



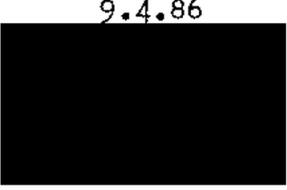
DECKBLATT

EU 037.02	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.
	N A A N	N N N N N N N N N N	N N N N N N	X A A X X	A A	N N N N	N N
	9K			EB	TV	0002	00

Titel der Unterlage: Vorgänge an Flüssigkeitsoberflächen erstellt im Rahmen des Projektes "Sicherheitsstudien Ent- sorgung" (PSE)	Seite: I.
	Stand: 11.82

Ersteller: Nukem	Textnummer:
----------------------------	-------------

Stempelfeld:

PSP-Element TP...9K/21272	zu Plan-Kapitel: 3.5.2	
	PL 9.4.86  Freigabe für Behörden	PL 9.4.86  Freigabe im Projekt

Diese Unterlage unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Vernichtung und darf vom Empfänger nur auftragsbezogen genutzt, vervielfältigt und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung der PTB.

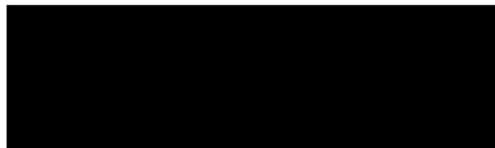
2

Projekt SICHERHEITSSUDIEN ENTSORGUNG

PSE-Nr. 82/3 A

Vorgänge an Flüssigkeitsoberflächen

Verfasser:



Zitatformulierung:



PSE-interner Arbeitsbericht Nr. 82/3 A
NUKEM GmbH, Hanau

November 1982

Erstellt im Rahmen des Projekts SICHERHEITSSUDIEN
ENTSORGUNG (PSE), gefördert vom Bundesminister für
Forschung und Technologie, Vorhaben-Nr. KWA 3113

Das Projekt SICHERHEITSSTUDIEN ENTSORGUNG (PSE)
wird im Auftrag des Bundesministeriums für Forschung
und Technologie ausgeführt.

Beteiligt sind:

Bonnenberg + Drescher, Aldenhoven,
Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe,
Hannover
Bundesanstalt für Materialprüfung, Berlin ¹⁾
Dornier System GmbH, Friedrichshafen
Freie Universität Berlin ¹⁾
Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH,
Neuherberg¹⁾
Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin GmbH
Kernforschungsanlage Jülich GmbH
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
NUKEM GmbH, Hanau
Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig²⁾
Technische Hochschule Darmstadt¹⁾
Technische Universität Berlin
Technische Universität München¹⁾
Transnuklear GmbH, Hanau

Geschäftsführende Einrichtung ist das
Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin GmbH

- 1) Bestimmung von Sorptionsdaten für den Standort Gorleben
im Auftrag der PTB
- 2) Beteiligt an PSE durch Vorgabe von Planungsdaten und
Zielvorstellungen für Bundesendlager

Zusammenfassung

Im Rahmen des Vorhabens "Methodische Entwicklung und Erprobung einer Sicherheitsanalyse für bestimmte Anlagenteile aus dem Entsorgungsbereich" waren Vorgänge an Flüssigkeitsoberflächen und hier besonders die funktionalen Abhängigkeiten des Austrags von radioaktiven Stoffen aus wäßrigen Flüssigkeiten durch Aerosolbildung bei Verdunsten und Verdampfen, durch Gasbildung sowie bei Einsatz von Perlluft zu untersuchen.

Ziel war das Erstellen von mathematischen Modellen, die eine quantitative Beschreibung der Phänomene erlauben.

Im vorliegenden Bericht wird die Modellierung der Vorgänge (im folgenden Quell-effekte genannt) dargestellt. Die Modelle erfassen sowohl den quasistationären Stoffaustrag als auch während Aufheizvorgängen in den betrachteten Flüssigkeiten ablaufende instationäre Vorgänge. Es werden beschreibende Gleichungssysteme erstellt, die die Basis für Quellterm-Modelle bilden und deren Lösungen als Transportzellen im Rahmen des Programmoduls RIDO /16, 17/ eingesetzt werden können. Über die vorgesehenen und oben erwähnten Arbeitsziele hinaus werden die erarbeiteten Modelle am Beispiel eines fiktiven Tanklagers für hochaktive salpetersaure Lösungen beispielhaft angewendet. Die Erarbeitung der Modelle erfolgte im vorgesehenen Zeitrahmen.

Im folgenden werden die erzielten Ergebnisse und Folgerungen kurz dargestellt.

a) Verdunsten

Beim Verdunstungsvorgang wird ein Stoffstrom erzeugt, der sich im wesentlichen aus zwei Anteilen zusammensetzt:

- Luftfeuchtigkeit, d.h. ein bis auf Tritium aktivitätsfreies Wasserdampf-Luft-Gemisch und
- radioaktive Aerosole, deren Zusammensetzung gleich derjenigen der verdunstenden Flüssigkeit ist.

Während zur Berechnung der Verdunstungsmengen bekannte Verfahren vorliegen, wird zur Modellierung des Aerosolaustrags basierend auf empirischen Daten ein Verfahren entwickelt. Danach nimmt das Verhältnis der ausgetragenen Aerosol-

masse zu verdunsteter Flüssigkeitsmasse, die "Aerosolfraktion" (oder der Aerosolanteil), exponentiell mit der Temperatur zu. Die Parameter der entsprechenden Exponentialfunktion werden durch eine Anpassung an Meßwerte von Mishima et al. /1/ ermittelt. Mit diesem Ansatz ist es möglich, den Aerosolaustrag beim Verdunsten wäßriger Lösungen analytisch zu beschreiben.

Nach diesem Modell stellt sich im Gasraum über der verdunstenden Flüssigkeit eine Aerosolkonzentration ein, die -je nach Temperatur- um eine bis drei Größenordnungen niedriger liegt als der bisher häufig verwendete Wert von 10 mg/m^3 .

Damit bestätigt sich, daß die zum Abbau allzu konservativer Annahmen erforderlichen Kenntnisse und Daten verfügbar sind.

b) Verdampfen

Beim Verdampfen (Blasensieden) stellt das Zerplatzen der Dampfblasen an der Flüssigkeitsoberfläche den dominierenden Effekt zum Aerosolaustrag dar. Basierend auf dem sich einstellenden stabilen Blasendurchmesser und einem normalverteilten Durchmesserspektrum der beim Zerplatzen entstehenden Aerosole /4/ wird der Aerosolmassenaustrag bei diesem Prozeß modelliert.

Das so ermittelte Verhältnis aus Aerosolmassenstrom und Dampfmassenstrom stimmt mit dem von Mishima /1/ an einer Pu-Nitrat-Lösung gemessenen Wert gut überein.

c) Zerplatzen von Perlluftblasen

Analog zum Fall des Blasensiedens wird der Aerosolaustrag beim Zerplatzen von Perlluftblasen an der Flüssigkeitsoberfläche in Abhängigkeit vom Perlluftstrom modelliert.

d) Gasbildung

Neben dem Austrag von Aktivität durch die Erzeugung von Aerosolen können auch gasförmige Aktivitätsträger aus der Flüssigkeitsoberfläche entweichen. Hierzu

gehören im wesentlichen

- Jod
- Ruthen in Form von RuO_4
- Krypton.

Der Tritium-Austrag wird beim Verdunsten und Verdampfen erfaßt.

HTO verhält sich beim Verdunsten bzw. Verdampfen wie H_2O . Die spezifische Tritium-Aktivität des Dampfes ist gleich derjenigen der Flüssigkeit. Damit wird der Tritiumaustrag durch den Wasserdampfmassenstrom beschrieben.

Beim Auflösen ausgedienter Brennelemente innerhalb des Wiederaufarbeitungsprozesses wird das Spaltjod nahezu vollständig durch eine destillative Behandlung als Gas aus der Brennstofflösung ausgetrieben /5/. In der verbleibenden Flüssigkeit und den weiterführenden Prozeßströmen liegen nur noch geringe Restjodmengen in Form nichtflüchtiger Verbindungen vor /5, 6/. Ein Jodgasquelleffekt wird somit im Rahmen des vorliegenden Berichtes nicht betrachtet.

Der Austrag von Ruthen aus wäßrigen Lösungen wird mit Hilfe eines Modells beschrieben, das -basierend auf Messungen von Wilson /7/- diesen Prozeß in Abhängigkeit von der Salpetersäurekonzentration darstellt.

Obwohl dem Austrag von Krypton-Gas aus radioaktiven wäßrigen Lösungen im Vergleich zu den Austrägen weiterer Nuklide radiologisch praktisch keine Bedeutung zukommt, wird dieser Quelleffekt mathematisch modelliert; die Beschreibung erfolgt unter Verwendung der einschlägigen Beziehungen zum Stofftransport /18/ und ist allgemein auf desorbierende Gase anwendbar.

Es wird empfohlen, den nichtselektiven Nuklidaustrag bei Aerosolbildung experimentell abzusichern. Ebenso sind Messungen zum Tropfenspektrum bei Blasenzerplatzen notwendig. Es wird darauf hingewiesen, daß ein Teil der wesentlichen Daten zum Stofftransport, wie z. B. Stoffübergangskoeffizienten, bisher nicht bestimmt wurden und keine Literaturangaben vorliegen. Die im Kernforschungszentrum Karlsruhe geplanten Versuche im Rahmen des BEATE-Programms liefern noch innerhalb der Laufzeit von PSE Resultate, die zur weiteren Überprüfung der hier vorgestellten Modelle herangezogen werden sollten.

Der Austrag von radioaktiven Stoffen aus nichtwäßrigen Flüssigkeiten wird mit den vorgestellten Modellen nicht erfaßt.

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	Seite
Zusammenfassung	I
1. Einleitung	1
2. Basisdaten und Grundgleichungen	2
2.1 Wesentliche Effekte	2
2.2 Quasistationärer Stoff- und Aktivitätsaustrag	4
- Verdunsten	
- Verdampfen	
- Perlluft	
- Gasbildung	
3. Entwicklung der Quellterme	22
4. Anwendungsbeispiel	31
4.1 Beschreibung des Beispielsystems	31
4.2 Instationärer Massen- und Aktivitätsaustrag	37
4.3 Quasistationärer Massen- und Aktivitätsaustrag	37
5. Diskussion	53

	Seite
Anhang I Analytische Beschreibung des Aerosolaustrags aus verdunstenden wäßrigen Lösungen	56
Anhang II Aerosolentstehung beim Sieden wäßriger Lösungen	79
Anhang III Quantitative Betrachtungen zur Häufigkeitsverteilung der beim Sieden wäßriger Lösungen entstehenden Aerosole	94
Anhang IV Mathematische Beschreibung der instationären Aufheizung hochaktiver flüssiger Abfälle infolge Kühlungsausfall	108
Anhang V Ermittlung des Massenverlustes hochaktiver flüssiger Abfälle infolge Verdunstung bei Aufheizung	114
Anhang VI Definitionen von Begriffen bei Störfallbetrachtungen	119
Literaturverzeichnis	122
Zusammenstellung der verwendeten Symbole	126
Verzeichnis der Tabellen	130
Verzeichnis der Abbildungen	132

1. Einleitung

Bei der Durchführung von Sicherheitsanalysen werden möglichst realitätsnahe Ergebnisse bei der Bestimmung der Aktivitätsfreisetzung aus kerntechnischen Einrichtungen angestrebt. Die Beschreibung der Stoff- und Aktivitätsströme, die aus den Oberflächen radioaktiver Flüssigkeiten in Form von Aerosolen und Gasen ausgetragen werden, ist dabei wesentlich.

Zur Ermittlung derartiger Quelleffekte wurden verschiedene Modelle entwickelt, welche den Stoff- und Aktivitätsaustrag aus den Oberflächen verdünnter wäßriger radioaktiver^{*)} Lösungen beschreiben.

In Kapitel 4 werden die mathematischen Modelle für die Beschreibung des Austrages aus der Flüssigkeitsoberfläche eines fiktiven Tanklagers für hochaktive, salpetersaure, wäßrige Lösungen angewendet. Als Szenarium wird dabei der teilweise bzw. vollständige Ausfall der Lagertankkühlung und die damit verbundene Aufheizung des Inventars unterstellt.

Der Gültigkeitsbereich der hier vorgestellten Modelle wird in Kapitel 5 diskutiert.

*)Die Oberflächenspannung der betrachteten "verdünnten wäßrigen radioaktiven Lösungen", im folgenden wäßrige Lösung genannt, unterscheidet sich nur wenig ($\leq 10\%$) von der des Wassers.

2. Basisdaten und Grundgleichungen

Gegenstand des vorliegenden Kapitels bildet die Zusammenstellung von Basismaterial zur mathematischen Modellierung der Quelleffekte, welche den Aktivitätsaustrag an den Oberflächen wäßriger Lösungen beschreibt.

2.1 Zusammenstellung der wesentlichen Effekte

Der Aktivitätsaustrag an den Oberflächen wäßriger Lösungen erfolgt durch Flüssig-aerosol- bzw. durch Gasbildung. Die dabei auftretenden wesentlichen Quelleffekte sind

a) Verdunsten

Bei der Verdunstung einer wäßrigen Lösung werden zusammen mit dem an der Oberfläche entweichenden Wasserdampf Flüssigaerosole ausgetragen. Dieser an sich geringe Aerosolmassenstrom stellt insbesondere bei einer hohen spezifischen Aktivität der verdunstenden Lösung einen erheblichen Quelleffekt dar. Ein weiterer Aktivitätsquelleffekt ist durch das zusammen mit dem Wasserdampf austretende Tritium in Form von HTO gegeben.

b) Verdampfen

Beim Zerplatzen von Dampfblasen an den Oberflächen siedender wäßriger Lösungen wurde das Entstehen von Mikro- und Makrotropfen festgestellt, wobei es sich bei den Mikrotropfen um Flüssigaerosole mit maximalen Durchmessern von einigen $10\ \mu\text{m}$ handelt /2/. Der Durchmesser der Makrotropfen ist um das 10- bis 100-fache größer.

Weiter wurde beobachtet, daß die Aerosoltröpfchen in der Regel vom Dampf mitgerissen werden, da ihre Fallgeschwindigkeit geringer als die Dampfgeschwindigkeit ist. Die Makrotropfen erreichen der Dampfgeschwindigkeit entsprechend eine definierte Maximalhöhe und fallen dann zur Oberfläche zurück, so daß bei ausreichend hohen Gasräumen über der Flüssigkeit praktisch keine Austragung durch Makrotropfen mehr erfolgt. Analog zu a) stellen die gebildeten Mikrotropfen trotz ihrer relativ geringen Masse auch hier einen wesentlichen Quelleffekt dar. Ein weiterer Quelleffekt bei der Verdampfung ist durch das mit dem Wasserdampf austretende Tritium in Form von HTO gegeben.

c) Perlluft

Eine Methode zur Durchmischung und zur Denitrierung sowie zur Füllstandsmessung radioaktiver Flüssigkeiten in Behältern ist das Einleiten von Druckluft. Die dabei entstehenden Luftblasen bewegen sich zur Flüssigkeitsoberfläche und setzen dort durch Zerplatzen Aerosole frei. Die Häufigkeitsverteilung der Teilchengröße ist von der Größe der Ausgangsblasen abhängig /3/.

d) Gasbildung

Neben dem Aktivitätsaustrag durch HTO-Dampf (siehe Abschnitte a) und b)) bei Verdunsten und Verdampfen können aus wäßrigen Lösungen je nach ihrem Inventar gasförmige Aktivitätsträger austreten, die beispielsweise in Form von Jod- oder Ruthenverbindungen oder als Krypton in der Flüssigkeit gelöst vorliegen.

2.2 Quasistationärer Stoff- und Aktivitätsaustrag

Im vorliegenden Abschnitt werden die Gleichungen zur Ermittlung der quasistationären Austragsraten der einzelnen Quelleffekte zusammengestellt.

Verdunsten

Für den Massenverlust einer wäßrigen Lösung infolge Verdunstung in den darüber befindlichen Luftraum gilt nach /8/ die Beziehung

$$\dot{M}_D = \beta \cdot OF \cdot (X_S - X) \quad (1)$$

mit den Bezeichnungen

\dot{M}_D	:	Massenverlust pro Zeiteinheit	kg/h
β	:	Stoffübergangskoeffizient	kg/m ² h
OF	:	Flüssigkeitsoberfläche	m ²
X _S	:	Sättigungsfeuchtigkeitsgehalt von Luft entsprechend der jeweiligen Oberflächentemperatur der Flüssigkeit	kg/kg
X	:	Feuchtigkeitsgehalt der Luft über der Flüssigkeitsoberfläche	kg/kg.

Der Stoffübergangskoeffizient berechnet sich dabei nach der Beziehung

$$\beta \text{ [kg/m}^2 \text{ h]} = 25 + 19 \cdot v \text{ [m/s]} \quad (2),$$

wobei v die Tangentialgeschwindigkeit der Luft an der Flüssigkeitsoberfläche bedeutet /8/.

Der Massenstrom \dot{M}_D und damit die Größe X hängen im konkreten Fall von der jeweiligen Auslegung des vorhandenen Abgassystems ab. Die Kenntnis des Massenverlustes \dot{M}_D der Flüssigkeit pro Zeiteinheit infolge Verdunstung bildet die Basis zur Ermittlung des Aktivitätsaustrags durch Aerosole und durch Tritium in Form von HTO-Dampf.

a) Beschreibung des quasistationären Aerosolaustrages

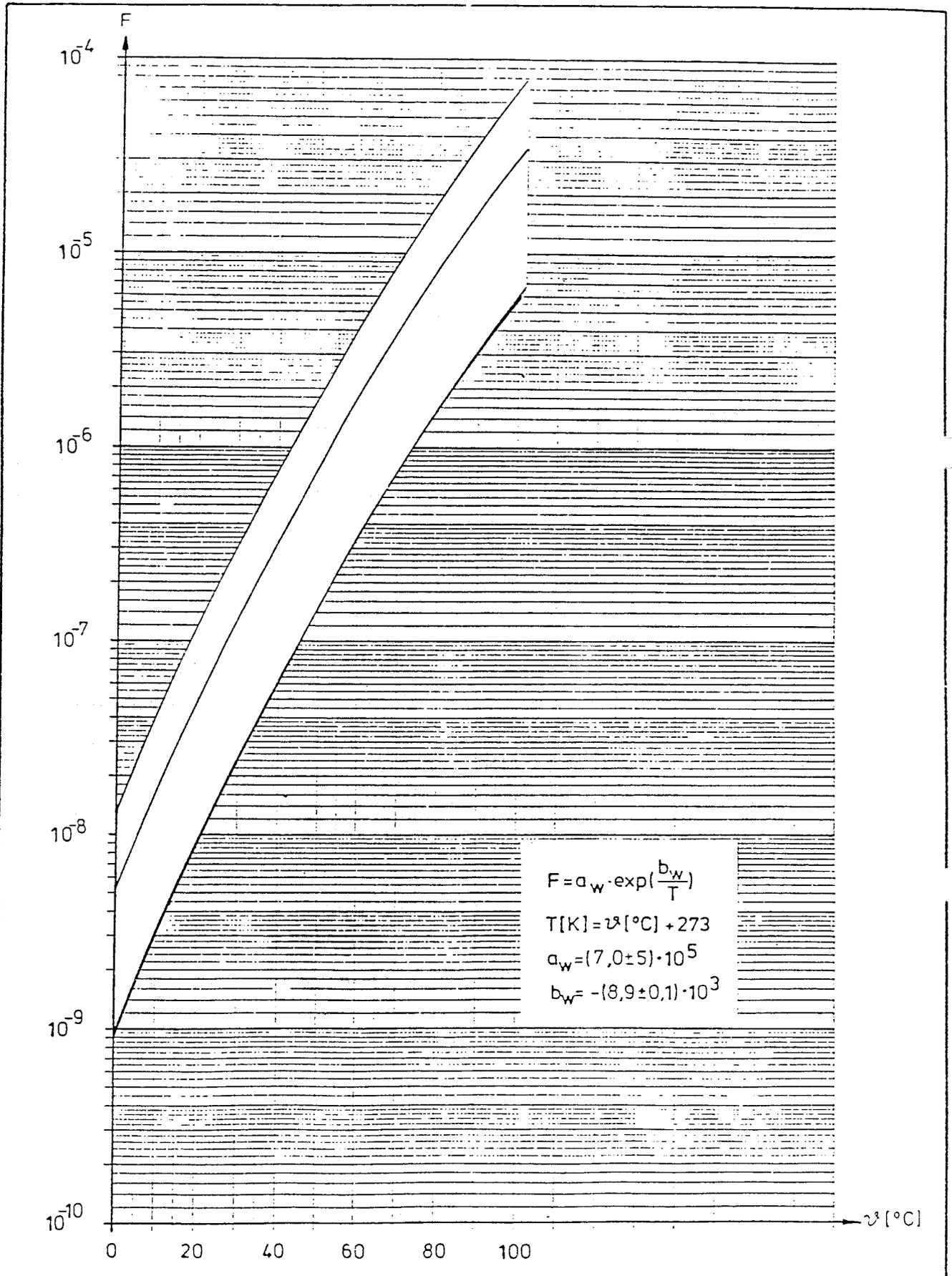
Zur quantitativen Beschreibung des Aerosolaustrags an den Oberflächen verdunstender Flüssigkeiten wurde auf der Basis theoretischer Überlegungen ein mathematisches Modell entwickelt, welches in Anhang I beschrieben ist. Demnach ist der beim Verdunsten wäßriger Lösungen austretende Dampfstrom mit einem Aerosolaustrag verbunden, wobei der zugehörige massenmäßige Aerosolanteil F von der jeweiligen Flüssigkeitstemperatur T wie folgt abhängt:

$$\bar{F}(T) = a \exp\left(\frac{b}{T}\right) \quad (3).$$

Die Konstanten a und b sind dabei durch die Stoffeigenschaften der betreffenden Flüssigkeit gegeben. Die Vorgehensweise zur Bestimmung dieser Konstanten sowie deren Fehler für reines Wasser und allgemein für wäßrige Lösungen wird im Rahmen weiterer theoretischer Betrachtungen gezeigt, in denen verdunstende (siehe Anhang I) und siedende (siehe Anhang II, III) Flüssigkeiten untersucht werden.

Für reines Wasser ist der nach der Beziehung (3) ermittelte Aerosolanteil F (siehe Anhang I) in Abb. 1 als Funktion der Temperatur graphisch wiedergegeben. Die eingezeichneten Grenzkurven sind dabei den Fehlern der Koeffizienten a und b zuzuordnen. Es zeigt sich, daß aufgrund dieser Fehler nicht die genauen Zahlenwerte sondern nur die Größenordnungen der Aerosolfraktionen F von Bedeutung sind.

Für wäßrige Lösungen resultieren nach den Ausführungen von Anhang I bei einer fest vorgegebenen Temperatur geringere F -Werte im Vergleich zu reinem Wasser, wobei dieser Unterschied mit zunehmender Konzentration der gelösten Substanz wächst. Die Abb. 1 ist daher allgemein zu einer überschlägigen konservativen Abschätzung des Aerosolmassenstroms an der Oberfläche einer wäßrigen Lösung verwendbar.



Aerosolaustragsanteil F als Funktion der Temperatur ϑ

Abb. 1

Von weiterem Interesse sind die sich gemäß dem oben beschriebenen Aerosolaustragsmodell an der Flüssigkeitsoberfläche einstellenden Aerosolkonzentrationen, worauf im folgenden näher eingegangen wird:

Die genannten Konzentrationen errechnen sich gemäß:

$$\rho_{AE} = \frac{\dot{M}_{AE}}{v \cdot OF} \quad (4)$$

mit den Bezeichnungen

ρ_{AE}	:	Aerosolkonzentration an Flüssigkeitsoberfläche	kg/m^3
\dot{M}_{AE}	:	Aerosolmassenstrom an Flüssigkeitsoberfläche	kg/h
v	:	Geschwindigkeit des Aerosol-Dampf-Gemisches an Flüssigkeitsoberfläche	m/h
OF	:	Betrag der Flüssigkeitsoberfläche	m^2

Mit den Beziehungen

$$\dot{M}_{AE} = F(T) \cdot \dot{M}_D \quad (5) \text{ und}$$

$$v = \frac{\dot{M}_D}{\rho_D \cdot OF} \quad (6),$$

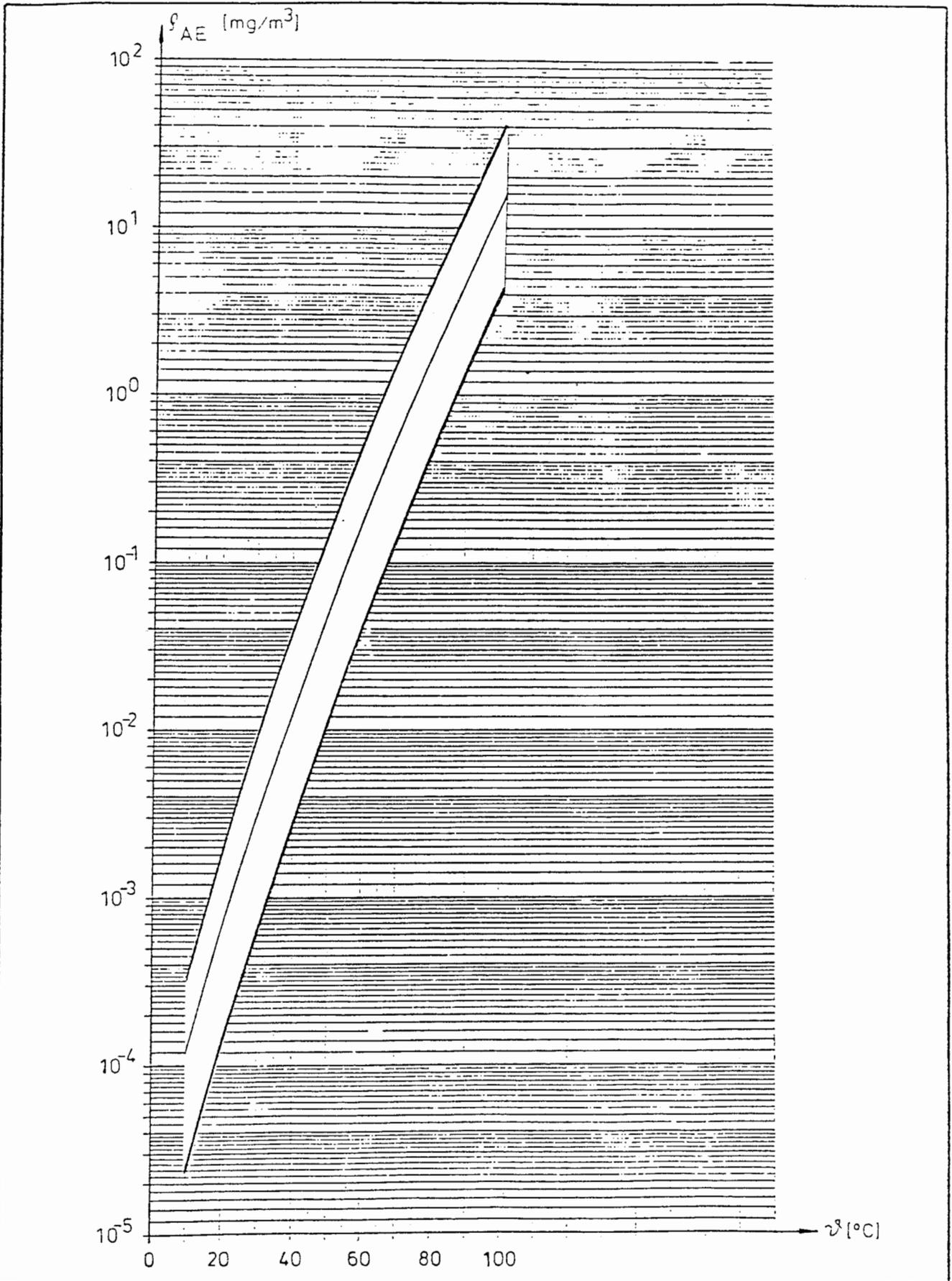
wobei

\dot{M}_D	:	Dampfmassenstrom an Flüssigkeitsoberfläche	kg/h
ρ_D	:	Dampfdichte an Flüssigkeitsoberfläche	kg/m^3

folgt aus Gleichung (4)

$$\rho_{AE}(T) = F(T) \cdot \rho_D(T) \quad (7).$$

Die so ermittelten Aerosolkonzentrationen ξ_{AE} sind in Abb. 2 für verschiedene Temperaturen für reines Wasser wiedergegeben. Die gemäß Gleichung (3) definierte Funktion $F(T)$ wurde dabei mit den zugehörigen Konstanten a, b unter Berücksichtigung der entsprechenden Fehler ausgewertet (siehe Anhang I). Die Größe $\xi_D(T)$ wurde aus /9/ entnommen. Es zeigt sich, daß die Größenordnungen der Aerosolkonzentrationen für den angegebenen Temperaturbereich zwischen 10^{-4} und 10 mg/m^3 liegen. Dieses Ergebnis ist insofern bemerkenswert, als bisher zur Abschätzung von Aerosolkonzentrationen häufig der extreme Wert von 10 mg/m^3 verwendet wurde (nach /10/). Das hier entwickelte Aerosolaustragsmodell stellt somit einen Beitrag zum Abbau konservativer Betrachtungsweisen dar.



Aerosoldichte ρ_{AE} an der Oberfläche der verdunstenden Flüssigkeit als Funktion der Temperatur ϑ

Abb. 2

Für eine feste vorgegebene Temperatur T ergibt sich aus den obigen Betrachtungen an der Oberfläche einer verdunstenden radioaktiven wäßrigen Lösung die durch Aerosolbildung induzierte Aktivitätsaustragsrate \dot{A} (AE) gemäß

$$\dot{A} \text{ (AE)} = \dot{M}_D \cdot AS \cdot F(T) \quad (8)$$

unter der Voraussetzung, daß die spezifischen Aktivitäten AS von Flüssigkeit und Aerosoltropfen übereinstimmen.

b) Beschreibung des Tritiumaustrages

Zur Ermittlung des Aktivitätsaustrages durch Tritium in Form von HTO ist zu beachten, daß diese direkt an die Wasserdampfabgabe an der Flüssigkeitsoberfläche gebunden ist. Für die konkrete Berechnung werden gleiche spezifische Tritiumaktivitäten im Wasserdampf und in der Flüssigkeit zugrundegelegt.

Die Tritiumaktivitätsaustragsrate \dot{A} (H 3) berechnet sich damit gemäß der Formel

$$\dot{A} \text{ (H 3)} = \dot{M}_D \cdot AS \text{ (H 3)} \quad (9)$$

mit

\dot{M}_D	:	Ausgetragener Wasserdampfmassenstrom	kg/h
AS (H 3):		Spezifische Tritiumaktivität der Flüssigkeit	Ci/kg.

Verdampfen

Für den Massenverlust einer wäßrigen Lösung infolge Verdampfung \dot{M}_V gilt die Beziehung:

$$\dot{M}_V = \frac{L}{QV} \quad (10)$$

mit den Bezeichnungen

L : Zur Verdampfung der Flüssigkeit
 aufgebracht Wärmestrom J/h

QV: Massenbezogene Verdampfungsenthalpie J/kg

Die Kenntnis des zeitlichen Massenverlustes \dot{M}_V der Flüssigkeit bildet auch hier die Basis zur Ermittlung des Aktivitätsaustrages durch Aerosole und Tritium in Form von HTO.

a) Beschreibung des quasistationären Aerosolaustrages

Zur Bestimmung des Aerosolaustrages aus wäßrigen Lösungen im Zustand des Blasensiedens wurde ein Berechnungsmodell entwickelt, welches in den Anhängen II und III beschrieben ist. Hierbei werden jedoch nur Aussagen zu den direkt an der Flüssigkeitsoberfläche ablaufenden Quelleffekten gemacht. Auf Rückhalteeffekte, die mit dem Weitertransport der Aerosole in den über der Flüssigkeit befindlichen Gasraum verbunden sind, wird nicht eingegangen.

Unter Zugrundelegung einer Durchmesserverteilung des beim Sieden entstehenden Aerosolsystems gemäß einer Gauss-Verteilung (siehe /4/) ermittelt das Modell auf der Basis von Meßwerten (siehe /3/) die Anzahl der entstehenden Mikrotropfen und den zugehörigen mittleren Aerosoldurchmesser.

