



RESSORTFORSCHUNGSBERICHTE ZUR
SICHERHEIT DER NUKLEAREN ENTSORGUNG

Experimentell gestützte Analyse der Freisetzung und radiologischen Kon- sequenzen bei Transport- unfällen mit oberflächen- kontaminierten Gegenständen (SCO)

Vorhaben 4717E03360

AUFTRAGNEHMER:IN

Fraunhofer-Institut für Toxikologie und
Experimentelle Medizin (ITEM), Hannover

Wolfgang Koch, Wilhelm Dunkhorst (ITEM), Florentin Lange (Meerbusch)



Experimentell gestützte Analyse der Freisetzung und radiologischen Konsequenzen bei Transportunfällen mit oberflächenkontaminierten Gegenständen (SCO)

Dieser Band enthält einen Ergebnisbericht eines vom Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung im Rahmen der Ressortforschung des BMU (ReFoPlan) in Auftrag gegebenen Untersuchungsvorhabens. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autor:innen. Das BASE übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung ganz oder teilweise vervielfältigt werden.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der Auftragnehmer:innen wieder und muss nicht mit der des BASE übereinstimmen.

BASE-RESFOR-021/22

Bitte beziehen Sie sich beim Zitieren dieses Dokumentes immer auf folgende URN:
urn:nbn:de:0221-2022012530627

Berlin, Januar 2022

Impressum

**Bundesamt
für die Sicherheit
der nuklearen Entsorgung
(BASE)**

RESSORTFORSCHUNGSBERICHTE ZUR
SICHERHEIT DER NUKLEAREN ENTSORGUNG

Auftragnehmer:in
Fraunhofer-Institut für Toxikologie und Experimentelle Medizin (ITEM), Hannover

Wolfgang Koch, Wilhelm Dunkhorst (ITEM), Florentin Lange (Meerbusch)

030 184321-0
www.base.bund.de

Stand: Januar 2022

Experimentell gestützte Analyse der Freisetzung und radiologischen Konsequenzen bei Transportunfällen mit oberflächenkontaminierten Gegenständen (SCO)

Abschlussbericht

Das Vorhaben wird im Auftrag des Bundesamts für Strahlenschutz unter dem Förderkennzeichen 3617E03360 durchgeführt

Dauer des Vorhabens:

01.10.2017 - 30.09.2018

Auftragnehmer:

Fraunhofer ITEM
Abt.: Aerosoltechnologie
Nikolai-Fuchs-Str.1
30625 Hannover
Tel: 0511 5350 -117
Fax: 0511 5350-155
Email:
Wolfgang.Koch@item.fraunhofer.de
www.item.fraunhofer.de

Bearbeiter:

Wolfgang Koch, Wilhelm Dunkhorst (ITEM), Florentin Lange (Meerbusch)

Hannover, Oktober 2018

Inhaltsverzeichnis

| | |
|---|----|
| Zusammenfassung | 4 |
| Summary | 7 |
| 1 Einleitung und übergeordnete Zielsetzung | 10 |
| 2 Stand von Wissenschaft und Technik | 12 |
| 2.1 Belastungen | 12 |
| 2.1.1 Kontamination | 18 |
| 2.1.2 Partikelresuspension | 19 |
| 3 Material und Methoden | 23 |
| 3.1 Generelles Vorgehen | 23 |
| 3.2 Testkanal | 24 |
| 3.3 Schwingungsanalyse | 26 |
| 3.4 On-line Partikeldiagnostik | 27 |
| 3.5 Chemisches Analyseverfahren | 28 |
| 3.6 Oberflächenkontamination | 28 |
| 3.6.1 Kontamination aus wasserlöslicher Substanzen durch Verneblung | 28 |
| 3.6.2 Wischbehandlung der Oberflächenkontamination | 29 |
| 4 Ergebnisse..... | 30 |
| 4.1 Oberflächenanregungen | 30 |
| 4.2 Resuspensionsuntersuchungen | 33 |
| 4.2.1 Voruntersuchungen | 33 |
| 5 Diskussion und Zusammenfassung der Resuspensionsdaten | 46 |
| 6 Anwendung der experimentellen Resuspensionsdaten zur Beurteilung der Transportsicherheit bei Unfällen mit SCO-II Gegenständen..... | 50 |
| 6.1 Anforderungen der IAEA Transportvorschriften an die Beförderung von radioaktiven Stoffen | 50 |
| 6.2 Anforderungen der IAEA Transportvorschriften an Transporte von SCO-II Gegenständen | 51 |
| 6.3 Analyse eines schweren Transportunfalls eines IP-2 Versandstückes mit sehr hoher Kontamination von SCO-II Gegenständen | 55 |
| 6.4 Freisetzung lungengängiger Partikel aus einem durch Unfall beschädigten IP-2 Transportbehälter mit SCO-II Gegenständen | 57 |

| | | |
|-------|---|----|
| 6.4.1 | Auf den Resuspensionsmessungen basierte Resuspensionsanteile für SCO-II Oberflächen bei der postulierten Unfallbelastung..... | 59 |
| 6.5 | Radiologische Konsequenzen eines schweren Transportunfalls eines IP-2 Behälters mit hochkontaminierten SCO-II Gegenständen | 61 |
| 6.6 | Bewertung der ermittelten radiologischen Konsequenzen im Hinblick auf Anforderungen der IAEA Transportvorschriften für SCO-II Gegenstände | 65 |
| 6.7 | Überlegungen zu weiteren Gesichtspunkten bei Anforderungen der IAEA Transportvorschriften an SCO-II Gegenstände und LSA-II und LSA-III Stoffe | 67 |
| 7 | Literatur..... | 70 |
| 8 | Anhang..... | 73 |
| 8.1 | Bewertung im Vergleich zur Vorhabensbeschreibung | 73 |

Zusammenfassung

Zur Beurteilung der Transportsicherheit bei Unfallbelastungen von Stoffen mit geringer spezifischer Aktivität (LSA) entsprechend den IAEO-Empfehlungen zum sicheren Transport radioaktiver Stoffe steht eine gute experimentelle Basis zur Verfügung, siehe u.a. Lange et al. (2007). Eine vergleichbare Überprüfung der Transportsicherheit für oberflächenkontaminierte Gegenstände (SCO), gegebenenfalls verbunden mit einer Weiterentwicklung des einschlägigen Regelwerks, erfordert experimentelle Untersuchungen zur luftgetragenen Freisetzung von SCO-Gegenständen unter Transport-Unfallbedingungen (Resuspension von kontaminierten Oberflächen bei mechanischer Beaufschlagung) und Berechnungen zur daraus resultierenden Strahlenexposition.

In diesem Vorhaben wurde ein experimentell gestützter Zusammenhang zwischen den unfallbedingt auftretenden Schwingungen kontaminierter Oberflächen und der durch die dabei auftretenden Beschleunigungen bedingte Freisetzung der Kontamination im lungengängigen Partikelgrößenbereich abgeleitet. Aus einer Literaturstudie zur mechanischen Belastung von Transportbehältern unter Unfallszenarien ergeben sich Maximalbeschleunigungen im Bereich von einigen hundert bis einigen tausend g. In einem Laboraufbau konnte das reale Spektrum der Oberflächenbeschleunigung experimentell an kleinen Proben nachgestellt werden.

Ein im Vorhaben realisiertes Kontaminationsverfahren der Probenoberfläche durch nasse Deposition von zerstäubten, wässrigen Lösungen der Kontamination (NaCl bzw. CsCl) trägt der Tatsache Rechnung, dass oberflächenkontaminierte Gegenstände vor ihrem Transport in der Regel einer Dekontamination unterzogen werden und die verbliebene Oberflächenkontamination eine erhöhten Adhäsion (im Vergleich zu frisch abgelagerter Kontamination) aufweisen.

Mittels eines empfindlichen Aerosolmessverfahrens wurden resuspendierte Anteile der Oberflächenkontamination von $>10^{-7}$ in Abhängigkeit von den bestimmenden Parametern quantifiziert. Die Daten wurden unter anderem zur Kalibrierung eines theoretischen Resuspensionsmodells herangezogen, wodurch die Wertebasis des Resuspensionsanteils auf experimentell nicht realisierte Prozessparameterbereiche erweitert werden konnte.

Aus den Messungen und Modellansätzen lassen sich für eine maximale Oberflächenbeschleunigung von 2000 g, die für schwerwiegende Transportunfälle als abdeckend angesehen wird, Werte für die lungengängigen, resuspendierten Anteile von $4 \cdot 10^{-4}$ für festhaftende Kontamination und $1 \cdot 10^{-2}$ für nicht festhaftende Kontamination ableiten.

Für eine Abschätzung möglicher radiologischer Konsequenzen wurde eine hohe Unfallbelastung einer IP2-Verpackung mit einer großflächigen Beladung mit hochkontaminierten SCO-II Gegenständen unterstellt: Für dünnwandige Bleche im Behälter mit einer kontaminierten Fläche von 100 m² wird eine Kontamination am jeweils zulässigen Limit der nicht festhaftenden und der festhaftenden Kontamination unterstellt. Dabei besteht die angenommene Kontamination in einem Fall aus Beta-/Gamma-strahlenden Radionukliden, im anderen Fall aus Alpha-strahlenden Radionukliden. Mit diesen Annahmen ergeben sich für die gesamte Aktivität auf den SCO-II Flächen im Behälter, ausgedrückt in der Einheit A₂, 40 A₂ für Beta-/Gamma-Strahler, bzw. 890 A₂ für Alpha-Strahler. Dies verdeutlicht die unrealistisch hohen Annahmen zur Kontamination der SCO-II Gegenstände. Die IAEA Transportvorschriften SSR-6 begrenzen die Gesamtaktivität eines IP-2 Versandstücks mit SCO-II Gegenständen über die Aktivitätsbegrenzung für das Fahrzeug auf 100 A₂.

Eine konservative Berechnung der inhalativen Aktivitätsaufnahme einer sich in Unfallnähe befindenden Person ergibt unter Zugrundelegung des obigen

Freisetzungsanteils für festhaftende Beta/Gamma-Kontamination einen Wert von $5.3 \cdot 10^{-9} A_2$ bzw. $1.2 \cdot 10^{-7} A_2$ für Alpha-Kontamination der Oberflächen. Bei Begrenzung der Gesamtaktivität für Alpha-strahlende Radionuklide auf $100 A_2$ ergibt sich eine effektive Dosis von $2 \cdot 10^{-8} A_2$. Der Richtwert der Transportvorschriften von $10^{-6} A_2$ entspricht einer effektiven Dosis von 50 mSv und wird somit in jedem Fall sehr deutlich unterschritten. Dieses Ergebnis auf Basis der durchgeführten experimentellen Untersuchungen verdeutlicht die hohen Sicherheitsreserven der Anforderungen der IAEA Transportvorschriften bei schweren Transportunfällen von SCO-II Gegenständen.

Summary

There is a sufficient data base for the safety assessment of low specific activity (LSA) material transports under accident conditions (see for example Lange et al., 2007). There is a need to extend the transport safety assessment towards surface contaminated objects (SCO), which may affect the IAEA Transport Regulations. This requires experimentally supported investigations on the resuspension of surface contamination caused by mechanical forces (surface vibrations) and a review of potential radiation exposures from accidents of packages containing SCO objects.

In this study an experimentally supported relationship was established between surface vibration initiated under accident conditions and the respirable release fraction of the surface contamination caused by the associated acceleration. From a literature study on the mechanical impact of transport casks under accident conditions, peak accelerations in the regime between several hundred and several thousand g were obtained. This regime could be simulated in a laboratory set-up using small scale surfaces.

The contamination process of these surfaces by wet deposition of sprayed aqueous solutions of the contamination (NaCl, CsCl) lead to elevated adhesion of the contamination compared to dry deposition of particles. This was done in order to approach realistic conditions established by common handling procedures and decontamination measures applied to the real surfaces of contaminated objects prior to transportation leaving behind a contamination with stronger adherence (compared to the fresh contamination).

A very sensitive aerosol measurement procedure was employed allowing for the quantification of the resuspended fraction in a regime above 10^{-7} . The experimental data generated in this study were used to calibrate a

resuspension model. This model was subsequently used to extend the data base for the resuspended fraction into regimes of the controlling parameter space that were not covered by the experiments.

The values for the resuspended fractions of the respirable airborne contamination were determined from resuspension measurements and modelling. For an acceleration of 2000 g which represents an upper limit value for contaminated surfaces under severe accident conditions a resuspension fraction of $4 \cdot 10^{-4}$ is derived for fixed contamination, and $1 \cdot 10^{-2}$ for non-fixed contamination.

The radiological consequences were assessed assuming an IP-2 package containing SCO-II objects with large and highly contaminated surface areas: Thin metal sheets with a total area of 100 m² are assumed to be contaminated up to the allowed limits of non-fixed and of fixed contamination. In one case the assumed contamination consists of beta/gamma emitters, in the other case of alpha emitting radionuclides. With these assumptions the total activity on 100 m² of contaminated surfaces, expressed by A₂ value, sums up to 40 A₂ for beta/gamma emitters and to 890 A₂ for alpha emitters. This emphasizes the unrealistically high assumptions regarding the contamination of the SCO-II objects. The IAEA Transport Regulations limit the total activity of an IP-2 package with SCO-II objects via the conveyance activity limits to 100 A₂.

The inhalation uptake for a bystander near the accident location calculated under conservative assumptions and taking into account the above release fractions, revealed a value $5.3 \cdot 10^{-9}$ A₂ for fixed beta/gamma contamination, and a value of $1.2 \cdot 10^{-7}$ A₂ for surface contamination with alpha emitters. Limiting the total alpha activity in an IP-2 package to 100 A₂ according to the conveyance activity limit would result in a maximum uptake of $2 \cdot 10^{-8}$ A₂ via inhalation of a person close to the accident location. The reference value of 10^{-6} A₂ is equivalent to an effective dose of 50 mSv. Accordingly, based on the current experimental investigations the potential exposure of a

person from a severe accident would remain very much lower and emphasizes the high safety level associated with the requirements of the IAEA Transport Regulations for shipments of SCO-II objects.

1 Einleitung und übergeordnete Zielsetzung

Zur Beurteilung der Transportsicherheit bei Unfallbelastungen von Stoffen mit geringer spezifischer Aktivität (LSA) entsprechend den IAEA-Empfehlungen zum sicheren Transport radioaktiver Stoffe steht eine gute experimentelle Basis zur Verfügung, siehe u.a. BMUB/BfS-Vorhaben 3609R03320. Eine vergleichbare Überprüfung der Transportsicherheit für oberflächenkontaminierte Gegenstände (SCO), gegebenenfalls verbunden mit einer Weiterentwicklung des einschlägigen Regelwerks, erfordert experimentelle Untersuchungen zur luftgetragenen Freisetzung von SCO-Gegenständen unter Transport-Unfallbedingungen (Resuspension von kontaminierten Oberflächen bei mechanischer Beaufschlagung) und Berechnungen zur daraus resultierenden Strahlenexposition.

In den BfS-Vorhaben 3609S7005, 3611S60012 sowie 3613R01651 wurden Untersuchungen zur Resuspension von lungengängigen Partikeln von durch radiologische Freisetzungseignisse hervorgerufenen Oberflächenkontaminationen durchgeführt. Hier stand die sog. Windresuspension im Zentrum des Interesses. Es wurden Verfahren zur definierten Kontamination von Oberflächen entwickelt. Mit Hilfe einer kleinskaligen Resuspensionsapparatur wurden Höhe und zeitliches Verhalten der Partikelresuspension eingehend untersucht und die Abhängigkeiten von den kontrollierenden Parametern herausgearbeitet. Auf der Basis ungünstiger Annahmen zu Kontaminationsereignissen wurden daraus die zu erwartende Inhalationsbelastung von Personen der allgemeinen Bevölkerung und von Einsatzpersonal abgeschätzt und mögliche Schutzmaßnahmen abgeleitet.

Bei Transportunfällen gewinnen mechanische Kräfte durch auftretende Beschleunigungsspitzen für eine Resuspension von Oberflächenkontamination an Bedeutung. In der Literatur wird von Schockbeschleunigungen im Bereich von bis zu 1000 g beim Behälteraufprall aus einer Fallhöhe von 9 m auf ein unnachgiebiges Hindernis berichtet. Schon einige hundert g können

ausreichen, um die van der Waals-Haftkräfte von an realistischen Oberflächen angelagerter Mikropartikel zu überwinden und Partikel abzulösen. In realen Unfallsituationen ist jedoch von geringeren Beschleunigungsspitzen bei gleichzeitig erhöhten Haftkräften auszugehen, letzteres auf Grund der Tatsache, dass sog. nicht festhaftende Oberflächenkontamination einen großen Bereich von wirksamen Haftkräften umfasst und gängige Vorbehandlungen von SCO-Gegenständen vor der Beförderung schon eine Verringerung locker haftender Partikel bewirken. Daten zur Bewertung der Freisetzungsvorgänge von kontaminierten Oberflächen bei Unfallbelastungen unter Berücksichtigung realistischer Parameter sind kaum vorhanden.

Das übergeordnete Ziel des Vorhabens ist die Generierung von Erkenntnissen und Daten, mit denen die unfallbedingte Inhalationsdosis von Personen nach luftgetragener Freisetzung lungengängiger Partikel von oberflächenkontaminierten Gegenständen abgeschätzt und mit den Kriterien der IAEO-Transportvorschriften verglichen werden soll.

Aus den Erkenntnissen sollen Hinweise für eine mögliche Weiterentwicklung des IAEO Regelwerks zum Transport von SCO-Gegenständen formuliert werden.

Die Ziele waren im Einzelnen

- die Erarbeitung sinnvoller Parameter für die Oberflächenkontamination und deren mechanischer Belastungen beim Transportunfall;
- die Übertragung der Parameter auf kontrollierte Modellexperimente;
- die Quantifizierung der Aerosolfreisetzung über das Beaufschlagungs- und Belastungsspektrum;
- die Analyse und Einordnung der Daten im Hinblick auf radiologische Konsequenzen und die einschlägigem Transportregularien.

2 Stand von Wissenschaft und Technik

2.1 Belastungen

Belastungsszenarien unter normalen Transportbedingungen und Transportunfallbedingungen spiegeln sich in den Testvorschriften für die unterschiedlichen Versandstücktypen wider. Regulatorisch festgeschrieben sind beispielsweise für Typ B Versandstücke, sog. unfallsichere Verpackungen, Falltests aus 9 m Höhe auf ein unnachgiebiges Hindernis zur Abbildung eines schwerwiegenden, hypothetischen Unfallszenarios mit mechanischer Belastung. Zu den sonstigen Verpackungen für Transporte zählen Typ A Versandstücke und für Transporte von LSA-II oder LSA-III Stoffen und von SCO-II Gegenständen sog. Industrieverpackungen vom Typ IP-2 und IP-3. Hier soll der sichere Transport entweder durch die Kombination von Begrenzung des Aktivitätsinhaltes (Typ A) und Verpackungseigenschaften oder die Kombination von stofflichen Eigenschaften, in denen die radioaktiven Stoffe vorliegen (IP-2 und IP-3), und der Schutzfunktion der Verpackung bei transportbedingten Belastungen erreicht werden. Im Fall von LSA-Stoffen zählt die spezifische Aktivität [A_2/g] zu den stofflichen Eigenschaften im Fall von SCO-Gegenständen das Kontaminationsniveau in [Bq/cm^2]. Die Tests für IP-2 und IP-3 Verpackungen sehen einen vom Gewicht abhängigen Freifalltest von 1.2 m bis herunter zu 0.3 m und einen Stapeltest vor. Details zu den Testbedingungen sind im IAEA-Dokument SSR-6 (IAEA, 2012) beschrieben.

Von diversen Institutionen wurden Fallexperimente mit unterschiedlichen Behältern durchgeführt. Überwiegend handelt sich dabei um Tests zur Qualifizierung von Typ B Behältern. Eine ganze Reihe von Falltests mit Fallhöhen von 9 m und darunter sind auch mit Typ IP-2 und IP-3 Behältern durchgeführt worden, um ihre Sicherheitsreserven in Verbindung mit Eigenschaften des radioaktiven Inhalts bei Beförderung, Zwischen- oder Endlagerung zu ermitteln. Im vorliegenden Zusammenhang sind

Informationen über die beim Aufprall auftretenden Beschleunigungen und über ihren zeitlichen Verlauf von Interesse. In von der BAM durchgeführten realskaligen Experimenten wurde der 9 m Fall auf ein unnachgiebiges Fundament eines realskaligen Prototyps des CONSTOR V/TC Behälters für abgebrannte Brennelemente analysiert (Mussoff et al., 2007). Der 110 t schwere Behälter prallte dabei in Transportkonfiguration mit simuliertem Inhalt und mit Stoßdämpfern versehen bei einer Gesamtmasse von 181 t mit horizontaler Ausrichtung auf das Fundament (siehe Abb. Abb. 2-1). Dabei wurden Beschleunigungen von maximal 120 g gemessen (Abb. 2-2). Diese (moderaten) Werte sowie der Zeitverlauf sind im Wesentlichen auf die dämpfende Wirkung der stirnseitig angebrachten Stoßdämpfer (Schockabsorber) zurückzuführen.

