

**Forschungsvorhaben 3611S70018**

**Bestimmung von Nuklidvektoren und  
Verteilung von Masse und Aktivität als  
Funktion der Aerosolpartikeldurchmesser in  
der Fortluft bei im Rückbau befindlichen  
kerntechnischen Anlagen**

**Abschlussbericht**

**Bericht ETS 1 – 39/2014**

**Oktober 2014**

---

**Erstellt im Auftrag der Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und  
Reaktorsicherheit  
von der TÜV SÜD Industrie Service GmbH  
Energie und Technologie**

---

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit) übereinstimmen.

Auftragnehmer:

TÜV SÜD Industrie Service GmbH

Westendstr. 199

80686 München

Bearbeiter:

Rainer Schütz

Florian Vilser

Lothar Hummel

Unterauftragnehmer:

Fraunhofer-Institut für Toxikologie und Experimentelle Medizin (FhG-ITEM)

Arbeitsgruppe Aerosoltechnologie

Nikolai-Fuchs-Str.1

30625 Hannover

Bearbeiter:

Wolfgang Koch

Hubert Lödding

Heiko Kock

## **Inhaltsverzeichnis**

<b>Inhaltsverzeichnis .....</b>	<b>3</b>
<b>Zusammenfassung .....</b>	<b>4</b>
<b>1 Einleitung .....</b>	<b>6</b>
<b>2 Ergebnisse der Literaturrecherche .....</b>	<b>9</b>
2.1 Begriffe .....	9
2.2 Arbeitsmethoden beim Rückbau .....	10
2.2.1 Dekontamination und Zerlegung von Komponenten .....	11
2.2.2 Dekontamination von Gebäuden .....	14
2.3 Größenverteilung von Aerosolpartikeln .....	17
2.4 Methoden zur Vorfilterung, Filterwirkung .....	23
2.5 Nuklidvektoren.....	28
<b>3 Experimentelle Bestimmung von Partikelverteilungen und Nukliden.....</b>	<b>31</b>
3.1 Bestimmung der Anzahl- und Massenverteilung .....	31
3.1.1 Methodik.....	31
3.1.2 Durchführung.....	33
3.1.3 Ergebnisse .....	38
3.2 Analyse der Impaktorfilter .....	46
3.2.1 Chemische Analyse der Impaktorfilter .....	46
3.2.2 Bestimmung der nuklidspezifischen Aktivitätsverteilung.....	55
<b>4 Rechnerische Bestimmung der Abscheideverluste im Probenentnahmesystem .....</b>	<b>59</b>
<b>5 Literatur .....</b>	<b>71</b>

## **Zusammenfassung**

In dem vorliegenden Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben 3611S70018 „Bestimmung von Nuklidvektoren und Verteilung von Masse und Aktivität als Funktion der Aerosolpartikeldurchmesser in der Fortluft bei im Rückbau befindlichen kerntechnischen Anlagen“ wurden folgende Aspekte betrachtet:

Im Rahmen einer Literaturrecherche wurde den Fragen nachgegangen, welche Arbeitsmethoden im Rahmen von Rückbauarbeiten eingesetzt werden und welche Erkenntnisse aus dem konventionellen Bereich zur Größenverteilung von Aerosolpartikeln für verschiedene Arbeitsmethoden vorliegen. Des Weiteren wurde ermittelt, welche Methoden der Vorfiltration von Aerosolpartikeln bei den einzelnen Arbeitsschritten bzw. Arbeitsmethoden des Rückbaus bei kerntechnischen Anlagen eingesetzt werden und wie sich diese auf die Größenverteilung der emittierten Partikel auswirken sowie welche Nuklidvektoren bei im Rückbau befindlichen kerntechnischen Anlagen vorliegen. Detaillierte Betrachtungen, die für den Rückbau Angaben zu den Aerosolgrößenverteilungen, den Verlauf der Verteilungen in der Anlage und den Nuklidvektor bzw. den Zusammenhang zwischen Nuklid und Aerosolpartikelgröße machen, wurden nicht gefunden. Es werden in der verfügbaren Literatur jeweils nur Teilaspekte betrachtet. Das Schutzziel, die Vermeidung von Kontamination und Inhalation von radioaktiven Stoffen steht im Vordergrund und wird mit Maßnahmen wie Einhausungen und Filterung der Abluft erreicht.

Als weitere Aufgabe des Forschungsvorhabens wurden Messungen von Aerosolpartikelverteilungen und der auf den Partikeln vorhandenen Nuklide für drei Szenarien durchgeführt. Zum einen wurden Partikel bei Zerlegearbeiten in der Abluft nach einem Filtermobil gesammelt, zum anderen in der Luft eines Raumes, in dem konventionelle Rückbautätigkeiten stattfanden. Außerdem wurden Messungen in der ungefilterten Abluft bei Zerlegearbeiten an gering oberflächenkontaminierten Bauteilen durchgeführt. Dabei ergab sich für das erste Szenario, dass nach dem Filtermobil keine radioaktiven Stoffe über der für die gammaspektrometrische Messungen einer Filterprobe vorgegebenen Nachweisgrenze von 0,1 Bq Cs-137 nachgewiesen werden konnten, ein elementspezifischer Nachweis mittels ICP-MS war aufgrund der guten Filterwirkung des Filtermobils ebenfalls nicht möglich. Daher wurden die Vorgaben des Forschungsvorhabens für die restlichen Messkampagnen in Abstimmung mit dem

BfS angepasst und auf die Messungen in der Gesamfortluft verzichtet, da ein Einfluss der bei diesen Zerlegetätigkeiten entstandenen Partikel auf die Partikelverteilung in der Fortluft nicht nachweisbar gewesen wäre. Als ein Ergebnis der Messungen war festzustellen, dass die Filtermobile ihre Aufgabe erfüllen, die bei Zerlegearbeiten entstehenden, möglicherweise mit radioaktiven Stoffen kontaminierten Partikel zurückzuhalten, um die Aktivität nicht in der Anlage zu verteilen. Mittels der kontinuierlichen Partikelmessungen konnten Verläufe selbst der geringen Konzentrationen einzelnen Zerlegeschritten zugeordnet werden. Die Raumluftmessungen des zweiten Szenarios ergaben Werte der Massenkonzentration im Bereich erhöhter Außenluftkonzentrationen. Die Partikelgrößenverteilung spiegelte die Partikel produzierenden konventionellen Arbeiten wider. Für die Filter, die im dritten Szenario in der Abluft von Zerlegearbeiten an gering kontaminierten Teilen bestaubt worden waren, wurden die gesammelten radioaktiven Stoffe bestimmt. Die Massen- und Aktivitätsverteilung auf den Filtern war vergleichbar.

Als weiteres Arbeitspaket wurde die rechnerische Bestimmung der Rohrfaktoren für das zur Bilanzierung bzw. Emissionsüberwachung eingesetzte Probenentnahmesystem unter Berücksichtigung der Abscheideverluste durch Sedimentation, Impaktion, Koagulation, Diffusion und Turbulenzen durchgeführt. Aufgrund der geringen Abscheideverluste erfüllt das Probenentnahmesystem theoretisch die einschlägigen Anforderungen.

Zusammenfassend wurden bei der während Rückbaumaßnahmen durchgeführten Einhausung des entsprechenden Raumbereichs und der Filterung der Abluft keine erhöhten Aktivitäten in der Abluft festgestellt. Damit waren auch in der noch einmal gefilterten Fortluft der betrachteten kerntechnischen Anlage im Rückbau keine erhöhten Aktivitäten zu erwarten. Es ergaben sich keine Hinweise auf eine erhöhte Emission von an Schwebstoffen gebundenen radioaktiven Stoffen im Vergleich zum Betrieb der Anlage.

## 1 Einleitung

Mit Schreiben des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) vom 19.04.2012 [BfS 12] haben wir den Zuschlag zur Durchführung des Forschungsvorhabens 3611S70018 „Bestimmung von Nuklidvektoren und Verteilung von Masse und Aktivität als Funktion der Aerosolpartikeldurchmesser in der Fortluft bei im Rückbau befindlichen kerntechnischen Anlagen“ sowie den Vertrag dazu erhalten. Mit dem vorliegenden Abschlussbericht werden die Ergebnisse des Forschungsvorhabens vorgelegt.

Im Rahmen des Forschungsvorhabens wurden Daten zu an Schwebstoffen gebundenen radioaktiven Stoffen im Rückbau gesammelt. Gemäß § 48 StrlSchV [StrlSchV] ist u. a. dafür zu sorgen, dass Ableitungen aus Anlagen oder Einrichtungen auf ihre Aktivität überwacht werden. Dazu werden über Probenentnahmeeinrichtungen repräsentative Teilluftströme aus der Kaminfortluft entnommen und Sammel- bzw. Überwachungseinrichtungen zugeführt. In den Entnahmesonden und den Transportleitungen werden jedoch Aerosolpartikel, abhängig von ihrer Größe, teilweise abgeschieden. Damit gelangt derjenige Teil der Radionuklide, der an diese Aerosolpartikel gebunden ist, nicht zu den Sammel- und Messeinrichtungen. Um eine Unterschätzung der Ableitungswerte zu vermeiden, werden deshalb entsprechende Korrekturfaktoren ermittelt und bei der Bilanzierung berücksichtigt. Die Ermittlung dieser Rohr- bzw. Gesamtverlustfaktoren erfolgt gemäß KTA 1503.1 [KTA 1503.1] experimentell, gemäß dem BMU-Stilllegungsleitfaden [BMU 09] in Stilllegungsverfahren schutzzielorientiert angepasst. Zur Auslegung von Probenentnahmesystemen und zur Berechnung von Abscheidegraden für nicht experimentell verwendete Partikelgrößen sind Berechnungsformeln für die Abscheideverluste in Abhängigkeit von der Partikelgröße vorhanden, z. B. im Beiblatt 3 zur DIN ISO 2889 [DIN 15]. Für möglichst realistische Korrekturfaktoren sind zusätzlich Kenntnisse über die Größenverteilung der Aerosolpartikel und über die Verteilung der Aktivität als Funktion des Aerosolpartikeldurchmessers für einzelne Radionuklide erforderlich. Daten dazu wurden bisher im Wesentlichen für den Normalbetrieb von kerntechnischen Anlagen ermittelt.

Das Ziel dieses Forschungsvorhabens war es, die Kenntnisse über Nuklidvektoren und Verteilungen der Aerosolpartikeldurchmesser bei Anlagen im Rückbau zu erweitern. Dazu wurden sowohl eine Literaturstudie als auch eine experimentelle Pilotstudie durchgeführt. Diese Pilotstudie beinhaltete insbesondere die experimentelle Be-

stimmung der Größenverteilung und der nuklidbezogenen Aktivitätsverteilungsdichte von Aerosolpartikeln in einer sich im Rückbau befindlichen kerntechnischen Anlage.

Im Arbeitspaket 1 wurde gemäß dem o. g. Vertrag und dem dazugehörigen Arbeitsprogramm der relevante Stand von Wissenschaft und Technik aufgearbeitet. Dazu gehörten eine Literaturrecherche und die Zusammenstellung wichtiger Untersuchungen und Ergebnisse von Arbeiten in diesem Aufgabenfeld (Kapitel 2).

Nach einer Erklärung von im Abschlussbericht verwendeten Begriffen (Kap. 2.1) sind im Kapitel 2.2 verschiedene Arbeitsmethoden beim Rückbau aufgeführt. Im Kapitel 2.3 wird ein Überblick über die Größenverteilung von Aerosolpartikeln u. a. auch für Arbeitsmethoden aus dem konventionellen Bereich gegeben. Anschließend werden im Kapitel 2.4 vor allem Veröffentlichungen vorgestellt, die Methoden zur Vorfiltrierung und Filterwirkung zum Inhalt haben. Ein Überblick über die im Rückbau auftretenden Nuklidvektoren wird im Kapitel 2.5 gegeben.

Im Arbeitspaket 2 sollten die Anzahl- bzw. Massenverteilung über dem Aerosolpartikeldurchmesser in der Kaminfortluft und an der Mündung der Teilabluftstränge in den Fortluftkamin für die im Arbeitspaket 1 ermittelten und hinsichtlich der Freisetzung von Aktivität relevanten Rückbauszenarien bestimmt werden. Die entsprechenden Messungen und chemischen Analysen dazu wurden vom Fraunhofer-Institut für Toxikologie und Experimentelle Medizin (FhG-ITEM) durchgeführt. Da durch die Filterung der Abluft aus Bereichen, in denen Rückbautätigkeiten stattfanden, nur eine sehr geringe Partikelkonzentration zusätzlich zu der ohnehin vorliegenden Partikelkonzentration vorlag, wurde direkt in der Abluft nach einem Filtermobil gemessen, später in Abstimmung mit dem Auftraggeber noch in der Luft eines Raumes, in dem konventionelle Rückbautätigkeiten stattfanden, und in der ungefilterten Abluft bei Zerlegearbeiten an gering oberflächenkontaminierten Bauteilen. Die Ergebnisse der Anzahl- und Massenkonzentrationen sind in Kapitel 3.1 dargestellt. Die Resultate der chemischen Analyse sowie der im Labor des TÜV SÜD durchgeführten Aktivitätsmessungen folgen in Kapitel 3.2. Aufgrund der geringen Partikelkonzentration in der Raumluft nach einem Filtermobil wurde in Abstimmung mit dem BfS auf eine Beprobung der ein weiteres Mal gefilterten Fortluft verzichtet.

Unabhängig davon wurde im Kapitel 4 eine rechnerische Bestimmung des Rohrfaktors des in der betrachteten kerntechnischen Anlage zur Fortluftüberwachung verwendeten Probenentnahmesystems durchgeführt, die zeigt, dass dieses die einschlägigen Anforderungen bezüglich des Übertragungsgrades erfüllt.

## 2 Ergebnisse der Literaturrecherche

### 2.1 Begriffe

#### *Aerodynamischer Partikeldurchmesser*

Der Durchmesser einer Kugel mit der Dichte  $1 \text{ g/cm}^3$  und der gleichen Sinkgeschwindigkeit in ruhender Luft wie die Partikel unter den herrschenden Bedingungen bezüglich Temperatur, Druck und relativer Luftfeuchte (für Partikel mit einem größeren aerodynamischen Durchmesser als  $0,5 \text{ }\mu\text{m}$ ) [DIN 93].

#### *Alveolengängige Fraktion*

Der Massenanteil der eingeatmeten Partikel, der bis in die nicht-zilierten Luftwege vordringt [DIN 93].

#### *AMAD (activity median aerodynamic diameter)*

Aerodynamischer Durchmesser von Aerosolpartikeln, der dem Medianwert der Verteilungsdichte der Aktivität entspricht. Wird verwendet, wenn die Deposition hauptsächlich von inerter Ablagerung und Sedimentation abhängig ist, typischerweise wenn der AMAD größer ist als etwa  $0,5 \text{ }\mu\text{m}$  [ICRP 103].

#### *Dekontaminationsfaktor (DF)*

Der Dekontaminationsfaktor eines Filters für einen bestimmten abzuscheidenden Stoff ist der Quotient aus der Konzentration dieses Stoffes in der Filterzuluft und der Konzentration dieses Stoffes in der Filterabluft [KTA 3601].

#### *Einatembare Fraktion*

Der Massenanteil aller Schwebstoffe, der durch Mund und Nase eingeatmet wird [DIN 93].

#### *HEPA-Filter (High Efficiency Particulate Air Filter)*

Schwebstofffilter mit bestimmten Abscheidegraden, in Europa definiert nach DIN EN 1822-1 [DIN 11] (z. B. Filterklasse H13 mit einem integralen Abscheidegrad von mehr als 99,95 %). In USA ist ein HEPA-Filter nach dem Standard DOE-STD-3020-97 [DOE 97] definiert als Filter mit einem Abscheidegrad von mindestens 99,97 % für

Aerosolpartikel mit 0,3 µm Durchmesser, also vergleichbar mit H13 nach DIN EN 1822.

### *MPPS*

Partikelgröße im Abscheidegradminimum (most penetrating particle size) [DIN 11].

### *Thorakale Fraktion*

Der Massenanteil der eingeatmeten Partikel, der über den Kehlkopf hinaus vordringt [DIN 93].

### *ULPA-Filter (Ultra Low Penetration Air Filter)*

Hochleistungs-Schwebstofffilter mit bestimmten Abscheidegraden, in Europa definiert nach DIN EN 1822-1 [DIN 11] (z. B. Filterklasse U15 mit einem integralen Abscheidegrad von mehr als 99,9995 %).

## **2.2 Arbeitsmethoden beim Rückbau**

Im Rahmen der Stilllegungsplanung werden die Anlagenteile im Kontrollbereich und ihr radioaktives Inventar erfasst, die Abfolge des Abbaus geplant und über die einzusetzenden Techniken für Dekontamination und Zerlegung der Anlagenteile entschieden. Eine Zusammenstellung von Dekontaminationsmethoden im Rahmen von Rückbauarbeiten wird in einem Bericht der Nuclear Energy Agency (OECD/NEA) [NEA 99] gegeben. Daraus sind einige der folgenden Beispiele entnommen. Zusätzlich wurden im Wesentlichen Beiträge aus Tagungsbänden der zweijährlich stattfindenden KONTEC-Symposiumsreihe „Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle“ ausgewertet. Die folgenden Beispiele sind aufgeteilt in Dekontaminations- bzw. Zerlegungsmethoden für Komponenten (Metall) und für Gebäude (Beton). Neben der Effizienz einer Dekontaminationsmethode, ihren Kosten, dem anfallenden Abfall und der Automatisierbarkeit ist ein wichtiges Kriterium bei der Dekontamination von Komponenten bzw. von Gebäuden die Sicherheit des Personals bzw. der Bevölkerung, d. h. es ist darauf zu achten, dass es nicht zu einer Gefährdung von Personen u. a. durch Kontamination oder Inhalation von an Schwebstoffen gebundenen radioaktiven Stoffen kommt. Das Gefahrenpotential hängt mit der Schwebstoffproduktion des entsprechenden Verfahrens zusammen, wobei im Folgenden dazu nur qualitative Angaben angegeben werden. Detailliertere Messungen

der Staubproduktion gibt es aus dem konventionellen Bereich, wie im Kapitel 2.3 dargelegt wird.

Gemäß dem Bericht [NEA 99] gibt es drei Hauptgründe für die Anwendung von Dekontaminationsmethoden. Zum einen kann es wichtig sein, Kontaminationen von Komponenten und Systemen zu entfernen, um in der Anlage die Ortsdosisleistung zu reduzieren und damit eine bessere Zugänglichkeit zum direkten Abbau von Komponenten und Systemen zu ermöglichen und auf fernbedienbaren Abbau verzichten zu können. Ein zweiter Grund ist die Minimierung der Kontaminationsverschleppung während der Abbautätigkeiten, besonders im Umgang mit Systemen, die hohe Aktivitäten und Aktiniden enthalten. Der dritte dort genannte Grund ist die Schaffung einer Möglichkeit, Komponenten oder Gebäude nach der Dekontamination einer einfacheren Abfallbehandlung und -entsorgung zuzuführen, was zu einer Kostenreduktion führen kann.

### **2.2.1 Dekontamination und Zerlegung von Komponenten**

#### *Dekontamination*

Ganz allgemein wird zwischen chemischen und physikalischen (mechanischen) Methoden zur Dekontamination von Metallen unterschieden.

Bei der chemischen Dekontamination werden konzentrierte oder verdünnte chemische Reagenzien in Kontakt mit dem kontaminierten Gegenstand verwendet, um die kontaminierte Schicht über dem Metall und eventuell auch einen Teil des Metalls aufzulösen. Der Prozess wird in den meisten Fällen so lange durchgeführt bis der gewünschte Dekontaminationsgrad erreicht ist. Die chemische Dekontamination ist mit relativ geringen Luftkontaminationen verbunden, da sie meist in geschlossenen Systemen oder in Tanks erfolgt. Ähnliches gilt für die Reinigung im Ultraschallbad.

Die elektrochemische Dekontamination ist im Prinzip eine chemische Dekontamination mit der Unterstützung durch ein elektrisches Feld, die deshalb nur bei leitenden Oberflächen durchgeführt werden kann. Die Schwebstoffproduktion ist gering.

Bei der mechanischen Dekontamination handelt es sich um Methoden zur Oberflächenreinigung (Kehren, Wischen, Bürsten) und zum Oberflächenabtrag (Reinigungsstrahlen, Bohren, Abkratzen, Abschlagen). Diese Methoden sind mit teilweise großer Staubproduktion verbunden, so dass üblicherweise Maßnahmen angewandt werden, um die arbeitenden Personen vor dem Staub zu schützen und eine Verbreitung der Kontamination zu verhindern.

Trockenes oder nasses Reinigungsstrahlen weist hohe Dekontaminationsfaktoren auf. Dabei wird mit einem Strahl aus Druckluft und Strahlmittel (z. B. Stahl, Mineralien, Glaskugeln, Trockeneis u. a.), beim Nassstrahlen zusätzlich mit Wasser, auf das Strahlgut eingewirkt, um die oberen Schichten abzutragen. Nassstrahlen erzeugt eine aufwendiger zu behandelnde Mischung aus Staub und Wassertropfen. Deshalb werden Nassstrahlverfahren innerhalb eines dichten Edelstahlgehäuses, in dem über einen Absolutfilter Unterdruck erzeugt wird, durchgeführt, so dass Luftkontaminationen außerhalb des Gehäuses nicht auftreten. Beim trockenen Reinigungsstrahlen ist ebenfalls stark auf Maßnahmen zur Staubkontrolle zu achten bzw. es sind Filtersysteme zu verwenden.

Das Wasserabrasivsuspensionsschneiden (WASS), ein Verfahren, bei dem mit einem scharfen Wasserstrahl mit einem Durchmesser von unter einem Millimeter, dem hartkantiger Sand beigemischt ist, und über 1000 bar Druck auf das zu zerlegende Bauteil gestrahlt wird, kam z. B. in Würgassen beim Zerlegen des Reaktordruckgefäßes zum Einsatz [Duw 11]. Das WASS-Verfahren wirkte sich demnach sehr positiv, d. h. reduzierend auf die Aerosolpartikelentwicklung aus, wobei keine detaillierten Werte dazu angegeben wurden.

### *Zerlegung*

Zur Zerlegung des RDB-Druckbehälters des Kernkraftwerks Stade wurde das Brennschneiden angewandt. In der Veröffentlichung [Sta 11] wird das Verfahren beschrieben. Die Zerlegung des bis zu 200 mm dickwandigen Druckbehälterunterteils erfolgte mittels eines manipulatorgeführten Starkschneidbrenners. Als Schneidgas wurde ein Propan-Sauerstoff-Gemisch eingesetzt. Die Absaugung der Schneidgase wurde durch eine Zusatzlüftungsanlage und die daran angeschlossene Abschirmplatte gewährleistet. Die Abschirmplatte mit Abschirmzylinder war so ausgeführt, dass die

Schnitte sowie das Greifen und Sichern der abgetrennten Teile ohne unzulässige Ausbreitung der Brenngase in den Zerlegeraum durchgeführt werden konnten. Durch die geplante Schneidstrategie konnte die Zerlegung und Verpackung des RDB-Unterteils von oben nach unten durchgeführt werden, ohne dass es zu einem signifikanten Kontaminationsaustrag in den Zerlegeraum kam. Durch den Einsatz einer abreinigbaren Filterstufe in der Zusatzlüftungsanlage konnten alle Brennarbeiten unterbrechungsfrei ohne Filterwechsel durchgeführt werden. Das heißt, auch hier wurde die Entstehung und Verbreitung von Schwebstoffen soweit als möglich verhindert.

Ein weiteres thermisches Schneidverfahren ist das Hot-Wire-Plasmaschneiden, dessen folgende Beschreibung aus [Has 11] und [Pet 13] entnommen ist. Beim konventionellen Plasmaschneiden kommt die zum Trennen notwendige thermische Energie aus einem Lichtbogen, der zwischen einer im Plasmabrenner integrierten Kathode und dem zu schneidenden Werkstück (Anode) brennt. Da der Prozessstrom hierbei über das Werkstück fließt, setzt diese Verfahrensvariante eine hinreichende elektrische Leitfähigkeit des Werkstückes voraus. Beim Hot-Wire-Plasmaschneiden handelt es sich um eine Modifikation des konventionellen Plasmaschneidens mit übertragbarem Lichtbogen, bei welcher der Lichtbogen zwischen einer Kathode und einer abschmelzenden Anode brennt. Als Anode wird dabei ein Draht verwendet, der über eine konventionelle Schweißdrahtfördereinrichtung kontinuierlich zugeführt und im Prozess „verzehrt“ wird. Da bei dem Hot-Wire-Plasmaschneiden der Lichtbogen nicht zwischen Kathode und dem zu schneidenden Werkstück brennt, ist es mit dem Verfahren im Gegensatz zum konventionellen Plasmaschneiden möglich, Werkstoffe zu trennen, die nicht elektrisch leitfähig sind. Weiterhin ist es durch die Tatsache, dass der Lichtbogen kontinuierlich brennt, auch möglich komplexe Geometrien, wie z. B. Rohrbündel oder Plattenpakete, zu schneiden, die mit konventionellen Verfahren nicht oder nur mit stark erhöhtem Aufwand zu trennen sind. Da insbesondere beim Hot-Wire-Plasmaschneiden mit Pulverunterstützung relativ starke luftgetragene Emissionen auftreten, war es gemäß [Has 11] notwendig, eine Vorrichtung zu entwickeln, welche die nach oben aufsteigenden Emissionen, die nicht von einer Tischabsaugereinrichtung erfasst wurden, aufzufangen und einem Filter zuzuführen. Die Vorrichtung ist über einen Absaugschlauch mit einem leistungsstarken Industriestaubsauger verbunden und führt zu einer deutlichen Reduzierung der luftgetragenen Emissionen.

