,10
6412	0,15

Tab. 2 : Beweglichkeitsäquivalenter Durchmesser D_p bei verschiedenen Hochspannungen U

Ein Teil des monodispersen Aerosols (0,5 l/min) wird durch einen Filter gesaugt und dort abgeschieden. Es werden Nuclepore-Filter /17/ mit einem Durchmesser von 47 mm und einer Porengröße von 0,03 μm verwendet. Die Saugzeit und damit das Probevolumen orientiert sich an der Partikelgröße und der im ursprünglichen Aerosol vorliegenden Anzahlkonzentrationen der jeweiligen Größenfraktion. Bei der 0,04 μm -Fraktion betrug das mittlere Probevolumen 140,2 l, bei der 0,06 μm -Fraktion 61 l, bei der 0,1 μm -Fraktion 27,1 l und bei der 0,15 μm -Fraktion 21,4 l. Zu jeder Größenfraktion wurden drei Messungen durchgeführt: Die Mittelwerte dieser Messungen wurden dann zur Auswertung herangezogen. Nach Abschluß jeder Messung wurde der beladene Filter aus dem Filterhalter genommen und im Verhältnis 1 : 3 in zwei Teile zerschnitten. Der kleinere Teil wurde zur elektronenmikroskopischen -, der größere Teil zur neutronenaktivierungsanalytischen Untersuchung des Filters benutzt.

4.1.2 Urandioxidaerosol

Die experimentelle Apparatur für analoge Messungen des dynamischen Formfaktors κ verschiedener UO_2 -Partikelfractionen zeigt - aufgrund der gegenüber Platinoxidpartikeln größerer UO_2 -Partikeln - eine geänderte Zusammenstellung (Abb. 11).



- | | |
|---------------------|------------------|
| NV - Nadelventil | F - Filter |
| D - Durchflußmesser | VP - Vakuumpumpe |

Abb. 11: Experimentelle Apparatur zur Bestimmung des dynamischen Formfaktors eines UO_2 -Aerosols

Anstelle des Differentiellen Mobilitäts-Analysators wird eine Aerosol-zentrifuge (s. 3.2.2) zur Fraktionierung unterschiedlich großer Partikeln verwendet.

Das Aerosol wird im UO_2 -Aerosolgenerator (s. 3.1.2) nach dem Lichtbogenprinzip erzeugt. Gleichzeitig wird der Generator mit $14,5 \text{ l } N_2/\text{min}$ gespült. Zur Spülung des Generators wird N_2 anstatt synthetischer Luft verwendet, um eine Oxidation von UO_2 zu U_3O_8 zu vermeiden. Zwei kleine Ventilatoren sorgen im Innern des Generators für eine gleichmäßige Verteilung des frisch gebildeten Aerosols. Das Aerosol wird am Generatorausgang in zwei Teilströme geteilt. Ein Teilstrom von $2 \text{ l}/\text{min}$ wird als Aerosolfluß in die Zentrifuge eingebracht. Das restliche Aerosol wird auf einem Filter der Güteklasse S abgeschieden.

Während der Einspeisung der Aerosolprobe (2 l/min) wird die Zentrifuge aus einem teilweise geschlossenen Kreislauf einer Gasversorgungseinheit mit gefilterter und getrockneter Luft (18 l/min) als Trägergas versorgt. Als Ausgleich zu dem in den Kreislauf eingebrachten Aerosolfluß von 2 l/min werden 2 l/min der Gesamtgasmenge (20 l/min) aus dem Gerätekreislauf abgepumpt.

Die Partikeln werden in der Zentrifuge entsprechend ihrem aerodynamischen Durchmesser an verschiedenen Stellen des Folienbandes abgeschieden. Um für alle interessierenden Partikelfraktionen eine auswertbare Bandbeladung zu erhalten, wurden zwei Messungen mit unterschiedlicher Beladungszeit durchgeführt. Zur Untersuchung von kleinen Partikeln ($D_{ae} = 0,47 \mu\text{m}$; $0,55 \mu\text{m}$; $0,66 \mu\text{m}$) wurde das Folienband fünf Minuten mit einem Aerosolfluß von 2 l/min beladen. Zur Untersuchung großer Partikeln ($D_{ae} = 1,9 \mu\text{m}$) war eine Beladungszeit von zwei Minuten ausreichend. Nach der Beladung wurde das Band der Zentrifuge entnommen und aus der Bandmitte an entsprechenden Stellen (Folienlänge $l = 19 \text{ cm}$; 58 cm ; 68 cm ; 78 cm ; s. 3.2.2) Probenstücke herausgeschnitten. Die Proben zur elektronenmikroskopischen Untersuchungen hatten eine Folienfläche von ca. $5 \times 10 \text{ mm}$, die Folienstücke für die Neutronenaktivierungsanalysen von ca. $10 \times 10 \text{ mm}$.

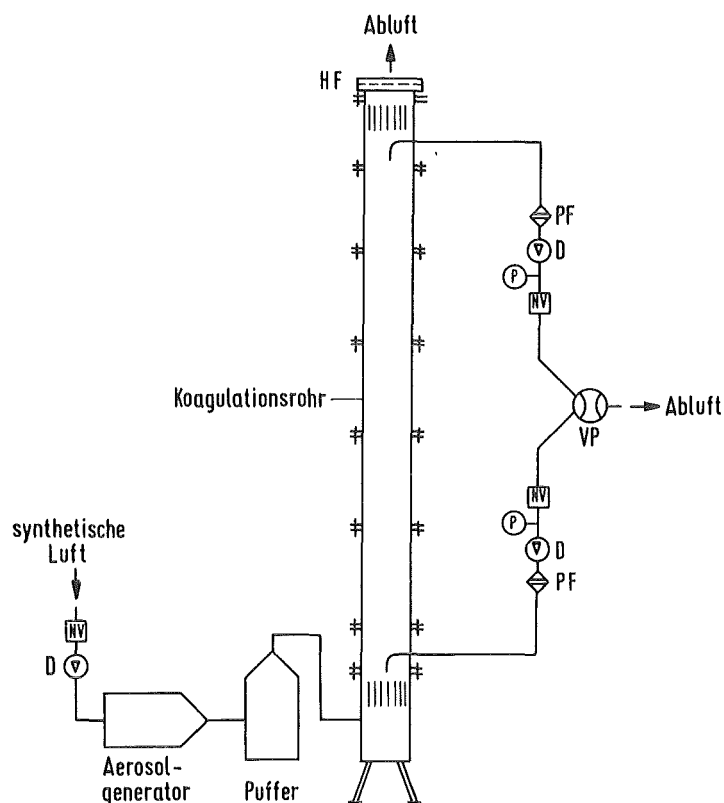
4.2 Messungen zur Bestimmung des Koagulationsformfaktors f

Das Koagulationsverhalten eines Aerosolsystems läßt sich meßtechnisch nicht in Koagulationsvorgänge zwischen einzelnen Partikelfraktionen aufteilen. Aus diesem Grund kann der Koagulationsformfaktor nicht größenabhängig sondern nur über ein gesamtes Aerosolsystem gemittelt, bestimmt werden. Die hierzu notwendigen Messungen werden in einem senkrecht stehenden Edelstahlrohr ausgeführt. Obwohl der Versuchsablauf für beide Aerosole sehr ähnlich ist, bestehen im Versuchsaufbau einige Unterschiede. Höhere Aerosolmassenkonzentrationen bei UO_2 und sicherheitstechnische Überlegungen beim Umgang mit Urandioxid erfordern einen gegenüber den Platinoxidmessungen geänderten Versuchsaufbau.

4.2.1 Platinoxidaerosol

Das Platinoxidaerosol wird mit einer Heizstromstärke $I = 13 \text{ A}$ (s. 3.1.1) erzeugt und in einem Luftstrom von $14,5 \text{ l/min}$ in den anschließenden 75 l - Puffer geleitet. Von hier strömt das Aerosol in die eigentliche Anlage zur Untersuchung des Koagulationsverhaltens (Abb. 12).

Über den Bodenbehälter gelangt das Aerosol mit einem Fluß von $14,5 \text{ l/min}$ in das Koagulationsrohr (s. 3.3). Nach Durchströmung des unteren Laminators stellt sich im Rohr eine laminare Strömung mit parabolischem Geschwindigkeitsprofil ein. Das Aerosol steigt mit einer Strömungsgeschwindigkeit $\bar{v} = 2,96 \text{ cm/sec}$ - gemittelt über dem gesamten Rohrquerschnitt - im Rohr aufwärts.



- | | |
|---------------------|------------------|
| D - Durchflußmesser | P - Manometer |
| NV - Nadelventil | VP - Vakuumpumpe |
| PF - Probenfilter | HF - Hauptfilter |

Abb. 12: Experimentelle Apparatur zur Bestimmung des Koagulationsformfaktors eines Platinoxidaerosols

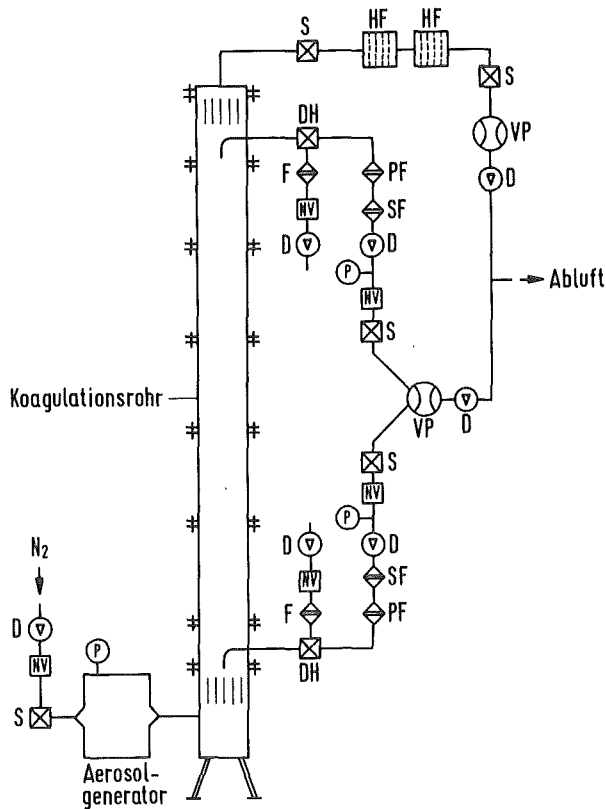
Aus diesem Aerosolstrom werden in der Rohrmitte am unteren und oberen Sammelpunkt Aerosolproben mit einer Pumpe abgezogen. Der obere Sammelpunkt befindet sich immer 5,2 m über dem unteren Sammelpunkt. Auf eine Verkürzung dieses Abstandes durch Herausnahme eines oder mehrerer Rohrteile wurde verzichtet, da ein deutlicher Meßeffect nur bei Ausnutzung der gesamten Rohrlänge auftrat. Oberhalb des zweiten Laminators verläßt das Gas das Koagulationsrohr, wobei das Aerosol auf einem Abschlußfilter abgeschieden wird. Die Proben am unteren bzw. oberen Sammelpunkt konnten aufgrund der guten zeitlichen Konstanz des Aerosolgenerators und der relativ kurzen Sammelzeit nacheinander genommen werden. Eine Störung der laminaren Strömung im unteren Teil des Rohres konnte hierdurch vermieden werden. Die Proben wurden mittels einer Pumpe mit einer Flußrate von 0,5 l/min und einer Sammelzeit von sieben Minuten auf einen Filter gezogen.

Der nicht-isokinetische Probenfluß von 0,5 l/min wurde gewählt, um bei den vorliegenden geringen Massenkonzentrationen die Sammelzeit möglichst kurz zu halten. Diese Absaugverhältnisse hatten jedoch bei der Probenahme keine negativen Auswirkungen auf die Größenverteilung des Aerosols, da sich Probenahmefehler, bedingt durch nicht-isokinetisches Absaugen, erst bei wesentlich größeren Partikeln als den hier untersuchten bemerkbar machen.

Als Abscheidefilter wurden wiederum Nuclepore-Filter ($\phi = 47$ mm) mit einer Porengröße von $0,03 \mu\text{m}$ benutzt. Das aus 3,5 l Probevolumen gesammelte Aerosol brachte eine gut auswertbare Filterbeladung. Nach der Beladung wurde der Filter aus dem Filterhalter genommen und zur späteren Auswertung im Verhältnis 1 : 3 in zwei Teile zerschnitten. Die sehr aufwendige und zeitraubende Auswertung dieser Filterproben (s. 5.2) erlaubte nur eine Messung, die jedoch mit größter Sorgfalt durchgeführt wurde.

4.2.2 Urandioxidaerosol

Das für analoge Untersuchungen des Koagulationsverhaltens eines realen nicht-kugelförmigen UO_2 -Aerosols angewendete Meßprinzip entspricht in groben Zügen dem oben beschriebenen Verfahren (s. 4.2.1). Am Versuchsaufbau wurden aussicherheitstechnischen Überlegungen einige Änderungen vorgenommen (Abb. 13).



- | | |
|---------------------|------------------------|
| D - Durchflußmesser | VP - Vakuumpumpe |
| NV - Nadelventil | HF - Hauptfilter |
| S - Sperrhahn | F - Filter |
| P - Manometer | PF - Probenfilter |
| DH - Dreiweghahn | SF - Sicherheitsfilter |

Abb. 13: Experimentelle Apparatur zur Bestimmung des Koagulationsformfaktors eines UO_2 -Aerosols

Das Trägergas (N_2) wird nicht mit Überdruck durch die Anlage gedrückt sondern von einer am Ende der Apparatur angebrachten Pumpe durch die Anlage gesaugt. Bei einem Unterdruck von ca. 0,01 atm kann deshalb selbst bei einem Leck in der Anlage kein UO_2 -Staub in die Umgebungsluft gelangen. Das UO_2 -Aerosol wird mit 14,5 l N_2 /min aus dem Aerosolgenerator in das Koagulationsrohr gesaugt. Das Aerosol steigt in laminarer Strömung mit einer - über den Querschnitt gemittelten - Strömungsgeschwindigkeit $\bar{v} = 2,96$ cm/sec auf und wird außerhalb des Rohres auf Schwebstofffiltern der Güteklasse S abgeschieden.