Der Anteil der mit dem Dampf austretenden Aerosole bestimmt sich demnach zu $F \approx 10^{-3}$.

Dieser Wert stimmt recht gut mit den Ergebnissen von Aerosolaustragsmessungen an einer siedenden (Blasensieden) Pu-Nitratlösung /1/ überein.

Es wird daher gefolgert, daß das entwickelte Modell zur quantitativen Bestimmung des Aerosolaustrags bei der Verdampfung wäßriger Lösungen allgemein anwendbar ist.

Analog zu den Betrachtungen zum Verdunsten ergibt sich an den Oberflächen siedender wäßriger Flüssigkeiten eine Aerosolkonzentration ρ_{AE} entsprechend Gleichung (7). Für F ist in diesem Falle der mit dem Modell gewonnene Aerosolaustragsanteil $F \approx 10^{-3}$ zu verwenden.

ρ_D gibt die Dichte von gesättigten Wasserdampf bei Siedetemperatur wieder (siehe /9/). Für die Temperatur 100°C ergibt sich danach eine Aerosolkonzentration $\rho_{AE} \approx 1000 \text{ mg/m}^3$ an der Flüssigkeitsoberfläche.

Nach /10/ stellt sich jedoch im Gasraum über den Oberflächen wäßriger Flüssigkeiten eine Aerosolkonzentration von größenordnungsmäßig 10 mg/m^3 ein, solange die Aufwärtsgeschwindigkeit des Aerosol-Gas-Gemisches einige cm/s und nicht mehr beträgt. Diese **verringerte Konzentration** ist maßgebend, um die mit dem Weitertransport der Aerosolpartikel in das betreffende Abgassystem verbundene Aerosolrückhaltung zu erfassen. Als Ursache dieser Konzentrationsverringering kann das Ausregnen größerer Aerosolpartikel und das Kondensieren von Wasserdampf an kalten **Wandflächen angeführt werden**.

Die beim Sieden wäßriger Lösungen durch Aerosolbildung induzierte Aktivitätsaustragsrate \dot{A} (AE) berechnet sich unter der Annahme gleicher spezifischer Aktivitäten AS in den Aerosolen und in der Lösung gemäß

$$\dot{A} \text{ (AE)} = F \cdot \dot{M}_V \cdot AS \quad (11).$$

Da die Aktivitätskonzentration der Flüssigkeit während des Verdampfens zunimmt, werden sich die Größen AS sowie \dot{A} (AE) zeitlich ändern.

In Kapitel 3 wird gezeigt, wie sich die momentane spezifische Aktivität anhand der Gleichung (11) und weiterer Differentialgleichungen bestimmen läßt. Die sich aufgrund der oben genannten Effekte über der Flüssigkeit einstellende Aerosolkonzentration bildet zusammen mit diesen berechneten spezifischen Aktivitäten der Aerosolpartikel die Basis zur Ermittlung der Aktivitätsrate, die an den Weitertransport der Aerosole in das zugehörige Abgassystem gebunden ist.

b) Beschreibung des Tritiumaustrages

Analog zur Vorgehensweise bei der Bestimmung des HTO-Austrages bei der Verdunstung einer wäßrigen Lösung bestimmt sich die Tritiumaktivitätsaustragsrate $\dot{A} \text{ (H 3)}$ beim Verdampfen zu

$$\dot{A} \text{ (H 3)} = \dot{M}_v \cdot AS \text{ (H 3)} \quad (12)$$

mit den Bezeichnungen

\dot{M}_v : Austretender Dampfstrom kg/h
AS (H 3) : Spezifische Tritiumaktivität der Flüssigkeit Ci/kg.

- Perlluft

Im Rahmen verschiedener Anwendungen wie etwa Homogenisieren und Denitrieren werden wäßrige radioaktive Lösungen mit Perlluft durchspült. Die in der Flüssigkeit aufsteigenden Perlluftblasen setzen dabei an der Oberfläche durch Zerplatzen Aerosole frei. Zur quantitativen Abschätzung dieses Aerosol- und des damit verbundenen Aktivitätsaustrages können ähnliche Überlegungen wie beim Verdunsten und Verdampfen angestellt werden.

Der Durchmesser einer einzelnen Perlluftblase innerhalb der Flüssigkeit errechnet sich näherungsweise nach /11/ über die Beziehung

$$d_B = \sqrt{\frac{6 \cdot \sigma}{(\rho_{FL} - \rho_G) \cdot g}} \quad (13)$$

mit den Bezeichnungen

d_B	:	Blasendurchmesser	m
σ	:	Oberflächenspannung	N/m
ρ_{FL}	:	Dichte der die Blase umgebenden Flüssigkeit	kg/m ³
ρ_G	:	Dichte des Gases der Blase	kg/m ³
g	:	Erdbeschleunigung	m/s ² .

Die Gleichung (13) gilt, falls Auftriebs- und Widerstandskraft der Blase im Gleichgewicht stehen. Die Gasdichte ρ_G ist dabei im allgemeinen gegenüber der Flüssigkeitsdichte zu vernachlässigen. Im Falle einer wäßrigen Lösung setzt eine einzelne Perlluftblase beim Zerplatzen an der Flüssigkeitsoberfläche die gleiche Aerosolmenge frei wie eine Siedeblase gleicher Größe beim Blasensieden (siehe Anhang II).

Experimentelle Daten zum Aerosolaustrag aus Flüssigkeitsoberflächen infolge Blasenzerplatzen sind in Tabelle 1 für Wasser aufgeführt.

Im Rahmen des entwickelten Modells zum Aerosolaustrag infolge Blasensieden läßt sich zu jeder Blase mit festem Durchmesser d_B das mittlere Eigenvolumen V_p der beim Blasenzerfall entstehenden Mikrotropfen ermitteln (siehe Anhang II, III).

Blasen- durch- messer d_B [mm]	Zahl der Mikro- tropfen pro Blasenplatz n	häufigster Durch- messer der Mikro- tropfen d_p [mm]
5,3	12	$22 \cdot 10^{-3}$
4,65	5	$25 \cdot 10^{-3}$
4,10	3,3	$34 \cdot 10^{-3}$
3,60	2	$45 \cdot 10^{-3}$
3,11	1,5	$58 \cdot 10^{-3}$

Tabelle 1 : Experimentelle Ergebnisse über Mikrotropfen aus /3/

Der aus Gleichung (13) zu errechnende Blasendurchmesser d_B liefert daher zusammen mit der Zuordnung

$$V_p = V_p(d_B) \quad (14)$$

die Basis zur Bestimmung des Aerosolaustrags beim Zerplatzen von Perlluftblasen an den Oberflächen wässriger Lösungen.

Für die Perlluftblasenbildungsfrequenz innerhalb der Flüssigkeit gilt die Beziehung

$$f = \frac{\dot{V}_L}{V_B} \quad (15)$$

mit den Bezeichnungen

f	:	Blasenbildungsfrequenz	h^{-1}
\dot{V}_L	:	Volumeneintrittsstrom der Perlluft in die Flüssigkeit	m^3/h
V_B	:	Volumen einer einzelnen Perlluftblase	m^3

Die Größe \dot{V}_L ist dabei durch die jeweils vorliegenden Betriebsbedingungen der betreffenden Lageranordnung gegeben (siehe auch Kap. 4).

Für die Volumenausstragsrate der Aerosole \dot{V}_{pt} folgt damit

$$\dot{V}_{pt} = \frac{V_p}{V_B} \cdot \dot{V}_L \quad (16),$$

wobei sich die Größen V_B und V_p aus dem Durchmesser d_B der aufsteigenden Gasblasen ergeben.

Für die zugehörige Aktivitätsaustragsrate \dot{A} (AE) (vergl. auch Gl. (11)) resultiert damit der Zusammenhang

$$\dot{A} \text{ (AE)} = \dot{V}_{pt} \cdot AS \cdot \mathcal{S}_{FL} \quad (17),$$

wobei AS und \mathcal{S}_{FL} die spezifische Aktivität bzw. die Dichte der Lösung bedeuten.

Analog zu den Beziehungen (8) und (11) setzt die Gleichung (17) gleiche spezifische Aktivitäten von Flüssigkeit und Aerosoltropfen voraus.

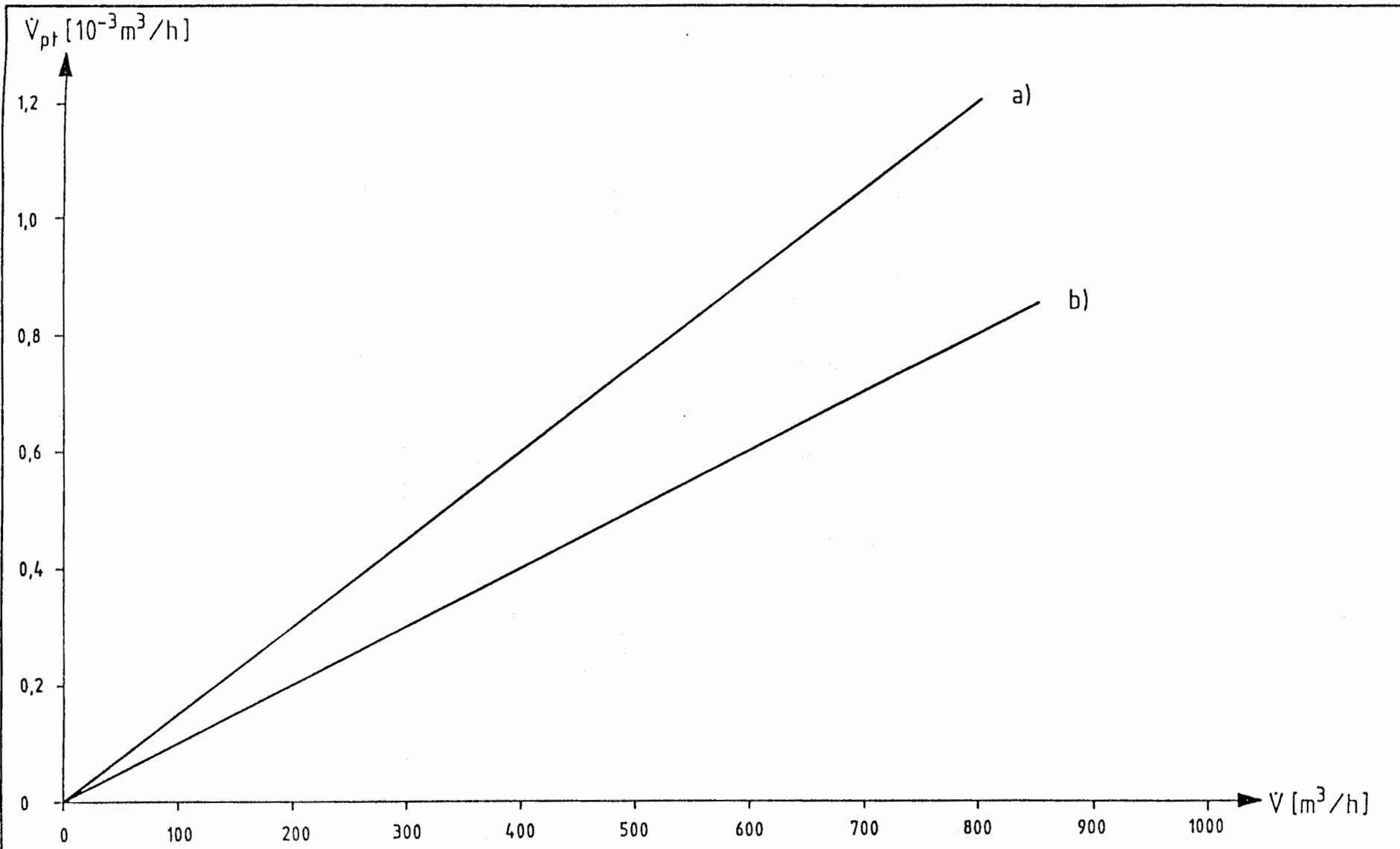
Die für die hier angestellten Betrachtungen relevante Größe \dot{V}_{pt} ist gemäß Gl. (16) als Funktion des Perlluftvolumeneintrittsstroms in Abb. 3 aufgetragen. Die beiden Kurven beziehen sich exemplarisch auf Wasser bzw. eine etwa 5 molare salpetersaure wäßrige Lösung bei 50°C. Das Verfahren zur Ermittlung der entsprechenden Werte für den Kurvenanstieg $\frac{V_p}{V_B}$ ist in Anhang II beschrieben.

Danach ist dieses Verhältnis für reines Wasser stets größer als im Fall einer wäßrigen Lösung.

Dieser Sachverhalt ist in bezug auf eine Aussage zur Genauigkeit des nach der Gleichung (16) zu berechnenden Aerosolaustragsvolumens \dot{V}_{pt} von Bedeutung:

Nach Anhang II basiert die Bestimmung des in die Beziehung (16) eingehenden Aerosoleigenvolumens V_p auf den ohne Fehler angegebenen Meßwerten der Tabelle 1 aus /3/. Für die Größe \dot{V}_{pt} können daher keine Genauigkeitsangaben gemacht werden. Im Rahmen des hier beschriebenen Modells erscheint es somit sinnvoll, zur quantitativen Erfassung des Aerosolaustrags aus wäßrigen Lösungen infolge Perlluft stets die für reines Wasser gültige Kurve a) aus Abb. 3 zu verwenden.

Es sei der Deutlichkeit halber betont, daß das hier präsentierte Modell nur den Aerosolaustrag aus den Oberflächen von mit Perlluft durchgespülten wäßrigen Lösungen behandelt. Auf Rückhaltungen beim Weitertransport der Aerosole in das betreffende Abgassystem wird nicht eingegangen. Um diesbezüglich Aussagen zu machen, ist die sich an der Flüssigkeitsoberfläche einstellende Aerosolkonzentration aus dem nach dem Modell errechneten Aerosolmassenstrom und dem jeweiligen Perlluftvolumenstrom zu ermitteln. Anschließend ist ein Vergleich mit der sich über der Flüssigkeit einstellenden maximal möglichen Aerosolkonzentration durchzuführen (siehe /10/).



Aerosolvolumenausstragsrate \dot{V}_{pt} als Funktion des Perlluftvolumeneintrittsströms \dot{V}_L
 a) Wasser
 b) 5 molare wässrige $[\text{HNO}_3]$ - Lösung

Abb. 3

- Gasbildung

Neben dem Aktivitätsaustrag durch Tritium in Form von HTO, der bereits in den vorangehenden Abschnitten zum Verdunsten und Verdampfen behandelt wurde, können aus radioaktiven wäßrigen Lösungen je nach Inventar weitere gasförmige Aktivitätsträger austreten, wie beispielsweise Krypton, Jod- oder Ruthenverbindungen.

a) Austrag von Jod-Gas

Spaltjod wird bereits beim Auflöseprozeß ausgedienter Brennelemente nahezu vollständig durch eine destillative Behandlung als Gas aus der Brennstofflösung ausgetrieben /5/. In den weiterführenden Prozeßströmen treten nur noch geringe Restjodmengen in Form nichtflüchtiger Verbindungen auf /5/, /6/. Aus diesem Grunde wird ein Jod-Gas-Quelleffekt im Rahmen des vorliegenden Berichts nicht näher betrachtet.

b) Austrag von Ruthen

Nach /12/ wird aus ruthenhaltigen salpetersauren Lösungen gasförmiges Ruthen im wesentlichen als RuO_4 ausgetragen. Beim Verdampfen einer gegebenen Flüssigkeitsmenge wird dabei von der ursprünglich enthaltenen Ru-Menge ein Bruchteil FG, der von der jeweiligen Molarität der Salpetersäure abhängt, in die Gasphase überführt. Für Molaritäten unterhalb von 5 M gilt $\text{FG} < 10^{-3}$ (siehe /12/).

Der durch gasförmiges Ruthen-Tetroxid bewirkte Aktivitätsaustrag aus ruthenhaltigen salpetersauren radioaktiven wäßrigen Lösungen wird somit beschrieben durch

$$\dot{A}_{\text{RuO}_4} = \text{FG} \cdot \dot{M}_V \cdot A_{\text{Ru}} \quad (19)$$

mit den Bezeichnungen

$$\dot{A}_{\text{RuO}_4} : \text{Aktivitätsaustrag pro Zeiteinheit durch gasförmiges RuO}_4 \quad \text{Ci/h}$$

\dot{M}_v	:	Flüssigkeitsmassenausstrag infolge Verdampfung	kg/h
A_{Ru}^S	:	Jeweilige spezifische Aktivität des Ruthens in Lösung	Ci/kg .

Eine entsprechende Gleichung gilt für den Verdunstungsvorgang. Da reines RuO_4 nach /13/ eine Flüssigkeit mit einem Siedepunkt bei $110^{\circ}C$ darstellt und damit einen etwas geringeren Dampfdruck als Wasser besitzt, wird der Zahlenwert des Bruchteils FG für den Fall des Verdunstens kleiner oder gleich dem entsprechenden Wert beim Verdampfen sein.

Für die Verdunstungsbruchteile liegen jedoch keine Meßdaten vor. Aus diesem Grunde sollten für den Prozeß des Verdunstens zur konservativen, quantitativen Erfassung des Aktivitätsaustrags infolge RuO_4 -Gas-Bildung die für das Sieden gewonnenen Daten aus /12/ verwendet werden.

Für nichtsalpetersaure ruthenhaltige wäßrige radioaktive Lösungen, aus denen Ruthen in Form gasförmiger Verbindungen ausgetragen wird, ist zur Ermittlung des entsprechenden Aktivitätsaustrages eine Gleichung analog zu der Beziehung (19) anzusetzen. Die zugehörigen Bruchteile FG sind dabei je nach Flüssigkeitsinhalt separat zu bestimmen.

c) Austrag von Krypton

Im folgenden wird vorausgesetzt, daß Krypton in einer wäßrigen Flüssigkeit vorliege. Auf die Bedingungen, unter denen Krypton in die Flüssigkeit übertreten könnte, wird nicht näher eingegangen.

Die im Gleichgewicht in der Flüssigkeit enthaltene Menge an Krypton ist dann gegeben durch das Henry'sche Gesetz:

$$H(T) = \frac{P_{Kr}}{X_{Kr}} \quad (20)$$

mit

P_{Kr} : Partialdruck der Komponente
Krypton in der Gasphase

x_{Kr} : Molfraktion der Komponente
Krypton in der Flüssigkeit

und berechnet sich zu

$$\begin{aligned} M_{Kr} &= \frac{x_{Kr}}{1-x_{Kr}} \cdot \frac{\varphi_{Kr}}{\varphi_{Fl}} \cdot M_{Fl} & (21) \\ &= \left(\frac{H(T)}{P_{Kr}} - 1 \right) \cdot \frac{\varphi_{Kr}}{\varphi_{Fl}} \cdot M_{Fl} \end{aligned}$$

φ : Massenzahl

Der Austrag von Krypton aus der Flüssigkeit wird bestimmt durch die Krypton-Konzentrationsdifferenz zwischen Flüssigkeit und umgebender Atmosphäre:

$$\dot{M}_{Kr} = \beta_{Kr} \cdot OF \cdot (C_{Fl} - C_U) \quad (22)$$

β_{Kr} : Stoffübergangskoeffizient für Krypton m/h

OF : Oberfläche der Flüssigkeit m^2

C_{Fl} : Kr-Konzentration in der Flüssigkeit kg/m^3

C_U : Kr-Konzentration in umgebender Atmosphäre kg/m^3 .

Hierbei wird vorausgesetzt, daß in der Flüssigkeit höchstens ein vernachlässigbar geringes Kr-Konzentrationsgefälle besteht.

Nach /18/ läßt sich der Stoffübergangskoeffizient in Gleichung (22) ermitteln anhand der Beziehung

$$\beta_{Kr} = \hat{K} \cdot (Gr_m \cdot Sc)^x \quad (23)$$

Gr_m : Materielle Grashoffzahl

Sc : Schmittzahl

K und x stehen hier anstelle von Konstanten, die aus Messungen ermittelt werden müssen. Die Temperaturabhängigkeit von β_{Kr} ist in den Kennzahlen Gr_m und Sc enthalten (siehe /18/).

Mit (20) bis (23) ist der mögliche Massenausstrag von Krypton aus wäßrigen Flüssigkeiten prinzipiell erfaßt.

In den weitaus meisten Fällen ist im Rahmen von Sicherheitsanalysen der integrale Kryptonaustrag, z.B. nach Aufheizvorgängen infolge Kühlungsausfall etc. Teilziel der Untersuchungen. Es genügt dann Gleichung (21) als Berechnungsgrundlage.

Es sei noch darauf hingewiesen, daß aufgrund des geringen Dosisfaktors der radioaktiven Kryptonisotope $Kr-85$ und $Kr-85m$ und wegen der geringen Löslichkeit von Krypton in wäßrigen Flüssigkeiten der Beitrag durch Krypton an radiologischen Belastungen verglichen mit den Beiträgen der übrigen Nuklide im allgemeinen zu vernachlässigen sein wird.

Im übrigen sind die obigen Beziehungen allgemein auf desorbierende Gase anwendbar. Die einzelnen Gase werden dabei durch verschiedene Zahlenwerte für die oben aufgeführten Koeffizienten und Kenndaten erfaßt.

3. Entwicklung der Quellterme

Das vorliegende Kapitel beinhaltet die mathematische Modellierung der Quelleffekte, welche den Massen- und Aktivitätsaustrag an den Oberflächen radioaktiver Flüssigkeiten auf der Basis der Ausführungen der vorangehenden Kapitel beschreiben.

Hierzu werden für die einzelnen Austragseffekte und deren Kopplung Modelle in Form von Systemen algebraischer Gleichungen und gewöhnlicher Differentialgleichungen erstellt. Die so erhaltenen Gleichungssysteme werden in Kapitel 4 auf ein Beispiel angewandt und numerisch gelöst.

Unter Verwendung der Ergebnisse von Kap. 2.2 werden die Quellterme, welche die Aktivitätsfreisetzung an der Oberfläche einer wäßrigen radioaktiven Lösung beschreiben, für die folgenden quasistationären und instationären Prozesse modelliert:

- a) Aufheizen der Flüssigkeit von einer Temperatur T_1 auf eine Temperatur T_2 infolge Teilausfall des Kühlsystems des betreffenden Lagerbehälters.
- b) Aufheizen der Flüssigkeit von der Temperatur T_2 auf Siedetemperatur infolge Totalausfall des Kühlsystems.
- c) Sieden der Flüssigkeit.
- d) Verdunsten der Flüssigkeit bei konstanter Temperatur.
- e) Durchspülen der Flüssigkeit bei vorgegebener Temperatur mittels Perlluft.

Es wird hierzu eine radioaktive Flüssigkeit zugrundegelegt, deren Quellwärmeleistung wesentlich größer als die durch Konvektion und Strahlung pro Zeiteinheit von dem zugehörigen Lagerbehälter nach außen abgeführte Wärme ist (vergl. Anhang IV).

Prozeß a) : Aufheizung der Flüssigkeit von einer Temperatur T_1 auf eine Temperatur T_2 infolge Teilausfall des Kühlsystems.

Mit den Bezeichnungen

TA : Flüssigkeitsanfangstemperatur K

K	:	Produkt aus Wärmeübergangskoeffizient und Wärmeaustauschfläche eines einzelnen Behälterkühlstranges (s. Anhang IV)	W/K
CF	:	Spezifische Wärme der Flüssigkeit	J/kg K
MA	:	Anfangsmasse der Flüssigkeit	kg
L	:	Quellwärmeleistung der Flüssigkeit	W
TM	:	Mittlere Kühlwassertemperatur im Kühlstrang (s. Anhang IV)	K

und den daraus gebildeten Abkürzungen

$$AK = \frac{K}{CF \cdot MA} \quad (24) \text{ bzw.}$$

$$CK = \frac{L + K \cdot TM}{AK \cdot CF \cdot MA} \quad (25)$$

ergibt sich für die Flüssigkeitstemperatur in K zur Zeit t

$$T(t) = TA \cdot \exp(-AK \cdot t) + CK \cdot [1 - \exp(-AK \cdot t)] \quad (26).$$

Die Gleichungen (24) bis (26), die in Anhang IV hergeleitet werden, beschreiben die zeitliche Aufheizung der Flüssigkeit infolge teilweisen Kühlstrangausfalls.

Den Sättigungsdampfdruck der Flüssigkeit zur Zeit t erhält man nach /15/ aus der Beziehung

$$PS(t) = PST \cdot \exp\left[-\frac{\Delta H}{R} \cdot \left(\frac{1}{T(t)} - \frac{1}{TST}\right)\right] \quad (27),$$

mit

TST	:	Beliebige Vorgabetemperatur	K
PST	:	Sättigungsdampfdruck der Flüssigkeit bei dieser Temperatur	atm

- ΔH : Verdampfungsenthalpie der Flüssigkeit J/kg
R : Ideale Gaskonstante J/Mol K.

Bezeichnet man mit PG den Gesamtdruck über der Flüssigkeitsoberfläche, so folgt nach /8/ für den Sättigungsfeuchtigkeitsgehalt der Luft an der Flüssigkeitsoberfläche zur Zeit t in [kg Feuchte / kg Trockenluft]

$$X_S(t) = \frac{0,622 \cdot P_S(t)}{P_G - P_S(t)} \quad (28).$$

Hieraus ergibt sich der Feuchtigkeitsgehalt der Luft über der Flüssigkeitsoberfläche zur Zeit t, ebenfalls in [kg Feuchte / kg Trockenluft], zu

$$X(t) = [AC \cdot TC(t) + BC] \cdot X_S(t) \quad (29).$$

TC(t) bezeichnet die Temperatur zur Zeit t in °C. Die Beziehungen (27) bis (29) sowie die in (29) auftretenden Konstanten AC und BC werden in Anhang V behandelt.

Sie gehen in die Bestimmung der zeitlichen Massenabnahme der Flüssigkeit infolge Verdunstung ein gemäß der Gleichung

$$\dot{M}(t) = \beta \cdot OF \cdot [X_S(t) - X(t)] \quad (30)$$

mit $M(t=0) = MA$ (31)

und den Bezeichnungen

- β : Stoffübergangskoeffizient kg/m² h
OF : Flüssigkeitsoberfläche m²
M(t): Flüssigkeitsmasse zur Zeit t kg
MA : Anfangsmasse kg

Für den Aerosolaustragsanteil $F(t)$ an der Flüssigkeitsoberfläche infolge Verdunstung zur Zeit t gilt schließlich nach Kap. 2.2 und Anhang I

$$F(t) = a \cdot \exp \left[\frac{b}{T(t)} \right] \quad (32).$$

Die Aktivitätsänderung der Flüssigkeit wird durch die nachfolgenden Gleichungen für die zeitliche Aktivitätsabnahme infolge Aerosolaustrag $\dot{A}(\text{AE})(t)$ bzw. infolge HTO-Dampfabgabe $\dot{A}(\text{H 3})(t)$ an der Flüssigkeitsoberfläche beschrieben. Es gilt

$$\dot{A}(\text{AE})(t) = F(t) \cdot \dot{M}(t) \cdot \frac{A(t)}{M(t)} \quad (33) \text{ bzw.}$$

$$\dot{A}(\text{H 3})(t) = \dot{M}(t) \cdot AS(\text{H 3})(t) \quad (34),$$

wobei

$A(t)$: Gesamtaktivität der Flüssigkeit zur Zeit t Ci

$AS(\text{H 3})$: Spezifische Tritiumaktivität in der Flüssigkeit Ci/kg.

Bezeichnet man die Anfangsaktivität der Flüssigkeit mit A_J , so erhält man für die resultierende zeitliche Abnahme der Gesamtaktivität der Flüssigkeit

$$\dot{A}(t) = \dot{A}(\text{AE})(t) + \dot{A}(\text{H 3})(t) \quad (35)$$

mit

$$A(t=0) = A_J \quad (36).$$

Die Gleichungen (30) bis (36) folgen direkt aus den in Kapitel 2 angestellten Betrachtungen. Sie werden hier zur Vervollständigung der Beschreibung angeführt.

Prozeß b) : Aufheizung der Flüssigkeit auf Siedetemperatur infolge Totalausfall des Kühlsystems

In diesem Fall wird angenommen, daß alle vorhandenen Kühlstränge ausfallen und die Flüssigkeit sich aufgrund ihrer Wärmequelleistung bis zum Sieden aufheizt. Es gelten auch hier die Beziehungen (27) bis (36). Die zeitliche Temperaturentwicklung in der Flüssigkeit wird -wie ebenfalls in Anhang IV erläutert- in diesem Fall durch die Gleichung

$$T(t) = T_A + AL \cdot t \quad (37)$$

mit

$$AL = \frac{L}{CF \cdot MA} \quad (38)$$

beschrieben.

Prozeß c) : Sieden der Flüssigkeit

Nach den Ausführungen von Kapitel 2 gilt für die Massenabnahme infolge Verdampfung die Beziehung

$$\dot{M}_V = \frac{L}{QV} \quad (39),$$

wobei QV die Verdampfungsenthalpie in J/kg bedeutet. Die Zeitabhängigkeit der Masse wird daher durch

$$M(t) = MA - \dot{M}_V \cdot t \quad (40)$$

beschrieben. Weiterhin sind auch hier neben Gleichung (31) die Beziehungen (33) - (36) für den Aktivitätsaustrag zu verwenden. Der Zahlenwert des Aerosol-Austragsanteils (Aerosolmassenstrom / Dampfmassenstrom) in (33) muß im vorliegenden Fall jedoch gemäß Kap. 2 durch

$$F \approx 10^{-3} \quad (41)$$

ersetzt werden.

Es sei auch an dieser Stelle noch einmal betont, daß hiermit nur der Aerosolaustrag an der Oberfläche einer siedende wäßrigen Lösung erfaßt wird. So erfolgt nach den Ausführungen von Kap. 2 mit dem Weitertransport der Aerosolpartikel von der Flüssigkeitsoberfläche bis zum Eintritt in das betreffende Abgassystem eine Reduktion der Aerosolkonzentration von etwa 1000 mg/m^3 auf ca. 10 mg/m^3 oder weniger, solange die Geschwindigkeiten des Aerosol-Gasgemisches im Bereich einiger cm/s liegen.

Prozeß d) : Verdunsten der Flüssigkeit bei konstanter Temperatur

Die Massenabnahme infolge Verdunstung ist in diesem Falle durch die Temperatur und die dem System aufgeprägten Randbedingungen festgelegt. Der Aerosolaustragsbruchteil F ist gemäß der Gleichung (32) zu berechnen.

Im übrigen gelten die gleichen Beziehungen, die den Prozeß c) beschreiben.

Prozeß e) : Durchspülen der Flüssigkeit bei vorgegebener Temperatur mittels Perlluft

Hier wird angenommen, daß der betreffende Flüssigkeitstank am Boden mit einer Lochplatte versehen ist, über die Druckluft eingeblasen wird. Die dabei entstehenden Perlluftblasen steigen an die Flüssigkeitsoberfläche auf und setzen dort durch Zerplatzen Aerosole frei. Die Beschreibung dieses Prozesses erfolgt durch ein zu den bisher betrachteten Fällen analoges Gleichungssystem.