Ein in einem aktuellen Forschungsprojekt untersuchtes Verfahren zur Zerlegung von Bauteilen ist die Verwendung von Schneidladungen [Jak 13]. Diese werden typischerweise zum Trennen von Bauteilen aus Stahl verwendet, z. B. um Brücken abzureißen. Im Rückbau kerntechnischer Anlagen konnte sich dieses Verfahren bisher nicht etablieren. Es wurden die Staub-, Aerosol- und Gasentstehung und der Einfluss auf die umgebenden Restbetriebseinrichtungen und Gebäudestrukturen beim Einsatz von Schneidladungen untersucht. Jakob *et al* verglichen die manuelle Zerlegung von Bauteilen mit einem Trennschleifer mit der Verwendung von Schneidladungen. Unter anderem auf Grund der Erzeugung von feinen Stäuben und des größeren Risikos von Kontaminationsverschleppungen kommen sie zu dem Schluss, dass der Einsatz von Schneidladungen im kerntechnischen Umfeld als kritisch zu bewerten ist. Im Kapitel 2.3 werden die Ergebnisse zur Partikelgrößenverteilung aus dem Tagungsbeitrag [Jak 13] diskutiert.

### **2.2.2 Dekontamination von Gebäuden**

Für die Dekontamination von Gebäuden werden hauptsächlich Methoden angewendet, bei denen eine neue Oberfläche einer Wand bzw. des Bodens geschaffen wird. Die entfernte Oberflächenschicht muss gesammelt, behandelt und geeignet entsorgt werden. Die Methoden beinhalten reinigende Verfahren, wie z. B. Bürsten, Waschen, Absaugen, Hochdruckreinigen und Scheuern, und darüber hinaus abtragende Verfahren, wie z. B. Schleifen, Abschlagen und Bohren. Weitere hier nicht näher betrachtete Verfahren sind z. B. die Verwendung von abziehbaren Beschichtungen, hochfrequente Mikrowellen und Induktionserhitzen. Diese Methoden produzieren Staub bzw. Aerosolpartikel und erfordern deshalb Maßnahmen, um das Personal vor Inhalation zu schützen und eine Verschleppung zu vermeiden.

Ein Beispiel für eine Dekontaminationsmethode und die dabei angewandten Maßnahmen der Schwebstoffreduzierung zeigt ein aktuelles, BMBF-gefördertes Projekt unter Beteiligung des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT) und des Kernkraftwerks Obrigheim (KWO), das sich mit der Optimierung des Abtragverhaltens von Bodenfräsen [Hen 13] beschäftigt. Hier besteht noch Forschungsbedarf vor allem bezüglich der Steigerung des flächenbezogenen Abtrages. Da gemäß der Veröffentlichung [Hen 13] die Dekontaminationsbeschichtung lokal bis zu 4 mm dick ist, soll der Abtrag, der mit den üblichen mit Hartmetalllamellen bestückten Bodenfräsen bis

zu 3 mm beträgt, mit Hilfe von Diamantscheiben auf 10 mm Tiefe erhöht werden. Auf die Versuche zum Abtragverhalten wird hier nicht näher eingegangen. Ein wichtiger Punkt für die ersten Praxisversuche im KWO ist jedoch auch das kontrollierte Absaugen der kontaminierten Bestandteile. Zusätzlich soll eine Optimierung der verfahrenstechnischen Kette bei der Behandlung und Konditionierung der anfallenden kontaminierten Staubpartikel erfolgen, mit dem Ziel, den kontaminierten Staub in einem Zyklonabscheider vom Luftvolumenstrom zu separieren. Der Luftvolumenstrom soll anschließend durch eine geeignete Filteranlage von den verbleibenden Aerosolpartikeln gereinigt werden.

Eine weitere Möglichkeit, die Staubentwicklung beim Einsatz von Fräsen zu reduzieren, wird in der Veröffentlichung [Ges 11] beschrieben. Dort erfolgt am Boden der Abtrag von Dekontbeschichtung, Estrich und Beton mit Bodenfräsen. Kleinflächen und Randbereiche an Wänden und Decken werden mit Handgeräten bearbeitet, die wie die Bodenfräse mit einer werkseitigen Absaugung bzw. einer Vor-Ort-Absaugung versehen sind, die das abgetragene Material relativ staubarm direkt in ein Fass fördern.

Eine möglicherweise zukünftig anwendbare Methode, fernbedient große Flächen von Betonstrukturen zu dekontaminieren und darüber hinaus chemisch-toxische Komponenten in Oberflächenstrukturen zu beseitigen, ist der Abtrag der Oberfläche durch Lasereinstrahlung. Eine Beschreibung des Verfahrens wird in dem Tagungsbeitrag [Ant 13] gegeben. Mit Hilfe der Laserdekontamination von radioaktiv kontaminierten Betonoberflächen erfolgt eine prinzipiell staubfreie Reinigung, indem die kontaminierte Schicht aufgeschmolzen und die Schmelze abgesaugt wird. Die geschmolzenen Partikel erstarren und liegen im Absaugkanal in verglaster Form vor, die die radioaktive Kontamination einschließen. Die Flächenabtragleistung des Systems liegt bei ca.  $2,3 \text{ m}^2/\text{h}$ . Bei Versuchen unter realistischen Bedingungen mit verschiedenen Betonsorten mit Zuschlagstoffen von 4 mm bis 16 mm Korngröße konnten Abtragtiefen von 1 bis 5 mm bei einer kontinuierlichen Laserleistung von 10 kW realisiert werden. Geforscht wird auch daran, wie in [Ant 13] beschrieben, wie auch chemisch-toxische Oberflächenbeschichtungen, z. B. mit polychlorierten Biphenylen (PCB) sowie kanzerogenen chlorierten Kohlenwasserstoffen, die durch Schutzlacke auf Betonstrukturen aufgetragen worden sind, mit Lasern dekontaminiert werden können, indem bei Temperaturen oberhalb von  $1200 \text{ }^\circ\text{C}$  im Laserspot die chemisch-toxischen Kompo-

menten thermisch zerstört werden. Eine Absaugvorrichtung verwirbelt die warmen Prozessgase mit der Umgebungsluft, anschließend wird das Rauchgas über einen Gas-Feinstaub-Kombifilter geführt. Es wird von einer Abtragleistung von ca.  $13 \text{ m}^2/\text{h}$  bei einer kontinuierlichen Laserleistung von 10 kW ausgegangen. Als ein Vorteil der Methode wird genannt, dass das Arbeiten ohne Staubproduktion stattfinden kann, wodurch die Gefahr der Kontaminationsverschleppung und der Inkorporation reduziert wird.

Als Beispiel für die verschiedenen bei der Dekontamination von Gebäuden angewandten Methoden sei das Vorgehen im Versuchsatomkraftwerk Kahl (VAK) genannt, wo der Oberflächenabtrag oberflächennaher Kontamination ( $< 1 \text{ cm}$ ) sowie lokaler „Hot Spots“ mittels Nadler (pneumatisch), Stahlkiesstrahlen, Schleifen (pneumatisch) und Fräsen (Wand, Boden) erfolgte. Der Tiefenabtrag eingedrungener Kontamination oder Aktivierung ( $> 5 \text{ cm}$ ) an tiefer gelegenen Störstellen, in Rissen, Rohrdurchführungen, bautechnischen Fugen, engen Räumen und Schächten erfolgte mittels handgeführter Pressluftschlämmer, Kernbohrung, Kleinbagger mit Meißel und in Sonderfällen mit einer Seilsäge [Rud 11].

Für die Dekontamination von Beton mit reduzierter Staubentwicklung, sind Abnadler, Fräsen u. a. oft in ein fernbedientes Gerät eingebunden, wo Staub und gröberes Material sofort an der Werkzeugoberfläche aufgefangen werden. Handgeräte haben Absaugungen mit bis zu  $500 \text{ m}^3/\text{h}$  Durchsatz, die mit einem Absolutfilter am Auslass versehen sind.

Größere Fräsmaschinen sind an Absaugungen mit einem Durchsatz von bis zu  $2500 \text{ m}^3/\text{h}$  angebunden. Sie haben einen Zyklon, um größere Betonpartikel abzutrennen, ein Filtersystem mit abreinigbaren Filtern und Absolutfiltern sowie eine Pumpe. Die abreinigbaren Filtersysteme arbeiten nach einer Methode, bei der das Abfallfass unter kontrollierten Bedingungen gefüllt, verschlossen und ausgewechselt werden kann (kontaminationsfreier Austausch) [NEA 99].

An diesen Beispielen für Dekontaminations- bzw. Rückbaumethoden wird deutlich, dass von den verschiedensten Szenarien für die Staub- bzw. Schwebstoffproduktion ausgegangen werden muss. Dies betrifft sowohl die entstehende Staubmenge als

auch die Partikelgrößen. Im nächsten Kapitel werden die Daten, die hierzu aus dem konventionellen Bereich vorliegen, betrachtet.

### 2.3 Größenverteilung von Aerosolpartikeln

Im Folgenden wird der Frage nachgegangen, welche Erkenntnisse aus dem konventionellen Bereich zur Größenverteilung von Aerosolpartikeln für verschiedene Arbeitsmethoden vorliegen. Gemäß einer Veröffentlichung der Bundesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin [BAUA 01] sind Beispiele für Industriezweige, bei denen die Staubexposition an den Arbeitsplätzen vorwiegend durch den Umgang mit staubenden oder staubförmigen Materialien hervorgerufen wird die Bauindustrie, Bergbau, Naturstein-, Kies-, Sand-, Kalk-, Gips-Industrie, keramische und Glas-Industrie sowie Gießereiindustrie. Demgegenüber sind Industriezweige, bei denen die Stäube häufig oder überwiegend erst durch den Umgang entstehen die Holz- und Kunststoff-Industrie sowie Handwerk, Textilindustrie, Papierindustrie und die Tätigkeiten Mahlen, mechanische Bearbeitung und Abbrucharbeiten. In den meisten Bereichen und Branchen gibt es einen mehr oder weniger großen Anteil von Tätigkeiten und Arbeitsbereichen, wo beide Mechanismen der Staubemission parallel zur Wirkung kommen. Mit dem allgemeinen Staubgrenzwert [TRGS 900] soll unspezifischen Wirkungen auf die Atmungsorgane, die alle unlöslichen Stäube zeigen können, insbesondere verschiedenen Formen der Bronchitis, vorgebeugt werden [BAUA 01].

Dieser Arbeitsplatzgrenzwert gilt für die einatembare (E-Staub) und die alveolengängige (A-Staub) Fraktion des Staubes (vgl. Kapitel 2.1). Der allgemeine Staubgrenzwert für die einatembare Fraktion ist  $10 \text{ mg/m}^3$ , für die alveolengängige Fraktion  $3 \text{ mg/m}^3$ . Die Probenentnahme der einatembaren Fraktion muss folgender Beziehung gehorchen (Solltrennkurve für Probenentnahmegeräte): Der Prozentsatz  $E_I$  an Schwebstoffen mit dem aerodynamischen Durchmesser  $D$  in Mikrometern ( $D < 100 \mu\text{m}$ ), die zu sammeln sind, ergibt sich aus der Formel  $E_I = 50 \cdot (1 + \exp(-0,06 \cdot D))$ . Die Probenentnahme der alveolengängigen Fraktion muss folgender Beziehung gehorchen: Der Prozentsatz  $E_R$  der einatembaren Fraktion, der mit einem aerodynamischen Durchmesser  $D$  in Mikrometern zu sammeln ist, ergibt sich aus einer kumulierten Lognormalverteilung mit einem Medianwert von  $4,25 \mu\text{m}$  und einer geometrischen Standardabweichung von 1,5 (Abb. 1). Im konventionellen Bereich beziehen sich die Anforderungen auf die Einhaltung der o. g. Grenzwerte für diese beiden

Fraktionen, so dass detailliertere Angaben, wie z. B. Verteilungen, von untergeordneter Bedeutung sind. Der allgemeine Staubgrenzwert wird als Schichtmittelwert festgelegt und ist anzuwenden für schwerlösliche bzw. unlösliche Stäube, die nicht anderweitig reguliert sind. Er darf nicht angewendet werden auf Stäube, bei denen erbgutverändernde, krebserzeugende, fibrogene, allergisierende oder sonstige toxische Wirkungen zu erwarten sind. Er gilt auch nicht für lösliche Stäube, ultrafeine und grobdisperse Partikelfraktionen sowie Lackaerosole. So muss z. B. bei Tätigkeiten mit asbesthaltigen Materialien die Atemluft an den Arbeitsplätzen der Beschäftigten, soweit dies nach dem Stand der Technik möglich ist, frei von Asbestfasern sein. Bei Überschreiten einer Asbestfaserkonzentration von  $10.000 \text{ m}^{-3}$  sind Schutzmaßnahmen anzuwenden [TGRS 517]. D. h. bei Asbestfasern ist der Arbeitsplatzgrenzwert im Unterschied zum Staub als Anzahlkonzentration festgelegt.

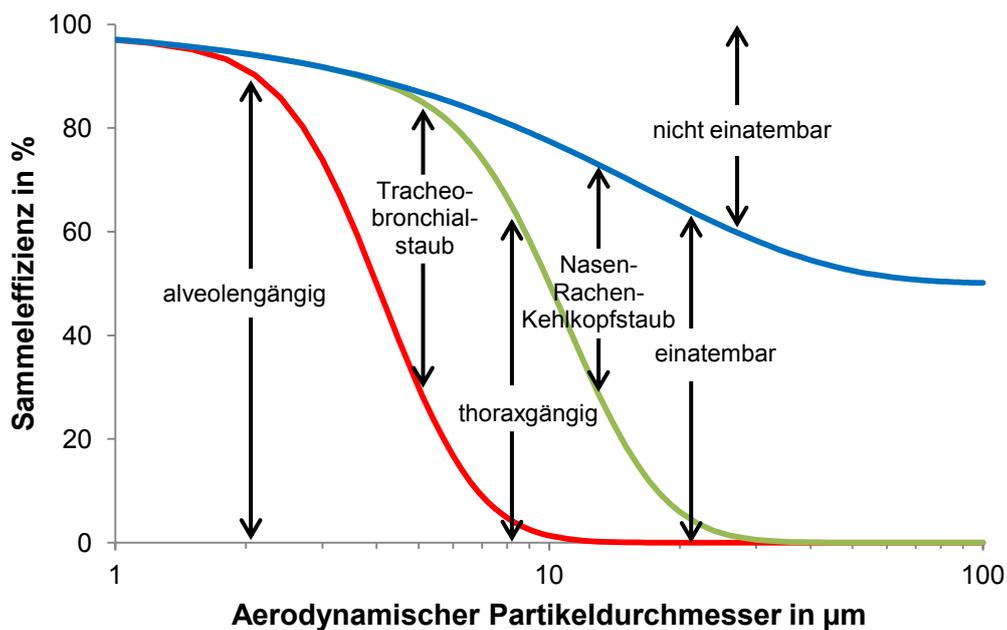


Abb. 1: Einatembare, thorakale und alveolengängige Fraktion nach DIN EN 481 [DIN 93].

In der Begründung für den allgemeinen Staubgrenzwert der Bundesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin [BAUA 01] können zahlreiche Angaben zu gemessenen Werten für die einatembare und die alveolengängige Fraktion gefunden werden.

Es werden darin vorwiegend neuere Messergebnisse und so weit möglich primär solche, die mit personengetragenen Messgeräten gewonnen wurden, dargestellt. Sie

beinhalten z. T. aber auch stationäre und personenbezogene (-getragene) Messergebnisse. Ausgewertet wurden für das Beispiel der Bauwirtschaft 298 Messungen (A-Staub und E-Staub jeweils 149) des Jahres 1998. Es ergeben sich über alle Arbeitsbereiche betrachtet nachstehende Ergebnisse.

	A-Staub in mg/m <sup>3</sup>	E-Staub in mg/m <sup>3</sup>
50-%-Wert	2,0	12,2
80-%-Wert	8,5	91,9
90-%-Wert	14,5	124,8

Tab. 1: Messwerte für einatembare und alveolengängige Fraktion von Stäuben in der Bauwirtschaft [BAUA 01]; keine Schichtmittelwerte, da es sich vorwiegend um nichtstationäre Arbeitsplätze handelt.

Diese Daten gibt es aufgeschlüsselt für den Tunnelbau, den Trockenbau und für Abbrucharbeiten sowie für einige weitere Industrien. Eine Aufschlüsselung, die über diese grobe Aufteilung nach Abb. 1 hinausgeht, liegt für diese Arbeiten nicht vor und ist für den Staubgrenzwert nicht erforderlich.

Angaben zu der Staubentwicklung wurden in Thüringen bei Arbeiten an Backen- und Prallbrechern gesammelt [Mül 06]. Die Untersuchung ergab, dass am Brecher davon auszugehen ist, dass der Grenzwert von 3 mg/m<sup>3</sup> für die alveolengängige Fraktion, der Grenzwert von 10 mg/m<sup>3</sup> für die einatembare Fraktion und der früher geltende Grenzwert von 0,15 mg/m<sup>3</sup> für Quarzstaub nicht eingehalten werden, in den mit gefilterter Luft klimatisierten Fahrerinnen von Baggern und Radladern dagegen schon.

Insgesamt ist festzustellen, dass die gefundenen Untersuchungsergebnisse aus dem konventionellen Bereich zielführend für die Verbesserung des dort geforderten Arbeitsplatzschutzes sind, sie jedoch für die Fragen des Forschungsvorhabens keine wesentlichen Erkenntnisse bringen. Detaillierte Aerosolgrößenverteilungen liegen nicht vor, außerdem ist eine mögliche Verteilung von Aktivität auf den Stäuben nicht bekannt.

Darüber hinaus liegen einige Daten zur Aerosolpartikelverteilung in kerntechnischen Anlagen vor, darunter auch Daten aus dem Rückbau aus dem Artikel [Dor 95]. Die

Autoren haben Daten aus 52 Veröffentlichungen aus den verschiedensten Bereichen des Kernbrennstoffzyklus gesammelt und die dort gemessenen AMADs und geometrischen Standardabweichungen  $\sigma_g$  angegeben. In Tab. 2 werden einige Daten daraus zitiert (weitere Angaben in [Dor 95]), die mehr oder weniger auch Rückbautätigkeiten zugeordnet werden können.

Arbeitsstätte	Prozess	Radionuklide	AMAD in $\mu\text{m}$	$\sigma_g$
<i>Kernkraftwerke</i>				
Siedewasserreaktor	Sandstrahlen der Turbinen [Tun 91]	Co-60	3,5	2,3
		I-131	2,8	
		Cs-137, Ba-140, Ca-140, Ce-141	3–4	
Siedewasserreaktor	Sandstrahlen der Turbinen	Co-60	3,4	2,3
		I-131	2,9	2,4
		Cs-137	3,0	2,3
		Ba-140	3,1	2,3
		La-140	3,1	2,3
		Ce-141	3,1	2,4
	Lichtbogenschneiden eines Abwasserverdampfers	Co-60	3,2	1,9
		Mn-54	3,1	1,9
		Cs-134	3,2; 0,29	1,9; 2,2
	Schleifen von Wärmetau- scherrohren	Cs-137	3,2; 0,28	1,9; 2,2
		Cr-51	4,1	2,0
		Mn-54	4,2	2,0
		Co-58	3,9	1,9
Experiment- Siedewasserreaktor	Stilllegung: Sägen von Stahlrohren mit -Plasmabrenner	Co-60	4,2	2,0
		Co-60	3,7	2,0
	-Bandsäge	2		
	-Gattersäge	7	1,8	
	Zerlegung des Reaktordruck- behälters mit Lichtbogen- schneiden	6		
	Aktiniden, Spalt- und Aktivierungsprodukte	0,45	1,7	
<i>Forschungszentren</i>				
Forschungseinrichtung	Dekontaminationsbereich	Alpha	3,5	4,3
		Beta	5,0	3,4
Forschungsinstitut	Dekontamination heißer Zellen	Alpha	6,0–6,4	1,6–1,9
		Beta	2,5–11	1,7–3,2
	Zerlegung eines Abflussroh- res	Beta	9,0	1,7

Tab. 2: Beispielhafte Arbeitsplätze und Prozesse mit dabei gemessenen Aerosolpartikelverteilungen [Dor 95]. Die einzelnen Referenzen sind in [Dor 95] angegeben.

Die Veröffentlichung gibt insgesamt als typischen Wert für den AMAD 5  $\mu\text{m}$  und als geometrische Standardabweichung 2,5 an. Der Wert von 5  $\mu\text{m}$  wurde als Vorgabe-

wert in die ICRP Veröffentlichungen 68 [ICRP 68] und 78 [ICRP 78] übernommen und ist für die Berechnungen der beruflichen Strahlenexposition repräsentativer für Schwebstoffe an Arbeitsplätzen als der frühere Vorgabewert von 1  $\mu\text{m}$ .

In der Veröffentlichung [Tun 91] wird die Vorgehensweise für den Fall „Sandstrahlen der Turbinen“ näher beschrieben. Das Sandstrahlen der Turbinenschaufeln fand während der Revision im KKW Chin Shan in Taiwan in einer geschlossenen Einhausung statt. Die Arbeiter trugen Atemschutz mit Fremdbelüftung, um das Risiko einer Inhalation von Partikeln zu minimieren. Um bei einer durch einen Unfall verursachten Inhalation die Dosis abschätzen zu können, sind Informationen u. a. über die Partikelgröße erforderlich. Zu diesem Zweck wurden die Aerosolpartikel mit einem achtstufigen Anderson-Impaktor zwischen 0,4  $\mu\text{m}$  und 9  $\mu\text{m}$  gesammelt. Die Messung mit einem Germaniumdetektor ergab die in Tab. 2 aufgeführten Nuklide und die angegebenen AMADs. Der AMAD des volatilen I-131 ist kleiner als der AMAD von Aerosolpartikeln, an die nicht volatile Radionuklide angelagert sind [Tun 91].

Eine weitere Information über Partikelgrößenverteilungen enthält der Tagungsbeitrag [Jak 13]. Dort wurde eine nicht-kontaminierte Edelstahlplatte (500×220×10 mm<sup>3</sup>) mit einem Trennschleifer zerlegt und u. a. die Gesamtstaubentstehung und die Partikelgrößenverteilung gemessen. Bei der Schnittlänge von 500 mm entstanden 65 g ausgetriebene Werkstoffmasse, wovon ca. 3 g freigesetzte luftgetragene Partikel waren. Der emittierte Staub wurde hinsichtlich der Partikelgrößenverteilung analysiert. Ab 5  $\mu\text{m}$  nimmt die Partikelanzahl stark ab. Die Massenanteile der einzelnen Partikelgrößen unterscheiden sich dagegen nur um ca. 1,5 Größenordnungen (Abb. 2 und Abb. 3).

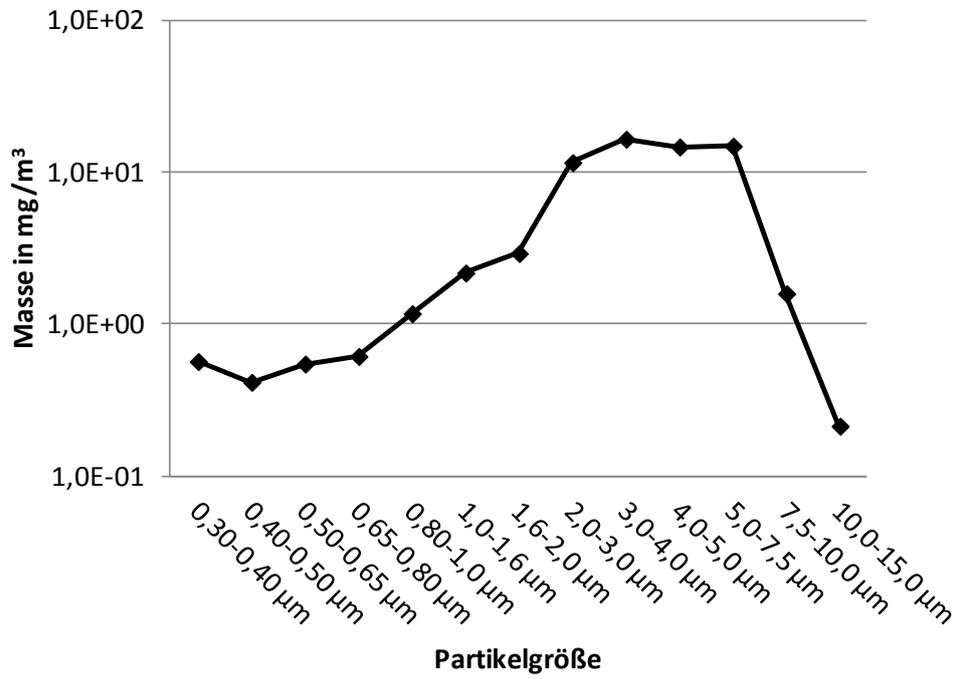


Abb. 2: Massenverteilung beim Trennen mit einem Trennschleifer (nach [Jak 13]).