Von dem im Rohr aufsteigenden Aerosolfluß werden wiederum am unteren und 5,2 m höheren, oberen Sammelpunkt aus der Rohrmitte Proben abgezogen und auf Nucleopore-Filtern ($\emptyset = 47$ mm) der Porengröße $0,03 \mu\text{m}$ abgeschieden. Sowohl aufgrund der höheren Massenkonzentration des UO_2 -Aerosols als auch der größeren Aerosolpartikeln ist bei diesen Messungen ein nahezu isokinetisches Absaugen ausreichend und angebracht. Die beiden Proben konnten deshalb ohne Störung der Strömung gleichzeitig genommen werden. Eine Sammelzeit von 50 sec bei einer Flußrate von $220 \text{ cm}^3/\text{min}$ war für eine auswertbare Filterbeladung ausreichend. Um bei diesen geringen Probenvolumina den Meßfehler bei der Flußbestimmung so gering wie möglich zu halten, wurde in beiden Probenkreisläufen die Pumpleistung über ein Nadelventil bereits vor der Probenahme mit Hilfe gefilterter Außenluft auf den Sollwert eingestellt. Der Wechsel von Außenluft zu Aerosolprobe im Probenkreislauf konnte kurzfristig über einen Dreiweghahn ausgeführt werden.

Nach der Messung wurden wiederum die Filter im Verhältnis 1 : 3 zerschnitten, um sowohl für die elektronenmikroskopischen Untersuchungen als auch für die notwendigen Neutronenaktivierungsanalysen ausreichend Probenmaterial zur Verfügung zu haben.

5. Auswertung der Messungen

Ein Großteil der kommerziell erhältlichen Meßgeräte zur Bestimmung der Massenkonzentration oder der Größenverteilung eines Aerosols ist nur bedingt zur Untersuchung nicht-kugelförmiger Partikeln geeignet. Es wurden deshalb Auswerteverfahren entwickelt, die, unabhängig von der äußeren Partikelform, zur Bestimmung von Aerosolmeßgrößen herangezogen werden können.

5.1 Verfahren zur Berechnung des dynamischen Formfaktors κ

Die Bestimmung eines größenabhängigen dynamischen Formfaktors κ erfordert die Kenntnis entweder des beweglichkeitsäquivalenten - und des massenäquivalenten Durchmessers (s. Gl. 6) oder des aerodynamischen - und des massenäquivalenten Durchmessers (s. Gl. 11). Während der beweglichkeitsäquivalente - bzw. der aerodynamische Partikeldurchmesser bestimmter Größenfraktionen direkt mit einem Aerosolmeßgerät (DMA bzw. Zentrifuge) gemessen werden konnten, mußte zur Bestimmung des entsprechenden mittleren massenäquivalenten Durchmessers ein indirektes Verfahren herangezogen werden.

5.1.1 Platinoxidaerosol

Der Großteil der Platinoxidpartikeln hatte einen Durchmesser kleiner $0,15 \mu\text{m}$. Zur Größenfraktionierung dieser Partikeln wurde der Differentielle Mobilitäts-Analysator verwendet. Der beweglichkeitsäquivalente Durchmesser D_p der am Probenausgang auf Filtern abgeschiedenen einfach geladenen Partikeln läßt sich bei Kenntnis der Gasflußraten als Funktion der angelegten Hochspannung U berechnen. Die verwendeten Flußraten waren: excess air = sheath air = 20 l/min und polydisperses Aerosol = monodisperses Aerosol = 2 l/min. Daraus folgt:

$$U = \frac{2,64 \cdot \pi \cdot \eta \cdot D_p}{e \cdot C(D_p) \cdot 10^7} \quad (20)$$

U - angelegte Hochspannung U (V)

η - Viskosität des Gases /Poise/

D_p - Beweglichkeitsäquivalenter Durchmesser /cm/

e - Elementarbeladung ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C)

$C(D_p)$ - Cunningham-Korrektur

Der beweglichkeitsäquivalente Durchmesser D_p der abgeschiedenen Partikeln ist also über den Wert der angelegten Spannung bekannt.

Der mittlere massenäquivalente Durchmesser D_M der einfach geladenen Partikeln läßt sich über die Gesamtanzahl und die Gesamtmasse der abgeschiedenen Partikeln bestimmen. Hierbei muß berücksichtigt werden, daß sich neben den gewünschten einfach geladenen Partikeln ein gewisser Anteil zweifach geladener Partikeln mit größerem Durchmesser D_p auf dem Filter befinden. Partikeln mit drei oder mehr Elementarladungen können vernachlässigt werden.

Die Gesamtmasse der auf dem Filter abgeschiedenen Partikeln läßt sich schreiben als

$$M = N_1 \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot \rho \cdot (R_{M1})^3 + N_2 \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot \rho \cdot (R_{M2})^3 \quad (21)$$

M - Gesamtmasse Platinoxid

N_1 - Anzahl einfach geladener Partikeln

R_{M1} - massenäquivalenter Radius einfach geladener Partikeln

ρ - Dichte Platinoxid ($10,2 \text{ g/cm}^3$)

N_2 - Anzahl zweifach geladener Partikeln

R_{M2} - massenäquivalenter Radius zweifach geladener Partikeln

Die Gesamtmasse M des Platinoxidaerosols wird mittels einer Neutronenaktivierungsanalyse des Filters bestimmt. Der beladene Filter wird hierzu einem kontrollierten Neutronenfluß ausgesetzt. Stabile Platinisotope werden durch Anlagerung von Neutronen und anschließendem radioaktivem Zerfall in verschiedene instabile, radioaktive Isotope (u.a. Pt 195, Pt 197, Au 199) umgewandelt. Diese Isotope geben beim Zerfall γ -Strahlung ab, deren Intensität von der Masse des ursprünglichen Platins abhängt. Über die Messung der γ -Strahlungsintensität läßt sich also die auf dem Filter abgeschiedene Platinmasse bestimmen. Das Isotop Au 199 ist aufgrund seiner hohen Halbwertszeit ($T_{1/2} = 4536$ min) am besten zur Auswertung geeignet (Abb. 14).

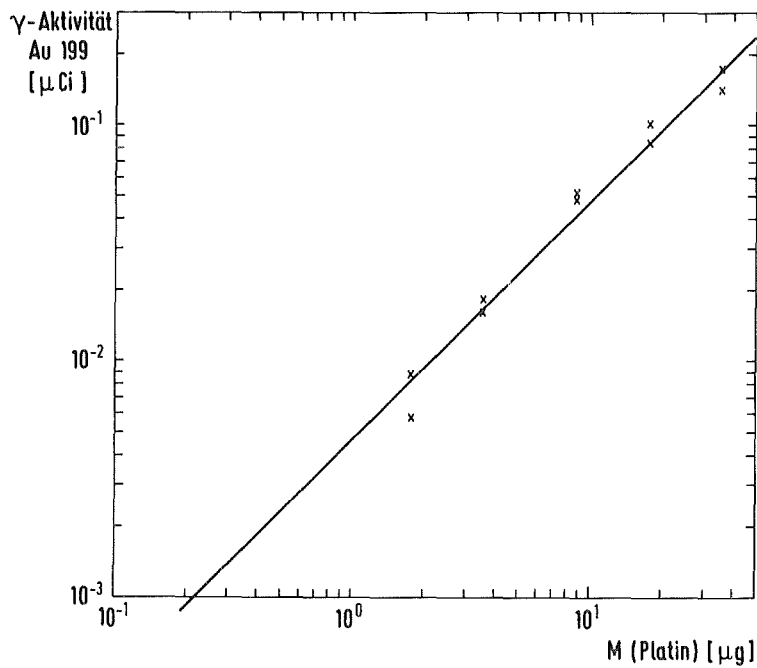


Abb. 14: γ -Strahlungsaktivität (Au 199) als Funktion von $M(\text{Platin})$

Die Anzahl N_1 bzw. N_2 einfach - bzw. zweifach geladener Partikeln läßt sich durch Auszählen elektronenmikroskopischer Bilder bestimmen. Ein Teil des Filters wird zur Präparation mit Kohlenstoff bedampft und anschließend mit Gold besputtert. Danach werden von verschiedenen Stellen des Filters Rasterelektronenmikroskop(REM)-Aufnahmen gemacht. Die kleinen Platinoxidpartikeln erfordern eine Mindestvergrößerung von ca. 50.000-fach. Zweifach geladene Partikeln lassen sich auf diesen Aufnahmen aufgrund ihrer äußeren Größe von einfach geladenen Partikeln unterscheiden, so daß die Anzahl N_1 und N_2 durch Auszählen bestimmt werden können.

In Gl. 21 sind weiterhin R_{M1} und R_{M2} unbekannt. Zur Ermittlung des gesuchten massenäquivalenten Radius R_{M1} werden folgende allgemeine Annahmen gemacht:

- Für Partikeln jeder Größenfraktion gibt es einen direkten Zusammenhang zwischen dem massenäquivalenten Radius R_M und dem Feret'schen Radius R_{Ft} (s. Anhang):

$$R_M = F \cdot R_{Ft} \quad (22)$$

Der Proportionalitätsfaktor F ist größenabhängig.

- Die auf dem Filter abgeschiedenen Partikeln sind statistisch orientiert, d. h. sie bevorzugen bei der Ablagerung keine bestimmte Richtung.

Gl. 21 läßt sich mit Gl. 22 umschreiben zu

$$M = N_1 \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot \rho \cdot F^3 \cdot (\overline{R_{Ft1}})^3 + N_2 \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot \rho \cdot F^3 \cdot (\overline{R_{Ft2}})^3 \quad (23)$$

$\overline{R_{Ft1}}$ - mittlerer Feret'scher Radius einfach geladener Partikeln

$\overline{R_{Ft2}}$ - mittlerer Feret'scher Radius zweifach geladener Partikeln

Die Verwendung nur eines Proportionalitätsfaktors F für kleinere einfach geladene Partikeln und größere zweifach geladene Partikeln einer Probe verursacht bei der Bestimmung von R_{M1} vernachlässigbare Abweichungen. Die beiden Fraktionen der kleineren Partikeln ($D_p = 0,04 \mu\text{m}$, $D_p = 0,06 \mu\text{m}$) beinhalten kaum zweifach geladene Partikeln, da Partikeln dieser Größe nur zu einem äußerst geringen Anteil mehrfach geladen werden (s. Tab. 1.5). In diesen Fällen hat der zweite Term in Gl. 23 und damit ein etwas ungenauer F-Wert für zweifach geladene Partikeln praktisch keinen Einfluß auf das Ergebnis von R_{M1} . Bei den Fraktionen größerer Partikeln ($D_p = 0,1 \mu\text{m}$, $D_p = 0,15 \mu\text{m}$) ist zwar der Anteil zweifach geladener Partikeln wesentlich höher, doch unterscheiden sich die F-Werte in diesem Größenbereich kaum noch (s. Tab.3 , S.43). Man kann deshalb auch bei diesen Berechnungen für zwei Partikelgrößen einen konstanten F-Wert verwenden.

Unter diesen Umständen läßt sich Gl. 23 umschreiben und nach F auflösen:

$$M = F^3 \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot \rho \cdot (N_1 \cdot (\overline{R_{Ft1}})^3 + N_2 \cdot (\overline{R_{Ft2}})^3) \quad (24)$$

$$F = \sqrt[3]{\frac{M}{\frac{4}{3} \cdot \pi \cdot \rho \cdot (N_1 \cdot (\overline{R_{Ft1}})^3 + N_2 \cdot (\overline{R_{Ft2}})^3)}} \quad (25)$$

Die mittleren Feret'schen Radien $\overline{R_{Ft1}}$ und $\overline{R_{Ft2}}$ lassen sich aus den elektronenmikroskopischen Aufnahmen bestimmen. Der Faktor F jeder Fraktion kann nach Gl. 25 berechnet werden. Einsetzen des entsprechenden F-Wertes in Gl. 22 liefert sofort den über alle einfach geladenen Partikeln gemittelten massenäquivalenten Radius $\overline{R_{M1}}$. Dieser Wert $\overline{R_{M1}}$ und der nach Gl. 20 berechnete beweglichkeitsäquivalente Durchmesser D_p werden zur Bestimmung des dynamischen Formfaktors κ in Gl. 6 eingesetzt.

5.1.2 Urandioxaerosol

Die Größenfraktionen des Urandioxaerosols wurde in einer mit Latex-Kugeln kalibrierten Aerosolzentrifuge getrennt. Partikeln unterschiedlicher Größe wurden an verschiedenen Stellen des Folienbandes entsprechend ihrem aerodynamischen Durchmesser abgeschieden. Der aerodynamische Durchmesser jeder Partikelfraktion kann mit Hilfe der Zentrifugeneichkurve (s. Abb. 6) angegeben werden. Ist zusätzlich der massenäquivalente Durchmesser D_M dieser Partikeln bekannt, läßt sich ihr dynamischer Formfaktor mit Gl. 11 berechnen.

Der massenäquivalente Durchmesser D_M läßt sich, analog dem Vorgehen bei Platinoxid, mit Hilfe elektronenmikroskopischer und neutronenaktivierungsanalytischer Untersuchungen bestimmen. Ein Folienstück mit einer Fläche kleiner 1 cm² wird mit Gold besputtert. Danach werden mehrere rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen dieser Probe gemacht. Ein Zählen der abgebildeten Partikeln liefert die pro Flächeneinheit abgeschiedene Partikelanzahl N.