Bei einem Behälterabsturz mit 30° Orientierung ergeben sich abhängig vom Behältertyp ähnliche Werte der Maximalbeschleunigungen von bis zu 90 g, wie in Sanders et al. (1992) berichtet wird. Die möglichen, beim Aufprall auftretenden Beschleunigungen werden entscheidend von den Eigenschaften bei der Beförderung eingesetzter Stossdämpfer bestimmt. McConnel und Sorensen (1995) berichten über Fallexperimente mit einem GNS-Behälter vom Typ MOSAIK (duktiles Eisen, $m=5402$ kg) ohne Stoßdämpfer. Die an der Behälteroberfläche gemessenen Maximalbeschleunigungen liegen im Bereich von 600-950 g (Mittelwert=765 g) bei einer Fallhöhe von $h=9$ m und bei 1150 g für 18.4 m Fallhöhe. Die Untersuchungen von McConnel dienten zur Demonstration von Analysemethoden zur Vorhersage der mechanischen Stabilität des Behälters unter den angenommenen Belastungsbedingungen.

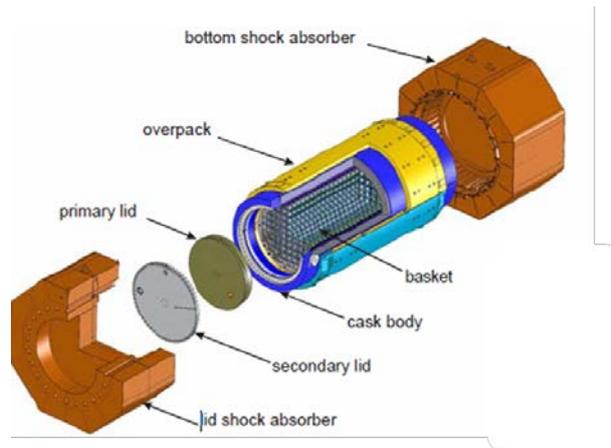


Abb. 2-1: Schematische Darstellung des von der BAM getesteten CONSTOR VTC Typ B Behälters für abgebrannte Brennelemente in Transportkonfiguration mit simuliertem Inhalt und versehen mit Schockabsorbern.

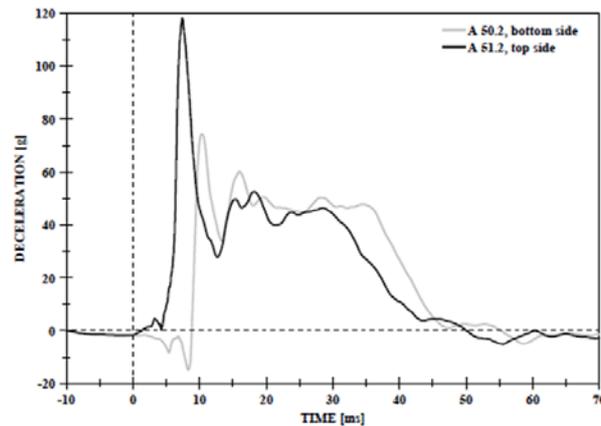


Abb. 2-2: An der Behälteroberfläche auftretende Bremsbeschleunigungen beim Absturz eines horizontal orientierten CONSTOR VTC Prototyp Transportbehälters aus 9 m Höhe auf ein unnachgiebiges Hindernis. Wegen einer geringen Neigung des Behälters gegenüber der Horizontalen erfolgt vor der zeitlich versetzten Abbremsung zunächst eine Beschleunigung der Bodenplatte.

In Falltests von Lo Frano et al. (2014) durchgeführt mit IP-2 Transportbehältern (gefüllt mit Beton, Abwurfhöhe 1 m) werden transiente Maximalbeschleunigungen von bis zu 4000 g gemessen.

Den Response auf Belastungen eines axial auf eine unnachgiebige Oberfläche impaktierenden Behältermodells (Hohlzylinder mit Blei gefülltem

Hohlmantel aus Stahl, ohne Dämpfer) untersuchen Rajendran et al. (2005). Sie entwickeln ein einfaches, analytisch darstellbares, mechanisches Modell, das die maximalen Beschleunigungen, a_0 , an der Behälteroberfläche auf die Fallhöhe, h , und Materialparameter (Eigenfrequenz, ω_0) des Modellbehälters zurückführt:

$$a_{\max} = \frac{\sqrt{2gh}}{D} \omega_0, \quad \text{Gl. 1}$$

wobei $D = 1.77$ der dynamische Belastungsfaktor und $g = 9.81 \text{ m/s}^2$ die Erdbeschleunigung sind. Die auftretenden Beschleunigungen nehmen also mit der Wurzel aus der Fallhöhe (entspricht der Fallgeschwindigkeit) zu. Diese Skalierung sollte prinzipiell Allgemeingültigkeit haben. Der zeitliche Verlauf der Beschleunigung ist derjenige einer gedämpften Schwingung mit der Frequenz ω_0 (Abb. 2-3). Die Dauer der Anfangsimpulsbelastung beträgt ca. 1 ms, die darauffolgenden Schwingungen erfolgen mit ca. 2-3 kHz.

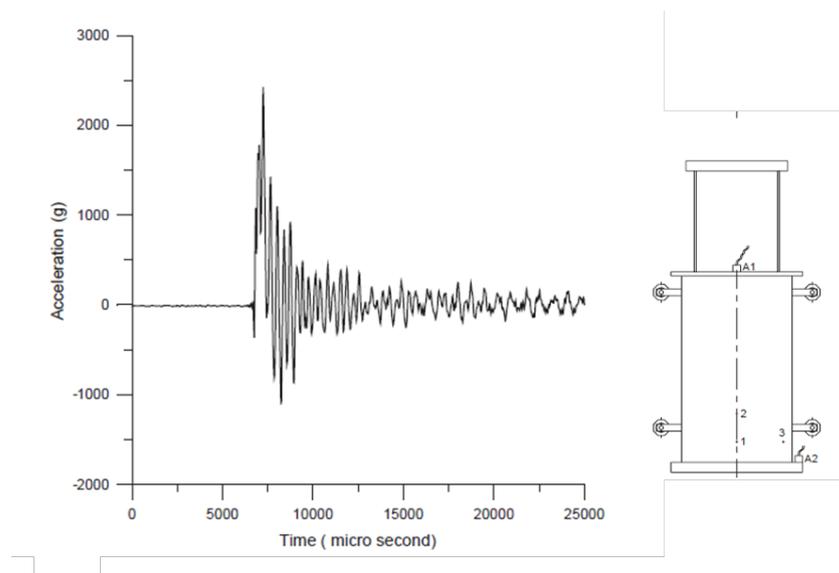


Abb. 2-3: Beschleunigungsverlauf am oberen Messpunkt A1 des aus 3-m Höhe auf eine Metallplatte fallenden Behältermodells.

Ein weiteres Beispiel für auftretende Beschleunigungen beim 8-m-Falltest eines großen kubischen Lagerbehälters aus 5 cm dickem C-Stahl

(Yoyushindo-Lagerbehälter für radioaktive Abfälle, Japan) zeigt Abb. 2-4 (Quercetti et al., 2010). Das Gesamtgewicht des mit simuliertem Abfall gefüllten Behälters betrug ca. 28 t.

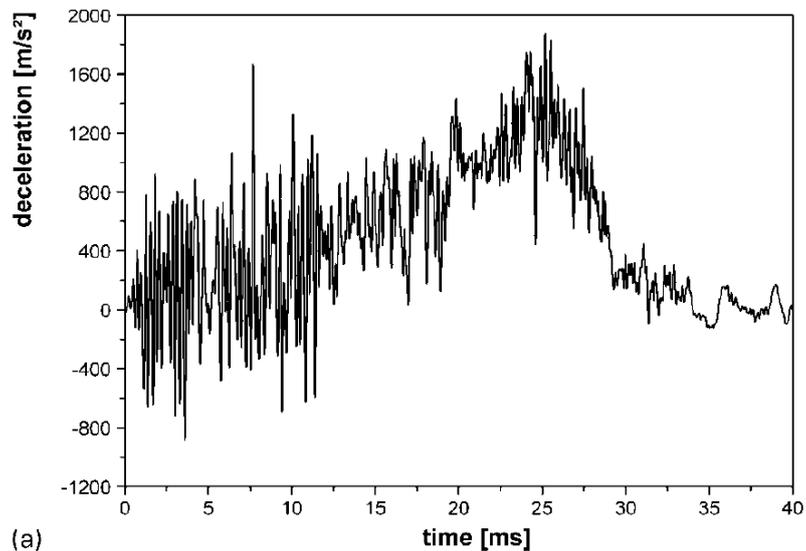


Abb. 2-4: Beschleunigungsverlauf an der Außenfläche eines 28-Tonnenbehälters beim Absturz aus 8m Höhe auf ein Betonfundament.

Der Aufprall erfolgte auf einer Ecke des Behälters. Die Beschleunigungen wurde auf der unteren Deckelseite gemessen (Abb. 2-5).

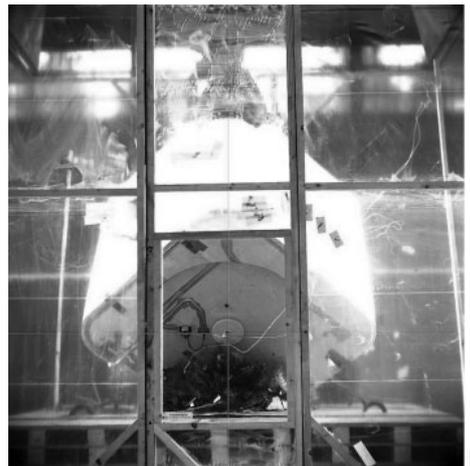


Abb. 2-5: Aufnahme kurz nach Aufprall des Behälters auf die Betonunterlage.

Den Beschleunigungen aus Oberflächenschwingungen mit anfänglich 3 kHz und Amplituden von bis zu 150 g ist eine langwellige Komponente überlagert, die aus dem Einsinken des Behälters in die Betonmatrix und dem

Abrollen resultiert. Für die Resuspension von Oberflächenkomponenten sind eher die transienten, höherfrequenten Beschleunigungsvorgänge maßgebend.

Ein Behälteraufprall auf wesentlich härtere Unterlagen führt zu höheren Werten der Beschleunigung. Falltests mit einem Klasse II Transportbehälter, DCI Container Typ VI (duktilen Gusseisen) für die Einlagerung von nicht wärmeentwickelnden schwach- und mittelaktiven Materialien im geplanten Endlager Konrad resultieren beim Aufprall der Behälterfläche auf die Unterlage in Beschleunigungen im Bereich 1000-2000 g verbunden mit Schwingungen im 800 Hz-Bereich. Ein Absturz auf eine Behälterecke führt zu einem tieferen Eindringen in die Unterlage und mithin zu geringeren Beschleunigungswerten (Droste, 1992).

Niveau und zeitlicher Verlauf der Oberflächenbeschleunigungen in den aufgeführten Beispielen unterscheiden sich in qualitativer und quantitativer Hinsicht. Dies ist auf die unterschiedlichen strukturmechanischen Randbedingungen der Behälter und die Aufprallbedingungen zurückzuführen.

Neben den transienten Anregungen gibt es auch kontinuierliche Vibrationsanregungen der Behälter- bzw. Inventaroberflächen beim straßen- und schienengebundenen Transport. Diese sind vergleichsweise gering, wie einer Zusammenfassung der existierenden Daten für den Transport von schweren Behältern (<40 t) von Maheras et al. (2013) zu entnehmen ist. Dauervibrationen verursachen Beschleunigungen von weniger als 1 g, während transiente Ereignisse wie beispielsweise das Zusammenkoppeln der Waggons durch Beschleunigungsspitzen von bis zu 40 g gekennzeichnet sein können.

2.1.1 Kontamination

Bei der Oberflächenkontamination wird zwischen festhaftender und nichtfesthaftender unterschieden. Festhaftende Kontamination ist definiert als diejenige Kontamination, die beispielsweise nach Anwendung eines Dekontaminationsverfahrens auf der Oberfläche verbleibt oder in diese eingebettet ist. Durch Alterungsvorgänge und Witterungseinflüsse kann eine festhaftende Kontamination in eine nichtfesthaftende Kontamination übergehen.

Die Messung der nichtfesthaftenden Radioaktivität erfolgt durch standardisierte Wischtests, bei denen eine definierte Oberfläche (100-300 cm²) mit einem trockenen oder nassen Tuch abgewischt wird. Nach Ausführung dieser Aktion ist die verbleibende Kontamination eine obere Abschätzung der festhaftenden Oberflächenkonzentration, wobei üblicherweise ein Entnahmefaktor von 10% für die Wischprobe angenommen wird. Der nicht vom Wischtest erfasste Anteil hängt stark von der Oberflächenstruktur ab. An inneren Oberflächen von Poren haftende Partikel sind i.d.R. nicht abwischbar. Die üblicherweise vorliegende große Bandbreite der Adsorptionshaftkräfte zwischen Partikel und Oberfläche machen jedoch eine eindeutige Einstufung dieser Kontamination als festhaftend problematisch.

Die Charakterisierung der Resuspension für eine durch Wischtest behandelte Oberfläche sollte daher eine konservative Bewertung der potentiellen Freisetzung festhaftender Radioaktivität von SCO-Objekten erlauben.

2.1.2 Partikelresuspension

Grundsätzlich kann man zwischen der Partikelresuspension über die kontinuierliche Einwirkung von Kräften, wie dies bei der Windresuspension der Fall ist, und den transienten Krafteinwirkungen unterscheiden. Die Partikelresuspension bedingt durch hydrodynamische Kräfte ist in der Literatur sehr umfangreich beschrieben. Dies umfasst sowohl experimentelle Untersuchungen als auch den theoretischen Kenntnisstand. Ergänzend hierzu wurde im Rahmen der BMU/BfS-Vorhaben 3609S70005 und 3611S60012 ein Datensatz geschaffen, der hinsichtlich der Untersuchungsparameter auf die Erfordernisse der Bewertung radiologischer Notfallsituationen zugeschnitten war. Schwerpunktmäßig wurden Resuspensionsraten von (radioaktiv) kontaminierten, realen Oberflächen untersucht. Insbesondere wurden das (Lang-)Zeitverhalten und Abhängigkeiten von der Höhe der Windgeschwindigkeit sowie der Oberflächenart quantifiziert. Transiente Krafteinwirkungen in Form von Impulsbeaufschlagung kontaminierter Oberflächen wurden in den o.g. Vorhaben unter Verwendung einer Fallhammervorrichtung ebenfalls adressiert. Mangels geeigneter diagnostischer Werkzeuge konnte eine direkte Zuordnung des bei der Beaufschlagung resuspendierten Anteils der Kontamination auf die unmittelbar auf die Partikeln wirkenden Beschleunigungskräfte nicht erfolgen. Generell gibt es im Zusammenhang mit der Luftbelastung durch resuspendierte Partikel für vibrationsbedingte Resuspension nur sehr wenig Information in der Literatur. Bei der Ablösung durch auf Partikel einwirkende Trägheitskräfte steht in der Literatur vornehmlich die Messung der Haftkräfte im Vordergrund (Hubbard et al. 2012, Wanka et al. 2012).

Ein wesentlicher Faktor für die Partikelablösung von Oberflächen ist die Haftkraft bzw. die als lognormalverteilt angenommene Haftkraftverteilung. In der Regel sind es van der Waals-Kräfte, die die Adhäsion von Partikeln

vermitteln. Für eine Kugel mit Durchmesser, d_p , auf einer perfekt glatten Oberfläche gilt für die Adhäsionskraft f_h :

$$f_{h,s} = \frac{3}{4} \pi \gamma d_p \quad \text{Gl. 2}$$

wobei γ die materialabhängige Grenzflächenenergie zwischen Partikel und Oberfläche ist. Die Realität weicht erheblich von dieser Idealsituation ab. Es ist immer von einer mikroskaligen, durch Oberflächenspitzen gekennzeichneten Rauigkeit auszugehen, wodurch die Adhäsionskräfte erheblich geringer sind und sich über einen weiten Wertebereich verteilen. Zur Beschreibung dieses Befundes führt man eine partikelgrößen-unabhängige lognormalverteilte Haftkraftreduktion, f'_h , ein so dass sich die reale Haftkraft, f_h ergibt zu (Reeks und Hall, 2001):

$$f_h = f'_h \cdot \frac{3}{4} \pi \gamma d_p. \quad \text{Gl. 3}$$

Die Verteilungsfunktion, $\varphi(f'_h)$, der normierten Haftkraft, f'_h , wird beschrieben durch Medianwert, \bar{f}'_h , und geometrische Standardabweichung, σ'_h :

$$\varphi(f'_h) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left(\frac{1}{\bar{f}'_h \ln(\sigma'_h)} \right) \exp \left(-\frac{1}{2} \left\{ \ln(f'_h / \bar{f}'_h) / \ln(\sigma'_h) \right\}^2 \right) \quad \text{Gl. 4}$$

Die Verteilungen sind sehr breit ($\sigma'_h < 10$) und die Haftkraftreduktion aufgrund der Oberflächenrauigkeit ist erheblich ($\bar{f}'_h \ll 1$).

Resuspension erfolgt, wenn die Beschleunigungskräfte größer sind als die Haftkräfte:

$$\frac{\pi}{6} \rho_p d_p^3 \cdot g \geq f_h = f'_h \cdot \frac{3}{4} \pi \gamma d_p \quad \text{Gl. 5}$$

$$f'_h \leq \frac{2}{9} \cdot \rho_p \cdot d_p^2 \cdot g / \gamma \quad \text{Gl. 6}$$

Idealerweise werden alle Partikel, die mit geringerer (normierter) Kraft haften, bei der Beschleunigungseinwirkung resuspendiert. Durch Integration der Verteilungsfunktion, charakterisiert durch \bar{f}'_h und σ'_h , bis zu dieser Grenze ergibt sich dann für den resuspendierten Anteil, η :

$$\eta_{res} = \frac{1}{2} \left[1 + \operatorname{erf} \left\{ \ln \left(\frac{2 \rho_p d_p^2 \cdot g}{9 \gamma \cdot \bar{f}'_h} \right) / (\sqrt{2} \cdot \ln(\sigma'_h)) \right\} \right]. \quad \text{Gl. 7}$$

Diese Größe ist als Funktion der Beschleunigung, G , in Einheiten der Erdbeschleunigung, g in Abb. 2-6 für unterschiedliche Partikelgrößen dargestellt. Es ist eine näherungsweise quadratische Abhängigkeit des resuspendierten Anteils von der Beschleunigung und eine Abhängigkeit mit der dritten Potenz der Partikelgröße zu verzeichnen. Die quadratische Abhängigkeit des resuspendierten Anteils ergibt sich auch für das inverse Produkt der Haftkraftparameter $\gamma \cdot \bar{f}'_h$. Eine unmittelbare theoretische Vorhersage von η_{res} mit obiger Formel erfordert eine genaue Kenntnis der bestimmenden Parameter, wovon insbesondere bezüglich der Adhäsionskräfte nicht auszugehen ist. Die Gleichung kann aber zum Verständnis und zur Einordnung experimentell erhobener Trends und Abhängigkeiten dienen.

Die Adhäsionskräfte werden stark von den äußeren Bedingungen beeinflusst. Für hydrophile Partikeln ist naheliegenderweise die relative Feuchte, die bei Überschreiten eines bestimmten kritischen Wertes zu Kapillarkondensation von Wasser im Kontaktbereich des Teilchens mit der Oberfläche führt. Hierbei kann es zu einer Reduktion der Resuspension um bis zu drei Größenordnungen kommen, was in einer Arbeit von Kim et al. (2016) am Beispiel der Windresuspension von Glaspartikeln gezeigt wurde. Ergebnisse sind in Abb. 2-7 gezeigt. Die Grenzfeuchte bis zu der kein Einfluss auf die Resuspensionsrate gemessen wurde beträgt ca. 60%. Am stärksten wirkt sich danach der Feuchteeffekt auf die Kombination Glas auf

Glas aus. Ein qualitativ vergleichbarer Effekt ist für die vibrationsbedingte Resuspension auch zu erwarten.

