Analyse der Sicherheit bei der Beförderung und Lagerung radioaktiver Stoffe – Quantifizierung der Freisetzung bei Transport- und Handhabungsunfällen

GRS - A - 3265

Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) mbH

Analyse der Sicherheit bei der Beförderung und Lagerung radioaktiver Stoffe – Quantifizierung der Freisetzung bei Transport- und Handhabungsunfällen

F. Lange
R. Martens
E. Hörmann
W. Koch[1]
O. Nolte[1]

[1] Fraunhofer-Institut für Toxikologie
und Experimentelle Medizin (ITEM)
Nikolai-Fuchs-Str.1
30625 Hannover

Juli 2005

Auftrags-Nr.: 854600

Anmerkung:

Dieser Bericht ist von der GRS im Auftrag des Bundesamts für Strahlenschutz im Rahmen des Vorhabens SR 2446 erstellt worden. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt werden bzw. Dritten zugänglich gemacht werden.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.

GRS - A - 3265

Kurzfassung

Die Aufgabenstellung des Vorhabens SR 2446 bestand darin, aufbauend auf einer systemanalytischen Voruntersuchung, analog zu den vorausgegangenen Untersuchungen zementierter Gebinde das Aerosolfreisetzungsverhalten von nicht fixierten LSA II-Materialien bei mechanischer Beanspruchung zu untersuchen. Dabei wurden sowohl der mechanische Energieeintrag als auch die Gebindegröße variiert und es wurde eine Bewertung der Ergebnisse im Vergleich zum bestehenden System der Anforderungen an LSA-Stoffe in den Gefahrgutvorschriften vorgenommen.

Zentraler Arbeitsabschnitt des Vorhabens war die Durchführung eines Experimentalprogramms mit dem Ziel der Bestimmung des Einflusses von Energieeintrag, Gebindegröße, Gebindehülle und Stoffeigenschaften (wie z.B. Korngrößenverteilung, Kohäsionskräfte) auf die Freisetzung luftgetragener Stäube aus leicht dispergierbaren Haufwerken beim Aufprall auf unnachgiebige Oberflächen. Die Mehrzahl der Experimente wurde mit einer Flugasche (PFA) mit einer breiten Größenverteilung zwischen 1 und 100 µm und einer hohen Staubneigung durchgeführt. Größenverteilung und Staubneigung der verwendeten PFA können als repräsentativ für ascheförmige LSA-Abfälle und als konservativ abdeckend für die meisten anderen pulverförmigen LSA II-Materialien angesehen werden. Das weiterhin untersuchte Stoffsystem Titandioxid bestand gänzlich aus Partikeln < 1 µm, zeigte jedoch wegen der größeren Kohäsionskräfte eine wesentlich geringere Staubneigung und eine deutlich reduzierte Freisetzung.

Mit der Flugasche wurde die Freisetzung luftgetragener und lungengängiger Staubmengen bei "unumhüllten" (in Glasbehältnissen eingefüllten) Pulvermengen zwischen 100 g und 20 kg aus Fallhöhen von 3,2 bis 22 m untersucht. Als umhüllte Gebinde wurden 10-l-Blechkanister sowie Typ-A-zertifizierte 200-l-Rollreifenfässer eingesetzt und Fallhöhen zwischen 5,2 m und 22 m ausgesetzt. Ergänzend zu den Fallversuchen wurden Probekörper der 100-g-Kategorie horizontal impaktiert mit Aufprallgeschwindigkeiten, die Fallhöhen von 6,4 bis 64 m entsprechen.

Als Ergebnis der Versuche mit unumhüllten Proben wurden für die stark staubende Flugasche bei keiner der untersuchten Massen und Fallhöhen mehr als 2 % der Staubmasse im lungengängigen Partikelgrößenbereich (< 10 µm) freigesetzt. Dieser maximale Freisetzungsbruchteil wurde beim Absturz von 2 kg PFA aus 9 m Höhe ermittelt. Für Massen über 1 kg ist ein Trend der Abnahme des Freisetzungsbruchteils mit zunehmender Masse festzustellen. Für eine Staubmasse von 100 kg ist ein lungengängiger Freisetzungsbruchteil von weniger

als 0,1 % zu erwarten. Bis zu 15 m Fallhöhe steigt der Freisetzungsbruchteil nahezu linear mit der Fallhöhe an.

Die Umhüllung der Pulvermasse mit Stahlblech reduziert den Freisetzungsbruchteil um 2 – 3 Größenordnungen. Beim 200-l-Rollreifenfass konnte erst ab einer Fallhöhe von 5,2 m ein Austrag gemessen werden. Bei einer Fallhöhe von 9 m liegt der Freisetzungsbruchteil für die lungengängige Fraktion bei $4 \cdot 10^{-5}$. Der Freisetzungsbruchteil nimmt wiederum bis 15 m nahezu proportional mit der Fallhöhe zu. Bei größeren Fallhöhen ist der Anstieg des Freisetzungsbruchteils unterproportional. Der Schadensumfang am Rollreifenfass ist auch beim 22-m-Absturz begrenzt. Der überwiegende Staubaustritt erfolgt kurzzeitig beim Auftreffen während des Kompressions- und Entlastungsvorgangs der Deckeldichtung.

Die im Vorhaben experimentell ermittelten Freisetzungsbruchteile quasi unumhüllter Flugasche sind konsistent mit anderen in der Literatur gefundenen Messwerten. In den jetzt durchgeführten Experimenten wurde der untersuchte Bereich der Massen und Fallhöhen jedoch nach oben erheblich erweitert. Die erzielten Ergebnisse sind somit für realskalige Bedingungen deutlich belastbarer. Außerdem wurde erstmals die hohe Rückhalteeigenschaft einer Umhüllung, die einer höherwertigen Industrieverpackung bzw. einer Typ-A-Verpackung entspricht, bei mechanischen Belastungen, die das Spektrum möglicher Aufprallgeschwindigkeiten bei Transportunfällen praktisch vollständig abdecken, nachgewiesen. Die Ergebnisse des Vorhabens bieten eine verbesserte Basis für die Ermittlung der Auswirkungen von Transportunfällen.

Abschätzungen der möglichen Auswirkungen einer Freisetzung von LSA-II-Pulver in dem gemessenen Umfang zeigen, dass die resultierende Inhalationsdosis um mehr als eine Größenordnung unter der in den internationalen Transportvorschriften für Unfälle als zulässig erachteten Effektivdosis von 50 mSv liegt. Die in den Transportvorschriften festgelegten Grenzwerte der massenbezogenen Aktivitätskonzentration für LSA II von 10^{-4} A_2/g können somit für pulverförmige, leicht dispergierbare Stoffe als konservativ bestätigt werden.

Abstract

The task of Project SR 2446 was to analyse the aerosol release behaviour of non-fixed LSA-II materials upon mechanical loading, based on a prior system-analytical examination to be performed in the same way as the previous examination of cemented waste packages. Here, the input of mechanical energy as well as the size of the waste package were varied, and the results were assessed in comparison with the existing system of requirements for LSA material in the regulations on the transport of dangerous goods.

The central part of the project was the performance of an experiment programme with the aim to determine the influence of energy input, package size, packaging and material properties (like e. g. grain size distribution, cohesion forces) on the release of airborne dusts from accumulations of easily dispersible material upon their impact on unyielding surfaces. The majority of the experiments was carried out using a type of fly ash (PFA) with a broad particle size distribution between 1 and 100 µm and a high dispersion propensity. The size distribution and dispersion propensity of the PFA used can be considered as being representative for ash-type LSA waste and as conservative for most other powdery LSA II materials. The titanium oxide material system that was also analysed wholly consisted of particles < 1 µm, but showed much less dispersion propensity and a clearly lower release rate due to the greater cohesion forces.

The fly ash was used to study the release of airborne and respirable amounts of dust in "unenveloped" (filled into glass containers) amounts of powder between 100 g and 20 kg from drop heights of 3.2 to 22 m. The enveloped packages used were 10-l sheet-metal canisters as well as Type-A-certified 200-l drums; these were dropped from heights between 5.2 m and 22 m. In supplement to the drop tests, test bodies of the 100-g category were horizontally impacted at impact velocities that corresponded to drop heights of 6.4 to 64 m.

As a result of the experiments with unenveloped samples containing the highly dispersive fly ash, there were no releases of more than 2 % of the dust mass in the respirable particle size range (< 10 µm) with any of the masses or drop heights applied. This maximum release fraction was determined in connection with the drop of 2 kg of PFA from 9 m height. For masses above 1 kg, a trend towards a decrease of the release fraction with growing mass can be discerned. For a dust mass of 100 kg, a respirable release fraction of less than 0.1 % is expected. Up to a drop height of 15 m, the release fraction grows almost linearly with the drop height.

Enveloping the powder mass with sheet metal reduces the release fraction by 2 – 3 orders of magnitude. In the case of the 200-l drum with attached rolling hoops, there was no measurable release up to a drop height of 5.2 m. At a drop height of 9 m, the respirable release fraction is $4 \cdot 10^{-5}$. Up to 15 m, the release fraction increases again almost proportionally with increasing drop height. At greater drop heights, the increase of the release fraction is disproportionally low. The extent of the damage to the 200 l drum is limited even if it is dropped from 22 m. The dust is mainly released upon impact during the compression and unloading of the cover seal.

The release fractions determined experimentally in the project of quasi-unenveloped fly ash are consistent with the measuring results of other documented studies. In the experiments performed now, the studied range of masses and drop heights was extended considerably towards the upper end. The results that were obtained are therefore much more reliable for real-scale conditions. There has also been for the first time a demonstration of the high retaining capacity of an envelope that corresponds to a higher-quality industry-grade package or a Type-A package under mechanical loads that effectively cover the complete spectrum of possible impact velocities that may occur in transport accidents. The results of this project offer an improved basis for the determination of the consequences of transport accidents.

Estimates of the possible consequences of a release of LSA-II powder to the measured extent show that the resulting inhalation dose lies by more than one order of magnitude below the effective dose of 50 mSv considered as permissible for accidents by the international transport regulations. The limits specified in the transport regulations of the mass-related activity concentrations for LSA II of 10^{-4} A_2/g can thus be confirmed as being conservative for powdery, easily dispersible materials.

Inhaltsverzeichnis

1 Aufgabenstellung 1

2 Anforderungen an LSA-Materialien und deren Verpackung 3

2.1 Internationale Transportvorschriften 3

2.2 Endlagerungsbedingungen 4

3 Beschreibung typischer dispersibler LSA-II-Materialien 9

3.1 Uran-Pulver 10

3.1.1 Yellow Cake 10

3.1.2 Urandioxid (UO_2) 11

3.1.3 Uranoxid (U_3O_8) 15

3.2 Aschen 15

3.3 Filterhilfsmittel 22

3.4 Bauschutt 23

3.5 Sonstige dispergierbare radioaktive Materialien 25

3.5.1 Getrocknete Schlämme und Konzentrate 25

3.5.2 Bodenaushub 26

3.5.3 Strahlmittel 26

4 Bewertung der Materialeigenschaften im Hinblick auf die Auswahl geeigneter Surrogate 29

5 Bestandsaufnahme des aktuellen Kenntnisstandes zum Fraktionierungs- und Freisetzungsverhalten dispersibler Materialien 35

5.1 Versuche in den USA 35

5.2 Versuche in Deutschland 37

6 Experimentelles Vorgehen 41

6.1 Allgemeines 41

6.2 Herstellen der Teststäube und Gebinde 42

6.3 Abwurfvorrichtung 45

6.4 Kontrollvolumen 46

6.5 Diagnostik der Freisetzung 47
6.6 Beschussapparatur für kleinskalige Experimente 51

7 Ergebnisse 53
7.1 Abwurfversuche mit „unumhüllten“ Probekörpern....53
7.2 Abwurfversuche mit umhüllten Gebinden 58
7.3 Beschussversuche mit kleinskaligen Materialproben 60

8 Bewertung der Ergebnisse 63

9 Literatur 71

10 Anhänge 79
10.1 Anhang A: Spezifikation der Rollreifenfässer....79
10.2 Anhang B: Fotodokumentation der Abwurfversuche 81
10.2.1 Abwurfversuche mit „unumhüllten“ Probekörpern....81
10.2.1.1 Flugasche und Titandioxid, unumhüllt, Fallhöhe 9 m....81
10.2.1.2 Flugasche, unumhüllt, andere Fallhöhen....86
10.2.2 Abwurfversuche mit „umhüllten“ Probekörpern....88
10.2.2.1 Flugasche (10 kg) in 10 l Kanister, verschiedene Fallhöhen 88
10.2.2.2 Flugasche (ca. 260 kg) in Typ-A-Rollreifenfass, verschiedene Fallhöhen....91

Abbildungsverzeichnis

Bild 2.1: Container Typ V mit Fassgreifer /BFS 92/ 7

Bild 2.2: Befüllungsmöglichkeiten der Container mit Abfallprodukten /BFS 92/ 7

Bild 3.1: Fass mit Natururan-Konzentrat (Yellow Cake) /KOE 03/ 10

Bild 3.2: Partikelgrößenverteilung (geometrischer Partikeldurchmesser) von abgereichertem Uran und TiO_2 /SJM 81/ 12

Bild 3.3: Transportbehälter TN-UO2 für pulverförmiges Uranoxid /MAL 03/ 13

Bild 3.4: Transportbehälter TNF-XI für pulverförmiges Uranoxid /MAL 03/ 14

Bild 3.5: Verfahrensschema der Verbrennungsanlage in Studsvik (Schweden) /STU 03/ 16

Bild 3.6: LAW-Hochdruckpresse in der HDB /HDB 03-1/ 17

Bild 3.7: Partikelgrößenverteilungen von Aschen 18

Bild 3.8: Mechanismen der Aerosolbildung bei der Verbrennung /PAU 00/ 19

Bild 3.9: Rasterelektronenmikroskopische (REM)-Aufnahme des TAMARA-Aerosols und mittels differentiellem Mobilitätsanalysator (DMA) gemessene Partikelgrößenverteilung des TAMARA-Aerosols vor Schlauchfilter /PAU 00/. 20

Bild 3.10: Partikelgrößenverteilung des Feinstaubes (links) und der groben Flugasche (rechts) im Abgas einer Holzverbrennungsanlage /OBE 03/ 21

Bild 3.11: Partikelgrößenverteilungen von Harzen und Kieselgur 23

Bild 3.12: Verfahrensprinzip der Aktivitätsseparation von Bauschutt /MEI 03/ 24

Bild 4.1: Partikelgrößenverteilungen von Quarzsand und Quarzmehl /QUA 03/ 31

Bild 4.2: Korngrößenverteilung verschiedener Hüttensande /EHR 00/ 31

Bild 4.3: Vergleich der Partikelgrößenverteilung von Aschen mit Hüttensand, Quarzmehl und PFA 32

Bild 4.4: Partikelgrößenverteilungen von Urandioxid und Titandioxid 33

Bild 5.1: Mit Flugasche gefüllte Pappkartons nach Abwurf aus 9 m Höhe. 39

Bild 5.2: Mit Flugasche gefüllte Plastiktüte nach Abwurf aus 9 m Höhe 40

Bild 5.3: Verteilung des Titandioxids (links) und der Flugasche (rechts) nach Abwurf aus 9 m Höhe. 40

Bild 6.1: Elektronenmikroskopische Aufnahme des Teststaubes 43

Bild 6.2: Größenverteilung der Flugasche (geometrischer Durchmesser, Auszug aus Datenblatt) 43

Bild 6.3: Staubfahnen beim Umfüllen von Flugasche 44

Bild 6.4: Probekörper für die Fallversuche: Glaskolben (4 l), Typ A-Abfallbehälter (200 l), Blechkanister (10 l). 45

Bild 6.5: Fallkörper und Auslösemechanismen 46

Bild 6.6: Seitenansicht und Aufsicht des Kontrollvolumens 47

Bild 6.7: Anordnung der Messgeräte für die Freisetzungsdiagnostik 48

Bild 6.8: Respicon Aerosolmonitor 48

Bild 6.9: Verläufe der Konzentration unterschiedlicher Partikelgrößenfraktionen in einem Zeitraum 16 Minuten nach Abwurf des Testkörpers zum Zeitpunkt t=4 min. (Datenprotokoll des Respicon 1) 50

Bild 6.10: Versuchsaufbau zur Messung der lungengängigen Freisetzung für kleine Probekörper 51

Bild 7.1: Massenabhängigkeit der Freisetzungsfraktion für unumhüllte Flugasche (KM/C Füller), Fallhöhe: h = 9 m, (Respicon-Messungen) 54

Bild 7.2: Partikelgrößenabhängigkeit der Freisetzung für unumhüllte Flugasche (KM/C-Füller), Fallhöhe: h = 9 m (Berner-Impaktor) 55

Bild 7.3: Massenabhängigkeit der Freisetzungsfraktion für unumhülltes „Tronox“ Titandioxid, Fallhöhe: h = 9 m, (Respicon-Messungen) 56

Bild 7.4: Abhängigkeit der Freisetzungsfraktion für Flugasche (KM/C Füller) von der Fallhöhe, Pulvermasse: 10 kg (Respicon-Messungen) 57

Bild 7.5: Freisetzungsfraktionen für Flugasche (KM/C-Füller) im 10-l-Blechkanister für verschiedene Fallhöhen; Pulvermasse: 10 kg 58

Bild 7.6: Freisetzungsfraktionen für Flugasche (KM/C-Füller) im Typ-A-Rollreifenfass für verschiedene Fallhöhen; Pulvermasse: ca. 260 kg 59

Tabellenverzeichnis

Tabelle 2.1: Abfallproduktgruppen in den Endlagerungsbedingungen für die Schachtanlage Konrad 5

Tabelle 2.2: Standardisierte Abfallbehälter für die Schachtanlage Konrad 6

Tabelle 3.1: Mittlere Anteile an der emittierten Gesamtpartikelmasse bei mechanisch beschickten Holzfeuerungsanlagen (Feuerungswärmeleistung 50 kW bis 1.000 kW) in den Größenklassen < PM1, < PM2,5 und < PM10 /LFU 02/ 20

Tabelle 4.1: Mittlere Partikeldurchmesser dispergierbarer Stoffe 29

Tabelle 5.1: Freisetzungsfraktionen (< 10 µm) von Flugasche- und Titandioxidpulver nach Abwurf aus 9 m Höhe 39

Tabelle 6.1: Testmatrix der Fallversuche (Spalten 2-6) und Beschussversuche (Zeile 1) 41

Tabelle 6.2: Extrapolierte Anfangskonzentrationen, $c_i(t=0)$, in mg/m³, gemessen mit den 4 Respicons, R_k , k = 1, ..,4 50

Tabelle 7.1: Freisetzungsfraktionen des KM/C-Füllers für h = 9 m. (Respicon-Messungen)54

Tabelle 7.2: Freisetzungsfraktionen des KM/C-Füllers für h = 9 m. (Impaktor-Messungen)54

Tabelle 7.3: Freisetzungsfraktionen des Titandioxidpulvers für h = 9 m. (Respicon-Messungen) 56

Tabelle 7.4: Freisetzungsfraktionen der Flugasche (m=10 kg). (Respicon-Messungen) 57

Tabelle 7.5: Freisetzungsfraktionen für Flugasche im 10-l-Blechkanister. KM/C-Pulvermasse:10 kg. 58

Tabelle 7.6: Freisetzungsfraktionen für Flugasche im Typ-A-Rollreifenfass; KM/C-Pulvermasse:ca. 260 kg. 60

Tabelle 7.7: Korngrößenverteilungen verschiedener Millisil-Siebungen 61

Tabelle 7.8: Ergebnisse der kleinskaligen Experimente 62

1 Aufgabenstellung

Für die Analyse und Beurteilung der Sicherheit bei der Beförderung und Lagerung radioaktiver Stoffe sind fundierte Kenntnisse zur Freisetzung bei unfallbedingten mechanischen Einwirkungen unerlässlich. Am Beispiel zementierter Abfälle wurden für mechanische Belastungen in dem vorausgegangenen, gemeinsam von GRS und dem Fraunhofer Institut für Toxikologie und Experimentelle Medizin (FhG-ITEM, vormals Fraunhofer Institut für Toxikologie und Aerosolforschung) durchgeführten Vorhaben SR 2371 grundlegende Ergebnisse zur luftgetragenen Freisetzung und deren Partikelgrößenverteilung erzielt /LNK 02/. Damit lassen sich für zementierte LSA-Materialien bezogen auf den Bereich der bei Transport- und Handhabungsunfällen auftretenden mechanischen Belastungen die gegenwärtig geltenden Anforderungen seitens der internationalen Transportvorschriften überprüfen und weiterentwickeln. Zementierte Abfälle erfüllen i. a. die Anforderungen für LSA-III-Material gemäß den Internationalen Transportvorschriften der IAEO /IAE 04/.

Das Vorhaben SR 2446 verfolgt die gleiche Zielsetzung wie das vorangegangene Vorhaben SR 2371, beschäftigt sich aber jetzt mit der Kategorie von radioaktiven Abfällen, die in die Gruppe der LSA-II-Stoffe einzuordnen sind. Neben der Zementierung wird in Deutschland und anderen Ländern bei schwach- und mittelaktiven Abfällen zunehmend auf eine Konditionierung ohne Fixierungsmatrix gesetzt. Zum Beispiel werden häufig Ionentauscherharze, Aschen aus der Verbrennung organischer Abfälle, getrocknete Filterschlämme und Feststoffe in Fässer aus Stahlblech gefüllt. In dieser Form können die Fässer zur Beförderung gelangen oder eine weitere Behandlungsform erfahren, bei der sie z.B. mit einer Hochdruckpresse zu Pellets (Presslingen) kompaktiert werden, die wiederum in 200-l-Fässer gesteckt werden. Aufgrund der in diesen Abfällen vorhandenen leicht dispergierbaren Anteile sind diese Gebinde der Kategorie LSA-II zuzuordnen mit der Konsequenz einer reduzierten zulässigen spezifischen Aktivität.

Während bei radioaktiven Stoffen, die in ein Matrixmaterial wie Zement eingebunden sind, im Falle einer mechanischen Beanspruchung lungengängige Aerosole erst durch Fraktionierungsprozesse gebildet werden müssen, steht im Falle von schon dispersiblen LSA-II-Materialien die unfallbedingt eingebrachte Energie weitgehend für den Prozess der Aerosoldispergierung zur Verfügung. Freisetzungsmindernde Effekte sind in dieser Konstellation im Verhalten des Behältnisses und in Selbstabscheidungsvorgängen zu sehen, deren Wirkung

umso größer sein dürfte, je größer das zu dispergierende Volumen ist.

Die Aufgabenstellung des Anschlussvorhabens SR 2446 besteht darin, aufbauend auf einer systemanalytischen Voruntersuchung analog zu den Untersuchungen zementierter Gebinde nun das Aerosolfreisetzungsverhalten von nicht fixierten LSA-II-Materialien bei mechanischer Beanspruchung zu untersuchen. Dabei sind sowohl der mechanische Energieeintrag als auch die Gebindegröße zu variieren und eine Bewertung der Ergebnisse im Vergleich zum bestehenden System der Anforderungen an LSA-Stoffe in den Gefahrgutvorschriften vorzunehmen.

Im Rahmen systemanalytischer Vorarbeiten sollte sichergestellt werden, dass bei der Durchführung der experimentellen Untersuchungen praxisnahe, repräsentative LSA-Materialien zugrunde gelegt werden. Weiterhin sollte der bisherige Stand des Wissens zum Freisetzungsverhalten dispersibler Materialien zusammengetragen werden. Im vorliegenden Abschlussbericht sind die Ergebnisse dieser systemanalytischen Vorarbeiten in den Kapiteln 2 bis 5 und die Durchführung und Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen in den Kapiteln 6 und 7 beschrieben. Abschließend wird in Kapitel 8 eine Bewertung der Ergebnisse vorgenommen.

2 Anforderungen an LSA-Materialien und deren Verpackung

2.1 Internationale Transportvorschriften

Die Internationalen Transportvorschriften, 1996er Ausgabe (As Amended 2003), der IAEO /IAE 04/ definieren LSA-Material als radioaktive Stoffe mit geringer spezifischer Aktivität. Bei LSA-III-Material müssen dabei die radioaktiven Stoffe in einem festen Körper oder in einem festen Bindemittel (z.B. Beton, Bitumen, Keramik) gleichmäßig verteilt sein. Bei LSA-II ist lediglich eine gleichmäßige Aktivitätsverteilung im Material erforderlich; dies können auch pulverförmige Stoffe sein. Festes unbestrahltes natürliches oder abgereichertes Uran kann als LSA-I (ohne Aktivitätsbegrenzung) transportiert werden, während wiederaufgearbeitetes Uran in fester Form (z.B. Pellets, Brennelemente) i. A. als LSA-III eingestuft wird – sofern die spezifischen Aktivitätsgrenzen und die Löslichkeitsbedingungen eingehalten werden /IAE 94/. Wenn die niedrigeren zulässigen Aktivitätskonzentrationen von LSA-II eingehalten werden, ist auch der Transport als LSA-II möglich. Falls gezeigt werden kann, dass die Aktivität der Nuklidmischung des aufgearbeiteten Urans nicht ausreicht, bei Inhalation von 10 mg eine Effektivdosis von 50 mSv zu bewirken, kann sogar ein unbegrenzter A_2-Wert zugrunde gelegt werden /IAE 94/, /IAE 02/.

Wiederaufgearbeitetes Uran in Pulverform ist als LSA-II einzustufen, sofern die spezifische Aktivität dies zulässt. Mit der Änderung der 'Transport Regulations' von 2003 /IAE 04/ wurde der Transport von Pulver als LSA-III explizit ausgeschlossen.

Die Internationalen Transportvorschriften /IAE 04/ begrenzen die massenbezogene Aktivitätskonzentration in LSA-II- und LSA-III-Materialien auf 10^{-4} A_2/g bzw. 2×10^{-3} A_2/g. Dabei ist der A_2-Wert eines Radionuklids das höchstzulässige Aktivitätsinventar eines Typ A-Versandstückes. Bei mehreren Nukliden im Versandstück gilt eine Summenregel. Die Begrenzung der Aktivitätskonzentration auf 10^{-4} A_2/g für LSA-II-Material basiert auf der Annahme, dass eine Person im Nahbereich eines Transportunfalls infolge einer Freisetzung nicht mehr als 10 mg durch Einatmen aufnimmt.

Gemäß den Internationalen Transportvorschriften /IAE 04, Table IV/ sind die in dieser Studie interessierenden festen (auch pulverförmigen) LSA-II-Materialien in Industrieversandstücken des Typs IP-2 zu transportieren. Hinsichtlich der mechanischen Belastbarkeit sind für diesen

Verpackungstyp das Überstehen einer Freifallprüfung aus 0,3 bis 1,2 m Höhe (je nach Gebindemasse) und des Stapeltests mit dem fünffachen Gewicht derart gefordert, dass

- der Verlust oder die Dispersion des radioaktiven Inhalts und
- der Verlust der Abschirmungsintegrität, der an jeder Außenfläche des Versandstücks eine Steigerung der Dosisleistung von mehr als 20 % bewirken würde,

verhindert würden. Diese Auslegungsvorschrift bedeutet, dass bei schweren Transportunfällen oder Handhabungsstörfällen eine Freisetzung von Teilen des Behälterinventars nicht auszuschließen ist.

2.2 Endlagerungsbedingungen

Die überwiegende Mehrzahl der in Deutschland in Landessammelstellen, betriebsinternen Lagern und zentralen Abfalllagern befindlichen radioaktiven Abfälle werden eines Tages als LSA-II oder LSA-III in ein Endlager transportiert werden. Aus heutiger Sicht kommt hierfür das Endlager Konrad in Frage, nachdem der Einlagerungsbetrieb für das Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM) 1998 beendet wurde. Ein Teil der radioaktiven Abfälle ist derzeit bereits endlagergerecht konditioniert und verpackt, teilweise lagern die Abfälle noch in unbehandeltem Zustand und sind für eine Konditionierung oder ein unmittelbares Verbringen in ein Endlagergebinde vorgesehen. Da Endlagergebinde in der Regel gleichzeitig als Transportverpackungen fungieren, stellt sich die Frage, inwieweit in den Endlagerungsbedingungen für Konrad Spezifikationen und Anforderungen an pulverförmige Gebindeinhalte bestehen. Zum Vergleich werden auch die Endlagerungsbedingungen für ERAM auf derartige Spezifikationen überprüft.

Die Endlagerungsbedingungen für Konrad /BFS 95-1/ sehen eine Einteilung der Endlagergebinde nach zwei Abfallbehälterklassen (ABK I und II) und sechs Abfallproduktgruppen (APG 01 bis 06, siehe Tabelle 2.1) vor, für die abhängig vom Verhalten in Störfällen nuklidspezifische Grenzwerte der Aktivitätskonzentration abgeleitet wurden /GRS 87/. Dabei gelten für die Behälterklasse ABK I mit Abfall der Gruppe APG I die niedrigsten und für ABK II die höchsten Aktivitätsgrenzen. Durch diese Einteilung werden die unterschiedlichen Barriereneigenschaften der Behälter und das unterschiedliche Verhalten der Abfallmatrizes bei mechanischen und thermischen Störfallbelastungen berücksichtigt.

Für Behälter der ABK I und die Abfallproduktgruppe APG I wird bei einem Fall aus 0,8 m Höhe (Aufprallgeschwindigkeit 4 m/s) ein Erhalt der Behälterintegrität lediglich derart gefor-

dert, dass brennbare Abfallprodukte mit einem Schmelzpunkt > 300 °C bei einem anschließenden Feuer nicht mit offener Flamme abbrennen können. Dichtheitsanforderungen werden bei ABK I nach diesem Falltest nicht gestellt /BFS 95-2/. Hingegen wird für die Abfallbehälterklasse ABK II eine störfallfeste Auslegung derart gefordert, dass bei einem Fall aus 5 m Höhe auf eine unnachgiebige Unterlage (Aufprallgeschwindigkeit ca. 10 m/s) und einem anschließenden Schadensfeuer von 800 °C für eine Stunde die Dichtheit des Behälters erhalten bleibt. Für die weiteren Betrachtungen zum Freisetzungsverhalten bei Transportstörfällen ist daher im Rahmen dieser Studie in erster Linie die Abfallbehälterklasse ABK I relevant.