Die abgeschiedene Partikelmasse M pro Flächeneinheit wird in einer Neutronenaktivierungsanalyse bestimmt. Zur UO₂-Massenbestimmung wird die γ -Aktivität des beim Neutronenbeschuß von UO₂ gebildeten Isotops N_p 239 (T_{1/2} = 3391,2 min) gemessen. Die gemessene Aktivität ist wiederum von der Menge der ursprünglich vorhandenen Substanz (UO₂) abhängig (Abb. 15).

Der über alle Partikeln einer Größenfraktion gemittelte massenäquivalente Radius \overline{R}_M läßt sich mit Gl. 26 berechnen

$$\overline{R}_M = \sqrt[3]{\frac{M \cdot 3}{N \cdot 4 \cdot \pi \cdot \rho}} \quad (26)$$

M - Gesamtmasse UO₂ einer Größenfraktion

N - Partikelanzahl einer Größenfraktion

ρ - Dichte UO₂ (10,96 g/cm³)

Der dynamische Formfaktor κ läßt sich somit nach Gl. 11 berechnen.

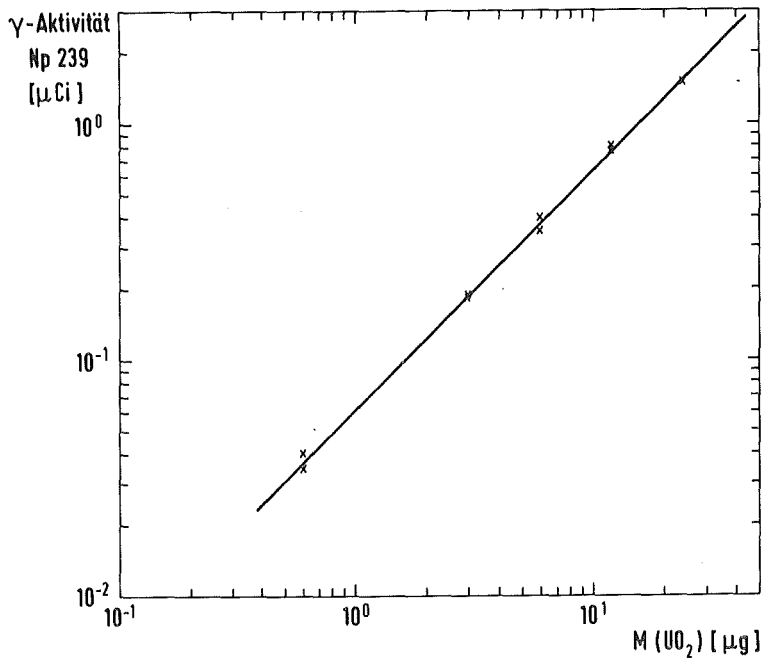


Abb. 15: γ -Strahlungsaktivität (Np 239) als Funktion von $M(UO_2)$

5.2 Verfahren zur Berechnung des Koagulationsformfaktors f

Der Koagulationsformfaktor f eines nicht-kugelförmigen Aerosols wird durch einen Vergleich Experiment/Aerosolverhaltenscode bestimmt. Sowohl im Experiment als auch in Modellrechnungen werden Änderungen in der Größenverteilung eines Aerosols betrachtet, die durch Brown'sche Koagulation hervorgerufen werden.

Im Experiment werden die Anfangsgrößenverteilung des Aerosols zum Zeitpunkt $t = 0$ und die Größenverteilung nach einer Koagulationszeit $t = t_1$ gemessen. Gegenseitige Abweichungen dieser beiden Größenverteilungen beruhen auf Brown'scher Koagulation zwischen den Partikeln während einer Zeitspanne t_1 . Die durch Brown'sche Koagulation bedingte Änderung in der Größenverteilung läßt sich für jeden Zeitpunkt t_1 mit einem Aerosolverhaltenscode (z. B. PARDISEKO IIIb / 1/) - unter alleiniger Berücksichtigung der Brown'schen Koagulations - berechnen, wenn man die gemessene Größenverteilung zum Zeitpunkt $t = 0$ als Inputparameter in den Code eingibt.

Vereinfachte Modellrechnungen benutzen zur Beschreibung des Koagulationsverhaltens luftgetragener Partikeln eine Koagulationsfunktion, die nur das Verhalten kugelförmiger Partikeln exakt beschreibt. Ein Vergleich zwischen derartigen Berechnungen und experimentellen Untersuchungen mit realen Partikeln zeigt immer einen Unterschied, der auf die Nicht-Kugelförmigkeit der Partikeln zurückzuführen ist. Diese Diskrepanz zwischen Modellrechnung und Experiment läßt sich durch Einführung des Koagulationsformfaktors f (s. 2.2) und Variation dieses Wertes beheben. Der Wert des Koagulationsformfaktors f wird in den Berechnungen solange variiert, bis die berechneten Änderungen der Partikelanzahl und der Größenverteilung zum Zeitpunkt t_1 mit den Messungen übereinstimmen (Abb. 16).

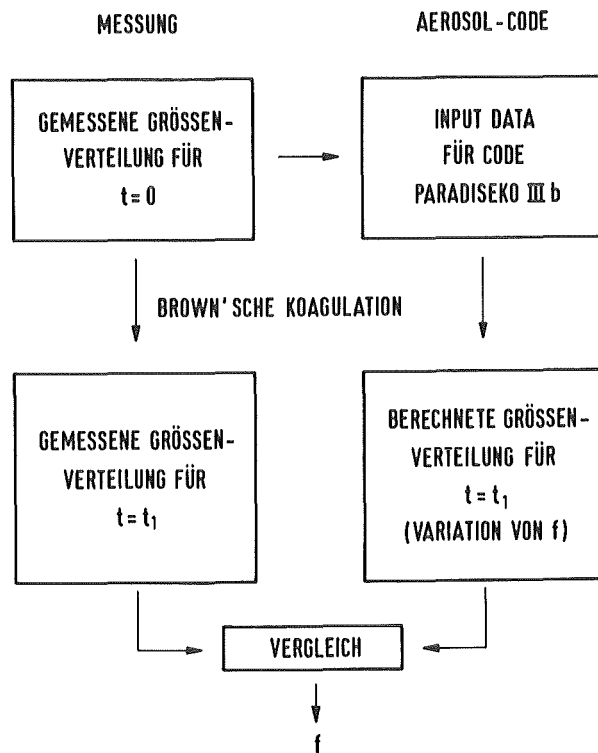


Abb. 16: Bestimmung des Koagulationsformfaktors

5.2.1 Platinoxidaerosol

Die in den Berechnungen angesetzte Koagulationszeit t_1 hängt von den gewählten Versuchsbedingungen ab. Das nicht-isokinetische Absaugen der Platinoxidproben (s. 4.2.1) verursacht vor dem oberen Sammelpunkt kleine Turbulenzen, die die einzelnen mit verschiedener Geschwindigkeit im Rohr aufsteigenden Luftschichten mehr oder weniger stark durchmischen. Weiterhin dürfte eine leichte Durchmischung der sehr kleinen Partikeln verschiedener Rohrquerschnitte infolge Diffusion der Partikeln in benachbarte Rohrquerschnitte auftreten. Diese beiden Annahmen rechtfertigen eine zwischen beiden Probenahmestellen gewählte mittlere Strömungsgeschwindigkeit $\bar{v} = 2,96$ cm/sec. Unter Berücksichtigung der Rohrdaten (Innendurchmesser, Abstand zwischen den Sammenpunkten) ergibt sich eine Koagulationszeit $t_1 = 176$ sec.

Der Rechencode PARDISEKO IIIb rechnet mit Größenverteilungen als Funktion des massenäquivalenten Radius R_M . Um diese Rechnungen mit den Experimenten vergleichen zu können, müssen auch die experimentell ermittelten Größenverteilungen über den massenäquivalenten Radius R_M angegeben werden. Diese Verteilungen werden wiederum unter Verwendung des Feret'schen Durchmessers erhalten.

Ein Teil der Probenfilter wird zur Präparation für REM-Aufnahmen mit Kohlenstoff bedampft und mit Gold besputtert. Danach werden von verschiedenen Stellen der Filter REM-Aufnahmen gemacht. Durch exaktes Vermessen und Zählen von jeweils ca. 800 Partikeln wird eine Häufigkeitsverteilung als Funktion des Feret'schen Durchmessers erhalten. Die Verteilung des Aerosols wird als log-normal angenommen. Abb. 17 zeigt die Häufigkeitsverteilung der Partikeln als Funktion des Feret'schen Durchmessers. Aus diesen Häufigkeitsverteilungen lassen sich der mittlere geometrische Durchmesser $D_{Ft}(50)$ und die mittlere geometrische Standardabweichung $\sigma(D_{Ft})$ entnehmen, die folgendermaßen definiert sind:

$$D(50) = n \text{ (50 \%)} \quad (27)$$

$$\sigma = \sqrt{\frac{D(84)}{D(16)}} \quad (28)$$

n(D) - Verteilung

D(84) - Abszissenwert für n = 84 %

D(16) - Abszissenwert für n = 16 %

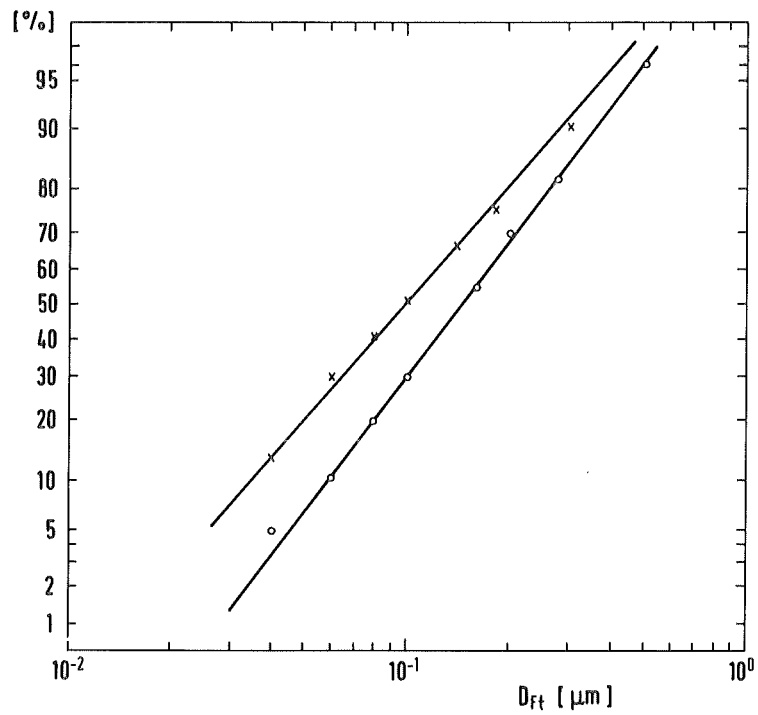


Abb. 17: Häufigkeitsverteilung eines Platinoxidaerosols am unteren Sammelpunkt (x) bzw. oberen Sammelpunkt (o)

Die so bestimmte mittlere geometrische Standardabweichung σ der R_{Ft} -Verteilung weicht von der für die Modellrechnungen benötigten unbekannt Standardabweichung σ der R_M -Verteilung ab. In erster Näherung wird jedoch die Standardabweichung $\sigma (R_M)$ gleich der Standardabweichung σR_{Ft} gesetzt. Die Gesamtanzahl C_P der auf den Filtern befindlichen Partikeln wird aus der Belegungsdichte durch Extrapolation auf die Gesamtfilterfläche berechnet. Die Gesamtmasse M der abgeschiedenen Partikeln wird in einer Neutronenaktivierungsanalyse (s. 5.1.1) der Restfilter bestimmt. Bei Kenntnis von C_P , M und dem Näherungswert $\sigma (R_M)$ können die genäherten Größenverteilungen $n^* (R_M, t)$ am oberen und unteren Sammelpunkt angegeben werden. Der formale Zusammenhang dieser genäherten Größenverteilungen mit den tatsächlichen Verteilungen $n (R_M, t)$ wird über eine unbekannt Korrekturfunktion $Z (R_M, t)$ hergestellt:
 $n (R_M, t) = Z (R_M, t) \cdot n^* (R_M, t)$. Diese als Hilfsgröße fungierende Funktion Z soll die durch den genäherten σ -Wert eventuell auftretenden Ungenauigkeiten in den Berechnungen der Koagulationswahrscheinlichkeiten beheben. Die in den folgenden Kapiteln aufgeführten Größenverteilungen stellen jeweils die genäherten Verteilungen $n^* (R_M, t)$ dar.

Die gemessene Größenverteilung am unteren Sammelpunkt wird als Inputparameter in PARDISEKO IIIb eingegeben. Für verschiedene Werte von f werden Rechnungen ausgeführt und zum Zeitpunkt $t_1 = 176$ sec mit der gemessenen Größenverteilung am oberen Sammelpunkt verglichen.

5.2.2 Urandioxidaerosol

Das Absaugen der UO_2 -Proben erfolgt isokinetisch, so daß bis zum oberen Sammelpunkt ein ungestörtes laminares Strömungsprofil vorliegt. Die Diffusion einzelner Partikeln in benachbarte Rohrquerschnitte dürfte bei Partikeln der hier vorliegenden Größen vernachlässigt werden. Die Strömungsgeschwindigkeit v in der Rohrmitte beträgt das Doppelte der mittleren Strömungsgeschwindigkeit \bar{v} , nämlich $v = 5,92$ cm/sec. Dieser Strömungsgeschwindigkeit v entspricht eine Koagulationszeit einer am oberen Sammelunkte aus der Rohrmitte entnommenen Probe von $t_1 = 88$ sec.