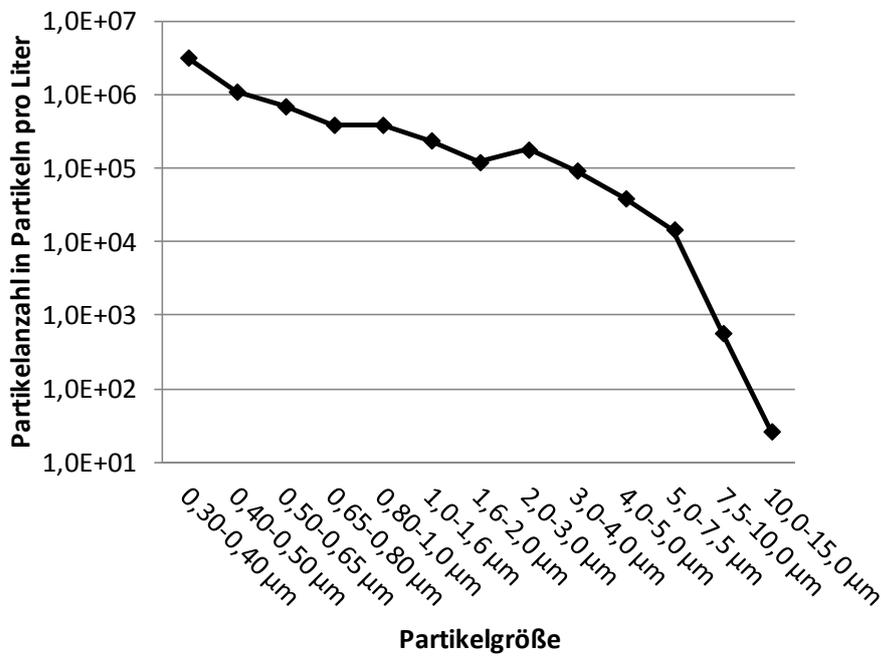


Abb. 3: Partikelgrößenverteilung beim Trennen mit einem Trennschleifer [Jak 13].

Zusammenfassend ist festzustellen, dass die Daten, die aus dem konventionellen Bereich gefunden wurden, nicht ausreichend sind, um zur Bestimmung von Verlustfaktoren bei der Probenentnahme in kerntechnischen Anlagen hilfreich zu sein. Interessanter in diesem Zusammenhang sind die Daten zur Größenverteilung von Schwebstoffen, wie sie in kerntechnischen Anlagen selbst gesammelt wurden. In der Veröffentlichung [Dor 95] werden einige Beispiele dafür gegeben. Allerdings sind diese Größenverteilungen beim Transport durch die Anlage Veränderungen unterworfen, so dass nicht davon ausgegangen werden kann, dass diese in Abluftkanälen oder im Fortluftkamin in der gleichen Form auftreten. Die erste Veränderung des Aerosolpartikelspektrums wird in vielen Fällen unmittelbar nach der Entstehung durch eine vorhandene Schwebstofffilterung verursacht. Darauf wird im nächsten Kapitel näher eingegangen.

## **2.4 Methoden zur Vorfilterung, Filterwirkung**

In den kerntechnischen Anlagen werden Maßnahmen getroffen, um bei Rückbautätigkeiten mit starker Staubentwicklung oder mit potenzieller Kontamination die Verteilung und Verschleppung des Staubes und der Kontaminationen in andere, saubere Raumbereiche zu reduzieren oder zu verhindern. Eine Methode zur Staubreduzierung ist die Einhausung von Teilen größerer Raumbereiche oder einzelner zu zerlegender Komponenten. Die Abluft aus diesen Einhausungen wird dann über Filter in die Raumluft oder in Abluftkanäle abgeführt. Dadurch wird eine gerichtete Luftströmung von außen in die Einhausung sichergestellt. Beim Abbau des Reaktorblocks des Forschungsreaktors FRJ-1 wurde z. B. die gesamte Arbeitsplattform eingehaust [Sta 03]. Eine spezielle Lüftungsanlage mit Sicherheitsnachfilter und einem Volumenstrom von  $10000 \text{ m}^3/\text{h}$  sorgte für eine gerichtete Strömung in die Einhausung hinein. Die gefilterte Luft wurde außerhalb der Einhausung wieder in die Reaktorhalle eingeblasen. Ergänzt wurde diese Lüftungsanlage durch eine zusätzliche Anlage, die speziell zur Absaugung von Schwebstoffen aus thermischen Trennverfahren geeignet war. Diese Anlage war bei einem Volumenstrom von  $2000 \text{ m}^3/\text{h}$  ebenfalls mit einem Sicherheitsnachfilter ausgerüstet und an die Reaktorhallenabluft angebunden. Zu detaillierten Filterspezifikationen wird hier genauso wie in vergleichbaren Veröffentlichungen nichts oder nur wenig angegeben. Es heißt sonst z. B. „Abluftfilter mit entsprechenden Anforderungen“, „Schwebstofffilter“, „geeignete Filteranlage“ oder „HEPA-Filter“.

Bei Verwendung von Maschinen, deren Abtragetätigkeit mit großer Staubentwicklung einhergeht, kann der Staub auch direkt an der Quelle der Entstehung abgesaugt werden, wie es z. B. im Kapitel 2.2.2 für eine Fräsmaschine dargelegt wird [Hen 13].

In den Literaturstellen zu Rückbautätigkeiten wird oft nur recht kurz auf die Filtermethoden eingegangen und meist darauf hingewiesen, dass HEPA-Filter verwendet werden, teilweise unter Verwendung einer vorherigen Durchströmung eines Zyklons, um groben Staub zu reduzieren und die HEPA-Filter nicht schnell zu beladen, wie im Beispiel eines Staubsaugers in der Veröffentlichung [Mey 08].

Allgemein kann festgestellt werden, dass die Ausrüstung von Filterungen mit HEPA-Filtern üblicherweise Standard ist, wobei nur selten ein konkreter Typ einer Absaugungseinrichtung angegeben wird. In der Veröffentlichung [Mik 08] wird beispielsweise das Gerät VAC-PAC der Fa. Pentek erwähnt. Dieses beinhaltet nach Herstellerangaben [Pen 09] ein System, um bei der mechanischen Dekontamination anfallenden Staub und Bauschutt abzusaugen und in ein 200-l-Fass zu transportieren. Die Abluftfilterung findet durch eine erste Filterstufe mit einem Abscheidegrad von 95 % bei einer Partikelgröße von 1 µm und eine zweite HEPA-Filterstufe mit einem Abscheidegrad von 99,97 % bei 0,3 µm statt. Die erste Filterstufe wird regelmäßig durch Druckluftstöße gereinigt und benötigt nach Herstellerangaben nur einen jährlichen Wechsel. Außerdem ist das System mit einer Vorrichtung ausgestattet, die es erlaubt, das Abfallfass unter kontrollierten Druckverhältnissen zu füllen, zu verschließen, zu entfernen und zu ersetzen, um eine Staubfreisetzung und -verschleppung möglichst gering zu halten.

Bei Filtermobilen der Firma HS-Luftfilterbau werden Vorfilter der Klasse G3 bis M5 gemäß DIN EN 779 [DIN 12b] und Schwebstofffilter der Filterklasse E10 bis H14 [DIN 11] verwendet. Verschiedene Geräte dieses Herstellers können Volumenströme zwischen 1500 m<sup>3</sup>/h und 6000 m<sup>3</sup>/h abdecken [HSL 12].

Bei der Betrachtung des Einflusses der Filter auf die Größenverteilung der emittierten Partikel wird im Folgenden davon ausgegangen, dass es sich bei den verwendeten Filtern mindestens um HEPA-Filter nach DOE-Standard bzw. um die Filterklasse H13 nach DIN EN 1822 handelt (vgl. Kapitel 2.1, Begriffe).

Die Abhängigkeit des Abscheidegrades von der Durchströmgeschwindigkeit des Filters wird in der DIN EN 1822-1 in einem Diagramm für einen ULPA-Filter dargestellt (Abb. 4), dessen Abscheidegrad über dem eines HEPA-Filters liegt. In diesem Beispiel liegt bei einer Filtermediumsgeschwindigkeit von 1,5 cm/s das Minimum des Abscheidegrades bei 0,2 µm Teilchengröße und beträgt 99,99993 %, während bei der doppelten Geschwindigkeit von 3,0 cm/s das Minimum bei 0,15 µm und einem Abscheidegrad von nur 99,9994 % liegt. Das heißt, die Teilchengröße, bei der die maximale Abscheidung stattfindet, geht bei größeren Geschwindigkeiten zurück und der Abscheidegrad sinkt. Eine sinkende Filtereffizienz bei erhöhter Durchströmgeschwindigkeit wird auch in der Studie [Ald 08] bestätigt, in der HEPA-Filter mit den Dimensionen 305×305×292 mm<sup>3</sup> getestet wurden. Weiter heißt es darin über die während der Einsatzzeit der Filter auftretende Filtereffizienz, dass diese sehr schnell nach Inbetriebnahme des Filters auf nahezu 100 % anstieg. Beim Erreichen eines Differenzdruckes von 250 Pa traten dann typischerweise weniger als 0,5 Teilchen/cm<sup>3</sup> und oft nur ca. 0,1 Teilchen/cm<sup>3</sup> nach dem Filter auf. Der gemessene geometrische mittlere Durchmesser der abstromseitig vorhandenen Partikel entsprach näherungsweise der MPPS (vgl. Kapitel 2.1, Begriffe) des Filters. Bei einem Anstieg des Differenzdruckes mit der Beladezeit auf 250 Pa kam es zu einer Reduktion der MPPS um ca. 10 nm bis 15 nm, was aber von den Autoren in [Ald 08] auf Grund der extrem kleinen Partikelanzahl nach dem Filter als nicht signifikant bezeichnet wurde.

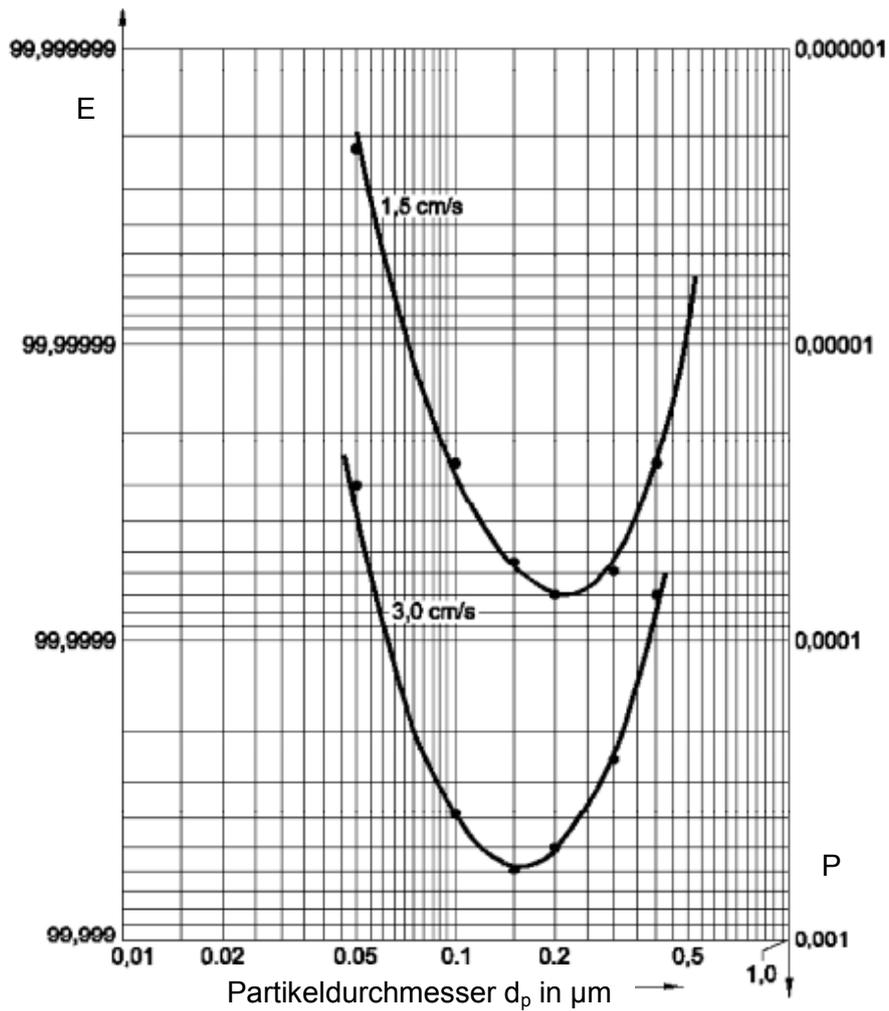


Abb. 4: Fraktionsabscheidegrad  $E$  und Fraktionsdurchlassgrad  $P$  eines Hochleistungs-Schwabstoffsfiltermediums (ULPA) als Funktion des Partikeldurchmessers  $d_p$  für zwei verschiedene Filtermediumsgeschwindigkeiten (Beispiel) [DIN 11].

Zur Filterwirkung unter verschiedenen Bedingungen wurde die Veröffentlichung [Osa 90] ausgewertet, die ebenfalls die Eigenschaften von HEPA-Filtern darlegt.

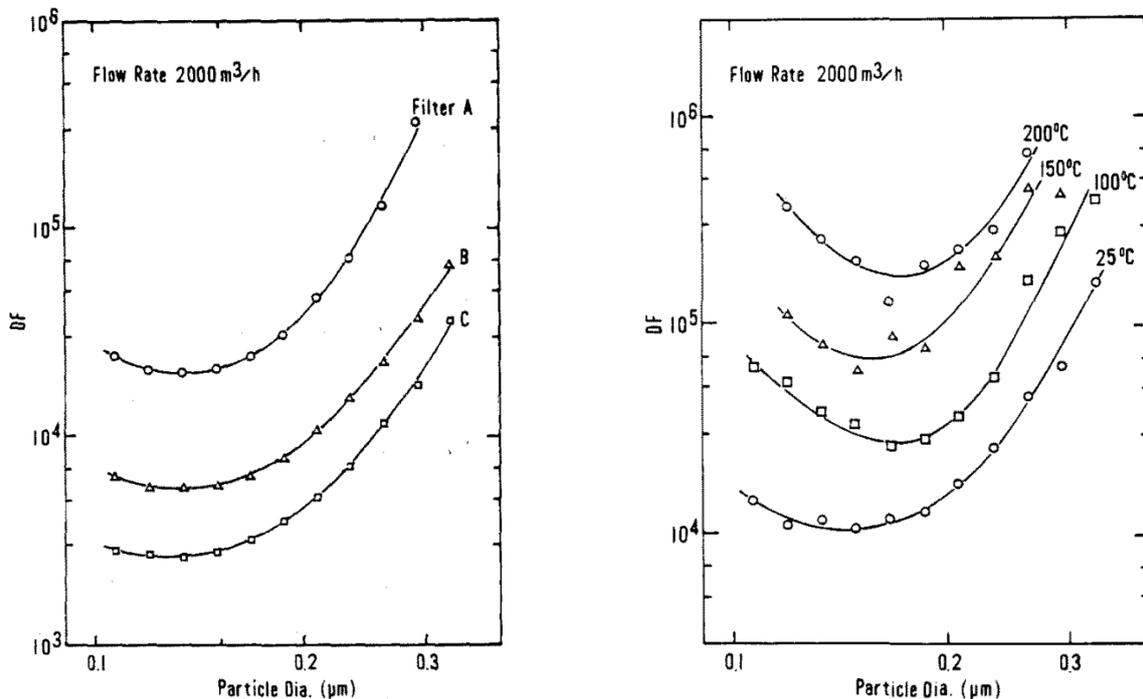


Abb. 5: Linke Seite: Dekontaminationsfaktor von HEPA-Filtern bei Normalbedingungen gemessen mit Laserpartikelzähler (drei Hersteller A, B, C). Rechte Seite: Dekontaminationsfaktor von HEPA-Filtern als Funktion der Temperatur [Osa 90].

Die betrachteten Filter hatten die Standardmaße  $610 \times 610 \times 292 \text{ mm}^3$  und waren ausgelegt für einen Volumenstrom von  $2000 \text{ m}^3/\text{h}$  mit einem Druckabfall von  $300 \text{ Pa}$  (Abb. 5). Bei einer Staubfracht von  $100 \text{ mg}/\text{m}^3$  in der Luft erhöhte sich der Druckabfall über den Filter mit der Staubbeladung. Der Dekontaminationsfaktor (DF) erhöhte sich um ca. zwei bis drei Größenordnungen für alle Partikelgrößen, wenn der Druckabfall auf das 1,5-fache des ursprünglichen gestiegen war. Bei erhöhten Temperaturen bis zu  $200 \text{ }^\circ\text{C}$  erhöhten sich der Druckabfall und der DF ebenfalls, hier auf Grund von Änderungen in der freien Weglänge und in der Luftviskosität (Abb. 5). Der Durchmesser der Partikel mit dem kleinsten DF änderte sich hier wenig. Bei einer relativen Feuchte von  $90 \%$  bis  $100 \%$  ging der DF um bis zu  $10 \%$  zurück. Als weiterer Einfluss wurde ein erhöhter Volumenstrom durch den Filter untersucht. Bei einem 10 bis 20mal höheren Volumenstrom ging der DF für  $0,1\text{-}\mu\text{m}$ -Partikel um zwei Größenordnungen zurück, bei Teilchen größer als  $0,3 \mu\text{m}$  gab es keine merkliche Reduktion. Bei diesen Versuchen ergaben sich allerdings mechanische Beschädigungen bei zu hohem Druckabfall oder längerer Einwirkungsdauer von Staub, Temperatur oder Feuchte. Die Filterwirkung beim Auftreten von Nadelstichlöchern (sogenannten „pinholes“) wurde ebenfalls untersucht. Die Reduktion des DF und der Einfluss

auf die verschiedenen Partikelgrößen hängen von der Größe des Loches ab. Die Untersuchung kam zu dem Schluss, dass die HEPA-Filter für die angenommenen Bedingungen im Luftreinigungssystem einer kerntechnischen Anlage ausreichend sicher und geeignet sind.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass diese Veröffentlichungen nur Untersuchungen im Bereich von Partikelgrößen um die MPPS enthalten, da hier die ungünstigsten Filterwirkungen auftreten. Die Größenverteilung nach den Filtern ergibt sich im Wesentlichen aus der MPPS des Filters, zusätzlich beeinflusst von den äußeren Einflüssen (Temperatur, Feuchte, Filterbeladung, Volumenstrom). Um genauere Angaben zu erhalten, müsste zuerst die Partikelgrößenverteilung vor dem Filter bekannt sein. Dann kann die Abscheidekurve des Filters damit gefaltet werden, um die Partikelgrößenverteilung nach dem Filter zu erhalten. In der Praxis sind die Partikelgrößenverteilungen nicht im Detail bekannt und auch wenig relevant, da es zu Arbeitsschutzzwecken ausreicht, die Partikel bzw. die Aktivität unabhängig von der Partikelgröße ausreichend stark durch Filterung zu reduzieren. Dafür sind die HEPA-Filter nach den o. g. Darlegungen bei bestimmungsgemäßer Anwendung geeignet.

## **2.5 Nuklidvektoren**

Bei der Frage nach den Nuklidvektoren, die in sich im Rückbau befindlichen kerntechnischen Anlagen vorliegen, stützen wir uns im Wesentlichen auf den BfS-Ressortforschungsbericht „Empfehlungen zur Ermittlung der Repräsentativität von Nuklidvektoren bei Freigabemessungen“ [Bot 09]. In diesem Bericht und seinem Anhang 1, der eine Excel-Datei „Übersicht über Nuklidvektoren“ enthält, sind Angaben über die Nuklidvektoren verschiedener Anlagentypen gemacht. Ohne weitere Kennzeichnung enthält das Kapitel im Folgenden eine Zusammenfassung von Punkten aus dem Bericht [Bot 09], die für das vorliegende Forschungsvorhaben von Bedeutung sind.

Gemäß dem Titel des Berichts [Bot 09] handelt er im Wesentlichen von der Ermittlung der Repräsentativität von Nuklidvektoren bei Freigabemessungen, da die Festlegung eines Nuklidvektors einen wichtigen Aspekt des Verfahrens zur Freigabe größerer Stoffmengen nach § 29 der Strahlenschutzverordnung darstellt. Die An-

wendung des Nuklidvektors für die Freigabe ist aber nur dann zulässig, wenn er repräsentativ bzw. ausreichend konservativ für die freizugebende Stoffmenge ist. Es wurden Nuklidvektoren aus der bisherigen Praxis zusammengestellt, zu deren Ermittlung sowohl die Probenentnahme und Analyse von Proben als auch Aktivierungs- und Abbrandrechnungen genutzt wurden. In den meisten Fällen wurden abdeckende Nuklidvektoren und nur in seltenen Fällen Nuklidvektoren auf statistischer Grundlage oder durch Mittelwertbildung berechnet. Diese bisher ermittelten Nuklidvektoren wurden in einer Excel-Datei erfasst. Der Autor stellte in seinem Bericht fest, dass bei seiner Literaturrecherche fast ausschließlich in Tagungsbänden Angaben zu den Nuklidvektoren und der Verfahrensweise zu ihrer Ermittlung gefunden wurden. Dabei ist in den meisten Fällen die Ermittlung der Nuklidvektoren nur in groben Zügen beschrieben, so dass eine Beurteilung der Repräsentativität nicht einmal ansatzweise möglich ist. Das Vorgehen beim Rückbau des Kernkraftwerks Stade wurde hingegen in den letzten Jahren detailliert und nachvollziehbar beschrieben, auch aus einzelnen weiteren Projekten liegen Angaben zu Nuklidvektoren vor.

Die in den einzelnen Vorgängen freigegebenen Materialien waren sehr vielfältig (Flüssigkeiten, Bauschutt, Gebäude zum Abriss und zur Wiederverwendung, Baumaterialien, Bodenaushub, Stahl und andere Metalle, Schlämme, Textilien, Eindampfrückstände und Filtermaterial). Es stellt sich die Frage, ob diese Nuklidvektoren auch für das vorliegende Forschungsvorhaben herangezogen werden können. Auf Grund der kaum vorhandenen Informationen zu speziellen Nuklidvektoren bei Rückbautätigkeiten, bei denen Schwebstoffe entstehen, ist die Liste der Nuklidvektoren aus dem Bericht [Bot 09] als Überblick sicher sehr hilfreich. Ein Vergleich ist ohnehin schwierig, da kein einheitliches Vorgehen bei der Ermittlung der Nuklidvektoren verwendet wurde. Die Nuklidvektoren wurden in den meisten Fällen als abdeckende Nuklidvektoren gebildet.

Es wurden Nuklidvektoren für die Anlagentypen Kernkraftwerke, Forschungsreaktoren, radiochemische Labors, Heiße Zellen, Abwasserbehandlungsanlagen, Wiederaufbereitungsanlagen und Brennelementproduktion sowie u. a. die Materialien Beton/Barytbeton, Boden, verschiedene Metalle (Stahl, Aluminium, Kupfer, Blei, Cadmium), Grafit, Kunststoff, Staub, Schlamm, Verdampferkonzentrat, Oberflächenmaterial (Kratzproben, Ätzproben, Lack) und Wischproben erfasst. Die zur Verfügung stehenden Daten waren gemäß [Bot 09] häufig lückenhaft, wobei teilweise die ge-

naue Materialbezeichnung, das betroffene Anlagenteil, detaillierte Angaben zur Ermittlung des Nuklidvektors oder die charakteristischen Grenzen fehlten. Deshalb war den Autoren damals eine systematische Auswertung der gesammelten Nuklidvektoren nicht möglich. Insbesondere ließen sich keine Anhaltspunkte finden, ob es für bestimmte Situationen (z. B. Anlagen oder Materialien) typische Nuklidvektoren gibt. Aus diesem Grund ist nicht auszuschließen, dass ein aufgeführter Nuklidvektor auch für den Rückbau relevant sein könnte. Für eine Anlage im Rückbau wird ohnehin ein dafür zu verwendender Nuklidvektor speziell ermittelt werden müssen.