Tabelle 2.1: Abfallproduktgruppen in den Endlagerungsbedingungen für die Schachtanlage Konrad

APG	Anforderungen	Beispiel
APG 01	Grundanforderungen (u.a. fest, keine Flüssigkeiten, Gase, selbstentzündlichen Stoffe, nichtgärend, nichtfaulend)	Bitumen- und Kunststoffprodukte
APG 02	Grundanforderungen, brennbare Abfallstoffe mit Schmelzpunkt < 300°C dürfen bei thermischer Belastung nicht austreten oder müssen Aktivitätsanteil ≤ 1 % haben	Feststoffe
APG 03	Grundanforderungen, nur Metallteile oder Einbauteile aus Reaktorkern (außer Graphit)	metallische Feststoffe
APG 04	Grundanforderungen, Abfall mit mindestens 30 MPa formstabil kompaktiert	Presslinge
APG 05	Grundanforderungen, Abfall in Zementstein oder Beton fixiert, gleichmäßige Aktivitätsverteilung, Druckfestigkeit ≥ 10 N/mm²	zementierte Abfälle
APG 06	Grundanforderungen, Abfallprodukt aus festem Körper mit Druckfestigkeit ≥ 10 N/mm², nicht brennbar	Konzentrate

Im Hinblick auf eine einfache Handhabung und einen reibungslosen Einlagerungsablauf sind für die Schachtanlage Konrad standardisierte Abfallbehälter vorgeschrieben /BFS 95-1/. Dabei wird zwischen drei Grundtypen unterschieden:

- zylindrische Betonbehälter,
- zylindrische Gussbehälter,
- Container.

Tabelle 2.2 stellt die Abmessungen der insgesamt 11 Behältertypen / Verpackungen zusammen. Für die hier interessierenden LSA-Materialien kommen in erster Linie die Containertypen infrage. Die Container können aus Stahlblech, armiertem Beton oder Gusswerkstoff bestehen. Bild 2.1 zeigt einen Stahlblech-Container des Typs V. In die Container können die Abfälle entweder unverpackt oder vorverpackt, z.B. in 200-l-Fässern eingebracht werden, siehe Bild 2.2. Der größte Container kann bis zu 28 Stück 200-l-Fässer aufnehmen.

Tabelle 2.2: Standardisierte Abfallbehälter für die Schachtanlage Konrad

Nr.	Bezeichnung	Außenabmessungen			Brutto-volumen
		Länge/Durchm. mm	Breite mm	Höhe mm	
01.	Betonbehälter Typ I	1060	-	1370[1)]	1,2
02.	Betonbehälter Typ II	1060	-	1510[2)]	1,3
03.	Gußbehälter Typ I	900	-	1150	0,7
04.	Gußbehälter Typ II	1060	-	1500[3)]	1,3
05.	Gußbehälter Typ III	1000	-	1240	1,0
06.	Container Typ I	1600	1700	1450[4)]	3,9
07.	Container Typ II	1600	1700	1700	4,6
08.	Container Typ III	3000	1700	1700	8,7
09.	Container Typ IV	3000	1700	1450[4)]	7,4
10.	Container Typ V	3200	2000	1700	10,9
11.	Container Typ VI	1600	2000	1700	5,4

1) Höhe 1370 mm + Lasche von 90 mm = 1460 mm
2) Höhe 1510 mm + Lasche von 90 mm = 1600 mm
3) Höhe 1370 mm beim Typ KfK
4) Stapelhöhe 1400 mm beim Typ KfK

Bild 2.1: Container Typ V mit Fassgreifer /BFS 92/

Bild 2.2: Befüllungsmöglichkeiten der Container mit Abfallprodukten /BFS 92/

Zum Anteil und zur Beschaffenheit einer dispergierbaren Fraktion im Abfallprodukt ist in den Endlagerungsbedingungen für Konrad direkt keine Aussage getroffen. Die Grundanforderungen, mit denen die Abfallproduktgruppe APG 01 definiert wird, schließen Abfallstoffe in Pulverform nicht aus. Somit ist ein Pulveranteil bis zu 100 % unter den Aktivitätsgrenzbedingungen der APG 01/ ABK I möglich. Falls der pulverförmige Stoff nicht brennbar ist

oder höchstens einen brennbaren Aktivitätsanteil bis 1 % enthält, gilt das auch für die Kombination APG 02/ ABK I. Ebenso gibt es in ABK II keine Beschränkung bezüglich des Pulveranteils.

Formstabil kompaktierte Presslinge der Abfallproduktgruppe APG 04 sollen bei mechanischer Beaufschlagung der Kartusche nicht mehr als 1 % der Aktivität freisetzen /BFS 95-2/. Diese Forderung könnte man konservativ als eine Beschränkung des dispergierbaren Aktivitätsanteils auf maximal 1 % interpretieren. Nach /GRS 87/ wird aber unterstellt, dass kompaktierte Presslinge durch die mechanischen Beaufschlagungen der unterstellten Störfälle im Endlagerbereich (Absturz aus ≤ 5 m Höhe) nicht zerstört werden bzw. die mögliche Freisetzung auch einer größeren dispergierbaren Rohabfallfraktion durch den genannten 1 %-Wert abgedeckt ist.

Unter der Forderung nach ausreichender Druckfestigkeit verfestigter Abfälle (APG 05, APG 06) wird in /BFS 95-2/ eine Begrenzung für pulverförmigen Abrieb auf 1 ‰ der Gesamtaktivität gefordert.

Im Gegensatz zu Konrad sind in den Endlagerungsbedingungen für ERAM konkretere Bedingungen zum dispergierbaren Aktivitätsanteil unter mechanischen Belastungen enthalten. In einer der Abfallproduktklassifizierung von Konrad ähnlichen Unterscheidung nach störfallrelevanten Qualitätsmerkmalen (QM 1 bis QM 6) wurde für QM 2 bis QM 4 die Unterscheidung gefordert, ob der dispergierbare Aktivitätsanteil > 1 % oder < 1 % beträgt /BFS 96-1/. Entsprechend wurden unterschiedliche nuklidspezifische Grenzwerte der Aktivitätskonzentration abgeleitet. Die Produktkontrolle zu diesem Kriterium erfolgte durch Sichtprüfung, sofern nicht aufgrund der Abfallart oder der Vorbehandlung der Abfälle von vorneherein ausgeschlossen werden konnte, dass das Abfallprodukt frei von pulverförmigen Bestandteilen war /BFS 96-2/. Die Anforderungen zur Produktkontrolle für ERAM enthielten ferner die Bedingung, dass bei 'formstabilen Teilen' der Aktivitätsanteil pulverförmiger Abfallstoffe auf 1 ‰ begrenzt wird. Bei formstabil kompaktierten Abfällen wurde gefordert, dass nicht mehr als 1 % der Gebindeaktivität an der Kartuschenaußenseite haftete.

Insgesamt sind in den Endlagerungsbedingungen somit einige Anforderungen hinsichtlich des leicht dispergierbaren, pulverförmigen Abfallanteils enthalten. Weitergehende Anforderungen zu den Eigenschaften der Pulver, z. B. zur Partikelgröße, machen die Endlagerungsbedingungen jedoch nicht.

3 Beschreibung typischer dispersibler LSA-II-Materialien

Dispersible radioaktive Stoffe fallen vor allem in folgenden Bereichen an:

- Pulverförmiges Uran (UO_2, U_3O_8) bei der Anreicherung, Brennelementfertigung und Wiederaufarbeitung,
- Aschen bei der Verbrennung organischer Abfälle zur Volumenreduktion
- Ionenaustauscherharze, Filterschlämme, Filtereinsätze bei der Reinigung von Prozessströmen
- Bauschutt und Bodenaushub beim Rückbau kerntechnischer Anlagen

Transporte derartiger Materialien fallen somit vor allem zwischen den verschiedenen Einrichtungen des Brennstoffkreislaufes und der Abfallkonditionierung und -entsorgung an.

Zur Charakterisierung der freisetzungsrelevanten Eigenschaften der o.g. staub-, pulverförmigen, ascheartigen oder sonstigen dispergierbaren radioaktiven Materialien wurden folgende Arbeitsschritte durchgeführt:

- Literaturauswertung, Internet-Recherche,
- Befragung von Abfallverursachern und Abfallkonditionierern in Deutschland (FZK-HDB, FZJ, Kernkraftwerke, BE-Fertigung, Stilllegungsprojekte),
- Skizzierung der nicht fixierenden Konditionierungsverfahren,
- Zusammenstellung der Eigenschaften repräsentativer LSA-II-Materialien mit Daten über Stoffe, Konsistenz, Partikelgrößenverteilung
- Beschreibung der vorgesehenen Verpackungen.

Die Ergebnisse dieser Arbeitsschritte sind nachfolgend beschrieben.

3.1 Uran-Pulver

Im Versorgungsteil des Brennstoffkreislaufs kann Uranpulver als Transportgut in folgender Form auftreten:

- als Uransalze im Natururan-Konzentrat (Yellow Cake) aus der Uranerzaufbereitung,
- als angereichertes Uranoxid (UO_2, U_3O_8) bei der Brennelementfertigung,
- als ggf. leicht angereichertes und kontaminiertes Uranoxid (UO_2, U_3O_8) bei der Rezyklierung von der Wiederaufarbeitung in die Brennelementfertigung
- als abgereichertes Uranoxid (U_3O_8) nach Konversion des Tails-Urans (UF_6) aus der Anreicherung.

3.1.1 Yellow Cake

Das getrocknete Urankonzentrat aus der Erzaufbereitung ist ein rieselfähiges gelbes Pulver oder Granulat gröberer Körnung. Ein Hersteller spezifiziert die Korngröße mit 6 mm bei einer Schüttdichte von 1,9 bis 2,2 g/cm^3 /KAZ 03/. Yellow Cake wird üblicherweise in Rollreifenfässern transportiert, siehe Bild 3.1.

Bild 3.1: Fass mit Natururan-Konzentrat (Yellow Cake) /KOE 03/

3.1.2 Urandioxid (UO_2)

UO_2 ist ein schwarzbrauner Feststoff in Pulverform, der nach /ICS 03/ als brennbar eingestuft ist und sich an Luft bei Temperaturen > 700°C selbst entzündet. Für die Herstellung von UO_2 gibt es verschiedene Verfahren. Ausgangsprodukt der meisten Verfahren ist eine Uranylnitratlösung, in die das Natururankonzentrat durch Auflösung in Salpetersäure gebracht wird oder die nach der Wiederaufarbeitung als Produktlösung vorliegt. Aus der Uranylnitratlösung kann UO_2 durch Eindampfen und Denitrierung zu UO_3 mit anschließender Reduktion durch Wasserstoff hergestellt werden oder durch Fällung über das Zwischenprodukt Ammoniumdiuranat (ADU), das sich thermisch zu U_3O_8 zersetzt und (gleichzeitig) mit Wasserstoff oder gespaltenem Ammoniak reduziert wird. In /GTS 69/ sind 24 verschiedene Verfahren aufgelistet, die zu Schüttdichten des UO_2-Pulvers zwischen 0,8 und 4,6 g/cm³ führen (theoretische Dichte von $UO_2 \cong 11$ g/cm^3). Die mittels Gasadsorptionsverfahren (BET) gemessenen spezifischen Oberflächen der verschieden gewonnenen UO_2-Pulver können im Bereich von 0,1 bis 20 m^2/g liegen, für die Press- und Sintertechnik brauchbare Pulver liegen zwischen 2 und 5 m^2/g /GTS 69/ und werden vorwiegend mit dem ADU-Verfahren hergestellt. /KAZ 03/ spezifiziert sein UO_2-Pulver-Produkt mit einer Mindestschüttdichte von 2 g/cm^3 und einer spezifischen Oberfläche von 3 bis 5 m^2/g.

Die Verteilung der Teilchengröße ist beim ADU-Prozess stark von den Fällungs- und Zersetzungsbedingungen abhängig. Ebenso haben die Herstellungsbedingungen einen großen Einfluss auf die Teilchengestalt, die zu kugeligen, nadeligen, plättchenförmigen oder unregelmäßigen Formen führen. Die technisch verwendeten Pulver haben unregelmäßige Gestalt und keine glatten Teilchen-Oberflächen, jedoch keine ausgeprägte Formanisotropie /GTS 69/.

In Bild 3.2 ist die Teilchengrößenverteilung eines Pulvers aus abgereichertem Uran (DU = Depleted Uranium) wiedergegeben, das in /SJM 81/ für Versuche zur Messung der Aerosolbildung beim Ausschütten von Pulvern verwendet wurde. Das Pulver weist einen Massenmedian bei 1 µm (geometrisch) auf, d.h. 50% der Masse wird von Teilchen mit einem geometrischen Durchmesser < 1 µm gebildet; 95 % der Masse liegt im Größenbereich zwischen 0,25 µm und 4 µm. Der geometrische Durchmesser von 1 µm entspricht in etwa einem aerodynamischen Durchmesser von 3,3 µm (Annahme: sphärische Partikel, $\rho_{UO2} \cong 11$ g/cm³). Ein Hinweis auf Herkunft und Herstellungsverfahren des Pulvers findet sich in /SJM 81/ nicht. In Bild 3.2 ist zusätzlich die Partikelgrößenverteilung von TiO_2 eingetragen, mit dem ebenfalls Versuche durchgeführt wurden. Es zeigt sich, dass UO_2-Pulver in solchen Versuchen sehr gut durch TiO_2-Pulver simuliert werden können. Die beiden Verteilungen in Bild 3.2 sind als

Log-Normal-Verteilungen zu kleineren Partikelgrößen hin extrapoliert.

Anmerkung: Der aerodynamisch äquivalente Durchmesser d_{aed} eines sphärischen Aerosolteilchens mit dem geometrischen Durchmesser d_{geo} und der Dichte ρ entspricht dem eines äquivalenten Teilchens mit der Einheitsdichte ρ_0 = 1 g/cm³, das das gleiche Sedimentationsverhalten aufweist wie das reale Teilchen; es gilt:

$$AED = d_{aed} = d_{geo} \cdot \sqrt{\frac{\rho}{\rho_0}}$$

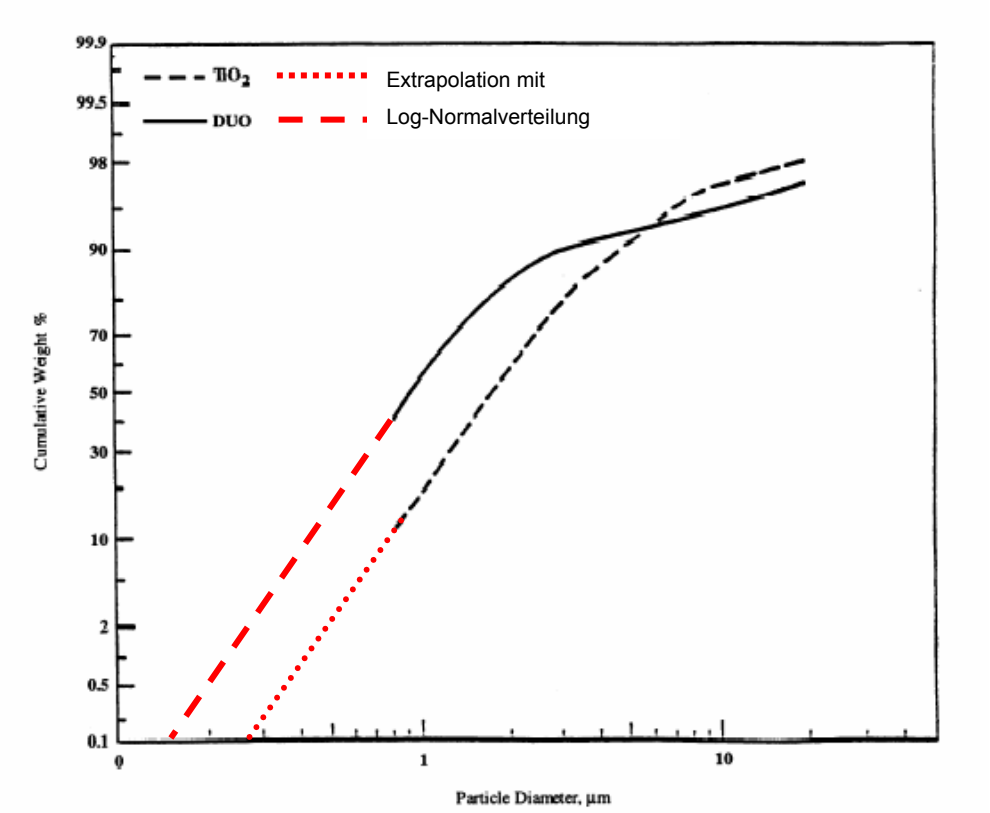


Bild 3.2: Partikelgrößenverteilung (geometrischer Partikeldurchmesser) von abgereichertem Uran und TiO_2 /SJM 81/

Im Vergleich zu dem in Bild 3.2 verwendeten UO_2-Pulver ist der Feinanteil in den heute üblichen Pulverqualitäten noch etwas höher. In /LAN 03/ wurde von Nirex für UO_2-Pulver ein Größenbereich von 0,032 bis 0,85 µm angegeben. Einer spezifischen Oberfläche von 5 m^2/g, wie in /KAZ 03/ als Obergrenze ausgewiesen, würde bei monodispersen, ideal sphärischen Partikeln ein geometrischer Durchmesser von 0,11 µm entsprechen.

Der Transport von UO_2-Pulver erfolgt üblicherweise in Industrieverpackungen, sofern der Gehalt an U-235 nicht mehr als 1 % beträgt. Bei höheren Anreicherungen sind nach /IAE 04/ als IF bzw. AF für Spaltmaterial klassifizierte Industrie- oder Typ-A-Verpackungen einzuset-

zen, die zwar keine höheren Anforderungen an die Dichtheit stellen, für die jedoch gefordert ist, dass bei den Unfalltestbedingungen für Typ-B-Verpackungen (z.B. 9-m-Falltest, Erhitzungstest 800°C für 30 min) die Integrität des Versandstücks soweit erhalten bleibt, dass die Unterkritikalität beibehalten wird. Neuere Behältertypen für den Transport von Uranoxid-Pulver, auch von wiederaufgearbeitetem Uran zeigen die Bilder 3.3 und 3.4. Der Behälter TNF-XI ist als AF-Behälter zugelassen und kann bis zu 300 kg angereichertes UO_2 (max. 5 % U-235) in Pulver- oder Pelletform aufnehmen /NRC 03/.

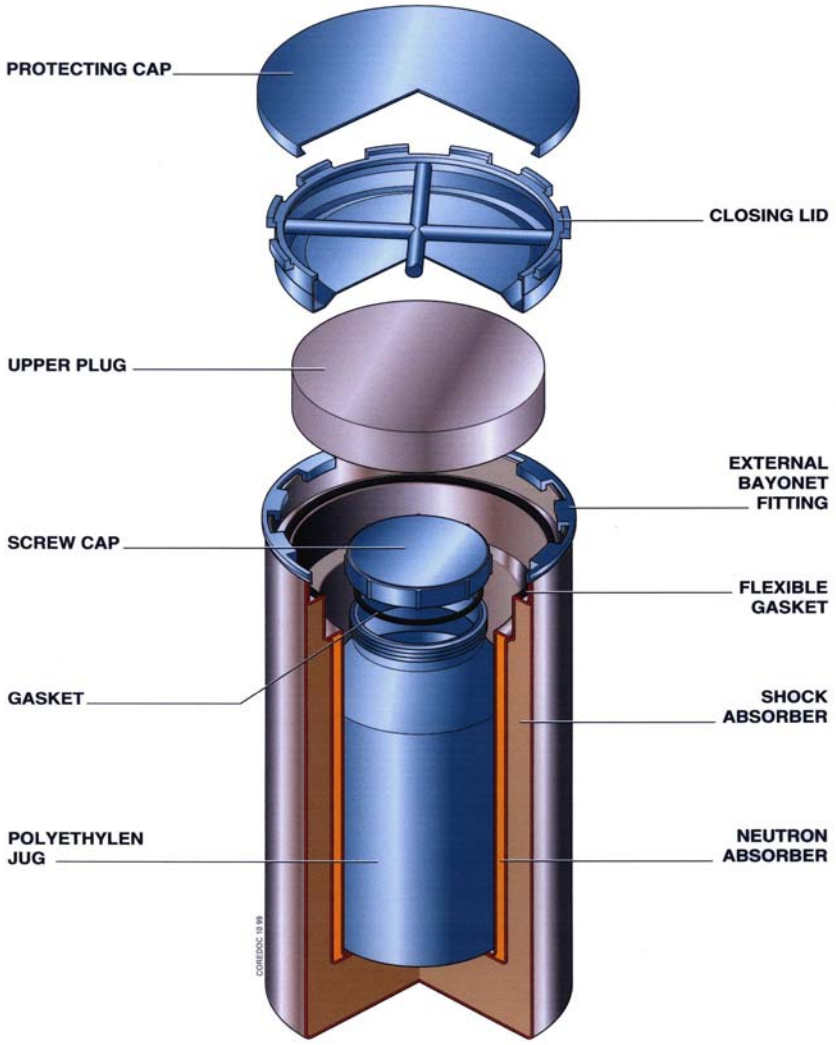


Bild 3.3: Transportbehälter TN-UO2 für pulverförmiges Uranoxid /MAL 03/

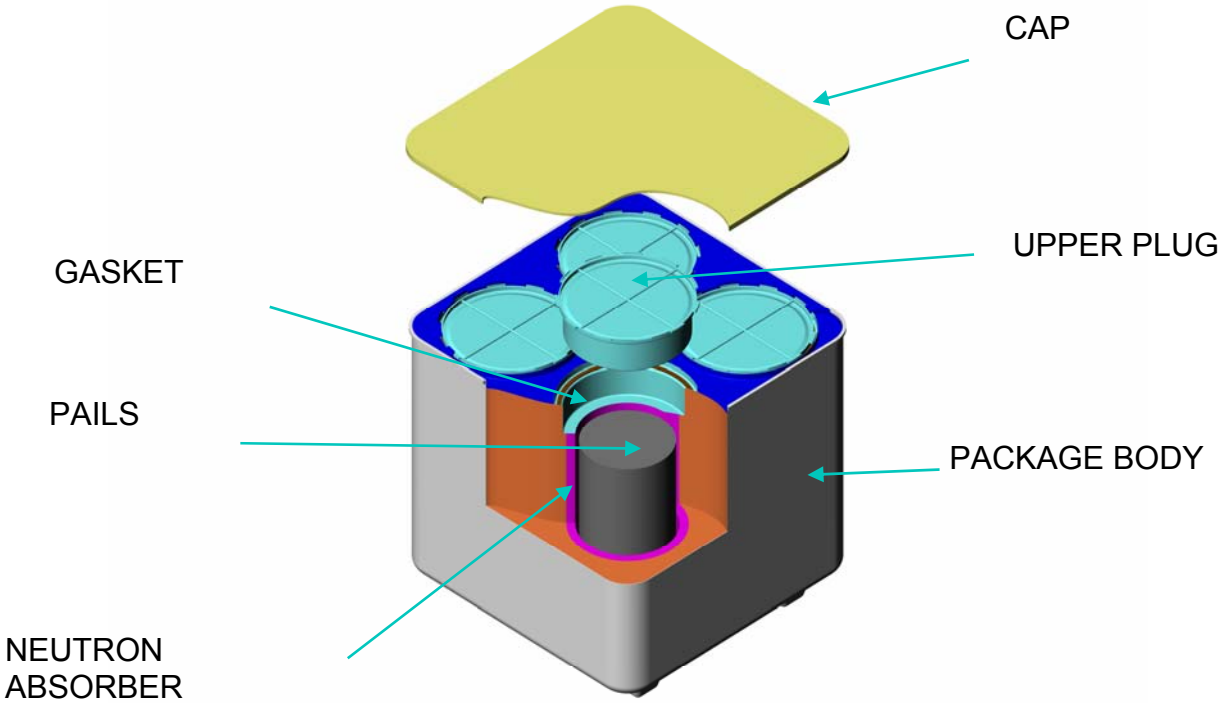


Bild 3.4: Transportbehälter TNF-XI für pulverförmiges Uranoxid /MAL 03/

3.1.3 Uranoxid (U_3O_8)

U_3O_8 (Triuranoctozid) ist die höchste Oxidationsstufe von Uranverbindungen in Luft oder Sauerstoff und entsteht z.B. beim Erhitzen von UO_2 in Luft. Es ist ein pulverförmiger grünlich-schwarzer Feststoff mit einer theoretischen Dichte von 8,4 g/cm^3. Im Brennstoffkreislauf wird U_3O_8 in letzter Zeit in größerem Umfang durch Konversion von abgereichertem UF_6 aus der Uran-Anreicherung hergestellt. Das Verfahren wurde vom französischen CEA entwickelt. Hintergrund ist die Überführung des bisher in großen Mengen gelagerten UF_6-Tails in eine sicherheitstechnisch stabilere Konfiguration für eine längerfristige Lagerung der noch als Wertstoff angesehenen abgereicherten Fraktion. In Europa wird von COGEMA in Pierrelatte eine Konversionsanlage ("Usine W") für die Umwandlung von UF_6 zu U_3O_8 betrieben. Die Zwischenlagerung des U_3O_8 erfolgt in speziellen Containern in Lagerhallen auf dem Gelände eines ehemaligen Uranerzaufbereitungsbetriebs in Bessines-sur-Gartempe. Die Lagerbehälter des Typs DV70 enthalten bis zu 10,5 t U_3O_8 mit einer durch spezielle Kompaktierungsprozesse erreichten Schüttdichte von 3 g/cm^3 /HLD 01/. 44 % der Schüttung liegt im Partikelbereich zwischen 50 µm und 1 mm /BEL 95/. Der Median der Korngrößenverteilung liegt bei etwa 1 bis 2 mm. Die Lagerbehälter werden auch für den Transport verwendet.

Im Zuge der beantragten Erweiterungsgenehmigung für ihre Urananreicherungsanlage in Gronau hat Urenco im September 1998 einen Antrag gestellt, eine Lagerhalle für die Einlagerung von bis zu 50.000 t Uran als chemisch stabiles Uranoxid (U_3O_8) zu errichten /URE 03/. Da die Umwandlung von UF_6 in Uranoxid in Pierrelatte erfolgen soll, ist in diesem Zusammenhang künftig mit einer Reihe von U_3O_8-Transporten auch in Deutschland zu rechnen.

3.2 Aschen

Ein großer Teil der in Kontrollbereichen anfallenden Mischabfälle besteht aus brennbaren Stoffen. In einem Kernkraftwerk ist gut die Hälfte der Mischabfälle dieser Abfallfraktion zuzuordnen. Typische verbrennbare Mischabfälle sind in mengenmäßig abnehmender Reihenfolge: Plastikfolie, Zellstofftücher (Windeln), Stoff (Lappen, Überkleider, Überschuhe), Holz, Papier/Pappe (Verpackungsmaterial, Filterpapier aus Absolutfiltern, Zonenschuhe sowie Fasern und Flusen aus der Wäschereizentrifuge /WEB 01/. Durch Verbrennung dieser Abfälle kann eine Volumenreduktion bis zu 97 % erreicht werden. Dabei werden die Abfälle weitgehend mineralisiert, d. h. die Verbrennungsrückstände (Aschen) gehen auch bei längerer Zwischenlagerung keine chemischen Reaktionen ein und sind nicht mehr faul- und gärfähig.

Verbrennungsanlagen befinden sich u.a. in Karlsruhe /HDB 03/, Jülich /HAL 01/ und Studsvik (Schweden) /SIN 03/. Letztere wird vor allem von deutschen KKW-Betreibern genutzt. Das Verfahrensschema der Verbrennung in Studsvik zeigt Bild 3.5.

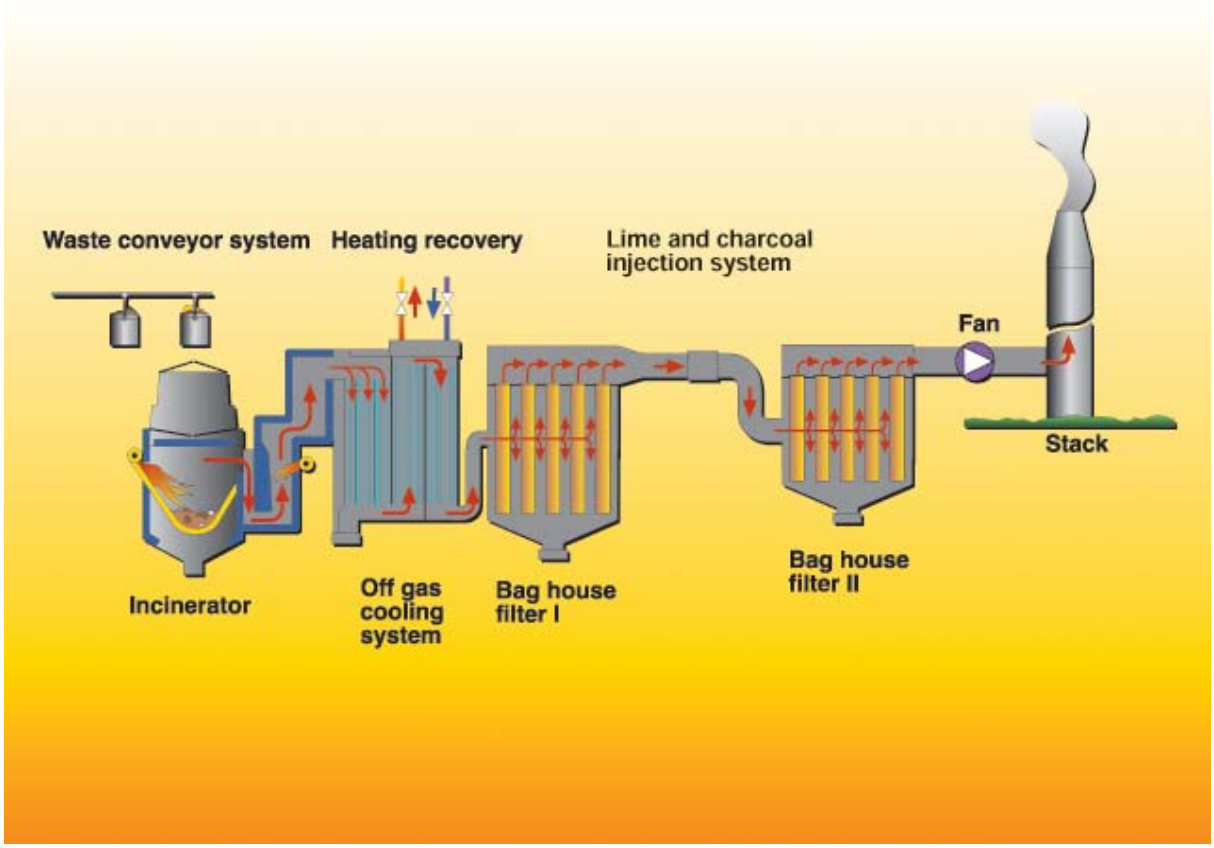


Bild 3.5: Verfahrensschema der Verbrennungsanlage in Studsvik (Schweden) /STU 03/

Bei diesem Verfahren fällt ca. 80 % der Asche in der Brennkammer und 20 % als Flugasche in den Schlauchfiltern an. Die Asche wird in 200-l-Fässer abgefüllt, dabei kann die feine Flugasche mit der gröberen Ofenasche vermischt oder auch getrennt abgefüllt werden. Die Konsistenz der Ofenasche hängt stark von dem verbrannten Abfall ab und kann zwischen klumpig grob (Schlacke) und feinstaubig locker (wie Hausasche) liegen /KRA 04/. Die Aschefässer werden in 20-Fuß-Container verladen, die als IP2-Verpackung für den Rücktransport zum Abfallverursacher dienen. Somit fallen hier LSA-II-Transporte mit unkonditionierten Aschen an.