Die Größenverteilung der oberen und unteren Probe als Funktion des massenäquivalenten Radius R_M wird wiederum über elektronenmikroskopische und neutronenaktivierungsanalytische Untersuchungen der Probenfilter ermittelt. Das Verfahren ist analog der Auswertung der Platinoxidproben (s. 5.2.1). Das Vermessen und Auszählen von Partikeln anhand von REM-Aufnahmen liefert die Häufigkeitsverteilung über den Feret'schen Durchmesser (Abb. 18) und die Gesamtanzahl C_p der abgeschiedenen Partikeln, ergänzende Neutronenaktivierungsanalysen die Gesamtmasse M .

Die so experimentell ermittelten Größenverteilungen über R_M werden unter Variation des Koagulationsformfaktors f mit berechneten Größenverteilungen zum Zeitpunkt $t_1 = 88$ sec verglichen.

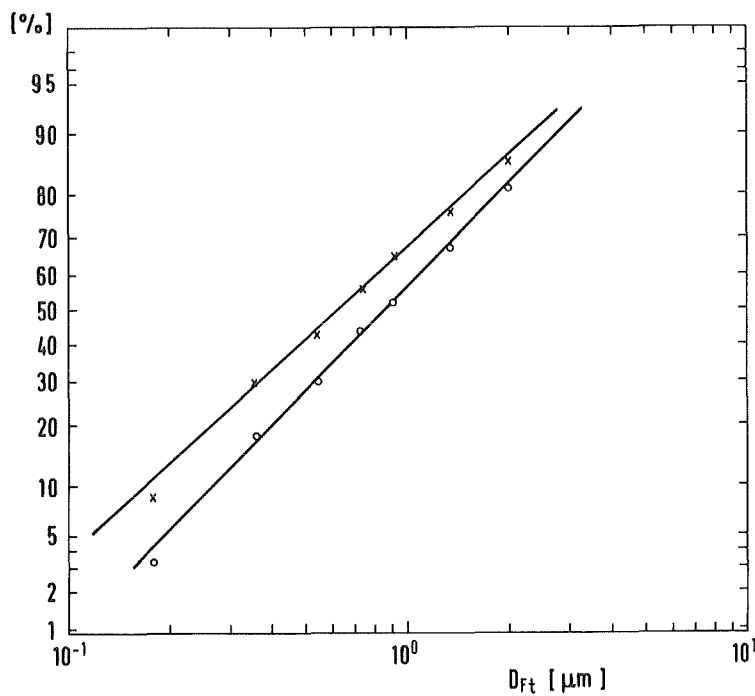


Abb. 18: Häufigkeitsverteilung eines UO_2 -Aerosols am unteren Sammelpunkt (x) bzw. oberen Sammelpunkt (o)

6. Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse aller Messungen zusammengefaßt. Die Definitionen der Formfaktoren und die Art der jeweiligen Versuchsdurchführung bringen es mit sich, daß der dynamische Formfaktor κ für verschiedene Partikelfractionen größenabhängig bestimmt werden kann, wohingegen die ermittelten Koagulationsformfaktoren jeweils einen Mittelwert über den gesamten untersuchten Größenbereich darstellen.

6.1 Ergebnisse der Versuche mit Platinoxidaerosol

Der dynamische Formfaktor κ wurde nach Gl. 6 bestimmt. Die hierzu notwendigen Parameter der vier untersuchten Größenfractionen sind in Tab. 3 aufgelistet.

D_p $[\mu m]$	D_{Ft} $[\mu m]$	F	D_M $[\mu m]$
0,04	0,041	0,92	0,038
0,06	0,067	0,61	0,041
0,10	0,120	0,46	0,055
0,15	0,188	0,38	0,071

Tab. 3: Gemessene Partikeldurchmesser verschiedener Größenfractionen (Platinoxid)

Diese Größen stellen jeweils einen Mittelwert über drei Messungen dar. Mit Hilfe dieser Werte wurde der dynamische Formfaktor κ als Funktion des beweglichkeitsäquivalenten Durchmessers D_p bzw. des massenäquivalenten Durchmessers D_M bestimmt.

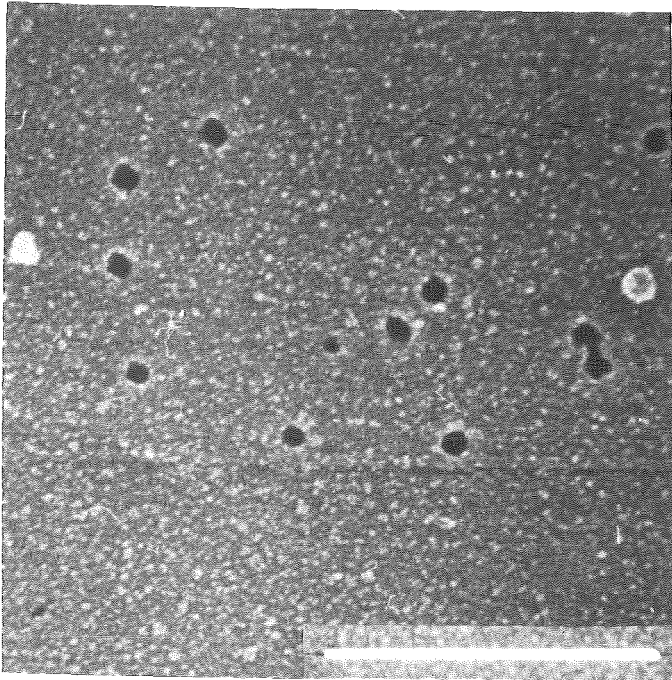
D_p $\overline{[\mu\text{m}]}$	D_M $\overline{[\mu\text{m}]}$	κ
0,04	0,038	1,1
0,06	0,041	2,0
0,10	0,055	2,9
0,15	0,071	3,6

Tab. 4: Der dynamische Formfaktor κ als Funktion der Partikelgröße (Platinoxid)

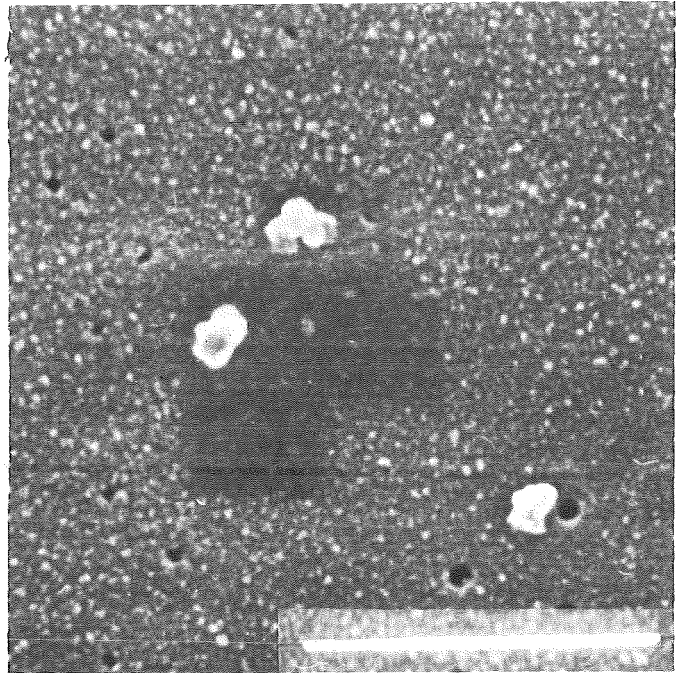
Die Ungenauigkeit der κ -Werte liegt bei $\pm 25\%$. Dieser Gesamtfehler setzt sich zusammen aus der Ungenauigkeit bei der Bestimmung von D_M , d. h. dem Fehler bei der Bestimmung der Masse M und der Partikelanzahlen N_1 und N_2 sowie der durch die endliche Spaltbreite des DMA verursachten Ungenauigkeit von D_p .

Die ermittelten dynamischen Formfaktoren stellten, wie bereits früher erwähnt, Mittelwerte über verschiedene Partikelgeometrien und Partikelorientierungen dar. Eine Porosität der Partikeln und eine damit verbundene, vom Tabellenwert ($\rho = 10,2 \text{ g/cm}^3$) abweichende Dichte nicht-kompakter, flockiger oder kettenähnlicher Partikeln geht ebenfalls in den Wert von κ ein.

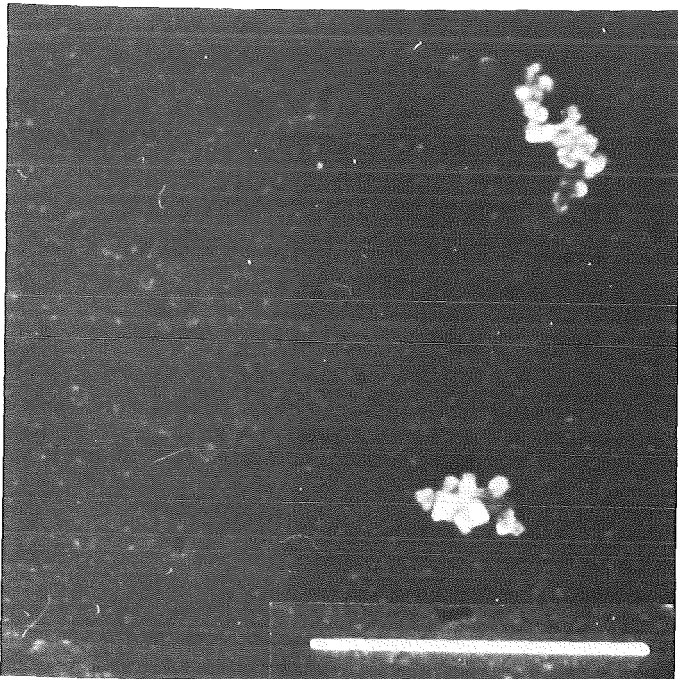
Abb. 19 zeigt REM-Aufnahmen der vier untersuchten Größenfraktionen. Es ist deutlich zu erkennen, daß mit zunehmender Partikelgröße die äußere Partikelform immer stärker von einer idealen Kugelgestalt abweicht. Während die beiden kleineren Fraktionen ($D_p = 0,04 \mu\text{m}$; $D_p = 0,06 \mu\text{m}$) noch kompakte und kugelähnliche Konturen zeigen, sind die größeren Partikeln ($D_p = 0,10 \mu\text{m}$; $D_p = 0,15 \mu\text{m}$) flockiger und kettenähnlich. Diese Beobachtungen stehen in sehr gutem Einklang mit dem Ansteigen der κ -Werte in Tab. 4.



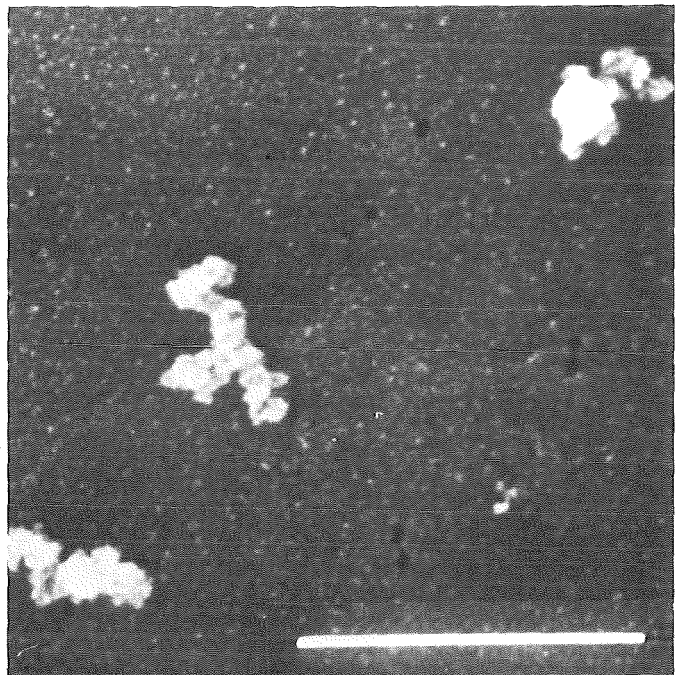
0,04 µm Fraktion



0,06 µm Fraktion



0,10 µm Fraktion



0,15 µm Fraktion

Abb. 19: Platinoxidaerosol (100.000fache Vergrößerung, — 0,5 µm)

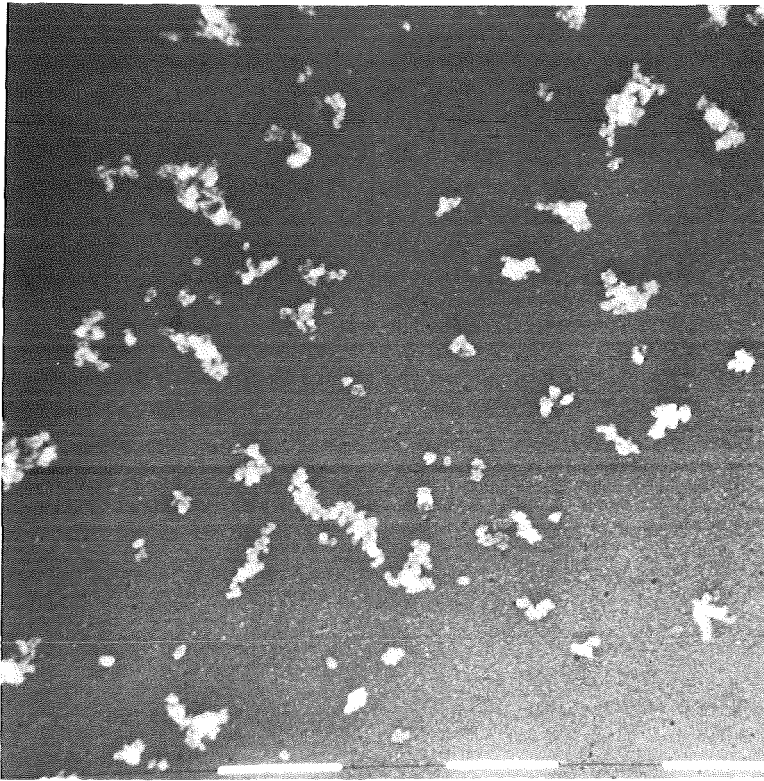


Abb. 20: Platinoxidaerosol am unteren Sammelpunkt ($t = 0 \text{ sec}$)
(50.000fache Vergrößerung, — $0,5 \mu\text{m}$)