Zu den Nuklidvektoren kann Folgendes zusammenfassend festgestellt werden. Betrachtet man die 48 Nuklidvektoren für Beton, erkennt man, dass Co-60 und Cs-137 praktisch in allen Nuklidvektoren vorkommen, in etwas geringerem Maße Fe-55, Ni-63, Eu-152, Eu-154 und Sr-90. Bei einigen Nuklidvektoren aus Forschungsreaktoren traten Tritium und C-14 auf, in radiochemischen Labors auch Uran und Transurane. Es ist allerdings nicht angegeben, nach welchen Nukliden bei der jeweiligen Analyse überhaupt gesucht wurde. Bei Barytbeton (6 Nuklidvektoren) spielt vor allem das Ba-133 eine große Rolle.

In Stählen und Aluminium treten neben Co-60 im Wesentlichen Fe-55 und Ni-63 im Nuklidvektor auf. Bei Oberflächen und Wischproben, die nicht näher spezifiziert sind, ergibt sich ein ähnliches Bild wie bei Beton (Co-60, Cs-137, Fe-55, Ni-63). Es treten durchaus z. B. in Radiochemielabors aber auch Nuklidvektoren auf, die fast nur aus C-14 oder einem großen Anteil Tritium oder U-234/U-238 bestehen. Dies folgt aus der unterschiedlichen Betriebsweise bzw. dem Umgang mit radioaktiven Stoffen in den verschiedenen kerntechnischen Anlagen.

Daraus kann geschlossen werden, dass die Angabe von Nuklidvektoren für ein bestimmtes Rückbauprojekt bzw. die verschiedenen Anlagenteile daraus nur auf Grund der Betriebshistorie bzw. durch die Analyse von geeigneten Proben gewonnen werden kann.

### **3 Experimentelle Bestimmung von Partikelverteilungen und Nukliden**

Um den schon in der Literaturrecherche dargestellten Fragestellungen weiter auf den Grund zu gehen, wurden in einer sich im Rückbau befindlichen kerntechnischen Anlage die bei Rückbautätigkeiten auftretenden Aerosolpartikel gesammelt bzw. direkt die Größe und Anzahl der Partikel gemessen. Die gesammelten Partikel wurden anschließend chemisch und auf die vorhandenen Aktivitäten im Labor analysiert.

Da durch die vorhandenen Filterungsmethoden (z. B. Einhausung mit Umluftbetrieb und lokale, temporäre Filterung) keine sehr großen Partikel zu erwarten waren, wurde die Messung von Partikeln bis zu einem aerodynamischen Äquivalentdurchmesser von ca. 100  $\mu\text{m}$  durchgeführt. Die direkten, zeitaufgelösten Messungen erfolgten mit zwei optischen Partikelzählern für Größen zwischen 0,2  $\mu\text{m}$  und 100  $\mu\text{m}$ . Die indirekten, zeitlich gemittelten Messungen der Massengrößenverteilung erfolgten mit Hilfe eines mehrstufigen Kaskadenimpaktors, der getrennt nach sechs aerodynamischen Größenklassen sammelte, und der anschließenden Auswertung der Impaktorfolien mittels Gravimetrie sowie durch elementspezifische chemische Analyse (ICP-MS) und radiologische Auswertung der relevanten Nuklide.

Bei der Angabe der Partikelgrößen ist zu beachten, dass diese sich aus zwei unterschiedlichen Messverfahren ergeben und deshalb nicht direkt vergleichbar sind. Dazu sind weitere Informationen, z. B. zur Dichte und zum Brechungsindex der Partikel erforderlich.

#### **3.1 Bestimmung der Anzahl- und Massenverteilung**

##### **3.1.1 Methodik**

###### *Kaskadenimpaktor*

Als Kaskadenimpaktor wurde ein im Fraunhofer-Institut (FhG-ITEM) entwickelter High-Volume-Impaktor verwendet, dessen Volumenstrom von 19  $\text{m}^3/\text{h}$  von einem mit Nenndrehzahl betriebenen Ringkanalgebläse aufgebracht wird und sich aus der Gebläsekennlinie und dem Gesamtdruckabfall des Impaktors ergibt. Der Gesamtdruckabfall wiederum wird durch die Stufe mit den kleinsten Impaktordüsen bestimmt. Das

Einmessen des Durchflusses erfolgte vor der Installation am Probenentnahmestort. Die PartikelgröÙenauföösung umfasst die folgenden 6 GröÙenintervalle:  $< 0,4 \mu\text{m}$ ,  $0,4 \mu\text{m} - 1 \mu\text{m}$ ,  $1 \mu\text{m} - 2,5 \mu\text{m}$ ,  $2,5 \mu\text{m} - 10 \mu\text{m}$ ,  $10 \mu\text{m} - 30 \mu\text{m}$ ,  $> 30 \mu\text{m}$ . Der unterste Bereich wird von einem Tiefenfilter erfasst (Celluloseacetat mit mittlerem Porendurchmesser von  $8 \mu\text{m}$ ), wäährend auf den oberen Stufen die Partikel über Impaktion abgeschieden werden. Als Abscheideflächen wurden die oben genannten Celluloseacetatfilter passföormig ausgeschnitten. Die Abb. 6 zeigt eine Gesamtansicht des Kaskadenimpaktors und die Details der Impaktionsstufen und der Filter.



Abb. 6: Gesamtansicht des Kaskadenimpaktors und Ansicht im zerlegten Zustand. Der Back-up-Filter (rechts unten) wird von einer Messingfritte getragen.

### *Streulichtmessgeräte*

Für die direkten, kontinuierlichen Messungen wurden zwei sich in der Partikelgrößenauflösung ergänzende optische Partikelzähler benutzt:

1. Aerosolspektrometer 1.109, Fa. Grimm, Airing.  
Dieses Gerät misst in 32 Größenkanälen zwischen 0,28  $\mu\text{m}$  und 32  $\mu\text{m}$ . Der Sammelvolumenstrom beträgt 1 l/min. Die Daten stehen als Zählraten mit einer zeitlichen Auflösung von einer Minute zur Verfügung.
2. Laseraerosolspektrometer, LASAIR 550, Fa. PMT, Heimsheim.  
Dieses Gerät erfasst die Luft mit einem hohen Ansaugvolumenstrom von 28 l/min und dient hier zur Erfassung der gröberen Partikel mit Durchmessern größer als 3  $\mu\text{m}$ . Folgende Größenklassen werden abgedeckt: 3  $\mu\text{m}$  – 5  $\mu\text{m}$ , 5  $\mu\text{m}$  – 10  $\mu\text{m}$ , 10  $\mu\text{m}$  – 20  $\mu\text{m}$ , 20  $\mu\text{m}$  – 30  $\mu\text{m}$ , 30  $\mu\text{m}$  – 50  $\mu\text{m}$ , 50  $\mu\text{m}$  – 100  $\mu\text{m}$ .

### *Probenentnahme*

Die zu analysierende Luft wurde vom Ringkanalgebläse des Impaktors angesaugt. Aus einem dem Impaktor vorgeschalteten geraden Rohrstück wurden isokinetische Teilproben für die beiden optischen Partikelzähler entnommen. Die Zähler wurden über elektrisch leitende Kunststoffschläuche an die Messingprobenentnahmestutzen (Abb. 6) angebunden.

Die Gesamtprobenentnahme erfolgte entweder über eine flexible Schlauchverbindung, wenn die Probe an einer bestimmten Stelle genommen wurde, oder über einen Ringspalt, der an Stelle des Schlauchadapters auf das Ansaugrohr des Impaktors gesetzt wurde, wenn Proben aus der Raumluft genommen wurden.

### **3.1.2 Durchführung**

Die Untersuchungen zur nuklidspezifischen Aktivitätsverteilung und der Elementverteilung wurden in einem sich im Rückbau befindlichen Kernkraftwerk durchgeführt. Ziel war die Charakterisierung partikelgebundener Aktivität in potentiell belasteten

Abluftströmen, die dem Gesamfortluftkamin zugeleitet werden, und in der Gesamfortluft hinter den Abluftfiltern. Es wurden insgesamt 5 Messkampagnen durchgeführt (Tab. 3). Am Ende jeder Kampagne wurden die Daten ausgelesen und die Filter bzw. Abscheidemedien des Impaktors ausgetauscht.

Kampagne	Zeitraum	Probenentnahmeort	Tätigkeiten
1	22.10.–30.10.2013		Dekontamination von Bauteilen: Abwaschen, Absprühen
2	30.10.–19.11.2013	Im Reaktorgebäude/Kontrollbereich aus der Abluft eines Filtermobils	
3	19.11.–06.12.2013		Zerlegearbeiten
4	11.12.–20.12.2013	Direkt aus der Raumlufte im Reaktorgebäude	
5	26.03.–06.04.2014	Über Schlauch direkt aus der Raumlufte des Zerlegerraums	Zerlegung gering kontaminierter Bauteile

Tab. 3: Messkampagnen im Kraftwerk

In den ersten drei Messkampagnen wurden Reinigungs- und Zerlegearbeiten beprobt, die auf Grund der Höhe der Oberflächenkontamination der Bauteile innerhalb einer Einhausung stattfanden. Die Probenentnahme erfolgte über eine flexible Schlauchverbindung isokinetisch aus der Abluft des Filtermobils (Abb. 7), ausgestattet mit einem zweistufigen Filtersystem der Filterklasse F6 und H13. Der Durchlassgrad beträgt im ungünstigsten Partikelgrößenbereich  $P=5 \cdot 10^{-5}$ . In Tab. 4 und Tab. 5 sind die durchgeführten Arbeiten beschrieben. Standort der Probenentnahmegerate war der Dampferzeugervorraum.

Aufgrund der geringen gesammelten Partikelanzahl in den ersten drei Kampagnen wurde in einem Gespräch mit dem BfS abgestimmt, auf die Messungen in der Gesamfortluft zu verzichten, da ein Einfluss der bei diesen Zerlegetätigkeiten entstandenen Partikel auf die Partikelverteilung in der Fortluft nicht nachweisbar gewesen wäre. Stattdessen wurde vereinbart, zusätzliche Messungen in der Raumlufte durchzuführen.

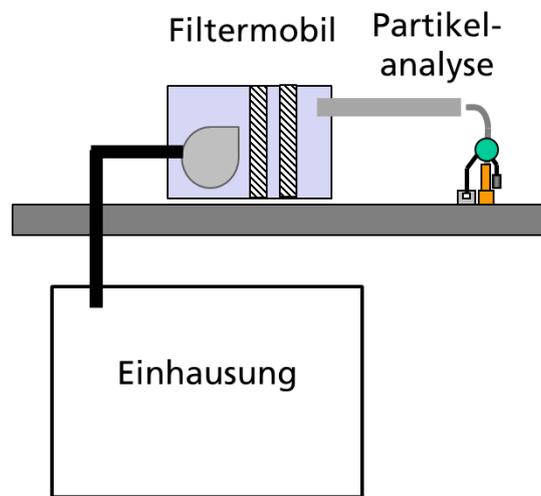


Abb. 7: Partikelprobenentnahme für die Analyse der Abluft bei eingehausten Zerlegearbeiten.

Datum	Tätigkeit	Alpha in Bq/cm <sup>2</sup>	Beta in Bq/cm <sup>2</sup>
18.10.2013	1. Reinigung mit Schlauch ohne Düse.	2	100
21.10.2013	2. Reinigung - FS 500, 10 min Einwirkzeit - Reinigung Hochdruck mit Flachstrahldüse	1,2	70
22.10.2013 Vormittag	3. Reinigung 1. Viertel mit Rotationsdüse	0,4	20
22.10.2013 Nachmittag	3. Reinigung 2.–4. Viertel mit Rotationsdüse	1,6	90
23.10.2013	4. Reinigung - FS 500, 20 min Einwirkzeit - Reinigung mit Schlauch ohne Düse	0,7	35
24.10.2013	Ende der Reinigung		

Tab. 4: Tätigkeiten im Rahmen der Reinigungsarbeiten und vom Betreiber gemessene Oberflächenkontaminationen (Kampagne 1).

<b>Datum</b>	<b>Tätigkeit</b>	<b>Alpha in Bq/cm<sup>2</sup></b>	<b>Beta in Bq/cm<sup>2</sup></b>
24.10.2013	Einrichten Baustelle, Verkleben der Folie, Säge einrichten, Abbaugang montieren		< 0,4
25.10.2013	Entfernen der Schutzfolie vom Behälter, Werkzeuge vorbereitet		<0,4
28.10.2013	Demontage Teil 1 Einblaseleitung	1,0	400
29.10.2013	Demontage Teil 2 Einblaseleitung Demontage 1. Ring der Pfeifen	0,7	45
		0,1	10
30.10.2013	Verpacken und Abtransport Teil 1 und 2 Einblaseleitung und 1. Ring der Pfeifen	0,4	1–3
31.10.2013	Demontage 2. Ring der Pfeifen	0,6	40
04.11.2013	Demontage 3. Ring der Pfeifen Verpacken der Pfeifen in Gitterbox	0,6	40
05.11.2013	Verpacken der Pfeifen in Gitterbox	0,6	40
05.11.2013	Beginn Demontage vom inneren Verteilerring	0,6	40
06.11.2013	Verpacken der Pfeifen 2 x Gitterbox	13	50
		0,6	40
07.11.2013	Demontage Teil 3 und Verteilerring Einblaseleitung	6	
07.11.2013	Verpacken und Zerlegen (Pfeifen)	1	40
08.11.2013	Verpacken und Zerlegen (Pfeifen)	1	40
11.11.2013	Verpacken und Abtransport Verteilerring		
12.11.2013 13.11.2013	Reinigung Abblasetank und R.333	<0,004	4
14.11.2013 15.11.2013	Vorbereitende Arbeiten der Werkstatt zum Abkreisen.		
18.11.2013	Abkreisen der ersten 40 cm	<0,04	4
19.11.2013	Abkreisen der ersten 40 cm vom Abblasebehälter (ABB)	<0,04	4
20.11.2013	Dekont- und Aufräumarbeiten am ABB	<0,04	4

Datum	Tätigkeit	Alpha in Bq/cm <sup>2</sup>	Beta in Bq/cm <sup>2</sup>
21.11.2013	Gerüstbauarbeiten	<0,04	2
22.11.2013	Dekont am Boden und Gerüstbauarbeiten	<0,04	2
25.11.2013	Abkreisen der 2. 40 cm vom ABB	<0,04	4
26.11.2013	Abkreisen des 2. Teilstücks vom ABB	<0,04	4
27.11.2013	Abkreisen und Demontage / Dekontarbeiten		
28.11.2013	Abkreis- und Dekontarbeiten, Gerüstabbau		
29.11.2013	Abkreis- bzw. Aufräumarbeiten, Gerüstabbau	<0,04	2-5
02.12.2013	Abkreisen		

Tab. 5: Tätigkeiten im Rahmen der Zerlegearbeiten und vom Betreiber gemessene Oberflächenkontaminationen (Kampagnen 2 und 3).

Bei der anschließenden vierten Messkampagne wurde Luft, die zu gewissen Zeiten mit Baustaub aus dem allgemeinen Rückbaugeschehen kontaminiert war, direkt aus dem Reaktorgebäude entnommen. Die Probenentnahme erfolgte über einen Ringspalt, der an Stelle des Schlauchadapters auf das Ansaugrohr des Impaktors gesetzt wurde.

Bei der fünften Kampagne wurden Zerlegearbeiten von Komponenten mit geringer Oberflächenkontamination beprobt. Die Arbeiten fanden im Gebäudesumpf des Reaktorgebäudes statt. Eine Einhausung war nicht erforderlich. Die kontaminierte Luft wurde über die normale Gebäudeentlüftung abgesaugt. Die Beprobung erfolgte durch die Sammelgeräte im Dampferzeugervorraum oberhalb des Zerlegungsraumes. Die Probenentnahme erfolgte über einen ca. 3 m langen Schlauch, der über eine ca. 30×30 cm<sup>2</sup> große Öffnung in den Zerlegeraum geführt wurde.

Ein der Tab. 5 entsprechendes detailliertes Tätigkeitsprotokoll liegt für die Kampagne 5 nicht vor. Generell können die Arbeiten als Zerlegung des Sumpfrückspeisesystems bezeichnet werden.

### 3.1.3 Ergebnisse

#### *Direkte Messung der Partikel*

Die Ergebnisse der Messungen hinter dem Filtermobil während der ersten drei Kampagnen sind in Abb. 8 bis Abb. 10 dargestellt. Aufgetragen ist die Konzentration aller Partikel größer als  $0,28 \mu\text{m}$ , der unteren Erfassungsgrenze des Grimm-Partikelzählers. Wie zu erwarten, ist die Anzahlkonzentration mit Werten unterhalb von 10 Partikel/l sehr gering. Die Konzentration vergleichbarer Partikelgrößen in der normalen Außenluft liegt mehrere Größenordnungen darüber.

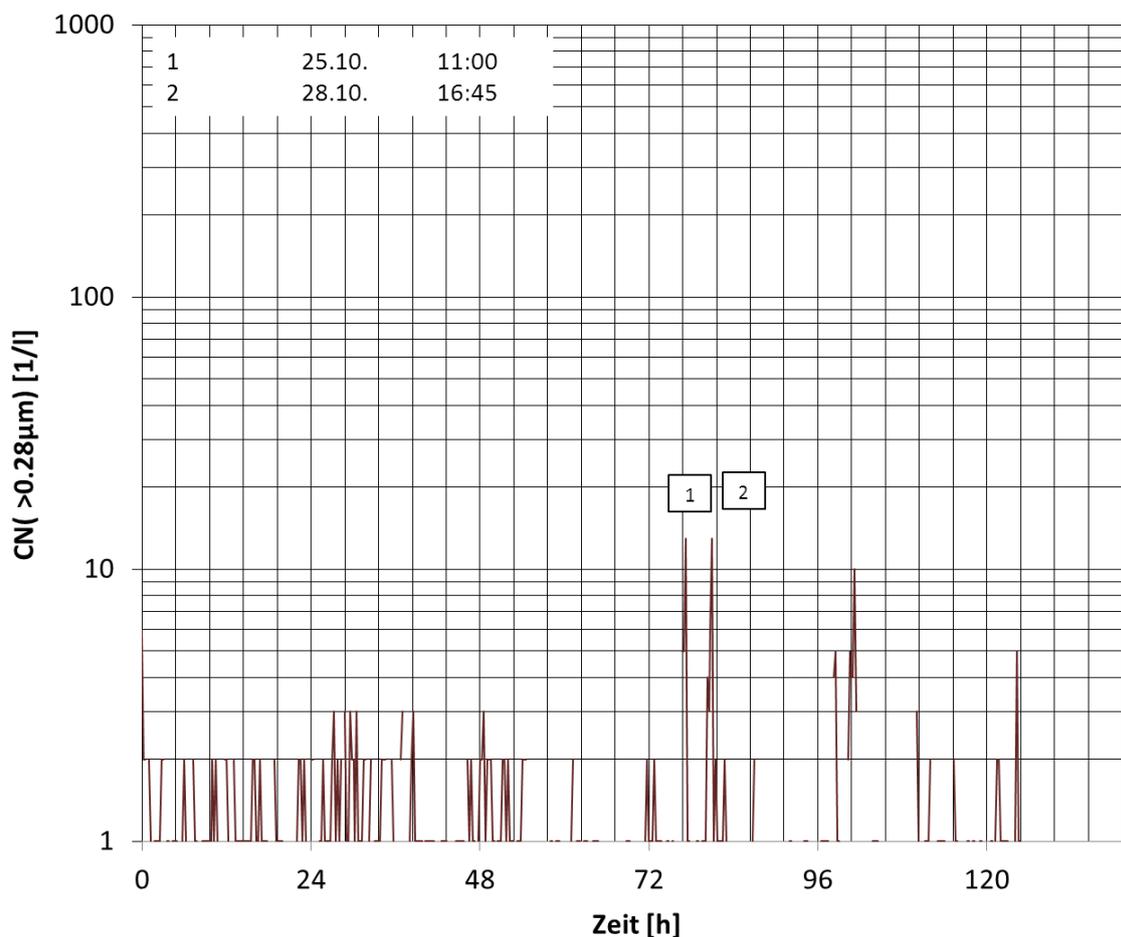


Abb. 8: Partikelanzahlkonzentration  $C_N$  (in  $1/l$ ) und typische Größenverteilung im Verlauf der Messungen während der Kampagne 1 für Partikel mit einer Größe über  $0,28 \mu\text{m}$ .

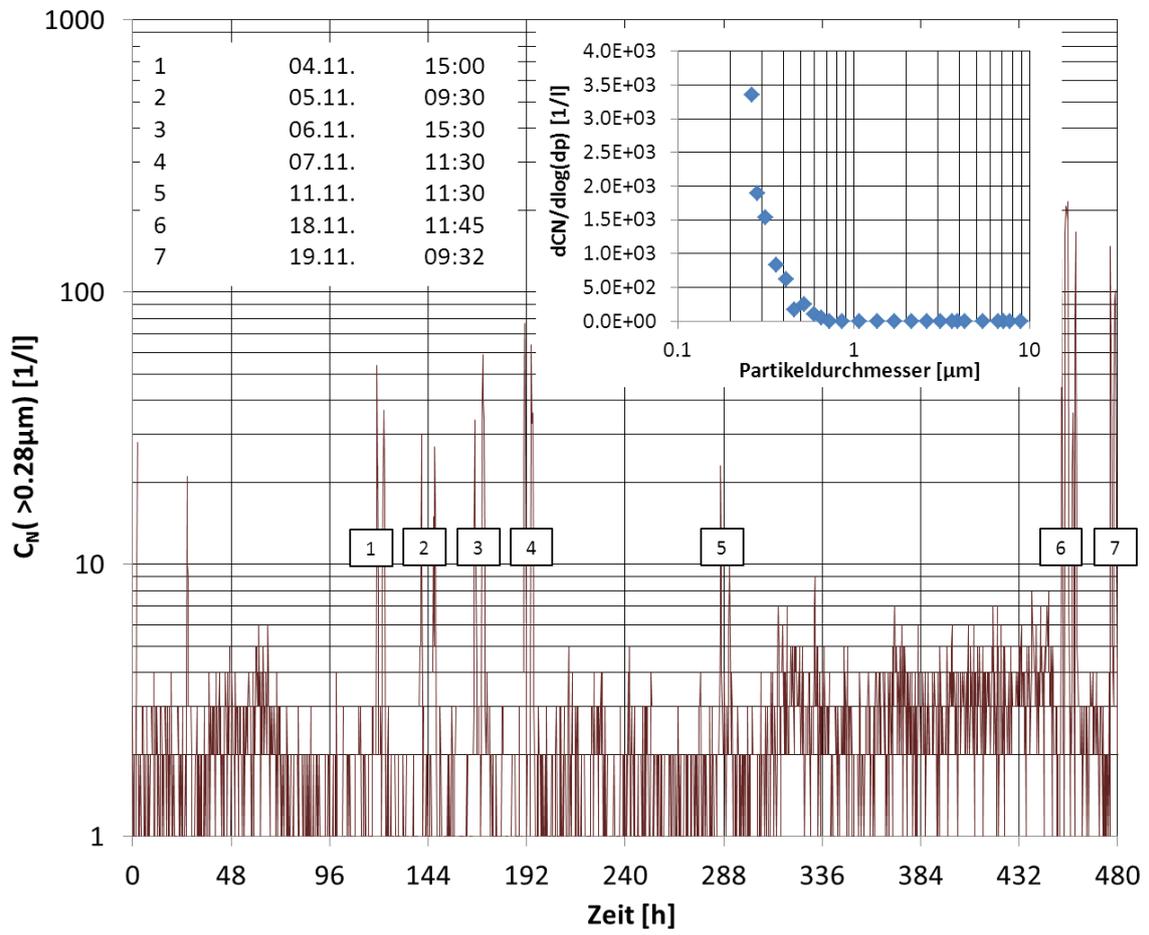


Abb. 9: Partikelanzahlkonzentration  $C_N$  (in 1/l) und typische Größenverteilung im Verlauf der Messungen während der Kampagne 2 für Partikel mit einer Größe über  $0,28 \mu\text{m}$ .