Demgegenüber werden die in den Verbrennungsanlagen Karlsruhe und Jülich anfallenden Aschen in Presstrommeln gefüllt und vor Ort durch Hochdruckverpressung kompaktiert. Bild 3.6 zeigt die Hochdruckpresse in der Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe (HDB) im FZK. Auf die früher durchgeführte Zementierung der Aschen wird heute in Deutschland ver-

zichtet. Die gepressten Pellets werden anschließend in 200-l-Fässer gelegt und ggf. der Zwischenraum noch mit Zement ausgefüllt. Öffentliche Transporte dieser verpressten Asche-Pellets sind hier erst bei der Anlieferung ins Endlager zu erwarten. Dabei werden die Fässer voraussichtlich in Konrad-gängigen Containern transportiert, die ggf. noch durch Zementfüllung formstabil fixiert sind. Auch ein direktes Einbringen der Pellets in Endlagercontainer z.B. des Typs IV mit anschließender formstabiler Zementverfüllung wird praktiziert /HAL 03/. Um dabei eine Feuchtigkeitsaufnahme der Asche und Korrosionsvorgänge zu vermeiden, werden neuerdings die Pellets zuvor mit einer PU-Schicht (Poly-Urethan-Folie) ummantelt.

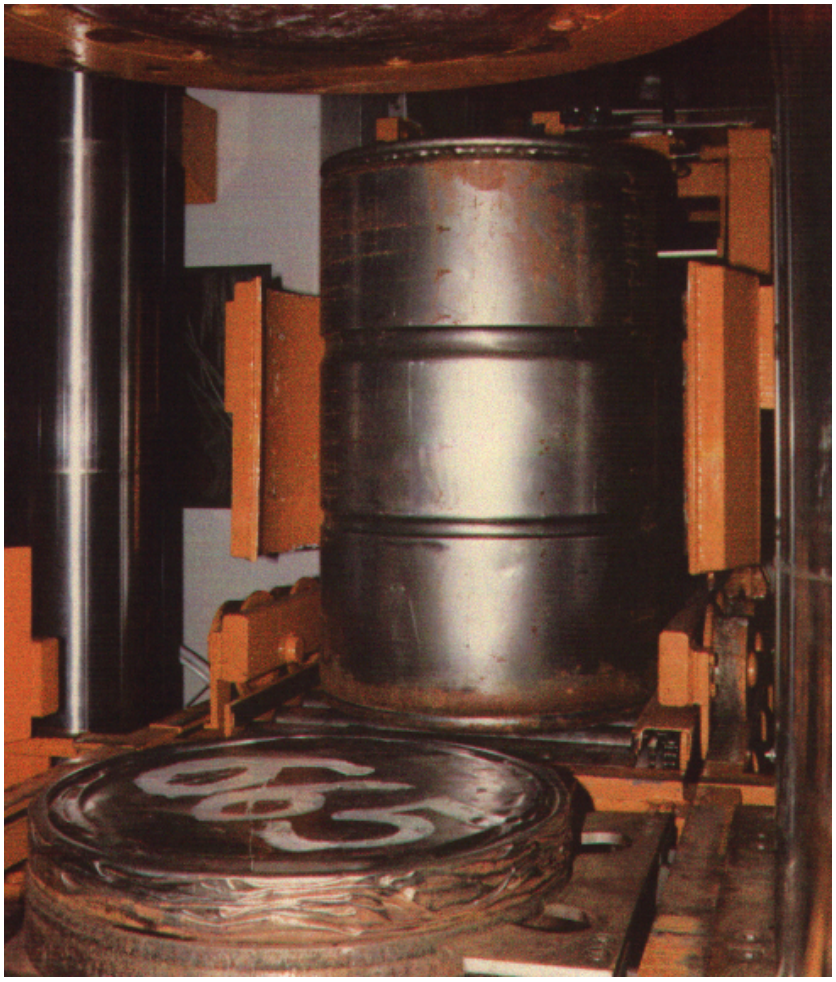


Bild 3.6: LAW-Hochdruckpresse in der HDB /HDB 03-1/

Aktuelle Untersuchungen zur Partikelgrößenverteilung in den Aschen sind nicht bekannt /DIR 03/, /HAL 03/, /KRA 04/. Nach /HAL 03/ weisen gelegentlich beim Pressen austretende Aschereste auf eine Erhöhung des Feinstaubanteils durch den Pressvorgang hin. In /GRS 85/ und /SEE 87/ wird ein Partikelspektrum für Aschen der Studsvik-Anlage aufgeführt, deren Quelle auf Siebanalysen der früheren TRANSNUKLEAR GmbH aus dem Jahre 1984 basiert

/TN 84-1/. In Bild 3.7 ist diese Verteilung wiedergegeben. Die relativ grobe Korngröße deutet darauf hin, dass es sich um Asche aus der Brennkammer handelt. Diese Rostasche der Öfen der Abfallverbrennungsanlagen lässt sich nach Aussage von /DIR 03/, /HAL 03/, /KRA 04/ durchaus mit Hausasche vergleichen, wobei die Eigenschaften je nach Rohabfall stark streuen. In /SEE 87/ wurde das Partikelspektrum einer Hausaschefraktion < 2 mm geometrisch durch Siebanalyse und aerodynamisch durch Einsatz eines Schwingbett-Aerosolgenerators ermittelt. Die Ergebnisse sind ebenfalls in Bild 3.7 enthalten. Die aerodynamische Partikelgrößenverteilung zeigt, dass auch bereits in der Rostasche ein erheblicher Feinanteil enthalten ist.

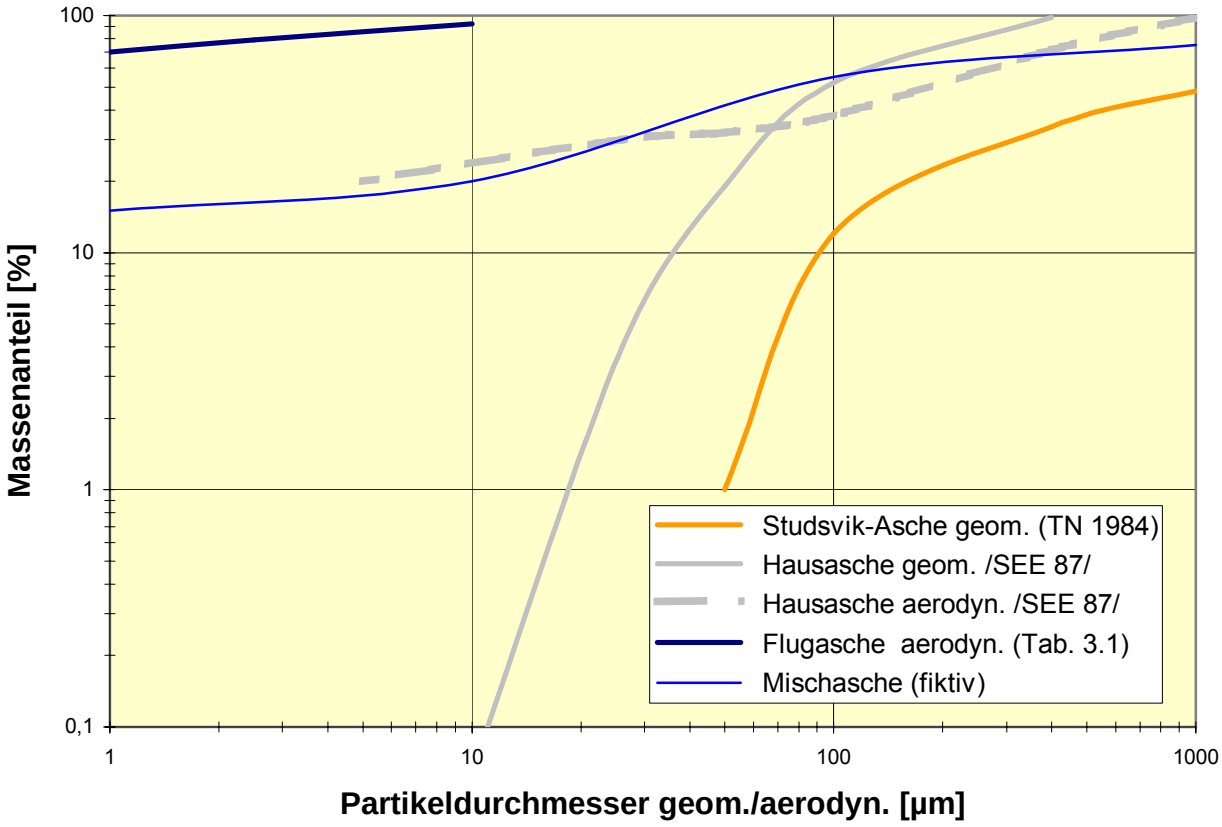


Bild 3.7: Partikelgrößenverteilungen von Aschen

Für Sicherheitsanalysen ist konservativ das feinere Partikelgrößenspektrum der Flugasche mit einzubeziehen, die, wenn man als Referenz die Verbrennungsanlage und den Ablauf von Studsvik zugrunde legt, einen merklichen Anteil im Transportgebinde ausmacht. Zur Bewertung der Partikelgrößenverteilung von Flugasche finden sich in der Literatur zahlreiche Untersuchungen, vor allem im Zusammenhang mit der Schadstoffrückhaltung bei Verbrennungsanlagen, aber auch, weil Flugasche aus der Kohleverbrennung (PFA, Pulverised Fly Ash) ein wertvoller Bestandteil von Zement sein kann /FAR 03/. Für die Betrachtungen hier

sollen ein paar Untersuchungen zur Flugasche von Abfall- und Holzverbrennungsanlagen herangezogen werden.

Asche entsteht bei der Verbrennung aus den nicht brennbaren mineralischen Bestandteilen des Brennstoffs und den nicht brennbaren Begleitstoffen. Die Freisetzung der anorganischen Verbindungen aus der organischen Brennstoffmatrix und die anschließende Bildung der Aschepartikel erfolgt durch eine Reihe komplexer Verdampfungs-, Kondensations-, Fragmentierungs- und Agglomerationsprozesse, die zusammen mit Thermophorese (Wanderung auf Grund eines Temperaturgradienten), Partikelimpaktion (Aufprall auf eine feste Oberfläche), chemischen Reaktionen und Phasenumwandlungen auch für die Bildung von Ascheablagerungen und Verkrustungen verantwortlich sind. Bild 3.8 zeigt die Mechanismen der Aerosolbildung:

- Direkter Abbrand der Koks- / Asche-Partikel führt zu schmelzflüssigen anorganischen Partikeln, die fragmentieren und Flugstaub (d = 1 bis 20 µm) bilden.
- Flüchtige anorganische Bestandteile verdampfen bei höheren Temperaturen (1400 bis 1600°C). Aus der Gasphase entstehen bei Abkühlung durch Nukleation Primärpartikel, die schnell zu ultrafeinen Partikeln (UFP; d < 0,1 µm) koagulieren.
- Durch Agglomeration der UFP entstehen größere Partikel, die i.a. als Feinstaub (d = 0,1 bis 1 µm) bezeichnet werden.

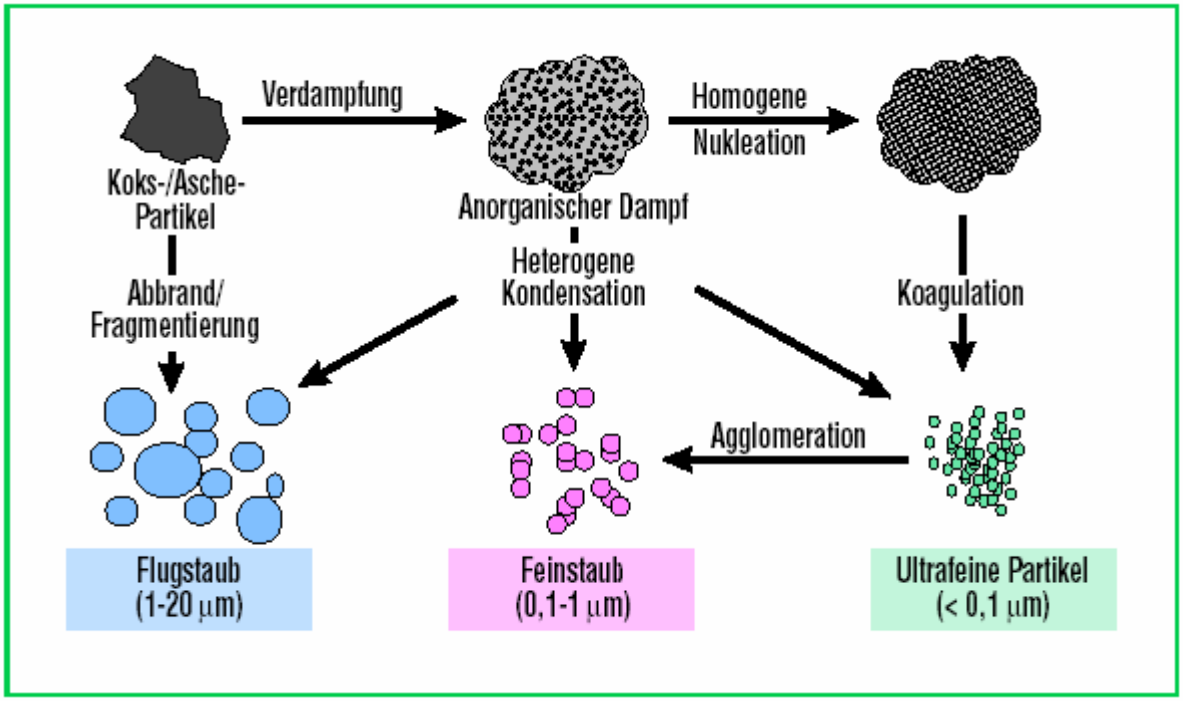


Bild 3.8: Mechanismen der Aerosolbildung bei der Verbrennung /PAU 00/

Bei Versuchen an der Pilotanlage zur Hausmüllverbrennung TAMARA im Forschungszentrum Karlsruhe konnte die Größenverteilung des bei der Rostverbrennung von Abfällen entstehenden Aerosols durch Rasterelektronenmikroskopische (REM)-Aufnahme und mittels differentiellem Mobilitätsanalysator (DMA) im Bereich 10 – 1000 nm charakterisiert werden (Bild 3.9) /PAU 00/. In der Anzahlverteilung liegen 2 Maxima (Modi) vor, einer bei 40 nm und einer bei 150 nm. Gemäß einer parallel durchgeführten Impaktormessung besteht 60% der Masse dieses Aerosols aus Partikeln, die kleiner als 1 µm sind. Ein ähnlicher Befund wurde auch bei der Beprobung des Aerosols einer Holzfeuerung /IVD 99/ erhalten. Die Partikelgrößenverteilung im Abgas mechanisch beschickter Holzfeuerungsanlagen mit Feuerungswärmeleistungen im Bereich 50 kW bis 1.000 kW ist in Tabelle 3.1 dargestellt. Dabei zeigt sich, dass rund 70 % der emittierten Gesamtpartikelmasse aus Partikeln der Größenklasse < PM_1 mit aerodynamischen Durchmessern kleiner 1 µm besteht. In Bild 3.10 ist diese Verteilung graphisch dargestellt.

Tabelle 3.1: Mittlere Anteile an der emittierten Gesamtpartikelmasse bei mechanisch beschickten Holzfeuerungsanlagen (Feuerungswärmeleistung 50 kW bis 1.000 kW) in den Größenklassen < PM_1, < $PM_{2,5}$ und < PM_{10} /LFU 02/

Größenklasse	< PM_1	< $PM_{2,5}$	< PM_{10}
Anteil an der Gesamtmasse	70 %	79 %	92 %

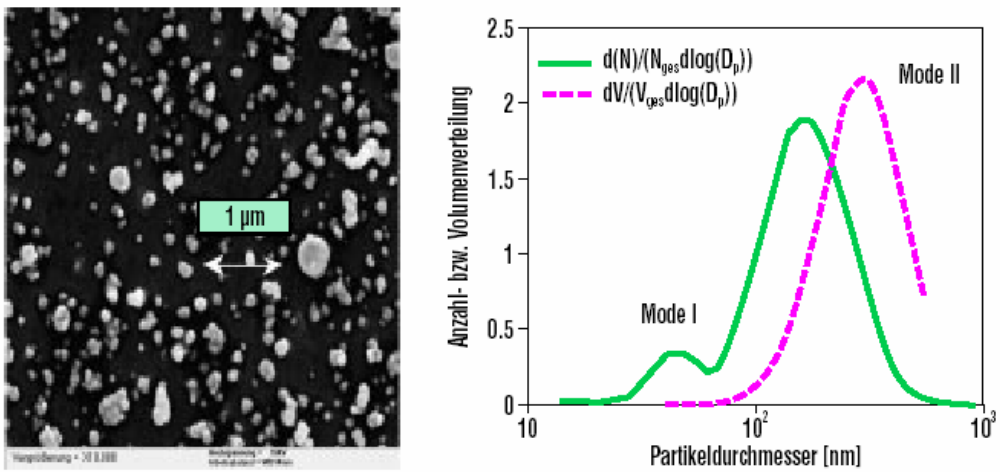


Bild 3.9: Rasterelektronenmikroskopische (REM)-Aufnahme des TAMARA-Aerosols und mittels differentiellem Mobilitätsanalysator (DMA) gemessene Partikelgrößenverteilung des TAMARA-Aerosols vor Schlauchfilter /PAU 00/.

Nach Obernberger /OBE 01/, /OBE 03/ ist die Partikelverteilung aus der Verbrennung von Biomasse jedoch grundsätzlich bimodal, mit einem Peak im Submicron-Bereich und einem im Bereich der groben Flugasche, der abhängig von der verbrannten Holzart zwischen 30 und 70 µm gefunden wurde, siehe Bild 3.10. Grobe Flugaschen entstehen durch Aufwirbelung von Asche bzw. Holzkohle vom Brennstoffbett und Austrag mit dem Rauchgas aus dem Feuerraum. Der Anteil der groben Flugasche hängt stark von der Aschekonzentration des Brennstoffs und den Strömungsverhältnissen im Ofen ab und hat nach /OBE 03/ einen Anteil von 50-70 % an der gesamten Flugstaubmasse.

Auf Basis dieser Erkenntnisse könnte die Zusammensetzung eines Aschegemisches, wie es aus der Studsvik-Anlage stammt, wie folgt konstruiert werden: 50 % der Asche bestehe aus Ofenasche entsprechend der Studsvik-Kurve in Bild 3.7 und 50 % aus Flugasche. Die Flugasche wird zu 60 % als grobe Flugasche im Partikelbereich 10 – 100 µm, zu 10 % im Übergangsbereich 1 – 10 µm und zu 30 % im Submikronbereich angenommen. Mit dieser Verteilung ergibt sich der in Bild 3.7 dargestellte Kurvenverlauf für die fiktive Mischasche. Dieser Verlauf hat Ähnlichkeit mit der in /SEE 87/ aerodynamisch ermittelten Größenverteilung für Hausasche, deren maximaler Durchmesser durch vorherige Siebung allerdings auf 2 mm begrenzt war.

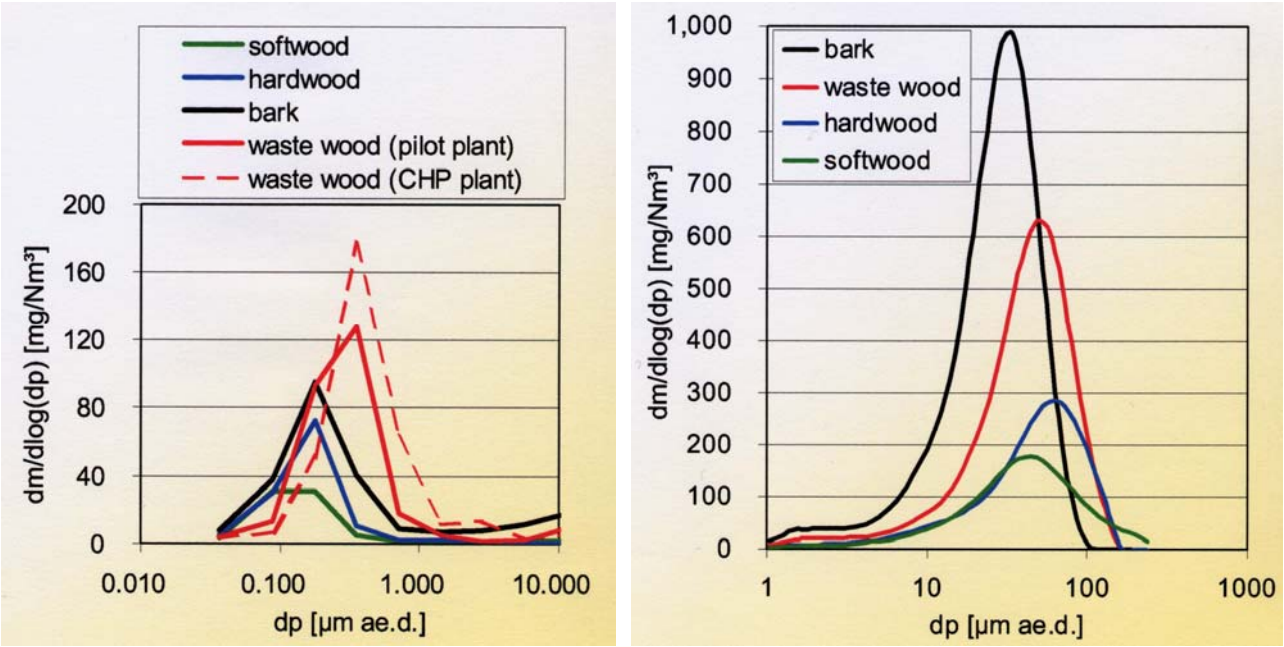


Bild 3.10: Partikelgrößenverteilung des Feinstaubes (links) und der groben Flugasche (rechts) im Abgas einer Holzverbrennungsanlage /OBE 03/

3.3 Filterhilfsmittel

In kerntechnischen Anlagen werden zur Reinigung von Prozessflüssigkeiten und Abwässern in großem Umfang Ionenaustauscherharze in Pulver- oder Kugelform oder Filterhilfsmittel wie Silikagel und Kieselgur eingesetzt. Nach Gebrauch fallen diese Stoffe als radioaktive Abfälle an, zum Teil mit hoher Aktivitätsbeladung, insbesondere bei der Reinigung des Primärkühlmittelkreislaufs in Kernkraftwerken. Hochbeladene Kugelharze werden zum Zwecke der Zwischen- und Endlagerung in Abschirmbehälter des Typs MOSAIK II gefüllt und im Behälter entwässert und getrocknet /SPI 01/. Der MOSAIK-Behälter kann beim Transport als Typ B(U), Typ A oder IP II-Verpackung eingesetzt werden. Eine unfallbedingte Staubfreisetzung ist aufgrund der massiven Behälterauslegung (160 mm Wandstärke, Gusseisen mit Kugelgraphit) jedoch auszuschließen.

Weniger aktive Ionenaustauscherharze werden heute in Deutschland der Verbrennung zugeführt /HAL 01/ oder kompaktiert /FZK 02/, im Ausland auch zementiert /WEB 01/ oder mit Kunststoff verfestigt /GNS 03/. In Deutschland könnten somit Rohabfälle mit pulverhaltigen Ionentauscherharzen oder anderen pulverförmigen Filterhilfsmitteln wie Kieselgur beim Transport zwischen Abfallverursacher und Konditionierungsbetrieb oder künftig als Endlagergebinde mit hochverpressten Pellets auf dem Weg ins Endlager als LSA-II-Gebinde transportiert werden.

Zur Partikelgrößenverteilung von Pulverharzen ist in /GRS 85/ und /SEE 87/ die Siebanalyse der TRANSNUKLEAR von zwei Pulverharzen wiedergegeben /TN 84-2/. In Bild 3.11 sind diese Log-Normal-Verteilungen mit Massen-Median bei geometrischen Durchmessern von 145 µm und 330 µm im doppelt logarithmischen Maßstab dargestellt.

Als weiteres Filterhilfsmittel ist Kieselgur zu betrachten, das als feines Pulver dem zu filtrierenden Stoff zugesetzt wird und zum Aufbau eines wirkungsvollen Anschwemmfilters führt. Kieselgur ist ein natürlicher, fossiler, durch Ablagerung der Kieselalgen-Schalen entstandener Stoff. Nach Gebrauch und Trocknung fällt die Kieselgur zusammen mit den ausgefilterten Feststoffen als fester anorganischer Abfall an, der ggf. einer Hochdruckverpressung zugeführt wird.

Von einem typischen Kieselgur-Produkt (Hyflo Super-Cel Celite) wurde in /SEE 87/ die Partikelgrößenverteilung bestimmt, und zwar wie zuvor bei den Aschen einmal durch Siebung die geometrische Größenverteilung und dann durch Anwendung des Schwingbett-

Aerosolgenerators die aerodynamische Verteilung. Beide Verteilungen sind in Bild 3.11 eingetragen. Wieder zeigt sich zwischen den beiden Messverfahren ein völlig unterschiedliches Bild im Feinstaubbereich.

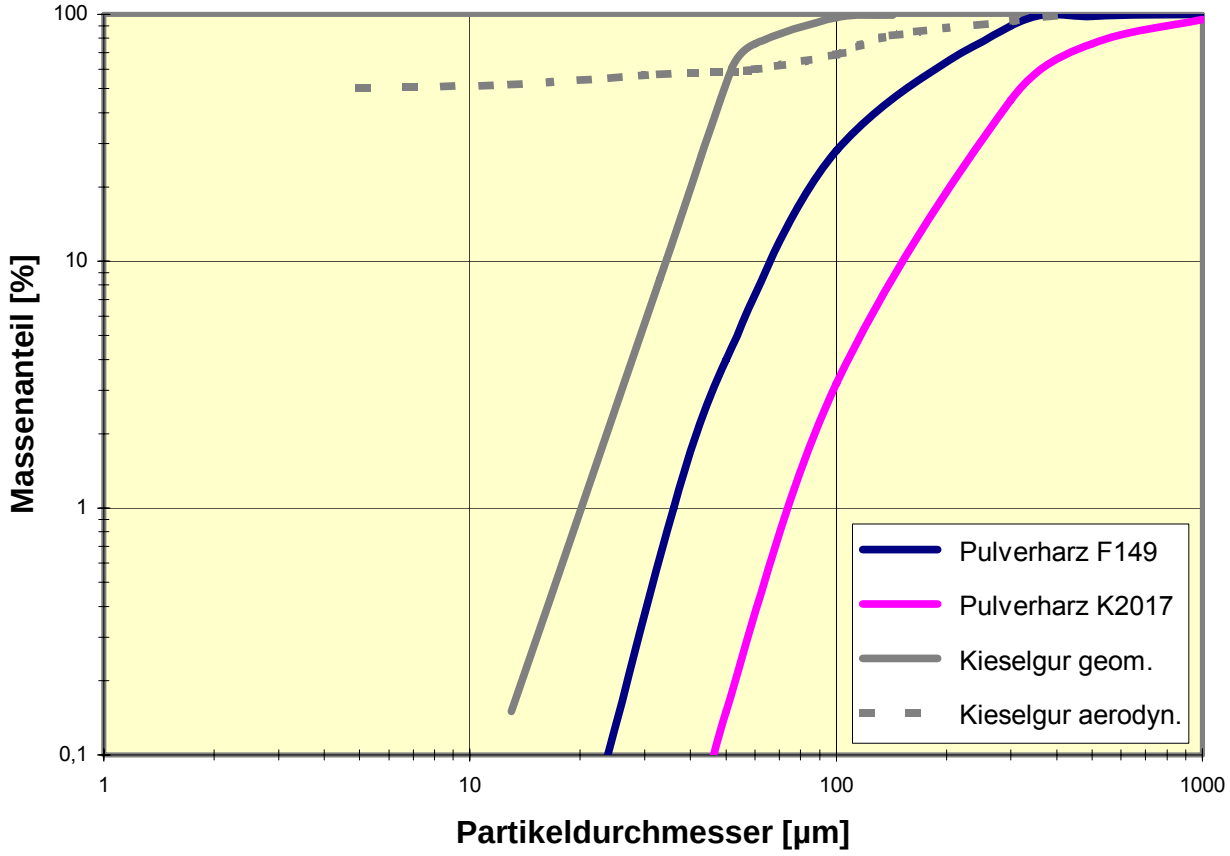


Bild 3.11: Partikelgrößenverteilungen von Harzen und Kieselgur

Im Vergleich der Verteilungen von Pulverharzen, Hausasche und Kieselgur wurde in /GRS 87/ Kieselgur als die Substanz mit dem größten Partikelfeinanteil als Referenzpulver für die in /SEE 87/ experimentell erfolgte Bestimmung des bei Endlagerstörfällen möglichen Freisetzungsanteils von dispergierbaren Partikelsystemen ausgewählt. In den Experimenten wurde jedoch Kieselgur ohne abgeschiedene Schwebstoffe untersucht. Es ist jedoch davon auszugehen, dass dies hinsichtlich möglicher Freisetzung von Feinstaub konservativ ist.