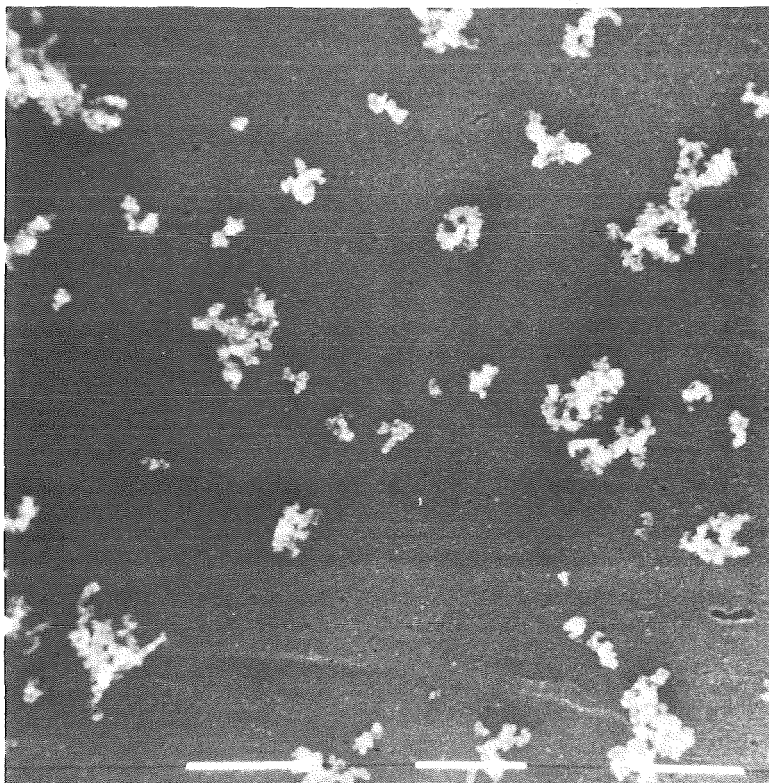


Abb. 21: Platinoxidaerosol am oberen Sammelpunkt ($t = 176 \text{ sec}$)
(50.000fache Vergrößerung, — $0,5 \mu\text{m}$)

Der Koagulationsformfaktor f konnte, im Gegensatz zur größenabhängigen Bestimmung des dynamischen Formfaktors, nur über das gesamte Partikelgrößenpektrum gemittelt bestimmt werden. Insofern stellt das Ergebnis einen mehr oder weniger speziellen Koagulationsformfaktor des vorliegenden Aerosols dar. Das Aerosolsystem am unteren bzw. oberen Sammelpunkt war durch folgende experimentell bestimmten Daten ($n^*(R_M, t)$) beschrieben:

	Anzahlkonz. $\bar{N} / \text{P/cm}^3$	Massenkonz. $\bar{M} / \text{mg/m}^3$	R_M (50 %) $\bar{R} / \mu\text{m}$	$\ln \sigma$
unterer Sammelpunkt	$1,6 \times 10^6$	2,0	0,0117	0,805
oberer Sammelpunkt	$8,9 \times 10^5$	2,0	0,0182	0,695

Einen optischen Eindruck der jeweils vorliegenden Aerosolgrößenverteilung geben Abb. 20 und Abb. 21.

Ein Vergleich dieser Abbildungen zeigt eine deutliche Reduzierung der kleinen und sehr kleinen Partikeln am oberen Sammelpunkt. Diese Annahme wird durch Brown'sche Koagulation insbesondere der sehr kleinen Partikeln verursacht. Die gemessenen Größenverteilungen $n^*(R_M, t)$ des Aerosols für $t = 0$ sec bzw. $t = 176$ sec sind in Abb. 22 dargestellt.

Zur Berechnung der Größenverteilung für $t = 176$ sec müssen die Anfangsgrößenverteilung und der größenabhängige dynamische Formfaktor $\kappa(D_M)$ über den gesamten Größenbereich in den Rechencode PARDISEKO IIIb eingegeben werden (s. 2.2). Da zwischen dem dynamischen Formfaktor κ und dem massenäquivalenten Durchmesser D_M kein formaler Zusammenhang bekannt ist, wird mit Hilfe einer Kurvenanpassung unter Verwendung der vier κ - D_M -Zahlenpaare aus Tab. 4 ein empirischer κ - D_M -Zusammenhang hergestellt (Abb. 23):

$$\kappa(D_M) = 13,42 + 3,67 \ln D_M \quad (29)$$

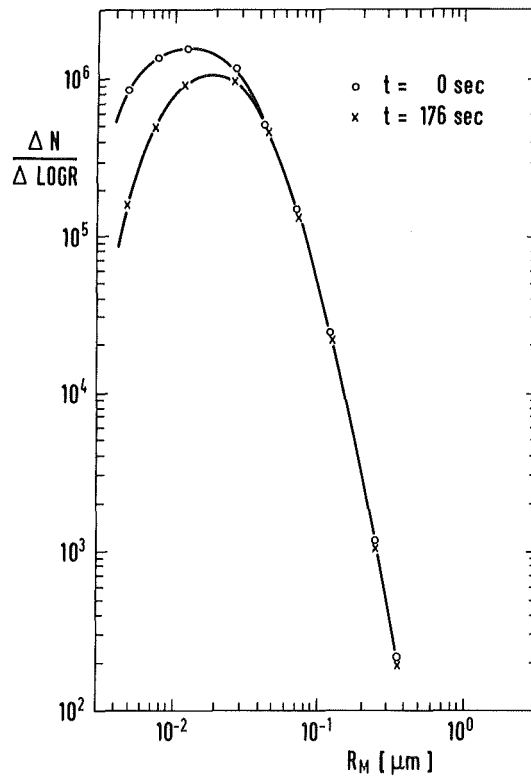


Abb. 22: Gemessene Größenverteilungen (Platinoxid)

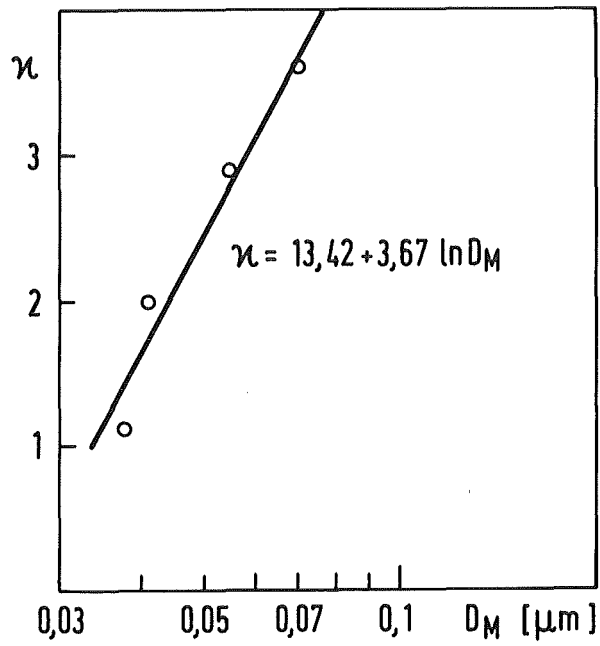


Abb. 23: κ als Funktion von D_M (Platinoxid)

Nach Eingabe dieses Ausdrucks und der Anfangsgrößenverteilung wird die Größenverteilung für $t = 176$ sec als Funktion des Koagulationsformfaktors berechnet. Die berechneten Größenverteilungen für $t = 176$ sec mit f als Parameter sind Abb. 24 zu entnehmen. Ein Vergleich zwischen diesen berechneten Größenverteilungen und der gemessenen Größenverteilung für $t = 176$ sec zeigt, daß die beste Übereinstimmung zwischen berechneter und gemessener Größenverteilung mit einem Koagulationsformfaktor $f = 1,8$ erreicht wird. Die Ungenauigkeit dieses Wertes, in die neben dem Meßfehler des dynamischen Formfaktors Ungenauigkeiten in der Bestimmung der Partikelanzahl und der Partikelmasse eingehen, liegt bei ± 30 %. Der Wert $f = 1,8$ stellt nicht nur einen Mittelwert über das gesamte Größenspektrum sondern auch einen Mittelwert über die Koagulationszeit ($t = 176$ sec) dar. Weiterhin muß berücksichtigt werden, daß in den Wert von f die Korrekturfunktion $Z(R_M, t)$ der Größenverteilung $n^*(R_M, t)$ eingeht. Der Einfluß dieser Größe dürfte allerdings nicht bedeutend sein, da die Funktion kaum zeitabhängig sein dürfte und sie sich bei der Differenzbildung zwischen beiden Größenverteilungen (oben bzw. unten) mehr oder weniger herausmitteln müßte. Das Maß dieser Ungenauigkeit soll in Kürze mit Hilfe weiterer Modellrechnungen ermittelt werden.

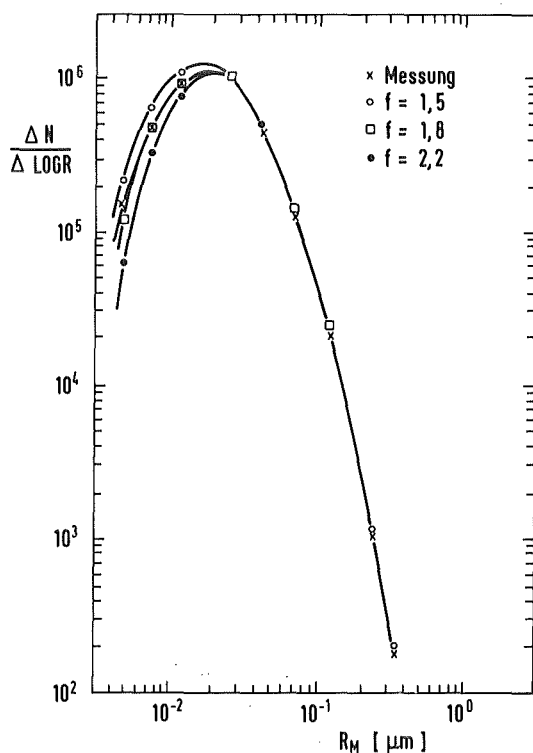


Abb. 24: Berechnete Größenverteilungen ($t = 176$ sec)

Analog kann man für das gesamte Aerosolsystem zum Zeitpunkt $t = 0$ sec bzw. $t_1 = 176$ sec einen mittleren dynamischen Formfaktor $\bar{\kappa}$ berechnen. Hierzu wird über das gesamte Größenspektrum der dynamische Formfaktor jeder Größenfraktion mit der relativen Anzahlhäufigkeit gewichtet. Die Berechnungen liefern für die Anfangsverteilung einen mittleren dynamischen Formfaktor $\bar{\kappa}(0) = 1,6$, für das Größenspektrum zum Zeitpunkt $t_1 = 176$ sec einen Wert $\bar{\kappa}(176) = 2,1$. Die Zunahme von κ steht mit der Zunahme des mittleren massenäquivalenten Durchmessers des Aerosolsystems in Einklang. Eine zusätzliche Mittelung über die gesamte Koagulationszeit liefert ein mittleres $\bar{\kappa} = 1,85$. Der gemittelte dynamische Formfaktor $\bar{\kappa}$ entspricht somit etwa dem Koagulationsformfaktor f .

6.2 Ergebnisse der Versuche mit Urandioxidaerosol

Die zur Bestimmung des dynamischen Formfaktors κ nach Gl. 11 benötigten Parameter der verschiedenen Partikelgrößenfraktionen sind in Tab. 5 zusammengefaßt. Der dynamische Formfaktor κ wurde als Funktion des aerodynamischen Durchmessers D_{ae} bzw. des massenäquivalenten Durchmessers D_M berechnet (Tab. 5, Spalte 3). Die Berechnungen wurden unter Verwendung der Tabellendichte $\rho(UO_2) = 10,96$ g/cm³ ausgeführt. Eine Porosität der Partikeln geht daher wiederum in κ ein.

D_{ae} [$\bar{\mu}m$]	D_M [$\bar{\mu}m$]	κ
0,47	0,19	2,6
0,55	0,24	2,8
0,66	0,33	3,3
1,90	0,55	1,2

Tab. 5: Der dynamische Formfaktor κ als Funktion der Partikelgröße (UO_2)

Die Ungenauigkeit der κ -Werte beträgt ± 33 %. Der hohe Gesamtfehler beruht insbesondere auf dem Fehler bei der Bestimmung von D_{ae} . Die Fehler bei der Bestimmung der abgeschiedenen Masse und der Partikelanzahl tragen weiterhin zu der Ungenauigkeit der κ -Werte bei.

Die Entwicklung der κ -Werte verläuft mit Zunahme der Partikelgröße nicht einheitlich. Während der dynamische Formfaktor kleinerer Partikeln ($D_{ae} = 0,47 - 0,66 \mu\text{m}$) mit zunehmender Partikelgröße ansteigt, fällt der κ -Wert der größten Partikeln ($D_{ae} = 1,9 \mu\text{m}$) nahezu auf 1. Ein derartiger Verlauf ist nicht ohne weiteres zu erklären. REM-Aufnahmen der einzelnen Größenfraktionen (Abb. 25 und 26) zeigen jedoch, daß die berechneten Werte mit der äußeren Gestalt der Partikeln in Einklang stehen.