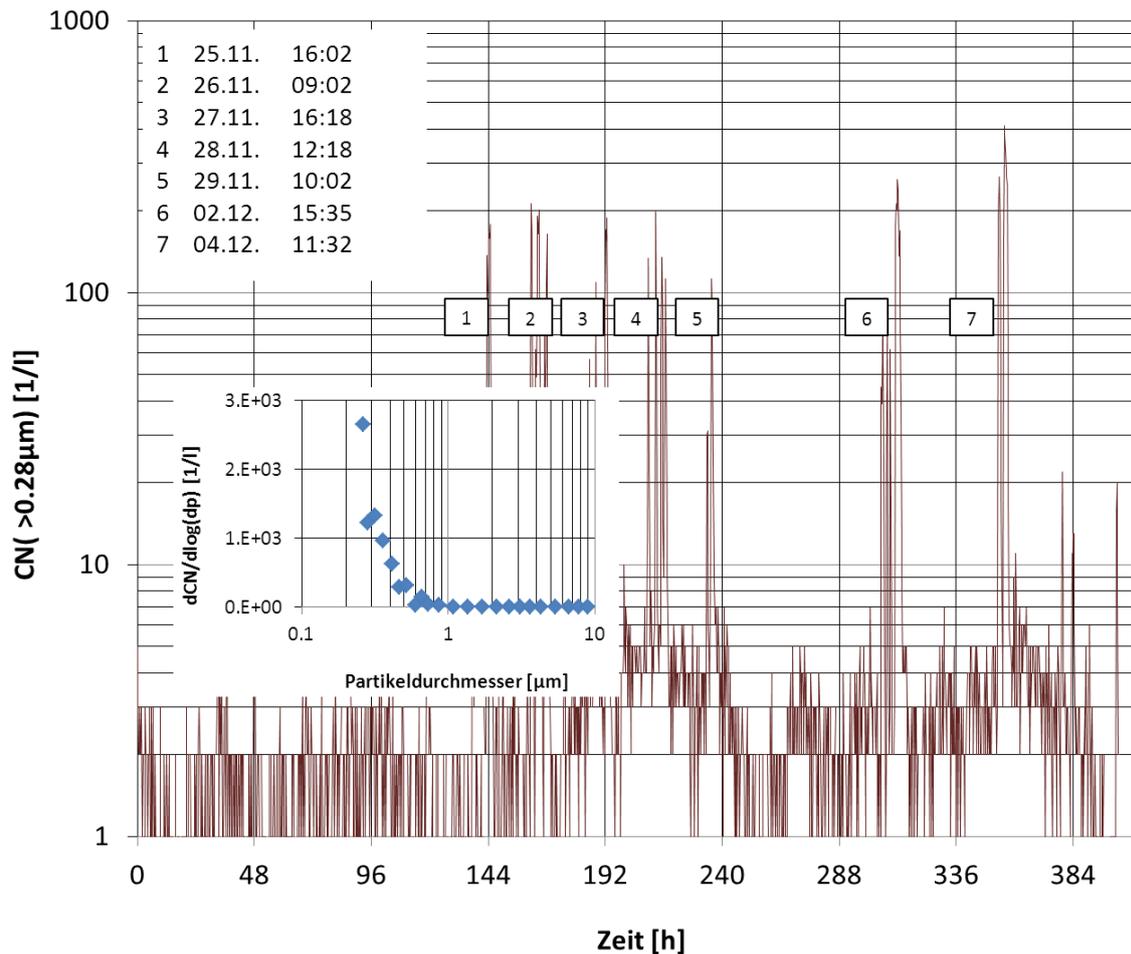


Abb. 10: Partikelanzahlkonzentration  $C_N$  (in 1/l) und typische Größenverteilung im Verlauf der Messungen während der Kampagne 3 für Partikel mit einer Größe über 0,28  $\mu\text{m}$ .

Während der Zerlegearbeiten der Kampagnen 2 und 3 wurden in gewissen Zeiträumen höhere Partikelanzahlkonzentrationen gemessen. Diese sind in Abb. 9 und Abb. 10 mit Ziffern gekennzeichnet und mit Datum und Uhrzeit angegeben. Vergleicht man die Konzentrationsspitzen mit den Angaben in Tab. 5, wird ersichtlich, dass die höchsten Konzentrationen an Tagen gemessen wurden, an denen die Tätigkeit „Abkreisen“ durchgeführt wurde, beispielsweise vom 25.11. bis 29.11.2013.

Aus den gemessenen Partikelgrößenverteilungen geht hervor, dass die nach dem Filtermobil auftretenden Partikelgrößen auf den submikronen Bereich beschränkt sind, wie es in den jeweiligen Bildeinsätzen der Abb. 8 bis Abb. 10 verdeutlicht ist. Geht man von einem Durchlassgrad von  $5 \cdot 10^{-5}$  im MPPS (most penetrating particle size) und einer Partikelanzahlkonzentration im Reingas hinter dem Filtermobil von max. 500 Partikel/l (vgl. Zeitpunkt 7 in Abb. 10) aus, so liegen die jeweiligen Konzen-

trationsspitzen in der Zerlegekabine (vor dem Filtermobil) bei maximal ca.  $(500 \text{ Partikel/l})/5 \cdot 10^{-5} = 10^7 \text{ Partikel/l}$ .

Nach Abschluss der Zerlegearbeiten wurde in Kampagne 4 die Probenentnahme am Standort der Messgeräte im Dampferzeugervorraum bis Ende Dezember 2013 fortgesetzt. Es wurde also die „normale“ Luft im Dampferzeugervorraum im Reaktorgebäude beprobt. Frische Grobstaubablagerungen insbesondere auf den Geräten wiesen auf stauberzeugende „kalte“ Rückbauarbeiten während des Probenentnahmezeitraums hin. Dies ist auch an den Verläufen der Anzahlkonzentration (Abb. 11), insbesondere aber der Massenkonzentration (Abb. 12, Abb. 13) zu erkennen. Die Massenkonzentration wurde aus der mittels Grimm-Zähler und LASAIR-Spektrometer gemessenen Anzahlgrößenverteilung berechnet. Hierbei wurden eine Materialdichte von  $5 \text{ g/cm}^3$  und Kugelform der Staubteilchen zugrunde gelegt.

In den Darstellungen wurde unterschieden zwischen der gesamten, erfassten Fraktion der luftgetragenen Partikel und dem Grobstaubanteil größer als  $3 \mu\text{m}$ . Es ist zu erkennen, dass die Anzahlkonzentration von den kleineren Partikeln dominiert wird (Abb. 11). Die zeitlichen Verläufe der Grob- und Gesamtfraktion unterscheiden sich erheblich. Die Spitzenwerte der Massenkonzentration sind erwartungsgemäß durch die größeren Partikel bestimmt (Abb. 12). Die Spitzen sind vermutlich auf Stemm- und Bohrarbeiten an Beton zurückzuführen. Die Spitzenwerte der Massenkonzentration liegen mit maximal  $100 \mu\text{g/m}^3$  im Bereich von auftretenden Stundenmittelwerten der Außenluftkonzentrationen bei hohen innerstädtischen Schwebstoffbelastungen.

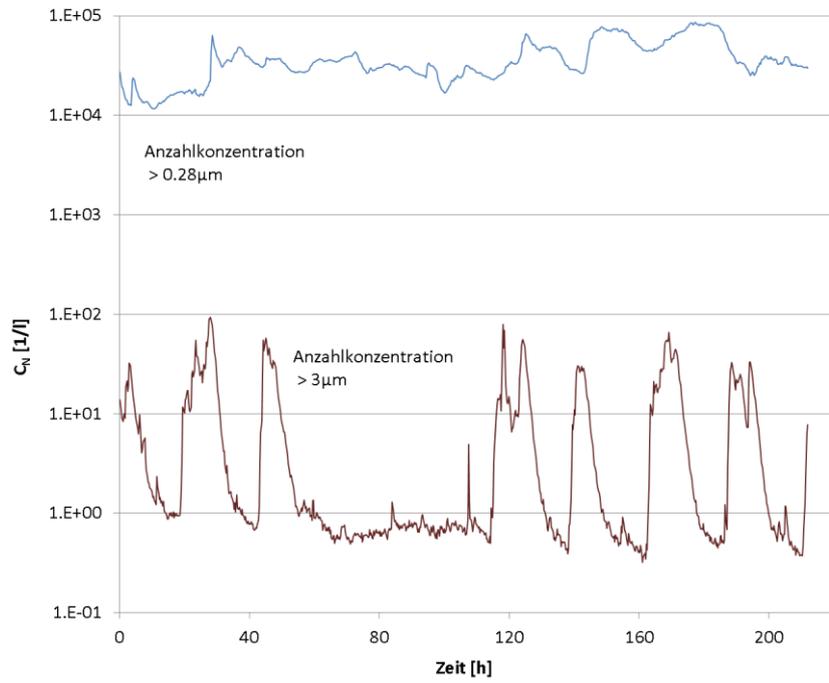


Abb. 11: Partikelanzahlkonzentration  $C_N$  (in 1/l) im Verlauf der Messungen während der Kampagne 4 für Partikel mit einer Größe über  $0,28 \mu\text{m}$  und über  $3 \mu\text{m}$ . Konventioneller Rückbau.

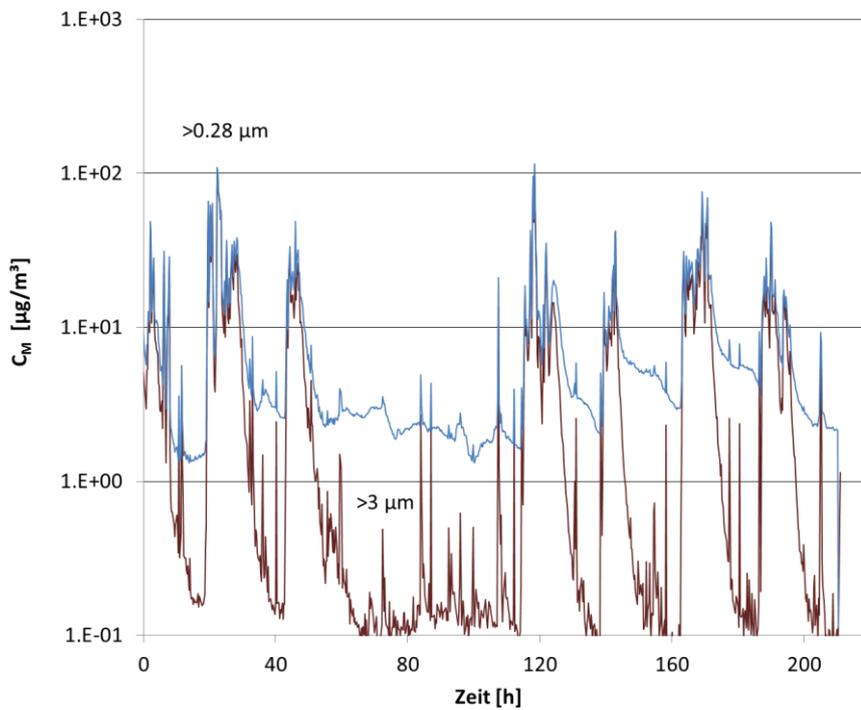


Abb. 12: Partikelmassenkonzentration  $C_M$  während der Kampagne 4 für Partikel mit einer Größe über  $0,28 \mu\text{m}$  und über  $3 \mu\text{m}$ . Konventioneller Rückbau.

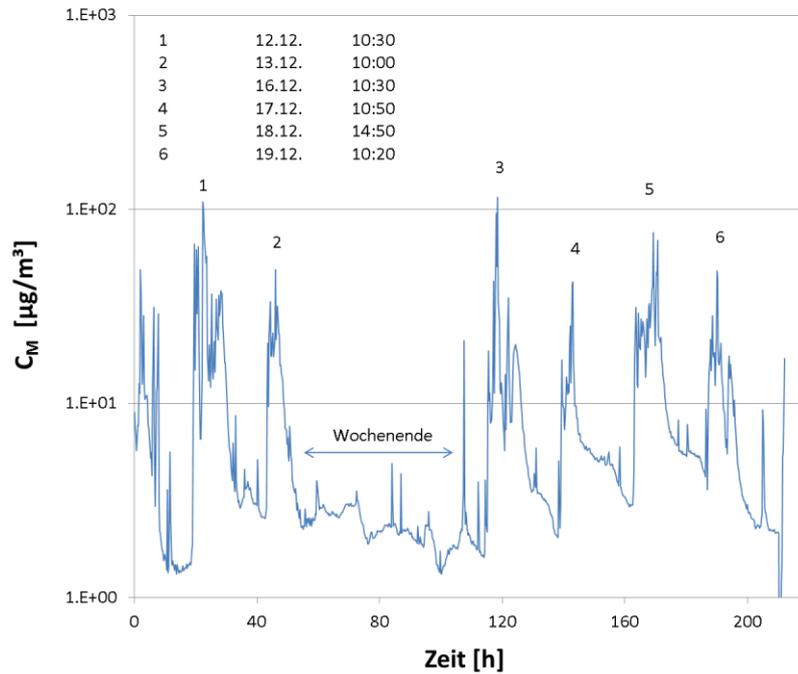


Abb. 13: Partikelmassenkonzentration  $C_M$  während der Kampagne 4 für Partikel mit einer Größe über  $0,28 \mu\text{m}$ . Die Konzentrationsspitzen erscheinen immer tagsüber und sind damit mit hoher Wahrscheinlichkeit den Rückbauarbeiten zuzuordnen.

Die typische Anzahlgrößenverteilung in der Luft des Reaktorgebäudes während konventioneller Rückbautätigkeit zum Zeitpunkt einer Massenkonzentrationsspitze ist in Abb. 14 dargestellt. Die Verteilung ist offensichtlich bimodal. Der gröbere Anteil ( $>3 \mu\text{m}$ ) ist vermutlich auf mechanische Zerkleinerungsprozesse zurückzuführen. Dieser bestimmt letztendlich auch die Massenkonzentration. Zum Vergleich: Es befanden sich keine groben Partikel in der Abluft des Filtermobils.

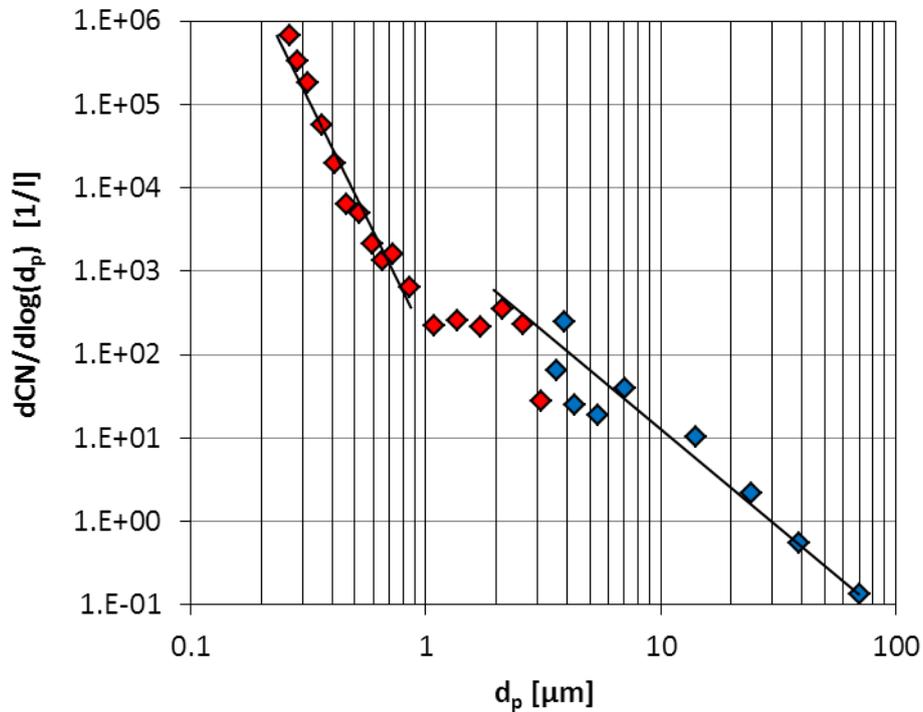


Abb. 14: Anzahlgrößenverteilung während der Kampagne 4: Partikel mit einem Durchmesser von kleiner als  $3 \mu\text{m}$  wurden mit dem Grimm-Zähler (rot), Partikel mit einem Durchmesser von größer als  $3 \mu\text{m}$  mit dem LASAIR-Gerät gemessen (blau).

In der Kampagne 5 vom 26.03. bis 06.04.2014 standen nur Daten des LASAIR zur Verfügung. Der Grimm-Zähler war kurz nach Beginn der Kampagne aufgrund eines Hardwarefehlers ausgefallen. Während der Zerlegetätigkeiten der schwach oberflächenkontaminierten Bauteile wurden die in Abb. 15 und Abb. 16 dargestellten Anzahl- und Massenkonzentrationen in der aus dem Gebäudesumpf abgesaugten, ungefilterten Luft gemessen. Emissionsspitzen von bis zu  $1 \text{ mg/m}^3$  treten tagsüber während staubgenerierender Zerlegearbeiten auf. Die Anzahlgrößenverteilung der Grobpartikel (Abb. 17) wird durch ein Potenzgesetz beschrieben, was typisch ist für mechanisch durch Schleifen oder Fragmentieren erzeugte Aerosolpartikel [Her 90]. Zum Vergleich ist auch die Größenverteilung in der gefilterten Abluft beim Abkreisen (Kampagne 2) gezeigt. Hier konnten im Grobpartikelbereich keine Partikel nachgewiesen werden. Die Größenverteilung im Feinstbereich zeigt ebenfalls eine Struktur (Potenzgesetz mit anderem Exponenten), die auf einen abrieb- bzw. fragmentierungsbedingten Aerosolerzeugungsmechanismus hindeutet [Kun 99].

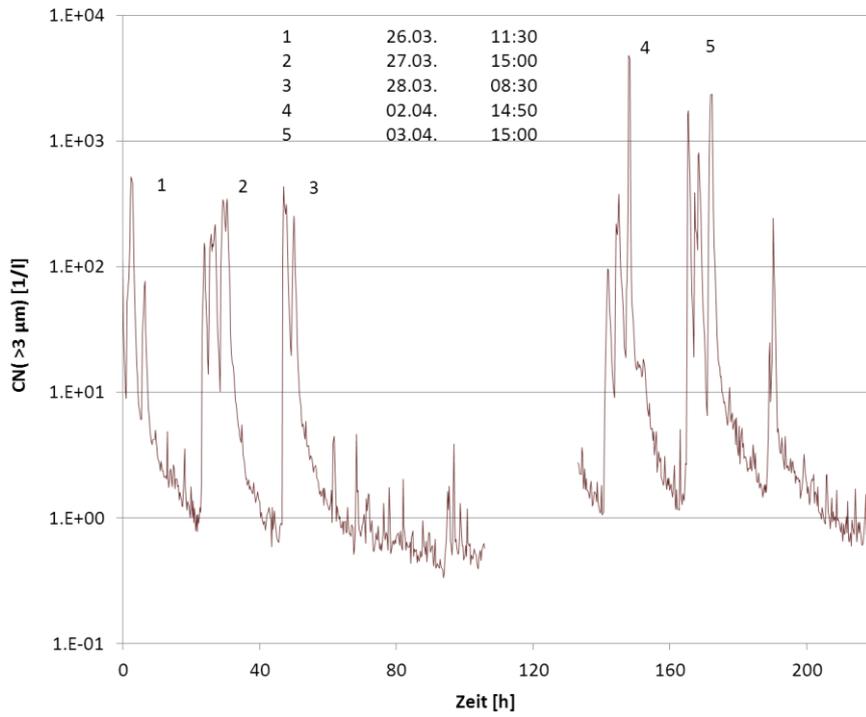


Abb. 15: Anzahlkonzentration  $C_N$  der Grobpartikel mit einer Größe über  $3 \mu\text{m}$  während der Messkampagne 5. Die Konzentrationsspitzen erscheinen immer tagsüber und sind damit mit hoher Wahrscheinlichkeit den Zerlegearbeiten zuzuordnen.

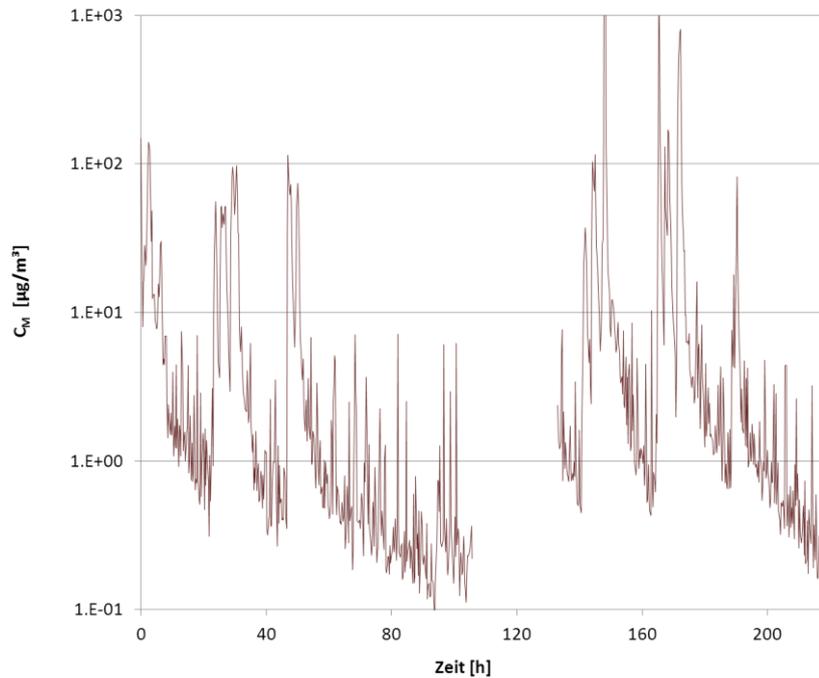


Abb. 16: Massenkonzentration  $C_M$  der Grobpartikel mit einer Größe über  $3 \mu\text{m}$  während der Messkampagne 5.

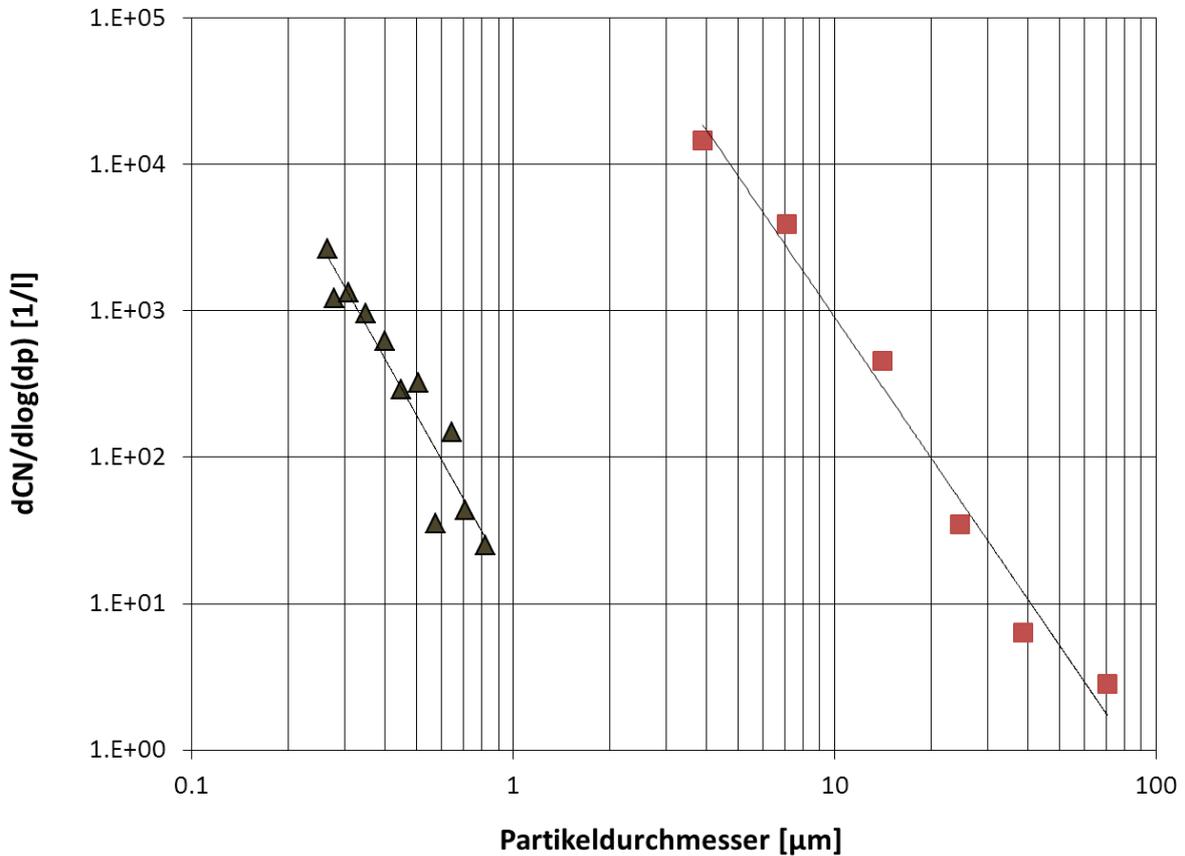


Abb. 17: Anzahlgrößenverteilung während der Kampagne 5 zum Zeitpunkt 4; Partikel mit einem Durchmesser von größer als 3  $\mu m$  wurden mit dem LASAIR-Gerät gemessen (Quadrate). Zum Vergleich auch die Anzahlgrößenverteilung der gefilterten Luft bei Zerlegearbeiten (Abkreisen) während der Kampagne 2 (Dreiecke) mit Werten unter der Nachweisgrenze für  $d > 1 \mu m$ .