3.4 Bauschutt

Ein immer größer werdender Anteil an den insgesamt anfallenden radioaktiven Abfällen stellt der mit zunehmender Stilllegung und dem Rückbau kerntechnischer Anlagen verbundene

Bauschutt dar. Dabei werden große Anstrengungen unternommen, für den größten Teil der anfallenden Stahlbetonmassen nachzuweisen, dass die Aktivitätskonzentrationen unterhalb der Freigabewerte der Strahlenschutzverordnung fallen und somit eine uneingeschränkte Freigabe des Materials möglich wird. Um die für eine Freimessung notwendige Homogenität zu erhalten, müssen die abgebrochenen Betonstrukturen weiter zerkleinert werden. Hierzu kommen z.B. Mobilbagger, Backenbrecher, Beton-Shredder zum Einsatz /STA 03/, /SMB 03/. Der durch anschließende Siebung gesammelte Staub weist nach /SMB 03/ eine wesentlich höhere spezifische Aktivität auf als die groben Bruchfraktionen. Dieser Effekt wird derzeit in einem größeren, vom BMBF geförderten Verbundforschungsvorhaben näher untersucht /FZK 03/, /MEI 03/ und soll zu einem einsatzfähigen Verfahren der Aktivitätsseparation führen. Das Verfahrensprinzip zeigt schematisch Bild 3.12.

Der Anreicherungseffekt erklärt sich damit, dass die überwiegend wasser- und dampfgetragenen Kontaminationsprozesse ein Eindringen der Aktivität über Risse und Poren und einer Anlagerung an den Korngrenzen zwischen Zementstein und Zuschlagsstoff bewirken. Entlang dieser Korngrenzen verlaufen aber auch die Fraktionierungsprozesse bei der Materialzerkleinerung, verbunden mit einer Feinstaubfreisetzung aus den Bruchflächen. Daher sind in der Staubfraktion bevorzugt aktivitätshaltige Komponenten angelagert. Auch bei einer Separation der Bruchstücke in Zementstein und Zuschlagstoff zeigt sich eine höhere spezifische Aktivität in der Zementsteinphase.

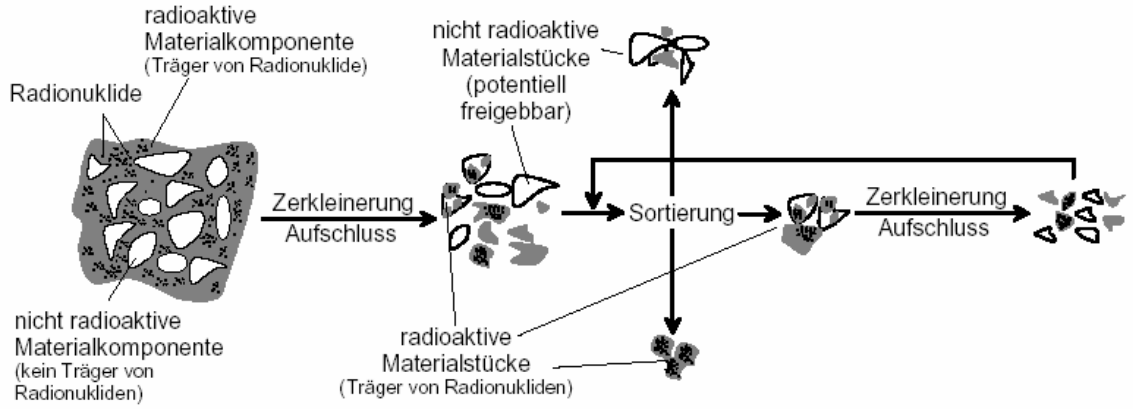


Bild 3.12: Verfahrensprinzip der Aktivitätsseparation von Bauschutt /MEI 03/

Im Hinblick auf einen möglichen Transport staubhaltigen radioaktiven Bauschutts stellt sich das Szenarium wie folgt dar: Der nicht freimessbare Bauschutt wird ohne weitere Konditionierung in einen endlagerfähigen Container gefüllt. Der im Separationsverfahren abgetrennte Staub wird unter Befeuchtung ebenfalls in den Container geschüttet /HAL 03/. Somit befindet sich im Zwischenlager-, Transport- und Endlagergebinde ein Gemisch aus Betonbruchstü-

cken und Feinstaub. Bei einem schweren Transportunfall wäre sowohl eine Freisetzung der vorhandenen Staubfraktion als auch die Bildung zusätzlichen Feinstaubs durch die mechanische Belastung zu unterstellen.

Messungen der Partikelgrößenverteilung der durch das Freimess- und ggf. das Separationsverfahren gebildeten Staubfraktion liegen derzeit nicht vor. Zur Beurteilung der Partikelgrößenverteilung in einer solchen Staubmischung können jedoch die Erkenntnisse aus dem Vorgänger-Vorhaben SR 2371 /LNK 02/ herangezogen werden. Darin wurde die Universalität der Fragmentgrößenverteilung bei sprödbrechenden Materialien im Größenbereich von 0,1 bis 100 µm aerodynamischer Durchmesser nachgewiesen. Die kumulierte Massengrößenverteilung lässt sich für diesen Bereich durch ein Potenzgesetz mit dem Exponenten ($\eta_{AED} = a \cdot d_{AED}^{b}$) mit dem Exponenten $b \cong 1$ (d.h. lineare Beziehung) unabhängig von Energieeintrag, Probekörpergröße und Material beschreiben. Aus dem Wert der freigesetzten Fraktion η_{100} kann daher unmittelbar auf die Freisetzung in kleineren Partikelgrößen geschlossen werden. Der lungengängige Anteil η_{10} (< 10 µm) beträgt demnach 10 % des luftgetragenen Anteils η_{100} und der Anteil unterhalb 1 µm folglich 1 % des luftgetragenen Anteils η_{100}. Angewendet auf einen mit Maschenweite 0,3 mm gesiebten Betonstaub ergibt sich nach dieser Gesetzmäßigkeit ein Durchmesser für den Massenmedian von 150 µm.

3.5 Sonstige dispergierbare radioaktive Materialien

3.5.1 Getrocknete Schlämme und Konzentrate

Schlämme und Konzentrate aus wässrigen Lösungen wurden in Deutschland bisher weitgehend zementiert, z.B. durch In-Fass-Zementierung /HDB 03-2/. Neuere Entwicklungen der Abfallbehandlung zielen darauf ab, Konzentrate und Schlämme durch Trocknung aufzukonzentrieren und zu einem kompakten endlagerfähigen Produkt zu konditionieren. So wird beim Kernkraftwerk Obrigheim seit 2000 eine In-Fass-Trocknungsanlage eingesetzt, mit der borhaltige Verdampferkonzentrate bei einem Volumenreduktionsfaktor von 5 – 7 zu einem kristallinen Salzblock eingetrocknet werden /KWO 01/. Das Aktivitätsinventar eines 200-l-Fasses wird dabei im Mittel mit 7 E+9 Bq/Gebinde angegeben.

Mit einem Wirbelbetttrockner und einer Wirbelbetttemperung wird in der Anlage TORA des Forschungszentrums Jülich aus Abwässern, Schlämmen und Konzentraten ein feinkörniges, rieselfähiges Trockenprodukt hergestellt /HAL 01/. Die mittlere Korngröße des Granulats wird

mit 1 mm angegeben /HAL 03/. Das Granulat wird in Presskartuschen gefüllt und durch Hochdruckverpressung weiter zu Presslingen (Pellets) kompaktiert. Qualitativ entsteht dabei eine Verschiebung der Partikelverteilung zu kleineren Durchmessern.

In Form dieser Pellets, die wiederum in Fässer verpackt in Transport- und Endlagercontainer eingebracht werden, kommt somit das granulierte Konzentrat für einen LSA-Transport (zum Endlager) in Frage.

3.5.2 Bodenaushub

Nach störfallbedingten Bodenkontaminationen oder vermehrt bei der Stilllegung von kerntechnischen Anlagen fällt ggf. kontaminiertes Erdreich an. Durch Eingrenzen der kontaminierten Stellen und Aussortieren von Hot Spots wird versucht, den größten Teil des Aushubs freizumessen. Das höher belastete Material wird in 200-l-Fässern gesammelt und der Konditionierung und Zwischenlagerung zugeführt /WAC 01/. Neben einer Hochdruckverpressung ist auch eine Sammlung des getrockneten Aushubmaterials in größeren Endlagergebinden ohne weitere Konditionierung denkbar. In diesem Fall liegt beim Transport ebenfalls ein leicht dispergierbares Partikelsystem vor.

Die Partikelgrößenverteilung getrockneten Erdaushubs hängt natürlich von der Bodenbeschaffenheit ab. Lehmiger Boden wird sich weniger dispergierbar zeigen als Sand. Grundsätzlich stellt natürliches Bodenmaterial ein Partikelsystem dar, das vorwiegend aus aggregierten Partikeln besteht und daher eher dem Grobstaub zuzurechnen ist. In /DOE 94/ wird von Versuchen mit getrocknetem kontaminierten Boden berichtet, dessen Partikelverteilung zwischen 5 µm und 1651 µm liegt mit einem Massenmedian bei 175 µm .

3.5.3 Strahlmittel

Bei der Dekontamination von Geräten und ausgebauten Anlagenteilen aber auch von Betonteilen und Bleiabschirmungen wird häufig eine Trocken- oder Nassstrahltechnik eingesetzt, bei der granulatförmige Strahlmittel z.B. aus Quarzsand, Glasperlen, Metallspänen oder Hartguss verwendet werden. Bei manchen Abrasivstrahlverfahren wird eine Recyclingtechnik zur Reinigung des Strahlmittels vom Abrieb und Rückführung in den Strahlprozess eingesetzt /SCH 01/, /GÄR 01/, um den Sekundärwaste zu minimieren. Letztlich fallen Strahlmittel und Abrieb als radioaktiver Abfall an, der durch Trocknung und ggf. Hochdruckverpressung in eine endlagerfähige Form gebracht wird.

Die Partikelgrößen des Strahlmittels richten sich nach den Bearbeitungsaufgaben. Handelsübliche Strahlmittel liegen bei Quarzsanden mit sehr feinem Körnungsgrad im Bereich von 50 µm Partikeldurchmesser, mittlere Körnungsgrade bei 250 µm, grobe bei 1 mm. Glasperlen als Strahlmittel haben mittlere Korngrößen von 50 µm (sehr fein) bis 350 µm (sehr grob) /WIW 03/. Durch Fraktionierung des Strahlmittels beim Strahlvorgang und Abrieb von der behandelten Oberfläche dürfte sich das Partikelgrößenspektrum zu kleineren Durchmessern hin verschieben.

4 Bewertung der Materialeigenschaften im Hinblick auf die Auswahl geeigneter Surrogate

Von den verschiedenen in Kapitel 3 angeführten potentiellen pulverförmigen radioaktiven Stoffen, die für einen möglichen Transport als LSA II infrage kommen, erscheinen aufgrund der Partikelgrößenverteilung, der Vielzahl der zu erwartenden Transporte, der unkonditionierten Vorlage innerhalb der Transportverpackung und der Qualität der Verpackung folgende Stoffe besonders relevant:

- Betonbruch einschließlich Staub in Endlagercontainern
- U_3O_8-Granulat aus der Konversion von UF_6 in Stahlblechbehältern (Lagerbehälter)
- Unkonditionierte Rostasche aus der Abfallverbrennung mit Flugasche gemischt in Fässern innerhalb von Transportcontainern
- Wiederaufgearbeitetes UO_2-Pulver in Industrieverpackung

Von diesen dispersiblen Stoffen weist das UO_2-Pulver mit einer schmalbandigen Partikelgrößenverteilung im Submikrometerbereich den größten Feinheitsgrad auf, aber auch die Asche und der Betonstaub weisen einen beträchtlichen Feinanteil auf. In Tabelle 4.1 sind typische Massenmediandurchmesser der verschiedenen Stoffe noch einmal zusammengestellt.

Tabelle 4.1: Mittlere Partikeldurchmesser dispergierbarer Stoffe

Dispergierbarer Stoff	Mittlerer Partikeldurchmesser, Massenmedian
UO_2	0,2 µm (d_{aed})
U_3O_8	1 – 2 mm (d_{geo})
Asche	10 µm
Betonstaub < 1mm	500 µm
Kieselgur	5 - 10 µm
Pulverharz	100 – 300 µm
Trockenkonzentrat	1 – 2 mm
Strahlmittel	50 –300 µm
Bodenaushub	175 µm

Aufgrund der hohen Massendichten von UO_2 und U_3O_8 ergeben sich signifikante Unterschiede zwischen geometrischem und aerodynamischem Partikeldurchmesser. Die Dichten der übrigen Stoffe liegen deutlich näher an der Einheitsdichte ρ = 1 g/cm³ und damit fallen die Unterschiede zwischen aerodynamischem und geometrischem Durchmesser deutlich geringer aus.

Für das im Rahmen des Vorhabens geplante Experimentalprogramm waren Fallversuche mit mittleren und real großen Proben aus verschiedenen Fallhöhen für ein repräsentatives Stoffsystemsimulat vorgesehen. Für ausgewählte Versuchsparameter sollten Fallversuche mit einem weiteren sich vom ersten deutlich unterscheidenden Stoffsystem durchgeführt werden. Für diese beiden Stoffsysteme sollten ferner kleine Proben (bis 100 g) mit der pneumatischen Impaktionsanlage des Fraunhofer-Instituts für Toxikologie und Experimentelle Medizin in Hannover (FhG-ITEM) untersucht werden.

Als Standardstoffsystem für die realskaligen Versuche kommen Quarzmehl, Quarzsand oder eine Mischung aus beidem infrage. Quarzmehle und Quarzsande werden großtechnisch als Zuschlagstoffe für die Baustoffindustrie in einem weiten Spektrum unterschiedlicher Korngrößenverteilungen hergestellt und sind somit preisgünstig in größeren Mengen verfügbar /QUA 03/, /EUR 03/. In Bild 4.1 ist eine kleine Auswahl unterschiedlicher Korngrößenverteilungen von Quarzsand und Quarzmehl dargestellt. Während die mittleren Korngrößen für feinere Quarzsande in einer Bandbreite zwischen 150 und 500 µm variieren können, liegt die Spanne für den Massenmedian bei Quarzmehl je nach Sortierung zwischen 90 und 16 µm und bei Feinstmehl zwischen 11 und 2 µm. Es zeigt sich in Bild 4.1, dass im Quarzsand der Feinanteil, der nach den Gesetzmäßigkeiten der sprödbrechenden Materialien vorhanden sein müsste, fehlt. Er dürfte wohl bei der Konditionierung des Sandes ausgewaschen worden sein. Dagegen ist in den Quarzmehlen der Feinstaub im erwarteten Umfang vertreten.

Eine Mischung aus Quarzmehl und Quarzsand erscheint z.B. gut geeignet, um das breite Größenspektrum von U_3O_8-Granulat zu simulieren. Auch für Pulverharze ist ein feiner Quarzsand gemischt mit etwas Quarzmehl oder ein gröberes Quarzmehl abdeckend. Ebenso kann Betonstaub gut durch ein gröberes Quarzmehl simuliert werden. In Bild 4.1 ist die fiktive Partikelgrößenverteilung eines Betonstaubes unter 300 µm Korngröße mit eingezeichnet, auf den die in Kapitel 3.4 beschriebene lineare Gesetzmäßigkeit angewendet wurde.

Ein anderes Simulat mit einer ähnlichen Partikelgrößenbandbreite wie Quarzmehl ist Hüttensand. Hüttensand wird aus abgezogener Schlackenschmelze im Hochofen gewonnen, die nach glasartiger Erstarrung zu feinem Pulver zermahlen wird und als Hauptbestandteil in einigen Zementsorten eingesetzt wird. Bild 4.2 zeigt die Größenverteilung verschiedener Hüttensande.

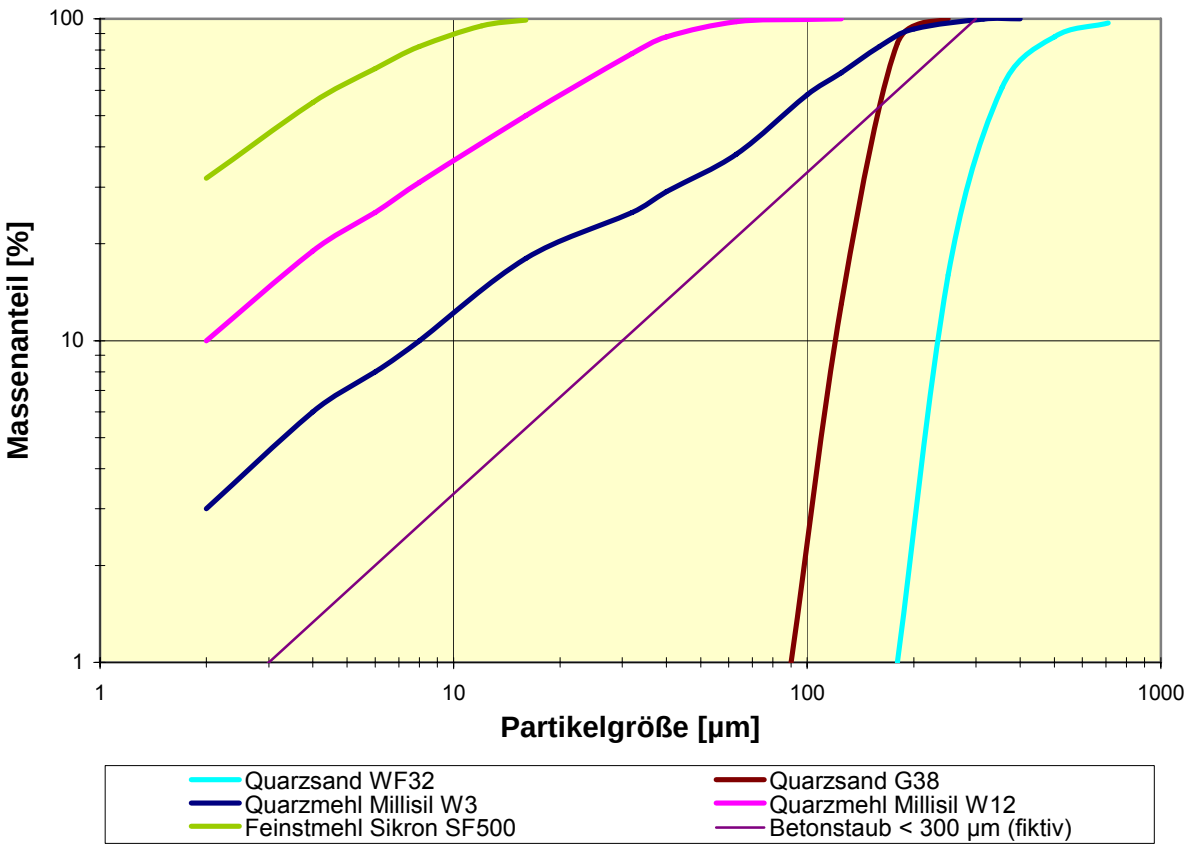


Bild 4.1: Partikelgrößenverteilungen von Quarzsand und Quarzmehl /QUA 03/

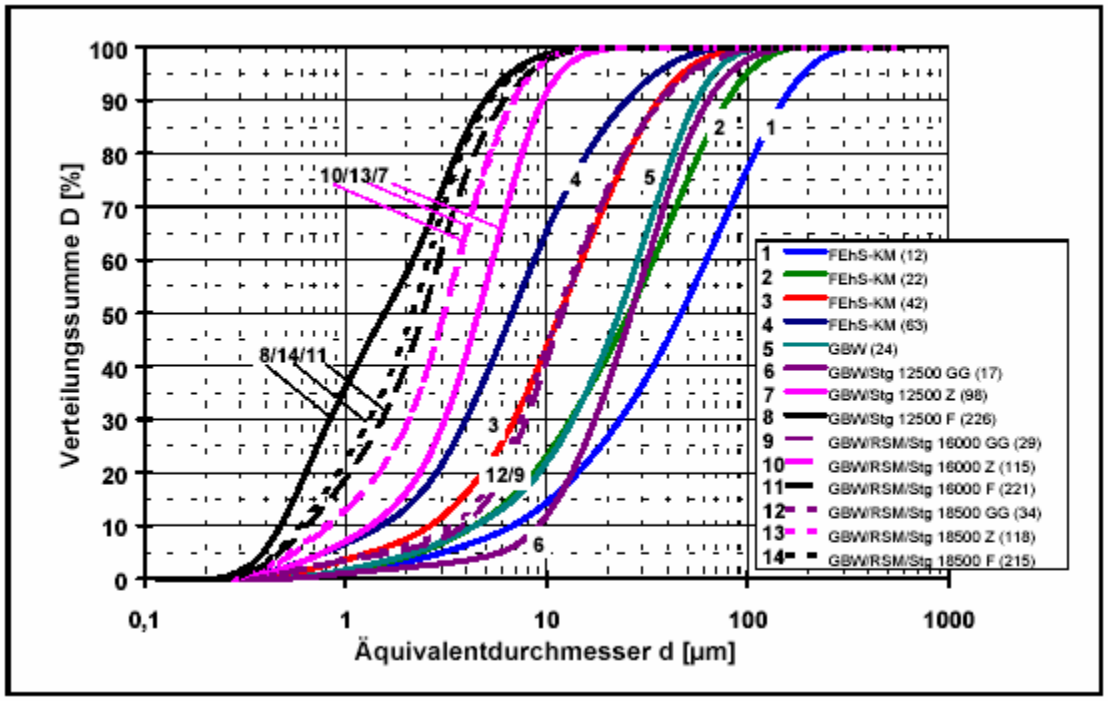


Bild 4.2: Korngrößenverteilung verschiedener Hüttensande /EHR 00/

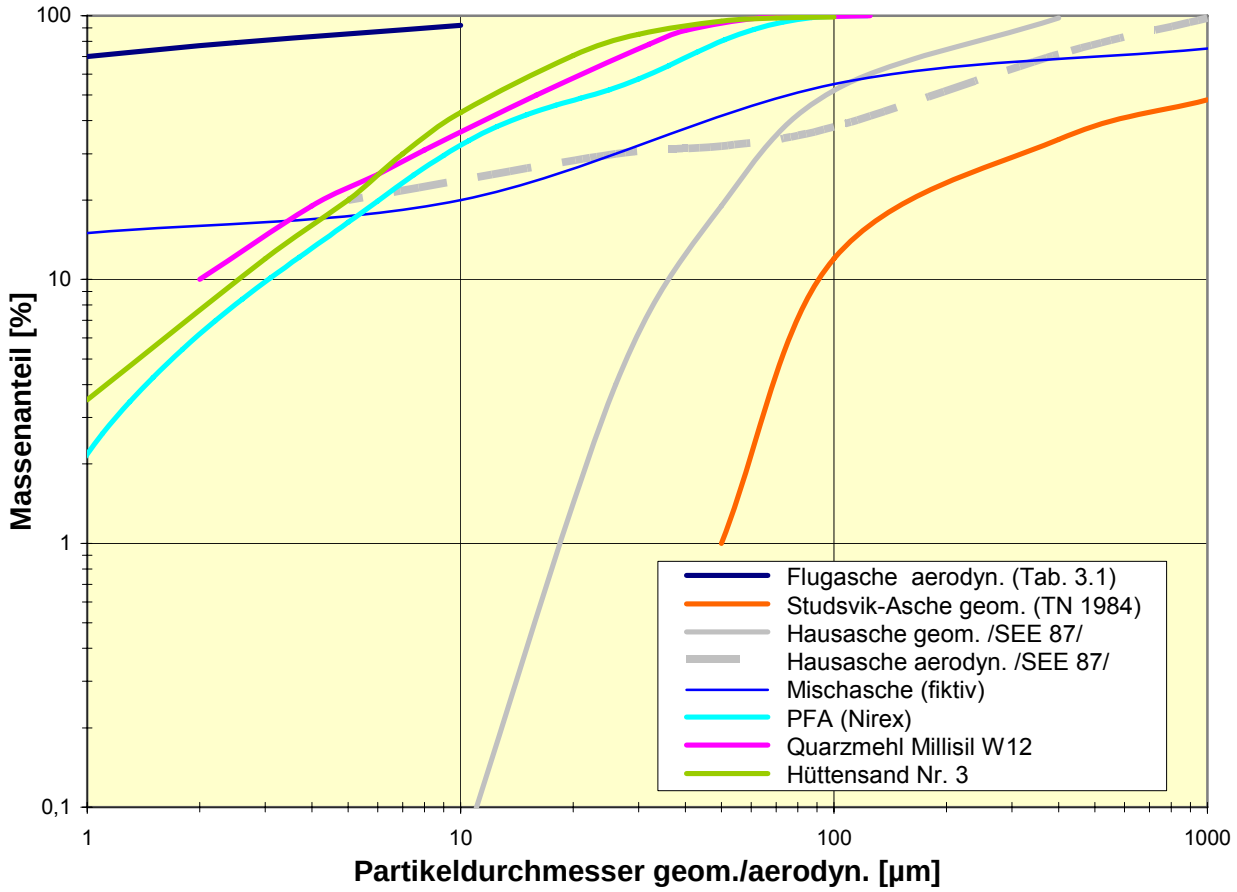


Bild 4.3: Vergleich der Partikelgrößenverteilung von Aschen mit Hüttensand, Quarzmehl und PFA

In Bild 4.3, in das zum Vergleich noch einmal die Größenverteilungen von Aschen aus Bild 3.7 aufgenommen sind, wurde die Verteilung eines mittelfeinen Hüttensandes (Nr. 3) aus Bild 4.2 und eines mittelfeinen Quarzmehls (Millisil W12) eingetragen. Weiterhin wurde die Verteilung eines PFA-Pulvers (Pulverised Fuel Ash) britischer Herkunft aufgenommen, das in /LAN 03/ für Vorversuche eingesetzt wurde (siehe Kapitel 5.2). PFA wird als Betonzusatzstoff eingesetzt (in Deutschland nach DIN EN 450 spezifiziert) und ist nichts anderes als Flugasche aus der Kohleverbrennung und damit ein repräsentatives Simulat für Aschen aus der Abfallverbrennung. Der Vergleich der drei möglichen Simulate PFA, Hüttensand und Quarzmehl zeigt aber, dass hinsichtlich des Partikelspektrum alle drei zur Simulation einer Asche nach dem in Kapitel 3.2 beschriebenen "Studsvik"-Modellfall geeignet sind; ggf. sollte der Feinststaubanteil durch Zugabe eines entsprechend feineren Pulvers etwas erhöht werden. Eine solche Verteilung erscheint auch hinreichend fein, um eine reales Kieselgur/Filterkuchen-Gemisch abzudecken, das aber mengenmäßig nicht so häufig auftritt.

Für die feine Partikelgrößenverteilung von Urandioxid-Pulver hat sich Titandioxid als geeig-

netes Simulat mit vergleichbarer Größenverteilung erwiesen. In Bild 4.4 sind noch einmal die Verteilungen aus Bild 3.2 einschließlich log-normaler Extrapolation dargestellt. Hinzugefügt wurde die Größenverteilung aus /LAN 03/, die auf Angaben von Nirex beruht (Nirex-UO_2). In /LAN 03/ wurden Vorversuche auch mit einem TiO_2-Pulver mit schmalbandiger Verteilung durchgeführt, siehe Kapitel 5.2. Die Verteilung dieses Pulvers ist ebenfalls in Bild 4.4 graphisch wiedergegeben (ITEM-TiO_2).

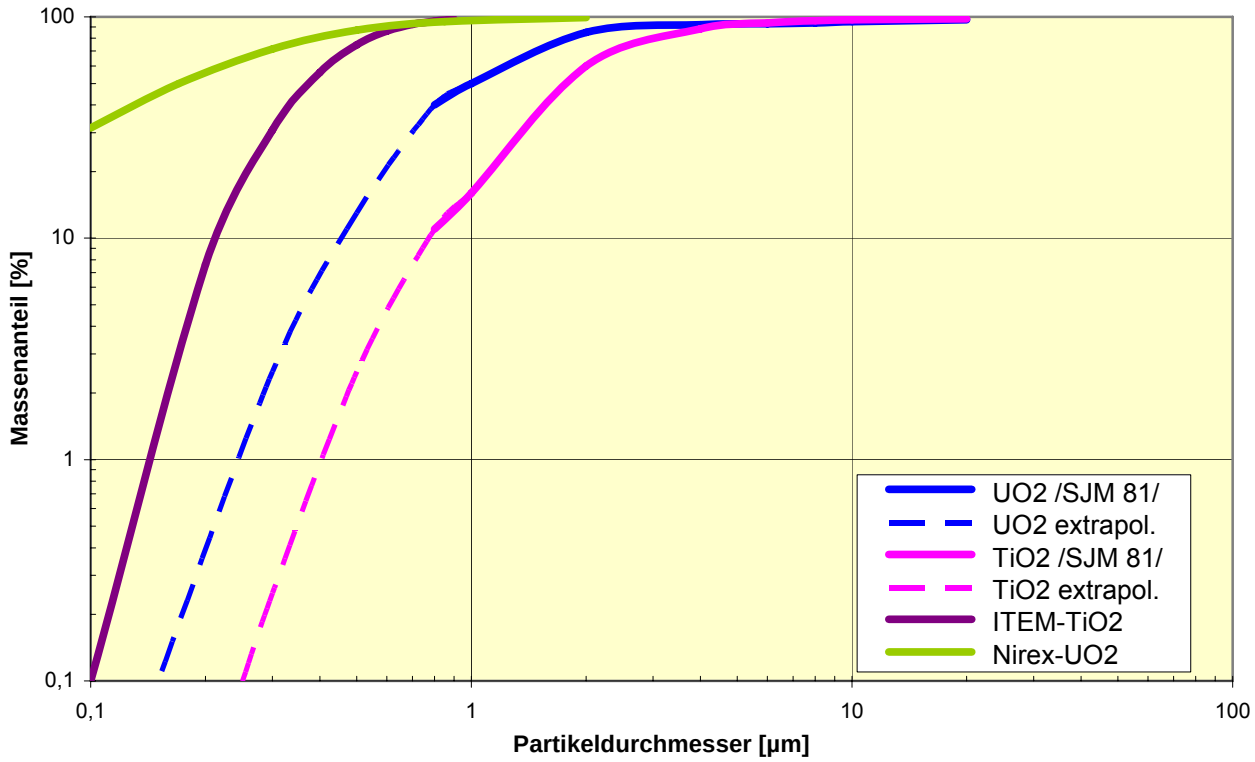


Bild 4.4: Partikelgrößenverteilungen von Urandioxid und Titandioxid

Zusammenfassend sind für die durchzuführenden Experimente folgende Surrogatmaterialien als geeignet und repräsentativ für verschiedene dispersible LSA-Materialien anzusehen:

- Quarzmehl als Surrogat für Asche, Betonstaub oder Kieselgur
- Quarzmehl gemischt mit Quarzsand für U_3O_8 und Pulverharz
- Flugasche (PFA) oder Hausasche als Surrogat für radioaktive Asche
- Hüttensand für Asche, Betonstaub oder Kieselgur
- Titandioxid für Urandioxid.