Mit den Bezeichnungen

M	: Zeitliche Änderung der Flüssigkeitstgesamtmasse	kg/h
M _{DL}	: Perlluftmassenstrom	kg/h
ρ _{FL}	: Flüssigkeitsdichte	kg/m ³
OF	: Flüssigkeitsoberfläche	m ²
HA	: Anfangshöhe der Flüssigkeit	m
PU	: Luftaußendruck	N/m ²
g	: Erdbeschleunigung	m/s ²
T	: Flüssigkeitstemperatur	K
R	: Ideale Gaskonstante	J/Mol K
PS	: Sättigungsdampfdruck von Wasser	N/m ²
φ _L	: Molmasse von Luft	kg/Mol

erhält man, wie unmittelbar ersichtlich ist, für die zeitliche Änderung der Flüssigkeitshöhe H

$$\dot{H} = \frac{\dot{M}}{\rho_{FL} \cdot OF} \quad (42)$$

mit

$$H(t=0) = HA \quad (43),$$

den Flüssigkeitsdruck am Tankboden

$$PB = PU + \rho_{FL} \cdot g \cdot H \quad (44),$$

den Luftdruck innerhalb einer Perlluftblase

$$P_L = PB - PS \quad (45)$$

und den Perlluftvolumenstrom

$$\dot{V}_{DL} = \frac{\dot{M}_{DL} \cdot R \cdot T}{P_L \cdot \phi_L} \quad (46).$$

Mit Hilfe der Betrachtungen von Kapitel 2 und den Abkürzungen

V_P : Aerosoleigenvolumen pro Blasenzerfall m^3
(s. Kapitel 2)

V_B : Volumen einer Perlluftblase m^3
(s. Kapitel 2)

ergibt sich mit Gl. (40) für die Aerosolvolumenausstragsrate

$$\dot{V}_{pt} = \dot{V}_{DL} \cdot \frac{V_P}{V_B} \quad (47).$$

Die nachfolgend aufgeführten Gleichungen resultieren aus Analogiebetrachtungen zu den bereits beschriebenen Modellen der Prozesse a), b) und c). Es gilt

$$\dot{M}_{pt} = \dot{V}_{pt} \cdot \rho_{FL} \quad (48)$$

(Aerosolmassenausstragsrate),

$$\dot{M} = \dot{M}_V + \dot{M}_{pt} \quad (49)$$

mit

$$M(t=0) = MA \quad (50),$$

(\dot{M}_V : Änderung der Flüssigkeitsmasse infolge Verdunstung)

$$\dot{A} (AE)_{pt} = \dot{M}_{pt} \cdot \frac{A}{M} \quad (51)$$

(Aktivitätsausstragsrate durch Aerosolentstehung infolge Perlluftblasenzerfall),

$$\dot{A} (AE)_V = F(T) \cdot \dot{M}_V \cdot \frac{A}{M} \quad (52)$$

(Aktivitätsausstragsrate durch Aerosolaustrag infolge Verdunstung, wobei $F(T)$ den verdunstungsbedingten Aerosolaustragsanteil angibt),

$$\dot{A}(\text{H } 3) = \dot{M}_V \cdot AS(\text{H } 3) \quad (53)$$

(Aktivitätsaustragsrate durch HTO-Dampfabgabe mit
der spezifischen Tritium-Aktivität AS (H 3))

und schließlich

$$\dot{A} = \dot{A}(\text{AE})_{\text{pt}} + \dot{A}(\text{AE})_V + \dot{A}(\text{H } 3) \quad (54)$$

mit

$$A(t=0) = A_J \quad (55)$$

(Zeitliche Abnahme der Gesamtaktivität A der
Flüssigkeit mit der Anfangsaktivität A_J).

Bei einer vorgegebenen Flüssigkeitstemperatur kann der Aerosolaustragsanteil F (T) nach Anhang I und den Ausführungen von Kapitel 2.2 bestimmt werden.

4. Anwendungsbeispiel

Die Anwendung der in den voranstehenden Kapiteln gezeigten Vorgehensweise wird beispielhaft anhand eines fiktiven Tanklagers zur Aufnahme einer wäßrigen salpetersauren HAW-Lösung demonstriert.

4.1 Beschreibung des Beispielsystems

Das Tanklager zur Aufnahme der salpetersauren HAW-Lösung besteht aus einem Tank mit einem Füllvolumen von 1000 m^3 . Er befindet sich innerhalb eines Gebäudes in einer separaten Zelle. Eine schematische Darstellung der Anordnung des Tankes in der Lagerzelle ist in Abbildung 4 gezeigt. Die Daten zur Geometrie des Tankes sind in Tabelle 2 wiedergegeben.

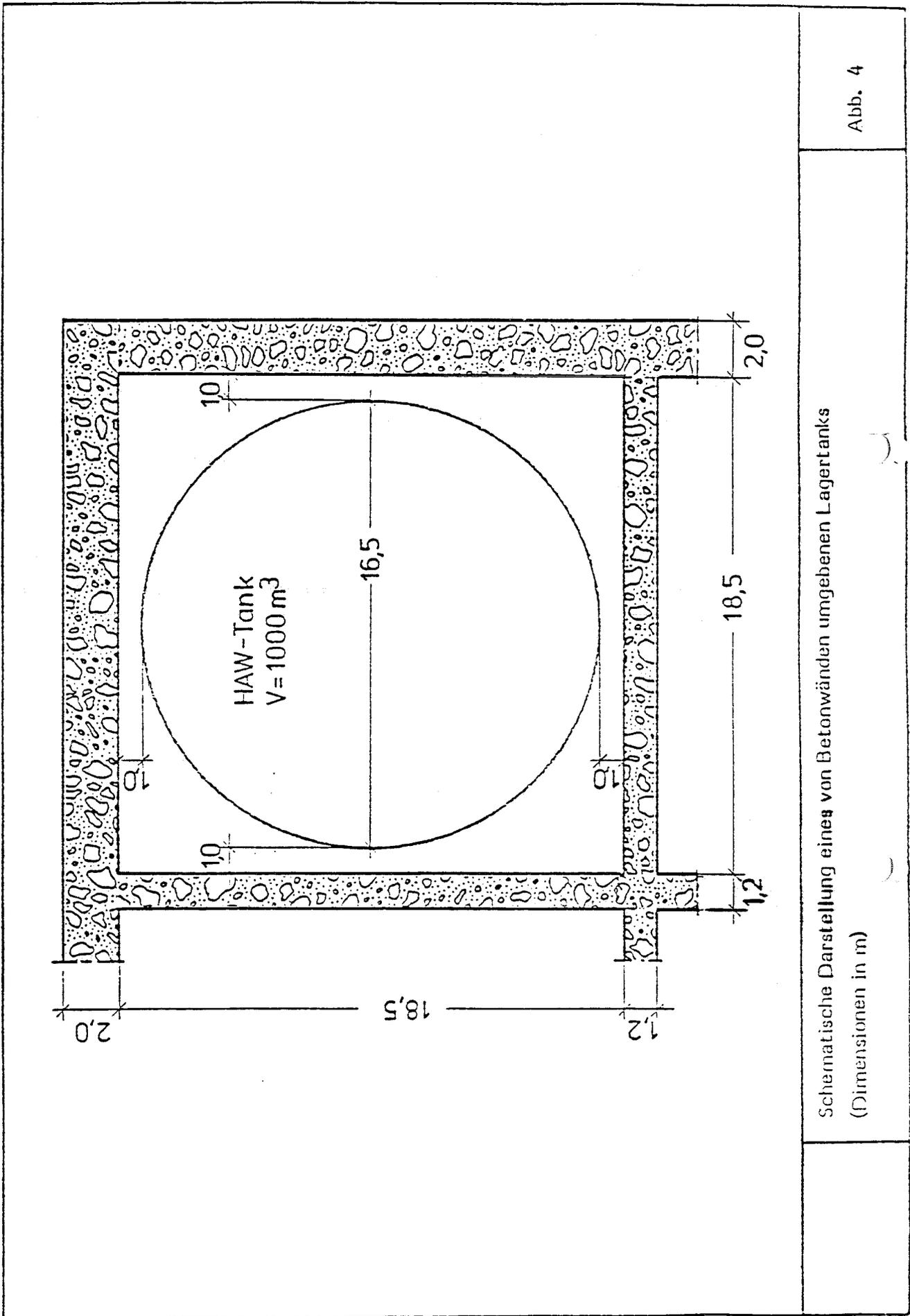
Zur Abfuhr der Zerfallswärme der HAW-Lösung ist der Tank mit einem Kühlsystem ausgestattet, welches aus einem Primär- und einem Sekundärkühlkreislauf besteht (siehe Abbildung 5, Abbildung 6).

- Primärkreislauf

Das Primärkühlsystem des Tankes ist in drei unvermaschten Strängen angeordnet, mit denen der Inhalt auf einer vorgegebenen Lagertemperatur gehalten wird.

Flüssigkeitshöhe	4,68	m
Tankhöhe	6,0	m
Tankdurchmesser	16,5	m
Flüssigkeitsvolumen	10^3	m^3

Tabelle 2 : Daten zur Geometrie des Lagertanks

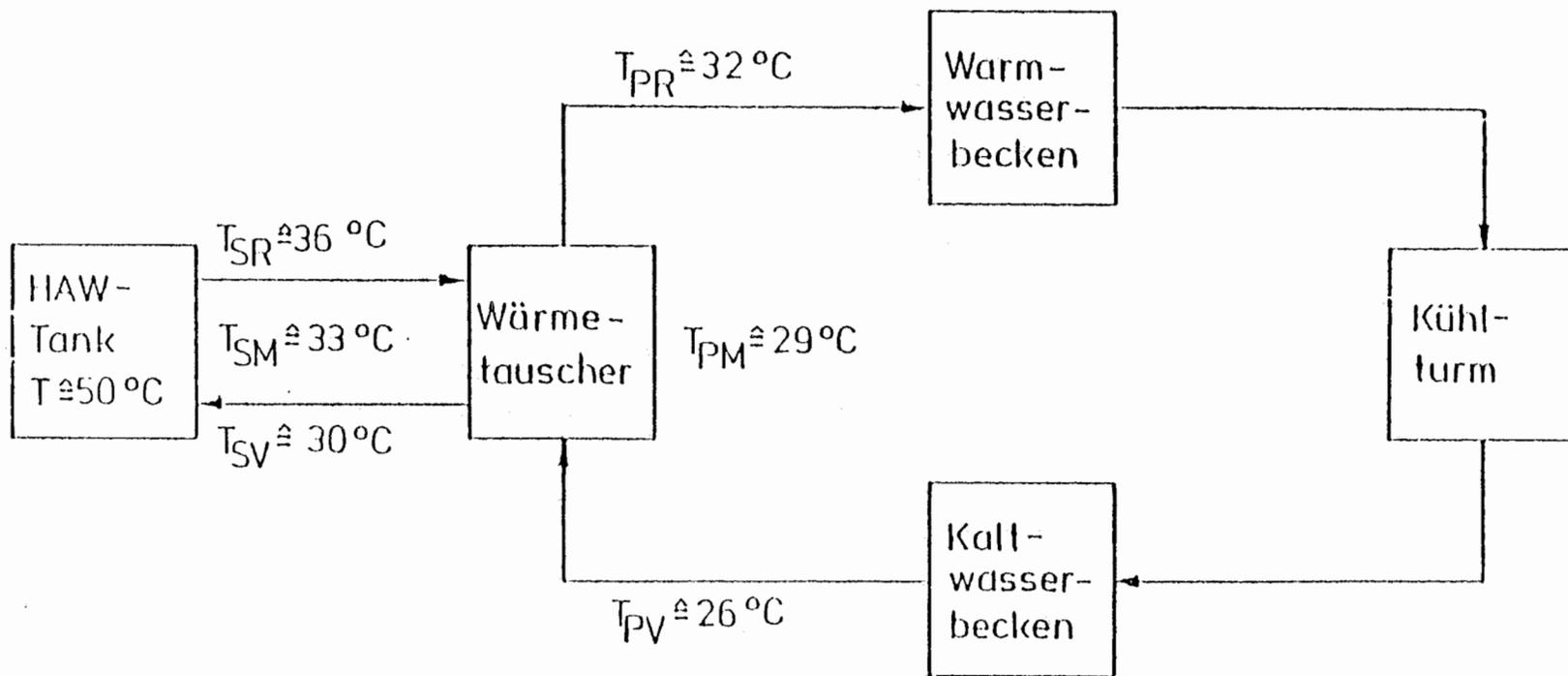


Schematische Darstellung eines von Betonwänden umgebenen Lagertanks
(Dimensionen in m)

Abb. 4

Sekundär-Kühlkreis

Primär-Kühlkreis



M: Mittlere

P: Primär

R: Rücklauf

S: Sekundär

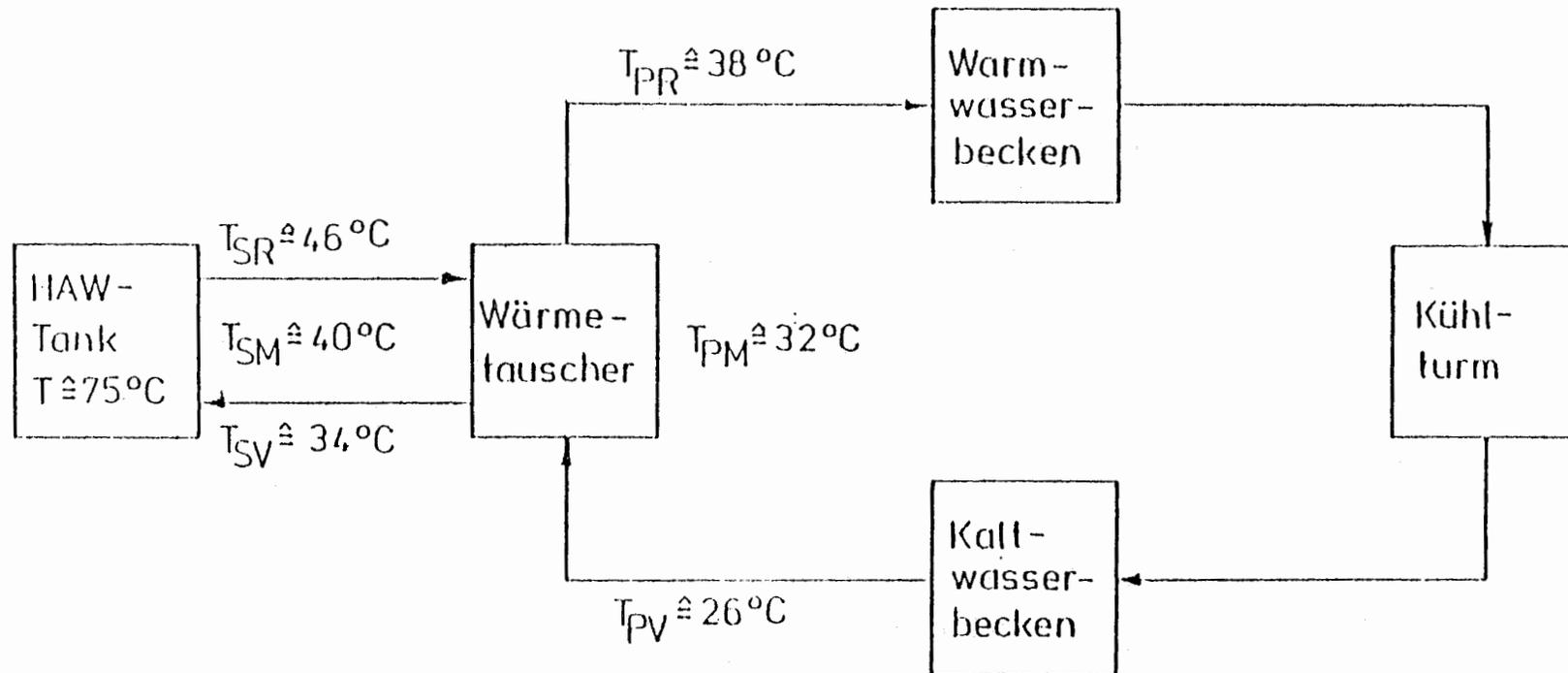
V: Vorlauf

Schematische Darstellung der Tanklagerkühlung mit Angabe der relevanten Kühlwassertemperaturen für den bestimmungsgemäßen Betrieb ($T \hat{=} 50^{\circ}\text{C}$)

Abb. 5

Sekundär-Kühlkreis

Primär-Kühlkreis



M: Mittlere
P: Primär S: Sekundär
R: Rücklauf V: Vorlauf

Schematische Darstellung der Tanklagerkühlung mit Angabe der relevanten Kühlwassertemperaturen für den gestörten Betrieb ($T \hat{=} 75^{\circ}\text{C}$)

Abb. 6

Sekundärkreislauf

Der Sekundärkreislauf besteht aus drei unvermaschten Strängen, von denen jeder je einem Strang des Primärkreislaufs zugeordnet ist. Die Wärmeabfuhr vom Primär- zum Sekundärkreislauf erfolgt mittels eines Wärmetauschers.

Im bestimmungsgemäßen Betrieb wird die anfallende Zerfallswärme über zwei Stränge des Kühlsystems abgeführt, wobei davon ausgegangen wird, daß sich die Temperatur des flüssigen HAW auf 50°C einstellt. Im gestörten Betrieb, der dadurch gekennzeichnet ist, daß nur ein Kühlstrang zur Verfügung steht, wird die Lagerguttemperatur auf 75°C gehalten. Die für die folgenden Betrachtungen erforderlichen Daten für die einzelnen Betriebszustände sind in Tabelle 3 zusammengestellt.

Benennung	Gestörter Betrieb	Bestimmungsgemäßer Betrieb (ohne Denitrierung)	Bestimmungsgemäßer Betrieb (mit Denitrierung)
Spülluft	17 Nm ³ /h	17 Nm ³ /h	-
Pulsatorluft	153 Nm ³ /h	153 Nm ³ /h	-
Denitrierluft	-	-	253 Nm ³ /h
HAW-Temperatur	75°C	50°C	50°C
Wasserdampf-Strom	83 kg/h	25 kg/h	58 kg/h

Tabelle 3: Zusammenstellung der Betriebszustände des fiktiven HAW-Tanklagers

Zur Bestimmung des Aktivitätsaustrages aus der Oberfläche der salpetersauren HAW-Lösung wird für das fiktive Tanklager das Aktivitätsinventar des Tanklagers für flüssige, hochaktive Abfälle des Entsorgungszentrums NEZ zugrundegelegt. Die entsprechenden spezifischen Inventare sind nach /23/ in Tabelle 4 zusammengefaßt.

Apparat Inhalt m ³	Medium		Spaltstoffgehalt		gesamt Bq/m ³	spez. β Cs-137 Bq/m ³	-Aktivität Cs-134 Bq/m ³	Sr-90 Bq/m ³	spez. Aktivität	
	Bezeich- nung	Wärme- leistung W/m ³	U kg/m ³	Pu kg/m ³					H-3 Bq/m ³	J-129 Bq/m ³
1000	HAW	6000	4,5	0,085	$4,6 \times 10^{16}$	$9,25 \times 10^{15}$	$9,25 \times 10^{15}$	$6,66 \times 10^{15}$	$6,66 \times 10^{12}$	$3,7 \times 10^6$

Tabelle 4 Inventar des fiktiven Tanklagers

4.2 Bestimmung des instationären Massen- und Aktivitätsaustrages

Im vorliegenden Abschnitt werden für den Inhalt des fiktiven Tanklagers die dynamischen Massen- und Aktivitätsausträge während der störfallbedingten Aufheizung der Tankflüssigkeit ermittelt.

Eine derartige Aufheizung resultiert nach Kapitel 4.1 aufgrund teilweisen oder vollständigen Ausfalls der Kühlstränge:

Bei Ausfall eines Kühlstranges erfolgt ein Temperaturanstieg von 50°C auf 75°C .

Der Totalausfall beider Kühlstränge hat zur Folge, daß es zum Sieden des Tankinhalts kommt, da die durch Konvektion und Strahlung nach außen abgeführte Wärme im Vergleich zur Nachzerfallswärme zu vernachlässigen ist (siehe Anhang IV).

Die diese Aufheizprozesse beschreibenden Gleichungen sind in Kapitel 3.2 zusammengestellt. Sie wurden für das Tanklager mit den Daten der Tabellen 5 und 6 mit Hilfe des Simulationsprogrammsystems ACSL /14/ numerisch gelöst. Als Ergebnis dieser Rechnungen sind der zeitliche Verlauf der Temperaturveränderung sowie der Massen- und Aktivitätsfreisetzung in den Abbildungen 7 bis 10 bzw. 11 bis 14 wiedergegeben.

Der lineare Temperaturverlauf in Abbildung 11 ist darauf zurückzuführen, daß die Aufheizung der Tankflüssigkeit in diesem Falle nach den obigen Ausführungen im wesentlichen durch die konstante Quellwärmeleistung erfolgt (siehe auch Anhang IV).

4.3 Bestimmung des quasistationären Massen- und Aktivitätsaustrages

Analog zu den vorangehenden Betrachtungen lassen sich für den Inhalt des fiktiven Tanklagers die quasistationären Massen- und Aktivitätsausträge infolge der Quell-effekte

- Sieden
- Verdunsten bei konstanter Temperatur
- Durchspülen der Flüssigkeit bei vorgegebener Temperatur mit Perlluft

berechnen.

Die Berechnung erfolgt dabei durch numerische Integration der die einzelnen Quell-
effekte beschreibenden zugehörigen Gleichungssysteme (siehe Kapitel 3.2).

Für den Fall des Siedens wurden die entsprechenden Gleichungen beispielhaft auf das
Tanklager angewandt und mit den Daten der Tabelle 7 gelöst. Als Ergebnis ist der
zeitliche Verlauf der Massen- und Aktivitätsfreisetzung durch Aerosol- bzw. HTO-
Dampfaustrag in den Abbildungen 15 bis 17 graphisch dargestellt.

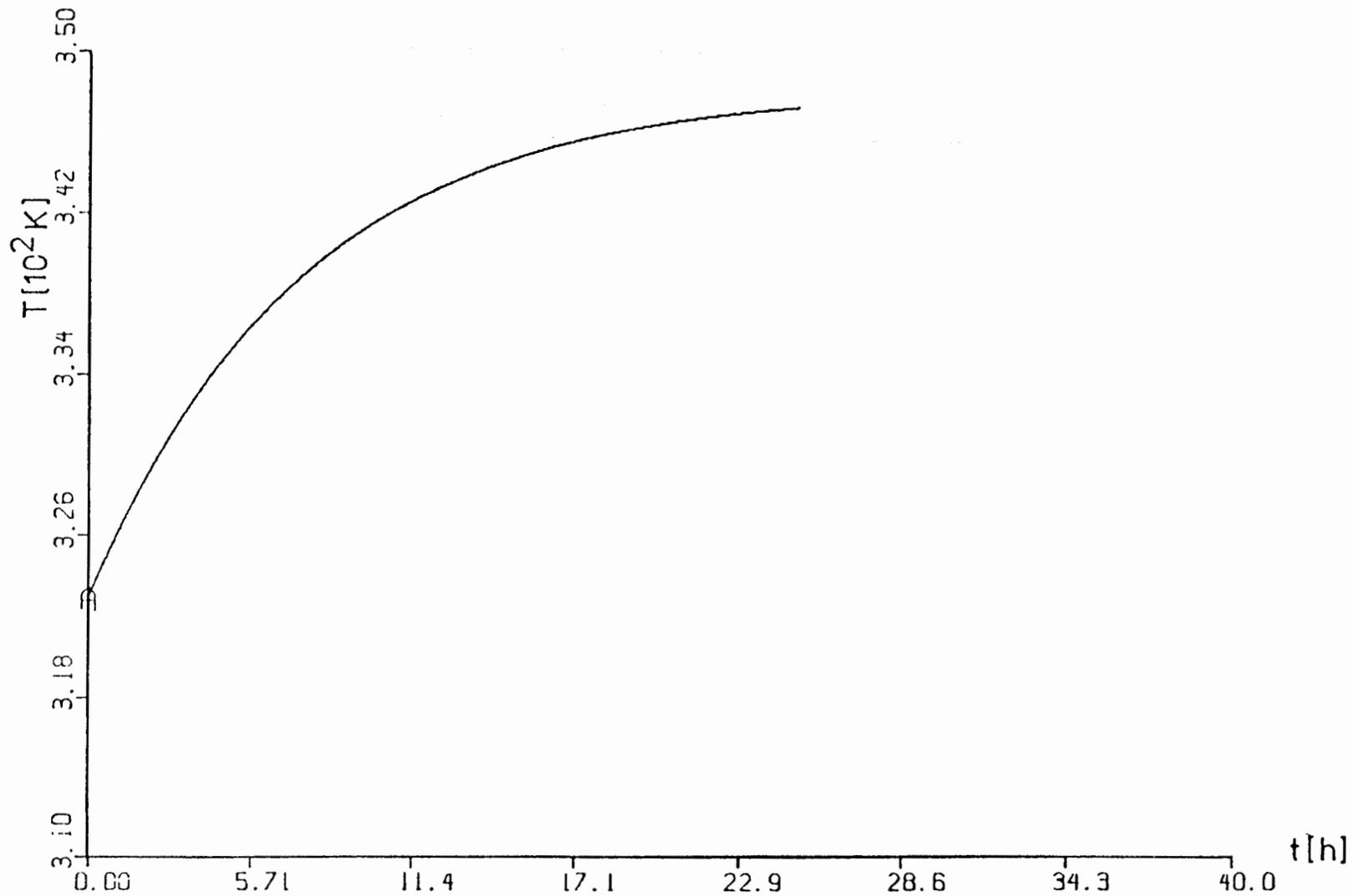
Da der Massenverlust der Flüssigkeit pro Zeiteinheit während des Siedens nach
Gleichung 10 (siehe Kapitel 2.2) konstant ist, ist der lineare Verlauf der Kurven in den
Abbildungen 15 und 17 evident. Lediglich der durch Aerosole induzierte Aktivitäts-
austrag erfolgt wegen der sich ändernden spezifischen Aktivität nach Gleichung 33
(siehe Kapitel 3) zeitlich nicht linear.

TA	323	K	(nach Tabelle 3)
K	$6,17 \cdot 10^8$	J/h K	(nach Anhang IV)
CF	$4,2 \cdot 10^3$	J/kg K	(nach /9/)
MA	$1,2 \cdot 10^6$	kg	(nach Tabelle 2 und /19/)
L	$2,16 \cdot 10^{10}$	J/h	(nach Tabelle 4)
TM	313	K	(nach Anhang IV)
PST	0,012	atm	(nach /15/)
ΔH	$43,5 \cdot 10^3$	J/Mol	(nach /9/)
R	8,3	J/Mol K	(nach /15/)
TST	283	K	(nach /15/)
PG	1,0	atm	(Festlegung)
AC	$5,6 \cdot 10^{-4}$	($^{\circ}\text{C}$) ⁻¹	(nach Anhang V)
BC	0,919		(nach Anhang V)
β	25,0	kg/m ² h	(nach /8/) und Kapitel 2.2)
OF	213,85	m ²	(nach Tabelle 2)
a	$7,0 \cdot 10^5$		(nach Anhang I)
b	$-8,9 \cdot 10^3$	K	(nach Anhang I)
AS (H-3)	0,23	Ci/kg	(nach Tabelle 4)
AJ	$1,24 \cdot 10^9$	Ci	(nach Tabelle 4)

Tabelle 5: Daten zur Ermittlung der zeitlichen Temperaturänderung sowie des Massen- und Aktivitätsaustrags aus dem Tanklager bei Ausfall eines Kühlstrangs

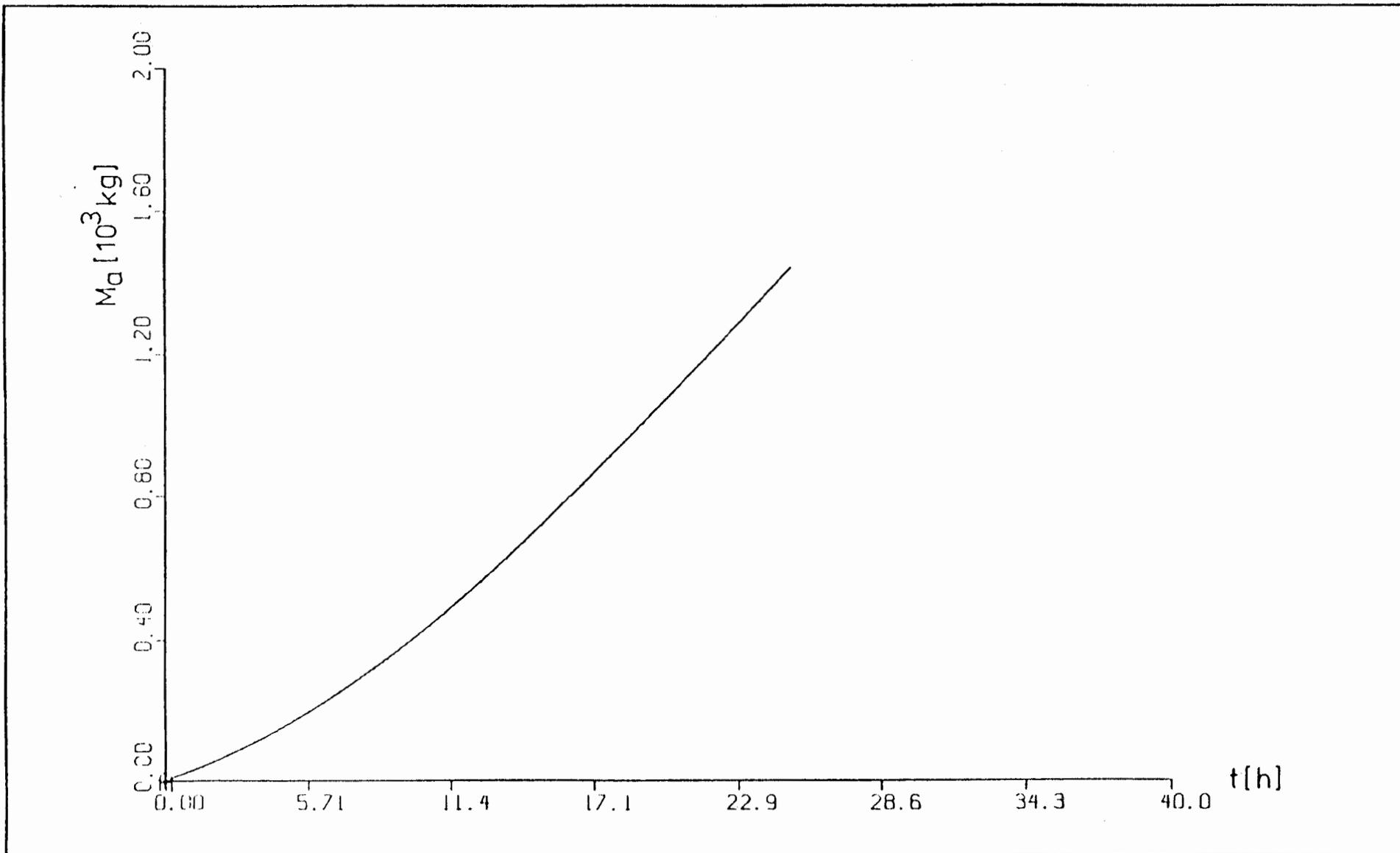
TA	348	K	(nach Tabelle 3)
CF	$4,2 \cdot 10^3$	J/kg K	(nach /9/)
MA	$1,2 \cdot 10^6$	kg	(nach Tabelle 2 und /19/)
L	$2,16 \cdot 10^{10}$	J/h	(nach Tabelle 4)
PST	0,012	atm	(nach /15/)
ΔH	$43,5 \cdot 10^3$	J/Mol	(nach /9/)
R	8,3	J/Mol K	(nach /15/)
TST	283	K	(nach /15/)
PG	1,0	atm	(Festlegung)
AC	$1,25 \cdot 10^{-3}$	($^{\circ}\text{C}$) ⁻¹	(nach Anhang V)
BC	0,867		(nach Anhang V)
β	25,0	kg/m ² h	(nach /8/) und Kapitel 2.2)
OF	213,85	m ²	(nach Tabelle 2)
a	$7,0 \cdot 10^3$		(nach Anhang I)
b	$-8,9 \cdot 10^3$	K	(nach Anhang I)
AS (H-3)	0,23	Ci/kg	(nach Tabelle 4)
AJ	$1,24 \cdot 10^9$	Ci	(nach Tabelle 4)

Tabelle 6: Daten zur Ermittlung der zeitlichen Temperaturänderung sowie des Massen- und Aktivitätsaustrags aus dem Tanklager bei Ausfall beider Kühlstränge