### 3.2 Analyse der Impaktorfilter

#### 3.2.1 Chemische Analyse der Impaktorfilter

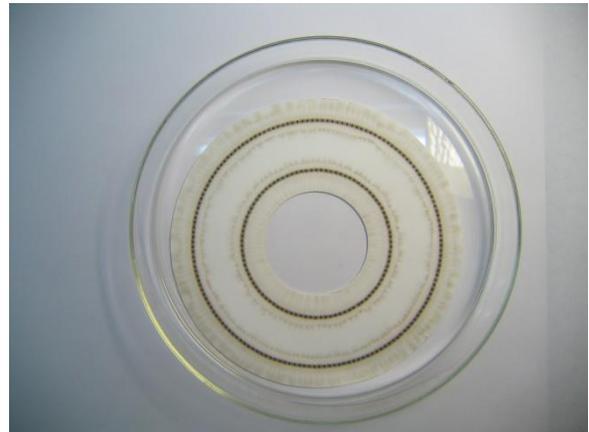
Die Bestimmung der freigesetzten Elemente erfolgte im Labor des FhG-ITEM unter Verwendung eines Quadrupol ICP-MS-Systems vom Typ X-Series II (Fa. Thermo Scientific). Das System arbeitet dabei unabhängig vom Analyten (Multielementbestimmung) und ist überwiegend matrixunabhängig, so dass unabhängig vom Elementgehalt der Proben identische Kalibrierfunktionen bei z. B. variabler Probenverdünnung eingesetzt werden können. Zur Kompensation von apparativen Schwan-

kungen der Signalintensität werden 10 ng/ml Lutetium als interner Standard zu Proben, Standardlösungen und Verfahrensblindwerten addiert.

Auf den Probenentnahmefiltern der ersten drei Kampagnen konnte kein elementspezifischer Nachweis der Belegung geführt werden. Aufgrund der guten Filterwirkung des Filtermobils führte die Langzeitprobenentnahme trotz des hohen akkumulierten Luftprobenvolumens von bis zu 7600 m<sup>3</sup> nicht zu einer nennenswerten Akkumulation von Masse. Bei den Kampagnen 4 und 5 war die Massenbelegung deutlich höher (vgl. Abb. 18). Die Ergebnisse der ICP-MS-Messungen für die Kampagnen 4 und 5 sind in Tab. 6 und in Tab. 7 zu finden. Die Probenvolumina betragen 4560 m<sup>3</sup> für Kampagne 4 und 5472 m<sup>3</sup> für Kampagne 5. Die Konzentrationsangaben beziehen sich auf die reinen Elemente. Die Messergebnisse der massenmäßig dominanten Elemente basieren auf der Verwendung von Kalibrierstandards. Den mit semiquantitativ gekennzeichneten Elementen liegt mangels verfügbaren Standards keine Kalibrierung zugrunde. Hier wurde von theoretischen Responsewerten ausgegangen und die Signalstärke (counts) damit umgerechnet. In Abb. 19 sind die Gesamtkonzentrationen der quantitativ bestimmten Elemente geordnet nach ihrer Größe dargestellt. Bis auf Blei und Barium ist die Reihenfolge der Elementkonzentrationen für beide Messkampagnen gleich. Die Elemente Calcium, Eisen und Zink haben die höchsten Konzentrationen. Die Zerlegearbeiten in Kampagne 5 spiegeln sich in der chemischen Zusammensetzung der Aerosolproben nicht unmittelbar wider. In der relativen Zusammensetzung (Abb. 20) ist nur Be bei der Kampagne 5 mit mehr als einem Faktor 2 gegenüber Kampagne 4 erhöht, während es für die Elemente Ba, Rb, Co und Na umgekehrt ist.



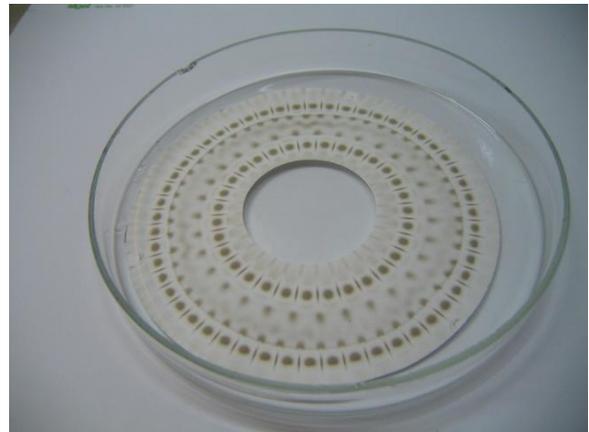
Filter für Partikel kleiner  $0,4 \mu\text{m}$



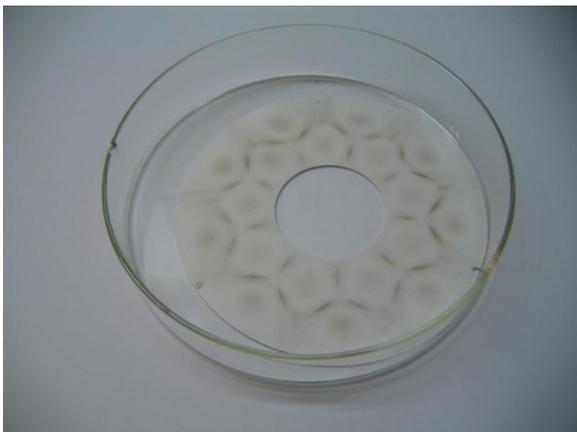
Filter für Partikel zwischen  $0,4$  und  $1 \mu\text{m}$



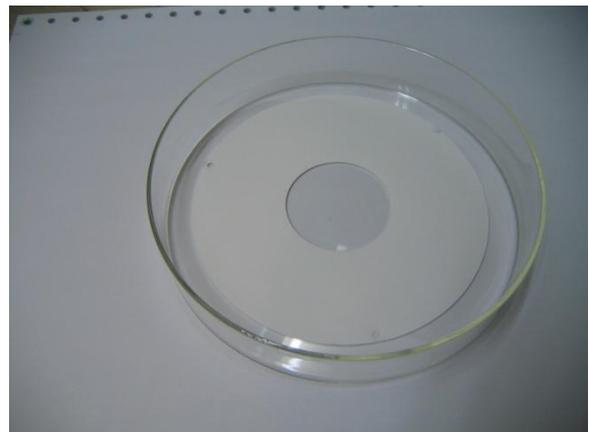
Filter für Partikel zwischen  $1$  und  $2,5 \mu\text{m}$



Filter für Partikel zwischen  $2,5$  und  $10 \mu\text{m}$



Filter für Partikel zwischen  $10$  und  $30 \mu\text{m}$



Filter für Partikel größer  $30 \mu\text{m}$

Abb. 18: Fotos der Impaktorfilter aus Kampagne 5.

	< 0,4	0,4–1	1–2,5	2,5–10	10–30	> 30 µm
	[ng/m <sup>3</sup> ]					
Ca	821	137	171	823	235	79,5
Fe	285	55,9	68,0	261	70,8	38,6
Zn	146	19,6	25,0	182	78,0	38,1
Al	133	22,9	27,7	111	34,7	13,6
Na	84,3	35,5	37,9	46,7	36,2	34,8
Mg	33,2	6,3	7,4	29,7	10,0	4,7
Cu	46,0	7,74	7,43	25,0	2,81	0,63
Mn	13,2	2,8	1,4	4,1	1,1	0,54
Ni	5,0	1,1	0,70	2,7	0,98	0,79
Sr	2,42	0,54	0,60	2,28	0,77	0,37
Ba	0,86	1,0	1,2	0,69	1,1	1,4
Pb	1,6	0,40	0,48	0,64	0,60	0,45
Cd	0,92	0,11	0,14	0,88	0,36	0,20
Co	0,44	0,06	0,07	0,61	0,14	0,02
Rb	0,65	0,07	0,06	0,23	0,07	0,02
Li	0,15	0,01	0,05	0,20	0,02	0,01
Be	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01
U	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01
<i>Semiquantitativ</i>						
<i>B</i>	8,7	0,83	0,64	3,2	1,0	0,26
<i>K</i>	328	24,5	22,6	82,2	23,8	8,4
<i>Ti</i>	3,2	0,70	0,68	2,4	1,5	0,86
<i>Cr</i>	9,1	3,2	1,2	2,6	0,78	0,60
<i>Ga</i>	0,18	0,03	0,03	0,04	0,03	0,03
<i>As</i>	5,0	0,10	0,08	0,13	0,01	0,04
<i>Y</i>	0,09	0,02	0,02	0,13	0,03	0,01
<i>Zr</i>	0,18	0,03	0,04	0,20	0,07	0,03
<i>Mo</i>	1,0	0,16	0,17	0,42	0,10	0,05
<i>Ag</i>	0,41	0,02	0,01	0,02	0,01	0,01
<i>Sn</i>	3,1	0,38	0,35	1,3	0,27	0,10
<i>Sb</i>	2,12	0,34	0,30	0,48	0,08	0,03
<i>Cs</i>	0,04	0,01	0,01	0,02	0,01	0,01
<i>La</i>	0,05	0,01	0,01	0,05	0,01	0,01
<i>Ce</i>	0,10	0,02	0,02	0,10	0,03	0,011
<i>Nd</i>	0,06	0,01	0,01	0,06	0,02	0,01
<i>W</i>	0,24	0,04	0,06	0,15	0,10	0,12
<i>Tl</i>	0,02	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01
<i>Bi</i>	0,12	0,02	0,01	0,05	0,01	0,01
<i>Th</i>	0,02	0,01	0,01	0,03	0,01	0,01

Tab. 6: Ergebnisse der Elementanalyse der Impaktorsammlung aus Kampagne 4.

	< 0,4	0,4–1	1–2,5	2,5–10	10–30	> 30 µm
	[ng/m <sup>3</sup> ]					
Li	0,27	0,05	0,06	0,11	0,06	0,04
Be	0,05	0,04	0,04	0,04	0,04	0,04
Na	73,3	30,6	33,2	47,9	30,7	28,9
Mg	61,3	6,3	8,8	21,2	10,4	2,7
Al	194	18,8	26,1	64,9	31,4	5,8
Ca	3162	301	455	1259	508	70,6
Fe	784	78,3	100	236	102	18,5
Mn	42,8	3,4	2,4	4,0	1,6	0,3
Co	0,50	0,05	0,07	0,22	0,11	0,02
Ni	8,6	0,97	1,4	3,2	1,7	0,45
Cu	56,0	8,1	9,5	8,3	2,9	1,0
Zn	365	34,6	49,3	89,2	49,6	11,1
Rb	0,55	0,05	0,06	0,19	0,08	0,01
Sr	5,1	0,60	0,85	2,07	0,97	0,25
Cd	1,9	0,17	0,26	0,41	0,25	0,12
Ba	0,49	0,68	0,74	0,50	0,75	1,3
Pb	5,9	0,61	0,78	1,08	0,83	0,32
U	0,03	0,01	0,02	0,02	0,02	0,01
<i>Semiquantitativ</i>						
<i>B</i>	36,2	4,1	5,26	10,8	4,8	1,7
<i>K</i>	135	13,2	16,7	41,6	19,0	4,8
<i>Ti</i>	19,7	1,4	1,9	4,9	3,5	1,2
<i>Cr</i>	10,2	1,1	1,4	3,5	2,0	0,6
<i>Ga</i>	0,08	0,02	0,02	0,03	0,02	0,03
<i>As</i>	0,55	0,08	0,14	0,20	0,09	0,09
<i>Y</i>	0,13	0,01	0,02	0,06	0,03	< 0,01
<i>Zr</i>	0,50	0,04	0,07	0,14	0,07	0,01
<i>Mo</i>	2,30	0,26	0,43	1,02	0,31	0,05
<i>Ag</i>	0,23	0,02	0,02	0,04	0,01	< 0,01
<i>Sn</i>	2,47	0,27	0,34	0,48	0,21	0,06
<i>Sb</i>	1,53	0,13	0,18	0,29	0,12	0,03
<i>Cs</i>	0,06	< 0,01	< 0,01	0,02	< 0,01	< 0,01
<i>La</i>	0,08	< 0,01	0,01	0,03	0,01	< 0,01
<i>Ce</i>	0,18	0,02	0,03	0,07	0,03	< 0,01
<i>Nd</i>	0,13	0,01	0,01	0,04	0,02	< 0,01
<i>W</i>	0,80	0,09	0,14	0,37	0,19	0,07
<i>Tl</i>	0,02	< 0,01	< 0,01	< 0,01	< 0,01	< 0,01
<i>Bi</i>	0,08	< 0,01	< 0,01	0,02	< 0,01	< 0,01
<i>Th</i>	0,05	< 0,01	< 0,01	0,02	< 0,01	< 0,01

Tab. 7: Ergebnisse der Elementanalyse der Impaktorsammlung aus Kampagne 5.

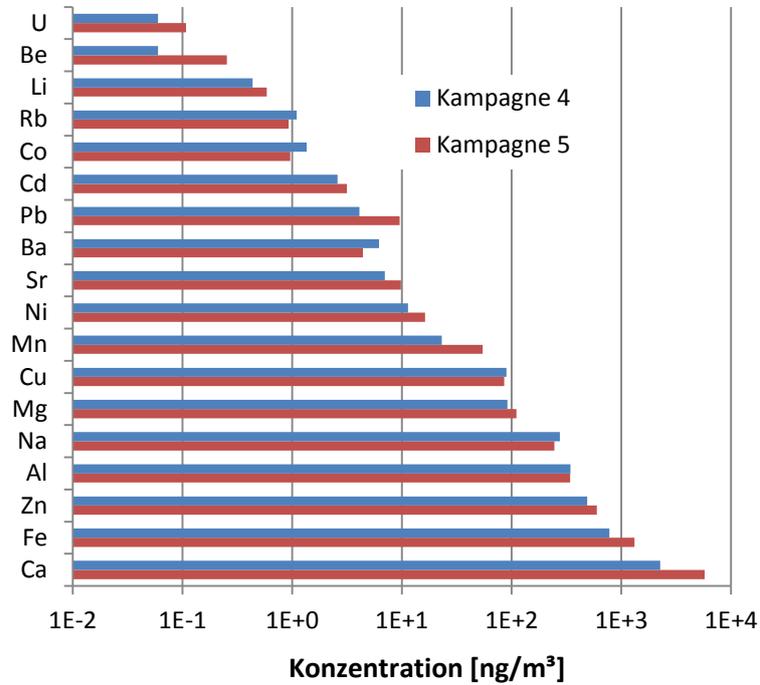


Abb. 19: Massenkonzentration der massenmäßig dominanten und quantitativ bestimmten Elemente der summierten Impaktor/Filter-Proben aus den Kampagnen 4 und 5. Nur für Ba und Pb ist die Reihenfolge unterschiedlich.

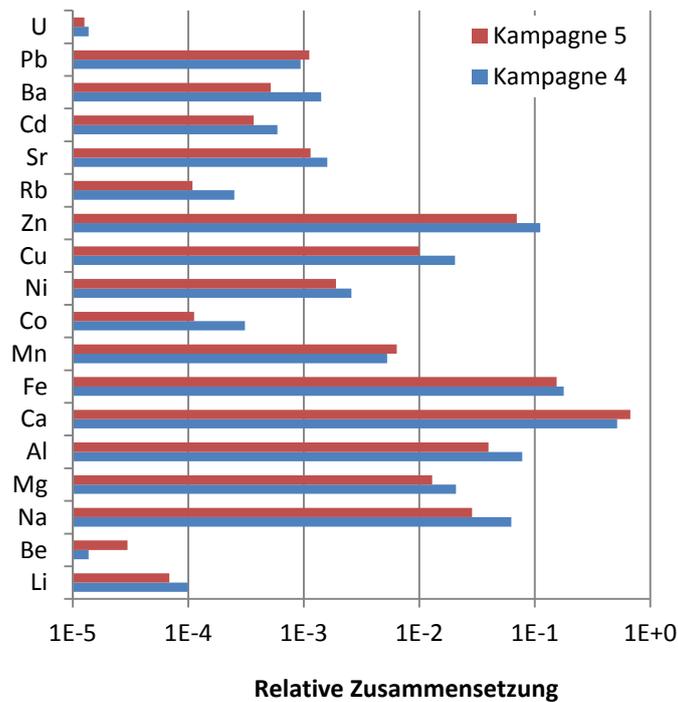


Abb. 20: Relative Elementzusammensetzung der summierten Impaktor/Filter-Proben aus den Kampagnen 4 und 5.

Für Messkampagne 4 erklärt die addierte Masse der chemisch bestimmten Elemente ca. 50 % der Gesamtmasse, wie sie aus den Anzahlmessungen errechnet wurde. Bei Kampagne 5 sind dies nur ca. 10 %. Hier lagen aber mindestens drei Spitzen mit sehr hoher Konzentration von ca. 1000  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (Abb. 16) vor, die eventuell durch andere als die in der Liste aufgeführten Elemente, beispielsweise Kohlenstoff oder Silizium, dominiert wird.

Die mit den gemessenen Elementen assoziierten Partikelgrößenverteilungen in Kampagne 4 und Kampagne 5 zeigen Abb. 21 und Abb. 22.

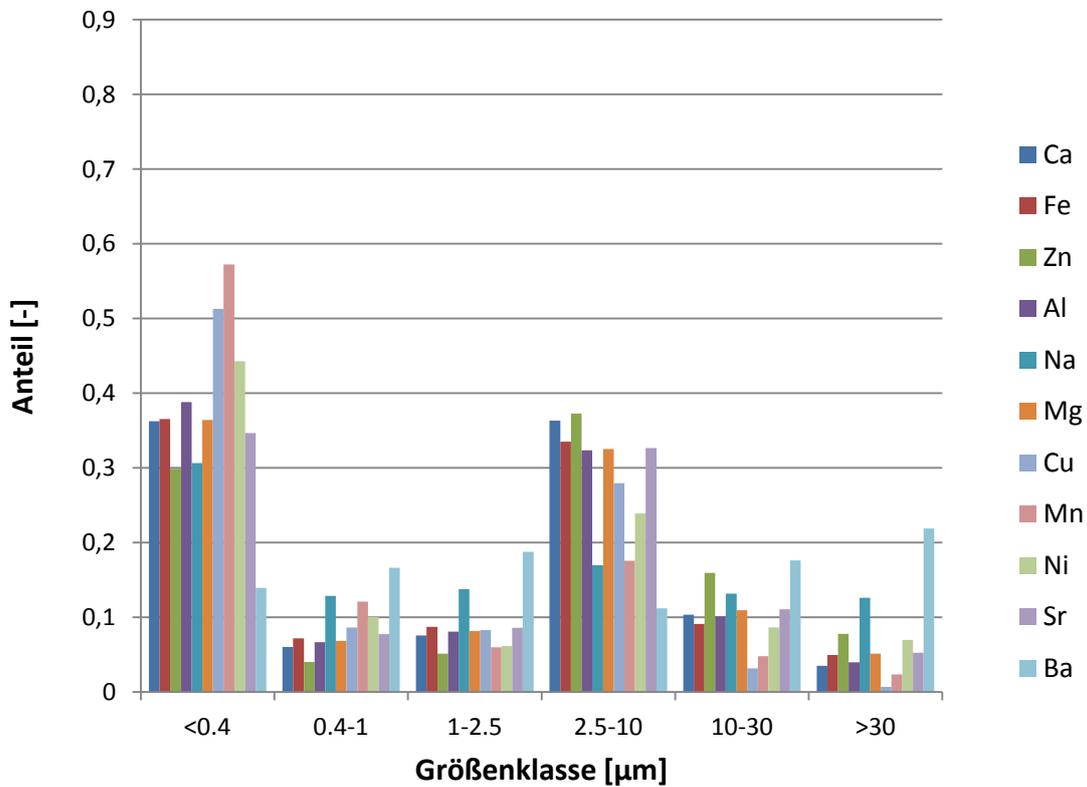


Abb. 21: Massengrößenverteilung der chemischen Elemente der Impaktorprobe aus Kampagne 4.

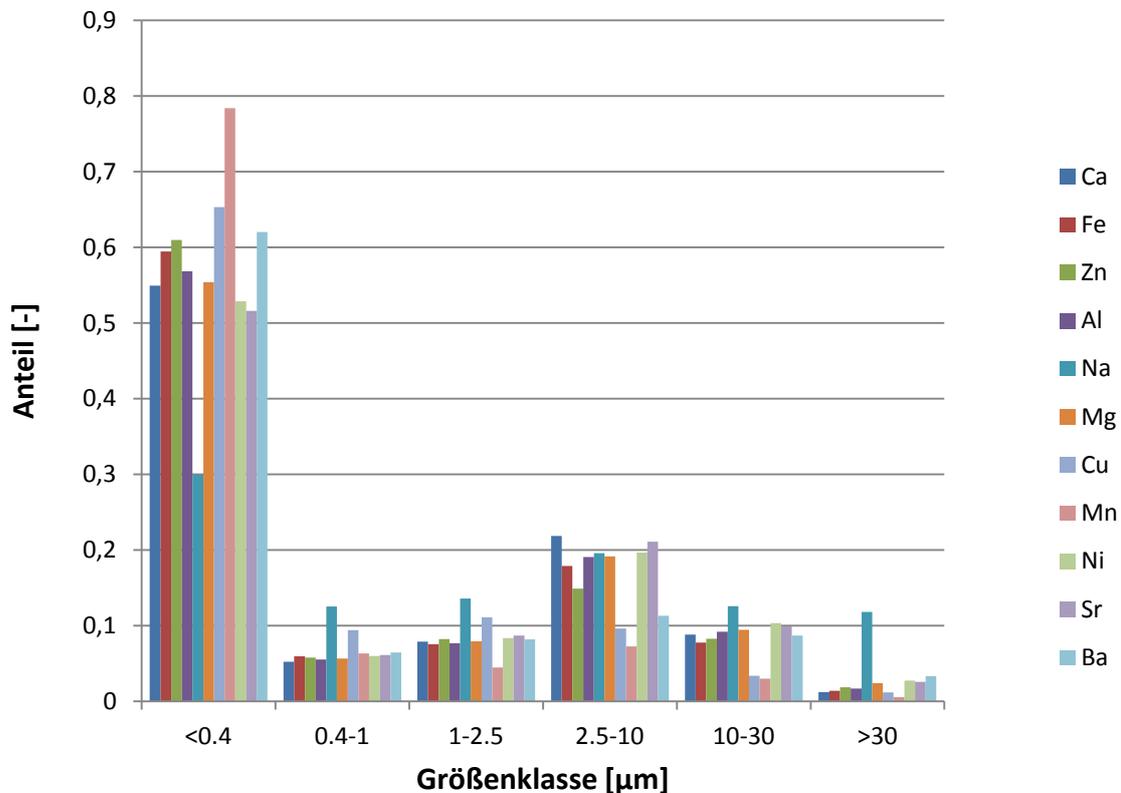


Abb. 22: Massengrößenverteilung der chemischen Elemente der Impaktorprobe aus Kampagne 5.

In beiden Kampagnen weist der endständige Filter die höchste Belegung auf, was eher ungewöhnlich ist. Dies könnte auf eine Überladung des Impaktors zurückzuführen sein, die dazu führt, dass Partikel von oberen Stufen durch den Impaktor „hindurchwandern“. Die in der Abb. 23 am Beispiel der Impaktorstufe D bei der Kampagne 5 deutlich zu erkennenden Sekundärabscheidungen sind ein Hinweis auf Überladung mit Aerosolmasse. Diese hohe Massenbelastung während der Kampagne 5 war nicht vorherzusehen, da der potentielle Staubanfall bei den geplanten Zerlegearbeiten im Vorfeld der Probenentnahme nicht abgeschätzt werden konnte. Bei der Kampagne 4 ist der Effekt weniger ausgeprägt. Insgesamt ist festzustellen, dass die Verteilung zu kleineren Partikelgrößen verschoben ist und eine exakte Bestimmung der Größenverteilung damit nicht möglich ist. Bezüglich der Emission über die Fortluft ist dies von untergeordneter Bedeutung, da vor der Ableitung über den Kamin eine zusätzliche Filterung der gesamten Abluft stattfindet.

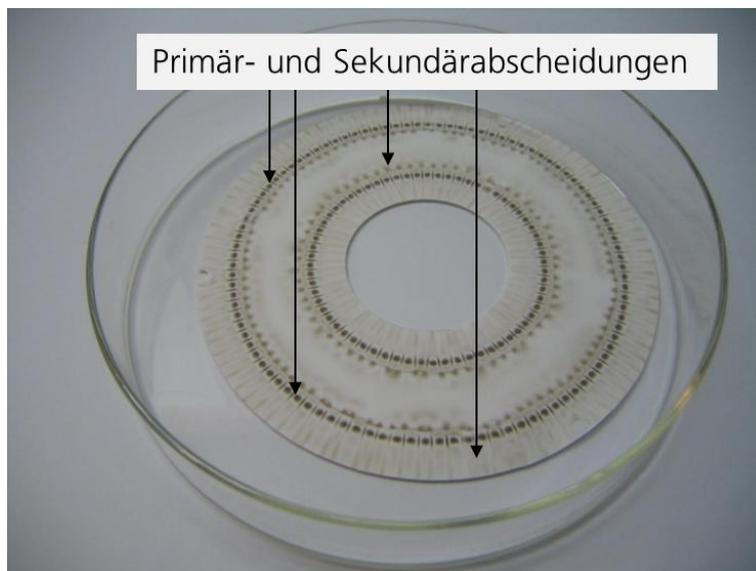


Abb. 23: Partikelabscheidemuster auf Impaktorstufe D (1 – 2,5  $\mu\text{m}$ ) der Kampagne 5.