Letztendlich mussten für das in Kapitel 6 beschriebene Experimentalprogramm zwei Stoffsysteme ausgewählt werden. Dies war zum einen die Flugasche als eine Testsubstanz, die ein Stoffsystem repräsentiert, welches auch tatsächlich transportiert wird und dessen Größenverteilung mit denen anderer dispersibler Systeme relativ gut übereinstimmt. Bei der Flugasche handelt es sich überdies um ein Haufwerk mit sehr geringen Kohäsionskräften zwischen den Partikeln (dies wurde im Rahmen der Vorversuche im Rahmen des o.g. EU-Vorhabens /LAN 03/ erkannt), so dass die damit gemessenen Freisetzungsanteile eine obere Abschätzung darstellen werden. Zum anderen ähnelt das Titandioxid einerseits hinsichtlich der Partikelgrößenverteilung dem Urandioxidpulver und repräsentiert andererseits ein System mit geringer Staubneigung. Es deckt daher hinsichtlich der Freisetzung den unteren Rand realer Stoffsysteme ab.

5 Bestandsaufnahme des aktuellen Kenntnisstandes zum Fraktionierungs- und Freisetzungsverhalten dispersibler Materialien

Zum Vergleich mit den in den vorgesehenen Experimenten zu erwartenden, mit modernen aerosoldynamischen Methoden gewonnenen Ergebnissen soll der Stand des Wissens zum Dispersionsverhalten der partikelförmigen LSA-Materialien ermittelt werden durch:

- Literaturauswertung bisheriger nationaler und internationaler Untersuchungen
- Beschreibung und Auswertung durchgeführter Experimente
- Zusammenstellung bisheriger Annahmen zu Freisetzungsbetrachtungen, insbesondere zu Freisetzungsbruchteilen bei Transport- und Handhabungsstörfällen.

In der Literatur finden sich einige Experimente zum Verhalten von Pulvern beim freien Fall aus Höhen bis zu 5 m. Im DOE-Handbook /DOE 94/ werden Untersuchungen von Plinke et al. /PLI 91/ und Sutter et al. /SJM 81/ in den USA zusammengefasst.

In Deutschland wurden 1987 Aerosolmessungen nach Absturz von bis zu 6 kg Hausasche und bis 1 kg Kieselgur in einer Holzkiste mit aufklappbaren Seitenwänden aus Fallhöhen bis 5 m in einen Raum von 36 m³ durchgeführt /SEE 87/, /SEE 88/. Diese Versuche dienten der Absicherung der Annahmen in den Störfalluntersuchungen zum Endlager Konrad /GRS 87/.

In /LAN 03/ wurden im Rahmen eines EU-Vorhabens im Herbst 2002 erste orientierende Absturzversuche aus 9 m Höhe mit Surrogat-Pulvermengen (PFA, TiO_2) bis zu 49 kg in verschiedenen Verpackungen ausgeführt. Auf diese Versuche wird im Kapitel 5.2 noch näher eingegangen.

5.1 Versuche in den USA

Plinke et al. /PLI 91/ untersuchten die Faktoren, welche die Staubbildung beeinflussen. Generell wird die Höhe der Stauberzeugung als Funktion des Verhältnisses von ereignisbedingten Trennkräften zu den im Pulver vorhandenen Bindungskräften gesehen. Parameter, die Einfluss auf die Trennkräfte haben, sind Schüttdichte, Fallhöhe und Gesamtmasse des Pulvers. Auf die Bindungskräfte wirken sich die Partikelgrößenverteilung und die Feuchte des

Pulvers aus. Für die Staubbildung bei Beschleunigung durch die Schwerkraft und Aufprall auf eine unnachgiebige Oberfläche wird unter Annahme einer log-normal verteilten Partikelgrößenverteilung folgende empirische Modellgleichung angegeben:

$$L = 16{,}6\ (W)^{-0{,}75}\ (S_g)^{3{,}9}\ (D)^{-1{,}2}\ (M_g)^{-0{,}45}$$

mit: L = Freisetzungsbruchteil, mg Staub / kg fallendes Material
W = Feuchte-Gehalt, %
S_g = geometrische Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung
D = Schüttdichte, g/cm^3
M_g = Massen-Median-Durchmesser, der Partikelgrößenverteilung, µm.

Plinke et al. experimentierten mit Fallhöhen von 0,25 m bis 1,25 m und verwendeten als Versuchsmaterialien Sand, ungebrannten Kalk, Zement und Mehl. Die gemessenen Freisetzungsbruchteile lagen unter $3 \cdot 10^{-4}$.

Sutter et al. /SJM 81/ untersuchten den luftgetragenen Freisetzungsbruchteil von TiO_2 und DUO_2, (Partikelgrößenverteilungen siehe Bild 3.2) beim freien Pulverfall in einer zylindrischen Einhausung (20 m³-Edelstahlbehälter). Die Versuchsmengen variierten von 25 g bis 1000 g, die Fallhöhen betrugen 1 m und 3 m. Bei der größeren Fallhöhe und größeren Pulvermengen resultierten höhere Freisetzungsbruchteile. Der höchste Freisetzungsbruchteil lag bei $1{,}2 \cdot 10^{-3}$. Obwohl die Medianwerte der Partikelgrößenverteilung (geometrischer Durchmesser) der Ausgangspulver nur bei 1 µm (DUO_2) bzw. 1,7 µm (TiO_2) lagen, waren die Medianwerte des freigesetzten Staubes mit 6 µm bis 26,5 µm bedeutend höher.

Aus den Ergebnissen von Plinke und Sutter leitet das DOE-Handbuch folgende Empfehlungen für die Freisetzungsbruchteile ARF (Airborne Release Fraction) und RF (Respirable Fraction) beim freien Fall aus bis zu 3 m Fallhöhe ab:

- Median: ARF = $3 \cdot 10^{-4}$, RF = 0,5
- Obergrenze: ARF = $2 \cdot 10^{-3}$, RF = 0,3.

Für Fallhöhen > 3 m wird der folgende von Ballinger at al. /BAL 88/ entwickelte Algorithmus zur Berechnung des luftgetragenen Freisetzungsbruchteils beim freien Fall vorgeschlagen:

$$ARF = 0{,}1064\ (M_0^{0{,}125})(H^{2{,}37})/\rho_{BP}^{1{,}02}$$

mit: M_0 = Masse des ausgeschütteten Pulvers, kg
H = Fallhöhe, m
ρ_{BP} = Schüttdichte des Pulvers, kg/m³.

Für ein Beispiel mit M_0 = 100 kg, H = 3 m, ρ_{BP} = 2000 kg/m³ ergibt sich nach dieser Formel ein ARF von $1{,}1 \cdot 10^{-3}$, ein Wert, der sich gut an die Ergebnisse von Plinke und Sutter anschließt.

5.2 Versuche in Deutschland

Störfallanalyse Endlager Konrad

Von Seehars et al. /SEE 87, SEE 88/ wurden insgesamt 21 Fallversuche mit Hausasche und Kieselgur durchgeführt. Die Fallhöhen betrugen 1 m, 2 m, 3 m und 5 m und die Pulvermassen betrugen 0,25 kg und 1 kg bei Kieselgur und 0,5 kg, 2 kg und 6 kg bei der Hausasche. Die gemessenen Partikelgrößenverteilungen der Ausgangsmaterialien wurden bereits in Bild 3.7 und Bild 3.11 dargestellt. Das Pulvermaterial wurde jeweils in eine oben offene Sperrholzkiste eingebracht, die aus Wänden bestand, die beim Aufprall aufklappten. Der Aufprall erfolgte in einer 36 m³ großen Aerosolkammer, die mit einem Luftwechsel von 0,25/h belüftet war. In einigen Versuchen wurde am Aufprallort ein Ventilator betrieben, der über dem Boden eine Strömungsgeschwindigkeit von 1 m/s erzeugte. Es wurde die Staubkonzentration innerhalb der Aerosolkammer in verschiedenen Raumhöhen und die über die Abluft aus der Kammer entweichende Aerosolmenge gemessen. Die Ergebnisse können wie folgt zusammengefasst werden:

- Der Freisetzungsbruchteil nimmt mit abnehmender Masse zu. Dies gilt für alle Partikelgrößenbereiche.
- Die Freisetzung nimmt mit der Fallhöhe zu, z.B. nimmt bei Partikeln mit AED < 10 µm die Freisetzung bei Abwurf von 1 kg Kieselgur aus 1 m und 5 m Fallhöhe fast um den Faktor 4 zu.
- Mit zunehmendem aerodynamischen Durchmesser wächst der Freisetzungsbruchteil an.
- Unabhängig vom Durchmesserbereich ist die Freisetzung von Kieselgur viel höher als jene von Hausasche.
- Durch die Einschaltung des Umluftventilators erhöht sich die Freisetzung.
- Der maximale Freisetzungsbruchteil (AED < 10 µm) wurde für den Abwurf von 0,25 kg Kieselgur aus 5 m Höhe bei eingeschalteter Umluft gemessen. Er betrug 0,3 %.

Die Freisetzungsergebnisse für Kieselgur aus dieser Untersuchung wurden für die

Störfallanalyse des Endlagers Konrad zugrunde gelegt, auf deren Basis die zulässigen Aktivitätsgrenzwerte für die verschiedenen Abfallproduktgruppen festgelegt wurden.

ITEM-Versuche in Arnhem

Im Rahmen eines von der EU finanzierten Vorhabens /LAN 03/ wurde bei NRG in Arnhem (NL) eine Infrastruktur zur Messung der Freisetzung beim Abwurf großer Gebinde zementierter Abfälle aus 9 und 27 m Höhe errichtet: Fallvorrichtung mittels Autokran, kubisches Kontrollvolumen mit 27 m³ Rauminhalt. Vom ITEM wurde dabei die Freisetzung lungengängiger Teilchen mittels des in Abschnitt 6 beschriebenen Verfahrens unter Verwendung von 4 Respicons und eines Kaskadenimpaktors gemessen.

Es war nahe liegend, diese Infrastruktur auch für die Gewinnung erster orientierender Ergebnisse für pulverförmige Systeme zu nutzen. Daher wurden entsprechende weitgehend aus Eigenmitteln finanzierte Untersuchungen zur Vorbereitung des vorliegenden Projektes durchgeführt. Das Ziel der Messungen war es, erste Informationen über Art und Höhe der Freisetzung bei Pulvern und Hinweise auf die relevanten, die Freisetzung kontrollierenden Parameter zu gewinnen. Es wurden zwei Stoffsysteme in unterschiedlich großen Gebinden aus 9 m abgeworfen und die Freisetzung gemessen. Bei den Stoffsystemen handelte es sich um Zementpulver (Dichte 2,2 g/cm³) mit einer breiten Größenverteilung im Bereich zwischen 1 und 100 µm (Medianwert 20 µm, geometrische Standardabweichung 3,2, Anteil < 10 µm AED 25 %) und Titandioxid mit einer schmalbandigen Verteilung aus Submikrometerpartikeln (92% der Partikelmasse im Größenbereich zwischen 0,1 und 0,7 µm).

Die Partikelgrößenverteilungen der verwendeten PFA und des Titan-Pulvers sind sehr unterschiedlich. Titandioxid ist erheblich feindisperser. Titandioxid weist aufgrund der kleinen Partikelgrößen und der damit verbundenen höheren Adhäsionsenergie gegenüber dem Flugaschepulver eine vergleichsweise niedrige Staubbildungsneigung auf. Für die Flugascheversuche wurden folgende Behälter eingesetzt: zwei unterschiedlich große Pappkartons (10 kg und 49 kg Inhalt), Blecheimer (5 und 15 kg Inhalt) und eine Plastiktüte gefüllt mit 5 kg Flugaschestaub. Für die Titandioxidversuche wurden nur die beiden Blecheimer verwendet.

Die gemessenen Freisetzungsfraktionen im Partikelgrößenbereich < 10 µm sind in Tabelle 5.1 dargestellt. Hier wurde die als Aerosol kleiner 10 µm freigesetzte Masse auf die gesamte eingesetzte Pulvermenge bezogen.

Tabelle 5.1: Freisetzungsfraktionen (AED < 10 µm) von Flugasche- und Titandioxidpulver nach Abwurf aus 9 m Höhe

Behälter	Flugasche	Titandioxidstaub
Gr. Pappkarton	3,9 E-4	
Kl. Pappkarton	1,3 E-4	
Gr. Eimer	6,8 E-5	9,7 E-7
Kl. Eimer	1,2 E-4	2,4 E-6
Plastiksack	3,8 E-5	

Der große Pappkarton hielt dem Druck des beim Aufprall auseinanderstrebenden Staubes am wenigsten stand und platzte völlig auf (siehe Bild 5.1). Die anderen Behältnisse wurden nur teilweise zerstört.

Bild 5.1: Mit Flugasche gefüllte Pappkartons nach Abwurf aus 9 m Höhe.

Für den Flugaschestaub variieren die Freisetzungsfraktionen im lungengängigen Partikelgrößenbereich maximal um den Faktor 10, wobei die Höhe der Freisetzung mit dem „Schadensbild“ korreliert (vergl. Bild 5.1 und Bild 5.2). Bei der Plastiktüte verblieb im Vergleich zu den anderen Behältnissen der größte Teil des Staubes in der Umhüllung.

Bild 5.2: Mit Flugasche gefüllte Plastiktüte nach Abwurf aus 9 m Höhe

Bild 5.3: Verteilung des Titandioxids (links) und der Flugasche (rechts) nach Abwurf aus 9 m Höhe.

Die Staubart (Staubigkeit) beeinflusst die Staubfreisetzung sehr stark, wie aus Tabelle 5.1 hervorgeht. Der Unterschied zwischen Flugasche und Titandioxid beträgt aufgrund der größeren Kohäsion der TiO_2-Partikeln im Vergleich zu den Flugascheteilchen und der damit verbundenen schlechteren Dispergierfähigkeit nahezu zwei Größenordnungen. Dies äußert sich qualitativ auch in der Größe des Bereiches, über den das Pulver nach dem Auftreffen des Behälters auf dem Boden verteilt ist (Bild 5.3).

Der Befund der starken Materialabhängigkeit der Freisetzung pulverförmiger Systeme steht im Gegensatz zu der festgestellten evidenten Universalität hinsichtlich Entstehung und Freisetzung luftgetragener Stäube beim Absturz von Gebinden aus sprödbrechenden Materialien.

6 Experimentelles Vorgehen

6.1 Allgemeines

In Analogie zu den oben beschriebenen Voruntersuchungen wurden systematische Freisetzungsexperimente (Fallexperimente, vertikale Richtung) mit frei dispergierbaren Haufwerken sowie umhüllten Gebinden für unterschiedliche Gebindegrößen- und Fallhöhenskalen durchgeführt. Die Staubfreisetzung im Partikelgrößenbereich <10 µm wurde dabei durch zeit- und größenaufgelöste Aerosolkonzentrationsmessung innerhalb eines umschlossenen Kontrollvolumens quantifiziert. Die Fallversuche wurden in Kooperation mit der Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM) auf deren Versuchsgelände in Lehre durchgeführt.

In der nachfolgenden Testmatrix ist der experimentell realisierte Variationsbereich von Probekörpermasse und Fallhöhe angegeben. Gegenüber der im Antrag formulierten Vorhabensbeschreibung haben sich durch die versuchstechnischen Randbedingungen geringfügige Änderungen ergeben. Die Fallhöhe war aufgrund der Höhenlimitierung des Fallturms und des Höhenbedarfs der Vorrichtung zur Auslösung auf 22 m beschränkt.

Tabelle 6.1: Testmatrix der Fallversuche (Spalten 2-6) und Beschussversuche (grau unterlegte Zellen in Zeile 3)

	1	2	3	4		5	6	7
1		**Fallhöhe [m]**						
2	**Masse [kg]**	**3,2**	**5,2**	**9**		**15**	**22**	**72**
3	**0,1**			x +	x +	x +	x +	x +
4	**0,4**			x				
5	**2**			x				
6	**10**	x +	x +	x +		x +	x +	
7	**20**			x				
8	**260**	+	+	+		+	+	

Bei den Experimenten handelt sich im Wesentlichen um vertikale Fallversuche, bis auf die grau unterlegten Felder, die für Versuche mit der horizontalen Beschussapparatur stehen. Das Symbol „x“ bedeutet Experiment mit frei dispergierbarem Pulver (ohne Umhüllung), „+“ bedeutet Experiment unter Verwendung einer Gebindeumhüllung. Bei der unteren Zeile 8 handelt es sich um Fallversuche mit 200 l-Typ-A-Fässern. Der Pulverinhalt betrug ca. 260 kg, das Leergewicht der Fässer 42 kg.

Mit der Testmatrix sollte der Einfluss von Probekörpermasse (siehe Eintragungen in der 4. Spalte), Fallhöhe (siehe Eintragungen in der 6. und 8. Zeile) sowie Umhüllung (6. Zeile) auf die Staubfreisetzung bei vertikalem Aufprall erfasst werden. Die Testmatrix wurde für ein repräsentatives Stoffsystemsimulat, nämlich Flugasche (s. u.) vollständig abgearbeitet, für ein zweites Stoffsystem (Titandioxid, s. u.) wurden die Experimente der Spalte 4 (9 m Fallhöhe) für Massen zwischen 0,1 und 20 kg durchgeführt.

Zur systematischen Untersuchung des Einflusses der stofflichen Eigenschaften der Haufwerke und der Gebindeumhüllung auf das Staubfreisetzungspotential wurden zusätzlich unter Verwendung der im Fraunhofer ITEM vorhandenen pneumatischen Impaktions- und Klassierapparatur Freisetzungsexperimente mit kleinen Probenmengen durchgeführt.

6.2 Herstellen der Teststäube und Gebinde

Als Testsstäube wurden – wie in Kapitel 4 dargestellt – Flugasche und Titandioxid verwendet. Die Flugasche vom Typ EFA-Füller KM/C wurde von der Fa. BauMineral, Herten bezogen. Sie dient als Betonzuschlagsstoff. Die Schüttdichte beträgt 1,15 g/cm³, die Materialdichte 2,45 g/cm³. Es handelt sich bei diesem Produkt (wie bei allen Flugaschen) um vornehmlich kugelförmige Partikeln (Bild 6.1).

Die mittlere Korngrößenverteilung ist in Bild 6.2 in Form der Massensummenverteilung über dem geometrischen Durchmesser dargestellt. Die Umrechnung zwischen geometrischem Durchmesser, x_{geom}, und aerodynamischem Durchmesser, x_{aed}, erfolgt über die Materialdichte ρ:

$$x_{aed} = \sqrt{\frac{\rho}{\rho_0}} x_{geom} \qquad \rho_0 = 1 \ \text{g/cm}^3 \ .$$

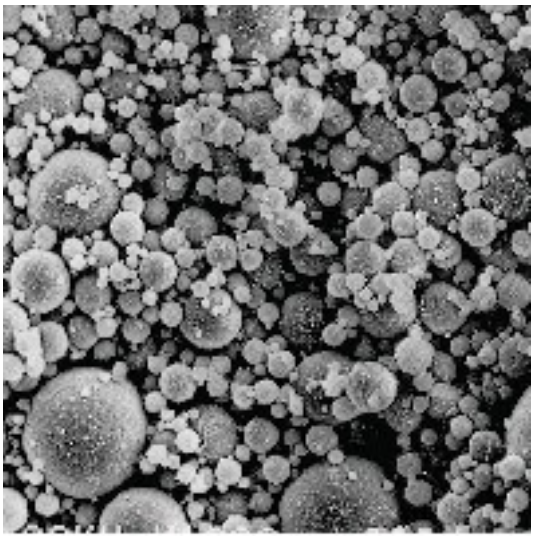


Bild 6.1: Elektronenmikroskopische Aufnahme des Teststaubes

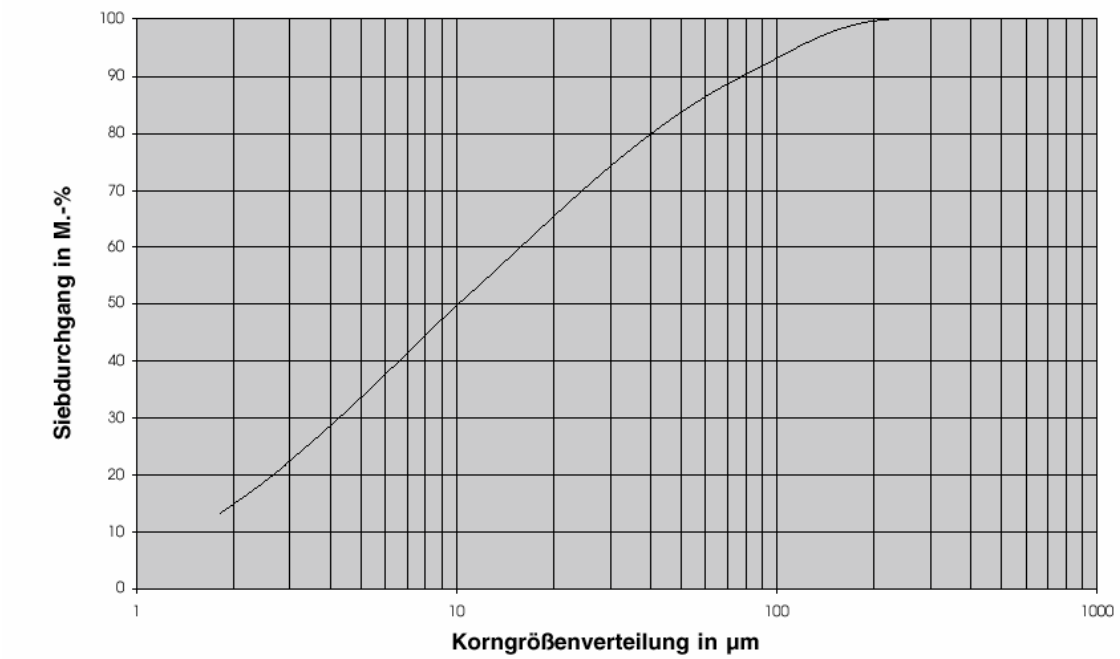


Bild 6.2: Größenverteilung der Flugasche
(geometrischer Durchmesser, Auszug aus Datenblatt)

Ungefähr 40 Massenprozent des Teststaubes befinden sich im lungengängigen Partikelgrößenbereich, $x_{aed} < 10\ \mu m$ (entspricht $x_{geom} < 6{,}4\ \mu m$). Der Teststaub bildet eine fiktive Mischasche relativ gut ab. Er besitzt eine hohe Staubneigung, wie in Bild 6.3 an den Staubfahnen beim Umfüllen eines Fasses gut zu erkennen ist.

Bild 6.3: Staubfahnen beim Umfüllen von Flugasche

Als weiteres, sich von der Flugasche deutlich unterscheidendes Stoffsystem wurde Titandioxid verwendet (Tronox-Titan). Die Partikeln sind alle kleiner als 1 µm, bilden aber aufgrund der hohen Kohäsionskräfte größere Agglomerate. Das Titandioxid hat daher erkennbar eine wesentlich geringere Staubneigung als die Flugasche.

Folgende Probekörperkonfigurationen wurden realisiert:

Unumhüllte Proben

Als frei dispergierbar wurden Pulverproben angesehen, die in dünnwandige Rundhalskolben unterschiedlicher Größe (zwischen 100 ml und 20 l Volumen) abgefüllt waren (siehe Bild 6.4 links). Nach Aufprall auf den Boden fragmentierte die Glaskugel und das Pulver konnte sich ungehindert freisetzen.

Bild 6.4: Probekörper für die Fallversuche: Glaskolben (4 l), Typ A-Abfallbehälter (200 l), Blechkanister (10 l).

Umhüllte Probekörper

Als umhüllte Gebinde wurden zertifizierte 200 l-Abfallbehälter vom Typ EB1-A200 (Eisenwerke Bassum, Bassum) verwendet (Bild 6.4, Mitte). Der Behälterdeckel ist mit dem Mantel über 8 Schrauben (8 mm) verschraubt. Zwischen Deckel und Mantel befindet sich eine komprimierbare Dichtung. Die Verschraubung erfolgte gleichmäßig mittels Drehmomentschlüssel. Die Wandstärken sind wie folgt: Mantel 1,5 mm, Boden 3 mm, Deckel 4 mm. Für weitere Angaben siehe Kapitel10.1 (Anhang A). Neben den Rollreifenfässern wurden außerdem Ölkanister mit 10 l Inhalt abgeworfen (Bild 6.4, rechts). Diese quaderförmigen Blechbehälter haben eine Wandstärke von 0,5 mm.

6.3 Abwurfvorrichtung

Als Abwurfvorrichtung diente der Fallturm, der von der Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM) auf dem Versuchsgelände in Lehre bei Braunschweig betrieben wird. Die maximale Abwurfhöhe beträgt 22 m. Die jeweilige Abwurfkonfiguration der verschiedenen Gebindearten zeigt Bild 6.5. Der Auslösemechanismus für die Abfallfässer (Bild 6.5 oben rechts) wurde von der BAM bereitgestellt. Für die anderen Objekte wurde ein Eigenbau verwendet.

Bild 6.5: Fallkörper und Auslösemechanismen

6.4 Kontrollvolumen

Die Probekörper wurden von oben durch ein geöffnetes Deckensegment in eine Aerosolkammer mit den Abmessungen 4x4x3 m³ hineingeworfen. Das Deckensegment wurde unmittelbar nach Abwurf über einen Seilzug mit einem Schieber verschlossen (Bild 6.6).

Die Aerosolkammer bestand aus einem mit Baufolie bespannten Kantholzgerüst. Die Wände wurden nach jedem Versuch gereinigt, während die auf dem Fußboden ausgelegte Folie nach Bergung des Probekörpers und des Pulvers ausgewechselt wurde. Zwei in ca. 1.5 m Höhe an zwei Wänden installierte Zimmerventilatoren dienten zur Homogenisierung des Staubes nach der Freisetzung. Die Testobjekte wurden durch die Tür (rechts in der Ansicht) mittig in den Raum eingebracht und vom Hebezeug des Kranes aufgenommen.

Bild 6.6: Seitenansicht und Aufsicht des Kontrollvolumens

6.5 Diagnostik der Freisetzung

Die Ermittlung des in festgelegten Partikelgrößenintervallen in das Kontrollvolumen freigesetzten Anteils der jeweils verwendeten Staubmengen erfolgte durch Messung des zeitlichen Verlaufs der Konzentration in den entsprechenden Größenbereichen nach der Freisetzung und anschließender Extrapolation der Kurven auf den Zeitpunkt der Freisetzung.

Dazu wurden parallel vier, in drei Ecken des Kontrollvolumens angeordnete, zeit- und partikelgrößenauflösende Partikelmessgeräte des Typs RESPICON (Fa. Hund, Wetzlar) und ein Kaskadenimpaktor eingesetzt. Die erfassten Größenintervalle des Respicons sind: < 4,5 µm (alveolar), 4,5 – 10 µm (tracheo-bronchial), 10 – ≈50 µm (extrathorakal), wobei die obere Grenze des letzteren Bereichs nicht scharf definiert ist. Der Kaskadenimpaktor löst Partikel im Durchmesserbereich zwischen 0,06 und 16 µm auf. Zwei Respicons befanden sich in gegenüberliegenden Ecken auf einer Messhöhe von 1,5 m, die anderen beiden auf Messhöhen von 1 bzw. 2 m zusammen mit dem Impaktor in der dritten Ecke (Bild 6.7, Bild 6.8). Die Fallversuche wurden mit einer Hochgeschwindigkeitsvideokamera (Typ HG 100-K, Fa. Redlake) visuell dokumentiert.

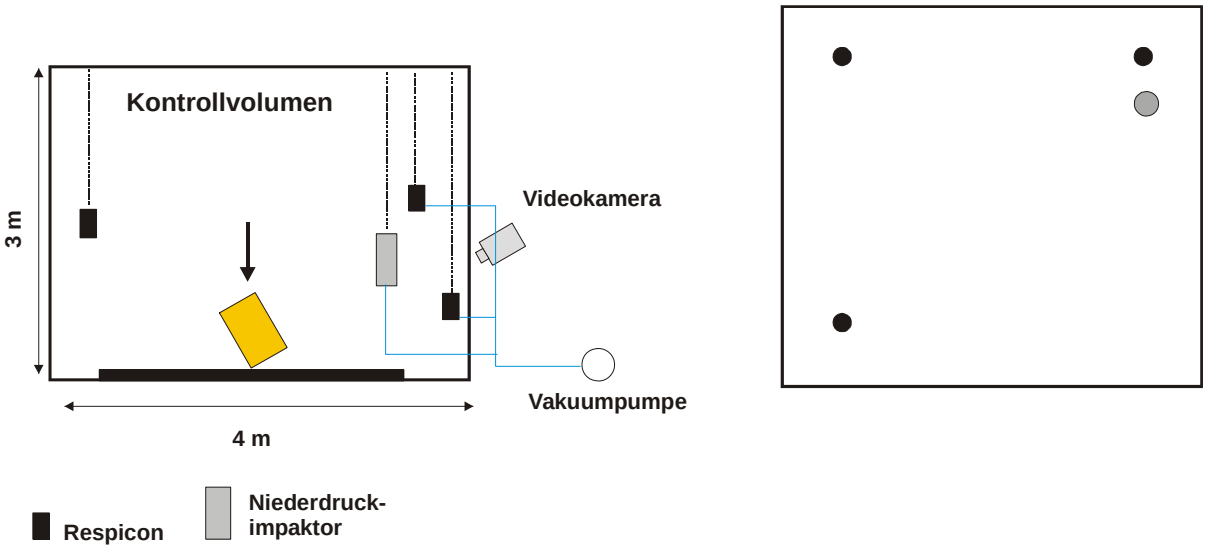


Bild 6.7: Anordnung der Messgeräte für die Freisetzungsdiagnostik

Bild 6.8: Respicon Aerosolmonitor

Die Erfassung der als Aerosol freigesetzten Massenfraktion erfolgt über die zeitaufgelöste Messung. Die Messung der freigesetzten Massenfraktion im Partikelgrößenintervall i ergibt sich aus der Konzentration $c_i(t=0)$ nach der Freisetzung in das Volumen V_Z

$$m_i = c_i(t=0) \cdot V_Z \,.$$

Voraussetzung für die Gültigkeit dieser Gleichung ist eine homogene Verteilung des freigesetzten Aerosols im Kontrollvolumen. Diese wird durch die induzierte Turbulenz beim Auftreffen des Objektes und durch die Wirkung der beiden Ventilatoren nach kurzer Zeit erreicht,

was über die räumlich getrennt voneinander stehenden Aerosolmessgeräte kontrolliert wird.