Weitere Adhäsionskräfte werden durch elektrostatische Effekte vermittelt. Zum einen sind dies immer anziehende Bildkräfte, die auf geladene Partikel auf einer leitenden Oberfläche wirken oder es sind Coulombkräfte zwischen den Oberflächenladungen und den Partikelladungen, die sich je nach relativer Polarität verstärkend oder abschwächend auswirken (Kohli und Mittal, 2017).

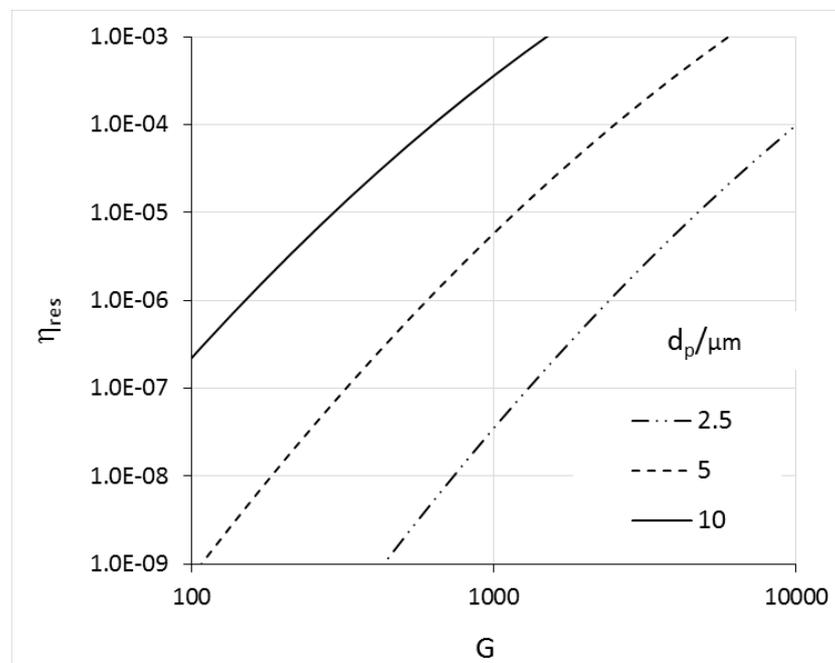


Abb. 2-6: Resuspendierter Anteil als Funktion der Beschleunigung (in Einheiten von g). Parameter: Oberflächenenergie, $\gamma = 0.6 \text{ J/m}$; Reduktionsfaktor, $\overline{f}_h = 0.07$; geom. Standardabw, $\sigma'_h = 4$.

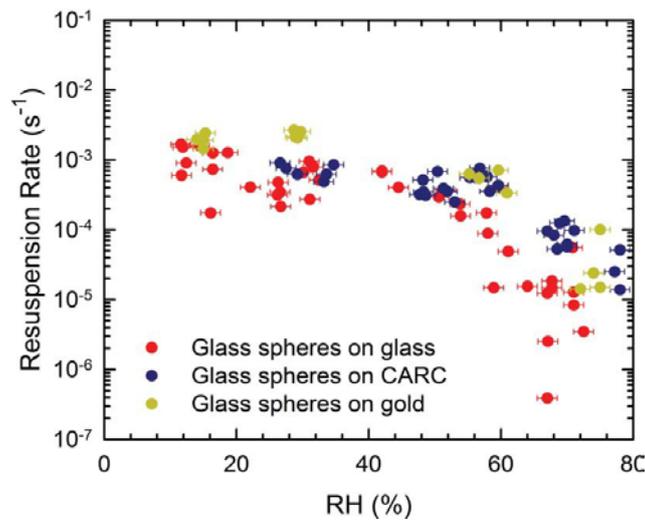


Abb. 2-7: Resuspensionsrate von 13 µm-Glaspartikeln als Funktion der relativen Feuchte und der Depositionsoberfläche. (CARC hydrophobe chemisch resistente Beschichtung)

3 Material und Methoden

3.1 Generelles Vorgehen

Gegenstand der Untersuchungen ist die Messung der Freisetzung lungengängiger Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser kleiner als 10 µm bei transientser mechanischer Beaufschlagung von kontaminierten Oberflächen. Die zu ermittelnde Größe ist der resuspendierte Anteil der Flächenkontamination infolge der mit der transienten Krafteinwirkung einhergehenden Beschleunigungen der Oberfläche. Zur Partikelablösung kommt es, wenn die beschleunigungsproportionalen Trägheitskräfte die Haftkräfte übersteigen.

Die Kontamination wird sowohl in Form von abgelagerten, diskreten Partikeln als auch als kontinuierliche, kristalline Schicht einer Kontaminationssubstanz erzeugt. Entsprechend kann der lungengängige Freisetzunganteil η_{10} wie folgt definiert werden:

$$\eta_{10} = \frac{m_{10}}{M_{10}}$$

Gl. 8

bzw.

$$\eta_{10} = \frac{m_{10}}{M} \quad \text{Gl. 9}$$

wobei m_{10} die von der kontaminierten Oberfläche freigesetzte lungengängige Aerosolmasse und M_{10} die Oberflächenkontamination mit lungengängigen Teilchen bzw. M die Oberflächenkontamination bedeuten. In den im Vorhaben realisierten kleinskaligen Untersuchungen wird die Freisetzung ausgehend von der gesamten, kontaminierten Oberfläche erfasst.

3.2 Testkanal

Der verwendete Testaufbau zur Messung der Resuspension basiert auf der kleinskaligen Resuspensionsapparatur, die im BMUI/BfS-Vorhaben 3609S7005 entwickelt wurde (Abb. 3-1). Hierbei handelt es sich um einen vertikalen Kanal (Querschnittsdimensionen $1 \times 10 \text{ cm}^2$, in den runde, oberflächenkontaminierte Probenplatten eingefügt werden. Bei den Testoberflächen handelt es sich um runde Platten mit Durchmesser 9 cm.

Die Plattenoberfläche wird durch einen Fallhammer in Vibration versetzt. Der Fallhammer trifft nicht direkt auf die Plattenoberfläche, sondern der Impuls wird durch einen Stößel übertragen. Durch Einfügung eines Dämpfungselements kann das Impulsprofil beeinflusst werden.

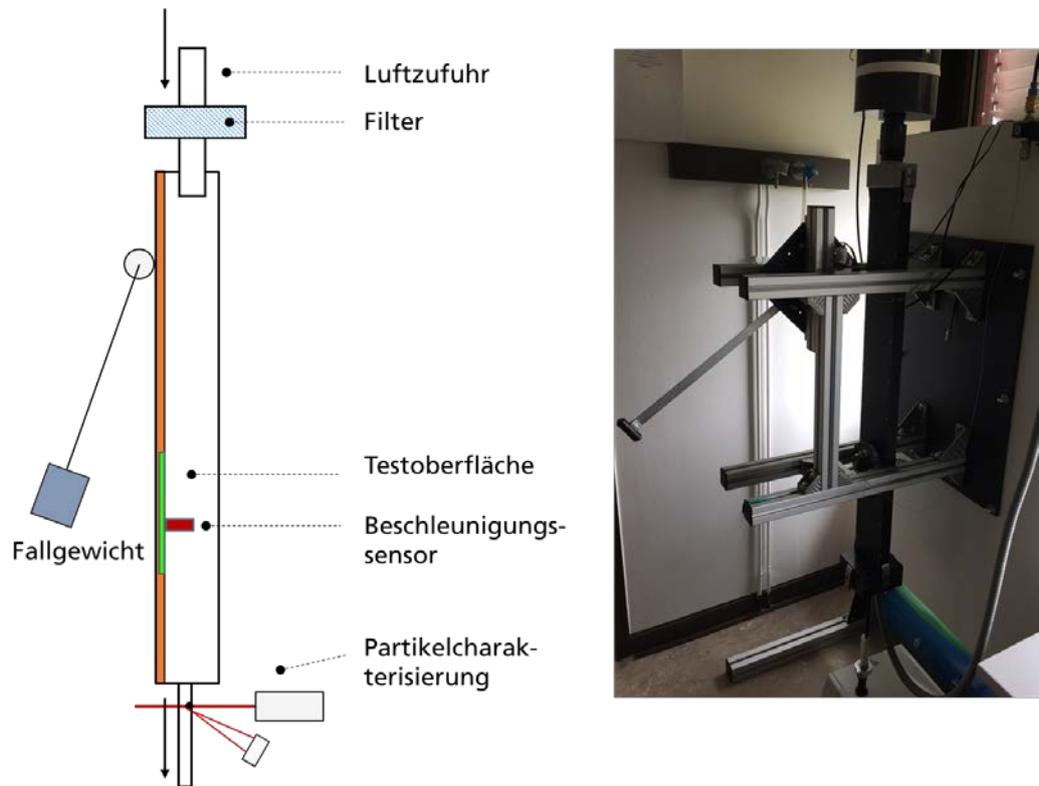


Abb. 3-1: Experimenteller Aufbau zur Messung der vibrationsinduzierten Partikelresuspension.



Abb. 3-2: Details der Apparatur.

Die resuspendierten Partikel werden nach Absaugung am unteren Ende des Kanals gemessen. Der Absaugvolumenstrom beträgt je nach verwendeter

Partikeldiagnostik einige Liter pro Minute. Dem Kanal wird gefilterte, partikelfreie Luft zugeführt. Durch die vertikale Anordnung der Probenträger, fallen abgelöste Partikel nicht mehr auf die Oberfläche zurück, sondern werden der Messung zugeführt.

3.3 Schwingungsanalyse

Die Oberflächenschwingungen werden über einen dynamischen Beschleunigungssensor erfasst. Dieser ist (reversibel) fest mit der Testfläche verbunden und kann auf beiden Seiten der Probenplatte montiert werden. Als Sensor wurde ein nur 0.6 g schwerer ladungssensitiver Sensor vom Typ PCB-357A09/NC der Fa. PCB Synotech GmbH, Hückelhoven verwendet. Die Messfrequenz beträgt 13 kHz und der Messbereich erstreckt sich von -2000 bis +2000 g. Für die Signalerfassung, -digitalisierung und -speicherung wird das Messdatenerfassungssystem MGCplus der Fa. Hottinger Baldwin Messtechnik, Darmstadt eingesetzt (Erfassungsfrequenz 20kHz).

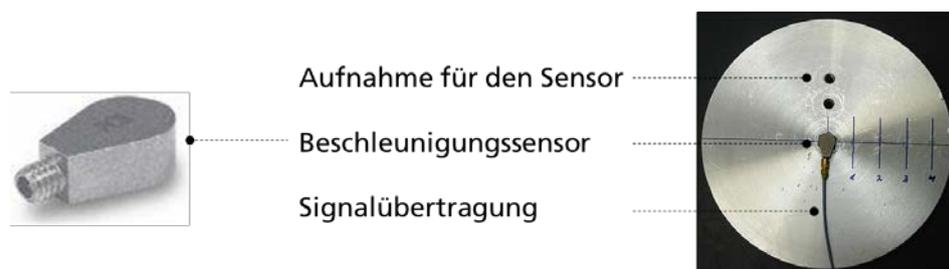


Abb. 3-3: Beschleunigungssensor und Montage auf einer Probenplatte.

Für die Schwingungsanalyse kann der Sensor in unterschiedlichen Abständen vom Plattenzentrum montiert werden.

3.4 On-line Partikeldiagnostik

Die Analyse der resuspendierten Partikel erfolgte für Vorversuche zur Optimierung des experimentellen Vorgehens mittels eines optischen Partikelzählers (Met one HHPC-6, Beckmann-Coulter, Krefeld) und in den eigentlichen Resuspensionsversuchen über einen aerodynamischen Partikelzähler (APS, TSI-Deutschland GmbH, Aachen). Der optische Partikelzähler klassiert in 6 Klassen des optischen Äquivalentdurchmessers: 0.5-0.7; 0.7-1.0; 1.0-2.0; 2.0-5.0; > 5 μm während der aerodynamische Partikelzähler die Partikelverteilung in insgesamt 50 Größenintervalle zwischen 0.54 und 20 μm AED auflöst und von daher für die Untersuchung der lungengängigen Freisetzung sehr gut geeignet ist. Bei der Berechnung der Partikelmasse, m_P , der nach dem aerodynamischen Durchmesser, d_{ae} , klassierten Partikel (Materialdichte ρ_P) wird von sphärischer Partikelform ausgegangen:

$$m_P(d_{ae}) = \rho_P \frac{\pi}{6} \left(\frac{d_{ae}}{\sqrt{\rho_P}} \right)^3 . \quad \text{Gl. 10}$$

Aus der gemessenen Anzahlverteilung $n(d_{ae})$ kann dann die Gesamtmasse, m_{10} , kleiner 10 μm berechnet werden:

$$m_{10} = \int_0^{10} d d_{ae} m_P(d_{ae}) . \quad \text{Gl. 11}$$

Da alle von der Probenplatte resuspendierten Partikel erfasst werden, kann der Freisetzunganteil durch Normierung auf die Gesamtkontamination der Platte berechnet werden. Letztere ergibt sich entweder unmittelbar aus dem Kontaminationsverfahren (siehe 3.6.1) oder wird nach dem Resuspensionsexperiment chemisch analytisch bestimmt. Dabei wird davon ausgegangen, dass die Verarmung der Plattenkontamination infolge des Resuspensionsvorgangs zu vernachlässigen ist.

3.5 Chemisches Analyseverfahren

Falls erforderlich wird die Belegungsdichte der Testoberfläche und die resuspendierte Partikelmenge über eine chemische Inhaltsstoffmessung bestimmt. Dies wird durch die spezifische Analyse eines chemischen Elements der Kontamination mittels ICP-MS (X-Series II Thermo Fisher Scientific; Dreieich) quantifiziert. Die Probenaufbereitung erfolgt in Abhängigkeit der chemischen Verbindung, in der das spezifische Element vorliegt.

3.6 Oberflächenkontamination

3.6.1 Kontamination aus wasserlöslicher Substanzen durch Verneblung

Die Kontamination der Testoberflächen erfolgt durch Beaufschlagung mit einem Nebel einer wässrigen Elektrolytlösung (Natriumchlorid, Cäsiumchlorid,...). Der Nebel wird von einem Membranvernebler erzeugt, der eine vorgegebene, pipettierte Menge an Flüssigkeit in Tropfen mit mittlerem Durchmesser von ca. 5 μm in einen Sedimentationszylinder hinein zerstäubt (Abb. 3-4). Die Nebeltropfen werden vollständig auf der Probenoberfläche abgeschieden, sodass sich die Oberflächenkontamination aus der Substanzkonzentration und der Menge der vernebelten Flüssigkeit ableiten lässt. Die beaufschlagten Proben werden dann anschließend unter definierten Temperaturbedingungen konditioniert. Dazu wird die Probe auf eine Heizplatte gelegt und bei 125 °C ca. 15 Minuten getrocknet.

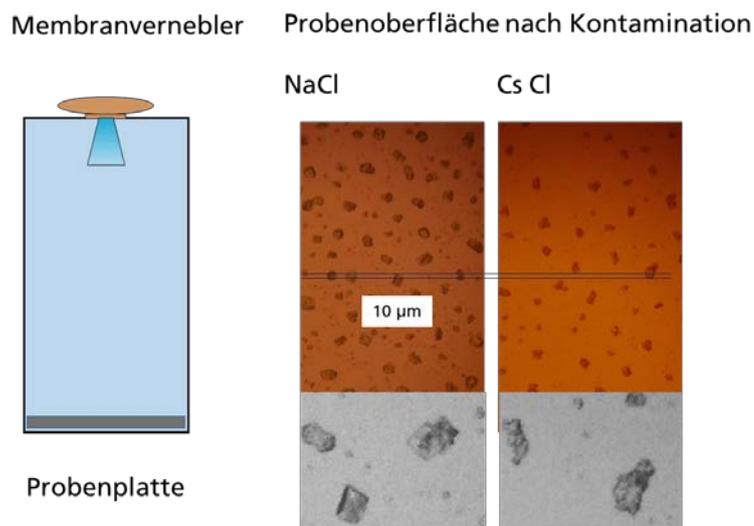


Abb. 3-4: Vorrichtung zur Kontamination der Probenoberflächen. Der Abstand der roten Linien entspricht 10 μm .

Das Photo in Abb. 3-4 zeigt die Kontamination nach Verneblung von 50 μl einer 10%igen NaCl-Lösung bzw. CsCl-Lösung. Die so generierten Partikel bilden eine Submonolage und haben einen Durchmesser um und kleiner als 10 μm . Die Gesamtmassenbelegung beträgt jeweils 5 mg. Die Partikelgröße ergibt sich aus dem Wasserverdampfungsprozess bei der Konditionierung der auf der Probenoberfläche abgeschiedenen Nebeltropfen. Die dabei entstehenden Partikelmorphologien von NaCl und CsCl unterscheiden sich deutlich.

3.6.2 Wischbehandlung der Oberflächenkontamination

Zur Simulation „festhaftender“ Kontamination wird die Oberfläche einer Wischbehandlung unterzogen. Dazu wird der belegte Probenträger in einen höhengleichen Rahmen eingebettet und mit einem mit zugehörigem Löschpapier überzogenen Tafellöcher ein- oder mehrmals abgewischt. Die Beschwerung erfolgt mit unterschiedlichen Gewichten (siehe Abb. 3-5)

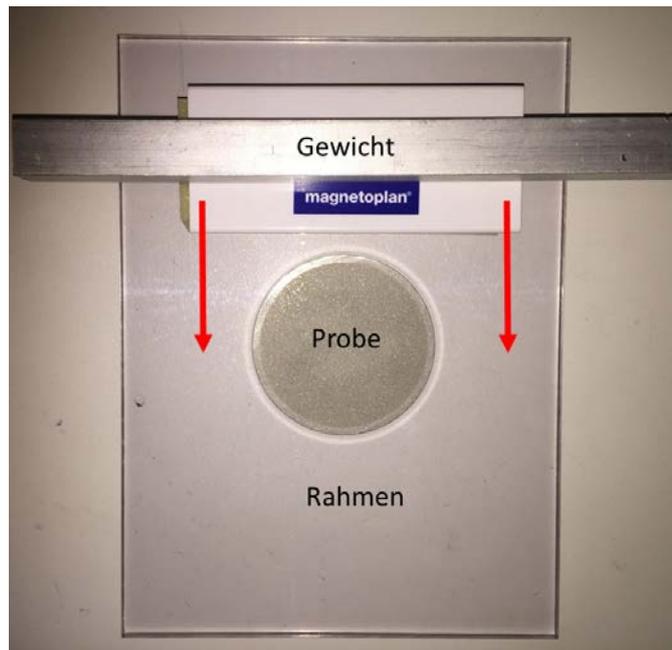


Abb. 3-5: Vorrichtung zur Realisierung reproduzierbarer Abwischbehandlungen kontaminierter Oberflächen.

4 Ergebnisse

4.1 Oberflächenanregungen

Die Analyse der Oberflächenschwingungen nach Impaktion mit dem Fallhammer erfolgte systematisch in Abhängigkeit von der Fallhöhe und der räumliche Position auf der Platte (Entfernung vom Mittelpunkt). Mit der Apparatur wurden unter Verwendung eines Aluminiumfallhammers ($M_{FH}=54.2g$) die in Tab. 4-1 aufgeführten Impaktparameter realisiert.

Tab. 4-1 Impaktparameter für die kleinskalige Apparatur

| Fallhöhe: Position | L1 | L2 | L3 | L4 | L5 | L6 |
|---------------------|------|------|-------|-------|-------|-------|
| Fallhöhe [cm] | 3.8 | 14.6 | 30.9 | 50.0 | 69.1 | 85.4 |
| Fallenergie [mJ] | 20.2 | 77.6 | 164.3 | 265.9 | 367.4 | 454.1 |
| Impaktgeschw. [m/s] | 0.86 | 1.69 | 2.46 | 3.13 | 3.68 | 4.09 |

Zur Charakterisierung der räumlichen Varianz der Plattenanregungen wurden zwei identische Beschleunigungssensoren eingesetzt, von denen einer immer im Plattenzentrum, der zweite in unterschiedlichen Abständen (Positionen 1-4) von der Mitte an der Plattenoberfläche fixiert waren (Abb. 4-1). Wie erwartet, wird die Beschleunigung durch den Energieeintrag beim Aufprall bestimmt, wie die Spektren beispielhaft in Abb. 4-2 zeigen. Sie stellen eine gedämpfte Schwingung dar mit Eigenfrequenz von ca. 4 kHz und einer Abklingzeit von 2 ms. Die Maximalbeschleunigung ist näherungsweise proportional zur Wurzel aus der Fallhöhe, d.h. proportional zur Auftreffgeschwindigkeit (Abb. 4-3). Aus Abb. 4-4 geht hervor, dass die die Plattenoberfläche gleichmäßig angeregt wird. Für feste Fallhöhen muss von einer individuellen Streuung der erzielten Maximalbeschleunigung von 20% ausgegangen werden.