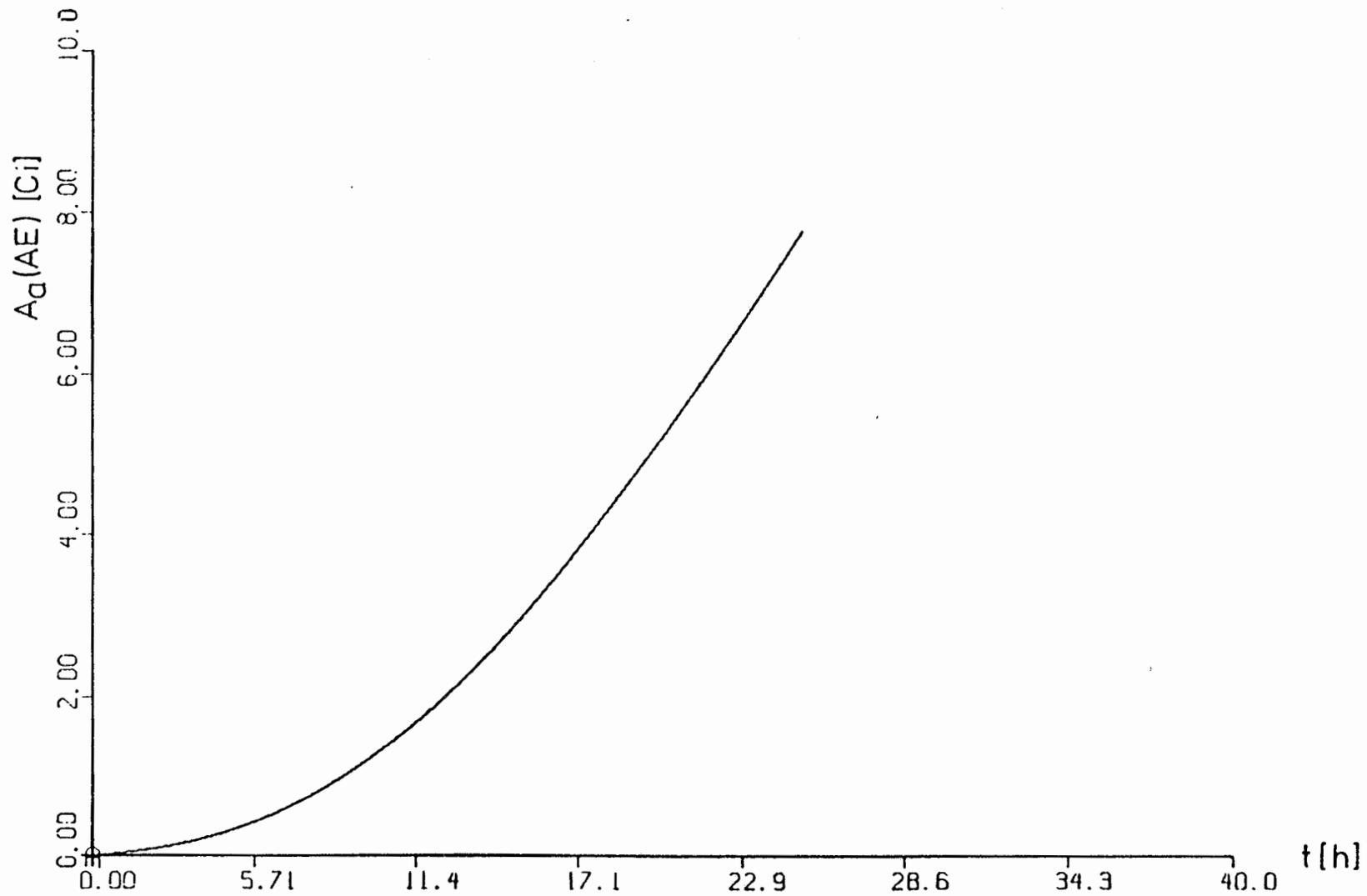
Zeitlicher Temperaturverlauf des HAW während des Aufheizens von 50°C (323 K) auf 75°C (348 K) infolge Teilausfall des Kühlsystems

Abb. 7



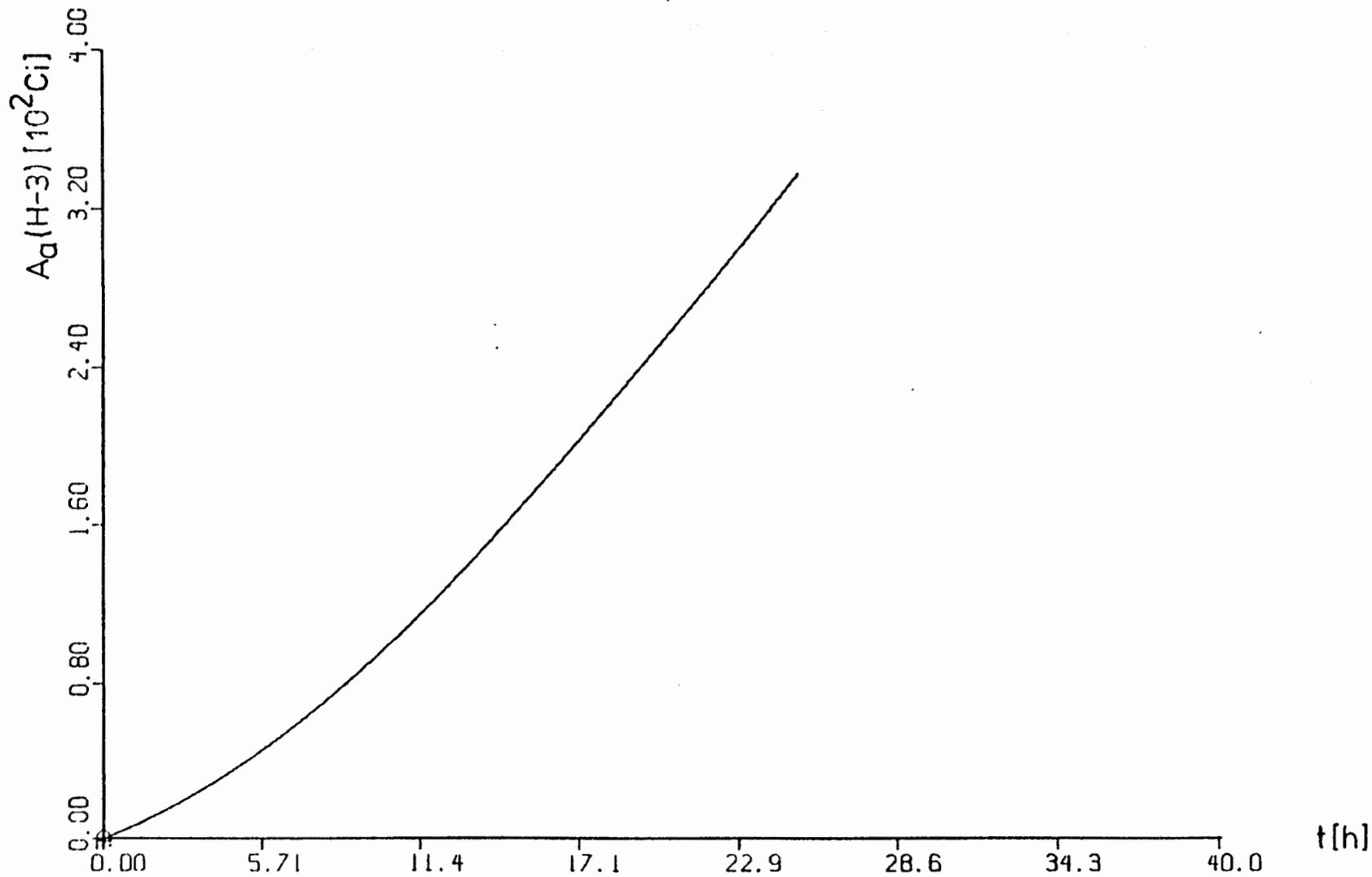
Zeitlicher Verlauf des Massenaustrages aus dem HAW während des Aufheizens von 50°C (323 K) auf 75°C (348 K) infolge Teilausfall des Kühlsystems

Abb. 8



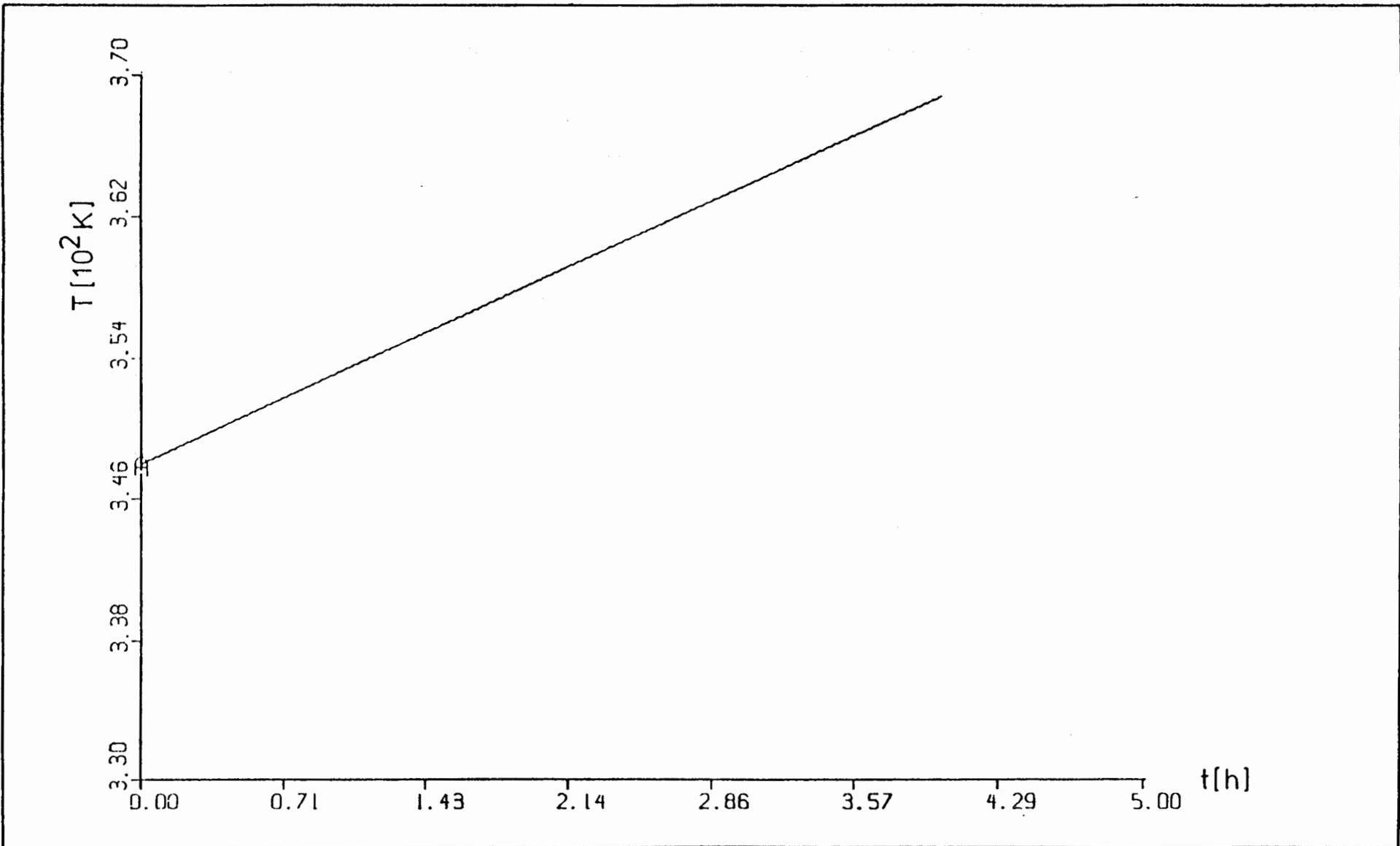
Zeitlicher Verlauf der durch Aerosole aus dem HAW ausgetragenen Aktivität während des Aufheizens von 50°C (323 K) auf 75°C (348 K) infolge Teilausfall des Kühlsystems

Abb. 9



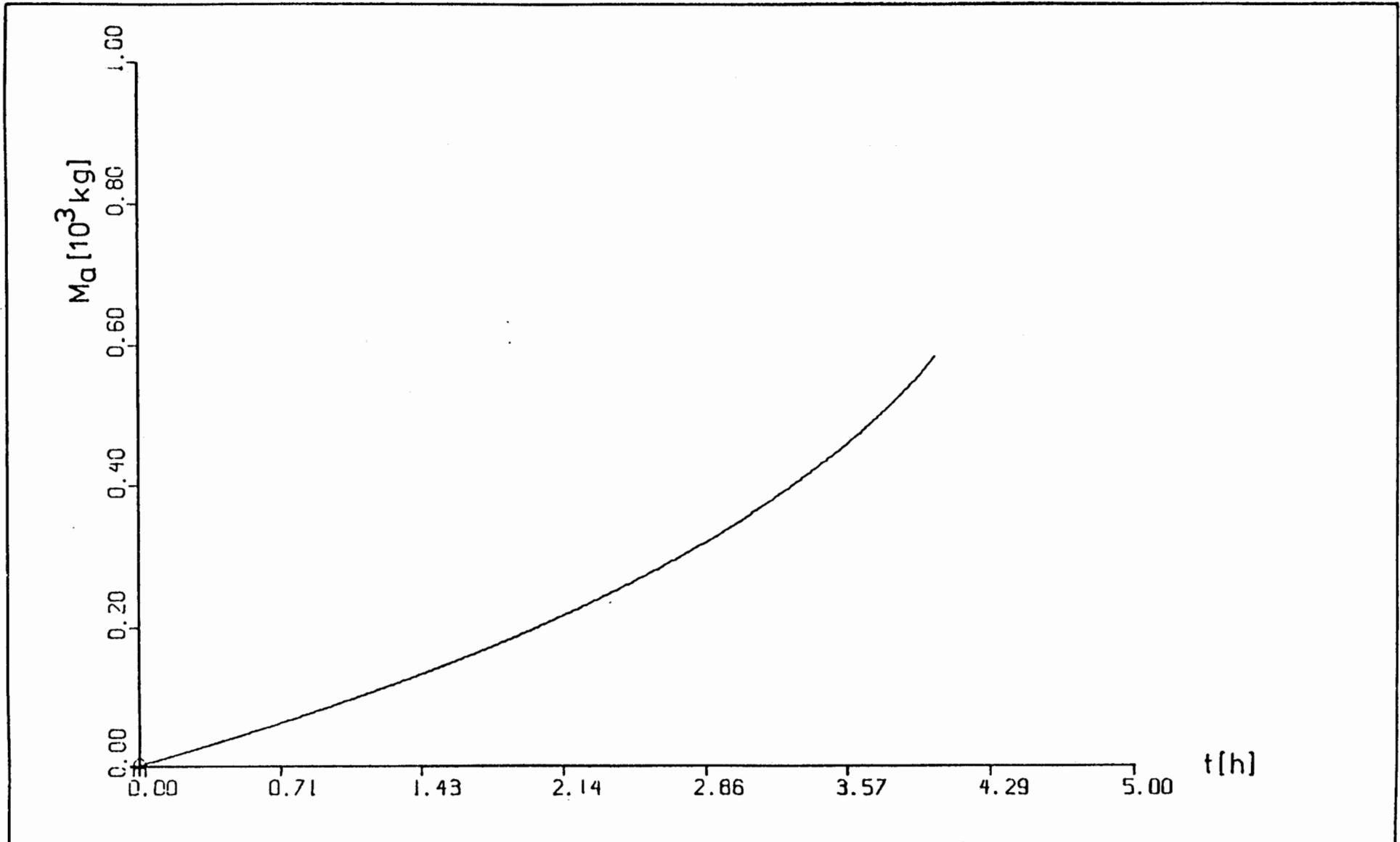
Zeitlicher Verlauf der durch HTO-Dampf aus dem HAW ausgetragenen Aktivität während des Aufheizens von 50°C (323 K) auf 75°C (348 K) infolge Teilausfall des Kühlsystems

Abb. 10



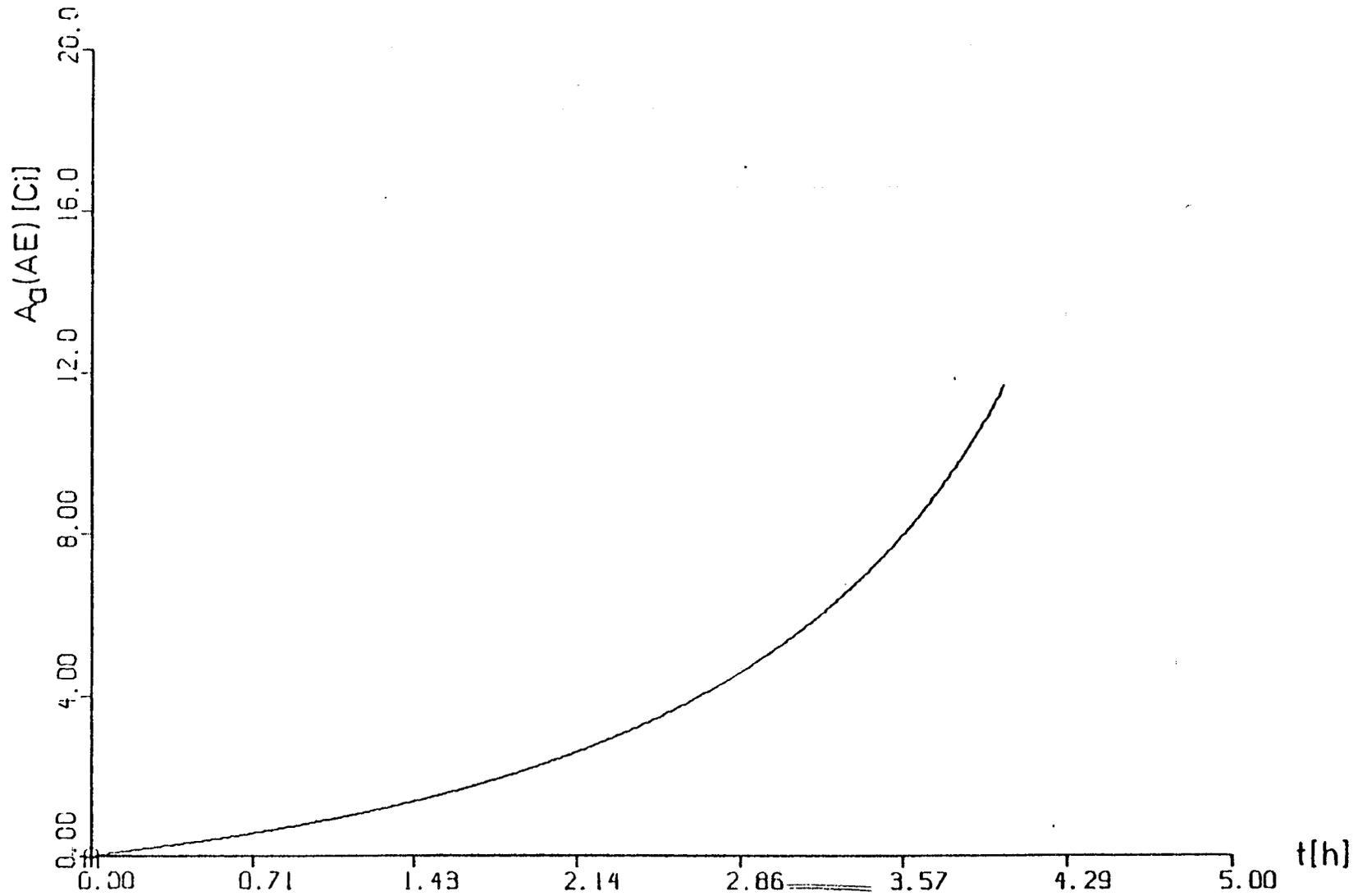
Zeitlicher Temperaturverlauf des HAW während des Aufheizens von 75°C (348 K) auf Siedetemperatur infolge Totalausfall des Kühlsystems

Abb. 11



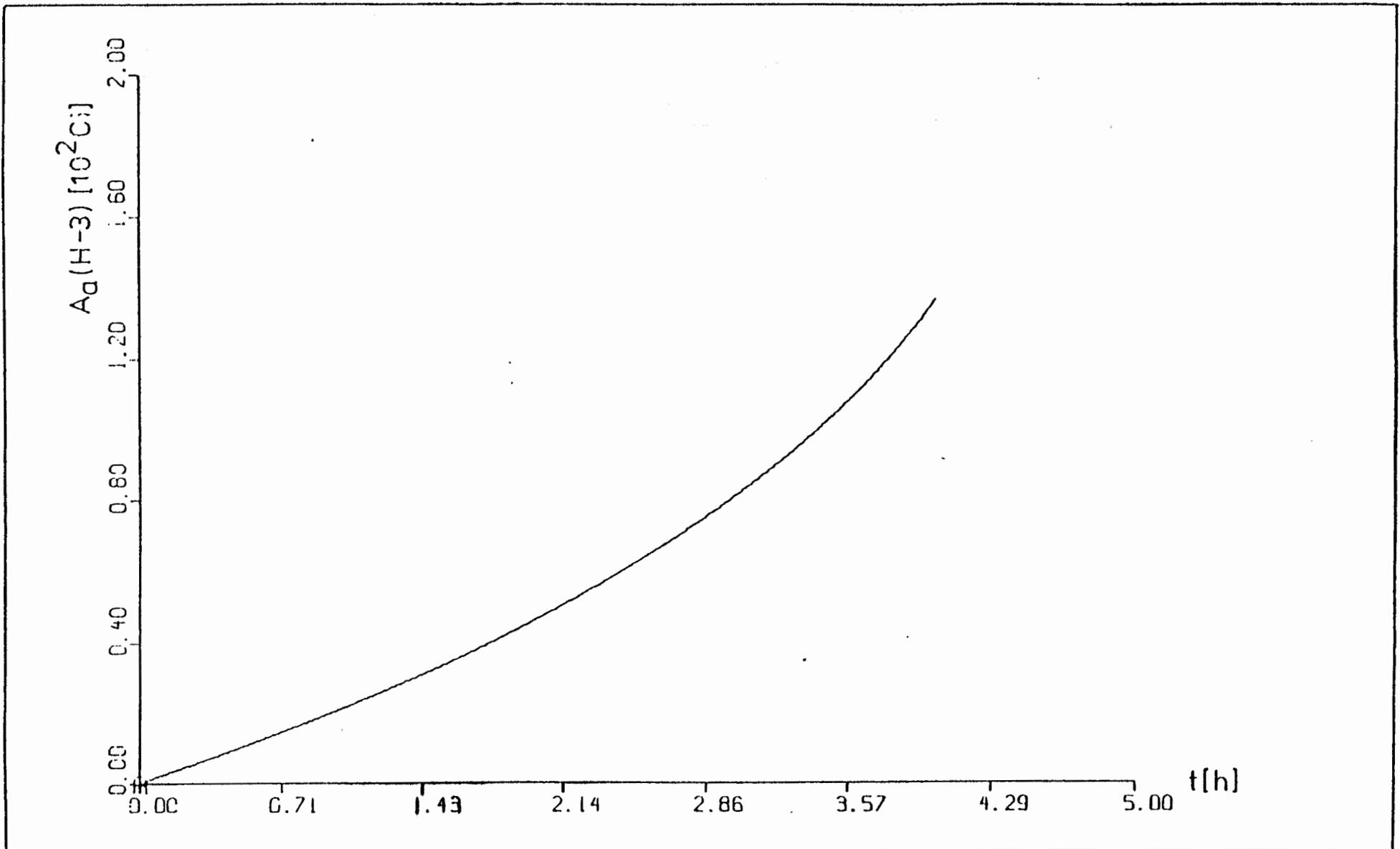
Zeitlicher Verlauf des Massenausstrags aus dem HAW während des Aufheizens von 75°C (348 K) auf Siedetemperatur infolge Totalausfall des Kühlsystems

Abb. 12



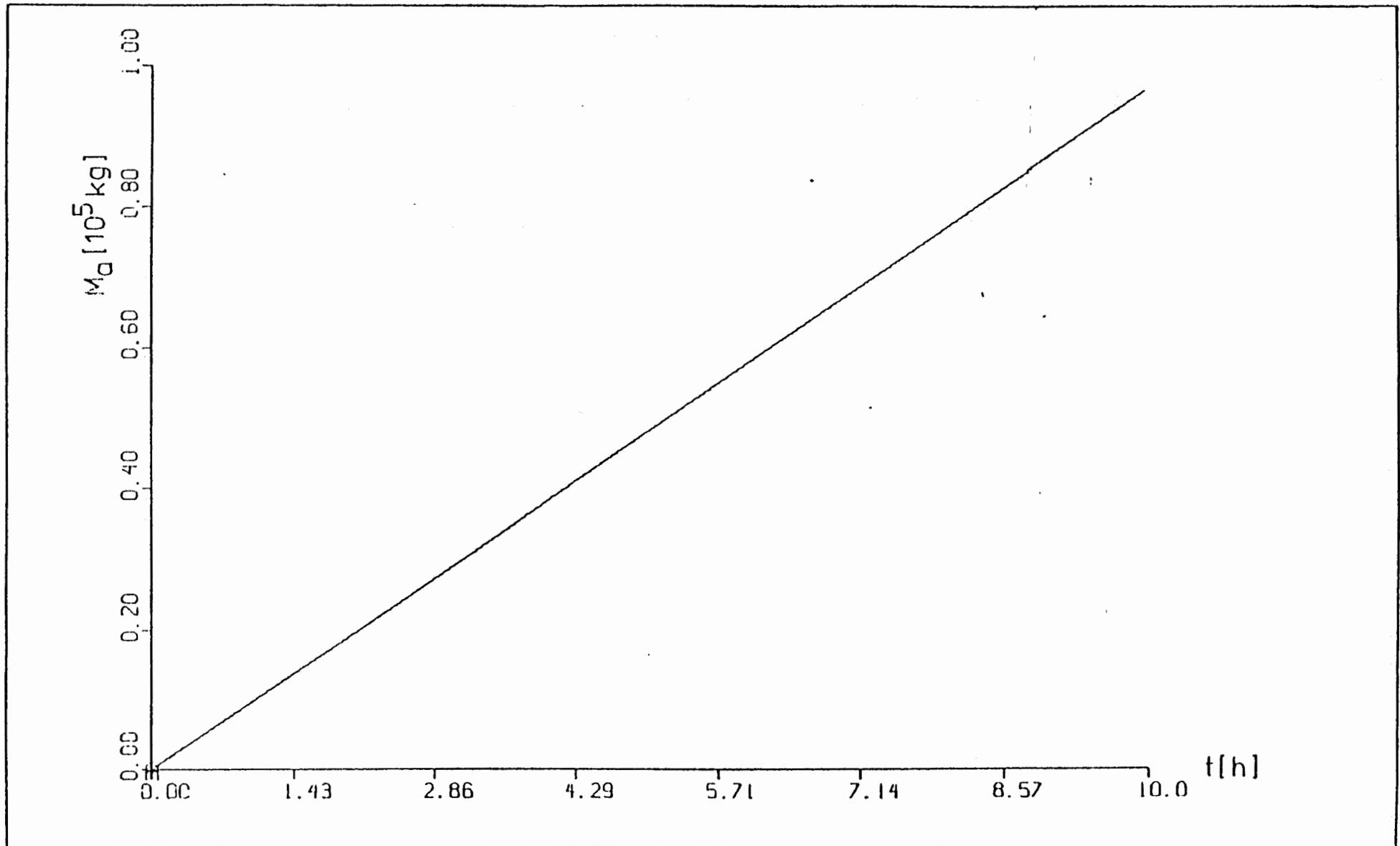
Zeitlicher Verlauf der durch Aerosole aus dem HAW ausgetragenen Aktivität während des Aufheizens von 75°C (348 K) auf Siedetemperatur infolge Totalausfall des Kühlsystems

Abb. 13



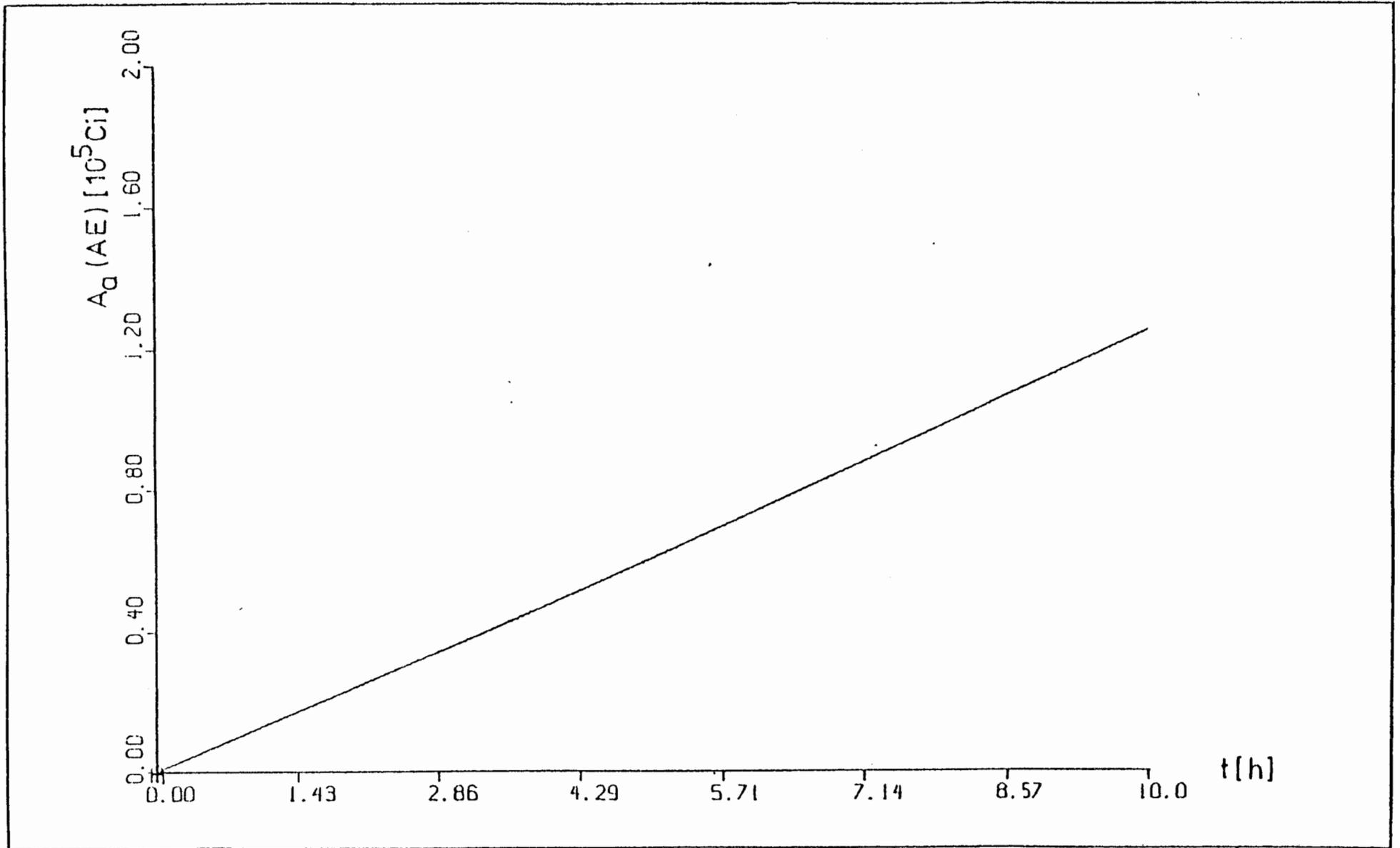
Zeitlicher Verlauf der durch HTO-Dampf aus dem HAW ausgetragenen Aktivität während des Aufheizens von 75°C (348 K) auf Siedetemperatur infolge Totalausfall des Kühlsystems

Abb. 14



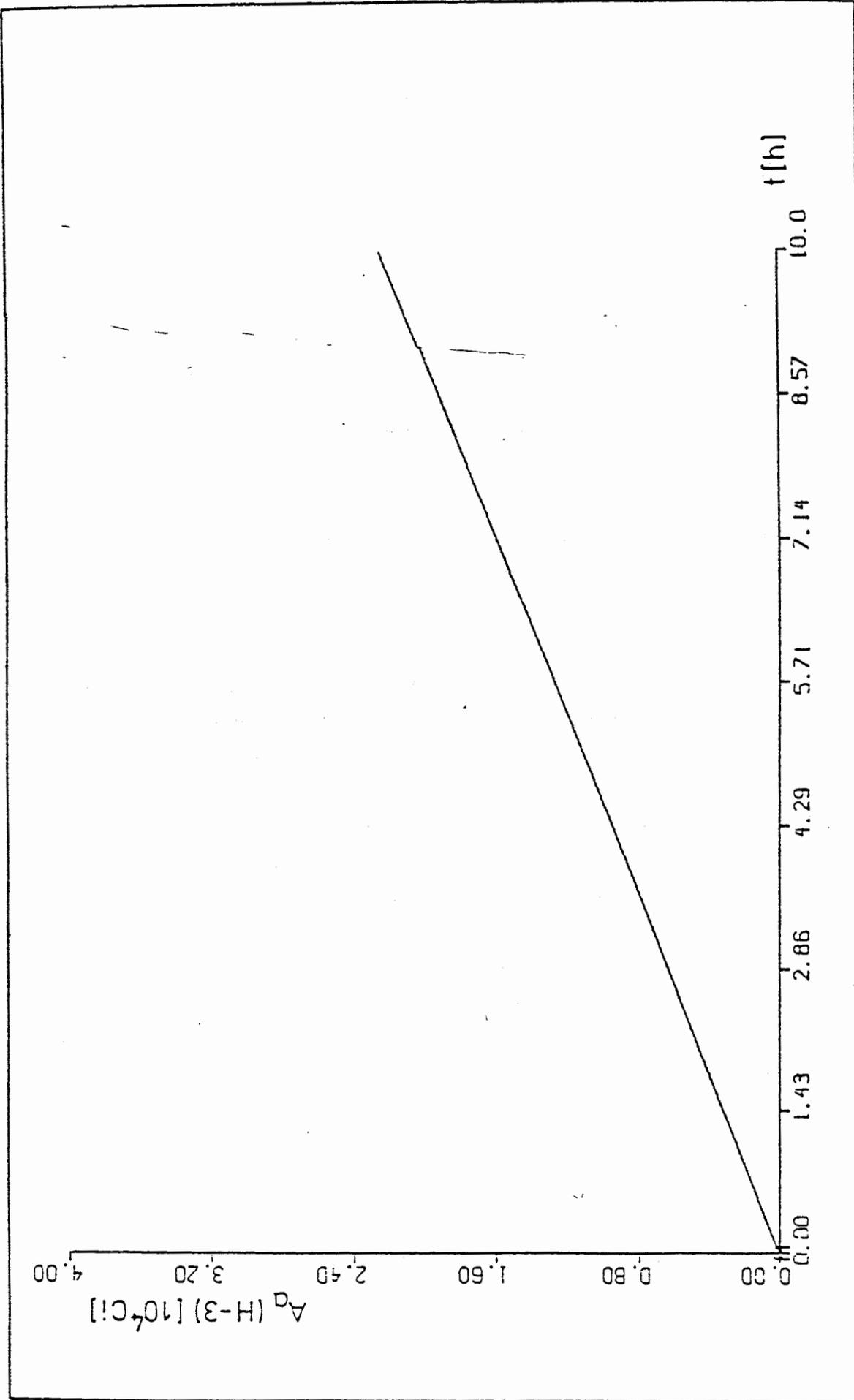
Zeitlicher Verlauf des durch Sieden bedingten Massenausstrages aus dem HAW

Abb. 15



Zeitlicher Verlauf der durch Aerosole beim Sieden aus dem HAW ausgetragenen Aktivität

Abb. 16



 Zeitlicher Verlauf der durch HTO-Dampf beim Sieden aus dem HAW ausgetragenen Aktivität

Abb. 17

L	$2,16 \cdot 10^{10}$	J/h	(nach Tabelle 4)
QV	2255	kJ/kg	(nach /9/)
MA	$1,2 \cdot 10^6$	kg	(nach Tabellen 2 und /19/)
AJ	$1,24 \cdot 10^9$	Ci	(nach Tabelle 4)
AS(H 3)	0,23	Ci/kg	(nach Tabelle 4)

Tabelle 7 : Daten zur Ermittlung des Massen- und Aktivitätsaustrages aus dem Tanklager für den Fall des Siedens

In der Abbildung 16 ist diese Nichtlinearität nur schwach ausgeprägt, da sich die spezifische Aktivität in dem dort angegebenen Zeitraum während des Verdampfens nur geringfügig ändert.