Die Partikelkonzentration unterliegt, bedingt durch Luftaustausch im Freisetzungsvolumen (Sammelvolumenstrom der Messgeräte) und durch größenabhängige Partikelabscheidung am Boden und an den das Volumen umschließenden Wänden, einem zeitlichen Abfall. Dieser Summeneffekt wird durch on-line aerosolphotometrische Messungen des Staubes quantifiziert. Der zeitliche Konzentrationsabfall der Partikeln im Größenbereich i, ist durch einen Verdünnungsfaktor γ und einen partikelgrößenabhängigen Ablagerungsfaktor β_i charakterisiert und wird durch die Gleichung

$$\mathrm{c}_i(\mathrm{t}) = \mathrm{c}_i(\mathrm{t}=0)\mathrm{e}^{-(\gamma+\beta_i)\mathrm{t}}$$

beschrieben. Aus der Messung von $\mathrm{c}_i(\mathrm{t})$ lassen sich $\gamma+\beta_i$ berechnen und damit auf $\mathrm{c}_i(\mathrm{t}=0)$, d.h. auch auf die freigesetzte Masse zurückrechnen. Die Verwendung größenauflösender Messverfahren erlaubt in analoger Weise die Bestimmung der freigesetzten Masse in definierten Partikelgrößenintervallen. Das Bild 6.9 zeigt exemplarisch die mit einem der vier Respicons gemessenen Konzentrationsverläufe für die Partikelfraktionen < 4,5 µm (alveolar), 4,5 - 10 µm (tracheo-bronchial) sowie > 10 µm (extrathorakal). Man erkennt, dass sich die Konzentrationsabfälle in den drei Größenfraktionen, bedingt durch die Sedimentation, stark voneinander unterscheiden. Die auf $\mathrm{t}=0$ extrapolierten Konzentrationswerte stehen für jedes Respicon separat in Tabelle 6.2. Zur Berechnung der Freisetzungsfraktion wird der Mittelwert der jeweiligen vier Einzelwerte herangezogen.

Der Berner-Impaktor liefert Resultate mit feinerer Größenauflösung, allerdings nur zeitintegriert. Bei der Berechnung der in die Kammer freigesetzten Massengrößenfraktionen $m_0(AED)$ aus den entsprechenden mit dem Impaktor gesammelten Massenfraktionen $m(AED)$ wurden Partikelverluste aufgrund sedimentationsbedingter Partikelabscheidung innerhalb der Aerosolkammer während der Sammelphase über die Formel

$$m_0(AED) = m(AED)\ \frac{w_s(AED)/H + Q/V}{Q/V}$$

berücksichtigt. Hierbei sind $w_s(AED)$ die Sedimentationsgeschwindigkeit, H die Höhe der Aerosolkammer, V deren Volumen und Q der Probenahmevolumenstrom des Impaktors.

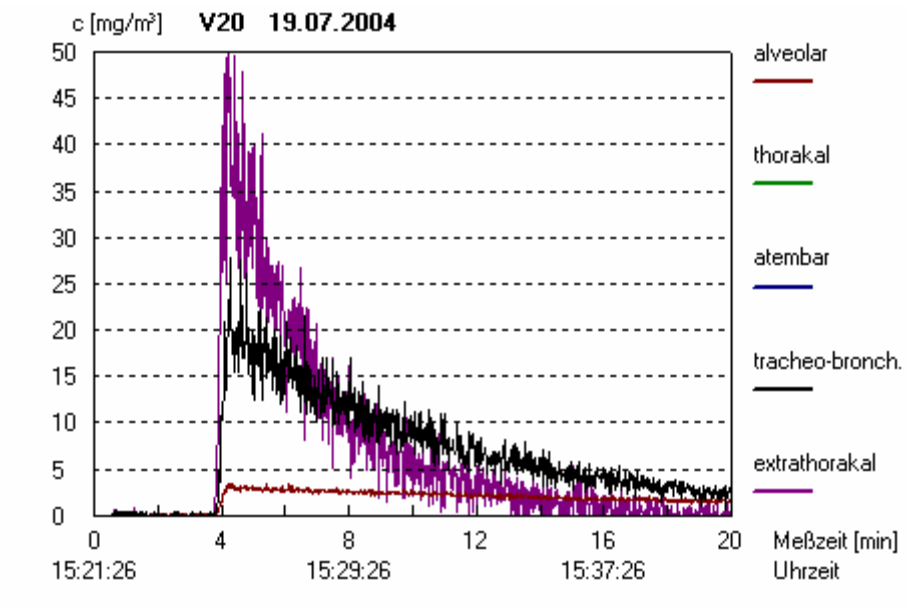


Bild 6.9: Verläufe der Konzentration unterschiedlicher Partikelgrößenfraktionen in einem Zeitraum 16 Minuten nach Abwurf des Testkörpers zum Zeitpunkt t=4 min. (Datenprotokoll des Respicon 1)

Tabelle 6.2: Extrapolierte Anfangskonzentrationen, $c_i(t=0)$, in mg/m³, gemessen mit den 4 Respicons, R_k , k = 1, ..,4

Fraktion	R1	R2	R3	R4
< 4,5 µm	2,63	2,77	1,71	3,32
4,5 - 10 µm	19,97	14,37	18,50	13,51
> 10 µm	30,12	13,36	15,75	17,57

6.6 Beschussapparatur für kleinskalige Experimente

Mit der im ITEM vorhandenen pneumatischen Impaktionsapparatur wurden ergänzende Untersuchungen an kleinskaligen Proben durchgeführt. In der Apparatur werden Gebinde mit maximalem Durchmesser von 4,2 cm auf definierte Geschwindigkeiten beschleunigt, die dann horizontal an der Rückwand einer Aerosolkammer impaktiert werden. Die Aerosolkammer wird vertikal mit Luft durchströmt. Alle bei der Impaktion freigesetzten Staubteilchen mit aerodynamischem Durchmesser kleiner als 100 µm werden nach oben abgesaugt. Der nicht-lungengängige Anteil (10-100 µm) wird in einer Schaumlage zurückgehalten (Filterschaum), die lungengängige Fraktion (< 10 µm AED) wird auf einem Analysefilter gesammelt (Bild 6.10). Nur diese Fraktion wird ausgewertet.

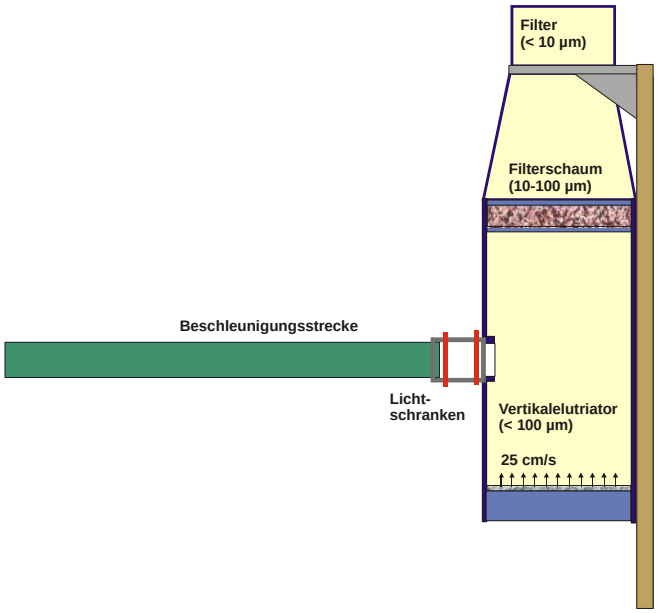


Bild 6.10: Versuchsaufbau zur Messung der lungengängigen Freisetzung für kleine Probekörper

7 Ergebnisse

In Kapitel 10.2 (Anhang B) sind die Versuchsdaten aller Abwurfversuche sowie ein repräsentatives Photo des Schadensbilds nach Abwurf des Probekörpers aufgeführt. Witterungsbedingt konnten die Versuche nicht innerhalb einer durchgehenden Messkampagne durchgeführt werden. Aus den gemessenen Konzentrationen wurden nach Mittelung über alle vier Respicons die freigesetzten Staubmengen bestimmt und nach Normierung auf die abgeworfene Staubmasse die freigesetzten Anteile berechnet.

7.1 Abwurfversuche mit „unumhüllten“ Probekörpern

Die Staubmassen in den Glaskolben werden als quasi unumhüllt angesehen. Die Glashülle zerspringt unmittelbar nach dem Auftreffen und erlaubt eine ungehinderte Freisetzung des Staubes. Dies ist in den entsprechenden Fotos in Kapitel 10.2 (Anhang B) unmittelbar zu erkennen.

Flugasche (KM/C-Füller) und Titandioxid verhalten sich qualitativ und quantitativ sehr unterschiedlich. Die Flugasche ist nach Abwurf wesentlich gleichmäßiger, feinteiliger und großflächiger auf dem Boden verteilt. In der Freisetzung betragen die Unterschiede zwei bis drei Größenordnungen. Dies ist in Bild 7.1 und Bild 7.3 sowie Tabelle 7.1 und Tabelle 7.3 für unterschiedliche Massen und eine Standardabwurfhöhe von 9 m gezeigt (Siehe Fotodokumentation, Kapitel 10.2.1.1). Für die stark staubende Flugasche wird für alle untersuchten Massen weniger als 2 % der Staubmasse im lungengängigen Staubbereich freigesetzt. Für Massen größer als 1 kg lässt sich hier ein Trend der kontinuierlichen Abnahme der Freisetzung mit zunehmender Masse feststellen. Bei einer vorsichtigen Extrapolation der Daten auf eine Staubmasse von 100 kg ist ein lungengängiger Freisetzungsanteil für die Flugasche von weniger als 0,1 % zu erwarten. Feinere Partikeln werden weniger effizient freigesetzt als gröbere. Dies zeigt die unterste Zeile von Tabelle 7.1, in der das Verhältnis der Freisetzungsfraktionen <10 µm und <4,5 µm AED aufgeführt ist. Die Werte liegen alle deutlich oberhalb von 1,7, dem Wert, der dem Verhältnis der entsprechenden Partikelgrößenfraktionen des Pulvers entspricht (siehe Bild 6.2). – Vergleichbare Resultate ergeben sich aus den Impaktormessungen. Die kumulierte Verteilung der Freisetzungsanteile ist für einige Versuche in Bild 7.2 dargestellt. Entsprechende Zahlenwerte stehen in Tabelle 7.2.

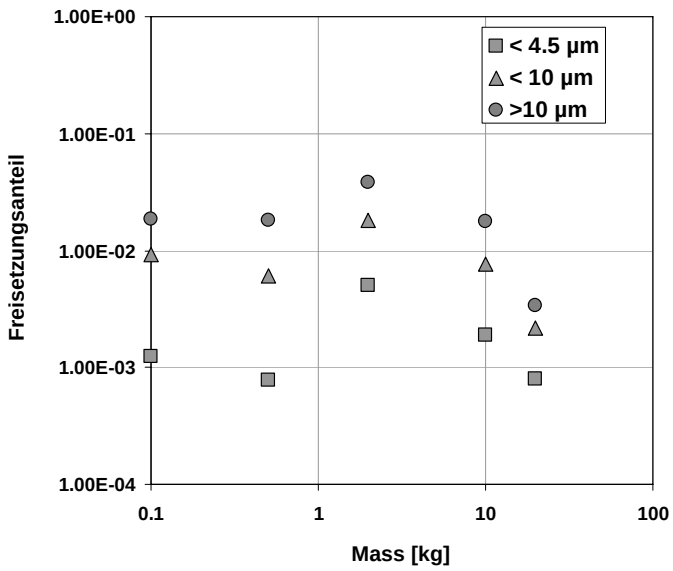


Bild 7.1: Massenabhängigkeit der Freisetzungsfraktion für unumhüllte Flugasche (KM/C Füller), Fallhöhe: h = 9 m, (Respicon-Messungen)

Tabelle 7.1: Freisetzungsfraktionen für unumhüllte Flugasche (KM/C-Füller), Fallhöhe: h = 9 m, (Respicon-Messungen)

Größenfraktion	**Staubmasse [kg]**				
	0,1	0,4	2	10	20
< 4,5 µm	1,25E-03	7,71E-04	4,97E-03	1,90E-03	7,88E-04
< 10 µm	9,22E-03	6,00E-03	1,80E-02	7,56E-03	2,18E-03
>10 µm	1,84E-02	1,82E-02	3,83E-02	1,76E-02	3,35E-03
<10/<4,5	7,36E+00	7,79E+00	3,61E+00	3,98E+00	2,77E+00

Tabelle 7.2: Freisetzungsfraktionen für unumhüllte Flugasche (KM/C-Füller), Fallhöhe: h = 9 m (Impaktor-Messungen)

Größenfraktion	**Staubmasse [kg]**		
	0,4	10	20
< 4,0 µm	6,40E-04	1,60E-03	4,90E-05
< 8,0 µm	2,00E-03	5,40E-03	2,00E-03
<8/<4	3,13E+00	3,38E+00	4,08E+01

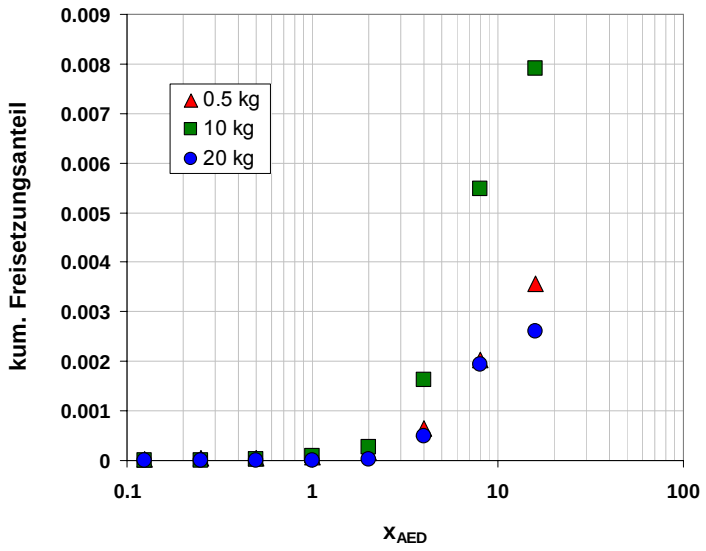


Bild 7.2: Partikelgrößenabhängigkeit der Freisetzung für unumhüllte Flugasche (KM/C-Füller), Fallhöhe: h = 9 m (Berner-Impaktor)

Aus den Abwurfversuchen aus 9 m Höhe mit unumhülltem Titandioxid (Bild 7.3 und Tabelle 7.3)wurde unabhängig von der Masse der Fallkörper für AED < 10 µm eine Freisetzungsfraktion von ca. $1{,}25 \cdot 10^{-5}$ bestimmt. Dies ist der Mittelwert der drei auswertbaren Messungen (Pulvermassen 2, 10 und 20 kg). Die Versuche mit kleinen Probekörpern (Staubmassen ≤ 0,4 kg) konnten wegen zu geringer Beladung der Messfilter nicht ausgewertet werden. Die gemessenen Freisetzungsfraktionen liegen im Bereich der Verfahrensnachweisgrenze, die bei diesen Versuchen durch die Freisetzung des umhüllenden Glaskolbens bestimmt ist. Die Masse der Hülle betrug ca. 20 % der verwendeten Titandioxidmasse. Nach eigenen Untersuchungen zur fraktionierungsbedingten Generierung lungengängigen Feinstaubes bei sprödbrechenden Materialien /LNK 02/ wird bei kompakten Glasprobekörpern und für eine Fallhöhe von 9 m eine lungengängige Glasstaubfraktion von $1 \cdot 10^{-4}$ generiert. Unter Berücksichtigung des Anteils der Glashülle an der Titandioxidmasse von 20 % ergibt sich somit ein Glasstaubanteil an der Freisetzung von $2 \cdot 10^{-5}$, der somit die gemessene Freisetzung vollständig erklärt. Der Wert 2 des Verhältnisses der Freisetzungsanteile in den Partikelgrößenfraktionen AED < 10 µm und < 4,5 µm entspricht überdies genau dem, was bei der Fragmentierung sprödbrechender Materialien zu erwarten ist. Die lungengängige Freisetzungsfraktion des Titandioxidpulvers muss deutlich unterhalb von $1 \cdot 10^{-5}$ liegen, was auch aus den bisher mit diesem Stoffsystem durchgeführten Versuchen abzuleiten ist (siehe auch /LAN 03/).

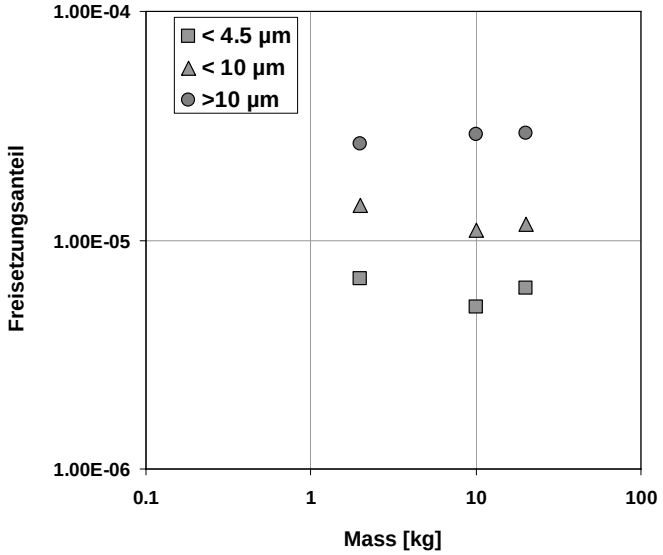


Bild 7.3: Massenabhängigkeit der Freisetzungsfraktion für unumhülltes „Tronox“ Titandioxid, Fallhöhe: h = 9 m, (Respicon-Messungen)

Tabelle 7.3: Freisetzungsfraktionen des unumhüllten Titandioxidpulvers, Fallhöhe: h = 9 m, (Respicon-Messungen)

Größenfraktion	**Staubmasse [kg]**				
	0,1	0,4	2	10	20
< 4,5 µm	-	-	6,83E-06	5,12E-06	6,14E-06
< 10 µm	-	-	1,43E-05	1,11E-05	1,17E-05
>10 µm	-	-	2,63E-05	2,90E-05	2,95E-05
<10/<4,5	-	-	2,09E+00	2,18E+00	1,90E+00

Weitere Fallversuche mit unumhüllten Probekörpern und anderen Fallhöhen wurden ausschließlich mit Flugasche (KM/C-Füller) durchgeführt(Siehe Fotodokumentation, Kapitel 10.2.1.2). Die Abhängigkeit der Freisetzung von der Fallhöhe zeigt Bild 7.4. Bis zu einer Fallhöhe von 15 m ist ein nahezu linearer Anstieg des Freisetzungsanteils von der Fallhöhe zu verzeichnen. Für h=22 m wurden geringere Werte als für 15 m gemessen. Dies kann an der hohen Aufprallgeschwindigkeit liegen, verbunden mit der Tatsache, dass ein steigender Anteil des Staubes beim Aufprall bodennah an den begrenzenden Wänden abgeschieden wird und nicht mehr zur luftgetragenen Freisetzung beitragen kann.

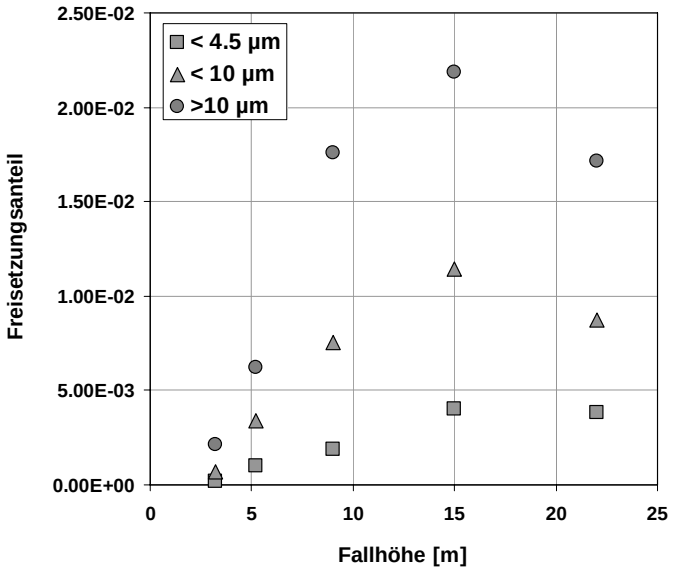


Bild 7.4: Abhängigkeit der Freisetzungsfraktion für Flugasche (KM/C Füller) von der Fallhöhe, Pulvermasse: 10 kg (Respicon-Messungen)

Tabelle 7.4: Freisetzungsfraktionen der Flugasche (m=10 kg) für verschiedene Fallöhen (Respicon-Messungen)

Größenfraktion	Fallhöhe [m]				
	3,2	5,2	9	15	22
< 4,5 µm	1,58E-04	9,99E-04	1,90E-03	4,00E-03	3,84E-03
< 10 µm	6,94E-04	3,40E-03	7,56E-03	1,15E-02	8,71E-03
>10 µm	2,14E-03	6,23E-03	1,76E-02	2,19E-02	1,72E-02
<10/<4,5	4,40E+00	3,41E+00	3,98E+00	2,86E+00	2,27E+00

7.2 Abwurfversuche mit umhüllten Gebinden

Als Umhüllungen dienten zum einen Blechkanister mit 10 l Rauminhalt und zertifizierte Typ-A-Rollreifenfässer. Die Neigung der Behälter beim Abwurf betrug ca. 30° gegen die Vertikale. Der Aufprall erfolgte demnach auf einer Behälterkante. Erwartungsgemäß bestimmt der Grad der Schädigung der Hülle die Freisetzung. Dies wird anhand der Ergebnisse der Kanisterversuche deutlich (Bild 7.5, Tabelle 7.5, siehe Fotodokumentation, Kapitel 10.2.2.1). Bei fast allen Versuchen waren die Leckagen des Kanisters sehr gering. Lediglich bei einem Wiederholungsversuch für 22 m Abwurfhöhe platzte der Kanister am Boden auf und es kam zu einer Freisetzung, die ca. 10 % derjenigen der gleichen Menge unumhüllten Pulvers entsprach.

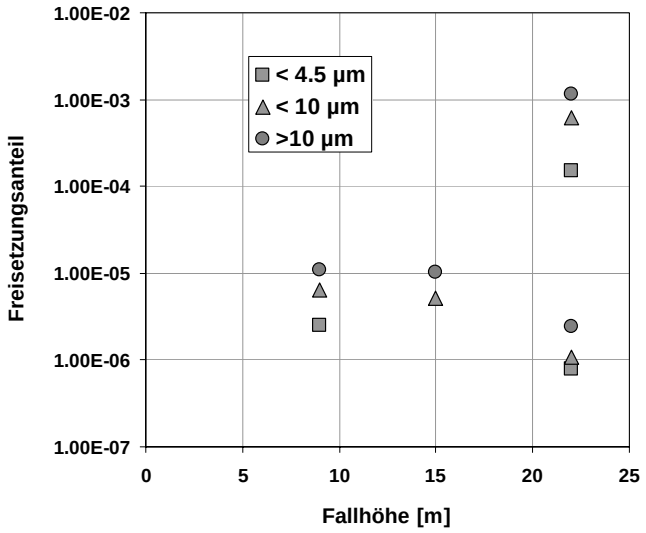


Bild 7.5: Freisetzungsfraktionen für Flugasche (KM/C-Füller) im 10-l-Blechkanister für verschiedene Fallhöhen; Pulvermasse: 10 kg

Tabelle 7.5: Freisetzungsfraktionen für Flugasche (KM/C-Füller) im 10-l-Blechkanister für verschiedene Fallhöhen; Pulvermasse: 10 kg

Größenfraktion	Fallhöhe [m]				
	5,2	9	15	22	22
< 4,5 µm	-	2,47E-06	-	7,96E-07	1,50E-04
< 10 µm	-	6,33E-06	5,14E-06	1,09E-06	6,17E-04
>10 µm	-	1,10E-05	1,02E-05	2,40E-06	1,15E-03

Für die Typ-A-Rollreifenfässer ergibt sich ein einheitlicheres Bild(siehe Fotodokumentation, Kapitel 10.2.2.2). Eine messbare Freisetzung ergab sich für Fallhöhen ab 5,2 m. Die Dynamik des Staubaustritts wurde mit der Hochgeschwindigkeitsvideokamera dokumentiert. Die Behälter waren in keinem Fall gerissen. Die Deformation beschränkte sich auf den Deckelbereich, wobei der Deckel in allen Versuchen noch fest mit dem Mantel verbunden war. Ein großer Anteil des Staubaustritt erfolgte kurzzeitig beim Auftreffen während des Kompressions- und Entlastungsvorgangs der Deckeldichtung. Der Staub verhält sich dabei wie ein Fluid, welches durch den aufprallbedingten Druck im Behälter während der kurzzeitigen Leckage in der Dichtung nach außen gepresst wird. Der Freisetzungsanteil nimmt bis 15 m Fallhöhe nahezu linear zu. Danach scheint die Kurve flacher zu verlaufen. Die lineare Regression auf der Basis der ersten drei Messpunkte ergibt einen Schwellenwert für die niedrigste freisetzungsrelevante Höhe von 2.9 m. Für 9 m Fallhöhe beträgt der lungengängige Freisetzungsanteil $3.6 \cdot 10^{-5}$ der Staubmasse im Behälter und liegt damit in der Größenordnung von 1 % derjenigen für unumhüllte Massen.

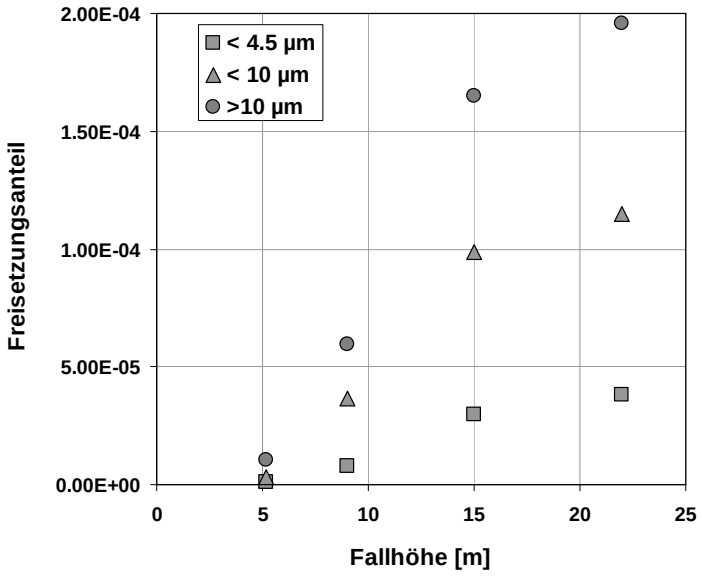


Bild 7.6: Freisetzungsfraktionen für Flugasche (KM/C-Füller) im Typ-A-Rollreifenfass für verschiedene Fallhöhen; Pulvermasse: ca. 260 kg

Tabelle 7.6: Freisetzungsfraktionen für Flugasche (KM/C-Füller) im Typ-A-Rollreifenfass für verschiedene Fallhöhen; Pulvermasse: ca. 260 kg

Größenfraktion	Masse [kg]				
	259	259	260	258	269
	Fallhöhe [m]				
	3,2	5,2	9	15	22
< 4,5 µm	-	1,03E-06	7,72E-06	2,99E-05	3,80E-05
< 10 µm	-	3,20E-06	3,65E-05	9,85E-05	1,15E-04
>10 µm	-	1,05E-05	5,96E-05	1,65E-04	1,96E-04

7.3 Beschussversuche mit kleinskaligen Materialproben

Als eingefasste Staubvolumina wurden zylindrische Pillendosen aus Weißblech verschossen (Durchmesser: 3,7 cm, Länge 6,8 cm; Volumen: 73 ml), die mittels eines Messingdeckels dicht verschlossen wurden. Der horizontale Aufprall in der pneumatischen Impaktionsanlage erfolgte auf den Messingdeckel. Als „unumhüllte“ Proben wurden analog zu den Fallversuchen dünnwandige Rundhalskolben aus Glas mit 30 ml Inhalt benutzt. Neben der Flugasche (KM/C-Füller) und dem TiO_2-Pulver wurde zusätzlich eine Quarzmehlfraktion (Millisil, W12, Quarzwerke, Frechen, Tabelle 7.7, letzte Spalte) untersucht.

Die Ergebnisse sind in Tabelle 7.8 zusammengefasst.