Es sei noch einmal angemerkt, daß die gemessenen κ -Werte Mittelwerte über verschiedene Partikelorientierungen und Partikelgeometrien darstellen. Außerdem befinden sich bei jeder Größenfraktion Partikeln benachbarter Größenfraktionen, die aufgrund der begrenzten Auflösung der Aerosolzentrifuge nicht getrennt wurden.

Die Fraktionen der kleineren Partikeln zeigen mit zunehmender Partikelgröße stärker verzweigte Partikeln. Zusätzlich nimmt die Anzahl kompakter, schwach verzweigter Partikeln mit zunehmender Partikelgröße ab (Abb. 25). Beide Tatsachen erklären einen mit der Partikelgröße zunehmenden dynamischen Formfaktor. Die Partikeln der $1,9 \mu\text{m}$ -Fraktion haben bis auf wenige stark verzweigte Exemplare eine kompakte kugel- oder würfelförmige Form (Abb. 26 und 27). Ein Teil der kettenförmigen Aggregate beinhaltet als Kern eine große Kugel, die möglicherweise das aerodynamische Verhalten der Aggregate bestimmt. Ein dynamischer Formfaktor $\kappa = 1,2$ erscheint für diese Partikeln vernünftig.

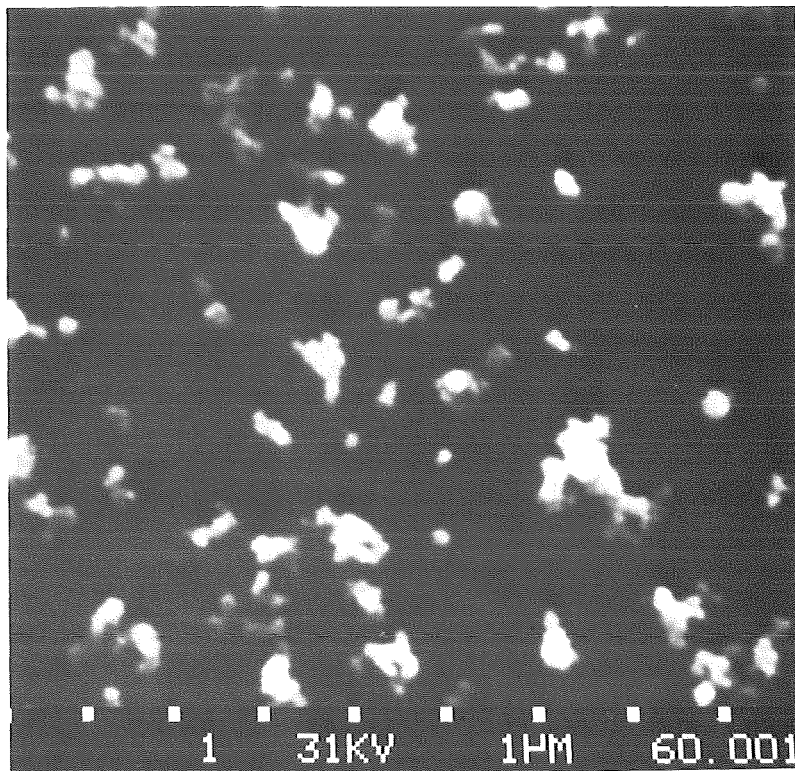
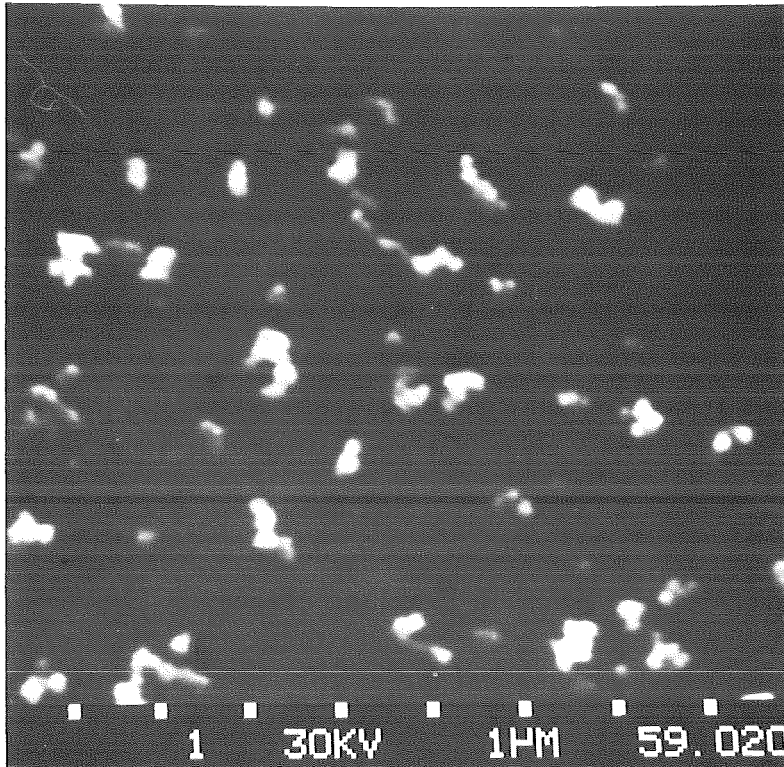
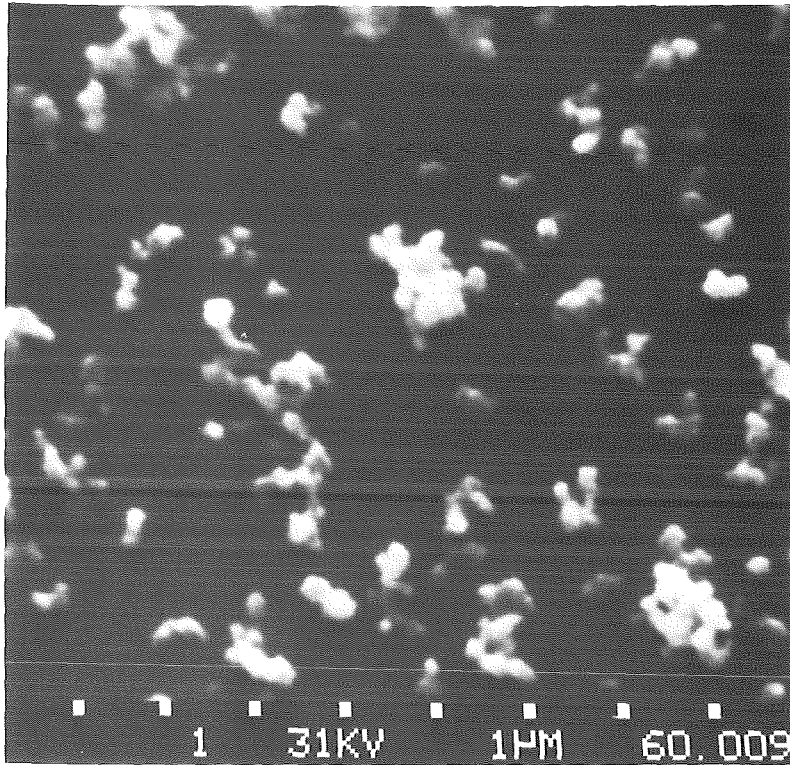
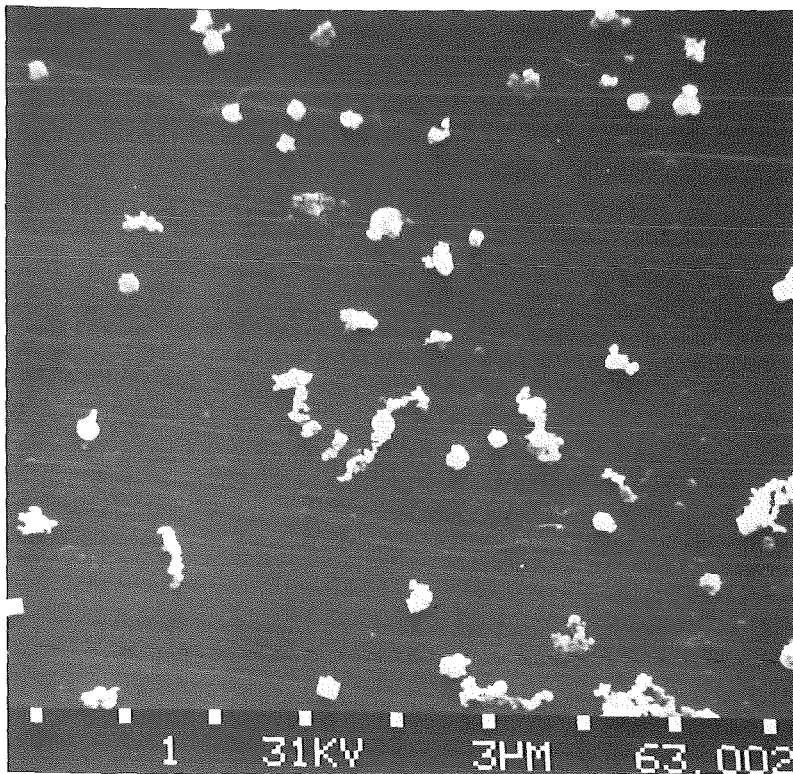


Abb. 25: UO_2 -Aerosol (10.000fache Vergrößerung)



$D_{ae} = 0,66 \mu\text{m}$



$D_{ae} = 1,9 \mu\text{m}$

Abb. 26: UO₂-Aerosol (10.000fache Vergrößerung bzw. 3.300fache Vergrößerung)

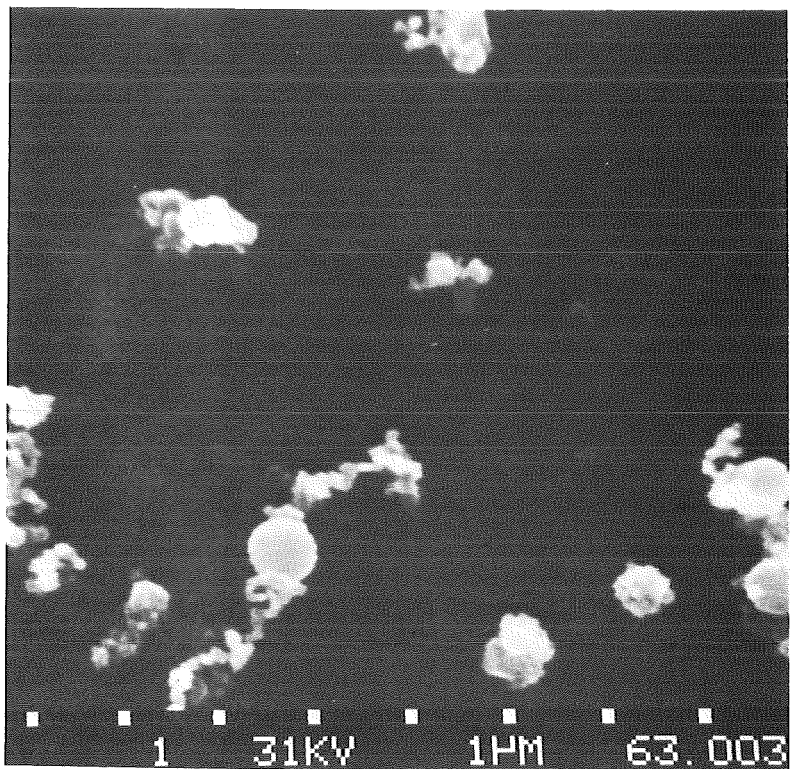
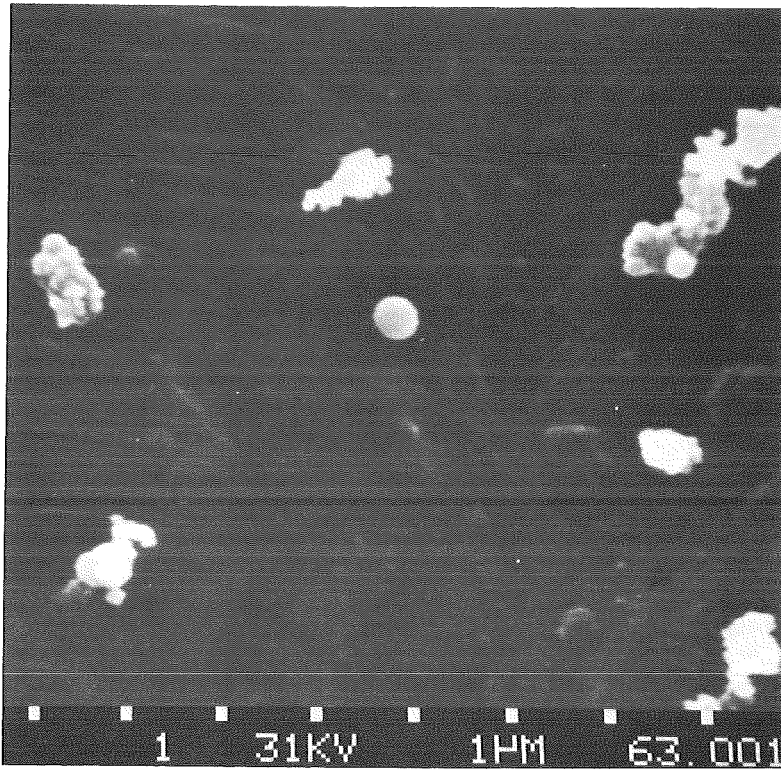


Abb. 27: UO_2 -Aerosol (10.000fache Vergrößerung)

Die stark voneinander abweichende äußere Form der kleineren bzw. größeren Partikeln läßt sich mit dem Alter des Aerosols erklären. Alle Proben wurden direkt am Generatorausgang genommen, so daß das Aerosol nur einige Sekunden alt waren. Ein Großteil der kleinen Primärpartikeln ($D \leq 0,1 \mu\text{m}$) koagulierte in dieser Zeit zu kleineren oder mittleren kompakten oder kettenförmigen Aggregaten. Diesen Aggregaten können die Partikeln der drei kleineren Größenfraktionen ($D_{ae} = 0,47 - 0,66 \mu\text{m}$) zugeordnet werden. Wesentlich größere Aggregate ($D_{ae} \sim 2 \mu\text{m}$), zusammengesetzt aus kleinen Primärpartikeln, dürften sich in der kurzen Generatorverweilzeit nicht bilden. Allerdings können zu dieser Zeit einige Primärpartikeln dieser Größe - je nach den vorliegenden Generatordaten (Generatorvolumen, Lichtbogenleistung, Temperatur, Gasdurchsatz etc.) - entstehen, die eventuell mit einigen sehr kleinen Partikeln koagulieren. Diese großen Primärpartikeln bilden somit den Hauptteil der größeren Partikelfraktion ($D_{ae} = 1,9 \mu\text{m}$) und erklären den niedrigen dynamischen Formfaktor dieser Partikeln.