Die Gleichungen, die den Massen- und Aktivitätsaustrag aus Flüssigkeiten infolge Verdunsten und Zerplatzen von Perlluftblasen bei vorgegebener Temperatur beschreiben (vergl. Kapitel 3.2), liefern bei Anwendung auf das Tanklager im bestimmungsgemäßen und gestörten Betrieb (siehe Tabelle 3) qualitativ ähnliche Ergebnisse wie für das Sieden. Wegen der zeitlich konstanten Wasserdampfströme (siehe Tabelle 3) erfolgt der Massenverlust und Aktivitätsaustrag durch Tritium in Form von HTO auch in diesem Fall linear mit der Zeit. Die durch Aerosolbildung induzierte Aktivitätsabgabe weist hingegen nach den Gleichungen 33 und 52 (siehe Kapitel 3) eine zeitliche Nichtlinearität auf, die sich analog zur obigen Betrachtung um so deutlicher bemerkbar macht, je stärker sich die spezifische Aktivität der Flüssigkeit mit der Zeit ändert.

Abschließend sei darauf hingewiesen, daß nach den Ausführungen des Kapitels 2 die hier gewonnenen Ergebnisse die reinen Quelleffekte an der Oberfläche des Inhalts des fiktiven Tanklagers beschreiben. Zur quantitativen Erfassung des Aktivitätstransports von der Flüssigkeitsoberfläche bis zum Eintritt in das Abgassystem des fiktiven Tanklagers sind weitere Effekte zu berücksichtigen wie beispielweise Wasserdampfkondensation an den Tankwänden, durch Keimkondensation bedingtes Aerosolwachstum sowie das Ausregnen größerer Aerosolpartikel.

5. Diskussion

Mit den in der vorliegenden Arbeit entwickelten Modellen wurden mathematische Werkzeuge erarbeitet, welche die Möglichkeit bieten, die durch Aerosolaustrag und HTO-Dampf induzierte Aktivitätsfreisetzung aus radioaktiven Flüssigkeiten quantitativ zu beschreiben. Bei den dabei zugrundegelegten Vorgängen handelt es sich um die Prozesse Verdunsten, Verdampfen und Zerplatzen von Perlluftblasen. Es sei betont, daß die Modelle für die genannten Prozesse nur die reinen Quelleffekte an der Oberfläche der betreffenden Flüssigkeit beschreiben. Daneben sind jedoch auch Rückhalte-mechanismen, wie beispielweise Keimkondensation an Aerosolen oder das Ausregnen größerer Aerosolpartikel, wesentlich, die mit dem Weitertransport der Aktivitätsträger von der Flüssigkeitsoberfläche bis zum Eintritt in das zugehörige Abgas-system verknüpft sind. So kann es beispielweise im Falle des Siedens einer wäßrigen Flüssigkeit durch derartige Mechanismen nach den Ausführungen von Kapitel 2 zu einer Reduktion der Aerosolkonzentration um einen Faktor von ca. 10^2 kommen. Der Schwerpunkt der Modellierung lag auf der Beschreibung der Aerosolentstehung an Flüssigkeitsoberflächen. Im Rahmen der dazu angestellten Betrachtungen wurden zwei wesentliche Voraussetzungen getroffen:

V1 : Die zu untersuchenden Flüssigkeiten verhalten sich wie wäßrige Lösungen

V2 : Die spezifischen Aktivitäten der Aerosoltröpfchen und der Flüssigkeit stimmen überein.

Gemäß Kapitel 1 ist der in der Voraussetzung V1 auftretende Terminus "wäßrige Lösung" dabei als eine Kurzbezeichnung für verdünnte wäßrige Lösungen aufzufassen, deren Oberflächenspannung sich nicht wesentlich von der des Wassers ($\leq 10\%$) unterscheidet.

Die auf dieser Annahme basierenden und in Kapitel 2 zusammengestellten grundlegenden Gleichungen zur Aerosolfreisetzung an Flüssigkeitsoberflächen wurden in Kapitel 4 für die mathematische Modellierung des Aktivitätsaustrags aus einer wäßrigen salpetersauren HAW-Lösung beispielhaft verwendet.

Hochaktive, aus der Wiederaufarbeitung stammende salpetersaure Flüssigkeiten radioaktiven Abfalls sieden nach /20/ bei etwa 107°C . Es besteht also nur eine geringe Abweichung vom Siedepunkt reinen Wassers, so daß aus physikalisch-chemischer Sicht eine schwachkonzentrierte Lösung vorliegt und die Annahme V1 im obigen Sinne daher gerechtfertigt ist.

Eine experimentelle Überprüfung der hier erstellten Modelle zum Aerosolaustrag an reell vorliegenden HAW-Lösungen ist jedoch empfehlenswert, um den Einfluß von Parametern zu ermitteln, die ein Abweichen des Verhaltens der betrachteten Flüssigkeit von dem einer wäßrigen Lösung kennzeichnen. So bestehen nach /21/ Hinweise dafür, daß bereits geringe Mengen an TBP-Verunreinigung in HAW-Simulaten zu beträchtlichen Änderungen der Oberflächenspannung und der Aerosolaustragsraten führen. Derartige Flüssigkeiten würden daher bezüglich des Aerosolaustrags mit den in diesem Bericht entwickelten Modellen nicht mehr erfaßt werden.

Es ist ungeklärt, inwieweit die Annahme V2 auf flüssige hochaktive Abfälle zutrifft. Diese Voraussetzung wurde im Sinne einer "Ad-hoc-Betrachtung" getroffen, da zur Zeit keine systematischen Informationen über mögliche Unterschiede der spezifischen Aktivitäten bestimmter Isotope in radioaktiven Flüssigkeiten und daraus entstandenen Aerosoltropfen vorliegen.

Einerseits liegen nach experimentellen Orientierungsversuchen an HAW-Simulaten /21/ Indizien darüber vor, daß die Voraussetzung V2 keine Allgemeingültigkeit besitzt. Ähnliche amerikanische Untersuchungen /22/ scheinen den physikalischen Inhalt von V2 andererseits wiederum zu bestätigen.

Die mathematische Modellierung des Aktivitätsaustrags aus einem fiktiven Tanklager zur Aufnahme einer wäßrigen salpetersauren HAW-Lösung wurde in Kapitel 3 für verschiedene quasistationäre und instationäre Prozesse durchgeführt. Die für die dort untersuchten Prozesse a, b, d und e (vergl. Kapitel 3) zu diskutierenden wesentlichen Punkte bezüglich des Gültigkeitsbereichs der dort eingehenden Annahmen sind bereits durch die obigen Ausführungen dieses Kapitels abgedeckt (siehe auch Anhang I bis V).

Es sind jedoch noch einige Bemerkungen zur Modellierung des Aktivitätsaustrags beim Sieden (Prozess c) erforderlich.

Zur Beschreibung des Siedevorgangs wurde als Verdampfungswärme ein fester Zahlenwert, nämlich der von Wasser (vergl. Kapitel 4) angesetzt. Beim Sieden der Flüssigkeit wird sich jedoch im Tank ein erhöhter Druck aufbauen, wodurch der Siedepunkt zu höheren Temperaturen hin verschoben wird. Mit steigender Temperatur nimmt wiederum die Verdampfungswärme von Wasser ab /9/. Nach Formel (10) aus Kapitel 2 erfolgt damit ein Anstieg des zeitlichen Massenaustrags aus der Flüssigkeit. Da die Verdampfungswärme von Wasser nach /9/ mit steigendem Druck sehr langsam abnimmt, wird die Erhöhung des Wasserdampfmassenstroms nur sehr gering sein. Der hier eingeschlagene Weg zur quantitativen Erfassung des Aktivitätsaustrags aus siedenden, hochaktiven, wäßrigen Lösungen ist somit gerechtfertigt.

5 Abschließend sei darauf hingewiesen, daß der Austrag radioaktiven Materials aus nicht wäßrigen Flüssigkeiten nicht in einfacher Weise durch Übertragung der vorgestellten Modelle auf die geänderten Randbedingungen beschrieben werden kann, da z. B. bei organischen Flüssigkeiten der Einfluß von Molekülkettenbildung und deren Polarisation zu völlig anderen Verhältnissen im Grenzschichtbereich als bei wäßrigen Lösungen führt.

5

ANHANG I

**Analytische Beschreibung des
Aerosolaustrags aus verdunstenden
wäßrigen Lösungen**

Inhaltsverzeichnis

1. Zusammenfassung
2. Einleitung
3. Grundlagen
4. Physikalisch-mathematische Modellierung
5. Ermittlung der Modellparameter
 - 5.1 Bestimmung der Modellparameter durch Anpassung an Meßwerte
 - 5.2 Allgemeine Bestimmung der Modellparameter für wäßrige Lösungen
6. Diskussion

1. Zusammenfassung

Bei der Durchführung von Sicherheitsanalysen werden möglichst realitätsnahe Ergebnisse zur Aktivitätsfreisetzung angestrebt. Hierunter fallen auch die Freisetzungsmengen, die bei der Verdunstung aus den Oberflächen radioaktiver Flüssigkeiten in Form von Aerosolen ausgetragen werden.

Zur Ermittlung derartiger Ströme wurde aufgrund theoretischer Überlegungen ein analytisches Modell entwickelt, welches den Aerosolaustrag für verdunstende wäßrige Lösungen*) temperaturabhängig beschreibt. Demnach werden Aerosole aus einer gegebenen verdunstenden Menge entsprechend einem Anteil F freigesetzt, der mit ansteigender Flüssigkeitstemperatur T exponentiell zunimmt.

Die diese Exponentialfunktion kennzeichnenden Parameter wurden für verschiedene Flüssigkeiten durch Anpassung an von Mishima et al. durchgeführte Aerosolaustragsmessungen an wäßrigen Pu-Nitratlösungen /1/ ermittelt.

Die grundlegende Idee des hier erstellten Modells besteht in der Annahme, daß Aerosole bereits als "Makromoleküle" strukturiert im Inneren der betreffenden Flüssigkeit vorliegen und sich beim Verdunsten an der Oberfläche wie ein ideales Gas verhalten.

Im Hinblick auf die praktische Relevanz der angestellten Überlegungen ist festzustellen, daß das hier entwickelte Aerosolfreisetzungsmodell erstmalig die Möglichkeit bietet, den Aerosolaustrag bei der Verdunstung wäßriger Lösungen für verschiedene Temperaturen auf analytischem Weg quantitativ zu erfassen.

Von besonderer Bedeutung ist dieser Sachverhalt im Rahmen störfalldynamischer Betrachtungen für die Aufheizung wäßriger radioaktiver Lösungen. Die durch eine solche Aufheizung induzierte zeitliche Änderung der Aktivitätsfreisetzung infolge Aerosolaustrag kann mit dem hier gewonnenen Modell beschrieben werden.

*) Der Terminus "wäßrige Lösung" umfaßt in diesem Anhang sowohl verdünnte als auch konzentrierte wäßrige Lösungen. Hingegen werden im Haupttext nach der Fußnote von Seite 1 nur verdünnte wäßrige Lösungen betrachtet.

2. Einleitung

Im Rahmen von Störfall- und Sicherheitsanalysen tritt häufig das Problem auf, die durch Aerosolaustrag induzierte Aktivitätsfreisetzung aus radioaktiven wäßrigen Lösungen beim Verdunsten bzw. Verdampfen zu ermitteln.

Zur quantitativen Beschreibung dieses Aktivitätsaustrags aus siedenden radioaktiven Flüssigkeiten wurde bisher auf Aerosolaustragsmessungen von Mishima et al. an wäßrigen Pu-Nitratlösungen zurückgegriffen /1/. Danach werden bei ausgebildetem Blasensieden dieser Lösungen Aerosole mit einem Bruchteil der Größenordnung 10^{-3} freigesetzt. Aufgrund von Überlegungen zur Aerosolentstehung beim Zerfall von Siedblasen wurde gezeigt, daß der Austragsanteil $F = 10^{-3}$ allgemein zur Abschätzung des Aerosolaustrags aus verdampfenden anorganischen verdünnten wäßrigen Lösungen verwendet werden kann (siehe Anhang II, III).

Es ist jedoch ungeklärt, wie die Aerosolfreisetzung aus verdunstenden wäßrigen Lösungen für eine beliebig vorgegebene Temperatur quantitativ zu erfassen ist.

In der vorliegenden Arbeit wird auf der Basis physikalischer Überlegungen ein Aerosolfreisetzungsmodell vorgestellt, welches einen möglichen Lösungsweg für das genannte Problem aufzeigt.

Demnach kommt es beim Verdunsten wäßriger Lösungen zu einem Aerosolaustrag, der durch einen mit der Temperatur exponentiell zunehmenden Austragsanteil beschrieben wird.

Die in diese Exponentialfunktion eingehenden Parameter werden zur konkreten Anwendung des Modells durch Anpassung an weitere von Mishima et al. für verschiedene diskrete Temperaturen durchgeführte Aerosolaustragsmessungen an wäßrigen Pu-Nitratlösungen /1/ ermittelt.

Wie weiter unten gezeigt wird, kann diese Anpassung aufgrund der Konzeption des Modells für verschiedene wäßrige Lösungen, d. h. stoffabhängig durchgeführt werden, was für die Anwendung der hier angestellten theoretischen Betrachtungen von Bedeutung ist.

3. Grundlagen

Die grundlegende mathematische Beziehung für das hier erstellte Aerosolaustragsmodell ist durch eine genäherte Clausius-Clapeyron-Gleichung gegeben. Danach besteht zwischen dem Sättigungsdampfdruck P_S und der Temperatur T einer reinen Flüssigkeit die Beziehung

$$P_S = P_{ST} \cdot \exp \left[-\frac{\Delta H}{R} \cdot \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ST}} \right) \right] \quad (I 1)$$

mit den Bezeichnungen

- P_{ST} : Sättigungsdampfdruck bei einer festen Temperatur T_{ST}
 ΔH : Verdampfungsenthalpie
 R : Ideale Gaskonstante ,

wobei die Annahmen zugrundeliegen, daß sich der Flüssigkeitsdampf wie ein ideales Gas verhält und die Verdampfungsenthalpie ΔH temperaturunabhängig ist /15/.

Bei der praktischen Anwendung des Modells auf reines Wasser und verschiedene wäßrige Lösungen wird ausgenutzt, daß der Siedepunkt einer Lösung T_L sich von der Siedetemperatur T_W von Wasser gemäß /15/

$$T_L - T_W = \frac{R \cdot T_W^2}{\Delta H} \cdot X_{M_G} \quad (I 2)$$

unterscheidet, wobei X_{M_G} den Molenbruch der gelösten Substanz angibt. Die Anwendung von Gleichung (I 2) setzt voraus, daß $X_{M_G} \ll 1$ und somit eine verdünnte wäßrige Lösung vorliegt.

Zur zahlenmäßigen Ermittlung der Modellparameter werden von Mishima et al. durchgeführte Aerosolaustragsmessungen an wäßrigen verdunstenden Pu-Nitratlösungen /1/ verwendet.

Diese Daten sind in Tabelle I 1 wiedergegeben:

Die oben angegebenen Messungen erfolgten bei verschiedenen Flüssigkeitstemperaturen T sowie unterschiedlichen Luftströmgeschwindigkeiten v an der Flüssigkeits-

oberfläche. Die dritte Spalte der Tabelle repräsentiert den im Kondensat vorhandenen massenmäßigen Pu-Bruchteil*).

Der ninter dem Kühler gemessene, in Form von Aerosolen vorliegende Pu-Anteil, ist in der vierten Spalte wiedergegeben.

Der dem Verdunstungsprozeß zuzuordnende totale Aerosolaustragsanteil resultiert als Summe der genannten Anteile und ist in der letzten Spalte unter der Bezeichnung F aufgeführt.

Diese Austragsanteile F bilden die Basis zur Bestimmung der Modellparameter.

*) Bei der Versuchsdurchführung wurde der Lösungsmitteldampf in einem nachgeschalteten Kühler auskondensiert.

Experiment Nr.	Temperatur TC (°C)	Luftgeschwin- digkeit v (cm/s)	Pu-Anteil im Kondensat FK	Anteil der Pu-Aerosole hinter Kühler FA	Pu-Austragsanteil F
N 1	Umgebungstemp.	10	$8,7 \cdot 10^{-5}$	$< 10^{-9}$	$8,5 \cdot 10^{-5}$
N 2	75	10	$9,5 \cdot 10^{-10}$	$< 10^{-8}$	$< 1,1 \cdot 10^{-8}$
N 3	100	10	$1,7 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$
N 4	Umgebungstemp.	50	$4,9 \cdot 10^{-9}$	$2,5 \cdot 10^{-9}$	$7,4 \cdot 10^{-9}$
N 5	100	50	$1,4 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$3,14 \cdot 10^{-5}$
N 6	90	50	$5,4 \cdot 10^{-8}$	$5,3 \cdot 10^{-7}$	$5,84 \cdot 10^{-7}$
N 7	Umgebungstemp.	100	$7,5 \cdot 10^{-10}$	$< 2 \cdot 10^{-10}$	$< 9,5 \cdot 10^{-10}$
N 8	50	100	$9,4 \cdot 10^{-8}$	$1,3 \cdot 10^{-7}$	$2,24 \cdot 10^{-7}$
N 9	90	100	$9,4 \cdot 10^{-7}$	$5,7 \cdot 10^{-7}$	$1,51 \cdot 10^{-6}$

Tabelle I 1

Aerosolfreisetzung aus verdunstenden wässrigen Pu-(NO₃)₄-Lösungen (aus /1/ entnommen)

Experimente N 1 und N 2 wurden mit 0,86 kg Pu in Lösung durchgeführt

Experimente N 3 bis N 9 wurden mit 0,72 g Pu in Lösung durchgeführt

4. Physikalisch-mathematische Modellierung

Die vorliegenden Betrachtungen beinhalten die Entwicklung eines physikalisch-mathematischen Modells zur Beschreibung der temperaturabhängigen Aerosolfreisetzung aus verdunstenden wäßrigen Lösungen.

Hierzu werden verschiedene Annahmen und Modellvorstellungen zugrundegelegt:

- A 1 Die an der Flüssigkeitsoberfläche entweichenden Aerosole liegen bereits als "Makromoleküle" strukturiert im Inneren der betreffenden Lösung vor.
- A 2 Die diese "Makromoleküle" umgebende Flüssigkeit wird als Trägerflüssigkeit (Lösungsmittel) aufgefaßt.
- A 3 Die Konzentration der "Makromoleküle" in Lösung sei so gering, daß zur Ermittlung des "Aerosoldampfdrucks" an der Flüssigkeitsoberfläche das Gesetz von Raoult anwendbar ist.

Aufgrund der Annahme A 3 besteht nach /15/ die Beziehung

$$P_{AE} = X_{M_{AE}} \cdot P_{S_{AE}} \quad (I 3)$$

mit den Bezeichnungen

- P_{AE} : "Aerosol-Partialdruck" an der Flüssigkeitsoberfläche
- $P_{S_{AE}}$: "Aerosol-Sättigungsdruck" an der Flüssigkeitsoberfläche
- $X_{M_{AE}}$: "Aerosol-Molenbruch" in Lösung.

Der Sättigungsdruck $P_{S_{AE}}$ berechnet sich gemäß Gleichung (I 1) zu

$$P_{S_{AE}} = P_{ST_{AE}} \cdot \exp \left[- \frac{\Delta H_{AE}}{R} \cdot \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ST}} \right) \right] \quad (I 4).$$

Für das Lösungsmittel (Trägerflüssigkeit) gilt eine entsprechende Gleichung

$$P_{S_W} = P_{ST_W} \cdot \exp \left[- \frac{\Delta H_W}{R} \cdot \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ST}} \right) \right] \quad (I 5),$$

wobei die Indizes AE und W die Aerosole bzw. das Lösungsmittel kennzeichnen.

Nach dem idealen Gasgesetz gilt für die Partialdichten ρ_{AE} bzw. ρ_W an der Flüssigkeitsoberfläche

$$\rho_{AE} = \frac{P_A \cdot \varphi_{AE}}{R \cdot T} \quad (I 6) \quad \text{bzw.}$$

$$\rho_W = \frac{P_W \cdot \varphi_W}{R \cdot T} \quad (I 7),$$

wobei φ_{AE} bzw. φ_W das jeweilige Molekulargewicht bedeutet.

Aus den Gleichungen (I 6) und (I 7) folgt

$$\frac{\rho_{AE}}{\rho_W} = \frac{P_{AE} \cdot \varphi_{AE}}{P_W \cdot \varphi_W} \quad (I 8).$$

Wegen der geringen Konzentration der "Aerosolmoleküle" wird die Annahme $P_W = P_{S_W}$ getroffen. Damit ergibt sich anhand der Gleichungen (I 3), (I 4), (I 5) und (I 8)

$$\frac{\rho_{AE}}{\rho_W} = a \cdot \exp \left[\left(\frac{H_W - H_{AE}}{R} \right) \cdot \frac{1}{T} \right] \quad (I 9)$$

mit
$$a = \frac{X M_{AE} \cdot P_{S_{AE}} \cdot \varphi_{AE}}{P_{S_W} \cdot \varphi_W} \cdot \frac{\exp(\Delta H_{AE} / R \cdot T_{ST})}{\exp(\Delta H_W / R \cdot T_{ST})} \quad (I 10).$$

Für eine feste Temperatur T gilt somit

$$\rho_{AE} = \hat{C} \cdot \rho_W \quad (I 11)$$

mit $\hat{C} = \text{const.}$

Die Massenströme \dot{M}_{AE} bzw. \dot{M}_W der verdampften Aerosol- bzw. Trägerflüssigkeit an der Flüssigkeitsoberfläche genügen den Beziehungen

$$\dot{M}_{AE} = \rho_{AE} \cdot v \cdot OF \quad (I 12)$$

bzw.
$$\dot{M}_W = \rho_W \cdot v \cdot OF \quad (I 13)$$

mit den Bezeichnungen

- v : Mittlere Gasgeschwindigkeit an der Flüssigkeitsoberfläche
 OF : Größe der Flüssigkeitsoberfläche.

Die nach einer Zeit t abgedampften Massen berechnen sich zu

$$M_{AE} = \int_0^t \rho_{AE} \cdot v \cdot OF \, dt' \quad (I 14)$$

bzw.
$$M_W = \int_0^t \rho_W \cdot v \cdot OF \, dt' \quad (I 15)$$

Wegen Gleichung (I 11) ergibt sich damit für festes T

$$\frac{M_{AE}}{M_W} = \frac{\rho_{AE}}{\rho_W} \quad (I 16)$$

Aufgrund der geringen Aerosolkonzentration wird die Annahme

$$M_W + M_{AE} \approx M_W \quad (I 17)$$

zugrundegelegt.

Damit folgt aus den Gleichungen (I 16) und (I 9)

$$\frac{M_{AE}}{M_W + M_{AE}} = a \cdot \exp\left(\frac{b}{T}\right) \quad (I 18)$$

mit
$$b = \frac{\Delta H_W - \Delta H_{AE}}{R} \quad (I 19)$$

Die linke Seite der Gleichung (I 18) repräsentiert den Anteil F , mit dem Aerosole während des Verdunstens der Flüssigkeit an der Oberfläche ausgetragen werden. Für die Temperaturabhängigkeit dieses Austragsanteils gilt somit

$$F(T) = a \cdot \exp\left(\frac{b}{T}\right) \quad (I 20)$$

mit Konstanten a und b .

Im Rahmen der hier angestellten Überlegungen ist die Gleichung (I 20) als mathematisches Modell anzusehen, welches die Aerosolfreisetzung aus verdunstenden wäßrigen Lösungen quantitativ beschreibt.

5. Ermittlung der Modellparameter

Zur Anwendung des entwickelten Aerosolaustragsmodells sind die Größen a und b der grundlegenden Gleichung (I 20) zahlenmäßig zu ermitteln.

Die Bestimmung dieser Parameter erfolgt in zwei Schritten:

- Im ersten Schritt werden unter Verwendung der Aerosolaustragsmessungen von Mishima et al. (siehe Tabelle I 1) die Zahlenwerte a und b für die diesen Messungen zugrundeliegende Pu-Nitratlösung bestimmt.
- Anschließend wird daraus abgeleitet, wie sich die Modellparameter allgemein für wässrige Lösungen ermitteln lassen. Diese Vorgehensweise wird für Wasser als Beispiel demonstriert.

5.1 Bestimmung der Modellparameter durch Anpassung an Meßwerte

Zur quantitativen Beschreibung des Aerosolaustrags aus der den Messungen von Mishima et al. zugrundeliegenden Pu-Nitratlösung wurde die Gleichung (I 20) den aus diesen Meßergebnissen gewonnenen Aerosolaustragsanteilen für die Experimente N3 bis N9 in Spalte 6 von Tabelle I 1 nach der Methode der kleinsten Quadrate angepaßt*).

Als Umgebungstemperatur wurde dabei ein Wert von 20°C verwendet; wie in Kapitel 6 dieses Anhangs erörtert wird, führt diese Wahl im Vergleich zu höheren Umgebungstemperaturen zu konservativen Ergebnissen.

Für alle Temperaturen der Experimente N3 bis N9 liegen mit Ausnahme von 50°C entsprechend den unterschiedlichen Luftgeschwindigkeiten jeweils zwei Aerosolaustragsanteile vor. Für die praktische Durchführung der Anpassung wurde von diesen Anteilen stets das arithmetischen Mittel verwendet, d. h. ein möglicher Einfluß der Luftströmgeschwindigkeit wurde nicht berücksichtigt.

Als Ergebnis der Anpassungsberechnung ergaben sich für die gesuchten Modellparameter a und b aus Gleichung (I 20) die Zahlenwerte

$$a = (3,8 \pm 2,7) \cdot 10^6 \quad \text{und} \quad b = -(1 \pm 0,01) \cdot 10^4 \text{ K.}$$

Die Temperaturabhängigkeit des Aerosolaustrags aus der Pu-Nitratlösung, die den Messungen von Mishima et al. zugrundelag, wird somit durch die Funktion

$$F(T) = 3,8 \cdot 10^6 \cdot \exp \left[- \frac{10^4 \text{ K}}{T} \right] \quad (\text{I 21})$$

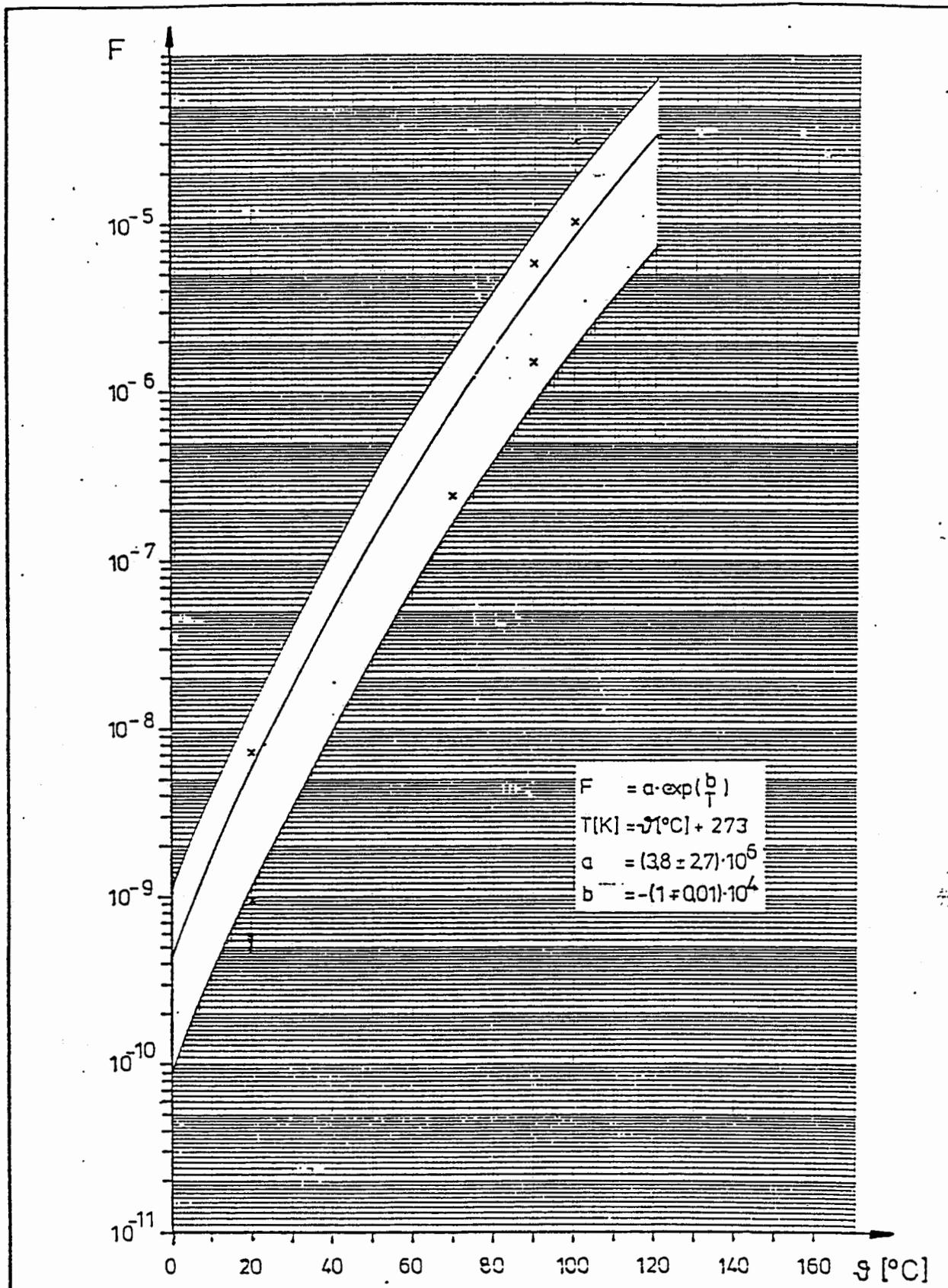
beschrieben.