Tabelle 7.7: Korngrößenverteilungen verschiedener Millisil-Siebungen

Typische Korngrößenverteilung und Körnungskennwerte								
MILLISIL	**W3 F/H/ W**	**W4 H/W**	**W5 W**	**W6 F/H/W**	**W8 F/H/W**	**W10 F/W**	**W11 H**	**W12 F/W**
Obere Korngröße $d_{95\%}$ in µm	220	190	160	120	90	70	55	50
Mittlere Korngröße $d_{50\%}$ in µm	90	65	50	40	30	20	22	16
Lichte Maschenweite in µm	Alpine-Luftstrahlsieb (Rückstand in Gew.-%)							
400	0,1	0,1						
315	0,3	0,2	0,1	0,1				
200	7	4	1	0,5	0,1			
160	18	10	5	1	0,5	0,1		
125	32	22	14	4	1	0,5	0,1	0,1
100	42	30	23	7	3	1	0,5	0,5
63	62	51	42	28	15	6	3	2
40	75	66	57	49	34	21	18	12
Korndurchmesser in µm	Cilas Granulometer (Rückstand in Vol.-%)							
32	71	70	59	52	48	38	33	22
16	82	80	72	71	68	63	62	50
8	90	88	85	81	80	78	76	69
6	92	91	87	85	83	82	80	75
4	94	93	90	88	87	86	85	81
2	97	96	95	94	93	92	91	90

Für die Flugasche (KM/C-Füller) ist eine Abhängigkeit der Freisetzung von der aus der Aufprallgeschwindigkeit abgeleiteten Fallhöhe nicht festzustellen. Eine ähnliche Tendenz zeigte sich zumindest für die größeren Fallhöhen auch bei den Fallversuchen mit größeren Gebinden. Der im lungengängigen Größenbereich freigesetzte Anteil bei der Horizontalimpaktion kleinerer Probekörper ist mit 3% ca. dreimal so hoch wie derjenige beim senkrechten Aufprall größerer Gebinde (siehe Bild 7.4). Dies ist durchaus plausibel, da beim senkrechten Aufprall die Freisetzung durch Abschattungseffekte behindert werden kann. Dieser Effekt ist offensichtlich bei gering staubenden Gütern größer, wie der Vergleich für Titandioxid zeigt. Während in den Fallversuchen die Freisetzungsfraktion lungengängiger Partikel unter 10^{-5} liegt, beträgt sie für den Horizontalaufprall ca. 10^{-3} – 10^{-2}. Der Unterschied zum Staubungsverhalten der Flugasche ist mit einer Größenordnung aber dennoch deutlich. Millisil W12 liegt hinsichtlich des Freisetzungsanteils von ca. 1 % zwischen Titandioxid und KMC. Diese Reihenfolge entspricht auch dem visuellen Eindruck über das Staubungsverhalten der drei Stoffsys-

teme.

Die für Horizontalaufprall ermittelten Freisetzungsanteilen für AED < 10 µm liegen im Größenbereich von 10^{-3} – 10^{-2}. Im Vergleich beläuft sich der Beitrag des bei Horizontalimpaktion unumhüllter Proben eingesetzten Glaskolbens an der Staubfreisetzung größenordnungsmäßig auf 10^{-5} (siehe Kapitel 7.1) und ist daher in diesem Fall nicht von Bedeutung.

Die Versuche mit den mit KM/C-Pulver gefüllten Weißblechdosen zeigen ein uneinheitliches Bild. In den meisten Fällen löste sich der Deckel von der Dose, wodurch der die Freisetzung mindernde Effekt der Umhüllung verloren ging. Die Größenordnungen der Freisetzungsanteile sind daher vergleichbar mit denjenigen der unumhüllten Proben.

Tabelle 7.8: Ergebnisse der Experimente mit kleinskaligen Materialproben

Substanz	Freisetzungsanteil < 10 µm [%]	Geschwindigkeit [m/s]	Fallhöhe [m]
KM/C	2,9	15,4	11,9
KM/C	2,8	21,4	22,5
KM/C	2,8	28,6	40,8
KM/C	2,9	-	-
TiO_2	0,4	36,5	66,6
TiO_2	0,1	22,4	25,1
W12	0,9	25,0	31,3
W12	0,2	15,9	12,8
W12	1,2	33,3	55,4
KM/C-Dose	0,9	11,3	6,4
KM/C-Dose	2,2	14,1	9,9
KM/C-Dose	1,7	15,7	12,3
KM/C-Dose	0,4	23,6	27,8
KM/C-Dose	1,1	35,9	64

8 Bewertung der Ergebnisse

Neue Erkenntnisse

Mit den im Vorhaben SR 2446 durchgeführten systemanalytischen und experimentellen Arbeiten wurde der Kenntnisstand über das Freisetzungsverhalten von LSA-II-Materialien mit leicht dispergierbaren Anteilen erheblich erweitert. Damit ergibt sich im Rahmen von Sicherheits-, Störfall- und Risikoanalysen eine verbesserte Basis für die Ermittlung der Auswirkungen von mechanischen Unfallbelastungen beim Transport von LSA-II-Pulver.

Von den untersuchten Pulverarten kann die ausgewählte Flugasche hinsichtlich Partikelgrößenverteilung und Staubneigung als repräsentativ für ascheförmige Abfälle, für Kieselgur und für Betonstaub aus Rückbautätigkeiten, die als LSA-II-Material für einen Transport in Frage kommen, angesehen werden. Für die übrigen dispergierbaren LSA-Materialien (z.B. UO_2, U_3O_8, Ionentauscherharze, getrocknete Schlämme und Konzentrate, Bodenaushub, Strahlmittel) ist die Anwendung der Freisetzungsergebnisse der Flugasche deutlich konservativ. Bei Materialien, deren mittlere Partikelgröße z.B. um eine Größenordnung höher liegt (vgl. Tab. 4.1), ist auch der Feinanteil entsprechend (in erster Näherung auch um eine Größenordnung) reduziert und somit auch der auf die Gesamtmasse bezogene Freisetzungsanteil der lungengängigen Fraktion.

Mit den Versuchsergebnissen konnten die bisher aus der Literatur bekannten Tendenzen zum Freisetzungsverhalten von Pulvern bestätigt werden. Viele der bisher bekannten Untersuchungen zur Staubfreisetzung von Haufwerken hatten aber das Verhalten im freien Fall zum Gegenstand oder sind unter dem Begriff Dustiness-Test einzuordnen. Diese Tests sind z.T. standardisiert. Der Energieeintrag erfolgt dabei kontinuierlich auf unterschiedliche Weise beispielsweise durch Umwälzung des Haufwerks in einer ventilierten, rotierenden Trommel oder durch Herstellen eines kontinuierlichen, vertikalen Haufwerkstroms innerhalb eines Gegenstromklassierers. Die Charakterisierung des freigesetzten Staubes erfolgt im ausgetragenen Luftstrom durch partikelgrößenselektive Messung. Diese Verfahren ermöglichen den Relativvergleich der Staubneigung unterschiedlicher Haufwerke und die Bestimmung der Abhängigkeit von Stoffeigenschaften wie Korngrößenverteilung, Morphologie, Feuchtegehalt etc. Der Energieeintrag ist aber nur unzureichend bzw. überhaupt nicht quantifizierbar und entspricht hinsichtlich seiner Dynamik nicht dem eines Gebindeabsturzes.

Der Schwerpunkt der vorliegenden Untersuchung wurde daher auf das Aufprallverhalten von Pulvern gelegt. Im Vergleich zu bisherigen Aufprall-Experimenten wurden in den jetzt durchgeführten Experimenten deutlich größere Pulvermassen und Fallhöhen untersucht. Die erzielten Ergebnisse sind somit für realistische Gebindegrößen und Unfallszenarien deutlich belastbarer. Besonderer Wert wurde auf die Untersuchung der in den Transportvorschriften standardisierten und für Unfallszenarien als repräsentativ erachteten Fallhöhe von 9 m auf ein unnachgiebiges Fundament gelegt. Weiterhin wurde erstmals die hohe Rückhalteeigenschaft einer Umhüllung, die einer höherwertigen Industrieverpackung bzw. einer Typ-A-Verpackung entspricht, bei mechanischen Belastungen, die das Spektrum möglicher Aufprallbelastungen bei Transportunfällen praktisch vollständig abdecken, nachgewiesen.

Die wichtigsten gewonnenen Erkenntnisse zum Freisetzungsverhalten von Pulvern sind:

- Das Freisetzungsverhalten von Pulvern ist stark materialabhängig. Das untersuchte sehr feinkörnige TiO_2 weist aufgrund von Agglomerationen eine stark reduzierte Freisetzung im lungengängigen Partikelgrößenbereich (< 10 µm) auf.

- Bei den Versuchen mit "unumhüllter", stark staubender Flugasche wurde bei keiner der untersuchten Massen und Fallhöhen mehr als 2 % der Ausgangsmasse im lungengängigen Größenbereich freigesetzt. Für Massen über 1 kg ist ein Trend der Abnahme des Freisetzungsbruchteils mit zunehmender Masse festzustellen. Für eine Pulvermasse von 100 kg ist ein lungengängiger Freisetzungsbruchteil von weniger als 0,1 % zu erwarten.

- Der Freisetzungsbruchteil steigt mit der Fallhöhe nahezu linear an. Dies gilt bis etwa 15 m Fallhöhe, darüber flacht sich der Anstieg deutlich ab.

- Die Umhüllung der Pulvermasse mit Stahlblech reduziert den Freisetzungsbruchteil um 2 – 3 Größenordnungen. Das Typ-A geprüfte 200-l-Rollreifenfass wird auch bei einem Absturz aus 22 m Höhe nur in begrenztem Umfang beschädigt. Bei einer Fallhöhe von 9 m liegt der Freisetzungsbruchteil für die lungengängige Fraktion bei $4 \cdot 10^{-5}$. Dies bedeutet, dass von einem Pulverinventar von 260 kg Pulver im lungengängigen Bereich (AED < 10 µm) nur etwa 10 g freigesetzt werden.
  Geht man davon aus, dass diese Pulvermenge instantan in einem Volumen von 50 m³ – dies entspricht etwa dem Kontrollvolumen bei den Abwurfexperimenten (Kapitel 6.4) – verteilt vorliegt, dann beträgt die luftgetragene Konzentration von Partikeln mit AED < 10 µm anfänglich 0,2 g/m³. Bei einer Aufenthaltszeit von 60 s in der Staub-

wolke und einer Atemrate von $3{,}3 \cdot 10^{-4}$ m³/s würde ein Erwachsener etwa 4 mg lungengängigen Staub inhalieren. Dabei wurde nicht berücksichtigt, dass die Staubkonzentration infolge von Koagulations- und Sedimentationsprozessen abnimmt. Falls die Freisetzung z.B. in einer belüfteten Lagerhalle erfolgt, ergibt sich – bedingt durch den Luftaustausch im Hallenvolumen – noch eine zusätzliche Konzentrationsreduktion mit der Zeit.

Vergleicht man diese Ergebnisse mit den in Kapitel 5 ausgewiesenen Kenntnissen aus der Literatur so ergibt sich folgendes Bild:

- Die Empfehlungen des DOE-Handbooks sind wegen zu geringer Fallhöhen (bis zu einigen Metern) oder Beziehungen, die aus dem freien Fall ausgeschütteter Pulver abgeleitet worden sind, auf das hier betrachtete Absturzszenario, bei dem die Freisetzung erst beim Aufprall von umhüllten bzw. unumhüllten Pulvern erfolgt, nicht übertragbar(Siehe hierzu auch Kapitel 5.1).

- Die Untersuchungen von Seehars ergaben für Kieselgur einen maximalen Freisetzungsbruchteil von 0,3 %, allerdings nur für eine "unumhüllte" Pulvermenge von 0,25 kg und eine Absturzhöhe von 5 m. Dieser Wert korreliert gut mit dem in diesem Bericht ermittelten maximalen Freisetzungsbruchteil von ca. 2 % bei 2 kg und 9 m Fallhöhe, denn die hier durchgeführten Versuche zeigen einerseits, dass der Freisetzungsanteil linear mit der Fallhöhe zunimmt, und andererseits, dass im Massenbereich < 2 kg der Freisetzungsanteil bei zunehmender Masse noch ansteigt.

- In den Versuchen von Arnhem lagen die Freisetzungsbruchteile beim Absturz aus 9 m für Pulvermassen zwischen 5 und 49 kg und verschiedenen Verpackungen zwischen $3{,}8 \cdot 10^{-5}$ und $3{,}9 \cdot 10^{-4}$. Beachtet man, dass sich die Verpackungen sehr unterschiedlich verhielten und anders versagten als das Rollreifenfass und der 10-l-Kanister in den neuen Versuchen, so passen auch die Ergebnisse von Arnhem gut in das jetzt gewonnene Bild. Insbesondere der obere Wert für den großen Pappkarton (mit 49 kg Inhalt), der vollständig versagte und der Kategorie "unumhüllt" zugeordnet werden kann, bestätigt im Vergleich mit den neuen Versuchen die These des mit zunehmender Masse abnehmenden Freisetzungsbruchteils.

Mit der sehr konservativen Annahme eines Freisetzungsbruchteils von 2 % für den lungen-

gängigen Anteil in künftigen Sicherheitsanalysen liegt man für alle LSA-II-Materialien auf der sicheren Seite. Für Pulvermengen in der Größenordnung 100 kg oder mehr scheint ein Freisetzungsbruchteil von 0,1 % angemessen. Ein erheblicher Abbau an Konservativität ist möglich, wenn die realen Pulvereigenschaften (Staubigkeit) genau bekannt sind. Ein großer Rückhalteffekt ist i.a. durch eine metallische Umhüllung gegeben, selbst bei Aufprallhöhen > 9 m und damit praktisch in allen Transportunfallsituationen mit Aufprallbelastung. Bei metallischen Verpackungen des Typs IP-2 oder höherwertig mit Staubmassen > 100 kg und 9 m Fallhöhe kann als Freisetzungsanteil für Partikel mit AED < 10 µm ein Wert von 10^{-4} als angemessen eingestuft werden.

Die gewonnenen Erkenntnisse zur Freisetzung von Pulvern lassen auch Aussagen zu einer dornartigen Unfallbelastung zu. Wenn man unterstellt, dass der Dorn nach Eindringen in der (metallischen) Verpackung stecken bleibt, kann keinesfalls eine höhere Freisetzung als beim Aufprall eines metallisch umhüllten Gebindes resultieren. Falls die Dornbelastung zu einem Aufreißen des Gebindes führt, ist als Obergrenze der Freisetzungsbruchteil für unumhülltes Pulver (10^{-3}) anzuwenden. Dieser Ansatz für die luftgetragene Freisetzung nach einem Aufprall eines Gebindes wird bei großen Gebinden mit großen Pulvermassen und lokal begrenzten Schäden zunehmend konservativ.

Für Transportgebinde, deren Inventar nur zu einem Bruchteil aus pulverförmigen Material besteht, ist der für Pulver genannte Freisetzungsbruchteil auch nur auf diesen Inventaranteil anzuwenden. Das übrige Inventar ist entsprechend den Materialeigenschaften zu bewerten, z.B. auf Basis der in /LNK 02/ gewonnenen Erkenntnisse.

Bewertung der radiologischen Grundlagen der Transportvorschriften

Die derzeitigen einschlägigen verkehrsrechtlichen Anforderungen für Transporte radioaktiver Abfälle der Kategorien LSA und SCO basieren auf dem vom Modellierungsumfang vergleichsweise einfachen Q-System für Typ A Versandstücke in Verbindung mit Annahmen zur Inkorporation von Staub durch Inhalation im Nahbereich einer unfallbedingten Freisetzung ("10 mg - intake model"). Die Anforderungen an zulässige Aktivitätskonzentrationen des radioaktiven Inhalts leiten sich dabei primär aus einer Begrenzung der effektiven Dosis über diesen Expositionspfad bei unfallbedingten Freisetzungen ab. Die Begrenzung der Aktivitätskonzentration auf 10^{-4} A_2/g für LSA-II-Material basiert auf der Annahme, dass eine Person im Nahbereich eines Transportunfalls infolge einer Freisetzung nicht mehr als 10 mg durch Einatmen aufnimmt. Der nuklidspezifisch festgelegte A_2-Wert ist so gewählt, dass aufgrund der dadurch inkorporierten Aktivität, d.h. 10^{-6} A_2, eine Effektivdosis von 50 mSv nicht überschrit-

ten wird.

Mit Hilfe der ermittelten Freisetzungsbruchteile für LSA-II-Pulver soll auf dem Wege einer überschlägigen Auswirkungsabschätzung für den Inhalationspfad überprüft werden, ob dieser einfache radiologische Ansatz, der den Transportvorschriften zugrundeliegt, der Realität hinreichend gerecht wird. Unterstellt man für ein Gebinde mit 100 kg pulverförmigem Material an der Grenze der zulässigen LSA-II-Aktivitätskonzentration einen Freisetzungsbruchteil im lungengängigen Partikelgrößenbereich von 0,1 %, so wird in diesem Aerosolgrößenbereich eine Aktivität von $Q = 10^{-3} \cdot 10^{-4}\ A_2/g \cdot 10^5\ g = 10^{-2}\ A_2$ freigesetzt. Personen in Windrichtung in einer Entfernung von 50 - 100 m vom Emissionspunkt würden zeitintegriert eine Aktivitätsmenge von $Q_{inh} = Q \cdot \chi \cdot AR$ inhalieren. Mit einem Ausbreitungsfaktor von $\chi = 10^{-2}\ s/m^3$, wie er in /LAN 03/ für eine Freisetzung nach mechanischer Belastung ermittelt wurde, und einer Atemrate $AR = 3{,}3 \cdot 10^{-4}\ m^3/s$ ergibt sich eine inhalierte Aktivitätsmenge von $Q_{inh} = 3{,}3 \cdot 10^{-8}\ A_2$ Diese liegt somit um 1 ½ Größenordnungen unter dem zulässigen Wert von $10^{-6}\ A_2$.

Eine vergleichbare Bewertung der Internationalen Transportvorschriften lässt sich auch für LSA-III-Versandstücke, die z.B. zementierte radioaktive Abfälle enthalten, durchführen. Bei LSA-III-Material ist die zulässige massenbezogene Aktivitätskonzentration auf $2\times10^{-3}\ A_2/g$ begrenzt. Auf der Basis von Untersuchungen zu den Auswirkungen einer unfallbedingten mechanischen Beaufschlagung sprödbrechender Materialien, z.B. zementierter radioaktiver Abfälle, können die luftgetragene Freisetzung und die resultierende Partikelgrößenverteilung in Abhängigkeit vom spezifischen Energieeintrag ermittelt werden /LNK 02/. Beispielsweise resultiert bei einem Aufprall eines 200 l-Fasses mit zementierten radioaktiven Abfällen auf ein hartes, unnachgiebiges Hindernis mit einer Geschwindigkeit von 50 km/h (entsprechend einer Fallhöhe von etwa 10 m) ein Freisetzungsanteil lungengängiger Partikel von 5×10^{-5}. Bei einer angenommenen Dichte der Zementmatrix von 2 g/cm³ befindet sich eine Masse von 4×10^5 g in dem 200 l-Fass. Damit wird in dem Partikelgrößenbereich AED < 10 µm eine Aktivität von $Q = 5\times10^{-5} \cdot 2\times10^{-3}\ A_2/g \cdot 4\times10^5\ g = 4\times10^{-2}\ A_2$ freigesetzt. Mit den o. g. Werten für den Ausbreitungsfaktor und die Atemrate würde eine erwachsene Person die Aktivitätsmenge $Q_{inh} = 1{,}3 \cdot 10^{-7}\ A_2$ inhalieren, die noch deutlich unter dem zulässigen Wert von $10^{-6}\ A_2$ liegt.

Diese Abschätzungen zeigen, dass die Annahmen und Festlegungen zu LSA II und LSA III Material in den Transportvorschriften hinreichend konservativ sind.

Die Verwendung von material- und verpackungsabhängigen Freisetzungsbruchteilen, wie sie im Rahmen dieses Vorhabens ermittelt wurden, schafft die Möglichkeit, einen neuen Ansatz zur Einteilung der Materialien mit geringer spezifischer Aktivität zu beschreiten, wie er in /LAN 03/, /GRA 04/ entwickelt und vorgeschlagen wurde. Dabei werden die zulässigen Aktivitätsinventare von Gebinden aus der Analyse von Unfallszenarien abgeleitet, in denen die mechanischen und thermischen Beanspruchungen den Typ-B-Testbedingungen entsprechen und damit schwerwiegende Unfallbedingungen abdecken. Den Berechnungen liegt die Forderung zugrunde, dass in einer Entfernung von mehr als 50 m vom Unfallort die Effektivdosis über Inhalation und Bodenstrahlung nicht mehr als 50 mSv betragen darf.

Weitere Arbeiten

Das durchgeführte Experimentalprogramm war eine Kombination von kleinskaligen Freisetzungsversuchen unter Verwendung der pneumatischen FhG-ITEM Beschuss- und Aerosol-Messapparatur sowie Fallversuchen unterschiedlicher Gebindegrößen bis hinauf zu 200 l-Fässern. Die Experimentalmatrix war aufgrund begrenzter Ressourcen auf die Variation der o. g. ersten drei Einflussgrößen beschränkt worden. Hinsichtlich des Stoffsystems wurde schwerpunktmäßig eine Asche (PFA) mit einer breiten Größenverteilung zwischen 1 und 100 µm betrachtet. Für einige ausgewählte Punkte der Fallversuchsmatrix wurde ein zweites Stoffsystem, nämlich Titandioxid mit einer schmalbandigen Größenverteilung unterhalb von 1 µm betrachtet. In den kleinskaligen Versuchen wurde neben diesen beiden Pulvertypen mit dem Quarzmehl Millisil W12 ein dritter Pulvertyp untersucht.

Die bisher erzielten Ergebnisse weisen auf einen dominanten Einfluss des Stoffsystems auf die Freisetzungscharakteristik der Gebinde hin, was durch weitere Untersuchungsschritte detaillierter betrachtet werden sollte. Die freisetzungsrelevanten Kohäsionskräfte eines dispersen Systems sind durch eine Vielzahl von Systemparametern wie Lage und Breite der Partikelgrößenverteilung, Partikelmorphologie, van der Waals-Kräfte, Staubfeuchte etc. bestimmt. In weiteren Untersuchungen sollten einfache Staubneigungstests entwickelt werden, die auf die bisher in den Fallversuchen eingesetzten und weitere ausgewählte Stoffsysteme angewandt werden, wobei die Ergebnisse mit den Freisetzungsdaten aus den Fallexperimenten korreliert werden sollten. Dies würde die Übertragung der in den realskaligen Fallexperimenten gewonnen Quelltermdaten auf andere als die benutzten Stoffsysteme wesentlich erleichtern und damit den Nutzen der Ergebnisse des Vorhabens für die Analyse des störfallbedingten Risikos beim Transport trocken dispergierbarer Radioaktivität erhöhen.

Als Staubneigungstest sollte die Messung des luftgetragenen (AED < 100 µm) und lungen-

gängigen (AED < 10 µm) Anteils nach Impaktion einer definierten in einem Glaskolben eingefassten Staubmenge auf eine harte Oberfläche dienen. Für diese Tests bietet sich die Verwendung der pneumatischen FhG-ITEM Beschuss- und Aerosolmessapparatur an. Neben den bisher verwendeten Stoffsystemen Asche, Titandioxid und Millisil sollten mindestens drei weitere Stoffsysteme, beispielsweise unterschiedliche Größenfraktionen von Quarzmehl, Hüttensand oder Betonstaub untersucht und hierfür jeweils ein stoffspezifischer Staubneigungsfaktor abgeleitet werden.

Insbesondere erscheint es sinnvoll, charakteristische Spezifikationen der bei Abbrucharbeiten anfallenden Betonstäube zu ermitteln, z. B. in Absprache mit dem Forschungszentrum Jülich, und gegebenenfalls realskalige Fallversuche mit realen Betonstaubproben in realen Transportbehältern durchzuführen. Ein typisches Transportgebinde für Abbruchmaterial ist der lose mit festen und staubförmigen Betonteilen gefüllte Konrad-Container. Hier würde neben dem Behälterverhalten auch interessieren, wie sich ein Gemisch aus festen und pulverförmigen Stoffen hinsichtlich der Freisetzung lungengängigen Staubes verhält. Auf den Versuchsständen der BAM sind auch für diese Gebindedimension Fallversuche mit überschaubarem Aufwand realisierbar.

Die Massenabhängigkeit des Freisetzungsbruchteils bei unumhülltem Pulver zeigt für Pulvermengen > 1 kg einen deutlichen Abnahmetrend mit steigenden Pulvermengen. Die Extrapolation dieses Trends für Pulvermengen > 20 kg, die für die Festlegung eines konservativen Freisetzungsbruchteils (unter Vernachlässigung der Rückhaltewirkung der Verpackung) bei Transportunfallanalysen von Bedeutung ist, sollte ebenfalls durch Versuche abgesichert werden. Für die Ableitung einer Gesetzmäßigkeit zur Massenabhängigkeit des Freisetzungsbruchteils, z.B. zur Abhängigkeit vom Oberflächen/Volumenverhältnis, sind ebenfalls weitere Versuche mit größeren Pulvermengen erforderlich.

9 Literatur

/BAL 88/ Ballinger, M.Y., Buck, J.W., Owczarski, P.C., Ayer J.E.: *Methods for Describing Airborne Fractions of Free Fall Spills of Powders and Liquids*, NUREG/CR-4997 (PNL-6300), Pacific Northwest Laboratory, Richland, WA 99352, January 1988.

/BEL 95/ R. Belbéoch: *Quelques Commentaires sur le Dossier COGEMA pour l'Enquête Publique du Projet d'Entreposage a Bessines de ses Oxydes d'Uranium Appauvri*, G@ZETTE NUCLEAIRE No 141/142, avril 1995, http://solar-club.web.cern.ch/solar-club/Gazette/1995/141_27.html

/BFS 92/ *Schachtanlage Konrad – vom Erzbergwerk zum Endlager für radioaktive Abfälle*, Informationsbroschüre des Bundesamtes für Strahlenschutz, Salzgitter, Oktober 1992

/BFS 95-1/ *Anforderungen an endzulagernde radioaktiver Abfälle - Schachtanlage Konrad – Stand: Dezember 1995*, Bundesamt für Strahlenschutz, BfS-Dok.-Nr. D/ED/0235, EU 117, Dezember 1995

/BFS 95-2/ B.-R. Martens: *Produktkontrolle radioaktiver Abfälle - Schachtanlage Konrad – Stand: Dezember 1995*, Bundesamt für Strahlenschutz, ET-IB-45-REV-3, Dezember 1995

/BFS 96-1/ K. Kugel et al.: *Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle und Maßnahmen zur Produktkontrolle radioaktiver Abfälle. Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM) Teil I: Endlagerungsbedingungen, Stand August 1996*, Bundesamt für Strahlenschutz, ET-IB-85, August 1996

/BFS 96-2/ B.-R. Martens, H. Giller, P. Brennecke: *Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle und Maßnahmen zur Produktkontrolle radioaktiver Abfälle. Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM) Teil II: Produktkontrolle, Stand Dezember 1996*, Bundesamt für Strahlenschutz, ET-IB-85/2, Dezember 1996

/DIR 03/ F. Dirks, Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe, Forschungszentrum Karlsruhe: persönliche Mitteilung an E. Hörmann, November 2003

/DOE 94/ US Department of Energy: DOE Handbook: *Airborne Release Fractions/Rates and Respirable Fractions for Non-reactor Nuclear Facilities*, *Volume 1- Analysis of Experimental Data*, DOE-HDBK-3010-94, December 1994.

/EHR 00/ A. Ehrenberg: *Zur Korngrößenverteilung hüttensandhaltiger Zemente, Forschungsgemeinschaft Eisenhüttenschlacken,* FehS-Report, 7. Jahrgang Nr. 2, Dezember 2000

/EUR 03/ Euroquarz GmbH: *SILIMIX® Quarz – Mischungen, MIKROSIL® Quarzmehle* http://www.euroquarz.de/de/produkte/quarzmehl/mikrosil.htm

/FAR 03/ The Fly Ash Resource Center: *Coal combustion byproducts (CCBs),* June 1, 2003, http://www.geocities.com/CapeCanaveral/Launchpad/2095/flyash.html

/FZK 02/ Forschungszentrum Karlsruhe, Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe: *Bedingungen für die Annahme radioaktiver Stoffe, Stand: Juli 2002,* www.fzk.de/stellent/groups/s/documents/published_pages

/FZK 03/ Forschungszentrum Karlsruhe, Projektträger Wassertechnologie und Entsorgung: *Halbjahresbericht über den Stand der BMBF-Stilllegungsprojekte und der vom BMBF geförderten FuE-Arbeiten zu „Stilllegung/Rückbau kerntechnischer Anlagen“ Berichtszeitraum: 01. Januar - 30. Juni 2003,* PTE-S Nr. 6, September 2003

/GÄR 01/ S.G. Gärtner: *Externe Dekontamination von Schrott aus in Betrieb befindlichen kerntechnischen Anlagen*, 5. Internationales Symposium "Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle", KONTEC 2001, Berlin, 28.-30. März 2001

/GNS 03/ http://www.gns.de/generator.aspx/templateId=renderPage/lang=de/id=6488

/GRS 85/ D. Gründler: *Systemanalyse Konrad, Teil 2, Bestimmung störfallbedingter Aktivitätsfreisetzung, Quelltermbestimmung mechanischer Lastfall,* GRS-A-1125, Februar 1985

/GRA 04/ I. Gray, F. Lange, E. Hörmann, N. Carr: *Development of an Improved Radiological Basis and Revised Requirements for the Transport of LSA/SCO Materials,* PATRAM'05, Berlin, September 20-24, 2004

/GRS 87/ D. Gründler: *Systemanalyse Konrad, Teil 3, Bestimmung störfallbedingter Aktivitätsfreisetzung*, GRS-A-1389, November 1987

/GTS 69/ E. Gebhardt, F. Thümmler, H.-D. Seghezzi: *Reaktorwerkstoffe, Teil 2: Keramische und pulvermetallurgische Werkstoffe,* Verlag B.G. Teubner, Stuttgart, 1969

/HAL 01/ S. Halaszovic: *Stillegungsaktivitäten und Abfallbehandlung am Standort Jülich*, 5. Internationales Symposium "Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle", KONTEC 2001, Berlin, 28.-30. März 2001

/HAL 03/ S. Halaszovic, Forschungszentrum Jülich: persönliche Mitteilung an E. Hörmann, Dezember 2003

/HDB 03/ *HDB Verbrennungsanlage*
http://hikwww4.fzk.de/hdb/Betriebe/Verbrennung/index.html, Dezember 2003

/HDB 03-1/ *HDB LAW-Verschrottungsanlage,*
http://hikwww4.fzk.de/hdb/Betriebe/ LAW-Verschrottung /index.html, Dez. 2003

/HDB 03-2/ *HDB LAW-Eindampfung,*
http://hikwww4.fzk.de/hdb/Betriebe/ Eindampfung /index.html, Dez. 2003

/HLD 01/ D. Hartmann, B. Le Motais, B. Duperret: *The French Approach for Management of Depleted Uranium, A Constantly Improved Technology*,
WM'01 Conference, February 25-March 1, 2001, Tucson, AZ

/IAE 94/ IAEA: *Interim Guidance for the Safe Transport of Reprocessed Uranium,* TECDOC-750, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1994

/IAE 02/ IAEA: *Advisory Material for the IAEA-Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material*, Safety Guide TS-G-1.1 (ST-2), International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna, 2002

/IAE 04/ Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material - 1996 Edition (As Amended 2003): Safety Requirements, Safety Standards Series No. TS-R-1, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2004

/ICS 03/ International Programme on Chemical Safety (IPCS): *International Chemical Safety Cards (ICSC), ICSC 1251,* May 2003 http://www.ilo.org/public/english/protection/safework/cis/products/icsc/dtasht/_icsc12/icsc1251.pdf

/IVD 99/ Universität Stuttgart, Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen IVD / Gesellschaft für Umweltmessungen und Umwelterhebungen UMEG: *Feinstaubuntersuchung an Holzfeuerungen,* UMEG-Bericht Nr. 44 - 1999, ISBN 3-928123-38-6

/KAZ 03/ Homepage der staatlichen kasakischen Firma Kazatomprom, http://www.kazatomprom.com/eng

/KOE 03/ B.I. Koerner: *What Is Yellowcake, Anyway?* http://slate.msn.com/id/2085848/, July 18, 2003

/KRA 04/ G. Krause, SINA Industrieservice GmbH & Co. KG: persönliche Mitteilung an E. Hörmann, Januar 2004

/KWO 01/ K. Tscheschlock, F. Schifferdecker, M. Bräsel: *Betriebserfahrungen mit der Trocknung hoch borhaltiger Verdampferkonzentrate im Kernkraftwerk Obrigheim,* 5. Internationales Symposium "Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle", KONTEC 2001, Berlin, 28.-30. März 2001

/LAN 03/ F. Lange et al.: *Improvement of the Radiological and Experimental Basis to Further Develop the Requirements of the IAEA Transport Regulations for LSA/SCO Materials*, A Joint Research Study for CEC by GRS, Nirex, NRG, NRPB, March 2003.