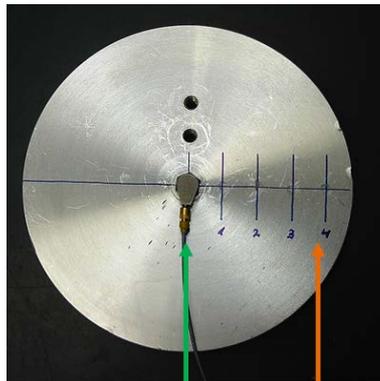


Abb. 4-1: Sensorpositionen für die Charakterisierung der Plattenanregung in Abhängigkeit von Fallhöhe und Position. Grün: fix, orange: variabel.

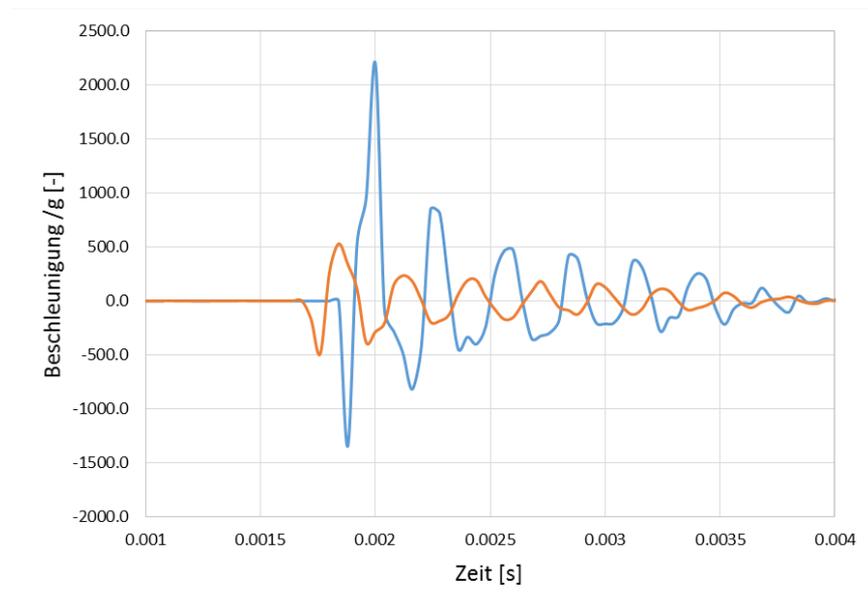


Abb. 4-2: Beschleunigungsspektrum in der Plattenmitte bei 50 cm (blau) und 3.8 cm Fallhöhe (orange).

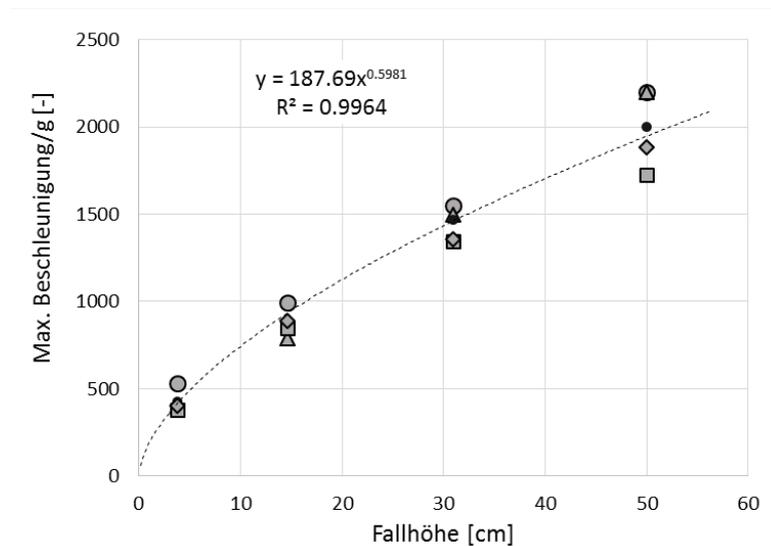


Abb. 4-3: Variation der maximalen Beschleunigung mit der Fallhöhe; vier Messserien; Regression für die Mittelwerte (schwarze Punkte).

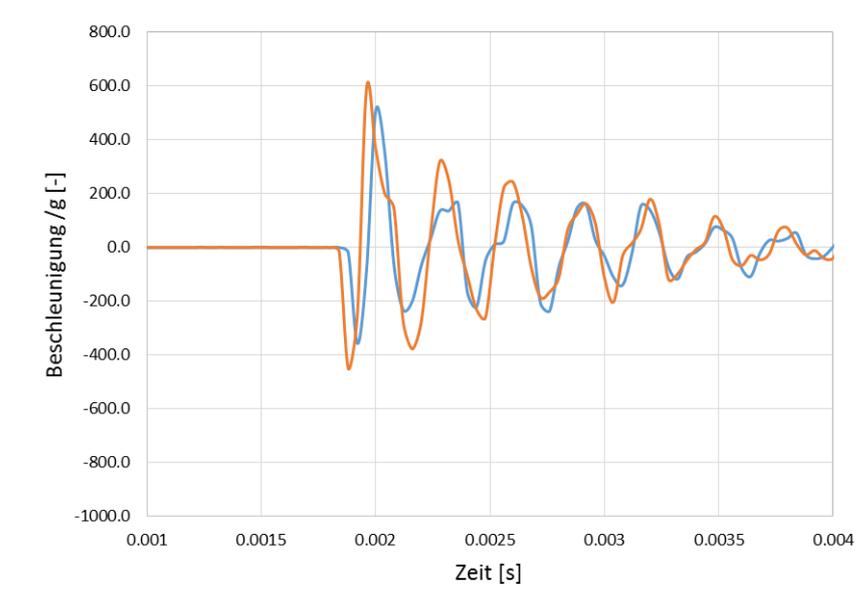


Abb. 4-4: Beschleunigungsspektrum im Plattenzentrum (orange) und an der Plattenperipherie, Pos. 4 (blau) bei niedriger Fallhöhe. Aluminiumplatte.

4.2 Resuspensionsuntersuchungen

4.2.1 Voruntersuchungen

Ausgehend von Erfahrungswerten aus früheren Vorhaben war für die Erreichung der Projektziele die Messung von Resuspensionsanteilen für unbehandelte Oberflächen (nicht festhaftende Kontamination) kleiner als 10^{-4} erforderlich. Zum Nachweis der Partikelresuspension nach Wischtest bzw. nach Anwendung von Fixierungsmaßnahmen sollte die Nachweisgrenze des Verfahrens mindestens zwei bis drei Größenordnungen darunter liegen d.h. bei Werten zwischen 10^{-7} und 10^{-6} . Für eine Massenbelegung von 5 mg entsprechen diese Werte resuspendierten Partikelmassen zwischen 0.5 und 5 ng Tracermaterial. Da die Bestimmungsgrenze für den chemisch-analytischen Nachweis der Markiersubstanz bei einigen Nanogramm liegt, war es erforderlich, die Anlage für die Resuspensionsbestimmung zusätzlich über eine chemisch unspezifische, partikelgrößenaufgelöste Partikelzählung zu qualifizieren. Das bedeutet im Wesentlichen die Vermeidung von Verschmutzungen der inneren Kanaloberflächen sowie der Probenträger. Hierfür wurde eine Feuchtreinigungsprozedur des unteren Teils des Kanals angewandt und

anschließend der Kanal für ca. 1 h mit einer Strömungsgeschwindigkeit von 6 m/s getrocknet. Restpartikel wurden während dieser Prozedur entfernt. Probenträger wurden vor der Belegung im Ultraschallbad behandelt. Das Ergebnis der Präparationsprozedur ist in Tab. 4-2 zusammengefasst. Trotz der relativ großen begrenzenden Oberflächen werden nur sehr wenige Partikel gemessen. Der resuspendierte Massenanteil errechnet sich unter Verwendung der gemessenen Durchmesser der resuspendierten Partikeln (die in der Tabelle nur grob klassiert sind).

Tab. 4-2 Anzahl N der resuspendierten Hintergrundpartikel bei einer Leermessung nach Durchführung der Reinigungsprozedur. Die aus der Partikelzählung errechneten Werte des resuspendierten Anteils (RF) beziehen sich auf eine Belegung von 5 mg.

| | | | | | | |
|-----------------------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| Fallhöhe: Position | L1 | L2 | L3 | L4 | L5 | L6 |
| Fallhöhe [cm] | 3.8 | 14.6 | 30.9 | 50.0 | 69.1 | 85.4 |
| N < 0.5 µm | 0 | 0 | 0 | 5 | 0 | 0 |
| N bis 5 µm | 0 | 0 | 0 | 0 | 5 | 5 |
| N >5 µm | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| Gesamtanzahl | 0 | 0 | 0 | 5 | 5 | 5 |
| RF | 0.0E+00 | 0.0E+00 | 0.0E+00 | 4.6E-11 | 4.4E-09 | 2.0E-08 |

Im Zuge der Voruntersuchungen wurde erwartungsgemäß ein großer Einfluss der Umgebungsfeuchte auf die Partikelresuspension festgestellt. Dies wird in Abb. 4-5 anhand der Rohdaten der Partikelzählung deutlich. Die belegte Platte wurde in zwei Durchgängen aus den Fallhöhen 3.8 bis 85.4 cm beaufschlagt. Die Messungen bei 95% r.F. wurde vor den Messungen bei 45% r.F. durchgeführt. Bei feuchteunabhängigen Haftkräften wäre eine Abnahme der resuspendierten Partikelzahl zu erwarten.

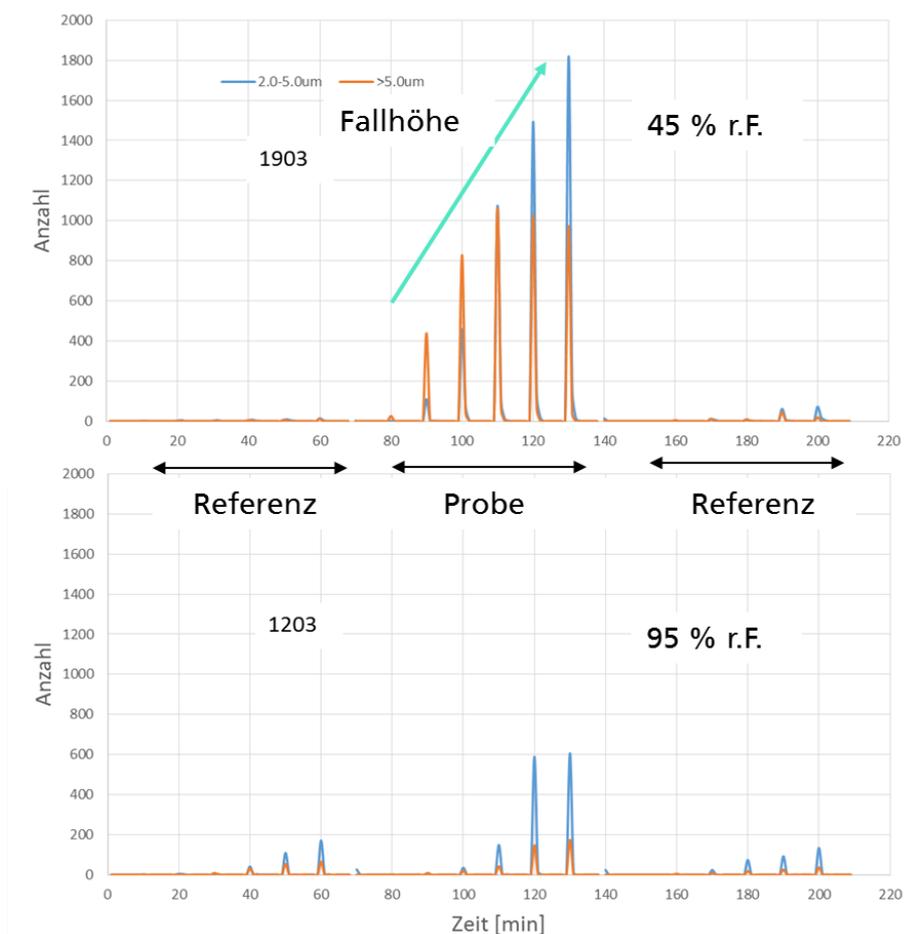


Abb. 4-5: Zahl der pro Schlag emittierten Partikel nach Probenlagerung bei 95% und 45 % relativer Feuchte.

Für die meisten der weiteren Messungen wurden daher eine feste Probenpräparationsprozedur und ein fester Messablauf eingehalten. Dieser bestand in einer Temperierung der gesamten Platte bei 125° und der unmittelbar darauffolgenden Vermessung im Kanal bei Probenoberflächentemperaturen, die noch deutlich über der Raumtemperatur liegen, d.h bei geringer rel. Feuchte an der Oberfläche selbst unter Laborraumbedingungen. Da der Kanal bei der Messung von trockener Druckluft durchströmt wird, ist daher kein Einfluss der relativen Aussenfeuchte auf den Resuspensionsprozess zu erwarten.

Den Grad der Reproduzierbarkeit der Resuspensionsmessungen mit Proben, die nach dem so beschriebenen Standardverfahren mit NaCl belegt wurden, zeigt Abb. 4-6. Fünf Platten wurden jeweils in gleicher Weise behandelt und

vermessen. Der Schlag erfolgt stets aus einer Fallhöhe von 85.4 cm und wurde für jede Probe sechsmal hintereinander ausgeführt. Die relative Standardabweichung für die einzelnen Schläge liegt zwischen 35 und 93% (siehe auch Abb. 4-7).

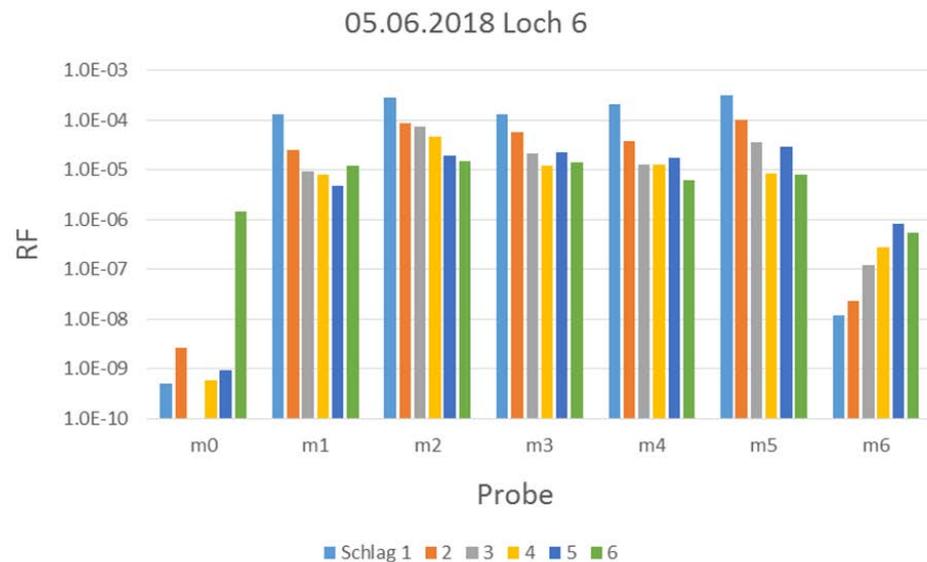


Abb. 4-6: Reproduzierbarkeit der Messung des resuspendierten Massenanteils der Belegung. Fallhöhe 85 cm.

Im Mittel nimmt der resuspendierte Anteil mit der Schlagzahl ab. Eine Kurvenanpassung unter Einschluss des ersten Schlags ergibt als besten Fit ein Potenzgesetz (Abb. 4-7). Es ist bekannt, dass mit dem ersten Schlag ein Resuspensionsburst verbunden ist und hier die größte relative Abnahme erfolgt. Ab dem zweiten Schlag könnte man im Mittel auch von einem kleineren Exponenten von 1.47 ausgehen.

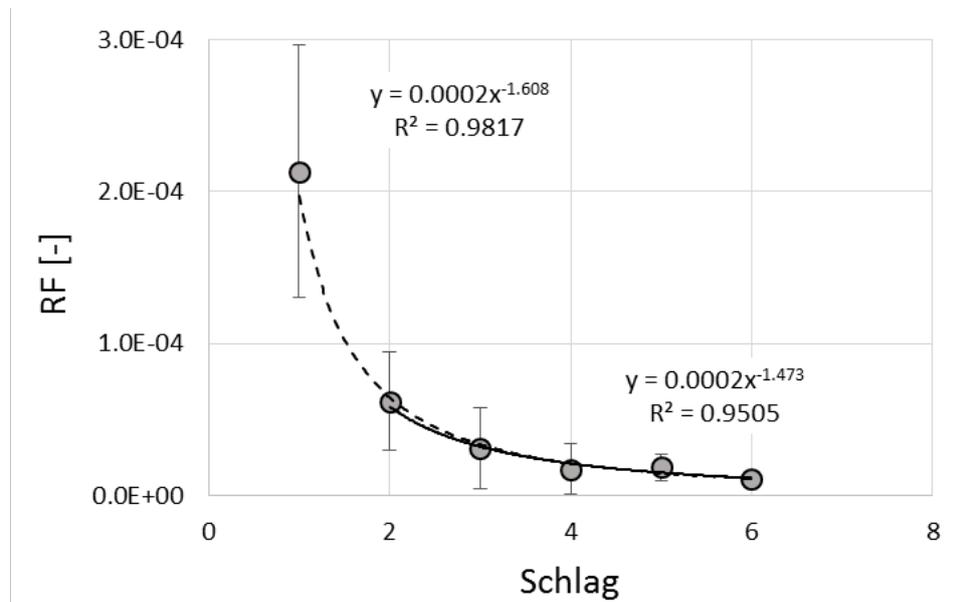


Abb. 4-7: Abnahme des resuspendierten Anteils mit der Zahl, x, der Beaufschlagungen. Fallhöhe 85 cm.

Eine Erhöhung der Fallenergie führt zu einer Zunahme des Resuspensionsanteils. Dies ist in Abb. 4-8 dargestellt. Die Daten zeigen den gemessenen Resuspensionsanteil sowie die absolute Anzahl der emittierten Partikel als Funktion der Maximalbeschleunigung der Plattenoberfläche beim Fallhammeraufprall. Anzahl- und Massenfreisetzung korrelieren gut, weil sich die Größenverteilungen der freigesetzten Aerosole nicht signifikant unterscheiden (Abb. 4-9). Der Wert der Maximalbeschleunigung wurde aus der Fallhöhe unter Verwendung der Abb. 4-3 bestimmt. Die durchgezogene Linie ergibt sich aus Gl. 7 für NaCl-Partikel von 5 µm Durchmesser, was ungefähr dem Medianwert der Partikelgrößenverteilung entspricht, und folgenden Werten der Haftkraftparameter: $\gamma = 0.5 \text{ J/m}^2$, $\bar{f}'_h = 0.06$, $\sigma'_h = 4$. Die unterbrochenen Linien sind eine Extrapolation auf 10 µm bzw. 2.5 µm Partikel basierend auf den für 5 µm angepassten Parametern der Haftkraftverteilung. Die Variablengruppe $d_p^2 / (\bar{f}'_h \cdot \gamma)$ bestimmt die Lage der Haftkraftverteilung und σ'_h deren Breite. Letztere hat einen signifikanten Einfluss sowohl auf die Steilheit der Kurven in der Abb. 4-8 als auch auf deren Lage als Funktion der Beschleunigung. Die tatsächlichen Werte der Verteilungsparameter liegen nicht vor, sodass der

Kurvenverlauf nur einen groben, qualitativen Vergleich mit den Messdaten ermöglicht. Die Kurvenanpassung wurde für den Partikelgrößenbereich vorgenommen, der für die NaCl-Kontamination relevant ist (Abb. 4-9). Wären Partikeln mit aerodynamischem Durchmesser größer als 10 μm vorhanden, würden sie sich auch in der Verteilung des resuspendierten Anteils zeigen. Die Wahl von 5 μm für die Kurvenanpassung an die Daten in Abb. 4-8 scheint daher gerechtfertigt. Das ermöglicht andererseits näherungsweise eine Extrapolation der zu erwartenden Resuspensionanteile auf andere Partikelgrößen. Für Partikeln mit aerodynamischem Durchmesser von 10 μm beträgt danach der resuspendierte Anteil $2 \cdot 10^{-3}$ bei einer die realistischen Verhältnisse abdeckenden Maximalbeschleunigung von 2000g.