*) Aus Gründen, die in Kapitel 6 dieses Anhangs näher erläutert werden, wurden die Experimente N1 und N2 für diese Anpassung nicht benutzt.

Die Güte der durch diese Funktion beschriebenen Anpassung an die Meßergebnisse der Experimente N3 bis N9 (vergl. Tabelle I 1) ist in Abbildung I 1 graphisch wiedergegeben. Diese Abbildung repräsentiert den Verlauf der durch Gleichung (I 21) definierten Funktion $F(T)$ mit der Temperatur T sowie die aus den Messungen N3 bis N9 resultierenden Aerosolaustragsanteile (vergl. Spalte 6 von Tabelle I 1).

Es zeigt sich, daß sich diese Messungen größenordnungsmäßig in befriedigender Weise durch die Gleichung (I 21) beschreiben lassen.

Die Unsicherheit der mit dieser Beziehung ermittelten Aerosolaustragsanteile wird durch die Fehler der Koeffizienten a und b bestimmt. In der Abbildung I 1 ist dieser Fehlereinfluß durch die Grenzkurven des ausgesparten Bereichs graphisch wiedergegeben.



$$F = a \cdot \exp\left(\frac{b}{T}\right)$$
$$T[\text{K}] = S[^\circ\text{C}] + 273$$
$$a = (38 \pm 27) \cdot 10^6$$
$$b = -(1 \pm 0.01) \cdot 10^4$$



Aerosolaustragsanteil F als Funktion der Temperatur S

Abb. I 1

5.2 Allgemeine Bestimmung der Modellparameter für wäßrige Lösungen

Auf der Basis der im vorangehenden Abschnitt gewonnenen Ergebnisse wird gezeigt, wie sich die Parameter a und b aus der den Aerosolaustrag modellmäßig beschreibenden Gleichung (I 20) allgemein für wäßrige Lösungen bestimmen lassen.

Das dabei verwendete Verfahren wird für reines Wasser als Beispiel demonstriert.

Für die folgenden Überlegungen wird hierzu der physikalische Sachverhalt ausgenutzt, daß wäßrige Lösungen gegenüber reinem Wasser einen höheren Siedepunkt besitzen. Für hinreichend verdünnte Lösungen wird diese Siedepunktserhöhung durch die Gleichung (I 2) beschrieben.

Da das Sieden einer Flüssigkeit stets dadurch gekennzeichnet ist, daß ihr Dampfdruck mit dem jeweiligen Außendruck übereinstimmt, kann der obige Sachverhalt auch wie folgt formuliert werden:

Die Temperatur T_L , bei der eine wäßrige Lösung den gleichen Dampfdruck wie reines Wasser der Temperatur T_W besitzt, ist gegenüber dieser Wassertemperatur erhöht. Im Falle einer verdünnten wäßrigen Lösung ist die Differenz $T_L - T_W$ durch Gleichung (I 2) gegeben, d. h. sie nimmt mit sinkendem T_W ab.

Diese Formulierung beinhaltet die physikalische Motivation für die Einführung einer weiteren Modellvorstellung zur Beschreibung des Aerosolaustrags aus verdunstenden wäßrigen Lösungen:

A 4 Die Aerosolausträge aus einer wäßrigen Lösung der Temperatur T_L und aus reinem Wasser der Temperatur T_W stimmen bei gleichen Dampfdrücken P überein, d. h.

für $P(T_L) = P(T_W)$ (I 22)

gilt $F_L(T_L) = F_W(T_W)$ (I 23)

mit den Bezeichnungen

- $P(T_L)$: Dampfdruck der Lösung bei der Temperatur T_L
 $P(T_W)$: Dampfdruck von reinem Wasser bei der Temperatur T_W
 $F_L(T_L)$: Aerosolaustragsanteil der Lösung bei der Temperatur T_L
 $F_W(T_W)$: Aerosolaustragsanteil von Wasser bei der Temperatur T_W

Im Rahmen der hier angestellten Überlegungen erscheint die Annahme A4 als physikalisch sinnvoll. Sie wird zusammen mit den Annahmen A1 bis A3 (vergl. Kapitel 4) in Kapitel 6 dieses Anhangs diskutiert.

Mit der Annahme A4 ist die Basis geschaffen, um für reines verdunstendes Wasser den Aerosolaustragsanteil F_W zahlenmäßig für eine vorgegebene Temperatur T zu bestimmen. Nach Gleichung (I 20) besteht der Zusammenhang

$$F_W(T) = a_w \cdot \exp\left(\frac{b_w}{T}\right) \quad (\text{I 24})$$

wobei die Parameter a_w und b_w zu ermitteln sind.

Bei der von Mishima et al. verwendeten wäßrigen Lösung handelt es sich um eine konzentrierte Pu-Nitratlösung mit einer Siedetemperatur von ca. 120°C /1/. Die Gleichung (I 2) ist daher für den hier vorliegenden Fall nicht unmittelbar anwendbar. Aus ihr sind jedoch die Trendaussagen zu entnehmen, daß mit sinkender Wassertemperatur T_W auch die Temperatur der Pu-Nitratlösung T_L , bei der gleicher Dampfdruck herrscht, abnimmt und daß die entsprechende Differenz $T_L - T_W$ nicht größer wird sondern ebenfalls abnimmt oder bestenfalls konstant bleibt.

Für die folgenden Betrachtungen wird angenommen, daß diese Differenz konstant, d. h. unabhängig von T_W ist. Wie in Kapitel 6 dieses Anhangs erörtert wird, führt diese Annahme zur Beschreibung des Aerosolaustrags von verdunstendem reinen Wasser zu konservativen Ergebnissen.

Berücksichtigt man, daß der Siedepunkt der von Mishima et al. verwendeten Pu-Nitratlösung gegenüber reinem Wasser um 20°C erhöht ist (s. o.), so ergeben sich im Rahmen der hier dargelegten Ausführungen die Gleichungen

$$F_L(393 \text{ K}) = F_w(373 \text{ K}) \quad (\text{I } 25)$$

$$\text{und } F_L(293 \text{ K}) = F_w(273 \text{ K}) \quad (\text{I } 26).$$

Der Index L bezieht sich hierbei auf die Pu-Nitratlösung, d. h. der Wert der Funktion F_L ist für die angegebenen Temperaturen mit dem Funktionswert $F(T)$ entsprechend Gleichung (I 21) zu identifizieren.

Mit der Beziehung (I 24) resultiert somit ein System von zwei Gleichungen in den Unbekannten a_w und b_w . Unter Berücksichtigung der Fehler der in Gleichung (I 21) auftretenden Koeffizienten ergibt sich als Lösung dieser Bestimmungsgleichungen

$$a_w = (7,0 \pm 5,0) \cdot 10^5 \quad \text{und} \quad b_w = -(8,9 \pm 0,1) \cdot 10^3 \text{ K}.$$

Die Temperaturabhängigkeit des Aerosolaustragsanteils für verdunstendes reines Wasser wird somit durch die Funktion

$$F_w(T) = 7,0 \cdot 10^5 \cdot \exp \left[- \frac{8,9 \cdot 10^3 \text{ K}}{T} \right] \quad (\text{I } 27)$$

beschrieben. Sie ist in Abbildung 1 des Haupttextes unter Berücksichtigung der Fehler der Größen a_w und b_w graphisch wiedergegeben.

Diese Beziehung kann als Basis dazu verwandt werden, um für eine beliebige wäßrige Lösung unter Ausnutzung der Siedepunktverschiebung gegenüber Wasser in der oben angegebenen Weise die Temperaturabhängigkeit des Aerosolaustragsanteils zu erfassen. Es sei angemerkt, daß sich dabei für Flüssigkeiten, deren Siedepunkt gegenüber Wasser um weniger als 20°C erhöht ist, Austragsanteile F_L ergeben, die sich für eine feste Temperatur T von dem Funktionswert $F_w(T)$ entsprechend Gleichung (I 27) um weniger als einen Faktor 9 unterscheiden, wobei stets $F_w(T) > F_L(T)$ ist.

Es ist daher naheliegend, für derartige Flüssigkeiten ebenfalls die Beziehung (I 27) zur überschlagsmäßigen Erfassung der Temperaturabhängigkeit des Aerosolaustrags zu verwenden, zumal dadurch garantiert ist, daß die so errechneten Aerosolaustragsanteile konservative Werte liefern.

6. Diskussion

Das hier entwickelte Aerosolfreisetzungsmodell basiert auf den Annahmen A1 bis A4 (vergl. Kapitel 4 und 5), wobei die der Annahme A1 zugrundeliegende Vorstellung der "Aerosol-Makromoleküle" den Kern des Modells bildet. Dieses physikalische Konzept ist naheliegend, da flüssiges Wasser auf molekularer Ebene bekanntlich eine Clusterstruktur besitzt /26/.

Die Annahmen A2 und A3 sind als Basis für die mathematische Formulierung des Modells anzusehen, welches durch die grundlegende Gleichung (I 20) gegeben ist.

Man hätte diese Gleichung von vornherein als "Ad-hoc-Annahme" zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit des Aerosolaustrags aus verdunstenden wäßrigen Lösungen zugrundelegen und die Parameter a und b nach der in Kapitel 5 dieses Anhangs dargestellten Methode ermitteln können.

In diesem Falle hätte man allerdings nur ein rein mathematisches Modell ohne physikalischen Hintergrund.

Hingegen liefern die hier getroffenen Annahmen A1 bis A3 ein physikalisches Konzept für die quantitative Bestimmung der Aerosolfreisetzung gemäß der Beziehung (I 20). Durch diesen Gesichtspunkt wird die grundlegende Bedeutung des hier vorgestellten Aerosolaustragsmodells herausgestellt.

Die Modellannahme A4 wurde eingeführt, um den Aerosolaustrag entsprechend der Gleichung (I 20) für verschiedene wäßrige Lösungen zu erfassen. Ihr liegt die plausible Vorstellung zugrunde, daß die quantitative Aerosolfreisetzung an den Oberflächen der genannten Flüssigkeiten bei gleichen Dampfdrücken in gleicher Weise erfolgt. Wie weiter unten erörtert wird, läßt sich die Gültigkeit dieser Vorstellung anhand zusätzlicher Überlegungen zum Sieden wäßriger Lösungen weiter untermauern.

Die quantitative Bestimmung der Modellparameter a und b der grundlegenden Gleichung (I 20) erfolgte auf der Basis der von Mishima et al. an Pu-Nitratlösungen durchgeführten Aerosolaustragsmessungen N3 bis N9 (vergl. Tabelle I 1).

Mögliche Auswirkungen der unterschiedlichen Luftströmgeschwindigkeiten v blieben dabei unberücksichtigt, da einerseits aus den Daten der Tabelle I 1 kein systematischer Effekt dieser Größe zu erkennen ist und andererseits das hier erstellte Aerosolaustragsmodell keine Aussagen zu einem derartigen Einfluß macht.

Erwähnenswert sind in diesem Zusammenhang die Messungen N1 und N2, die an einer anderen Probe durchgeführt wurden (siehe Tabelle I 1). Man erkennt unmittelbar, daß die Größenordnungen dieser Meßergebnisse mit den Befunden der Experimente N3 bis N9 nicht übereinstimmen (vergl. auch Abbildung I 1). Insbesondere ist auffallend, daß der Aerosolaustragsanteil F der Messung N1 im Vergleich zu den entsprechenden Daten der übrigen Messungen den größten Wert aufweist.

Dieser Sachverhalt widerspricht jedoch allen physikalischen Erwartungen, da das besagte Experiment bei der kleinsten Luftgeschwindigkeit und der niedrigsten Temperatur durchgeführt wurde (siehe Tabelle I 1).

Aus diesem Grunde wurden die an den Messungen N1 und N2 zugrundeliegenden Probe gewonnenen experimentellen Ergebnisse für die Ermittlung der Modellparameter a und b der Gleichung (I 20) nicht verwertet.

Zur Bestimmung dieser Parameter auf der Basis der Messungen N3 bis N9 wurde eine Umgebungstemperatur von 20°C angesetzt. Bei Wiederholung der Anpassungsrechnung mit höheren Umgebungstemperaturen wie etwa 25°C oder 30°C ergeben sich für die Temperaturabhängigkeit des Aerosolaustragsanteils angepaßte Funktionen $F(T)$, die für eine fest vorgegebene Temperatur geringere Funktionswerte als die Gleichung (I 21) liefern. Anschaulich ist dieses Ergebnis auch anhand von Abbildung I 1 zu erwarten. Die hier zugrundegelegte Umgebungstemperatur von 20°C führt also zu einem konservativen Aerosolaustragsmodell.

Im Rahmen der in Kapitel 5.2 dieses Anhangs angestellten Überlegungen zur Ermittlung der Modellparameter a_w und b_w , die gemäß der Gleichung (I 24) den Aerosolaustrag aus reinem Wasser beschreiben, wurde die Annahme getroffen, daß die Differenz der Temperaturen T_L und T_w , bei denen eine wäßrige Lösung respektive reines Wasser den gleichen Dampfdruck haben, von T_w unabhängig ist (vergl. Gleichung I 2). Für das in Kapitel 5 diskutierte Beispiel der Pu-Nitratlösung hatte diese Temperaturdifferenz den konstanten Wert $\Delta T = 20 \text{ K}$.

Bei Betrachtung der durch die Gleichungen (I 27) und (I 21) definierten Funktionen $F_w(T)$ und $F(T)$, die den temperaturabhängigen Aerosolaustrag aus reinem Wasser bzw. aus der den Messungen von Mishima et al. zugrundegelegten Pu-Nitratlösung beschreiben, ergibt sich die Ungleichung

$$F_w(T) > F(T + \Delta T_0) \quad (I 28)$$

falls $\Delta T_0 < \Delta T = 20 \text{ K}$ und $273 \text{ K} < T < 373 \text{ K}$.

Die mit der Annahme $\Delta T = T_L - T_w = \text{const.}$ gewonnene Funktion $F_w(T)$ liefert somit nach den Ausführungen von Kapitel 5.2 für den Aerosolaustrag aus reinem Wasser bei fester Temperatur T konservative Werte.

Es sei an dieser Stelle betont, daß sich die hier angestellten Überlegungen zum Aerosolaustrag aus wäßrigen Lösungen ausschließlich auf verdunstende und nicht auf siedende Flüssigkeiten beziehen. Beim Verdunsten liegt eine ebene Flüssigkeitsoberfläche vor, aus der die Aerosole zusammen mit Flüssigkeitsdampf (Wasserdampf) ausgeht. Hingegen ist der Vorgang des Siedens mit einer intensiven Blasenbildung verbunden, wobei die Aerosolentstehung im wesentlichen auf das Zerplatzen derartiger Siedebblasen zurückzuführen ist; d. h. bei Verdunsten und Verdampfen von Flüssigkeiten liegen verschiedene Aerosolaustragsmechanismen vor.

Aus diesem Grunde sind die Gleichungen (I 27) und (I 21) zur Erfassung der Aerosolfreisetzung aus reinem Wasser bzw. der von Mishima et al. verwendeten Pu-Nitratlösung nur für Temperaturen anwendbar, die soweit unterhalb des betreffenden Siedepunktes liegen, daß keine merkliche Blasenbildung an der Flüssigkeitsoberfläche auftritt. Für Wasser liegt diese Grenztemperatur bei etwa 95°C .

In Anhang II wird gezeigt, daß der Aerosolaustragsanteil von verdünnten anorganischen wäßrigen Lösungen bei Blasensieden unabhängig von der Siedetemperatur größenordnungsmäßig 10^{-3} beträgt. Die mit den Gleichungen (I 27) bzw. (I 21) errechneten Aerosolaustragsanteile ergeben sich für die Siedetemperaturen von Wasser bzw. der Pu-Nitratlösung hingegen zu $3,4 \cdot 10^{-5}$, d. h. das Blasensieden von verdünnten wäßrigen Lösungen führt etwa zu einem 30-fachen Aerosolaustrag im Vergleich zum "Sieden" bei glatter ungestörter Flüssigkeitsoberfläche.

Der oben erwähnte Befund, daß verschiedene wäßrige Lösungen mit verschiedenen Siedpunkten beim Blasensieden größenordnungsmäßig den gleichen Aerosolaustragsanteil besitzen, stellt für den Fall des Verdampfens eine Bestätigung der Modellannahme A4 dar (vergl. Kapitel 5.2). Diese Annahme wurde zwar im Hinblick auf verdunstende Flüssigkeiten mit glatten ungestörten Oberflächen getroffen, jedoch liefert ihre Gültigkeit für einen Spezialfall einen Hinweis für ihre allgemeine Anwendbarkeit.

Abschließend sei angemerkt, daß eine Wiederholung der Versuche von Mishima et al. zur weiteren experimentellen Absicherung des hier vorgestellten Aerosolaustragsmodells wünschenswert ist. Insbesondere sollten dabei Experimente an radioaktiven Lösungen verschiedener Zusammensetzung erfolgen, um mögliche nuklidspezifische Effekte zu erfassen.

ANHANG II

Aerosolentstehung beim Sieden
wäßriger Lösungen

Inhaltsverzeichnis

1. Zusammenfassung

2. Einleitung

3. Grundlagen

4. Quantitative Betrachtungen

5. Diskussion

1. Zusammenfassung

Bei der Durchführung von Sicherheitsanalysen werden möglichst realitätsnahe Ergebnisse zur Aktivitätsfreisetzung angestrebt. Hierunter fallen auch die Freisetzungsmengen, die bei der Verdampfung aus den Oberflächen radioaktiver Flüssigkeiten in Form von Aerosolen ausgetragen werden. Zur Ermittlung derartiger Schadstoffströme wurde ein Berechnungsmodell entwickelt, welches den Aerosolaustrag für wäßrige Lösungen*) im Zustand des Blasensiedens quantitativ beschreibt.

Unter Zugrundelegung einer Durchmesser-Verteilung des dabei entstehenden Aerosolsystems gemäß einer Gauss-Verteilung (siehe /4/) ermittelt das Modell auf der Basis von Messwerten (siehe /2/, /3/) den zugehörigen mittleren Aerosoldurchmesser. Der daraus resultierende Aerosolaustragsanteil F einer verdampfenden wäßrigen Lösung wurde mit den Ergebnissen von Aerosolaustragsmessungen an einer siedenden Pu-Nitratlösung (siehe /1/) verglichen.

Hierbei konnte befriedigende Übereinstimmung erzielt werden. Es wird daher gefolgert, daß das hier vorgestellte Modell zur quantitativen Bestimmung des Aerosolaustrags bei der Verdampfung wäßriger Lösungen allgemein anwendbar ist.

*) Es handelt sich hierbei um verdünnte wäßrige Lösungen, deren Oberflächenspannung um nicht mehr als ca. 10 % von dem entsprechenden Wert für Wasser abweicht. Im folgenden werden derartige Flüssigkeiten als wäßrige Lösungen bezeichnet (vergl. auch Fußnote auf Seite 1).

2. Einleitung

Experimentelle Untersuchungen von Mishima et al. (vergl. [1]) an wäßrigen Pu-Nitratlösungen haben ergeben, daß bei ausgebildetem Blasensieden der Lösung Aerosolaustrag mit einem Austragsanteil F von der Größenordnung 10^{-3} erfolgt.

Im vorliegenden Bericht wird eine Rechtfertigung für die allgemeine Anwendung dieses Aerosolaustragsanteils auf wäßrige verdampfende Lösungen erbracht.

Hierzu wurde der Vorgang des Zerplatzens von Siedebblasen an der Oberfläche derartiger Flüssigkeiten näher untersucht. Wesentlich für diese Betrachtungen sind die Größe einer solchen Blase sowie Anzahl und Durchmesser der beim Blasenzerfall entstehenden Aerosole.

Es konnte gezeigt werden, daß das Sieden wäßriger Lösungen mit einem Aerosolaustrag verbunden ist, der sich durch einen Austragsanteil F der Größenordnung 10^{-3} beschreiben läßt.

Die Übereinstimmung dieses Ergebnisses mit dem oben erwähnten experimentellen Befund von Mishima et al. läßt daher den Schluß zu, daß der Austragsanteil $F = 10^{-3}$ allgemein zur Abschätzung des Aerosolaustrags aus verdampfenden wäßrigen Lösungen verwendet werden kann.

3. Grundlagen

Die vorliegenden Betrachtungen basieren auf Messungen zur Aerosolentstehung beim Zerplatzen von Luft- bzw. Dampfblasen an Wasseroberflächen (vergl. /2/, /3/, /4/).

Tabelle II 1 zeigt die Anzahl und den häufigsten Durchmesser d_p der Mikrotröpfchen, die von Luftblasen mit dem Durchmesser d_B beim Zerplatzen erzeugt werden (siehe /3/). Experimentelle Untersuchungen verschiedener Autoren zum Aerosolaustrag aus Wasser infolge Blasenplatzen weisen darauf hin, daß diese Daten auch zur Beschreibung der Aerosolentstehung beim Zerfall von Dampfblasen (Sieden) mit entsprechenden Durchmessern verwendet werden können. So resultieren nach /2/ und /4/ für das Zerplatzen von Luft- und Wasserdampfblasen mit dem Durchmesser $d_B = 2,3$ mm gleich Häufigkeitsverteilungen für die Durchmesser der entstehenden Aerosole. Aus diesem Grunde wird die Annahme getroffen, daß die Zahlenwerte der Tabelle II 1 zur quantitativen Erfassung der Aerosolbildung beim Zerplatzen von Blasen beider Arten anwendbar sind. Die Durchmesser des durch Blasenzerfall entstehenden Aerosolsystems weisen nach /4/ im allgemeinen mit guter Näherung eine Gauss-Verteilung auf. Daher können die in Tabelle II 1 angegebenen häufigsten Aerosoldurchmesser d_p auch als mittlere Teilchendurchmesser angesehen werden.

Das mittlere Eigenvolumen V_p der pro Blasenzerplatzungsvorgang entstehenden Aerosoltröpfchen errechnet sich damit zu (vergl. auch Anhang III)

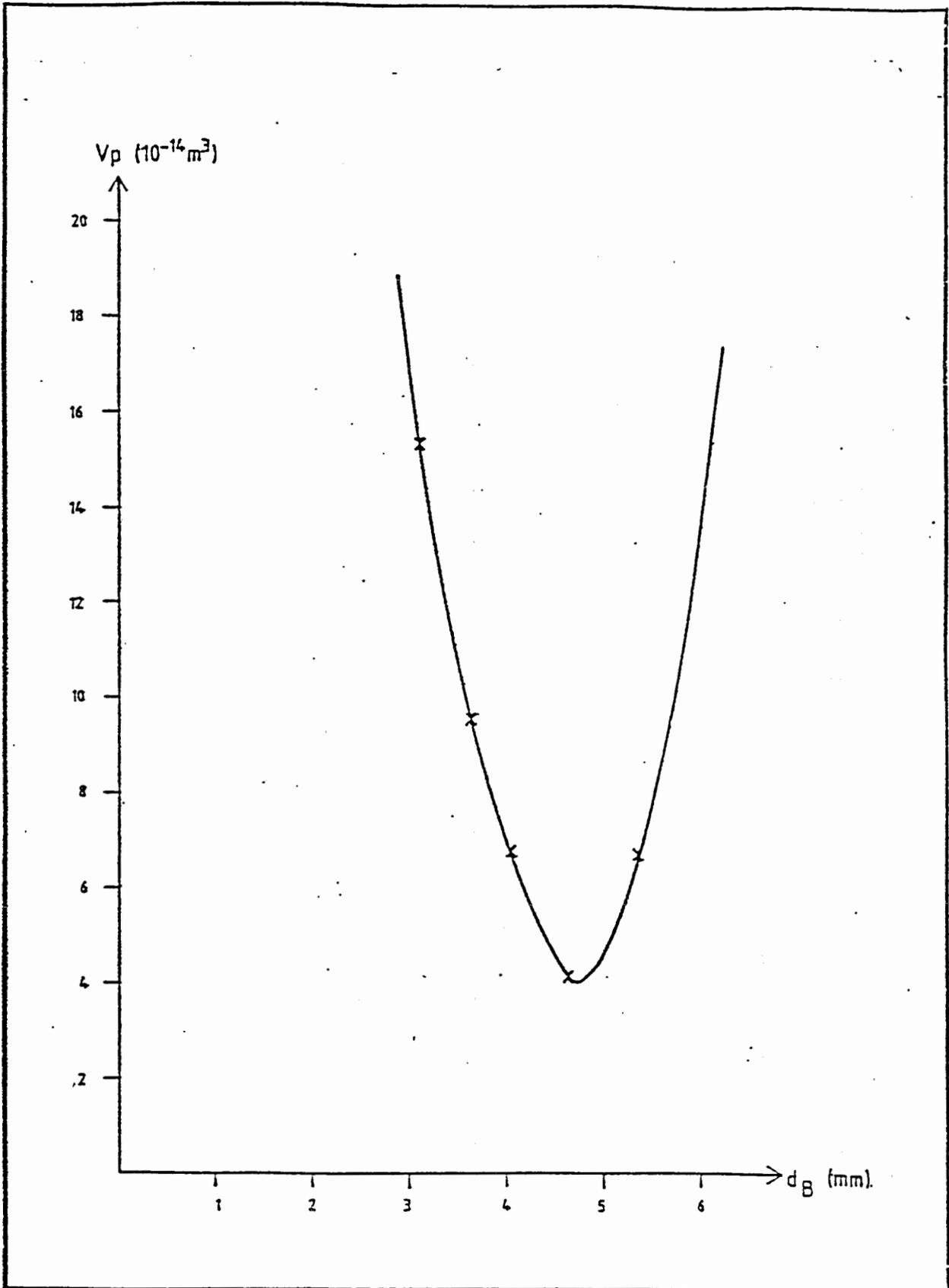
$$V_p = n \cdot \frac{1}{6} \cdot \pi \cdot d_p^3 \quad (\text{II 1})$$

wobei n die jeweilige Anzahl der Mikrotropfen angibt (vergl. Tabelle II 1).

Anhand der Meßdaten von Tabelle II 1 wurde für die dort aufgeführten Blasendurchmesser d_B gemäß der Beziehung (II 1) das zugehörige mittlere Aerosoleigenvolumen V_p bestimmt. Der so ermittelte funktionale Zusammenhang zwischen V_p und d_B ist in Abbildung II 1 graphisch wiedergegeben. Die durchgezogene Kurve dient dabei als Basis für die nachfolgenden Betrachtungen. In Kapitel 5 dieses Anhangs wird diskutiert, daß eine derartige Vorgehensweise gerechtfertigt ist.

Blasendurchmesser d_B (mm)	Zahl der Mikrotropfen pro Blasenplatzen n	häufigster Durchmesser der Mikrotropfen d_p (mm)
5,3	12	$22 \cdot 10^{-3}$
4,65	5	$25 \cdot 10^{-3}$
4,1	3,3	$34 \cdot 10^{-3}$
3,6	2	$45 \cdot 10^{-3}$
3,11	1,5	$58 \cdot 10^{-3}$

Tabelle II 1 Anzahl und dominierender Durchmesser der Mikrotröpfchen, die von Luftblasen mit dem Durchmesser d_B infolge Zerplatzen erzeugt werden



Zusammenhang zwischen Blasendurchmesser d_B und Aerosoleigenvolumen V_p . Die Kreuze (x) sind den Meßwerten der Tab. 1 zuzuordnen.

Abb. II 1

4. Quantitative Betrachtungen

Im vorliegenden Kapitel wird gezeigt, daß beim Blasensieden wäßriger Lösungen Aerosole mit einem Austragsanteil von etwa 10^{-3} aus der Flüssigkeit freigesetzt werden.

Für den Siedebblasendurchmesser wird nach Stichlmair /11/ angesetzt

$$d_B = \sqrt{\frac{6 \cdot \sigma}{(\rho_{F1} - \rho_G) \cdot g}} \quad (\text{II } 2)$$

mit den Bezeichnungen

- d_B : Blasendurchmesser
- ρ_{F1} : Dichte der die Blase umgebenden Flüssigkeit
- ρ_G : Dichte des Gases der Blase
- g : Erdbeschleunigung
- σ : Oberflächenspannung

wobei die Annahme zugrundeliegt, daß Auftriebskraft und Widerstandskraft der Blase im Gleichgewicht stehen.

Für reines Wasser bei einer Temperatur von 100°C ergibt sich mit den Stoffdaten

$$\begin{aligned} \sigma &= 58,9 \cdot 10^{-3} \quad (\text{vergl. /15/}) \\ \text{und } \rho_{F1} &= 958,1 \text{ kg/m}^3 \quad (\text{vergl. /9/}) \end{aligned}$$

gemäß Beziehung (II 2) ein Siedebblasendurchmesser

$$d_B = 6,1 \cdot 10^{-3} \text{ m.}$$

Die Gasdichte ρ_G wurde dabei gegenüber ρ_{F1} vernachlässigt.

Das Eigenvolumen V_P der pro Siedebblasenzerfall entstehenden Aerosole beträgt in diesem Fall nach Abbildung II 1 etwa $V_P = 18 \cdot 10^{-14} \text{ m}^3$.

Das Volumen einer Siedeblase V_B berechnet sich gemäß

$$V_B = \frac{1}{6} \cdot \pi \cdot (d_B)^3 \quad (\text{II } 3).$$

Mit dem oben ermittelten Blasendurchmesser d_B folgt $V_B = 1,19 \cdot 10^{-7} \text{ m}^3$. Die entsprechende Blasenmasse M_B ergibt sich hieraus über die ideale Gasgleichung zu

$$M_B = \frac{V_B \cdot P_D \cdot \varphi_D}{R \cdot T} \quad (\text{II } 4).$$

mit den Bezeichnungen

- P_D : Dampfdruck im Blaseninneren
- φ_D : Molekulargewicht des Dampfes in kg/Mol
- R : Ideale Gaskonstante
- T : Siedetemperatur.

Mit einem Blasendampfdruck $P_D = 1 \text{ atm}$ sowie mit den Daten $\varphi_D = 0,018 \text{ kg/Mol}$ und $T = 373^\circ\text{K}$ für Wasser folgt aus der Gleichung (II 4) für die Blasenmasse M_B ein Wert von $M_B = 7 \cdot 10^{-8} \text{ kg}$.

Die Bildungsrate der Siedeblasen f ist durch

$$f = \frac{\dot{M}_V}{M_B} \quad (\text{II } 5)$$

gegeben, wobei \dot{M}_V den Verdampfungsmassenstrom angibt.

Diese Rate f wird der Anzahl der pro Zeiteinheit zerplatzenden Dampfblasen gleichgesetzt.

Die totale Austragsrate \dot{V}_{Pt} des Eigenvolumens der infolge Blasenzerfall entstehenden Aerosole bestimmt sich damit zu

$$\dot{V}_{Pt} = f \cdot V_P \quad (\text{II } 6)$$

Für die durch das Verdampfen bedingte zeitliche Volumenänderung der Flüssigkeit \dot{V}_V gilt andererseits

$$\dot{V}_V = \frac{\dot{M}_V}{\rho_{Fl}} \quad (\text{II } 7)$$

Der Austragsanteil F der beim Blasensieden gebildeten Aerosole folgt damit zu

$$F = \frac{\dot{V}_{Pt}}{\dot{V}_V} \quad (\text{II } 8)$$

Unter Ausnutzung der Beziehungen (II 5), (II 6) und (II 7) ergibt sich

$$F = \frac{V_P \cdot \rho_{Fl}}{M_B} \quad (\text{II } 9).$$

Die oben angegebenen Zahlenwerte der Größen V_P , ρ_{Fl} und M_B liefern für F den Zahlenwert $F = 2,5 \cdot 10^{-3}$.