/LFU 02/ *Holzhackschnitzel-Heizanlagen,* http://www.lfu.baden-wuerttemberg.de/lfu/abt3/industrie_und_gewerbe/technische_luftreinhaltung/holzhackschnitzel/Holzhackschnitzel0110_Endversion.pdf 19.04.2002, 3500 Kb

/LNK 02/ Lange, F., Nolte, O., Koch, Martens, R.: *Analyse der Sicherheit bei der Beförderung und Lagerung radioaktiver Stoffe - Quantifizierung der Freisetzung bei Transport- und Handhabungsunfällen*, SR 2371, GRS- A-3055, September 2002

/MAL 03/ P. Malesys: *Development of methodologies and small scale demonstration tests for the assessment of aerosol-borne release of radioactive materials in different transport situations,* Präsentation bei GRS am 12. Februar 2003

/MEI 03/ J. Meier-Kortwig et al.: *Forschungsvorhaben Aufbereitung radioaktiver mineralischer Rückstände durch Aktivitätsseparation,* 6. Internationales Symposium "Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle", KONTEC 2003, Berlin, 19.-21. März 2003

/NRC 03/ U.S. Nuclear Regulatory Commission: Certificate of Compliance for Radioactive Material Packages, Certificate Number 9301, Rev. 1, August 14, 2003 http://www.rampac.com/certificates/certificate_retrieval_page.htm

/OBE 01/ I. Obernberger et al.: *Characterisation and formation of aerosols and fly-ashes from fixed-bed biomass combustion,* International Seminar 'Aerosols from Biomass Combustion' Seminar at 27 June 2001 in Zurich http://www.ieabcc.nl/publications/aerosols.pdf

/OBE 03/ I. Obernberger: *Aerosols from Fixed Bed Biomass Combustion - Formation, Characterization, and Particulate Emissions,* 17th Annual *ACERC Conference February 20-21 2003, Salt Lake City, Utah* www-acerc.byu.edu/News/Conference/2003/ Presentations/Obernberger.pdf

/PAU 00/ H.-R. Paur et al.: *Technische Maßnahmen zur Minderung von Verbrennungsaerosolen, Nachrichten* - Forschungszentrum Karlsruhe, Jahrg. 32, 3/2000, S. 148-157, presse.fzk.de/aktuelles/nachrichten/pdf/3_2000-05.pdf

/PLI 91/ Plinke, M.A.E., Leith, D., Holstein, D.B., Boundy, M.G.: *Experimental Examination of Factors That Affect Dust Generation,* American Industrial Hygiene Association J.,52: No. 12 pp 521-528, December 1991

/QUA 03/ Quarzwerke Frechen: *Stoffdaten Quarzsand, MILLISIL, SIKRON,* http://www.quarzwerke.com/Datenblatt/Inter_d/DBL_d/Navigation_DBL_deutsch_Interne/navigation_dbl_deutsch_interne.html

/SCH 01/ T. Schmidt, K. Wildemann: *Dekontamination von Oberflächen mit dem Strahlverfahren mit Recyclingtechnik*, 5. Internationales Symposium "Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle", KONTEC 2001, Berlin, 28.-30. März 2001

/SEE 87/ H.D. Seehars, D. Hochrainer, M. Spiekermann, W. Althaus: *Experimente zur Freisetzung und Quelltermbestimmung bei mechanischer Belastung von mit pulvrigen Substanzen gefüllten Abfallbehältern*, Fraunhofer-Institut für Umweltchemie und Ökotoxikologie, Auftragsbericht für GRS, Juli 1987

/SEE 88/ H.D. Seehars, et al.: *Experimental determination of the release of radioactive powders after downfall of waste containers under worst case conditions*, J. Aerosol Sci., Vol. 17, No. 7, p. 1355, 1988

/SIN 03/ SINA: *All in One*, Broschüre, www.sina.de, Dezember 2003

/SJM 81/ Sutter S.L., Johnston J.W., Mishima, J.: *Aerosols Generated by Free Fall Spills of Powder and Solutions in Static Air*, NUREG/CR-2139 (PNL-3786), 1981.

/SMB 03/ B. Stahn, K. Matela, D. Bensch: *Abbau des Brennstoffzellenlabors im Forschungszentrum Jülich,* atw 48.Jg. (2003) Heft 6, Juni 2003

/SPI 01/ U. Spielmann et al.: *Erzeugung von zwischen- und endlagerfähigen Abfallgebinden durch die Weiterbehandlung von vorgefüllten Gebinden*, 5. Internationales Symposium "Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle", KONTEC 2001, Berlin, 28.-30. März 2001

/STA 03/ B. Stahn et al.: *Abbau des Reaktorblocks des Forschungsreaktors FRJ-1 (MERLIN)*, atw 48.Jg. (2003) Heft 6, Juni 2003

/STU 03/ http://radwaste.studsvik.se/index.php?p=businessarea&s=incineration&lang=en

/TN 84-1/ TRANSNUKLEAR GmbH: *Volumenreduktion radioaktiver Betriebsabfälle*, TN 8434, Hanau, April 1984

/TN 84-2/ TRANSNUKLEAR GmbH: *Siebanalysen von radioaktiven Pulverharzen*, TN 8450, Hanau, April 1984

/URE 03/ Urenco: *Urananreicherunganlage Gronau, Genehmigungsverfahren*, http://www.urenco.de/seiten/sta/sta_gen_001.htm, Dezember 2003

/WAC 01/ R. Wackrow, R. Saß: *Abbau des Lagers für feste und flüssige Rückstände im KKW Rheinsberg -Betonmonolith-* , 5. Internationales Symposium "Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle", KONTEC 2001, Berlin, 28.-30. März 2001

/WEB 01/ Ch. Weber, A. von Gunten: *Behandlung der radioaktiven Betriebsabfälle aus dem Kernkraftwerk Mühleberg sowie zukünftige Änderungen aufgrund der Inbetriebnahme des zentralen Zwischenlagers in Würenlingen (ZWILAG)*, 5. Internationales Symposium "Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle", KONTEC 2001, Berlin, 28.-30. März 2001

/WIW 03/ WIWOX® ST: Qualitätsstrahlmittel für Druckluftstrahlkabinen, http://www.w-und-i.de/de/infos/broschuere_st.pdf

10 Anhänge

10.1 Anhang A: Spezifikation der Rollreifenfässer

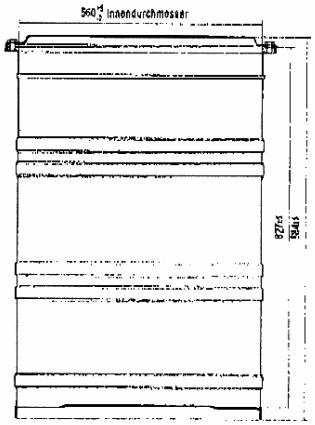
Eisenwerk Bassum

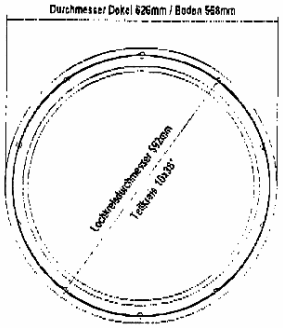
Hinterm Bahnhof 3, 27211 Bassum
Postfach 1145, 27201 Bassum
Tel.: 04241/80280 Fax.: 802820

Datenblatt zum Abfallbehälter
EWB-DB-EB1-2-650 Rev.0
Ausführung 2

	Betriebsdaten	
1	Aufstellungsort	entfällt
2	Medium	Abfallprodukt
3	Nennvolumen	0,20 m³
4	Dichte	3045/2985 kg/m³
5	Betriebstemp.	Umgebung °C
6	Nenndruck (abs)	1 bar
7	Korros. Zuschlag	- mm
8	Gebindevolumen	0,27 m³
9	Lagervolumen	0,4 m³
10		
11		
12		
13		
	Werkstoff	
14	Mantel	1.0332
15	Boden-/Kopfreifen	1.0332 / 1.0038
16	Deckel/Greifring	1.0332 / 1.0038
17	Dichtung	EPDM/SBR 80°Shore
18	Schrauben	8.8 verz.
19	Winkelring	1.0332
20	Rollreifen	1.0038
21	Werkstoffanforderungen	siehe Stückliste
	Ausführung	
22	Ausl. Temperatur	-
23	Ausl. Druck (abs)	-
24	Wanddicke Mantel	1,5 mm
25	Boden/Deckel	4/3 mm
26	Gewicht leer/komplett	41kg / 53kg
27	Füllgewicht	609/597kg
28	Betriebsgewicht	max. 650 kg
29	Isolationsmaterial	-
30	Isolationsdicke	-
31	Beschichtung	siehe Skizze
32		
33	nach TLA: Fässer zum Verpacken und Transportieren von Radioaktiven Stoffen	
34	Optionen zur Fassausführung siehe Tabelle 1	
	Zulassung	
35	Nach GGVS	
36	IP-2	
37	Typ A	
38	Bescheinigung: EWB EB-EB1-650	
39	ggf. mit Entlüftungsfilter	
40	nach Endlagerbedingungen ERAM	
41	Standardisierter Behälter	

Skizze Abfallbehälter EB1-A 200 - 650kg





Skizze2

Beschichtung innen/außen:
2x Grundierung , a 50 µm,
1x Decklack RAL 1004, 50 µm
Gesamtschichtdicke 150 µm

Tabelle 1

Zeichnung	Optionen zur Ausführung 1
060197/2.1	Ausführung wie Skizze
060197/2.2	Winkelring
060197/2.3	Rollreifen
060197/2.4	Winkelring und Rollreifen
060197/2.5	Greifring
060197/2.6	Greifring und Rollreifen
060197/2.7	Winkelring und Doppeldichtung

erstellt: gez. Witt

geprüft und freigegeben: gez. Grunau

Datei Datenblatt-EWB-DB-EB1-2-650Rev0. 30.06.03

Eisenwerk Bassum

Hinterm Bahnhof 3, 27211 Bassum
Postfach 1145, 27201 Bassum
Telefon (04241) 8028-0
Telefax (04241) 802820

Abnahmeprüfzeugnis

nach DIN EN 10204 / 3.1B

/

Abnahmebescheinigung

eines Industrieversandstück IP-2 Typ / einer Typ A-Verpackung zur Beförderung radioaktiver Stoffe

über die Prüfung vor Inbetriebnahme von Verpackungen zur Beförderung radioaktiver Stoffe für Abfallbehälter gemäß den technischen Richtlinien über Maßnahmen zur Qualitätssicherung (QM) und –überwachung (QI) für Verpackungen zur Beförderung radioaktiver Stoffe –TRV 006- Verkehrsrecht.
Die vom Eisenwerk Bassum mbH verwendeten Ausgangswerkstoffe werden durch die spezifische Prüfung gemäss dem Eingangskontrollblatt I (PF 20) dokumentiert.

Prüfgegenstand:	Abfallfaß Typ EB1-A 200 l. – 650 kg
Prüfgrundlagen:	ADR 2001 sowie die weiteren auf IAEA TS-R-1 beruhenden Vorschriften Zertifikat über die Konformität der Bauart einer Verpackung Nr.: EWB-EB-EB1-650 Rev.0 Zg.-Nr.: 060197/2.1 Rev.e Stücklisten-Nr.: ST060197/2.1 Rev. 2 Prüffolgeplan (FPP): EWB-FPP-EB1-2-650 Rev.0
Anforderungen:	geprüfte Typ A-Verpackung zur Bauart-Nr. D/BAM/001/97 Typ A (Rev. 2) ERAM – geprüft durch den TüV Hannover/Sachsen-Anhalt e.V. vom 22.07.1998 Einhaltung der technischen Richtlinien über Maßnahmen zur Qualitätssicherung (QM) und -überwachung (QÜ) für Verpackungen zur Beförderung radioaktiver Stoffe –TRV 006- Stand: 20.02.1991
Auftraggeber:	EBB Eisenwerk Bassum Behälter- und Beschichtungssysteme GmbH & Co. KG, Hinterm Bahnhof 3, 27211 Bassum
Auftrag Nr. des Auftraggebers:	04-017
Auftrag Nr. des Herstellers:	KOM 7902
Werkzeugnis Nr.:	7902-2
Lieferschein Nr.:	04-14532
Behälter Nr./Ident.-Nr.:	keine fortlaufenden Nummern, siehe Anlage. 5 Stück.
Beschichtung:	Die Sollschichtdicke entspricht 150 µm Toleranz nach DIN 55928 Teil 5
Dichtheit:	Die oben aufgeführten Abfallbehälter wurden ohne Deckel mit einem Überdruck von 0,3 bar beaufschlagt und anschließend mit einer Seifenlauge eingesprüht. Eine Blasenbildung wurde im Endzustand nicht festgestellt.
Prüfung:	Die sachliche Richtigkeit und Übereinstimmung mit den Prüfgrundlagen und die Vollständigkeit wurden geprüft.
Bescheinigung:	Hiermit wird bescheinigt, dass die vorgeschriebenen Maßgaben der o.g. Prüfungen der Verpackung als prüfpflichtiges Versandstück IP-2 / Typ A eingehalten sind.

Bassum, den 03.06.2004

M. Wöll EWB QS

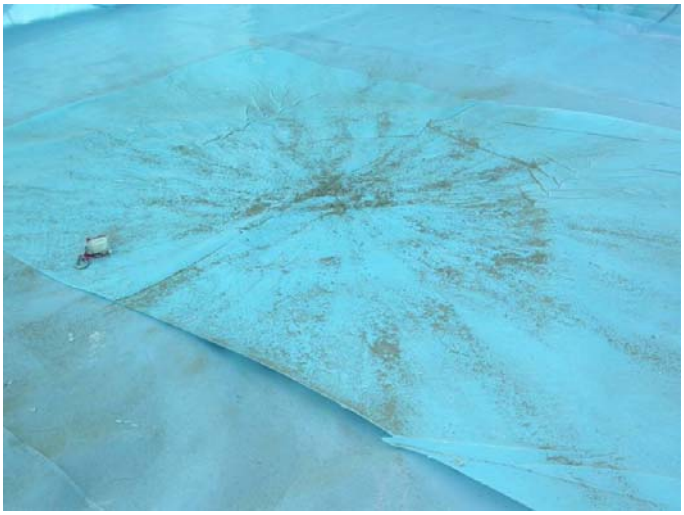
Unterschrift des vom Hersteller für die Prüfung benannten Verantwortlichen

10.2 Anhang B: Fotodokumentation der Abwurfversuche

10.2.1 Abwurfversuche mit „unumhüllten“ Probekörpern

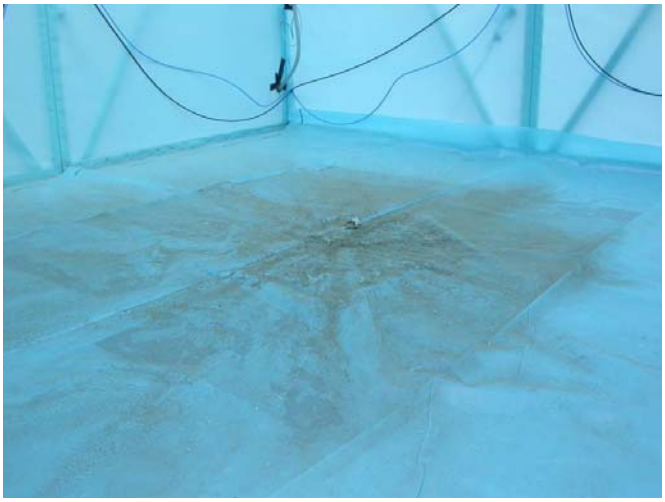
10.2.1.1 Flugasche und Titandioxid, unumhüllt, Fallhöhe 9 m

Fallhöhe	9 m
Behälter	100 ml Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	40 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	100 g
Gesamtgewicht	140 g
Datum / Versuchs-Nr.	19.07.2004 / Nr. 20

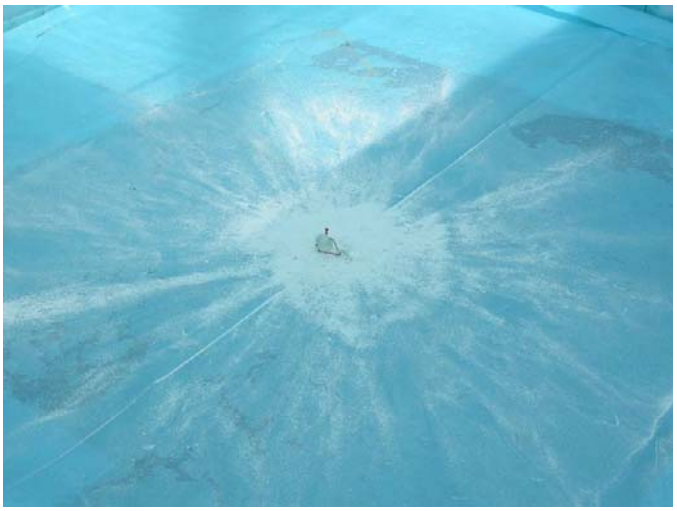


Fallhöhe	9 m
Behälter	100 ml Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	40 g
Material	Tronox Titandioxid
Gewicht Material	100 g
Gesamtgewicht	140 g
Datum / Versuchs-Nr.	19.07.2004 / Nr. 19

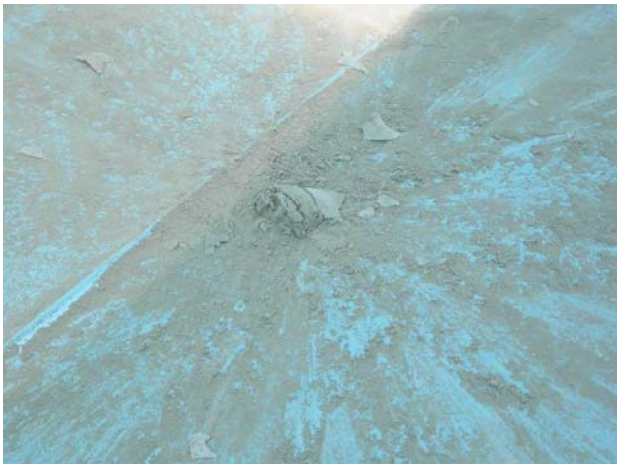
Fallhöhe	9 m
Behälter	500 ml Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	200g Glas
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	400 g
Gesamtgewicht	600 g
Sammelzeit	30 min
Datum / Versuchs-Nr.	22.06.2004 / Nr. 3



Fallhöhe	9 m
Behälter	500 ml Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	200g Glas
Material	Tronox Titandioxid
Gewicht Material	400 g
Gesamtgewicht	600 g
Sammelzeit	30 min
Datum / Versuchs-Nr.	22.06.2004 / Nr. 4



Fallhöhe	9 m
Behälter	2 l Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	450 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	2,000 kg
Gesamtgewicht:	2,450 kg
Sammelzeit	30 min
Datum / Versuchs-Nr.	21.06.2004 / Nr. 1



Fallhöhe	9 m
Behälter	2 l Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	450 g
Material	Tronox Titandioxid
Gewicht Material	2,000 kg
Gesamtgewicht	2,450 kg
Sammelzeit	30 min
Datum / Versuchs-Nr.	08.07.2004 / Nr. 10

Fallhöhe	9 m
Behälter	10 l Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	2000 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	10 kg
Gesamtgewicht	12 kg
Datum / Versuchs-Nr.	14.07.2004 / Nr. 14

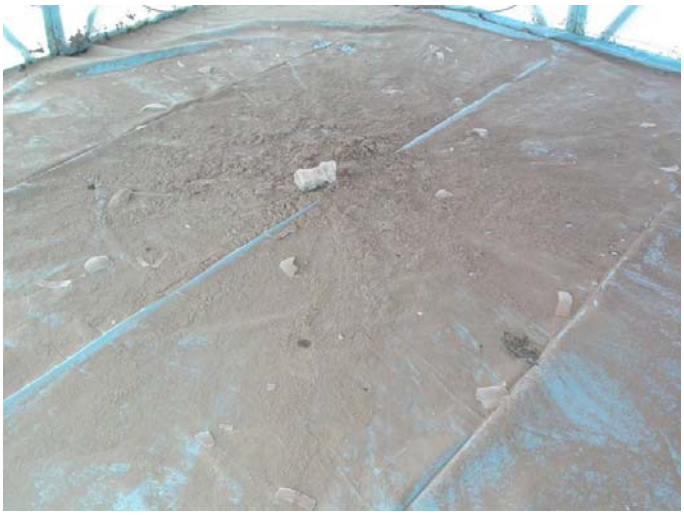
Fallhöhe	9 m
Behälter	10 l Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	1900 g
Material	Tronox Titandioxid
Gewicht Material	10 kg
Gesamtgewicht	11,900 kg
Sammelzeit	30 min
Datum / Versuchs-Nr.	08.07.2004 / Nr. 11

Fallhöhe	9 m
Behälter	20 l Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	4000 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	20 kg
Gesamtgewicht	14 kg
Datum / Versuchs-Nr.	19.07.2004 / Nr. 17

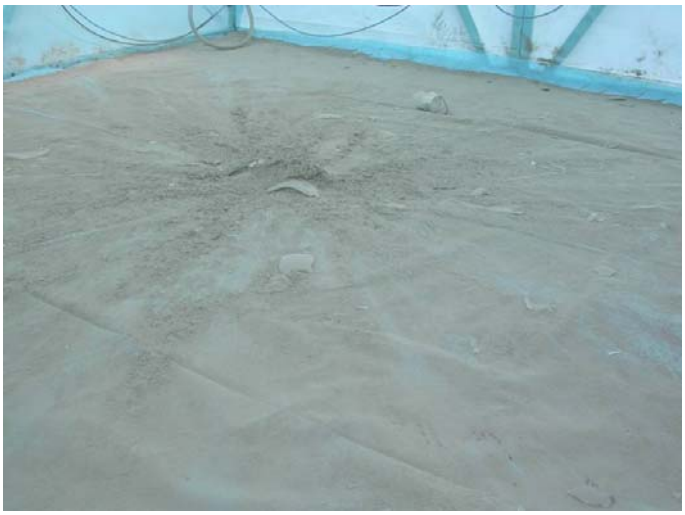
Fallhöhe	9 m
Behälter	20 l Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	4000 g
Material	Tronox Titandioxid
Gewicht Material	20 kg
Gesamtgewicht	14kg
Datum / Versuchs-Nr.	19.07.2004 / Nr. 18

10.2.1.2 Flugasche, unumhüllt, andere Fallhöhen

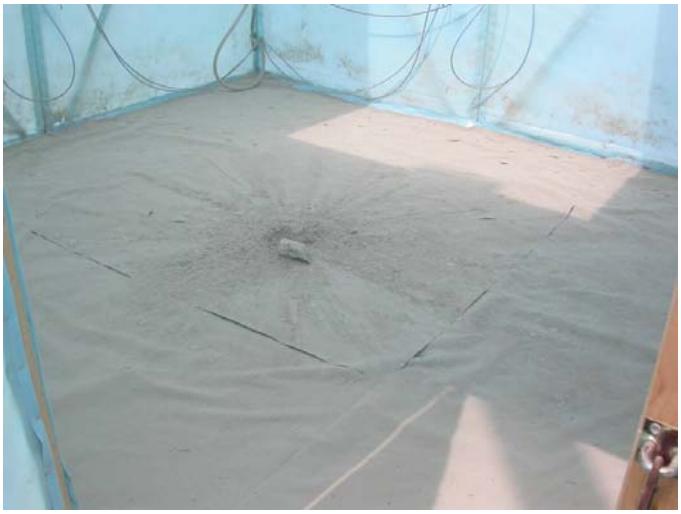
Fallhöhe	3,2 m
Behälter	10 l Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	2000 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	10 kg
Gesamtgewicht	12 kg
Datum / Versuchs-Nr.	08.07.2004 / Nr. 12



Fallhöhe	5,2 m
Behälter	10 l Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	2000 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	10 kg
Gesamtgewicht	12 kg
Datum / Versuchs-Nr.	14.07.2004 / Nr. 13



Fallhöhe	15 m
Behälter	10 l Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	2000 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	10 kg
Gesamtgewicht	12 kg
Datum / Versuchs-Nr.	14.07.2004 / Nr. 15



Fallhöhe	22 m
Behälter	10 l Rundhalskolben
Leergewicht Behälter	2000 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	10 kg
Gesamtgewicht	12 kg
Datum / Versuchs-Nr.	14.07.2004 / Nr. 16

10.2.2 Abwurfversuche mit „umhüllten“ Probekörpern

10.2.2.1 Flugasche (10 kg) in 10 l Kanister, verschiedene Fallhöhen

Fallhöhe	5,2 m
Behälter	10 l Kanister
Leergewicht Behälter	750 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	10 kg
Gesamtgewicht	10,750 kg
Sammelzeit	30 min
Datum / Versuchs-Nr.	07.07.2004 / Nr. 8

Fallhöhe	9 m
Behälter	10 l Kanister
Leergewicht Behälter	750 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	10 kg
Gesamtgewicht	10,750 kg
Sammelzeit	30 min
Datum / Versuchs-Nr.	22.06.2004 / Nr. 5

Fallhöhe	15 m
Behälter	10 l Kanister
Leergewicht Behälter	750 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	10 kg
Gesamtgewicht	10,750 kg
Sammelzeit	30 min
Datum / Versuchs-Nr.	07.07.2004 / Nr. 7

Fallhöhe	22 m
Behälter	10 l Kanister
Leergewicht Behälter	750 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	10 kg
Gesamtgewicht	10,750 kg
Sammelzeit	30 min
Datum / Versuchs-Nr.	22.06.2004 / Nr. 6

Fallhöhe	22 m (Wiederholungsversuch)
Behälter	10 l Kanister
Leergewicht Behälter	750 g
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	10 kg
Gesamtgewicht	10,750 kg
Sammelzeit	30 min
Datum / Versuchs-Nr.	07.07.2004 / Nr. 9

10.2.2.2 Flugasche (ca. 260 kg) in Typ-A-Rollreifenfass, verschiedene Fallhöhen

Fallhöhe	3,2 m
Behälter	TYP A
Leergewicht Behälter	42 kg
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	
Gesamtgewicht	301,2 kg
Datum / Versuchs-Nr.	29.07.2004 / Nr. 22

Fallhöhe	5,4 m
Behälter	TYP A
Leergewicht Behälter	42 kg
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	
Gesamtgewicht	301 kg
Datum / Versuchs-Nr.	29.07.2004 / Nr. 21

Fallhöhe	9 m
Behälter	TYP A
Leergewicht Behälter	42 kg
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	
Gesamtgewicht	302,4 kg
Datum / Versuchs-Nr.	29.07.2004 / Nr. 23

Fallhöhe	15 m
Behälter	TYP A
Leergewicht Behälter	42 kg
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	
Gesamtgewicht	299,8 kg
Datum / Versuchs-Nr.	29.07.2004 / Nr. 24

Fallhöhe	22 m
Behälter	Typ A Abfallbehälter
Leergewicht Behälter	42 kg
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	196,2 g
Gesamtgewicht	238,2 kg
Sammelzeit	30 min
Datum / Versuchs-Nr.	21.06.2004 / Nr. 2

Fallhöhe	22 m (Wiederholungsversuch)
Behälter	TYP A
Leergewicht Behälter	42 kg
Material	Flugasche - KM/C Füller
Gewicht Material	
Gesamtgewicht	311,4 kg
Datum / Versuchs-Nr.	29.07.2004 / Nr. 25

Verteiler

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit

Referat RS III 3	Dr. Alter		5 x

Bundesamt für Strahlenschutz

KT 1.1		1 x
ET 3.2 (Dr. F. Nitsche)		5 x
ET 2 (Dr. P. Brennecke, Dr. J. Thiel)	je	1 x

Bundesanstalt für Materialforschung und –prüfung (BAM) Professor Dr. Droste		2 x
Fraunhofer Institut für Toxikologie und experimentelle Medizin (ITEM) Professor Dr. W. Koch, O. Nolte	je	3 x
Dipl. Ing. Eugen Hörmann		3 x

GRS

Geschäftsführer	(hah, ldr)	je	1 x
Bereichsleiter	(brw, zir, erv, lim, tes, prg)	je	1 x
Projektbetreuung	(luk)		1 x
Projektleitung	(mar)		1 x
Autoren	(lag, mar)	je	2 x
Abteilung 7020	(brc, fet, sen, scd, scg, sog, thi)	je	1 x
Abteilung 5040	(reh)		1 x
Abteilung 6020	(rop)		1 x
Bibliothek	(hog)		1 x

Gesamtauflage: 48 x