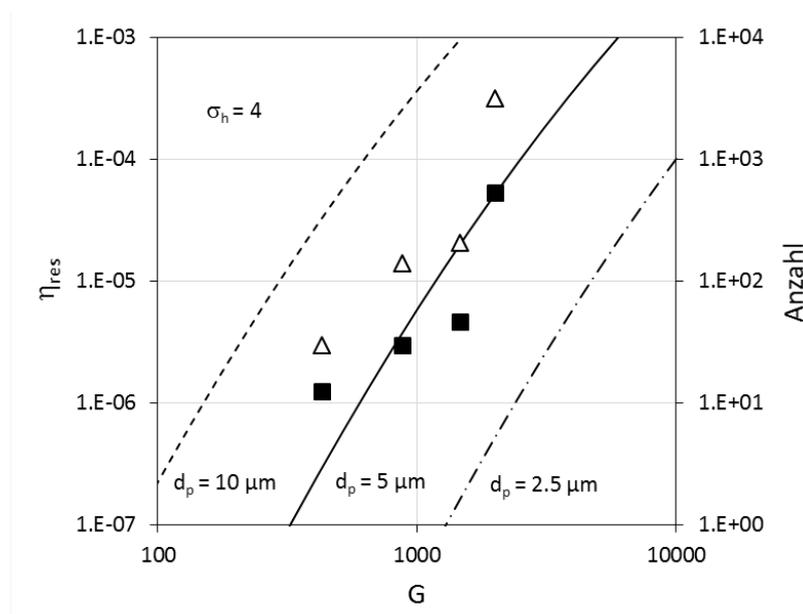


Abb. 4-8: Zunahme des resuspendierten Anteils und der Anzahl emittierter Partikel mit der Maximalbeschleunigung während des Fallhammeraufpralls und qualitativer Vergleich mit dem Modell (Gl. 7). Konditionierung bei 125°C. Die Quadrate markieren die Werte des Freisetzunganteils, η_{res} ; die Dreiecke die Werte der Anzahl emittierter Partikel.

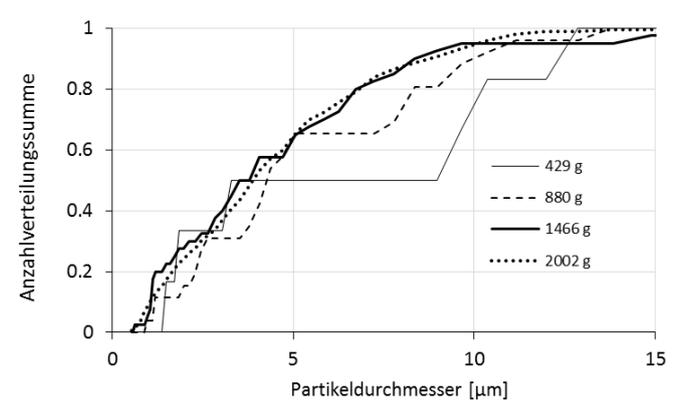


Abb. 4-9: Anzahlverteilungssumme der bei unterschiedlichen Maximalbeschleunigungen freigesetzten Aerosole. Zunahme der Verteilungsunstetigkeiten mit Abnahme der Resuspension aufgrund der Statistik der geringen Zahl detektierter Partikel.

Die Prozedur des trockenen Abwischens führt zu einer erheblichen Zunahme der Resuspension, wie die Abb. 4-10 zeigt. In diesen Experimenten wurde der 10-%igen NaCl-Lösung CsCl (0.1%) als Tracer für die analytische Bestimmung der Belegung nach der Wischprozedur zugesetzt. Sowohl die unbehandelte als auch die abgewischten Proben wurden vor ihrer Vermessung der Konditionierungsprozedur bei 125°C unterzogen. Allerdings wurden sie nach der Konditionierung für einen Zeitraum von ca. 15 Minuten zwecks Abkühlung der Luft ausgesetzt. Dies führt ganz offensichtlich zu einer im Vergleich gegenüber den Verhältnissen von Abb. 4-8 geringeren Resuspension im unbehandelten Zustand. Der Grund liegt in der alterungsbedingten Erhöhung der Haftkräfte. Während der Lagerungszeit kann es zur Kapillarkondensation von Wasser an den Kontaktstellen und damit einhergehend zu einer Erhöhung der Haftkräfte kommen. Bei Verwendung von reinem CsCl als Kontamination in Vorversuchen wurden ähnliche Ergebnisse erzielt. Gleiches gilt für NaCl als Kontamination.

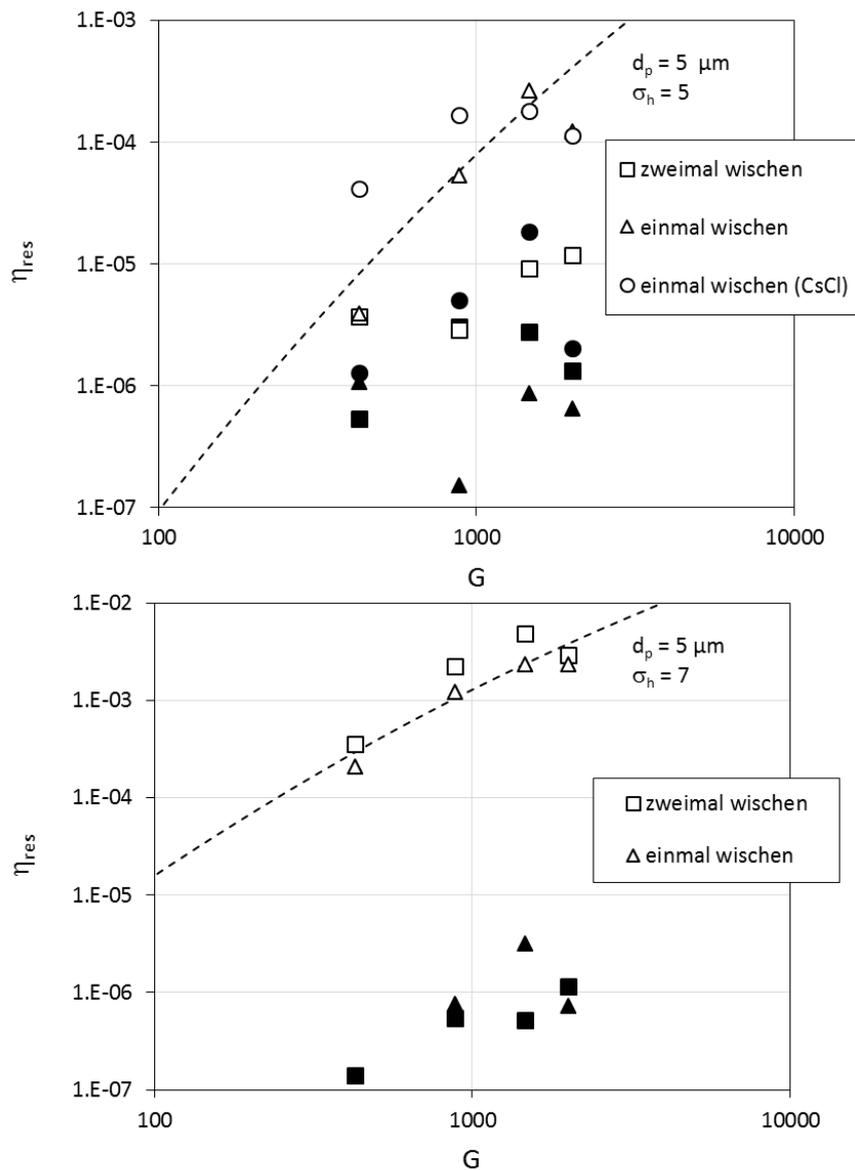


Abb. 4-10: Resuspendierter Anteil nach der Wischprobe. (Schwarz: Referenz vor Wischprobe, hell: nach Wischprobe). Alle Proben wurden vor der Messung bei 125°C konditioniert und sofort in den Kanal überführt. Obere Grafik: polierte Oberfläche und NaCl/CsCl-Kontamination; untere Grafik: sandgestrahlte Oberfläche, NaCl Kontamination.

Die Referenzmessungen vor der Wischprozedur zeigen keinen eindeutigen Zusammenhang zwischen dem Resuspensionsanteil und der Krafteinwirkung, zumal die Werte auch schon nahe an der Verfahrensnachweisgrenze liegen.

Mit dem Wischen umfasst die Haftkraftverteilung im Vergleich zur Ausgangsverteilung deutlich kleinere Werte, was zu einer im Vergleich zur

Referenz erhöhten Resuspension führt. Es besteht ein deutlicher Unterschied zwischen den Verhältnissen an einer polierten Oberfläche und denjenigen an einer sandgestrahlten Oberfläche. Im letzteren Fall beträgt die Zunahme des Resuspensionsanteils nahezu drei Größenordnungen. Bei einer Maximalbeschleunigung von 1000 g wird die unbehandelte Kontamination zu einem Anteil von 10^{-6} freigesetzt, während nach einmaligem und auch zweimaligem Wischen sich dieser Anteil auf 10^{-3} erhöht. Bei der polierten Oberfläche beläuft sich die Erhöhung des Resuspensionsanteils auf knapp zwei Größenordnungen. Eine Anpassung des Resuspensionsmodells über den in Gl. 7 abgeleiteten Zusammenhang erfolgte in beiden Fällen für die typischen Partikelgrößen von 5 μm (siehe auch Abb. 4-11 und Abb. 4-12) mit unterschiedlichen Werten der geometrischen Breite, σ_h , der Haftkraftverteilung unter Konstanthaltung der anderen Parameter. In der Reihenfolge glatte Oberfläche und unbehandelte Kontamination, glatte Oberfläche „aktivierte“ Kontamination und raue Oberfläche „aktivierte“ Kontamination ist ein qualitativer Trend der Verbreiterung der zugrunde liegenden Haftkraftverteilung zu verzeichnen und zwar von $\sigma_h = 4$ für die Resuspension von der unbehandelten Oberfläche (Abb. 4-8) nach $\sigma_h = 5$ und $\sigma_h = 7$ für die beiden behandelten Oberflächen. Dieser intuitiv verständliche Fakt steht letztendlich auch für die Zunahme der Resuspension.

Die Anzahlgrößenverteilungen der freigesetzten Aerosole verschieben sich mit zunehmender Krafteinwirkung (Maximalbeschleunigung) zu kleineren Partikeln hin (Abb. 4-11 und Abb. 4-12). Für die Konfiguration mit den höchsten Resuspensionsanteilen (sandgestrahlte Oberfläche) ist dieser Effekt am deutlichsten.

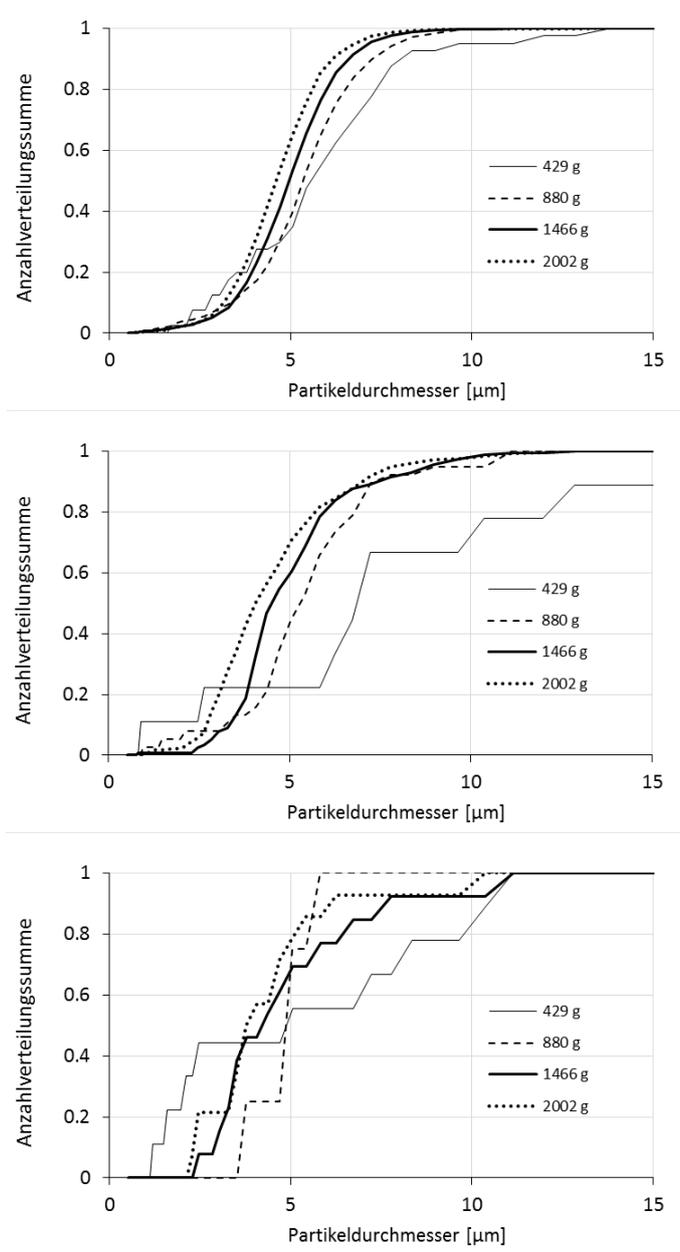


Abb. 4-11: Anzahlverteilungssumme resuspendierter Partikeln nach Applikation von einer (oben) bzw. zwei (Mitte) Abwischprozeduren auf die kontaminierte, polierte Oberfläche. Zum Vergleich die Messergebnisse der Referenzprobe (unten). NaCl/CsCl Kontamination.

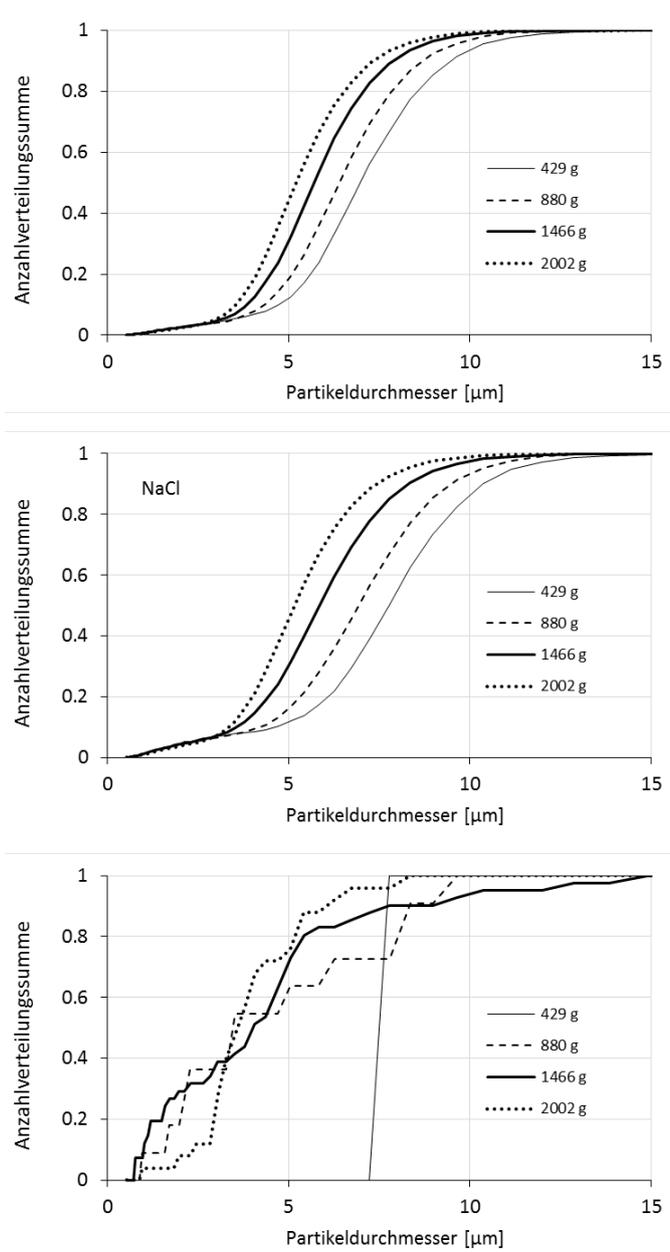


Abb. 4-12: Anzahlverteilungssumme resuspendierter Partikeln nach Applikation von einer (oben) bzw. zwei (Mitte) Abwischprozeduren auf die kontaminierte, sandgestrahlte Oberfläche. Zum Vergleich die Messergebnisse der Referenzprobe (unten). NaCl Kontamination.

Der Einfluss der Alterung der Kontamination (und damit verbunden die Haftkraftherhöhung) auf die Resuspension wird auch in Abb. 4-13 deutlich. Belegte Proben wurden abwechselnd standardmäßig bei 125 °C konditioniert und anschließend sofort im Kanal unter Druckluftbedingungen vermessen bzw. nach der Konditionierung noch

15 Min der Druckluft ausgesetzt, bevor die Resuspension gemessen wurde. Ein Unterschied zwischen den beiden Messbedingungen ist die Oberflächentemperatur des Prüflings, die allerdings nicht genau quantifiziert wurde. Die Alterung führt zu einer signifikanten Reduktion des resuspendierten Anteils der Oberflächenkontamination, in diesem Fall bis an die Nachweisgrenze des Verfahrens. Der Vorgang der Haftkraftmodifikation ist offensichtlich reversibel. Während in Abb. 4-13 und Abb. 4-14 immer dieselbe Probe analysiert wurde, ist in Abb. 4-15 der Effekt der Alterung, so wie er mit jeweils separaten Proben gemessen wurde, dargestellt. Auch hier ist der Trend der Verringerung des resuspendierten Anteils der Oberflächenkontamination mit zunehmender Alterungszeit festzustellen.

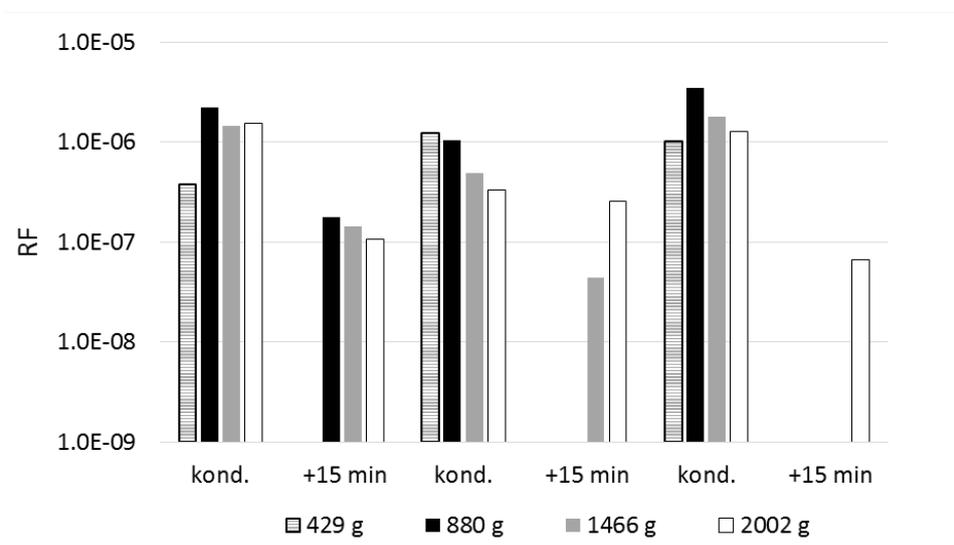


Abb. 4-13: Einfluss der Alterung auf die Resuspension von NaCl/CsCl-Partikel. Es wurde nacheinander immer dieselbe Probe konditioniert/gealtert und vermessen.

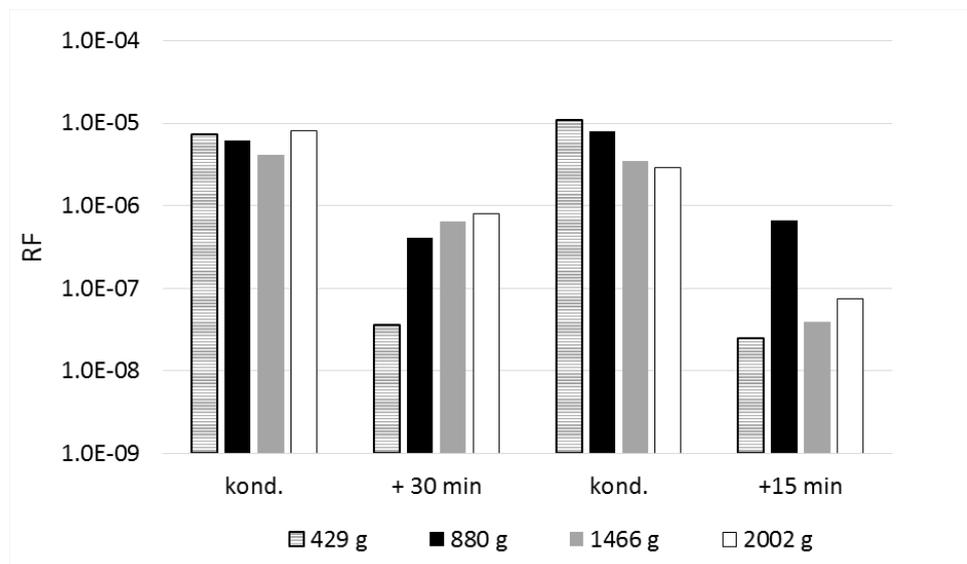


Abb. 4-14: Einfluss der Alterung auf die Resuspension von NaCl _Partikel. Es wurde nacheinander immer dieselbe Probe konditioniert/gealtert und vermessen.