Dieses Ergebnis wurde für den Aerosolaustrag beim Zerplatzen reiner Wasserdampfblasen gewonnen. Es zeigt sich jedoch, daß sich allgemein für das Blasensieden wäßriger Lösungen Aerosolaustragsanteile der gleichen Größenordnung $F \approx 10^{-3}$ ergeben, falls man für die Größen V_P und d_B den funktionalen Zusammenhang gemäß Abbildung II 1 zugrundelegt.

Man hat hierzu in die Beziehungen (II 2) und (II 4) die entsprechenden Stoffdaten einzusetzen und anhand von Gleichung (II 2) das zugehörige Aerosoleigenvolumen V_P aus Abbildung II 1 zu entnehmen. Anwendung der Gleichungen (II 3), (II 4) und (II 9) liefert dann den gesuchten Aerosolaustragsanteil.

Ein wesentlicher Grund für diese größenordnungsmäßige Übereinstimmung des Austragsanteils F bei Anwendung der obigen Vorgehensweise ist darin zu sehen, daß zwischen den Oberflächenspannungen σ gängiger, (verdünnter anorganischer) wäßriger Lösungen nur geringfügige Unterschiede bestehen (nach /13/ max. ca. 10 %).

So führt eine Berechnung von F nach dem obigen Schema mit den Stoffdaten verschiedener wäßriger Elektrolyte (vergl. /13/, /19/) zu der Ungleichung

$$1 \cdot 10^{-3} < F < 3 \cdot 10^{-3} \quad (\text{II } 10).$$

Erwähnenswert wäre hier z. B. eine 5-molare wäßrige HNO_3 -Lösung, da diese das physikalisch chemische Verhalten von hochaktivem flüssigem Abfall aus der Wiederaufarbeitung repräsentiert. Mit den entsprechenden Stoffwerten (vergl. /13/, /19/) ergibt sich in diesem Fall

$$F = 1,3 \cdot 10^{-3}.$$

5. Diskussion

Wie dem vorangehenden Kapitel zu entnehmen ist, wurde angenommen, daß die den hier angestellten Überlegungen zugrunde liegenden, an reinem Wasser gewonnenen Messwerte der Tabelle II 1 und die daraus resultierende Abbildung II 1 allgemeine auf wäßrige Lösungen übertragbar sind.

Physikalisch ist zu erwarten, daß die Menge der beim Zerfall einer Siedeblase gegebener Größe entstehenden Aerosole wesentlich durch die Oberflächenspannung der betreffenden Flüssigkeit bestimmt wird. In Kapitel 4 dieses Anhangs wurde jedoch bereits darauf hingewiesen, daß zwischen den Oberflächenspannungen der hier betrachteten Flüssigkeiten nur geringfügige Unterschiede bestehen. Die Übertragbarkeit der besagten Messdaten auf diese Flüssigkeiten ist daher gerechtfertigt.

Zu der Anwendung von Gleichung (II 2), die nach /4/ und /11/ die Berechnung eines stabilen Siedeblasendurchmessers ermöglicht, ist festzuhalten: Nach /4/ treten beim Sieden einer Flüssigkeit neben den genannten "stabilen" Dampfblasen auch Blasen mit kleinem Durchmesser auf, über deren Größenverteilung jedoch keine genauen Angaben vorliegen. Zur Klärung dieser Frage bedarf es weiterer Experimente, welche den Einfluß von Stoffeigenschaften (z. B. Dichte, Oberflächenspannung, nuklidspezifische Effekte) und ggf. Behälterwandeffekten berücksichtigen. In einem ersten Schritt wird im Rahmen der hier angestellten Betrachtungen die Beziehung (II 2) zur modellmäßigen Bestimmung des Siedeblasendurchmessers verwendet.

Für die hier betrachteten Flüssigkeiten liefert die Gleichung (II 2) Blasendurchmesser zwischen etwa 4,5 mm und 6 mm. Eine Variation der Größe d_B in diesem Bereich führt unter Verwendung des in Kapitel 4 dieses Anhangs vorgestellten Berechnungsschemas sowie der Abbildung II 1 stets zu Aerosolfreisetzungbruchteilen der Größenordnung 10^{-3} . Diese Aussage gilt auch dann, wenn man für $d_B > 5,3$ mm das zugehörige Aerosoleigenvolumen großzügig nach oben (vergl. Abbildung II 1) abschätzt.

In diesem Zusammenhang sei erwähnt, daß die in Abbildung II 1 eingezeichnete Kurve nicht in ihrem gesamten Wertebereich als verbindlich anzusehen ist, sondern den "quantitativen" Verlauf des funktionalen Zusammenhangs zwischen den Größen V_p und d_B unter "Anpassung" an die eingetragenen Messpunkte graphisch wiedergibt.

Wesentlich ist jedoch, daß auch bei einer anderen "Kurven-Anpassung" an die gegebenen Messpunkte der daraus resultierende Aerosolfreisetzungsbruchteil in der gleichen Größenordnung liegen wird.

Die Gesamtheit der hier angestellten Betrachtungen führt somit zu dem Ergebnis, daß beim Sieden wäßriger Lösungen Aerosole nach dem hier entwickelten Modell mit einem Freisetzungsbruchteil

$$F \approx 10^{-3}$$

aus der Flüssigkeit ausgetragen werden, womit eine befriedigende Übereinstimmung mit den eingangs erwähnten, von Mishima et al. gewonnenen experimentellen Befunden an verdampfenden Pu-Nitratlösungen (vergl. Kapitel 2) besteht.

Bei der Anwendung des Aerosolaustragsmodells auf siedende wäßrige radioaktive Lösungen ist zu klären, inwieweit der Einfluß nuklidspezifischer Effekte auf die Oberflächenspannung σ eine Rolle spielen, da diese Größe über die Gleichung (II 2) in die Modellierung des Aerosolaustrags eingeht. Es ist daher notwendig, derartige Einflüsse im Rahmen geeigneter Experimente zu untersuchen, um dadurch das oben beschriebene Modell abzusichern.

Abschließend sei festgestellt, daß die hier angestellten Betrachtungen teilweise auch zu modellmäßigen Beschreibung des Aerosolaustrags aus wäßrigen Lösungen infolge Zerplatzen von Perlluftblasen an der Oberfläche der betreffenden Flüssigkeit verwendet werden können (siehe Kapitel 2.2 des Haupttextes).

Gemäß der Gleichung (16) des Haupttextes (siehe Seite 14) wird dieser Aerosolaustrag durch die Größe

$$\frac{V_P}{V_B}$$

bestimmt, wobei der Index B in diesem Fall eine Perlluftblase kennzeichnet.

Nach der Gleichung (II 2) bzw. (13) des Haupttextes, ist dieses Verhältnis für die hier diskutierten Lösungen über die Oberflächenspannung σ geringfügig temperaturabhängig (siehe /13/, /19/).

Durch Einsetzen der Stoffwerte für die hier betrachteten Flüssigkeiten in die Gleichung (II 2) und Anwendung des obigen Berechnungsschemas kann gezeigt werden, daß der Zahlenwert von

$$\frac{V_P}{V_B}$$

für reines Wasser stets größer als für eine wäßrige Lösung ist. Nach Kapitel 2.2 des Haupttextes ist diese Aussage im Rahmen einer konservativen modellmäßigen Ermittlung des Aerosolaustrags infolge Zerplatzen von Perlluftblasen von Bedeutung.

ANHANG III

Quantitative Betrachtungen zur
Häufigkeitsverteilung der beim Sieden
wäßriger Lösungen entstehenden Aerosole

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung und Zusammenfassung
2. Grundlagen
3. Betrachtungen zur Verteilungsdichte des Aerosoltröpfchen-Durchmessers
4. Betrachtungen zur Verteilungsdichte des Aerosoltröpfchen-Volumens
5. Diskussion

1. Einleitung und Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht enthält einige ergänzende Betrachtungen zu den in Anhang II angestellten Überlegungen zur Aerosolentstehung beim Sieden wäßriger Lösungen.

Nach Anhang II weisen die Durchmesser des beim Blasensieden entstehenden Aerosolsystems eine Gauß-Verteilung auf, so daß der häufigste und mittlere Aerosolteilchendurchmesser übereinstimmen.

Die hieraus resultierende Aerosolvolumenverteilungsdichte wird jedoch von einer Gauß-Funktion abweichen /27/; d. h. das mittlere und das häufigste Eigenvolumen der pro Siedebblasenzerplatzungsvorgang entstehenden Aerosoltröpfchen werden sich voneinander unterscheiden.

In Anhang II wurde dieser Unterschied nicht berücksichtigt. Die gemäß der dort angegebenen Gleichung (II 1) errechnete Größe V_p stellt streng genommen das häufigste und nicht das mittlere Eigenvolumen der pro Blasenzerfall gebildeten Aerosole dar.

Wie im vorliegenden Bericht gezeigt wird, führt die exakte theoretische Betrachtung der Volumen-Wahrscheinlichkeitsverteilung bei der Behandlung des Aerosolaustrags infolge Blasensieden wäßriger Lösungen* zu einem Austragsanteil von maximal $3 \cdot 10^{-3}$. Dieses Ergebnis liegt in der gleichen Größenordnung wie der in Anhang II ermittelte Wert (10^{-3}).

* Entsprechend Anhang II handelt es sich hierbei um verdünnte wäßrige Lösungen, deren Oberflächenspannung um nicht mehr als 10 % von der des Wassers abweicht.

2. Grundlagen

In /4/ werden Untersuchungen des beim Zerplatzen von Siedebblasen entstehenden Tröpfchenspektrums beschrieben. Aus den zugehörigen Meßkurven geht hervor, daß bei Annahme einer Gauß-Verteilung für den Tröpfchendurchmesser d die Varianz $\bar{\sigma}$ der Verteilungsdichte im Bereich $5 \mu\text{m} < \bar{\sigma} < 10 \mu\text{m}$ liegt. Daher wird für die nachfolgenden theoretischen Betrachtungen auch dieser Bereich zugrundegelegt.

Weiterhin gilt nach Anhang II für den Durchmesser d_B der Siedebblasen $4,5 \text{ mm} < d_B < 6 \text{ mm}$ mit dem Mittelwert $d_B = 5,3 \text{ mm}$, so daß für die Rechnungen die Werte aus Zeile 1 in Tabelle (II 1) von Anhang II verwendet werden (im Mittel 12 Mikrotröpfchen/Zerplatzungsvorgang mit dem mittleren Durchmesser $\bar{d} = 22 \mu\text{m}$).

Als Modellflüssigkeit wird wäßrige Salpetersäurelösung mit $\rho_{F1} = 1,2 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$ gemäß /19/ betrachtet. In diesem Fall gilt nach den Beziehungen (II 2), (II 3) und (II 4) aus Anhang II $M_B = 4,6 \cdot 10^{-8} \text{ kg}$. Bezeichnet V das Gesamtvolumen aller Mikrotröpfchen pro Blase, so ergibt sich nach Gleichung (II 9) aus Anhang II der Aerosolaustragsanteil

$$F = \frac{V \cdot \rho_{F1}}{M_B} \quad (\text{III } 1).$$

3. Betrachtung zur Verteilungsdichte des Aerosoltröpfchen-Durchmessers

Bei Annahme einer Normalverteilung für den Tröpfchendurchmesser d mit dem Mittelwert \bar{d} und der Varianz $\bar{\sigma}$ gilt für die Verteilungsdichte

$$p_d(d) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot \bar{\sigma}} e^{-\frac{(d-\bar{d})^2}{2\bar{\sigma}^2}} \quad (\text{III } 2),$$

wobei hier $\bar{d} = 22 \mu\text{m}$ und $5 \mu\text{m} < \bar{\sigma} < 10 \mu\text{m}$ zugrundegelegt wird.

Um zu sinnvollen Ergebnissen bezüglich der zugehörigen Tröpfchenvolumina zu gelangen, muß diese eigentlich beidseitig unendlich ausgedehnte Verteilung auf das Intervall $0 < d < \infty$ eingeschränkt werden. Beachtet man, daß die von \bar{d} aus gemessene Fläche unter der Verteilungskurve im Bereich $-2\bar{\sigma} \leq d \leq 2\bar{\sigma}$ ca. 95,45 % bzw. im Bereich $-3\bar{\sigma} \leq d \leq 3\bar{\sigma}$ ca. 99,73 % der Gesamtfläche beträgt (siehe /27/), liefert eine Vorabschätzung der Varianz die Werte $\bar{\sigma} < 2\bar{d}/4 = 11 \mu\text{m}$ bzw. $\bar{\sigma} < 2\bar{d}/6 = 7,33 \mu\text{m}$, d. h. Werte, die mit den Vorgaben übereinstimmen.

Für das Volumen eines Einzeltröpfchens gilt

$$V(d) = \frac{\pi}{6} d^3 \quad (\text{III } 3)$$

Das mittlere Volumen $\bar{V}_{\bar{\sigma}}$ erhält man aus der Verteilung des Durchmessers gemäß

$$\bar{V}_{\bar{\sigma}} = \int_0^b V(d) \cdot p_d(d) dd, \text{ d. h.} \quad (\text{III } 4)$$

$$\bar{V}_{\bar{\sigma}} = \frac{\sqrt{\pi}}{6\bar{\sigma}} \int_0^b d^3 \cdot e^{-\frac{(d-\bar{d})^2}{2\bar{\sigma}^2}} dd \quad (\text{III } 5)$$

Im Gegensatz zur Dichte $p_d(d)$ weist der Integrand in Gleichung (III 5) keinen in bezug auf \bar{d} symmetrischen Verlauf auf; das mittlere Volumen eines Einzeltröpfchens entspricht also nicht dem mittleren Durchmesser. Da der Exponentialterm gegenüber dem Potenzterm dominiert, konvergiert das Integral in jedem Fall; die Obergrenze b ist gemäß der geforderten Genauigkeit zu wählen.

In der Tabelle III 1 sind die nach der Simpson-Methode berechneten Werte des Integrals

$$J_{\bar{\sigma}} = \frac{\bar{V}_{\bar{\sigma}}}{\pi/6} = \int_0^b d^3 \cdot p_d(d) dd \quad (\text{III } 6)$$

zusammen mit den verwendeten Integrationsparametern für $\bar{\sigma} = 5, 7, 9$ und 11 (μm) angegeben. Die Tabelle enthält außerdem die Werte der Verteilungsdichte und des Integranden an äquidistanten Stützstellen. Der Verlauf der Verteilungsdichten ist zusätzlich in Abbildung III 1 dargestellt. Aus der Betrachtung der Tabelle III 1 ergibt sich, daß mit zunehmenden $\bar{\sigma}$ -Werten das Integral immer weiter über den theoretischen Symmetriebereich $0 < d < 2 \bar{d}$ hinaus erstreckt werden muß, da die zugehörigen Verteilungsdichten nicht genügend stark für $d \rightarrow 2 \bar{d}$ abfallen. Nur im Fall $\bar{\sigma} = 5$ stimmen die Integrationsgrenzen mit den angenommenen Grenzen der Durchmesser-Verteilung überein.

In der Tabelle III 2 sind die so berechneten mittleren Tröpfchenvolumina $\bar{V}_{\bar{\sigma}}$ und die diesen zuzuordnenden Durchmesser d_m in Abhängigkeit von $\bar{\sigma}$ aufgelistet. Zusätzlich sind die mittleren Gesamtvolumina $V = 12 \bar{V}_{\bar{\sigma}}$ und die gemäß Gleichung (III 1) hieraus resultierenden Werte für den Austragsanteil F angegeben. Es ergibt sich für

$$\begin{aligned} 5 &\leq \bar{\sigma} \leq 11 \quad (\mu\text{m}): \\ 23,1 &\leq d_m \leq 26,5 \quad (\mu\text{m}) \\ \text{bzw.} \quad 2 \cdot 10^{-3} &\leq F \leq 3,1 \cdot 10^{-3}. \end{aligned}$$

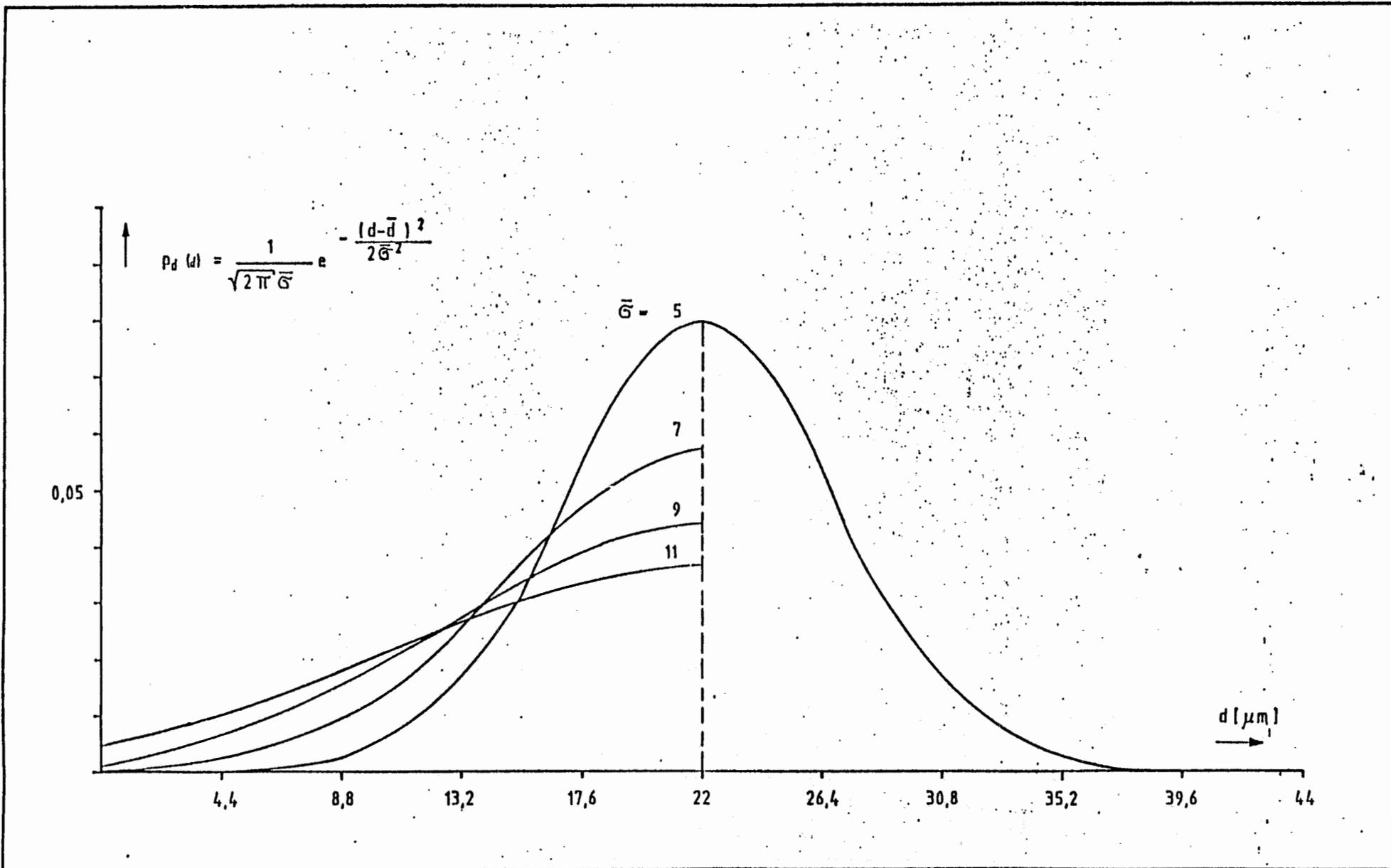
Die Größenordnung von F bleibt also unverändert.

		$\sigma = 5:$		$\sigma = 7:$		$\sigma = 9:$		$\sigma = 11:$	
\bar{d} [μm]:	d^3 [μm^3]:	$p_d(d):$	$p_x d^3:$	$p_d(d):$	$p_x d^3:$	$p_d(d):$	$p_x d^3:$	$p_d(d):$	$p_x d^3:$
0.0	-	5×10^{-6}	-	4×10^{-4}	-	0.0022	-	0.0049	-
4.4	85.2	1.6×10^{-4}	0.01	0.0024	0.21	0.0066	0.56	0.0101	0.86
8.8	681	0.0024	1.7	0.0096	6.6	0.0151	10.3	0.0177	12.0
13.2	2300	0.0170	39	0.0259	59	0.0275	63	0.0263	61
17.6	5452	0.0542	295	0.0468	255	0.0393	214	0.0335	183
22.0	10648	0.0798	850	0.0570	607	0.0443	472	0.0363	386
25.0	15625	0.0666	1041						
26.4	18400		997		861		724		61.6
27.4	20571			0.0423	871				
30.1	27271					0.0296	806		
30.8	29218		495		756		803		769
33.0	35937							0.0220	791
35.2	43614		107		420		639		770
39.6	62099		10.1		150		407		626
44.0	85184		0.42		35		190		413
48.4	113380				5.2		68		231
52.8	147198				0.52		18.7		106
57.2	187149						4.0		41
61.6	233745						0.65		13.0
66	287496								3.5
70.4	348914								0.80
$J_{\bar{d}}/b:$		12288/44		13881/52.8		15993/61.1		18638/70.4	

Infolge der Symmetrie von $p_d(\bar{d})$ sind nur Werte bis $\bar{d} = 22 \mu\text{m}$ angegeben.

Tabelle III I Wertetabelle zur Berechnung von $\bar{V}_{\bar{\sigma}} = J_{\bar{\sigma}} \cdot \pi/6$ mit $J_{\bar{\sigma}} = \int_0^b d^3 \cdot p_d(d)$

Die eingerahmten Werte beziehen sich auf die jeweiligen Dichte-Maxima



Verlauf der Normalverteilungskurven $p_d(d)$ für $\bar{d} = 22 \mu\text{m}$ bei verschiedener Werten der Varianz $\bar{\sigma}^2 [\mu\text{m}]$

Abb. III 1

$\bar{\sigma}$:	\bar{V} [μm^3]:	d_m [μm]:	V [μm^3]:	F
5	6434	23.1	77208	$2.0 \cdot 10^{-3}$
7	7268	24.0	87216	$2.3 \cdot 10^{-3}$
9	8374	25.2	100493	$2.6 \cdot 10^{-3}$
11	9759	26.5	117112	$3.1 \cdot 10^{-3}$

Tabelle III 2 Aerosolvolumina und Austragsanteile

d [μm]:	V(d) [μm^3]:	$\bar{\sigma} = 5$:	$\bar{\sigma} = 7$:	$\bar{\sigma} = 9$:	$\bar{\sigma} = 11$:
4.4	44.6	$5 \cdot 10^{-6}$	$7.9 \cdot 10^{-5}$	$2.15 \cdot 10^{-4}$	$3.32 \cdot 10^{-4}$
8.8	357	$2.0 \cdot 10^{-5}$	$7.9 \cdot 10^{-5}$	$1.24 \cdot 10^{-4}$	$1.45 \cdot 10^{-4}$
13.2	1204	$6.2 \cdot 10^{-5}$	$9.4 \cdot 10^{-5}$	$1.00 \cdot 10^{-4}$	$9.6 \cdot 10^{-5}$
15.8	2065	→	$9.8 \cdot 10^{-5}$		
17.6	2855	$1.11 \cdot 10^{-4}$	$9.6 \cdot 10^{-5}$	$8.1 \cdot 10^{-5}$	$6.7 \cdot 10^{-5}$
19.4	3823	$1.17 \cdot 10^{-4}$			
22.0	5575	$1.05 \cdot 10^{-4}$	$7.5 \cdot 10^{-5}$	$5.8 \cdot 10^{-5}$	$4.8 \cdot 10^{-5}$
26.4	9634	$4.9 \cdot 10^{-5}$	$4.3 \cdot 10^{-5}$	$3.6 \cdot 10^{-5}$	$3.1 \cdot 10^{-5}$
30.8	15229	$1.1 \cdot 10^{-5}$	$1.7 \cdot 10^{-5}$	$1.8 \cdot 10^{-5}$	$1.8 \cdot 10^{-5}$
35.2	22836	$1 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-6}$	$8 \cdot 10^{-6}$	$9 \cdot 10^{-6}$
39.6	32515	$7 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-6}$	$4 \cdot 10^{-6}$

Tabelle III 3

Wertetabelle zur Berechnung von $p_d(V)$

Die eingerahmten Werte geben den Durchmesser d_h des häufigsten Volumens für $\bar{\sigma} = 5$ bzw. 7 an

4. Betrachtungen zur Verteilungsdichte des Aerosoltröpfchen-Volumens

Allgemein besteht zwischen den eindimensionalen Wahrscheinlichkeitsverteilungen $p_x(x)$ und $p_y(y)$ mit $y = f(x)$ der Zusammenhang

$$p_y(y) dy = p_x(x) dx, \quad (\text{III } 7)$$

d. h.
$$p_y(y) = \frac{dx}{dy} p_x(x) \quad (\text{III } 8)$$

oder
$$p_y(y) = \frac{1}{dy/dx} p_x(x) \quad (\text{III } 9)$$

Für die hier behandelte Volumenverteilung ergibt sich daher mit $p_d(d)$ sowie

$$V(d) = \frac{\pi}{6} d^3 \text{ und } \frac{dV}{dd} = \frac{\pi}{2} \cdot d^2 \quad (\text{III } 10)$$

$$p_V[V(d)] \cong p_d(V) = \frac{1}{\pi \sqrt{\pi/2} \cdot \bar{\sigma} \cdot d^2} e^{-\frac{(d-\bar{d})^2}{2\bar{\sigma}^2}} \quad (\text{III } 11).$$

Die Singularität dieser Verteilungsdichte bei $d = 0$ resultiert aus der Annahme einer Gauß-Verteilung für den Aerosoltröpfchen-Durchmesser. Diese Annahme ist im strengen physikalischen und mathematischen Sinn nicht richtig, da die Verteilung, wie bereits erwähnt, nach links bei $d = 0$ begrenzt ist.

Das Maximum der Volumen-Verteilungsdichte erhält man aus

$$\frac{d}{dV} p_d(V) = -\frac{1}{\pi \sqrt{\pi/2}} e^{-\frac{(d-\bar{d})^2}{2\bar{\sigma}^2}} \frac{2}{\bar{\sigma} \cdot d^3} + \frac{2(d-\bar{d})}{2\bar{\sigma}^3 d^2} = 0 \quad (\text{III } 12).$$

Es folgt
$$d^2 - d\bar{d} + 2\bar{\sigma}^2 = 0 \quad (\text{III } 13),$$

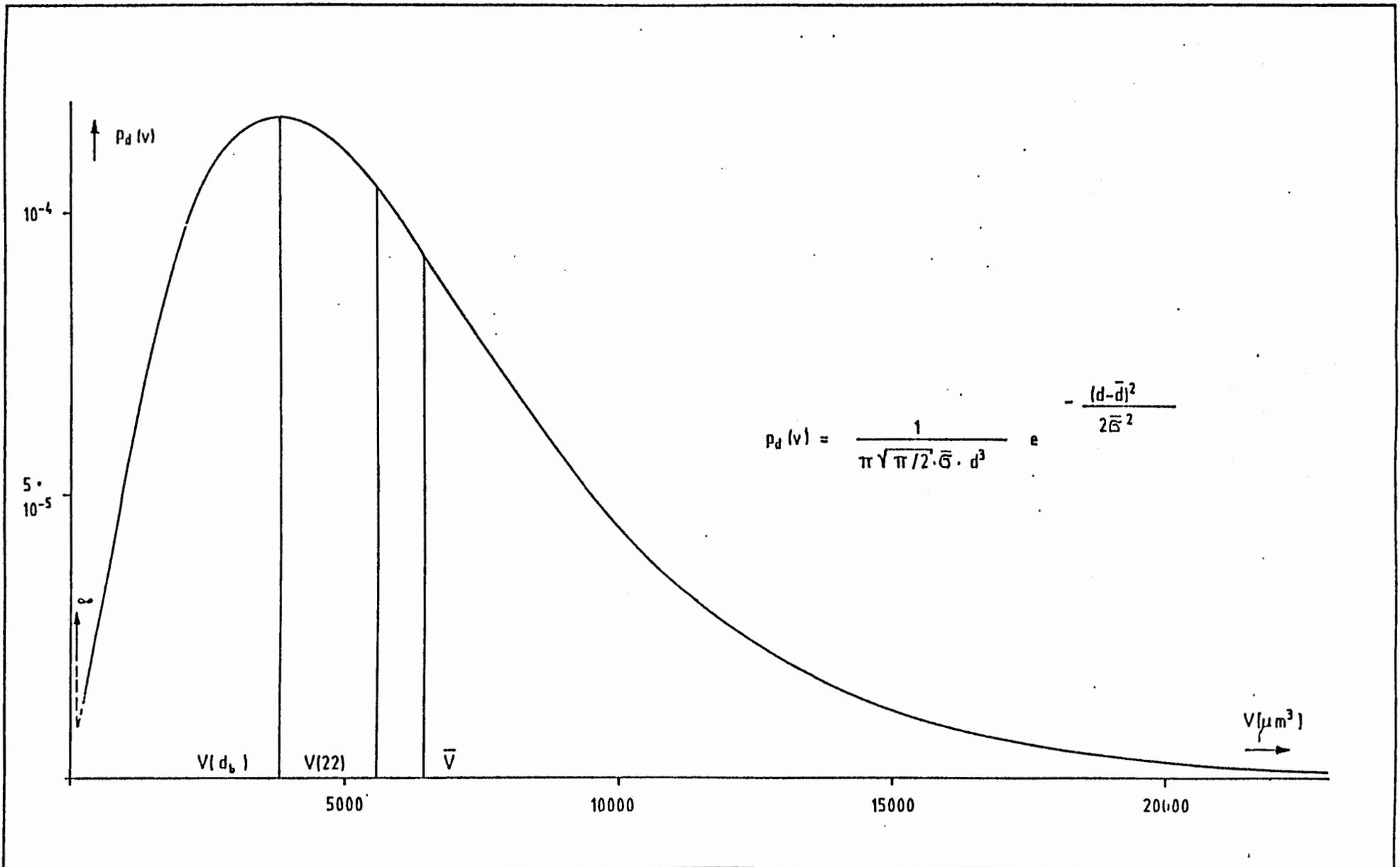
und daher für den Durchmesser des am häufigsten auftretenden Tröpfchenvolumens $d = d_h$:

$$d_h = \frac{1}{2} (\bar{d} + \sqrt{\bar{d}^2 - 8\bar{\sigma}^2}). \quad (\text{III } 14).$$

Der negative Wurzelwert führt aufgrund der Gauß-Hypothese nicht zu sinnvollen Ergebnissen. Bei $\bar{\sigma} = 9$ bzw. 11 nimmt d_h komplexe Werte an. Offenbar gilt $d_h \rightarrow d$, falls $\bar{\sigma} \rightarrow 0$ bzw. $d \rightarrow \infty$ oder allgemein $\bar{d} \gg \bar{\sigma}$. Im Idealfall ist theoretisch $d_h = \bar{d}$.

Tabelle III 3 enthält eine Werteliste von $p_d(V)$ mit Angabe der Extremwerte, wiederum für $\bar{\sigma} = 5, 7, 9$ und 11 . Wie man sieht, liefert auch hier nur der Fall $\bar{\sigma} = 5$ eine sinnvolle Verteilungsdichte mit einem ausgeprägten Maximum bei $d = 19,4 \mu\text{m}$. Bei größeren $\bar{\sigma}$ -Werten verschiebt sich das Maximum immer weiter nach links und wird schließlich für $V \rightarrow 0$ durch den dominierenden Anteil $\frac{1}{d^2}$ in Gleichung (III 11) überdeckt.

In Abbildung III 2 ist der Verlauf der Verteilungsdichte $p_d(V)$ für $\bar{\sigma} = 5$ dargestellt.