Die Art der Probenentnahme könnte eine Ursache für die unterschiedliche Beladung der obersten Stufe in den Kampagnen 4 und 5 sein. In Kampagne 4 wurde über einen Ringspalt die Luft des Impaktors direkt aus der umgebenden Raumlufte entnommen. Grobe, luftgetragene Partikel können somit ungehindert in das Gerät gelangen. Das Vorkommen von Grobstaub während der Kampagne 4 aufgrund von lokalen Aktivitäten am Baukörper zeigte sich in einer auf den Oberflächen am Standort abgelagerten weißen Staubschicht. Die Probenentnahme in Kampagne 5 erfolgte standortbedingt über einen längeren Schlauch, in dem insbesondere grobe Partikel abgeschieden werden und daher nicht auf der obersten Impaktorstufe auftauchen.

### **3.2.2 Bestimmung der nuklidspezifischen Aktivitätsverteilung**

#### *Analyse der Filterproben*

Die während der im Kapitel 3.1 beschriebenen Kampagnen 1 bis 3 sowie 5 gesammelten Impaktor-Proben wurden zusätzlich zu den aufgeführten chemischen Analysen im akkreditierten Messlabor der TÜV SÜD Industrie Service GmbH in München auf radioaktive Schwebstoffe analysiert. Die Proben der Kampagne 4 waren davon ausgenommen, da sie aus nicht radioaktiv kontaminierter Raumluft stammten. Es wurde an den jeweils sechs Filterproben der vier genannten Kampagnen zunächst eine gammaspektrometrische Messung gemacht. Die Filterproben aus der Kampagne 5 wiesen eine deutliche Belegung mit Staub auf. Die Analyse der Proben erfolgte auf einem nuklidspezifischen Messplatz mit einem Reinstgermanium-Detektor mit einer relativen Nachweiswahrscheinlichkeit von 30 %. Es wurde bei den Messungen eine Nachweisgrenze für Cs-137 von 0,1 Bq/Probe angestrebt. Mit dem BfS war ein abgestuftes Vorgehen bei den Messungen derart vereinbart worden, dass bei einer Aktivität bei der gammaspektrometrischen Messung über der Nachweisgrenze anschließend eine Gesamtalpha- und Gesamtbeta-Messung an der entsprechenden Filterprobe durchgeführt würde. Diese Messung erfolgte dann auf einem 10fach-Schälchen-Messplatz LB770 der Fa. Berthold über einen Zeitraum von einer Stunde.

#### *Filterproben aus der Abluft nach einem Filtermobil*

Die Probenentnahme der Schwebstoffe aus der Abluft nach einem Filtermobil ist im Kapitel 3.1 beschrieben (Kampagne 1 bis 3). Es stand zur Analyse jeweils eine Hälfte der Celluloseacetatfilter zur Verfügung. Sie wurden zusammengefaltet, in ein Döschen mit einem Durchmesser von ca. 5 cm gelegt und auf dem nuklidspezifischen Messplatz gemessen. Die Messdauer betrug zwischen 21 Stunden und 15 Tagen pro Probe. Es wurden Nachweisgrenzen für Cs-137 von maximal 0,033 Bq/Probe erreicht, wenn die Kalibrierung für eine Messgeometrie für einen Filter mit 5 cm Durchmesser zugrunde gelegt wurde. Die Analyse ergab, dass keine Aktivität oberhalb der Nachweisgrenzen gefunden wurde. Aufgrund dessen wurde keine detailliertere Kalibrierung für die Filter in ihrer tatsächlichen Messgeometrie erstellt. Gemäß dem abgestuften Vorgehen wurden keine Gesamtalpha- und Gesamtbeta-Messungen durchgeführt.

Es ergab sich insgesamt, dass die mit Hilfe eines Filtermobils durchgeführte Filterung der Abluft aus dem Bereich mit Luftkontaminationen ausreichend war, um Aerosolpartikel so weit zu reduzieren, dass keine radioaktiven Stoffe über der genannten Nachweisgrenze gefunden wurden.

#### *Filterproben aus ungefilterter Abluft*

Die Probenentnahme der Schwebstoffe aus einer ungefilterten Abluft ist im Kapitel 3.1 beschrieben (Kampagne 5). Wir hatten zur Messung in diesem Fall die ungeteilten Filter zur Verfügung. Sie wurden zentriert direkt auf dem Germaniumdetektor zwischen einem und zwei Tagen gemessen. Zur Auswertung wurde eine rechnerische Kalibrierung, die an die Geometrie der inhomogen bestaubten Filterflächen angepasst worden war, verwendet. Die Aktivitäten radioaktiver Stoffe auf den Filtern sind in Tab. 8 angegeben bzw. in Abb. 24 dargestellt.

Partikelgrößen in $\mu\text{m}$	< 0,4	0,4 – 1	1 – 2,5	2,5 – 10	10 – 30	> 30	Summe
K-40	8,0	16,6	17,2	84	23,2	22,0	171
Unsicherheit	0,7	1,1	1,1	5	1,4	1,3	10
Co-60	432	40,7	63	200	81	16,2	830
Unsicherheit	23	2,1	4	11	5	0,9	50
Cs-137	11,3	0,82	1,15	4,1	1,84	0,31	19,5
Unsicherheit	0,9	0,08	0,10	0,4	0,15	0,03	1,5
Am-241	1,18	< 0,06	< 0,06	0,74	0,20	< 0,04	2,1
Unsicherheit	0,22			0,14	0,05		0,4
Gesamtaktivität	453	58	81	289	106	38,6	1030
Unsicherheit	24	4	5	16	6	2,2	60

Tab. 8: Gammaskopimetrisch gemessene Aktivitäten auf den Impaktorfiltern in Bq.

Die gefundenen Nuklide waren K-40, Co-60, Cs-137 sowie bei der Hälfte der Proben Am-241. Als Unsicherheiten wurden neben den Unsicherheiten bei der Erstellung der Effizienzen auch die Unsicherheiten bei der Kalibrierung berücksichtigt, da die Filterfläche nicht einheitlich bestaubt ist, sondern vielmehr eine unregelmäßige Verteilung der Bestäubung und damit auch der Aktivität vorliegt. Gemäß dem abgestuften Vorgehen wurden aufgrund der gefundenen Aktivitäten von Gammastrahlern auch Gesamtalpha- und Gesamtbeta-Messungen durchgeführt. Es ergaben sich bei der Analyse eines Teilstückes der Filter auf einem Gesamtalpha- und Gesamtbeta-Messplatz

folgende Alpha- und Betaaktivitäten hochgerechnet auf die Gesamtaktivität auf dem Filter (Tab. 9):

Partikelgröße in $\mu\text{m}$	< 0,4	0,4 – 1	1 – 2,5	2,5 – 10	10 – 30	> 30	Summe
EG/NWG für Alpha	0,041 / 0,11			0,032 / 0,087			
EG/NWG für Beta	0,16 / 0,35			0,13 / 0,28			
Alpha	3,7	0,30	0,43	0,80	0,65	< 0,032	5,9
Unsicherheit	0,6	0,11	0,14	0,19	0,17		1,2
Beta	1070	102	189	410	180	15,6	1970
Unsicherheit	140	13	24	50	23	2,1	250

Tab. 9: Gesamtalpha- und Gesamtbetaaktivitäten auf den Impaktorfiltern in Bq.

Die gemessenen Alpha- und Betaaktivitäten liegen im Rahmen der Ergebnisse der gammaspektrometrischen Messungen. Die Unterschiede um den Faktor 2 sind u. a. auf die Berücksichtigung der Selbstabsorption zurückzuführen. Bei den Unsicherheiten wurde berücksichtigt, dass bei der Gesamtalpha- und Gesamtbeta-Messung keine regelmäßige, sondern nur eine angeschnittene Kreisfläche gemessen wurde, da die Kreisringe der Filter kleiner waren als der Durchmesser der Schälchen des Messplatzes.

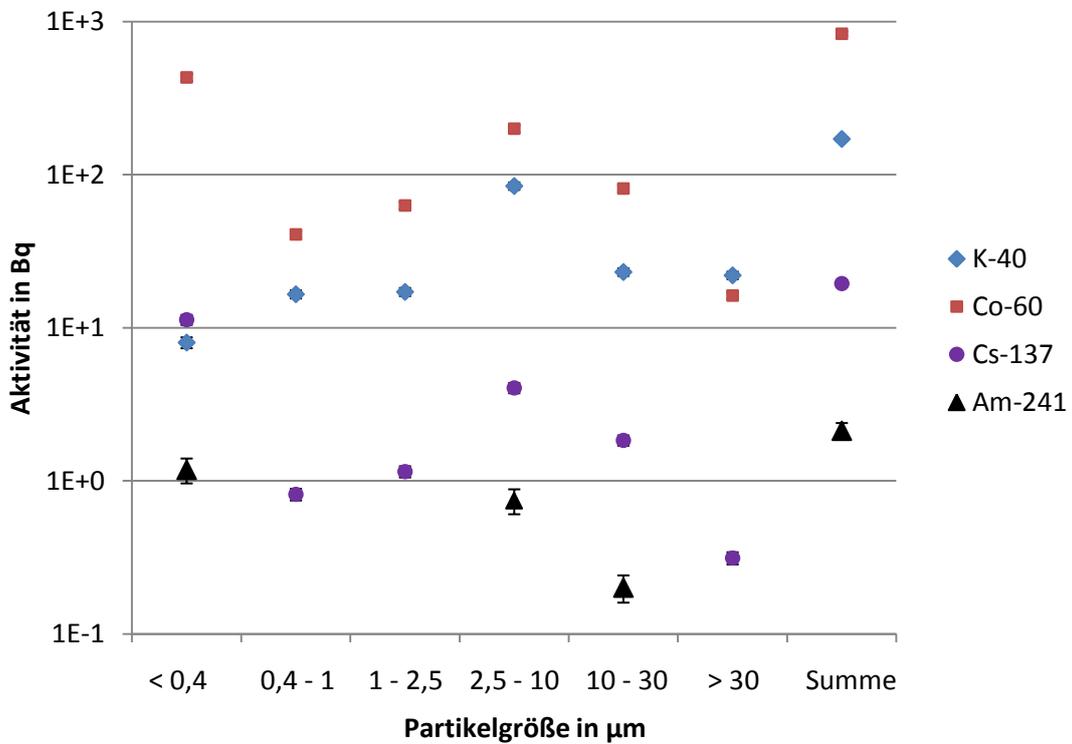


Abb. 24: Gammaspektrometrisch gemessene Aktivitäten auf den Filtern der Kampagne 5. Die Unsicherheiten sind durch Balken gekennzeichnet bzw. liegen innerhalb der verwendeten Symbole.

Mit den Angaben des durchgeströmten Luftvolumens von  $5472 \text{ m}^3$  ergibt sich daraus eine mittlere Aktivität in der beprobten Luft von ca.  $0,2 \text{ Bq/m}^3$ . Dieser Wert liegt weit unterhalb von Werten für Schutzmaßnahmen, z. B. Vollmaske, die üblicherweise bei einer Aktivitätskonzentration für an Schwebstoffen gebundene radioaktive Stoffe von  $100 \text{ Bq/m}^3$  erfolgen.

#### **4 Rechnerische Bestimmung der Abscheideverluste im Probenentnahmesystem**

Bei der rechnerischen Bestimmung der Abscheideverluste für das zur Emissionsüberwachung und Bilanzierung eingesetzte Probenentnahmesystem sollten die Abscheideverluste durch Sedimentation, Impaktion, Koagulation, Diffusion und Turbulenzen berücksichtigt werden.

Zur Bestimmung des Verlustfaktors in Probenentnahmesystemen enthält die DIN ISO 2889 [DIN 12] Methoden und Vorgaben. Präzisiert werden diese Methoden und Vorgaben im Beiblatt 3 zur DIN ISO 2889 [DIN 15], auf das wir bei der Berechnung der theoretischen Verlustfaktoren unter anderem zurückgegriffen haben.

Von den in der Leistungsbeschreibung genannten Verlustmechanismen

- Sedimentation,
- Impaktion,
- Koagulation,
- Diffusion und
- Turbulenz

erbringen die Mechanismen Koagulation und Diffusion für die vorliegenden Randbedingungen vernachlässigbar kleine Beiträge zu den Abscheideverlusten.

Für die Diffusionsabscheidung begründet sich diese Aussage u. a. durch die Ausführungen unter Punkt 5.1.4 des Beiblattes 3 der DIN ISO 2889. Die Diffusionsabscheidung beinhaltet lediglich bei Partikeln mit Durchmessern kleiner als  $0,1 \mu\text{m}$  einen signifikanten Beitrag zum Gesamtverlustfaktor. Durch die großen Leitungsdurchmesser und hohen Strömungsgeschwindigkeiten innerhalb der Probenentnahmesysteme von Kernkraftwerken stammen von diesem Abscheidemechanismus keine relevanten Beiträge zum Gesamtverlustfaktor ab. Der im Beiblatt 3 beschriebene Abscheidemechanismus der Folgeprodukte von Edelgasnukliden entfällt für die im Rückbau befindlichen Anlagen in Gänze, da in diesen Anlagen in Ermangelung einer Edelgasnuklidquelle keine Edelgase in der Raum- und Fortluft mehr vorhanden sind.

Koagulation ist ein Prozess, bei dem Partikel aufgrund unterschiedlicher relativer Geschwindigkeiten kollidieren und größere Partikel formen. Das Resultat ist eine

kontinuierliche Abnahme in der Anzahlkonzentration und eine Zunahme der Partikelgröße, wobei die Masse der Partikel insgesamt erhalten bleibt [Hin 99]. Die Bedeutung der Koagulation liegt vor allem darin, dass mit dem durch die Koagulation bedingten Größenwachstum der Partikel ihre Eigenschaften verändert werden; so nimmt z. B. der Einfluss von Sedimentation und Impaktion mit steigender Größe der Partikel zu, während die Bedeutung der Diffusion abnimmt. Weiterhin kann durch Koagulation die äußere Gestalt der Partikel geändert werden. Die Koagulation zweier sphärischer Partikel kann zu einem resultierenden Partikel führen, dessen Gestalt sich stark von denen seiner Ausgangspartikel unterscheidet. Aufgrund der geringen Verweilzeit der Luft im Probenentnahmesystem und der niedrigen Partikelkonzentration ist die Koagulation für den Partikeltransport in dieser Untersuchung vernachlässigbar.

Die rechnerische Bestimmung der Abscheideverluste wurde am Beispiel des Probenentnahmesystems der kerntechnischen Anlage, in der die Partikelmessungen stattfanden, durchgeführt.

Das Probenentnahmesystem wurde für die Berechnung des Verlustfaktors in folgende 3 Abschnitte unterteilt:

- Probenentnahmerechen
- primäre Probenentnahmeleitung
- sekundäre Probenentnahmeleitung

Hierbei stellt der Probenentnahmerechen die Konstruktion von den Probenentnahmedüsen bis zum Sammelflansch dar. Der Probenentnahmerechen ist dann weiter zerlegbar in

- die Probenentnahmesonde,
- 2 vertikal angeordnete Krümmer,
- 1 horizontalen und
- 1 vertikalen Leitungsabschnitt.

Am Sammelflansch schließt der Rechen an die primäre Probenentnahmeleitung an. Die primäre Probenentnahmeleitung ist in folgende Komponenten zerlegbar:

- 4 vertikale Leitungen (rechnerisch zu einer zusammengefasst)
- 5 vertikale Krümmer
- 3 horizontale Krümmer

Von der primären Probenentnahmeleitung werden über zwei Probenentnahmedüsen zwei Teilluftströme entnommen und in der sekundären Probenentnahmeleitung bis zu den beaufschlagten Filtern geführt. Die sekundäre Probenentnahmeleitung ist in folgende Komponenten zerlegbar:

- Sonde
- 1 vertikaler Krümmer
- 1 vertikale Rohrleitung

Zur Berechnung der Abscheideverluste wurden folgende komponentenspezifische mathematische Beziehungen herangezogen:

Abscheidegrad  $\eta_N$  in der Probenentnahmesonde

$$\tau_D = \frac{\rho_P * D_a}{3,08 * \sqrt{\rho_L * \mu}} * \sqrt{\frac{d_E}{8 * U_m}}$$
$$x = 2 * St * \sqrt{\frac{d_E}{2 * \tau_D * U_m}}$$
$$\eta_N = 1,77 * \left(1 + \frac{L}{Fr}\right)^{-9,19} * x^{0,559} * Re^{-0,216}$$

nach Kapitel 6 des Beiblattes 3 der DIN ISO 2889 bzw. [Fan 92], mit  $\tau_D, x$  als Hilfsgrößen

- $\rho_P$  Dichte des Aerosolpartikels
- $\rho_L$  Dichte der Luft
- $D_a$  aerodynamischer Aerosolpartikeldurchmesser
- $\mu$  dynamische Viskosität

$d_E$	Innendurchmesser der Einlassöffnung einer Probenentnahmesonde
$U_m$	mittlere Strömungsgeschwindigkeit der Luftprobe
$St$	Stokes-Zahl
$L$	Länge eines Rohrs
$Fr$	Froude-Zahl
$Re$	Reynolds-Zahl

Abscheidegrad  $\eta_S$  durch Sedimentation in geradem Rohr

$$\eta_S = \frac{2}{\pi} * (2 * b_1^3 * b_2 + \arcsin b_1 - b_1 b_2)$$

nach Kap. 5.1.2.3 des Beiblattes 3 der DIN ISO 2889, mit  $b_1, b_2$  als Hilfsgrößen

Abscheidegrad  $\eta_T$  durch Turbulenz in geradem Rohr

$$\eta_T = 1 - e^{-\frac{4 * v_{aT} * L}{d_t * U_m}}$$

nach Kap 5.1.3 des Beiblattes 3 der DIN ISO 2889, mit

$v_{aT}$  Anlagerungsgeschwindigkeit in Folge von Trägheitseffekten

$d_t$  Innendurchmesser eines Rohrs

Abscheidegrad  $\eta_I$  durch Impaktion in einem vertikalen Krümmer

$$\eta_I = 1 - e^{-\frac{4 * \tau * U_m * \vartheta}{\pi * d_t}}$$

nach [Cha 82], mit

$\vartheta$  Krümmungswinkel

Abscheidegrad  $\eta_I$  durch Impaktion in einem horizontalen Krümmer

$$\eta_I = 1 - e^{-\frac{4 * \tau * R_C * \vartheta}{\pi * d_t * U_m} * \frac{g^2 + \left(\frac{U_m^2}{R_C}\right)^2}{g + \frac{U_m^2}{R_C}}}$$

nach [Cha 82], mit

$R_c$  Krümmungsradius eines Rohrs

$g$  Fallbeschleunigung

Diese beiden Formeln stammen aus einem von uns verwendeten Entwurf des Beiblattes 3 und sind dort inzwischen durch eine einfachere Formel ersetzt worden. Der Bericht [Cha 82] stellt dazu die Originalliteratur dar.

Aus den Abscheidegraden kann dann mittels der Beziehung

$$P_j = 1 - \eta_j$$

der Übertragungsgrad berechnet werden. Der Gesamtübertragungsgrad  $P$  ergibt sich dabei aus dem Produkt der einzelnen Übertragungsgrade  $P_j$

$$P = \prod_{j=1}^N P_j$$

Die mittleren Strömungsgeschwindigkeiten  $U_m$  wurden aus den Rohrleitungsdurchmessern und den bekannten Volumenströmen von 150.000 m<sup>3</sup>/h für den Fortluftstrom im Kamin und 150 m<sup>3</sup>/h für den Luftstrom in der Probenentnahmeleitung unter Annahme einer eingestellten isokinetischen Probenentnahme ermittelt. Da der Probenentnahmerechen aus sechs Probenentnahmeästen besteht (s. u.), reduziert sich der Volumenstrom für jeden Probenentnahmeast auf 25 m<sup>3</sup>/h. Daraus ergeben sich mit den jeweiligen Leitungsnenndurchmessern die folgenden mittleren Strömungsgeschwindigkeiten  $U_m$ :

	Fortluftkanal	Probenentnahme- düsen	Probenentnahme- ast	Probenentnahme- leitung
$U_m$ in $\frac{m}{s}$	16,7	16,7	8,6	5,3

Tab. 10: Mittlere Strömungsgeschwindigkeiten in der Probenentnahmeleitung.

Ein Programm zur Berechnung der komponentenspezifischen Abscheideverluste wurde in der Programmiersprache PYTHON geschrieben und damit die Abscheidever-

luste für Partikeldurchmesser von 1  $\mu\text{m}$  bis 20  $\mu\text{m}$  berechnet. Als Partikeldichte  $\rho_p$  wurde 1000  $\text{kg}/\text{m}^3$  angesetzt.

Nachfolgend werden die Berechnungen für die einzelnen Probenentnahmeabschnitte erläutert.

### Probenentnahmerechen

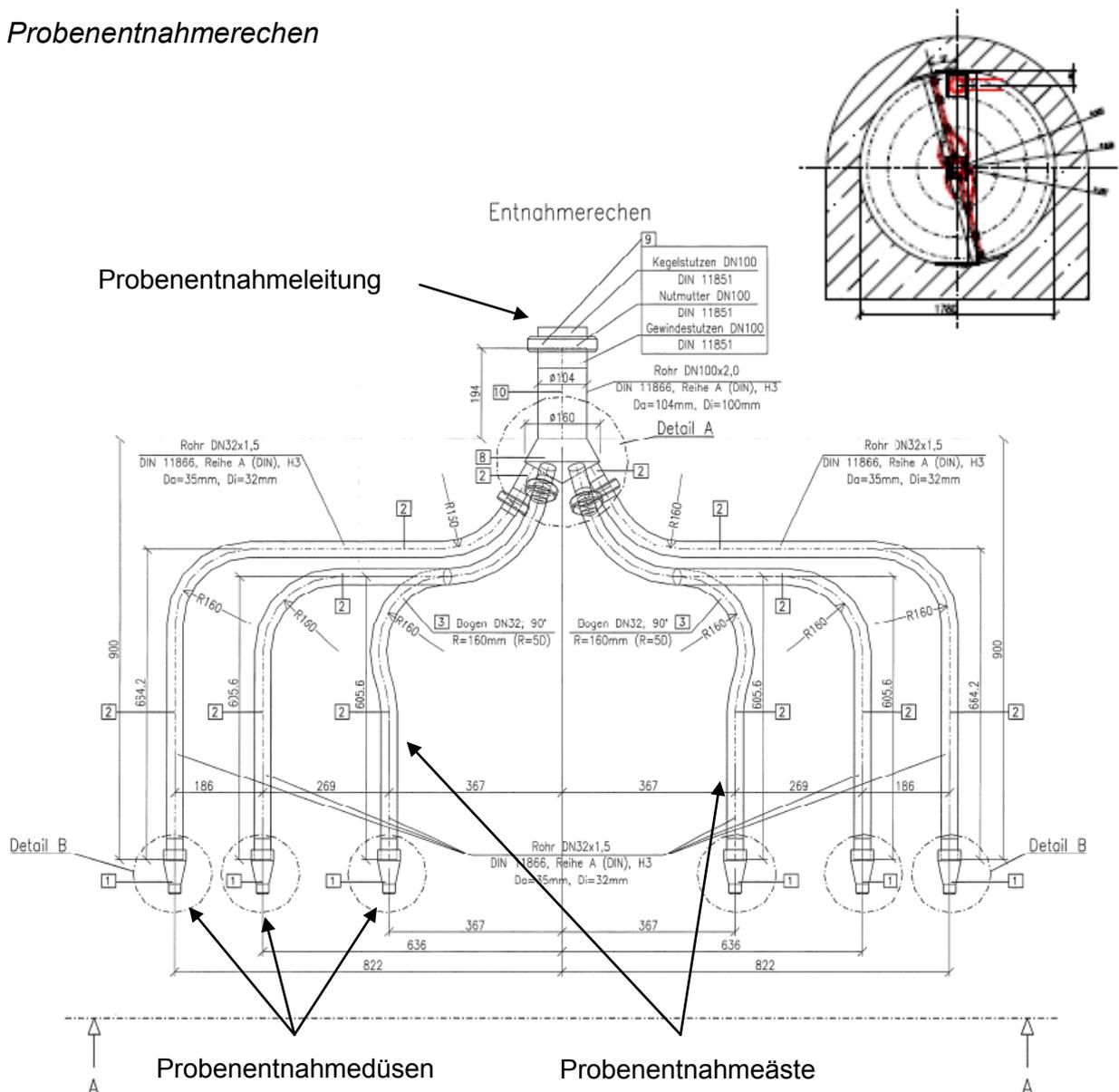


Abb. 25: Probenentnahmerechen des betrachteten Probenentnahmesystems.  
Kleines Bild rechts oben: Probenentnahmerechen in Draufsicht in Strömungsrichtung.