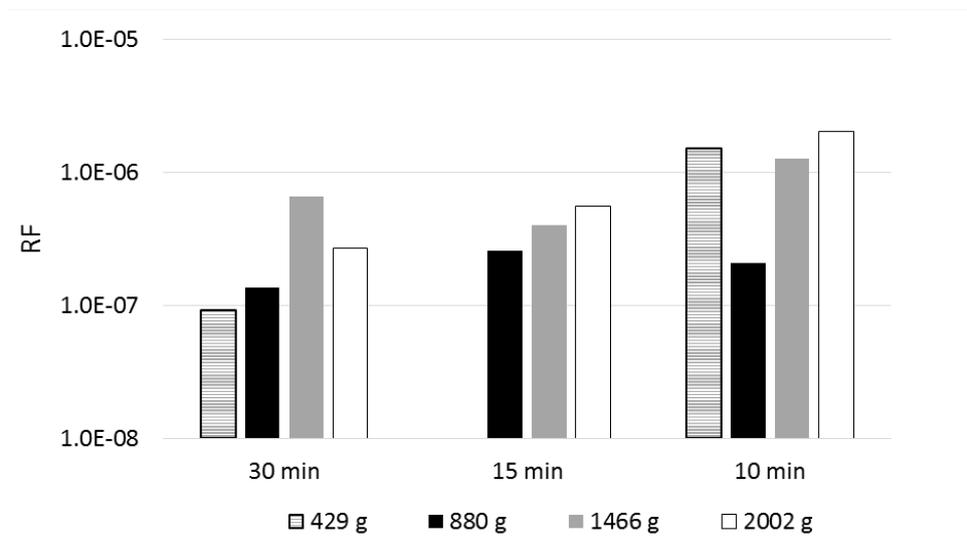


Abb. 4-15: Einfluss der Alterung auf die Resuspension von NaCl _Partikel. Die Resuspension wurde an unterschiedlichen, jeweils neu belegten Proben gemessen.

5 Diskussion und Zusammenfassung der Resuspensionsdaten

Im Vorhaben wurden Daten zur Resuspension von Oberflächenkontaminationen unter Unfallbedingungen (Behälterabsturz) generiert. Grundlage der experimentellen Vorgehensweise ist die Tatsache, dass die Resuspension der Oberflächenkontamination ein ausschließlich lokales Phänomen ist, und dass daher die Erzeugung der relevanten Oberflächenbeschleunigungen in kleinskaligen Proben mit kontaminierter Oberfläche die Verhältnisse für den Resuspensionsprozess hinreichend realistisch abbilden. Eine Beschleunigung von ca. 2000 g wurde als abdeckend angenommen. Dieser Wert (und kleinere) der Oberflächenbeschleunigung und das zugehörige Frequenzspektrum konnten in einer kleinskaligen Versuchsanordnung an kreisrunden Probenoberflächen (Durchmesser 9 cm) reproduzierbar realisiert werden. Ein entscheidender Vorteil des kleinskaligen Ansatzes liegt im Erreichen einer äußerst niedrigen Nachweisgrenze von 10^{-7} für den resuspendierten Anteil der Oberflächenkontamination. Dies wurde durch die Verwendung eines zählenden, gröbenselektierenden Partikelmessverfahrens für die direkte Analyse aller von der Probenoberfläche resuspendierten Partikel in Kombination mit einer effizienten Reinigung des Kanals und dessen kontaminationsfreien Betriebs erreicht.

Die Art der Kontamination sollte so erfolgen, dass sie einer möglichst guten Haftung unterliegt, ohne dass das Kriterium „festhaftend“ erfüllt ist. Dies wird dadurch realisiert, dass salzhaltige wässrige Tropfen auf der Probenoberfläche abgeschieden werden und anschließend das Wasser in einem Konditionierprozess verdampft wird. Von einer kovalenten Bindung der Partikel an die Oberfläche ist nicht auszugehen. Nicht auszuschließen sind über die van-der-Waals-Kräfte hinausgehende Adhäsionskräfte beispielsweise durch noch vorhandene Wasserbrücken an den Kontaktstellen zur Oberfläche. Die unter den Konditionierbedingungen

gemessenen Resuspensionsanteile stellen auf alle Fälle eine obere Grenze für die Resuspension der sogenannten festhaftenden Kontamination dar.

Die typische Partikelgröße der Kontamination lag bei allen Versuchen bei ca. 5 μm . Die bei der höchsten Beschleunigung gemessenen maximalen Werte des resuspendierten Anteils lag bei einem Wert von $8 \cdot 10^{-5}$ (Abb. 4-8) für einen Beschleunigungswert von 2000 g. Alterungsvorgänge führen zu einer erheblichen Verringerung der Resuspension. Demgegenüber bewirkt eine Wischprozedur eine deutliche Erhöhung um bis zu 2 Größenordnungen. Daraus ist zu schließen, dass die Kontamination der unbehandelten Oberfläche nicht in die Kategorie festhaftend eingeordnet werden kann und der gemessene Resuspensionswert von $\eta = 8 \cdot 10^{-5}$ als abdeckend für festhaftende Kontamination mit einer Partikelgröße von 5 μm angesehen werden kann. Ein einfaches, an die Daten der Abb. 4-8 angepasstes Resuspensionsmodell erlaubt eine Extrapolation auf größere Partikel, was für 10 μm bei 2000 g zu einem Wert von $\eta = 2 \cdot 10^{-3}$ führt. Für einen immer noch vergleichsweise hohen Wert der Oberflächenbeschleunigung von 1000 g betragen die entsprechenden Werte für 5 μm $6 \cdot 10^{-6}$ und für 10 μm Partikel $4 \cdot 10^{-4}$. Diese geringen Werte basieren auf nur wenigen, detektierten Zählereignissen (< 10 für einen Resuspensionsanteil von $\eta = 10^{-6}$), weshalb die massenbezogenen Resuspensionswerte mit entsprechend hohen Unsicherheiten (bis zu 100%) verbunden sind.

Die Abhängigkeiten der experimentellen Daten von den Resuspensionsparametern wurden mit Vorhersagen eines einfachen Resuspensionsmodells verglichen. Grundlage dieses Modells ist der Vergleich der Haftkraft mit der durch die Beschleunigung auf die Partikel wirkenden Trägheitskraft. Berechnungen unter der Annahme der Adhäsion einer perfekt glatten Kugel auf einer perfekt glatten Oberfläche würden allerdings keine Resuspension von 5 μm -Partikel zulassen, da selbst bei der betrachteten Beschleunigung von 2000 g unter diesen Bedingungen die

Haftkräfte die Trägheitskräfte deutlich übersteigen. Die in der Realität immer vorhandenen Oberflächenrauigkeiten führen jedoch zu einer Reduktion der Haftkräfte und zu einer breiten Verteilung ihrer Werte. Basierend auf Experimenten mit trocken deponierten Teilchen wird in der Literatur von einer lognormalen Haftkraftverteilung ausgegangen mit einer geometrischen Standardabweichung von bis zu 10 (Reeks und Hall, 2001). Diese Vorstellung wurde hier übernommen und der frei wählbare Modellparameter Verteilungsbreite wurde an die eigenen experimentellen Daten angepasst. Das erlaubt dann eine Extrapolation auf andere als im Experiment realisierte Partikelgrößen und die Vorhersage des Einflusses der Beschleunigung auf die Resuspension. Relativierend muss an dieser Stelle bemerkt werden, dass das Resuspensionsmodell sehr sensitiv auf die Verteilungsbreite der lognormal verteilten Adhäsionskräfte reagiert (Abb. 5-1) und eine unabhängige Messung dieses Parameters nicht vorliegt.

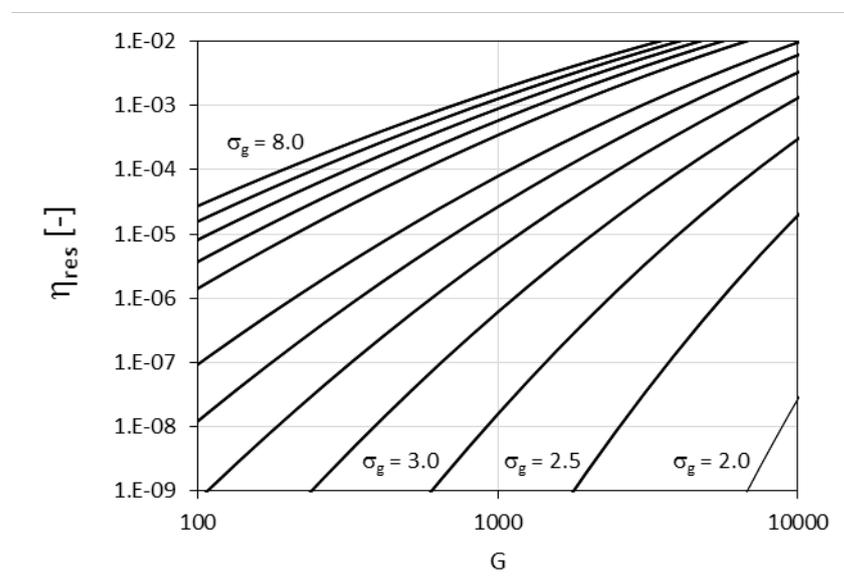


Abb. 5-1: Ergebnisse der Modellrechnungen zur Abhängigkeit des resuspendierten Anteils von der geometrischen Standardabweichung der Häufigkeitsverteilung der Haftkräfte für eine Partikelgröße von $5 \mu\text{m}$.

Die in diesem Vorhaben gemessenen Daten zur Resuspension sind mit früher gemessenen Werten vergleichbar. In der Studie BfS/BMU-

3609S70005 (Koch et al., 2012) werden für die kumulierten lungengängigen Freisetzungsteile für nass deponierte CsCl-Kontaminationen bei einer Fallenergie 0.3 J (entspricht einer Maximalbeschleunigung von 2000 g) je nach verwendeter Oberfläche die in Abb. 5-2 dargestellten Werte gemessen. Die grünen Balken sind die Rechenwerte des über Abb. 4-8 angepassten Modells. Hier wurden für die Berechnung in Gl. 7 für die Partikeldurchmesser, d_p , die Werte 3.9 und 7.1 μm gewählt. Diese ergeben sich als geometrischer Mittelwert der jeweiligen Klassengrenzen der in der Abbildung gewählten Größenintervalle.

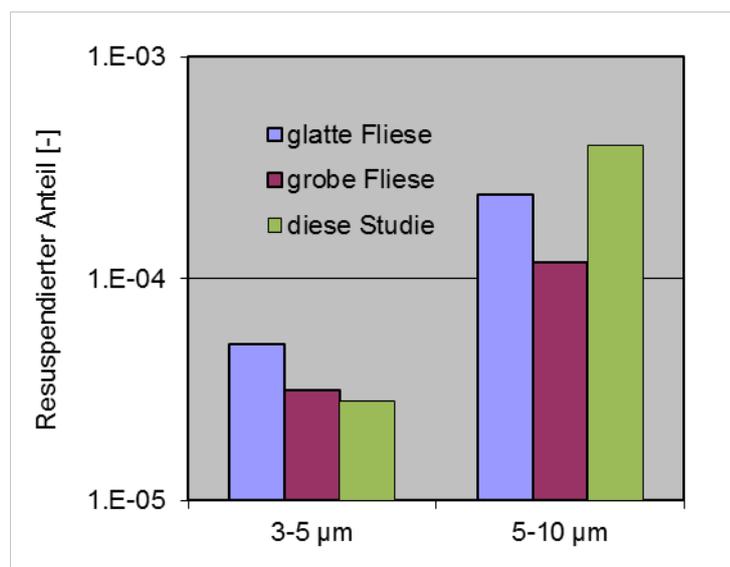


Abb. 5-2: Resuspensionsanteile nass deponierter Oberflächenkontamination bei einer Fallbelastung mit 0.3 J. Die Werte für die glatte und grobe Fliese wurden im BMU/BfS-Vorhaben 3609S70005 gemessen.

Die Übereinstimmung ist recht gut. Bei einer angenommenen Gleichverteilung der Oberflächenkontamination im Partikelgrößenintervall von 3 bis 10 μm ergibt sich aus den grünen Balken eine kumulierte Freisetzung von $4.3 \cdot 10^{-4}$. Unter diesen Annahmen ist dieser Wert dann als eine konservative Angabe des resuspendierten Anteils festhaftender

Kontamination unter den Bedingungen realistischer Unfallbelastungen der Transportbehälter anzusehen.

Für trocken deponierte Silber- und Ceroxidpartikel liegt der resuspendierte lungengängige Anteil der Kontamination um eine Größenordnung darüber: $5.2 \cdot 10^{-3}$ bis $1.3 \cdot 10^{-2}$.

6 Anwendung der experimentellen Resuspensionsdaten zur Beurteilung der Transportsicherheit bei Unfällen mit SCO-II Gegenständen

Im Zusammenhang mit der Ermittlung und Beurteilung von potenziellen Unfallfolgen bei der Beförderung von SCO-II Gegenständen stehen die folgenden Ausführungen, welche die hier berichteten experimentellen Ergebnisse zur Resuspension bei mechanischen Unfallbelastungen und darauf basierte Unfallfolgenanalysen verbinden.

6.1 Anforderungen der IAEA Transportvorschriften an die Beförderung von radioaktiven Stoffen

Zentrales Ziel der IAEA Transportvorschriften ist die Gewährleistung eines hohen Sicherheitsstandards bei der Beförderung radioaktiver Stoffe. Dazu werden Anforderungen an die Aktivitätsinhalte, materiellen Eigenschaften der radioaktiven Stoffe und die verwendeten Verpackungen gestellt. Ein wesentlicher Teil dieser Anforderungen resultiert aus Unfallbetrachtungen bei der Handhabung und Beförderung von Versandstücken. Dazu gehören insbesondere Analysen zu Unfällen, die zu einer Freisetzung radioaktiver Stoffe in die Umgebung des Unfallortes führen können. Eine potenzielle Strahlenexposition einer Person, die sich im Nahbereich des Unfallortes befindet, infolge einer luftgetragenen Freisetzung radioaktiver Stoffe sollte unterhalb einer effektiven Dosis von 50 mSv bleiben. Hierbei geht es primär um freigesetzte radioaktive Stoffe mit Partikelgrößen im lungengängigen

Größenbereich $< 10 \mu\text{m}$ aerodynamischer Durchmesser, die über Inhalation zu einer Strahlenexposition führen. In diesem Zusammenhang zu unterstellende Unfälle sollen schwerwiegend jedoch nicht extrem sein. In Bezug auf schwere Unfälle mit mechanischer Belastung von Versandstücken werden oft - aber keineswegs obligatorisch - einwirkende Kräfte unterstellt, die einem Absturz eines Behälters aus 9 m Höhe auf ein hartes Hindernis entsprechen.

Die IAEA Transportvorschriften unterliegen regelmäßig einer Überprüfung, die auch die Angemessenheit und Rechtfertigung der aktuellen Anforderungen betrachtet. Solche Überprüfungen beziehen Erfahrungen aus bisherigen Transporten, Entwicklungen in Bezug auf materielle Eigenschaften radioaktiver Stoffe, die zu befördern sind, als auch wissenschaftliche Fortschritte mit ein, z.B. bezüglich des Verhaltens von Transportbehältern und deren radioaktive Inhalte bei Unfallbelastungen und der Methoden und Daten zur Ermittlung und Beurteilung von radiologischen Unfallfolgen.

6.2 Anforderungen der IAEA Transportvorschriften an Transporte von SCO-II Gegenständen

Für die Beförderung von oberflächenkontaminierten Gegenständen der Kategorie SCO-II gelten insbesondere folgende Anforderungen:

- Die radioaktiven Stoffe müssen als Oberflächenkontamination auf SCO-II Gegenständen vorliegen.
- Die Gegenstände dürfen nicht selbst radioaktiv sein, z.B. durch Aktivierung.
- Die Verpackung muss den Anforderungen für Industrieverpackungen IP-2 genügen.
- Wie für Typ A Versandstücke und Versandstücke mit LSA II und LSA III Stoffen ist die Dosisleistung des unabschirmten Materials begrenzt.
- Es besteht eine Aktivitätsbegrenzung für das Transportmittel.

In Bezug auf die kontaminierten Oberflächen im Versandstück wird zwischen zugänglichen (accessible) und nicht zugänglichen (inaccessible) Oberflächen unterschieden, und bei der Kontaminationsbegrenzung wird zwischen „festhaftender“ (fixed) und „nicht festhaftender“ (non-fixed) Kontamination differenziert.

Dabei ist die Unterscheidung zwischen als festhaftend und als nicht festhaftend eingestufte Kontamination von zentraler Bedeutung, weil die wirksamen Haftkräfte auf einer Oberfläche für die Ablösung von Partikeln infolge äußerer Einwirkungen maßgeblich sind.

Zur Vereinfachung werden in der folgenden in Englisch gehaltenen Tab. 6-1 die Kontaminationsbegrenzungen der IAEA Transportvorschriften für zugängliche Oberflächen (accessible surfaces) für non-fixed (nicht festhaftende) und fixed (festhaftende) Kontamination aufgeführt. Dabei beziehen sich die Begrenzungen auf Beta-/Gamma Strahler und Alpha-Strahler niedriger Toxizität (z.B. Uranisotope) und auf die sonstigen Alpha-Strahler:

Tab. 6-1 Kontaminationsbegrenzungen für zugängliche Oberflächen von SCO-II Gegenständen

| Contamination | beta/gamma + low toxicity alpha | alpha |
|---------------|--|--|
| non-fixed | 400 Bq/cm ² | 40 Bq/cm ² |
| fixed | 8 · 10 ⁵ Bq/cm ² | 8 · 10 ⁴ Bq/cm ² |

Man erkennt, dass zwischen den Kontaminationsbegrenzungen für nicht festhaftende und festhaftende Kontamination ein hoher Faktor 2000 besteht. Und es ist unmittelbar ersichtlich, dass schon aufgrund der beobachteten sehr großen Bandbreite bei den wirksamen Haftkräften und deren ausgeprägten Abhängigkeit von der Partikelgröße eine messtechnische Unterscheidung zwischen festhaftender und nicht festhaftender Kontamination Probleme aufwirft.

Hierzu werden Ausführungen zur Unterscheidung zwischen festhaftender und nicht festhaftender Kontamination in Abschnitt 508.2 im aktuellen Advisory Material der IAEA Transportvorschriften (IAEA, 2014) im Originaltext wiedergegeben:

508.2 In most cases, the level of non-fixed contamination is measured indirectly by wiping a known area with a filter paper or a wad of dry cotton wool or other material of a similar nature. It is common practice to assume that the activity on the wipe represents only 10% of the total non-fixed contamination present on the surface. The fraction on the wipe will include the activity most readily available for resuspension. The remaining activity on the surface represents contamination that is less easily resuspended."

Im Ergebnis laufen diese Erläuterungen darauf hinaus, dass nicht festhaftende Kontamination im Prinzip durch die eher schwachen einwirkenden Kräfte bei der Entnahme einer trockenen Wischprobe erfasst wird. Bei einer Kontrollmessung auf Einhaltung der Begrenzungen für nicht festhaftende Kontamination wird darüber hinaus aus konservativen Gesichtspunkten angenommen, dass bei der Wischprobe nur 10 % der nicht festhaftenden Kontamination erfasst und gemessen wird.

Diese simple Definition zur Unterscheidung zwischen nicht festhaftender und festhaftender Kontamination trägt der tatsächlichen großen Bandbreite der auf Partikel an Oberflächen wirkenden Haftkräfte nicht Rechnung. Die Stärke der wirksamen Haftkräfte ist jedoch maßgeblich bezüglich einer Ablösung von Partikeln durch einwirkende Luftströmungen und durch infolge Stoßbelastung induzierte Oberflächenschwingungen.