Der für die Berechnung des Koagulationsformfaktors f benötigte empirische Zusammenhang zwischen dem dynamischen Formfaktor κ und dem massenäquivalenten Durchmesser D_M der untersuchten Partikeln geht nur für kleine und mittlere Partikeln entscheidend in die Rechnungen ein. Die κ - D_M -Relation wird deshalb nur unter Berücksichtigung der κ - D_M -Zahlenpaare (Tab. 5) der drei kleineren Größenfraktionen berechnet (Abb. 28):

$$\kappa(D_M) = 4,70 + 1,29 \ln D_M \quad (30)$$

Der Koagulationsformfaktor f eines UO_2 -Aerosols wurde - analog den Vorgehen beim Platinoxidaerosol - über das gesamte Größenspektrum gemittelt berechnet. Experimentell wurden folgende Parameter des Aerosols bestimmt:

	Anzahlkonz. [\bar{P}/cm^3]	Massenkonz. [\bar{m}/m^3]	R_M (50 %) [$\bar{\mu}\text{m}$]	$\ln \sigma$
unterer Sammelpunkt	$1,5 \cdot 10^6$	946	0,0493	1,026
oberer Sammelpunkt	$9,2 \cdot 10^5$	946	0,0800	0,918

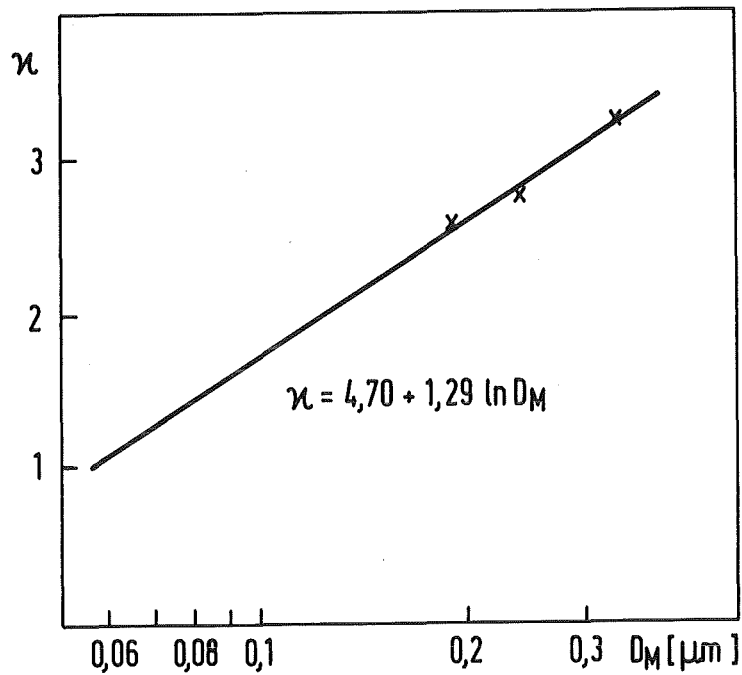


Abb. 28: κ als Funktion von D_M (UO_2)

Die Abnahme der Anzahlkonzentration kleiner Partikeln am oberen Sammelpunkt ist auf REM-Bildern der Proben deutlich zu erkennen (Abb. 29 und 30). Diese Abnahme wird wiederum auf Brown'sche Koagulation zwischen kleinen und größeren Partikeln zurückgeführt. Der Effekt läßt sich in den Größenverteilungen nur im Bereich der kleinen Partikeln feststellen (Abb. 31), da die Koagulation die Anzahlkonzentration der größeren Partikeln nicht spürbar verändert.

Die gemessene Größenverteilung für $t = 88$ sec wurde mit Modellrechnungen bei Variation des Koagulationsformfaktors f verglichen (Abb. 32). Die beste Übereinstimmung zwischen Modellrechnung und Experiment wird mit einem Koagulationsformfaktor $f = 3,2$ erreicht. Der Fehler dieses Wertes beträgt ca. ± 40 %. Die geringen Abweichungen der Anzahlkonzentrationen sehr kleiner und kleiner Partikeln zwischen berechneter ($f = 3,2$) und gemessener Größenverteilung lassen sich mit Ungenauigkeiten beim Vermessen der kleinen Partikeln erklären. Die berechnete Abnahme der Partikelanzahl stimmt hingegen sehr gut mit der gemessenen überein. Das Maß der Ungenauigkeit, die durch die Anwendung der genäherten Größenverteilung $n^*(R_M, t)$ in die Bestimmung von f eingeht, wird - ebenso wie für die Platinoxidmessungen - in Kürze mit Hilfe weiterer Modellrechnungen bestimmt.

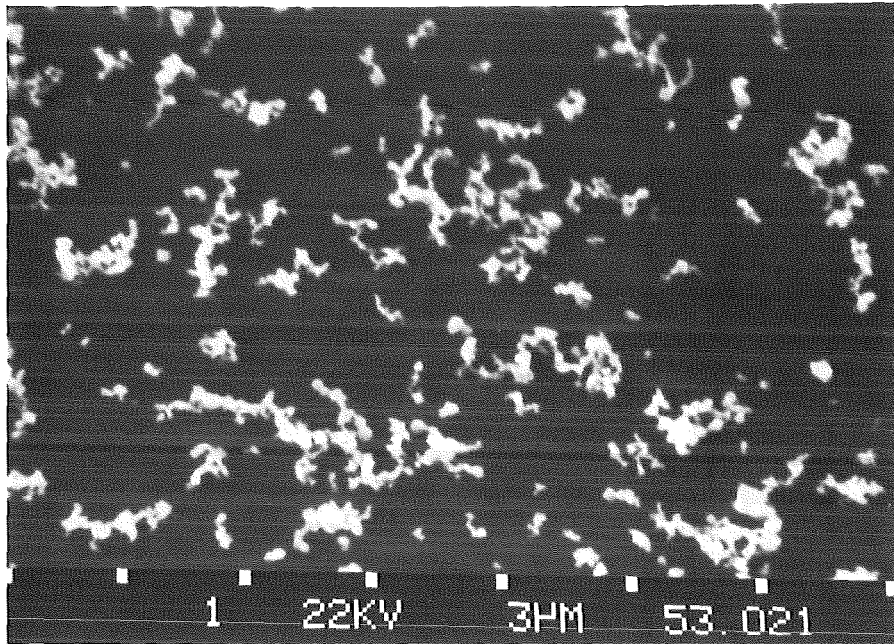


Abb. 29: UO_2 -Aerosol (5.000fache Vergrößerung) am unteren Sammelpunkt
(t = 0 sec)

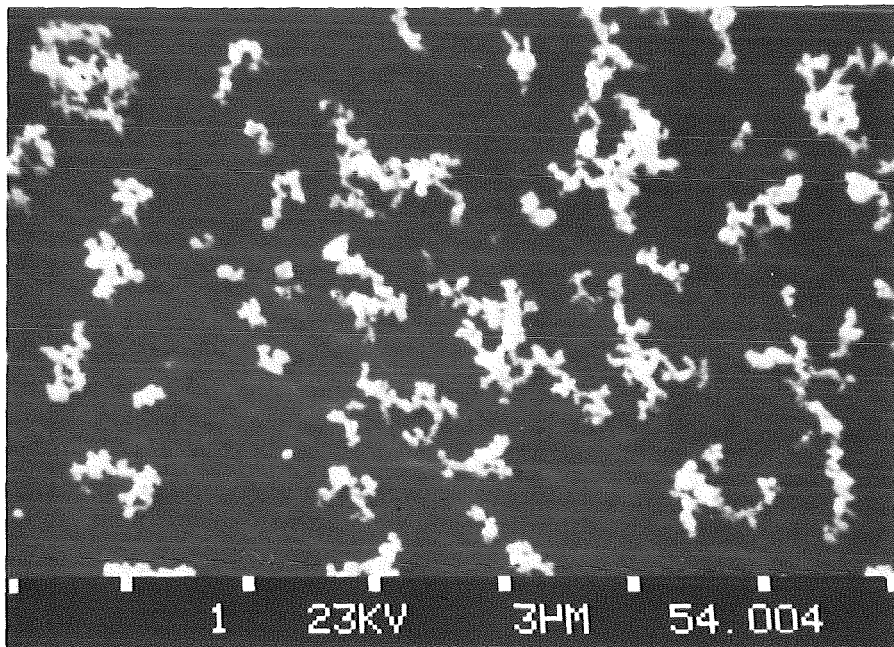


Abb. 30: UO_2 -Aerosol (5.000fache Vergrößerung) am oberen Sammelpunkt
(t = 88 sec)

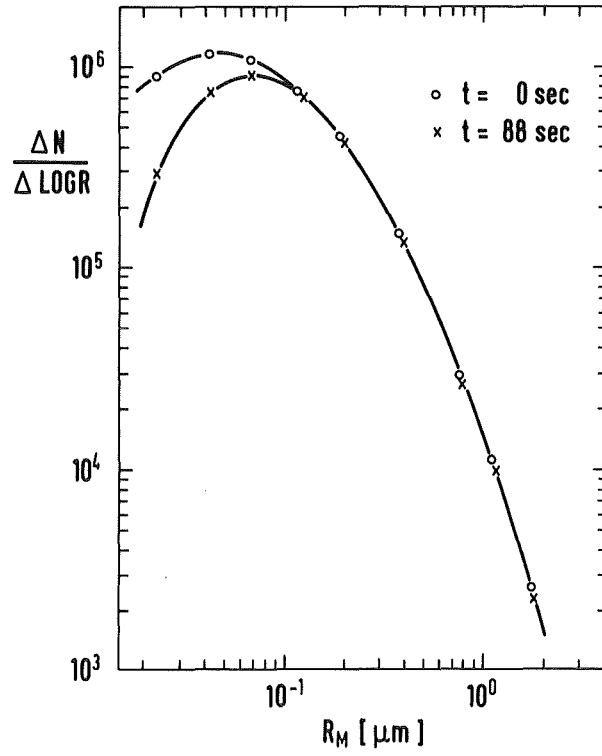


Abb. 31: Gemessene Größenverteilungen (UO_2)

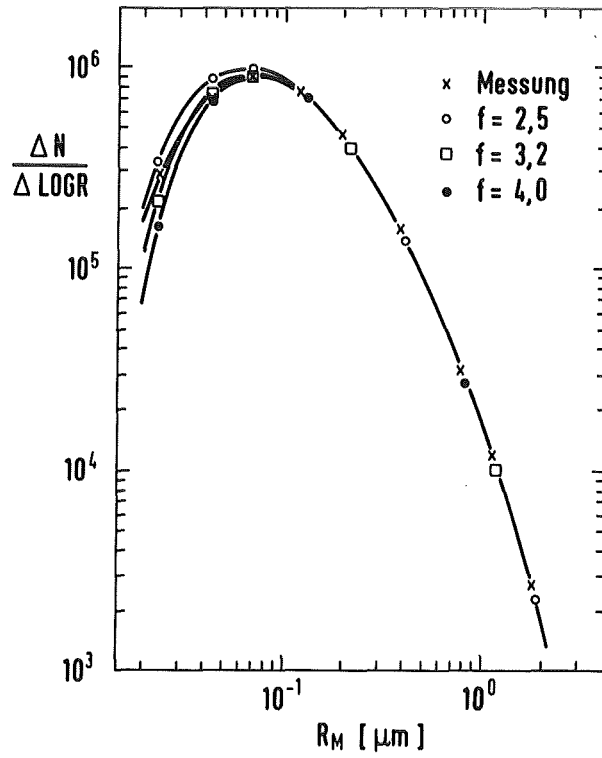


Abb. 32: Berechnete Größenverteilungen ($t = 88 \text{ cm}$)

Um den Wert des dynamischen Formfaktors mit dem über das gesamte Größenspektrum und die Koagulationszeit gemittelten Koagulationsformfaktor vergleichen zu können, wird der für das gesamte Aerosolsystem zum Zeitpunkt $t = 0$ sec. bzw. $t_1 = 88$ sec gemittelten dynamische Formfaktor $\bar{\kappa}$ berechnet. Es ergibt sich $\bar{\kappa}(0) = 2,0$ und $\bar{\kappa}(88) = 2,5$. Eine weitere Mittelung über die gesamte Koagulationszeit liefert ein mittleres $\bar{\kappa} = 2,25$. Zur Berechnung dieser Werte wurde Gl. 30 für den gesamten Größensbereich als gültig angesehen. Diese Annahme scheint aus folgendem Grund gerechtfertigt: Größere kugelförmige Primärpartikeln ($D_M \sim 0,5 \mu\text{m}$) mit einem sehr kleinen κ -Wert, wie sie direkt am Generatorausgang auftreten (s. Tab. 5) - dürften bei einem älteren Aerosol nicht mehr auftreten. Größere Partikeln sollten aus kleineren, koagulierten Partikeln zusammengesetzt sein und damit einen größeren dynamischen Formfaktor besitzen. Diese Behauptung wird durch REM-Aufnahmen bestätigt (Abb. 29 und 30). Der gemittelte dynamische Formfaktor $\bar{\kappa} = 2,25$ weicht beim vorliegenden UO_2 -Aerosol stärker als bei Platinoxid von dem dazugehörigen Koagulationsformfaktor ($f = 3,2$) ab. Beide Formfaktoren haben jedoch auch bei diesem untersuchten Aerosol etwa gleich große Werte.