Der betrachtete Probenentnahmerechen ist in Abb. 25 um  $90^\circ$  gedreht dargestellt und besteht aus sechs einzelnen Sonden. Er ist in einen waagrecht verlaufenden Fortluftkanal eingebaut und entnimmt daraus über einen um  $15^\circ$  zur Vertikalen gedrehten Durchmesser die Probe. In der kleinen Abbildung in Abb. 25 rechts oben ist der Rechen in einer Draufsicht in Strömungsrichtung im waagrecht verlaufenden Kanal dargestellt.

Die Krümmer der 6 Entnahmearme sind identisch, so dass sich die Entnahmearme bei der Berechnung der Abscheidegrade lediglich in der Länge eines vertikalen Rohrleitungsstücks unterscheiden. Der Unterschied zwischen dem inneren und dem äußeren Probenentnahmearm beträgt 455 mm. Da es sich um ein vertikales Rohrleitungsstück handelt, wurde hier lediglich die Turbulenzabscheidung betrachtet. Die Turbulenzabscheidung beträgt bei den vorliegenden Randbedingungen für das in Rede stehende Rohrleitungsstück für  $3\ \mu\text{m}$  große Aerosolpartikel ca. 0,001. Für  $10\ \mu\text{m}$  große Aerosolpartikel beträgt der Abscheideverlust ca. 0,052. Aufgrund der kleinen Abscheideverluste wurde vereinfachend repräsentativ für alle Probenentnahmearme lediglich der Abscheideverlust für den mittleren Probenarm bestimmt und für die Berechnung des Verlustfaktors in der Probenentnahmeeinrichtung verwendet.

Es wurden die mittleren Probenentnahmeäste jeder Seite als repräsentativ angesehen, d. h. in Abb. 25 der zweite und der fünfte Ast von links. Somit ergaben sich als einzelne Bauteile zur Berechnung des Abscheidegrades:

- die Probenentnahmesonde (Sonde)
- eine horizontale Probenleitung (I11)
- eine vertikale Probenleitung (I12)
- zwei vertikale Krümmer (b11 und b12)

Für den horizontalen Abschnitt der Probenentnahmeleitung wurde neben der Turbulenzabscheidung auch der Abscheidegrad durch Sedimentation berechnet.

$D_a$ in $\mu\text{m}$	b11	b12	l11 (sedi.)	l11 (turbul.)	l12(turbul.)	Sonde
1	0,002	0,001	0,000	0,000	0,000	0,006
2	0,007	0,005	0,000	0,000	0,000	0,010
3	0,016	0,010	0,001	0,000	0,000	0,015
4	0,027	0,018	0,001	0,001	0,001	0,019
5	0,042	0,028	0,002	0,003	0,002	0,023
6	0,060	0,040	0,002	0,007	0,005	0,027
7	0,080	0,054	0,003	0,012	0,009	0,031
8	0,103	0,070	0,004	0,021	0,015	0,035
9	0,129	0,088	0,005	0,033	0,024	0,038
10	0,156	0,107	0,006	0,050	0,036	0,042
11	0,185	0,128	0,008	0,073	0,052	0,046
12	0,216	0,150	0,009	0,101	0,073	0,050
13	0,248	0,173	0,011	0,136	0,099	0,053
14	0,282	0,198	0,012	0,178	0,130	0,057
15	0,316	0,224	0,014	0,228	0,168	0,060
16	0,351	0,250	0,016	0,362	0,273	0,064
17	0,386	0,277	0,018	0,362	0,273	0,068
18	0,421	0,305	0,020	0,362	0,273	0,071
19	0,455	0,333	0,022	0,362	0,273	0,075
20	0,490	0,362	0,025	0,362	0,273	0,078

Tab. 11: Abscheidegrade für die Einzelkomponenten des Probenentnahmerechens für aerodynamische Aerosolpartikeldurchmesser  $D_a$  von 1 bis 20  $\mu\text{m}$ . Ab ca. 16  $\mu\text{m}$  Partikeldurchmesser ergaben sich für die Turbulenzabscheidung unveränderte Werte, da sich dann bei den vorliegenden Randbedingungen die Adsorption mit der Resorption der Teilchen die Waage hält.

### *Primäre Probenentnahmeleitung*

Die Probenentnahmeleitung lässt sich vom Rechenkopf bis zu den Entnahmestellen 1 und 2 in vier horizontale Leitungsabschnitte und 8 Krümmer unterteilen, von denen fünf vertikal und drei horizontal orientiert sind. Des Weiteren unterscheiden sich die Krümmer in ihrem Krümmungswinkel. Die für die Berechnung notwendigen Daten sind den technischen Zeichnungen zu entnehmen. Die vier horizontalen Leitungsabschnitte können wegen ihrer Gleichartigkeit rechnerisch als ein Leitungsabschnitt mit einer Gesamtlänge von 11,954 m betrachtet werden. Hierbei wurde für die Leitungslänge die Länge zur Entnahmestelle der Messanordnung 2 angesetzt, was für die Entnahmestelle der Messanordnung 1 als konservativ angesehen werden kann ( $\Delta l = 2,374$  m). Zur Ermittlung des Gesamtabscheidegrades wurde sowohl der Abscheidegrad durch Turbulenzabscheidung als auch durch Sedimentation berechnet.

In nachfolgender Tabelle sind die mit den Programmcodes rohr\_turbulenz\_absch.py, rohr.sediment\_absch.py, hori\_kruemmung\_var.py und vert.kruemmung\_var.py berechneten Abscheideverluste für die aerodynamischen Aerosolpartikelgrößen von 1 µm bis 20 µm aufgelistet.

D <sub>a</sub> in µm	I1-I4 (sedi)	I1-I4 (turbul.)	b1	b2	b3	b4	b5	b6	b7	b8
1	0,001	0,000	0,000	0,000	0,001	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
2	0,004	0,000	0,000	0,000	0,003	0,000	0,001	0,001	0,000	0,000
3	0,008	0,000	0,001	0,001	0,006	0,001	0,003	0,003	0,001	0,001
4	0,014	0,001	0,002	0,002	0,011	0,001	0,005	0,005	0,002	0,002
5	0,022	0,003	0,003	0,003	0,017	0,002	0,008	0,008	0,002	0,002
6	0,031	0,006	0,004	0,004	0,024	0,003	0,012	0,012	0,004	0,004
7	0,042	0,010	0,005	0,005	0,032	0,004	0,016	0,016	0,005	0,005
8	0,055	0,017	0,007	0,007	0,042	0,005	0,021	0,021	0,006	0,006
9	0,069	0,028	0,009	0,009	0,053	0,006	0,027	0,027	0,008	0,008
10	0,084	0,042	0,011	0,011	0,065	0,007	0,033	0,033	0,010	0,010
11	0,101	0,060	0,013	0,013	0,078	0,009	0,040	0,040	0,012	0,012
12	0,120	0,084	0,016	0,016	0,092	0,010	0,047	0,047	0,014	0,014
13	0,140	0,113	0,019	0,019	0,107	0,012	0,055	0,055	0,016	0,016
14	0,161	0,149	0,022	0,022	0,122	0,014	0,063	0,063	0,019	0,019
15	0,183	0,191	0,025	0,025	0,139	0,016	0,072	0,072	0,022	0,022
16	0,206	0,240	0,028	0,028	0,157	0,018	0,082	0,082	0,025	0,025
17	0,231	0,295	0,032	0,032	0,175	0,021	0,092	0,092	0,028	0,028
18	0,257	0,355	0,035	0,035	0,194	0,023	0,102	0,102	0,031	0,031
19	0,283	0,420	0,039	0,039	0,213	0,026	0,113	0,113	0,034	0,034
20	0,311	0,487	0,043	0,043	0,233	0,028	0,124	0,124	0,038	0,038

Tab. 12: Abscheidegrade für die Einzelkomponenten der primären Probenentnahmeleitung für aerodynamische Aerosolpartikeldurchmesser D<sub>a</sub> von 1 bis 20 µm.

### *Sekundäre Probenentnahmeeinrichtung*

Für die sekundären Probenentnahmeeinrichtungen ergaben sich folgende Komponenten:

- eine sekundäre Probenentnahmesonde (sek. Sonde)
- ein vertikaler Krümmer (b9)
- eine vertikale Probenleitung (I5)

Für die vertikale Probenleitung I5 wurde nur der Turbulenzabscheidegrad berechnet. Als mittlere Strömungsgeschwindigkeit  $U_m$  in der Probenleitung I5 wurde 2,1 m/s angesetzt, welche sich bei einer isokinetischen Probenentnahme aus dem Probenluftstrom mit der sekundären Probenentnahmesonde ergibt. Diese Strömungsgeschwindigkeit stimmt gut mit der sich aufgrund des Nenndurchsatzes an den Messgeräten von rd. 3 m<sup>3</sup>/h und den Rohrleitungsinneindurchmessern ergebenden Strömungsgeschwindigkeit in der sekundären Probenentnahme überein. Die Längen der sekundären Probenentnahmeleitungen für die Messanordnungen 1 und 2 betragen 0,90 m und 1,33 m. Die aus den unterschiedlichen Rohrleitungslängen resultierende Differenz der Abscheidegrade wurde als vernachlässigbar klein angesehen und mit dem arithmetischen Mittelwert von 1,12 m die Berechnung des Turbulenzabscheidegrades durchgeführt.

D <sub>a</sub> in µm	sekundäre		
	Sonde	b9	I5 (turbul.)
1	0,003	0,001	0,000
2	0,006	0,002	0,000
3	0,009	0,005	0,000
4	0,011	0,008	0,000
5	0,014	0,013	0,000
6	0,016	0,019	0,000
7	0,019	0,025	0,000
8	0,021	0,033	0,001
9	0,023	0,041	0,001
10	0,026	0,050	0,002
11	0,028	0,061	0,002
12	0,030	0,072	0,003
13	0,032	0,083	0,004
14	0,035	0,096	0,006
15	0,037	0,109	0,008
16	0,039	0,123	0,010
17	0,041	0,138	0,013
18	0,043	0,153	0,016
19	0,045	0,169	0,019
20	0,047	0,186	0,024

Tab. 13: Abscheidegrade für die Einzelkomponenten der sekundären Probenentnahmeleitung für aerodynamische Aerosolpartikeldurchmesser D<sub>a</sub> von 1 bis 20 µm.

Aus den Abscheidegraden ergaben sich für die drei Probenentnahmeabschnitte

- Probenentnahmerechen
- primäre Probenentnahmeleitung
- sekundäre Probenentnahmeleitung mit Sonde

nachfolgende Übertragungsgrade sowie der gesamte Übertragungsgrad

$$P = \prod_{j=1}^N P_j$$

für die aerodynamischen Partikelgrößen von 1 µm bis 20 µm.

$D_a$ in µm	Übertragungsgrad Rechen	Übertragungsgrad primäre Probenentnahmeleitung	Übertragungsgrad sekundäre Probenentnahmeleitung	Übertragungsgrad Gesamt
1	99,1 %	99,8 %	99,6 %	<b>98,5 %</b>
2	97,8 %	99,1 %	99,2 %	<b>96,2 %</b>
3	95,9 %	97,5 %	98,6 %	<b>92,2 %</b>
4	93,5 %	95,6 %	98,1 %	<b>87,6 %</b>
5	90,3 %	93,2 %	97,3 %	<b>81,9 %</b>
6	86,6 %	90,0 %	96,5 %	<b>75,2 %</b>
7	82,3 %	86,8 %	95,6 %	<b>68,3 %</b>
8	77,3 %	82,7 %	94,6 %	<b>60,5 %</b>
9	71,8 %	77,9 %	93,6 %	<b>52,3 %</b>
10	65,7 %	73,0 %	92,3 %	<b>44,3 %</b>
11	59,1 %	67,7 %	91,1 %	<b>36,4 %</b>
12	52,3 %	61,9 %	89,7 %	<b>29,1 %</b>
13	45,3 %	56,0 %	88,4 %	<b>22,5 %</b>
14	38,4 %	50,0 %	86,7 %	<b>16,6 %</b>
15	31,6 %	43,8 %	85,1 %	<b>11,8 %</b>
16	20,8 %	37,8 %	83,4 %	<b>6,6 %</b>
17	18,8 %	32,0 %	81,6 %	<b>4,9 %</b>
18	17,0 %	26,6 %	79,8 %	<b>3,6 %</b>
19	15,3 %	21,6 %	77,9 %	<b>2,6 %</b>
20	13,6 %	17,1 %	75,7 %	<b>1,8 %</b>

Tab. 14: Übertragungsgrade der Probenentnahme für aerodynamische Aerosolpartikeldurchmesser  $D_a$  von 1 bis 20 µm.

Nachfolgendes Diagramm veranschaulicht die Abhängigkeit des Übertragungsgrades vom aerodynamischen Partikeldurchmesser. Der nach DIN ISO 2889 geforderte

Übertragungsgrad von größer als 50 % wird rein rechnerisch für die Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser von kleiner als 9  $\mu\text{m}$  erreicht.

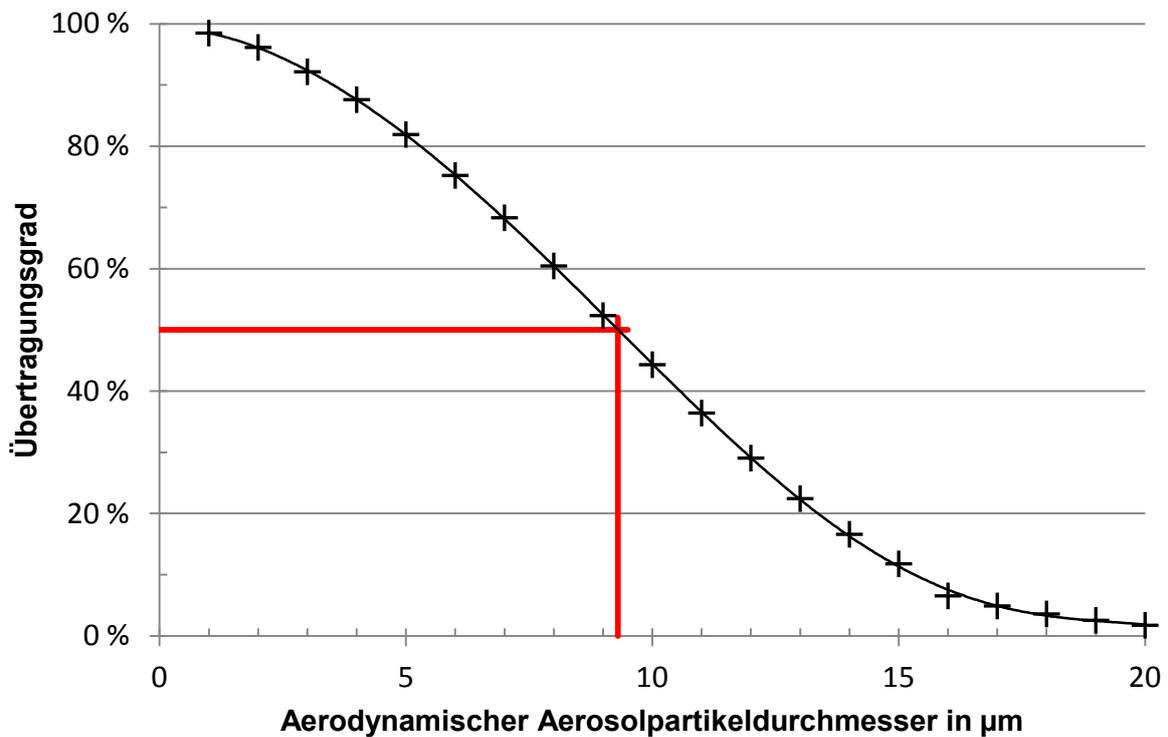


Abb. 26: Übertragungsgrad des betrachteten Probenentnahmesystems in Abhängigkeit vom aerodynamischen Aerosolpartikeldurchmesser.

Es ist zu erwarten, dass die tatsächlichen Abscheideverluste bei Partikeln mit einem aerodynamischen Aerosoldurchmesser von größer als 10  $\mu\text{m}$  geringer ausfallen. Zwar ist bekannt, dass Partikel mit einem Durchmesser von wenigen Mikrometern kaum resuspendiert werden, für größere Partikel erlaubt jedoch der Stand der Experimente und Modelle noch keine hinreichend genaue Abschätzung der Resuspensionswahrscheinlichkeit.

## 5 Literatur

- [Ald 08] Alderman, S. L. et al, The Effects of Media Velocity and Particle Size Distribution on Most Penetrating Particle Size and Filter Loading Capacity of 12"×12"×11.5" AG-1 HEPA Filters, Nuclear Air Cleaning Conference, (2008).
- [Ant 13] Anthofer, A. et al, Lasertechnologie zur Entfernung radioaktiver und chemisch-toxischer Kontaminationen beim Rückbau kerntechnischer Anlagen, Tagungsband Kontec 2013.
- [BAUA 01] Bundesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin, Begründung zum Allgemeinen Staubgrenzwert in TRGS 900, September 2001.
- [BfS 12] Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), Schreiben Zeichen AG-F 3.2-08303 3611S70018 vom 19.04.2012 mit Vertrag 3611S70018.
- [BMU 09] BMU, Leitfaden zur Stilllegung, zum sicheren Einschluss und zum Abbau von Anlagen oder Anlagenteilen nach § 7 des Atomgesetzes vom 26. Juni 2009, Bekanntmachung vom 12. August 2009, BAnz. Nr. 162a vom 28. Oktober 2009.
- [Bot 09] Bothe, M., Empfehlungen zur Ermittlung der Repräsentativität von Nuklidvektoren bei Freigabemessungen, urn:nbn:de:0221-2009011228, BfS-Vorhaben 3604S04441, 2009.
- [Cha 82] Charuau, J., Etude du depot des particules dans les conduits, Optimisation des tubes des prelevement des aerosols radioactifs, CEA-R-5158 (1982).
- [DIN 11] DIN EN 1822, Schwebstofffilter (EPA, HEPA und ULPA), 5 Teile, Januar 2011.
- [DIN 12] DIN ISO 2889, Probenentnahme von luftgetragenen radioaktiven Stoffen aus Kanälen und Kaminen kerntechnischer Anlagen, Juli 2012.
- [DIN 12b] DIN EN 779, Partikel-Luftfilter für die allgemeine Raumlufttechnik – Bestimmung der Filterleistung, Oktober 2012.
- [DIN 15] DIN ISO 2889 Beiblatt 3, Probenentnahme von luftgetragenen radioaktiven Stoffen aus Kanälen und Kaminen kerntechnischer Anlagen – Beiblatt 3: Abschätzung von Übertragungsgraden und Abscheideverlusten von Aerosolpartikeln in Probenentnahmeleitungen, März 2015.

- [DIN 93] DIN EN 481, Festlegung der Teilchengrößenverteilung zur Messung luftgetragener Partikel, September 1993.
- [DOE 97] DOE-STD-3020-97, Specification for HEPA filters used by DOE contractors, January 1997.
- [Dor 95] Dorrian, M.-D., Bailey M. R., Particle size distributions of radioactive aerosols measured in workplaces, *Radiat. Prot. Dosim.* 60(2), 119–133 (1995).
- [Duw 11] Duwe, P., Krauß, M., Kraps, U., Oberhäuser, R., Zerlegung des Reaktor-druckgefäßes (RDG) im KWW, Tagungsband Kontec 2011.
- [Fan 92] Fan, B. J., Wong, F. S., McFarland, A. R., Anand, N. K., Aerosol deposition in sampling probes, *Aerosol Sci. Technol.*, 17, 326–332 (1992).
- [Ges 11] Gese, C. C., Großflächige Dekontamination von Gebäudeoberflächen im Kernkraftwerk Würgassen, Tagungsband Kontec 2011.
- [Has 11] Hassel, Th., Petersen, M., Jakob, H., Bach, F.-W., Hot-Wire-Plasma-schneiden mit exotherm abreagierendem Zusatzwerkstoff zur Erhöhung der Schneidleistung, Tagungsband Kontec 2011.
- [Hen 13] Hentschel, S., Bußmann, A., Gentes, S., Feil, H., Husfeldt, M., Optimierung der verfahrenstechnischen Kette „Abtrag kontaminierter Flächen“ unter dem Aspekt Maximierung der Abtragsleistung (AkoF), Tagungsband Kontec 2013.
- [Her 90] Herrmann, H. J., Roux, S., *Statistical Models for the Fracture of Disordered Media*, Elsevier, Amsterdam (1990).
- [HSL 12] Fa. HS-Luftfilterbau, Technische Daten – HS-Filtermobile, Mai 2012.
- [IAEA 08] IAEA, *Innovative and Adaptive Technologies in Decommissioning of Nuclear Facilities*, Final report of a coordinated research project 2004–2008, IAEA-TECDOC-1602, October 2008.
- [ICRP 68] ICRP, *Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers*, ICRP Publication 68, *Ann. ICRP* 24(4) (1994).
- [ICRP 78] ICRP, *Individual Monitoring for Internal Exposure of Workers*, ICRP Publication 78, *Ann. ICRP* 27(3–4) (1997).
- [ICRP 103] ICRP, *Die Empfehlungen der Internationalen Strahlenschutzkommission (ICRP) von 2007*, urn:nbn:de:0221-2009082154, ICRP-Veröffentlichung 103 (2007).

- [Hin 99] Hinds, W. C., *Aerosol Technology: Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles*, Wiley-Interscience, 1999.
- [Jak 13] Jakob, H., Köhler, A., Bach, F.-W., Hassel, Th., Kremer, G. et al, Zerlegen metallischer Strukturen im kerntechnischen Umfeld durch Verwendung von Schneidladungen, Tagungsband Kontec 2013.
- [KTA 1503.1] KTA 1503.1, Überwachung der Ableitung gasförmiger und an Schwebstoffen gebundener radioaktiver Stoffe, Teil 1: Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Kaminfortluft bei bestimmungsgemäßem Betrieb, Fassung 6/02.
- [KTA 3601] KTA 3601, Lüftungstechnische Anlagen in Kernkraftwerken, Fassung 11/05.
- [Kun 99] Kun, F., Herrmann, H. J., Transition from damage to fragmentation in collision of solids, *Phys. Rev. E* 59, 2623–2632 (1999).
- [Mey 08] Meyer, F., Hillebrand, G., The decommissioning of the ASTRA-MTR research reactor facility, in [IAEA 08].
- [Mik 08] Mikheykin, S., Development and selection of decontamination techniques for decommissioning projects in the Russian Federation, in [IAEA 08].
- [Mül 06] Müller, H., Staubbelastung an Arbeitsplätzen von mobilen Bauschutt aufbereitungsanlagen, Thüringer Landesbetrieb für Arbeitsschutz und technischen Verbraucherschutz (TLAtV), 2006.
- [NEA 99] OECD/NEA, Task Group on Decontamination, *Decontamination Techniques used in Decommissioning Activities* (1999).
- [Osa 90] Osaki, M., Kanagawa, A., Performance of High Efficiency Particulate Air Filters, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 27, 875–882 (1990).
- [Pen 09] Fa. Pentek, VAC-PAC High Performance HEPA Vacuum/Drumming Systems, 2009.
- [Pet 13] Petersen, M., Jakob, H., Köhler, A., Bach, F.-W., Hassel, Th., Hot-Wire-Plasmaschneiden: Zerlegen von komplexen Bauteilen und Verbundwerkstoffen, Tagungsband Kontec 2013.
- [Rud 11] Rudolph, G., Truetsch, B., Hackel, W., Vorgehen bei der radiologischen Freigabe des Standortes VAK zum konventionellen Abbruch, Tagungsband Kontec 2011.

- [Sta 03] Stahn, B., Pöppinghaus, J., Cremer, J., Abbau des Reaktorblocks des Forschungsreaktors FRJ-1 (MERLIN), Tagungsband Kontec 2003.
- [Sta 11] Stanke, D., Loeb, A., Kemp, L.-H., Ausbau, Zerlegung und Verpackung des Reaktordruckbehälters mit peripheren Einrichtungen des Kernkraftwerkes Stade, Tagungsband Kontec 2011.
- [StrlSchV] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung – StrlSchV) vom 20.07.2001 (BGBl. I 2001, Nr. 38, S. 1714), zuletzt geändert durch Artikel 5 Absatz 7 des Gesetzes vom 24. Februar 2012 (BGBl. I S. 212).
- [TRGS 517] Technische Regeln für Gefahrstoffe TRGS 517, Tätigkeiten mit potenziell asbesthaltigen mineralischen Rohstoffen und daraus hergestellten Gemischen und Erzeugnissen, Ausgabe Februar 2013, GMBI 2013 S. 382–396 v. 9.4.2013 [Nr. 18].
- [TRGS 900] Technische Regeln für Gefahrstoffe TRGS 900, Arbeitsplatzgrenzwerte, Ausgabe Januar 2006, zuletzt geändert und ergänzt GMBI 2012 S. 715–716 [Nr. 40].
- [Tun 91] Tung, C.-J., Yu, C.-C., Particle size distribution of aerosols during sand-blasting of steam turbines, Radiat. Prot. Dosim. 38(1–3), 135–140 (1991).