Verlauf der Volumen-Verteilungsdichte: $p_d(V)$ für normalverteilte Durchmesser mit $\bar{d} = 22 \mu\text{m}$ und $\bar{\sigma} = 5 \mu\text{m}$

Abb. III 2

5. Diskussion der Ergebnisse

Aus den bisher gewonnenen Resultaten geht hervor, daß die Annahme einer Gauß-Verteilung für den Durchmesser der Mikrotröpfchen, die beim Zerplatzen von Siedebblasen entstehen, eine vernünftige Beschreibung der Volumenverteilung im Aerosol ermöglicht. Vom theoretischen Standpunkt aus werden die Ergebnisse um so befriedigender, je kleiner dabei der Wert von $\bar{\sigma}$ gewählt wird, dies wird im Fall von $\bar{\sigma} = 5$ deutlich. Wesentlich im Hinblick auf die Behandlung des Aerosolaustrags aus wäßrigen Lösungen ist jedoch die Erkenntnis, daß der Wert des Austragsanteils F auch bei Annahme höherer Varianzen sich nur geringfügig ändert.

ANHANG IV

**Mathematische Beschreibung der
instationären Aufheizung hochaktiver flüssiger Abfälle
infolge Kühlausfall**

Quantitative Bestimmung der instationären Aufheizung eines Tanklagers für hochaktive flüssige Abfälle

Der vorliegende Anhang beinhaltet die Herleitung der Gleichungen (24) bis (26) bzw. (37) und (38), die die instationäre Aufheizung eines Tanklagers für flüssige hochaktive Abfälle infolge teilweisen bzw. vollständigen Kühlausfalls beschreiben (siehe Kapitel 3).

Nach den Ausführungen von Kapitel 3 wird dabei vorausgesetzt, daß die von dem Tanklager durch Konvektion und Strahlung pro Zeiteinheit nach außen abgeführte Wärme sehr viel kleiner als die Quellwärmeleistung der betreffenden radioaktiven Flüssigkeit ist.

Die Ermittlung der Zeitabhängigkeit der instationären Temperaturerhöhung erfolgt in Anlehnung an das in Kapitel 4 beschriebene fiktive Tanklager:

Demnach wird der Tanklagerinhalt im normalen Betriebszustand durch zwei Kühlstränge auf einer Temperatur T_1 gehalten. Bei Intaktsein von nur noch einem Kühlstrang stellt sich eine überhöhte Temperatur T_2 ein. Schließlich kommt es bei Totalausfall sämtlicher Kühlstränge zum Sieden der Tankflüssigkeit.

Es sei hierzu angemerkt, daß die von dem fiktiven Tanklager durch Konvektion und Strahlung nach außen pro Zeiteinheit abgegebene Wärme allerhöchstens 3 % der Nachzerfallswärmeleistung des Tankinhalts beträgt, so daß die obige Voraussetzung erfüllt ist. Dieses Ergebnis läßt sich mit den Standardbeziehungen der Wärmeübertragungstheorie (siehe /24/) unter Verwendung der geometrischen und physikalischen Kenndaten des Tanklagers (vergl. Tabelle 4, Abbildung 4) relativ leicht abschätzen.

a) Aufheizung der Flüssigkeit von T_1 und T_2

Zur Beschreibung der Aufheizung der Flüssigkeit von T_1 auf T_2 infolge Teilausfall der Kühlung wird der Energiesatz

$$CF \cdot M \cdot \frac{dT(t)}{dt} = L \cdot K \cdot (T(t) - T_M) \quad (IV 1)$$

mit den Bezeichnungen

CF	:	Spezifische Wärme des Tankinhalts
M	:	Masse des Tankinhalts
$T(t)$:	Temperatur des Tankinhalts zur Zeit t
L	:	Quellwärmeleistung der Tankflüssigkeit infolge radioaktiven Zerfalls
K	:	Produkt aus Wärmeübergangskoeffizient und Wärmeaustauschfläche zwischen Tankflüssigkeit und intaktem Kühlstrang
TM	:	Mittlere Kühlwassertemperatur im intakten Kühlstrang

verwendet.

Die Bestimmung der Größe TM erfolgt anhand der Vor- und Rücklauftemperaturen des primären und sekundären Kühlkreislaufs (vergl. Abbildung 5).

Für das Beispiel des fiktiven Tanklagers stellt sich im bestimmungsgemäßen Betrieb mit $T_1 \approx 50^\circ\text{C}$ eine mittlere Kühlwassertemperatur $TM \approx 33^\circ\text{C}$ im Sekundärkühlkreis ein (siehe Abbildung 5).

Unter der Voraussetzung, daß während der Aufheizperiode auf $T_2 \approx 75^\circ\text{C}$ infolge Teilkühlungsausfall die Vorlauftemperatur des primären Kühlkreises den konstanten Wert 26°C beibehält (vergl. Abbildungen 5, 6) werden sich im gestörten Betriebszustand bei $T_2 \approx 75^\circ\text{C}$ die Vor- und Rücklauftemperaturen entsprechend Abbildung 6 einstellen. Diese Daten ergeben sich unmittelbar aus den entsprechenden Zahlen der Abbildung 5, wenn man berücksichtigt, daß sich aufgrund des Kühlstrangausfalls die wärmeübertragenden Flächen halbieren. Zur Abfuhr der gleichen pro Zeiteinheit anfallenden Wärme müssen sich daher die einzelnen treibenden Temperaturdifferenzen verdoppeln.

Die hierbei getroffene Annahme einer unveränderten Primärkreisvorlauftemperatur von 26°C ist berechtigt, da sich (vergl. Abbildung 6) das Rücklaufwasser vor Erreichen der Kühltürme in dem Sammelbecken mit den übrigen Rücklaufströmen vermischt, so daß die Auslegungstemperatur der Kühltürme von 32°C praktisch nicht überschritten wird.

Die sich neu einstellende mittlere Kühlwassertemperatur im Sekundärkühlkreis beträgt nach Abbildung 6 somit $T_M = 40^\circ\text{C}$.

Damit läßt sich aus der Gleichung (IV 1) die Größe K ermitteln (siehe Tabelle 5), da im gestörten Betriebszustand bei $T_2 = 75^\circ\text{C}$ die linke Seite dieser Gleichung den Wert Null annimmt.

Zu ihrer Lösung wird konservativ angenommen, daß die mittlere Kühlwassertemperatur T_M während der Aufheizperiode den festen Wert $T_M = 40^\circ\text{C}$ besitzt (vergl. auch Tabelle 5), der sich nach den obigen Ausführungen streng genommen erst am Ende der Aufheizperiode einstellt.

Im Anhang V wird für das Beispiel des fiktiven Tanklagers gezeigt, daß der Massenverlust der Flüssigkeit infolge Verdunstung während der Aufheizphase von T_1 auf T_2 bedingt durch Kühlstrangausfall um mehrere Zehnerpotenzen unter der Anfangsmasse $M_A = 1,2 \cdot 10^6$ kg (vergl. Tabelle 2 und 5) liegt. Aus diesem Grunde wird die in Gleichung (IV 1) auftretende Masse M der Anfangsmasse M_A gleichgesetzt. Die Beziehung (IV 1) läßt sich damit in eine inhomogene Differentialgleichung erster Ordnung mit konstanten Koeffizienten überführen:

$$\frac{dT(t)}{dt} = \frac{L+K \cdot T_M}{CF \cdot M_A} - \frac{K}{CF \cdot M_A} \cdot T(t) \quad (\text{IV } 2).$$

Eine derartige Gleichung läßt sich nach Standardverfahren (siehe /25/) lösen. Im vorliegenden Fall ist die Lösung durch das System der Gleichungen (24) bis (26) in Kapitel 3 gegeben.

b) Aufheizung der Flüssigkeit von T_2 auf Siedetemperatur

Aufgrund der vorangehenden Betrachtungen wird die Aufheizung der Tankflüssigkeit infolge Totalausfall sämtlicher Kühlstränge durch die Beziehung

$$CF \cdot M \cdot \frac{dT(t)}{dt} = L \quad (\text{IV } 3)$$

mit den gleichen Symbolen wie in Gleichung (IV 1) beschrieben. Mit der Annahme $M = M_A$ analog zu den Ausführungen zu a) (vergl. auch Anhang V) lautet die Lösung von Gleichung (IV 3)

$$T(t) = T_A + \frac{L}{C_F \cdot M_A} \cdot t \quad (\text{IV } 4),$$

die mit der Anfangstemperatur T_A ($\cong T_2$) den Gleichungen (37) und (38) in Kapitel 3 äquivalent ist.

ANHANG V

Ermittlung des Massenverlustes
hochaktiver flüssiger Abfälle
infolge Verdunstung bei instationärer Aufheizung

Quantitative Bestimmung des Massenverlustes einer verdunstenden radioaktiven Flüssigkeit bei instationärer Aufheizung

Die nachfolgenden Ausführungen beinhalten die Erläuterung der Gleichungen (27) bis (29), die den Massenverlust einer radioaktiven wäßrigen Lösung infolge Verdunstung bei instationärer Aufheizung beschreiben (siehe Kapitel 3). Es wird dabei teilweise auf das in Kapitel 4 beschriebene Anwendungsbeispiel des fiktiven Tanklagers Bezug genommen.

Die Gleichung (27) stellt eine Näherung der Clausius-Clapeyron-Gleichung dar. Sie gibt den Sättigungsdampfdruck P_S als Funktion der Temperatur T wieder. Nach /15/ sind dabei die Annahmen zu treffen, daß sich Wasserdampf wie ein ideales Gas verhält und die Verdampfungsenthalpie von Wasser temperaturunabhängig ist; d. h. die in der Gleichung auftretende Größe H stellt einen mittleren Wert dar.

Die Beziehung (28) beschreibt nach /8/ den Feuchtegehalt von gesättigter Luft X_S bei gegebenem Gesamtdruck P_G in kg Feuchte/kg trockene Luft .

Gleichung (29) repräsentiert einen Ansatz für den Feuchtegehalt X in kg Feuchte/kg trockene Luft über der Flüssigkeitsoberfläche. Ihr liegt die Vorstellung zugrunde, daß die Größe $\frac{X}{X_S}$ linear mit der Flüssigkeitstemperatur während der Aufheizung zunimmt. Wie im folgenden gezeigt wird, ist dieser Ansatz für das fiktive Tanklager physikalisch sinnvoll:

Hierzu wird auf die Beziehungen (1) und (2) in Kapitel 2.2 bzw. auf Gleichung (30) von Kapitel 3 zurückgegriffen.

Anhand des Spülluftvolumenstroms (vergl. Tabelle 3) und der Geometriedaten des Tanklagers (vergl. Tabelle 2) läßt sich über die Kontinuitätsgleichung leicht abschätzen, daß die Spülluftgeschwindigkeit an der Oberfläche der Tankflüssigkeit verschwindend klein ist. Es ist daher gerechtfertigt, die in Gleichung (2) auftretende Größe v Null zu setzen. Mit Gleichung (1) bzw. Gleichung (30) folgt damit

$$\dot{M}_D(t) = 25 \frac{\text{kg}}{\text{m}^2 \text{ h}} \cdot OF \cdot (X_S(t) - X(t)) \quad (V 1),$$

wobei OF die Größe der Flüssigkeitsoberfläche und $\dot{M}_D(t)$ den Flüssigkeitsmassenverlust pro Zeiteinheit infolge Verdunstens angeben.

Auflösung der Gleichung (V 1) nach $X(t)$ liefert

$$X(t) = X_S(t) - \frac{\dot{M}_D(t)}{25 \frac{\text{kg}}{\text{m}^2 \text{h}} \cdot OF} \quad (\text{V } 2).$$

Für die Temperaturen $TC_1 = 50^\circ\text{C}$ und $TC_2 = 75^\circ\text{C}$, die gemäß Tabelle 3 die stationären Betriebszustände des Tanklagers kennzeichnen, gilt nach /8/:

$$\begin{aligned} X_S &= 0,089 & \text{für } TC_1 &= 50^\circ\text{C} & \text{und} \\ X_S &= 0,403 & \text{für } TC_2 &= 75^\circ\text{C}. \end{aligned}$$

Einsetzen dieser Daten sowie der zugehörigen Massenströme \dot{M}_D aus Tabelle 3 und der Fläche $OF = 213,85 \text{ m}^2$ (siehe Tabelle 2) in Gleichung (V 2) liefert die Zahlenwerte

$$\begin{aligned} X &= 0,085 & \text{für } TC_1 &= 50^\circ\text{C} & \text{und} \\ X &= 0,387 & \text{für } TC_2 &= 75^\circ\text{C}. \end{aligned}$$

Für die Größe $\frac{X}{X_S}$ ergibt sich damit

$$\begin{aligned} \frac{X}{X_S} &= 0,947 & \text{für } TC_1 &= 50^\circ\text{C} & \text{und} \\ \frac{X}{X_S} &= 0,961 & \text{für } TC_2 &= 75^\circ\text{C}. \end{aligned}$$

Die resultierenden Zahlen unterscheiden sich nur wenig voneinander und liegen in der Nähe von 1; d. h. erwartungsgemäß liegt nahezu Sättigung vor.

Physikalisch gesehen wird die relative Feuchte $\frac{X}{X_S}$ der Luft über der Flüssigkeitsoberfläche konvex monoton mit der Temperatur TC zunehmen.

Unter Berücksichtigung der vorangehenden Betrachtungen ist es daher sinnvoll, konservativ den linearen Ansatz

$$\frac{X}{X_S} = AC \cdot TC + BC \quad (\text{V } 3)$$

mit den Koeffizienten AC und BC zu wählen. Für den Temperaturbereich $50^{\circ}\text{C} < TC < 75^{\circ}\text{C}$ ergeben sich diese Koeffizienten mit den oben angegebenen Werten $\frac{X}{XS}$ für die Grenztemperaturen

$$\begin{aligned} TC_1 &= 50^{\circ}\text{C} \text{ und } TC_2 = 75^{\circ}\text{C} \text{ zu} \\ AC &= 5,6 \cdot 10^{-4} [^{\circ}\text{C}^{-1}] \text{ und } BC = 0,919 \\ &(\text{vergl. auch Tabelle 5}). \end{aligned}$$

Eine analoge Vorgehensweise bietet sich an, um den verdunstungsbedingten Massenaustrag während des Aufheizens der Flüssigkeit von $TC_2 = 75^{\circ}\text{C}$ auf Siedetemperatur - hervorgerufen durch den Totalausfall der Kühlung - zu beschreiben. Die entsprechenden Grenztemperaturen sind in diesem Fall $TC_2 = 75^{\circ}\text{C}$ und $TC_3 = 99^{\circ}\text{C}^*$. Der entsprechende Massenstrom \dot{M}_D für 75°C ist der Tabelle 3 zu entnehmen. Zur Ermittlung des zugehörigen Wertes für 99°C wird auf Gleichung (10) in Kapitel 2.2 zurückgegriffen. Mit den Daten für L und QV gemäß den Tabellen 4 und 7 folgt

$$\dot{M}_D = 0,96 \cdot 10^4 \frac{\text{kg}}{\text{h}} \quad \text{für} \quad TC_3 = 99^{\circ}\text{C}.$$

Nach /8/ gilt in diesem Fall $XS = 200,023$.

Aus den Gleichungen (V 2) und (V 3) ergeben sich damit analog zur obigen Vorgehensweise die Koeffizienten $AC = 1,25 \cdot 10^{-3} [^{\circ}\text{C}^{-1}]$ und $BC = 0,867$ (vergl. Tabelle 6) zur Beschreibung des verdunstungsbedingten Massenverlustes der Tanklagerflüssigkeit während der Aufheizung von $TC_2 = 75^{\circ}\text{C}$ auf Siedetemperatur infolge Totalausfall der Kühlung.

Anhand der obigen Ausführungen läßt sich abschätzen, daß der Verdunstungsmassenverlust des Tankinhalts während der Aufheizphasen von $TC_1 = 50^{\circ}\text{C}$ auf $TC_2 = 75^{\circ}\text{C}$ bzw. von $TC_2 = 75^{\circ}\text{C}$ auf Siedetemperatur bedingt durch Teil- bzw. Totalausfall der Kühlung um mehrere Größenordnungen unter der Anfangsmasse $MA = 1,2 \cdot 10^6 \text{ kg}$ (vergl. Tabellen 5, 6) liegt.

Die im Anhang IV verwendete Vorgehensweise, zur Ermittlung der zeitlichen Temperaturentwicklung während der besagten instationären Vorgänge eine konstante Flüssigkeitsmasse $M = MA$ zu verwenden, ist daher gerechtfertigt.

* Bei $TC = 100^{\circ}\text{C}$ hat XS für Wasser den Wert ∞ (siehe /8/). Daher wird $TC = 99^{\circ}\text{C}$ gewählt.

ANHANG VI

**Definitionen von Begriffen
bei Störfallbetrachtungen**

Definitionen

An verschiedenen Stellen des vorliegenden Berichts treten spezielle Begriffe auf, die im Rahmen von Störfallablaufanalysen häufig verwendet werden. Zum besseren Verständnis des Textes werden für diese sowie weitere bei Störfallbetrachtungen benutzten Begriffe in der unten aufgeführten Tabelle Definitionen angegeben.

Bezeichnung	Bedeutung
Quelle	Objekt mit Stoffinventar. Keine Stoffzufuhr, aber Abgabe durch Quelleffekte.
Quelleffekt	Physikalischer Vorgang, der Transport von Stoffen aus einer Quelle (Austrag) bewirkt.
Quellterm	Mathematische Beschreibung des Quelleffekts.
Austrag	Transport von Stoffen aus einer Quelle.
Rückhaltung	Verminderung eines Stoffstroms durch eine Barriere.
Rückhaltefaktor	Verhältnis des Stoffstroms I_2 nach einer Barriere zum Stoffstrom I_1 vor der Barriere: $I_2 = R * I_1$
Dekofaktor	Reziproker Rückhaltefaktor
Stoffstrom	Pro Zeiteinheit transportierte Stoffmenge (Dimensionen z. B.: Volumen/Zeit, Masse/Zeit, Aktivität/Zeit)
X-Rate	Größe X differenziert nach der Zeit: $\frac{dX}{dt}$
Aerosolfraktion (Aerosolaustragsanteil)	Verhältnis: Aerosolstoffstrom/Gesamtstoffstrom
X-fraktion	X-Partialstoffstrom/Gesamtstoffstrom

Tabelle VI 1 : Definition von Begriffen bei Störfallbetrachtungen

Literaturverzeichnis

- /1/ J. Mishima, L. C. Schwendiman, C. A. Radash,
"Plutonium Release Studies: IV, Fractional Release from Heating Plutonium
Nitrate Solution in a Flowing Air Stream",
BNWL 931, November 1968
- /2/ Y. Yamamoto et. al.,
Design and Operation of Evaporators for Radioactive Wastes,
Tech. Rep. Ser. No. 87, IAEA, Wien, 1968
- /3/ W. Hentschke, E. Blaß,
Mathematische Simulation der Strahl- und Tropfenbildung beim Zerplatzen von
Gasblasen an Flüssigkeitsoberflächen,
Chemie-Ing.-Technik, MS 427/76
- /4/ C. K. Gordon et al.,
On the Problem of Liquid Entrainment,
ANL-6244
- /5/ F. Baumgärtner,
Chemie der nuklearen Entsorgung, Teil II,
Verlag Karl Thiemig, München, 1978
- /6/ W. E. Unger et al.,
Aqueous Fuel Reprocessing
Quarterly Report for Period Ending September 30, 1973, ORNL-TM-4394
- /7/ A. S. Wilson,
Ruthenium Volatilization in the Distillation of Nitric Acid,
Journal of Chemical and Engineering Data, 5, 521-524 (1968).
- /8/ W. Häussler,
Das Mollier - i, x - Diagramm,
Verlag Theodor Steinkopf, Dresden 1960

- /9/ VDI-Wärmeatlas, VDI-Verlag,
3. Auflage, 1977
- /10/ E. D. Arnold, A. T. Gresky, J. P. Nichols,
The Evaluation of Radioactive Release from Chemical Plants,
ORNL-TM-19, 1961
- /11/ J. Stichlmair,
Grundlagen der Dimensionierung des Gas/Flüssigkeits-Kontaktapparates Bo-
denkolonne,
Verlag Chemie, Weinheim - New York, 1978
- /12/ A. S. Wilson,
Ruthenium Volatilization in the Distillation of Nitric Acid,
Journal of Chemical and Engineering Data, 5, 521-524 (1960)
- /13/ Handbook of Chemistry and Physics,
51st edition, 1970-1971
- /14/ ACSL-Programm-System
Mitchell & Gauthier, Assoc., Inc.,
P.O. Box 685, Conrad, Mass. 01742
- /15/ P. W. Atkins,
Physical Chemistry,
Oxford University Press 1977
- /16/ A. Becker, L. Camarinopoulos,
Programmbeschreibung RISA, Version 3.8,
Institut für Kerntechnik, TU Berlin, 1981
- /17/ XXXXXXXXXX
Eine Methode zur probabilistischen Risikoanalyse unter Verwendung dyna-
mischer Freisetzungsmodelle,
PSE-interner Arbeitsbericht Nr. 81/4,
TU Berlin, 1981

- /18/ H. Brauer,
Stoffaustausch,
Verlag Sauerländer, Aarau und Frankfurt am Main, 1971
- /19/ Küster-Thiel-Fischbeck,
Logarithmische Rechentafeln,
94. bis 99. Auflage,
Walter de Gruyter & Co., Berlin 1965
- /20/ H. Hübner,
Ausfall der Elektroversorgung einer Wiederaufarbeitungsanlage am Beispiel
WAK,
Atomwirtschaft, Januar 1982
- /21/ 
Verflüchtigungsverhalten von Spaltprodukten aus dem HAW,
Pt UB-Bericht 3, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Mai 1982
- /22/ 
Oak Ridge National Laboratory
persönliche Mitteilung, März 1982
- /23/ Konzeptunterlagen des Teilprojekts TP2 zur Störfallanalyse des Entsorgungszentrums NEZ, 1978, unveröffentlicht.
- /24/ D. R. Pitts, L. E. Sissom,
Mc Graw - Hill Book Company,
Schaum's Outline Series, 1977
- /25/ W. Walter,
Gewöhnliche Differentialgleichungen,
Springer-Verlag, 1972
- /26/ Water, A Comprehensive Treatise,
Hrsg. Felix Franks,
Plenum Press, New York/London (1972)

/27/ M. R. Spiegel,
Probability and Statistics,
Mc Graw - Hill Book Company,
Schaum's Outline Series 1975

/28/ Gemeinsames Ministerialblatt
ISSN 0341-1435
Bonn, den 15. August 1979

Zusammenstellung der verwendeten Symbole

Symbol	Bedeutung	- Einheit
a	Konstante zur Ermittlung des Aerosolaustragsanteils F	-
A	Gesamtaktivität	Ci
A	Gesamtaktivitätsaustragsrate	Ci/h
A (AE)	Aktivitätsaustragsrate infolge Aerosolbildung	Ci/h
A (H3)	Aktivitätsaustragsrate infolge HTO-Gasbildung	Ci/h
AC	Konstante zur Ermittlung der Luftfeuchte X	(°C) ⁻¹
AJ	Anfangsaktivität	Ci
AK	Konstante zur Ermittlung der Temperaturverteilung T (t)	h ⁻¹
AL	Konstante zur Ermittlung der Temperaturverteilung T (t)	K/h
AS	Spezifische Gesamtaktivität	Ci/kg
AS (H3)	Spezifische Tritiumsaktivität	Ci/kg
b	Konstante zur Ermittlung des Aerosolaustragsanteils F	K
BC	Konstante zur Ermittlung der Luftfeuchte X	-
C	Konzentration (von Krypton)	kg/m ³
c	Konstante zur Ermittlung des Aerosolaustrags	-
CF	Spezifische Wärme der Flüssigkeit	J/kg K
CK	Konstante zur Ermittlung der Temperaturverteilung T (t)	K
d	Durchmesser	m
F	Aerosolaustragsanteil	-
FG	Austragsbruchteil für gasförmiges Ruthen	-
f	Bildungsfrequenz	h ⁻¹
Gr _m	Materielle Grashoffzahl	-
g	Erdbeschleunigung	m/s ²

H	Höhe	m
H(T)	Henry-Konstante für Temperatur T	-
\dot{H}	Höhenabnahme pro Zeiteinheit	m/h
HA	Anfangshöhe	m
ΔH	Molare Verdampfungsenthalpie	J/mol
J	Integralwert	m ³
K	Produkt aus Wärmeübergangskoeffizient und Wärmeaustauschfläche	J/h K
\hat{K}	Konstante zur Berechnung des Stoffübergangskoeffizienten	-
L	Zur Verdampfung einer Flüssigkeit aufgebrachtener Wärmestrom	J/h
M	Masse	kg
\dot{M}	Massenverlust pro Zeiteinheit	kg/h
MA	Anfangsmasse	kg
n	Partikelanzahl	-
OF	Flüssigkeitsoberfläche	m ²
P	Druck	N/m ²
p	Verteilungsdichte (eindimensional)	1/m
PB	Flüssigkeitsdruck am Tankboden	atm
PG	Gesamtdruck	atm
PS	Sättigungsdampfdruck der Flüssigkeit	atm
PST	Sättigungsdampfdruck der Flüssigkeit bei der Temperatur TST	atm
PU	Umgebungsdruck	atm
QV	Massenbezogene Verdampfungsenthalpie	J/kg
R	Ideale Gaskonstante	J/mol K
Sc	Schmittzahl	-
t	Zeit	h
T	Absolute Temperatur	K
TA	Anfangstemperatur	K

TC	Celsiuswert der Temperatur	$^{\circ}\text{C}$
TM	Mittlere Temperatur	K
TST	Beliebige Vorgabetemperatur	K
v	Geschwindigkeit der Luft	m/s
V	Volumen	m^3
\dot{V}	Volumenstrom	m^3/h
x	Konstante zur Berechnung des Stoffübergangskoeffizienten	-
X	Luftfeuchte	kg/kg
XM	Molenbruch	-
XS	Sättigungsfuchte der Luft	kg/kg
β	Stoffübergangskoeffizient	$\text{Kg}/\text{m}^2 \text{ h}$
ρ	Dichte	kg/m^3
σ	Oberflächenspannung	N/m
$\bar{\sigma}$	Varianz	$\mu \text{ m}$
φ	Molmasse	kg/mol
κ	Molenbruch	-

Bedeutung der Indices:

AE	Aerosole
B	Gasblase
D	Dampf
d	Durchmesser
DL	Perlluft (Denitrierluft)
Fl	Flüssigkeit
G	Gas
h	häufig
Kr	Krypton

L	Luft
m	mittlerer
P	Mikrotropfen (Partikel)
Pt	Gesamtaerosolanteil
Ru	Ruthen
RuO ₄	Ruthen-Tetroxid
U	Umgebung
V	Verdampfen bzw. Verdunsten
σ^2	Varianz

Verzeichnis der Tabellen

Nr.	Bezeichnung
Tab. 1	Experimentelle Ergebnisse über Mikrotropfen aus /3/
Tab. 2	Daten zur Geometrie des Lagertanks
Tab. 3	Zusammenstellung der Betriebszustände des fiktiven HAW-Tanklagers
Tab. 4	Inventar des fiktiven Tanklagers
Tab. 5	Daten zur Ermittlung der zeitlichen Temperaturänderung sowie des Massen- und Aktivitätsaustrages aus dem Tanklager bei Ausfall eines Kühlstrangs
Tab. 6	Daten zur Ermittlung der zeitlichen Temperaturänderung sowie des Massen- und Aktivitätsaustrags aus dem Tanklager bei Ausfall beider Kühlstränge
Tab. 7	Daten zur Ermittlung des Massen- und Aktivitätsaustrages aus dem Tanklager für den Fall des Siedens
Tab. I 1	Aerosolfreisetzung aus verdunstenden wäßrigen Pu-(NO ₃) ₄ -Lösungen (aus /1/ entnommen)
Tab. II 1	Anzahl und dominierender Durchmesser der Mikrotröpfchen, die von Luftblasen mit dem Durchmesser d _B infolge Zerplatzen erzeugt werden
Tab. III 1	Wertetabelle zur Berechnung von $\bar{V}_{\bar{\sigma}} = J_{\bar{\sigma}} \cdot \pi / 6$ mit $J_{\bar{\sigma}} = \int_0^b d^3 \cdot p_d(d) dd$
Tab. III 3	Wertetabelle zur Berechnung von p _d (V)

Nr. Bezeichnung

Táb. VI 1 Definition von Begriffen bei Störfallbetrachtungen

[The table content is extremely faint and illegible due to low contrast and scan quality. It appears to be a multi-column table with several rows of text.]

Verzeichnis der Abbildungen

Nr.	Bezeichnung
Abb. 1	Aerosolaustragsanteil F als Funktion der Temperatur ϑ
Abb. 2	Aerosoldichte ϱ_{AE} an der Oberfläche der verdunstenden Flüssigkeit als Funktion der Temperatur ϑ
Abb. 3	Aerosolvolumenausstragsrate \dot{V}_{pt} als Funktion des Perlluftvolumeneintrittsströms \dot{V}_L a) Wasser b) 5 molare wässrige HNO_3 -Lösung
Abb. 4	Schematische Darstellung eines von Betonwänden umgebenen Lagertanks (Dimensionen in m)
Abb. 5	Schematische Darstellung der Tanklagerkühlung mit Angabe der relevanten Kühlwassertemperaturen für den bestimmungsgemäßen Betrieb ($T = 50^\circ C$)
Abb. 6	Schematische Darstellung der Tanklagerkühlung mit Angabe der relevanten Kühlwassertemperatur für den gestörten Betrieb ($T = 75^\circ C$)
Abb. 7	Zeitlicher Temperaturverlauf des HAW während des Aufheizens von $50^\circ C$ (323 K) auf $75^\circ C$ (348 K) infolge Teilausfall des Kühlsystems
Abb. 8	Zeitlicher Verlauf des Massenausstrages aus dem HAW während des Aufheizens von $50^\circ C$ (323 K) auf $75^\circ C$ (348 K) infolge Teilausfall des Kühlsystems

Nr.	Bezeichnung
Abb. 9	Zeitlicher Verlauf der durch Aerosole aus dem HAW ausgetragenen Aktivität während des Aufheizens von 50°C (323 K) auf 75°C (348 K) infolge Teilausfall des Kühlsystems
Abb. 10	Zeitlicher Verlauf der durch HTO-Dampf aus dem HAW ausgetragenen Aktivität während des Aufheizens von 50°C (323 K) auf 75°C (348 K) infolge Teilausfall des Kühlsystems
Abb. 11	Zeitlicher Temperaturverlauf des HAW während des Aufheizens von 75°C (348 K) auf Siedetemperatur infolge Totalausfall des Kühlsystems
Abb. 12	Zeitlicher Verlauf des Massenausstrags aus dem HAW während des Aufheizens von 75°C (348 K) auf Siedetemperatur infolge Totalausfall des Kühlsystems
Abb. 13	Zeitlicher Verlauf der durch Aerosole aus dem HAW ausgetragenen Aktivität während des Aufheizens von 75°C (348 K) auf Siedetemperatur infolge Totalausfall des Kühlsystems
Abb. 14	Zeitlicher Verlauf der durch HTO-Dampf aus dem HAW ausgetragenen Aktivität während des Aufheizens von 75°C (348 K) auf Siedetemperatur infolge Totalausfall des Kühlsystems
Abb. 15	Zeitlicher Verlauf des durch Sieden bedingten Massenausstrages aus dem HAW
Abb. 16	Zeitlicher Verlauf der durch Aerosole beim Sieden aus dem HAW ausgetragenen Aktivität
Abb. 17	Zeitlicher Verlauf der durch HTO-Dampf beim Sieden aus dem HAW ausgetragenen Aktivität

Nr.	Bezeichnung
Abb. I 1	Aerosolaustragsanteil F als Funktion der Temperatur ϑ
Abb. II 1	Zusammenhang zwischen Blasendurchmesser d_B und Aerosoleigen- volumen V_p .
Abb. III 1	Verlauf der Normalverteilungskurven $p_d(d)$ für $\bar{d} = 2 \mu\text{m}$ bei verschiedenen Werten der Varianz $\bar{\sigma} [\mu\text{m}]$
Abb. III 2	Verlauf der Volumen-Verteilungsdichte: $p_d(V)$ für normalver- teilte Durchmesser mit $\bar{d} = 22 \mu\text{m}$ und $\bar{\sigma} = 5 \mu\text{m}$