7. Schlußbetrachtungen

Die Versuche zur direkten Bestimmung des dynamischen Formfaktors κ und des Koagulationsformfaktors f verschiedener Metalloxid-Aerosol brachten neben den speziellen gemessenen Werten interessante aerosolphysikalische Erkenntnisse.

Ein allgemein gültiger - stoffunabhängiger - formaler Zusammenhang zwischen dem Partikeldurchmesser D_M und dem dynamischen Formfaktor κ kann nicht gegeben werden. Der dynamische Formfaktor von Partikeln einer bestimmten Größe D_M hängt von der Größe der Primärpartikeln des untersuchten Aerosolsystems und den speziellen Versuchsbedingungen ab. So unterscheiden sich - äußerlich sehr ähnliche - Platinoxidpartikeln (Abb. 19) und UO_2 -Partikeln (Abb. 26), die einen dynamischen Formfaktor $\kappa = 3$ besitzen, in ihrem massenäquivalenten Durchmesser D_M etwa um einen Faktor 5 ($D_M = 0,058 \mu m$ bzw. $D_M = 0,27 \mu m$). Dieser Unterschied beruht auf größeren Primärpartikeln des Urandioxidaerosols. Die Größe der Primärpartikeln hängt bei Kondensationsaerosolen einerseits sehr stark von den thermodynamischen Eigenschaften einer Substanz (z. B. Sättigungsdampfdruck) ab. Andererseits spielen die Versuchsbedingungen und die äußeren Umstände bei der Aerosol-erzeugung (Generatortemperatur, Generatorvolumen, Gasdurchsatz, Verdampfungsenergie etc.) eine wichtige Rolle. Diese Größen beeinflussen den Dampfdruck der Substanz im Aerosolgenerator und damit die Größe und Anzahl der Primärpartikeln. Außerdem wird die weitere Dynamik des Aerosolsystems und damit dessen Größenverteilung durch den Versuchsaufbau bestimmt. Werden in einem kleinvolumigen Aerosolgenerator kontinuierlich Primärpartikeln erzeugt, koagulieren diese bereits im Generator mit vorhandenen mehr oder weniger kettenförmigen Aggregaten, so daß am Generatorausgang ein relativ kompaktes Aerosol vorliegt. Dagegen hätte eine einmalige, stoßartige Aerosolproduktion neben Primärpartikeln ein stärker verzweigtes Aerosol am Generatorausgang zur Folge. Aus diesem Grund können Partikeln gleicher chemischer Zusammensetzung und gleicher Größe D_M unterschiedliche dynamische Formfaktoren aufweisen. Vergleiche mit Literaturangaben /6, 18/ belegen diese Behauptung. Die hier ermittelten κ -Werte von UO_2 -Partikeln (Tab. 5) stimmen etwa mit, von Allen et al /18/ gemessenen, κ -Werten gleich großer $(PuU)O_2$ -Partikeln überein. Beide Aerosole wurden kontinuierlich

erzeugt. Dagegen haben stoßartig erzeugte U_3O_8 -Partikeln mit gleichen aerodynamischen Durchmessern D_{ae} wesentlich höhere dynamische Formfaktoren /6/.

Neben diesem Effekt bei der Erzeugung des Aerosols dürfte, zumindest für einen Teil der Partikeln, das Aerosolalter außerhalb des Generators einen Einfluß auf die äußere Form von Partikeln einer bestimmten Größe haben. Diesen Einfluß haben die Untersuchungen mit UO_2 gezeigt. Am Generatorausgang besitzen UO_2 -Partikeln mit einem massenäquivalenten Durchmesser $D_M = 0,55 \mu m$ nahezu kugelförmige- oder würfelartige Formen mit sehr niedrigem κ -Wert ($\kappa = 1,2$). Partikeln dieser Größe mit ähnlich idealen äußeren Konturen werden später (z. B. am Ende des Koagulationsrohres) praktisch nicht mehr gefunden (Abb. 30). Partikeln dieser Größe bestehen aus koagulierten Primärpartikeln. Diese Aggregate besitzen natürlich einen höheren dynamischen Formfaktor κ . Dieser zeitabhängige Umwandlungsprozeß von Partikeln eines bestimmten Größenbereichs hängt neben dem Zeitintervall auch vom restlichen Aerosol ab. Alle diese Überlegungen zeigten, daß die gemessenen Werte des dynamischen Formfaktors nur für die jeweils verwendeten Aerosolsysteme ohne Einschränkung Gültigkeit besitzen. Die Bandbreite der Ungenauigkeit dieser experimentell bestimmten Werte bei einer Übertragung auf andere, selbst stofflich identische, Aerosole ist unklar.

Ähnlich verhält es sich mit den Ergebnissen zum Koagulationsformfaktor f . Das Größenspektrum eines Aerosolsystems ist naturgemäß während der Koagulation einer ständigen Veränderung unterworfen. Hierbei ändert sich auch die äußeren Formen der Partikeln. Die gemessenen Werte des Koagulationsformfaktors f können deshalb ebenfalls ohne Einschränkung nur auf die in den Versuchen verwendeten Aerosolsysteme mit den jeweiligen Koagulationszeiten t_1 verwendet werden. Die jeweilige Anfangsgrößenverteilung des Aerosols scheint einen größeren Einfluß auf den Koagulationsformfaktor als die Koagulationszeit zu haben. Insbesondere kann wenig über das Zeitverhalten von f gesagt werden.

Ein Vergleich des über das gesamte Aerosolsystem gemittelten dynamischen Formfaktors κ mit dem gemittelten Koagulationsformfaktor f zeigt, daß sowohl bei Platinoxid- als auch bei UO_2 -Partikeln beide Werte grob übereinstimmen (1,85/1,8 bzw. 2,25/3,2). Das abweichende Verhalten nicht-kugelförmiger Partikeln bezüglich der aerodynamischen Beweglichkeit und der Koagulation wirkt sich demzufolge nahezu identisch aus. Diese Aussage erscheint einleuchtend, da beide aerosolphysikalischen Effekte (Beweglichkeit, Koagulation) vom Diffusionskoeffizienten der Partikeln abhängen.

Die Ergebnisse zeigen, daß viele Parameter Einfluß auf die Art der Partikelbildung und die Dynamik eines Aerosolsystems und damit auf die äußere Form der Partikeln, haben. Insbesondere lassen sich Ergebnisse eines Aerosolsystems nicht prinzipiell auf andere Aerosolsysteme übertragen. Um einen möglichst allgemeinen, eventuell zeitabhängigen Zusammenhang zwischen diesen Parametern erkennen zu können, sind weitere Messungen (z. B. bei verschiedenen Probenkammervolumina, verschiedenen Dampfkonzentrationen etc.) erforderlich.

Danksagung:

Die REM-Aufnahmen der Platinoxidproben wurden von Herrn Prof. Blaschke (Institut für medizinische Physik, Universität Münster), die Aufnahmen der UO_2 -Proben von Herrn Schindler (Institut für Elektronenmikroskopie, Universität Karlsruhe) durchgeführt. Die Neutronenbestrahlungen der Proben erfolgten im Forschungsreaktor TRIGA des Deutschen Krebsforschungszentrums (DKFZ) in Heidelberg. Die anschließenden Aktivierungsanalysen wurden von Herrn Dr. Helus und Herrn Gasper (Institut für Nuklearmedizin, DKFZ Heidelberg) ausgeführt.

Ich möchte mich hiermit für die erwähnten Arbeiten recht herzlich bedanken.

Literatur

- /1/ Bunz, H.: "Paradiseko IIIb, ein Computerprogramm zur Berechnung des Aerosolverhaltens in geschlossenen Behältern", KfK-Bericht 2903 (1980)
- /2/ Jordan, H., Schikarski, W., Wild, H.: "Nukleare Aerosole im geschlossenen System", KfK-Bericht 1989 (1974)
- /3/ Walkenhorst, W.: "Modellversuche zur Bestimmung des dynamischen Formfaktors nicht-isometrischer Teilchen", Staub - Reinhaltung der Luft 36, 149 (1976)
- /4/ Walkenhorst, W., Creßen, W.: "Zusammenhänge zwischen den äußeren Abmessungen von Aggregaten und ihrem aerodynamischen Durchmesser", Staub - Reinhaltung der Luft 37, 106 (1977)
- /5/ Kotrappa, P.: "Shape factors for aerosols of coal, UO_2 and ThO_2 in respirable size range" in Assesment of airborne particles (Herausgeber: Mercer, T. T., Morrow, P. E. and Stöber, W.) 331, Thomas, Springfield (1972)
- /6/ van de Vate, J. F., van Leeuwen, W., Plomp, A., Smit, H.C.D.: "Dynamic shape factors: measurement techniques and results on aggregates of solid primaries", J. Aer. Sci. 11, 67 (1980)
- /7/ Rehn, B.: "Direct measurement of the coagulation shape factor of aerosol particles", Proceedings of the CSNI specialists meeting on nuclear aerosols in reactor safety (Gatlinburg), 139, National Technical Information Service, U.S. Department of Commerce, Springfield (1980)
- /8/ Fuchs, N. A.: "The Mechanics of Aerosols", Pergamon, Oxford (1964)
- /9/ v. Smoluchowski, M.: "Theorie der Koagulation", Physikal. Zeitschrift 17, 539 (1916)
- /10/ Polydorova, M.: "Herstellung und Eigenschaften eines Platinoxidaerosols", Staub - Reinhaltung der Luft 27, 345 (1967)

- /11/ VDI 3491, Blatt 6, "Messen von Partikeln. Herstellungsverfahren für Prüfaerosole. Platinoxid-Aerosolgenerator"
- /12/ Schöck, W., Bunz, H., Koyro, M.: "Messungen der Wasserdampfkondensation an Aerosolen unter LWR-unfalltypischen Bedingungen", KfK-Bericht 3153 (1981)
- /13/ Piu, D.Y.H., Liu, B.Y.H.: "Electrical aerosol analyzer: calibration and performance" in Aerosol measurement (Herausgeber: Lundgren, D.A.), 384, University of Florida Press, Gainesville (1978)
- /14/ Stöber, W., Flachsbar, H., "Size-separating precipitation of aerosols in a spinning spiral duct", Env. Sci. Techn. 3, 1280 (1969)
- /15/ VDI 3491, Blatt 3, "Herstellung von Latex-Aerosolen unter Verwendung von Düsenzerstäubern"
- /16/ Gebhardt, J., Heyder, J., Roth, Ch., Stahlhofen, W.: "Herstellung und Eigenschaften von Latex-Aerosolen", Staub - Reinhaltung der Luft 40, 1 (1980)
- /17/ Spurny, K.: "Nuclepore Siebfilter-Membranen: Zehn Jahre Anwendung für Staub- und Aerosolmessungen", Staub - Reinhaltung der Luft 37, 328 (1977)
- /18/ Allen, M. D., Moss, O.R., Brian, J.K.: "Dynamic shape factors for LMFBR-mixed-oxide fuel aggregates", J. Aer. Sci. 10, 43 (1978)

Anhang: Definitionen wichtiger Aerosol-Äquivalentdurchmesser

- Der massenäquivalente Durchmesser D_M einer Partikel entspricht dem Durchmesser einer Kugel, die die gleiche Masse wie die untersuchte Partikel besitzt:

$$D_M = \sqrt[3]{\frac{6 M}{\pi \cdot \rho}}$$

M - Partikelmasse

ρ - Partikeldichte

- Der Stokes'sche Durchmesser D_{St} einer Partikel entspricht dem Durchmesser einer Kugel, die die gleiche Dichte und in einem Kraftfeld die gleiche End-Fallgeschwindigkeit wie die untersuchte Partikel besitzt.
- Der aerodynamische Durchmesser D_{ae} einer Partikel entspricht dem Durchmesser einer Kugel mit der Dichte $\rho_o = 1 \text{ g/cm}^3$, die in einem Kraftfeld die gleiche End-Fallgeschwindigkeit wie die untersuchte Partikel besitzt.
- Der beweglichkeitsäquivalente Durchmesser D_p einer Partikel entspricht dem Durchmesser einer Kugel, die die gleiche Beweglichkeit wie die untersuchte Partikel besitzt (z. B. die elektrische Beweglichkeit einer geladenen Partikel in einem homogenen elektrischen Feld)
- Der projizierte Durchmesser D_{pr} einer Partikel entspricht dem Durchmesser eines Kreises, dessen Fläche gleich der auf einer Bildfläche abgebildeten Fläche der untersuchten Partikel ist.
- Der Feret'sche Durchmesser D_{Ft} einer Partikel ist der Abstand der in einer festgelegten Richtung zu beiden Seiten an die projizierte Fläche der Partikel gelegten Tangenten.