Hinzu kommt, dass für eine Exposition von Personen durch Inhalation von Oberflächen resuspendierter Partikel der lungengängige Partikelgrößenbereich $< 10 \mu\text{m}$ aerodynamischer Durchmesser maßgeblich

ist. Eine Wischprobe erfasst jedoch alle Partikelgrößen und dabei vornehmlich größere Partikel, da diese durch viel geringere Haftkräfte an die Oberfläche gebunden sind.

Das führt dazu, dass auch Kontaminationen, die im Sinne der Transportvorschriften als nicht festhaftend eingestuft werden, in der Realität bei Unfallbelastungen in beträchtlichem Maße niedrige lungengängige Freisetzungsteile aufweisen und entsprechend aus radiologischer Sicht nur zu geringen bis sehr geringen Expositionen von Personen führen würden.

Bleibt es bei diesen Definitionen von festhaftend und nicht festhaftend, kann der experimentelle Nachweis helfen, dass für nach dieser Definition nicht festhaftende Kontamination dennoch in der Regel Haftbedingungen vorliegen, die mit geringen Freisetzungsteilen lungengängiger Partikel verbunden sind. In der vorliegenden Studie wurden Kontaminationen präpariert, die zwar im Sinne eines Wischtests als nicht festhaftend einzustufen wären, die sich aber bezüglich einer Resuspension deutlich in Richtung festerhaftend verhalten. Solche Bedingungen wurden durch nasse Deposition von NaCl oder CsCl Partikeln im Größenbereich 5 µm mit einer anschließenden Trocknung/Alterung erreicht.

Bei den Resuspensionsmessungen dieser Studie und einer vorausgehenden (Koch et al., 2012) sind zwei Arten von Oberflächenkontamination präpariert worden:

- Auf der Oberfläche trocken deponierte Silber- oder Ceroxidpartikel, wobei die Kontamination vor der Schlagbelastung einer geringfügigen Einwirkung durch eine einstündige Luftströmung mit z.B. 6 m/s ausgesetzt wurde. Damit wurde derjenige Anteil der frisch deponierten Partikel entfernt, der nur sehr locker haftete und von dem man erwarten kann, dass er im Zuge von gängigen

Behandlungen oder Alterungseffekten vor einer Beförderung entweder entfernt oder in Richtung etwas stärker haftend transformiert wird. Die damit gemessenen Werte der Resuspensionsanteile bei einer hohen Impaktbelastung, die zu Amplituden der induzierten Vibrationsbeschleunigungen um 2000 g führen, werden bei der Ermittlung von radiologischen Folgen als obere Werte für **nicht festhaftende Kontamination** verwendet.

- Auf der Oberfläche wurde eine Kontamination durch nass deponierte wässrige NaCl oder CsCl Tröpfchen im Größenbereich um 5 µm erzeugt, die anschließend unter definierten Temperaturbedingungen (125 °C) konditioniert wurde. Größere Anteile einer so präparierten Kontamination sind zwar mit einer Wischprobe entfernbar, sie weist jedoch deutlich geringere Resuspensionsanteile bei Einwirkung von Luftströmung und Schlagbelastung auf. Die damit gemessenen Werte der Resuspensionsanteile bei einer Impaktbelastung, die zu Amplituden der induzierten Vibrationsbeschleunigungen um 2000 g führen, werden bei der Ermittlung von radiologischen Folgen als obere Werte für **festhaftende Kontamination** verwendet.

6.3 Analyse eines schweren Transportunfalls eines IP-2 Versandstückes mit sehr hoher Kontamination von SCO-II Gegenständen

Es wird ein schwerer Transportunfall im Hinblick auf die potenzielle Exposition einer Person im Nahbereich des Unfallortes analysiert, bei dem eine IP-2 Verpackung mit hoch kontaminierten SCO-II Gegenständen durch Aufprall auf ein hartes Hindernis stark beaufschlagt wird. Für den radioaktiven Inhalt wird angenommen, dass es sich bei den SCO-II Gegenständen um dünnes Blech handelt, welches sowohl bei nicht festhaftender als auch festhaftender Kontamination die Grenzwerte der Transportvorschriften für zugängliche Oberflächen ausschöpft. Für die so

kontaminierte Fläche wird unterstellt, dass diese sich zu 100 m² summiert. Als Dicke des Bleches wird 1 mm angenommen.

Unterstellt man eine einseitige Kontamination der Bleche auf einer Fläche von 100 m², so ergäbe sich im Falle von Stahlblech von 1 mm Dicke eine Gesamtmasse von ca. 780 kg im Behälter und im Fall von Aluminium von ca. 270 kg.

Die Kontamination dieser 100 m² entspricht damit den maximal zulässigen Werten der Tab. 6-1, wobei ein Fall betrachtet wird, bei dem die Kontamination durch Beta-/Gammastrahler und Alpha-Strahler niedriger Toxizität und im zweiten Fall durch sonstige Alpha-Strahler verursacht ist. Zur Vereinfachung der Analyse radiologischer Konsequenzen können die in der Einheit Bq/cm² in Tab. 6-1 aufgeführten maximal zulässigen Kontaminationswerte mit konservativen Annahmen in Kontaminationswerte in der Einheit A₂/cm² ausgedrückt werden. Die Begründung dafür ist, dass das radiologische 50 mSv effektive Dosis Kriterium für die durch Transportunfälle verursachte Exposition von Personen auch durch eine Aktivitätsaufnahme über Inhalation von 10⁻⁶ A₂ ausgedrückt werden kann. Die nuklidspezifischen A₂-Werte finden sich in Tabelle 2 (Basic radionuclide values) der IAEA Transportvorschriften (IAEA, 2014) und werden in mehreren Zusammenhängen für Aktivitätsbegrenzungen, z.B. bei Typ A Versandstücken, verwendet. Die Umrechnung wird dadurch möglich, indem man die dort in Tabelle 3 (Basic radionuclide values for unknown radionuclides or mixtures) aufgeführten konservativen A₂-Werte heranzieht:

- Beta-/Gamma strahlende Radionuklide: $A_2 = 2 \cdot 10^{10}$ Bq
- Alpha strahlende Radionuklide: $A_2 = 9 \cdot 10^7$ Bq

Auf diese Weise lassen sich die Kontaminationswerte der Tab. 6-1 in den Einheiten Bq/cm² als Vielfache der A₂-Werte pro cm² ausdrücken Tab. 6-2:

Tab. 6-2 Umgerechnete Kontaminationsbegrenzungen auf zugänglichen Oberflächen von SCO-II Gegenständen als Vielfache von A_2/cm^2

| Contamination | beta/gamma + low toxicity alpha | alpha |
|---------------|------------------------------------|------------------------------|
| non-fixed | $2 \cdot 10^{-8} A_2/cm^2$ | $4.4 \cdot 10^{-7} A_2/cm^2$ |
| fixed | $4 \cdot 10^{-5} A_2/cm^2$ | $8.9 \cdot 10^{-4} A_2/cm^2$ |

Diese Umwandlung der zulässigen Kontaminationswerte mit der Einheit Bq/cm^2 in die Einheit A_2/cm^2 ist mit einer teilweise sehr deutlichen Konservativität verbunden. Für viele wichtige Beta-/Gamma Strahler aus industriellen Anwendungen, Forschung und Brennstoffkreislauf wie z.B. Co 60, Sr 90, Cs 137 sind die zugehörigen A_2 -Werte um mehr als einen Faktor 10 höher. Für gängige Alpha-Strahler wie z.B. Ra 226, Pu 239 oder Am 241 sind die Unterschiede geringer.

6.4 Freisetzung lungengängiger Partikel aus einem durch Unfall beschädigten IP-2 Transportbehälter mit SCO-II Gegenständen

Für den betrachteten IP-2 Behälter mit hochkontaminierten Blechen wird ein Unfall unterstellt, der zu einer Aufprallbelastung vergleichbar mit einem Absturz aus ca. 9 m Höhe auf ein hartes Hindernis führt, z.B. ein Betonfundament. Damit Kontamination von den SCO-II Gegenständen im Behälter zunächst ins Behälterinnere und anschließend infolge von Beschädigungen des Behälters luftgetragen in die Umgebung gelangt, muss ein Anteil der Kontamination durch die Unfalleinwirkungen abgelöst, im Innern luftgetragen werden und dann durch Luftströmung zu durch die Unfallbelastungen entstandenen Behälteröffnungen befördert werden. Dabei sind für eine Inhalationsbelastung von Personen freigesetzte Partikel im lungengängigen Größenbereich maßgeblich.

Eine Ablösung von Partikeln von kontaminierten Oberflächen im Behälterinneren kann durch induzierte Luftströmungen infolge einer vorübergehenden Druckerhöhung bei mechanischen Unfalleinwirkungen am Behälter, durch induzierte Oberflächenvibration auf den SCO-II Gegenständen bei mechanischer Impaktbelastung oder auch durch interne Relativbewegungen der kontaminierten Gegenstände verursacht werden, wenn dadurch Oberflächen aneinander schaben. Ein Ausströmen von Luft durch entstandene Behälteröffnungen erfolgt dabei nur für kurze Zeit, bis Druckausgleich erreicht ist. Dadurch können im Innern lokal hohe Strömungspulse auftreten, die dort zu einer Resuspension von Partikeln führen. Im Vergleich dazu werden jedoch durch Schlagbelastung induzierte Oberflächenvibrationen in wesentlich höherem Maße zu resuspendierten Partikeln von kontaminierten Oberflächen führen. Das zeigen auch Messungen in dem Vorhaben (FhG 2012) und in der vorliegenden Studie. Außerdem betreffen induzierte Vibrationen alle Oberflächen der SCO-II Gegenstände im Behälter, während Luftströmungspulse eher lokal zu erwarten sind.

Wie schon angesprochen, wird bei dem analysierten Unfallzenario angenommen, dass alle 100 m² kontaminierte Oberflächen im Behälter zumindest soweit zugänglich sind, dass abgelöste Partikel durch intern induzierte Luftströmungen zu entstandenen Behälteröffnungen gelangen könnten. Dabei würde die Freisetzung aus entstandenen Behälteröffnungen bevorzugt von Oberflächen resultieren, von denen aus die Transportwege zur Öffnung kurz sind. Dieser Freisetzungsweg in die Behälterumgebung infolge kurzzeitig induzierter Luftströmung im Behälterinnern würde eine Freisetzung dominieren im Vergleich zu nachfolgender langsamer Diffusion, bei der eine deutliche Abnahme durch Redepositionsvorgänge an inneren Oberflächen erfolgen würde.

Im Vergleich zur stoßinduzierten Resuspension von allen zugänglichen Oberflächen der SCO-II Gegenstände ist nicht zu erwarten, dass eventuell

lokal wirksames Abschaben zwischen einzelnen Gegenständen beim Aufprall einen wesentlichen Beitrag zur Freisetzung lungengängiger Partikel aus Behälteröffnungen liefert.

Bei der folgenden Analyse potenzieller radiologischer Konsequenzen wird angenommen, dass 10 % der insgesamt durch einen Behälteraufprall von kontaminierten Oberflächen resuspendierten lungengängigen Partikel durch entstandene Öffnungen luftgetragen in die Umgebung freigesetzt werden. Das entspricht einem Rückhaltefaktor von 0.1. Diese vorsichtige Annahme wird auch gestützt durch frühere Experimente zur Freisetzung aus IP-2 Behältern mit LSA-Stoffen bei Aufprall auf ein hartes Fundament aus 9 m Höhe (Lange et al., 2007).

6.4.1 Auf den Resuspensionsmessungen basierte Resuspensionsanteile für SCO-II Oberflächen bei der postulierten Unfallbelastung

Maßgeblich für die beim Aufprall eines Behälters auf ein hartes Hindernis induzierte Resuspension von kontaminierten Oberflächen sind die dabei auftretenden Beschleunigungsamplituden von Oberflächenschwingungen. Bei Fallversuchen mit einer Vielzahl von unterschiedlichen Transport- und Lagerbehältern für radioaktive Stoffe sind Beschleunigungsverläufe an Außenflächen durch Beschleunigungssensoren gemessen worden. Als Beispiel für sehr gut dokumentierte Fallversuche wird hier auf die Abb. 2-4 verwiesen. Bei diesen bei der BAM durchgeführten Fallversuchen mit einem großen kubischen (1600x1600x1600 mm) japanischen Behälter 'Yoyushindo-Disposal waste container' mit Wanddicken aus C-Stahl von 5 cm Dicke sind Fallversuche aus 8 m Höhe auf ein Betonfundament durchgeführt worden. Bei den Fallversuchen waren die Behälter zur Simulation des Inhalts mit Stahlplatten von ca. 20 t befüllt. Der Deckel des Behälters ist verschweißt. Dieser Typ von Behälter ist für eine Lagerung von schwach bis mittelaktiven Abfällen vorgesehen und dürfte als IP-2 Verpackung qualifiziert sein.

Die Behälter waren so orientiert, dass sie aus 8 m Höhe mit einer Ecke auf das Fundament aufprallten. Ein damit verbundenes lokales Eindringen in die dicke Betonplatte führte zu einem Krater von ca. 20 cm Tiefe. An der Behälterwandung gemessene Beschleunigungsamplituden bewegen sich bei Werten bis zu 150 g. Diese Beschleunigungswerte dürften niedriger sein aufgrund der Abbremswirkung durch den Eindringvorgang in den Beton. Sie können jedoch als durchaus realistische Impaktbedingungen bei schweren Transportunfällen angesehen werden, bei denen Behälter mit LSA-Stoffen und SCO-II Gegenständen betroffen sind. Wie vorne ausführlicher behandelt, treten bei Fallversuchen mit anderen Behältern und härteren Fundamenten auch höhere Beschleunigungswerte auf.

Bei den Resuspensionsexperimenten sind auf die kontaminierten Probeplatten Schlagbelastungen durch den Fallhammer systematisch variiert worden (siehe Abb. 4.3). Die gemessenen Resuspensionsanteile zeigen eine deutliche Abhängigkeit von gemessenen Beschleunigungswerten an den kontaminierten Probeflächen. Mit der Zielsetzung einen abdeckenden Wert für die einwirkenden Impaktkräfte und damit verbundene Beschleunigungsamplituden heranzuziehen, wird hier ein Wert von 2000 g verwendet. In der folgenden Tab. 6-3 werden aus den Resuspensionsmessungen abgeleitete resuspendierte Anteile bei hohen Beschleunigungsamplituden von 1000 und 2000 g zusammengestellt für nicht festhaftende Kontamination und für als „festhaftende Kontamination“ bezeichnete Bedingungen.

Die in Tab. 6-3 aufgeführten, resuspendierten Anteile für als **nicht festhaftend** einzustufende Kontamination lassen sich aus Messungen eines Vorgängervorhabens ableiten (Koch et al., 2012). Die resuspendierten Anteile für kontaminierte Oberflächen mit höheren Haftkräften als Ergebnis einer nassen Deposition mit anschließender Trocknung basieren auf den ausführlich diskutierten Messungen in dem vorliegenden

Forschungsvorhaben. Diese Werte werden hier als obere Abschätzung für **festhaftende Kontamination** herangezogen. Beim Vergleich der in Tab. ausgeführten resuspendierten Anteile für schlaginduzierte Oberflächenvibrationen mit Amplituden von 1000 g bzw. 2000 g ist zu erkennen, dass sie sich jeweils um rund ein Faktor 5 unterscheiden. Bei den folgenden radiologischen Konsequenzenanalysen werden die Werte für 2000 g als abdeckende Werte herangezogen.

Tab. 6-3 Aus den Messungen abgeleitete resuspendierte Anteile für nicht festhaftende und für „festhaftende Kontamination“ in Abhängigkeit von durch Impakt induzierte Oberflächenschwingungen von 1000 g und 2000 g.

| Max. Beschleunigung [g] | R _F (<10 µm) für nicht festhaftende Kontamination | R _F (<10 µm) für festhaftende Kontamination |
|-------------------------|--|--|
| 1000 | 2·10 ⁻³ | 8·10 ⁻⁵ |
| 2000 | 1·10 ⁻² | 4·10 ⁻⁴ |

6.5 Radiologische Konsequenzen eines schweren Transportunfalls eines IP-2 Behälters mit hochkontaminierten SCO-II Gegenständen

Es wird die potenzielle Strahlenexposition einer Person durch Inhalation abgeschätzt, die sich bei dem postulierten Unfall der IP-2 Verpackung mit SCO-II Gegenständen in Ausbreitungsrichtung der vorbeiziehenden Schadstoffwolke in einigen 10 m Abstand vom Unfallort aufhält. Für die dünnwandigen Bleche im Behälter wird angenommen, dass deren kontaminierte Oberfläche 100 m² beträgt. Diese sind am jeweiligen zulässigen Limit der nicht festhaftenden und der festhaftenden Kontamination kontaminiert. Dabei besteht die Kontamination in einem Fall aus Beta-/Gamma-strahlenden Radionukliden im anderen Fall aus Alpha-strahlenden Radionukliden. Die maximal zulässigen Kontaminationen ausgedrückt in der Einheit A₂/cm² sind in Tab. 6-2 aufgeführt. Damit lässt sich die gesamte Aktivität jeweils in Einheiten von A₂ auf den kontaminierten 100 m² der dünnen Bleche berechnen:

Beta-/Gamma-Strahler: 40 A₂
Alpha-Strahler: 890 A₂

Gesamtaktivitäten, die sich zu 40 A₂ addieren, könnten mit den Anforderungen des para. 517 von SSR-6 (IAEA, 2018) in Konflikt sein, wenn die Dosisleistung der unabgeschirmten SCO-II Gegenstände in einer IP-2 Verpackung in 3 m Abstand 10 mSv/h übersteigt. Geht man zurück auf die eigentliche Kontaminationsbegrenzung für festhaftende Beta-/Gammastrahler von 8·10⁵ Bq/cm² entspricht das einer Gesamtaktivität auf den 100 m² von 8·10¹¹ Bq. Bei härteren Gamma-strahlenden Radionukliden liegt der A₁-Wert in diesem Bereich. Der A₁-Wert eines Radionuklids ist durch eine Dosisleistung im Bereich 10 mSv/h in 3 m Abstand bestimmt.

Eine Kontamination im IP-2 Versandstück mit Alpha-Strahlern, die sich auf 890 A₂ summiert, steht nicht in Einklang mit para. 517 von von IAEA No. SSR-6. Danach gilt eine obere Aktivitätsgrenze von 100 A₂ für das Transportmittel oder einzelne Frachträume bei Schiffen, wenn es sich nicht um Binnenschiffahrt handelt, In diesem Fall beträgt die Begrenzung für Frachträume eines Binnenschiffes 10 A₂.

Diese Hinweise verdeutlichen auch, dass die hier unterstellte Konfiguration eines IP-2 Versandstückes mit SCO-II Gegenständen mit 100 m² Gesamtfläche, bei der die zulässigen Kontaminationsgrenzen ausgeschöpft werden, ziemlich extrem und teilweise jenseits realistischer Bedingungen ist. Dennoch werden im Folgenden potenzielle radiologische Folgen mit diesen Annahmen analysiert.

Die Ermittlung der potenziellen Exposition einer Person in der näheren Umgebung des Unfallortes gliedert sich in folgende Schritte:

1. Bestimmung der Gesamtkontamination, die sich aus flächenbezogener Kontamination [A₂/cm²] und der kontaminierten

Fläche [cm²] ergibt, mit der Annahme, dass alle kontaminierten Flächen zugänglich sind.

2. Bestimmung der innerhalb des Versandstückes durch die postulierte Unfallbelastung resuspendierten Aktivität lungengängiger Partikel über den resuspendierten Anteil beim Aufprall RA [-]. Hierbei werden die experimentell bestimmten resuspendierten Anteile bei induzierter Oberflächenvibration mit Beschleunigungsamplituden von 2000 g verwendet.
3. Bestimmung des Anteils der im Innern resuspendierten lungengängigen Partikel, der über beim Aufprall entstandene Öffnungen in der beschädigten Umschließung in die umgebende Atmosphäre freigesetzt wird. Basiert auf Freisetzungsexperimenten mit LSA-II und LSA-III Stoffen in IP-2 Verpackungen (Lange et al., 2007) kann für Fallhöhen von 9 m auf ein hartes Fundament ein Rückhaltefaktor von ≤ 0.1 durch die Umschließung angenommen werden. Das ist auch aus der obigen Beschreibung der luftgetragenen Transportvorgänge von resuspendierten Partikeln im Innern zu entstandenen Öffnungen einer beschädigten Verpackung als vorsichtige Annahme plausibel.
4. Bestimmung des Anteils der aus dem Versandstück freigesetzten lungengängigen Partikel, der von einer Person in der näheren Umgebung bei Aufenthalt in der vorbeiziehenden Schadstoffwolke durch Inhalation aufgenommen wird. Dieser ist bestimmt durch einen Ausbreitungsfaktor χ [s/m³] und die angenommene Atemrate [m³/s] (hier einer erwachsenen Person). Unter der Berücksichtigung der Kinematik einer kurzzeitigen Staubbefreiung aus einem Transportbehälter bei einem schweren Unfall stellt ein Ausbreitungsfaktor $\chi = 10^{-2}$ s/m³ eine vorsichtige Annahme zur

zeitintegrierten Konzentration bei Aufenthalt in der Schadstoffwolke in einigen 10 m Entfernung dar. Für die Atemrate AR einer erwachsenen Person wird $AR = 3 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ verwendet. Der Anteil von aus dem Behälter freigesetzten lungengängigen Partikeln, welcher von einer Person über Inhalation aufgenommen wird, ist durch das Produkt von Ausbreitungsfaktor und Atemrate bestimmt und beträgt hier $3 \cdot 10^{-6}$.

Damit ist die Aktivitätsaufnahme einer Person über Inhalation, ausgedrückt in Vielfachen von A_2 , gegeben durch:

Aktivitätsaufnahme $[A_2] = \text{Kontaminationsniveau } [A_2/\text{cm}^2] \bullet \text{kontaminierte Fläche } [\text{cm}^2] \bullet \text{resuspendierter Anteil } [-] \bullet \text{Rückhaltefaktor der Umschließung} \bullet \text{inhalierter Anteil der luftgetragenen Freisetzung}$

In der folgenden Tab. 6-4 sind unter Verwendung der diskutierten Parameter die nach dieser Beziehung ermittelten Aktivitätsaufnahmen bei der betrachteten schweren Unfallbelastung eines IP-2 mit hochkontaminierten SCO-II Gegenständen zusammengestellt:

Tab. 6-4 Zusammenfassung der potenziellen Aktivitätsaufnahme einer Person in Vielfachen von A_2 für den hypothetischen schweren Unfall eines IP-2 Versandstückes mit hoher Beta/Gamma oder Alpha Kontamination.

| Kontamination A_2/cm^2 | SCO-II Ober- Fläche cm^2 | Resus- pen- dierter Anteil | Rück- halte- faktor Be- hälter | Inhalierter Bruchteil der Frei- setzung | Inhalier- te Aktivi- tät A_2 |
|---|--|-------------------------------------|---|--|---|
| $2 \cdot 10^{-8}$ nicht fest- haftend beta/gamma | 10^6 | 10^{-2} | 10^{-1} | $3.3 \cdot 10^{-6}$ | $6.6 \cdot 10^{-11}$ |
| $4 \cdot 10^{-5}$ festhaftend beta/gamma | 10^6 | $4 \cdot 10^{-4}$ | 10^{-1} | $3.3 \cdot 10^{-6}$ | $5.3 \cdot 10^{-9}$ |
| $4.4 \cdot 10^{-7}$ nicht fest- haftend alpha | 10^6 | 10^{-2} | 10^{-1} | $3.3 \cdot 10^{-6}$ | $1.5 \cdot 10^{-9}$ |
| $8.9 \cdot 10^{-4}$ festhaftend alpha | 10^6 | $4 \cdot 10^{-4}$ | 10^{-1} | $3.3 \cdot 10^{-6}$ | $1.2 \cdot 10^{-7}$ |

6.6 Bewertung der ermittelten radiologischen Konsequenzen im Hinblick auf Anforderungen der IAEA Transportvorschriften für SCO-II Gegenstände

Die in Tab. 6-4 zusammengestellten Ergebnisse zur potenziellen Strahlenexposition einer Person bei hoher Unfallbelastung einer IP-2 Verpackung mit hochkontaminierten SCO-II Gegenständen zeigen, dass durchgehend Aktivitätsaufnahmen deutlich unterhalb von $10^{-6} A_2$ bleiben würden. Nur für den Sonderfall eines Versandstückes mit einer kontaminierten Gesamtfläche von 100 m^2 an der oberen Grenze von „festhaftender“ Alpha-Aktivität liegt die berechnete Aktivitätsaufnahme

einer Person in der näheren Umgebung mit $1.2 \cdot 10^{-7} A_2$ nur um einen Faktor von ca. 8 unterhalb von $10^{-6} A_2$. Ansonsten wird dieser Bezugswert um mehr als einen Faktor 100 unterschritten. Es ist vorne schon darauf hingewiesen worden, dass die konstruierten Kontaminationsbedingungen mit Alpha-Aktivität in diesem Fall zu einer Gesamtaktivität des Versandstückes von 890 A_2 führen würden und folglich eine Begrenzung von 100 A_2 für das Transportmittel weit überschreiten. Wird die Begrenzung der maximalen Alpha-Aktivität berücksichtigt, indem man diese im Verhältnis 100 A_2 zu 890 A_2 im betrachteten IP-2 Versandstück reduziert, so ergibt sich eine potentielle Aktivitätsaufnahme von $2 \cdot 10^{-8} A_2$, statt der in Tab. 6-4 ausgewiesenen $1.2 \cdot 10^{-7} A_2$. Das entspricht einer effektiven Dosis von 1 mSv im Vergleich zum Zielwert der IAEA Transportvorschriften von 50 mSv.

Die unter sehr ungünstigen Annahmen zum Behälterinventar und zu Unfallbelastungen auf Basis der experimentell bestimmten resuspendierten Anteile berechneten Strahlenexpositionen belegen, dass sehr hohe Sicherheitsreserven bei der Beförderung von SCO-II Gegenständen in IP-2 Verpackungen bestehen. Betrachtet man die aus den Resuspensionsexperimenten deutlich konservativ abgeleiteten Werte der resuspendierten Anteile für Unfallbelastungen bei einem 9 m Fall auf ein hartes Hindernis, so erkennt man aus Tab. 6-4, dass sich die Werte von $4 \cdot 10^{-4}$ für „festhaftende“ Kontamination und von 10^{-2} für nicht festhaftende Kontamination um einen Faktor 25 unterscheiden. Daraus wird ersichtlich, dass das $10^{-6} A_2$ Aktivitätsaufnahme Kriterium bei dem fiktiven Versandstück mit Beta-/Gamma Kontamination auch erfüllt wäre, wenn man für festhaftende Aktivität statt $4 \cdot 10^{-4}$ ebenfalls den für nicht festhaftende Kontamination verwendeten höheren Wert des resuspendierten Anteils von 10^{-2} verwenden würde. Das bedeutet, dass die in einem Vorgängervorhaben (Koch et al., 2012) gemessenen und in diesem Vorhaben untermauerten resuspendierten Anteile für eine als nicht festhaftend eingestufte Kontamination bei hoher Impaktbelastung auch schon für als „festhaftend“ eingestufte Kontamination hinreichend niedrig

sind. Bei Unfallbedingungen mit SCO-II Gegenständen reicht auch ein resuspendierter Anteil von 10^{-2} statt $4 \cdot 10^{-4}$, dass für festhaftende Kontamination das radiologische Kriterium von 50 mSv effektive Dosis eingehalten ist. Damit wäre die Notwendigkeit eines Nachweises, dass es sich bei einer Kontamination um festhaftende im Sinne der Transportvorschriften handelt deutlich relativiert.

Es sollte hier aber nochmal darauf hingewiesen werden, dass bei den Resuspensionsexperimenten mit Schlagbelastung eine als nicht festhaftend eingestufte Kontamination eine sehr begrenzte Vorbehandlung durch eine einstündige Einwirkung einer Luftströmung von ca. 6 m/s erfahren hat. Damit sollte bei einer durch trockene Deposition von luftgetragenen Partikeln frisch kontaminierten Probenfläche der sehr locker haftende Anteil entfernt werden. Es kann aus Sicht der Autoren generell davon ausgegangen werden, dass bei als SCO-II beförderten Gegenständen durch vorherige gängige Handhabung und/oder Alterungseffekte ein eventueller Anteil sehr locker haftender lungengängiger Partikel entfernt oder in Richtung stärker haftend umgewandelt worden ist. Unter diesen Voraussetzungen stellt ein resuspendierter Anteil von 10^{-2} für nicht festhaftende Kontamination auf SCO-II Gegenständen für sehr hohe Aufprallbelastung einen hinreichend vorsichtigen Wert dar.

6.7 Überlegungen zu weiteren Gesichtspunkten bei Anforderungen der IAEA Transportvorschriften an SCO-II Gegenstände und LSA-II und LSA-III Stoffe

Die in Tab. 6-4 zusammengefassten Ergebnisse zu potenziellen radiologischen Konsequenzen bei einem schweren Transportunfall, der zu einer hohen mechanischen Belastung eines IP-2 Versandstücks mit eher extrem kontaminierten SCO-II Gegenständen führt, zeigen, dass das radiologische Kriterium einer Aktivitätsaufnahme von 10^{-6} A₂ weit unterschritten würde. Diese Überprüfung basiert auf experimentellen

Ergebnissen zu stoßinduzierten Resuspension lungengängiger Partikel von kontaminierten Oberflächen, die bisher nicht verfügbar waren. Die Ergebnisse verdeutlichen, dass mit den derzeit geltenden Kontaminationsbegrenzungen der IAEA Transportvorschriften für SCO-II Gegenstände signifikante Sicherheitsreserven bestehen.

Das führt zu der Frage, ob es gute Gründe gäbe, darauf basierend die aktuellen Kontaminationsbegrenzungen durch höhere Werte für zulässige nicht festhaftende und festhaftende Kontamination zu ersetzen. Diese Frage bleibt hier offen. Nach unserem gegenwärtigen Kenntnisstand spricht wohl einiges dafür, dass die aktuellen Kontaminationsbegrenzungen für die gängige Praxis ausreichend sind.

Die aktuellen Kontaminationsbegrenzungen der IAEA Transportvorschriften für SCO-II Gegenstände basieren auf dem radiologischen Ziel, dass bei einer Freisetzung von lungengängiger Aktivität durch einen Transportunfall eine potenzielle Exposition einer Person 50 mSv effektive Dosis nicht übersteigt. Zusätzlich besteht die Forderung, dass der kontaminierte Gegenstand nicht selbst radioaktiv sein darf, z.B. durch Aktivierung. Es ist fraglich, ob diese Anforderung aus Gesichtspunkten eines möglichen Beitrages zu einer Freisetzung radioaktiver Stoffe aus einem durch Unfall beschädigten Behälter gut begründet ist. Es dürfte lohnend sein, diese zusätzliche Anforderung mit quantitativen Daten zu hinterfragen. Viel spricht dafür, dass eine äußere Kontamination für eine Freisetzung lungengängiger radioaktiver Partikel viel dominierender ist.

Die Transportvorschriften bieten bei Gegenständen, die selbst radioaktiv sind, z.B. infolge Aktivierung, den Ausweg, SCO-II Gegenstände als LSA-II oder LSA-III Stoffe in IP-2 oder IP-3 Verpackungen zu befördern. Hierzu soll im Folgenden der in diesem Bericht postulierte und analysierte Behälter mit SCO-Gegenständen von 100 m² zugänglichen Oberflächen, die die Begrenzungen für nicht festhaftende und festhaftende Kontamination

ausschöpfen, auf Konformität mit den Begrenzungen der spezifischen Aktivität für LSA-II oder LSA-III Stoffe überprüft werden.

Für LSA-II Stoffe ist die auf die Masse des Materials bezogene spezifische Aktivität auf $10^{-4} \text{ A}_2/\text{g}$ beschränkt und für LSA-III Stoffe auf $2 \cdot 10^{-3} \text{ A}_2/\text{g}$. In Tab. 6-2 sind die umgerechneten Kontaminationsbegrenzungen auf zugänglichen Oberflächen von SCO-II Gegenständen als Vielfache von A_2/cm^2 zusammengestellt. Diese Umrechnung ist für harte Gamma-Strahler deutlich konservativ, nicht so ausgeprägt demgegenüber für Alpha-Strahler. Die Kontaminationsbegrenzung beträgt $4 \cdot 10^{-5} \text{ A}_2/\text{cm}^2$ für Beta-/Gamma-Strahler und Alpha-Strahler niedriger Toxizität und für sonstige Alpha-Strahler aufgerundet $9 \cdot 10^{-4} \text{ A}_2/\text{cm}^2$. In die Umrechnung der Oberflächenkontamination in eine massenbezogene spezifische Aktivität gehen das spezifische Gewicht des kontaminierten Materials und seine Dicke ein. Beispielsweise für Eisen (Fe) 7.8 g/cm^3 oder für Aluminium (Al) 2.7 g/cm^3 . Die Annahme, dass die so kontaminierten Bleche nur eine Dicke von 0.1 cm haben führt natürlich zu ungünstigen Werten der spezifischen Aktivität, da die Mittelung nur über eine sehr kleine Masse pro cm^2 kontaminierte Fläche erfolgt.

Unter diesen als sehr ungünstig anzusehenden Bedingungen ergeben sich die über das 0.1 cm dicke Material aus Eisen bzw. Aluminium gemittelten spezifischen Aktiviten der Tab. 6-5.

Tab. 6-5 Für die dünnen SCO-II Bleche von 0.1 cm Dicke mit maximal zulässiger Oberflächenkontamination berechnete massenbezogene spezifische Aktivität zum Vergleich mit LSA-II oder LSA-III Spezifikationen

| Kontamination A_2/cm^2 | Spez. Aktivität A_2/g Fe-Blech 0.1 cm dick | Spez. Aktivität A_2/g Al-Blech 0.1 cm dick |
|---|---|---|
| Beta/Gamma $4 \cdot 10^{-5}$ | $5.1 \cdot 10^{-5}$ | $1.5 \cdot 10^{-4}$ |
| Alpha $9 \cdot 10^{-4}$ | $1.2 \cdot 10^{-3}$ | $3.3 \cdot 10^{-3}$ |

Es zeigt sich, dass auch für den ungünstigen Fall der maximal kontaminierten SCO-II Bleche von 0.1 cm Dicke, die Begrenzungen der spezifischen Aktivität für LSA-II oder LSA-III Stoffe näherungsweise eingehalten wären. Daraus kann man den Schluss ziehen, dass eine Einstufung von SCO-II Gegenständen mit Kontamination am oberen Limit als LSA-II oder LSA-III aus Gesichtspunkten der Transportsicherheit durchaus gerechtfertigt wäre. Zu dieser Schlussfolgerung trägt insbesondere das hier auf mögliche radiologische Folgen analysierte IP-2 Versandstück bei, für das in diesem Bericht gezeigt wurde, dass selbst bei hoher Oberflächenkontamination unter Unfallbedingungen das radiologische Kriterium von 50 mSv effektive Dosis deutlich eingehalten wird.

7 Literatur

Droste, B., Gogolin, B., Quercetti, T., Ritscher, D. (1992), Drop tests of a cubic DCI container for radioactive waste, Proceedings of PATRAM conference 1992

Hubbard, J.A., Brockmann, J.E., Rivera, D., Moore, D.G. (2012) Experimental study of impulse resuspension with Laser Doppler Vibrometry. *Aerosol Science and Technology*, 46:1303–1312.

IAEA Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material Specific safety requirements (2018), IAEA No. SSR-6 (Rev.1)

International Atomic Energy Agency (IAEA): Advisory Material for the IAEA Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, (2012 Edition), IAEA Safety Standards Series No. SSG-26, International Atomic Energy Agency, Vienna 2014

Kim, Y., Wellum, G., Mello, K., Strawhecker, K.E., Thoms, R., Giaya, A., and

Wyslouzil, B.E., (2016), Effects of relative humidity and particle and surface properties on particle resuspension rates. *Aerosol Science and Technology*, 50: 339–352

Koch, W., Lödding, H., Lange, H. (2012) Experimentelle Bestimmung von Resuspensionsdaten partikelgebundener radioaktiver Stoffe von relevanten kontaminierten Oberflächen bei radiologischen Notfällen zur Beurteilung einer Exposition von Einsatzpersonal und betroffenen Personen durch Resuspension – Vorhaben 3609S70005,

<http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-201201167025>

Lange, F., Martens, R., Nolte, O., Lödding, H., Koch, W. (2007) Testing of packages with LSA materials in very severe mechanical impact conditions with measurement of airborne release. *Packaging, Transport, Storage Security of Radioactive Materials*, 18:59-71

Lo Frano, R., Pugliese, G, Nasta, M. (2014) Structural performance of an IP2 package in free drop test conditions: Numerical and experimental evaluations. *Nuclear Engineering and Design* 280:634–643

McConnell, P., Sorenson, K.B. (1995) Sandia National Laboratories cask drop test programme: A demonstration of fracture mechanics principles for the prevention of brittle fracture. *RAMTRANS*, 6:158-163

Maheras, S, Lahti. E., Ross, S.B. (2013) Used fuel disposition campaign: Transportation shock and vibration, Literature Review, FCRD-UFD-2013-000169, PNNL-22514

Mussolf, A., Müller, K., Neumann, M., Kadji, A., Droste, B. (2007), Drop test results of the full-scale CONSTOR V/TC prototype, Proceedings of PATRAM conference 2007

Nasr, B., Dhaniyala, S., Ahmadi, G. (2017) Particle resuspension from surfaces: Overview of theoretical models and experimental results. In Kohli, R., Mittal, K. L. (eds.) Developments in surface contamination and cleaning: Types of contamination and contamination resources. Elsevier, Amsterdam, Vol. 10: 55-85

Quercetti, M., Nakagami, T., Komatsuki, S., Musolff, A., Müller, K., Droste B., Fujisawa, K. (2010), Disposal container safety assessment – drop tests with ‘Yoyushindo-Disposal’ waste container onto concrete target. Packaging, Transport, Storage & Security of Radioactive Material, 21:132-141

Rajendran, R., Prem Sai, K., Joy, S., Krishnamurthy, K.C., Basu, S. (2005) Vertical impact shock response of a cask model on a rigid unyielding surface. Intl. J. Impact Engineering, 31:307-325

Reeks, M.W., Hall, D. (2001) Kinetic model for particle resuspension in turbulent flows: theory and measurement. J. Aerosol Sci., 28:623-634

Sanders, T.L., Seager, K.D., Rashid, Y.R., Barrett, P.R., Malinausjas, A.P., Einziger, R.E., Jordan, H., Duffey, T.A., Sutherland, S.H., Reardon, P.C. (1992) A method or determining the spent-fuel contribution to transport cask containment requirements, Sandia Report TTC-1019

Wanka, S., Kappl, M., Markus Wolkenhauer, M., Butt, H.J. (2012) Measuring Adhesion Forces in Powder Collectives by Inertial Detachment. Langmuir, 29:16075–16083.

8 Anhang

8.1 Bewertung im Vergleich zur Vorhabensbeschreibung

Im Zuge der Literaturstudie und der Ergebnisse erster kleinskaliger Untersuchungen wurden notwendige Änderungen im Arbeitsplan erkennbar. Insbesondere wurde die Reduzierung der Nachweisgrenze erforderlich, um Szenarien in Richtung „festhaftende“ Kontamination zu untersuchen. Dies machte umfangreiche Arbeiten zur Präparation des kleinskaligen Strömungskanals und zur Etablierung einer entsprechend nachweisstarken Messmethodik erforderlich. Vorab sind allerdings konstruktive Arbeiten durchgeführt und ein Zeichnungssatz für die im Antrag vorgeschlagene Modifikation eines großskaligen Ansatzes erstellt worden, die nicht mehr zur Umsetzung kamen.

Wegen der komplexen Abhängigkeiten der Resuspension von den beeinflussenden Parametern bei Messungen nahe der Nachweisgrenze sind eine große Anzahl von Dateisätzen erzeugt worden. Nur durch systematischen Ansatz und Versuchswiederholungen konnten Trends herausgearbeitet werden. Großskalige Tests hätten kein Mehr an Information gebracht, da die Resuspension ein mikroskaliges Phänomen ist und die Beschleunigungen am Ort der Partikel die Partikelkinetik und somit die Freisetzung bestimmen. Daher waren die kleinskaligen Experimente ausreichend und die Entscheidung, diese unter Weglassen der wenigen, technisch sehr aufwändigen, großskaligen Experimente deutlich auszuweiten, war im Hinblick auf die finalen Aussagen des Vorhabens zielführend. Durch die große Zahl der kleinskaligen Tests wurde im experimentellen Teil AP 2 und 3 des Vorhabens die Verwendung der Mittel entsprechend umgewidmet.

Darüber hinaus wurde aufgrund ihrer Komplexität die Messungen ausschließlich von den Ingenieuren durchgeführt und das im Mengengerüst vorgesehene Kontingent des Laboranten auf die Ingenieure übertragen.

